博士学位論文

射出発泡成形における気泡生成メカニズムの解明と 実用化に向けた機械特性予測に関する研究

2015年3月

指導教員:山部 昌

金沢工業大学大学院工学研究科博士後期課程 機械工学専攻

柿 島 浩 徳

射出発泡成形における気泡生成メカニズムの解明と 実用化に向けた機械特性予測に関する研究

第1章 緒論	1
1-1 はじめに	2
1-2 発泡成形に関する研究動向	3
1-3 射出発泡成形に関する研究動向	5
1-3-1 射出発泡成形	5
1-3-2 成形不良	9
1-4 数値シミュレーションによる材料特性予測の現状と課題	12
1-5 研究目的	15
参考文献	
第2章 射出発泡成形における気泡生成メカニズムの解明	29
2-1 緒言	30
2-2 可視化観察	31
2.2.1 定龄十进	21

2-2-1	美颖力法	31
2-2-2	可視化観察の結果と考察	32
2-3 7	ポリプロピレン以外の樹脂を使用した場合	36
2-4 糸	古言 しんしん しんしん しんしん しんしん しんしん しんしん しんしん しん	39
参考文		

第3章 発泡構造の均一化制御

 3-1 緒言
 66

 3-2 CO2が亜臨界の場合
 67

 3-3 CO2が超臨界の場合
 68

 3-4 結言
 70

 参考文献
 70

第41	章 実用化に向けた射出発泡成形品の機械特性予測	83
4-1	緒言	84
4-2	等価介在物法	86
4-3	発泡層の弾性率予測	89
4-4	リブを有する成形品の曲げ荷重に対する変位予測	94
4-5	結言	97
参考	文献	

第5章 結論

119

65

第1章



1-1 はじめに

現在, 我々の日常生活に高分子材料は必要不可欠であり, 高分子材料の成 形加工によって得られた製品は身の回りに多く存在する. 日用品や衣類だけ でなく, 自動車部品等の工業材料や住宅・建築に使用される構造材料, 歯車 や軸受等の機械材料, 電化製品等のエレクトロニクス分野にも, 高分子材料 は進出を遂げている. 高分子材料は, その名の通り, 見た目ではなく, 分子 レベルで区別されたものである. 高分子材料は化合物, 即ち低分子化合物に 比べ, 分子量が非常に高い. 低分子化合物の分子量は, その多くは 100 を中 心として 10~1,000 の範囲にあるが, 高分子の分子量は, 通常 10,000 以上で ある¹⁾. 高分子材料は, 1920 年代にドイツの Staudinger²⁾により, 高分子と いう概念が提示されて以降, 人工的に合成されるようになり, 今日の全盛時 代を迎えている.

高分子材料は、表 1-1 のように、プラスチック、ゴム、繊維、塗料、印刷 インキ及び接着剤に大別される.現在、この中で最も使用量が多いのはプラ スチックであり、高分子材料全体の約 80%を占めるとされている³⁾⁻⁴⁾.表 1-1 のように、プラスチックは、性質の違いから熱可塑性樹脂と熱硬化性樹脂に 分類される.熱可塑性樹脂の種類は多く、使用量も圧倒的に多い.熱可塑性 樹脂は、その種類が多く、使用量も圧倒的に多い.さらに、熱を加えると溶 融流動して可塑性を持つようになり、冷却により固化する.このように、熱 可塑性樹脂は、加熱による溶融、冷却による固化の工程が繰り返し可能とな る.一方、熱硬化性樹脂は、常温で流動性を持っている、或いは加熱すると 流動性を帯びる比較的分子量の低い高分子に、触媒等を加えて加熱すると化 学変化を起こして硬化する.硬化した樹脂は、再度加熱しても流動状態には ならず、さらに高温に熱すると分解する.このように、熱硬化性樹脂は、熱 を加えても、軟化、溶融が不可逆的な変化を示す樹脂である⁵⁾.

また近年,他の異種材料と組み合わせ,新たな機能を付加したプラスチックの開発が進んでいる.これらは機能性材料,或いは複合材料と呼ばれており,その一例として,炭素繊維やガラス繊維を組み合わせた繊維強化プラス

チック(Fiber Reinforced Plastics)がある. さらに、今後、需要拡大が期待 されている複合材料の1つに、プラスチックに多数の気泡を生成させた発泡 プラスチックがある.その中で最も多く使用されているのは,一般的に「発 泡スチロール」と呼ばれている発泡プラスチックである.これは、ポリスチ レンに微細な気泡を生成させ硬化させた素材であり,食品トレーや梱包材と して利用が進んでいる.また,発泡プラスチックの成形加工には,発泡成形 法がある.発泡成形法は、気泡を生成させるためのガスを供給する物質であ る発泡剤を使用し、高分子材料の中に気泡を分散・固定化させる成形法であ る.使用する発泡剤の詳細は後述するが、物理発泡剤と化学発泡剤に大別さ れ、最近では、人や地球環境にやさしい超臨界状態の二酸化炭素(CO₂)や 窒素(N₂)も多く使用されている⁶⁾.発泡プラスチックの性質は,高分子材 料の種類や気泡径、気泡の形状によって大きく異なり、用途に応じて設計さ れる⁷⁾. このように,発泡プラスチックは,プラスチックと気泡の複合材料 であり,様々な機能が付加されている.代表的な機能として,軽量性が挙げ られる. 例えば, 発泡プラスチックを自動車部品に適用することで, 部品の 軽量化によって燃費の向上に繋がり,環境負荷の低減が期待される.その他 の機能として、断熱性、衝撃吸収性、吸音性が挙げられ、自動車部品だけで なく,幅広い分野から注目を集めている⁸⁾.

1-2 発泡成形に関する研究動向

1980年代初期に、マサチューセッツ工科大学の N.P.Suh 教授らにより、マ イクロセルラープラスチックと呼ばれる微細な気泡を有する発泡プラスチ ックが提案されて以来、発泡プラスチックの成形加工技術は飛躍的に発達し てきた⁹⁾¹⁰⁾.従来の発泡成形法は、図 1-1 のようなバッチ式発泡成形法¹¹⁾⁻¹³⁾ が主流であった.バッチ式発泡成形法の成形プロセスは、まず耐圧性の装 置・容器に樹脂材料を入れ、高圧下において、発泡剤として使用する超臨界 状態の CO₂を樹脂材料に含浸させる.次に、樹脂材料内の発泡剤が飽和に達 した後、急激に減圧させることで、気泡が生成し、成長する.

バッチ式発泡成形法に関する研究として,新保ら¹²⁾は,発泡成形品の曲げ 強度特性が発泡に伴う気泡壁の分子配向によってなされるとの推定の下で、 材料にポリスチレンを使用した発泡成形品の曲げ強度向上について検討し ている.気泡の微細化に伴い気泡壁の表面積が増加し、気泡壁の分子配向が 向上することにより,発泡倍率ならびに応力集中から推定される曲げ強度よ りも高くなることを明らかにしている. さらに, 厚さが 3mm, 4mm と比較 的厚みが大きい発泡成形品においても, 気泡径を小さくし気泡数を増やすこ とで,曲げ強度を向上できることを示している.志熊ら¹⁴⁾は,発泡温度を 150℃~160℃に設定し、ポリプロピレンを高圧 CO2に5時間含浸させて発泡 成形品を得ている. X 線小角散乱法 (SAXS) によって、ポリプロピレンの 結晶構造が発泡成形品の微細構造・発泡構造に与える影響を明らかにしてい る.また,伊藤ら¹⁵⁾は,架橋構造を有するポリスチレンを材料として使用し, それをオートクレーブに入れ, 100℃まで加熱した後, CO2で 20MPa まで加 圧し,7時間含浸させて発泡成形品を得ている.架橋構造を有するポリスチ レンを使用したバッチ式発泡プロセスによる発泡成形において、気泡の有無、 気泡の大きさは、架橋点分子量(M_c)及びそれと共に変化する表面張力に密 接な関係があることを示している.

このように、バッチ式発泡成形法に関して、種々の研究或いは検討がなさ れている. 圧力容器内で発泡剤を樹脂材料に含浸させ、減圧により気泡を生 成させるバッチ式発泡成形法は、多くの工程が静的な状態で行われるため、 安定して微細発泡体を得られやすい. さらに、気泡径や気泡密度等に与える 制御因子も少ないため、最適条件を求めやすいことから、微細発泡体を得る には、現時点では最適な方法であると言われている. 一方、バッチ式発泡成 形法には、発泡剤を樹脂材料に含浸させる工程に大半の時間を消費され、生 産性が低い. 発泡剤を含浸させる工程に要する時間は、数時間から、形状や 材質によっては数日を要することもある. さらに、生産性を上げるため、大 きな圧力容器や耐圧性の容器を使用することとなるが、発泡剤を高圧で含浸 させる工程における安全性や法的な制限も多い. これらにより、バッチ式発 泡成形法が現在の市場を占める割合は非常に少ないのが現状である.

1-3 射出発泡成形に関する研究動向

1-3-1 射出発泡成形

バッチ式発泡成形法の生産性の低さを解決するために,現在では成形品を 連続して得られる成形法が注目されている.連続的に成形品を得る連続成形 法は、工場の生産ラインのように成形プロセスが直列となっている成形法で ある.代表的な連続成形法には、押出成形、射出発泡成形等がある.押出成 形法は, 主に電線, パイプやチューブ, シート等の成形に使用されている. 射出発泡成形は,射出成形機を使用し,発泡剤を混合し溶解させた溶融樹脂 を金型内に射出し,発泡成形品を連続的に得ることが可能な成形法である. さらに,同一形状の製品,或いは複雑形状の製品を短時間に,かつ大量に生 産することができるという射出成形法のメリットを取り入れた成形法であ る. そのため、自動車のバンパーやダクト、内部のフレーム等の複雑形状の 成形に適しており、 今後も自動車部品への応用が期待されている. 射出発泡 成形では、樹脂材料には、主に熱可塑性樹脂が使用される.また、射出成形 の工程は、「溶かす」、「流す」、「固める」の3工程からなるが、射出発泡成 形では「気泡が生成する」、「気泡が成長する」、「気泡の成長が停止する」と いう工程が加わる¹⁶⁾.近年,生産性の低いバッチ式発泡成形法に替わる新た な成形法として、射出発泡成形は注目を集めるとともに、関連した研究が盛 んに行われるようになってきた. さらに, 産業界や市場でも, 材料費や生産 コストを削減し、製品の加工・組立工程数を低減可能であることから、納期 やリードタイムの短縮に繋がると期待されている.

射出発泡成形において,発泡剤は,気泡を生成するためのガスを供給する 物質であり,化学発泡剤と物理発泡剤に大別される.発泡剤に化学発泡剤を 使用した化学発泡法では,アゾジカルボンアミド(ADCA)や重曹等が発泡 剤として使用されている.化学発泡法の基本的な原理は,文字通り樹脂材料 と発泡剤の化学反応によるものであり,熱分解により発生するガス成分が気 泡として生成し、成長する、化学発泡剤そのものは粉末状であるが、実際の 成形では、ポリエチレンやポリスチレン等の熱可塑性樹脂に混合したマスタ ーバッチとして使用されることも多い. 図 1-2 に, アゾジカルボンアミド系 の化学発泡剤の熱分解特性を示す.図1-2は、化学発泡剤として、ポリスレ ン EE25C(永和化成工業)を使用し、ある温度下における発泡剤の熱分解特 性をガス量計測装置(永和化成工業)で計測した結果である. なお, ポリス レン EE25C は, キャリアレジンにポリスチレンを使用したマスターバッチ である.図1-2から、温度が高くなるほど、熱分解によりガスが発生するタ イミングが早くなり、発生するガス量も多いことが確認できる.化学発泡法 の利点としては、特別な装置を必要とせずに成形できることが挙げられる. さらに、気泡径や気泡含有率等の発泡構造を制御しやすいため、現在の射出 発泡成形では化学発泡法が主流となっており、その応用も進んでいる.一方, 化学発泡法の欠点としては、発泡剤の副生成物が成形品の中に残り、それが 樹脂本来の性質を変化させる可能性があることである.また、副生成物が製 品の使用中に溶出することによって,人体への影響や機械特性の変化等が懸 念される.

物理発泡剤を使用した物理発泡法の基本的な原理は、まず可塑化工程において、溶融状態の樹脂材料に発泡剤を混練し溶解させ、シリンダ内にガス成分が均一に溶解したポリマー溶液を生成させる.この際、射出ノズルの先端は、遮断弁によって一時的に閉鎖して、圧力降下による先端での発泡を抑えている.次いで、射出工程では、射出ノズルの遮断弁が一気に解放され、大気圧下に減圧されることによって、樹脂材料に溶解していたガス成分が気泡として生成し、成長する.一方、樹脂の粘度が上昇した成形品の表層(金型との界面)では、金型表面から熱が奪われ、気泡が生成できない状態となる.これにより、成形品の断面方向からみると、無発泡スキン層と発泡層による3層構造が形成される¹⁷⁾.従来、発泡剤として、クロロフルオロカーボンやフロンフルオロカーボン、ブタン等が使用されていた.しかし、それらの代替として、近年、地球環境への負荷を低減させる目的で CO₂や N₂が注目を

集めている. CO₂ や N₂ は無毒性であることや,比較的容易に超臨界状態に することが可能なため, CFC やフロンに替わる新たな発泡剤として期待され ている. CO₂ や N₂ は,低温で超臨界状態を実現できるため,発泡剤への利 用に限らず,他分野において注目されている.

超臨界状態の CO₂や N₂は,超臨界流体と呼ばれている¹⁸⁾⁻²⁷⁾.超臨界流体 が日本で組織的,系統的に研究され始めたのは,1980年代初めからである. 現在では,着実に進歩を遂げ,材料,ナノテクノロジー,エネルギー,バイ オ、環境等の非常に多くの分野、かつ次世代を担う重要な分野における要素 技術として応用が進んでいる.物質は,温度及び圧力の条件により,固体-液体-気体の3つの状態をとる.以上をまとめて,物質の三態,或いは三相 とも呼ばれている.図1-3に、一例としてCO2のP-T線図を示す²⁸⁾⁻³⁰⁾.気 体-液体の境界線は蒸気圧線と呼ばれ,三重点から始まり臨界点まで続いて いる.この臨界点以上の温度では、気体を圧縮しても液化しないことを示し ており,臨界点以上の温度にある液体は超臨界流体と呼ばれている³¹⁾⁻³⁵⁾. 一般には、臨界温度 (T_c) だけでなく、臨界圧力 (P_c) 以上の場合を超臨界 状態と呼ぶ場合が多い. 超臨界流体は, 気体或いは液体の区別がつかない状 態にあり,液体に近い高密度(非凝縮性)と,気体に近い高拡散性・低粘性 を兼ね備えた特異な流体である³⁶⁾³⁷⁾.また,超臨界流体は安価,低コストで あり,人や地球環境に無害でリサイクル性もあることから,様々な分野で工 業的に利用されている.

射出発泡成形に超臨界流体を利用した研究として,以下のような例がある. 佐藤ら³⁸⁾は,ポリマー成形加工において,超臨界流体の利用技術を促進する とともに,その実用化に向けた支援ツールの開発を目的とし,超臨界流体が ポリマーへ溶解する際の物性値測定及び推算について検討を行っているが, 支援ツールとしての射出成形シミュレータ開発には至っていない.菊池ら³⁹⁾ は, CO₂等の超臨界流体を利用した射出発泡成形に対応した射出成形 CAE を開発することを目的とし, CO₂溶解による可塑化効果を Sanchez-Lacombe(S-L)状態式による粘度推算方法を使用して解析上で再現し ている. さらに,成形品外観予測のため, PS+CO₂の試験平板を使用して成 形実験を行い,表面発泡と CO₂注入率(供給量),射出速度,樹脂温度の関 係を考察している.

射出発泡成形に関する研究として,山田ら⁴⁰⁾は,射出発泡成形における発 泡構造の生成機構を明らかにするため,成形中における金型内の圧力状態を 把握し,成形品断面における気泡分布の定量化を行っている. 定量化により 得られた気泡分布に基づいて成形品内部の発泡構造を層構造として抽出し、 成形品位置及び成形条件の変化による層構造の変化を明確に示している.ま た,山田ら 41)は,段差形状を有する成形品を対象に,段差部領域における発 泡構造及び段差部底面に対向する平坦面の表面状態を明らかにし、その生成 プロセスについて検討している. Mahmoodi ら 42 は,射出発泡成形において, ある圧力下の破泡現象に着目しながら、ガスが充填された溶融ポリマー系に おいて、独立した気泡が非等温状態で球状に成長していると仮定し、その成 長を理論的に予測している.さらに、可視化手法により非等温条件下の気泡 の成長挙動をモニターし,破泡現象は,保圧と気泡の成長時間に強く依存す ることを明らかにしている.Yuan ら⁴³⁾は,樹脂材料に PA-6 をベースとした ナノ複合材料,発泡剤に超臨界状態の N2を使用した射出発泡成形において, 成形の利点とその特性改善について検討を行っている.これにより、ナノ複 合材料を樹脂材料として使用した射出発泡成形品は,気泡径が微細となり, 均一な気泡径の分布となること、さらには PA-6 を樹脂材料とした射出発泡 成形品に比べてより高い引張強度を有していることを明らかにしている.

射出発泡成形は,連続的に成形品を得ることが可能であることから,バッ チ式発泡成形法に替わる新たな成形法として,現在のモノづくりにおいて不 可欠である.しかし,射出発泡成形では,得られる成形品の品質レベルは一 定ではなく,実際の成形では,成形不良と呼ばれる不良トラブルが発生する. 次節では,射出発泡成形における成形不良に関する研究動向について記述す る.

