高密度ポリエチレンのブローアップ成形過程で 生ずる線膨張係数の分布特性

寺田 耕輔^{*1}・山部 昌^{*1}・新保 實^{*2}
宮野 靖^{*2}・梶原 稔尚^{*3}・船津 和守^{*4}

Mechanism of HDPE Thermal Expansion Coefficient Distributions during Blow-up Process

Kousuke TERADA^{*1}, Masashi YAMABE^{*1}, Minoru SHIMBO^{*2}
Yasushi MIYANO^{*2}, Toshihisa KAJIWARA^{*3}, Kazumori FUNATSU^{*4}

The shrinkage degree ξ of polymer products must be considered when the molds are at the stage of designing. On the calculation of ξ , the descending temperature ΔT of polymer products after molding process and α (thermal expansion coefficient in polymer products) are necessary. It was found that α has the typical distributions at the various layers along the machine direction (MD) and the transverse direction (TD), especially HDPE products. Consequently, α distributions should be predicted for estimation of accurate ξ of HDPE products.

The blow molding process is divided into the following two processes.

(a) Parison extrusion process (b) Blow-up process

We reported the previous paper that α_p (thermal expansion coefficient in parison) distributions correspond to the strain distributions under extrusion process. In this study, we have investigated the experimental data of α distributions after blow-up process and calculated the elongational strain in deforming parison by analysis using finite element method. The following results were obtained.

- (1) The measured data of α in products correspond to that of α_p which gets the reduction by the elongational strain during blow-up process
- (2) We proposed the model equation of relationship between α_p and α . The model equation expressed the characteristic of measured data of α in this study.

Key words : HDPE/Blow-up process/Finite element method/Thermal expansion coefficient/Shrinkage degree

^{*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

^{*3} 九州工業大学 工学部 物質工学科

北九州市戸畑区仙水町1-1 (〒804)
Department of Materials Science and Engineering
Kyushu Institute of Technology
1-1 Sensuimachi, Tobata-ku, Kitakyushu, Fukuoka
804 Japan

^{*4} 九州大学 工学部 化学機械工学科
福岡市東区箱崎6-10-1 (〒812)
Department of Chemical Engineering
Kyushu University
6-10-1 Hakozaki, Higashi-ku, Fukuoka 812 Japan
1995. 10. 6 受理

Table 1 Dimensions of the dies

Type of die	Diverged die	Converged die
Outer diameter at the die exit $2R_o$ (mm)	400	220
Inner diameter at the die exit $2R_i$ (mm)	390	210
Die gap $R_o - R_i$ (mm)	5	5

1. 緒 言

樹脂成形品は、成形終了時に離型され、成形品温度が降下することによって収縮現象が生ずるため、成形用金型設計段階において成形品収縮量を考慮する必要がある。収縮量は、収縮率と成形品形状寸法から計算でき、収縮率は、降下温度と線膨張係数から設定される。このうちの線膨張係数は、成形での流動過程で生ずる配向のために異方性が多い場合に認められ、予測が困難な物性値である。しかし、成形品形状精度がその用途によって重要となる場合には、設計段階で設定した収縮率と実際の成形品収縮率との誤差の発生は、部品開発において問題となる。

著者らは、熱可塑性樹脂である高密度ポリエチレン(HDPE)をブロー成形材料とする樹脂製ガソリタンク成形品収縮量の予測精度向上のために、成形品線膨張係数分布発生要因を解明し、線膨張係数分布を材料物性と成形条件から予測する研究を進めている。

ブロー成形法は、パリソン押出過程、ブローアップ成形過程、金型内冷却過程に大きく分けられ、前報¹⁾では、押出過程でのダイ内流動過程に着目して実験と解析から流れ方向(以下MDと略す)とその直角方向(以下TDと略す)各々の肉厚方向における線膨張係数分布を把握し、ダイ内流解析を行い、分布発生要因を検討した。その結果、ダイ内流動過程で生ずる伸長ひずみ分布と線膨張係数分布とが相関関係を有することを示した。

