射出成形品の板厚方向の層構造と成形過程における樹脂挙動に関する一考察

石島 守^{*1}・山部 昌^{*1}・永田 真一^{*2}
新保 實^{*2}・宮野 靖^{*2}

The Relation between the Layered Structure and the Resin Behavior in Injection Molding Process

Mamoru ISHIJIMA^{*1}, Masashi YAMABE^{*1}, Shinichi NAGATA^{*2}
Minoru SHIMBO^{*2}, Yasushi MIYANO^{*2}

In injection molding process, the molten resin flows speedy into the thin cavity and this causes high shear stress condition. In addition, the resin is rapidly cooled and solidified from the surface of the molded even if the molten resin flows in the cavity. It was reported that these phenomena result in the layered structure of the molded.

In this paper, the cross-sectional polarizing microphotograph of injection molded plates were analyzed for various molding condition so as to examine the effect of molding condition on the layered structure. In order to clarify the generating mechanism of layered structure, the observed layered structures were correlated with the solidified layer thickening process during injection molding and time dependence of maximum shear stress, which were obtained by the injection molding simulation. As a result, it was shown that the maximum shear stress occurred between the solid and liquid layers drastically changes when the thickening rate of the solidified layer changes discontinuously, and that the depth of the boundaries among the layers is in accordance with the depth at where the maximum shear stress changes drastically. These two facts enable us to conclude that the generation of the layered structure is dominated both by the changes of solidified layer thickening and by the maximum shear stress between the solid and liquid layers.

Key words : Injection molding simulation/Layered structure/Solidified layer/Maximum shear stress/Generation Mechanism

^{*1} 日産自動車(株) 技術開発センター
厚木市岡津古久 560-2 (〒 243-01)
Simultaneous Engineering Center
Nissan Motor Co., Ltd.
560-2 Okatsukoku, Atsugi, Kanagawa 243-01 Japan

^{*2} 金沢工業大学 材料システム工学科
石川県石川郡野々市町扇が丘 7-1 (〒 921)
Department of Mechanical System Engineering
Kanazawa Institute of Technology
7-1 Ohgigaoka, Nonoichi, Ishikawa-gun, Ishikawa
921 Japan
1995.6.3 受理

1. 緒言

射出成形では高温の樹脂が高速でキャビティ内に流入し、なおかつ流入過程においても金型からの急冷や樹脂のせん断発熱などが生じる。すなわち、金型内の樹脂はキャビティ内で厚み方向に不均一な高せん断応力や複雑な温度履歴を受けている。このような現象により、射出成形品の板厚方向には層構造が見られると報告されている^{1)~7)}。

著者らは成形品の断面偏光写真から板厚方向を中央

Table 1 Molding condition of specimens

Case No.	Molding condition	Fill time (s)	Holding pressure (MPa)	Holding time (s)	Cooling time (s)
Case 1	High speed injection	4.3	25	10	30
Case 2	Low pressure holding	8.3	15		
Case 3	Standard condition		25		
Case 4	High pressure holding		40

Fig. 1 Geometry of the molded plate and the location of specimens

層、中間層、表面層の3層に大別し、各層の物性値に分布があることを明らかにしてきた。また、これらの物性値分布を考慮し、熱粘弾性モデルを用いることにより射出成形品の板厚方向の残留応力分布が定量的に計算できることを示してきた⁸⁾。

この板厚方向の物性値分布に起因する残留応力は射出成形品に発生するそり不良の一要因であると考えられる。したがって、射出成形品のそり量を定量的に予測するためには、製品の面内の収縮量差や板厚方向の温度分布履歴の他に、成形品の層構造の生成メカニズムを明らかにし、各層での物性値分布をその生成メカニズムから予測し、物性値分布に起因する残留応力を

も考慮する必要がある。そこで、成形中の測定が困難な樹脂状態を射出成形流動解析により把握し、その結果から層構造や物性値分布を予測し、これをそり変形成解析に織り込んで計算しなければならない。