1-3-2 成形不良

これまで述べてきた通り、射出発泡成形は連続的に成形品を得ることが可 能なため,現在のモノづくりには不可欠な成形法である.一方で,射出発泡 成形では、得られる成形品の品質レベルは一定ではなく、成形不良と呼ばれ る不良トラブルが発生する.射出発泡成形で発生する成形不良として、ウェ ルドラインにより外観不良、強度低下に繋がるもの、スワールマーク(銀白 色の条痕)による外観不良に関するものがある⁴⁴⁾.また,CO₂を発泡剤に使 用した射出発泡成形では、標準的な成形条件で成形を行うと、図 1-4 のよう に同一の成形品で、微細な気泡が生成する領域(以下、領域①と定義する) と径の大きい気泡が生成する領域(以下,領域②と定義する)の2種類の発 泡構造が生成し、気泡径が二極化するといった現象がみられる.これは、外 観不良や機械特性のバラつきに繋がり,成形品の品質を低下させる要因とな っている.図 1-4 は、各領域における気泡径分布を計測した結果であるが、 CO,の供給圧力によって生成する発泡構造に差異があることを確認できる. さらに、図 1-4 から、供給圧力が 15.0MPa の条件では、領域①が成形品の大 半を占めており、CO2の供給圧力が 7.0MPa の条件では、領域②が成形品の 大半を占めている.これは,成形において,各領域の気泡が生成する要因や メカニズムが異なるためであると考えられる. そこで、本研究では、金型内 の可視化観察により,充填過程を観察した.さらに,観察の結果を踏まえ, 発泡構造の均一化制御を行った.

射出発泡成形における成形不良に関する研究として、山田ら⁴⁵⁾は、成形品 表面に発生するスワールマークを抑制することを目的とし、射出発泡成形に おける金型キャビティの表面温度及び冷却作用が、成形品表面に与える影響 について検討を行っている.射出開始前の金型温度をガラス転移温度 *T_g* 以 上に加熱すると、スワールマークが消失することを確認している.また、山 田ら⁴⁶⁾は、樹脂材料に耐衝撃ポリスチレン、発泡剤に超臨界 N₂を使用した 射出発泡成形において、障害ピン(流動障害物)後方におけるウェルドライ ン領域の発泡構造を成形品の断面観察により明らかにしている.ウェルドラ インは、溶融樹脂の流動が合わさる箇所に生じる線状のものであり、外観不 良や強度低下に繋がる.また、透明な汎用ポリスチレンを樹脂材料として使 用し、金型内における充填過程の動的な可視化観察を行いながら発泡構造の 生成プロセスをモデル的に提示している.長谷川ら⁴⁷⁾は、金型内における充 填過程の可視化観察により、スワールマークの発生に与える成形条件の影響 とその発生メカニズムを明らかにするとともに、スワールマークを抑制可能 な成形条件を提案している.流動中に生成した気泡が金型に触れ、破泡する ことでスワールマークが発生することを明らかにしており、その発生に最も 影響を与える成形条件は射出速度であることを示している.しかし、現在の 射出発泡成形において、同一の成形品で異なる発泡構造が生成する不良に関 して、研究がなされている例はない.

成形加工技術の分野や成形加工対象の相違に関わらず,全てのモノづくり の基本には,『現象を正確に理解すること』が最も重要なテーマである.成 形現象(成形プロセス)の解明は,成形不良対策にとどまらず,射出成形 CAEによる予測技術の確立を先導するとともに,新規成形技術の開発等の基 盤をなしている.成形現象の解明に,可視化技術及び各種計測技術が果たし てきた役割は大きく,今後もさらなる発展が期待される⁴⁸⁾.可視化技術とは, その言葉の通り,「見えないもの」を「見えるようにする」技術,つまり"見 える化"する技術である.高精度かつ高機能で,付加価値の高い成形加工技 術が益々求められている昨今において,複雑な成形現象を"見える化"し,正 確に現象を把握,定量化することが重要となっている.

射出成形法では、樹脂材料をホッパーに投入後、金型を開いて成形品とし て取り出すまで、成形過程が全て成形機、特にシリンダと金型に封印された ブラックボックスのようなものであることから、現象の解明が非常に困難で あった.しかし、現在では、可視化技術の発展により、実際に金型内で溶融 樹脂がどのように流動しているか、或いはどのように固化するのか等、成形 現象をより正確に把握できるようになってきた.

射出成形法における可視化観察に関する研究として, ガラス繊維等を使用

した繊維強化樹脂の射出成形法における繊維の配向挙動及び折損状況の観 察に関するものや、射出成形 CAE の解析精度向上に関するものがある.内 田ら⁴⁹⁾は、射出成形 CAE によるそり解析精度の向上に向け、透明性の高い ポリスチレンにガラス繊維を混練し、金型内における樹脂の流動挙動、並び に繊維の配向挙動を観察し、繊維配向メカニズムを明らかにしている.繊維 配向は、成形品の板厚方向で異なり、射出速度の変化によってスキン層とコ ア層付近における繊維配向が変化することを示している.横井ら⁵⁰⁾は、ガラ ス繊維を使用した射出成形法において、安定した成形技術の確立及び成形品 の効率的な高機能化を目的とし、シリンダ内の可視化観察により、樹脂材料 の溶融及び可塑化工程におけるガラス繊維の折損状況を観察している.山部 ら⁵¹⁾は、射出成形 CAE の解析精度向上を目的とし、可視化観察によって金 型内の樹脂流動を観察し、その結果を CAE 解析に反映することで,解析精 度の向上へと繋げている.可視化観察により、固化層の成長を定量化し、そ れを解析モデルに反映することで解析精度の向上が図られている.

一方,射出発泡成形における可視化観察に関する研究として,以下のよう な報告がある.小松ら⁵²⁾は、樹脂材料に種々の熱可塑性樹脂,発泡剤に N₂ を使用した射出発泡成形において、金型内における気泡の生成・成長挙動の 可視化観察と、樹脂表面温度と圧力の変化のモニタリングを行っている.樹 脂材料にポリカーボネートを使用した成形において、金型内への樹脂の充填 過程でフローフロントにおける微細な気泡が破泡しながら流動している様 子が観察されている.その後、コア層での気泡生成・成長が射出開後 5.68s から 14.15s の間に生じて、その際に樹脂温度が 169.8℃から 102.9℃,樹脂圧 力が 35.3MPa から 20.9MPa へと低下することを明らかにしている.また、小 松ら¹⁷⁾は、樹脂材料に3種類の熱可塑性樹脂,発泡剤に N₂を使用した射出 発泡成形において、可視化観察によって金型内の発泡挙動を解明し、同時に 金型内の樹脂表面温度、及び圧力を計測している.金型内圧力低下により発 泡が開始し、溶融樹脂の冷却による樹脂粘度の上昇により気泡の成長が停止 することを明らかにしている.さらに、コアバック時に生成する気泡のサイ ズは、初期段階で生成する気泡よりも微細化し、気泡数も増加することを示している.しかし、同一の成形品で異なる発泡構造が生成する不良に対して、 金型内の可視化観察によって、各領域の気泡生成メカニズムを明らかにする とともに、その結果に基づいて発泡構造の均一化制御を行っている例はない のが現状である.

1-4 数値シミュレーションによる材料特性予測の現状と課題

前節までは、射出発泡成形における成形不良や可視化観察による成形現象 の解明について記述した.本節では、射出発泡成形で得られた成形品の実用 化に向け、実製品の設計・開発分野において、非常に重要な位置づけである 数値シミュレーションによる強度や剛性等の材料特性予測(以下、機械特性 予測とする)について記述する.現在、コンピュータをはじめとした情報機 器の急速な機能や性能の向上により、従来では考えられなかったような分野 におけるコンピュータの利用が進んでおり、日本だけでなく世界のモノづく りに貢献している.射出発泡成形品だけでなく、あらゆる製品の設計・開発 分野において、CAE (Computer Aided Engineering)技術を代表とするコンピ ュータの利用が急速に拡大している⁵³⁾⁵⁴⁾. CAE 技術の中核となる有限要素 法(Finite Element Method, FEM)⁵⁵⁾の基礎的な理論に関しては、約70年前 から研究されており、その基礎となっている構造力学の諸理論は100年以上 前には完成している.NASTRAN等の商用ソフトウェアも1960年代から1970 年代にほぼ出揃っており、CAE 技術は50年を超える歴史を有している.

この 50 年間で、数値シミュレーションにより予測できる現象は飛躍的に 広がってきており、大規模な構造計算も可能となってきている⁵⁶⁾.また、計 算の対象も単純な梁の計算から複雑な構造物全体のシミュレーションが可 能となっている.さらに、計算できる現象自体も、当初弾性現象や線形だけ であったものが塑性現象や粘性現象と広がってきている.静的な問題から動 的な問題の計算も可能となり、構造解析だけでなく、流体解析や電磁場解析 等、解析の種類も多い.これら CAE 技術の発展は、ひとえにコンピュータ の高性能化・低価格化により実現できたと言えるであろう. さらに, 射出成 形法における3次元の樹脂流動解析等, 種々の設計・開発業務への利用も多 くなり, CAE 技術への期待は年々高まっている. 実際に, 製品の設計・開発 業務では, 試作回数の低減, 開発期間の短縮やコスト削減が要求され, コン ピュータを利用した CAE 技術は, 実務上のツールとして利用され始めてい る. 特に, ここ数年, 構造解析の分野では積極的な実務への適用が目立って いる.

構造解析における解析手法の代表として,有限要素法が挙げられる.有限 要素法は,材料や機械,構造物の変形や強度,剛性,振動等を数値的に解析 し,予測する手法の1つである.あらゆる製品の設計・開発分野,工学分野 の構造設計に広く使用されている.1956年,ボーイング社の技術者とその共 同研究者らにより,航空機の翼の強度・剛性計算のために開発された解析手 法が,今日の有限要素法の始まりとされている⁵⁷⁾.有限要素法の特徴は,そ の名の通り,物体(解析対象)を有限個数の要素と呼ぶ小さな領域に分割す ることにある.さらに,有限要素法は,要素毎に変位の分布等の未知関数を 簡単な関数で表現し,それら簡単な関数の集まりとして,物体全体の複雑な 挙動を近似的に求める方法である⁵⁸⁾.さらに,有限要素法は,コンピュータ の高性能化・低価格化や技術の進歩に伴い,製品の設計・開発に携わる者に とって益々身近で,かつ必要不可欠な解析手法となっている.

現在,有限要素法を樹脂製品の構造解析へ適用している例として,FRP等 の複合材料が挙げられる⁵⁹⁾.ここ数年,製品の軽量化と高強度化・高剛性化 の両立を可能とした,比強度・比剛性の高い複合材料へのニーズが急速に高 まっている.このような背景から,樹脂材料にガラス繊維や炭素繊維等の繊 維を混合し,繊維強化させた FRP を材料とする製品が増加傾向にある.FRP は,航空・宇宙分野から自動車部品,或いは水力・風力発電の設備に使用さ れるプロペラファンやブレード等,多くの分野で利用されている.

また,有限要素法による FRP の構造解析に関する研究として,以下のよう な報告がある.大石ら⁶⁰⁾は, FRP 製のプロペラファンを対象に,樹脂流動解

析と構造解析の連成解析を行い、繊維配向及び樹脂の異方性を考慮した構造 解析、強度評価を行っている.汎用 FEM 解析ソフトを使用し、過渡熱解析 で流動解析を代用して繊維配向を考慮するとともに、静解析及び固有値解析 を行い、実測結果との比較により解析の妥当性を検討している.西宮ら⁶¹⁾ は、合成枕木として鉄道分野を中心に広く使用されている、硬質発泡ウレタ ンをガラス長繊維で補強した複合材料(Fiber reinforced Foamed Urethane, FFU)を対象に、合理的な設計手法の確立を目的とし、材料試験により各方 向の物性値を明らかにするとともに、適切に評価可能な FEM 解析手法の構 築を行っている.FFU は、繊維強化された複合材料であり、方向によって弾 性率が異なる異方性材料である.FEM 解析の結果と実験結果は良好に一致す ることを示しており、構築した解析手法によって材料に応じて様々な形状の FEM 解析を精度良く行うことができるとともに、設計の合理化に応用できる ことを可能にしている.

射出発泡成形品は、板厚方向に金型による冷却速度の分布が発生するため、 流動・固化の過程でスキン層と発泡層が形成され、板厚方向に多層構造を形 成する.スキン層には気泡が存在しないため、機械特性の予測は容易である. しかし、樹脂と気泡が混在する発泡層は一種の複合材料と考えられることか ら、図 1-5 のようなミクロモデルを作成して有限要素法によって機械特性を 予測する場合、要素数や節点数は膨大なものとなり、モデルの作成やメッシ ユ生成に膨大な手間を要するため、計算時間は膨大となる.そこで、本研究 では、等価介在物法に着目した.等価介在物法は、詳細は後述するが、不均 質な機械特性を持つ介在物を、母材と同じ弾性特性を持ち、要素内部に固有 ひずみを有する領域に置き換えて機械特性を導く手法である⁶²⁾.等価介在物 法による機械特性予測に関する研究として、山本⁶³⁾は、等価介在物法に基づ いて木質細胞壁における木材繊維の力学挙動をシミュレートすることで弾 性構成式を導出し、その有効性を実験的に検証している.安田ら⁶⁴⁾は、等価 介在物法により破壊靱性の気孔率依存性及び気孔形状依存性を定式化する ことで、セラミックスの破壊靱性に及ぼす組織の影響について検討している. しかし,射出発泡成形品の機械特性予測に対して,等価介在物法が適用され た報告はない.

1-5 研究目的

前節までに述べてきた通り、従来の発泡成形法として、バッチ式発泡成形法が主流であったが、成形に膨大な時間を要するため生産性が低い.ここ数年、モノづくりの現場では、製品品質を向上させながら材料費や生産コストを削減し、生産性を向上させることが求められている.このような背景から、バッチ式成形法に替わる新たな成形法として、射出発泡成形が注目を集めている.射出発泡成形は、成形品を連続的に得ることが期待でき、成形に要する時間が短く、同一形状の製品を短時間かつ大量に生産することが可能とされている.

しかし、射出発泡成形でも、成形品の全てが良品であるとは限らず、スワ ールマークやウェルドライン等の成形不良が発生する.さらに、図 1-4 のよ うに、同一の成形品で異なる発泡構造が生成する成形不良が発生し、外観不 良や機械特性のバラつきに繋がる.また、発泡剤に使用した CO₂の供給圧力 (シリンダへ供給する際の圧力)によって、同一の成形品で各領域の発泡構 造が占める割合が異なる.よって、本研究では、CO₂の供給圧力によって、 各領域の気泡生成メカニズム(気泡の生成が開始するタイミング、気泡の成 長速度)が異なるため、上記の現象が起こるとの仮説を立てた.この仮説を 検証するため、金型内の充填過程を可視化観察し、可視化観察の結果に基づ いて気泡生成メカニズムを明らかにする.以上の検討を通して、同一の成形 品で異なる発泡構造が生成する成形不良を低減しながら、発泡構造の均一化 制御について検討する.

現在,射出発泡成形品は,部品の軽量化による燃費の向上が期待できることから,今後は主に自動車部品への応用が期待されている.しかし,成形品の実用化(実製品への応用)を考慮する場合,試作回数を減らしながらコストを削減し,リードタイムを短縮することが求められる.このため,数値シ

ミュレーションによって射出発泡成形品の機械特性を事前に予測すること が重要となる.これまで,機械特性を予測する解析手法として,有限要素法 によるものがあった.しかし,射出発泡成形品において,樹脂と気泡が混在 する発泡層は一種の複合材料と考えられることから,有限要素法により解析 を行う場合,要素数や節点数が膨大となり,多くの手間と時間を要するとい った課題がある.そこで,本研究では,等価介在物法に着目し,樹脂と気泡 が混在する発泡層の巨視的な応力とひずみの関係から弾性率を予測した.さ らに,成形品から作製した試験用サンプルを使用し,引張試験を実施した. また,予測した発泡層の弾性率をもとに,実製品を模したリブを有する成形 品のモデルで構造解析を行い,曲げ荷重に対する変位を予測した.さらに, リブを有する成形品で曲げ試験を実施し,予測結果と実測結果の比較を通し て,射出発泡成形品の機械特性予測に対する等価介在物法の妥当性を検討し つつ,実用化に向けた射出発泡成形品の機械特性予測手法の構築を試みる. 本論文は5章で構成されている.

第1章では、射出成形及び射出発泡成形の現状や問題点について述べた. さらに、射出発泡成形における成形不良、可視化観察に関する研究動向、こ こ数年、急速に普及している CAE、数値シミュレーションによる機械特性予 測の現状や課題を抽出し、本論文の目的と意義を明確にした.

第2章では,同一の成形品で異なる発泡構造が生成する成形不良に対して, 金型内の充填過程を可視化観察し,観察の結果に基づいて気泡生成メカニズ ムを明らかにする.

第3章では,第2章で明らかにした気泡生成メカニズムに基づき,同一の 成形品で異なる発泡構造が生成する成形不良を低減しながら,領域①或いは 領域②のどちらかを優先的に生成させ,発泡構造の均一化制御について検討 する.

第4章では,射出発泡成形品の実製品への応用を考慮し,機械特性予測手 法の構築を試みることを目的とし,各検討を行った.まず,樹脂と気泡が混 在する発泡層の弾性率を等価介在物法により予測し,引張試験の実測結果と 比較することで,発泡層の弾性率予測に対する等価介在物法の妥当性を検討 した.さらに,予測した発泡層の弾性率をもとに,実製品の形状に近いリブ を有する成形品の曲げ荷重に対する変位を構造解析で予測した.予測結果と 3 点曲げ試験の実測結果を比較することで,実製品により近い形状が近いも のに拡張した射出発泡成形品の機械特性予測に対する等価介在物法の妥当 性を検討した.

