

ハイブリッド可視化システムに基づく射出成形中の高熱伝導 PPS 充填挙動解析*

Analysis of High-Thermal-Conductivity PPS Filling Behavior During Injection Molding Based on Hybrid Visualization System

栗田 章史
Akifumi KURITA

吉村 洋平
Yohei YOSHIMURA

鈴木 信
Makoto SUZUKI

横井 秀俊
Hidetoshi YOKOI

梶原 優介
Yusuke KAJIHARA

High-thermal-conductivity polyphenylene sulfide (PPS) has both mechanical and heat dissipation properties, and its low weight makes it a suitable replacement for metals in automobiles. However, in the prototyping stage, this resin often causes filling defects during the injection molding process, and the behavior of this resin inside the mold has not been clear previously. Thus, in this study, in addition to the conventional in-mold visualization analysis using a high-speed camera, we focused on changes in thermal behavior and constructed a hybrid visualization system that simultaneously measures infrared temperature distribution in the same field of view and under the same conditions to clarify the behavior of this resin. Furthermore, based on the visualization analysis, we developed measures to control molding defects and improve the prediction accuracy using CAE.

Key words :

Injection molding, Polyphenylene sulfide, Visualization, In-process

1. はじめに

世界的な気候変動に対する危機感から大気環境改善に対する関心が高まるなか、日本を含む120か国以上の多くの主要な国と地域が2050年カーボンニュートラル（以降、CNと省略）を宣言した。この達成に向け、日本は2030年までに温室効果ガス46%削減（2013年比）の目標を掲げており、国内製造業各社ではこの削減目標に対する貢献が求められている。従来、自動車産業では各国排出規制強化により、走行時の低燃費化・電動化に向けた技術開発を重視してきた。今後は上述の背景により、CNに向けた生産・廃却を含む車両ライフサイクル全体の排出削減が要求される。したがって、材料生産・部品加工工程ではこれまで以上に

CNに向けた環境対応技術開発が必要となる。

金属と比較し軽量かつ低エネルギーでの材料生産・部品加工が可能である樹脂の活用は上述の課題に対する1つの有効な手段であり、これまでも自動車産業では積極的に“樹脂化”を推進してきた。現在では、放熱性など従来樹脂にはない機能が要求される部品の樹脂化に課題が残される。

本研究は上述の背景に基づき、高熱伝導性プラスチック、特に金属部品の代替手段としての期待値が高い高熱伝導ポリフェニレンサルファイド（Polyphenylene sulfide、以降PPSと省略）を高生産性の射出成形法に適用するにあたり、試作段階で直面する成形課題のメカニズム解明及び対策立案に主眼を置いたものである。高熱伝導PPSを溶かし、金型充填する過程での同樹脂

の挙動が従来一般的な断熱性樹脂のそれと著しく異なることは、実際に現場で成形した開発試作のショットショットサンプルから明白であったが、具体的に金型内でどのような挙動をとるのか、その詳細はこれまで明らかではなかった。さらに、流動解析シミュレーションと実機の樹脂充填挙動の乖離度が従来樹脂のそれと比較して、致命的に大きくなる課題にも直面したが、その要因も明らかではなかった。

この種の金型内樹脂挙動を明らかにする先行研究に石英ガラスインサート金型および高速度カメラを活用したインプロセス金型内可視化研究があり、例えば、Regiら¹⁾はこれらを使用して、ABS樹脂の型内薄肉部滞留現象を可視化し、シミュレーションとの相関解析を実施している。本研究においても同等手法による可視化解析の有効性が期待されるが、高熱伝導PPSには従来断熱性樹脂には無い金型充填過程での急激な冷却現象があり、従来手法のみではこのような現象を精緻に捉えることができない。そこで本研究では、従来可視化解析に加え、赤外線ハイスピードカメラを併用し、急激な冷却をとまなう高熱伝導PPSの充填挙動を動的・熱的両側面から可視化解析する。シミュレーションと実機の乖離を生じさせている機構の一端を明らかにする。これを成形課題の対策立案およびシミュレーション予測精度向上の一助とし、今後のさらなる樹脂適用範囲の拡大および開発リードタイムの短縮を図る。

2. 高熱伝導 PPS 金型充填挙動の可視化解析

2.1 高熱伝導 PPS

PPSはFig.1に示すとおり、1,4-フェニレン基と硫黄が交互に反復する分子構造を有する熱可塑性の結晶性高分子である。高寸法安定性、高耐熱性、高強度、高剛性および高耐薬品性などの非常に優れた特性を有する一方で、成形時の流動抵抗の大きさ、加工温度の高さおよびデポジットガスの多さなどに起因し加工難度が高いスーパーエンジニアリングプラスチックである。日常で直接触れるモノに使用されることは稀であるが、エンジン周辺やインバータ内部など過酷な車載環境での長期信頼性を前提とするデンソー製品では多

く採用される。デンソーでは、上述の課題を克服し加工を適正化する技術開発にこれまで取り組んできた。

PPSを製品に使用する場合、通常、これにガラス繊維およびその他充填材を添加し機械強化をおこなう。高熱伝導PPSではさらにこれに加えて高熱伝導性の充填材を添加し、従来PPSでは成しえない放熱要求特性を満足させる。上記充填材の候補となりえる物質は金属・セラミックなど様々であるが、本研究では各筐体の開発試作における要求放熱特性の傾向および低コスト化の観点で、高熱伝導性カーボンを添加したPPSを対象とする。上記充填材の添加量に応じて、従来PPSの厚さ方向熱伝導率（およそ0.3 W/(m・K)）を10倍以上に向上することが可能である。しかしながら、前節でも述べたとおり、この変化にとまなない成形工程で溶融樹脂を金型に適正充填することがより困難となった。さらに流動解析シミュレーションの予測精度が著しく悪化し、試作開発を難航させた。これまでの知見では多様な事業ニーズに応えることが困難であった。そこでこれら課題に対応すべく、次節で述べる“ハイブリッド可視化システム”を新たに開発し、特異な樹脂の金型内充填挙動の可視化解析に着手した。

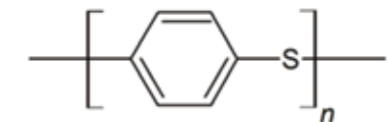


Fig. 1 Molecular formula of polyphenylene sulfide

2.2 ハイブリッド可視化システム

開発したハイブリッド可視化システム²⁾³⁾の概観をFig.2(a)に示す。横型射出成形機、撮像カメラ、カメラ固定テーブルおよびガラスインサート金型で構成される。金型への充填過程における溶融樹脂の挙動を動的・熱的両側面（ハイブリッド）でインプロセス可視化解析可能である。射出成形機は横型射出成形機60 tonf（Sodick社製、型式HSP60A）である。最大340MPaの高射出圧力の特徴とし、高熱伝導PPSの著しい流動抵抗に対応可能である。プランジャ直径は22mmである。撮像カメラは高速度カメラ（nac社製、型式HX-7s）および赤外線ハイスピードカメラ（FLIR社製、型式A6750SC、観察波長3~5μm）の2機種を併用す

* Walter de Gruyter GmbH.の了解を得て、International Polymer Processing, 38, 1, 42–53 (2023) より一部加筆して転載

る。遅くとも1秒未満の短時間で完結する充填現象を精緻に捕捉することが可能な時空間分解能および応答性を有する。互いに同一視野での可視化が可能である。カメラ固定テーブルは金型に直接締結され、カメラと後述する金型内プリズムの相対位置および角度精度を担保する。これによりプリズムとカメラ観察軸のズレに起因する複屈折を抑制する。

Fig. 2 (b) にガラスインサート金型の断面模式図、同図 (c) に概観写真を示す。金型内部からの反射可視光および放射赤外光をプリズムで反射し撮像カメラに送る。金型およびプリズムの温度を均一化し計測精度を確保するため、加圧水温調とヒータ温調を併用する。プリズムの硝材には、詳細は次節以降で後述するが、観察用途に応じて高熱伝導性のサファイアおよび断熱性のフッ化マグネシウムを併用する。ともに各波長の赤外光に対し比較的大きな放射・吸収特性をもつ。したがって、溶融樹脂からの放射赤外光の一部は透過減衰しプリズム由来の放射赤外光で置換される。上記プリズム由来の放射赤外光はプリズム温度すなわち金型温度に依存する。成形プロセスにおいて金型温度は変動係数である。そのため、取得した放射赤外光分布を画一的な補正係数で温度分布に変換することは困難である。これがシステム開発当初、温度計測誤差を数十パーセントにまで著しく大きくし、可視化像における溶融領域の判別を困難にしていた。この課題に対し、実機計測データに基づく補正アルゴリズム⁴⁾を新たに考案し適用することで、温度測定誤差を1.7%未満に低減し、課題を克服した。

