

平成 30 年度 博士論文



パルプ射出成形における  
成形プロセスの解明と最適化  
Clarification and Optimization of Molding Process  
in Pulp Injection Molding

主査 横井 秀俊 教授

松坂 圭祐

# 論文要旨

プラスチックは、生活に不可欠な素材となっている。プラスチックの生産量は、年間約 3 億 ton を超えている。しかし、プラスチックゴミの廃棄量も年々増加しており、ゴミ処理が行われず地球環境上に廃棄されたゴミは深刻な環境汚染問題を引き起こしている。近年では、脱プラスチックの世界的な潮流も現れている。脱プラスチックの技術動向としては、バイオプラスチックを材料としたプラスチック成形加工と、パルプモールドに代表される紙基材を使用した成形加工、以上の 2 通りの流れがある。前者ではバイオプラスチック材料そのもののコスト高が、後者では多量の淡水を必要とし成形精度が低いことが課題として挙げられていた。

上記の課題を解決するために、大宝工業(株)は 1995 年から紙基材の成形材料を射出成形し 3 次元成形体を実現できるパルプ射出成形技術 (Pulp Injection Molding (以下, PIM)) の開発を行った。PIM は高精度でありながらも、バイオプラスチックと比較してコスト低減が期待されていた。PIM の成形工程は、パルプと澱粉、ポリビニルアルコールで構成された紙基材に水を加えて加熱混練した成形材料を、射出成形機により金型内に流し込み、金型内で乾燥させて形状固定させるものである。材料に含まれた水分を蒸発乾燥させるために、金型温度は約 180°C に加熱され、金型寸開動作を数回繰り返して、型内の水蒸気を外部に放出する。

PIM の成形サイクルは、例えば当時の代表的な成形品で約 120s と、プラスチック成形品に比して非常に長く、その約 70% を型内乾燥時間が占めており、コストを大幅に押し上げる一因となっていた。PIM がプラスチック代替として広く用いられるためには、成形時間を少なくとも半減させることが求められていた。しかしながら、プラスチック成形とは全く成形現象が異なり、それらの成形現象が複雑に絡み合っていた。その多くが未解明であったため、単に“成形時間を短縮する”といっても、成形材料の組成、金型構造、成形機とスクリュ形状、成形条件などをどのように設定すればよいか、全く不明のままとなっていた。

そこで本論文では、PIM の成形性に大きく寄与する材料因子および成形プロセス因子に着目して、成形プロセスの未解明現象を明らかにし、最適化条件の探索と検証を行うことを目的としている。具体的には以下のテーマについて検討を行った。

[Ⅰ] PIM 成形材料と成形品の基本特性を明らかにし、材料組成が成形品特性に与える影響について評価する。

[Ⅱ] PIM 成形材料の金型内部流動挙動を明らかにし、流動モデルを構築する。同時に成形不良発生原因を検証して、今後の製品設計の指針とする。

[Ⅲ] 成形サイクルの半分を占める乾燥時間の短縮について、金型開閉動作の最適化を検討する。また、粘度計測法を開発し、今後の材料開発と流動解析の基礎データをなす材料特性を明らかにする。

本論文は、序章と総括含めて 3 部全 8 章から構成される。

第 1 章 序論では、プラスチックの置かれている世界情勢を説明し、解決法として、環境調和型技術であるバイオプラスチックと、パルプモールドに代表される紙基材の成形加工技術を紹介した。両技術の持つ高コスト、大量の淡水を要するなど課題に対し、PIM 技術の持つ可能性ならびに克服する課題を明らかにし、本論文の目的を述べた。

第 I 部では、PIM 材料と成形品の基本特性を明らかにし、材料組成が成形品特性に与える影響について評価することを目的とした。

第 2 章では、PIM 材料は、内包する水分により水溶性結合剤の硬さ（粘度）が変化するが、流動中は高温に保持されているため、材料表層部が限定的に乾燥することが予想されていた。そこで PIM における成形材料の流動特性を明らかにするため、バーフロー形状の流動性評価金型を新たに作製し、金型温度、水分率、材料成分等の流動特性に与える影響について評価実験を行った。また、成形品の基本特性を評価し、成形品内部構造の観察、環境湿度と機械的諸特性との相関解析、吸水性の評価実験をそれぞれ実施した。

第 3 章では、材料組成の違いによる機械的特性の変化や成形品に及ぼす影響について調査した。原料のパルプ繊維の種類や水溶性結合剤の澱粉・PVA の組成を変化させることによって、PIM 成形品に与える影響を引張強さ特性の評価実験を通して系統的に検討を行った。また、成形品内部に生成される空隙が材料組成によりどの様に変化するかについて、X 線 CT による空隙形状、数量分布、体積を定量評価し具体的に明らかにした。

第 II 部では、PIM 成形材料の金型内充填挙動の解明を目的とした。

第4章では、PIM材料がどのように金型内に充填するかを解明するために、新たに静的可視化手法である着色マーキング法を提案した。同手法はPIM材料が金型内を流動する様子を、金型表面に塗布したマーカの成形品面への付着と、その後の流動軌跡として、成形品に記録させるもので、流動変化を捉えることが可能になった。流動途中に単純な肉厚変動領域を設けた矩形キャビティで、成形不良現象の発生条件を系統的に調査し、材料流動挙動と成形不良現象との相関ならびにそれらの生成機構の解析を行った。

第5章では、ガラスインサート金型を使用して、高速ビデオカメラでPIM材料流動の動的可視化観察を行った。ゲートからフローフロントまでの距離、シボ粗さ、材料水分率の3項目を変化させ、それぞれの材料充填挙動の変化について、動的可視化解析と画像解析を用いて検討を行った。さらに表皮一体成形による成形品表面への紙・布のインサート成形を行い、材料流動挙動の変化と内部断面観察を行い、成形品内部状態との相関を調査した。

第Ⅲ部では、PIMの実成形における課題として、計量過程安定化とサイクル短縮について検討し、今後の材料開発での材料成形性評価に必須となる粘度測定法を提案する。

第6章では、計量過程の安定化について、スクリュ形状および成形材料の形状について検討を行った。PIM成形材料は、ペレタイズ加工を行わない不定形材料から計量時間短縮と安定化を目的としたペレット化の検討を行い、同時にペレット材料に最適なスクリュ形状を探索した。また成形時間の短縮の検討を行った。成形サイクル全体の70%程度を占有する乾燥工程の短縮化を課題として、金型開閉動作の金型開閉条件、材料水分、金型温度の影響について調査した。さらに、成形品の水分率を計測し、金型開閉動作による乾燥遷移過程のモデルおよび最適な金型開閉の最適条件を明らかにした。

第7章では、PIM技術のさらなる深化のために今後必要となる、材料の流動指標としての粘度特性評価法を新たに提案した。粘度測定時に水分を蒸発させない密閉構造の成形機上の粘度特性評価装置を作製し、各種成形材料の特性評価を行った。材料温度変化、水分率の変化、材料組成の変化について、それぞれの粘度特性について相対的に比較検討を行った。

第8章では、各章で得られた結論をまとめるとともに、使い捨てプラスチックと海洋ゴミ排出による生態系への影響を軸に、プラスチック成形工業界の動



向と新たな潮流について検証した。最後にPIM技術の今後の展望について述べ、本論文の締めくくりとした。

# 目次

---

第1章 序論.....	5
1.1 研究の背景.....	6
1.1.1 プラスチック生産量の推移.....	6
1.1.2 太平洋ゴミベルトとプラスチックリサイクルの現状.....	7
1.1.3 気候変動に与える影響.....	10
1.1.4 環境問題を解決できる可能性を有した素材.....	10
1.2 バイオプラスチック材料と成形加工.....	12
1.2.1 バイオプラスチック材料.....	12
1.2.2 バイオプラスチックの成形加工.....	14
1.3 紙基材を用いた材料と成形加工.....	16
1.3.1 紙基材を用いた材料.....	16
1.3.2 紙基材の成形加工.....	16
1.4 パルプ射出成形(PIM)とは.....	20
1.4.1 パルプ射出成形の成形プロセスと一般的な成形品特性.....	20
1.4.2 PIM 開発の経緯.....	25
1.5 PIM の課題.....	27
1.6 研究目的と本論文の構成.....	29
第2章 PIM 成形材料の流動特性と成形品特性の評価.....	33
2.1 緒言.....	34
2.2 実験方法.....	35
2.2.1 流動特性の計測.....	35
2.2.2 成形品の特性評価.....	38
2.3 実験結果および考察.....	39
2.3.1 バーフロー金型流動特性の計測.....	39
2.3.2 金型温度および水分率の影響.....	42

2.3.3 澱粉種類およびゲート形状の影響 .....	43
2.3.4 成形品の内部構造 .....	44
2.3.5 湿度および水分による成形品特性の変化 .....	46
2.4 結言 .....	50
第3章 材料組成の成形品機械的特性に及ぼす影響評価 .....	51
3.1 緒言 .....	52
3.2 実験方法 .....	53
3.2.1 成形条件と成形材料 .....	53
3.2.2 強度試験 .....	55
3.2.3 吸水変形量測定 .....	55
3.2.4 内部空隙観察(X線CT) .....	56
3.3 実験結果および考察 .....	58
3.3.1 繊維長, PVA 配合率と強度の関係 .....	58
3.3.2 各材料と内部空隙生成の様子 .....	61
3.3.3 内部空隙と吸水変形量 .....	63
3.4 結言 .....	68
第4章 金型内流動挙動の静的可視化解析 .....	69
4.1 緒言 .....	70
4.2 実験方法 .....	71
4.2.1 パルプ射出成形における着色マーキング可視化手法の提案 .....	71
4.2.2 成形条件と実験測定方法 .....	74
4.3 局所肉厚増加領域 A における流動挙動 .....	76
4.3.1 ラインマーキング方法と実験条件 .....	76
4.3.2 リブ領域の流動挙動 .....	76
4.3.3 局所肉厚増加領域の流動モデル .....	80
4.4 局所肉厚減少領域 B における流動挙動 .....	82
4.4.1 ポイントマーキング方法と実験条件 .....	82
4.4.2 溝領域の流動挙動 .....	82
4.4.3 矩形穴部近傍の流動モデル .....	87
4.5 結言 .....	90
第5章 金型内流動挙動の動的可視化解析 .....	92
5.1 緒言 .....	93
5.2 実験方法 .....	94

---

5.2.1 可視化観察用の金型 .....	94
5.2.2 観察方法 .....	97
5.2.3 成形条件と成形材料 .....	100
5.3 実験結果と考察 .....	102
5.3.1 金型内材料充填挙動の動的可視化解析 .....	102
5.3.2 表皮一体成形における金型内材料充填挙動 .....	106
5.4 結言 .....	110
第6章 計量安定化と成形サイクルの短縮 .....	112
6.1 緒言 .....	113
6.2 計量過程の安定化 .....	114
6.2.1 実験方法 .....	114
6.2.2 スクリュの形状因子の影響 .....	116
6.2.3 成形材料の形状因子の影響 .....	119
6.3 乾燥工程の最適化 .....	120
6.3.1 実験方法 .....	120
6.3.2 乾燥過程における型開き量の経時変化 .....	122
6.3.3 型開き量経時変化に及ぼす金型温度の影響 .....	124
6.3.4 水分率の降下曲線 .....	126
6.3.5 型開きモードの最適化 .....	127
6.4 結言 .....	129
第7章 成形材料の粘度特性の計測 .....	130
7.1 緒言 .....	131
7.2 実験方法 .....	132
7.2.1 粘度特性評価装置 .....	132
7.2.2 実験条件 .....	135
7.2.3 みかけ粘度の算出 .....	136
7.2.4 計測結果及び考察 .....	137
7.3 結言 .....	142
第8章 総括と今後の展望 .....	143
8.1 本論文で得られた主な結論 .....	144
8.1.1 第I部で得られた主な結論 .....	145
8.1.2 第II部で得られた主な結論 .....	146
8.1.3 第III部で得られた主な結論 .....	147

8.2 本論文で得られた成果の学術的評価と工業的活用法 .....	149
8.2.1 第I部.....	149
8.2.2 第II部 .....	149
8.2.3 第III部 .....	150
8.3 PIM の実用化事例と課題 .....	153
8.4 PIM の可能性と今後の展望 .....	157
8.4.1 環境負荷低減への世界的な動向 .....	157
8.4.2 PIM の特性を活かした開発 .....	159
参考文献（五十音順） .....	163
本論文に関する公表文献.....	173
謝辞.....	178

---

---

# 第1章 序論

---

1.1 研究の背景.....	6
1.1.1 プラスチック生産量の推移.....	6
1.1.2 太平洋ゴミベルトとプラスチックリサイクルの現状.....	7
1.1.3 気候変動に与える影響.....	10
1.1.4 環境問題を解決できる可能性を有した素材.....	10
1.2 バイオプラスチック材料と成形加工.....	12
1.2.1 バイオプラスチック材料.....	12
1.2.2 バイオプラスチックの成形加工.....	14
1.3 紙基材を用いた材料と成形加工.....	16
1.3.1 紙基材を用いた材料.....	16
1.3.2 紙基材の成形加工.....	16
1.4 パルプ射出成形(PIM)とは.....	20
1.4.1 パルプ射出成形の成形プロセスと一般的な成形品特性.....	20
1.4.2 PIM 開発の経緯.....	25
1.5 PIM の課題.....	27
1.6 研究目的と本論文の構成.....	29

---

## 1.1 研究の背景

### 1.1.1 プラスチック生産量の推移

プラスチックは、我々の生活に不可欠な素材となっている。その歴史は、1868年に、植物のセルロースを原料とするニトロセルロースに樟脳を加えたセルロイドが、初めて工業化に成功したことに始まる。これは半合成プラスチックになるが、プラスチック初の工業生産の成功であった。1872年には、世界初の人工合成樹脂であるフェノール樹脂(ベークライト)の工業化がなされ、その後も多岐用途に適用できる様々な合成樹脂が開発された。プラスチックは易加工性、軽量、耐蝕性等に優れていることから、年々急速に使用量が増加している。プラスチックの生産量の推移を図 1.1 に示す。プラスチックの生産量は、1950年は200万 ton だったが、2015年には3.22億 ton、2016年では約3.35億 ton 生産されている。65年間で160倍、2015年対比2016年の生産量増加率は約4%となり、今後も継続して増加の一途をたどっており、このペースで増加を続けると2030年には7億 ton に達すると予想されている。

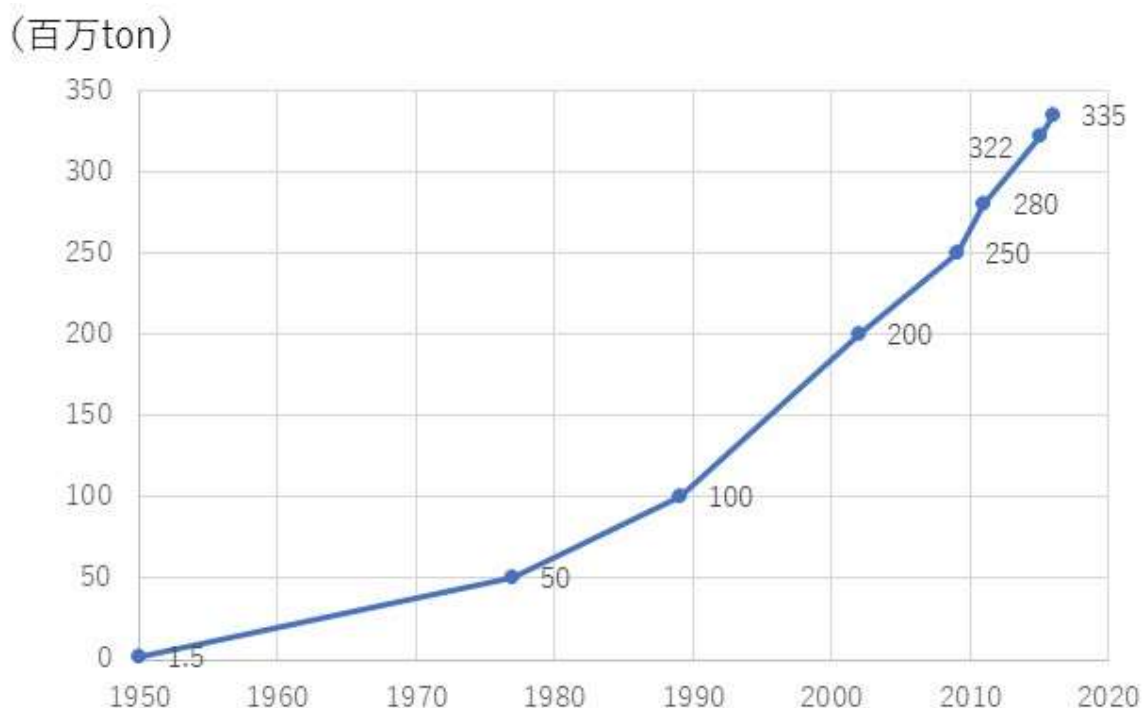


図 1.1 世界のプラスチック生産量 1950～2015 年

### 1.1.2 太平洋ゴミベルトとプラスチックリサイクルの現状

2015年9月国連総会で持続可能な開発目標(SDGs)を中核とする「2030アジェンダ」が採択された。これは17の目標と169のターゲットからなり、プラスチック業界では特に「12.つくる責任つかう責任」の中の「12.2天然資源の持続可能な管理及び効率的な利用」, 「12.5廃棄物の発生を大幅に削減」について検討していく必要に迫られている[国連広報センター 2017].

太平洋ゴミベルトと呼ばれる、地球規模の海洋汚染問題が存在している。アルガリタ海洋研究財団チャールズ・ムーアの論文[Moore 2012]ではハワイから帰る航海で、海上に漂う、テキサス州の面積より大きなゴミの浮き島を発見した。これは浮遊したプラスチックなどの破片が北太平洋循環の海流に閉ざされて、プラスチックゴミが異常に集中しているのが特徴の海域のことである。このゴミは波や日光により細かく破片まで分解されて行くが、海洋生物が誤って食べてしまい消化されないため食事を取ることが出来ず死んでしまうケースを引き起こし、さらに分子レベルにまで細かく分解されたプラスチックは魚に取り込まれ濃度圧縮されて、食物連鎖に組み込まれていく過程でホルモン異常を発生させる可能性がある。

プラスチックは消費後のスキームについての構築の遅れが目立っている。日本ではプラスチック廃棄物の少なかった1950年代は主に埋め立て処理がなされてきたが、高度経済成長期には、廃棄物の量が大きく増加して大部分が焼却処理されるようになった。しかし焼却炉の灰や残渣からダイオキシンが発見されると、塩素源となるポリ塩化ビニルを含むプラスチックは「燃やしてはいけないゴミ」に指定された。ただし高温で焼却できる焼却炉が普及するとプラスチックは「燃やしてもよい」となり、容器包装リサイクル法が施行されるとプラスチックは「リサイクルすべき資源」とみなされるようになった。しかし、一般市民にとってプラスチックとは身近にあるものすべてを指しており、プラスチックのリサイクルに対する認識が混乱していると予想され、プラスチックのリサイクルが徹底されていない要因となっている。

有機化合物であるプラスチックのリサイクルの手法を整理すると、①マテリアルリサイクル：廃プラスチックを溶かし、もう一度プラスチック原料やプラスチック製品に再生する方法、②サーマルリサイクル：廃プラスチックを焼却して熱エネルギーを回収し発電などに用いる方法、③ケミカルリサイクル：廃プラスチックを化学的に分解するなどして化学原料に再生する方法、がすでに提案されている[西村 2018]。しかしプラスチックは原油からナフサを分離し化学合成にて重合する過程でエネルギーのほとんどが投入されているため、サーマルリサイクルはエネルギーを最も無駄にする使い方となる。次点でケミカルリサイクルがあるが、元の分子レベルにまで一度分解する必要があるため、サーマルリサイクルと同様の理由でエネルギーロスが大きい。よってマテリアルリサイクルが一番有効なリサイクル法(使い方)であるため、取り組



みの強化が求められる。そのためには、まず分別を必ず行い、使用者がリサイクル資源として認識し理解する必要があること、廃棄物を生産しているというモラル醸成が必要不可欠であると考えられる。現在日本では、廃プラスチックを 2015 年に 915 万 ton 排出し、205 万 ton がマテリアルリサイクルされている。しかしこのうちの 70%は海外へ輸出されている(図 1.2)[プラ循環利用協会 2015]。また、廃プラスチックの 57%はエネルギー回収がなされているが、エネルギー利用効率は非常に低く、また 17%は埋め立てあるいは単純焼却されている。すなわち日本では未だ 74%ものプラスチックが最終的に焼却、埋め立て処理されているのが現状である。

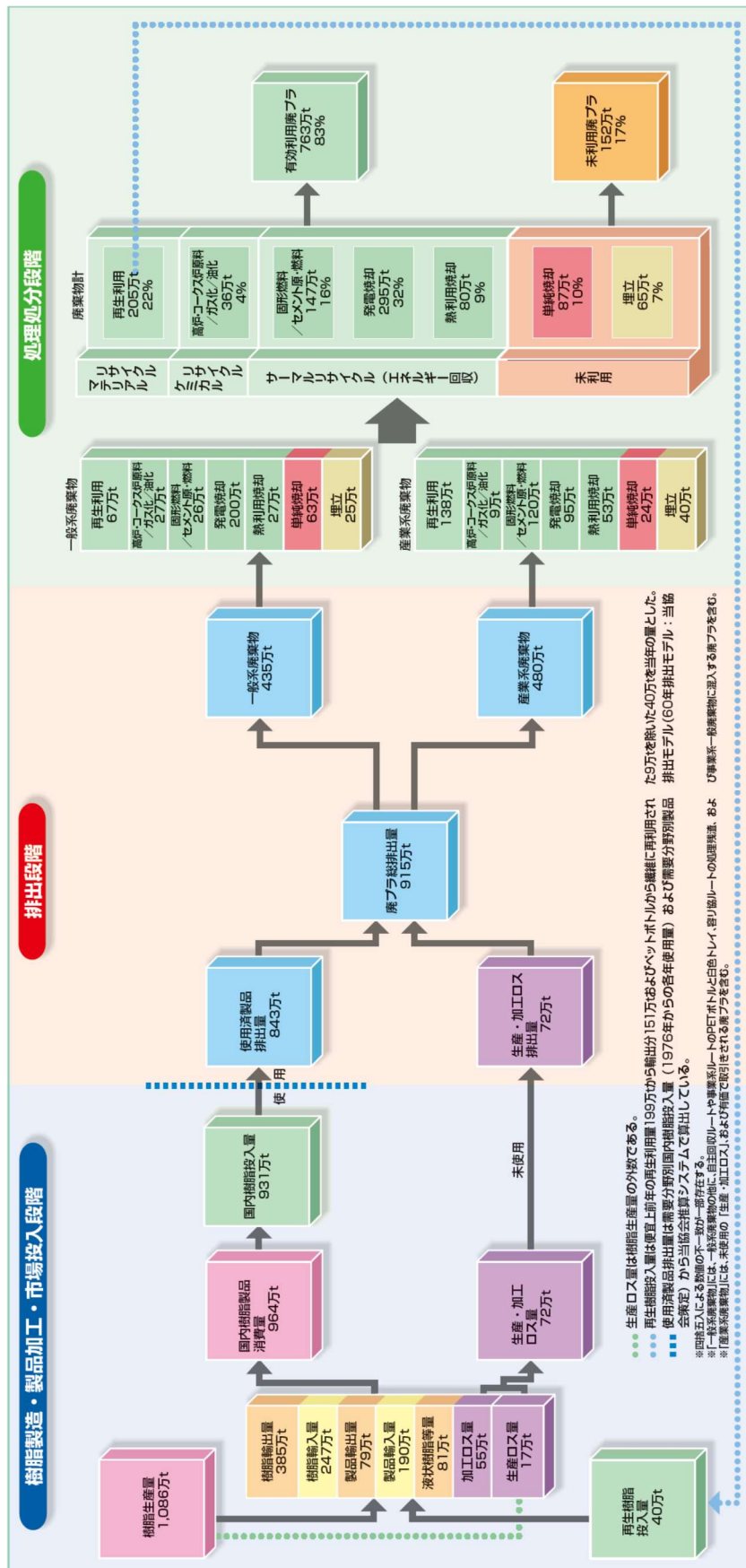


図 1.2 プラスチックのマテリアルフロー図(2015年) [プラスチック循環利用協会 2015]

### 1.1.3 気候変動に与える影響

プラスチックが抱えるもう一つの課題は、原料として過去に閉じ込められた化石資源(原油)を採掘して使用していることである。これはプラスチックを成形加工し、廃棄するときに焼却やエネルギー利用を行う過程で、その多くが大気中に CO<sub>2</sub> として放出されるためである。人間の便利な消費活動の中で CO<sub>2</sub> は容易に生成・排出される。事実、大気中の CO<sub>2</sub> 濃度は産業革命前の 280 ppm が、わずか数百年後の現在までに 405.5 ppm に上昇している[WDCGG 2018]。以上のような急激な大気組成の変更を主要因として、世界の平均気温が 1880 年代から現在まで 0.85°C の上昇が確認されており、IPCC によれば、21 世紀末までに世界の平均気温は 2.6~4.8 °C 上昇すると予測されている。2016 年 11 月のパリ協定では、産業革命前からの世界平均気温の上昇を 2°C より十分下方に抑える「2 °C 目標」に日本も批准しており、社会的な課題としてプラスチックの使用を抑制する必要性に迫られた。

### 1.1.4 環境問題を解決できる可能性を有した素材

以上のことから、プラスチックに関わる業界の「継続的な開発目標」に沿ったアプローチとしては、ゴミを出さない、ゴミを出しても環境に影響を与えない（与えにくい）、化石資源はなるべく使用しない、使用しても燃焼して CO<sub>2</sub> を発生させない、が挙げられることとなった。これらを解決でき、便利で安価で実現性の可能性が大きい素材として、バイオプラスチックと紙基材の使用が考えられている。

バイオプラスチックは、1980 年代のプラスチック廃棄物が深刻な時期に、ゴミ問題の解決法の一つとして提案され、まず微生物の作用により最終的に水と二酸化炭素にまで分解する生分解性プラスチックについて、活用の検討が始まった。1980 年代後半には英国 ICI 社が、微生物産生系の生分解性プラスチックとして知られていたポリヒドロキシアルカノイックアシッド(PHA)の工業生産を開始し、一挙に関心が高まった[Martin 2017]。その後 2002 年に、化石資源を使用せずに、植物の澱粉を発酵させて原料とするポリ乳酸(PLA)が、米国 NatureWorks 社で工業生産され始め、世界的に使用可能な状況となった。

紙基材は、樹木を原料とし粉碎チップ化し、脱リグニン工程を経てパルプ繊維に加工され使用されている。樹木はその成長過程で、大気中の CO<sub>2</sub> を吸着固定し、自らの体の一部としていることは一般的に知られている。紙を燃焼したときに発生する CO<sub>2</sub> は、もともと大気中から固定されたものであるため、大気中の CO<sub>2</sub> 濃度を上昇させないとされている。これをカーボンニュートラルと呼ぶ（ただし古紙パルプは、脱墨と再生紙化に電力を使用するためカーボンニュートラルではない。）。紙基材の利用は古く、文字や絵画の記録、包装、梱包容器として使用されていたが、プラスチックにそのシェアを奪われてきた。しかしここに来て、環境性の面から見直しが図られてい

る。EU では再利用できないプラスチック梱包容器を 2030 年までゼロにする方針が出され、米国の大手携帯端末メーカーでは梱包容器に使用されているプラスチックを紙にする方針が提示されている。

紙基材の成形加工には、古くから筆記記録媒体として発展してきた歴史があり、シート形態の生産を重視してきた。その加工法は、パルパーと呼ばれる装置にてパルプ繊維を大量の熱水の中に分散させた後、パルプのみを網ですくい上げて脱水、乾燥、(コーティング)、巻取りする。以上の一連の工程は抄紙機という装置により行われ、工業生産がなされている。紙基材の成形加工は、このシート形態の材料を用いてクラフトする方法がもっとも知られている。簡易なものでは折り紙や切り貼り加工をする。また、商品輸送時に欠かせない梱包箱として、ダンボールシートを刃物にて切り抜き、組立を行っている。しかし紙基材においても、自由に 3 次元立体加工する技術が要望され、それによって開発された技術がパルプモールド技術で、一般に鶏卵外装箱や電気製品の内容物保護の目的で作製されている。

次節では、まずバイオプラスチック材料及び、紙基材を用いた材料の各種成形加工についてその特徴を整理する。次に自由に 3 次元立体加工する技術として、本論文での研究課題である **Pulp Injection Molding** (以下、**PIM** と略記) 技術について、開発の沿革と工程概略、技術課題を説明した後、本論文の具体的な研究目的と構成について述べる。

## 1.2 バイオプラスチック材料と成形加工

### 1.2.1 バイオプラスチック材料

日本バイオプラスチック協会によると、バイオプラスチック材料には以下の2種類があり、これらの環境配慮素材を総称して「バイオプラスチック」とすることが定義付けされている[日本バイオプラ協会 2018].

- ① 生分解性プラスチック・・・通常の使用時にはプラスチックとしての性能・物性を保ち、使用后・廃棄時に微生物の働きにより分解し、最終的には水と炭酸ガスに変化するため、環境負荷低減が期待される.
- ② バイオマスプラスチック・・・従来の石油化学によるプラスチックと異なり、再生が可能な有機資源を原料に、日常生活に利便性を与える有用なプラスチックを持続的に作ることで、枯渇性の化石資源の使用縮減に貢献できる.

通常のプラスチックとバイオプラスチックを分類したものを、表 1.1 に示す. この表より、プラスチックと環境性という点で整理すると、4 カテゴリーに分類されることが理解される. 「通常のプラスチック」は第4象限であり、「生分解性プラスチック」は第1,2象限、「バイオマスプラスチック」は第1,3象限であることを示している[岩田 2010].

生分解性プラスチックの最大の特徴は「生分解性」という機能を有していることであり、出発原料がバイオマスでも石油でも良い点に利点がある. 「バイオマスプラスチック」は生分解性を有していなくても、出発原料がバイオマスであることが重要である.

しかし、現状ではバイオプラスチックはプラスチックと代替されておらず、日本では通常プラスチック使用量の 0.1%程度の採用に留まっている. この大きな理由は、1番に材料単価が高いことが挙げられる. 一般的なバイオプラスチックは 1000 円/kg 程度であり、汎用樹脂と比べ 2~5 倍差がある. 欧州では炭素税、プラスチック税が検討されており、プラスチックの使用にハードルが設けられつつあり、今まさにバイオプラスチックの使用が進められようとしている. しかし、日本では産業の縮小に対する懸念から炭素税等の検討が進まず、バイオプラスチック材料の価格差を解消するには至っていない.

バイオプラスチックについて、天然高分子である澱粉を材料として使用して成形加工する手法が検討されている. キャッサバ澱粉を PVA などの生分解性樹脂と混合しプレス加工する手法[Aungsuma 2011]やアルギン酸ナトリウムとの複合体を射出成形する研究[Chayapa 2015]が行われている. また天然繊維と複合させて成形加工する研究

[Penlapus 2007]が挙げられる。微生物生産系の材料としては古くから知られている脂肪族ポリエステル[岩田 2010]や、化学合成によるバイオベース材料である生分解性ポリアミド4 (PA4)[中山 2018]等は、いままでの土壌分解に加え、海水中分解性を検証する必要性が加えられたため、現在研究が進められている。

また 100%バイオプラスチックではなく、部分的にバイオマスであるという考え方の材料も開発されている[James 2006] [Omar 2012] [Pickering 2016]。例えば、天然繊維強化ポリプロピレン[森井 2011] [Omar 2013]はプラスチック材料使用量を低減でき、低環境負荷につながる材料として販売が行われている。トヨタ自動車ケナフ[永谷 2014] [Murdani 2015]を、三菱自動車が竹繊維を強化材として活用した事例が見られる[寺澤 2008] [大島 2014] [Mastura 2017]。しかしこれらは2種類の原料が混練され、プラスチックのみを分離は困難である。そのため基本的には紙にもプラスチックにもリサイクルできず、廃棄された場合は焼却処分をしなければならない。また、同系統の検討事例に、近年 NEDO のプロジェクトに採択されているセルロースナノファイバー (CNF)がある[Kristiina 2016]。プラスチックに1~10%添加して弾性率[Sakurada 1962]と強度[Saito 2013]の上昇を狙ったもので、対象となるプラスチックにポリエチレン[矢野 2012]やナイロン[伊藤 2012]、ポリ塩化ビニル(PVC)、アクリル(PMMA)、ポリスチレン(PS)等、多くの熱可塑性樹脂[Dufresne 2017]が検討されている。CNFはナノフィラーとしての作用を期待して研究が進められている。CNFは樹木を原料としているが、添加量としては非常に少なく、その目的としては繊維強化樹脂という機械的強度向上の位置づけのため、バイオプラスチックからは一般に除外されている。

次に現実的に使用可能なバイオプラスチックを紹介する。石油原料系のポリブチレンサクシネート(PBS) [Lui 2009] [Nobile 2018]とバイオマス系のポリ乳酸(PLA) [Hamad 2015] [Nagarajan 2016]の2つで、両者とも生分解性を有し、市場に比較的多く投入されており入手が容易である。

PBSは、ビオノーレ(昭和高分子株、現グリーンプラ株)やルナーレ SE(株日本触媒)という商品名で販売されている。原料は石油から合成されており(一部では原料のコハク酸を植物由来にする研究が行われている[Patent 2011b])、特徴としては、これまでに積み上げられた石油化学の技術を使用できるため、安定生産が可能である。物性面でもポリエチレン(PE)と近似しており、半透明で弾力性を有しているため、PEやPPの代替材料として期待されている。また、従来の石油化学のノウハウを使用できることから、様々なグレードを用途別に作製可能としており、容易に置換が進む可能性を秘めている。しかし現時点での課題としては、大量生産が行われていないために1000~1400円/kgとなお価格が高いことが挙げられる。

PLAは、穀物メジャーであるカーギル社(Cargill, Incorporated)とグローバル化学会社のダウケミカル社(The Dow Chemical Company)が共同でNatureWorks社を立上げ、大量生産のためのプラント(年産14万ton)を2002年に建設を行った。ただし、エンド

ユーザーが使用できる環境を整えたものの、予想された出荷量までには届かなかった。この大きな要因は、上記同様に発売当初から価格が 1000 円/kg 以上あり、一時期 400 円/kg まで下落したが、2017 年現在は 970 円/kg と再び高値を付けている。また、通常プラスチックに対して脆く、耐熱温度が低いという課題が普及の足かせとなった。それとは別に、バイオマス原料としての糖質をコーンスターチに頼っているため、食糧との競合が大きな課題となった。近い将来、非可食バイオマス原料への転換が求められるため、農業廃棄物である稲わらや茎のセルロースを原料とした手法の開発が進められている。

PBS と PLA の課題を表 1.2 に整理した。PBS, PLA は現状では、価格の面で高いが、使用が進めば解決出来る可能性がある。しかし、作製するロットも小さいため、ロット間のバラつきが大きく、流動性や機械的特性が安定しないという大きな課題がある。PLA に関しては、特に食糧利用との競合が生まれるため、慎重に取り扱うべきである。

### 1.2.2 バイオプラスチックの成形加工

非生分解性バイオマスプラスチックは基本的に既存の樹脂と分子構造が同じなので、特に成形性に影響はないと考えられる。一方、生分解性プラスチックに関しては、現在主に流通している PBS は、流動性が良く固化が遅い材料で、バリが発生しやすく金型に張り付きやすい傾向にあるが、この点に留意し使用すれば、従来の結晶性樹脂 (PE, PP) と同様に使用できる。一方 PLA は、耐熱性が低く、ホッパー下のスクリュ温度が上昇するとスクリュ溝内に材料が張り付いて供回りをし始め、いわゆるメルトプラグ現象による計量不能を引き起こし易い。またポリカーボネイト(PC)並みの高粘度特性により流動性が悪く、大きな射出圧力を要する。さらに最も大きな問題点として、結晶化速度が遅いことによる冷却時間の長期化が挙げられ、それに伴い収縮率が大きく変化して型内からの成形品の取出しに影響をもたらすことが知られている。これらの安定化が改善される必要がある。

しかし近年では、ポリ乳酸製品を結晶化促進技術により耐熱温度を上昇させ、発泡成形を用いて断熱性を持たせたり [Patent 2011], 軽量化・薄肉化についても超臨界流体を応用し流動性を大幅に上げて改良したりするなど、多様な射出成形技術群が開発されている [小松 2018a] [小松 2018b]。

表 1.1 プラスチックの分類[岩田 2010]

原料	バイオマス	石油
生分解性	生分解性バイオマスプラスチック <ul style="list-style-type: none"> <li>・ポリ乳酸</li> <li>・微生物産生ポリエステル</li> <li>・ポリアミノ酸</li> <li>・化学修飾多糖類（低置換度）</li> </ul>	生分解性石油由来プラスチック <ul style="list-style-type: none"> <li>・ポリカプロラクトン</li> <li>・ポリブチレンサクシネート</li> <li>・芳香族導入ポリエステル</li> <li>・ポリビニルアルコール</li> <li>・ポリグリコール酸</li> </ul>
非生分解性	非生分解性バイオマスプラスチック <ul style="list-style-type: none"> <li>・セルロースエステル（高置換度）</li> <li>・ポリテトラメチレンテレフタレート</li> <li>・ポリウレタン</li> <li>・バイオポリエチレン</li> <li>・バイオポリプロピレン</li> </ul>	非生分解性石油由来プラスチック <ul style="list-style-type: none"> <li>・ポリスチレン</li> <li>・ポリエチレンテレフタレート</li> <li>・ポリ塩化ビニル</li> <li>・ポリエチレン</li> <li>・ポリプロピレン</li> </ul>

表 1.2 PLA と PBS の課題

原料	PLA	PBS
課題		
原料	<ul style="list-style-type: none"> <li>・バイオマス資源は化石資源と違い、広く薄く分布しているため集積化が困難</li> <li>・水を多量に含んでいる</li> <li>・サトウキビ・トウモロコシが原料食糧利用との取合いが懸念される</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・化石燃料使用による環境汚染</li> </ul>
製造法	<ul style="list-style-type: none"> <li>・大量生産ではないため通常プラスチックよりもコスト高</li> <li>・プラントはあるが、製造法としては食糧との取合いがあるため研究中</li> <li>・様々なグレードも研究中</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・大量生産ではないため通常プラスチックよりもコスト高</li> </ul>



## 1.3 紙基材を用いた材料と成形加工

### 1.3.1 紙基材を用いた材料

紙基材の材料は、バイオマス資源である樹木や多年草などの植物から繊維状のものを取出し、原料として使用したものと定義する。パルプは、樹木を原料としており、その成長過程で大気中の CO<sub>2</sub> を取込み、炭素を自己の内部に固定するため、廃棄時に燃焼処理を行ったとしても、大気中の CO<sub>2</sub> 濃度を上昇させないと言われている。このカーボンニュートラルの考え方により、植物を用いた原料や素材は廃棄時の環境適合性を有していると判断されている。

紙はパルプを原料に製造されるが、その歴史は古く、紀元前 2 世紀に中国で発明された。その後紀元 105 年頃に蔡倫が現代につながる最初の製紙法に改良した。紙は筆記記録媒体としての要求を満たしてきたため、その製造工程は平面のシート形態を作製することに最適化されている。

### 1.3.2 紙基材の成形加工

3 次元立体構造物作製への欲求は強く、シート形態を加工する方法で紙に立体形状を持たせて来た。いわゆる折り紙や切り貼り組立てという手法である。それ以外、工業的に 3 次元立体構造部を得る手法として、パルプモールド法が挙げられる。パルプモールド法の歴史は 1940 年代に装置[Patent 1939]や金型[Patent 1940]に関する特許が米国で取得されている。その製法は紙の製造法を踏襲しているが、アルミダイカストで作製した金型に多数の脱水孔を加工したものを使用し、離型のために 2 mm 間隔に組まれた格子網を金型の形状に合わせて被せた後に、パルプ繊維が分散した水を網の上(下)から充填させる。このときに金型側から吸引を行い、水を脱水させて(図 1.3)、パルプを金型の形状に沿って「ある程度」形状が固定される。その後、網から外して乾燥炉内で乾燥させて完全に形状を固定させる(図 1.4) [古紙利用 2007]。パルプモールド法でつくられた成形品は、鶏卵、青果物、工業製品用の緩衝材として主に使用されている。しかし、自由に収縮が発生するため成形品にシワが発生しやすい。また、表面性状の凹凸が大きいことや、寸法精度が低いことが問題点としている。この解決策として、最近ではパルプモールド法の乾燥工程を熱プレスに置き換える手法（ファインパルプモールド）[野々村 2004][佐藤 2008]が開発されており、この工法を使用するとシワや表面凹凸が減少し、なめらかな表面性状を得ることができ、寸法精度も上昇している。この工法で作製された携帯端末などの高価格製品の内部梱包素材として使用が増加している。しかし、紙やパルプモールド製造には多くの水と熱エネルギーが必要なことが大きな課題となっている。

2013 年にオランダの PaperFoam 社が開発した PaperFoam<sup>®</sup>[Patent 2015](商品名)は、バイオベースの材料を使用し射出成形加工で量産可能な技術として紹介されている

[Kostadinovic 2014] [Martien 2017]. この技術は、澱粉と紙と水を主成分とした泥漿状の材料をタンクから 2 気圧、20°C程度で金型内に射出成形し、金型内で 200°C以上に加熱、水分を乾燥させて軽量の高発泡体を得ることを目的としている。パルプ成分が少なく澱粉を主成分としているため、パルプ繊維に抑制されにくく気泡径も大きく発泡倍率が高くなっている。成形品としての強度は小さいものの、主に緩衝材用途として使用している。図 1.5 に成形材料と成形プロセスの概略図、表 1.3 に成形品特性の例を示す[PapreFoam HP].

大宝工業株は、パルプと澱粉と水による成形材料を射出成形し、汎用プラスチックレベルの強度を有する薄肉・精密・複雑な 3 次元形状の成形品を量産できる射出成形技術を世界に先駆けて開発し、1997 年に初の国内・国際特許を取得している[Patent 1999e]. この技術は、後に 2005 年にパルプ射出成形 (PIM : Pulp Injection Molding)として学会等に広く公表され、用語としても認知されている[先端成形 2012].

次節では、パルプ射出成形技術について、技術の詳細と開発の経緯、克服すべき課題について詳述する。

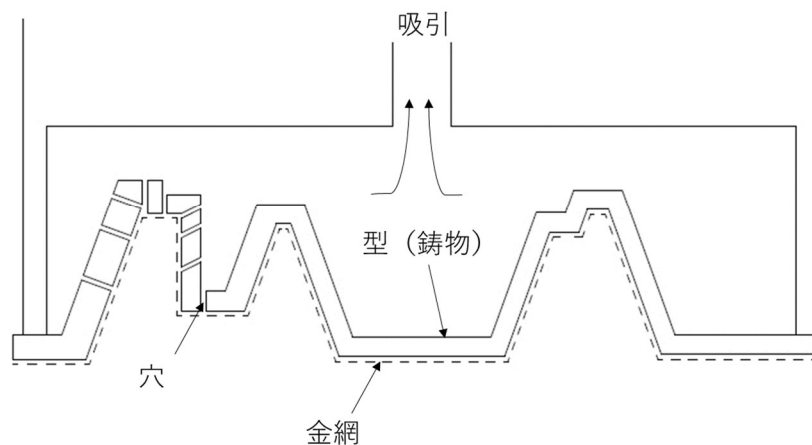


図 1.3 パルプモールドの金型と工程概略

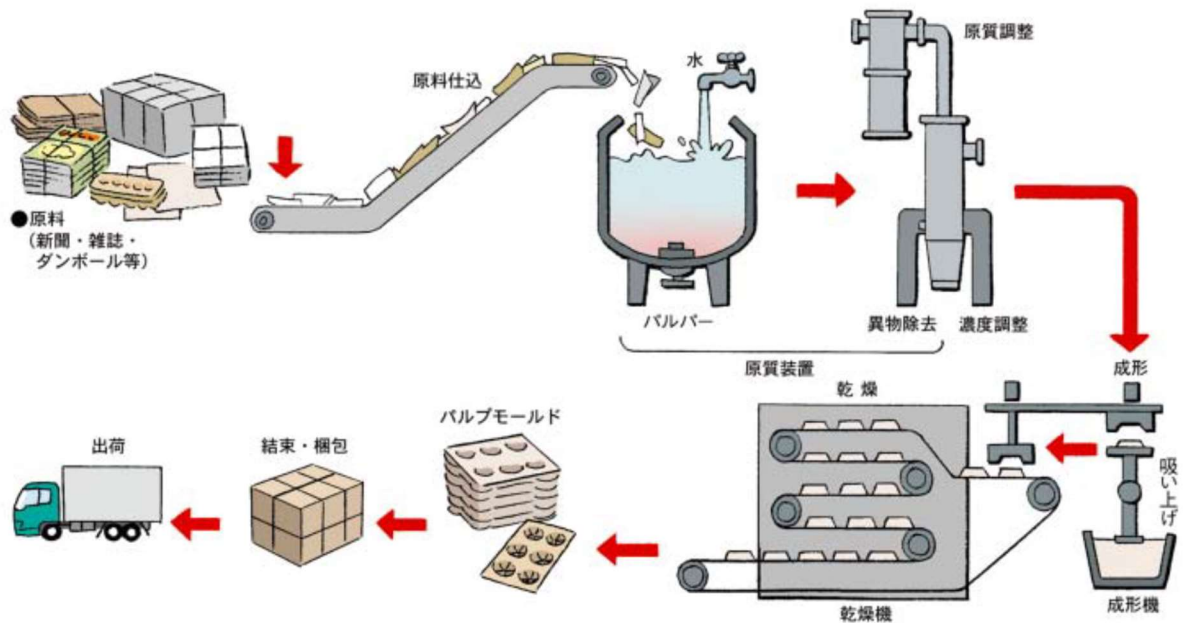
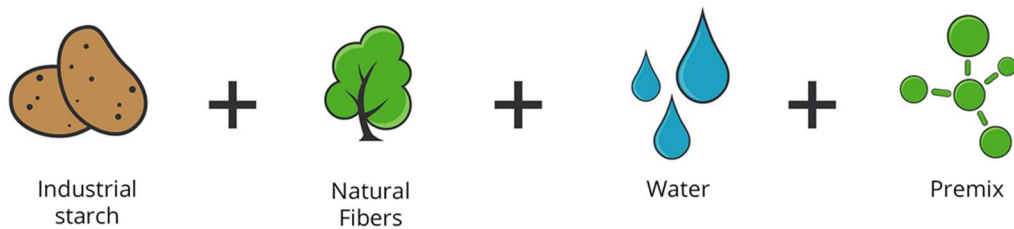
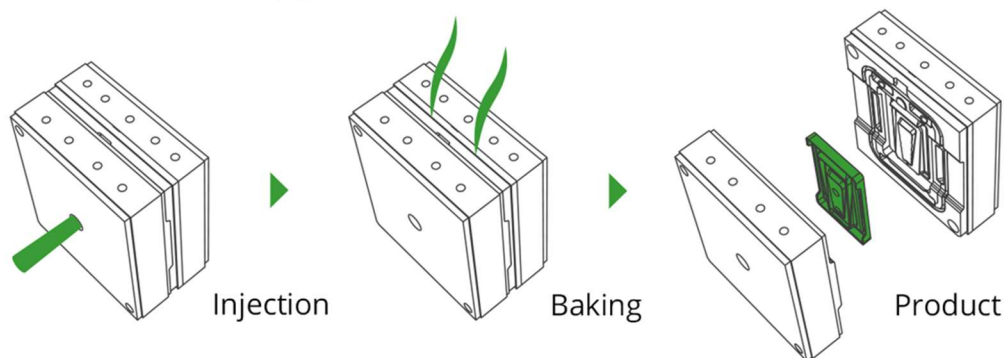


図 1.4 パルプモールド工程概略図[古紙利用 2007]



(a) 成形材料に使用している原料



(b) 成形加工プロセス

図 1.5 PaperFoam<sup>®</sup>の成形材料の原料と成形プロセス概略図[PapreFoam HP]

表 1.3 PaperFoam<sup>®</sup>の特性[PaperFoam HP]

1	比重が小さい
2	クッション性を保持
3	非研磨性（ポリ袋不要）
4	幅広い色が適用可能
5	詳細なエンボス加工とデボス加工
6	テクスチャ状の製品表面
7	射出成形を使用し製品形状に嵌合可能
8	摩擦嵌合、クランプ機構
9	スタック可能
10	インモールドラベリングによるヒンジ加工

## 1.4 パルプ射出成形(PIM)とは

### 1.4.1 パルプ射出成形の成形プロセスと一般的な成形品特性

パルプ射出成形の成形プロセスは、本研究が行われる前と比較すると、成果が反映されて大幅に変更されている。ここでは現在使用されているプロセスに基づき、成形プロセスの説明をする。

PIM 材料の組成は紙基材であるが、成形性や成形品品質のバランスからその組成比率は決められる。本論文の成果に基づいて得られた代表的な組成比は、パルプ；60 wt%，澱粉；30 wt%，PVA；10 wt% (poval PVA-117：(株)クラレ)である。この組成にパルプとほぼ同重量の水分と 80°C程度の熱を加えて物理的に混練する。水溶性結合剤が水分と熱により水系の糊に変化してパルプ同士を結着させることにより、ばらばらの素材が次第にまとまり成形材料となる。成形材料の形状は、混練したままのバルク状（不定形）か、それをさらに造粒したペレット状（定形）とすることが可能となる。以上の工程では、原料を無駄なく成形材料に転化することが可能なため、原料収率は 100%に限りなく近い値である。成形に使用するとき、この組成で作られた PIM 材料に対して水分の調整を行って、水分率を約 30~45 wt%に調整している。言うまでもなく、水分率以外の 65~70 wt%は上記した当初のパルプ、澱粉、PVA の組成比で構成されている。また、パルプ、澱粉、PVA の密度はそれぞれ 1.5 g/cm<sup>3</sup>、1.5 g/cm<sup>3</sup>、1.2 g/cm<sup>3</sup> であるため、絶乾状態での固体部分の体積比率も概ね当初の重量組成比と同等になっている。

次に、PIM 成形工程の概略を図 1.6 に示す。成形工程は基本的なプラスチック射出成形技術と同様であるが、プラスチック射出成形は成形機を用いて成形材料を「溶かす、流す、固める」を一連の操作で行っている。PIM では成形機を使用して成形材料を「軟化させる、流す、乾燥させる」を一連の工程として行うが、プラスチック同様にホッパーから材料を投入し、回転スクリュが後退する間にシリンダ先端部より前の領域（リザーバ領域）に材料を計量する。ホッパー側からスクリュ先端部に圧縮輸送する間に材料を 80~90°Cに昇温すると、材料に含まれる水溶性結合剤が水分と加温操作により軟化(糊化)する。糊化した粘性体がパルプ繊維同士の摩擦を軽減させるため、材料自体に可塑性を持たせることが出来る。次に計量された材料を金型内に射出充填する。材料に含まれた水分を乾燥させるため、金型温度は約 150~180°Cに加熱されており、さらに乾燥時に発生する水蒸気を外部に放出するために、金型の寸開閉動作を数回行っている。

一般的な樹脂成形では、金型キャビティに充填された材料の冷却固化にともなう体積収縮によりヒケ不良が発生するが、外部から材料を押し込み続けることで補填しようと保圧プロセス [佐藤 1996]が実施される(補償流動)。PIM 成形工程では、材料は金

型キャビティ内で乾燥が進み樹脂のように収縮が発生している。しかし、キャビティ中央部に発生した水蒸気が、乾燥・収縮した材料をキャビティ壁面方向に押し広げる力を発生させるためにヒケが発生しない。また、流路が狭まっているゲート部はすぐに乾燥して流路が閉塞されるため、ノズル側から保圧を付加しても効果は限定的となる。以上の理由により、PIM 成形プロセスには樹脂成形とは異なり、保圧プロセスを必要としない。

PIM 射出成形機を図 1.7 に、金型の外観写真の例を図 1.8 に例示する。一見すると、これらは汎用のプラスチック射出成形機と金型とほとんど同じであるが、シリンダ冷却ファンと型開閉機能の付与など、専用機としての改造がなされている。本論文で使用した成形機 NEX220-50EPI(日精樹脂工業株)の仕様を、表 1.4 に示す。また金型にも PIM ならではの多くのヒータが内蔵されている。