本報では、押出後のパリソンの線膨張係数を初期値とし、ブローアップ成形過程での線膨張係数の変化を実験から求めて、成形品線膨張係数分布予測手法を検討した内容について報告する。

2. 線膨張係数の測定と測定結果

2.1 線膨張係数の測定

成形品線膨張係数分布を把握するため、次の方法で、成形品からサンプルを採取し、試験片を作成して線膨張係数 α の測定を行った。

Table 2 Dimensions of the tank

	Dimensions (mm)
X	900
Y	540
Z	260

a. 試験片作成

大型ブロー成形機に Table 1 に示した種類のダイを搭載し、約 200°C で押し出したパイプ状の熔融樹脂(パリソン)に空気を吹き込み、Table 2 の形状寸法のタンクを成形した。Fig. 1 に示した例のように、サンプルを MD, TD 各々から採取した。採取した部位とその選定理由は、次のとおりである。

- ① パリソン初期肉厚は、約 10 mm 程度であるが、成形品肉厚は、ブローアップによる伸長変形量の度合に応じて肉厚に分布が生ずるため、約 3.0~8.0mm 程度となる。

成形品肉厚分布の α への影響を検討するため、ダイバージ型ダイを用いて成形したタンクの肉厚 3.0, 5.0, 8.0mm の 3 個所の部位から MD, TD のサンプル 6 つ(3×2)を採取し、試験片 No.1~6 (肉厚×幅 5mm×長さ 15mm 程度)を作成した。成形品は曲面を有するため、直線状のサンプルとしては長さが 15mm 程度となった。

- ② 次に、ダイ形状の成形品 α への影響を検討するため、コンバージ型ダイを用いて成形したタンク

(a) Sampling from the tank

(b) 3 layers of samples

Fig. 1 Preparation of samples from the tank for thermal expansion measurement

の平均的な肉厚 6 mm 程度における部位から MD, TD のサンプル 2 つを採取した. このサンプルは, 成形品の平坦部から採取できたため, 直線状のサンプル長さとして約 50 mm 程度確保した. これら 2 つのサンプルの厚さ方向の α 分布を検討するため, 3 つの層 (外層, 中間層, 内層) に分離し, 各層から試験片 No. 7~12 (約 0.2 mm×10 mm×50 mm) 程度を切り出した.

b. α 測定方法

試験片サイズによって, 取り扱いの容易さが異なるため, 次のように 2 種類の測定方法で α を求めた.

① 試験片 No. 1~6

試験片サイズが小さいので取扱性が良くないため, T. M. A (接触式変位測定装置) で昇温 (常温から 100℃まで 2℃/分) をにおける長さ変化を測定し, α を求めた.

② 試験片 No. 7~12

試験片サイズが大きいため, 取扱性が良く, 昇温・降温 (常温から 100℃まで 2℃/分) を 3 回繰り返してアニール処理後, 昇温時および降温時において非接触電子光学変位測定装置により長さ変化を測定して, 同条件での 2 回の測定データの平均から, α を求めた.

以上による測定方法から得られた結果を, Figs. 2~4 に示した.

2.2 線膨張係数の分布特性

測定から得られた α 分布特性は, 次のとおりである.

Fig.2 Measured data of α -thickness for the diverged die

また, 本報で, α と比較するために用いた成形の前段階におけるバリソンの線膨張係数 測定結果 (以下 α_P と略す) は, 前報¹⁾から引用した.

a. 成形品肉厚の影響

Fig. 2 の測定結果から, 肉厚の薄い部位ほど伸長変形量を大きく受け, その伸長変形量に応じて α が低下していることが示された. また, 前報で示したダイバージ型ダイからの α_P の特徴である $\alpha_P(\text{MD}) > \alpha_P(\text{TD})$ の関係が, 成形品 α においても各肉厚部位で保たれている.

b. ダイ形状の影響

コンバージ型およびダイバージ型ダイ各々の成形品

Fig.3 Measured data of $\alpha_P(\text{MD})$, $\alpha_P(\text{TD})$, $\alpha(\text{MD})$, $\alpha(\text{TD})$

Fig.4 Measured data of $\alpha_P(\text{MD})$, $\alpha_P(\text{TD})$, $\alpha(\text{MD})$, $\alpha(\text{TD})$ distributions for the converged die