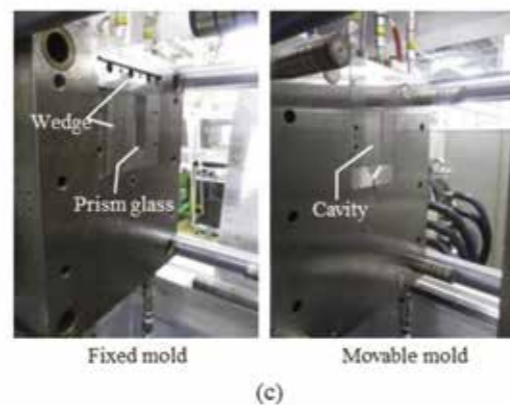
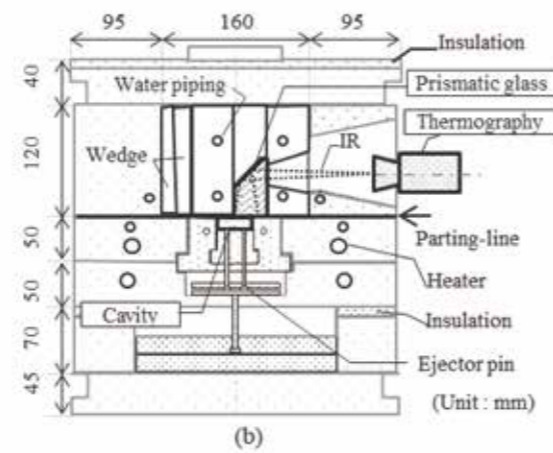
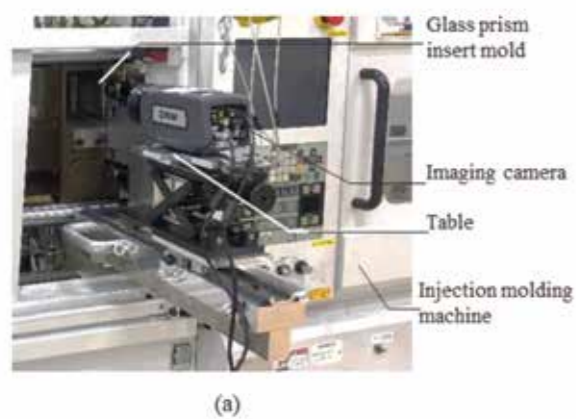


Fig. 2 In-process visualization system, a) equipment overview, b) cross-sectional schematic of prismatic glass insert mold. c) Photo of mold

2.3 金型内充填挙動の可視化結果

高熱伝導 PPS の充填挙動を明らかにするため、前節で解説したシステムを使用し可視化解析を行う。当該可視化ではプリズムのない一般的な金型での樹脂充填挙動を再現する必要がある。そのため、熱拡散率および熱浸透率が金型材質 (SUS 材, STAVAX) と酷似し、プリズムを挿入したことによる充填挙動への影響が少ないサファイアガラス製のプリズムを使用する。使用樹脂は従来 PPS (Toray Industries, Inc. A604B, ガラス繊維添加, 厚さ方向熱伝導率 $0.3 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$) および、高熱伝導 PPS (Celanese Corp., E5101, 破碎グラファイト添加, 厚さ方向熱伝導率 $3.5 \text{ W}/(\text{m}\cdot\text{K})$) である。ともに黒色材であり、放射率はおよそ0.94である。テストピースの形状は Fig. 3 に示す通りである。40×85 mm の平板の中央線片側を可視化領域とし、撮像を対称配置することにより疑似的にキャビティ全域の可視化像を作成する。詳細は次節以降で述べるが、高熱伝

導 PPS の成形品質向上に寄与すると推察される縮小流の効果を検証するために、同図 a) に示す厚さ t 一定 (以下 C 形状と呼称) と、同図 b) に示す厚さ漸減形状 (以下 T 形状と呼称) を使用する。T 形状はゲート部の厚さが 3.0 mm であり、流動末端に向けて勾配を有する。成形条件は Table 1 に示すとおりである。

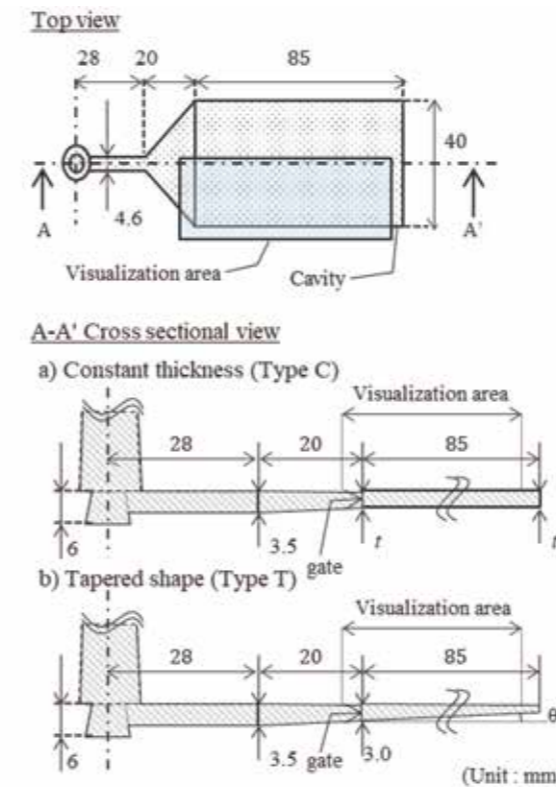


Fig. 3 Cavity shape. Constant thickness (Type C), (b) is Tapered shape (Type T)

Table 1 Molding condition

Item	Values
Cylinder temperature (°C)	335
Mold temperature (°C)	155
Screw rotation speed (rpm)	100
Back pressure (MPa)	5
Charge stroke (mm)	45
Cycle time (s)	31.3
Screw injection speed (mm/s)	50

先述の実験構成に基づき、初めて金型内溶融樹脂の動的・熱的挙動の可視化に成功した。まず、従来 PPS 充填過程の可視化像を Fig. 4 に示す。形状は C 形状、厚さ t は 2.0 mm である。溶融樹脂がキャビティに流入した時刻をゼロと定義し、射出完了までの各時刻における経時変化を示す。同図 a) は高速度カメラの撮像で

あり、各時刻における溶融樹脂の到達領域の境界が判別可能である。同図 b) は赤外線ハイスピードカメラの撮像である。溶融樹脂から熱を受けて金型自体も昇温するため、溶融樹脂の到達領域境界を明確に同定することは出来ないが、各時刻における温度分布を同定することが可能である。これら特性の異なる撮像から複合的な考察を行う。

同図 a) を参照すると、流動先端は滑らかな形状で樹脂が進展しており、いわゆるファウンテンフローの流動形態である。特徴的な現象として、時刻 173 ms 以降で、端側 (壁面側) の流動が中央の流動に対し先行する現象が観測される (通常、端側は中央と比較してゲートから横に逸れる分、流動距離が長い。そのため、中央よりも充填が遅れると考えられがちである。時刻 74 ms のような放射状の境界を維持して充填が進展すると考えられがちであるが、実際はそうではない)。これは、イヤーフロー⁵⁾として認知される現象であるが、生成メカニズムはこれまで明確に証明されていない。ここで同図 b) を参照すると、流動先端温度およそ 340°C で型内に流入したのち、時刻 173 ms まではその状態が継続する。それ以降では端側の流動先端温度が相対的に上昇し、時刻 224 ms では 11.1°C 、時刻 278 ms では 13.6°C 、時刻 298 ms では 22.4°C 、高温になる。この温度差が端側を流動する溶融樹脂粘度を相対的に低下させ流動抵抗を下げた結果、イヤーフローを生じさせていることは明白である。端側の流動先端温度が相対的に高温化する要因について本報では割愛するが、同手法にて取得した昇温量と射出速度条件の相関³⁾などから、せん断による発熱であろうと推察している。上述のように、2つの可視化を複合することで、これまでより一段、深く明確な考察が可能となる。

次に、高熱伝導 PPS 充填過程の可視化結果を Fig. 5 に示す。形状は前図同等、C 形状、厚さ t は 2.0 mm である。同図 a) を参照すると、従来 PPS の挙動と全く異なる。充填初期、時刻 22 ms で流動先端に亀裂が生じ、回転流と直進流に分断される。回転流は金型に逐次密着・固定され、後方から湧き出す樹脂で置換される。これはファウンテンフローの様相である。その一方、直進流は同一樹脂が置換されることなく流動先端に堆積し、金型表面をスリップしながら流動してい

る。上記、流動先端の堆積樹脂が金型末端に衝突・圧縮され型内を充填することで充填が完了する。ここで、同図 b) 温度分布を参照すると、先述した流動先端亀裂の流動方向前後で温度が急激に低下する崖が存在する。Fig. 4 (b) 従来 PPS が示す、流動先端から後方にかけてなだらかに降温する分布とは明確に異なる。亀裂から流動後方では温度が著しく低く、200℃近傍まで即座に冷却される。一方、亀裂およびその流動前方では 330℃以上の高温が保持されるが、部分的に低温のコー

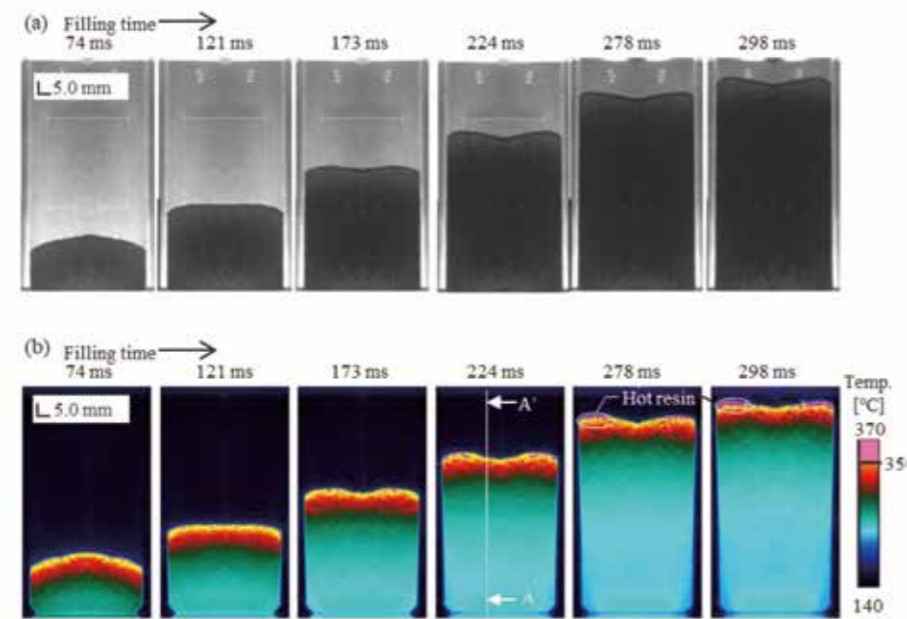


Fig. 4 Visualization of filling behavior of conventional PPS. (a) images of the high-speed video camera, and (b) images of the thermography. Cavity shape is Type C