第5章は本論文の総括であり,第2章から第4章までをまとめるとともに, 今後の課題を明確化した. 参考文献

- 1) 小野木重治:材料科学と材料工学 高分子材料科学, 誠文堂新光社, 7(1973)
- H. Staudinger,小林義郎(訳):研究回顧-高分子化学への道,岩波書店, 1~9(1966)
- 山口章三郎:加工と設計のためのプラスチックの機械的性質,日刊工業 新聞社,1~10(1976)
- 4) 廣恵章利,本吉正信:成形加工技術者のためのプラスチック物性入門(第2版),日刊工業新聞社,48~51(1986)
- 5) 桜内雄二郎: プラスチック材料読本, 工業調査会, 10(1981)
- 6) 浅川智洋, 杉本昌隆他:成形加工シンポジア'12, 19(2012)
- 7) 伊藤彰浩: 成形加工 第24巻 第7号, 364(2012)
- 8) 斎藤拓:成形加工 第23巻 第7号, 393(2011)
- 9) J. E. Martini, N. P. Suh, F. A. Waldman : U. S. Patent 4473665(1982)
- 10) 伊藤正康,株本昭:古河電工時報 第116号,47~52(2005)
- S. Doroudiani, C. B. Park, M. T. Kortschot : POLYM. ENG. SCI., Vol.38, 1205~1215(1998)
- 12) 新保實,小沢道秀他:成形加工 第 23 巻 第 11 号,685~690(2011)
- 13) 山田岳大:成形加工 第21巻 第7号,400~402(2009)
- 14) 志熊治雄, 瀧健太郎, 大嶋正裕: 成形加工'13, 239(2013)
- 15) 伊藤彰浩, 仙波健: 成形加工シンポジア'13, 83(2013)
- 16) A. Osorio, L. Turng : POLYM. ENG. SCI., Vol.44, 2274~2287(2004)
- 17) 小松道男,大嶋正裕:成形加工 第22巻 第2号,87~90(2010)
- Y. Sato, K. Fujikawa, T. Takikawa et. al. : *Fluid Phase Equilibria*, Vol.162, 261~276(1999)
- 19) S. Mayadevi : Indian Journal of Chemistry, Vol.51, 1298~1305(2012)
- J. A. R. Ruiz, P. Viot, M. Dumon : Journal of Applied Polymer Science, Vol.118, 320~331(2010)
- 21) H. Tai, V. K. Popov, K. M. Shakesheff et. al. : Biochemical Society

1. Introduction

Transactions, Vol.35, part3, 516~521(2007)

- B. Bonavoglia, G. Storti, M. Morbidelli et. al.: Journal of Polymer Science:
 Part B: Polymer Physics, Vol.44, 1531~1546(2006)
- Y. Wang, R. N. Dave, R. Pfeffer : Journal of Supercritical Fluids, Vol.28, 85~89(2004)
- H. Tai, M. L. Mather, D. Howard et. al. : European Cells and Materials, Vol.14, 64~77(2007)
- 25) S. Siripurapu, Y. J. Gay, J. R. Royer et. al. : *Polymer*, Vol.43, 5511~5520(2002)
- I. Tsivintzelis, A. G. Angelopoulou, C. Panayiotou : *Polymer*, Vol.48, 5928~5939(2007)
- 27) O. R. Davies et. al. : Advanced Drug Delivery Reviews, Vol.60, 373~387(2008)
- 28) 佐藤善之:成形加工 第24巻 第11号,620(2012)
- A. Zhang, Q. Zhang et. al. : The Royal Society of Chemistry, Vol.43, 6938~6953(2014)
- 30) S. G. Kazarian : *Polymer Science*, Series C, Vol.42, No.1, 78~101(2000)
- 31) E. Reverchon, R. Adami et. al.: *The Journal of Supercritical Fluids*, Vol.47, 484~492(2009)
- 32) S. Siripurapu, J. A. Coughlan et. al. : *Macromolecules*, Vol.37, 9872~9879(2004)
- A. R. C. Duarte et. al.: The Journal of Bioactive and Compatible Polymers, Vol.24, 385~400(2009)
- 34) A. I. Cooper, J. M. DeSimone : Current Opinion in Solid State & Materials
 Science 1996, 761~768(1996)
- 35) I. Kikic, F. Vecchione : Current Opinion in Solid State & Materials Science
 2003, 399~405(2003)
- 36) 福田順平,近藤英一:日本機械学会関東支部第 11 期総会講演会講演

論文集, 277(2005)

- 37) 木原伸一:成形加工 第24巻 第11号, 619(2012)
- 38) 佐藤善之,猪股宏他:成形加工'09,89(2009)
- 39) 菊池泰志,中野亮,岡田有司他:成形加工'09,91(2009)
- 40) 山田岳大,村田泰彦,横井秀俊:成形加工 第 21 巻 第 10 号, 633(2009)
- 41) 山田岳大, 横井秀俊: 成形加工シンポジア'12, 27(2012)
- 42) M. Mahmoodi, A. H. Behravesh et. al. : *POLYM. ENG. SCI.*, Vol.50, 561~569(2010)
- M. Yuan, L. Turng, S. Gong, D. Caulfield et. al. : POLYM. ENG. SCI., Vol.44, 673~686(2004)
- 44) 有方広洋:射出成形加工の不良対策,日刊工業新聞社 101(2007)
- 45) 山田岳大,小熊広之他:埼玉県産業技術総合センター研究報告 第8
 巻,73(2010)
- 46) 山田岳大, 横井秀俊: 成形加工 第 25 巻 第 11 号, 540(2013)
- 47) 長谷川恭平, 瀬戸雅宏, 田中宏明, 山部昌: 成形加工'14, 291(2014)
- 48) 横井秀俊:成形加工'14, 283(2014)
- 49) 内田和也, 瀬戸雅宏, 山部昌: 成形加工'13, 61(2013)
- 50) 横井秀俊, 馬賽, 酒井優: 成形加工'13, 33(2013)
- 51) 山部昌, 瀬戸雅宏, 田中宏明: 成形加工'14, 305(2014)
- 52) 小松道男,砂村安秀,大嶋正裕:成形加工'09,93(2009)
- 53) 横山敦士:成形加工 第23巻 第7号, 409(2011)
- 54) 谷藤眞一郎:成形加工 第24巻 第7号, 379(2012)
- 55) Y. Ueda, T. Yamakawa : Transactions of the Japan Welding Society, Vol.2, $90 \sim 100(1971)$
- 56) 横山敦士:成形加工 第26巻 第9号, 416(2014)
- 57) 戸川隼人:有限要素法へのガイド,サイエンス社,12(1986)
- 58) 田中喜久昭,長岐滋,井上達雄:弾性力学と有限要素法,大河出版, 168(1995)

1. Introduction

- 59) H. Hu, F. Lin, Y. Jan : Composite Structures, Vol.63, 271~281(2004)
- 60) 大石智子,坂本博夫:日本機械学会 [No.08-2] 第18回設計工学・シ ステム部門講演会論文集, 366(2008)
- 61) 西宮裕騎,細田充,本野貴志:土木学会第 66 回年次学術講演会論文集,175(2011)
- 62) 高野直樹,浅井光輝,上辻靖智:マイクロメカニカルシミュレーション、コロナ社、31~36(2008)
- 63) 山本浩之:日本機械学会〔No.06-09〕第 19 回計算力学講演会講演論 文集,99~100(2006)
- 64) 安田公一,松尾陽太郎,木村脩七,森勉:日本セラミックス協会学術 論文誌, Vol.99, 737~744(1991)

Table1-1 Classification of synthetic polymer material.

Use	Туре
Plastics Thermoplastic Thermosetting	Polyethylene, Polypropylene, Polystyrene Polyvinyl chloride, Nylon, etc. Phenolic resin, Melamine resin, Epoxy resin, etc.
Rubber	Natural rubber, Styrene-butadiene rubber Butadiene rubber, Isoprene rubber, Nitrile rubber Chloroprene rubber, Acrylic rubber, etc.
Fiber	Nylon fiber, Acrylic fiber, Polyester fiber Aramid fiber, Polyethylene fiber, etc.
Paint, Print-ink	Unsaturated polyester, Epoxy-ester paints, etc.
Adhesive	Emulsion type, Aqueous-solution type, etc.



Fig.1-1 Batch foaming process.



Fig.1-2 Thermal decomposition characteristics of the chemical foaming agent.



Fig.1-3 State diagram of CO₂.



Fig.1-4 Generation of non-uniform foam structure.





第2章

射出発泡成形における 気泡生成メカニズムの解明

2-1 緒言

射出発泡成形は、樹脂に多数の気泡を生成させることで、優れた断熱性や 耐衝撃性を付与することが可能である.また気泡の体積分だけ軽量化が可能 であり、使用する材料を削減できるため、地球環境への負荷が少なく、コス ト削減も期待できる.従来、発泡成形は、バッチ式発泡成形法によるものが 主流であった¹⁾²⁾.しかし、この成形方法は、成形に要する時間が長く、生 産性が低いことから、成形サイクルが早く生産性にも優れる射出発泡成形が 注目されている.さらに、昨今では、地球環境への負荷をより低減させるこ とを目的とし、超臨界状態にある CO₂や N₂を発泡剤に使用した射出発泡成 形がある³⁾⁴⁾. CO₂は圧力 7.4MPa、温度 31.0℃の臨界点以上で、気体と液体 が混合された状態となり、気体のような高い拡散性と液体並みの溶解性を持 ち合わせた超臨界流体になる.超臨界流体は安価であり、人体や地球環境に やさしく、リサイクル性もあることから、自動車産業や医療分野で工業的に 利用されている⁵⁾.

しかし、CO₂を発泡剤に使用した射出発泡成形では、標準的な成形条件で 成形を行うと、図 1-4 のように、同一の成形品で微細な気泡が占める領域(以 下、領域①)と径の大きい気泡が占める領域(以下、領域②)が生成し、気 泡径が二極化する現象がみられる⁶⁾⁷⁾.これは、外観不良や機械特性のバラ つきに繋がり、成形品の品質を低下させる要因となっている.さらに、CO₂ の供給圧力によって生成する発泡構造に差異があり、供給圧力が高い場合 (以下,超臨界)は領域①が広く、領域②が狭い.一方、供給圧力が低い場 合(以下, 亜臨界)はその逆である.これは成形において、各領域における 気泡生成メカニズム(気泡の生成が開始するタイミング、気泡の成長速度) が異なるためであると考えられる.

超臨界流体を発泡剤に使用した射出発泡成形に関して、山田ら⁸⁾は、金型 内における気泡の生成プロセスを解明するため、金型内のキャビティ面圧力 分布を計測し、型内圧力と成形品内における発泡状況の関係について検討し ている.また山田ら⁹⁾は、障害ピン後方におけるウェルド部の発泡構造の生 成過程を可視化するとともに圧力計測を行い,成形品の発泡構造を観察する ことで,ウェルド部における発泡構造の生成機構を明らかにしている.しか し,図1-4のような同一の成形品で異なる発泡構造が生成する現象に対して, 各領域における気泡生成メカニズムの解明について検討された例はない.

そこで本研究では、以下の検討を行った.図1-4のように、CO₂が超臨界 の条件では領域①が成形品の大部分を占め、亜臨界の条件では領域②が成形 品の大部分を占める現象が報告されている.各領域における気泡生成の要因, 及びメカニズムを解明するため、金型内における充填過程の可視化観察を行 った.

2-2 可視化観察

2-2-1 実験方法

各領域における気泡生成メカニズムを明らかにするため、CO₂を発泡剤に 使用した射出発泡成形において、金型内可視化手法により充填過程の観察を 行った.成形は、型締力180トンの電動サーボ射出成形機(Si-180Ⅲ,東洋 機械金属)を使用し、表 2-1で示した成形条件で行った.材料は、溶融時に 透明性が高く、金型キャビティ内の気泡を容易に観察できるポリプロピレン (プライムポリマー)を使用した.図 2-1に CO₂の供給方法、図 2-2に成形 品の形状を示す.CO₂は、超臨界炭酸ガス供給装置(タクミナ)を使用し供 給した.CO₂は、供給装置から圧力センサ(Swagelok)を介して、成形機で 供給信号を入れると同時に計量開始のタイミングでバルブが開き、シリンダ 内へ供給される.

可視化観察は、高速度カメラ(キーエンス)を用いてフレームレート 250frame/s で行った. 観察位置は図 2-2 に示す成形品の Gate 部と Middle 部 の2箇所であり、各位置で図 2-3 のような可視化用金型を用いて定点観察を 行った. 図 2-3 に示した可視化用金型は、金型側面から鏡を利用して取り入 れた光で金型内を照射し、高速度カメラの焦点を光の照射位置に合わせて撮 影する仕組みとなっている.

2-2-2 可視化観察の結果と考察

可視化観察で得られた結果の一例として、CO2が超臨界の条件(15.0MPa) における,成形品 Gate 部の充填過程を図 2-4 に示す.図 2-4 から,領域①は, 樹脂が金型に充填された直後から既に生成していることが分かる.また,樹 脂の充填が完了し,樹脂の流動が完全に停止した後に径の大きい気泡が生成 しており,領域②が生成することが分かった.さらに,可視化観察より明ら かとなった充填過程の模式図を図 2-5 に示す.図 2-5 は,金型に樹脂が充填 されてから,樹脂の充填が完了するまでの充填過程を示したものであり,上 図は CO2 が亜臨界の条件(7.0MPa)であり,下図は CO2 が超臨界の条件 (15.0MPa)である.図 2-5 から,CO2 が超臨界の条件,亜臨界の条件とも に,フローフロントには微細な気泡が生成する領域①が生成されることが分 かる.さらに,図 2-5 から,領域①が通過した後に,未発泡領域が続いた状 態で樹脂が充填されている状況にあると推測される.

この結果を受け、樹脂が射出される(ノズルから解放される)際、急激に 樹脂の圧力が降下することで気泡が多く生成するとともに、樹脂温度が低下 したと考えられる.そこで、CO2が超臨界と亜臨界の条件において、ノズル から樹脂が解放された後の金型内における流動中の樹脂温度を計測し、樹脂 温度と粘度の関係が気泡生成メカニズムに与える影響を考察した.成形は、 ポリプロピレンを使用し、表 2-1 で示した条件で行った.金型内の樹脂温度 は、成形品 Gate 部に温度センサ(双葉電子工業)を設置し計測した.使用 した温度センサは放射温度計であり、樹脂から放射される赤外線を電気信号 に変換し、樹脂温度として表示される仕組みとなっている.さらに、サンプ リング周期が 1ms (0.001s)の高速応答性を実現しており、金型内で刻一刻 と変化する樹脂温度の変化に追従できる応答性を有している.また、計測で は、温度計測アンプ(双葉電子工業)を使用し、これは 100℃あたり 1V の 電圧を出力する仕様となっている.金型内における樹脂の表面温度を計測す る際、一般的に黒色塗料を混合するが、本研究では敢えて透明性の高い樹脂 を使用した.ここで、気泡の生成・成長は、成形品の板厚方向からみれば、 樹脂表面ではなく主に樹脂内部,つまりコア層で起きていると考えられる. したがって,当初は樹脂内部の温度を計測する予定であったが,金型の仕様 上困難であったため,敢えて透明性の高い樹脂を使用し,樹脂表面の温度を 樹脂内部の温度として計測を行った.

図 2-6 に、金型内の樹脂温度を計測した結果を示す. 図 2-6 において、横 軸は充填時間であり、縦軸は樹脂温度である. CO2が超臨界と亜臨界の条件 に併せ, CO2を供給していない条件の樹脂温度も計測した. さらに, 図 2-6 における最大樹脂温度と CO₂の供給圧力の関係を図 2-7 に示す.最大樹脂温 度とは,温度センサをフローフロントが通過した時の樹脂温度である.図 2-7 から、CO2の供給圧力を高くするにつれ、樹脂温度の低下が大きくなること を確認した.また、図 2-8 に、射出時におけるノズル圧を計測した結果を示 す. さらに, 図 2-8 に, 射出時において, 樹脂がノズルから解放される際に 微細な気泡が生成する様子を表現した模式図を併せて示す. なお,"ノズル **圧"は射出ノズル内の樹脂圧力であり、射出ノズルに取り付けた圧力センサ** (日本ダイニスコ)で計測した.ここで使用した圧力センサは、ノズル部で 溶融状態にある樹脂に, 先端部のダイアフラムが直接接触して圧力を計測す るセンサである.また,一般的な射出成形において溶融状態にある樹脂の圧 力を計測するのに最適なセンサであり、先端部の最大温度は400℃まで対応 している.図 2-8 のように、CO2 が超臨界の条件では、亜臨界の条件に比べ て、時間に対する圧力変化が大きいことが分かり、急激な圧力降下が起きて いることが明らかとなった.この急激な圧力降下により,図 2-7 で示したよ うに、CO2の供給圧力を高くするにつれ、樹脂温度の低下が大きくなったと 推測される.以上のことから,図 2-4 及び図 2-5 において, CO2 が超臨界の

条件でフローフロントに微細な気泡が多く生成するのは,射出時の急激な圧 力降下により,フローフロントに気泡が多く生成し,CO₂の断熱膨張による 温度の低下とともに粘度が高くなることで,気泡の成長が抑制されるためで あると考えられる.

ここで,射出ノズル及びシリンダ内におけるポリプロピレンに対する CO₂

の溶解に着目し、ポリプロピレンに対する CO₂の溶解と気泡生成の関係を明 らかにするため、ポリプロピレンに対する CO₂の溶解度を評価した.材料に ペレット状のポリプロピレンを使用し、発泡剤である CO₂とポリプロピレン を圧力容器内において一定の圧力、温度下で平衡状態にし、CO₂がポリプロ ピレンにどれだけ溶解するか、ポリプロピレンに対する CO₂の溶解度を評価 した.溶解度の評価は、図 2-9 のような装置で行った.溶解圧力は成形時と 同様、亜臨界の条件(7.0MPa)と超臨界の条件(15.0MPa)とし、溶解温度 は恒温槽(アズワン)で 40℃に保ち、溶解時間は 2 時間とした.圧力容器か らポリプロピレンを取り出すと、時間経過によりポリプロピレンに溶解した CO₂が抜け、質量が変化するため、材料を取り出してから 1 時間経過するま での質量変化を電子天秤(ザルトリウス)で計測した.また、実際の成形で は、射出ノズル内、及びシリンダ内の樹脂温度は 200℃であり、樹脂は溶融 状態にあり、溶融状態にある樹脂に対する CO₂の溶解度を定量的に評価する ことは、現状では困難である.そこで、本研究では、図 2-9 のような装置を 使用し、簡易的に溶解度の評価を行った.