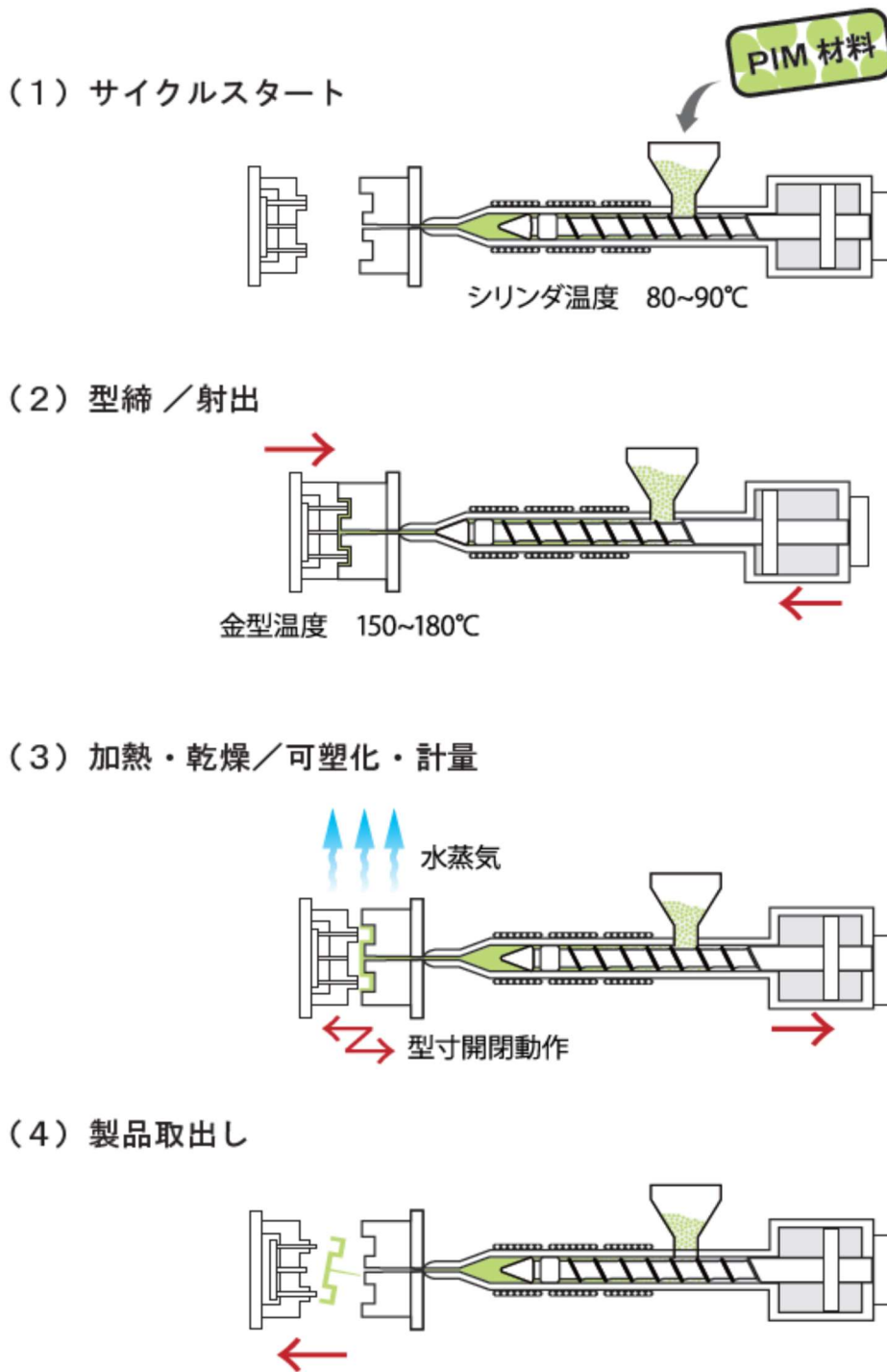


図 1.6 PIM 成形工程概略



図 1.7 使用射出成形機 NEX220-EPI (日精樹脂工業株)

表 1.4 使用した成形機の仕様

項目	数値	項目	数値
スクリュー径 (mm)	56	型閉めストローク (mm)	530
最大射出体積 (cm <sup>3</sup> )	505	使用金型厚さ (mm)	275~560
最大射出圧力 (MPa)	157	最大型開距離 (mm)	1090
型締力 (kN)	2160	タイバー間隔 [H×V] (mm)	590×590



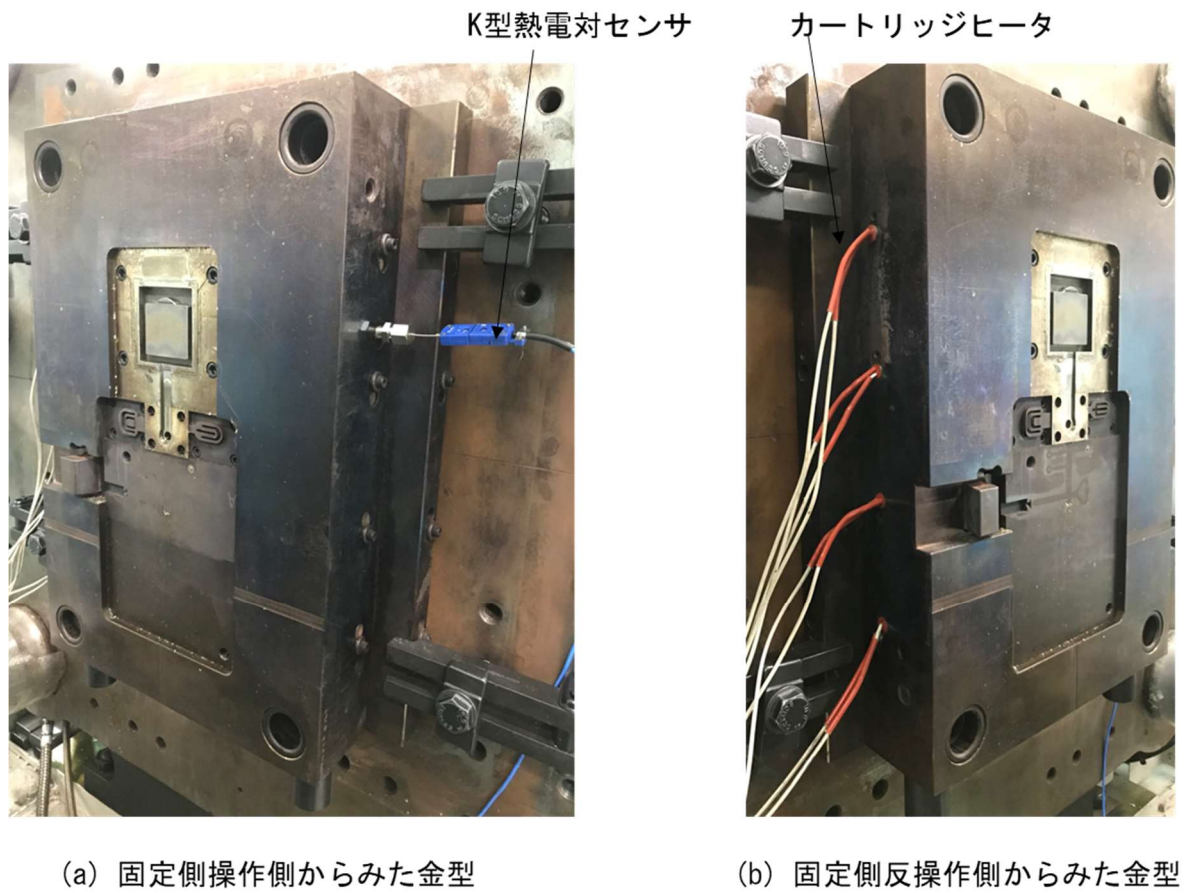


図 1.8 PIM 金型の外観写真

### 1.4.2 PIM 開発の経緯

パルプ射出成形の開発の最初の動機は、プラスチックの成形メーカーである大宝工業(株)が、当時地域から発生している大量の紙ゴミを見て、地域から出されるゴミを回収して、プラスチック材料の代わりとして使用し、製品として蘇らせて消費者に届けられないかという発想から始まっている。社外に公表された資料がないため、社内資料に基づき、PIM 開発の経緯を以下にまとめる。

開発当初は材料組成の見極めを行った。同社スタッフの上田、丸野らは大阪市工業研究所でプラストミルを借用し、新聞紙と澱粉を混合した材料に水分を加えて、混練を行った。そして同材料をラップで包み、電子レンジで加温しプレス機にて皿やトレイを作製した。このときに開発した加工法は、紙繊維を利用した製品の成形方法[特許 1999a]、紙繊維を利用した製品の成形材料[特許 1999b]、紙繊維を利用した製品の製造方法[特許 1999c]、紙繊維を利用した製品の成形方法およびそれに用いる金型[特許 1999d]、等の特許群として登録している。特に、金型については金型表面にシボがないと成形品にワレが多く発生し、成形が出来ないことに気がついたことが後の PIM 成形品品質の安定化に大きく貢献することになる。その後、材料を大量に安定的に作製するために、スーパーミキサーを用いて、原料を混合し、押出成形機を使って材料を押し出し後、乾燥させて粉碎機を用いて細かく砕いて成形材料とした。

成形では、プレス成形で得た知見を活かして、丸野らが当時社内で最も使用していた横型成形機を用いて、生産ができないか検討を開始していた。プレス成形時から理解されていた、成形品形状の固定化には材料の水分を外部に放出する動作が必要であるが、通常のプラスチック成形のように金型を閉じたままでは、効率的に実施できないため、金型の開閉動作を材料充填完了後に行うことを着想した。最初は手動で金型開閉動作を行い、後に当時の三菱重工業(株)と共に材料充填完了から型開きまでの間で金型の微少な開閉動作を数回行う工程を、共同で開発した[特許 2002]。この時期に、当時のエコブームに後押しされ、現在も続く量産品を上市させることが出来た。PIM の初期量産品を図 1.9 に示す。これらの製品はすべて、元はプラスチック製品を PIM 製品に置き換えたものであった。置き換えた理由は様々であるが、①会社として環境に配慮しているイメージを定着させたい、②廃棄物処理費用との相殺、③廃棄物の分別を必要としない、といったことが採用の動機となった。

当時の試作研究の中から PIM 製品の特徴として、以下の長所と短所が指摘されていた。すなわち、PIM 成形品の一般的な特長は、①低い比重(0.8~0.9)、②薄肉成形(0.2 mm~0.5 mm)が容易、③汎用樹脂並みの高い寸法精度、④高い耐熱性(約 200°C)と遅燃性(例えば[FMVSS302 自動車内装材料の燃焼性準拠試験]での燃焼速度; 39 mm/s)、⑤一般ゴミとしての処分が可能、⑥高い生分解性能(約 6 ヶ月で土中完全分解)、⑦製品原料として易リサイクル性、⑧ガス滅菌が可能、⑨無害(食品容器にも使用可)、などが

挙げられる。一方，紙素材であることから派生する欠点として，①水や多湿に弱く湿気(あるいは乾燥)によって変形し易いこと，②パルプ繊維の配向や偏在により機械的特性のバラつきや表面性状のうねりが出やすいこと，などが明らかになっていた。

こうした中で，上記した特長と多くの試作実験により，廃棄時分別の手間をなくすためのファイルの留め具，薬用アンプルケース，環境配慮と特有の質感を生かしたCDケースなど，環境イメージを重視する用途に徐々に適用が進められた。しかしながら，次項に述べるような多くの技術的課題に直面し，それ以上の大幅な用途開発は困難を極めることとなっていた。



- (a) CDケース
- (b) 薬剤アンプルケース
- (c) ファイル綴じ具

図 1.9 PIM 初期量産品の例

## 1.5 PIM の課題

パルプ射出成形は、開発以来の地道な技術的改良によって、成形の容易な形状に限り成形技術として概ね確立されたが、プラスチック成形の代替技術として広く一般へ実用化されるまでには至らなかった。その背景には、PIM とプラスチック射出成形技術とは形態上ほぼ同じ工程から成り立ちながら、PIM の成形材料・成形品特性は本質的に異なり、各工程での成形現象がほとんど解明されていなかった事情が挙げられる。実は、水分を蒸発させるに要する型内乾燥時間は想像以上に長く、成形サイクルならびに成形に要するコストを大幅に押し上げていた。図 1.10 は、当時の代表的な成形品の成形サイクルの事例である。成形時間は 120 秒と長く、その中の 68% を乾燥計量過程に要する時間となっていた。実際にパルプ射出成形が樹脂代替の成形技術として広く適用されるためには、少なくとも当時の成形時間を半減させることが、また競争力を高めるためにはできれば3分の1まで短縮することが求められていた。しかしながら、成形現象が複雑に絡み合い、その多くが未解明の中では、単に“成形時間を短縮する”といっても、成形材料、金型構造、成形機とスクリュ形状、成形条件など、何をどうすればいいかの明確な方針が定まらず、文字通り手探りの対策とならざるを得なかった。

PIM 生産技術の課題を整理すると、「①成形サイクルが長く、生産性が悪いこと。②材料がバッチ生産で形状が不定形であるため計量がバラつき、射出量が安定しないこと。③金型の開閉動作の適正量が不明なこと。④金型設計が難しく、試作回数が多いこと。⑤金型内材料流動がわからず、試作回数が多いこと」が挙げられる。以上の課題を解決すると、①と③は密接に関係しており、③は乾燥時間に大きく寄与すると考えられ、生産コストを削減できる可能性がある。また金型内材料流動が明らかにな

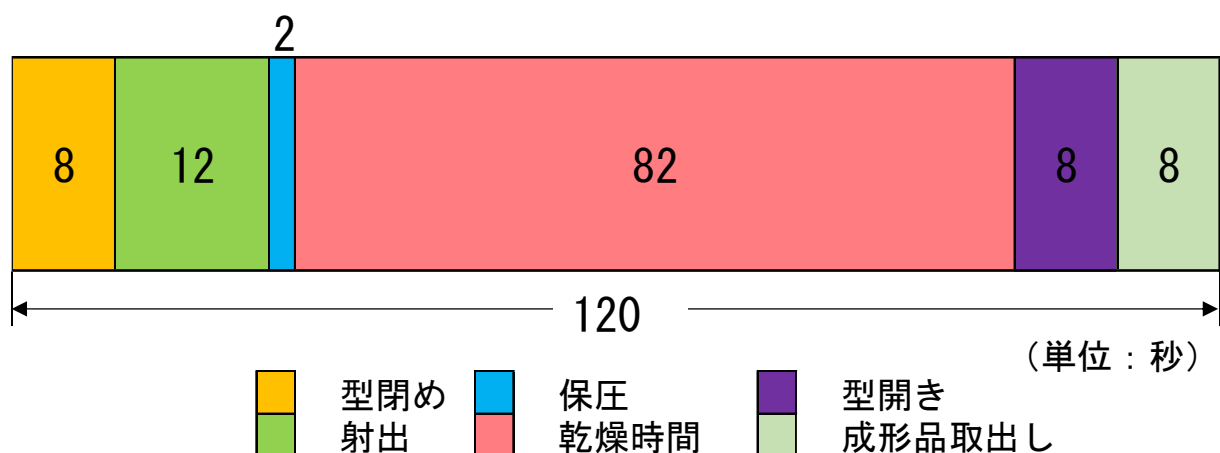


図 1.10 成形サイクルの一例

ると、事前の不良現象予測や金型設計に大きく寄与でき、開発工数、金型調整コストの改善が見込まれる。また、計量安定化や金型内材料流動の解明は成形品品質不良の削減に寄与すると考えられ、PIM 技術を世に普及させるためには、上記課題の解決は必須であると判断されている。

また、製品として PIM 成形品の課題は、「①内部空隙がコントロール出来ず、強度が不安定なこと。②強度測定方法が明確ではなく、機械的特性が不明瞭なこと。③吸水により反りや変形が発生すること」が挙げられた。以上の課題は、材料に含まれる水分が乾燥工程でどのように気化膨張し、脱気していくかが不明であるため発生している。これらの課題を解明することにより、より安定生産が可能となり、割れ不良などの良品率改善に役立ち生産性が良化する。また、内部空隙のコントロールが可能になれば緩衝材から高強度製品にまで、商品適用範囲が広がり、将来の販路開拓に寄与することになる。

そこで成形時間の短縮を中心にした上記の様々な課題を解決するため、学術的な基礎に立った体系的な取り組みが、2005 年度より東京大学生産技術研究所の横井研究室との産学共同研究として実施された。著者は、2005 年度より PIM 技術の基礎研究に携わり、上記した諸課題についての研究成果をまとめ上げ、論文等により広く公表してきた。本論文は、これらの研究成果を論文としてまとめ上げたものである。

## 1.6 研究目的と本論文の構成

新規に開発された技術である PIM 成形技術は、ほとんど系統的な実験や計測、研究は行われていないことは前述のとおりである。そのため成形技術として未完成のまま、良品率も改善しないまま量産が継続されていた。世界で初めて開発され、プラスチック代替成形技術としての社会的に貢献できるという大きな可能性も有している本成形技術を、単に大宝工業の企業活動としての価値にとどまらず、後世に残す必要があると大宝工業(株)として考えていたものの、企業として PIM 技術を継続発展させて行くには限界があった。本技術がプラスチック代替の成形技術として社会的に認知され、広く使用されることを促進するためには、成形材料の組成や、成形品の一般的な機械的特性、成形材料の金型内部充填挙動、金型開閉動作、適正な成形条件の一般化、成形材料の粘度特性など、基本的なデータが、これまで社内の閉鎖的、経験的な蓄積にとどまっている中では、全くといっていいほど不足していた。

本論文では、PIM について、成形品特性に大きく寄与すると考えられる材料因子と成形工程因子に分けて系統的な実験計測を行い、実成形への適用に際して必要となる、各工程での適切な成形方法と材料評価手法を探索することを課題としている。具体的な課題を整理して表 1.5 に示す。

表 1.5 成形品特性に及ぼす因子と実験計測すべき項目

材料因子	・原料組成
	・流動特性
	・水溶性結合剤組成率
	・重量水分率
	・材料粘度特性
成形工程因子	・材料の形態
	・スクリュ動作
	・金型温度
	・金型開閉動作
	・金型内材料流動
	・成形サイクル短縮化

同表をもとに、本論文では以下の3項目を研究目的として掲げた。

- [I] PIM 成形材料と成形品の基本特性を明らかにし、材料組成が成形品特性に与える影響について評価する。  
＜対象となる項目＞  
材料因子 : 原料組成, 水溶性結合剤組成率, 重量水分率  
成形工程因子: 金型温度, 金型開閉動作
- [II] PIM 成形材料の金型内部流動挙動を明らかにし、成形不良が発するメカニズムを検証して、同時に流動モデルを構築し、今後の製品設計の指針とする。  
＜対象となる項目＞  
材料因子 : 原料組成, 流動特性, 重量水分率  
成形工程因子: 金型内材料流動
- [III] 成形サイクルの半分を占める乾燥時間の短縮について、金型開閉動作の最適化を検討する。また、成形材料を開発するために必要となる材料の粘度評価法を開発し、特性を明らかにする。  
＜対象となる項目＞  
材料因子 : 原料組成, 流動特性, 重量水分率, 材料粘度特性  
成形工程因子: 材料形態, スクリュ動作, 金型温度, 成形サイクル短縮化

さらに、[I] , [II] , [III] の各項目における具体的な検討・解析事項を以下に列挙する。

[I] PIM 成形材料と成形品の基本特性

- (1) パルプ射出成形の成形材料流動特性を評価するために、温度・圧力センサを多点で挿入したバーフロー金型を作製し、流動長に及ぼす各種成形条件の影響を調査すること。
- (2) 成形品の基本的な特性を評価するために、内部構造の観察、機械的諸特性と環境湿度の影響、吸水特性について評価実験を行なうこと。
- (3) 4種類のパルプ繊維長、澱粉とPVAの結合材配合率が、パルプ射出成形品の引張強度特性、および内部空隙の数量と体積、生成形態に与える影響について検討をすること。

[II] 金型キャビティ内の流動挙動の可視化解析

- (1) 主に滑り流動により充填がなされるPIMの特徴に着目して、キャビティ表面に

配置した着色材の軌跡を流動履歴として抽出する着色マーキング法を新たに提案し、滑りを主体とした PIM 充填挙動に最も大きな影響を与えるキャビティ面の凹凸領域について、その 3 次元的な流動現象を明らかにすること。

- (2) PIM 材料滑り流動の抑制を目的に、金型表面の表面粗さの変化と紙・綿布・皮のインサートによる表皮一体成形について、厚さ方向の動的可視化観察を用いて流動挙動の解析を行うこと。

### [III] 実成形への適用における課題

- (1) 成形量産時の課題である計量過程の安定化と乾燥工程の最適化について検討を行うこと。
- (2) 新たに PIM 材料専用の粘度特性評価装置を開発し、経験則で調整してきた PIM 材料を系統的に数値化することにより、材料粘度指標を作製すること。

本論文は、序章と総括含めて 3 部全 8 章から構成される。本論文の概略構成を図 1.11 に示す。



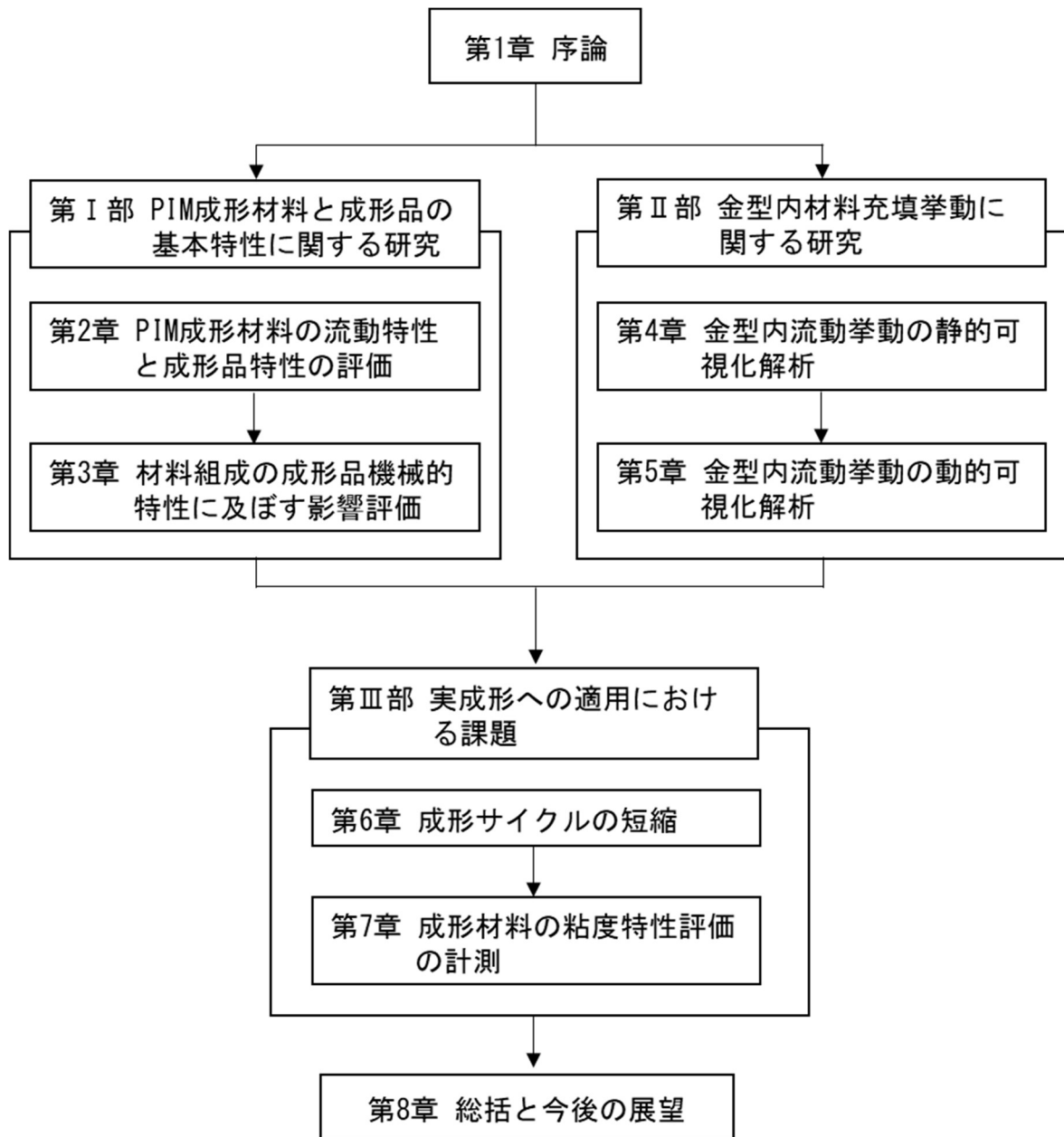


図 1.11 本論文の構成

---

## 第2章 PIM 成形材料の流動特性と成形品特性の評価

---

2.1 緒言 .....	34
2.2 実験方法 .....	35
2.2.1 流動特性の計測 .....	35
2.2.2 成形品の特性評価 .....	38
2.3 実験結果および考察 .....	39
2.3.1 バーフロー金型流動特性の計測 .....	39
2.3.2 金型温度および水分率の影響 .....	42
2.3.3 澱粉種類およびゲート形状の影響 .....	43
2.3.4 成形品の内部構造 .....	44
2.3.5 湿度および水分による成形品特性の変化 .....	46
2.4 結言 .....	50

---

## 2.1 緒言

前章では、まず環境問題に際して、プラスチック射出成形加工の置かれている現状を紹介し、PIM が環境負荷低減に貢献できる可能性について述べた。しかし、PIM が広く世間に使用を促進していくには、製造工程に課題を有している。すなわち、生産効率を向上させるための基礎的なデータが不足しているため、材料、スクリュ、成形機、金型について、土台となる技術を構築することは急務である。そこで、PIM の各工程について定量評価する装置、測定方法の提案し、実証して行くこととする。

PIM 材料は、原料に紙基材であるパルプと水溶性結合剤を使用している。水溶性結合は澱粉(コーンスターチ)のみ、もしくは澱粉と強度付与や表面平滑性向上を目的にポリビニルアルコール(PVA)を一部に含めることもある。PVA は紙にも使用される生分解性樹脂として広く知られており、PIM 材料の原料は完全生分解性を保持している。

これはミクロな視点で考えると、水素結合の制御で成立していると言える。水素結合は、 $H^+$ 基と  $OH^-$ 基の電気的な結合であるが、水が介在することで容易に結合が解けるといいう性質がある。例えば紙は多量の水分中に分散させたものを均一に分布させて、掬い上げて水分を除去することで、パルプ繊維同士を水素結合させて作製する。また水溶性結合剤の澱粉は、水分存在下で温度上昇により、糊化しゲル状に変化して結合剤と機能する。このときも同様に水が介在していると結合の強度が落ちるが、水分がなくなると固体化すると同時に結合力が増加する。PIM の工程は、水が介在する状態で、材料を金型内に流動させて充填し、金型内部で乾燥を行い形状の固定を行っている。上記のような成形材料は PIM のみであり、系統的な測定を行い材料特性を把握する必要があった。

本章では、パルプ射出成形における PIM 材料の流動特性を明らかにするため、バーフロー形状の流動性評価金型を新たに試作し、流動特性に与える金型温度、水分率、材料成分等の影響について評価実験を行った。また、成形品の基本特性を評価し、成形品内部構造の観察、環境湿度と機械的諸特性との相関解析、吸水性の評価実験をそれぞれ実施した。

## 2.2 実験方法

### 2.2.1 流動特性の計測

樹脂流動特性の評価を目的として、長谷川らは、超高速射出成形におけるバーフローキャビティ内に流動長に沿って等間隔に光ファイバセンサを埋設し、流動挙動を計測評価する方法を提案し、その有効性を明らかにした[長谷川 2005]。ここでは、熱が伝わりにくい径の大きい光ファイバセンサに代えて、小径の熱電対式温度センサを用い、急激な温度変化により各センサ位置でのフロント通過を検出し、流動挙動の計測評価を試みる。流動挙動評価金型の外観を図 2.1 に、キャビティ形状と計測位置を図 2.2 にそれぞれ示す。キャビティは、幅 10×長さ 1170×厚さ 1 [mm] のバーフロー形状で、先端径  $\phi 1$  mm の熱電対式温度センサ Type 4003 A (Priamus System Technologies 社)を 50 mm 間隔に 13 点、先端径  $\phi 4$  mm の水晶圧電式型内圧センサ 6001A (同)を 150 mm 間隔に 4 本(P2~P5)、間接式の Type 9221A (日本キスラ株)をゲート直下 (P1)にそれぞれ設置し、温度と型内圧力変化の同時計測を行なった。

成形材料は、表 2.1 に示す材料 A, B を使用した。同表の NBKP は針葉樹晒クラフトパルプで、重さ加重平均繊維長約 2.4 mm (アスペクト比約 60)である。これらに水を加えて重量水分率 40 wt%に調整した。成形条件を表 2.2 に示す。乾燥工程での型開閉動作は射出完了時から 2 秒間隔で実施し、いずれも 10 回行った。金型温度および水分率、射出圧力を変化させて、流動に伴う温度・圧力、成形品流動長変化をそれぞれ計測した。

表 2.1 使用した成形材料の原料配合率

	パルプ		結合剤		
	NBKP	セルロース パウダー	澱粉	糊化澱粉	PVA
A	60 wt%		30 wt%		10 wt%
B	60 wt%			30 wt%	10 wt%
C	18 wt%	42 wt%	20 wt%		20 wt%

(水分を除いた重量分率)

表 2.2 使用した成形条件

シリンダ温度(°C)	(ノズル) 90/90/90/70/45 (ホッパー)
計量値	10 mm
スクリュ回転速度	120 rpm
背圧	2.4 MPa
金型設定温度	150 °C
射出圧	120 MPa
射出速度	50 mm/s
射出時間	2 s

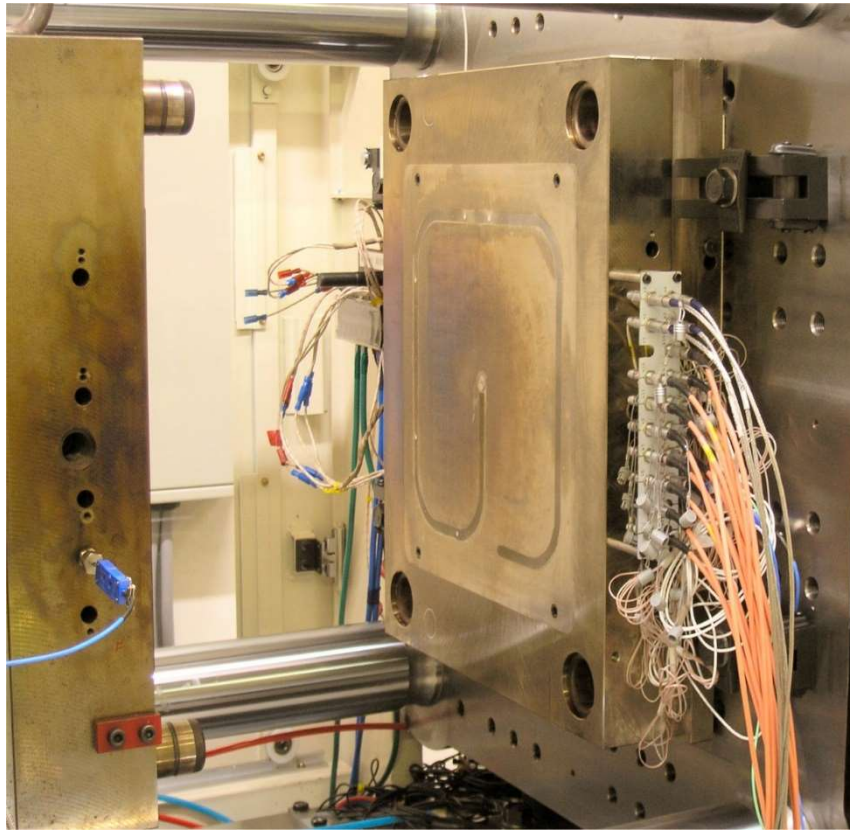


図 2.1 バーフロー金型の外観

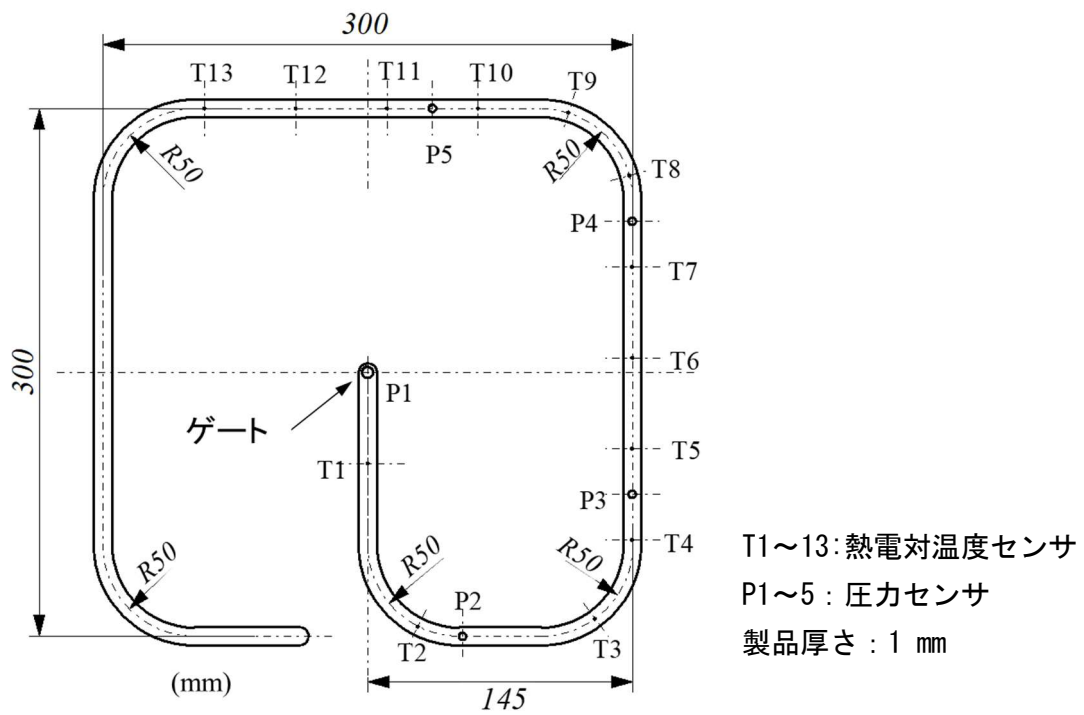


図 2.2 キャビティ形状とセンサ挿入位置

### 2.2.2 成形品の特性評価

紙素材の PIM 成形品は乾燥工程に起因する内部構造の変化、および環境湿度による諸特性変化が予見された。ここでは断面組織の観察とともに、材料組成・環境湿度を変化させ、①成形品伸縮率、②応力-ひずみ線図、③吸水特性を調査する。①、③での使用キャビティは図 2.3 に示す縦 300×横 300×厚さ 1 [mm] の矩形状(中心部ダイレクトゲート)で、②では図 2.2 のバーフロー成形品の直線部分(P3～P4 間)を使用した。使用材料は前掲、表 2.1 の材料 A, B, C とした。なお C のセルロースパウダーには KC フロック W-50 (日本製紙ケミカル(株), 平均粒子径 45 nm)を使用した。以下に各計測法の詳細を説明する。測定について、恒温恒湿室内 (23°C, 50 r.h.%) で実施しており、試験条時には取出し直後に実施している。

- (1) 成形品伸縮率の計測；繊維の配向方向が異なる図 2.3 I,II の 2 領域から幅 40×長さ 100×厚さ 1 [mm] のサンプル片を切り出し、槽温 25°C で 10% ごとに湿度変化させた恒温恒湿槽内に 24 時間保持し、長さを測定した。
- (2) 応力-ひずみ線図の計測；26%, 50%, 75% の 3 種類の環境湿度下に 24 時間保持してサンプル重量を測り、引張試験機 TENSILON UTM-III L (東洋ボールドウィン(株))により応力-ひずみ線図の測定を行った。なお、つかみ具間距離は 100 mm とした。
- (3) 吸水特性の計測；図 2.3 の領域 III を 10mm 角に切り出し、室温 23°C, 湿度 50% の恒温恒湿室に 24 時間保持後、サンプル上に水量 6  $\mu$ L の水滴を落として接触角の変化を測定した。接触角測定装置は 1100DAT MK II (FIBRO 社)を使用した。

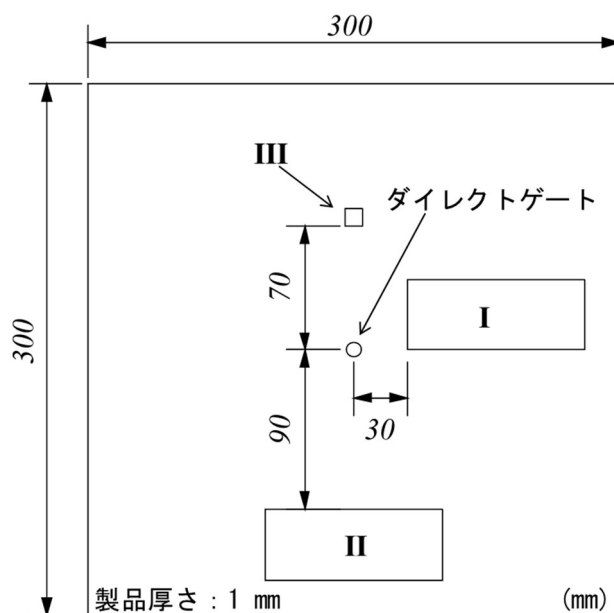


図 2.3 成形品と評価サンプル取得位置

## 2.3 実験結果および考察

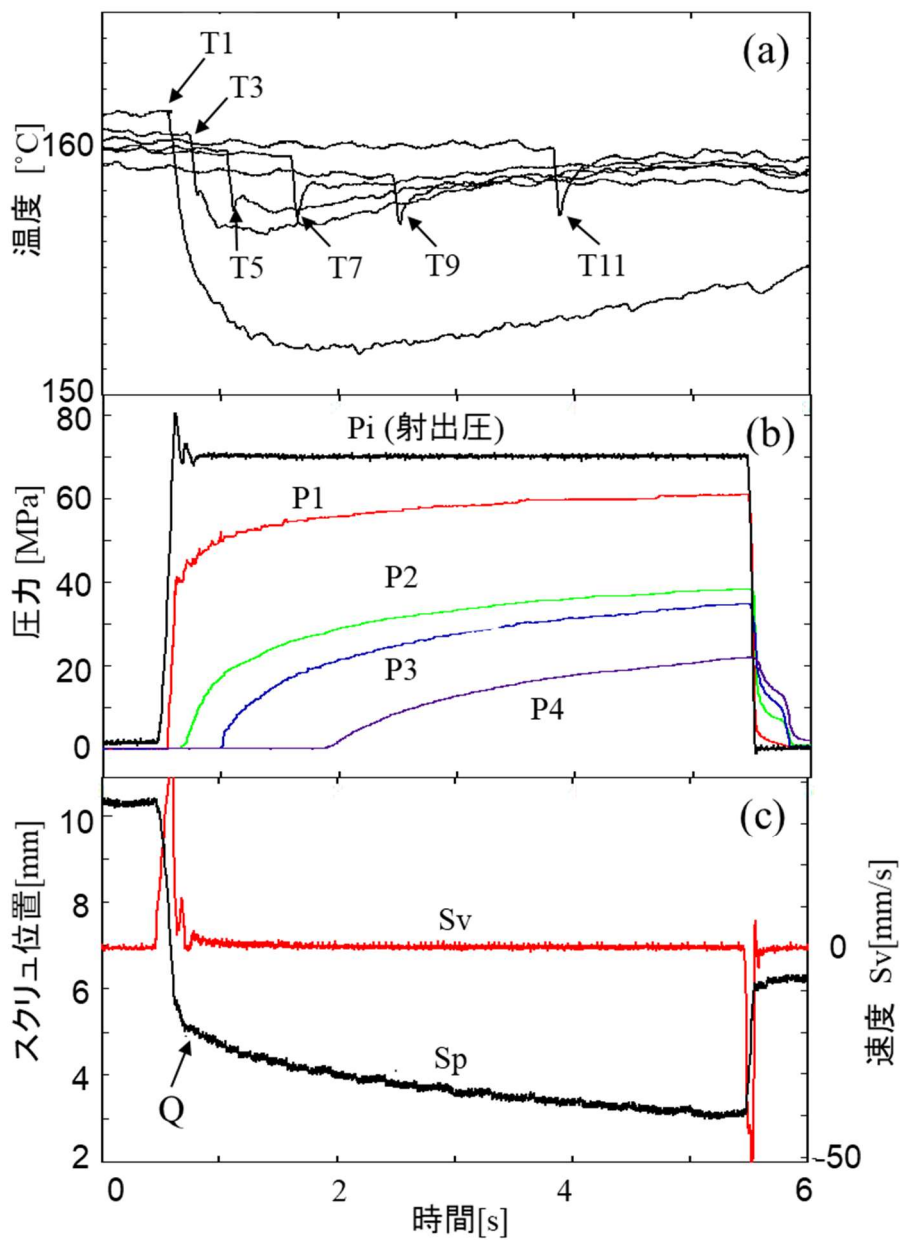
### 2.3.1 バーフロー金型流動特性の計測

材料 A を型温 150°C で成形時の温度・圧力センサ，スクリュ挙動の経時変化を図 2.4 に示す．バーフローでの流動長評価実験では，圧力制御で射出過程を設定する．そのため流動抵抗が少ないノズル・スプルー間でスクリュ速度が一気に上昇し，スプルー充填後にキャビティ内に流入が開始し流動抵抗が急増することを反映して，スクリュ速度も急速に低下する(図 2.4 (c)参照)．その後は，一瞬の速度上昇を示すものの緩やかに減速を続ける様子が確認された．こうしたスクリュ挙動は(b)の射出圧力  $P_i$  と良い対応を示している．同図(a)では，キャビティ長に沿って設置された温度センサの出力が順次低下する過程が観察される．最もゲート寄りの T1 では，10 度程度の急峻な温度低下を示した後に，T3 以降と比して大きく遅延するものの温度は緩やかな上昇へと転じている．T5 では，急降下直後に一瞬の上昇を経て緩やかに上昇へと転じ，T7～T11 では急激な低下と上昇後にほぼ一定値にとどまるか，わずかに上昇する傾向が示された．こうした温度降下の程度は材料の乾燥程度とも相関し，材料の乾燥が進むほど気化熱による金型表面層の温度低下が抑制され，計測される温度が上昇するものと推察される．

次に，以上の温度計測結果に基づき，各熱電対での温度変化から各位置でのフローフロント通過を検知し，その時間差から隣接する 2 計測点間の平均フローフロント速度を求めて速度変化を算出した．結果を図 2.5 に実線で示す．なお同図には，材料 B の結果も後述 2.3.3 で比較するために破線で併記している．一定の射出圧力の下で，ゲート直下の圧力  $P_1$  も大きくは増大しない中で，フローフロントは 1 秒後もほぼ一定速度で前進し続け，流動長は厚さ 1 mm のキャビティにおいても 760 mm にまで到達することが確認された．これは，PIM 成形材料の非常に高い流動特性を実証的に示すものである．

フローフロント速度は，キャビティ流入開始後に急激に上昇した後，フロントの前進に伴って双曲線状に減速することが確認された．前掲図 2.4 (c)でスクリュ前進速度が急減する領域 Q が，バーフロー直線部が最初に 90 度右に曲がる時間にほぼ対応することから，屈曲部分での流動抵抗の急峻な増大が，その下流側でのフロント速度の急減をもたらしたものと推察された．





(a) 金型温度の変化（熱電対使用）  
 (b) 射出圧変化による金型内圧の変化  
 (c) スクリュ位置とスクリュ速度の変化

図 2.4 バーフロー金型を用いて材料充填中に得られたデータ

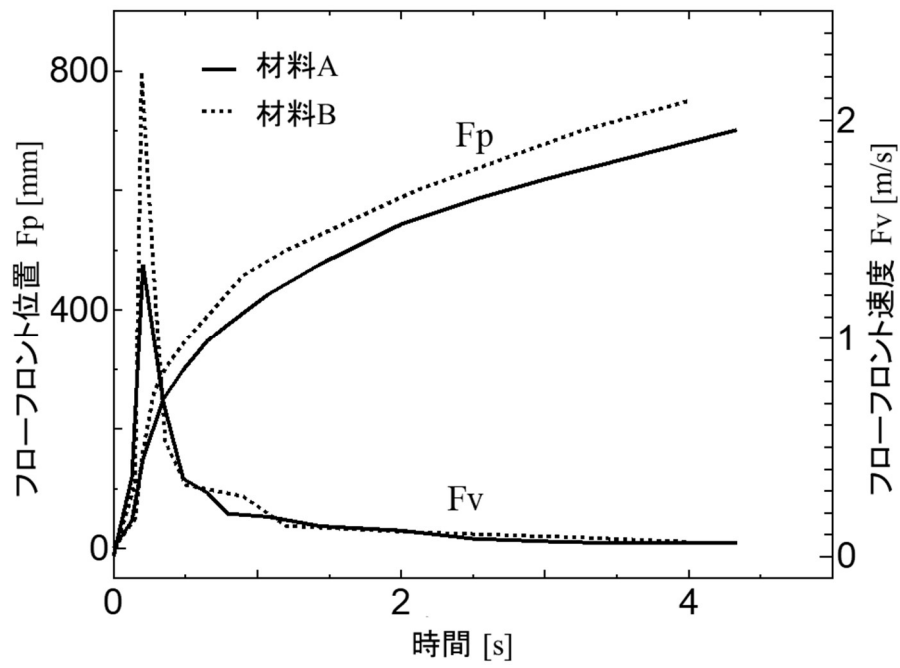


図 2.5 材料の違いによるフローフロント位置と速度の変化

### 2.3.2 金型温度および水分率の影響

水分率 35wt% の材料 A を使用して、金型温度を 140, 150°C に変化させ、射出圧力  $P_i$  と流動長の関係を求めた。結果を図 2.6 に示す。同図から、射出圧力が高くなるに従って流動長は直線的に増大し、射出圧力 80 MPa、金型温度 150°C では最大 640 mm まで流動することが確認された。

PIM 成形材料で水は主に流動性付与に寄与し、金型温度が高いほど乾燥が促進されて流動性が低下しやすく、流動長が短くなるものと予想された。しかし図 2.6 では、金型温度が高いほど流動長が長くなり、逆の結果が得られた。PIM の成形材料は金型からの伝熱により水蒸気を発生させながら充填する。すなわち、金型温度を上昇させると、金型壁面と材料とに介在する水蒸気の発生量が増加し、スリップ流動抵抗がより減少したためと推察された。金型温度を 140°C と低くして充填すると、流動長は 150°C に比していずれも 5% 程度短くなっている。

金型温度を 150°C に設定し水分率を 40.5 wt%, 34.7 wt%, 33.6 wt% と 3 水準に変化させ、射出圧力と流動長との関係を図 2.7 に比較した (N=3)。水分率 40.5 wt% では流動長が約 800 mm まで大幅に延びており、33.6 wt% と比べて約 60% 増加し、また 34.7 wt% では水分率が僅か 1.1 wt% 多いだけで流動長が約 20% も増加することが確認される。以上の結果から、流動性に与える水分率の寄与率が非常に高いことが実証的に明らかにされた。

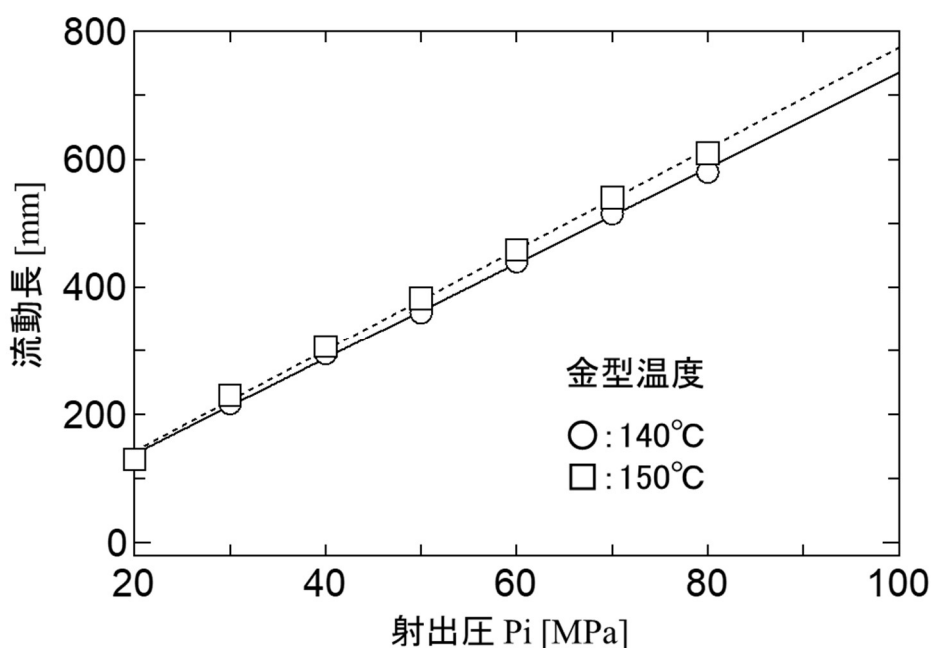


図 2.6 金型温度の違いによる流動長の変化

### 2.3.3 澱粉種類およびゲート形状の影響

ここでは、材料 A ならびに材料 A の澱粉を糊化澱粉とした材料 B (いずれも水分率 40 wt% に調整) を用い、澱粉の違いによる流動特性への影響を調査した。結果は前掲の図 2.6 に比較して示している。一般に澱粉は水を加えて加熱・混練して初めて糊化するが、糊化澱粉は加水混練だけよく迅速な可塑化・均一分散と流動性の向上が期待された。しかしながら、糊化澱粉の材料 B で約 8% 流動長が増加するものの、前項 2.3.2 の水分率の影響と比較すると、顕著な効果は認められなかった。以上は、PIM 可塑化過程で、澱粉が糊化澱粉並みに均一に糊化・分散されることを示唆している。また、材料 A に比べ B の流入速度が大きくなる理由は、糊化澱粉加工時の分子量低下が、成形材料の粘度低下をもたらしたものと推察された。

次に、流動性に与えるゲート形状の影響について検討した。ここでは、ダイレクトゲート ( $\phi 5 \text{ mm}$ ) からピンポイントゲート ( $\phi 1.5 \text{ mm}$ ) に変更して、両者の流動特性を図 2.8 に比較した。一般にゲート径を小さくすると流動抵抗が増大する。PIM においてもゲート付近での流速低下と流動長の減少傾向は確認されたが、その差は小さかった。熔融樹脂ではゲート部での流速低下がキャビティ内での冷却を促進し流動性が大きく阻害される。これに対して、PIM では速度減少がキャビティ壁面からの伝熱を促進し、むしろ蒸気の生成と流動抵抗の低下をもたらす、流動長の減少に直接つながらなかったものと推測される。