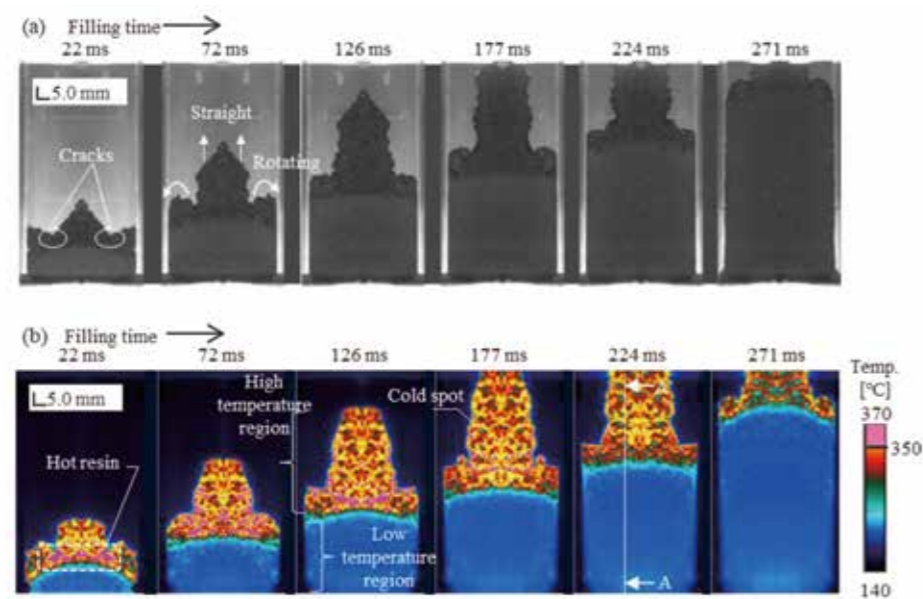


Fig. 5 Visualization of filling behavior of high-thermal-conductivity PPS. (a) is the images of the high-speed video camera, and (b) is the images of the thermography. Cavity shape is Type C

ルドスポットが散見される。同図において、各時刻共通して亀裂形成点が一番も高温であり、350℃を越える。従って当該亀裂部から逐次溶融樹脂が湧き出していることが明らかである。ここで、Fig. 6 に作製した高熱伝導 PPS サンプルの流動末端部における側面方向の顕微鏡観察像を示す。表層に深さおよそ 100 ~ 150 μm のクラック状凹凸が散見され成形品質を低下させている。成形品質向上に向けた改善が必要である。

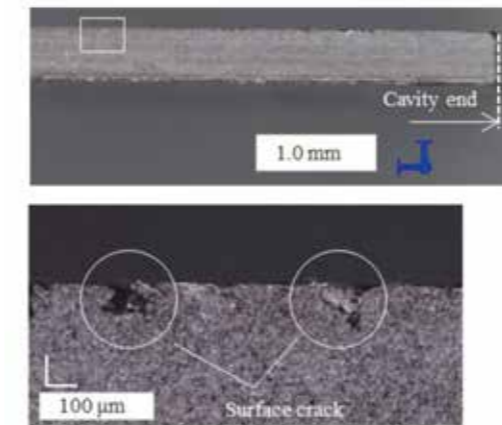


Fig. 6 Side view of high-thermal-conductivity PPS test piece

2.4 高熱伝導 PPS 充填挙動モデル

高熱伝導 PPS の充填適正化に向けた対策立案のため、前節の観察結果に基づき、高熱伝導 PPS 充填挙動モデルを立案した。その模式図を Fig. 7 に示す。同図はフローフロント先端の移動を基準とする移動座標系で示した断面であり、相対速度をベクトルで表記する。溶融状態の高熱伝導 PPS は一般樹脂同等、粘性流体であり、同図 (a) 左に示すファウンテンフローの挙動に従おうとする。金型接触部では、冷却固化および摩擦によりほぼ移動することのない固化層が形成し、その固化層内側に流動層が形成する。上記 2 つの領域の境界部ではせん断が強く生じ発熱する。流動先端部で溶融樹脂は Weissenberg 効果により絞られたのち⁶⁾、前方自由空間に解放され、金型との接触・冷却固化により新たな固化層を形成する。上記過程を反復し充填過程が進行する。ここで流動先端では同図 (a) に示す様に、空冷

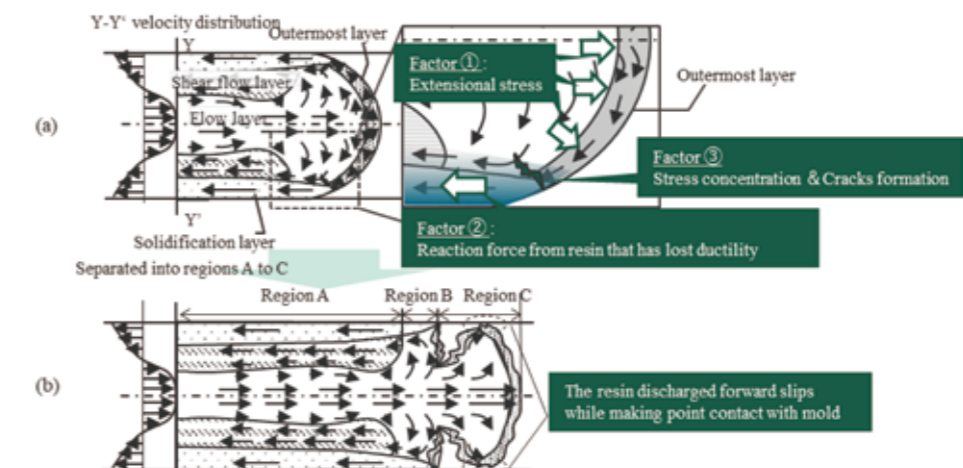


Fig. 7 Schematic diagram of filling behavior of high-thermal-conductivity PPS

による被膜状の最外層が形成する⁶⁾。これが後方からの流動樹脂に押圧され延伸を受けながら、充填完了まで薄く引き伸ばされ成形品最表面に存在し続ける。この最外層被膜は流動樹脂を適宜金型壁面に誘導し、正常なファウンテンフローの継続を促す役割を担う。したがって、適正充填を行うには、上述の最外層被膜が破れることなく保たれる必要があり、延性保持のため融点以上の保温が必要である。

ここで、Fig. 4 (b) および Fig. 5 (b) に示す Line A-A' における温度プロファイルを図 8 に示す。従来 PPS の温度プロファイルを参照すると、流動先端の湧き出し点から流動後方およそ 8.0 mm の範囲で融点 (278℃) 以上の高温を保持する。上述の最外層に延伸が付加される領域の長さは、先行研究⁷⁾におけるフローフロントの放射温度と肉厚の関係から、およそ板厚同等 (当該実験形状では 2.0 mm) であると考えられ、従来 PPS ではそれ以上の十分な範囲において伸長に必要な温度および延性を有する。次に高熱伝導 PPS の温度プロファイルを参照する。亀裂形成部が最も高温であり当該箇所から樹脂が湧き出すと推察されるが、その流動後方 1.0mm で融点以下に即座に冷却され延性を消失する。この場合、Fig. 7 (a) 右図に示すように後方からの流動樹脂による押圧と延性を消失した樹脂の反力により、最外層に引張応力が集中し亀裂が生じる。当該亀裂から前方に吐出される溶融樹脂は最外層被膜による金型壁面への誘導がないことから、固化層を形成しにくい。これら亀裂前方に吐出された溶融樹脂が流動先端に堆積・成長し、金型と部分的な点接触状態を保持

した状態でジェットング状に金型表面を滑り流動する（以下、ジェットング状の当該箇所を領域Cと呼称）。Fig. 5 (b)で観測される亀裂前方の高温部は領域Cであり、当該箇所のコールドスポットは金型との点接触部である。これが金型末端に衝突し、コールドスポットを巻き込みながら折り畳まれるように金型に充填される。これによりFig. 6に示す表面のクラック状凹凸が形成すると考えられる。以上より、高熱伝導PPS充填挙動はファウンテンフローとジェットングが混在する特異な挙動であり、これは成形品質を低下させると同時に、従来ファウンテンフローを前提とするシミュレーションとの乖離を大きくする要因となる。従って、成形品質確保およびCAE予測精度向上に向け上記領域Cの抑制が課題である。次節にて対策立案検証を行う。

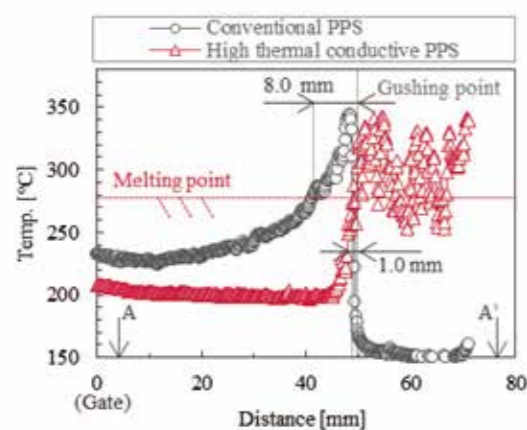


Fig. 8 Temperature profile from gate to flow front

2.5 対策立案および検証

前節で高熱伝導PPSの充填挙動を明らかにし、領域Cの抑制が課題であることを述べた。領域C抑制方案は主に以下の2つのアプローチが考えられる：①最外層の延性保持による亀裂抑制、②亀裂前方に吐出された樹脂の流動適正化。①については材料延性の向上および成形温度高温化、②については縮小流および金型表面の摩擦増大などで樹脂-金型間干渉を強化するなどの具体的方案がある。上記仮説・方案に基づき様々な検証²⁾³⁾を行った。本節では特に明確な効果を得られた形状因子（勾配による縮小流）の検証内容について述べる。