図 2-10 に、溶解度を評価した結果を示す.図 2-10 は、ポリプロピレンから CO₂が抜けた量を計測した結果であり、横軸は時間、縦軸はポリプロピレンから CO₂が抜けた量である.なお、このポリプロピレンから CO₂が抜けた 量をポリプロピレンに対する CO₂の溶解度とし、圧力容器からポリプロピレンを取り出した瞬間の時刻を 0 分とした.さらに、同様の計測を 1 条件につき 3 回行い、5 分毎のポリプロピレンから CO₂が抜けた量を平均した.図 2-10 から、CO₂が超臨界の条件(15.0MPa)では、亜臨界の条件(7.0MPa)に比べて、1時間経過時の CO₂がポリプロピレンから抜けた量が大きいことを確認できる.これは、CO₂が超臨界の条件では、ポリプロピレンから CO₂が抜けた量が多い、つまりポリプロピレンに溶解した CO₂の量が多く、ポリプロ ピレンに対する CO₂の溶解度が大きいことを示している.さらに、射出ノズル内、及びシリンダ内においても、ポリプロピレンに CO₂が超
臨界の条件では,射出ノズル,シリンダ内におけるポリプロピレンに対する CO₂の溶解度が大きく,気泡が生成しやすい状態になった.さらに,図 2-8 に示したように,射出時の急激な圧力降下に伴う樹脂温度の低下によって, 気泡の成長が抑制され,微細な気泡が多く生成したと推測される.

また,図 2-11 に,図 2-6 で示した金型内の最大樹脂温度付近における充填 時間と樹脂温度の関係を示す.図 2-11 から,フローフロントが成形品の Gate 部に設置した温度センサを通過した後,つまり最大樹脂温度に達した後,樹 脂温度が再度上昇していることが分かる.これは,図 2-4 及び図 2-5 に示し た可視化観察の結果からも確認できるように,成形品の Gate 部において, 微細な気泡がフローフロントに多く生成した領域①が流動した後,未発泡の 領域(気泡の生成・成長が抑制された領域)が流動しているためであると考 えられる.金型内における樹脂の流動抵抗により樹脂圧力が上昇し,気泡の 生成・成長が抑制され,未発泡の領域が流動したため,樹脂温度が再度上昇 したと考えられる.

また、図 2-4 及び図 2-5 のように、樹脂の金型への充填が完了した後、冷却過程で径の大きい気泡が生成し、領域②が生成することが分かった.なお、 領域②の生成に関しては、CO2の供給圧力によらず、全ての条件で確認され た.これは、充填完了後の冷却過程において、樹脂温度の低下に伴う樹脂圧 力の降下が影響しているのではないかと考えられる.そこで、金型内の樹脂 圧力を計測し、領域②の生成に与える樹脂圧力の影響を調べた.樹脂圧力の 計測は、圧電式の圧力センサ(日本キスラー)を使用して行った.使用した 圧力センサは、センサの先端が直接、金型内の樹脂に接触して圧力を測定す る仕組みとなっている.金型内の樹脂圧力がセンサに加わると、圧電効果に より電荷が発生する.発生した電荷は、加わった圧力に正比例するため、計 測した電荷をアンプによって電圧に変換することで、金型内の樹脂圧力を計 測する.なお、サンプリング周期は 10ms (0.01s) とした.図 2-12 に、金型 内の樹脂圧力を計測した結果を示す.横軸は充填時間[s]であり、縦軸は金型 内の樹脂圧力を計測した結果を示す.横軸は充填時間[s]であり、縦軸は金型 泡が生成するメカニズムを示す.図 2-12 から,樹脂の充填完了後,金型内の樹脂圧力は最大に達した後,つまり最大充填圧力に達した後,時間の変化に伴って降下し続けていることが確認できる.これは,樹脂がノズルから解放される際,気泡として生成しなかった CO₂は,樹脂に溶解したまま金型へ射出充填される.さらに,図 2-13 のように,樹脂の充填が完了した後の冷却過程において,樹脂が冷却固化されるとともに,樹脂温度の低下に伴い,さらには時間の変化に伴って樹脂圧力が降下し続けることで,径の大きい気泡が徐々に生成し,領域②の生成に繋がったと推測される.

2-3 ポリプロピレン以外の樹脂を使用した場合

前節までは、樹脂にポリプロピレンを使用し、各検討を進めてきた、しか し,理論展開の拡大に向け,応用性のある手法としてまとめることを目的と し、ポリプロピレン以外の樹脂としてポリスチレン(PS ジャパン)を使用 して同様の検討を進める.ここで,ポリスチレンを使用したのは,熱可塑性 樹脂のうち、ポリプロピレンと同様に価格が安く、生産量が多いためである. また、ポリスチレンは、ポリプロピレンと同様、成形性に優れていることか ら射出成形で使用されることが多く、工業製品に広く利用されている.ポリ スチレンとポリプロピレンで大きく異なるのは,前者は非晶性樹脂に属する のに対し、後者は結晶性樹脂に属することである. 高分子の配列状態によっ て結晶性樹脂と非晶性樹脂に分類されるが, 高分子が規則正しく配列する状 態は結晶状態, 高分子が糸玉状になったり絡まったりして存在する状態は非 晶状態と呼ばれる.このように高分子の配列状態が異なれば、その特徴も異 なり,実際に製品として利用される分野や用途も異なる.一般的に,結晶性 樹脂は透明になりにくい、機械的特性(強度や剛性)や耐薬品性に優れると いった特徴がある.一方,非晶性樹脂は,無色透明であり,耐衝撃性に優れ るといった特徴がある.このように、価格が安く、生産量が多く、射出成形 でも使用される機会が多いといった共通した特徴を有する一方, その特徴や 利用される分野,用途が異なる2種類の樹脂を使用して検討を進め,理論展 開の拡大を目的とし、応用性のある手法としてまとめる.

ポリスチレンを使用し、ポリプロピレンを使用した場合と同様の成形を行ったところ、図 2-14 のように、同一の成形品で異なる発泡構造が生成し、 気泡径が二極化していることを確認した.まず、ポリプロピレンを使用した 場合と同様に、CO₂が超臨界と亜臨界の条件において、ノズルから樹脂が解 放された後の金型内における樹脂温度を計測し、樹脂温度と粘度の関係が気 泡生成メカニズムに与える影響を考察した.成形は、樹脂にポリスチレンを 使用し、表 2-2 で示した条件で行った.さらに、金型内における樹脂温度の 計測は、ポリプロピレンを使用した場合と同様の方法で行った.図 2-15 に、 金型内の樹脂温度を計測した結果を示す.図 2-6 において、横軸は充填時間 であり、縦軸は樹脂温度である.CO₂が超臨界と亜臨界の条件に併せ、CO₂ を供給していない条件の樹脂温度も計測した.さらに、図 2-15 における最 大樹脂温度と CO₂の供給圧力の関係を図 2-16 に示す.最大樹脂温度とは、 温度センサをフローフロントが通過した時の樹脂温度である.図 2-16 から、 ポリスチレンを使用した場合でも、CO₂の供給圧力を高くするにつれ、樹脂 温度の低下が大きくなることを確認した.

また、図 2-17 に、ポリスチレンを使用した場合において、射出時におけ るノズル圧を計測した結果を示す. さらに、図 2-17 に、射出時において、 樹脂がノズルから解放される際に微細な気泡が生成する様子を表現した模 式図を併せて示す. なお、ノズル圧(射出ノズル内の樹脂圧力)は、ポリプ ロピレンを使用した場合と同様の方法で計測した. 図 2-17 ように、ポリス チレンを使用した場合でも、CO2が超臨界の条件では、亜臨界の条件に比べ て、時間に対する圧力変化が大きいことが明らかとなった. さらに、図 2-18 に、ポリスチレンに対する CO2の溶解度を評価した結果を示す. 図 2-18 は、 ポリスチレンから CO2が抜けた量を計測した結果であり、横軸は時間、縦軸 はポリスチレンから CO2が抜けた量である. なお、このポリスチレンから CO2が抜けた量をポリスチレンに対する CO2の溶解度とし、圧力容器からポ リスチレンを取り出した瞬間の時刻を0分とした. さらに、同様の計測を1 条件につき3回行い,5分毎のポリスチレンからCO2が抜けた量を平均した. 図 2-18から,ポリスチレンを使用した場合においても,CO2が超臨界の条件 では,亜臨界の条件に比べて,1時間経過時におけるCO2がポリプロピレン から抜けた量が多いことを確認できる.これは,CO2が超臨界の条件では, ポリスチレンからCO2が抜けた量が多く,ポリスチレンに対するCO2の溶解 度が大きいことを示している.このことから,射出ノズル内,及びシリンダ 内においても,ポリスチレンにCO2がより多く溶解し,気泡が生成しやすい 状態になったと推測される.

以上のことから,図 2-14 のように、ポリスチレンを使用した場合でも、 フローフロントに微細な気泡が多く生成するのは、射出ノズル、シリンダ内 におけるポリスチレンに対する CO₂の溶解度が大きくなり、気泡が生成しや すい状態になった.さらに、射出時の急激な圧力降下により、フローフロン トに気泡が多く生成し、CO₂の断熱膨張による温度の低下とともに粘度が高 くなることで、気泡の成長が抑制されるためであると考えられる.

また、図 2-14 から、ポリスチレンを使用した場合でも、径の大きい気泡 が生成し、領域②が生成することを確認できる.これは、ポリプロピレンを 使用した場合と同様に、充填完了後の冷却過程において、樹脂温度の低下に 伴う樹脂圧力の降下が領域②の生成に影響を与えていると考えられる.そこ で、金型内の樹脂圧力を計測し、領域②の生成に与える樹脂圧力の影響を調 べた.樹脂圧力の計測は、ポリプロピレンを使用した場合と同様に行った. 図 2-19 に、金型内の樹脂圧力を計測した結果を示す. 横軸は充填時間[s]で あり、縦軸は金型内の樹脂圧力[MPa]である.図 2-19 から、樹脂の充填完了 後、金型内の樹脂圧力は降下することが分かる.これは、ポリプロピレンを 使用した場合と同様、樹脂がノズルから解放される際、気泡として生成しな かった CO₂は、樹脂に溶解したまま金型へ射出充填される.さらに、図 2-13 のように、樹脂の充填が完了した後の冷却過程において、樹脂が冷却固化さ れるとともに、樹脂温度の低下に伴い樹脂圧力が降下することで、径の大き い気泡が生成し、領域②が生成したと推測される.図 2-19 から、充填完了 時において金型内の樹脂圧力が最大に達した瞬間から 0.5~1.0 秒後にかけ て、樹脂圧力が急激に降下しており、時間に対する金型内における樹脂圧力 の変化が、図 2-17 で示した射出時におけるノズル圧のそれよりも大きいこ とが分かった.これは、図 2-20 のように、ポリスチレンの粘度はポリプロ ピレンに比べて高く、金型内における充填完了時の樹脂圧力、つまり最大充 填圧力が高いことが影響を与えていると考えられる.また、図 2-19 から、 最大充填圧力に達してから時間の変化に伴い、樹脂が冷却固化されるととも に、樹脂圧力が降下し続けていることが確認できる.したがって、ポリスチ レンを使用した場合、ポリプロピレンに比べて粘度が高いために最大充填圧 力が高くなり、時間に対する圧力変化は大きくなる.しかし、最大充填圧力 に達した後、樹脂が冷却固化されるとともに、樹脂圧力が降下し続けるため、 径の大きい気泡が徐々に生成し、領域②の生成に繋がったと推測される.

以上のことから、気泡生成メカニズムの解明において、理論展開の拡大を 目的とし、樹脂の特徴や製品として利用される分野、用途が異なるポリスチ レンを使用した場合でも、ポリプロピレンを使用した場合と同様の結果が得 られ、応用性のある手法としてまとめることができた.

2-4 結言

本研究では、CO₂を発泡剤として使用した射出発泡成形では、同一の成形 品で異なる発泡構造が生成し、発泡構造が不均一になり、外観不良、剛性や 強度のバラつきに繋がるといった課題がある.この現象について、本研究で は、発泡剤として使用した CO₂の供給圧力により気泡生成メカニズムが異な るためであるとの仮説を立てた.これを検証するため、金型内の充填過程を 可視化観察することで、気泡生成メカニズムを解明した.その結果、以下の ことが明らかとなった.

1) 可視化観察により、CO₂が超臨界の条件では、樹脂が金型に充填された 直後から、フローフロントに微細な気泡が多く存在する領域①が既に生 成していることを確認した.これは, CO₂ が超臨界の条件では,樹脂が 射出される際,急激な圧力降下により気泡が多く生成し,樹脂温度が低 下して粘度が高くなることで,気泡の成長が抑制される.これにより, フローフロントに微細な気泡が多く生成し,領域①が生成することが分 かった.

- 成形品の Gate 部において、フローフロントに生成した領域①が流動した後、未発泡の領域(気泡の生成・成長が抑制された領域)が流動していることが分かった.これは、樹脂の流動抵抗により樹脂圧力が上昇し、気泡の生成・成長が抑制され、未発泡の領域が流動し、最大樹脂温度に達した後、樹脂温度が再度上昇するためであることが明らかとなった.
- 3) 射出ノズル内、及びシリンダ内における樹脂に対する CO₂の溶解に着目し、樹脂に対する CO₂の溶解と気泡生成の関係を明らかにするため、樹脂に対する CO₂の溶解度を評価した. 圧力容器からポリプロピレンを取り出してから、時間経過によりポリプロピレンから抜ける CO₂の量を計測し、これをポリプロピレンに対する CO₂の溶解度として評価を行った. CO₂ が超臨界の条件では、亜臨界の条件に比べて、圧力容器から樹脂を取り出してから1時間経過時におけるポリプロピレンから抜ける CO₂の 量が多いことが明らかとなった.したがって、CO₂ が超臨界の条件では、 ポリプロピレンに対する CO₂の溶解度が大きいことが明らかとなり、射 出ノズル、シリンダ内におけるポリプロピレンに対する CO₂の溶解度が 大きく、気泡が生成しやすい状態になることが分かった.さらに、樹脂 に対する CO₂の溶解は気泡生成メカニズムと密接な関係があることを明 らかにした.
- 4) 領域②の生成に関して、充填完了後の冷却過程における樹脂温度の低下 に伴う樹脂圧力の降下が、領域②の生成に与える影響を明らかにするた

め、金型内の樹脂圧力を計測した.その結果、樹脂がノズルから解放さ れる際に気泡として生成しなかった CO₂は、樹脂に溶解したまま金型へ 射出充填される.さらに、充填完了後、最大充填圧力に達した後の冷却 過程において、時間の変化に伴って樹脂圧力が降下し続けるため、樹脂 温度が高い状態にあるコア層では、径の大きい気泡が徐々に生成し、領 域②が生成したことが明らかとなった.

5) 気泡生成メカニズムの解明において、理論展開の拡大を目的とし、樹脂の特徴や製品として利用される分野、用途が異なるポリスチレンを使用し、ポリプロピレンを使用した場合と同様の検討を行った。樹脂にポリスチレンを使用した場合でも、ポリプロピレンを使用した場合と同様の結果が得られ、応用性のある手法としてまとめることができた。

参考文献

- 1) 新保實, 中野晋, 三澤章博: 成形加工 第 22 巻 第 9 号, 519(2010)
- 2) 新保實,小沢道秀,西野広平,三澤章博:成形加工 第 23 巻 第 11 号, 685(2011)
- 3) 山田岳大,村田泰彦,横井秀俊:成形加工 第21卷 第10号, 633(2009)
- 4) 山田岳大,小熊広之,村田泰彦,横井秀俊:埼玉県産業技術総合センタ 一研究報告 第8巻,73~77(2010)
- 5) 福田順平,近藤英一:日本機械学会関東支部第11 期総会講演会講演論文 集,277(2005)
- 6) 浦野陽平, 瀬戸雅宏, 山部昌: 成形加工シンポジア'13, 87~88(2013)
- 7) 柿島浩徳, 瀬戸雅宏, 田中宏明, 山部昌: 成形加工'14, 289~290(2014)
- 8) 山田岳大,村田泰彦,横井秀俊:埼玉県産業技術総合センター研究報告 第
 5巻,126~130(2007)
- 9) 山田岳大,小熊広之,横井秀俊,村田泰彦:埼玉県産業技術総合センタ 一研究報告 第10巻,21~25(2012)

Table2-1 Molding conditions (Visualization of cell generation mechanism).

Resin temperature [°C]	200	
Injection speed [mm/s]	10.0	
Back pressure [MPa]	20.0	
Mold temperature [°C]	50.0	
Cooling time [s]	20.0	
Supplying pressure of CO ₂ [MPa]	7.0, 15.0	



Fig.2-1 Supplying process of CO₂.



Fig.2-2 Cavity shape and observation area.



Fig.2-3 Visualization mold.



Fig.2-4 Visualization of cell generation mechanism (CO₂ 15.0MPa – Supercritical, Gate).



Fig.2-5 Visualization of cell generation mechanism (CO₂ 7.0MPa and CO₂ 15.0MPa, Pattern diagram).



Fig.2-6 Resin temperature in the mold (polypropylene).



Fig.2-7 Peak resin temperature in the mold (Polypropylene).



Fig.2-8 Cell generation mechanism (Polypropylene,Fine cell in "Area ①", Change of nozzle pressure at injection).



Fig.2-9 Evaluation of solubility.



Fig.2-10 Evaluation of impregnation characteristics (Polypropylene).



(I) Supplying pressure of CO_2 : Subcritical-7.0MPa



($I\!I$) Supplying pressure of CO_2 : Supercritical-15.0MPa

Fig.2-11 Relationship between filling time and resin temperature in the mold (Polypropylene).



Fig.2-12 Resin pressure in the mold (Polypropylene, Resin pressure drop after completion of filling).



Fig.2-13Cell generation mechanism (Coarse cell in "Area 2",
Resin pressure drop after completion of filling).



Fig.2-14 Generation of non-uniform foam structure (Polystyrene).

Table2-2 Molding conditions (Polystyrene).