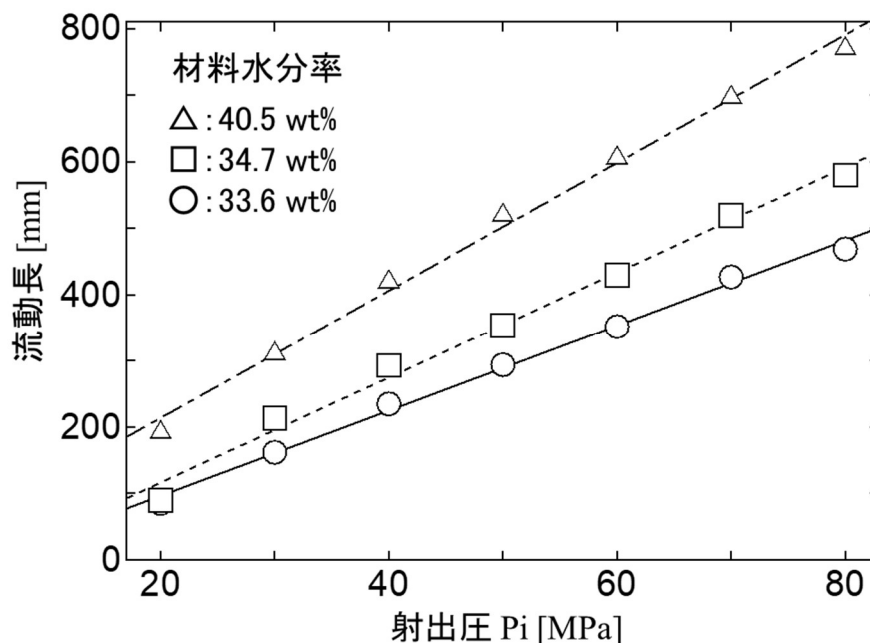


図 2.7 材料水分率の違いによる流動長の変化

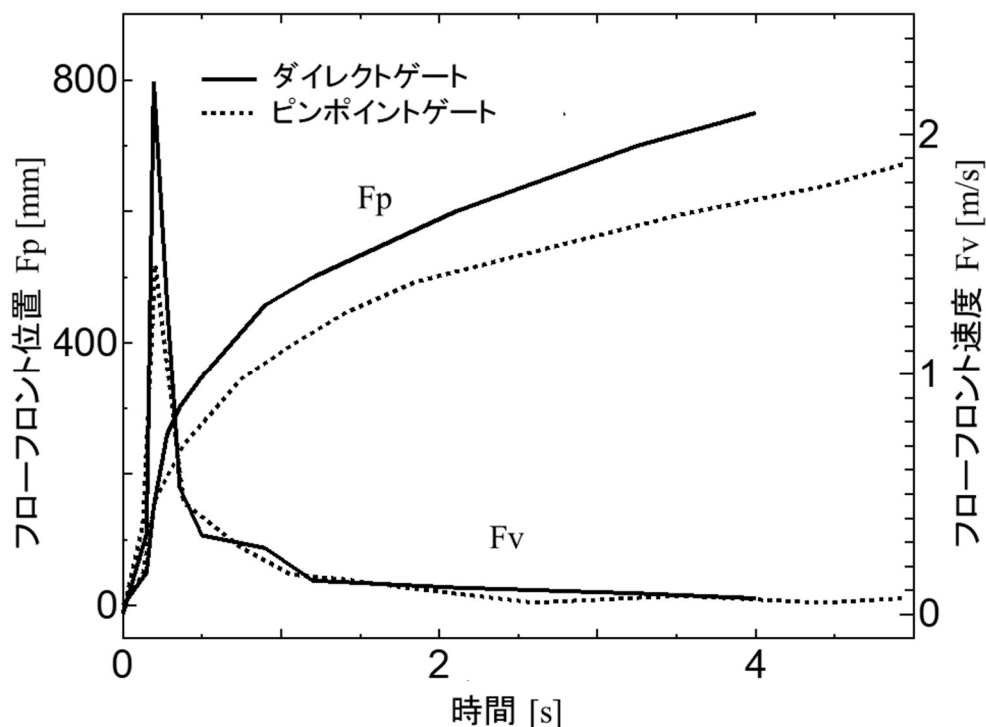


図 2.8 ゲート形状の違いによるフローフロント位置と速度の変化

### 2.3.4 成形品の内部構造

材料 A, B, C について、正方形角型成形品の正面方向バックライト観察ならびに同成形品の破線に沿う断面観察を行なった。材料 A, B ではほとんど差異がないため、ここでは材料 B, C の観察結果を図 2.9 に例示する。いずれの材料でもゲートを中心とした同心円状の縞模様が観察され、パウダー配合材の材料 C でより明瞭に観察された。断面観察からは、いずれの材料でも内部に多数の空隙の生成が認められた。材料 B では同心円状に層状に長く伸びて剥離した空隙が、材料 C では円形の断面で比較的短く小さな空隙が多数観察され、両材料で空隙の形成過程が大きく異なるものと推察された。これは、繊維長の相違が最も大きな要因と考えられる。すなわち、長い繊維の材料 B では、繊維の配向方向と直交する方向に層状に亀裂が生成・進展して空隙が発生しやすい。一方、パウダー混入材料の C では、繊維配向方向とその直行方向での強度差が小さく、また結合力も弱いため、多数の円形状の空隙が生成したものと考えられた。

次に型開閉動作の有無による内部構造の違いについて検討した。ここでは、材料 A のバーフロー金型成形品について断面観察を行なった。結果を図 2.10 に示す。型開閉動作を行った条件 (以下, [条件 a]) では、図 2.10 と同様に成形品内部に空隙が観察されたが、型開閉動作を行わず型内に成形品を長時間保持する条件 (以下, [条件 b]) で

は、空隙の発生が認められなかった。PIM では、加熱・乾燥によって成形品内部の水分を蒸発させて形状を固定させる。その際、型開閉動作によって、加熱により成形品内に発生した高圧の水蒸気を型外に断続的に排出させる。型寸開動作によって金型分割面が開くと、成形品内部の高圧水蒸気が膨張し、成形品表面の随所から一気に水蒸気を噴出させようとする。層状や筋状の空隙は、こうした水蒸気脱気路の痕跡とみなすことができる。一方、[条件 b]では脱気路を形成することなく乾燥が進むため、空隙の形成がないものと考えられた。なお、成形品厚さは(a)では約 1.0 mm、(b)では約 0.85 mm であった。後者は、水分が乾燥することに対応して約 1 割以上の体積収縮を示し、また収縮に対応するように成形品表面の凹凸も大きくなる様子が確認された。

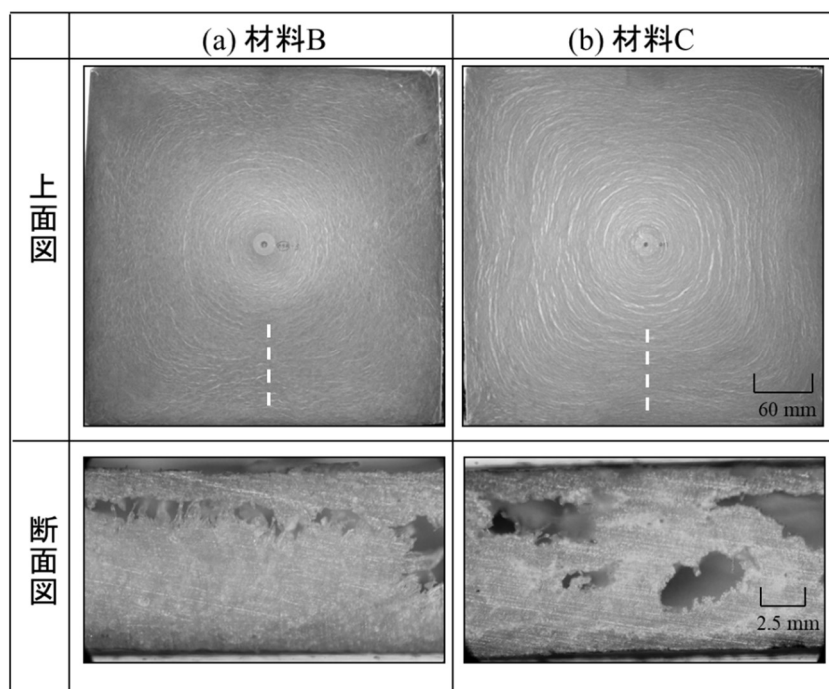


図 2.9 バックライト観察による内部空隙の観察と断面図

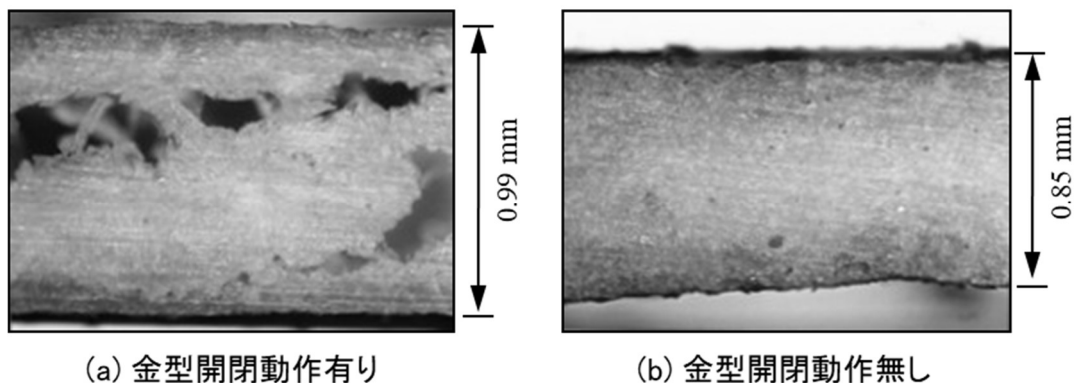
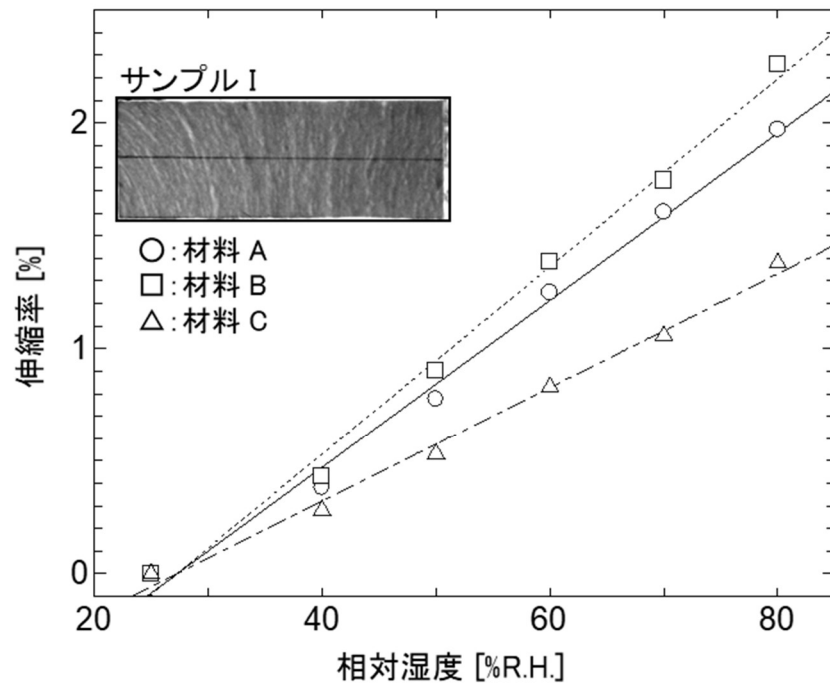


図 2.10 金型開閉動作有/無の内部空隙発生の違い (材料 A)

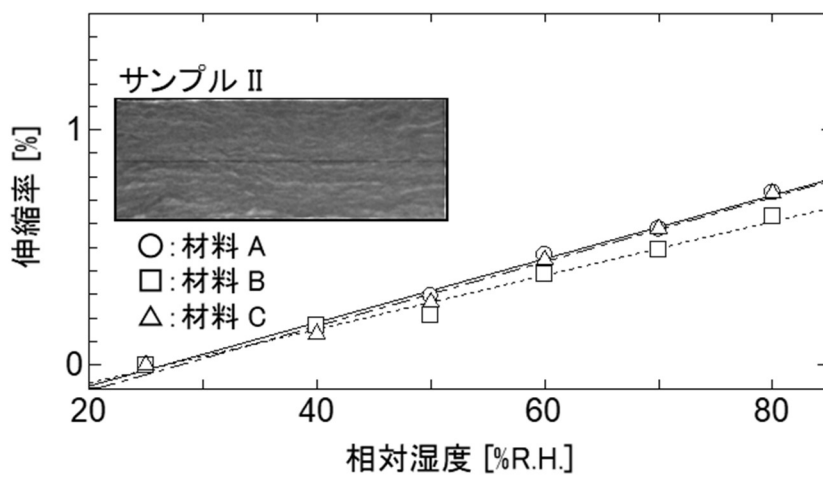
### 2.3.5 湿度および水分による成形品特性の変化

#### (1) 成形品伸縮率の変化

繊維配向方向が異なる図 2.4 のI, II領域の長尺サンプルについて、環境湿度を変化させ長さ方向の伸縮率を計測比較した。材料流動に平行方向の伸縮率を図 2.11 (a)に、直交方向の伸縮率を(b)にそれぞれ示す。いずれも湿度増加に伴い、ほぼ直線的な伸びを示し、材料流動に平行なIの方が直交するIIよりも伸縮率が大きく示された。また、IIでは材料 A, B, C に差がほとんど認められないが、流動方向に平行なIでは明瞭な差が確認された。結合剤として PVA の比率が同じ材料 A, B では、IIに比べてIの伸びは約 2.0~2.5 倍と大きくなり、材料 C では 1.7 倍程度と両者の差がやや小さく示された。これは以下のように推察された。材料流動に平行な領域Iでは、繊維が長手方向と直交するように配向しやすく、吸湿による伸びは結合剤 (主に糊化澱粉)に吸着する水分量により支配される。一方材料 C では、低吸湿性の PVA 比率が A, B よりやや多く、またセルロースパウダーが主体のため長繊維より配向がランダムになりやすいことによる。



(a) 平行方向



(b) 直交方向

図 2.11 相対湿度と伸縮率の関係



(2) 応力-ひずみ線図の変化

図 2.12 に、引張速度 10 mm/min での各材料の応力-ひずみ線図を示す。破断伸びはいずれも 0.05~0.13 と小さく、明瞭な降伏点は見られないものの、約 0.02 近傍で線図の角度が変化し、弾性域から塑性変形域へと移行する様子が観察される。環境湿度が上昇し成形品の平衡水分率が増加すると、破断伸びはほぼ直線的に増加し、引張強度(破断強度)、引張弾性率は減少を示した。結合剤の均一分散効果を期待して糊化澱粉を使用した材料 B では、強度、弾性率、伸びがいずれも材料 A とほぼ同等か僅かに劣る結果となった。これは、糊化澱粉の分子量低下が接着力の減少により大きな影響をもたらしたためと考えられた。一方セルロースパウダー主体の材料 C では、長繊維の他材料よりも強度も弾性率も高く、伸びも抑制されるという予想に反する結果が得られている。これは、PVA 成分比率が多いためと考えられ、特に結合剤に及ぼす水分含有率の影響が大きい PIM 成形品では、機械的特性に及ぼす PVA の役割は低比率ながらも大きいことが示唆された。

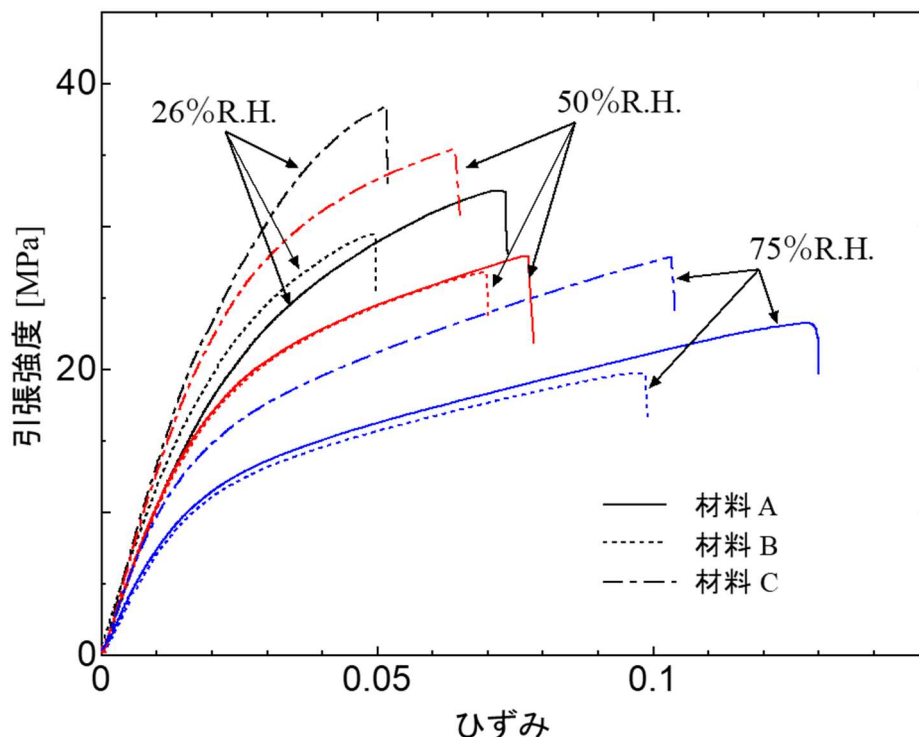


図 2.12 応力-ひずみ線図

### (3) 吸水接触角試験

材料 A, B, C 各成形品の 図 2.4 領域 III および上質紙 (コピー用紙) について, 時間経過に伴う吸水接触角の変化を計測した. 測定時間を 700 秒とした計測結果を図 2.13 に比較して示す. コピー用紙では接触角は 50 秒以下で  $30^\circ$  を下回るが, PIM 成形品では滴下直後の接触角は  $100^\circ$  以上と, 高い撥水性を示した. いずれの材料も, 300 秒から 500 秒経過時でも接触角  $90^\circ$  以上の撥水性を保持しつつ, 接触角は緩やかに直線的な減少を示していた. これより PIM 成形品は表層密度が高く, コピー用紙のように直ちに含浸・吸水するのではなく, 高い撥水性を数分にわたって保持しつつ, 時間をかけて含浸する吸水特性を有することが確認された.

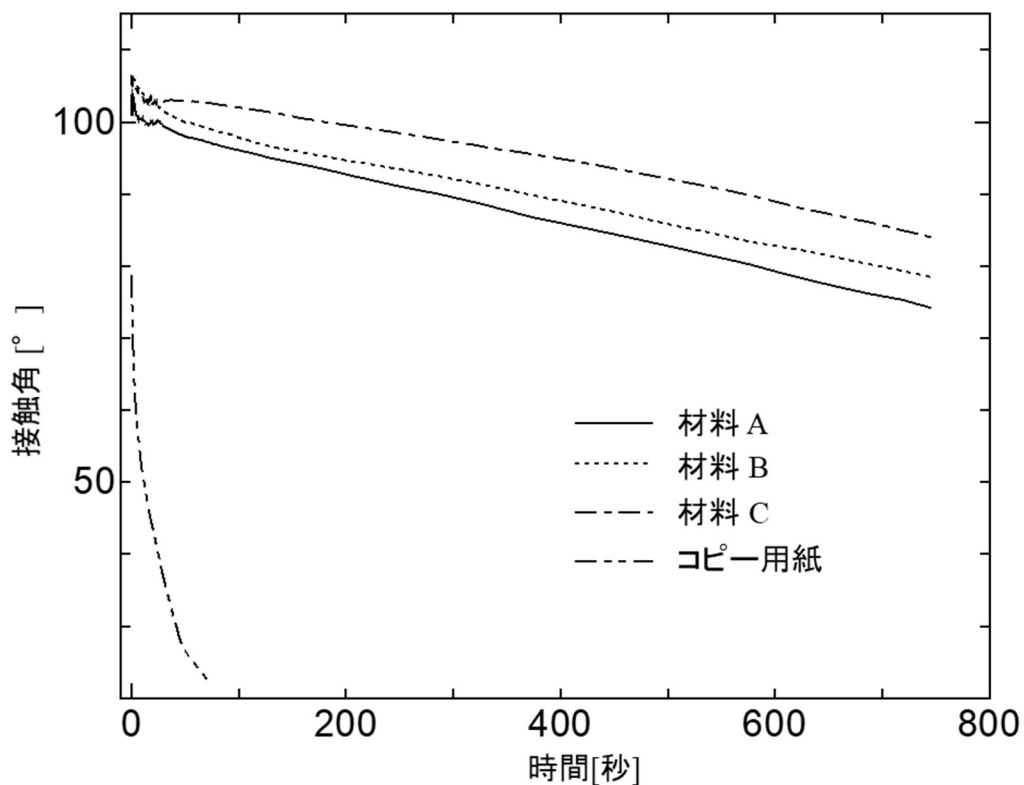


図 2.13 接触角の時間変化

## 2.4 結言

本章では、パルプ射出成形の成形材料流動特性を評価するために温度・圧力センサを多点で挿入したバーフロー金型を試作し、流動長に及ぼす各種成形条件の影響を調査した。また成形品の内部構造の観察、機械的諸特性と環境湿度の影響、吸水特性について評価実験を行ない、以下の結果を得た。

- (1) 流動性を左右する成形条件として、材料の違い・ゲート形状の違いよりも金型温度および材料に含まれる水分が大きく寄与し、とりわけ水分率による流動長の増加効果が顕著であること、厚さ 1 mm、幅 10 mm のバーフローキャビティで最大 800 mm の流動長が実現できることが明らかになった。
- (2) 成形品の内部には、高い水蒸気圧の生成と型開閉動作にともなう脱気乾燥過程とに関連して、多くの空隙が生成し、その空隙の形状や生成状況が寸法精度、収縮率に大きく関わっていることが明らかになった。
- (3) 無負荷時での吸湿に伴う伸縮率は繊維配向に直交方向と平行方向では 1.7~2.5 倍の差があること、吸水接触角試験では PIM 成形品が数分にわたって高い撥水性を保持できることが確認された。
- (4) 環境湿度を変化させた引張強度試験では、湿度上昇に伴い強度・弾性率が低下し破断伸びが増加すること、破断伸びはいずれも 0.05~0.13 と小さいものの PP と同等以上の引張強度が示されることが明らかになった。

パルプ射出成形では、水分率は上述のように流動性の向上に大きな効果をもたらすが、成形サイクルの短縮と気化熱の低減には、水分率をいかに低下させるかが技術的課題となる。また乾燥過程で生成する空隙は、成形品の軽量化に寄与するものの、その形態や密度は上述のように強度異方性や吸湿による変形特性に影響をもたらす重要な因子となる。空隙の生成状況は、水分と PVA 成分比率、繊維長分布等の材料因子、成形プロセスに直接支配されている。流動性を保持しつつ低い水分率と高い金型温度にて、いかに短い成形サイクルで成形を実現できるか、また成形品特性に大きな影響をもたらす空隙形態をいかに制御するかが課題となる。

---

## 第3章 材料組成の成形品機械的特性 に及ぼす影響評価

---

3.1 緒言 .....	52
3.2 実験方法 .....	53
3.2.1 成形条件と成形材料 .....	53
3.2.2 強度試験 .....	55
3.2.3 吸水変形量測定 .....	55
3.2.4 内部空隙観察(X線CT) .....	56
3.3 実験結果および考察 .....	58
3.3.1 繊維長, PVA 配合率と強度の関係 .....	58
3.3.2 各材料と内部空隙生成の様子 .....	61
3.3.3 内部空隙と吸水変形量 .....	63
3.4 結言 .....	68

---

### 3.1 緒言

前章では、PIMの流動特性を明らかにするため、バーフロー形状の流動性評価金型を新たに作製し、流動特性に与える金型温度、水分率、材料成分等の影響について評価実験を行った。また、特定の成形材料による基本特性を評価し、成形品内部構造の観察、環境湿度と機械的諸特性との相関解析、吸水性の評価実験をそれぞれ実施した。これにより、PIMについて射出成形を行う上での成形データ、成形品の特性について取得することが可能となった。

ここで紙の強さについて紹介する。紙はパルプ繊維自体の強さと繊維同士の絡み合いによって決定される。紙繊維の原料である木材パルプは、針葉樹から作られるものと広葉樹から作られるものに大別される。針葉樹パルプは繊維が太く長いため、繊維間の結合が強く破れにくい紙ができ、一方で広葉樹パルプは繊維が短く細いため、強度は減少するが表面の滑らかな紙ができる特徴がある。また、紙の表面を、澱粉やPVAで塗工処理すると、さらなる強度上昇や、表面性状の改善等の効果がもたらされる[原2002][磯貝2003]。

以上のように紙は、パルプの種類や添加物等により、機械的強度等の諸特性を自由に变化させることができる。PIM成形材料は、紙と同様の原料を機械的に混練することによって得られるため、同様の機械的強度特性の変化が予想される。一方、成形工程に射出成形法を用いていることや成形時に生成する内部空隙など、紙とは異なる多くの特徴を有している。そのため、PIM成形品の機械的強度特性について詳細な調査が必要とされるが、これまで系統的な検討はなされて来なかった。

本章では、パルプ繊維種類の相違、結合剤としての澱粉、PVAがPIM成形品に及ぼす影響を、(1)引張強度特性の評価実験、(2)成形品に形成される空隙の形状、数量分布、空隙体積についてのX線CTによる定量評価実験を通して、それぞれ具体的に明らかにした。

## 3.2 実験方法

### 3.2.1 成形条件と成形材料

成形条件を表 3.1 に示す。乾燥工程での型開閉動作は 10 回とした。次に、使用したパルプ種による平均繊維長“ $l$ ”，平均繊維径“ $d$ ”，アスペクト比“ $l/d$ ”の違いを表 3.2 に示す。ここでは平均繊維長は重さ加重繊維長であり，投影法を用いて測定された。重さ加重平均繊維長( $L_w$ )は， $L_w = \sum n_i \cdot l_i^3 / \sum n_i \cdot l_i^2$  で定義されており  $n_i$  はフラクション  $i$  の繊維の数， $l_i$  はフラクション  $i$  の繊維の平均長である[本田 1989]。NBKP は針葉樹晒クラフトパルプ，LBKP は広葉樹晒クラフトパルプを意味し，Sawdust は鋸屑を原料とするパルプである。また，CP はセルロースパウダーを意味し，ここでは KC フロック W-50 (日本製紙ケミカル株) を使用した。平均繊維長，平均繊維径共に NBKP が最も大きく，LBKP は CP を除いて，最も短く細いことが理解される。各パルプの繊維長分布を図 3.1 に示す。LBKP は NBKP よりも繊維長 1.0 mm 以下の分布が多く見られ，1.0 mm 以上の分布が少ないことが理解される。Sawdust は 0.5 mm 以下の分布が非常に多く NBKP の 2 倍程度であった。また，表 3.3 に試験材料配合率を示す。ここでは N-P25, S-P25, L-P25 の 3 種を繊維長変化系とし，N-P00, N-P25, N-P50, N-P75, N-P100 (以下，これらをまとめて N 系と呼ぶ) を PVA 配合変化系として，各配合での物理特性変化を確認した。さらに NK70-P00, NK70-P50, NK70-P100 (以下，NK 系) は，CP を NBKP の 7 割置換し平均繊維長を大きく低下させた場合の，引張強度特性の違いを確認した。これらに，水を加えて重量水分率 40 wt% に調整した。

表 3.1 成形条件

シリンダ温度 (°C)	(ノズル) 90/90/90/70/45 (ホッパー)
金型温度 (°C)	160
射出率 (cm <sup>3</sup> /s)	24.6

表 3.2 平均繊維長

	NBKP	Sawdust	LBKP	セルロース パウダー
繊維長 $l$ (mm)*	2.30	1.76	0.86	0.045
繊維径 $d$ ( $\mu\text{m}$ )*	40.7	37.9	21.5	20.0~30.0
アスペクト比 $l/d$	62.2	46.4	40.0	1.5~2.3

\* ; 平均値

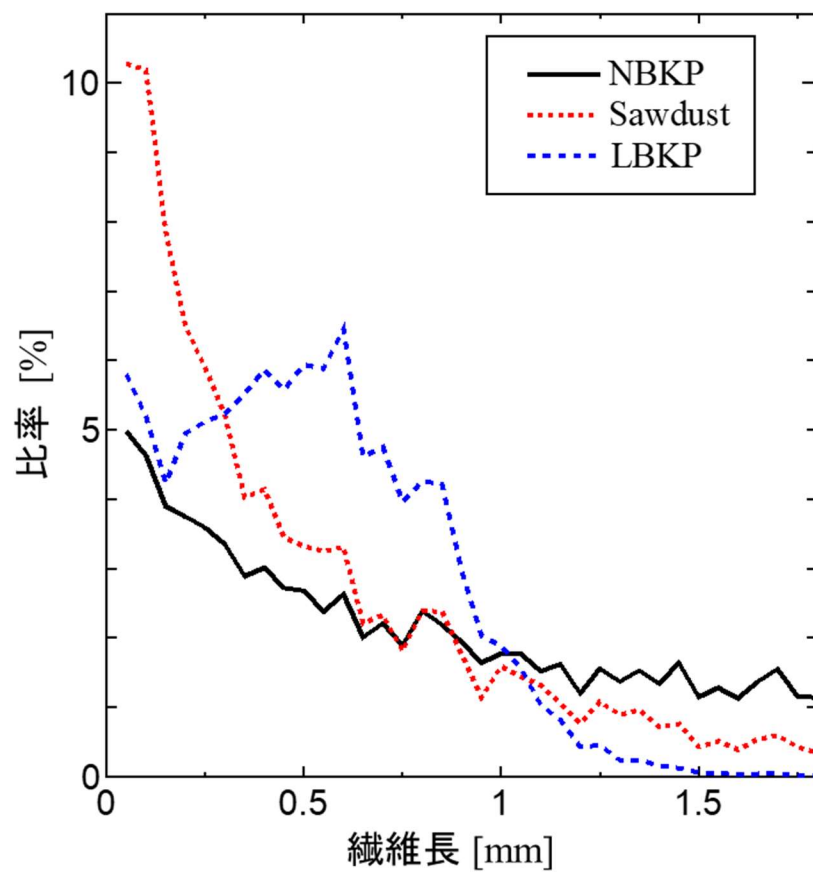


図 3.1 各パルプの繊維長分布

表 3.3 材料組成

材料 No.	パルプ				結合剤	
	NBKP	Sawdust	LBKP	CP	PVA	澱粉
N-P00	60				0	40
N-P25	60				10	30
S-P25		60			10	30
L-P25			60		10	30
N-P50	60				20	20
N-P75	60				30	10
N-P100	60				40	0
NK70-P00	18			42	0	40
NK70-P50	18			42	20	20
NK70-P100	18			42	40	0

(wt%)

### 3.2.2 強度試験

PIM 成形品は紙と同様に空気中の水蒸気を吸着する特性を有している。成形完了直後ではほぼ絶乾状態であるが、徐々に大気中水分を吸収し、23°C、50%RH では約 7～9 wt%程度で平衡状態となる。そこで、各相対湿度下における引張強度の変化を確認するため、3 種類の湿度下(23°C、26, 50, 75%RH)に 24hr 放置した後、引張強度試験機 TENSILON UTM-III L (東洋ボールドウィン(株))を用いて測定を行った。試験片形状は JIS K 7162 1B 型、厚さ 1 mm (図 3.2)を使用した。引張試験は、つかみ具間隔を 60 mm で試験速度を 10 mm/min とし、4 回試験を実施しその平均値を求めた。また、サンプルの含有水分率を算出するため、強度試験後に絶乾させ、測定サンプルの重量を計量している。

### 3.2.3 吸水変形量測定

吸水変形量測定に用いたサンプル形状を図 3.3 に示す。厚さ 3 mm の矩形形状試験片を使用し、23°C、50%RH 下で 24hr 水道水に浸漬させた後、成形品の固定側面を下にし、ゲート側を接地させて流動末端側が上昇する値を計測した。



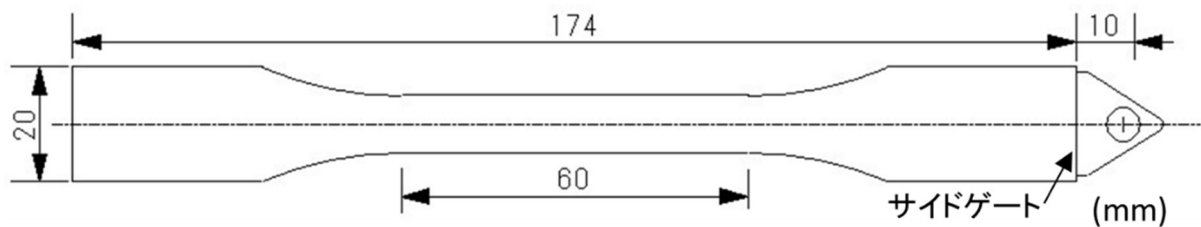


図 3.2 引張試験サンプル形状 (t= 1 mm)

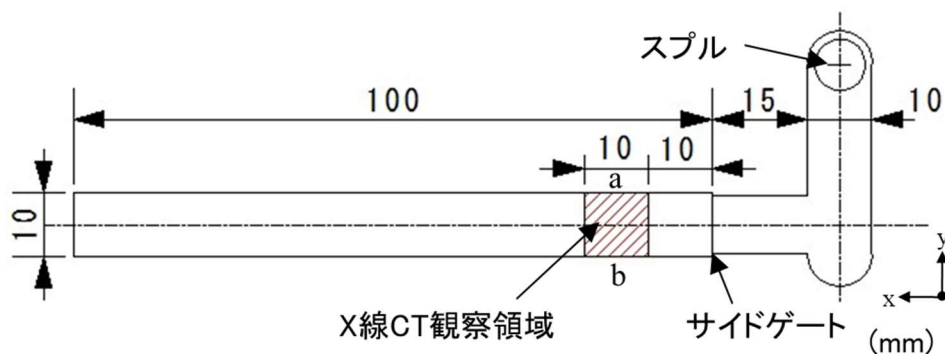


図 3.3 吸水変形量測定用キャビティ形状と X 線 CT 測定位置(t= 3 mm)

### 3.2.4 内部空隙観察(X 線 CT)

内部空隙の強度への影響と吸水変形量への影響を確認するため、X 線 CT による撮影を行った。X 線 CT による観察位置を図 3.3 (t= 1.0 mm)、図 3.4 (t= 3.0 mm)の斜線部に示す。強度試験に用いた厚さ 1 mm の試験片では主に空隙発生の状態を観察した。吸水変形量測定に用いた厚さ 3 mm の試験片では、空隙の形状や分布状態の確認とボリュームレンダリング(VR)を用いて内部空隙の数量と体積、生成形態を比較した。使用撮影装置は、マイクロフォーカス X 線 CT 装置 SMX-130CT (株式会社島津製作所)で、撮影条件を放射条件 40 kV,160  $\mu$ A, 平均回数 4 回, ビュー数 1200 とした。CT によって作成された連続断層画像を、VG Studio MAX (日本ビジュアルサイエンス株式会社)にて VR を行った。また断面観察での各断面の呼称について図 3.5 のように定義する。

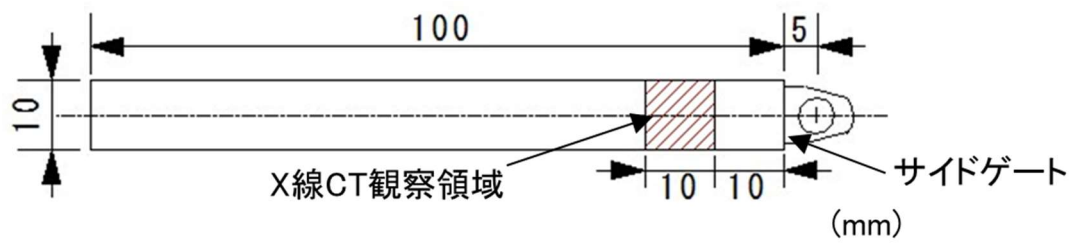
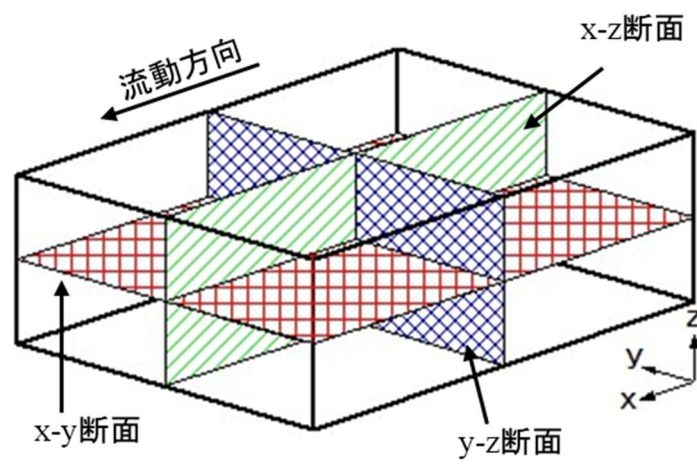
図 3.4 X 線 CT 測定位置 ( $t=1$  mm)

図 3.5 X 線 CT による各断面の名称

### 3.3 実験結果および考察

#### 3.3.1 繊維長，PVA 配合率と強度の関係

図 3.6 に、繊維長による引張強度の測定結果を示す。引張強度は、平衡水分量が低く低湿度の場合の方が、より大きな強度を示している。これは、水分を吸収することで澱粉、PVA の水素結合が弱まり接着能力が低下するためと考えられた。また、繊維長の影響では N-P25 が最も強く、紙と同様に、繊維が長いほど繊維同士の絡み合いが広がり、引張方向に対する強度が上昇したものと推察された。

PVA 配合率を変化させると、水分の吸収量も影響を受けることが予想された。そこで N 系と NK 系について、23°C、50%RH の恒温恒湿下で 24hr 放置後の平衡水分率と PVA 配合率との関係を調査した。結果を図 3.7 に示す。いずれの材料系でも PVA の配合率が上昇すると平衡水分率が低下することが確認され、主に結合材の澱粉が水分を吸着していることが示唆された。また、繊維長を変化させても、平衡水分率はほとんど変化しないことも確認された。

図 3.8 に、N 系と NK 系についての PVA 配合率による引張強度変化の測定結果を示す。当初は、PVA 配合率が増えるほど強度が単調に増加するものと予測されたが、N 系・NK 系ともに、PVA 配合率 20 wt% のときに強度が最も大きくなることが明らかになった。これは、PVA 高配合率の場合には、PVA の溶融に必要な十分な水分量が与えられなかったことに起因するものと考察された。すなわち、澱粉、PVA などの水溶性結合材は、水を吸収し溶融（澱粉は糊化）することによって結合力を発現する。しかし、本実験での水分量（材料水分率で 40 wt%）では PVA 粒子の溶融が不完全となり、表層部のみ溶融した半溶融状態で残留して十分な結合力を発現するには至らない。その結果、PVA 配合率 20 wt% までは PVA の増量による結合力が増加するものの、それより大きな領域では、逆に未溶融の PVA 粒子の比率が増加し強度低下が顕在化することとなる。これにより、20 wt% 近傍にピーク値が形成されたものと推察された。

以上の考察を検証するため、強度が低下した N-P100 材（PVA 配合率 40 wt%）に水を加え、材料水分率を 40 wt% から 49 wt% に増加させて同様に成形したところ、重量比引張強度が 15.4 MPa/g から 21.1 MPa/g と大きく上昇した。すなわち、PVA 配合率増加での強度低下の原因は、材料水分量不足であることが明らかになった。

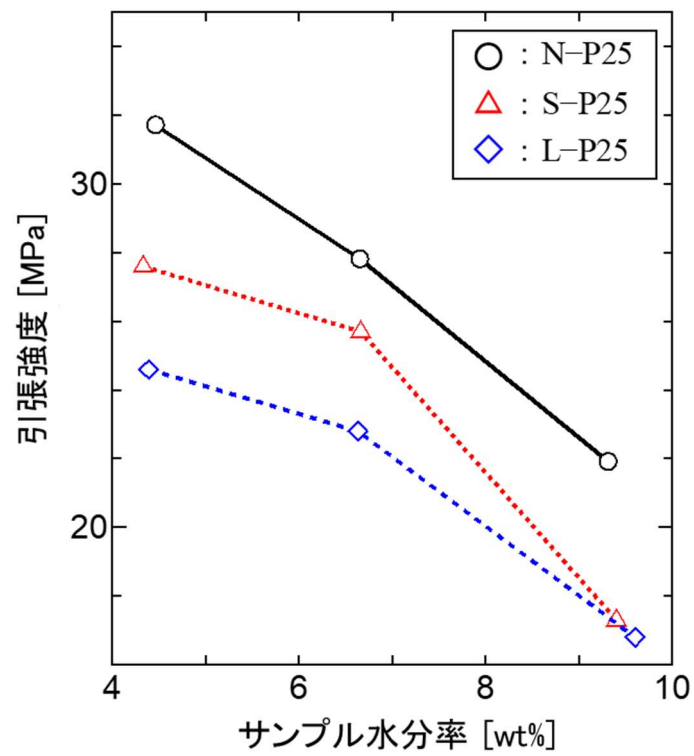


図 3.6 サンプル水分率と引張強度の関係

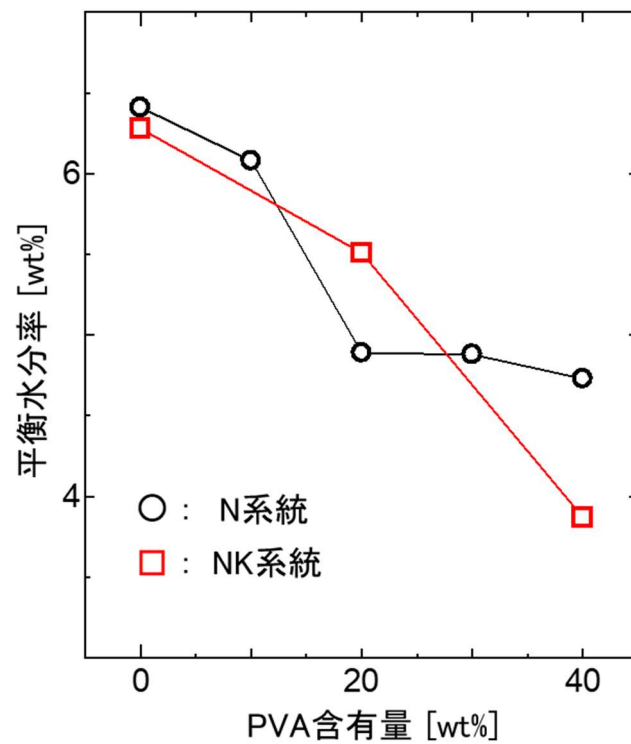


図 3.7 PVA 含有量と平衡水分率の関係

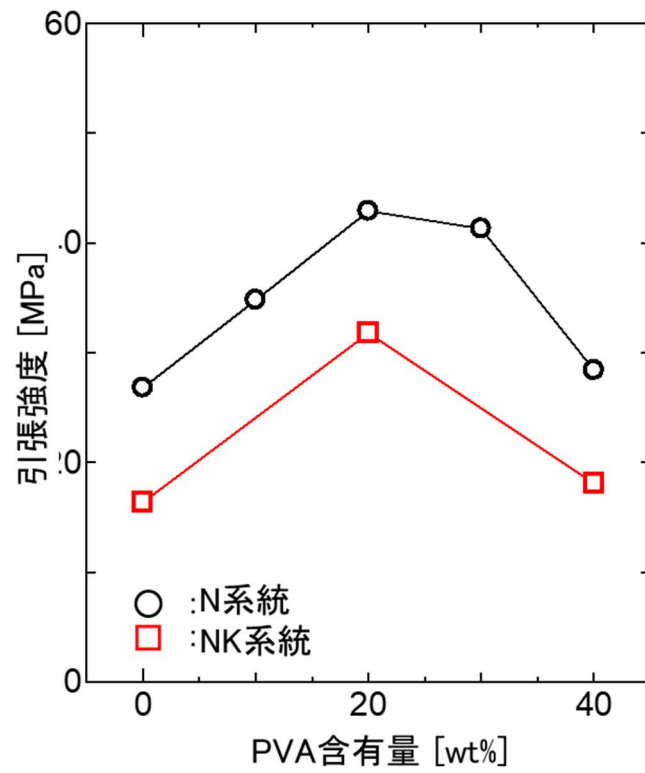


図 3.8 PVA 含有量と引張強度の関係

### 3.3.2 各材料と内部空隙生成の様子

PIM の内部空隙は，金型開閉動作を行わない場合には生成しないことが，前章で明らかとなっている．すなわち内部空隙は成形材料充填完了後に金型開閉動作を繰り返すことによって生成する．N-P25, N-P50, NK70-P50 における内部空隙の様子を図 3.9 に示す．PVA 配合率を変化させた N-P25 と N-P50 では，x-y 断面は中心部から湧き出すように筋状の空隙が生成されている．また x-z 平面では，両者ともに板表面に沿う方向に大きな割れ目が層状に形成される様子が確認でき，特に N-P50 ではその割れ目厚さが増大を示していた．これは，PVA 配合率が多い N-P50 では結合剤によるパルプ繊維間の結合強度の上昇を背景として，水蒸気圧による微細な空隙生成が抑制され固体領域の密度が高くなる一方で，蒸気圧が局所的に集中する領域には，広い空隙が偏在して生成しやすくなったためと推察される．また CP 配合により繊維長を大きく変化した NK70-P50 では，針葉樹ベースの N-P50 とは大きく異なり，空隙が筋状ではなく球状で形成され成形品全体に一様に分布している様子が確認された．これは，CP がほぼ粉末状であるため，繊維配向性が低くパルプ繊維同士の絡み合いも低下したためと考えられた．以上の結果より，内部空隙の形状や大きさは，パルプ繊維の形状と結合剤の配合率，充填過程で形成される繊維配向状況により規定されることが理解された．

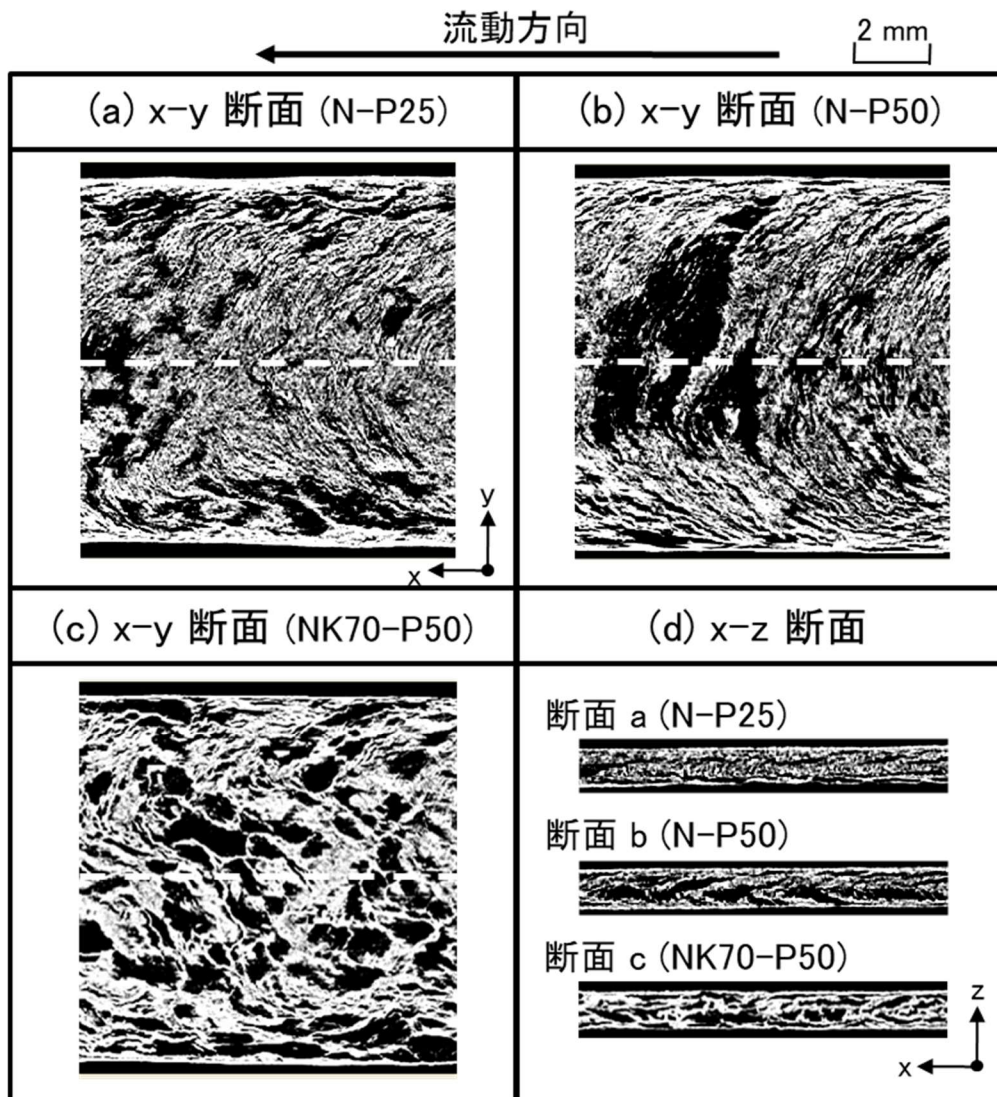


図 3.9 成形材料の違いによる x-y 断面と x-z 断面の違い



## 3.3.3 内部空隙と吸水変形量

PIM 成形品は、木材のように吸水すると成形品の寸法が増大し、乾燥すると寸法が収縮する。吸水や乾燥により、成形品の変形が発生するため、使用場所が限定されるという問題があった。特に図 3.3 のような矩形状の成形品において、成形品の可動側と固定側で吸湿時の膨張に違いが生じ、成形品固定側面を接地させたときに、流動末端が持ち上がる現象が観察された。また、材料配合により成形品の変形状況に違いが確認されたため、ここでは材料配合と吸水変形量の関係について調査した。

24hr 水に浸漬させた N-P25, N-P50, NK70-P50 の各成形品の変形量は、N-P25 で 40 mm 以上、N-P50, NK70-P50 ではそれぞれ 7.2 mm, 4.7 mm と大きな差異が生成した。この結果より、PVA 配合率の増加が吸水変形防止に最も有効であることが理解された。NK70-P50 は N-P50 より変形量が少なかった。そこで、両者の成形品内部を X 線 CT

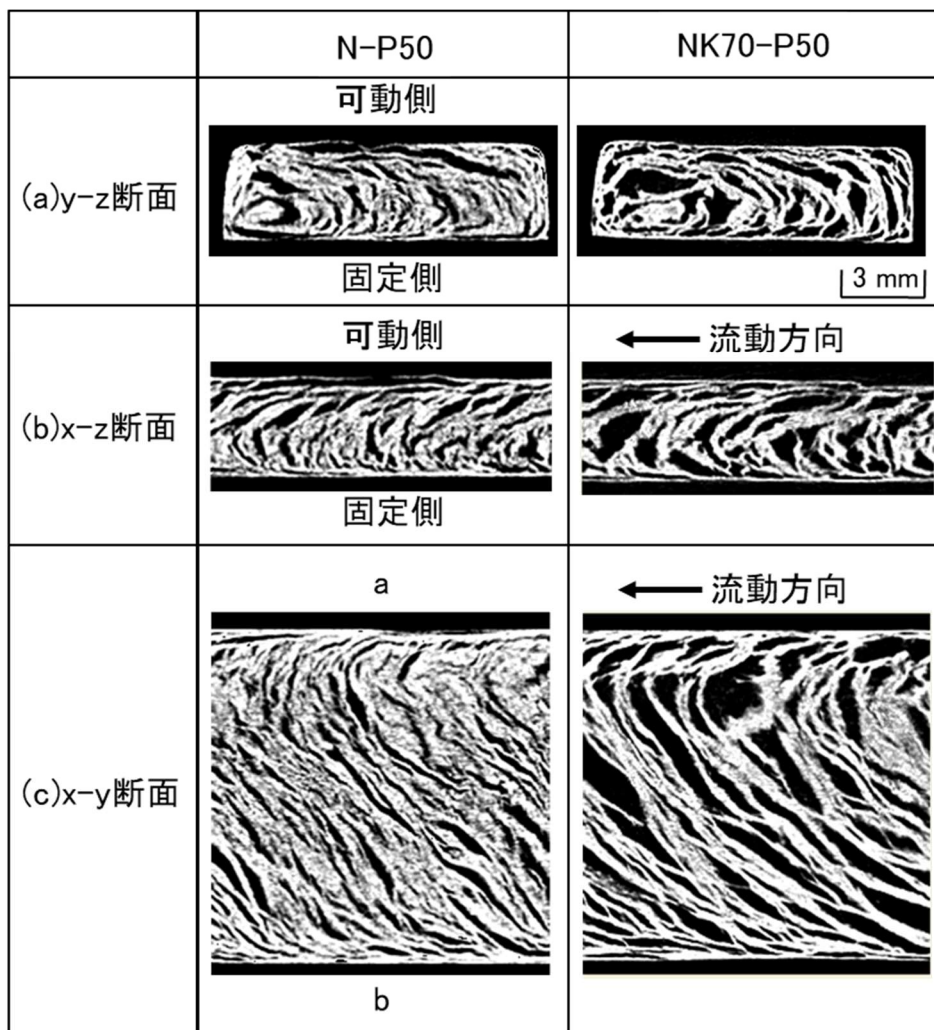


図 3.10 X 線 CT を用いた成形品の断面図



により観察した。観察結果を図 3.10 に示す。NK70-P50 は、N-P50 より空隙の占める面積が大きい。また空隙形状は N-P50 同様に細長いものの、空隙厚さは増大している様子が観察された。ただし、製品厚さ 1 mm の観察結果 (図 3.9) と異なり、例えば x-z 断面では幅方向に広がる層状の空隙が固定側に寄っており、x-y 断面でも a 側に遷移するなど、ランナ部が 90 度屈曲している影響 (図 3.4 参照) が読み取れる。また図 3.9 では一様に球状の空隙が分布していた NK70-P50 が、厚さ 3 mm では図 3.10 のように幅方向あるいは厚さ方向に大きく広がる層状の空隙を形成していた。これは、もともと繊維結合力の低い NK70-P50 では、生成した高圧の水蒸気が、肉厚増を背景として成形品内部の生成組織を容易に分断し、板厚・幅方向に侵入・拡大するため、広く明瞭な多重の空隙組織を形成したものと推察された。