金型に勾配を設ける目的は、最外層亀裂から前方に

吐出されジェットングしやすい状態となった熔融樹脂に対し金型との間に形成される空隙を低減し、両者の干渉を強化することで正常なファウンテンフローに移行させることである。これについて必要勾配量の検討を行う。Fig. 5 (b)高熱伝導PPS充填挙動を参照すると、充填初期時刻22 msにおいて、金型壁面から亀裂形成点までの巾方向（流動直交方向）距離はおよそ7.5 mmである。この時刻において領域Cはおよそ流動方向21 mmの長さで成長する。従って、巾方向勾配により樹脂（領域C）と金型の明確な干渉を確保しようとした場合、1:2.8の著しく大きな勾配が必要である。しかしながら、これは形状自由度の観点から非現実的である。従ってここでは、肉厚方向に勾配を設けることを検討する。

流動先端部の亀裂形成メカニズムが前節Fig. 7で解説した原理に基づくとする、流動先端最外層の亀裂は、熔融樹脂の冷却状態に依存し、流動断面等温度線上に発生する。そこで、流動シミュレーション（3D Timon10 R8.0, 東レエンジニアリングDソリューションズ株）を使用し前記流動断面等温度線を計算した。その結果をFig. 9に示す。同図(a)は充填初期の温度分布斜視図、同図(b)は同図(a) A-A'断面における等温度線図である。同図(b)を参照すると、亀裂形成点と金型壁面の巾方向距離である7.5 mmの地点は300°Cの等温度線図上に位置し、この線図上に沿って亀裂が形成していると推定される。上記300°C等温度線と金型壁面の肉厚方向距離は0.5 mmである。従って、領域Cの抑制対策に必要な肉厚方向勾配は流動方向21 mmに対し0.5 mm漸減、すなわち、1:42の勾配であることが予測される。

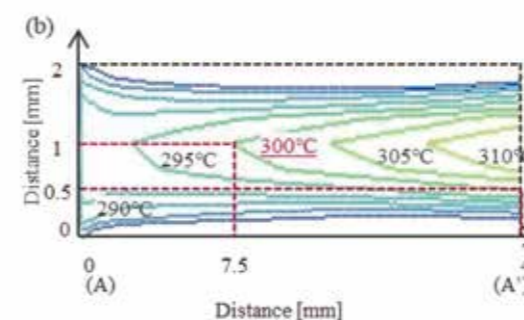
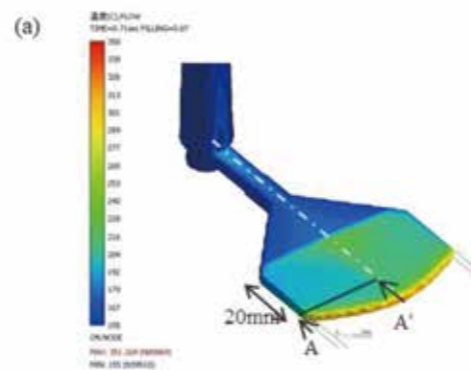


Fig. 9 Temperature distribution during high thermal conductivity PPS flow. (a) is a diagram of the initial stage of filling. (b) Isothermal fig. at A-A'

上述した仮説の実機検証を行うために肉厚方向に勾配を有する形状で可視化解析を実施した。その結果をFig. 10に示す。同図(a)はFig. 3 (a) C形状（肉厚一定）、肉厚3.0 mmの可視化像であり、肉厚依存性を確認するために実施した。同図(b)および(c)はFig. 3 (b) T形状（肉厚漸減）の結果であり、同図(b)は肉厚3 mmから2 mmへの漸減、同図(c)は肉厚3 mmから1 mmへの漸減形状の可視化像である。同図(c)が上述の仮説に基づく勾配形状の可視化像である。同図(b)はここ

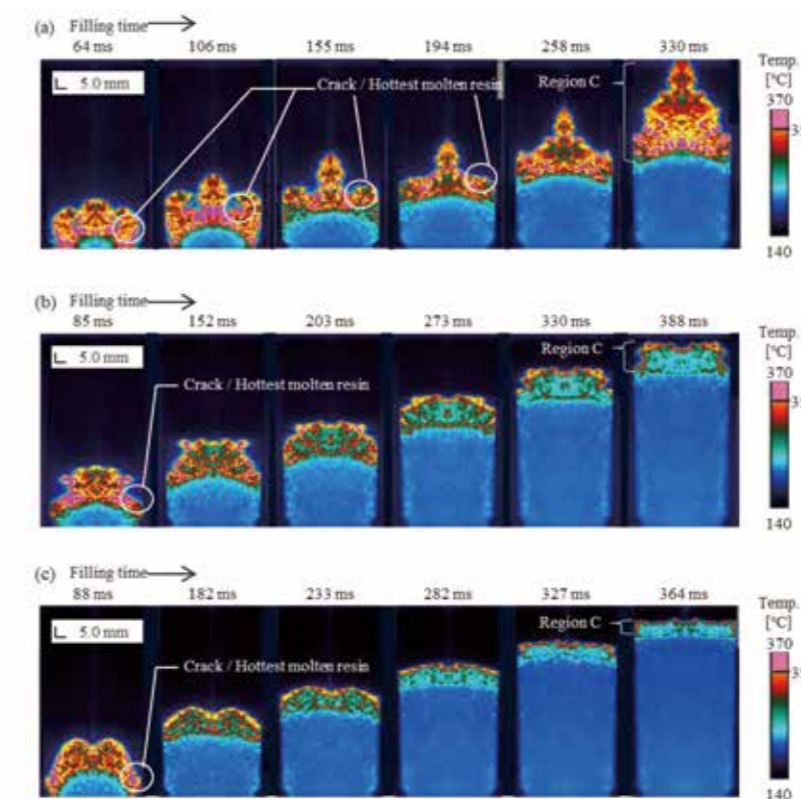


Fig. 10 Visualization of resin filling behavior of high-thermal-conductivity PPS. (a) is the images of Cavity shape of Type C, and plate thickness t is 3.0 mm. (b) is the images of Cavity shape of Type T, (t :3.0 \rightarrow 2.0 mm). (c) is the images of Cavity shape of Type T (t :3.0 \rightarrow 1.0 mm)

から必要勾配量の緩和を図り実施した可視化像である。まず、同図(a)を参照すると、Fig. 5 (b)に示した厚さ2.0 mm一定形状での結果と同様、流動先端亀裂が形成し領域Cが経時的に成長する。改善効果は見られない。従って、肉厚変更による有意差はない。

次に、同図(b) T形状（3.0 \rightarrow 2.0 mm 漸減）の結果を参照する。充填初期はランナ部で成長した領域Cがキャビティに流入する様子が見られるが、経時的に減少し、充填完了直前時刻388 msではほぼ消失している。これは、先述したとおり、金型と熔融樹脂の干渉が強化され、ジェットング状の流動から正常なファウンテンフローの流動に移行したためである。同図(c) T形状（3.0 \rightarrow 1.0 mm 漸減）を参照すると、同図(b)の改善効果がさらに強調され、時刻282 msにおいて領域Cはほとんど消失する。

ここで、各試験片の流動末端側面部の観察像をFig. 11に示す。Fig. 11各図(a)~(c)がそれぞれ、Fig. 10各図(a)~(c)の試験片に対応する。Fig. 11 (a)を参照すると、Fig. 6同様、表面にクラック状の凹凸が散見される。これは前節で解説したメカニズムにより形成されたもので

あり成形品質を低下させる。一方、同図 (b) および (c) を参照すると、上記表面クラック状凹凸が形成せず表面状態が改善した。以上より、高熱伝導 PPS 成形品質改善に対する肉厚方向勾配の有意な効果が確認された。仮説立案段階では 1:42 の勾配が必要との試算であったが、実機では 1:85 の勾配量においても明確な改善効果が得られているため、必要勾配量については緩和の可能性が示唆される。

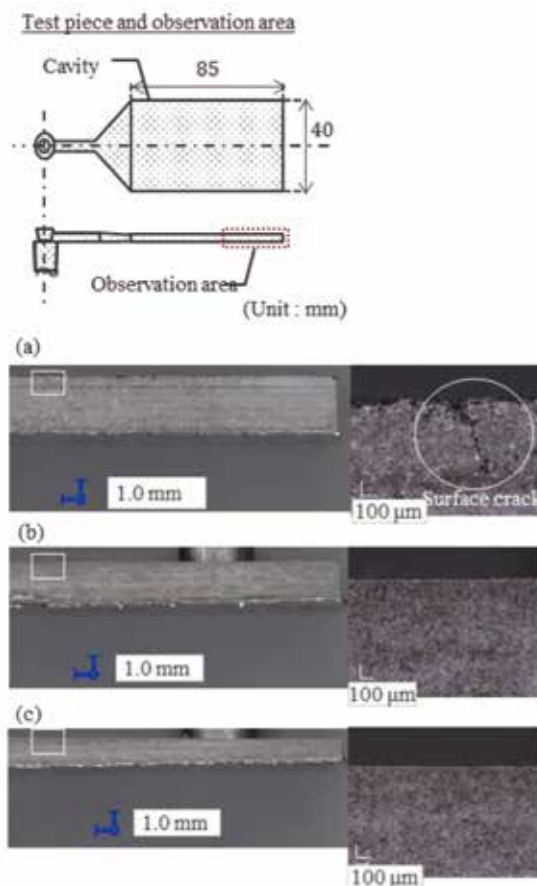


Fig. 11 Side observation images of the test piece. (a) is the images of Cavity shape of Type C, and plate thickness t is 3.0 mm. (b) is the images of Cavity shape of Type T, ($t:3.0 \rightarrow 2.0$ mm). (c) is the images of Cavity shape of Type T ($t:3.0 \rightarrow 1.0$ mm)

