

超臨界流体を利用したポリマー成形加工におけるシミュレータ開発  
- 射出成形CAEへの適用 -

Development of a simulator of injection molding for polymer processing  
using a supercritical fluid. - Application to injection molding CAE -

(東レエンジニアリング) ○ (賛) 菊池 泰志、(正) 中野 亮、(賛) 岡田 有司  
(東北大) (正) 佐藤 善之、(正) 猪股 宏、(協) Richard Lee Smith, Jr.  
(広島大) (協) 滝島 繁樹、(正) 木原 伸一、(協) 春木 将司  
(東京理科大) (協) 大竹 勝人

Keywords: Supercritical fluid, Injection molding, Simulation

## 1. 緒言

現在、熱可塑性樹脂を用いた通常の射出成形工程をシミュレートするCAEソフトウェアは実用化され広く活用されている。しかしながら、近年注目されつつあるCO<sub>2</sub>などの超臨界流体を利用した射出成形をCAEに適用した例は少ない。そこで本報ではポリマー/CO<sub>2</sub>混合系射出成形に対応した射出成形CAEを開発することを目的として、以下のことを実施した。

- (1) CO<sub>2</sub>溶解による可塑性効果を Sanchez-Lacombe (S-L)状態式による粘度推算方法を用いて解析上で再現した。
- (2) 成形品外観予測のため、PS+CO<sub>2</sub>の射出成形実験を行い発泡挙動の考察を行った。

## 2. S-L 状態式による粘度推算法の CAE への適用

### 2.1 粘度推算方法

本開発では、樹脂流動解析で使用されるポリマー/CO<sub>2</sub>混合系の粘度を推算するため、CO<sub>2</sub>のような低分子から樹脂のような高分子まで一つの方程式で表わすことのできる S-L 状態式を使用した。S-L 状態式は次の式で表される<sup>1)2)</sup>。

$$\tilde{\rho}^2 + \tilde{P} + \tilde{T} \left[ \ln(1 - \tilde{\rho}) + \left(1 - \frac{1}{r}\right) \tilde{\rho} \right] = 0 \quad (1)$$

$$\tilde{P} = P/P^*, \tilde{\rho} = \rho/\rho^*, \tilde{T} = T/T^*, r = \frac{P^*M}{RT^*\rho^*} \quad (2)$$

Yasushi KIKUCHI\*, Ryo NAKANO, Yuji OKADA  
Toray Engineering Co., Ltd.  
Yoshiyuki SATO, Hiroshi INOMATA, Richard Lee Smith, Jr., Tohoku Univ.  
Shigeki TAKISHIMA, Shin-ichi KIHARA, Masashi HARUKI, Hiroshima Univ.  
Katsuto OTAKE, Tokyo Univ. of Science  
\* 1-1-1 Sonoyama, Otsu, Shiga, JAPAN 520-0842  
Tel: 077-533-7139, Fax: 077-533-7224  
E-mail: yasushi\_kikuchi@toray-eng.co.jp

(1), (2)式に混合則を適用することで、圧力  $P$ 、温度  $T$  におけるポリマー/CO<sub>2</sub> 混合物の密度  $\rho$  が求まる。この混合物の密度  $\rho$  から Doolittle の自由体積理論によりゼロせん断粘度  $\eta_0$  が求まり、Cross-Carreau-Yasuda 式により各せん断速度における粘度を推算することができる<sup>3)</sup>。本方法を用いることで、ポリマーに CO<sub>2</sub> を溶解したときの粘度低下を推算することが可能となる。

### 2.2 射出成形 CAE への実装

今回、上記の粘度推算手法を既存の射出成形CAEソフトウェア(3D TIMON)に組み込み、射出成形時の粘度低下を考慮した充填解析シミュレータを開発した。粘度算定プログラムを外部関数とし、樹脂流動解析ソフトウェアから算出されるせん断速度、圧力、温度等の物理量を用いてCO<sub>2</sub>濃度より粘度を算出し、樹脂流動解析へ戻す。樹脂流動解析ではこの粘度を用いて充填、圧力、温度計算を行うという反復計算により、充填工程の解析を行うことができる。

### 2.3 実測検証

検証のため、平板試験片(100×30 mm, t = 2 mm)によるPS+CO<sub>2</sub>の射出成形実験を実施した。共試材料はPS JAPAN製GPPS(G9504)、成形機はJSW製J180ELIII-UPS-MuCellである。解析で使用したS-L状態式のパラメータをTable 1に示す。

Table 1 Pure component parameter of S-L EOS

substance	$P^*$ [MPa]	$\rho^*$ [kg/m <sup>3</sup> ]	$T^*$ [K]
PS	387	1108	739.9
CO <sub>2</sub>	720.3	1580	208.9+0.459T -7.56×10 <sup>-4</sup> T <sup>2</sup>

Fig.1はCO<sub>2</sub>を1 wt%および4 wt%含有した状態で、射出速度を10~100 mm/sに変更して実測した結果を示す。縦軸はCO<sub>2</sub>を含有しないブランクに対する圧力損失低下量の割合を示しており、圧損低下量の割合が実測とほぼ対応している。