Fig.5 α/α_P distribution for the converged die
(■: MD, □: TD)

の平均的肉厚 5~6 mm 部位における $\alpha(MD)$, $\alpha(TD)$ と、前報で示した成形前のパリソン $\alpha_P(MD)$, $\alpha_P(TD)$ を Fig. 3 に示した。これらから、 $\alpha(MD)$ と $\alpha(TD)$ の大小関係は、成形前および成形後においても保持されている。すなわち、

① ダイバージ型の場合

$$\alpha_P(MD) > \alpha_P(TD) \text{ かつ } \alpha(MD) > \alpha(TD)$$

② コンバージ型の場合

$$\alpha_P(MD) < \alpha_P(TD) \text{ かつ } \alpha(MD) < \alpha(TD)$$

となる。

以上から、成形品 α は、ブローアップ成形過程の前段階の α_P が初期値となり、ブローアップでの伸長変形によって α_P が低下した分布になっていることが示された。

c. $\alpha(MD)$ と $\alpha(TD)$ の層分布

Fig. 4 に示した測定結果から、ブローアップ成形過程での各層における成形前後の α 変化率を計算し、Fig. 5 に示した。層分布の変化の特徴は、次のとおりである。

- ① 成形品 $\alpha(MD)$ 層平均値は、 $\alpha_P(MD)$ 層平均値に比較して、約 12% 程度低下している。
- ② 成形品 $\alpha(TD)$ 層平均値は、 $\alpha_P(TD)$ 層平均値

(a) A sample from the parison

(b) A sample from the tank

Fig.7 Model (The relationship between α_P and α is $\alpha = \alpha_P / (1.0 + \epsilon)$)

Fig.6 Flow chart of investigation in this study

に比較して、約 24% 程度低下している。

③ 3 層間における $\alpha_P(MD)$ は凹分布であるが、成形品 $\alpha(MD)$ では均一な分布 (やや凸分布) に移行している。

④ これに対して、3 層間における $\alpha_P(TD)$ はほぼ均一な分布であるが、成形品 $\alpha(TD)$ では内層側が大きく低下した分布となっている。

3. 成形品 α 分布予測

前章では、ブローアップ成形過程の前段階におけるパリソンから採取したサンプルの線膨張係数 α_P とブローアップ成形過程を経たタンク成形品から採取したサンプルの線膨張係数 α の測定結果について述べた。これらの結果から、ブローアップ成形過程においてパリソンが受ける伸長変形量に応じ、 α_P を初期値として α が低下する特性を明らかにした。

本章では、ブローアップ成形過程前後における線膨張係数の変化を定量的に考察し、成形品 α 分布予測手法を提案する。

Fig.8 Shape of section A-A' and B-B'

Fig.9 Blow molding simulation

3.1 α_P と α の関係

ここでの α_P と α の関係についての検討手順を、Fig. 6 のフローチャートに示した。本報で提案するモデルは、ブローアップ成形過程での力学的なひずみと温度変化による熱的な負荷から発生するひずみが高分子構造に与える影響は同等であるという仮定をおいている。すなわち、力学的に伸長される場合と熱膨張により伸長される場合も同様に高分子構造が引き揃えられると考えている。

この仮定のもとに、線膨張係数測定時におけるサンプルの長さ変化の挙動を、模式的に Fig. 7 に示した。ブローアップ成形過程の前段階でのパリソンからのサンプルに対して、ブローアップ成形過程を経たタンク成形品からのサンプルは、温度変化 ΔT を受けた場合、その長さ変化は異なる。

各サンプル長さを L 、パリソンからのサンプルの長さ変化を ΔL_P 、成形品からのサンプルの長さ変化を ΔL とすると、次式が成り立つ。

$$\alpha_P = \Delta L_P / (\Delta T \times L) \quad (1)$$

$$\alpha = \Delta L / (\Delta T \times L) \quad (2)$$

成形品からのサンプルが、ブローアップ成形過程において伸長ひずみ ϵ を受けており、温度変化が起こる前の状態において、高分子材料としてすでに ϵ のひずみをもっていたとし、次の関係が近似的に成り立つと仮定する。

$$\Delta L = \Delta L_P / (1.0 + \epsilon) \quad (3)$$

すなわち、

$$\alpha = \alpha_P / (1.0 + \epsilon) \quad (4)$$

である。

次に、ブローアップ成形過程での伸長ひずみ ϵ を計

Fig.10 ϵ (MD) and ϵ (TD)