本稿ではまず、様々な条件で成形した射出成形品の各部位での断面層構造を偏光顕微鏡を用いて分析し、層構造の成形条件、位置依存性を調べるとともに層構造の生成原因の推察を行う。そして、射出成形シミュレーションを用いて成形過程での樹脂挙動の経時変化を追うことにより、層構造の発生メカニズムについて考察し、樹脂流動解析による層構造予測の可能性を検討する。

2. 成形品断面内の層構造の分析

2.1 成形材料および試料の成形条件

本研究で用いた樹脂は、エラストマー、カーボンブラック、タルクが各々 27 wt%, 2 wt%, 10 wt% の割合で配合された耐衝撃性グレードのポリプロピレン (PP) である。成形品は一辺の中央に断面寸法 1.5×3 mm のサイドゲートをもつ寸法 300×300×3 mm の平板であり、Table 1 の4条件で、型締力 415 トン (4.07 MN) 射出成形機を用いて成形した。試料は Fig. 1 に示す3箇所から切り出し、流れ方向に垂直な断面を分析する。切り出された試料は寸法 3.0×5.0

Fig. 2 Cross-sectional polarizing microphotograph of injection molded plate under the high speed injection condition

Fig. 3 Cross-sectional polarizing microphotograph of injection molded plate under the low pressure condition

Fig. 4 Cross-sectional polarizing microphotograph of injection molded plate under the standard condition

Fig. 5 Cross-sectional polarizing microphotograph of injection molded plate under the high pressure condition

×5.0 mm 程度に加工し、エポキシ樹脂で固めて1 μm ダイヤモンドにより最終研磨を行う。そして、金属顕微鏡（ニコン製 TME-NR）を用い、倍率 50 倍で反射偏光観察法にて偏光写真を撮影した。

2.2 結 果

各成形条件で成形した試料の偏光顕微鏡断面写真を Figs. 2～5 に示す。本材料のようなブレンド材においては樹脂流動により板厚方向に構成物質の分布が生じるため、PP 単体の成形品のように結晶化度、結晶形態だけで層の構造分析を行うことは難しい。また、本材料にはカーボンブラックが含有されているために結晶の状態を把握することはさらに困難である。そこで偏光顕微鏡写真から読み取れる各層の境界面の識別を行った。

層構造の分析のため、Fig. 4 (a) に示す標準成形条件ゲート部での層構造を例にとって詳しく観察する。断面偏光写真により、表面側から順に各 60 μm の黒色層と白色層、300 μm の黒色層が存在し、さらに中心側に 700 μm 程度の灰色の層、300 μm の灰色層と続き、中心部には 60 μm の白色層が存在している。これらの層の構成比率は成形条件、および成形品の部位により差異が見られる。これらの層を便宜上、表面側から第1～6層と称する。

撮影結果より第1, 2, および6層では部位、成形条件の差異による境界面の位置変化は小さく、また第4, 5層では境界面が明確でないために、部位、成形条件の違いによる差異の判別は困難である。これに対し、第3層は比較的境界面が明確であり、部位、成形条件の依存性も見られる。この層は全ての成形条件において、ゲート近傍部より中央部の方が境界面の位置は表面から深く、また端部では他部と比較して第3層の境界が不明瞭になっている。いっぽう、成形条件による差異としては射出速度の速い成形品の第3層の境界面は他の条件の成形品よりも表面に近い傾向にある。

2.3 層構造生成メカニズムの考察

一般に PP のような結晶性樹脂を材料とした射出成形品断面の偏光顕微鏡写真における層構造は、板厚方向の結晶化度や結晶形態の差異、および分子配向の違いにより現れる。これら結晶状態や分子配向は樹脂の冷却速度と固化時のせん断状態に大きく依存しており、冷却速度の増大につれて結晶化度は低くなり、またせん断応力が大きくなると分子の流動方向の配向度が大きくなる。

以上から、偏光顕微鏡により区分される層間の境界面は結晶化度や分子配向が急激に変化する部位、すなわち、樹脂の冷却速度や最大せん断応力の急変する部位に生成されと考えられる。