3. 高熱伝導 PPS 充填挙動シミュレーションの予測精度向上

3.1 樹脂-金型界面熱抵抗 (Thermal Contact Resistance : TCR)

前章で適正な勾配により高熱伝導 PPS 充填挙動をジェット状挙動から正常なファウンテンフローに

改善した。現在、商用の流動解析パッケージの殆どはファウンテンフローを前提とするため、上述の成果により、一定の予測精度改善が示唆される。しかしながら、それでもなお高熱伝導 PPS の充填挙動、特に薄肉部でのヘジテーションを検出可能なレベルでの予測精度改善に至らなかった。これに対し特に影響度が大きいと考えられる因子が樹脂-金型界面熱抵抗 (Thermal Contact Resistance, 以下 TCR と呼称) である。

Fig. 12 に流動先端付近の模式図を示す。同図 (a) は CAE (有限要素法)、同図 (b) は実機の模式図である。CAE では界面部に完全接触となる平滑メッシュを規定する。しかしながら、実機は多様な因子 (金型表面状態、収縮、型内離型およびデポジットガスなど) により部分接触状態である。従ってここで CAE と実機の乖離が生じる。そのため、CAE では界面に見かけ上の熱抵抗 (TCR) を境界条件として規定し、乖離低減を図る。従来樹脂は断熱性のため充填過程において表面固化層の熱抵抗が抜熱を律速するが、高熱伝導 PPS では上記固化層の熱抵抗が著しく低減するため TCR の影響が大きくなる。そのため、妥当な TCR を設定することは高熱伝導 PPS の充填予測精度向上に対し重要である。しかしながら、充填過程における可用性の高い TCR 評価研究はこれまでに報告されていない。

従来射出成形において、TCR は一般的な共通課題である収縮・ソリ予測精度に寄与することから、これまでに多くの報告⁸⁾⁻¹⁰⁾がなされている。しかしながら、その殆どは、特に寄与度の高い保圧・冷却過程を主に対象とした計測であり、充填過程に着目した計測はこれまで実施されてこなかった。従来の計測では主に、金型内に内蔵した複数の接触熱電対による計測温度から TCR を導出する。しかしながら、極短時間かつ温度落差の著しい非定常系である充填過程の TCR 計測を目的とする本研究において、時間応答性及び分解能の観点から、既存の熱電対を主体とする TCR 計測手法は適用困難であると判断した。そこで、本研究では可視化システムを活用し、新たに赤外温度計測を主体とする充填過程 TCR の評価法を確立した。

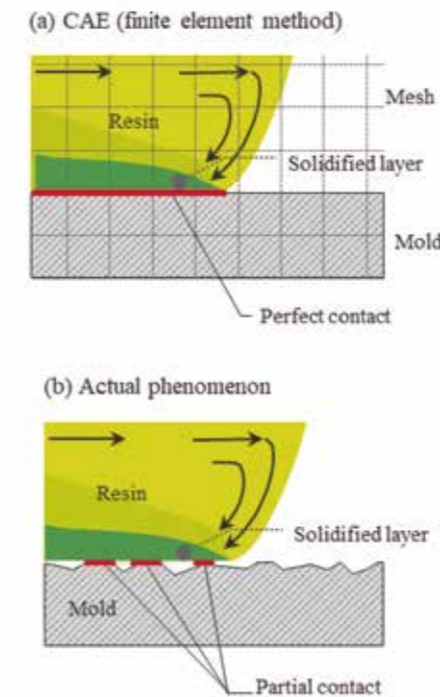


Fig. 12 Schematic of flow-front region: (a) CAE and (b) actual phenomena

3.2 TCR 計測理論

Nomenclature	
Q_{in}	Heat input [W]
Q_{heat}	Amount of heat accumulation [W]
Q_{out}	Heat output [W]
T_1	Temperature of resin surface [°C]
T_2	Temperature of the mold surface [°C]
T_3	Temperature inside the mold [°C]
R	Thermal contact resistance [$m^2 \cdot K/W$]
δR	Error in R [$m^2 \cdot K/W$]
Δx	Width of mold surface microelements [m]
Δy	Thickness of microelements [m]
Δz	Depth of mold surface microelements [m]
C_v	Specific heat [$J/(K \cdot m^3)$]
a	Distance [m]
λ	Thermal conductivity [$W/(m \cdot K)$]

本節では TCR の計測理論について解説する。溶融樹脂通過時の樹脂-金型界面熱移動の 1 次近似モデルを Fig. 13 に示す。ここで、巾 Δx 、厚さ Δy 、奥行き Δz の金型表面の微小要素に着目し、時刻 t における溶融樹脂からの入熱を Q_{in} 、樹脂表面温度を $T_1(t)$ 、金型表面温度を $T_2(t)$ 、樹脂-金型界面 TCR を $R(t)$ と定義する。上記微小区間内において $T_1(t)$ 、 $T_2(t)$ 、及び $R(t)$ が一様であると仮定すると、熱伝達の式 (ニュートン則) より入熱 Q_{in} は (1) 式で示される。

$$Q_{in} = \iint \frac{1}{R(t)} (T_1(t) - T_2(t)) dx dz \cong \Delta x \Delta z \frac{1}{R(t)} (T_1(t) - T_2(t)), \quad (1)$$

ここで、金型表面微小要素に蓄積する熱量を Q_{heat} 、金型の体積比熱を C_v とすると、蓄熱 Q_{heat} は以下の関係式 (2) で示される。

$$Q_{heat} = \int C_v \frac{dT_2(t)}{dt} dV \cong C_v \Delta x \Delta y \Delta z \frac{dT_2(t)}{dt}, \quad (2)$$

金型表面から内部への抜熱を Q_{out} 、金型の熱伝導率を λ 、 $T_2(t)$ 及び $T_3(t)$ の計測区間距離を a とすると、熱伝達の式 (フーリエ則) より、抜熱 Q_{out} は以下の関係式 (3) で示される。このとき計測区間距離 a は十分に小さいものとする。

$$Q_{out} = \iint (-\lambda) \frac{dT}{dx} dx dz \cong \Delta x \Delta z (-\lambda) \frac{T_3(t) - T_2(t)}{a}, \quad (3)$$

また、熱の移動が溶融樹脂から金型にかけての 1 次元方向の熱移動のみであると仮定すると、エネルギー保存則より以下の関係式 (4) が成立する。

$$Q_{in} = Q_{heat} + Q_{out} \quad (4)$$

式 (1) ~ 式 (4) を連立させると、界面部 TCR は以下の式 (5) で示され、 $T_1(t) \sim T_3(t)$ の温度 3 点の時間プロファイル、金型の熱特性 (熱伝導率、体積比熱)、計測に関する因子 (空間分解能、測定点間距離) により導出可能である。従って、 $T_1(t) \sim T_3(t)$ の温度 3 点の精緻な計測が重要である。

$$R(t) = \frac{T_1(t) - T_2(t)}{(-\frac{\lambda}{a}) \cdot (T_3(t) - T_2(t)) + C_v \cdot \Delta y \cdot \frac{dT_2(t)}{dt}}, \quad (5)$$

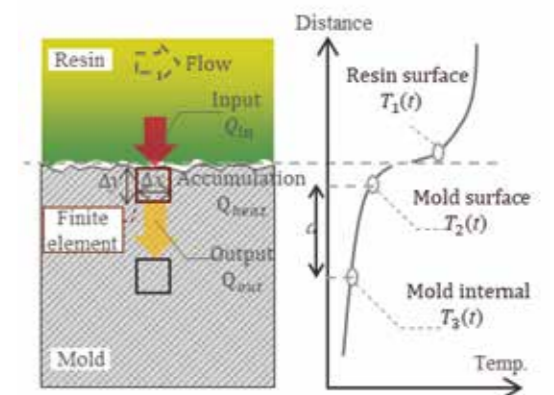


Fig. 13 Schematic of heat transfer at the resin-mold interface

3.2 温度計測実験および TCR 導出

前節で TCR 導出では $T_1(t) \sim T_3(t)$ 時間プロファイル計測が必要であることを述べた。本節ではこれらを取得し、高熱伝導 PPS 充填過程の TCR を導出する。従来法¹⁰⁾では前記温度 3 点プロファイルの取得に金型内熱電対を使用する。しかしながら、3.1 節で先述したとおり、これらは時間応答性の観点で充填過程 TCR 導出に向けた温度計測としては不適である。金型表面温度 $T_2(t)$ の計測では金型最表面からおよそ 200 μm 内部に熱電対を設置することとなるが、溶融樹脂が到達してから熱電対のジャンクションに伝熱し昇温を検出するまでの応答遅れにより、実際よりも数桁大きい TCR が導出されることを後述の計測方案にて確認している。

上述の背景により、本研究では上記温度 3 点すべてを応答遅れのない赤外線温度計測で取得する。これに、開発した可視化システム^{2)~4)} (2.2 節で解説) を活用する。Fig. 14 に温度計測に使用する試験片および金型構成の模式図を示す。試験片形状は 25 \times 88.5 mm の矩形形状である。厚さはゲート部が 2.0 mm であり、前章の流動改善効果を反映し、流動末端にかけて 1:85 の勾配を設ける。これを板厚方向から赤外線ハイスピードカメラで可視化する。溶融樹脂から金型への伝熱にともなう経時温度変化を可視化し、抽出した温度プロファイルから TCR を導出する。可視化領域は同図中に示す通りである。50 mm レンズ及び 6.35 mm 接写リングを使用し、10.7 \times 34.3 mm の視野範囲を 160 \times 512 pixels の画素数で撮像する。従来、集積型熱電対と比較