さらに空隙の生成状態を詳細に検討するため、 $10 \times 10 \times 3$  [mm] のサンプル内の全空隙体積を VR により求めた。各サンプルにおける空隙体積率は、N-P50 で 24.1%、NK70-P50 では 44.5% と算出され、後者は前者の約 2 倍の空間を内包していた。成形品の密度は N-P50 で  $0.59 \text{ g/cm}^3$ 、NK70-P50 では  $0.57 \text{ g/cm}^3$  と変化がなく、これより NK70-P50 は、空隙部を除く母材密度が N-P50 よりも高いものと推察された。次に、各空隙の体積を 0.001 以下、0.001~0.01、0.01~0.1、0.1~1、1~10、10~100 [mm<sup>3</sup>] の 6 段階に分類し、それぞれの空隙個数を計数して図 3.11 に示した。両サンプルともに体積の小さい空隙が多く分布し、特に N-P50、1 mm<sup>3</sup>/個以下の領域ではより多くの空隙が観

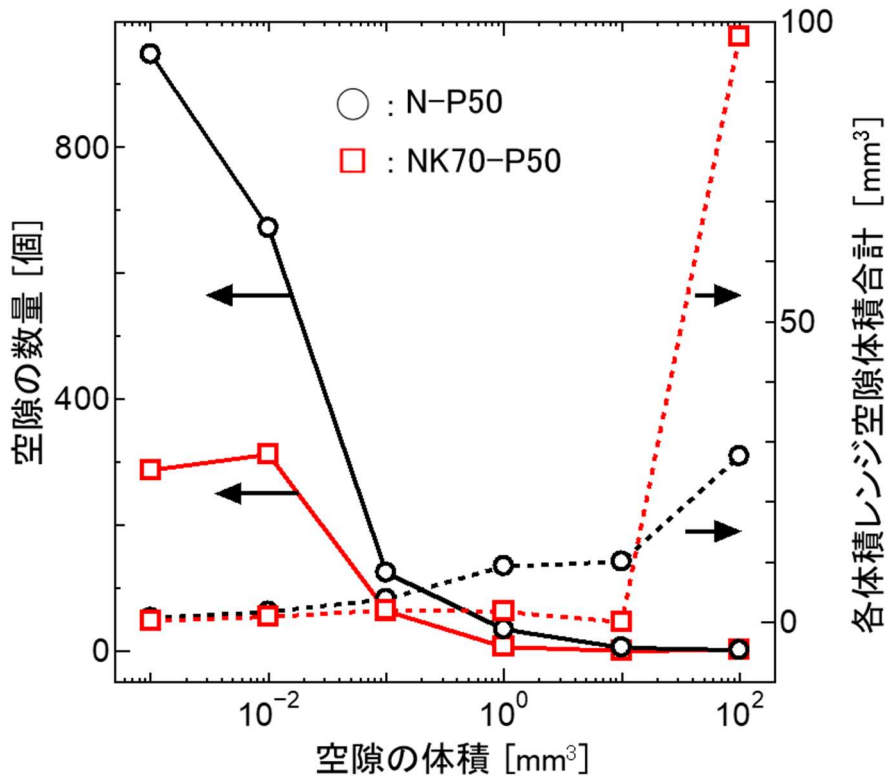
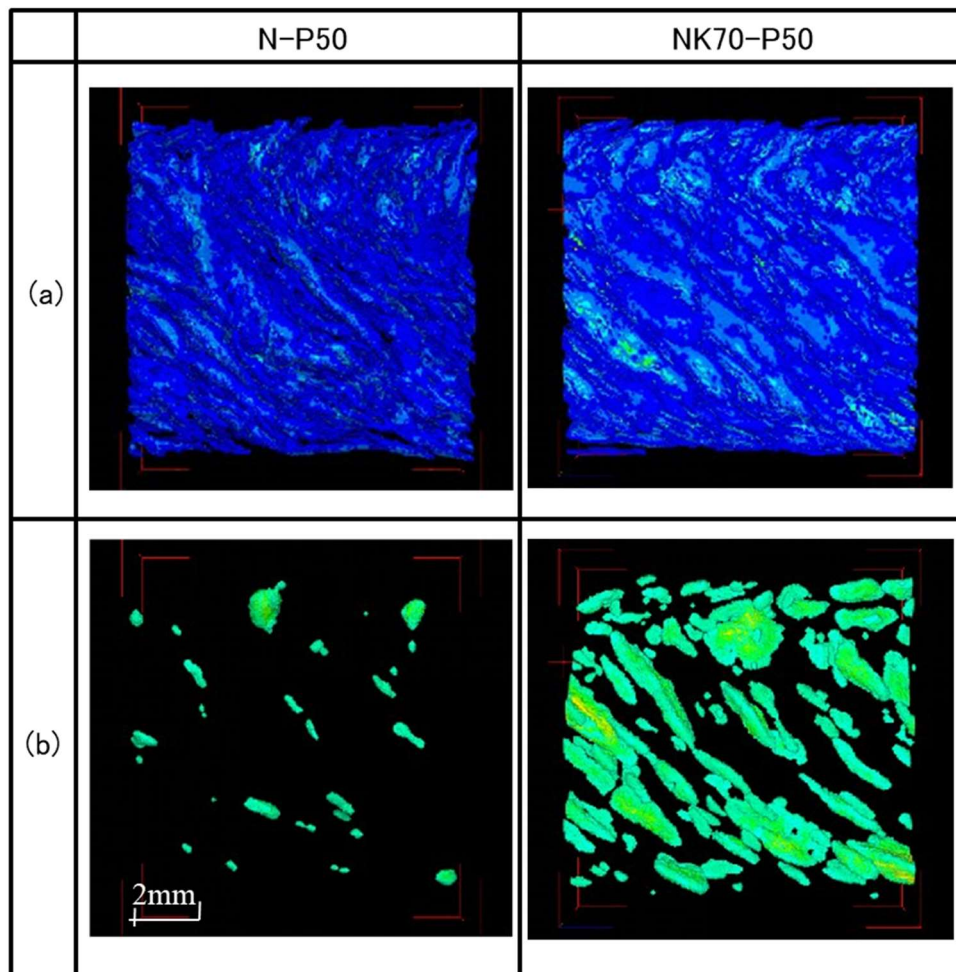


図 3.11 N-P50 と NK70-P50 の空隙体積分布 (対数表示)

察された。空隙体積  $1 \text{ mm}^3$  / 個以上の領域では、個数分布には大きな相違が確認されなかったものの、区分ごとの当該空隙の総体積を求めて比較すると大きな差異が確認された。すなわち、NK70-P50 では  $1 \sim 10 \text{ mm}^3$  / 個の総体積が  $10 \text{ mm}^3$  であったものが、 $10 \sim 100 \text{ mm}^3$  / 個では同  $100 \text{ mm}^3$  と急激に大きくなっている。これは、NK70-P50 では大きな空隙がより多く分布していることに対応した結果と考えられた。次に、各空隙について最大厚さの計測を行い、成形品内部での空隙生成状態を調査した。図 3.12 に各空隙厚さを色分け表示した結果を示す。(a)は全空隙を、また(b)は最大空隙厚さ  $15 \mu\text{m}$  以上のみを表示している。NK70-P50 と違って、N-P50 では薄い空隙が大半を占めること、一方 NK70-P50 では厚い空隙が成形品全体に一様に分布している様子がそれぞれ明瞭に観察された。



(a)全空隙表示, (b)空隙厚さ $15 \mu\text{m}$ 以上表示

図 3.12 z 方向から観察した空隙分布

最後に、水に浸漬前と浸漬後の内部空隙の状態変化について検討を行った。図 3.13 に N-P50 と NK70-P50 の浸漬前と浸漬後 3hr 経ったサンプルの x-y 断面を比較した。両者とも浸漬後には、サンプル内の空隙領域が減少している様子が観察された。NK70-P50 の変形量が N-P50 より少なくなることは、上述した通り浸漬前の空隙体積が N-P50 より大きいため、浸漬後の母材が膨潤することによる体積膨張を、部材内部に分布する内部空隙で吸収し易くなることに起因すると考えられた。

ここでの変形方向は、やや螺旋状に捻じれつつも、主には固定側から可動側への板厚方向(板面と垂直方向)への反りである。上記の母材膨張の吸収が変形を抑制すると仮定すると、板厚中央で等分割した可動側・固定側の半分割サンプルでは、空隙体積に差が生じている可能性が考えられた。空隙率の計算では、N-P50 では固定側 24.5%、可動側 23.8%、NK70-P50 では固定側 43.4%、コア側 44.2%と、いずれも両者に大きな差は確認されなかった。この結果は、矩形形状の浸漬時吸水変形は、空隙体積の板厚方向の偏りによるものではないことを示すもので、むしろ図 3.10 (b)で観察されたように、U 字状の空隙形状が固定側に偏った板厚方向の非対称空隙分布に起因するものと推察された。また 3.3.2 項でも示された母材部分の繊維の配向性とそれによる吸湿時の膨張率・保持強度も影響していると考えられる。以上の結果より、吸水時の変形を低減させるためには、① PVA 含有率の増加、② 繊維配向性の低減、③ 内部空隙の総体積の増加 (強度が保持される範囲内)、④ 内部空隙の均一・対称分布の生成、以上が重要であることが示唆された。

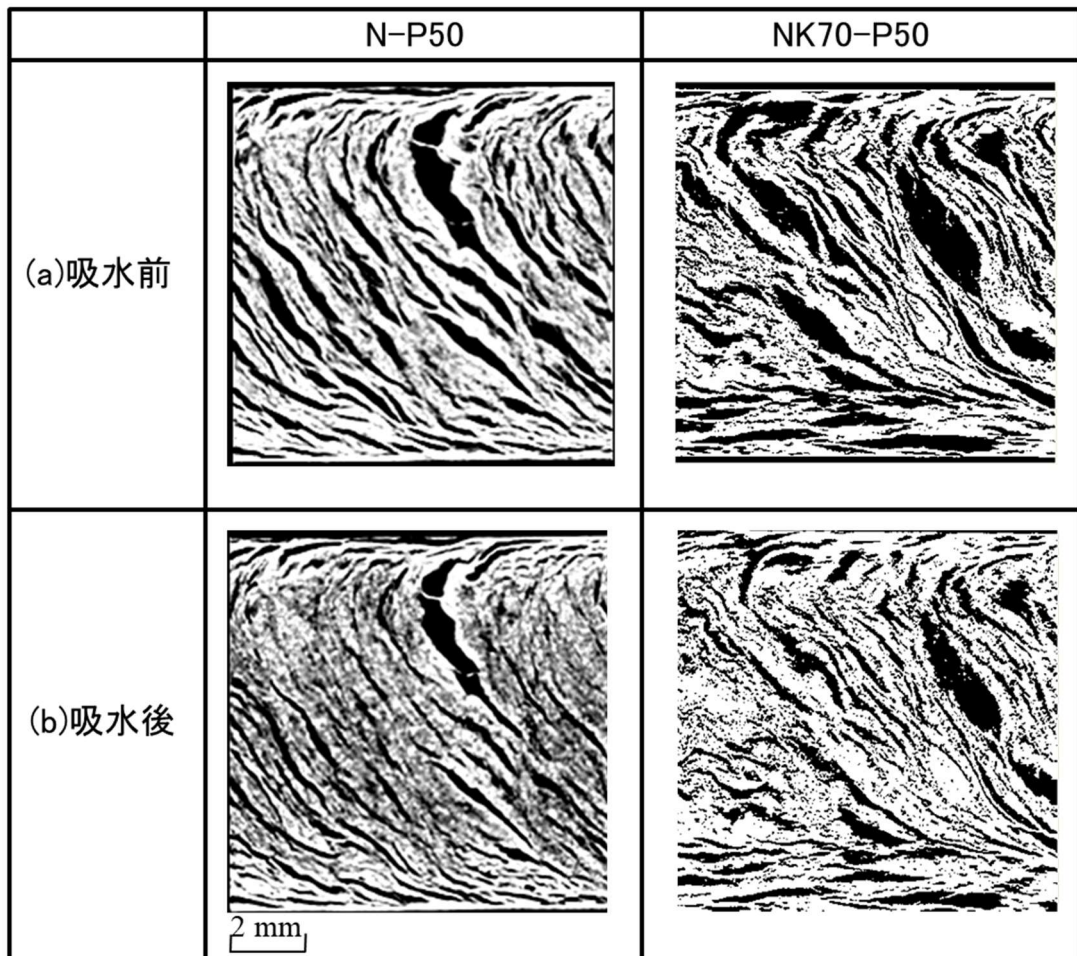


図 3.13 吸水前と 3 時間吸水後の空隙の違い (x-y 断面)

### 3.4 結言

本章では、4種類のパルプ繊維長、澱粉とPVAの結合材配合率が、パルプ射出成形品の引張強度特性、および内部空隙の数量と体積、生成形態に与える影響について検討を行なった。以下に検討結果を要約する。

- (1) パルプ平均繊維長が長いほど引張強度は上昇する傾向が示された。
- (2) 結合剤のPVAと澱粉の総量を一定とした場合、PVA配合率の増加にともなって強度は上昇するが、20%程度でピークを形成しその後は低下を示した。これは結合剤の溶解に必要な水分量が澱粉よりPVAでより多いため、PVAが20wt%では結合力の大きなPVAの未溶解部が増加し、逆に強度低下を引き起こしたと推察された。
- (3) 内部空隙の形態は、短い繊維長では球状となり成形品全体に一様に分布する。長い繊維長では、流動に直交する繊維配向特性を反映して、配向方向に沿う薄い筋状の空隙を生成させることが明らかとなった。
- (4) 吸水による成形品の変形量は、PVA配合率が増加すると大幅に低下する。また同じPVA配合率でも短い繊維長では、繊維配向性の低減(膨張率の異方性低減)ならびに生成空隙の総体積の増大と均一な分布(吸水膨張ひずみの内部吸収)のため、吸水時の変形量がより低下することが確認された。

パルプ射出成形品では、リブ設置等の成形品形状因子の検討により強度の改善は可能であるものの、コーティング等を行わない限り吸水による変形を回避することは本質的に困難である。上記の研究成果を踏まえると、繊維配向と吸水によるパルプ射出成形品の変形を抑制するためには、平均繊維長を多少抑えたパルプを使用する一方でPVA配合率を増加させ、それによる強度低下を補う方策が、実用上有効であるものと推察される。

---

# 第4章 金型内流動挙動の静的可視化 解析

---

4.1 緒言 .....	70
4.2 実験方法 .....	71
4.2.1 パルプ射出成形における着色マーキング可視化手法の提案 .....	71
4.2.2 成形条件と実験測定方法 .....	74
4.3 局所肉厚増加領域 A における流動挙動 .....	76
4.3.1 ラインマーキング方法と実験条件 .....	76
4.3.2 リブ領域の流動挙動 .....	76
4.3.3 局所肉厚増加領域の流動モデル .....	80
4.4 局所肉厚減少領域 B における流動挙動 .....	82
4.4.1 ポイントマーキング方法と実験条件 .....	82
4.4.2 溝領域の流動挙動 .....	82
4.4.3 矩形穴部近傍の流動モデル .....	87
4.5 結言 .....	90

---

## 4.1 緒言

PIM 成形材料は、水分を含んだ結合剤（澱粉・PVA）がシリンダ内部で 100°C前後に予備加熱され、さらに金型内で 180°C前後まで加熱される過程で大きく粘度低下を引き起こし、パルプ繊維同士の摩擦を軽減させることにより、流動が実現する。一方、流動過程では乾燥が局所的な粘度上昇をもたらす。以上の成形過程は熱可塑性樹脂の成形過程と大きく異なるため、成形不良現象も材料由来の独自現象が多い。樹脂用の汎用流動解析手法は PIM には適用できず、PIM の適用を広げるために必須の流動予測技術の確立には、流動現象の解明とモデル化が必要となる。それと同時にそのための実験解析手法の開発が求められていた。

第2章では、PIM 材料の流動特性を明らかにするため、バーフロー形状の流動性評価金型を新規に製作し、流動特性に与える金型温度、水分率、材料成分等の影響について評価実験を行った。さらに、特定の成形材料による基本特性を評価し、成形品内部構造の観察、環境湿度と機械的諸特性との相関解析、吸水性の評価実験をそれぞれ実施した。また、第3章では、パルプ繊維の長さや澱粉・PVA が PIM 成形品に及ぼす影響について、引張強度の評価と成形品内部に形成される空隙の形状、数量分布、空隙体積を定量評価することにより、それぞれ具体的に明らかにした。このデータは品質を極める条件の一つなので、実際の量産時に基本データとして使用されている。

しかしながら、品質は成形材料だけで決まるのではなく、成形材料が金型内部に充填する過程で生成されていることは、実成形からの経験上では自明であった。そのため、PIM 材料が金型内部での流動する様子については、これまで解析が行われていなかった。PIM では、特に局所的な肉厚変動領域(肉厚増加領域としてのリブ領域、肉厚減少領域としての部分薄肉領域)において材料流動形態が大幅に変化し、PIM 成形品に割れやウェルドライン等の不良発生が確認されている。こうした現象を解明するために、本章では、まず金型内部の材料流動挙動の着色マーキング法による静的可視化手法を新たに提案する。また、同手法を用いて、流動途中に単純な肉厚変動領域を設けた矩形キャビティにより、成形不良現象の発生条件を系統的に調査し、材料流動挙動と成形不良現象との相関ならびにそれらの生成機構の解析を行った。



## 4.2 実験方法

### 4.2.1 パルプ射出成形における着色マーキング可視化手法の提案

PIM 材料流動挙動を解明するために、これまでに① プラスチックの静的可視化手法(ショートショット法) [Hieber 1983], ② 熱電対・圧力センサの多点計測による流動挙動の推定手法(第2章参照), ③ ガラスインサート金型を用いた動的可視化手法[横井 2008]の適用が試みられてきた。しかし、以下の課題に直面していた。①ではフローフロント近傍の材料が内部の水蒸気により破裂・分断されるため、流動途中の形態を温存できず、流動パターン抽出が困難であった。②はフローフロントがセンサを通過する時間の情報しか得られず、詳細な流動挙動の解明には不十分であった。③では、キャビティ面から加熱する必要があるため、ガラスは側面部にしか設置できず、肉厚方向の側面方向観察のみが可能である。側面方向観察では、板幅方向の材料の広がり確認できないほか、流動中の PIM 材料が不透明なために成形品内部の材料流動についても観察できなかった。以上のことから、PIM 材料の流動挙動を解明するためには、金型内での流動挙動を詳細に可視化できる手法の開発が強く求められていた。

PIM 材料の流動挙動は、熱可塑性樹脂における噴水流れではなく、滑り流動が支配的であることが、上記③の可視化金型による肉厚方向観察結果によりすでに明らかになっていた[横井 2008]。滑り流動では、金型壁面の一部に加熱により固まらないマーカを塗布した場合に、当該場所を開始点として下流側方向へと同マーカが引き伸ばされることが期待される。この考え方を検証するために、矩形キャビティ(50×200×1 [mm])でゲートから約 50 mm 離れた位置にマーカを塗布し、その流動軌跡を観察した。図 4.1 に成形品の外観を示す。マーカは、塗布位置から下流側へとほぼ直線的な筋を描いて残留していた。これより、材料通過時から流動終了まで、一度成形品表面を濡らしたマーカは、流動過程を通して成形品表面で引き伸ばされていくことが

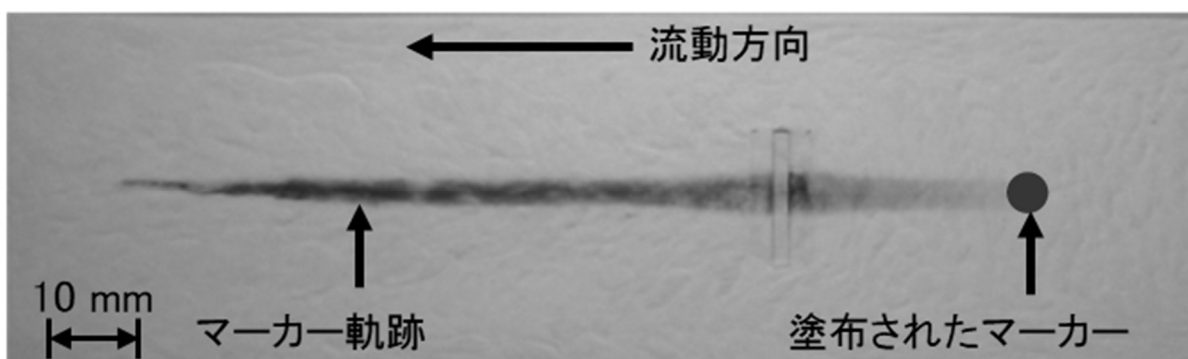


図 4.1 塗布されたマーカが滑り流動により引き伸ばされた例



確認され、PIM材料が噴水流れではなく滑り流動の形態を保持しつつ流動することが検証された。逆に、この現象を利用することにより、成形品に残留するマーカー軌跡をトレースする静的な可視化手法として、流動過程の材料挙動を簡便に調査できる可能性が示された。図4.2(a)に材料流動が大きく変化する厚さ変動領域での、表面部の材料流動挙動を示す。リブ部表面の上流側にマーカーが現れていることが理解され、リブ後方でマーカーが乱れている様子が確認された。また、図4.2(b)に図4.2(a)リブ内部のマーカーをX線CTにより抽出し、3次元で表示した事例を示す。マーカーに金属粉末(例えば、アルミニウム粉末等)を分散させることでX線CTにより容易にマーカー領域を抽出でき、非破壊で成形品内部のマーカー軌跡が観察可能となる。表面近傍を流れる材料が成形品の内部にどのように侵入するかについて、マーカーの軌跡を読み取ることにより内部の流動挙動が解明できるものと期待された。

なお、図4.2(a)のリブ部上流には一様に着色マーカーが確認されるものの、図4.2(b)ではリブ部上流の表面部には赤色のマーカーが確認されず、着色された領域とX線CTで抽出したマーカー軌跡は完全には一致しないことがわかる。これは、X線CTの解像度が $8\mu\text{m}$ であり、表層の金属成分では堆積量が少ないため検知できず、表示されていない。一方、滑り流動で成形品の表面に付着して移動する過程では、成形品内部には流動に伴う金属表面のような平滑な界面がないため、流入した箇所の流線に沿って堆積しやすく、X線CTでは堆積量が多くなり検知されると考えられる。

油性マーカーには、一般組成として有機溶剤、顔料、樹脂(アクリル等)、添加剤が含まれている。有機溶剤は金型に塗布した瞬間に揮発するが、残りの顔料と少量の樹脂が金型壁面に残留する。流動中の材料が、キャビティ面上のマーカー箇所に到達すると、マーカー内の残留成分、すなわち一部溶融した樹脂(非開示)が界面に付着し滑り流動を誘発することにならないかが懸念された。しかし、マーカーを塗布していないときの流動状態と比較すると、同じ位置にウェルドラインや割れが生成していることから、流動に及ぼす影響はないものと評価できる。

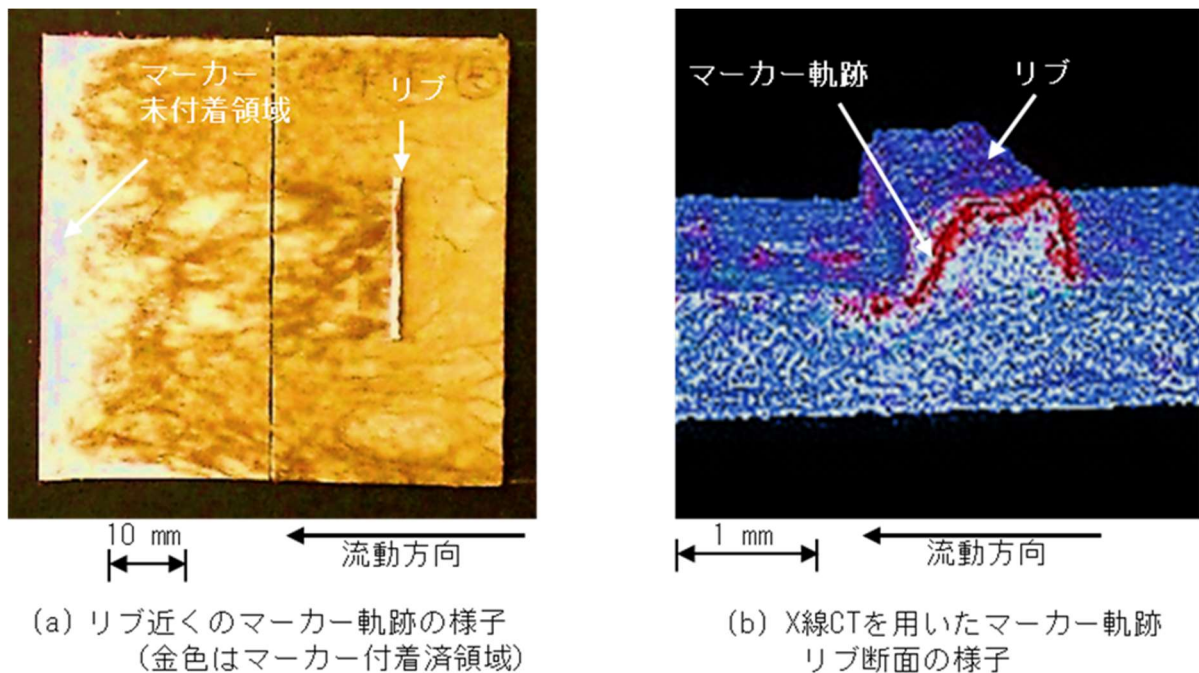


図 4.2 Al パウダー入りマーカー軌跡の観察結果

以上より、滑り流動が支配的な PIM 材料の流動現象の解明に、新たに提案する着色マーキングの可視化法の有用性が実証的に示唆された。着色マーキング可視化手法は、自由なパターンでマーキングできる特長がある。以下の成形実験での適用においては、広範囲で材料流動挙動を解析する目的で帯状にマーキングする方法と、キャビティ内の一点を通過する材料がその後どのように流れるかに注目し点状にマーキングする方法、以上の2つの方法を用いることとする。前者をラインマーキング法、後者をポイントマーキング法と呼称する。ラインマーキング法は、キャビティ幅全域を横断するように帯状にマーカーを塗布する方法である。これによりキャビティ全域にわたる全体的な材料流動挙動が確認でき、ウェルドラインの予測や材料流動の遅延現象の確認を行うことが可能である。一方、ポイントマーキング法は、大きさ $\phi 3\sim 5\text{ mm}$ 程度の点状にマーカーを塗布する方法で、その領域上を通過した材料のみに注目して流動挙動を解析することが可能となる。障害物近傍の迂回流動や肉厚変動領域などでの潜り込み流動現象解析への適用が考えられ、不良現象の予測や解析に有用である推測された。

## 4.2.2 成形条件と実験測定方法

使用した成形材料は、針葉樹パルプを 60 wt%，澱粉を 30 wt%，PVA を 10 wt% の割合で配合したものに、水を加えて重量水分率 35 wt% に調整した材料とした。成形条件を表 4.1 に示す。乾燥工程での型開閉動作は 10 回とした。図 4.3 にキャビティ形状を示す。キャビティは、50×200×1 [mm] の矩形形状で、ダイレクトゲートを使用している。キャビティの可動側において、局所的な肉厚増加領域(リブ A') をゲートから 191 mm の位置に、また局所的な肉厚減少領域(溝 B') を 122 mm の位置に、いずれも流動方向に直交するように配置した。局所肉厚変動領域の寸法は、リブ・溝ともに長さは 18 mm 一定として、図 4.4 の高さ I、厚さ II のリブ形状、深さ III、幅 IV の溝形状を表 4.2 のように変化させて、その影響を評価した。なお、着色マーキング法によるマーカー金属粉の分布計測には、X 線 CT 装置 SMX-130CT (株式会社島津製作所) を使用した。

表 4.1 成形条件

シリンダ温度 (°C)	(ノズル) 90/80/65 (ホッパー)
金型温度 (°C)	180
射出率 (cm <sup>3</sup> /s)	24.6

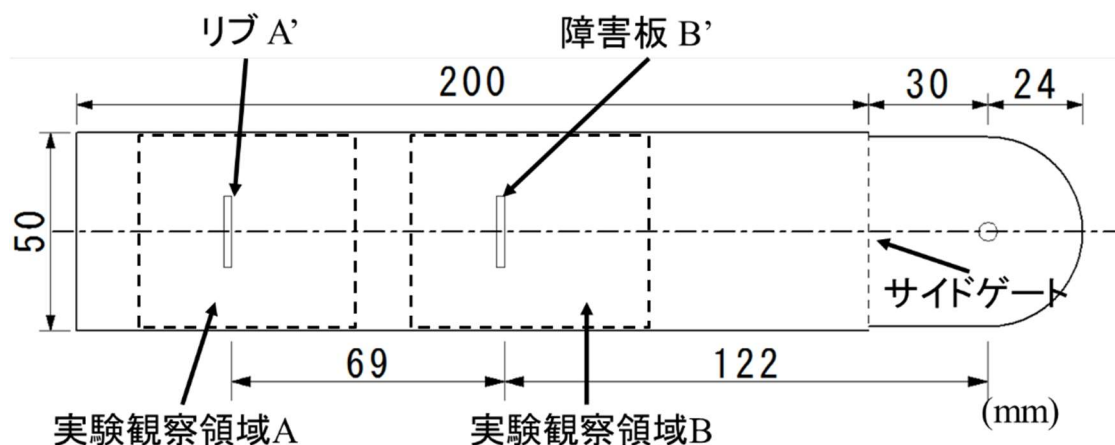


図 4.3 キャビティ形状と実験観察領域の位置

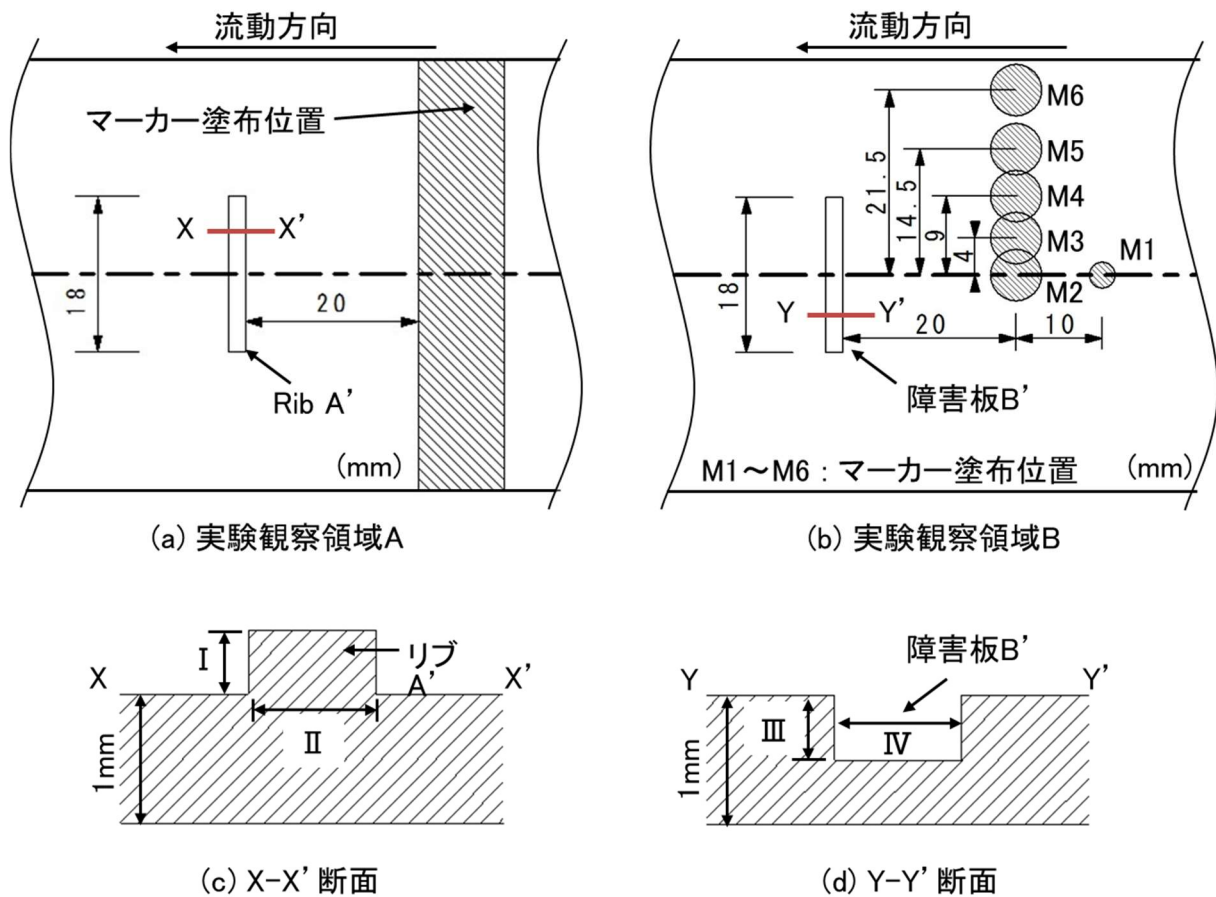


図 4.4 マーカー塗布位置と肉厚変動領域の寸法

表 4.2 リブと障害板の寸法

No.	I	II	No.	III	IV	No.	III	IV
1	0.5	1.0	7	0.5	2.0	13	0.6	4.0
2	1.0	1.0	8	0.6	2.0	14	0.6	8.0
3	2.0	1.0	9	0.7	2.0	(mm)		
4	1.0	2.0	10	0.8	2.0			
5	1.0	3.0	11	0.9	2.0			
6	1.0	4.0	12	1.0	2.0			

## 4.3 局所肉厚増加領域 A における流動挙動

### 4.3.1 ラインマーキング方法と実験条件

実験領域 A は、肉厚増加領域と肉厚変動がない領域を通過する材料に対し、同時に観察する必要があるため、ここではラインマーキング法を使用した。図 4.4 (a)に示すように、アルミニウム粉末入り油性マーカのペイントマーカ-PX-30 (三菱鉛筆株)を用いて、リブ A'の 20 mm 上流側に、金型可動側キャビティの幅方向に横断するように約 10 mm 幅の帯状に塗布した。リブ A'の寸法は、リブ高さ 1.0 mm, 厚さ 1.0 mm を基準として、高さ 0.5, 1.0, 2.0 [mm]と厚さ 1.0, 2.0, 3.0, 4.0 [mm]の中から、表 4.2 の 6 通りの組み合わせ形状を用いて、材料流動挙動を調査した。

リブ内部のマーカ軌跡を X 線 CT により抽出した結果を、リブ寸法高さ 1 mm, 厚さ 4.0 mm を例に 3D 表示して図 4.5 に示す。ここでは、マーカはキャビティの固定側と可動側の両面にライン状に塗布している。マーカ軌跡はリブ手前から奥行き側まで帯状に形成されている様子が理解され、リブ上流側からはリブの先端側に向かって垂直方向に進入し、リブ底面に沿って移動して、リブの出口側ではリブ先端から根元側に向かって斜め方向に傾斜流動する軌跡が観察される。

### 4.3.2 リブ領域の流動挙動

X 線 CT により、リブ中央部を断面観察した結果を、図 4.6 に比較して示す。リブ厚さを一定にしてリブ高さを変化させた(a)~(c)では、マーカがリブ高さ方向にせり出すように迂回しつつ、リブの根元を横断する様子が観察された。また、その迂回する深さはリブ高さに依存せず概ね一定の値を示した。一方リブ高さを一定にして、リブ厚さを変化させた(b)および(d)~(f)では、(b)でリブ先端まではマーカが到達していないものの、リブ厚さが増大するに従って、マーカ軌跡はリブ内部へと深く進入し、厚さ 3 mm の(e)では、マーカ軌跡がリブ先端部まで露出するようになっている。さらに厚さ 4 mm の(f)では、リブ先端部でのマーカ軌跡の露出面積が広がる傾向が示され、そのリブ先端の下流側角部 y では、マーカが表層部に露出せずに内部を横断しつつ板面部へと回帰する様子が確認された。また上記の材料流動に沿って扁平化した空隙が形成され、y とマーカとの界面に沿ってはやや大きな空隙が残留する様子も観察される。成形後のリブ裏面には、(e)と(f)でいずれもノッチ状の窪みが残留している。これは PIM 材料が傾斜してリブ内部に膨張しつつ流入する流動履歴とリブ内部から板面へと回帰する流動履歴との境界に形成されることから、二つの流れの境界に出来る皺状の欠陥と推察される。なおリブ部流入側の角部には z で示される未流動部が形成される。同領域は、流動過程では表層材料の乾燥が進む一方で、流入直後の材料が滑り流動し続け、リブに流入した材料が板面部に回帰する時の流動抵抗が小さいため、完全にリブ角部に充填することはない。また流動停止後には、流入時よりさら

に材料の乾燥が進み、且つ流動過程の圧力分布の影響を受け z 部へ進展するための内部圧力上昇が不足し、結果として未充填のまま取り残されるものと考えられた。

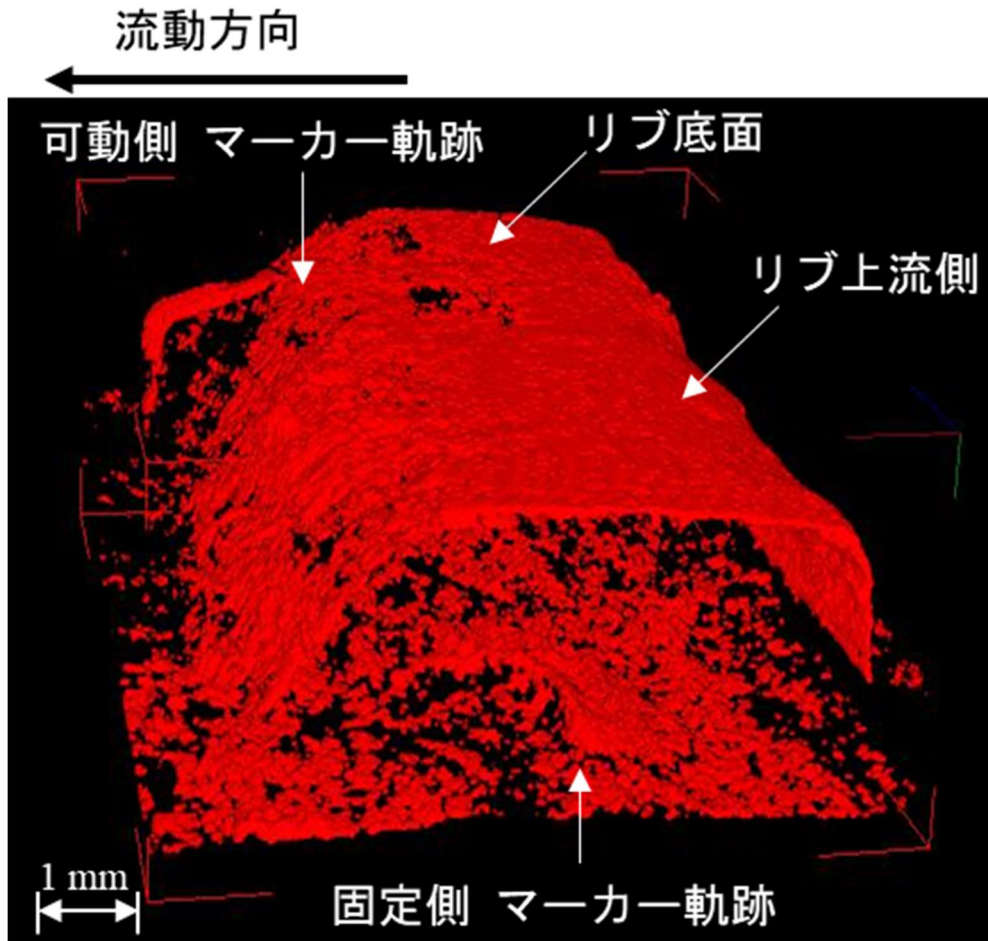


図 4.5 X 線 CT 観察を用いたリブ内部のマーカー軌跡の 3D 表示例



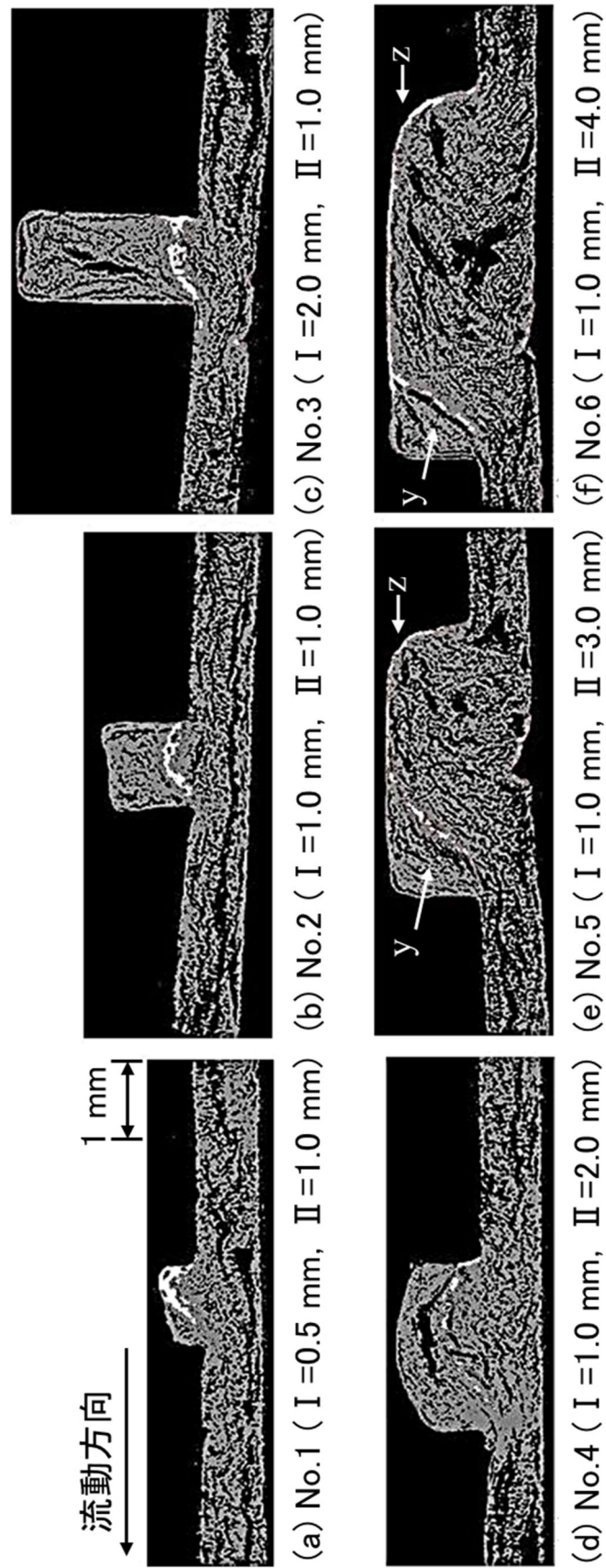


図 4.6 X 線 CT 観察を用いた各リブ寸法におけるマーカー軌跡の比較

リブ A' の寸法の違いによる成形品について、ラインマーキングを施した後の成形品 (リブ側) の外観を図 4.7 に比較して示す。同図の各写真中央の縦筋は、X 線 CT 観察時の切断線である。(a)~(c) のリブ部下流領域では、リブの両側を流れて来た材料とリブ部を通過してきた材料との境界は観察されるものの、いずれもリブ部下流領域の成形品表面にはマーカが一様に分布する様子が確認された。一方(d)~(f) では、リブ部下流領域でマーカ着色パターンが大きく乱れ、またその領域がリブ両側を流れるパターンと比較して大きく遅延している。リブ厚さが増大すると、リブ両側のマーカパターンがリブ下流側へとやや傾斜して流入し始め、また遅延現象がさらに顕著となっている。リブ両側からの傾斜流入は、リブ厚さの増大がリブ領域に流入する材料の分流効果を高め、一時的な材料不足をもたらすためと考えられた。一方、マーカパターン遅延現象の下流側には、無着色材料領域が大きく広がっている。これは、リブ厚さが大きいリブ内部では、図 4.6 の(e), (f) で観察されたように、マーカ付着面近傍の材料がリブ内部の縮小領域にトラップされるため、それまでの表層面滑り流動から内層部の層流へと流動形態が遷移し、結果としてリブ部下流域では内層部側の無着色材料が先行して流動したものと推察された。

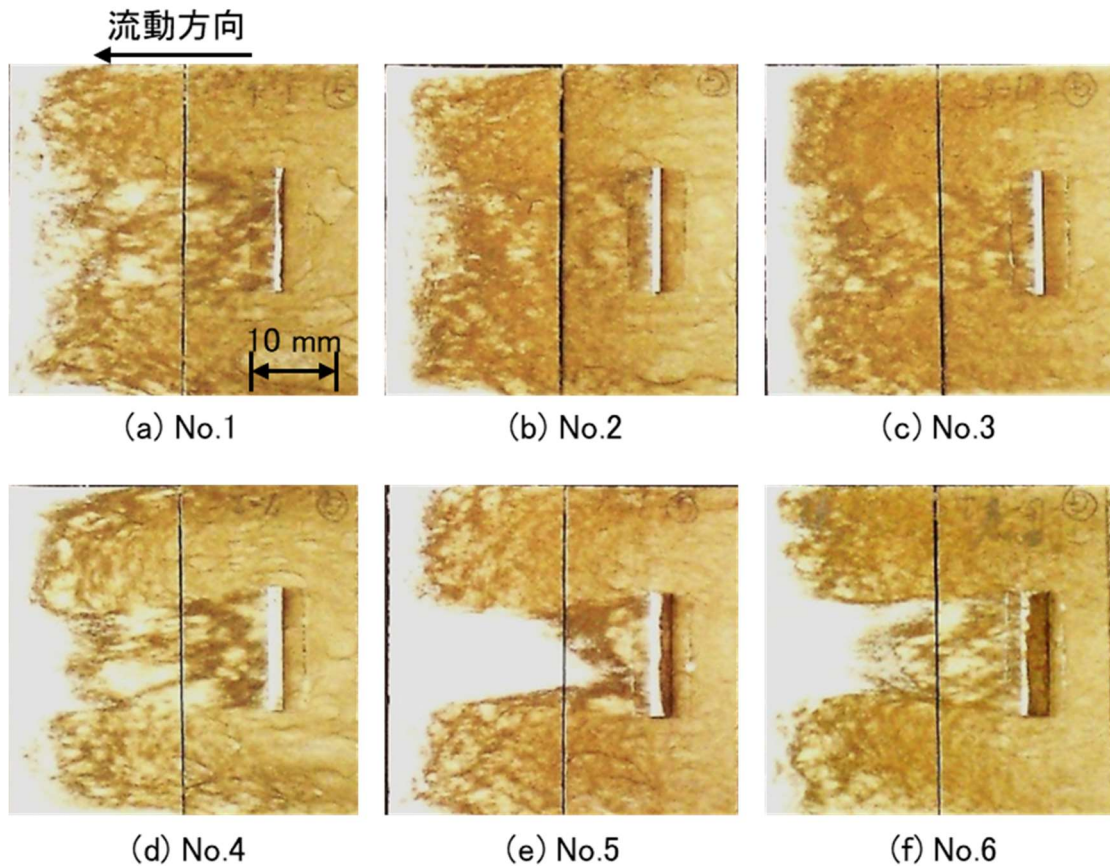


図 4.7 各サンプルマーカ軌跡の上面視の比較



### 4.3.3 局所肉厚増加領域の流動モデル

以上の結果より、推定されたマーカー付着過程のモデルを図 4.8 に、リブ A'内部でのマーカー軌跡の生成モデルを図 4.9 に示す。金型表面に塗布したマーカーの上を PIM 材料が通過しようとする。その際、フロント領域では界面からの気化により材料の乾燥が進行し、厚い滞留領域を形成しつつ流動する。これにより金型壁面から浮き上がるか、あるいは接触圧が小さい領域が広がり、マーカーが付着しにくくなっている。その後、流動先端が通過して内圧が上昇し接触圧が大きくなってはじめてマーカーが表層面に付着すると考えられた。山脇らの先行研究から、PIM 材料がリブ部の拡大流領域に差し掛かると、上記流動先端の滞留・乾燥材料が、リブ側へと倒れこむように傾斜流入を開始することが明らかになっている[山脇 2008][山脇 2009]。これは、金属壁面側で流動過程の PIM 材料が昇温され水蒸気が噴き出すため、その反力として、フロント部分の材料が金属面と接触していない側へと倒されるものと理解されている。それに続くリブ内部から板面部に戻る縮小領域では、傾斜した流動先端がリブの出口部に引っ掛かり、流動先端の形状が変化する。流入時の傾斜角が大きい場合は形状変化も大きくなる傾向が示唆された。リブ部における材料の流動モードは、大別して以下の 2 通りの流動形態に分類されると考えられた。① 拡大流モード；A'の幅Ⅱが大きい場合、A'に傾斜流入した流動先端が出口で引っ掛かり、リブ内部が材料で充満され内圧が上昇するまで、材料がリブから下流側へと流出しない。材料が再流動を開始し始めると、リブ先端角部に最初に流入した未着色材料が取り残され、その内層側を、後から来たマーカー付着材料が通過して行く(図 4.9 (a))。② 通過流モード；A'の幅Ⅱが小さい場合、マーカーが付着していない材料が先に A'に侵入して充満した後は、後から続くマーカー付着材料が、流動先端材料と分断しつつ A'底面部を横断し、リブ内部にはほとんど侵入することなく通過して行く(図 4.9 (b))。