Fig. 6 Schematic diagram showing the flow velocity and shear stress distribution through the thickness

いっぽう、射出成形において、成形過程は射出、保圧、および冷却過程に分類でき、それぞれの過程で樹脂の流量は大きく変化し、これに伴って発生するせん断応力も変化する。これらのことから、層間の境界面はせん断速度の急変する射出から保圧への切り替え時、保圧力の切り替え時やゲートシールの発生時に関係があると推察できる。

このような観点から、第3層は射出過程に生成されると仮定し、第3層の境界面の位置依存性の原因を推察する。

射出された溶融樹脂はサイドゲートから金型内へ流入するため、ゲート近傍では拡大流となり、ゲートから離れるにつれて平行流になる。このため、ゲート近傍では樹脂の流動断面積が小さく、流速が大きくなる。よって、流動によるせん断発熱が大きくなり、流動過程での固化層は薄くなり、境界面は表面近くに生成される。ゲートから遠ざかると流動断面積が大きくなるため流速が小さくなる。そして、せん断発熱量が減少するため流動中の固化層は厚くなり、境界面は表面から離れた位置に生成される。射出条件による差異も同様に考えられる。すなわち、射出時間の短縮による流量の増大がせん断発熱量を大きくし、また、流動中の放熱量が少なくなるため、流動時の固化層の厚みを小さくし、その結果、境界層の生成位置が浅くなると考えられる。これらの推察は偏光顕微鏡写真から得られた第3層の境界面の位置変化と一致している。

以上のことから、第3層は射出過程に生成する層と考えることができる。

3. 解析による層構造生成機構の解明

射出成形シミュレーションを用いて、実測の困難な金型内の樹脂挙動と実測された層構造の関係を調べ、層構造の生成メカニズムを明確にする。

一般に、射出成形においてキャビティ内を樹脂が流動する場合、ある一部位に着目すれば、Fig. 6 に示す

ように樹脂は金型からの冷却により、型に接する表面から固化が進展し、時間とともに固化層が厚くなり、また、流動によるせん断応力は速度勾配の最も大きな固化層と流動層の境界面で最大値を示す。

ここでは、固化層成長の経時変化と固化層と流動層の境界面に発生する最大せん断応力の経時変化を樹脂挙動として着目している。

3.1 解析条件

解析には射出成形統合シミュレーションソフトウェア (SDRC 製 I-DEAS Master Series Thermoplastics)

を用いて、樹脂流動解析のみを行った。本ソフトウェアでは樹脂流動を Hele-Shaw 流として扱い、温度分布は板厚方向に 24 点の積分点をもたせた三次元で計算している。また、流動により発生するせん断発熱、樹脂の金型からの冷却により発生、成長する固化層をも考慮している。ただし、結晶化現象の取り扱いが樹脂材料データにおける比熱、熱伝導率、比容積の温度依存性のみで考慮しているため、冷却速度、および圧力による結晶化温度の変動は表せない。解析条件は Table 1 と同等とし、金型温度、樹脂温度は実測値 (各

Fig. 7 Time dependence of the solid layer thickness and maximum shear stress under the high speed injection condition (● : Thickness, ○ : Shear stress)

Fig. 8 Time dependence of the solid layer thickness and maximum shear stress under the low pressure condition (● : Thickness, ○ : Shear stress)

各 40°C, 220°C) を用いた。

解析に使用する材料データは、比熱、熱伝導率、粘度、密度および流動停止温度である。比熱の測定は DSC 測定装置を用いて冷却速度 10°C/min の条件で行った。流動停止温度は、この降温下での DSC 測定結果におけるピークを示す温度、すなわち結晶化温度を用いた。密度は圧力、温度依存性の測定が可能な PVT 測定機で得られたデータを用いるが、この測定は定常状態で行われるため、冷却条件下で得られた遷移温度を用いて修正した。また、熱伝導率は Cornell