算し、測定結果の α_P と α が、提案されたモデルの (4) 式を満たすかを検証する。

3.2 ブローアップ成形過程での伸長ひずみ ϵ の計算

検証のための α 測定結果として、非接触電子光学変位測定装置から求めた Fig. 4 のデータを対象とした。成形品からこれらの試験片を採取した部位における MD, TD の各断面は、Fig. 8 に示した A-A' 断面と B-B' 断面である。MD について A-A' の断面には凹凸がないが、TD についての B-B' 断面には凹凸がある。

ブローアップによりパリソンが受ける伸長ひずみ分布を、有限要素法 (FEM) による汎用構造解析用プログラム (ABAQUS) を用いて、次の要領で計算した。

- ① 各断面の初期パリソン形状を、Fig. 8 に示すように、8 節点平面ひずみ要素を用いた 3 層構造体として要素と節点でモデル化した。
- ② 空気圧の上昇によるブローアップ現象を、構成した要素の内層面に作用する分布荷重として表し、荷重増分法で解析した。
- ③ 構成した要素の材料モデルは、弾性体とした。

Young 率を溶融 HDPE の引張試験から約 $1.0 \times$

10^6 (Pa) とし、Poisson 比を 0.45 とした²⁾。

- ④ パリソン変形後、金型に接触した要素は金型上を滑らないと仮定した^{2)~5)}。
- ⑤ 解析結果として、要素が伸長変形を受けることによって発生する伸長ひずみ分布を出力させた。
- ⑥ ひずみ速度を評価する際には、ブローアップが終了するのに要する時間として、成形過程における金型空気出口圧測定から約 10 s とした。

解析結果からの、A-A' 断面および B-B' 断面におけるパリソンの変形図 (着色部はサンプル採取箇所である) を Fig. 9 に、サンプル採取部位に該当する 3 層の要素のひずみ履歴の計算結果を Fig. 10 に示した。

3.3 α (MD) についての検証

- ① ブローアップ開始 ~ 2 s において、一時的に外層側が内層側よりもひずみが大きくなる。この理由は、パリソンの変形図からわかるように、膨張するパリソンの外側ほどひずみ増分が大きいからである。
- ② しかし、4 s 以降において各層のひずみの計算結果は、約 0.11 程度で均一となっている。このため、成形前の段階であるパリソンでは α_P (MD) に分布が存在したが、ブローアップ成形過程後においてほぼ均一な分布 α (MD) となるように変化したと考えられる。
- ③ α_P (MD) 層平均値は、成形後において約 12% 程度低下している。すなわち、測定結果では、 α_P (MD) と α (MD) の関係は、次式で表される。

$$\alpha(\text{MD}) = \alpha_P(\text{MD}) \times 0.88 \quad (5)$$

これに対して、各層が成形過程において受けるひずみ ϵ (MD) の計算結果の層平均値は 0.11 である。 ϵ (MD) を提案したモデルの (4) 式に代入すると (6) 式となり、測定結果 (5) 式と良く一致することが示された。

$$\begin{aligned} \alpha(\text{MD}) &= \alpha_P(\text{MD}) / (1.0 + \epsilon(\text{MD})) \\ &= \alpha_P(\text{MD}) / (1.0 + 0.11) \\ &= \alpha_P(\text{MD}) \times 0.90 \end{aligned} \quad (6)$$

3.4 α (TD) についての検証

- ① ブローアップ開始 ~ 2 s において、一時的に外層側が内層側よりもひずみが大きくなる。これは、先に述べた α (MD) の場合の理由と同様である。
- ② しかし、2 s 以降において各層のひずみ分布の大きい順位は、逆転現象を起こす。すなわち、ひずみの大きい順位は、外層 > 中間層 > 内層から、外層 < 中間層 < 内層に移行する。