しおよそ 2~3 倍の空間分解能であり、従来より 1~2 桁オーダーの低い微小な TCR の計測に対応する。事前の評価により TCR 測定限界 $2.1 \times 10^{-5} \text{m}^2\text{K/W}$ を確認している。フレームレートは 330 Hz である。金型には 3 箇所タブが設けられており、そのうち 2 箇所 (図中 Sensor 1 および 2) に圧力センサ (kistler 社製、型式: 6190C, 先端径 4.0 mm) を内蔵する。これにより、取得した TCR と型内圧力の相関解析が可能である。

前節で解説した理論式 (5) を TCR 導出に適用する場合、熱移動を溶融樹脂から金型への 1 次元に近似する。そのため、実機でもこれに相当する熱移動の状態を再現する必要がある。しかしながら、赤外線計測を実施するため IR 透過用プリズムが必須であり、プリズムと溶融樹脂接触部の伝熱が外乱となる。そこで、これを極限に低減すべくプリズム硝材に断熱性のフッ化マグネシウム (MgF_2) を使用する。また、金型プリズム間には同図中に示すとおり溶融樹脂が侵入しない程度の微細なクリアランスを設け、非接触とすることで外乱となるプリズムへの伝熱を阻害する。赤外線計測を行う金型表面には黒体塗料 (放射率およそ 0.94) を塗布し、放射率を使用樹脂同等にする。金型材質は SUS 系の STAVAX ESR 金型鋼であり、溶融樹脂との接触面はショットピーニング処理により R_z 1.8 に調質する。使用樹脂は、これまで同等、高熱伝導 PPS (Celanese Corp., E5101, 破碎グラファイト添加、厚さ方向熱伝導率 $3.5 \text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$) である。成形条件は Table 2 に示す通りである。

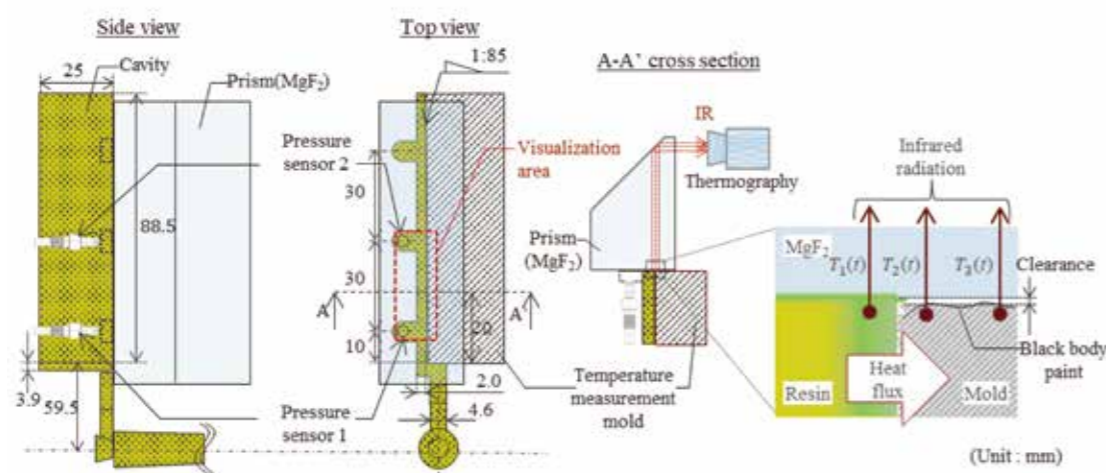


Fig. 14 Schematic of cavity shape, prismatic glass, temperature measurement mold

Table 2 Molding conditions

Item	Values
Cylinder temperature ($^{\circ}\text{C}$)	335
Mold temperature ($^{\circ}\text{C}$)	155
Screw rotation speed (rpm)	100
Back pressure (MPa)	3
Charge stroke (mm)	45
Injection speed (mm/s)	25

先述した構成に基づき温度分布変化の可視化を実施した。各時刻の温度分布を Fig. 15 に示す。Line A-A' はゲートから 20 mm、Line B-B' はゲートから 10 mm の距離であり、Line A-A' への溶融樹脂到達時刻をゼロで定義する。前章で解説した通り、金型接触直後の急激な冷却現象が可視化される。

ここで Line A-A' 上樹脂-金型界面近傍の各 Pixel で観測される温度プロファイルを Fig. 16 に示す。同図 (a) は時刻 -100~500 ms のプロファイルであり、同図 (b) は樹脂到達直前直後の時刻 -100~100 ms における拡大である。同図 (b) において溶融樹脂到達前後で温度の大小関係が逆転する現象を利用し、樹脂および金型を捕捉する Pixel の同定が可能である。ここでは、それぞれ Pixel No.33~38 が金型、Pixel No. 39~44 が樹脂を捕捉する Pixel である。同図 (a) を参照すると、溶融樹脂到達後から時刻 51 ms にかけて、樹脂からの伝熱で金型が 150°C から 208°C まで昇温する。その後、溶融樹脂通過直後の時刻 190 ms にかけて、 171°C まで降温したのち、時刻 300 ms にかけて 173°C まで僅かに再昇

温する過程を経る。従来成形において、一旦冷却された金型が再昇温することはないと考えられるが、高熱伝導 PPS でこれが生じる要因として、樹脂と金型の接触状態による TCR の変化が示唆される。

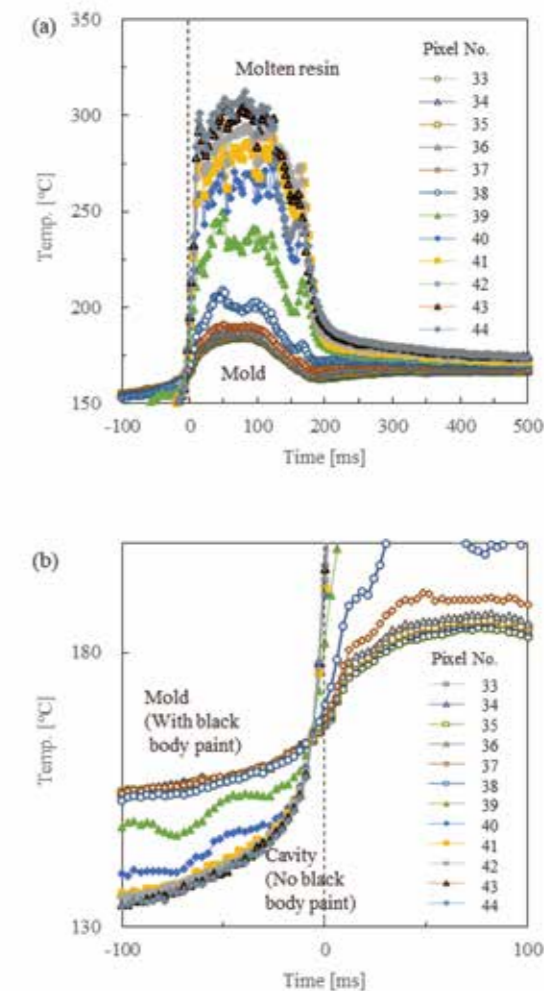


Fig. 16 Temperature profile at each pixel in line A-A' (Fig. 15) (a) profile of the entire filling process and (b) enlarged view

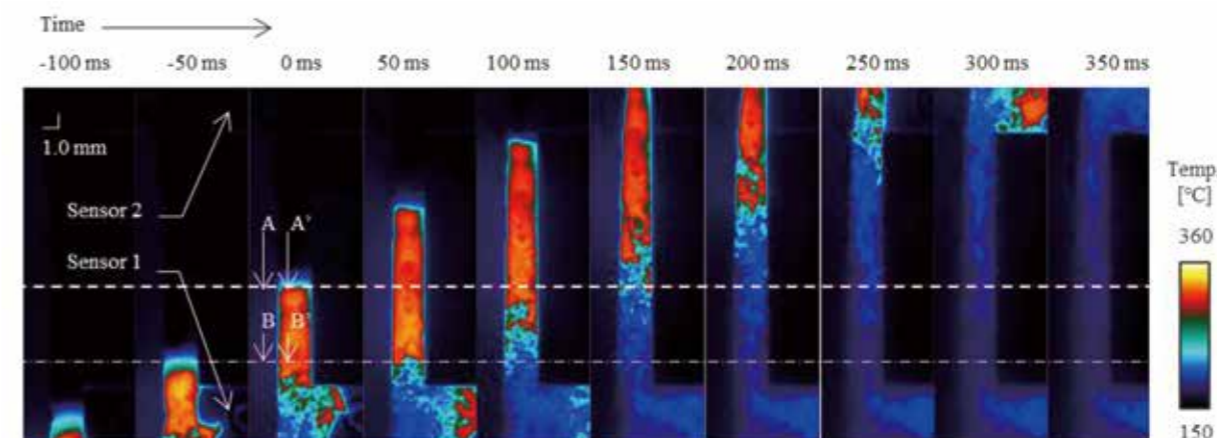


Fig. 15 Visualized images of temperature distribution change in high-thermal-conductivity PPS