Resin temperature [°C]	220	
Injection speed [mm/s]	20.0	
Back pressure [MPa]	6.0	14.0
Mold temperature [°C]	50.0	
Cooling time [s]	30.0	
Supplying pressure of CO ₂ [MPa]	7.0	15.0



Fig.2-15 Resin temperature in the mold (Polystyrene).



Fig.2-16 Peak resin temperature in the mold (Polystyrene).



Fig.2-17 Cell generation mechanism (Polystyrene, Fine cell in "Area ①", Change of nozzle pressure at injection).



Fig.2-18 Evaluation of impregnation characteristics (Polystyrene).



Fig.2-19 Resin pressure in the mold (Polystyrene, Resin pressure drop after completion of filling).



Fig.2-20 Viscosity (Polypropylene, Polystyrene)

第3章

発泡構造の均一化制御

3-1 緒言

CO₂を発泡剤に使用した射出発泡成形では,標準的な成形条件で成形を行 うと,図1-4のように,同一の成形品で微細な気泡が占める領域①と径の大 きい気泡が占める領域②の2種類の発泡構造が生成し,気泡径が二極化する 現象がみられる¹⁾²⁾.これは,射出発泡成形における成形不良の1つであり, 外観不良や機械特性のバラつきに繋がり,成形品の品質を低下させる要因と なっている.

射出発泡成形に関する研究として,山田ら³⁾は,樹脂に汎用ポリスチレン, 発泡剤に超臨界 N₂を使用した射出発泡成形において,溶融樹脂の流動から 冷却過程における発泡状況の可視化観察を行っている.気泡分布に基づいて 成形品内部の発泡構造を層構造として抽出し,可視化観察により層構造の形 成機構について検討している.流動過程では、微細な気泡がコア層付近を流 動していること、圧縮過程において気泡が一旦消失し、その後の減圧過程で は、再び気泡が生成して成長することを確認している.また、山田ら⁴⁾は、 金型キャビティ壁面近傍のせん断流れ場における発泡挙動を動的に可視化 し、スキン層と発泡層の境界領域に多数生成する扁平化した径の大きな気泡 の生成プロセスを明らかにしている. 可視化観察により, 金型キャビティ側 面近傍では、気泡同士の合一が生じて、径の大きな気泡が順次移動すること が確認された、さらに、気泡径が大きくなるに伴って気泡の表面積も拡大す るため、気泡同士が接触する頻度が増加し、気泡の成長が促進されると考察 している.しかし,同一の成形品で異なる発泡構造が生成する不良に対して, 気泡生成メカニズムの解明に基づき,発泡構造の均一化制御を行っている例 はないのが現状である.

前章では、金型内の可視化観察に基づいて、図 1-4 における領域①及び領域②について、各領域における気泡生成メカニズムは異なることが明らかとなった.また、CO2の供給圧力によって生成する発泡構造に差異があり、CO2が超臨界の条件では領域①が広く、領域②が狭い.一方、CO2が亜臨界の条件ではその逆である.ここで、成形品の実用化を考慮すると、例えば衝撃吸

収性が要求される場合, 微細な気泡が生成する領域①で均一化制御を行うこ とが望ましい. 一方, 化粧品の容器やケースに応用される際など, 径の大き い気泡を水玉模様とする等, 意匠性が求められる場合では, 径の大きい気泡 が生成する領域②で均一化制御することが望ましい. したがって, 本章では, 応用される分野や用途に応じて, 発泡構造の均一化制御を行うため, CO₂が 超臨界と亜臨界の各条件において, 領域①或いは領域②のどちらかを優先的 に生成させることで発泡構造の均一化制御を行った.

3-2 CO, が亜臨界の場合

CO₂が亜臨界の条件では、図 1-4 から領域②が成形品の大部分を占めてい ることが分かる.さらに、可視化観察により、金型への樹脂の充填が完了し、 樹脂の流動が完全に停止した後に径の大きい気泡が生成することで、領域② が生成することを確認した.これを受け、本研究では、過充填(樹脂の計量 値を多く設定する)により領域②を優先的に生成させることで、領域②で発 泡構造の均一化制御が実現できると考えた.ここで、樹脂の計量値とは、金 型キャビティの容積に相当する樹脂の量であり、シリンダ内の体積を計測す ることで、計量値として表示している.これを検証するため、標準条件(ジ ャストパック)よりも樹脂の計量値を多く設定して金型へ充填する樹脂の量 を増やし、可視化観察により樹脂の流動挙動、及び領域②の生成メカニズム を観察した.図 3-1 は、可視化観察の結果であり、金型へ充填された樹脂の 流動挙動及び領域②の生成メカニズムを示したものである.なお、本来は成 形品の End 部で上記の観察を行う予定であったが、金型の構造上、高速度カ メラを設置できなかった.そこで、図 2-2 に示した成形品のキャビティ容積 を縮小し、Middle 部を End 部と想定して観察を行った.

図 3-1 から,過充填により微細な気泡が生成する領域①が潰されることが 分かる.さらに,図 2-5 と同様に,樹脂の流動が停止した後,径の大きい気 泡が生成し,領域②が生成することを確認した.図 3-2 に,領域②で発泡構 造の均一化制御を行った成形品において,その外観と,成形品の Gate 部及 び End 部における気泡径の分布を示す. ここで,気泡径分布の算出方法について補足しておく.領域②で生成する気泡は,その平均径が2,000~3,000µmと非常に大きいため,成形品の断面ではなく,平面方向(図 3-2 に示した成形品外観の撮影方向)からデジタルマイクロスコープ(キーエンス)で撮影を行い,気泡の円相当径を計測して平均気泡径を算出した.なお,計測した気泡数は,各箇所で 60 とした.図 3-2 から,End 部において領域①は確認されず,Gate 部と End 部で平均気泡径が約270µmの差があるものの,気泡径分布に関しては,ほぼ同じ傾向が得られることが分かり,領域②で発泡構造の均一化制御が可能であることを明らかにした.

さらに,理論展開の拡大を目的とし,樹脂の特徴や製品として利用される 分野,用途が異なるポリスチレンを使用し,ポリプロピレンを使用した場合 と同様の検討を行った.図 3-3 に,材料にポリスチレンを使用し,同様の検 討を行った結果を示す.図 3-3 から,材料にポリスチレンを使用した場合で も,径の大きい気泡が生成する領域②で,発泡構造の均一化制御が可能であ ることが明らかとなった.以上の検討により,CO2が亜臨界の条件では,過 充填により領域②を優先的に生成させることで,発泡構造の均一化制御が可 能であることが明らかとなった.

3-3 CO, が超臨界の場合

CO₂が超臨界の条件では、図 1-4 から微細な気泡が多く生成する領域①が 成形品の大部分を占めていることが分かる.さらに、可視化観察により、CO₂ が超臨界の条件では、樹脂が CO₂と溶解しやすいため、微細な気泡が多く生 成すると考えられ、領域①は樹脂の流動とともに生成していることが分かっ た.これを受け、CO₂が超臨界の条件では、領域①で均一な発泡構造を実現 しようと考えた.そこで、表 2-1の成形条件において、背圧を 20.0MPa から 16.0MPa に変更し、CO₂の供給圧力 15.0MPa との圧力差を小さくした.ここ で、背圧について補足する.図 3-4 のように、スクリューの回転による混錬 によって、射出ノズルへ樹脂が運ばれる.徐々に樹脂が運ばれると、射出ノ ズル付近に滞留した樹脂に押されることで,スクリューが後退する現象がみられる.このスクリューが後退しないよう,スクリューを後方から押す力が背圧である.表 2-1の成形条件において,背圧を変更し,表 3-1の成形条件で成形を行った.

さらに、成形品外観を観察するとともに、発泡構造の観察と成形品の Gate 部及び End 部における気泡径の評価を行った.気泡径の評価は、気泡構造の 観察で得られた断面写真に二値化処理を施し,円相当径を計測して各箇所に おける平均気泡径を算出した.ここで,背圧を CO2の供給圧力 15.0MPa 以下 に設定すると、樹脂と CO2 が混練せずにスクリューが後退する現象が見られ、 充填不良(ショートショット)が発生した.したがって,背圧は CO2の供給 圧力よりも高く設定して成形を行う必要があり、表 3-1 のような成形条件と した. 図 3-5 に, 成形品の写真, 及び成形品の Gate 部と End 部における発 泡構造(断面写真)を示す. さらに, 図 3-6 に, 領域①で発泡構造の均一化 制御を行った成形品において,成形品の Gate 部と End 部における平均気泡 径及び気泡径分布,発泡構造を示す.なお,計測した気泡数は各箇所で200 とした. 図 3-5 に示した成形品の写真から, Gate 部と End 部において, 均一 に発泡構造が生成していることが確認できる. さらに, 図 3-6 からも, 成形 品の Gate 部と End 部における平均気泡径は約 50µm~60µm であり、微細な 気泡が生成していることが分かり,気泡径分布も各箇所でほぼ同じ傾向であ ることが分かった.

ここで、樹脂に対する CO₂の供給量は、スクリュー軸方向の圧力分布を考慮した場合、背圧には直接影響されないと考えられる.そこで、背圧を20.0MPaから 16.0MPa に変更し、供給圧力との圧力差を小さくして成形を行った.同時に、射出時のノズル圧を計測する際に使用した圧力センサ(日本ダイニスコ)で、CO₂供給部におけるシリンダ内の樹脂圧力を計測した.CO₂供給部については、図 3-4 を参照されたい.CO₂供給部における樹脂圧力を計測した結果、背圧が 20.0MPa の条件では、CO₂の供給圧力は 14.3MPa、供給部の樹脂圧力は 17.3MPa であった.さらに、この時、成形品内部に気泡が

生成しないことを確認した. 一方,背圧が 16.0MPa の条件では, CO₂の供給 圧力は 15.3MPa,供給部の樹脂圧力は 14.8MPa であった.

以上のことから,背圧を変更することで,CO2供給部の樹脂圧力は相対的 に変化することが明らかとなった.さらに,背圧を 20MPa から 16.0MPa に 変更し,背圧と CO2の供給圧力の圧力差を小さくした場合,供給圧力が CO2 供給部の樹脂圧力よりも高くなり,図 3-4 における供給部において,CO2が 樹脂により溶解しやすくなったと考えられる.なお,背圧を変更しない場合, CO2供給部における樹脂圧力が CO2の供給圧力より高い状態となり,CO2が 樹脂に溶解しにくい状態になったと考えられる.このように,背圧を変更し, 背圧と CO2の供給圧力の圧力差を小さくすることで,CO2供給部における樹 脂圧力が相対的に変化し,CO2が樹脂により溶解しやすい状態となり,微細 な気泡が多数生成したと推測される.

さらに,理論展開の拡大を目的とし,材料にポリスチレンを使用し,同様の検討を行った.図 3-7 に示した成形品の写真から,材料にポリスチレンを 使用した場合でも,Gate 部と End 部において,均一に発泡構造が生成してい ることが確認できる.図 3-8 からも,成形品の Gate 部と End 部における平 均気泡径は約 40 µ m~60 µ m であり,微細な気泡が生成していることが分か った.したがって,材料にポリスチレンを使用した場合でも,ポリプロピレ ンと同様に発泡構造の均一化制御が可能であることが明らかとなった.以上 の検討により,CO₂が超臨界の条件では,背圧を変更して CO₂の供給圧力と の差を小さくすることで,CO₂供給部の樹脂圧力は相対的に変化し,領域① で発泡構造の均一化制御が可能であることが明らかとなった.

3-4 結言

前章では、CO₂を発泡剤として使用した射出発泡成形において、金型内の 可視化観察に基づき、図 1-4 における領域①及び領域②について、各領域が 生成するメカニズムが異なることを明らかにした.これを受け、本章では、 CO₂が超臨界と亜臨界の各条件において、発泡構造の均一化制御を行った.
- 1) CO₂が亜臨界の条件では、図 3-9 のように、成形品の End 部において、 微細な気泡が多く生成する領域①を過充填により潰すことで、領域②を 優先的に生成させることが可能であり、樹脂の流動が停止した後に生成 する径の大きい気泡が存在する領域②で、発泡構造の均一化制御を実現 できることが明らかとなった。
- 2) CO₂が超臨界の条件では、図 3-9 のように、背圧を変更して CO₂の供給 圧力との差を小さくすることで、CO₂ 供給部における樹脂圧力は相対的 に変化することを確認した.これにより、CO₂の供給圧力が CO₂ 供給部 における樹脂圧力よりも高い状態となり、CO₂ が樹脂により溶解しやす くなったことで、微細な気泡が多く生成し、領域①で発泡構造の均一化 制御を実現できることが分かった.以上のように、CO₂ の供給圧力をコ ントロールすることで、気泡径の異なる成形品が得られ、発泡構造を均 一化制御できることを明らかにした.
- 3)発泡構造の均一化制御において,前章と同様,理論展開の拡大を目的とし、樹脂の特徴や製品として利用される分野,用途が異なるポリスチレンを使用し、ポリプロピレンを使用した場合と同様の検討を行った.樹脂にポリスチレンを使用した場合でも、ポリプロピレンを使用した場合と同様に発泡構造の均一化制御が可能であることが明らかとなり、応用性のある手法としてまとめることができた.

参考文献

- 1) 浦野陽平, 瀬戸雅宏, 山部昌: 成形加工シンポジア'13, 87~88(2013)
- 2) 柿島浩徳, 瀬戸雅宏, 田中宏明, 山部昌: 成形加工'14, 289~290(2014)
- 3) 山田岳大,村田泰彦,横井秀俊:成形加工シンポジア'05,51(2005)
- 4) 山田岳大, 横井秀俊: 成形加工'14, 255(2014)



Fig.3-1 Crushing fine cells by overfilling and generation of coarse cells (Generation mechanism of "Area ②").



Fig.3-2 Uniforming of the foam structure (Polypropylene, Subcritical-"Area ②").





Table3-1Molding conditions(Uniforming of the foam structure, Supercritical – "Area ①").

Resin temperature [°C]	200
Injection speed [mm/s]	10.0
Back pressure [MPa]	16.0
Mold temperature [$^{\circ}$ C]	50.0
Cooling time [s]	20.0
Supplying pressure of CO ₂ [MPa]	15.0



Fig.3-4 Back pressure and supply position of CO₂.



Fig.3-5 Molded article and the foam structure - Polypropylene (Uniforming of the foam structure, Supercritical – "Area ①").



Fig.3-6 Uniforming of the foam structure - Polypropylene (Supercritical—"Area ①").



Fig.3-7 Molded article and the foam structure - Polystyrene (Uniforming of the foam structure, Supercritical – "Area ①").



Fig.3-8 Uniforming of the foam structure - Polystyrene (Supercritical—"Area ①").



Fig.3-9 Uniforming of the foam structure (Control of the foam structure, Pattern diagram).

第4章

実用化に向けた 射出発泡成形品の機械特性予測

4-1 緒言

前章では、CO₂を用いた射出発泡成形において、同一の成形品で異なる発 泡構造が生成する成形不良に対し、金型内可視化手法により気泡生成メカニ ズムの観察を行い、各領域の気泡生成に与える要因を明らかにするとともに、 発泡構造の均一化制御を行った.CO₂が亜臨界の条件では、成形品の End 部 において、微細な気泡が多く生成する領域①を過充填により潰すことで、樹 脂の流動が停止した後に生成する径の大きい気泡が存在する領域②で発泡 構造の均一化制御を実現できることが分かった.一方、CO₂が超臨界の条件 では、背圧を変更して CO₂の供給圧力との差を小さくすることで、CO₂供給 部の樹脂圧力は相対的に変化することを確認した.さらに、これにより樹脂 に対する CO₂の溶解度が大きくなり、CO₂が樹脂により溶解しやすくなった ことで、微細な気泡が多数生成し、領域①で発泡構造の均一化制御を実現で きることが分かった.

前章において,発泡構造の均一化制御によって得られた成形品の実用化, つまり実製品への応用を考慮する場合,機械特性を事前に予測することが重 要である.実製品の設計において,必要不可欠となっているのが数値シミュ レーションである.製品が有する剛性や機械的強度等の巨視的な機械特性を 事前に予測し,その結果をもとに構造解析を行うことで,試作回数を減らす ことが可能なため,リードタイムの短縮やコスト削減が期待される.射出発 泡成形品は,成形過程において,板厚方向に金型による冷却速度の分布が発 生するため,流動・固化の過程でスキン層と発泡層が形成され,板厚方向に 多層構造を形成する.このスキン層には気泡が存在しないため,応力とひず みの関係等の機械特性を予測することは容易である.しかし,樹脂と気泡が 混在する発泡層は一種の複合材料と考えることができるため,図1-5のよう なミクロモデルを作成して有限要素法により巨視的な機械特性を予測する 場合,要素数や節点数は膨大なものとなり,モデルの作成やメッシュ生成に 膨大な時間と手間を要するといった課題がある.

そこで、本研究では等価介在物法と呼ばれる数値解析手法に着目した.な

お,等価介在物法の概要及び定式化は 3-2 節に記述した.ここで,等価介在 物法に関する研究について,山本¹⁾は,等価介在物法に基づいて木質細胞壁 における木材繊維の力学挙動をシミュレートすることで弾性構成式を導出 し,その有効性を実験的に検証している.安田ら²⁾は,等価介在物法により 破壊靭性の気孔率依存性及び気孔形状依存性を定式化することで,セラミッ クスの破壊靭性に及ぼす組織の影響について検討している.しかし,射出発 泡成形品の巨視的な機械特性予測に対して,等価介在物法が適用された研究 報告は少ない.