この理由は、Fig. 9(b) に示したように、金型上に外層の要素が接触した後も、断面形状に凹凸があるため、金型の両コーナー部へパリソンは膨

Fig.11 Strain rate (TD)

張し、その結果、金型に接触した部分の内層側の要素はさらに伸長ひずみを受けるからである。

- ③ この現象は、Fig. 11 に示したように、ひずみ速度の変化からも説明できる。すなわち、外層の要素のひずみ速度は、2 s 以降ほぼ零であるが、内層側の要素には 4 s 程度までもひずみ速度が発生している。

- ④ したがって、成形品 α (TD) 分布は、ブローアップ成形過程において内層側が伸長変形を多く受けるため、内層側が大きく低下するように変化したと考えられる。

- ⑤ α_P (TD) 層平均値は、成形後において約 24% 程度低下している。すなわち、測定結果では、 α_P (TD) と α (TD) の関係は、次式で表される。

$$\alpha(TD) = \alpha_P(TD) \times 0.76 \quad (7)$$

これに対して、各層が成形過程において受けるひずみ ϵ (TD) の計算結果の層平均値は、0.26 である。 ϵ (TD) を提案したモデルの(4)式に代入すると(8)式となり、測定結果(7)式と良く一致することが示された。

$$\begin{aligned} \alpha(TD) &= \alpha_P(TD) / (1.0 + \epsilon(TD)) \quad (8) \\ &= \alpha_P(TD) / (1.0 + 0.26) \\ &= \alpha_P(TD) \times 0.79 \end{aligned}$$

以上から、樹脂製ガソリンタンク成形材料グレードである HDPE がブロー成形される条件範囲において提案したモデルの(4)式が成り立つことが示された。ここで、成形温度条件の影響も考えられるが、本報では、HDPE を用いたブロー成形の実用性の観点から、成形温度域を約 200°C 程度に限定した。その温度域よ

りも低い場合も高い場合も、次の理由により実用的でないからである。

- ① 低い温度域

成形材料 HDPE の延伸性が低下して成形しにくくなる。

- ② 高い温度域

成形材料 HDPE が熱劣化しやすくなる。

なお、成形品 α (MD), α (TD) の層平均値分布を物性データとし、有限要素法の構造解析による収縮シミュレーションを行うことによって、金型設計のための収縮率分布を設定することができる。

5. 結 言

ブローアップ成形過程において生ずる線膨張係数の分布特性とその発生要因について検討を行い、次の結論を得た。

- ① 測定結果から、成形品 α (MD), α (TD) の各々の層平均値は、成形の前段階であるバリソン α_P (MD), α_P (TD) からブローアップ成形過程での伸長ひずみに応じて低下することが示された。
- ② 力学的なひずみと温度変化による熱的な負荷から発生するひずみとが高分子構造に与える影響は同等であると仮定したモデルを提案し、このモデルから導いた α_P と α の関係式を、本報での実験条件において成り立つことを示し、定量的に評価できた。
- ③ 今後の課題としては、ここで得られた結論のさらなる検証と、成形品 α の層分布に対する冷却速度、結晶化度およびアニール処理の影響を検討することなどがあげられる。

参 考 文 献

- 1) 寺田耕輔, 山部 昌, 新保 實, 宮野 靖, 梶原 稔尚, 船津和守: 成形加工, 7 (9), 568 (1995)
- 2) 寺田耕輔, 山部 昌: 成形加工 '89, 129 (1989)
- 3) de Lorenzi, H. C. and Nied, H. F.: *Finite Element Simulation of Thermoforming and Blow Molding*, in: *Progress in Polymer Processing*, Isayev, A. I. (Ed.), 157 (1991), Hanser
- 4) 田中 太, 中野 亮, 田中豊喜: 成形加工, 4 (9), 245 (1991)
- 5) 今村伸二, 金田 勉, 九島行正, 大田 彰, 戸来 稔雄, 小山清人: 成形加工, 6 (11), 797 (1995)