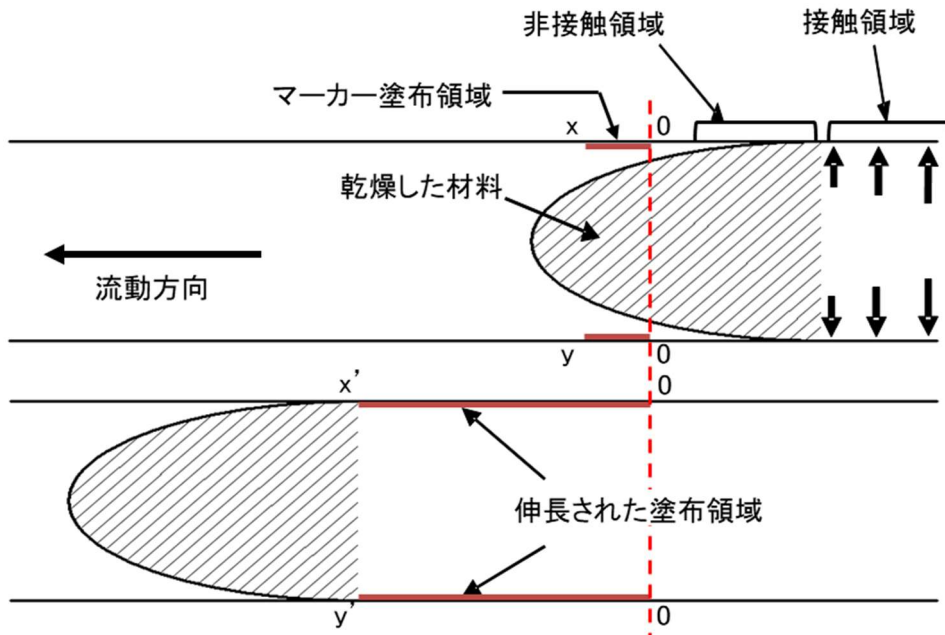


図 4.8 塗布マーカー伸長プロセスのモデル

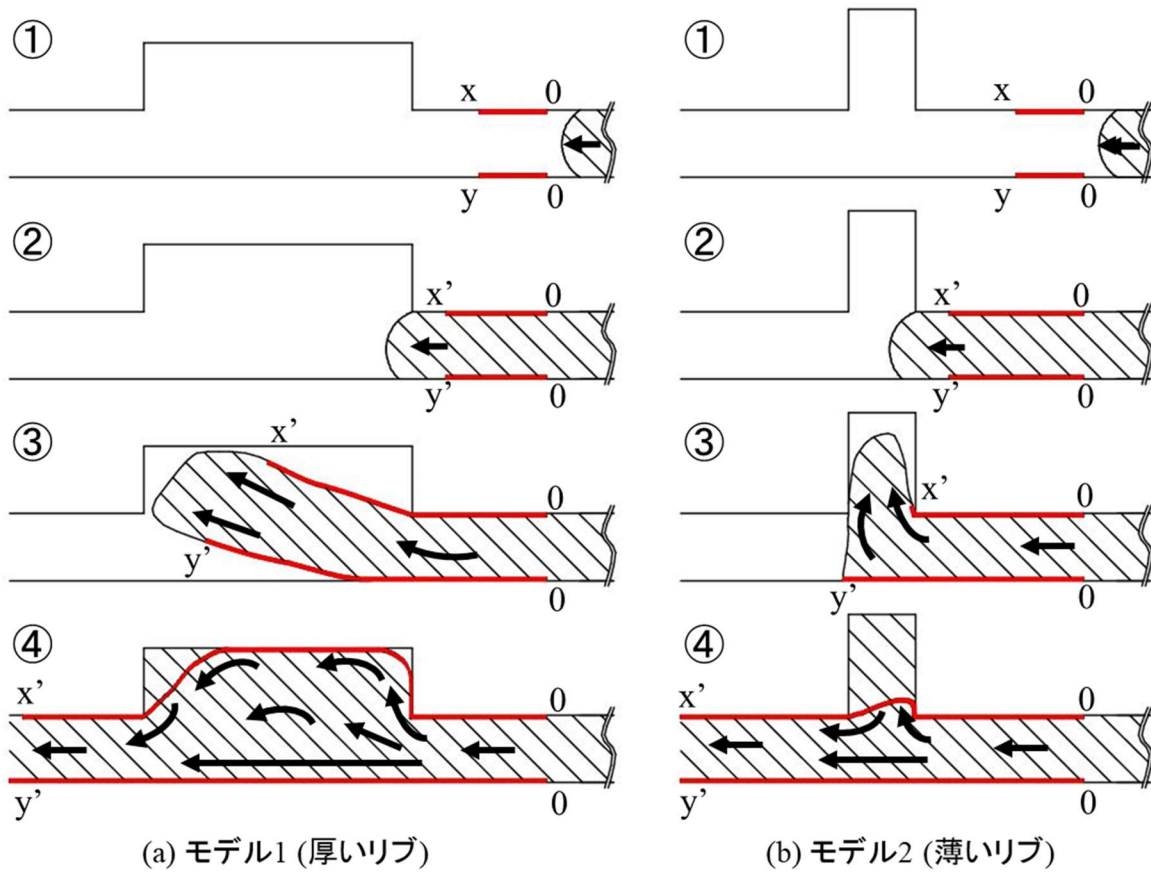


図 4.9 リブ内部への材料流入モデル

## 4.4 局所肉厚減少領域 B における流動挙動

### 4.4.1 ポイントマーキング方法と実験条件

実験領域 B ではウェルドラインの生成とキャビティ幅方向の材料流動を確認するため局所的に肉厚を減少させていき、貫通穴状態まで変化させた。ここではウェルドライン生成を詳細に観察するためポイントマーキング法を使用して材料流動挙動の解析を行うこととした。まず、溝 B' の 30 mm 上流側の図 4.4 (b)M1 に約  $\phi$  3 mm のマーカを塗布し、ウェルドラインが生成し始める溝深さの閾値を調査する。なお塗布面は可動側キャビティ表面のみとした。溝 B' の寸法は深さ 0.5 mm、幅 2 mm を基準とし、深さを 0.1 mm 刻みで 1.0 mm (貫通穴状態)まで変化させ、また幅 2.0, 4.0, 8.0 [mm] との表 4.2 (b) の 8 通りの組み合わせ形状を用いて、材料流動挙動を調査した。次に、貫通穴状態の B' (以下、穴 B') が周辺部の材料流動挙動に及ぼす影響を調査するため、穴 B' の上流側 20 mm の領域に、キャビティ幅中央から側面方向に向かって 0, 4, 9, 14.5, 21.5 [mm] 離れた位置に約  $\phi$  5 mm のマーカを塗布し、各位置のマーカ軌跡を観察した。

### 4.4.2 溝領域の流動挙動

ポイントマーキング法を使用して、溝 B' の寸法を変化させた成形品の状態を図 4.10 に示す。幅 2.0 mm の溝 B' では、No.7~9 の溝深さ 0.5~0.7 mm までは着色材が B' を通過するものの、溝が深いほど B' 手前側でのマーカ幅が広がり始め、B' 通過後のマーキング軌跡の長さも減少を示した。No.10 の深さ 0.8 mm 以上では着色材が B' の両側から迂回する。これより 0.7~0.8 mm 間に、迂回する溝深さの閾値があることが示唆された。また、No.10~No.12 の迂回流れ条件でのマーキング軌跡は、溝 B' で二手に分かれた後に、溝下流側では中央方向に若干回帰するものの再会合はせず、そのまま流動末端方向へと延伸する様子が確認された。次に、深さを 0.6 mm に固定して幅 4.0 mm, 8.0 mm と大きくした No.13, 14 では、迂回流れは確認されなかったが、No.14 では No.9 と同様にマーカが溝 B' で大きく左右に広がり、マーカ軌跡長さが減少した。未実施ながら、さらに溝幅を増大させると迂回流れが発生するものと予想される。一般に熔融樹脂ではこうした薄肉領域は一般に 0.1 mm 以下でも通過するが、PIM では流動先端が乾燥・滞留し硬化しているために、0.2~0.3 mm の隙間以上でないと通過できなくなっていることが確認された。この通過できる閾値は、流動先端の乾燥度合いによって影響を受けるため、成形条件により変動するものと予想される。

貫通穴 (No.12) での流動過程をより詳細に観察するために、マーカ塗布位置を板幅中央から側面部に向かって順次移動させ、B' 周辺部のマーカ軌跡を観察した。マーカ位置 M2 からのマーカ軌跡を図 4.11(a)、マーカ濃淡の 3 値化処理画像を図 4.11(b) に示す。穴 B' の手前に白い円弧状の滞留部が形成され、その滞留部の外側を M2 からの着色材料が分岐して流れている。これは、図 4.8 で示したように、マーカに

接触しなかった流動先端部の白色材料が最初に B' と接触して残留したものと理解された。一方、B' 後方の中央領域 (ウェルドライン形成領域) にも白い滞留域が広く残留しており M2 のマーカが同領域には到達しないことが明らかとなった。つぎに M3 ~M6 の着色材料について流動軌跡の画像処理結果を図 4.12 に比較して示す。M2 とは異なり、M3, M4 では B' 後方のウェルドラインの直近にまで着色材料が流入している様子が確認された。また、M4 の A 部に特徴的な形状を持った白色部が形成されている。これは M2 での B' 両端部から下流側へと迂回するマーカ軌跡と類似しており、M4 の材料が流入後に M2 の材料が遅延してゆっくりと流入した痕跡と理解された。

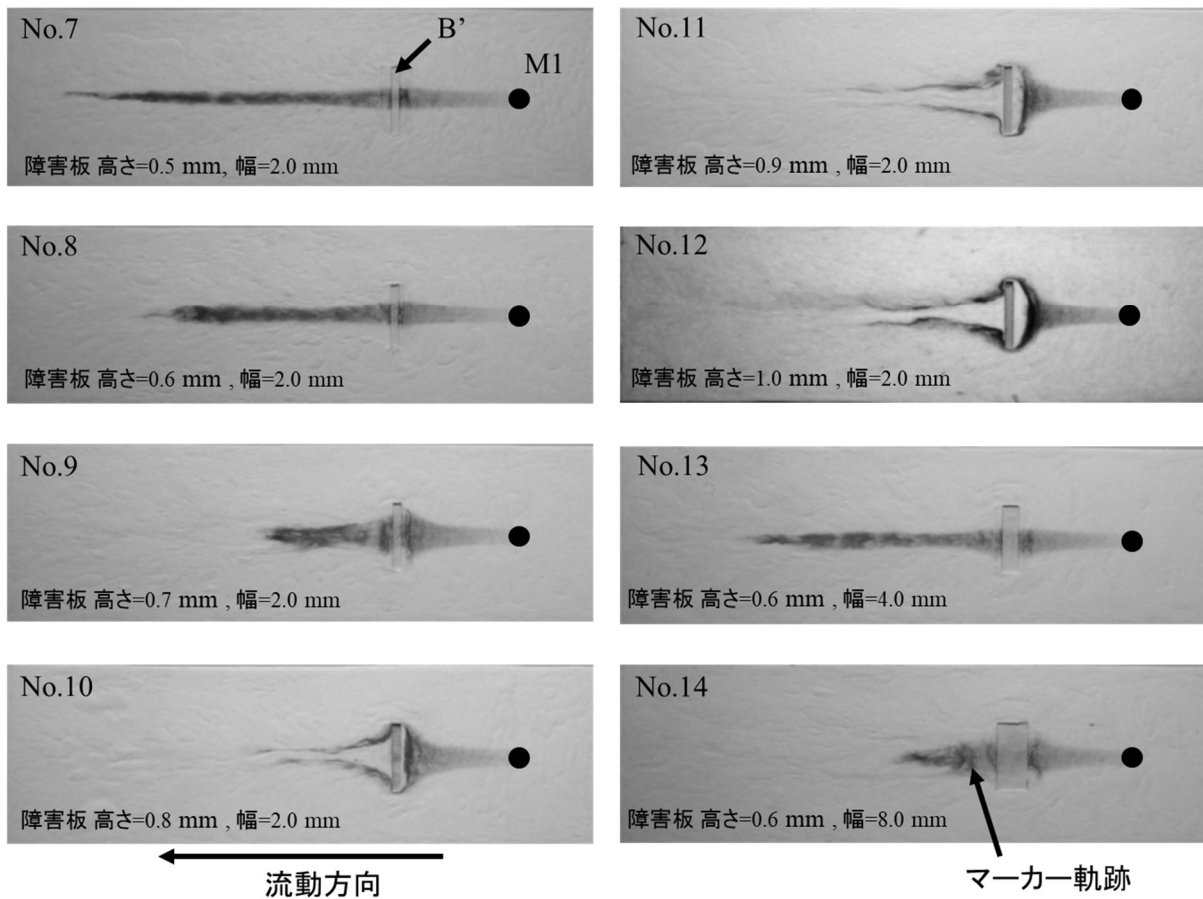
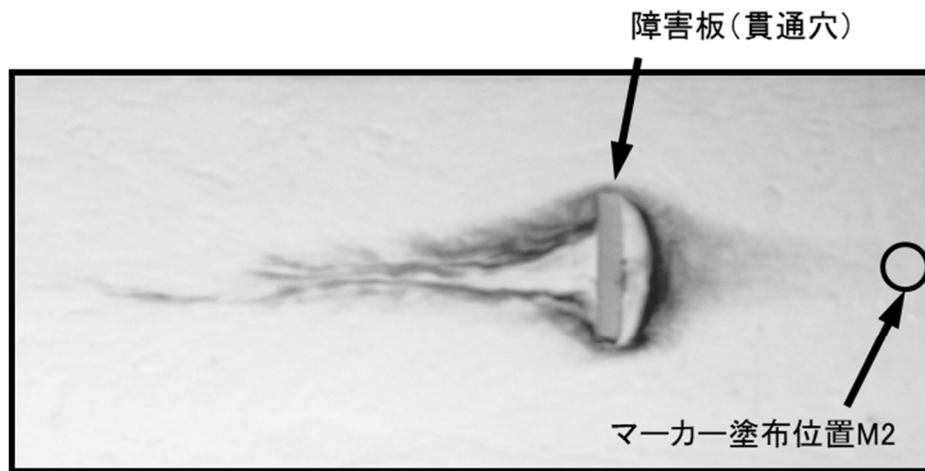
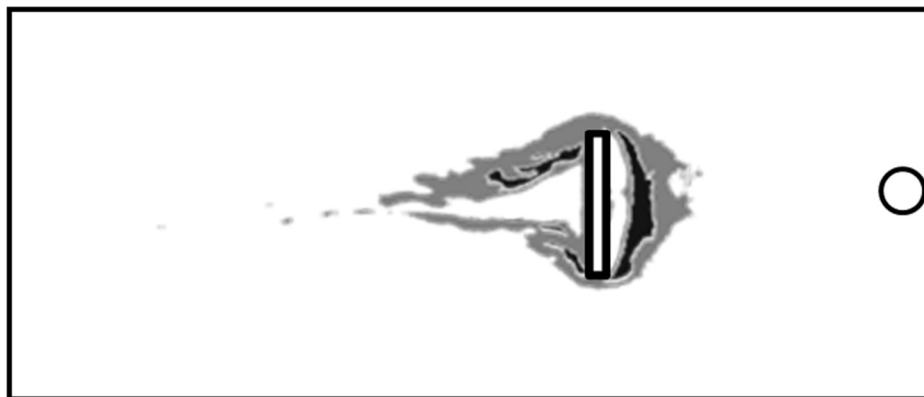


図 4.10 ポイントマーキング法による各障害板マーカー軌跡の違い



(a) マーキング位置M2の成形品の外観



(b) 画像処理結果

図 4.11 障害板 (貫通穴) 近傍のマーカー軌跡と画像処理結果

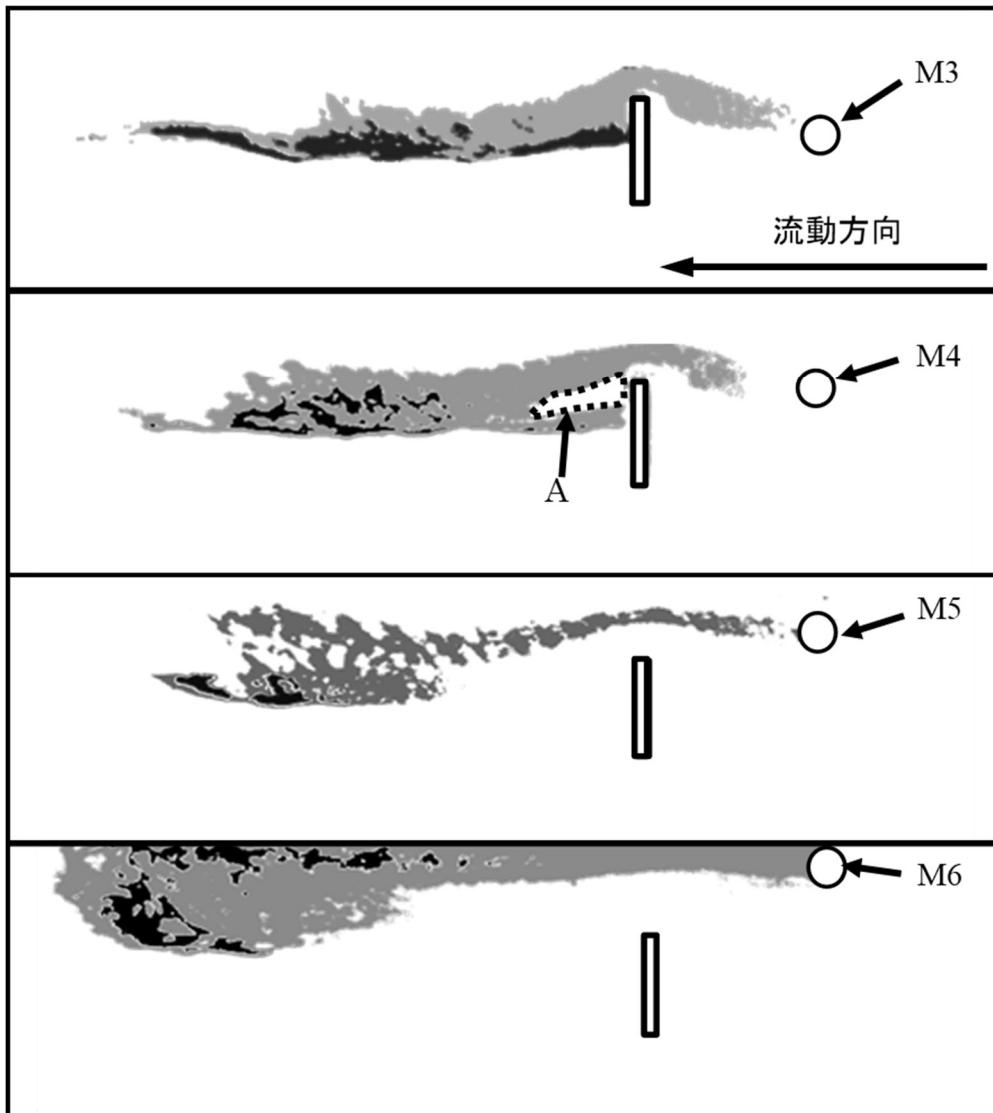


図 4.12 障害板（貫通穴）のマーカ軌跡画像処理結果（M3~M6）

以上の M2~M6 までのマーカ軌跡を重ねあわせて、板面部を流れる材料が B' を迂回して後方へ流動する全体の流動パターンを、図 4.13 に一括してまとめた。各点のマーカ延伸長さを比較すると、中央部の M2, M3 より側面側の M5, M6 の方が、長いことが確認される。これは、B' の障害板により材料流動が妨げられたことが要因として考えられるほか、B' により滑り流動挙動が抑制され、内部の材料が優先的に流れる噴水流動挙動に、移行した可能性が考えられた。これを裏付けるように、流動末端部では中央部ほど着色されていない領域が広がっており、三角形の無着色部 C が形成されている。

また、X線CTにより抽出した溝領域の上流・下流における肉厚方向断面のマーカ軌跡（白色部）を、図4.14に示す。上流側の図4.14(a)では、マーカから溝領域に向かって表層部から中央部に向かって傾斜している様子が確認された。これは、先行する無着色材料の界面で肉厚中央部へ潜り込み、その後材料は板幅方向へ分岐したと推察された。下流側の図4.14(b)では界面が流動方向と並行であるが、(a)と同様の傾向を示した。これは、ウェルドライン形成時にどちらが上になるかは、ショット毎に変化するため、必ずしも発生する現象ではないと考えられた。

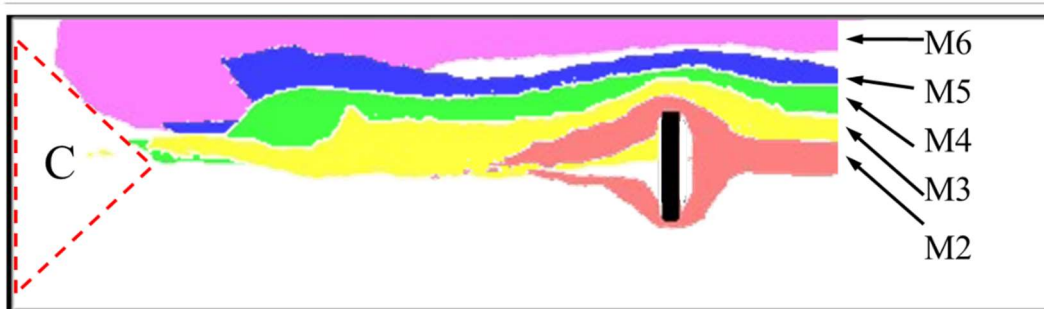


図 4.13 障害板（貫通穴）のマーカ軌跡画像処理結果重ね合わせ

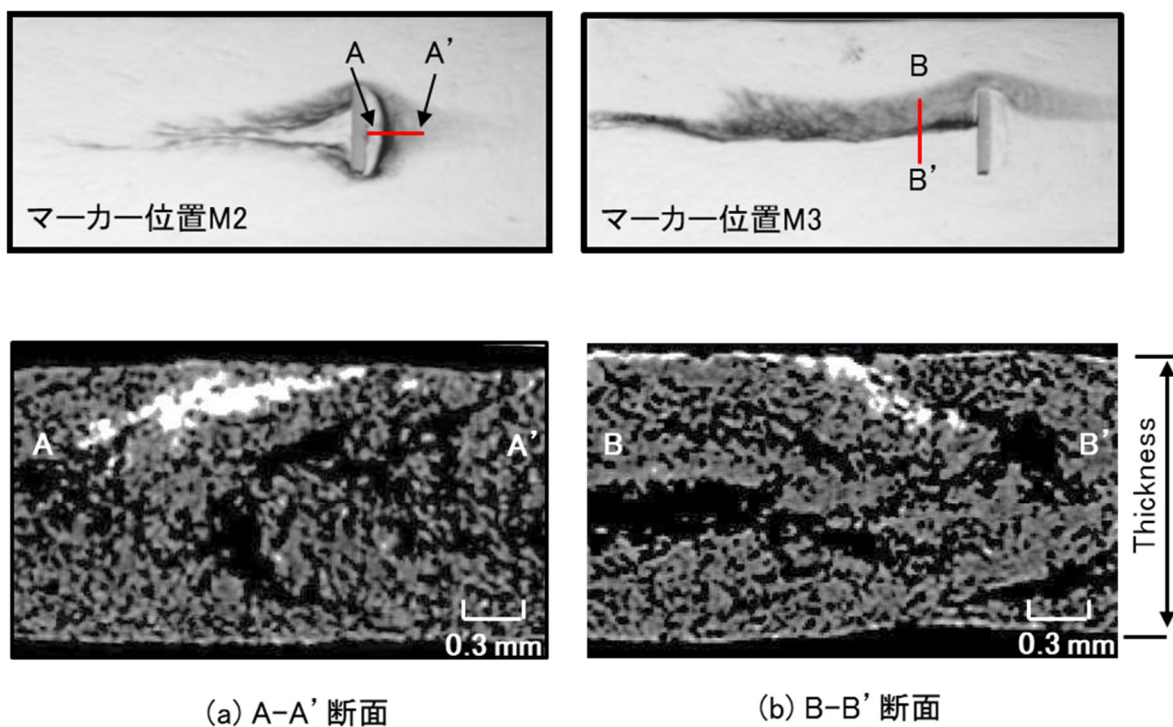


図 4.14 X線CTによる断面観察結果（障害板近傍板厚内部のマーカ軌跡）

### 4.4.3 矩形穴部近傍の流動モデル

矩形穴 B' 近傍における、板幅方向の流動モデルを図 4.15 に、肉厚方向の流動モデルを図 4.16 に、それぞれ示す。PIM では主に滑り流動により材料が充填されるため、流動初期では、板面部での流動抵抗が小さいことを反映して、図 4.15 (a) のようにジェット状に直進しつつ流動する。矩形穴 B' に流動先端が到達すると、分岐流動が開始し障害板となる B' に接触しない材料は先行直進し、中央の未充填領域にも拡大流入するため、B' の後方には一時的に三角形の空洞が形成される。さらに充填が進行すると、流動材料の内部圧力が、上昇することから、(c) のように空洞を押し潰すように両側からの滑り流動により充填され、中央部にて会合してウェルドラインが形成される。その後、(d) のように B' 上流中央部を流れていた材料が遅延して流入してくるが、中央部はすでに充填済みであるため、充填済み材料との境界面をせん断流れすることによって、B' 下流側に取り残された領域を形成したと考えられた。また肉厚方向では、流動先端の乾燥した無着色の材料が、B' に接触し、後から来る着色した未乾燥で流動可能な材料に圧縮され変形する。このときに金型壁面へ押し付けられた乾燥した無着色材料は、変形が抑制され、さらに圧縮により材料密度が上昇するため、形状固定が進行する。以上の理由から、材料の流動が制限され B' の上流側に留まると考えられた。後から来る着色された未乾燥材料は、固定された材料を避けるように流動するため、図 4.16 (c) のように内部方向へ進入した後、板幅方向に分岐したものと推察された。この現象は、分岐後再会合部でも同様に発生している(図 4.14 (b))。この場合は、先に進入した M4 の材料が金型壁面によって固定されるため、後から来る M3 の位置の材料が内部方向に進入しながら界面を形成しているものと理解された。



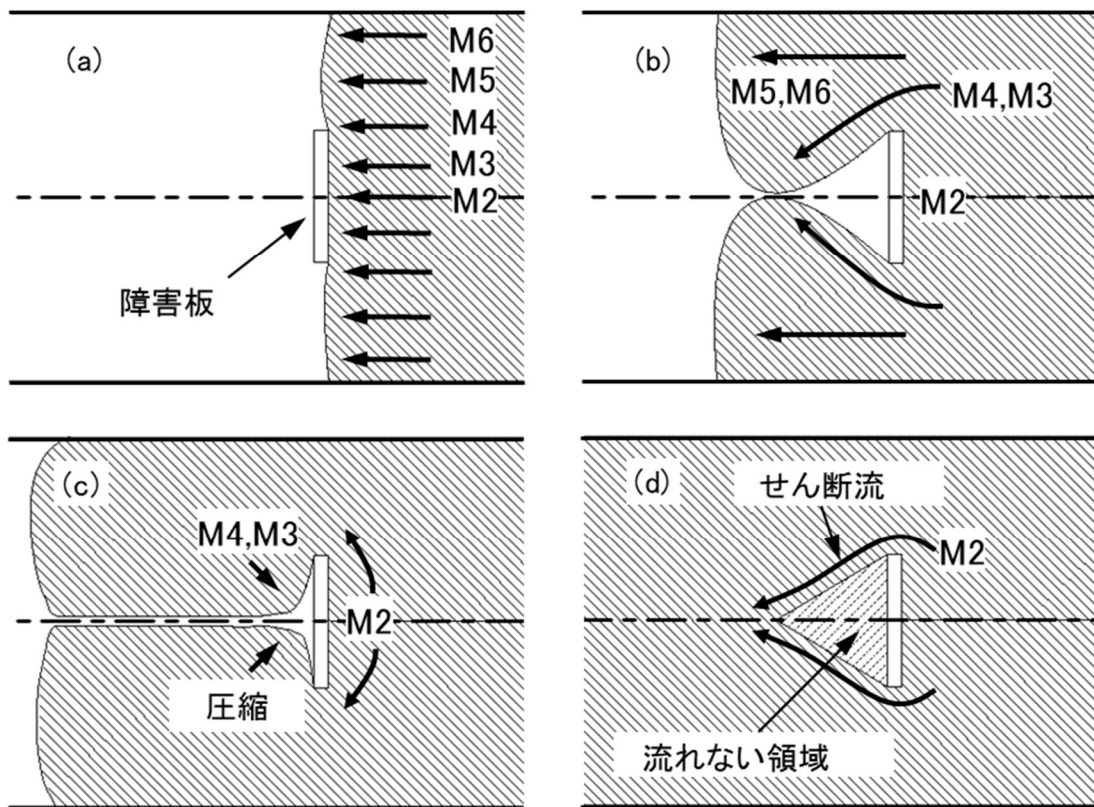


図 4.15 X 線 CT による断面観察結果 (障害板近傍板厚内部のマーカ軌跡)

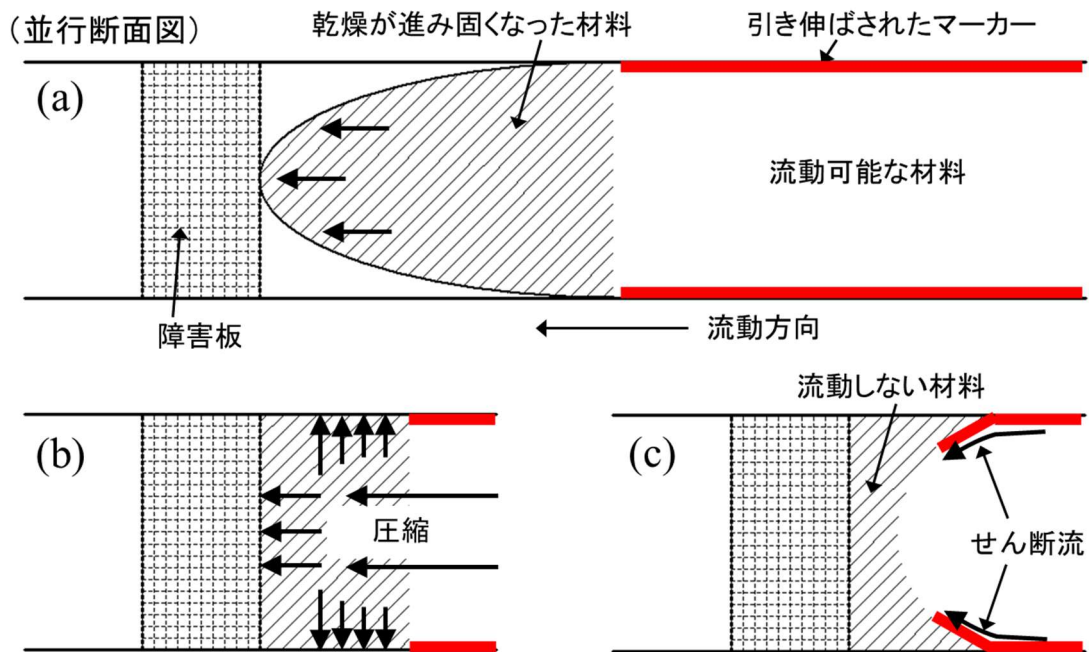


図 4.16 障害板直前の流動並行方向断面のマーカ付着材料流動モデル

## 4.5 結言

本章では、主に滑り流動により充填がなされる PIM の特徴に着目して、キャビティ表面に配置した着色材の軌跡を流動履歴として抽出する着色マーキング法を新たに提案し、滑りを主体とした PIM 流動挙動に最も大きな影響を与えるキャビティ面の肉厚領域について、その3次元的な流動現象を明らかにした。すなわち、矩形キャビティ(厚さ 1 mm)の途中に、流動に直交配置させた単純な肉厚変動領域(リブ高さ 0.5~2 mm および溝深さ 0.5~1 mm)を設け、着色パターンと X 線 CT 画像により材料流動挙動の解析ならびに流動のモデル化を行った。

### (1) 肉厚増加(リブ)領域の流動挙動；

- ① リブ厚さ 3 mm 以上の場合は、乾燥が進んだ流動先端がリブに傾斜流入し、リブ底面に沿って滑り流動する。その後リブ出口で引っ掛かると、材料がリブを充填し内圧が上昇するまでリブ下流側へと湧き出ず、大きな遅延を形成する。同時に、板面部ではリブ両側の材料が先行するため、特にリブ厚さ 4 mm 以上ではリブ下流にウェルドライン状の会合部を形成する。
- ② リブ厚さ 2 mm 以下の場合は、流動先端がリブに侵入してリブ底面まで到達する。その後は、後続材料がリブ内部にほとんど侵入することなく、リブ根元部を横断するように通過する。

### (2) 肉厚減少(溝あるいは穴)領域の流動挙動；

- ① 溝幅 2 mm 一定では、溝深さ 0.8 mm 以上で薄肉溝部を避けて両側に迂回する流れを形成する。迂回流れを形成しない溝深さ 0.4 mm でも、溝幅 8.0 mm 以上では薄肉部の滑り抵抗が増加し、迂回流れに遷移する可能性が示唆された。
- ② 溝深さ 1.0 mm(穴)の後方では、溝部を避けて PIM 材料がジェット状に滑り流動するため、障害板の後ろ側に回り込めず、一時的に大きな空洞を形成しつつその下流側にはウェルドラインを形成する。その後、空洞部の両側から空洞を挟むように、滑り流動により充填が進み、空洞消失後は障害板後方の三角形領域を取り残す形で、その両辺に沿ってせん断流れを形成する。

パルプ射出成形品では、設計時に安易なリブ設置による強度改善や、貫通穴等の機能付与には大いに注意を払わねばならない。本章の研究結果より、リブ幅/高さの比が 2 以上の場合にはリブが根元で折れ難いと考えられ、また 2 未満の場合には事前に材料の流動をよく検証する必要があることが示唆された。

PIM の流動挙動は、本章で明らかになったようにキャビティ壁面上を一部滑り流動し、またフローフロントの乾燥が進み硬化しつつ流動することが確認されている。本

章では、一部に直交リブ状の凸形状と逆に凹み（極端な場合には穴）という基本的な形状を有する障害物が平板キャビティに設置される場合に、PIM材料がどのように流動するかモデル的な実験を行ったものである。単純に凸と凹の形状の高さと流動方向の厚さを変化させた場合に、どのような振舞いをするかをモデル化したもので、一般に板面にリブ状あるいは凹み段差、穴形状があることが最も基本的なキャビティ形状であることから、ここで確認されたPIM材料の振舞いは普遍的な成形現象として理解することができる。

# 第5章 金型内流動挙動の動的可視化 解析

---

5.1 緒言 .....	93
5.2 実験方法 .....	94
5.2.1 可視化観察用の金型 .....	94
5.2.2 観察方法 .....	97
5.2.3 成形条件と成形材料 .....	100
5.3 実験結果と考察 .....	102
5.3.1 金型内材料充填挙動の動的可視化解析 .....	102
5.3.2 表皮一体成形における金型内材料充填挙動 .....	106
5.4 結言 .....	110

---

## 5.1 緒言

前章では、主に滑り流動により充填がなされる PIM の特徴に着目して、キャビティ表面に配置した着色材の軌跡を流動履歴として抽出する着色マーキング法を新たに提案し、滑りを主体とした PIM 流動挙動に最も大きな影響を与えるキャビティ面の肉厚領域について、その 3 次元的な流動現象を明らかにした。

しかしながら、材料流動挙動の詳細な解明には、上記手法だけでは不十分であり動的可視化による観察の必要性がある。なぜならば流動途中の材料に発生している流動現象については、静的観察手法では検討が困難なためである。PIM 材料は前章にも述べたとおり、滑り流動が支配的で、ウェルドラインや割れ、表面性状の悪化など特徴的な成形不良現象を発生させやすいことが知られている。特に流動途中で発生していると考えられる滑り流動について、発生要因を詳細に調査する必要がある。

滑り流動の対策として、PIM の量産金型ではキャビティ表面へのシボ加工が、一般的に行われている。また、印刷紙や布等のインサートによる表皮一体成形による対策も有効で、加飾面側での表面平滑性が大幅に増加することが確認されている。これらは、いずれも滑り流動の抑制と関連すると推察されるが、具体的な材料挙動についてはこれまで明らかにされていなかった。

成形品肉厚方向からの型内材料流動現象について、動的可視化観察に成功している [横井 2008] [山脇 2008] [山脇 2009]。同実験装置を PIM に適用することで、材料充填挙動の滑り流動と噴水流動のどちらが支配的であるかを直接観察することが可能となる。

本章では、第 4 章で使用した矩形平板形状を用いて、材料充填挙動への影響について、以下の 3 項目を検討した。①ゲートからフローフロントまでの距離、②シボ粗さ、③材料水分率について変化させ、それぞれの材料充填挙動の変化について、動的可視化解析と画像解析を用いて検討を行った。さらに表皮一体成形による成形品表面への紙・布のインサート成形を行い、動的可視化解析による材料流動挙動の解明と内部断面観察を用いて、成形品内部状態との相関を調査した。

## 5.2 実験方法

### 5.2.1 可視化観察用の金型

ガラスキャビティにはヒータの埋設が困難で、キャビティ面で約 150~180°Cの加熱を要する PIM には適用ができない。またガラス面にブラスト加工をすると観察面が不透明化するため可視化が困難となる。一方で滑り流動の生成はフロントの挙動をキャビティ厚さ方向から拡大観察すること確認することが可能である。また、厚さ方向からの観察では、キャビティ面を金属として加熱でき、ブラスト加工も可能となる。そこで、ここでは材料流動に対する影響が最も小さく、材料と接触する面積も小さい厚さ方向からの可視化を行うこととした。

実験に使用したガラスインサート可視化金型の構造を図 5.1 に示す。キャビティ形状は図 5.2 に示す 50×200×2 [mm]の矩形形状とし、ダイレクトゲートを用いている。固定側キャビティの両側面部には、一对の石英ガラスブロックを組み込み、厚さ方向からの観察を可能にしている。

一方、可動側には天地方向にスライド移動可能な金属ブロック構造を採用し、可動ブロック内部に任意の構造を設置してスライドさせて、ゲートからの距離を変更できるように設計がなされている。本章では、50×50 [mm]のシボ面領域を可動ブロック内に組み付け、ゲートからの距離  $L=10\text{ mm}$ 、 $120\text{ mm}$  に設置した。シボ形状のパターンはアヤマダイ株のシボコード: AL1563 (図 5.3)を使用し、3種類のシボ深さについて検討を行なった。シボについての評価値を表 5.1 に示す。なお、シボなしと、シボ以外のキャビティ領域については、サンドブラスト 60 番による表面加工を施している。

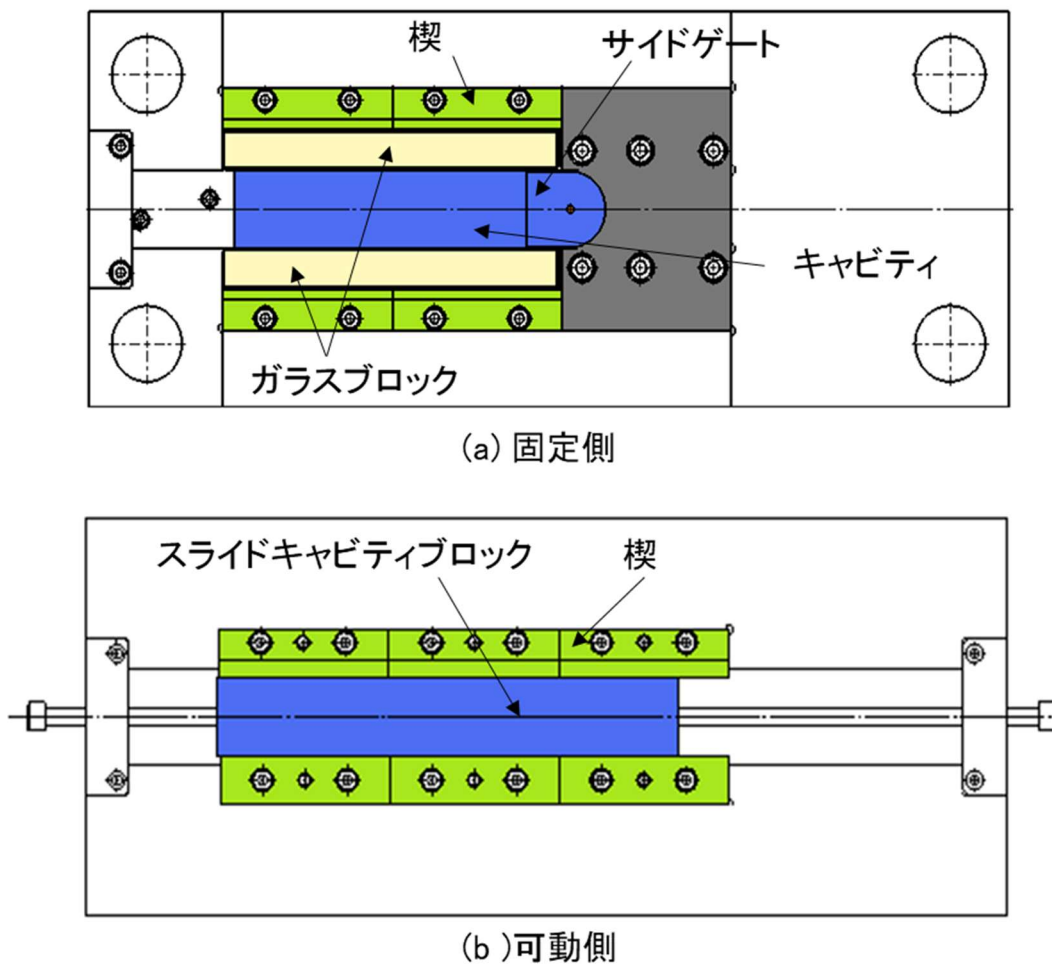
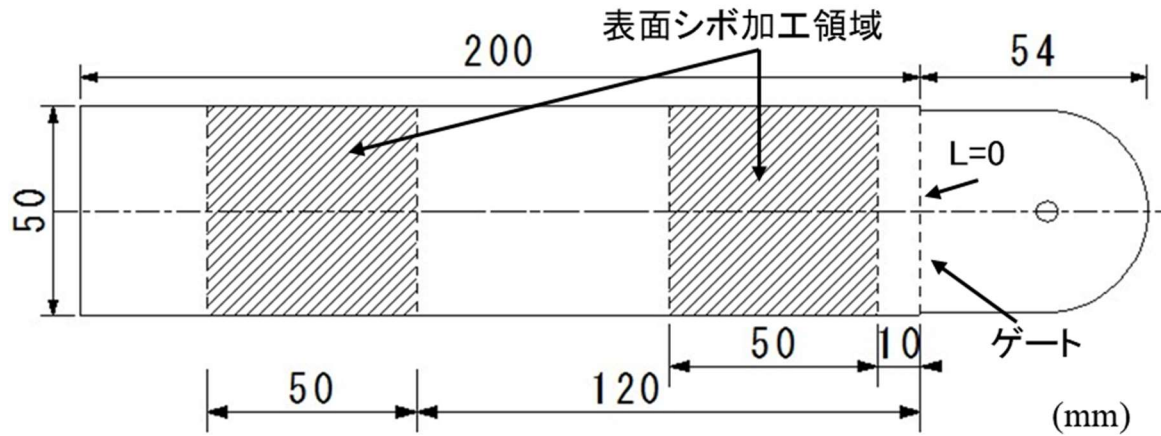
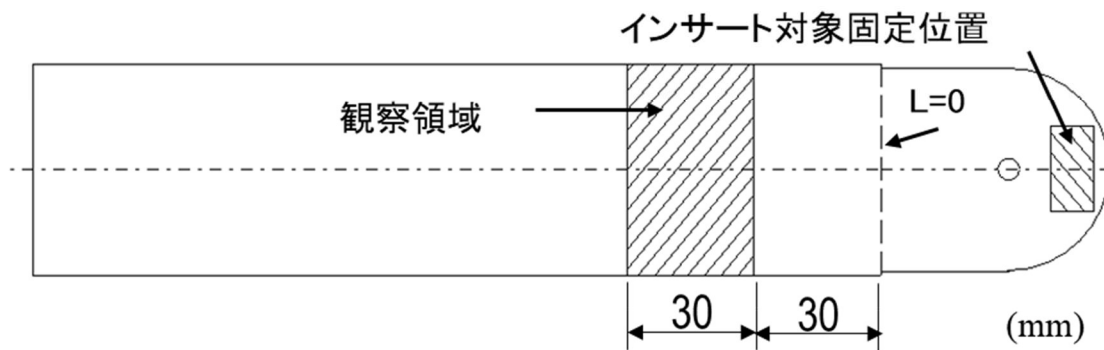


図 5.1 ガラスインサート可視化金型の構造





(a) 表面シボ加工の影響観察位置



(b) 被覆成形観察位置

図 5.2 キャビティ形状

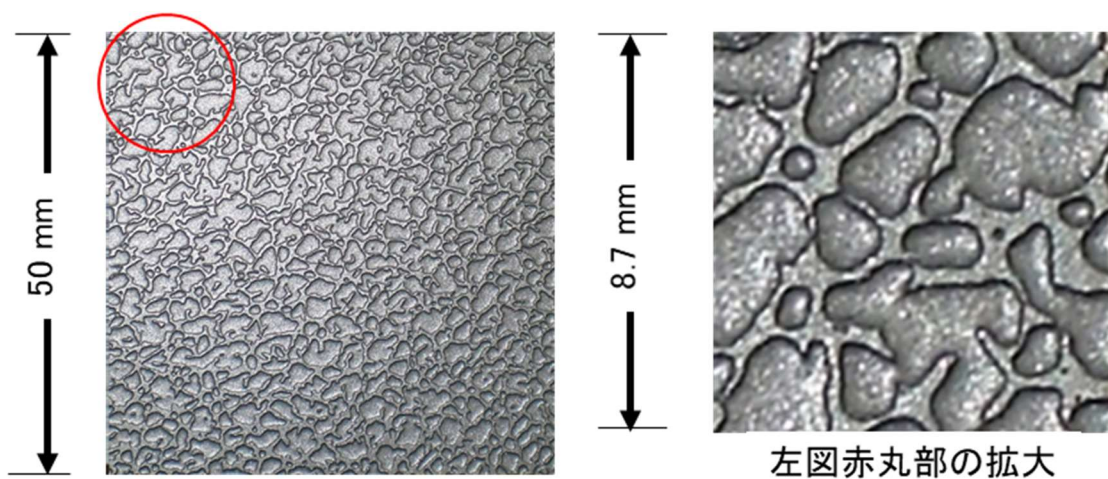


図 5.3 表面シボ形状 (Code No. : AL1563)

表 5.1 シボ表面各パラメータ

	Py ( $\mu\text{m}$ )	S ( $\mu\text{m}$ )	Pz ( $\mu\text{m}$ )
$\alpha$	121.1	1445.0	111.0
$\beta$	171.9	1808.8	148.2
$\gamma$	227.0	1714.0	215.4

### 5.2.2 観察方法

可視化観察実験のモデル図を図 5.4 (a)に示す。キャビティ流動末端を解放端として光源を配置し、流動先端のフローフロント反射光領域を、高速度ビデオカメラシステム MEMRECAM fx K4 (株ナックイメージテクノロジー)を用い、画素 1280×1024 [pixel]、撮像速度 500, 1000 frame/s にて撮影した。その際、キャビティ内の流動長全体を画角内に納めるようにして撮影を行った。本章では高速ビデオによる材料挙動の確認をするとともに、図 5.4 (b), (c)に示すように、フローフロント反射光領域の流動方向長さを測定して、その変動挙動を定量的に評価した。図 5.5 (a), (b)にフローフロントの撮影画像例を示す。図中 A はゲート近傍での反射光領域を、B はさらに流動が進んだシボ領域末端部での反射光領域を示す。これらの各時間での板厚中心部のスリット状画像を抜き出して、横軸を時間軸として時系列的に積み上げた画像(疑似展開積層画像)を図 5.5 (c)に示す。同図の斜行する白い帯領域が反射光領域に対応し、上下方向の長さ変動がフロントの伸長・縮小挙動に対応している。長さ方向の画素数の計測により長さへと変換でき、ゲートからの距離とフローフロント部反射光長さとの相関関係を明らかにすることが可能となる。

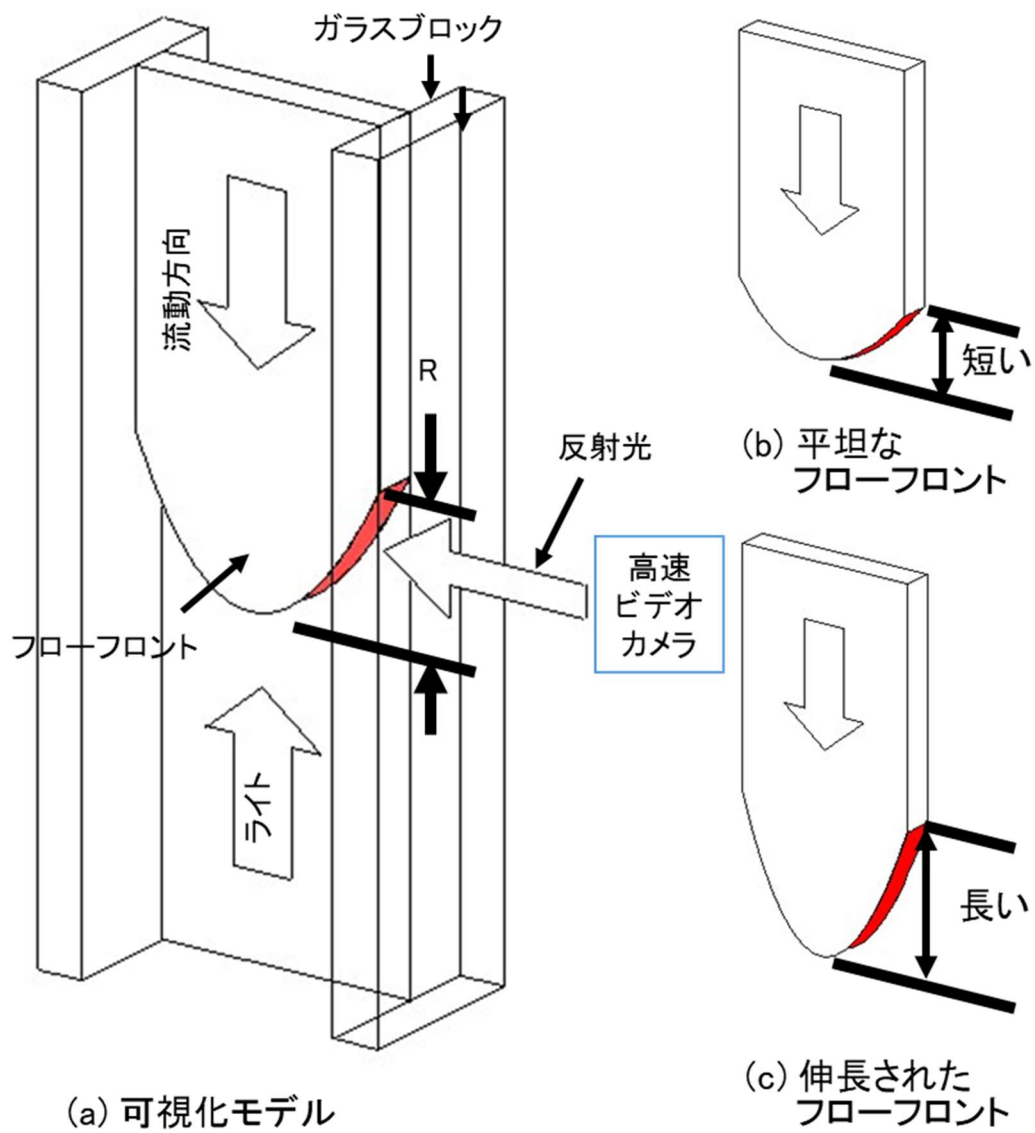
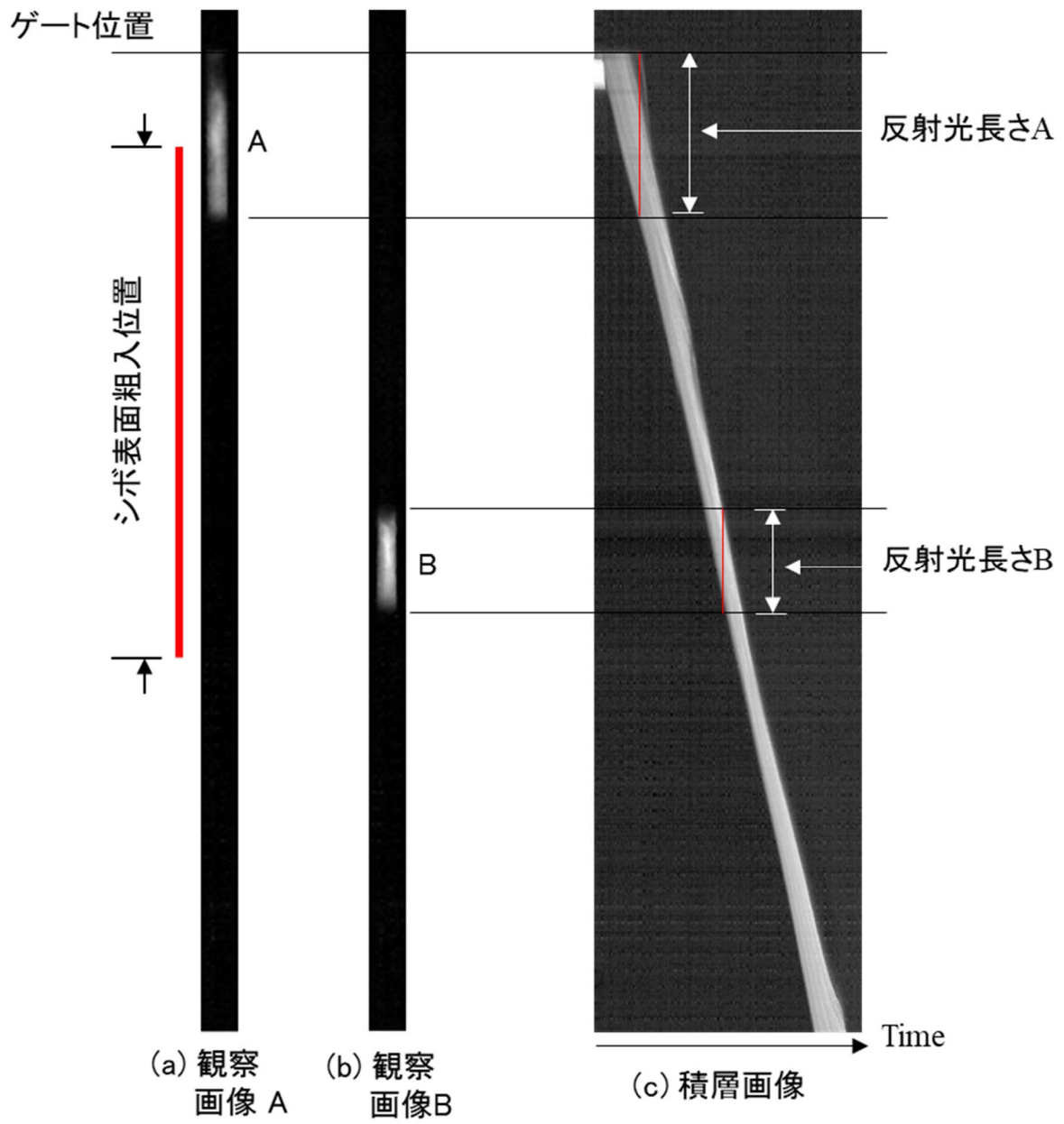


図 5.4 フローフロント変形可視化手法

図 5.5 疑似展開積層画像 (シボ  $\beta$ , 材料水分率 35 wt%)

### 5.2.3 成形条件と成形材料

成形材料は標準グレード N-P25 (パルプ : 60 wt%, 澱粉 : 30 wt%, PVA : 10 wt%) を使用し, シボ加工では水分率 32, 35, 38 wt% に, 表皮一体成形では水分率 35 wt% にそれぞれ調整して使用した. 成形条件を表 5.2 に, またシボ形状とゲートからの距離  $L$ , 水分率の組み合わせ条件を表 5.3 に示す. シボ加工での実験ではスクリュ射出速度を 20 mm/s に, 表皮一体成形の実験では同 3 mm/s としている. 可動側のキャビティブロック表面はいずれもシボなしの条件とした. インサートの被覆材を表 5.4 に示す. 綿布, 牛皮革, コート紙(オーロラコート:日本製紙株), 上質紙 (npi 上質:同) を使用し, 被覆材は可動側に両面テープにて固定した. 成形品の断面観察では, 成形品中央部を切断・研磨後, レーザー顕微鏡 LEXT4000 (オリンパス株) に付随した実体顕微鏡を用いて観察した. 撮像速度はシボ加工で 1000 frame/s, 表皮一体成形では 500 frame/s を用いた.