本研究では,射出発泡成形品を応用した実製品の予測手法の構築を試みる ことを目的とし,射出発泡成形品の巨視的な機械特性予測に対する等価介在 物法の妥当性を検討した.まず,等価介在物法を適用し,発泡層の巨視的な 応力とひずみの関係から弾性率を予測した. さらに, 成形品から作製した試 験用サンプルを使用し,引張試験を実施し,予測結果と試験結果を比較した. また、複合材料の一種と考えることのできる発泡層を図 1-5 のように忠実に モデル化し、メッシュ生成を行う場合、要素数や節点数が膨大となることか ら、より端的に巨視的な機械特性を求める手法として、古典的な基本法則で ある複合則がある³⁾.よって、本研究では、射出発泡成形品の実製品への応 用を考慮し、機械特性予測手法の構築を試みることを目的とし、各検討を行 った.まず、樹脂と気泡が混在する発泡層の弾性率を等価介在物法により予 測し,引張試験の実測結果と比較することで,発泡層の弾性率予測に対する 等価介在物法の妥当性を検討した. さらに, 予測した発泡層の弾性率をもと に,実製品の形状に近いリブを有する成形品の曲げ荷重に対する変位を構造 解析で予測した.予測結果と3点曲げ試験の実測結果を比較することで,実 製品により近い形状が近いものに拡張した射出発泡成形品の機械特性予測 に対する等価介在物法の妥当性を検討した.

4-2 等価介在物法

樹脂と気泡が混在する発泡層の巨視的な応力とひずみの関係を予測し,弾 性率を算出する際に導入した等価介在物法について記述する.等価介在物法 は Eshelby⁴⁾によって証明され,この理論をもとに森・田中⁵⁾は,複合材料の 巨視的な機械特性(平均弾性テンソル)を得る手法を導き,弾塑性領域まで 拡張した.ここでは,発泡層の巨視的な応力とひずみの関係を導くため,森・ 田中のアプローチをもとに等価介在物法の定式化を行った⁶⁾⁻⁹⁾.

不均質な機械特性を持つ介在物が多く含まれている複合材料において,介 在物による乱れを算定するため,図 4-1 のように平均ひずみ(ɛ)_Mが発生する 母材に介在物を1個だけ加えてみると,母材中,介在物中の応力とひずみの 関係はそれぞれ式(4-1),式(4-2)のように表現できる.なお,C^Mは母材, C^Iは介在物の弾性係数(弾性テンソル)であり,変形状態にかかわらず一定 である.また添え字はそれぞれ M:母材,I:介在物を意味する.また,〈〉 は平均量であり,式(4-2)における(y)_Iは乱されたひずみである.実際は, 不均質な機械特性を持つ介在物中の応力とひずみの関係は式(4-2)で表現 されるが,この不均質な機械特性を持つ介在物を1個の等価介在物で置き換 えると,式(4-2)は式(4-3)のように表現できる.

$$\langle \sigma \rangle_M = \mathcal{C}^M \langle \varepsilon \rangle_M \tag{4-1}$$

$$\langle \sigma \rangle_I = C^I \langle \varepsilon \rangle_I = C^I \{ \langle \varepsilon \rangle_M + \langle \gamma \rangle_I \}$$
(4-2)

$$\langle \sigma \rangle_I = C^I \{ \langle \varepsilon \rangle_M + \langle \gamma \rangle_I \} = C^M \{ \langle \varepsilon \rangle_M + \langle \gamma \rangle_I - \langle \varepsilon^* \rangle_I \}$$
(4-3)

以上のような置き換えに基づいた解析手法が等価介在物法であり、(ɛ*)」は 問題の等価性を保証するために導入された固有ひずみ(Eigen-strain)である ¹⁰⁾. 固有ひずみは周囲に拘束がない場合,内部に応力を伴わない変形(例え

4. Prediction of mechanical properties for practical realization

ば,熱ひずみ,塑性ひずみ等)と定義されている¹¹⁾.このように等価介在物 法は,不均質な機械特性を持つ介在物を,母材と同じ弾性特性を持ち,内部 に固有ひずみを有する領域に置き換えて等価な応力場を考慮して適切な固 有ひずみを求め,巨視的な応力とひずみの関係を導く手法である¹²⁾.図 4-2 に等価介在物法の概念図,図 4-3 にイメージ図を示す¹³⁾.

ここで、固有ひずみ場とひずみの乱れ成分を関連付けるため、Eshelby に よって、乱されたひずみ $\langle \gamma \rangle_I$ と固有ひずみ $\langle \varepsilon^* \rangle_I$ の関係が式(4-4)のように定 義されている. Eshelby は、図 4-4 のように無限体の母材の中に、少なくと も1個の楕円形状の不均質な機械特性を持つ介在物の領域 Ω が存在しており、 その混合物体には無限遠方点で一定の応力 σ が作用している場合、式(4-4) でも表されるように、介在物の領域 Ω 中のひずみは一様であることを証明し た¹⁴⁾.式(4-4)において、S は介在物中の Eshelby テンソルと呼ばれ、介在 物の形状(半径比)と母材のポアソン比に依存し、その大きさには依存しな い定数である.なお、介在物の形状は楕円体または球体としている¹⁵⁾.

以上のことから, 複合材料の巨視的な応力とひずみの関係を導くためには, 等価介在物法では, 置き換えによって導入された介在物の固有ひずみ(ε*)₁を 求めることが必要となる.式(4-3)及び式(4-4)から,乱されたひずみ(y)₁ を消去すると式(4-5)のようになり,介在物の固有ひずみ(ε*)₁は,式(4-6) で表される.また,介在物中の局所的な応力は式(4-7)のようになる.な お,式(4-5)及び式(4-7)における1は,4階の単位テンソルである.

ここで,複合材料の機械特性に関する古典的な複合則¹⁶⁾¹⁷⁾により,複合材料の巨視的な応力とひずみを式(4-8),式(4-9)のように体積平均で定義する.また,式(4-1)と式(4-2)から,巨視的なひずみは式(4-10)のようにも表現できる.なお,*ōとを*は巨視的な応力とひずみであり,*f*は介在物の含有率である.式(4-6)~式(4-8),式(4-10)から,〈*σ*〉_M及び〈*σ*〉_I,介在物の固有ひずみ〈*ε**〉_Iを消去すると,式(4-11)のような関係が得られる.よ

って,式(4-12)のように,巨視的な平均弾性テンソルを*C⁻¹と*定義すれば,式(4-11)は式(4-13)のように表現され,EshelbyのテンソルSが与えられれば,複合材料(発泡層)の巨視的な応力とひずみの関係を導くことができる.

$$\langle \gamma \rangle_I = S \langle \varepsilon^* \rangle_I$$
 (4-4)

$$C^{I}\{\langle \varepsilon \rangle_{M} + S\langle \varepsilon^{*} \rangle_{I}\} = C^{M}\{\langle \varepsilon \rangle_{M} + (S-I)\langle \varepsilon^{*} \rangle_{I}\}$$
(4-5)

$$\langle \varepsilon^* \rangle_I = \{ \mathcal{C}^M - (\mathcal{C}^M - \mathcal{C}^I) S \}^{-1} (\mathcal{C}^M - \mathcal{C}^I) (\mathcal{C}^M)^{-1} \langle \sigma \rangle_M$$
(4-6)

$$\langle \sigma \rangle_{I} = \langle \sigma \rangle_{M} + C^{M} (S - I) \langle \varepsilon^{*} \rangle_{I}$$
(4-7)

$$\bar{\sigma} \equiv f \langle \sigma \rangle_I + (1 - f) \langle \sigma \rangle_M \tag{4-8}$$

$$\bar{\varepsilon} \equiv f \langle \varepsilon \rangle_I + (1 - f) \langle \varepsilon \rangle_M \tag{4-9}$$

$$\bar{\varepsilon} = (C^M)^{-1} \langle \sigma \rangle_M + f S \langle \varepsilon^* \rangle_I \tag{4-10}$$

$$\bar{\varepsilon} = [C^{M} - (C^{M} - C^{I})\{S - f(S - I)\}]^{-1} \times [C^{M} - (1 - f)(C^{M} - C^{I})S](C^{M})^{-1}\bar{\sigma}$$
(4-11)

$$\bar{C}^{-1} = [C^{M} - (C^{M} - C^{I})\{S - f(S - I)\}]^{-1} \times [C^{M} - (1 - f)(C^{M} - C^{I})S](C^{M})^{-1}$$
(4-12)

 $\bar{\sigma} = \bar{C}\bar{\varepsilon}$

(4-13)

4-3 発泡層の弾性率予測

本研究では,射出発泡成形品を応用した実製品の予測手法の構築を行うこ とを目的とし,その巨視的な機械特性を予測する際に導入した等価介在物法 の妥当性を検討した.ここでは,等価介在物法により発泡層の巨視的な応力 とひずみの関係を予測し,弾性率を算出した.さらに等価介在物法の妥当性 を検討するため,引張試験を実施し,予測結果と試験結果を比較した.

ここで,成形品の発泡構造は,成形プロセスによって左右され,機械特性 にも大きな影響を与えており、発泡構造を定量的に評価することが重要であ る. さらに, 前節で述べた等価介在物法の理論でも分かるように, 発泡構造, 特に気泡含有率の定量化は発泡層の巨視的な機械特性を予測する上で重要 である. そこで本研究では, 成形品の発泡構造として, 発泡層の気泡含有率 を定量化した、気泡含有率は、発泡層の断面写真において、気泡が占める面 積と任意の断面積の比(以下,面積比)から算出した.なお,面積比は,発 泡層の断面写真に二値化処理を施し、画像処理ソフト(ニコン)によって算 出した.ここでは、この面積比に基づく気泡含有率の算出方法について記述 する.まず,図4-5のような一辺が長さaの立方体に、気泡のモデルが内接 していると仮定する.なお、気泡のモデルは、完全な球体とする.図4-5は 2次元モデルとなっているが、本来は奥行き(長さ a)がある3次元モデル である.図 4-5(a)は立方体に気泡が1個,図 4-5(b)は気泡が8個,図 4-5(c)は気泡が 27 個それぞれ内接している.ここで、気泡含有率と面積 比の間には"ある関係"が存在する、つまり両者の間に数値的な比率のような ものがあるのではないかと考えた.この比率を図 4-5 に示したモデルを使用 し、気泡(球体)の断面積 A と体積 V の比から算出した. 図 4-5 (a) のよう に立方体に気泡が1個だけ内接する場合において、気泡の断面積 A_aと体積 Vaは,式(4-14)と式(4-15)のように表される.

$$A_a = \frac{\pi a^2}{4} \tag{4-14}$$

$$V_a = \frac{4}{3}\pi \left(\frac{a}{2}\right)^3 = \frac{\pi a^3}{6}$$
(4-15)

同様に,図4-5(b)のように立方体に気泡が8個内接する場合における気 泡の断面積 A_bと体積 V_bは,式(4-16)と式(4-17)のようになる.

$$A_b = 4 \times \frac{\pi}{4} \left(\frac{a}{2}\right)^2 = \frac{\pi a^2}{4}$$
(4-16)

$$V_b = 8 \times \frac{4}{3} \pi \left(\frac{a}{4}\right)^3 = \frac{\pi a^3}{6}$$
 (4-17)

さらに,図 4-5 (c)のように立方体に気泡が 27 個内接する場合における 気泡の断面積 A_cと体積 V_cは,式(4-18)と式(4-19)のようになる.

$$A_c = 9 \times \frac{\pi}{4} \left(\frac{a}{3}\right)^2 = \frac{\pi a^2}{4} \tag{4-18}$$

$$V_c = 27 \times \frac{4}{3} \pi \left(\frac{a}{6}\right)^3 = \frac{\pi a^3}{6}$$
 (4-19)

$$\frac{V_a}{A_a} = \frac{V_b}{A_b} = \frac{V_c}{A_c} = \frac{\pi}{6} / \frac{\pi}{4} = \frac{2}{3}a$$
(4-20)

4. Prediction of mechanical properties for practical realization

ここで、各々の場合における気泡の断面積と体積の比を求めると、式 (4-20)のようになる.なお、立方体の一辺の長さaは1とした.したがっ て、式(4-20)に示した比率が気泡含有率と面積比の間に存在する比率であ ると考えられる.以上の方法で、各条件における発泡層の気泡含有率を定量 化したところ、CO2が超臨界の条件で、微細な気泡が生成する領域①で均一 化制御を行った成形品は25.8%であった.また、CO2が亜臨界の条件で、径 の大きい気泡が生成する領域②で均一化制御を行った成形品は14.6%であっ た.

図 4-6 に、本研究における射出発泡成形品の機械特性予測の流れを示す. 前節で述べた等価介在物法の定式化をもとに,機械特性値計算ソフトウェア DIGIMAT-MF (e-Xstream engineering)を使用し, 発泡層の巨視的な応力とひ ずみの関係を予測して弾性率を算出した.機械特性値計算ソフトウェア DIGIMAT-MF は等価介在物法の理論をベースとし、樹脂と介在物の機械特性 や介在物の気泡含有率を入力条件とすることで, 複合材料の応力とひずみの 関係を巨視的に予測可能なソフトウェアである.本研究では,平板形状の発 泡層を模したモデルが一軸方向に引張荷重を受けている場合を想定し, 発泡 層の巨視的な応力とひずみの関係を予測した. PP の機械特性として密度, 弾性率及びポアソン比を採用し、ポアソン比は 0.4 とした. さらに、PP の入 力条件として, 密度は 0.90g/cm³とし, 弾性率には CO₂を供給しない条件の もの(Solid 成形品,引張試験で計測)を使用した.また従来,複合材料と して代表的な繊維強化樹脂の巨視的な機械特性を等価介在物法により予測 するにあたって,繊維フィラー等の介在物の機械特性や気泡含有率,形状, 配向分布が入力条件として用いられていた¹⁸⁾.しかし,本研究では射出発泡 成形品を対象としており,樹脂と気泡が混在する発泡層は一種の複合材料と して考えられる. そのため介在物を気泡とし, その機械特性は0に限りなく 近いものとし, 配向分布も生じていないものとした. さらに, 気泡の大きさ は考慮せず,その形状はアスペクト比を持たない完全な球体と仮定した.

以上の予測結果と比較を行うため、引張試験を実施した.引張試験は、n

数を3として、図4-7で示した成形品の中央部から100mm×20mmのものを 切り出し、スキン層をサンドペーパーで除去して発泡層のみの試験片で実施 した.試験は、万能試験機(オートグラフAG-1,島津製作所)を使用して、 一般的な引張試験に使用されるつかみ具(チャック)で試験片を固定し、試 験速度 5mm/min で実施した.ひずみは、ひずみゲージを試験片の中央に取 り付けて計測を行った.また、CO₂を供給していない条件(Solid 成形品) についても、発泡層は形成されていないとし、同様に弾性率を求めた.ここ で、領域②で均一化制御を行った成形品は、図 3-2 から確認できるように、 径の大きい気泡が成形品に分布している.そこで、微細な気泡が存在する領 域①で均一化制御を行った成形品と同様に、ひずみゲージで局所的な変形を 捉えるのではなく、引張荷重に対する大きな変形を捉えられるよう、変位計

(東京測器)と動ひずみ測定器(東京測器)を使用して試験を行った.また, 領域②で均一化制御を行った成形品に関しては,n数を8として試験を行った.

図 4-8 に、微細な気泡が生成する領域①で均一化制御を行った成形品について、各条件の弾性率を示す.また、図 4-9 に、径の大きい気泡が生成する領域②で均一化制御を行った成形品について、各条件の弾性率を示す.なお、図 4-8、図 4-9 において、横軸は条件項目、縦軸は弾性率[MPa]であり、Solid 成形品も併せて示した.さらに、複合材料の一種と考えることができる発泡 層を均質材料と考え、式(4-21)に示す古典的な複合則で発泡層の弾性率を 推定した.なお、式(4-21)において、気泡の弾性率 C^C は考慮せず、C_{foam}: 発泡層の弾性率、f:気泡含有率、C^M: PP の弾性率である.

$$C_{foam} = C^{c}f + C^{M}(1-f)$$
(4-21)

図 4-8 から,領域①で均一化制御を行った成形品について,等価介在物法の理論をもとに発泡層の弾性率を予測した場合,複合則を適用した場合に比べて,試験結果と良好な一致を示すことが分かった.一方,図 4-9 から,領

域②で均一化制御を行った成形品について、当初は気泡含有率を14.6%と定 量化していた.ここで、図 4-10 に、領域②で均一化制御を行った成形品に ついて,引張試験後における試験片の画像(4条件)を示す.なお,図4-10 において、黒線は変位計の取り付け箇所である(2線間の距離は30mm).領 域②で均一化制御を行った成形品について,発泡層の弾性率予測を等価介在 物法により予測する場合,図 4-10 における最も変形が大きいと考えられる 箇所, つまり破断箇所付近の気泡含有率を定量化する必要があると考えた. そこで、試験片において、黒線で囲まれた範囲、つまり変位計を取り付けた 箇所にあたる範囲の気泡含有率を再度定量化すると22.5%であった.これは, 変位計を取り付けた箇所にあたる範囲の中で破断が生じた8条件中,6条件 の試験片において、気泡含有率を定量化した平均である.また、図 4-9 に示 した "EIM"の条件は、以上をもとに、等価介在物法により発泡層の弾性率 を予測した結果である.図4-9から、領域②で均一化制御を行った成形品に ついて、領域①で均一化制御を行った成形品と同様、等価介在物法の理論を もとに発泡層の弾性率を予測した場合、複合則を適用した場合に比べて、試 験結果と良好な一致を示すことが分かった.

ここで、射出発泡成形には、第1章でも述べたように、CO₂を発泡剤とし て使用した物理発泡法のほか、化学発泡剤を使用した化学発泡法がある.図 4-11に、化学発泡法により得られた成形品の発泡構造を示す.これは、材料 にポリプロピレン、化学発泡剤として、ポリスレン EE25C(永和化成工業) を使用し、発泡剤の混合量を変化させながら、表 4-1の成形条件で行った成 形により得られた成形品の発泡構造である.成形では、コアバック成形法を 採用しており、これは樹脂を金型に充填した後、成形機で設定した量だけ金 型を開き、圧力変化によって気泡の生成、成長を促す手法である.一般的に、 化学発泡法で成形を行うと、CO₂を発泡剤として使用した物理発泡法に比べ て、得られる気泡含有率の範囲が広いとされている.図 4-11 からも、化学 発泡法によって得られた各条件の成形品において、気泡含有率を定量化する と、最も化学発泡剤の混合量が少ない 1.0wt%の条件でも 40%を超え、気泡 含有率が比較的多いことが分かった.