大学の K-system II により得られた温度依存のデータを用いた。

3.2 解析結果および考察

Figs. 7~10 は断面偏光写真を撮った位置での板厚に対する固化層の占有率と固液界面で発生する最大せん断応力の時間依存性を示したものである。なお、固液界面は板厚方向の温度が流動停止温度になった位置として定義される。

a. せん断応力の時間依存性

せん断応力の経時変化は成形条件、部位によらず同

Fig. 9 Time dependence of the solid layer thickness and maximum shear stress under the standard condition (● : Thickness, ○ : Shear stress)

Fig. 10 Time dependence of the solid layer thickness and maximum shear stress under the high pressure condition (● : Thickness, ○ : Shear stress)

○ : Depth of maximum shear stress at the end of injection (High speed condition), □ : Depth of maximum shear stress at the end of injection (Standard condition), ● : Depth of boundary between #3 and #4 layers (High speed condition), ■ : Depth of boundary between #3 and #4 layers (Standard condition)

Fig. 11 Boundary depth from the surface
(Caused at the end of injection)

一傾向を示しており、射出終了時とゲートシール時間にピークをもっている（ゲートシール時間は高速条件では 9.8 s、その他は 13.6 s である）。

b. 固化層の成長

固化層の時間依存性に着目すると、成形条件に関わらず、各部位で共通の傾向が見られる。そこで Fig. 9 に示す標準条件の結果について詳細を述べる。

① ゲート近傍

ゲート付近では、射出開始とともに固化層は急成長するが、その後、射出終了までは樹脂のせん断発熱により固化層の成長が停留あるいは減少し、保圧過程の開始から固化層が再度成長するため、不連続になっている。保圧開始後は、ほぼ一定の増分で固化層が生成し、ゲートシール時間で再び不連続点が現れ、固化層の単位時間当たりの増加量で表される固化層成長速度（固化層の時間依存性を示すグラフの傾き）は大きくなっている。また、この時間はせん断応力のピーク発生時間とほぼ一致している。すなわち、保圧に伴う微小流動による高温の溶融樹脂の供給やせん断発熱が固化層の成長を遅らせていることがわかる。

② 中央部

中央部でもゲート近傍と同様に、2つの不連続点が同一のタイミング、すなわち射出完了時とゲートシール時に現れているが、その時の固化層厚さはゲート近傍部と比較して大きくなっている。これはゲート近傍部より流動断面積が大きいいため、樹脂流速が小さくな

○ : Depth of maximum shear stress at the end of injection (High speed condition), □ : Depth of maximum shear stress at the end of injection (Standard condition), ● : Depth of boundary between #4 and #5 layers (High speed condition), ■ : Depth of boundary between #4 and #5 layers (Standard condition)

Fig. 12 Boundary depth from the surface
(Caused by gate seal)

り、それによるせん断発熱量が減少するからと考えられる。

この現象はせん断応力の変化からも説明できる。射出開始直後は流動断面積がゲート近傍部より大きいため、せん断応力は低い。固化層成長速度がゲート近傍部より大きいため時間の経過とともに流動断面積が減少し、せん断応力が高くなっている。

③ 端末近傍

流速が遅くなるため、せん断発熱による固化層の成長の停留はみられない。固化層成長速度は射出時よりも保圧時の方が低く、ゲートシール後、再度高くなる。

c. 成形条件の差異によるせん断応力履歴の変化

① 射出速度による変化

射出速度の上昇に伴い、射出過程でのせん断応力は大きくなり、また、保圧過程においても同様の現象が見られる。保圧過程におけるせん断応力値の増大は射出速度の高速化により樹脂温が高くなり、射出終了からゲートシールまでの保圧力が作用する時間が長くなるためと考えられる。固化層の成長の差異は固化層の成長停留時の厚みが薄くなっていることが特徴的である。

② 保圧条件による変化

保圧条件の変化は保圧過程でのせん断応力に大きく影響しているが、他への影響は小さい。低保圧条件では保圧による補償流動が少ないため、保圧時のせん断応力の増大は生じていないと考えられる。これはゲー