Fig. 16 に示した温度プロファイルを式 (5) に代入し、TCR を導出した。ここでは、 T_1 から T_3 の温度抽出 pixel に以下の組み合わせを採用した： T_1 ：pixel No. 40, T_2 ：pixel No. 37, and T_3 ：pixel No. 34。Fig. 15 Line B-B' においても同等の手法で温度を取得し、TCR を導出した。さらに樹脂圧力との相関を明確化するため、圧力計測も同時に実施した。それらの結果を Fig. 17 に示す。同図 (a) は TCR および圧力の経時変化、同図 (b) は圧力と TCR の相関を示す。まず同図 (a) を参照すると、時刻 0 ms において TCR はおよそ 1.4×10^4 $\text{m}^2\text{K}/\text{W}$ である。そのうち、A-A' では時刻 170 ms にかけて 5.6×10^4 $\text{m}^2\text{K}/\text{W}$ 、B-B' では時刻 100 ms にかけて 2.0×10^4 $\text{m}^2\text{K}/\text{W}$ まで増大する。その後、各箇所とも TCR はおよそ 1.8×10^5 $\text{m}^2\text{K}/\text{W}$ まで急減したのち、飽和している。ここで圧力計測結果を参照すると、各箇所ともに昇圧開始時刻と TCR 急減開始時刻が一致する。これら TCR の増減は、前章 Fig. 7 にて解説した高熱伝導 PPS の充填モデルで説明が可能である。高熱伝導 PPS ではまず部分的な接触状態となる領域 C が計測部に到達する。当該箇所は正常なファウンテンフローと比較し金型との接触が悪いため、TCR は比較的大きい。さらに流動先端亀裂に向けて空隙が増大するため、TCR もこれにともない増大する。その後、ファウンテンフローに移行し樹脂と金型の密着状態が良好になると同時に、TCR は急減する。 1.8×10^5 $\text{m}^2\text{K}/\text{W}$ 近傍で下げ止まっているが、これは開発した計測システムの計測限界によるものである。実際の TCR はさらに経時的に低減していると推察される。

同図 (b) 圧力に対する TCR を参照すると、TCR は負の相関関係で圧力に明確に依存し、その過程で傾きが大きく変化する。低圧 (0 ~ 1.5 MPa, Region 1 と呼称) では TCR は強い圧力依存性を示し、高圧 (1.5 MPa 以上, Region 2 と呼称) では弱い圧力依存性を示す。ここで、試験片のショートショットサンプルを Fig. 18 に示す。流動先端は空隙が多く、これが TCR を増大させていると推察される。Fig. 17 (a) 圧力計測結果より、流動先端部が Region 1、流動後方が Region 2 に相当することが明らかである。Region 1 では上記空隙が圧力により消失することで密着性が良好となる効果が大いため、TCR は強い圧力依存性を有すると推察される。一方、

Region 2 における TCR の弱い圧力依存性は、圧縮による樹脂密度向上などが要因として考えられる。

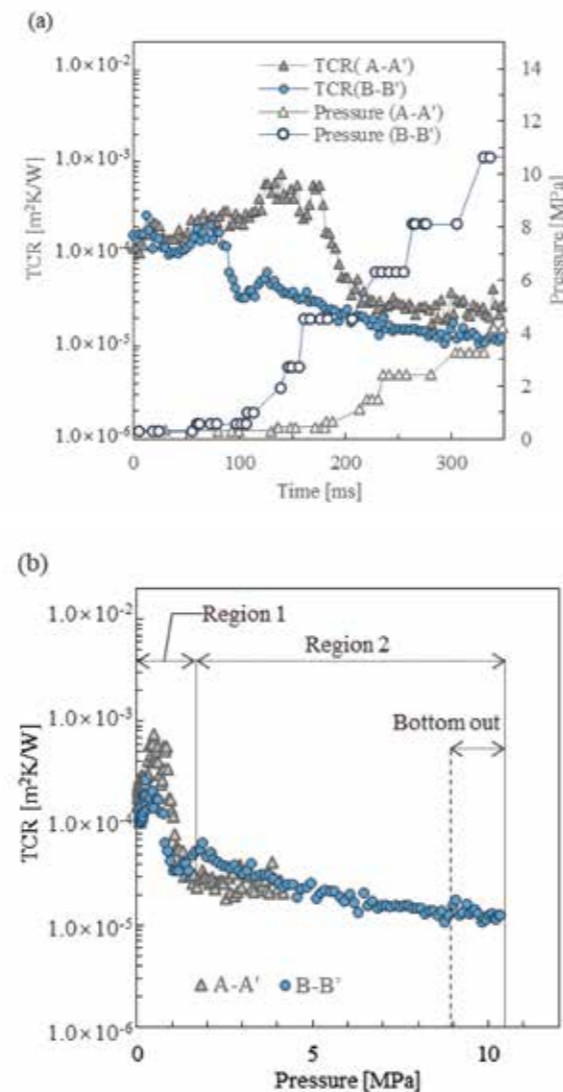


Fig. 17 TCR and pressure measurement results. (a) shows the time changes of each of them, and (b) shows their correlation with each other

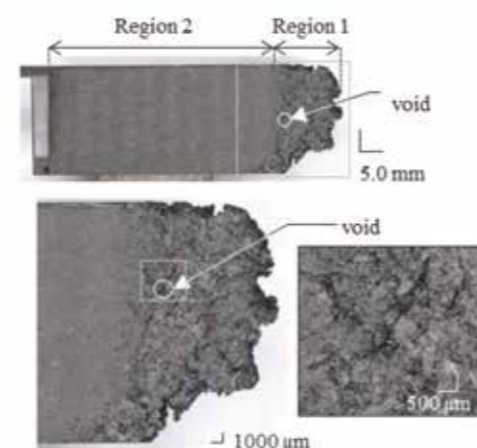


Fig. 18 Photo of the test piece

3.3 シミュレーションと実機試験の比較検証

前節で高熱伝導 PPS 充填過程の TCR を計測した。本節では、中央薄肉の試験片を使用し、ヘジテーション (薄肉部への充填ためらい) 現象について実機とシミュレーションの充填挙動を比較検証する。これにより前節で計測した TCR の妥当性を検証する。Fig. 19 に試験片形状を示す。40 × 85 mm の矩形上であり、肉厚は 3.0 mm から 2.0 mm の漸減である。前章の流動改善効果を反映し、1 : 85 の勾配を有する。中央部には 30 × 30 mm の範囲で肉厚 1.0 mm の薄肉部を有する。可視化領域は中央片側であり、取得した可視化像を対称配置し疑似可視化像を作成する。プリズム硝材は一般的な金型内充填挙動を再現するため型材同等伝熱特性のサファイアを使用する。使用樹脂および成形条件は前節同等である。

Fig. 20 に高熱伝導 PPS 充填過程における経時温度分布変化の可視化像を示す。樹脂がキャビティに流入した時刻をゼロと定義する。溶融樹脂は流動先端温度およそ 345°C でキャビティに流入したのち、時刻 400 ms で薄肉部に到達し、これ以降当該箇所の充填が遅れ

る。時刻 800 ms で薄肉部充填が不完全な状態で、側面部からの流動樹脂が会合する。このとき、中央薄肉部の流動先端温度は融点 278°C を下回る。これにより、薄肉部に適正に樹脂充填がなされず、試験片に孔ができる (ヘジテーション)。この現象を流動シミュレーションで再現する。

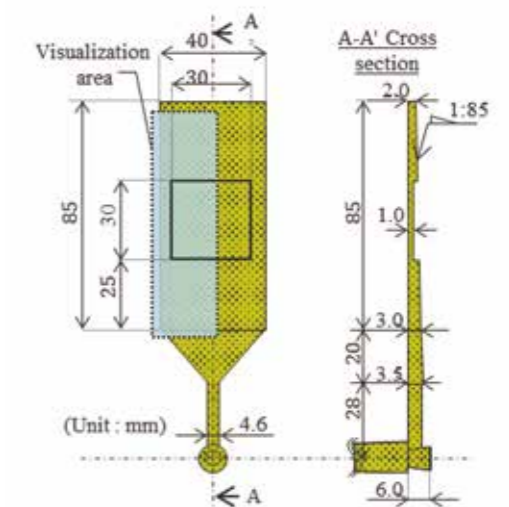


Fig. 19 Cavity shape

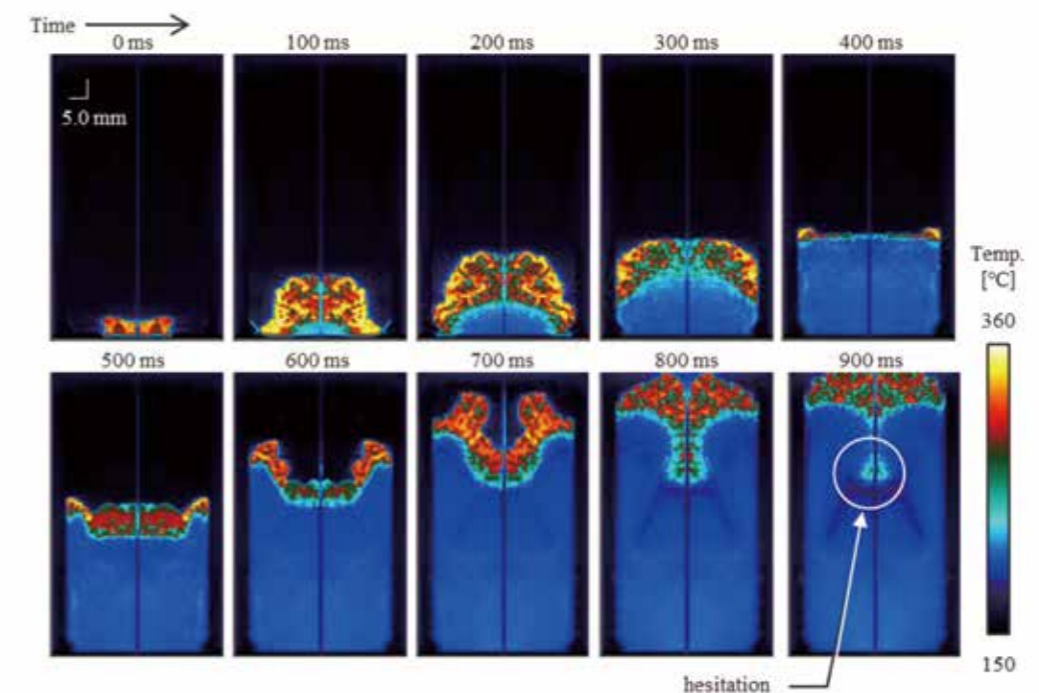


Fig. 20 Visualized images of filling behavior and temperature distribution change of high-thermal-conductivity PPS