以上をもとに,領域①及び領域②の各条件で均一化制御を行った成形品と 同様に,各条件の成形品における発泡層の弾性率を等価介在物法により予測 し、引張試験の結果と比較した.図 4-12 に、図 4-8 及び図 4-9 で示した結果 を含む、気泡含有率と発泡層の弾性率の関係を示す。なお、横軸は気泡含有 率,縦軸に発泡層の弾性率である.図4-12から,気泡含有率が多くなると, 等価介在物法による発泡層の弾性率を予測するにあたり, 手法の限界がある ことが分かった.気泡含有率が20%~30%と少ない条件では,等価介在物法 により予測した発泡層の弾性率は,引張試験の結果と良好な一致を示すのに 対し、気泡含有率が多い条件では、両者の結果に差異があることが明らかと なった.発泡層の弾性率を予測するにあたり,構築を試みた予測手法の適用 範囲は、次節で述べる実製品を模した解析モデルを使用した構造解析の結果 を踏まえて考察する.このように、気泡含有率が多くなると、予測結果と引 張試験の結果に差異があるのは、気泡含有率が多くなるに伴い、気泡数も多 くなると考えられ,引張方向の荷重を受けることによって変形する際に生ず る気泡同士の相互作用によるものだと推測される.気泡含有率が多くなり, 気泡数が多くなることで、気泡と気泡の距離が小さくなり、変形による気泡 同士の干渉が起こりやすくなると考えられる. 等価介在物法では、樹脂であ る母材と気泡(介在物)の相互作用は考慮しているものの、気泡同士の相互 作用は考慮していない.以上のことから,気泡含有率が多い場合,等価介在 物法により予測した結果と引張試験の結果に差異があるのは,介在物である 気泡同士の相互作用によるものであり、等価介在物法では、気泡同士の相互 作用は考慮していないためであると推測される.

4-4 リブを有する成形品の曲げ荷重に対する変位予測

前節では,等価介在物法により樹脂と気泡が混在する発泡層の弾性率を予 測した.ここでは,予測した発泡層の弾性率をもとに,図 4-13 のようなリ ブを有する実製品を模した成形品(スキン層を含む)の曲げ荷重に対する変 位を予測した.バンパー等の自動車部品に射出発泡成形品を適用する場合, リブやボス,コーナー等の複雑な形状のものが多い.さらに,自動車部品は 使用環境によって異なるが,外力によって引張や曲げ,ねじり,座屈等の変 形が生じる.よって射出発泡成形品が実用化されるためには,外力に対する 変形の予測精度が重要となる.そこで本研究では,リブを有する成形品が曲 げ荷重を受けていることを想定し,構造解析により曲げ荷重に対する変位の 予測を行った.さらに,3点曲げ試験を実施し,予測結果との比較により構 築を試みた予測手法の妥当性を検討した.また,前節では気泡含有率と発泡 層の弾性率の関係について検討を行ったが,ここでは気泡含有率と曲げ荷重 に対する成形品の変位の関係について検討を行う.

構造解析は、構造解析ソフトウェア ANSYS 15.0 を使用し、図 4-14 のよう な解析モデルで実施した.図 4-14 に示した解析モデルは、図 4-13 で示した 成形品の 1/4 モデルであり、要素数は 17,820、節点数は 24,098 である.また、 図 4-15 に、荷重条件と拘束条件を示す.図 4-15 のように、円筒状の負荷治 具(円部の半径は 10.0mm)を解析モデルに接触させ、負荷治具は剛体、拘 束条件は完全拘束とした.支点間の距離は 100mm とし、荷重条件は、図 4-15 中に示す箇所(支点)に 42.0N の荷重を作用させた.スキン層の機械特性に は、Solid 成形品の弾性率を使用した.また、発泡層の機械特性には、前節 と同様の方法で等価介在物法により予測した発泡層の弾性率を使用した.図 4-16 に、構造解析で得られた変形図を示す.同図において Y 方向の変位を 曲げ荷重に対する成形品の変位として評価を行った.

3 点曲げ試験は、万能試験機 UH-100kN(島津製作所)を使用し、試験速度 5mm/min で実施した.図4-17に、気泡含有率と曲げ荷重に対する成形品の変位の関係と併せ、構造解析の結果と3 点曲げ試験の結果を示す.なお、横軸は気泡含有率、縦軸は曲げ荷重に対する成形品の変位である.図4-17から、曲げ試験の結果について、気泡含有率が0%の条件から30.9%の条件にかけて、変位が一旦大きくなる.しかし、気泡含有率が30.9%から徐々に多くなると、変位が小さくなる傾向がみられた.ここで、図4-18 に、気泡

4. Prediction of mechanical properties for practical realization

含有率とスキン層の厚みの関係を示す.同図から,気泡含有率が多くなると, スキン層の厚みが大きくなることが分かる.成形を行う際,気泡含有率が 36.7%と 41.4%の条件では,コアバック遅延時間を設定した.このコアバッ ク遅延時間とは,金型への樹脂の充填が完了した瞬間から,金型を開くまで の時間である.気泡含有率が 36.7%と 41.4%の条件では,コアバック量が他 2 条件よりもそれぞれ 0.5mm から 1.0mm 程度多く設定しており,気泡が成 長しすぎてしまい,バリが発生した.このため,気泡含有率が 36.7%と 41.4% の条件では,コアバック遅延時間を設定し,気泡が生成して成長するまでの 間にスキン層を生成させ,バリを抑制しながら成形を行った.このように, コアバック遅延時間を設定することで,設定していない条件よりもスキン層 が生成する時間が長くなり,結果としてスキン層の厚みが大きくなったと考 えられる.したがって,図 4-18 のように,気泡含有率が多い条件では,コ アバック遅延時間を設定することでスキン層の厚みが大きくなり,曲げ荷重 に対して変形しにくくなったため,変位が小さくなったと推測される.

ここで、構造解析では、一般的に解析結果と実測結果の誤差が 10.0%以下 であれば、十分に予測手法が適用可能であるとされている.図 4-17 から、 Solid 成形品(気泡含有率は 0%)を含め、気泡含有率が 20%~30%の条件で は、構造解析の結果と3点曲げ試験の結果が良好な一致を示すことが分かっ た.さらに、気泡含有率が 30.9%の条件では、解析結果と実測結果の誤差が 9.96%であった.この結果から、実製品に形状がより近い射出発泡成形品の 機械特性予測に対して、両端にリブを有する成形品という一例ではあるが、 解析結果と実験結果の一致を確認できた.また、気泡含有率が 30.9%よりも 多い条件では、構造解析の結果と実測結果の誤差が 10.0%よりも大きくなり、 予測手法の適用は困難であることが分かった.気泡含有率が多い条件で解析 結果と実測結果に差異があるのは、気泡含有率が多くなると気泡数も多くな り、気泡同士の相互作用起きやすくなると考えられる.さらに、等価介在物 法により発泡層の弾性率を予測する際、気泡同士の相互作用を考慮していな いため、気泡含有率が多い条件で解析結果と実測結果に差異があると考えら れる.以上のことから,構造解析でリブを有する成形品の曲げ荷重に対する 変位を予測するにあたり,気泡含有率が30.9%前後で,構築を試みた予測手 法に限界があることが明らかとなった.さらに,CO2を発泡剤として使用し た射出発泡成形では,本研究の成形条件で成形を行った場合,気泡含有率が 20%~30%となり,実製品を模したリブを有する成形品の曲げ荷重に対する 変位を予測するにあたり,構築を試みた予測手法は十分に適用可能であると 考えられる.

4-5 結言

前章において,発泡構造の均一化制御によって得られた射出発泡成形品の 実製品への応用を考慮する場合,機械特性を事前に予測することが重要であ る.本章では,射出発泡成形品の実製品への応用を考慮し,機械特性予測手 法の構築を試みることを目的とし,各検討を行った.まず,樹脂と気泡が混 在する発泡層の弾性率を等価介在物法により予測し,引張試験の実測結果と 比較することで,発泡層の弾性率予測に対する等価介在物法の妥当性を検討 した.さらに,予測した発泡層の弾性率をもとに,実製品の形状に近いリブ を有する成形品の曲げ荷重に対する変位を構造解析で予測した.予測結果と 3 点曲げ試験の実測結果を比較することで,実製品により近い形状が近いも のに拡張した射出発泡成形品の機械特性予測に対する等価介在物法の妥当 性を検討した.

1) 射出発泡成形品の実用化に向け,等価介在物法により発泡層の巨視的な 弾性率を算出した.さらに,等価介在物法の妥当性を検討するため,引 張試験を実施し,予測結果と試験結果を比較した.これにより,等価介 在物法による発泡層の弾性率を予測するにあたり,気泡含有率によって 解析精度に差があることが明らかとなった.気泡含有率が20%~30%と 少ない条件では,等価介在物法により予測した発泡層の弾性率は,引張 試験の結果と良好な一致を示す.一方,気泡含有率が多い条件では,両 者の結果に差異があることが明らかとなった.

- 2) 気泡含有率が多い条件では、気泡含有率が多くなるに伴い、気泡数も多くなる.気泡数が多くなると、引張方向の荷重を受けることによって変形する際、介在物である気泡同士の相互作用が起きやすくなる.したがって、気泡含有率が多い場合、等価介在物法により予測した結果と引張試験の結果に差異があるのは、等価介在物法では、気泡同士の相互作用は考慮していないためであることが分かった.
- 3) リブを有する成形品の曲げ荷重に対する変位を構造解析で予測するにあたり、等価介在物法により発泡層の弾性率を予測する場合と同様、気泡含有率が30.9%前後で、構築を試みた予測手法に限界があることが分かった.気泡含有率が30.9%以下の条件であれば、構造解析の結果と実測結果の誤差が10.0%以下となることが明らかとなり、気泡含有率が30.9%よりも多い条件では両者の誤差が10%よりも大きくなることが明らかとなった.
- 4)以上より、成形品の形状を実製品に近いものへと拡張した射出発泡成形品の機械特性予測において、両端にリブを有する成形品という一例ではあるが、構造解析の結果と実測結果の一致を確認できた.したがって、CO2を発泡剤として使用した射出発泡成形(物理発泡法)では、本研究の成形条件で成形を行った場合、気泡含有率が20%~30%となり、実製品を模したリブを有する成形品の曲げ荷重に対する変位を予測するにあたり、構築を試みた予測手法は適用可能であることを確認した.この結果を踏まえ、発泡層の弾性率を予測するにあたり、構築を試みた予測手法の適用範囲は気泡含有率が30.9%以下であると考えられる.また、今後は、リブ形状だけでなく、成形品の適用数を増やして予測手法を構築していく必要があると考えられる.

参考文献

- 山本浩之:日本機械学会〔No.06-9〕第19回計算力学講演会講演論文集, 99~100(2006)
- 2) 安田公一,松尾陽太郎,木村脩七,森勉:日本セラミックス協会学術論 文誌, Vol.99, 737(1991)
- 3) 宮入裕夫:機能材料-高機能化と複合設計-,技報堂出版,34(2003)
- 4) Eshelby, J.D. : Proc. Roy. Soc. London, Vol.A241, 376(1957)
- 5) Mori, T. and Tanaka, K. : Acta metallurgica, Vol.21, 571(1973)
- 6) 黒木誠一郎,中沢正利,岩熊哲夫:土木学会応用力学論文集, Vol.8, 377(2005)
- 7) 樋口耕平, 岩熊哲夫: 土木学会応用力学論文集, Vol.8, 367~376(2005)
- 8) 小山茂, 岩熊哲夫, 堀宗朗: 土木学会構造工学論文集, Vol.42A, 291(1996)
- 9) 王峰, 岩熊哲夫, 小山茂: 土木学会構造工学論文集, Vol.51A, 1387(2005)
- 10) 山口栄輝,堀宗朗,久保喜延,安部剛史:土木学会論文集,No.556
 /I-38,85~94(1997)
- 11) 小川雅:日本機械学会論文集(A編),79巻804号,202~213(2013)
- 12) 高野直樹,浅井光輝,上辻靖智:マイクロメカニカルシミュレーション,コロナ社,31~36(2008)
- A. Ouaar, I. Doghri, L. Delannay, J. -F. Thimus : International Journal of DAMAGE MECHANICS, Vol. 16, 227~260(2007)
- 14) 中村成春,桝田佳寛,小西敏正,郡公子:日本建築学会構造系論文集,第 552 号, 23(2002)
- 15) 坂田誠一郎,芦田文博,小嶋友之:日本機械学会論文集(A 編),75<
 巻756号,79(2009)
- 16) 尾中晋,安藤嘉門:日本金属学会誌,第 63 巻第 10 号,1283~1289(1999)
- 17) 日本材料学会:機械材料学,日本材料学会,318~323(1991)
- 18) 橋本雅弘,岡部朋永,西川雅章:日本複合材料学会誌,37 巻 4 号, 138~146(2011)



Fig.4-1 Addition of heterogeneous inclusions.



Fig.4-2 Conceptual diagram of the Equivalent inclusion method.



Fig.4-3 Schematic view of the Equivalent inclusion method.



Fig.4-4 Tensor of Eshelby.



Fig.4-5 Calculation of volume fraction.



Fig.4-6 Flow of analysis.



Fig.4-7 Cavity shape.


Fig.4-8 Predicted results and measured results of tension test (Young's modulus of foam layer, Area①).



Fig.4-9 Predicted results and measured results of tension test (Young's modulus of foam layer, Area⁽²⁾).



(I) Condition 1 $\sim\!2$



Fig.4-10 Samples after tension test.



Fig.4-11 Foam structure (Chemical foaming method).

 Table4-1
 Molding conditions (Chemical foaming method).

Resin temperature [°C]	200
Mold temperature [$^{\circ}$ C]	30
Cooling time [sec]	50
Core back [mm]	1.5
Foaming agent [wt%]	1.0, 1.5, 2.0, 2.5



Fig.4-12 Relationship between volume fraction of cell and Young's modulus (Foam layer).



Fig.4-13 Cavity shape (Ribs, Structural analysis).



Fig.4-14 Structural analysis model (Volume fraction of cell : 36.7%, 1/4 model).



Fig.4-15 Load conditions and restraint conditions (1/4 model).



Fig.4-16 Deformation diagram of the structural analysis model and Y-direction displacement (Volume fraction of cell : 36.7%).



Fig.4-17 Relationship between volume fraction of cell and displacement of molded article (Comparing of the structural analysis results with the 3-point bending test results).



Fig.4-18 Relationship between volume fraction of cell and thickness of skin layer.

第5章

結 論

従来の発泡成形法として,バッチ式発泡成形法が主流であったが,成形に 膨大な時間を要するため生産性が低い.ここ数年,モノづくりの現場では, 製品品質を向上させながら材料費や生産コストを削減し,生産性を向上させ ることが求められている.このような背景から,バッチ式成形法に替わる新 たな成形法として,射出発泡成形が注目を集めている.射出発泡成形は,成 形に要する時間が短く,同一形状の製品を短時間かつ大量に生産することが 可能である.

しかし,射出発泡成形では,標準的な成形条件で成形を行うと,同一の成 形品で異なる発泡構造が生成し,発泡構造が不均一になり,外観不良,剛性 や強度のバラつきに繋がるといった課題がある.この現象について,本研究 では,発泡剤に使用した CO₂の供給圧力により気泡生成メカニズム(気泡の 生成が開始するタイミング,気泡の成長速度)が異なるためであるとの仮説 を立てた.これを検証するため,金型内の充填過程を可視化観察することで, 気泡生成メカニズムを解明した.

- 1)可視化観察により、CO2が超臨界の条件では、樹脂が金型に充填された 直後から、フローフロントに微細な気泡が多く存在する領域①が既に生 成していることを確認した.これは、CO2が超臨界の条件では、樹脂が 射出される際、急激な圧力降下により気泡が多く生成し、樹脂温度が低 下して粘度が高くなることで、気泡の成長が抑制される.これにより、 フローフロントに微細な気泡が多く生成し、領域①が生成することが分 かった.
- 2) 成形品の Gate 部において、フローフロントに生成した領域①が流動した後、未発泡の領域(気泡の生成・成長が抑制された領域)が流動していることが分かった.これは、樹脂の流動抵抗により樹脂圧力が上昇し、気泡の生成・成長が抑制され、未発泡の領域が流動し、最大樹脂温度に達した後、樹脂温度が再度上昇するためであることが明らかとなった.

- 3) 射出ノズル,及びシリンダ内における樹脂に対する CO₂の溶解に着目し、 樹脂に対する CO₂の溶解と気泡生成の関係を明らかにするため、樹脂に 対する CO₂の溶解度を評価した. 圧力容器からポリプロピレンを取り出 してから、時間経過によりポリプロピレンから抜ける CO₂の量を計測し、 これをポリプロピレンに対する CO₂の溶解度として評価を行った. CO₂ が超臨界の条件では、亜臨界の条件に比べて、圧力容器から樹脂を取り 出してから 1 時間経過時におけるポリプロピレンから抜ける CO₂の量が 多いことが明らかとなった. したがって、CO₂ が超臨界の条件では、ポ リプロピレンに対する CO₂の溶解度が大きいことが明らかとなり、射出 ノズル、シリンダ内におけるポリプロピレンに対する CO₂の溶解度が大 きく、気泡が生成しやすい状態になることが分かった. さらに、樹脂に 対する CO₂の溶解は、気泡生成メカニズムと密接な関係があることが明 らかとなった.
- 4) 領域②の生成に関して、充填完了後の冷却過程における樹脂温度の低下 に伴う樹脂圧力の降下が、領域②の生成に与える影響を明らかにするた め、金型内の樹脂圧力を計測した.その結果、樹脂がノズルから解放さ れる際に気泡として生成しなかった CO2は、樹脂に溶解したまま金型へ 射出充填される.さらに、充填完了後、最大充填圧力に達した後の冷却 過程において、時間の変化に伴って樹脂圧力が降下し続けるため、樹脂 温度が高い状態にあるコア層では、径の大きい気泡が徐々に生成し、領 域②が生成したことが明らかとなった.
- 5) 気泡生成メカニズムの解明において、理論展開の拡大を目的とし、樹脂の特徴や製品として利用される分野、用途が異なるポリスチレンを使用し、ポリプロピレンを使用した場合と同様の検討を行った。樹脂にポリスチレンを使用した場合でも、ポリプロピレンを使用した場合と同様の結果が得られ、応用性のある手法としてまとめることができた。

第2章で述べたように、CO₂を発泡剤に使用した射出発泡成形において、 金型内の可視化観察に基づき、領域①及び領域②について、各領域が生成す るメカニズムが異なることを明らかにした.これを受け、第3章では、CO₂ が超臨界と亜臨界の各条件において、領域①或いは領域②のどちらかを優先 的に生成させ、発泡構造の均一化制御を行った.