トシール以前にゲート近傍のせん断応力が減少していることから推測できる。

3.3 層構造生成メカニズム

前節では固化層の成長とせん断応力の変化をせん断発熱、流速変化などのキャビティ内の樹脂挙動により定性的に説明することができた。また、固化層成長と最大せん断応力値の変動の間には密接な関係があることが確認できた。これらの現象と実際の層構造の関係を調べるため、射出成形シミュレーション結果から得られた固化層成長速度の急変層と偏光顕微鏡写真から識別した層の厚みを比較した。

Fig. 11 に第3層と第4層の境界面の深さと射出と保圧の切り替えによるせん断応力急変層深さの関係を、Fig. 12 に第4層と第5層の境界面の深さとゲートシールによるせん断応力急変層深さの関係を示す。なお、断面偏光写真において境界面が不明確なものについては表示していない。

解析により求めた境界面と断面偏光写真による第3層と第4層間の境界面深さ比較では、各々の界面深さは定量的には最大 20% 程度の誤差があるものの、成形条件や比較位置による界面位置の変動はよい一致を示している。第4層と第5層の境界面位置については標準条件で定量的に大きな差があるが、観察位置による位置の変化の傾向は一致している。これはシミュレーションにおいて結晶化挙動が十分に表しきれないことや樹脂物性データが成形時の条件下で測定されていないために生じているための誤差によるものと考えられ、特に、ゲートシールのような物性値や結晶化の依存性の大きな現象については現在の射出成形シミュレーションにおいて定量予測が困難なことを示している。

以上から、第3層と第4層の境界は射出から保圧への切り替え時の固化層成長速度の差異により生じており、第4層と第5層の境界はゲートシール時の固化層成長速度の差異が影響していると考えられる。

他の層の生成原因は解析結果からは推測できないが、第1、2層は成形条件や部位による差異がないことから、樹脂が金型に接触した瞬間に固化するスキン層であり、第6層は、無せん断領域でかつ最も冷却速度が低いいため、高結晶化度の領域と推測できる。

4. 結 論

本稿では射出成形シミュレーション結果から得られたキャビティ内の樹脂の固化層成長や応力場などと射出成形品の断面偏光写真から得られた層構造の関連性について、種々の成形条件と部位において調べた。その結果、以下の結論が得られた。

- ① 射出成形プロセスにおいて、成形条件にかかわらず固液境界面でのせん断応力が大きく変化する表面からの深さと、固化層成長速度が不連続になる位置が一致することが明らかになった。また、その位置は射出から保圧への切り替わり、およびゲートシールのタイミングと関連している。
- ② 断面偏光写真から得られた層の境界面位置とシミュレーション結果から得られた固化層成長速度の急変部の位置はほぼ一致している。
- ③ 以上から、層構造の発生原因として固化層の成長速度と固液境界面のせん断応力の変化が支配的である。

今後は各々の層における物性値分布と樹脂挙動の関係を明確にし、最終的には流動解析結果を用いて物性値分布を予測し、物性値分布が要因となって発生する残留応力を考慮したそり変形解析手法の開発を行う。

参 考 文 献

- 1) 藤山光美, 木村修吉: 高分子論文集, 32 (10), 581 (1975)
- 2) 藤山光美, 木村修吉: 高分子論文集, 32 (10), 591 (1975)
- 3) Fujiyama, M. and Wakino, T.: *J. Appl. Polym. Sci.*, 34 (1), 1 (1998)
- 4) 宮本 玲, 松井裕次, 宇田 徹, 橋本壽正: 成形成工, 5 (4), 262 (1993)
- 5) Trotignon, J. P. and Verdu, J.: *J. Appl. Polym. Sci.*, 34 (1), 1 (1987)
- 6) Kantz, M. R.: *Intern. J. Polym. Mater.*, 3, 245 (1974)
- 7) 松本喜代一, 三浦一郎, 村田建世: 高分子論文集, 36 (6), 401 (1979)
- 8) 石島 守, 山部 昌, 下田洋彰, 新保 實, 宮野靖: 成形加工, 5 (11), 792 (1993)