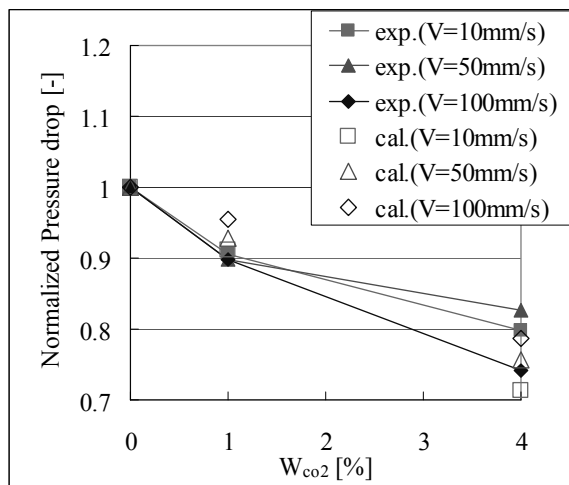


Fig.1 Normalized pressure drop

### 3. PS+CO<sub>2</sub> 射出成形実験による発泡外観の考察

次に超臨界発泡成形における発泡による外観不良の予測を目的として、前記試験平板によるPS+CO<sub>2</sub>の成形実験における発泡挙動を観察した。

#### 3.1 発泡挙動の観察

CO<sub>2</sub>注入率が0~4 wt%、射出速度が5~800 mm/s、保圧が10~100 MPaの範囲で条件を振って実験を行い、成形品の外観を目視による観察を行った。Fig.2に射出速度を変化させた場合の外観変化の一例を示す。

以下に得られた知見をまとめる。

- 1) CO<sub>2</sub>注入率が高いほど発泡が進み、白濁が激しくなる。
- 2) 発泡は大きく分けて以下の2種類に分けられる。
  - ① 充填過程においてスキン層に生成される筋状の発泡
  - ② 保圧過程においてコア層に生成される球状の発泡
- 3) 上記①の発泡は保圧の値を大きくしても変化ないが、②の発泡は保圧を100 MPa程度かけて成形すると発生しなくなる。
- 4) ①の発泡は、射出速度を増加、CO<sub>2</sub>注入率を減少させることで無くすることができる。
- 5) 成形品で発泡していない条件において、下記の傾向が見られた。

CO<sub>2</sub>注入率増加 → 圧力損失が減少

射出速度増加 → 圧力損失の減少が顕著になる

#### 3.2 表面発泡挙動の考察

以上のように内部発泡は保圧を十分にかけることである程度制御できるが、表面発泡による外観の制御が困難なことがわかった。表面発泡の変化に着目すると、以下のようにまとめられる。

#### CO<sub>2</sub>注入率依存性

CO<sub>2</sub>注入率が増加するにつれて溶解度を大きく越えることから表面発泡が顕著になり、透明度が低下する。

#### 射出速度依存性

射出速度増加につれて表面発泡が減少し、透明度が増す。これは射出速度の増加により短時間で圧力が高くなり溶解度が増加するためと考えられる。

#### 射出樹脂温度依存性

射出樹脂温度が増加するにつれて、成形品の透明度は減少する。反対に射出樹脂温度が低下すると圧力上昇により透明度は増加する。

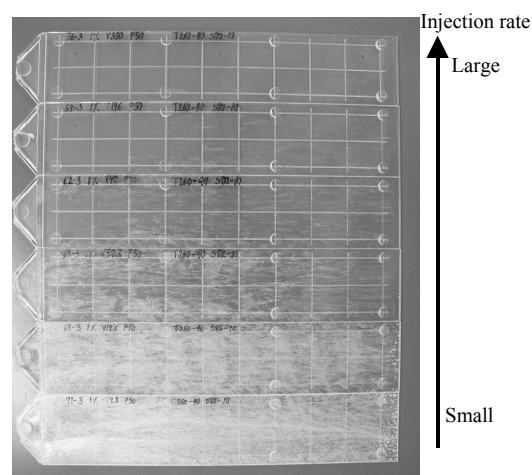


Fig.2 Appearance of molding plates

## 4. 結言

- 1) CO<sub>2</sub>溶解による可塑化効果をS-L状態式による粘度推算方法を用いて解析上で再現し、実測と圧力損失の傾向が一致することを確認した。
- 2) PS+CO<sub>2</sub>の試験平板による成形実験を行い、表面発泡とCO<sub>2</sub>注入率、射出速度、射出樹脂温度の関係を考察した。

今回得られた成果を今後の表面発泡予測シミュレーション技術の開発につなげたいと考える。

#### 謝辞

本研究開発はNEDO平成18年度~平成19年度知的基盤創生・利用促進研究開発事業の委託を受けて実施したものである。関係各位に感謝する。

#### 参考文献

- 1) I. C. Sanchez and R. H. Lacombe, *J.Plus. Chem.*, **80**, 2352 (1976).
- 2) I. C. Sanchez and R. H. Lacombe, *Macromolecules*, **11**, 1145 (1978)
- 3) 木原伸一, 大島清史, 北川章次, 春木将司, 滝島繁樹, 佐藤善之: 成形加工シンポジウム'08,169