- 1) CO₂が亜臨界の条件では、成形品の End 部において、微細な気泡が多く 生成する領域①を過充填により潰すことで、領域②を優先的に生成させ ることが可能であり、樹脂の流動が停止した後に生成する径の大きい気 泡が存在する領域②で、発泡構造の均一化制御を実現できることが明ら かとなった。
- 2) CO₂が超臨界の条件では、背圧を変更して CO₂の供給圧力との差を小さくすることで、CO₂ 供給部における樹脂圧力は相対的に変化することを確認した.これにより、CO₂の供給圧力が CO₂ 供給部における樹脂圧力よりも高い状態となり、CO₂ が樹脂により溶解しやすくなったことで、微細な気泡が多く生成し、領域①で発泡構造の均一化制御を実現できることが分かった.以上のように、CO₂の供給圧力をコントロールすることで、気泡径の異なる成形品が得られ、発泡構造を均一化制御できることが分かった.
- 3)発泡構造の均一化制御において、第2章と同様、理論展開の拡大を目的 とし、樹脂の特徴や製品として利用される分野、用途が異なるポリスチ レンを使用し、ポリプロピレンを使用した場合と同様の検討を行った. 樹脂にポリスチレンを使用した場合でも、ポリプロピレンを使用した場 合と同様に発泡構造の均一化制御が可能であることが明らかとなり、応 用性のある手法としてまとめることができた.

第4章で述べたように、射出発泡成形品は、軽量化による燃費向上が期待 できることから、今後は主に自動車部品への利用が期待されている.しかし、 実製品への応用を考慮した場合、試作回数を減らしながらコストを削減し、 リードタイムを短縮することが求められる.このため、数値シミュレーショ ンによって射出発泡成形品の剛性や弾性率等の機械特性を事前に予測する ことが重要となる.

そこで、第4章で述べたように、射出発泡成形品の実製品への応用を考慮 し、機械特性予測手法の構築を試みることを目的とし、各検討を行った.ま ず、樹脂と気泡が混在する発泡層の弾性率を等価介在物法により予測し、引 張試験の実測結果と比較することで、発泡層の弾性率予測に対する等価介在 物法の妥当性を検討した.さらに、予測した発泡層の弾性率をもとに、実製 品の形状に近いリブを有する成形品の曲げ荷重に対する変位を構造解析で 予測した.予測結果と3点曲げ試験の実測結果を比較することで、実製品に より近い形状が近いもへと拡張した射出発泡成形品の機械特性予測に対す る等価介在物法の妥当性を検討した.

- 1) 射出発泡成形品の実用化に向け、等価介在物法により発泡層の巨視的な 弾性率を算出した.さらに、等価介在物法の妥当性を検討するため、引 張試験を実施し、予測結果と試験結果を比較した.これにより、等価介 在物法による発泡層の弾性率を予測するにあたり、気泡含有率によって 解析精度に差があることが明らかとなった.気泡含有率が 20%~30%と 少ない条件では、等価介在物法により予測した発泡層の弾性率は、引張 試験の結果と良好な一致を示す.一方、気泡含有率が多い条件では、両 者の結果に差異があることが明らかとなった.
- 2) 気泡含有率が多い条件では、気泡含有率が多くなるに伴い、気泡数も多くなる.気泡数が多くなると、引張方向の荷重を受けることによって変形する際、介在物である気泡同士の相互作用が起きやすくなる.したが

って,気泡含有率が多い場合,等価介在物法により予測した結果と引張 試験の結果に差異があるのは,等価介在物法では,気泡同士の相互作用 は考慮していないためであることが分かった.

- 3) リブを有する成形品の曲げ荷重に対する変位を構造解析で予測するにあたり、等価介在物法により発泡層の弾性率を予測する場合と同様、気泡含有率が30.9%前後で、構築を試みた予測手法に限界があることが分かった.気泡含有率が30.9%以下の条件であれば、構造解析の結果と実測結果の誤差が10.0%以下となることが明らかとなり、気泡含有率が30.9%よりも多い条件では両者の誤差が10%よりも大きくなることが明らかとなった.
- 4)以上より、成形品の形状を実製品に近いものへと拡張した射出発泡成形品の機械特性予測において、両端にリブを有する成形品という一例ではあるが、構造解析の結果と実測結果の一致を確認できた.したがって、CO2を発泡剤として使用した射出発泡成形(物理発泡法)では、本研究の成形条件で成形を行った場合、気泡含有率が20%~30%となり、実製品を模したリブを有する成形品の曲げ荷重に対する変位を予測するにあたり、構築を試みた予測手法は適用可能であることを確認した.この結果を踏まえ、発泡層の弾性率を予測するにあたり、構築を試みた予測手法の適用範囲は気泡含有率が30.9%以下であると考えられる.また、今後は、リブ形状だけでなく、成形品の適用数を増やして予測手法を構築していく必要があると考えられる.

以上のことから、CO₂を発泡剤に使用した射出発泡成形(物理発泡法)に おいて,同一の成形品で異なる発泡構造が生成するといった成形不良に対し て,金型内の可視化観察を行い,各領域における気泡生成メカニズムを解明 した.さらに,微細な気泡が生成する領域①,或いは径の大きい気泡が生成 する領域②のどちらかを優先的に生成させることで,発泡構造の均一化制御 を行った.また,ポリプロピレンとは樹脂の特徴や製品として利用される分 野,用途が異なるポリスチレンを使用し,気泡生成メカニズムの解明を行っ た.樹脂にポリスチレンを使用した場合でも,ポリプロピレンを使用した場 合と同様の結果が得られ,応用性のある手法としてまとめることができた.

射出発泡成形品の実用化に向け,成形品の発泡構造に基づいて気泡含有率 を定量化し,等価介在物法により射出発泡成形品における発泡層の弾性率を 予測した.引張試験の実測結果との比較を通して,等価介在物法の妥当性を 検討した.また,等価介在物法により予測した発泡層の弾性率をもとに,実 製品を模したリブを有する射出発泡成形品の曲げ荷重に対する変位を予測 した.3点曲げ試験の実測結果との比較を通して,気泡含有率が30.9%前後 で,構築を試みた予測手法に限界があることを明らかにした.さらに,気泡 含有率が30.9%以下の条件であれば,構造解析の結果と実測結果の誤差が 10.0%以下となることが分かった.

以上により、成形品の形状を実製品に近いものへと拡張した射出発泡成形 品の機械特性予測において、両端にリブを有する成形品という一例ではある が、構造解析の結果と実測結果の一致を確認できた.したがって、CO2を発 泡剤として使用した射出発泡成形(物理発泡法)では、本研究の成形条件で 成形を行った場合、気泡含有率が20%~30%となり、実製品を模したリブを 有する成形品の曲げ荷重に対する変位を予測するにあたり、構築を試みた予 測手法は適用可能であることを確認した.この結果を踏まえ、発泡層の弾性 率を予測するにあたり、構築を試みた予測手法の適用範囲は気泡含有率が 30.9%以下であると考えられる.今後の展望としては、リブ形状だけでなく、 成形品の適用数を増やして予測手法を構築していく必要があると考えられ る.

学術論文~Academic papers~

- <u>柿島浩徳</u>,瀬戸雅宏,山部昌:『超臨界流体による熱可塑性エラストマーの射出発泡成形に関する研究』,成形加工 第25巻 第12号, PP.585~591, 2013
- <u>柿島浩徳</u>,木島秀彌,神吉康文,瀬戸雅宏,山部昌:『射出発泡成形品の 材料特性予測に対する等価介在物法の妥当性検討』,成形加工 第 27 巻 第1号, PP.32~39, 2015
- 3. <u>柿島浩徳</u>, 浦野陽平, 瀬戸雅宏, 山部昌: 『射出発泡成形における気泡生 成プロセスの可視化観察』, 成形加工(査読終了, 掲載決定)

学術講演会~Academic societies~

- <u>柿島浩徳</u>,木島秀彌,神吉康文,瀬戸雅宏,山部昌:『均質化法による発 泡プラスチックの物性予測に関する研究』,プラスチック成形加工学会 第23回年次大会, PP.413~414, 2012
- <u>柿島浩徳</u>,瀬戸雅宏,山部昌:『熱可塑性エラストマーの射出発泡成形に 関する研究』,プラスチック成形加工学会 第 20 回秋季大会, PP.23~24, 2012
- <u>柿島浩徳</u>,瀬戸雅宏,山部昌:『均質化法および微視構造の最適化による 発泡プラスチックの剛性予測』,プラスチック成形加工学会 第24回年次 大会, PP.177~178, 2013
- 4. <u>柿島浩徳</u>,瀬戸雅宏,山部昌:『ガラス繊維強化樹脂の射出発泡成形による曲げ強度向上と軽量化に関する研究』,プラスチック成形加工学会 第 21回秋季大会, PP.281~282, 2013
- 5. <u>柿島浩徳</u>,瀬戸雅宏,田中宏明,山部昌:『射出発泡成形における気泡生 成プロセスの可視化観察』,プラスチック成形加工学会 第25回年次大会, PP.289~290, 2014
- 6. <u>柿島浩徳</u>,瀬戸雅宏,田中宏明,山部昌:『射出発泡成形における気泡生

成に与える型内樹脂流動挙動の影響』, プラスチック成形加工学会 第22 回秋季大会, PP.187~188, 2014

謝辞~Acknowledgements~

本論文は,著者が金沢工業大学大学院工学研究科機械工学専攻博士後期課程在籍中に山部 昌教授の下に行った研究をまとめたものである.

山部教授より賜った終始変わらぬ懇切丁寧なご指導、ご鞭撻に心より御礼 申し上げます.6年前,同研究室に配属になり,先生の下で研究を始めた当 初,高分子材料の知識について乏しい著者に対し,その基礎から懇切丁寧に, 分かりやすく教えていただきました.さらに,研究の進め方や考え方,研究 者の心構えを時には厳しく,時には優しくご指導いただきましたこと,深く 感謝いたします.また,学会発表やインターンシップなど貴重な体験をさせ ていただき,今後の著者の人生においても特別なものであったと思います. 研究以外に関しましては,私を含め学生全員に非常に近い距離でいただきま したおかげで,飲み会や納会などでは楽しい時間を過ごすことができました. この6年間,先生にはご迷惑やご心配をかけてばかりだったと思います.大 変申し訳ない気持ちで一杯です.この6年間で先生からご指導いただいた 数々は,今後の私にとって,大きな糧となると確信しております.厚く御礼 申し上げます.

高野 則之教授には、本論文の副査を引き受けていただき、様々な点でア ドバイスをしていただきました.大変お忙しい中、幾度となくディスカッシ ョンの時間を設けていただき、論文の細部にわたって鋭いご指摘や的確なご 助言をいただきました.先生のご指摘やご助言により、本論文のオリジナリ ティーをよりクリアにすることができました.厚く御礼申し上げます.

中田 政之教授には、本論文の副査を引き受けていただき、特に機械特性 予測に関しまして、鋭いご指摘や的確なご助言をいただきました.また、大 変お忙しい中、ディスカッションの時間を設けていただきました.さらに、 先生にはものづくり研究所まで出向いていただき、的確なご助言をいただい たこともございました.先生のご助言により、本論文の完成度が飛躍的に高 まりました.厚く御礼申し上げます. 金原 勲教授には、本論文の副査を引き受けていただき、特に本論文にお ける等価介在物法の位置付けに関しまして、ご指摘をいただきました.大変 お忙しいにもかかわらず、研究会や公聴会に参加していただき、専攻内審査 ではコメントをいただきました.先生のご指摘により、本論文の目的をより クリアにすることができました.厚く御礼申し上げます.

東北大学大学院工学研究科付属超臨界溶媒工学研究センターの佐藤 善之 准教授には,大変お忙しい中,本論文の副査を引き受けていただきました. 研究会や公聴会にも,遠方より参加していただきました.深く感謝いたしま す.佐藤先生には,超臨界流体技術のパイオニアとして,貴重なご意見を賜 りました.また,平成26年9月には,お忙しい中,同センターの猪俣 宏教 授とともに研究会を開催していただきました.猪俣先生とともに,鋭いご指 摘と的確なご助言をいただきましたこと,心より感謝申し上げます.また, 佐藤先生には,幾度となく,論文の細部にわたってご指摘いただき,特に樹 脂に対する CO₂の溶解度と気泡生成の関係に関しまして,的確なご助言をい ただきました.さらに,先生のご助言により,本論文の核ともいえる気泡生 成メカニズムの解明に関しまして,より深い考察ができたとともに,多くの 課題や疑問をクリアにすることができました.厚く御礼申し上げます.

瀬戸 雅宏講師には,著者が 6 年前に山部研究室に配属となってから,解 析や実験に幾度となく立ち会っていただき,その都度的確なご助言とご指摘 をいただきました.研究以外でも気さくに声をかけていただいたり,気にか けていただいたり,あらゆる場面で著者をサポートしてくれました.また, 瀬戸氏には山部先生と同様に,この6年間,ご迷惑やご心配をかけてばかり だったと思います.大変申し訳ない気持ちで一杯です.この6年間で瀬戸氏 からご指導いただいた数々,特に研究の進め方や研究に対する考え方など, 今後の私にとって,大きな糧となると確信しております.厚く御礼申し上げ ます.

(株) ユーイーエス・ソフトウェア・アジアの木島 秀彌氏,神吉 康文氏には、インターンシップの受け入れ先としてご快諾いただき、シミュレーシ

ョンに関して様々な提案や技術的なアドバイスをしていただき、公私ともに お付き合いをさせていただきました.木島氏,神吉氏は、大変お忙しいにも かかわらず、約1ヶ月半の長期間にわたり、著者を快く受け入れてくださり、 大変多くのことをご指導、ご教授していただきました.また、インターンシ ップ以外でも、研究が滞り、行き詰まった際には、懇切丁寧なご指導と、的 確なご助言をいただきました.木島氏、神吉氏より賜った数々のご助言によ り、本論文における等価介在物法の理論をはじめ、シミュレーション全般に わたり理解を深めることができたと思います.厚く御礼申し上げます.さら に、神吉氏には年始という大変お忙しい中、遠方より出向いていただき、等 価介在物法の理論に関しまして、長時間にわたってご指導していただくこと もございました.多くの貴重なご意見をいただき、深く感謝いたします.ま た、木島氏、神吉氏には、幾度となく飲み会を開催していただき、美味しい お酒と美味しいお料理を存分に味わいながら、楽しい時間を過ごすことがで きました.心より感謝申し上げます.

永和化成工業(株)の中島 充晴氏には、インターンシップの受け入れ先 としてご快諾いただき、化学発泡剤や発泡成形に関して様々なご指導、ご鞭 撻をしていただきました.中島氏をはじめ、永和化成工業(株)の社員の方々 は、大変お忙しいにもかかわらず、約1ヶ月半の長期間にわたり、著者を快 く受け入れていただきました.さらには、大変多くのことをご指導、ご教授 していただきました.発泡剤がどこで、どのように作られ、どのように出荷 されるのか、自身の目で直接見て学ぶことができたのは、著者にとって大変 貴重な経験であったと思います.さらに、社宅や昼食をご用意、ご準備して いただき、中島氏には発泡剤の工場を細部にわたってご説明していただきま した.深く感謝申し上げます.永和化成工業(株)での貴重な経験は、今後 の私にとって大きな糧となると思います.厚く御礼申し上げます.

田中 宏明氏には,特に成形実験を行う上で,あらゆる場面でサポートしていただきました.本研究のメインテーマである射出発泡成形に関する結果 やデータを取得し,まとめることができたのは,田中氏のおかげと言っても 過言ではありません.厚く御礼申し上げます.また,廊下ですれ違った際に は,研究や実験の進捗について声をかけてくださり,幾度となく気にかけて いただきました.さらには,研究以外でも,共通の趣味である釣りの話で盛 り上がるなど,飲み会や納会でも楽しい時間を過ごすことができました.心 より感謝申し上げます.

鈴木 享氏には,研究の面では画像解析に関して的確なご助言を賜り,夜 遅くまで画像解析の作業に付き添っていただいたこともございました.深く 感謝いたします.また,PC にトラブルが起きた際には,快く相談に乗って くださり,サポートしていただきました.厚く御礼申し上げます.

高崎 祐子氏には、6年前に山部研究室が配属となってから、様々な面でお 世話になりました.特に、研究以外の事務的な面や精神面でサポートしてい ただいたように思います.すれ違うたびに気さくに声をかけてくださり、楽 しい時間を過ごすことができました.さらに、公聴会直前や、論文の執筆や 研究が佳境になってきた時期には、温かい激励のお言葉をかけてくださり、 大変励みになりました.心より感謝申し上げます.

これまで、非常に多くの方々に支えられたからこそ、ここまで歩んでくる ことができました.さらに、一つの研究を成し得たことを心から嬉しく、大 変幸せに思っております.厚く御礼申し上げます.著者が唯一誇れるのは、 周囲に素晴らしい方々が多くいらっしゃること、そのような素晴らしい方々 に囲まれ、これまでの道を歩んでこれたことです.今後も、人とのつながり を大切にし、"人に感謝する"気持ちを常に持ちながら、これからの道を歩 んでいきたいと思います.

最後になりますが,経済面や精神面において,全面的にサポートしていた だいた両親に心より御礼申し上げます.また,ここでは名前を挙げることの できなかった方々,山部研究室に配属となってからの6年間で出会った全て の方々,著者の研究に携わっていただいた全ての皆様に深く感謝の意を表し, 謝辞とさせていただきます.