表 5.2 成形条件

シリンダ温度(°C)	(ノズル) 90/80/65 (ホッパー)
射出速度 (mm/s)	20
射出圧 (MPa)	110
スクリュ回転速度 (rpm)	80
背圧 (MPa)	4
金型温度 (°C)	180

表 5.3 シボ形状と他実験条件の組み合わせ

	シボブロック	ゲートからのシボブロック挿入距離 (L)	材料水分率
No.1	$\alpha$	10 mm	32 wt%
No.2	$\alpha$	10 mm	35 wt%
No.3	$\alpha$	10 mm	38 wt%
No.4	$\beta$	10 mm	35 wt%
No.5	$\gamma$	10 mm	35 wt%
No.6	None	10 mm	35 wt%
No.7	$\alpha$	120 mm	35 wt%
No.8	$\beta$	120 mm	35 wt%
No.9	$\gamma$	120 mm	35 wt%
No.10	None	120 mm	35 wt%

表 5.4 被覆材と厚さ

No.	被覆材	被覆材厚さ (mm)
1	綿布	0.500
2	牛革	0.600
3	コート紙	0.063
4	上質紙	0.066
5	上質紙	0.097
6	上質紙	0.147
7	上質紙	0.234

## 5.3 実験結果と考察

### 5.3.1 金型内材料充填挙動の動的可視化解析

ゲートから流動先端までの距離  $L$  と反射光領域の長さ  $R$  の関係を各条件別に整理して比較した。シボ形状  $\alpha$  を使用し水分率変化の影響を比較した実験条件 No.1~3 の結果を図 5.6(a)に示す。35 wt%, 38 wt%では、シボ面通過時 ( $L=10\sim 60$  mm)には  $R$  は低下傾向を、その後の 60 mm 以降では増加傾向に転じた。これはシボ面界面での流動抵抗が増加すると、キャビティ内の流動先端部飛出し変形を抑制する効果が発現したものと理解された。一方 32 wt%では、 $R$  が 35 wt%, 38 wt%の時よりも大きく、また小刻みに増減している様子がみられ、シボ面による流動抵抗の影響が小さいことが明らかとなった。これは水分率の低下によりフローフロント部の乾燥が促進されて流動先端の形状が固定され易い結果、滑り流動が支配的になり、それによる流動抑制効果が低減したものと考えられた。

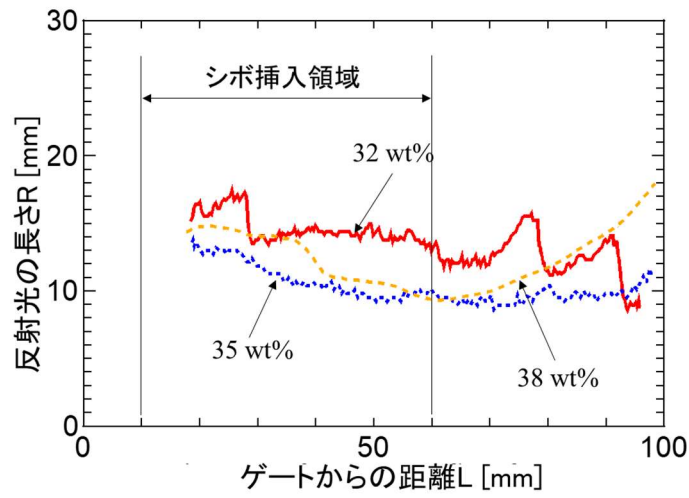
次に材料水分率 35 wt%において、ゲートからの距離  $L=10\sim 60$  mm にシボ  $\alpha\sim\gamma$  を設置したときの充填挙動に与える影響を評価した。結果を図 5.6 (b)に示す。シボの最大高さ  $Pz$  が最も浅い  $\alpha$  では  $R$  が大きく、 $\beta, \gamma$  より飛出し変形の抑制効果が小さかった。 $\beta$  と  $\gamma$  では大きな差なく、 $Pz$  が一定以上になると流動抑制効果が高止まりする傾向が示された。またシボなしでは、流動過程で  $R$  が緩やかに長くなったり短くなったりと、“尺取り虫”状に変動を繰り返し、大きく変動している様子が確認された。流動先端が金型壁面から拘束されず自由に変形しており、流動安定性・再現性が大きく阻害される様子が明らかにされた。

また、ゲートから  $L=100$  mm 以降 ( $120\sim 170$  mm にシボ設置)でのシボ  $\alpha\sim\gamma$  の影響を図 5.6 (c)に示す。 $L=120$  mm では、 $\alpha, \beta, \gamma$  とほぼ同等の飛出し変形抑制効果が示された。またシボなしでも、 $R$  はシボありよりやや大きく、鋸状の断続的な変動を示し“尺取り虫”状に変動を繰り返しているものの、シボ設置位置  $L=10$  mm より  $L=120$  mm (下流側)で、いずれも飛出し変形抑制効果が大きく示された。これはフロント領域の乾燥が下流側でより進行したためと考察される。

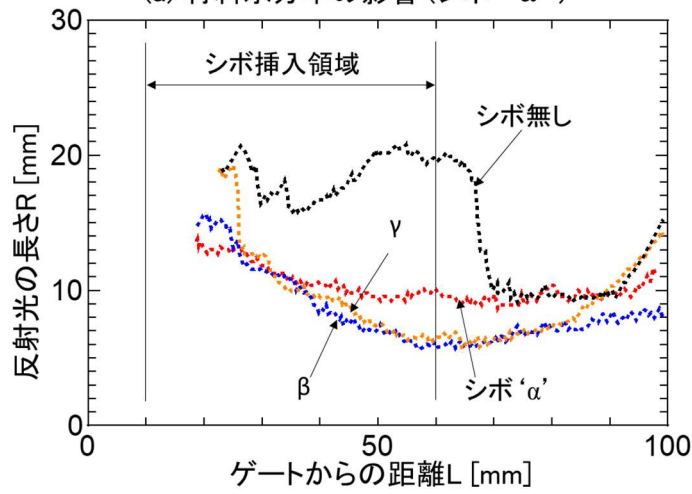
次に流動先端の挙動を観察する。図 5.7 に、条件 No.1 でのシボ面上とシボ面外での流動挙動の観察事例を比較する。同図の各観察像左側の数字 (40, 80)は観察位置 (40 mm, 80 mm)を意味している。シボ面上の(a)では、点線丸枠中央の黒点部が時間と共に、シボ面側へ移動する様子が、またシボ面外の(b)では、反射光の模様  $\beta$  がそのまま下流側 (図中の下方向)に平行に移動 (滑り流動)する様子が確認された。これより、シボ面上では凹凸面に拘束され、シボの対向面側から材料が湧き出して回転流動 (非対称ファウンテン流動)することが確認され、併せて飛出し変形の抑制効果が発現するものと理解された。回転流動の生成の有無に注目して各条件で観察した。結果を図 5.8 に

比較した。シボ設置位置  $L=10\text{ mm}$  では、シボ形状  $\alpha$  の実験条件 No.1, 2 において、回転流動の開始位置が末端側に移動し、回転流動距離が短くなっている。それ以外では、全シボ面領域で回転流動が生成している。一般に水分率が小さくなると材料粘度が高くなり、同じシボ深さでの比較では、微細な溝への流入が困難になる。そのため、界面での拘束力が低下し、滑り流動が生成しやすくなると考えられる。またシボ設置位置  $L=120\text{ mm}$  では、全シボ面領域で回転が確認され、上述の飛出し変形抑制効果と合致する結果となった。なお、シボ面を配置しなかった実験条件 No.6, 10 では、回転流動が確認されなかった。

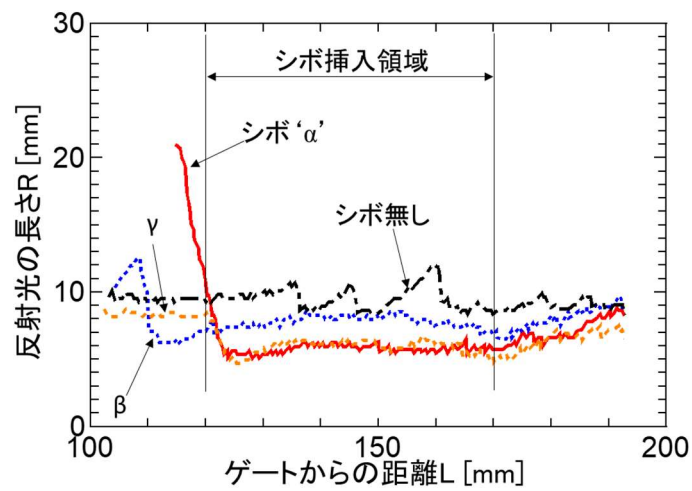




(a) 材料水分率の影響 (シボ ' $\alpha$ ')



(b) シボを変化させた影響 (水分率35 wt%,  $L=0\sim 100$  mm)



(c) シボを変化させた影響 (水分率35 wt%,  $L=100\sim 200$  mm)

図 5.6 ゲートからの距離  $L$  と反射光長さ  $R$  の関係

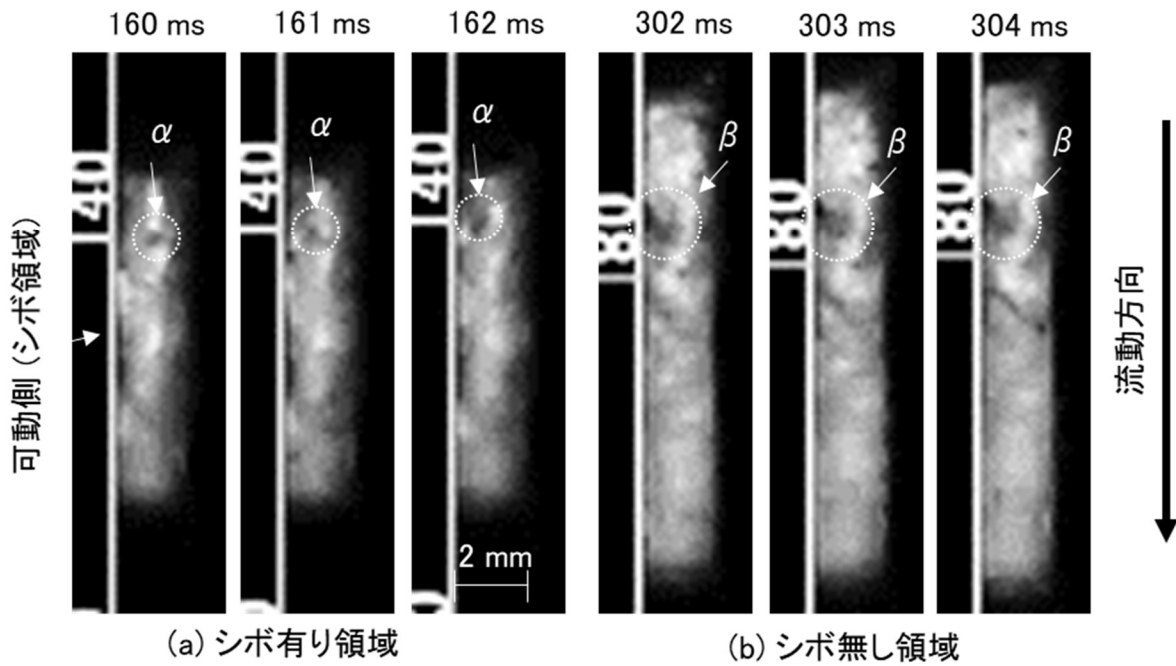


図 5.7 流動中のフローフロント部の様子 (条件 No.1)

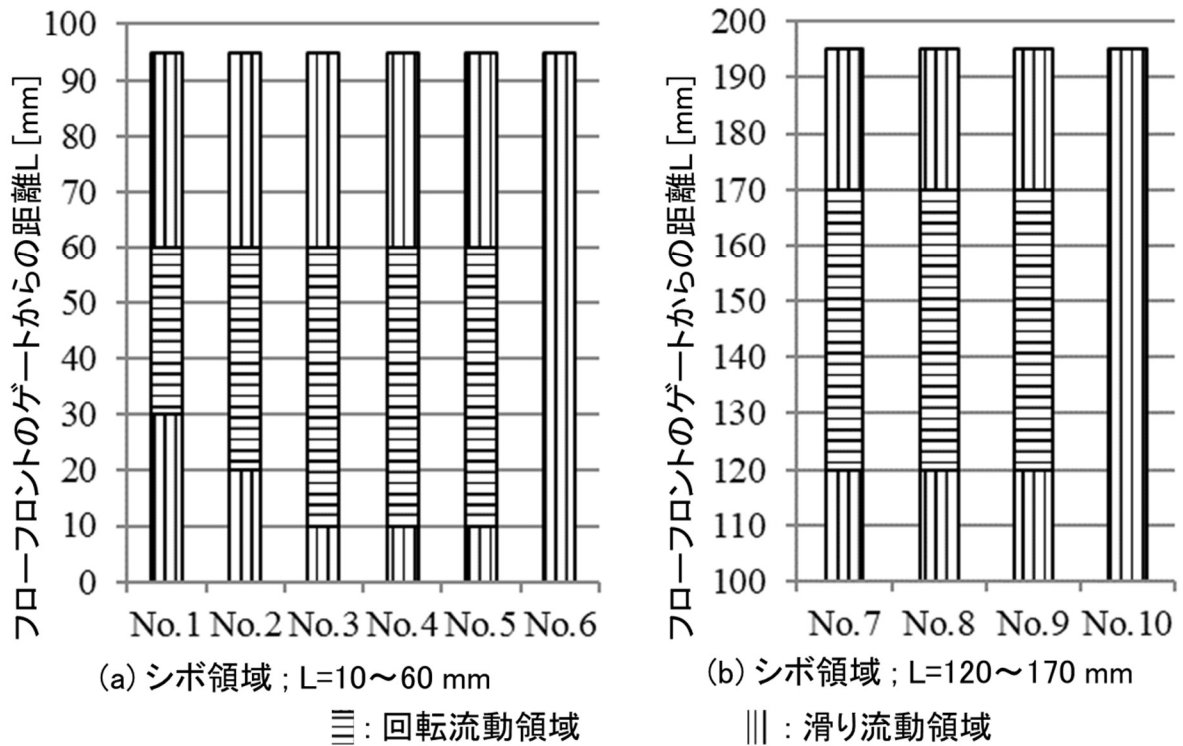


図 5.8 フローフロント部における回転流動生成位置

### 5.3.2 表皮一体成形における金型内材料充填挙動

各インサート成形品の断面を実体顕微鏡で観察した。観察写真を図 5.9 に比較して示す。当初は、薄く強度が弱い被覆材では、被覆材に破れが発生すると予想されたが、上質紙：紙厚 66  $\mu\text{m}$  の No.4 においても、破れは確認されなかった。これより、インサート面が平面の場合には、薄い紙であっても破れが生成しないことが明らかになった。すべてに共通して、インサート面側では内部空隙が生成し難く、対向面側には空隙が偏って生成する様子が確認された。表皮一体成形されていない PIM 成形品表面には、水蒸気の脱気孔を生成した跡が表面凹凸として残留する。これは、火山の噴火の様に一度口開けて孔を形成し、水蒸気を排出後に閉じて孔周辺が凸になり、孔が凹として形成するためだと考えられる。しかし、表皮一体成形された成形品は、被覆材により表面が拘束されるため、脱気孔が生成されなかったと考えられた。これは以下のように整理される。① 被覆材の介在が表層を密閉して内部からの水蒸気脱気を阻害する。② 被覆材接合界面の固着力により PIM スキン層を固定保持し、PIM 内での空隙形成による脱気路生成を困難にしている。③ 被覆材が断熱層の役割をして被覆層側の PIM 材料の乾燥を遅延する (反被覆材側で選択的に脱気路が形成される)。また、空隙が被覆材から対向面側へと斜めに形成される傾向も観察された。これは被覆材寄りの PIM 材料が被覆材に拘束されるため、被覆材寄りの材料密度が大きくなり、空隙生成が困難になったと考えられた。

被覆材が綿布の No.1 では、A において被覆材の折り重なり現象が確認された。これは、被覆材の綿布が流動材料に牽引されて布の伸長許容量まで伸長される結果、余った被覆材部分が皺状に折れ畳まれ材料内部に引き込まれたものと推察された。また、被覆材の近傍層では無発泡層が厚く形成され、対向面側壁面向かって斜めに空隙が生成する様子が確認される。折り重なりはないものの、同様の現象が皮革でも観察された。次に、厚みの異なる上質紙の No.4~7 では、薄い No.4 で空隙が厚さ方向に進展し、材料流動時の被覆材からの拘束力が小さく滑り流動が形成されているものと推察された。ほぼ同じ紙厚のコート紙の No.3 でも同様の傾向が示された。一方 No.5, 6 では、綿や皮のように斜め方向の空隙が多く確認された。これは紙の厚さが 0.1 mm 以上では、被覆材の厚みにより流動可能領域が狭まり、流動中の材料の内圧が上昇するため、被覆材からの拘束力がさらに大きくなったと考えられた。

次に、各種被覆材を用いて可視化観察を行った。図 5.10 (a)に綿布、(b)に上質紙での結果を示す。綿布や皮革では、被覆材側にフローフロントが回転しながら材料の充填が進む (同図 A 部を参照)。一方、紙ではフロント形状が変化したまま流動する様子が観察された (B 部参照)。

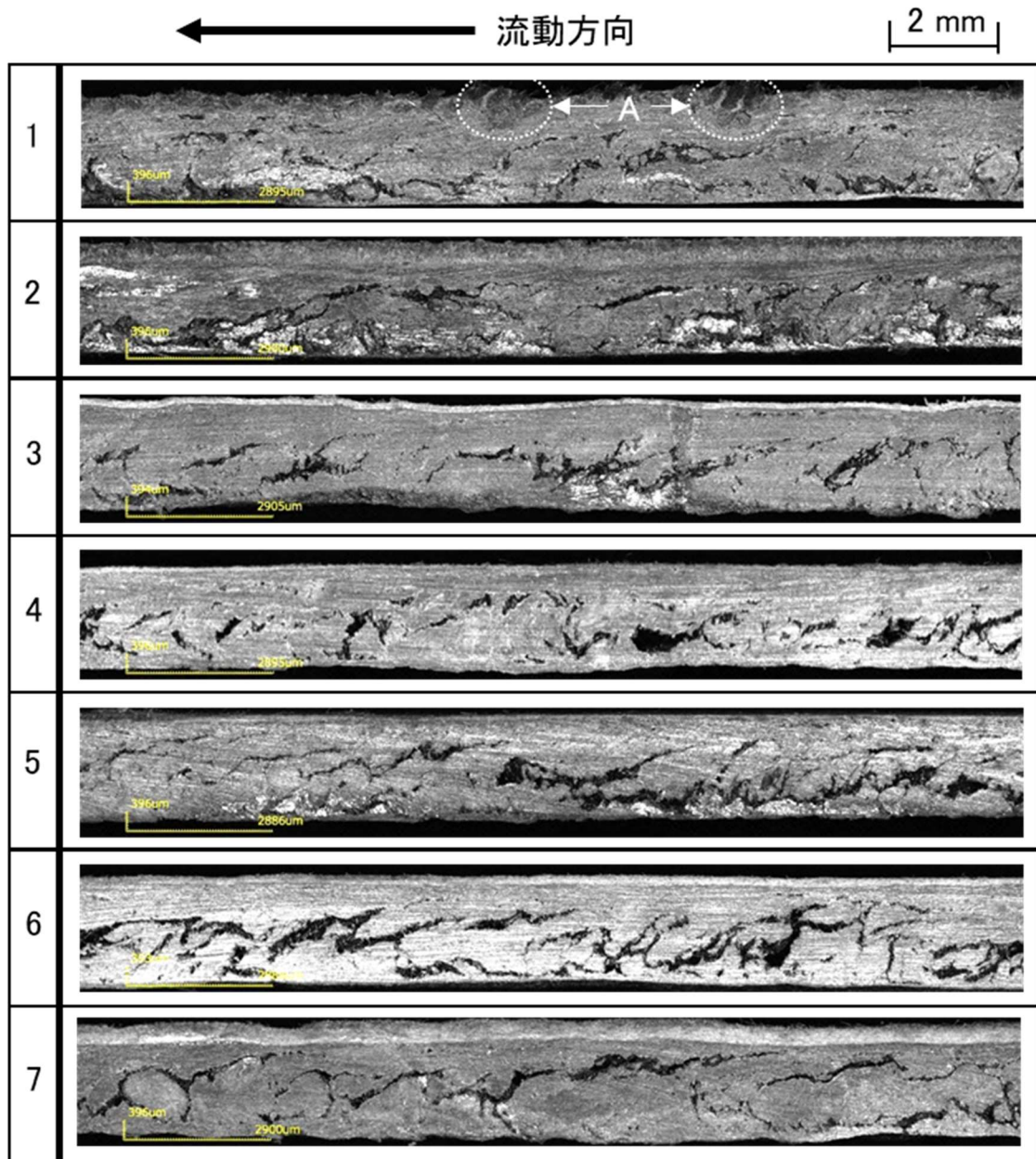


図 5.9 各インサート成形品の断面観察写真

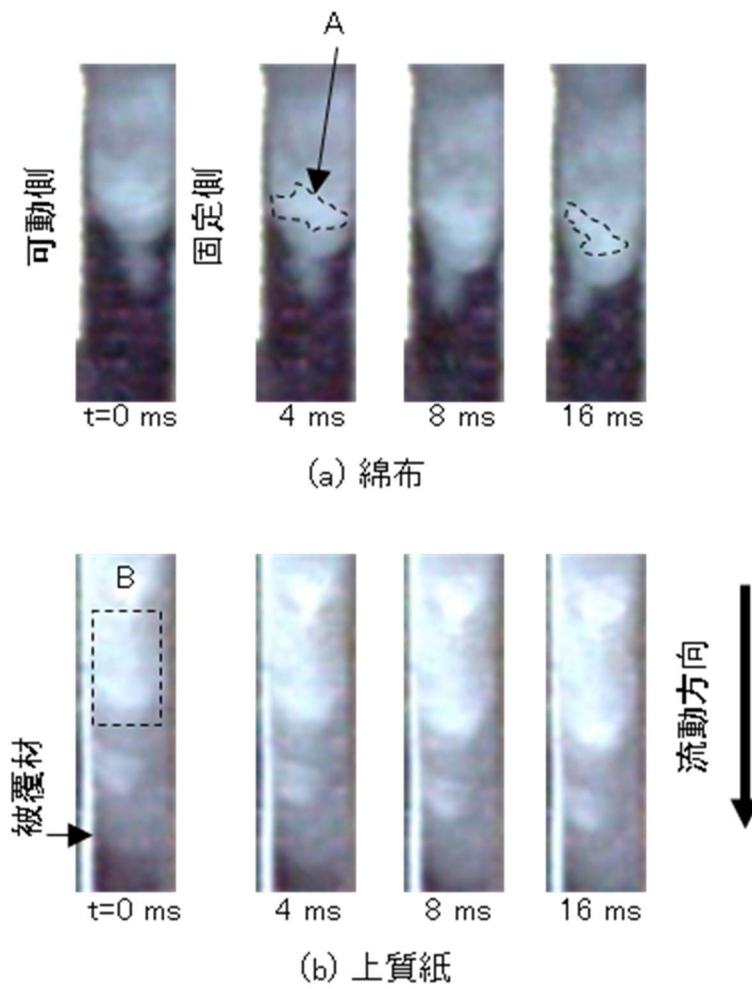


図 5.10 被覆材の違いによる材料流動現象（フローフロント部）

図 5.11 (a)に綿布や皮革, (b)に薄紙のインサート過程流動モデルを示す. (a)では, 被覆材の高い断熱効果により厚さ方向には常に反被覆材側が高い温度分布が形成される. 反被覆材側は, 低粘度化され, 壁面に沿って水蒸気が噴出しつつ材料が充填するため, 滑り流動を誘発する. 一方, 被覆材側は高粘度でさらに被覆材に拘束されるため, 反被覆材からの湧き出し流れとフロントの回転流動を引き起こす. 非対称なファウンテンフローが形成される. 厚さ方向の速度勾配を反映して, パルプが配向し, また流動過程に内部に形成された空隙も変形され, 斜め方向の空隙が形成される. これに対して薄紙の(b)では, 厚さ方向にほぼ対称な温度分布が形成され, 紙側でも紙の界面に沿って通常の PIM と同様の滑り流動が形成され, 非対称なパルプ配向も形成され難く, 内部の空隙も厚さ方向の傾斜が少ない形態となる. 紙厚さの増大に伴って断熱効果が増大し, (a)へと遷移する.

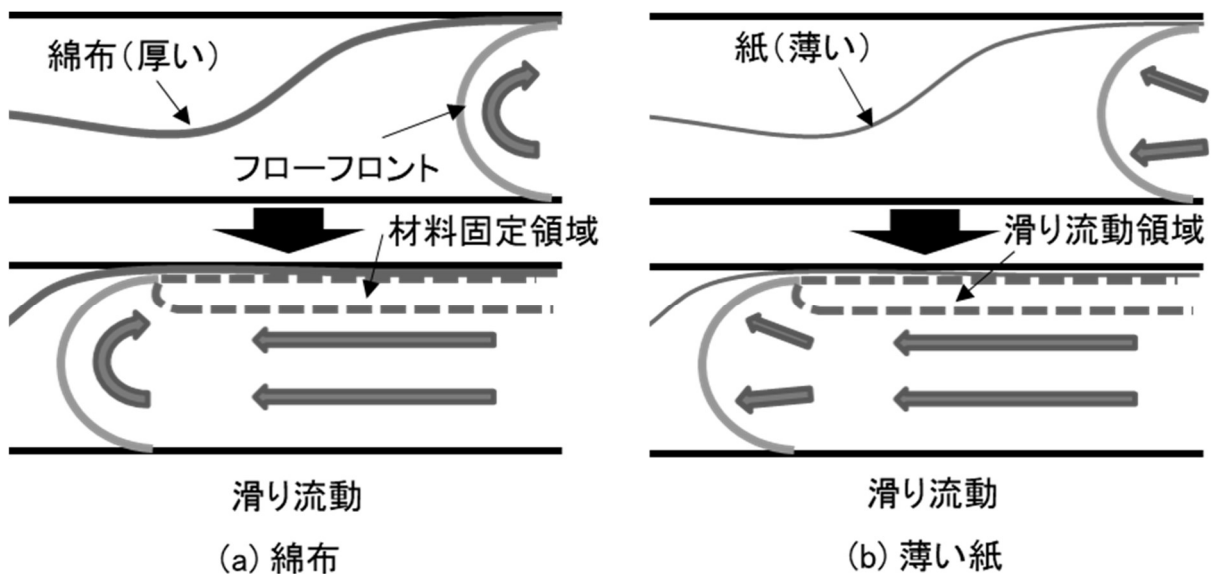


図 5.11 被覆材による材料流動変化の流動モデル

## 5.4 結言

本章では、PIM材料滑り流動の抑制を目的に、金型表面の表面粗さの変化と紙・綿布・皮のインサートによる表皮一体成形について、厚さ方向の動的可視化観察を用いて流動挙動の解析を行った。

- (1) 矩形平板形状キャビティの途中でシボ面を挿入し、フローフロントの飛び出し量の変化を材料充填挙動の安定の指標として検討を行い、以下の知見を得た。① 材料水分率が高い材料では、シボ面からの大きな流動抵抗に拘束されてフローフロントの形状が安定化する。② ゲートからの距離  $L=0\sim 100$  mm では、シボがある場合にはフローフロントの形状が安定化するが、シボがない場合にはフロント形状が常に大きく変化する。③ ゲートからの距離  $L=100\sim 200$  mm では、いずれのシボ面粗さでもフローフロント挙動は安定化する。
- (2) 動的可視化観察を通して、シボ無し面とシボ有り面の通過時における材料流動の変化を明らかにした。シボ有り面では材料が拘束されて、シボ有り面の対向面(シボ無し面)からシボ有り面に向かって流れる回転流動が顕著に確認された。一方いずれのシボ無し面でも、材料が滑り流動する様子が確認された。
- (3) 紙の表皮一体成形を PIM に適用すると表面の凹凸が大幅に改善された。その生成要因として、断面観察により乾燥時に水蒸気の脱気が被覆材側から行われず脱気孔が形成されないことが、また動的観察により、材料が被覆材に拘束され被覆材側に向かう回転流動が生成するためフローフロント挙動の安定化に寄与することが、それぞれ確認された。

本章で可視化により明らかにした結果は、シボ面の設置とそれによる樹脂の流動挙動の遷移との相関であった。本章の 5.1 緒言でも述べたように、PIM 材料の特徴的な滑り流動は、基本的に抑制することが良品を得るために理想的である。特にゲート近傍のキャビティ領域では、樹脂がゲートから拡大流を形成する中で成形材料が一気に加熱されると、フロント近傍の材料内部で生成した水蒸気のガス圧と、樹脂の幅方向への伸長拡大作用とが相俟って、フロントに亀裂が生成しやすくなる。そのため、水蒸気圧により、フロント部の材料が爆発するように流動方向へ吹き飛ばされる成形不良が生成しやすい。それを抑制するためには、流入直後の成形材料がキャビティ表面で強く拘束される必要があり、キャビティ面にブラスト処理等をして面を荒らす処理が必須となる。

一方、PIM 材料は水分を含有しており、フロント部は高温に晒されて常に乾燥させられる。これにより、通常の樹脂のようにフロントの中心部より材料が湧き出すファウンテンフロー(噴水流れ)が形成されにくく、フロント部には乾燥し始めた高粘度



材料が滞留する。結果として、PIM 材料の充填過程では、フロントと壁面との片側の接触領域で破断し、内層の材料が破断箇所から湧き出すとともに、フロント部の滞留した瘡蓋状の乾燥材料が、湧き出し部と反対側方向へと押し出されることとなる。これが非対称なファウンテンフローで、厚さ方向から観察される回転流動に対応している。すなわち回転流動によって、フロント部の乾燥した材料は常に湧き出した材料に置換されるため、フロント部が極端に乾燥した材料で固定化されること（それにより、ウェルドラインの接合不良や段差部での不安定な流動を促進すること）を低減する効果がある。以上のように滑り流動は、成形不良をもたらす因子として基本的には回避することが望ましい。一方、回転流動は壁面での拘束力が大きいことを背景としており、流動圧力損失を極端に増大させるため、キャビティ充填の促進という意味ではむしろ滑り流動（成形品スキン層と金型面との間に水蒸気を噴出し、摺動抵抗を極端に低減させるような流動形態）が好ましいと考えられる。回転流動を生み出すかどうかは、壁面での拘束力であり、拘束力はシボ深さがある程度以上の深さとなる必要がある。そのため、部分的に回転流動を伴う滑り流動や、明瞭に交互に生成させたり、必要な箇所に回転流動を生成させることが、本章での成果により制御できるものと示唆された。

なお、本章の実験で得られた結果は、矩形平板形状の金型上で発生する限定的な結果であり、一般的な金型にそのまま使用することは難しい。しかし PIM 材料特有の滑り流動は様々なところで発生し不良現象の原因となっている。本章の結果は材料の流動状態の傾向を理解するための基礎として捉えることができ、割れなどの不良発生が事前に予測される場合など、金型設計に本章の結果を一部盛り込むことが可能となる。



---

# 第6章 計量安定化と成形サイクルの 短縮

---

6.1 緒言 .....	113
6.2 計量過程の安定化 .....	114
6.2.1 実験方法 .....	114
6.2.2 スクリュの形状因子の影響 .....	116
6.2.3 成形材料の形状因子の影響 .....	119
6.3 乾燥工程の最適化 .....	120
6.3.1 実験方法 .....	120
6.3.2 乾燥過程における型開き量の経時変化 .....	122
6.3.3 型開き量経時変化に及ぼす金型温度の影響 .....	124
6.3.4 水分率の降下曲線 .....	126
6.3.5 型開きモードの最適化 .....	127
6.4 結言 .....	129

---

## 6.1 緒言

第4章, 第5章では「流す」という工程について, 評価手法と実証的な検討を行ってきた。第4章では, 主に滑り流動により充填がなされる PIM の特徴に着目して, キャビティ表面に配置した着色材の軌跡を流動履歴として抽出する着色マーキング法を新たに提案し, 滑りを主体とした PIM 流動挙動に最も大きな影響を与えるキャビティ面の肉厚領域について, その3次元的な流動現象を明らかにした。第5章では, PIM 材料滑り流動の抑制を目的に, 金型表面の表面粗さの変化と紙・綿布・皮のインサートによる表皮一体成形について, 厚さ方向の動的可視化観察を用いて流動挙動の解析を行った。

パルプ射出成形の大きな課題として生産効率の向上が挙げられる。ここでいう生産効率とは品質安定による良品率と成形サイクルを指す。プラスチック射出成形では, 材料を「溶かす, 流す, 固める」の各工程を, 1プロセス内で行うことが必要であり, 各工程での安定化が, 良品率改善に直結することが知られている。PIM でも同様に PIM 材料を, 「柔らかくする, 流す, 乾燥させる」という各工程の安定化が求められている。計量安定化については, 樹脂の射出成形において多くの研究がなされており, スクリュ形状をはじめチェックリング閉鎖挙動[村田 1991] [横井 1999] [畑中 1993] [高次 2017], 飢餓供給[浅野 2003] [横井 2000], ホッパー下形状[高次 2016] [Strand 1992], 嚙込み不良[坂本 1992], ペレット形状[白石 1995]など多くの影響因子が報告されている。

本章では, まず計量過程の安定化として, スクリュ形状および成形材料の形状について検討を行った。PIM 成形材料は, ペレタイズ加工を行わない不定形材料から計量時間短縮と安定化を目的としたペレット化の検討を行い, 同時にペレット材料に最適なスクリュ形状を探索した。次に成形時間の短縮では, 成形サイクル全体の 70%程度を占有する乾燥工程 (第1章 図 1.10 参照)の短縮化を課題とした。ここでは, 金型開閉動作の金型開閉条件, 材料水分, 金型温度の影響について調査した。成形品の水分率を計測し, 金型開閉動作による乾燥遷移過程のモデルおよび最適な金型開閉の最適条件を明らかにすることを本章の研究目的としている。

## 6.2 計量過程の安定化

### 6.2.1 実験方法

成形材料は針葉樹パルプを 60 wt%，澱粉を 30 wt%，PVA を 10 wt% の割合で配合したものに，水を加えて混練した後に規定の重量水分率に調整したものを使用した．実験条件は表 6.1 の実験条件 A を使用し，背圧は 2.4 MPa で一定とした．ミキサーで造粒した不定形なバルク材料ならびに同材料を押出加工してホットカットしたペレット材料の 2 種類を用意した．図 6.1 に材料の外観写真を示す．また使用したスクリュの圧縮比  $\epsilon$  (供給部スクリュ溝深さ  $h_f$  と計量部スクリュ溝深さ  $h_m$  の比  $h_f/h_m$ )，およびスクリュ長さ  $L$  とスクリュ径  $D$  の比  $L/D$  を表 6.2 に示す．ここで圧縮比は，スクリュ供給部の溝深さを一定とし，計量部の溝深さを変化させて求めた．シリンダ内部の P1 (計量部の中間) と P2 (圧縮部の終わり) に圧力センサ NP465XL (Dynisco 社) を設置し，計量時のスクリュ後退に合わせて圧力変化を計測した．使用したスクリュのホッパー位置とセンサ位置との関係を図 6.2 に示す．使用スクリュはスクリュ A～C，成形材料はペレット材料とし，スクリュ圧縮比と  $L/D$  を変化させて 100 mm 計量を行った．次に，バルク材料とペレット材料との比較ではスクリュ C を使用し，設定値で 25, 50, 100 mm 計量を行って各条件の計量時間と計量時間のバラつき ( $n=15$ ) を比較した．

表 6.1 成形条件

実験条件	A	B
シリンダ温度 (°C)	(ノズル) 90/80/65 (ホッパー)	(ノズル) 90/80/65(ホッパー)
射出率 (cm <sup>3</sup> /s)	24.6	98.5
射出速度 (mm/s)	10	40
計量値 (mm)	25,50,100	40
スクリュ回転速度 (rpm)	120	80
背圧 (MPa)	2.4	2.4
金型温度 (°C)	—	170, 180, 190

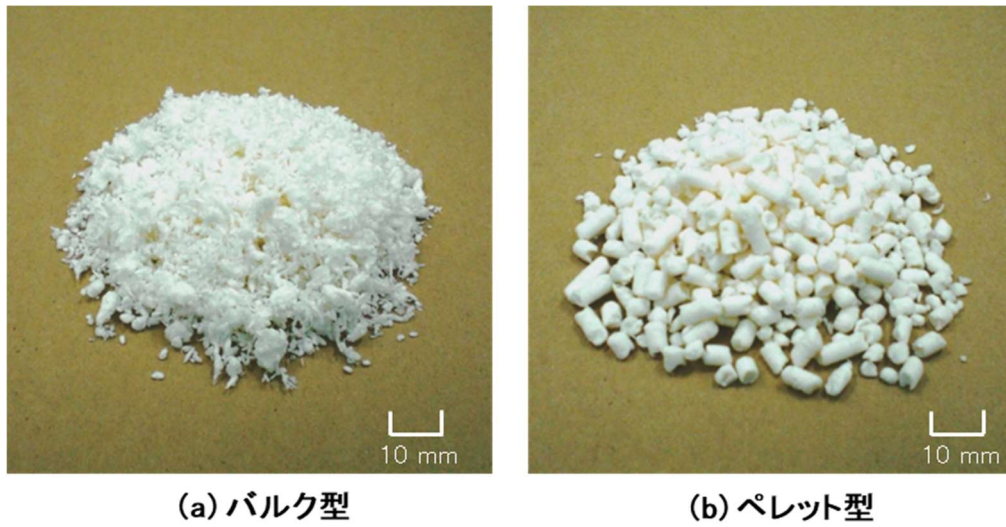


図 6.1 PIM 材料の形状

表 6.2 スクリュ圧縮比  $\varepsilon$  と  $L/D$ 

	スクリュ圧縮比, $\varepsilon$	$L/D$
スクリュA	2.33	21.5
スクリュB	1.35	21.5
スクリュC	1.25	12.1

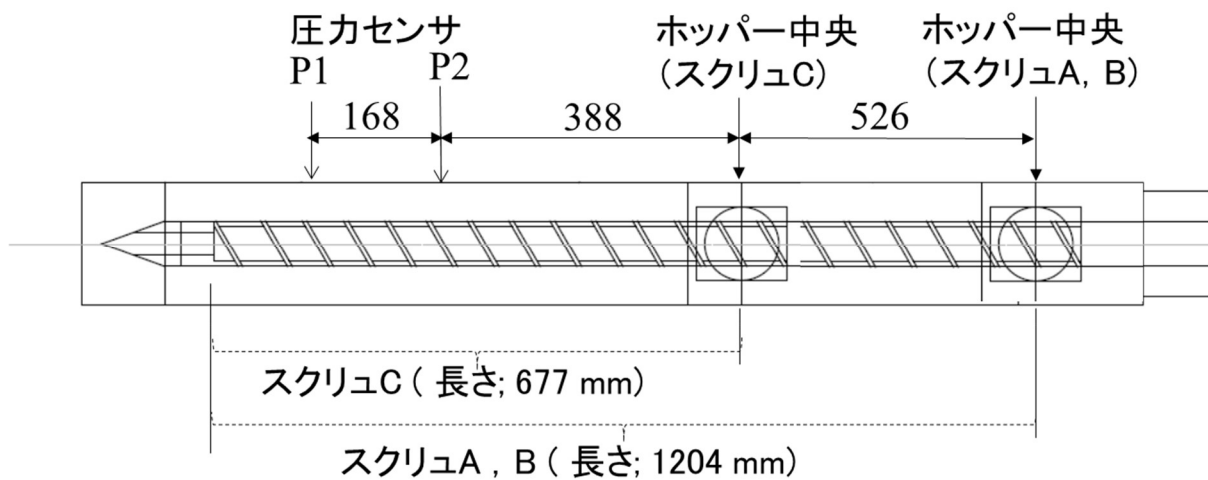


図 6.2 圧力センサ位置と各スクリュのホッパー位置

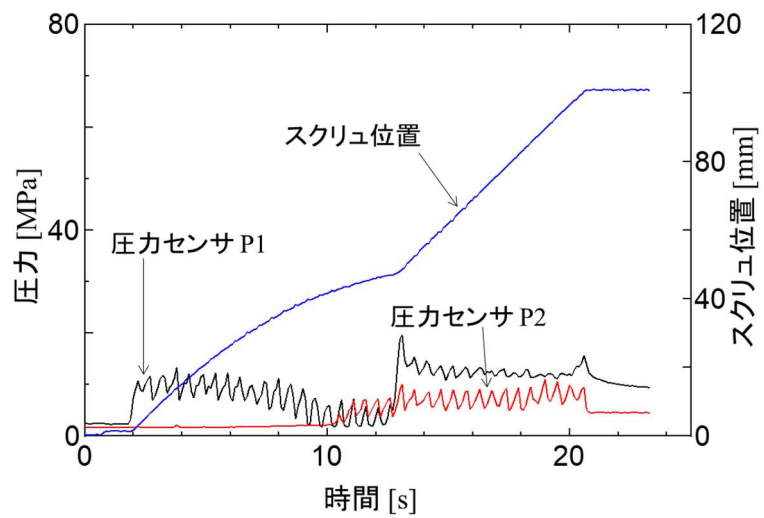
## 6.2.2 スクリュの形状因子の影響

圧縮比と  $L/D$  を変化させたスクリュ A~C, 100 mm 計量時におけるシリンダ内圧の経時変化を比較した。その結果を図 6.3 (a)~(c)に示す。 $L/D$  が長く圧縮比が最も大きいスクリュ A では、同図 (a)のように、計量ストロークが 40 mm あたりで計量部中間の圧力センサ P1 の値が減少し始め約 50 mm で概ねゼロに推移する様子が確認された。その後、低下前の圧力より大きな値に一気に上昇し、やや減少しつつ計量完了まで水平に遷移した。同時に圧縮部出口側の圧力センサ P2 は、P1 が急激に上昇する少し前辺りから徐々に圧力上昇を示し始め、材料がスクリュ溝内に徐々に充満して圧力が上昇する様子が確認された。これに対応して、スクリュ後退速度においても 50 mm 近辺で速度低下した後に、P1 の昇圧と同時に一定速度に復帰する様子が示された。以上の結果は、スクリュ溝内においてペレット充満率の疎密に起因して生成していると推察される。すなわち、ペレット材料の直径(約 5 mm)がスクリュ A の計量部フライト深さより大きく、さらにペレットが容易には形状変形を起こしにくいいため、圧縮部途中でペレットが引っかかり材料詰まりを引き起こす。計量開始時にはホッパー下から落下し充満した疎のペレットがノズル側に移動を開始するが、圧縮部出口側ではすぐには密に充満せず P2 の昇圧が遅延する。同部の材料充満率が上がり充填圧が一定以上になると、接触面積の増加(伝熱効果)と材料変形の促進(せん断発熱)が促され、材料が軟化し計量部方向へと輸送を開始する。これにより P1 は一気に昇圧しスクリュの後退が再開される。こうした現象は圧縮部スクリュ溝の傾斜が急峻であればあるほど(圧縮比が大きいほど)顕著に生成するものと示唆される。

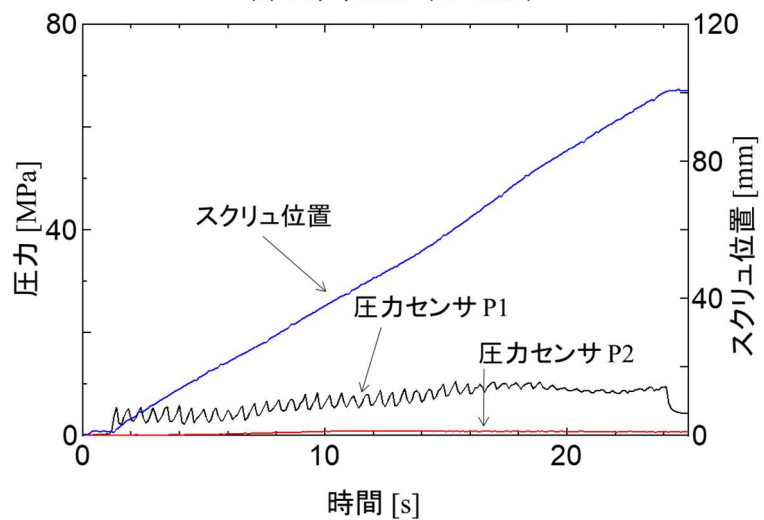
次に  $L/D$  は変化させず、圧縮比  $\varepsilon$  を 2.33 から 1.35 に低下させたスクリュ B では、図 6.3 (b)のようにスクリュ A で発生していた P1 の圧力低下と再上昇、スクリュ後退速度の大きな変動は確認されなかった。また P2 は圧力上昇をほとんど示さなかった。これらの結果は、圧縮部出口側での材料詰まりがほとんど生成しないことを示唆しており、スクリュ圧縮比が小さいことが、計量時間の安定化ならびに可塑化材料の特性の均質化に有効であることが確認された。

最後に、PIM ペレットの固体輸送過程では樹脂の予熱効果は少なく、むしろ乾燥促進による表層部材料の硬化が懸念された。そこで充満する前のペレット固体輸送領域でのスクリュ長さを短くするという考え方のもとに、 $L/D$  を 21.5 から約半分の 12.1 まで小さくし、さらに圧縮比  $\varepsilon$  を 1.25 まで低下させたスクリュ C を提案し同様の実験を行った。図 6.3 (c)のスクリュ後退波形を同図(b)のスクリュ B と比較すると、計量完了時間は同じであったが、スクリュ B では波形が若干下側に振れて途中で屈折を示していたがスクリュ C ではほぼ直線(速度一定)となっていた。また、P2 の圧力波形はスクリュ B の時は若干上昇する傾向が確認されたが、スクリュ C では上昇傾向が見られない。以上の比較から、圧縮比の低下と  $L/D$  の減少(スクリュの短尺化)がペレッ

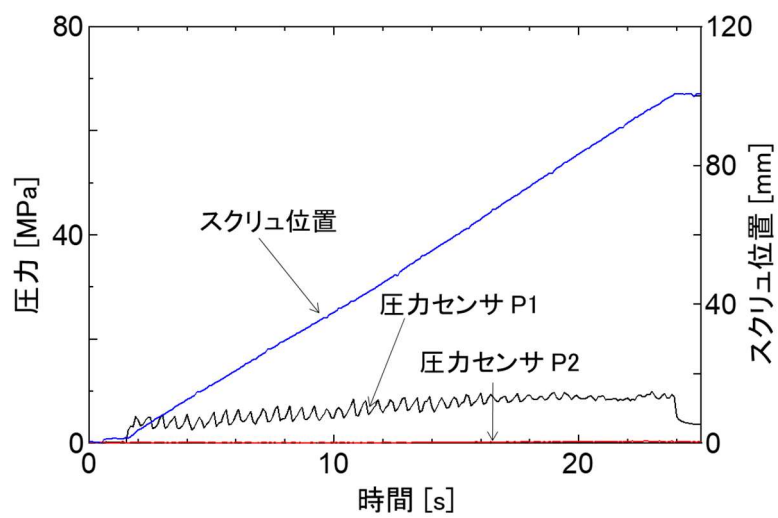
ト材料の安定した移送と計量過程のさらなる安定化に寄与したものと考えられた。また、材料にかかる圧力，乾燥の抑制，せん断変形の低減とパルプ繊維の破断抑制効果によって、材料の劣化が抑えられ、材料の均質化と状態の安定化にも寄与しているものと期待される。



(a) スクリュ A ( $\epsilon=2.33$ )



(b) スクリュ B ( $\epsilon=1.35$ )



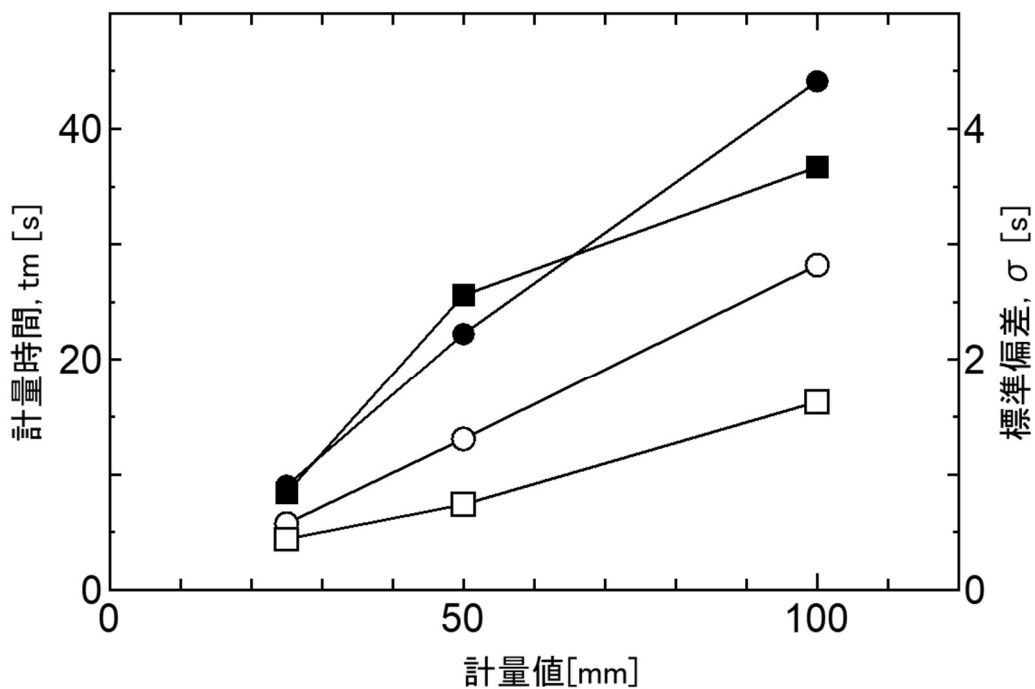
(c) スクリュ C ( $\epsilon=1.25$ )

図 6.3 各スクリュにおける計量時のシリンダ圧力とスクリュ位置の変化

## 6.2.3 成形材料の形状因子の影響

バルク材料とペレット材料を計量した場合の計量時間と標準偏差について比較した。その結果を図 6.4 に示す ( $n=10$  の平均値)。計量時間はバルクとペレットの両者とも、計量値に比例して直線的に増加する傾向を示したが、バルク材料の計量時間はペレット材料と比較して約 2 倍を要することが明らかとなった。一方、標準偏差では、計量値が大きくなるとともに明瞭な増加傾向が見られた。標準偏差の値は、ペレット材料ではいずれも計量時間の 0.06~0.08 倍、バルク材料では 50 mm 計量時を除き計量時間の 0.08~0.09 倍の値を示した。なお、バルク材料の 50 mm 計量時で、標準偏差が他の計量値に比べてやや増加する理由は明らかではないが、本実験結果より、バルク材料は計量時間とばらつき増加をもたらすため、ペレット化処理が計量の短縮・安定化に必要な条件となることが明らかとなった。

ペレット化によって、計量が安定する理由は、以下のように考えられた。① 材料粒子の形状のばらつきが低減したため材料の嵩密度が安定化し、スクリュ溝内の単位時間当たりの材料充填量、すなわち材料輸送量が安定した。② 材料粒子の形状や大きさが安定化したことにより、各材料粒子とシリンダ・スクリュ壁面との接触面積とそれによる摩擦力が一定になり、材料が前に送り出される力が安定化した。以上の相乗効果により、計量安定化が図られたと推察された。



標準偏差,  $\sigma$  (■ ; バルク, □ ; ペレット) 計量時間,  $t_m$  (● ; バルク, ○ ; ペレット)

図 6.4 バルク型とペレット型の計量時間と標準偏差の比較



## 6.3 乾燥工程の最適化

### 6.3.1 実験方法

乾燥工程の最適化では、前項と同じ成形機を使用し、矩形平板キャビティ(長さ 300×幅 300×厚さ 1 [mm])での実成形実験により評価を行った。ゲートはダイレクトゲートを使用し、金型の加熱方式は、PL 面から深さ 15 mm の位置に  $\phi 12.7$  mm のカートリッジヒータを 30 mm ピッチで設置した。金型の外観を図 6.5 に示す。

PIM 成形品は成形後大気中の水蒸気を吸収し、おおよそ 7~9 wt% の平衡水分を持つようになるが、乾燥工程では金型内部で成形品を絶乾状態まで乾燥させる必要がある。これは途中の 7~9 wt% を狙い乾燥を中断すると成形品肉厚中央部のみ未乾燥の状態で残留し、成形品内部の発泡状態が不均一となり成形後に変形する要因になるためである。成形条件は表 6.2 の実験条件 B を使用し、乾燥工程で使用した型開閉条件の機械側設定値は、表 6.3 の Mode 1 で一定とした。このとき金型温度を変化させた場合の型開閉動作の実際の挙動について、渦電流式変位センサ EX-110V (株キーエンス) を用いて測定し比較した。また成形品の含有水分率の算出は乾燥減量法 JIS K 0068 を基に PIM 材料の特性に従って条件を設定した。具体的には、同実験の型開き 2 回目以降で成形を中断 (成形品は未乾燥の状態) させて、取り出し直後の重量と、同サンプルを

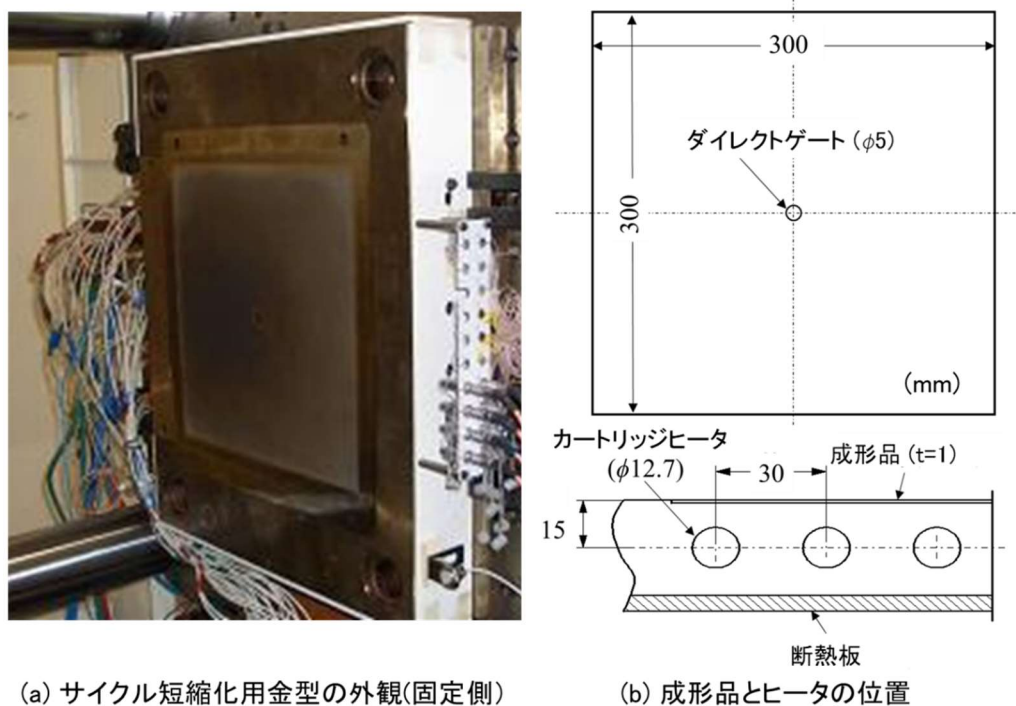


図 6.5 サイクル短縮化実験金型とヒータ位置

100°C, 24 時間加熱乾燥させた絶乾重量との差を算出した. これを型開き回数毎に行い成形品内の含有水分率の低下曲線を作成した.