シミュレーションには3D Timon10 R8.0-64bit Insert MultiMold (東レエンジニアリングDソリューションズ株)を使用した。一般に、射出成形の充填シミュレーションではキャビティ壁面温度定常の境界条件が慣例的に用いられるが、Delaunaryらの先行研究⁸⁾でも言及されるように、より厳密な結果を得るには非定常で解析を行わなければならない。特に高熱伝導PPSの充填過程では、樹脂の熱抵抗が低減するため金型への熱流が増大し金型表面の昇温量が大きい。そのため、高熱伝導PPSにおいて金型壁面温度を定常として計算することによる誤差は従来樹脂と比較して大きいと予測される。従って本研究の充填解析では金型壁面温度を非定常として取り扱いつつ計算コストを抑えるため、キャビティに隣接する厚さ約10 mmの金型領域においてプリズムおよび金型メッシュモデルをインサートモデルとして定義し、同解析ソフトの拡張モジュールであるInsert Multi Moldを使用し温度練成解析を実施した。メッシュはボクセルメッシュであり、キャビティ約11.9万要素、サファイアガラス4.9万要素、金型19.6万要素で構成される。中央薄肉部は厚さ方向6層、その他キャビティは厚さ方向12層～18層の分割数で構成される。

TCRについて、前節実機計測において同パラメータは圧力依存変数であることが明らかとなった。しかしながら、TCRを圧力変数として挿入可能な商用パッケージは現状存在しない。そのため、ここでは以下の3水準(定常)で計算を行い、TCRの妥当性について検証する。水準1:ソフトウェアのデフォルト値 $1.0 \times 10^{-3} \text{ m}^2\text{K/W}$ (保圧・冷却過程での計測結果に基づく値であると考えられるが、敢えて変更しない場合、現在、充填過程においてもこの値が適用される。)、水準2:実機計測値のRegion 1における平均値 $3.4 \times 10^{-4} \text{ m}^2\text{K/W}$ 、水準3:実機計測値のRegion 2における平均値 $1.9 \times 10^{-5} \text{ m}^2\text{K/W}$ 。

Fig. 21に流動解析結果を示す。各図(a)～(c)はそれぞれ、先述のTCR水準1～3の計算結果に相当する。同図(a)ソフトウェアのデフォルト値を採用した場合の結果参照すると、実機のヘジテーション現象は全く再現しない。これは、実機と比較して溶融樹脂の冷却速度が遅く見積もられているためである。次に、同図(b)

を参照する。同図(a)と比較し中央薄肉部の充填遅れは生じるが、孔が形成する程度の充填遅れは再現しない。同図(c)を参照すると、時刻400 msで中央薄肉部に到達したのち即座に樹脂温度が低下し、当該箇所ではそれ以降充填は進行しない。従って、シミュレーションにおいてTCR下限側の実測値を使用することでヘジテーションを事前に検出可能であることが確認されたが、これは実機と比較し過剰検出である。以上より、実機のヘジテーションはTCR実測値上下限(定常)のシミュレーション結果の中間的状态にあり、実機計測とシミュレーションが整合する結果となった。TCRを圧力関数として挿入可能な拡張モジュールを導入することができれば、さらに予測精度が向上することが示唆された。これは今後の課題である。

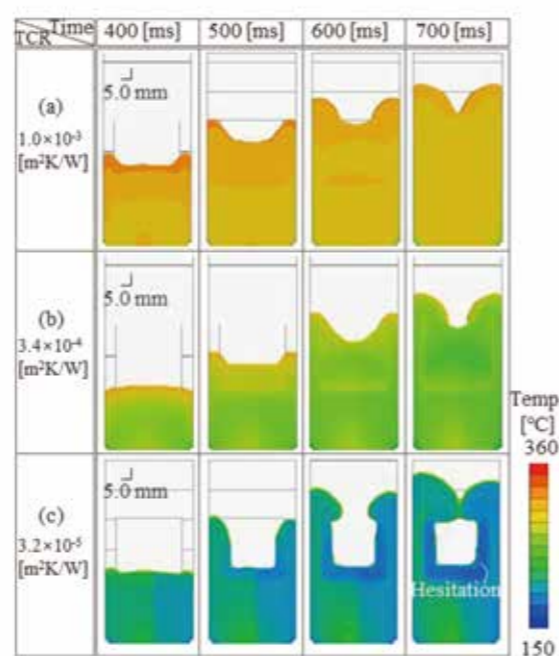


Fig. 21 Calculation results of filling behavior and temperature distribution change of high-thermal-conductivity PPS

4. おわりに

今後の樹脂化推進に向け、高熱伝導PPS充填過程のハイブリッド可視化案を確立し、これまで明らかではなかった同樹脂の充填挙動を動的・熱的両側面から解析した。従来PPSと比較し加工難度が高い同樹脂で成形品質を確保する上での基本指針・考え方を確立し、

シミュレーションにおいてもこれまで検出不可能であった高熱伝導PPSの未充填を検出することが可能となり、開発リードタイム短縮に寄与することができた。しかしながら、製品競争力を妨げる形状制約の緩和、同樹脂を成形する上で必要となる成形機スペックと製造現場成形機のスペック整合および、シミュレーションのコード改善など、実用化を推進していく上で課題は残される。今後、共通の課題について社内基準の整備を進めると同時に、製品ごとの個別課題に適宜細かく対応し、品質確保とCNの両立に向けた加工技術開発を推進していく。

参考文献

- 1) Regi, F., Guerrier, P., Zhang, Y., and Tosello, G. (2020). Experimental characterization and simulation of thermoplastic polymer flow hesitation in thin-wall injection molding using direct in-mold visualization technique. *Micromachines* 11: 428, <https://doi.org/10.3390/mi11040428>.
- 2) Akifumi Kurita, Yohei Yoshimura, Makoto Suzuki, Hidetoshi Yokoi, and Yusuke Kajihara, "In-process visualization of kinetic and thermal behaviors of high thermal conductivity PPS," *AIP Conference Proceedings* 2607, 040005, 2023. <https://doi.org/10.1063/5.0135767>.
- 3) Akifumi Kurita, Yohei Yoshimura, Makoto Suzuki, Hidetoshi Yokoi, and Yusuke Kajihara, "Visualization analysis of temperature distribution in the cavity of conventional PPS and high-thermal-conductivity PPS in the filling process of injection molding," *International Polymer Processing*, 38, 1, 42-53 (2023), <https://doi.org/10.1515/ipp-2022-4225>.
- 4) Akifumi Kurita, Yohei Yoshimura, Makoto Suzuki, Hidetoshi Yokoi, and Yusuke Kajihara, "Precise temperature calibration for visualized high-thermal-conductivity PPS in injection molding during filling process," *Precision Engineering*, 82, 92-105 (2023), DOI:<https://doi.org/10.1016/j.precisioneng.2023.03.013>.
- 5) Yoshinori Kanetoh, and Hidetoshi Yokoi, "Visualization analysis of side-edge flow phenomena in different thickness/width rectangular cavities using a rotary runner exchange system," *Polymer Engineering and Science*, 51, 4, pp721-729, 2011.
- 6) Y.Kanetoh, H.Yokoi: "Visualization analysis of resin flow behavior around a flow front using a rotaryrunner exchange system," *Intern. Polymer Processing*, 27, 3, pp. 310-317 (2012).
- 7) 増田 範通, 横井 秀俊: "高応答赤外線放射温度計による超高速充填過程の樹脂温度計測II - 着色量, キャビティ厚さの

- 影響," 成形加工シンポジウム'09 予稿集, pp. 247-248, 2009.
- 8) D. Delaunay, P. Le Bot: "Nature of contact between polymer and mold in injection molding. Part I: influence of a non-perfect thermal contact," *Polym. Eng. Sci.* 40 (7), pp. 1682-1691, 2000.
 - 9) A. Dawson, M. Rides, C.R.G. Allen, J.M. Urquhart: "Polymer-mould interface heat transfer coefficient measurements for polymer processing," *Polym. Test.* 23, 555-565, 2008.
 - 10) Yao Liu and Michael Gehde, "Evaluation of heat transfer coefficient between polymer and cavity wall for improving cooling and crystallinity results in injection molding simulation", *Applied Thermal Engineering*, 80, 238-246, 2015.

著者



栗田 章史

くりた あきふみ

先進プロセス研究部 博士(工学)
プラスチックの加工技術開発に従事



吉村 洋平

よしむら ようへい

部品加工開発部
プラスチックの加工技術開発に従事



鈴木 信

すずき まこと

部品加工開発部
造形加工の加工技術開発に従事



横井 秀俊

よこい ひでとし

YOKOI Labo 代表・東京大学 名誉教授
博士(工学)
プラスチック成形加工/射出成形の研究
開発・可視化実験解析に従事



梶原 優介

かじはら ゆうすけ

東京大学 教授 博士(工学)
金属-樹脂異材接合技術, テラヘルツ
顕微技術の研究に従事