成形は材料水分率  $\alpha=33.4$  wt% (金型温度 170°C, 180°C, 190°C) と  $\alpha=30.8$  wt% (金型温度 180°C) の材料を用いて実験を行った. 次に, 最も乾燥工程の短縮度合いが大きいと考えられた金型温度 190°C, 材料水分率 30.8 wt% の条件を標準条件とし, 金型開閉条件を任意に変化させた場合について, 同様に水分率低下曲線を作製した. このときの金型開閉条件は表 6.4 の Mode 2 とした.

表 6.3 型開閉設定値 (Mode 1)

型開き回数	型開き設定		型閉め設定	
	ストローク (mm)	型開き時間 (s)	ストローク (mm)	型閉め時間 (s)
1 - 20	2.00	3.0	0.01	2.0

表 6.4 型開閉設定値 (Mode 2)

型開き回数	型開き設定		型閉め設定	
	ストローク (mm)	型開き時間 (s)	ストローク (mm)	型閉め時間 (s)
1	2.00	3.0	0.05	0.5
2	2.15	3.5	0.10	0.5
3	2.30	3.5	0.10	0.5
4	2.40	2.0	0.10	0.5
5	2.50	0.5	0.10	1.0
6 - 10	2.50	0.5	0.10	1.5

## 6.3.2 乾燥過程における型開き量の経時変化

使用した射出成形機はトグル式型締機構のため、型締完了直前の型締動作は正弦波に近似することが知られている。乾燥過程で重要となる型開き量を同定するために、ボールねじ回転量から計算される成形機側の指令値と渦電流変位センサを用いた実測値との関係を調査した。その結果を図 6.6 に示す。両者は直線関係が理想的であるが、指令値に対して型開き量が概ね 2 mm 程度低減して動作しており、特に実際に成形に適用される実測値 1 mm 以下の領域で指令値と大きく相違することに注意を要する。

上記の変位センサを用いて、型開き 1 回目から型開閉動作の終了までに至る型開き量の変化を実測し、横軸を経過時間として図 6.7 に表示した。使用材料の水分率は  $\alpha=33.4$  wt% で、型開閉条件は 1~20 回まで同じ設定値 2.0 mm とする表 6.3 の Mode 1 を使用した。同図より、同じ設定値を用いているにも関わらず、実測値は前半の 9 回目までと後半 11 回目以降では大きく変化し、前半のほうが大きく開いていることが明らかとなった。9 回目までの前半では、充填直後は材料内部に含まれる水分量が多いため、キャビティ面で加熱され昇圧した水蒸気が、金型が開き始めた瞬間に外部に勢い良く放出される。そのため、キャビティ内圧の高まりが金型を押し開く力を増大させ、機械の動作規定量に加えて型開き量を増加させるものと推察された。水蒸気の放出がある程度進み成形品の乾燥が進行すると水蒸気が発生しにくくなり、11 回目以降の後半では金型を押し開く力が消失して型開き量が元々の規定値に収束したものと考えられた。

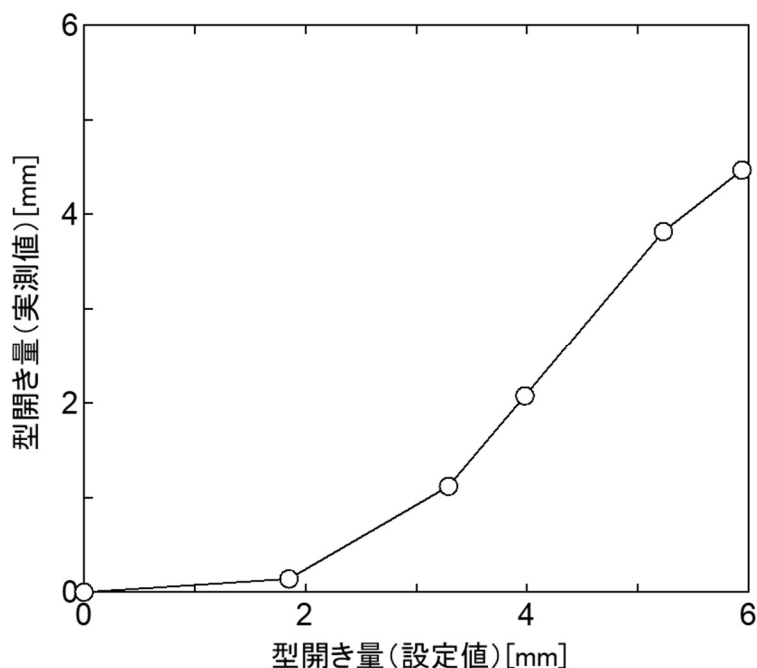


図 6.6 型開き量設定値と実測値の関係

また型開き動作前半での波形について、9回目の山の頂点形状を拡大して同図中に示した。型開き初期にaのように大きく型が押し広げられ、その後はaからbへと徐々に減少していく様子が確認された。これは、型閉め過程で気化した水蒸気の膨張力が、一回の型開き工程の中でも特に初期に集中して放出されている様子を示すもので、水蒸気が脱気し蒸気圧の減少を反映して型開き規定値に近づくように徐々に金型が閉じたものと推察された。このピークaからのbへの減少過程は9回目までの前半での波形では確認されるが、11回目以降からは平坦化され確認されなくなっている。さらピークaからのbへの減少落差は、型開き1回目と9回目では大きい、その中間の2~8回目ではむしろ小さくなっている様子も確認できる。1回目では、材料内に多くの水分を内包する中で、キャビティ加熱面に接して多くの水蒸気が急激に生成し型開き開始時に脱気することで急峻な落差が形成しやすい。一方、9回目は、11回以降での小さな型開き量へと移行する遷移過程にあり、すでに成形品の全域でかなり乾燥が進行している状況から判断すると、急峻な減少落差の形成は特異な現象とみなされる。この理由は以下のように考察された。本実験での成形品形状は正方形で、中心にダイレクトゲートが設置されている。そのため、型開き過程では外周部から順に乾燥・形状固定が進行しやすく、中心ゲート部が最後に乾燥されることとなる。9回目では成形品中心部が最後に乾燥する過程に対応する。その際は水蒸気の膨張領域が小さく、型開き時の脱気直後で概ね乾燥が完了して型開き量が規定値に戻りやすいものと示唆された。

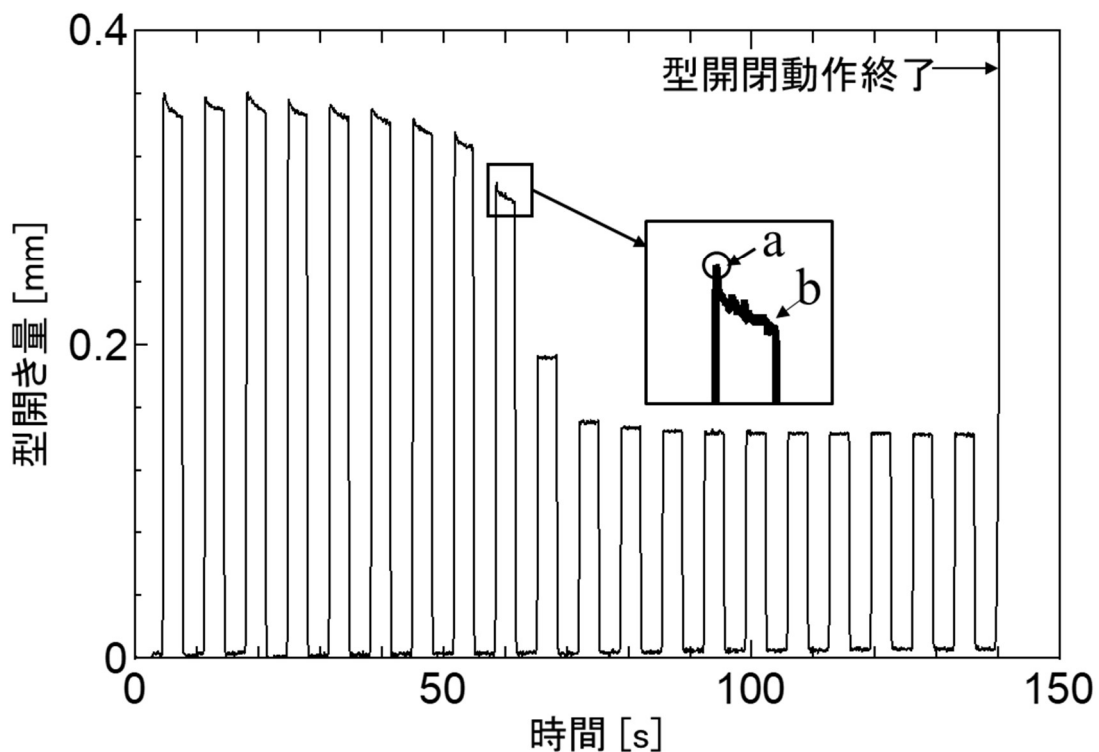


図 6.7 型開閉動作回数に伴う型開き量の変化 (Mode 1,  $T_m=180^\circ\text{C}$ ,  $\alpha=33.4 \text{ wt}\%$ )

### 6.3.3 型開き量経時変化に及ぼす金型温度の影響

次に前項と同様に、材料水分率は  $\alpha=33.4$  wt%一定、金型の開閉条件は Mode 1 とし、金型設定温度を 170°C, 180°C, 190°Cと変化させて、型開き量の経過時間を比較した。結果を図 6.8 に示す。また同図の初期型開き 1~5 回目の山形波形を抜粋して、図 6.9 にその形状を比較した。

図 6.8 より、型開き操作開始後の前半部での型開き量レベルは金型温度が高いほど大きくなり、またいずれの金型温度でも後半部では急激に減少し、最終的には型開き規定量近くに収束している。後半部の減少へと遷移するタイミングは、 $t_1, t_2, t_3$  のように、金型温度が高いほど早期に現れており、各山形波形の形状における a-b 間の落差(図 6.7 参照)は、ゲート中央部の乾燥完了を反映して  $t_1, t_2, t_3$  のいずれにおいても特徴的な急峻な形状を呈している。つぎに図 6.9 では、型開き開始直後の各波形の a b 間落差は、金型温度が 190°Cの時に最も大きく、180°C, 170°Cではその落差に大きな差異は確認されなかった。金型温度 170°C, 180°Cでは落差が小さく、190°Cのときに落差が大きくなる理由は、金型温度が高い場合には、成形品内の水蒸気の爆発的な膨張力により型が押し広げられる開き量が大きくなり、脱気後との落差が大きく示されたことに起因すると推察された。180°C, 170°Cでは 190°Cのような急峻な変化ではないことから、金型温度が 190°Cに近くなると型開き 1 回目までの間に金型内の水蒸気圧が飽和し大きな膨張力を派生するものと考えられた。

以上のことから、同じ型開閉条件設定を行ったとしても、金型温度が高い場合では、低い温度の時よりも型開き量が自然と大きくなるため、水蒸気が外部に排出される量も増加し、乾燥の効率化に寄与することが明らかとなった。ただし、型開き量が大きくなりすぎると成形品の縁部の破裂や表面性状の凹凸増加など弊害もあるため、型開き量と要求品質の関係も考慮して型開閉条件の設定を行う必要がある。

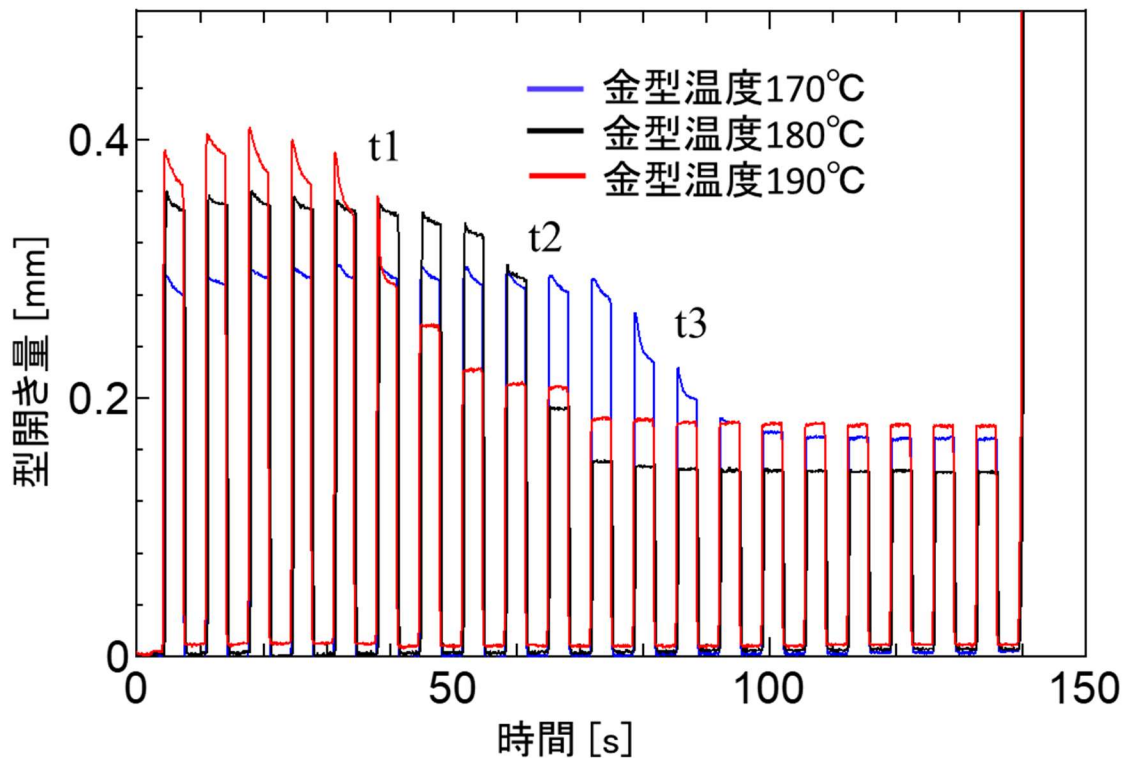


図 6.8 金型温度の違いによる型開き量推移の比較

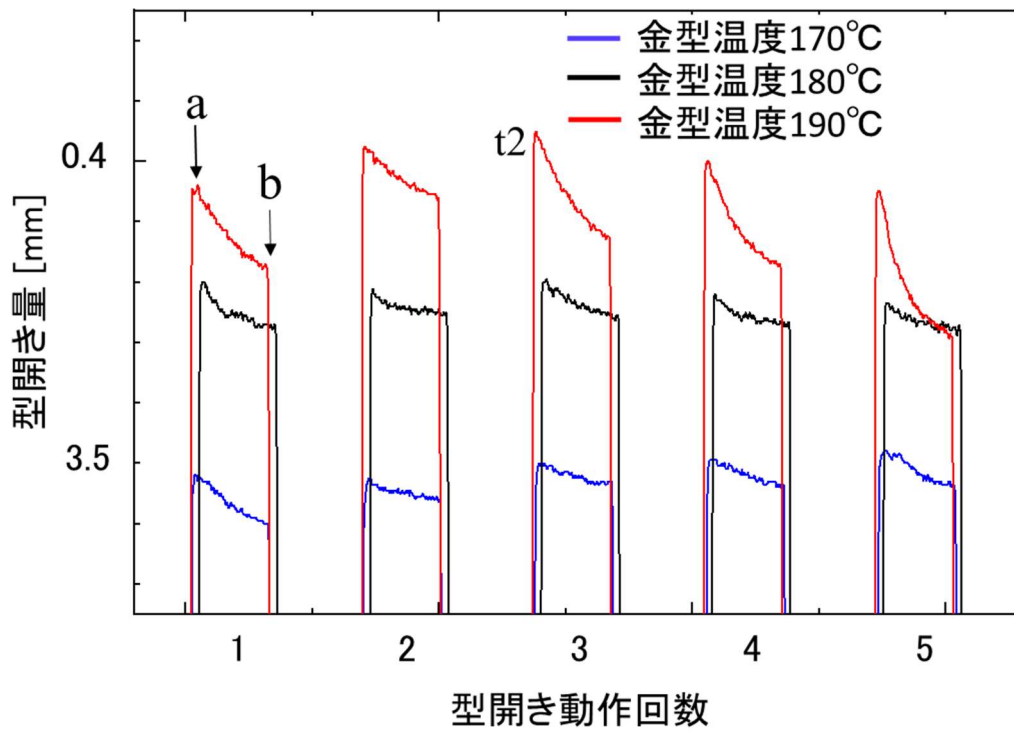


図 6.9 各型開き動作回数におけるピークの比較 (図 6.8 のピーク拡大)

## 6.3.4 水分率の降下曲線

Mode 1 の型開閉条件を使用して、水分率降下曲線を作成した結果を図 6.10 に示す。図 6.8 の型開き状態を再現し、型開閉毎に成形中断し成形品に残留する水分量を、重量差分法により算出した。材料水分率は  $\alpha=30.8$  wt%、33.4 wt% の 2 種類を使用した。金型温度が低いと水分率降下曲線が緩やかに、逆に高いと降下曲線が急峻となることが予想されたが、予想通りの結果となった。また、図 6.8 と対比すると、金型温度 170°C では波形山部の傾きが消失し、型開閉量が規定値になる 15 回目で成形品の水分はほぼ消失していることが確認された。同様に 180°C でも、11 回目で型開き量が一定になると同時に、絶乾状態を達成している。ただし 190°C では、型開閉量が規定値に復帰する 11 回より前の 8 回目で、水分がほぼ消失している。これは、高温金型から成形品を重量天秤へと移動中に水分蒸発が急激に進むため、乾燥減量法による 1% 以下の水分率測定限界に起因するものと推察された。また金型温度 180°C、材料水分率  $\alpha=30.8$  wt% では、金型温度 190°C、材料水分率  $\alpha=33.4$  wt% の場合とほぼ同様の水分率降下曲線を示しており、材料水分率の影響も金型温度と同様に大きいことが確認された。

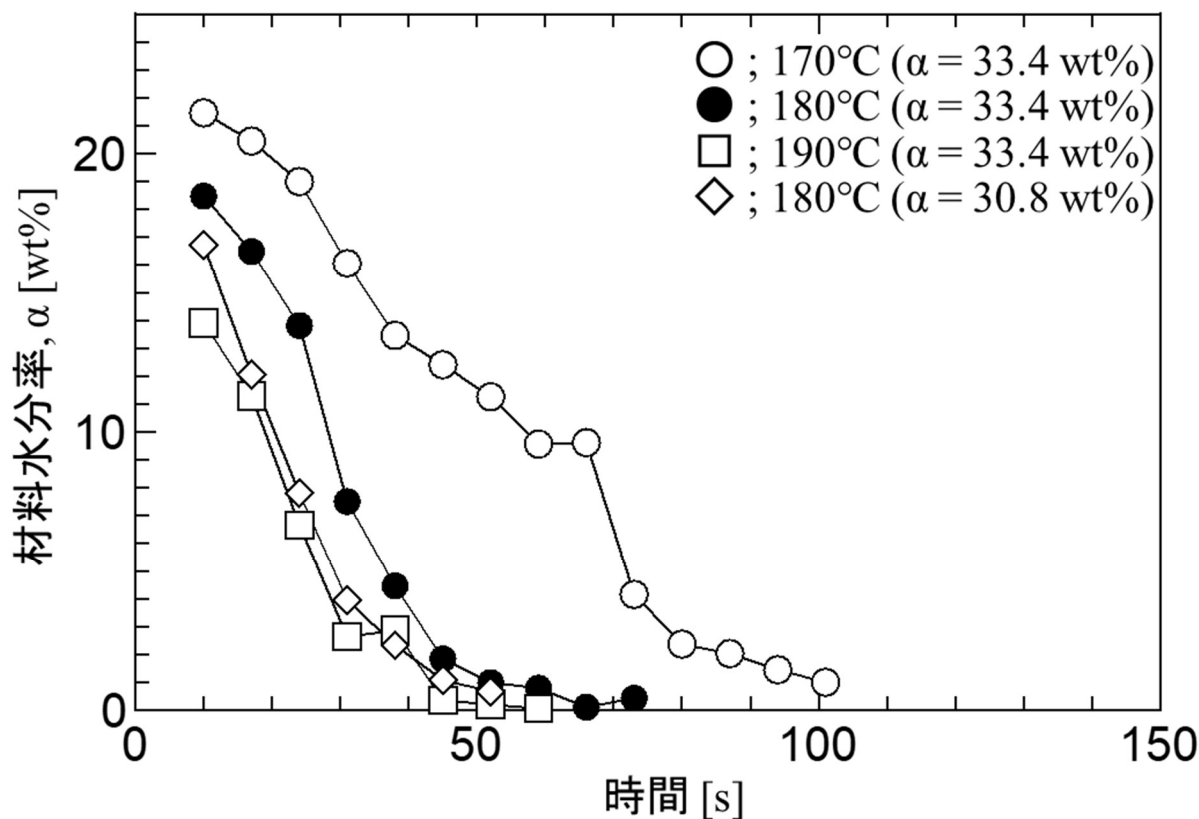


図 6.10 成形サンプルの残留水分率の推移 (Mode 1)

### 6.3.5 型開きモードの最適化

以上の結果を統合し，乾燥の時間をさらに短縮できるものと期待される条件を探索し，実際に成形を行った．型開閉条件としては表 6.4 の Mode 2 を，使用材料水分率は  $\alpha=30.8 \text{ wt\%}$  を使用した．その時の実際の型開き量計測値の変化を図 6.11 に，また水分率降下曲線を図 6.12 に示す．水分降下の程度を比較しやすいように，同図には前掲図 6.10 の中から金型温度  $190^\circ\text{C}$ ，材料水分率  $\alpha=33.4 \text{ wt\%}$  の水分率降下曲線を併記している．図 6.10 ではいずれの条件でも乾燥に 50 秒程度以上を要していたが，図 6.12 では 25 秒以下で乾燥工程を終了している．これより，金型温度  $190^\circ\text{C}$ ，材料水分率  $\alpha=30.8 \text{ wt\%}$  の条件下で型開閉条件を最適化することで，従来の乾燥時間を半減以下に短縮できることを確認することができる．

型開閉条件設定のための基本的な考え方を以下に提示する．①できる限り初期段階に水蒸気を型外に排出する(型閉じ時間を短く，型開き時間を長くする．② 型開き操作の後半段階では，微量の水分を除去する(型閉じ時間を長く，型開き時間を短くする．③ 成形品の品質を考慮して，1 回目の型開き量は小さくし，徐々に大きくする．以上の条件で成形を行ったところ，乾燥時間が大幅に短縮され，同じ乾燥状態にまで到達するのに Mode 1 と比較して半分の時間に短縮することが可能となった．

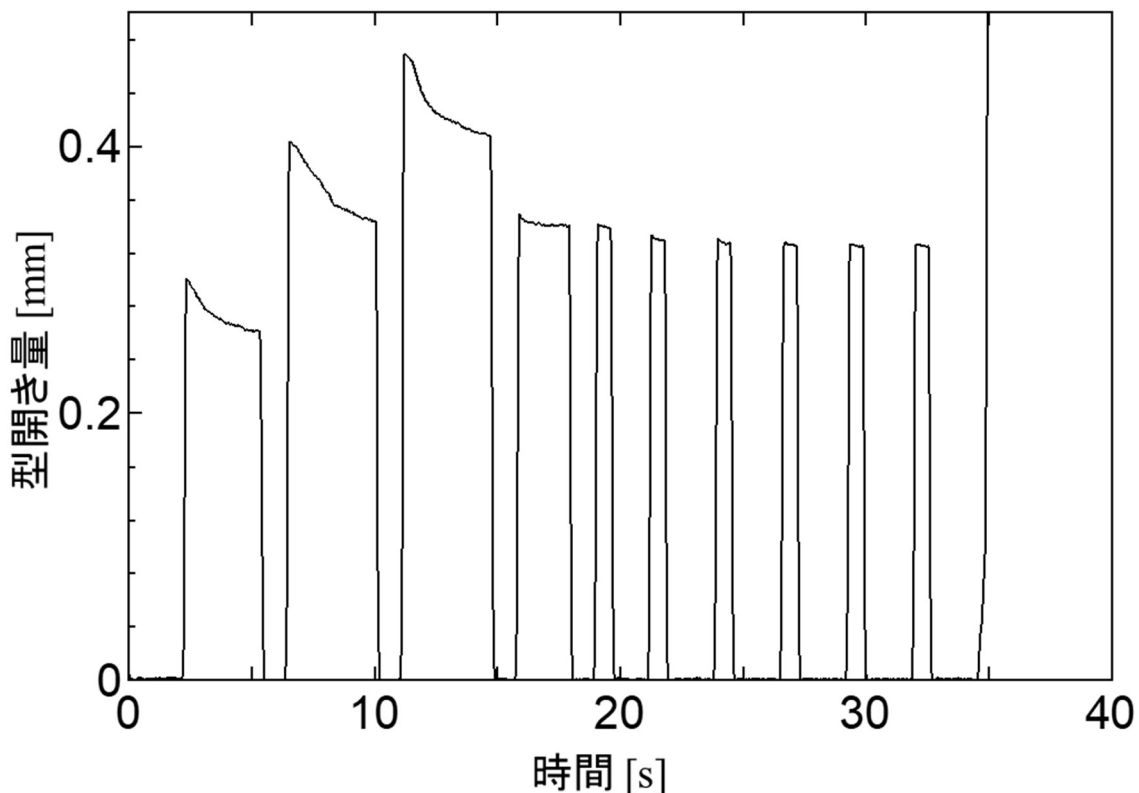


図 6.11 型開閉動作 Mode 2 使用時の型開き量 ( $T_m=190^\circ\text{C}$ ,  $\alpha=30.8 \text{ wt\%}$ )



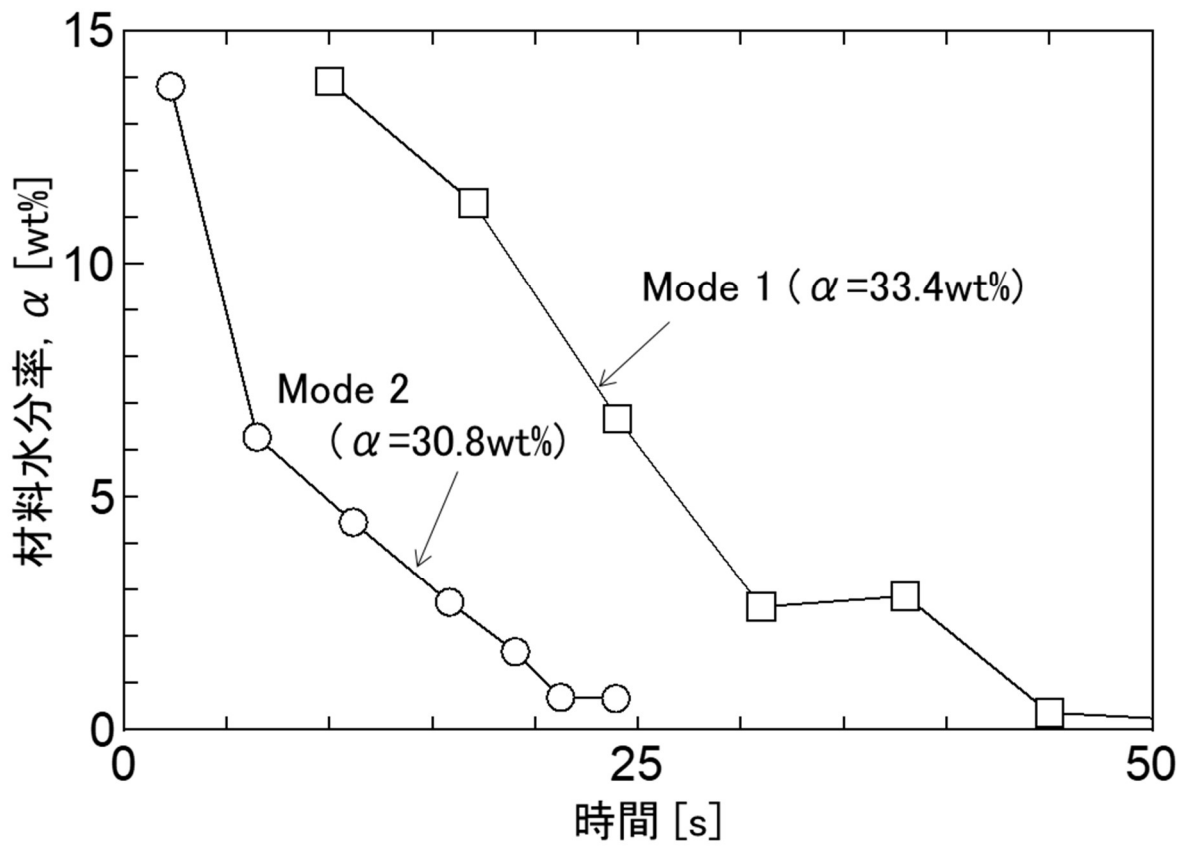


図 6.12 型開閉動作 Mode 1 と Mode 2 の時の成形品残留水分率の推移 ( $T_m=190^\circ\text{C}$ )

## 6.4 結言

本章では，成形量産時の課題である，計量過程の安定化と乾燥工程の最適化について検討を行った。

- (1) 計量過程の安定化では成形材料のペレット形状とバルク材料を用いて，100 mm 計量を行い計量時間とばらつきについて比較を行った。その結果，ペレット形状はバルク材料に比べ計量時間とばらつきが半減し，大幅な改善効果が認められた。
- (2) ペレット使用時の最適なスクリュ形状を提案するため，シリンダ計量部と圧縮部に圧力センサを設置しスクリュ挙動を観察した。スクリュ圧縮比が大きく計量部溝深さがペレット径より小さい場合，圧縮部出口で材料詰まりが生じ，スクリュ後退速度一定にならないため計量が不安定になることが明らかになった。
- (3) 圧縮比の低下と  $L/D$  の減少 (スクリュの短尺化)がペレット材料の安定した移送と計量過程の安定化に寄与する。
- (4) 乾燥工程の最適化では，矩形平板形状の実成形で型開き量を実測し，金型設定温度，材料含水率，金型開閉動作と乾燥工程との相関を調査した。一定の型開き量設定条件下で，乾燥の進行とともに水蒸気の内圧低減により型開き量が減少し，型開き挙動から乾燥状態をモニターできることが確認された。また同じ型開閉条件を設定しても，高い金型温度では，低い温度よりも型開き量が大きくなり，水蒸気を外部に排出する効果が高まり乾燥の効率化に寄与することが明らかとなった。
- (5) 型開き時間を最初は長く後半では短くし，型開き量 1 回目は小さくその後は徐々に大きくすることにより，材料水分率 (30.4 wt%)と金型温度 (190°C)を併用して，乾燥時間を従来の半分に短縮が可能となった。

---

## 第7章 成形材料の粘度特性の計測

---

7.1 緒言 .....	131
7.2 実験方法 .....	132
7.2.1 粘度特性評価装置 .....	132
7.2.2 実験条件 .....	135
7.2.3 みかけ粘度の算出 .....	136
7.2.4 計測結果及び考察 .....	137
7.3 結言 .....	142

---

## 7.1 緒言

前章では、生産効率を向上させるために、計量過程の安定化と乾燥工程の最適化について検討を行った。計量工程の安定化は、材料のペレット化とスクリュ  $L/D$ 、圧縮比について最適化を実施した。また、乾燥工程の最適化を行うことにより、成形サイクルの短縮について検討を行った。

PIM 材料は、内部に含まれる水分により澱粉が糊化することで可塑性を呈するが、熱可塑性樹脂のように単純に加熱溶解することで流動性を発現していない。従来、PIM 材料のレオロジー特性は流動性、成形性を評価する上で最も重要な評価パラメータであり、今後の多様な成形材料の開発には必要不可欠な最も重要な研究課題に挙げられていた。しかしながら、既存の樹脂用測定機器はいずれも開放系で材料の昇温を行うため、粘度測定時には材料水分率が大きく変化する。水分率に大きく支配される PIM 材料の粘度を測定することは、原理的に困難と考えられた。PIM が実用に供せられるためには、スクリュや成形機と最適制御とともに、成形材料開発の要となる粘度計測装置の開発と計測が未解決な研究課題として残されていた。具体的には、閉鎖系で水分率を変化させずに高圧下で測定する装置の開発が求められていた。

本章では、新たに PIM 材料専用の粘度特性評価装置を作成し、前章までにおいて、試行錯誤で経験則により調整して完成してきた PIM 材料を、粘度特性の評価を通して改めて系統的に材料特性を数値化することにより、規格化された材料粘度指標を作製することの重要性と妥当性を確認することを目的とした。ここでは新規に開発した評価装置により、温度変化、材料水分率変化、材料組成変化による材料粘度特性について相対的に比較検討を試み、その有効性の確認実験を行った。

## 7.2 実験方法

### 7.2.1 粘度特性評価装置

PIM 成形材料の粘度を測定するためには、以下の各機能が粘度特性評価装置に求められる。

- (1) 水分率により、粘度が大きく影響を受けるため、昇温・計測過程では成形材料内の水分率が変化しないこと。
- (2) 金型キャビティ面により成形材料が 100°C以上に昇温されてキャビティ充填が行われるため、100°C以上での環境下で材料粘度が計測できること。
- (3) 各種可塑化条件により混錬された状態の成形材料について、粘度計測ができること。

一般に、熔融樹脂や食品、薬品等の粘度計測装置には、① 回転粘度計および ② キャピラリー式粘度計測装置に代表される細管粘度計がある[大柳 1996]。これらは、いずれもプレート上や円筒形状の容器に材料を投入して昇温し、材料粘度を計測する。PIM 成形材料のような水分を含む材料では、計測前での材料調整過程で乾燥が進むため、上記の (1) の要件を実現することができない。そのため、①、②の汎用粘度計測装置は、大幅な改造を加えないと PIM 成形材料の粘度計測には適用することができない。

また、熔融樹脂では各種可塑化条件下で熔融した樹脂を、射出成形機のノズルから必要な射出速度で開放空間に射出（いわゆるフリーショット）し、その際のスクリュヘッドへの反力をスクリュ根元にあるロードセルで計測し、みかけ粘度に換算する方法が実用されている。いわゆる機上粘度計測装置で、この装置は (3) の要件を満たす方法と言える。一見、PIM 成形材料においても使用できそうな方法であったが、PIM では加熱シリンダ内の温度が 100°Cを越えないように（例えば 90°Cに）保持され、金型内で 100~160°C以上に加熱されつつ成形が行われる。従来の機上粘度計測装置を用いた場合、PIM 材料の粘度をフリーショットで計測できる範囲は 90°C程度までであり、(2) の要件を満たすことができない。

以上のように、PIM の粘度特性計測のためには、既存の粘度計測装置や機上粘度計測装置の適用は困難と考えられた。そこで新規に PIM 成形材料の粘度特性評価装置を開発することとした。基本的な考え方は、(3) により成形機上の可塑化条件による混錬・可塑化された PIM 熔融材料を、(1) により密閉状態を保ちつつ、(2) によりノズルから押し出し、密閉バレル内に移送して設定温度（100°C以上）に昇温・保持し、均温になってから細管を一定速度で射出流動させて、上述②の細管粘度計の原理により粘度を計測するものである。

以上の考え方に基づき開発した粘度特性評価装置の基本構造図を図 7.1 に示す。同装置は射出成形機の型締め装置(固定側)に設置される。基本的な考え方は、上述したようにキャピラリー式粘度計測方式を踏襲するが、同粘度計測装置に用いられる熔融材料を細管へ押し出すプランジヤーの役割を、射出成形機シリンダ内部の計量された低温・高粘度材料 (90°C設定) 自体が行うこととした。前部リザーバーAに前ショットで充填された計測対象材料を、一定時間、高温の設定温度に保持する。設定温度に均温化された後、成形機の射出操作によりシリンダ内の低温樹脂を右側ノズルからA内に定速充填する。ノズルからの流入材料により、A内材料のシリンダ中央領域が選択的に流れず、可能な限り一様にBへと押し出されるように、ここでは周辺部に6個の孔を明けた障害板を設けている。図 7.2 に、試作した粘度評価装置を成形機に設置した外観写真ならびに孔付障害板の写真をそれぞれ示す。

孔付障害板が想定通りに機能しているかを検証するため、Aに白色材料を充填後、シリンダから黒色材料を充填した。その後、装置を冷却させA内部の材料置換状態を断面観察をした。結果を図 7.3 に示す。A内部で、低温・充填樹脂により計測対象材料がほぼ一様にB側へと押出される様子が確認される。A内材料は、流路長 30 mm、 $\phi 2.5$  mm のキャピラリー (穴径を可変構造) を通過し、B側に移動後に材料温度計測 (K型熱電対使用) が行われて排出される。また、設定の温度に材料が加熱されているかを確認するため、キャピラリー通過後の材料温度を計測した。リザーバーBの中央部の温度を計測するため、材料流動圧力に対応できるようにK型熱電対の先端を金

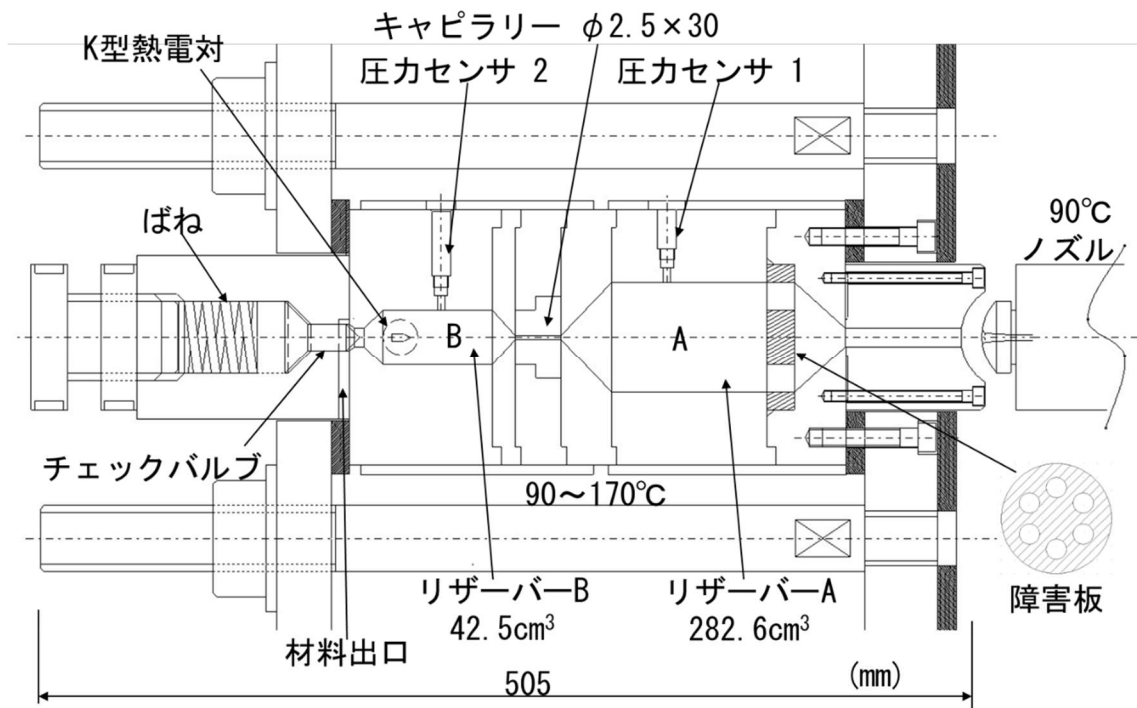


図 7.1 粘度特性評価装置概略図

属角柱の中央部に設置した。計測部は流動方向に突き出し、リザーバーB内にこの角柱を両端支持にて固定する。角柱形状は、角柱を通過する材料からの圧力損失を低減するために、材料流入側にR加工を施した。またB内を高温・高圧下で保持し急激な水分蒸発を防止するため、B部から排出路につながる開口部をスプリング方式のチェックバルブで閉鎖し、一定圧力以上で開放できる仕組みとしている。本実験では開放荷重を780N(B内圧換算で約5MPa相当)とした。A、B内部の圧力差よりみかけ粘度を評価する。圧力センサは日本キスラー(株)の先端径φ4mm、Type6157BAを用いた。

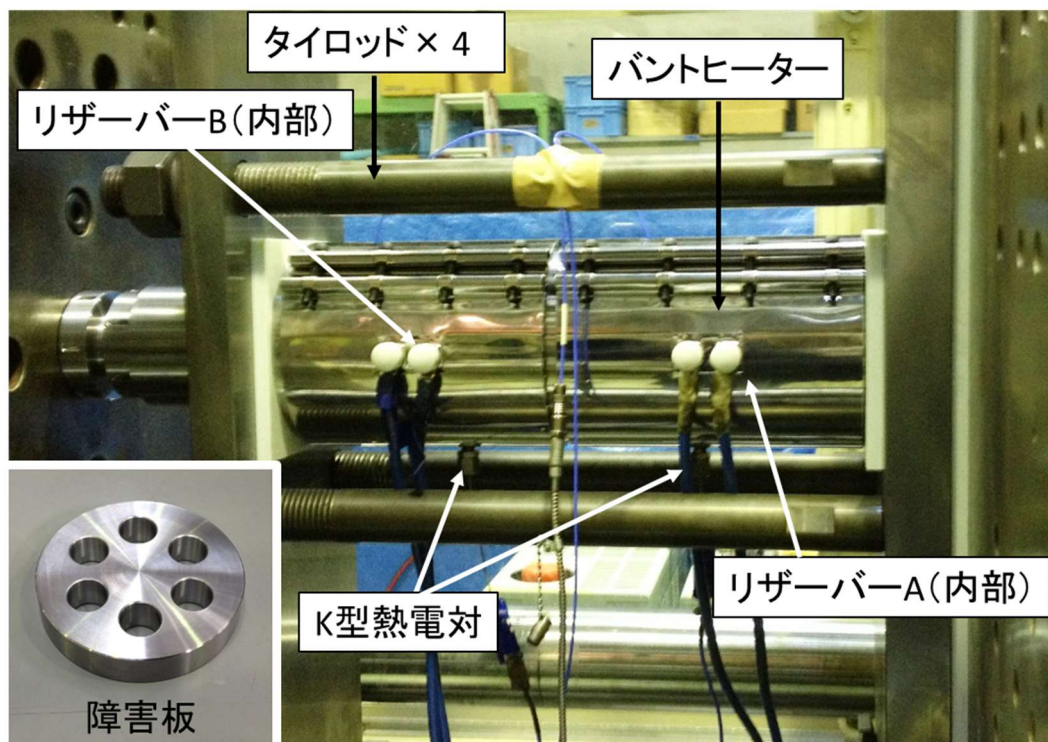


図 7.2 粘度特性評価装置外観

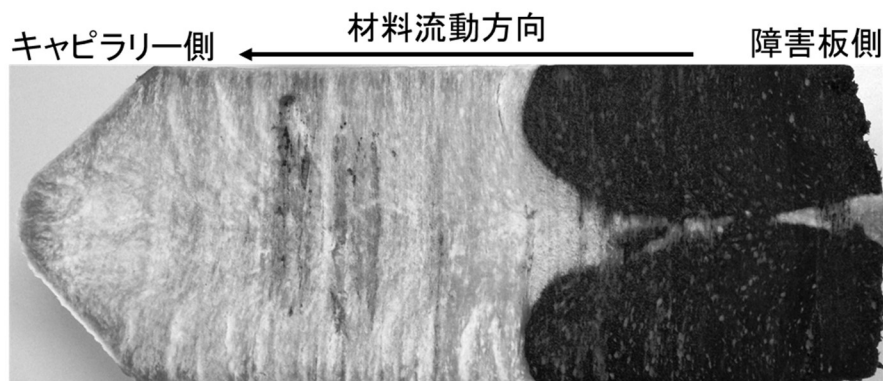


図 7.3 黒着色材による材料置換の様子 (リザーバーA)

### 7.2.2 実験条件

射出成形機はスクリュ径  $\phi 56$  mm の NEX220-50 EPI (日精樹脂工業株) を使用した。成形条件を表 7.1 に示す。シリンダ温度は  $90^{\circ}\text{C}$  で固定した。測定ではすべての条件で射出率を変化させ、せん断速度依存性について調査した。具体的には、① 装置設定温度 (90~190 $^{\circ}\text{C}$  まで  $20^{\circ}\text{C}$  ずつ変化)、② 材料水分率 (32.3, 35.0, 37.0 wt%), ③ 材料組成 (N-P25 : 針葉樹パルプ 60 wt%, 澱粉 30 wt%, PVA 10wt%, N-P50 : 針葉樹パルプ 60 wt%, 澱粉 20 wt%, PVA 20 wt%, L-P25 : 広葉樹パルプ 60 wt%, 澱粉 30 wt%, PVA 10 wt%), ④ 粉砕材配合料 (配合率 0, 32.4%, 49.0 wt%) の 4 つの因子を変化させて調査を行った。なお、針葉樹パルプ LBKP のアスペクト比 L/D は 62.2, 広葉樹パルプ NBKP の L/D は 40.0 である。また、材料水分率は、材料組成の調整材料に対して、調整材料と水との合計に対する水分率である点に注意を要する。A 内材料の温度均一化のため、温度保持時間を 15 分間として実験を行った。

表 7.1 実験条件

シリンダ温度 ( $^{\circ}\text{C}$ )	(ノズル) 90/80/65 (ホッパー)
装置温度 ( $^{\circ}\text{C}$ )	90~190
射出率 ( $\text{cm}^3/\text{s}$ )	12.3~369.5
計量値 (mm)	120
背圧 (MPa)	5.2
スクリュ回転数 (rpm)	80



### 7.2.3 みかけ粘度の算出

みかけ粘度(Pa・s)は、せん断応力(Pa)をせん断速度(s<sup>-1</sup>)で除したものである。ただし  $P$ ; ピストン圧力(Pa),  $F$ ; ピストンにかかる力(N),  $r$ ; キャピラリー半径(m),  $R$ ; バレル半径(m),  $l$ ; キャピラリー長さ(m),  $Q$ ; 流量(m<sup>3</sup>/s),  $V$ ; 押出量(m<sup>3</sup>),  $t$ ; 押出時間(s)とする。ここではピストン圧力  $P$  を、圧力センサ1と2の圧力差から算出する。水分率 35 wt%, 材料温度 170°C, 射出率 12.3 cm<sup>3</sup>/s で測定を行ったときの出力データの例を、図 7.4 に示す。射出開始直後から射出圧が急上昇し a で傾きが変化した。これはノズルからの流入材料が障害板を通過したことに対応し、a 以降にセンサ1・2とも圧力が立ち上がり、20秒の押出時間で圧力は一定に推移することが確認された。この一定時の圧力差の平均を上式のピストン圧力とした。

$$\text{せん断応力(Pa)} ; \quad \sigma_w = \frac{Pr}{2l} = \frac{Fr}{2\pi R^2 l}$$

$$\text{せん断速度(s}^{-1}\text{)} ; \quad \dot{\gamma}_w = \frac{4Q}{\pi r^3} = \frac{4V}{\pi r^3 t}$$

$$\text{みかけ粘度(Pa} \cdot \text{s)} ; \quad \eta_a = \frac{\sigma_w}{\dot{\gamma}_w} = \frac{Fr^4 t}{8R^2 l V}$$

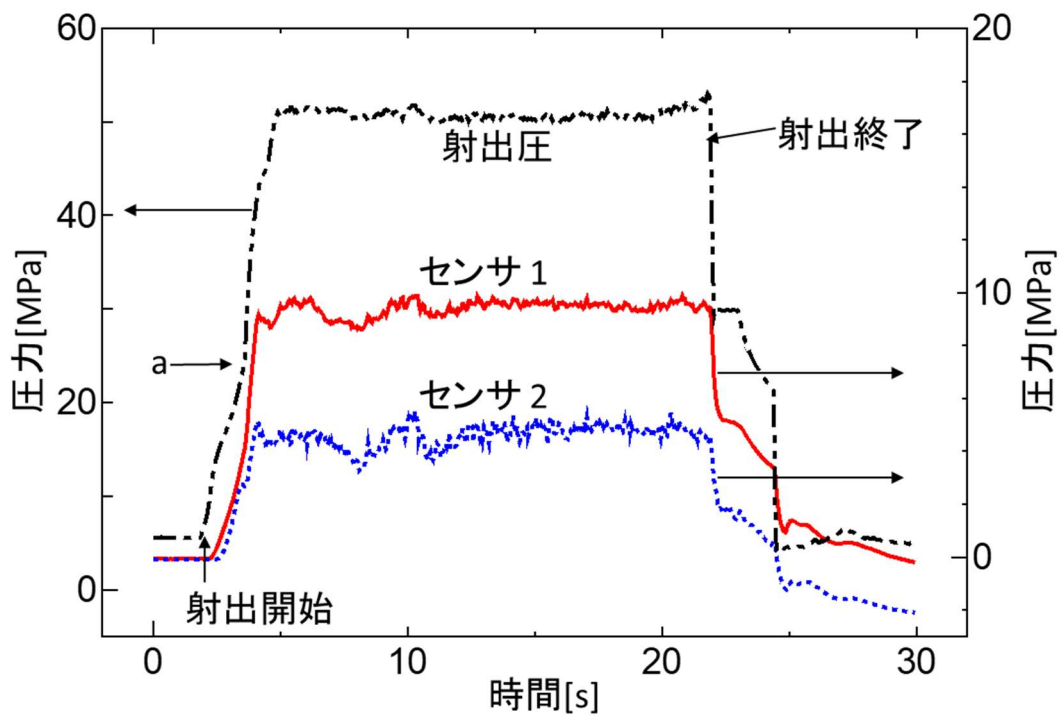


図 7.4 出力データの例 (35 wt%, 170°C)

## 7.2.4 計測結果及び考察

図 7.5 に、みかけ粘度の温度依存性の測定結果を示す。N-P25 (水分率 35.0 wt%) を使用して装置温度を変化させた。低温度での測定点が少ないのは成形機の射出圧制限に到達したためである。この図より、装置設定温度の上昇とともに粘度が急激に低下する様子が明らかとなった。また、計測出来ない装置設定温度 90°C, 110°C を除いて、せん断速度  $10^5 \text{ s}^{-1}$  以下で温度因子が大きく影響し、それ以上のせん断速度領域では装置設定温度の影響を受けにくいことが理解された。また装置設定温度が低い 150°C 以下において、せん断速度が  $10^5 \text{ s}^{-1}$  以下の領域ではせん断速度依存性が非常に大きく、せん断速度が  $10^4 \text{ s}^{-1}$  と比較して  $5 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$  では、みかけ粘度が 1/4~1/8 になることが明らかとなった。以上の結果より、成形時の金型温度は 150°C 以上に設定し、せん断速度  $10^5 \text{ s}^{-1}$  以上で射出することが望ましいことが示された。また、粘度特性は概ね PP と同等レベルで、粘性指数  $n$  は 0.36 と低粘度の熱可塑性樹脂と同レベルとなっている。

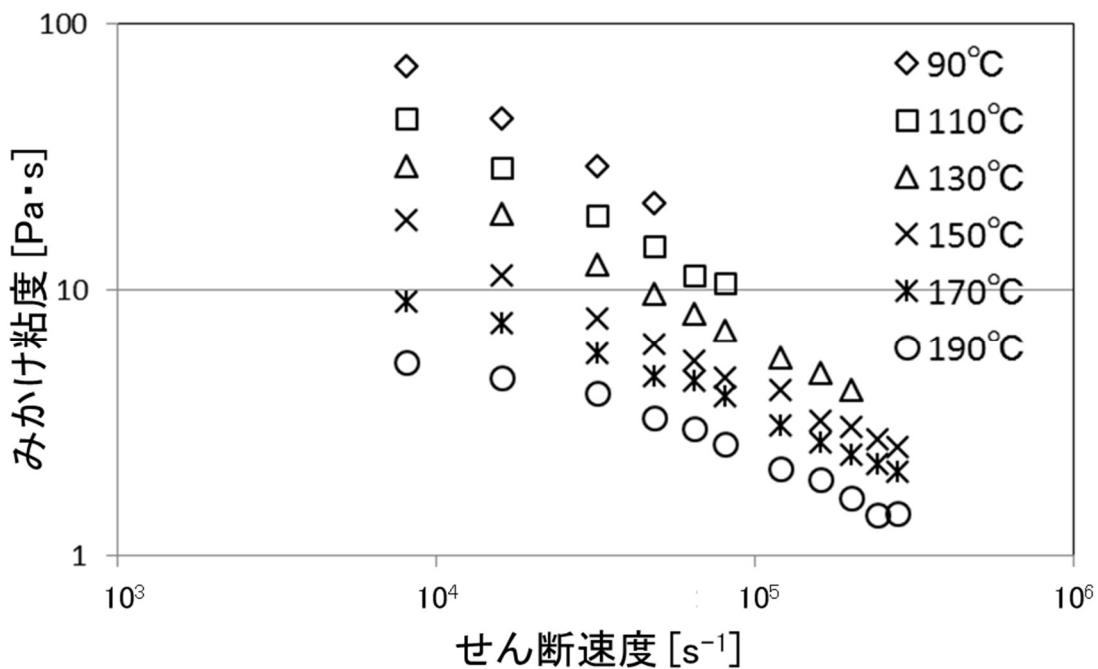


図 7.5 装置温度の違いによるみかけ粘度の比較

図 7.6 に、みかけ粘度の水分率依存性測定結果を示す。N-P25，装置設定温度 170°C で水分率を変化させた。せん断速度  $1.5 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$  以上は実際に成形現場では使用しないため測定は行わなかった。低せん断速度では、32.3 wt%は 35.0 wt%の 1.7 倍で、37.0 wt%は 35.0 wt%の 0.6 倍の粘度を示した。材料水分率を増やすほうが高流動性であることが示唆されたが、水分率が多いと乾燥時間の長期化や乾燥条件調整の難易度が上昇し、少ないと成形品表面性状の悪化が発生するため、要求される品質による最適化が必須となる。

図 7.7 に材料組成別の比較を示す。PVA 組成率を増加させた N-P50 では N-P25 より約 1.6 倍の値を示した。これは可塑性を呈する澱粉の組成割合が低下し、逆に澱粉よりも可塑性を付与しにくい PVA 組成割合が増加したためと推察された。またパルプ繊維を変化させた広葉樹パルプ L-P25 では、針葉樹パルプ N-P25 に比べて約 0.6 倍の低下を示した。これは針葉樹パルプ繊維より広葉樹パルプ繊維のアスペクト比 L/D が小さく、パルプ同士の干渉が減少したことが理由として考えられた。材料の組成は、成形品の強度特性に大きく影響するため、水分率と同様に要求される品質による最適化が求められる。

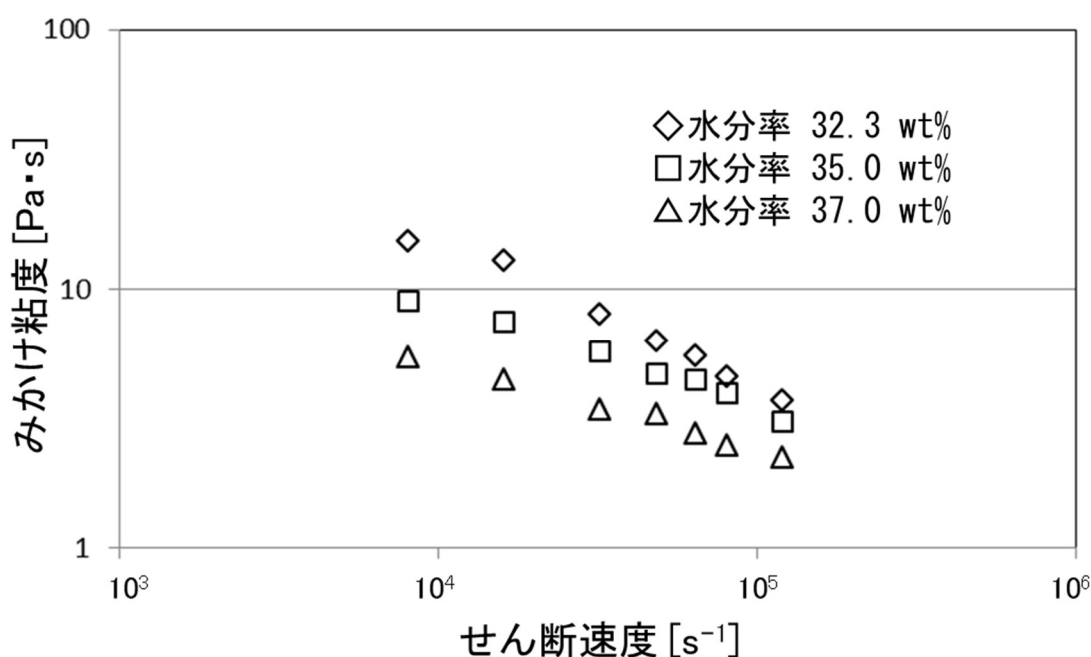


図 7.6 含水率の違いによるみかけ粘度の比較

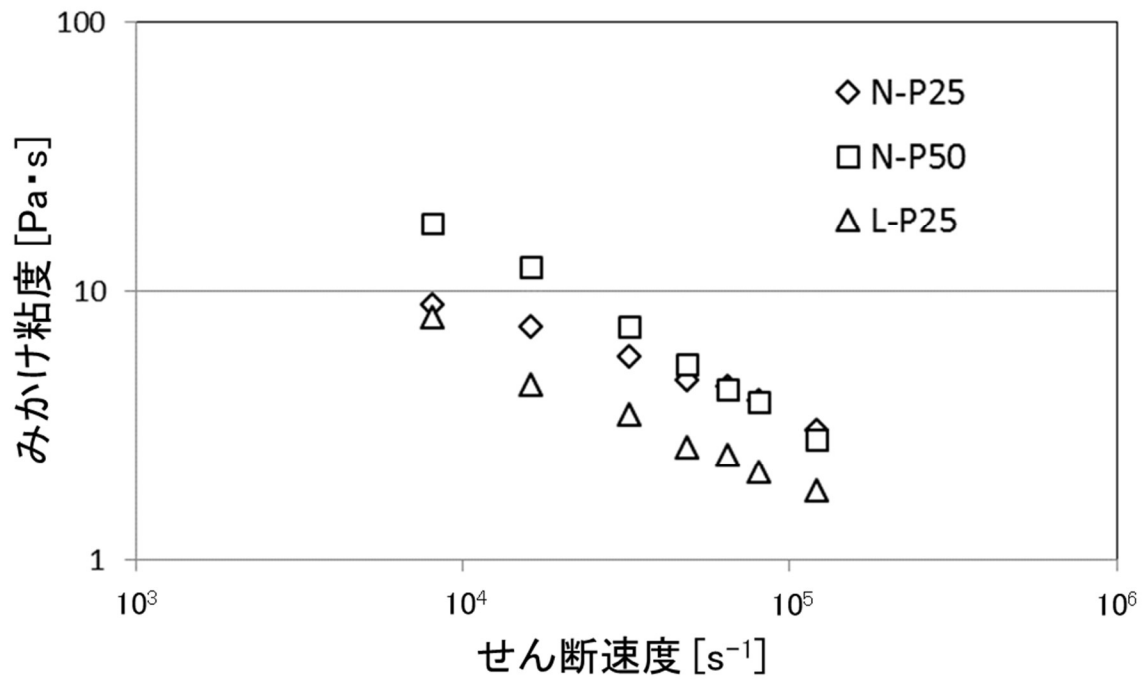


図 7.7 材料の違いによるみかけ粘度の比較

図 7.8 に、ゲートやランナーなどの粉砕材を再利用した材料について、配合量とみかけ粘度の関係を示す。粉砕によりパルプが断裂し粘度低下が予想されたが、粉砕材配合量 32.4%、49.0 wt%のいずれもバージン材より粘度が増加し、配合量を増やしても粘度上昇を示さなかった。この粘度増大の要因として、一度乾燥された粉砕材を水分調整してバージン材と再混練する際に、十分な均一混練が達成されないことが示唆された。比較検証実験として、オレンジに着色した粉砕材を用い、(a) 着色ペレットのみ、(b) 未着色ペレットと着色粉砕材 (32.4 %)を、水分調整をしてノズルから吐出した材料を比較した。図 7.9 に断面の比較を示す。均一な(a)に比して、(b)では白い粒状の不均一領域が中央部に分布し、粉砕材が十分に分散されていない様子が確認された。こうした不均一分散の高粘度材料が、キャピラリー通過時に抵抗となり粘度上昇をもたらしたと考えられ、粉砕材再生利用時には、用途によって注意が必要であることが明らかとなった。

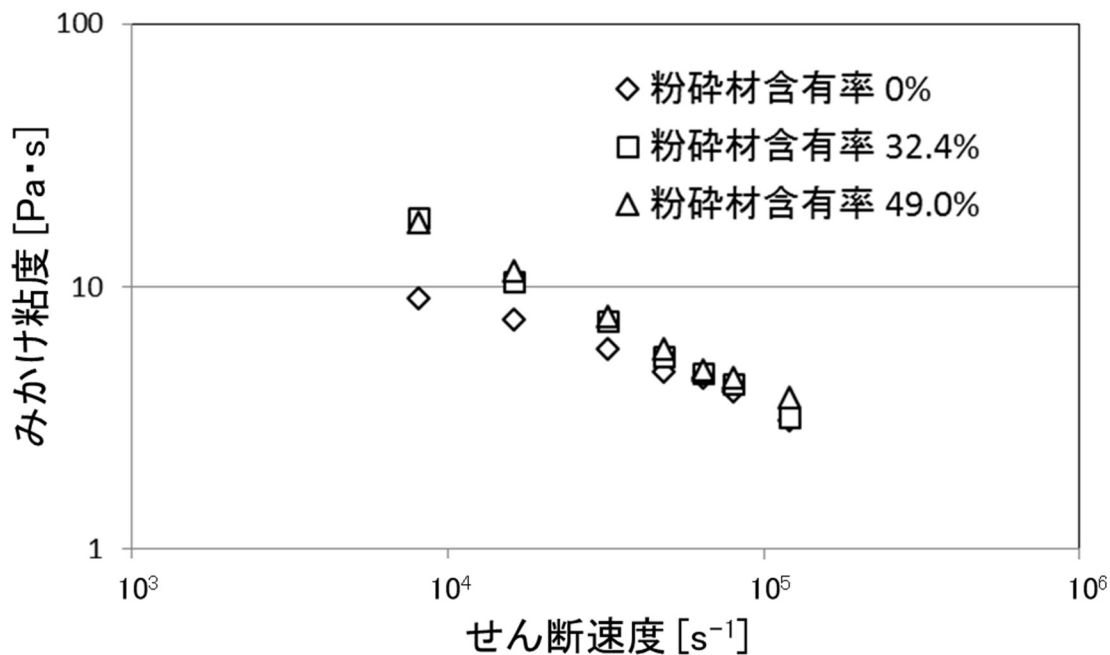


図 7.8 粉砕材含有率の違いによるみかけ粘度の比較

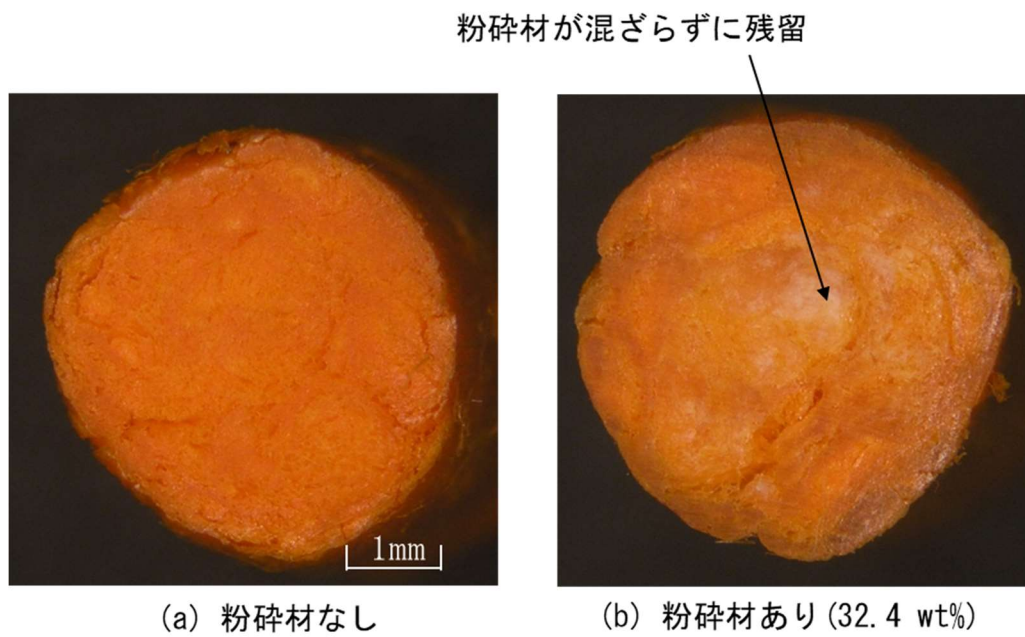


図 7.9 押出材料の断面観察

### 7.3 結言

本章では、新たに PIM 材料専用の粘度特性評価装置を作成し、経験則で調整してきた PIM 材料を系統的に数値化することにより、材料粘度指標について検討を行った。

- (1) PIM 材料専用の成形機搭載用として粘度特性評価装置を開発し、90°Cから 190°C までの温度域、 $2.8 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$  までの高せん断速度域までの粘度特性の計測が可能であることを実証的に明らかにした。
- (2) 各条件下での PIM 材料のみかけ粘度を求め、経験則でしか分からなかった成形性について、粘度特性により成形条件依存性について定量的な相互比較を行った。特に温度依存性では、成形時の金型温度を 150°C以上に設定することがせん断速度依存性を低減する上で望ましいことが明らかとなった。
- (3) 材料水分率が高いほど、また材料組成ではパルプを広葉樹 LBKP とし、結合剤を澱粉主体にすることにより、粘度が低下し流動性が向上することが確認された。ただし、前者は成形サイクルの長期化を、後者は成形品強度の低下を招くため、要求品質に沿った適正な流動性を持たせることが求められる。
- (4) 粉砕材を配合した再生材は、既存の混練工程では粉砕材形状を一部保持したまま材料内に不均一に残留するため、粘度上昇をもたらした。

パルプ射出成形は、これまでにない特殊な成形材料を用いており、流動特性やその成形性の評価において、新規のパルプ材料、結合剤、水分率など、今後ますます多種多様な材料開発が進められる。材料開発にとって、基本的な評価指標が粘度特性であり、本章での開発成果は、PIM 成形材料を開発し実用する上で、これまで未解決であった大きな課題を克服する重要な成果と評価できる。また、パルプ射出成形品は、ウェルド強度の著しい低下や流動速度差から亀裂が残留するなど、CAE での事前検討が今後は非常に重要となる。現在は技術者の経験が占める割合が多いが、CAE の適用を通して事前検討技術の向上が求められる。その意味でも、本章の成果はその出発点となる粘度計測手法の基礎に位置づけられ、今後、バーグレー補正とラビノビッチ補正を行い、真のせん断粘度測定を行うことが課題となる。

---

## 第8章 総括と今後の展望

---

8.1 本論文で得られた主な結論 .....	144
8.1.1 第I部で得られた主な結論.....	145
8.1.2 第II部で得られた主な結論.....	146
8.1.3 第III部で得られた主な結論 .....	147
8.2 本論文で得られた成果の学術的評価と工業的活用法 .....	149
8.2.1 第I部.....	149
8.2.2 第II部 .....	149
8.2.3 第III部 .....	150
8.3 PIM の実用化事例と課題.....	153
8.4 PIM の可能性と今後の展望.....	157
8.4.1 環境負荷低減への世界的な動向 .....	157
8.4.2 PIM の特性を活かした開発 .....	159

---



## 8.1 本論文で得られた主な結論

本論文では、成形技術として未確立であった PIM 技術について、系統的な実験や計測、研究を行い、成形技術基盤の確立を目指した。以下に主たる研究目的と研究課題を再掲し、それに続いて、それぞれの目的・課題に対して得られた結果を列記する。

### [I] PIM 成形材料と成形品の基本特性

- (1) パルプ射出成形の成形材料流動特性を評価するために、温度・圧力センサを多点で挿入したバーフロー金型を作製し、流動長に及ぼす各種成形条件の影響を調査すること。
- (2) 成形品の基本的な特性を評価するために、内部構造の観察、機械的諸特性と環境湿度の影響、吸水特性について評価実験を行なうこと。
- (3) 4 種類のパルプ繊維長、澱粉と PVA の結合材配合率が、パルプ射出成形品の引張強度特性、および内部空隙の数量と体積、生成形態に与える影響について検討をすること。

### [II] 金型キャビティ内の流動挙動の可視化解析

- (1) 主に滑り流動により充填がなされる PIM の特徴に着目して、キャビティ表面に配置した着色材の軌跡を流動履歴として抽出する着色マーキング法を新たに提案し、滑りを主体とした PIM 充填挙動に最も大きな影響を与えるキャビティ面の凹凸領域について、その 3 次元的な流動現象を明らかにすること。
- (2) PIM 材料滑り流動の抑制を目的に、金型表面の表面粗さの変化と紙・綿布・皮のインサートによる表皮一体成形について、厚さ方向の動的可視化観察を用いて流動挙動の解析を行うこと。

### [III] 実成形への適用における課題

- (1) 成形量産時の課題である計量過程の安定化と乾燥工程の最適化について検討を行うこと。
- (2) 新たに PIM 材料専用の粘度特性評価装置を作製し、経験則で調整してきた PIM 材料を系統的に数値化することにより、材料粘度指標を作製すること。

### 8.1.1 第I部で得られた主な結論

#### —第2章—

パルプ射出成形の成形材料流動特性を評価するために温度・圧力センサを多点で挿入したバーフロー金型を試作し、流動長に及ぼす各種成形条件の影響を調査し、また、PIM 成形品特性の評価するため、成形品の内部構造の観察、機械的諸特性と環境湿度の影響、吸水特性について評価実験を行ない、以下の結果を得た。

- (1) 流動性を左右する成形条件として、材料の違い・ゲート形状の違いよりも金型温度および材料に含まれる水分が大きく寄与し、とりわけ水分率による流動長の増加効果が顕著であることが明らかとなった。
- (2) 厚さ1 mm、幅 10 mm のバーフローキャビティで最大 800 mm の流動長が実現できることが明らかになった。
- (3) 成形品の内部には、高い水蒸気圧の生成と型開閉動作にともなう脱気乾燥過程とに関連して、多くの空隙が生成し、その空隙の形状や生成状況が寸法精度、収縮率に大きく関わっていることが明らかになった。
- (4) 無負荷時での吸湿に伴う伸縮率は繊維配向に直交方向と平行方向では1.7~2.5倍の差があること、吸水接触角試験では PIM 成形品が数分にわたって高い撥水性を保持できることが確認された。
- (5) 環境湿度を変化させた引張強度試験では、湿度上昇に伴い強度・弾性率が低下し破断伸びが増加すること、破断伸びはいずれも 0.05~0.13 と小さいものの PP と同等以上の引張強度が示されることが明らかになった。

#### —第3章—

4 種類のパルプ繊維長、澱粉と PVA の結合材配合率が、パルプ射出成形品の引張強度特性、および内部空隙の数量と体積、生成形態に与える影響について検討を行ない、以下の結果を得た。

- (1) パルプ平均繊維長が長いほど引張強度は上昇する傾向が示された。
- (2) 結合剤の PVA と澱粉の総量を一定とした場合、PVA 配合率の増加にともなって強度は上昇するが、20 wt%程度でピークを形成しその後は低下を示した。これは結合剤の溶解に必要な水分量が澱粉より PVA で多いため、PVA が 20 wt%では結合力の大きな PVA の未溶解部が増加し、逆に強度低下を引き起こしたと推察

された。

- (3) 内部空隙の形態は、短い繊維長では球状となり成形品全体に一様に分布する。長い繊維長では、流動に直交する繊維配向特性を反映して、配向方向に沿う薄い筋状の空隙を生成させることが明らかとなった。
- (4) 吸水による成形品の変形量は、PVA 配合率が増加すると大幅に低下する。また同じ PVA 配合率でも短い繊維長では、繊維配向性の低減(膨張率の異方性低減)ならびに生成空隙の総体積の増大と均一な分布 (吸水膨張ひずみの内部吸収)のため、吸水時の変形量がより低下することが確認された。

## 8.1.2 第II部で得られた主な結論

### — 第4章 —

キャビティ表面に配置した着色材の軌跡を流動履歴として抽出する着色マーキング法により、キャビティ面の凹凸領域について、以下の3次元的な滑り・充填現象の解析結果を得た。

#### (1) 肉厚増加 (リブ) 領域の流動挙動；

- ① リブ厚さ 3 mm 以上の場合、乾燥が進んだ流動先端がリブに傾斜流入し、リブ底面に沿って滑り流動する。その後リブ出口で引っ掛かると、材料がリブを充填し内圧が上昇するまでリブ下流側へと湧き出ず、大きな遅延を形成する。同時に、板面部ではリブ両側の材料が先行するため、特にリブ厚さ 4 mm 以上ではリブ下流にウェルドライン状の会合部を形成する。
- ② リブ厚さ 2 mm 以下の場合、流動先端がリブに侵入してリブ底面まで到達する。その後は、後続材料がリブ内部にほとんど侵入することなく、リブ根元部を横断するように通過する。

#### (2) 肉厚減少 (溝あるいは穴) 領域の流動挙動；

- ① 溝幅 2 mm 一定では、溝深さ 0.8 mm 以上で薄肉溝部を避けて両側に迂回する流れを形成する。迂回流れを形成しない溝深さ 0.4 mm でも、溝幅 8.0 mm 以上では薄肉部の滑り抵抗が増加し、迂回流れに遷移する可能性が示唆された。
- ② 溝深さ 1.0 mm (穴)の後方では、溝部を避けて PIM 材料がジェットイング状に滑り流動するため、障害板の後ろ側に回り込めず、一時的に大きな空洞を形成しつつその下流側にはウェルドラインを形成する。その後、空洞消失後は障害板後方の三角形領域を取り残す形で、その両辺に沿ってせん断流れを形成する。

## —第5章—

PIM 材料滑り流動の抑制を目的に、金型表面の表面粗さの変化と紙・綿布・皮のインサートによる表皮一体成形について、厚さ方向の動的可視化観察を行い、以下の結果を得た。

- (1) 矩形平板形状キャビティの途中にシボ面を挿入し、フローフロントの飛び出し量の変化を材料充填挙動の安定性の指標として検討を行い、以下の知見を得た。① 材料水分率が高い材料では、シボ面からの大きな流動抵抗に拘束されてフローフロントの形状が安定化する。② ゲートからの距離  $L=0\sim 100$  mm のゲートに近い領域では、シボがある場合にはフローフロントの形状が安定化するが、シボがない場合にはフロント形状が常に大きく変化する。③ ゲートからの距離  $L=100\sim 200$  mm の流動後半領域では、いずれのシボ面粗さでもフローフロント挙動は安定化する。
- (2) 動的可視化観察を通して、シボ無し面とシボ有り面の通過時における材料流動の変化を明らかにした。シボ有り面では材料が拘束されて、シボ有り面の対向面（シボ無し面）からシボ有り面に向かって流れる回転流動が顕著に確認された。一方いずれのシボ無し面でも、材料が滑り流動する様子が確認された。
- (3) 紙の表皮一体成形を PIM に適用すると表面の凹凸が大幅に改善された。その生成要因として、断面観察により乾燥時に水蒸気の脱気が被覆材側から行われず脱気孔が形成されないことが、また動的観察により、材料が被覆材に拘束され被覆材側に向かう回転流動が生成するためフローフロント挙動の安定化に寄与することが、それぞれ確認された。

## 8.1.3 第III部で得られた主な結論

## —第6章—

成形量産時の課題である、計量過程の安定化と乾燥工程の最適化について検討を行い、以下の結果を得た。

- (1) 計量過程の安定化では成形材料のペレット形状とバルク材料を用いて、100 mm 計量を行い計量時間とばらつきについて比較を行った。その結果、ペレット形状はバルク材料に比べ計量時間とばらつきが半減し、大幅な改善効果が認められた。
- (2) ペレット使用時の最適なスクリュ形状を提案するため、シリンダ計量部と圧縮部

に圧力センサを設置しスクリュ挙動を観察した。スクリュ圧縮比が大きく計量部溝深さがペレット径より小さい場合、圧縮部出口で材料詰まりが生じ、スクリュ後退速度が一定にならないため計量が不安定になることが明らかになった。

- (3) 圧縮比の低下と  $L/D$  の減少 (スクリュの短尺化)がペレット材料の安定した移送と計量過程の安定化に寄与する。
- (4) 乾燥工程の最適化では、矩形平板形状の実成形で型開き量を実測し、金型設定温度、材料含水率、金型開閉動作と乾燥工程との相関を調査した。一定の型開き量設定条件下で、乾燥の進行とともに水蒸気の内圧低減により型開き量が減少し、型開き挙動から乾燥状態をモニターできることが確認された。また同じ型開閉条件を設定しても、高い金型温度では、低い温度よりも型開き量が大きくなり、水蒸気を外部に排出する効果が高まり乾燥の効率化に寄与することが明らかとなった。
- (5) 型開き時間を最初は長く後半では短くし、型開き量は1回目は小さくその後は徐々に大きくすることにより、材料水分率 (30.4 wt%)と金型温度 (190°C)を併用して、乾燥時間を従来の半分に短縮が可能となった。

#### — 第7章 —

新たに PIM 材料専用の粘度特性評価装置を作成し、温度変化、材料水分率変化、材料組成変化について相対的に比較検討し、以下の結果を得た。

- (1) PIM 材料専用の成形機搭載用粘度特性評価装置を開発し、90°Cから 190°Cまでの温度域、 $2.8 \times 10^5 \text{ s}^{-1}$ までの高せん断速度域までの粘度特性の計測が可能であることを実証的に明らかにした。
- (2) 各条件下での PIM 材料のみかけ粘度を求め、経験則でしか分からなかった成形性について、粘度特性により成形条件依存性について定量的な相互比較を行った。特に温度依存性では、成形時の金型温度を 150°C以上に設定することがせん断速度依存性を低減する上で望ましいことが明らかとなった。
- (3) 材料水分率が高いほど、また材料組成ではパルプを広葉樹 LBKP とし、結合剤を澱粉主体にすることにより、粘度が低下し流動性が向上することが確認された。ただし、前者は成形サイクルの長期化を、後者は成形品強度の低下を招くため、要求品質に沿った適正な流動性を持たせることが求められる。
- (4) 粉碎材を配合した再生材は、既存の混練工程では粉碎材形状を一部保持したまま材料内に不均一に残留するため、粘度上昇をもたらした。

## 8.2 本論文で得られた成果の学術的評価と工業的活用法

本論文では、紙基材を材料として用いた低環境負荷の成形加工技術である PIM の成形材料、スクリュ形状、金型開閉動作、金型内材料流動挙動、品質安定化、生産性改善について、多岐にわたり技術的な基盤構築を目的に検討を実施した。得られた成果を、学術的評価と工業的活用法として、各部ごとにまとめた。また工程別に分けて、表 8.1 に整理した。また全体を通して水分率の影響を整理し、表 8.2 にまとめた。

### 8.2.1 第I部

#### 【学術的評価】

第2章では、多点計測が可能なバーフロー金型を作製して、PIM 材料流動長、流動速度、金型の温度低下と温度復帰について定量的に計測を行うことができ、PIM の実態を明らかにした。従来は、明確な測定方法がなく、全パラメータが同時に取得できる金型が装備され、総合的な実験評価が可能となった。

また、第3章では、機械的特性の評価方法を確立し、組成を変化させた材料を用いて成形品の機械的特性の評価を可能とした。従来は、プラスチックの測定法で実施していたが、測定時の湿度管理が重要であることが理解され、体系的な評価が可能となった。

#### 【工業的活用法】

第I部の成果は、各パラメータの実態値を精査したことと、材料選定が速やかに行われるようになったことである。各パラメータが不明であったため、成形条件が曖昧で、さらに材料条件や選定についても総当たりの模索することが一般的に行われていた。本成果を通して、速やかな材料条件と成形条件が決定出来るようになり、新規の適用対象に対してスムーズな立ち上げができるように有効活用されている。

### 8.2.2 第II部

#### 【学術的評価】

第4章では、静的可視化観察手法であるマーキング可視化法を開発した。従来では、PIM 材料が障害物に対し、どのように振舞い充填していくかは不明であったが、これにより詳細な充填挙動を把握できるようになった。体系的な材料流動挙動の把握が可能になった。

また、第5章では、ガラスインサート金型を用いて PIM 材料フローフロント部挙動の動的可視化技術が確立された。動的可視化では上記同様、材料毎の流動挙動を体系的に把握することが可能となった。

【工業的活用法】

第II部の成果は、材料流動予測技術が向上したことにより、金型事前検討を詳細に行うことが可能となり、成形試作回数が大幅に減少することが挙げられる。

### 8.2.3 第III部

【学術的評価】

第6章では、材料計量工程の安定化をスクリュ形状の改良と材料形状のペレット化によって成立させたが、PIM成形材料を計量工程で一定量を確実に計量出来るようになったため、すべてのテストサンプルの品質（成形品重量、機械的強度等）の安定化が可能となった。

また、第7章では、粘度データを取得できる測定装置を開発し、実証的に幾つかの代表的な材料粘度測定を行った。今後新たな材料を開発した場合も、本実験装置を用いて測定を行うことにより、定量的な評価が可能となった。

【工業的活用法】

第III部の成果は、成形安定化と成形サイクル短縮化によって、PIMの製造コストを大幅に低減させたことである。従来のコストは通常プラスチック製品の5~10倍程度であったが、第III部での研究により、良品率改善による安定生産に基づく工程の自動化、そしてサイクル短縮化とその他工程の最適化によって、成形サイクルは、本論文の成果と成形機の電動化による、型閉め・型開き動作や射出動作の応答速度が改善されたことにより短縮化されたため、研究に取り組む以前の1/3程度に短縮化された(図8.1参照)。製造コストも通常プラスチック製品の1.2~1.5倍程度に改善することが出来た。なお良品率の改善については、本論文の研究以前は70~80%であったものが、現在では97~99%にまで大幅に改善されている。

流動解析技術は、樹脂成形では一般的な事前検討手段である。第III部の成果は、PIM材料流動解析を行うために必要な基礎的な知見を得たことである。これにより将来的に金型の事前検討を詳細に行うことが可能になり、成形試作回数を大幅に減少させる可能性があると予想される。しかしながら、数値計算する上での障害として、① PIM材料の滑り流動中の計算方法の開発、② 流動しながら乾燥が進み材料粘度が変化することに対する計算方法の開発、の2点が挙げられ、両者とも高い壁となることが予想される。

表 8.1 本論文で得られた成果

項目		本研究前	本研究後	対象となる章
材料	組成	組成による、体系的な機械的特性は測定されていない	組成による、機械的特性が明らかになった	第2章, 第3章
	形状	バルク形状（不定形状）	ペレット形状（一定形状）	第6章
	粘度	全く不明	相対評価をベースに体系化	第7章
成形機	スクリュ	L/D 21.5, 圧縮比 2.33	L/D 12.1, 圧縮比 1.25	第6章
	金型開閉動作	動作設定の明確な指針無し	動作設定の明確化	第6章
金型	成形品形状	不良生成現象が不明	不良生成現象が明らかになったため事前形状検討が可能	第4章, 第5章
	材料流動予測	不明	予測可能	第4章, 第5章
サイクル	計量時間	不安定	安定化（ばらつきが半減）	第6章
	乾燥時間	長時間（120s）	短縮化（40s）	第6章

表 8.2 材料水分率が PIM 成形工程に与える影響

水分率	流動性	成形サイクル	回転流動
高い（水分率：40wt%程度）	良い	長期化	発生し易い
低い（水分率：30wt%程度）	悪い	短縮化	発生し難い



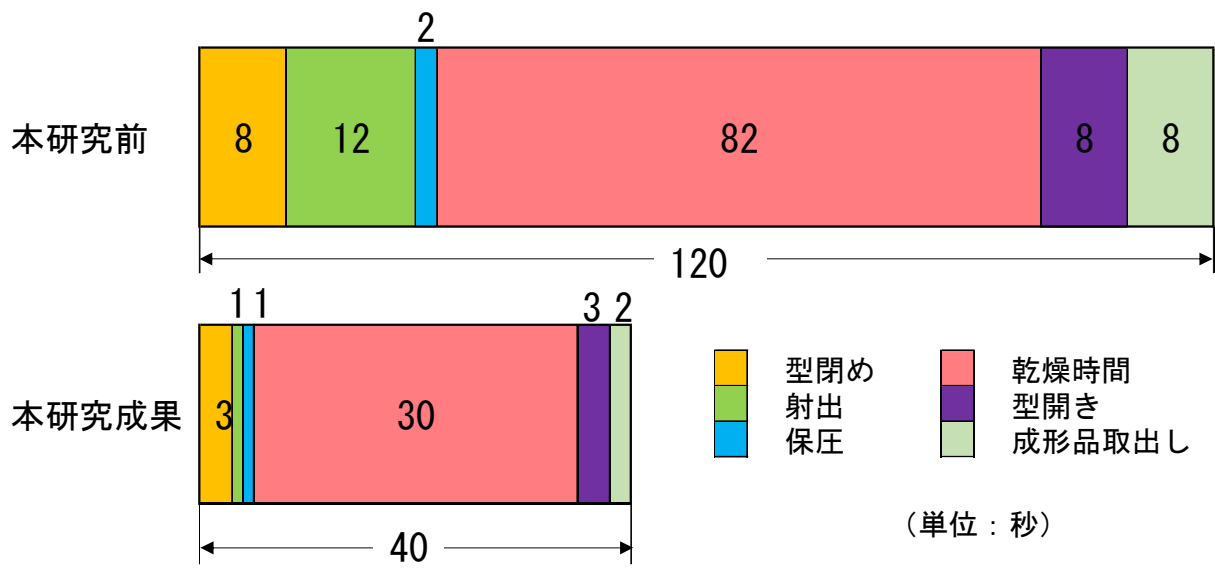


図 8.1 成形サイクルの短縮化

## 8.3 PIM の実用化事例と課題

PIM は、プラスチック代替成形技術として社会に貢献できる世界初の成形技術として、一企業の枠を超えて今後、大きな社会貢献をすることが期待された。本技術がプラスチック代替の成形技術として広く使用されるためには、成形材料の組成や、成形品の一般的な機械的特性、成形材料の金型内部充填挙動、金型開閉動作、適正な成形条件、成形材料の粘度特性などの基本的なデータが整っていなかった。本論文では、PIM の成形品特性に大きく寄与すると考えられる因子について、材料因子と成形工程因子の2つに分けて系統的な実験計測を行い、実成形への適用に際して必要となる各工程での適切な成形方法と材料評価手法を探索し、課題を解決してきた。

既存技術と比較して、加工法としてのPIMの特徴について表8.3に比較してします。また、PIMを産業界に展開する上での有力な応用分野について、環境調和性と3次元形状成形性の2つの視点で整理し、図8.2にまとめた。同図は、PIMの現在における立ち位置を示すものである。PIMのポテンシャルはその上下の分野を包含するもので、同図の立ち位置を起点として、上下分野へと適用を拡張し、世界的な課題となっているプラスチックに関わる環境問題克服の一助となる可能性を秘めている。

現在までのPIMは、既存技術との差別化を行いつつ、特徴的なPIM特性を利用した製品の実用化に向けて開発が進められてきた。今日までの開発の流れを以下に時系列で整理する。

- ① 2007年までのエコブームにともなって、プラスチックからPIMへ代替案件が多く持ち込まれた。環境への配慮を目的に、プラスチックと同等のものを紙基材で作成できないかという検討が進められたが、物性が基本的に紙と同等で、水に弱く環境湿度により寸法が変化することが問題となった。またプラスチックよりコストが高いことも不採用の理由となった。
- ② リーマンショックにより、コストの優先度がさらに上がり、環境配慮は強調されなくなった。そのため、開発方針をプラスチック代替からPIM独自路線に切り替え、PIMの特性を活かした製品開発を中心に取り組みがなされた。
- ③ 様々な独自製品の開発をパートナー企業と成功させたが、やはりコストが問題となり、最終的に採用されることがほとんどなかった。
- ④ 現在は、プラスチックのゴミ問題がクローズアップされ脱プラスチックの流れが構築されつつあり、日本国内だけではなく海外からの問い合わせにも対応が必要となった。

PIMを取り巻く以上のような外的環境の変化のなかで、製品化に成功した主な製品事例は下記の3つであった。

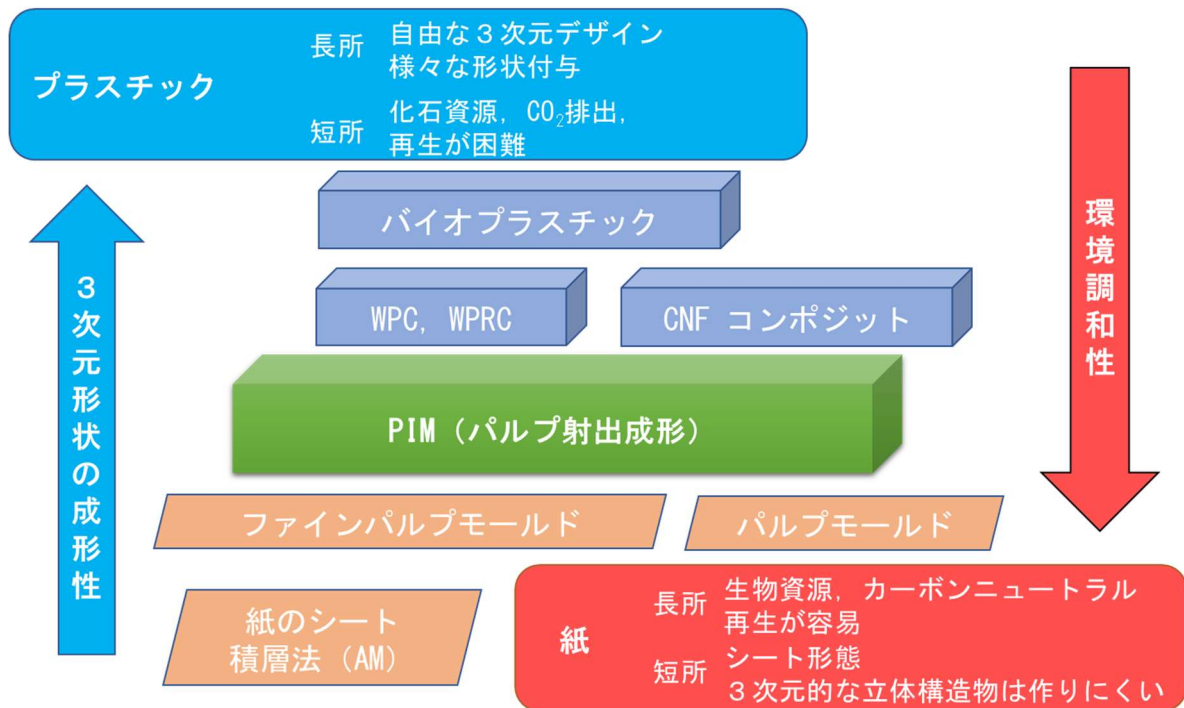
- ・ アンプルケース
- ・ フラットファイル綴じ具
- ・ カプサイシンスティック

上記の開発の流れ①の時代に、アンプルケース、フラットファイル綴じ具が採用され、現在までも生産が続く商品となっている。またカプサイシンスティックは PIM 材料にカプサイシンを練り込み、畑に差し込んで害獣を寄せ付けないようにするもので、PIM 本体は土に還る特性を有効に利用したものである。③の時代には、農業用資材として採用され、現在でも販売が増加している。しかし、この後上市して成功した有望な製品例はなく、多くの開発案件とそれらの試作実験をパートナー企業と現在継続している。

残された PIM の課題としては、依然としてプラスチックに比較してコストが高いこと、耐水性 (耐湿性) が低いことが挙げられる。本論文の成果に基づき、成形サイクルは樹脂成形とほぼ同等レベルにまで短縮されており、また同等形状でのプラスチック製造コスト比較でも 1.2 倍程度まで低減されている。しかしながら、成形材料の現状価格は 400 円/kg 程度(標準グレード)で、汎用プラスチックと比較するとなお高いレベルにとどまっている。これは PIM 製品が樹脂のような大量生産に至らないため、成形材料製造工程の自動化が行われていないことに由来する。今後の使用量増加により、300 円/kg 以下になる可能性は十分に見込まれる。一方耐水性の課題では、例えば食品トレイや弁当箱などでの使用を想定した製品については、プラスチック代替のため一定の耐水性が常に要望される。素材そのものの吸水特性を改善することが強く求められている。

表 8.3 他工法との比較

		設計							品質			金型		生産			環境性		
		デザイン性	大型化	材質の選択性	薄肉化	部分的肉厚の変化	アンダーカット	インサート成形	試作回数	外観	寸法精度	ソリ・変形	価格	金属加工の容易さ	生産性	小ロット生産	仕上げ加工	設備費用	二酸化炭素排出量
プラスチック成形加工	真空成形	○	◎	◎	◎	×	△	◎	○	○	○	○	○	○	○	△	◎	△	△
	プレス成形	○	◎	◎	◎	○	△	◎	○	○	○	○	○	○	○	△	◎	△	△
	射出成形	◎	○	◎	○	○	◎	○	○	○	○	△	△	◎	△	◎	○	△	△
	FRP	△	◎	◎	△	○	△	◎	○	○	○	○	○	△	○	△	△	△	△
紙成形加工	パルプモールド	×	○	×	×	○	×	◎	△	△	△	○	○	○	△	△	○	○	○
	紙積層成形	×	×	×	×	◎	◎	×	◎	△	○	△	×	○	○	△	△	○	○
	紙ファインプレス	◎	○	×	×	△	×	◎	△	△	△	○	△	○	△	△	◎	○	○
	パルプ射出成形	◎	○	◎	○	△	◎	○	△	○	△	△	○	○	△	△	△	○	○



WPC：木粉と熱可塑性プラスチックを原料とする(Wood-plastic Composites)  
 WPRC：リサイクル材を主原料とする木材・プラスチック再生複合材(Wood-plastic Recycled Composites)

図 8.2 環境調和性と 3 次元形状成形性の視点で整理した PIM の位置づけ

## 8.4 PIM の可能性と今後の展望

### 8.4.1 環境負荷低減への世界的な動向

世界中でプラスチックゴミの問題が叫ばれるようになった。世界中のゴミの多くを引き受けてきた中国が、2017年12月でプラスチックゴミを含む24種類のゴミの受入を全面禁止したため、これまでのゴミ輸出国では国内のゴミ問題が急浮上し、ゴミ問題を企業責任に置き換える動きが加速している。

さらにイギリス政府は2018年4月の声明で、地球環境保護を目的とした海洋、河川汚染対策の一環として、使い捨てのプラスチック製ストローやマドラー、プラスチック芯の綿棒の販売を禁じる方針を明らかにし、2019年にも法律が施行されることになった。この流れは企業にも波及しており、アメリカのマクドナルド社やスターバックス社は、プラスチック製ストローの撤廃を宣言し、代替品の検討が始まっている。

この流れを後押ししたのが、2015年動画共有サイト YouTube に公開された動画である[YouTube 2015]。動画では、ウミガメの鼻にプラスチックのストローが刺さり、呼吸がし難くなっていた。ビール缶などを留めるプラスチックリングが体に巻きついて、そのまま成長したカメのスケッチを図 8.3 に示す。これは、1993年に米ミズーリ州で見つかったミシシippアカミミガメで、現在はセントルイスの動物園に引き取られている。ピーナッツと名付けられ、プラスチックゴミ廃棄に対する警鐘のシンボルとして飼育されている[Missouri1993]。この様なショッキングな映像が拡散された結果、プラスチックゴミに対する印象が大幅に悪化した。しかし代替品として考えられる生分解性プラスチック製ストローは高価で、紙製は水分に弱く、金属製も曲げられない上に、熱や冷たさを伝えやすいなど課題が山積している。そこで PIM が持っている、生分解性と成形性を駆使して、今後 PIM 成形品の新たな提案ができる機会がますます増加すると考えられる。

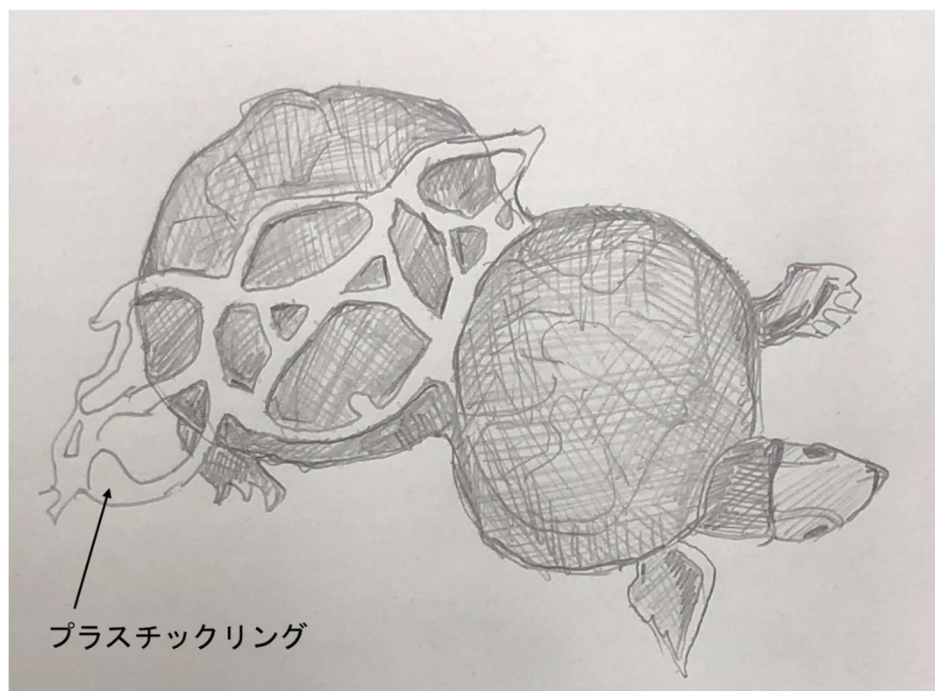


図 8.3 プラスチックリングが体に巻き付いたまま成長した亀

### 8.4.2 PIM の特性を活かした開発

環境対応製品の開発や量産の検討に加えて、近年では PIM 技術の特性を活かした製品の開発を行っている。以下に幾つかの事例を紹介する。

#### (1) 耐水性付与

プラスチック代替品用途として必要な性能が、耐水性の付与である。例えば紙コップは、内面にポリエチレンのフィルムを貼ることによって耐水性を保持させている。PIM における耐水性付与は、同様のアプローチでは難しく、現在も素材を選定中であるが、PIM の高密度化と合わせて取組むことにより、実用性に耐える成形品を提供出来る可能性がある。

課題としては、材料内部添加を軸とした耐水性素材の適用試験が必要であることと、澱粉に作用する耐水剤の探索が必須であると考えられる。また内部空隙と外部をつなぐ経路から水が進展するため、経路封鎖を行う手法についても検討が必要である。



(2) 防炎性付与

PIM 成形材料に特定の防炎材を添加することにより，PIM の工程を変更させず，炎に直接さらされていても燃焼しない材料グレードの開発に成功した．現在開発が進行中の用途として，図 8.4 に示す様な燃焼物からの保護ケースの成形品がある．成形品は高温物体に接したり，炎に晒されても燃焼したりせずに，形状を保持したまま炭化が進行する．また炭化が最終まで進行すると灰になって消失する．これ以外の用途として，建材や内装材としての適用を模索している．

課題としては，与えられる熱量に対して完全灰化までの定量評価が必要なこと，また灰化進行時の強度保持時間の評価などがある．

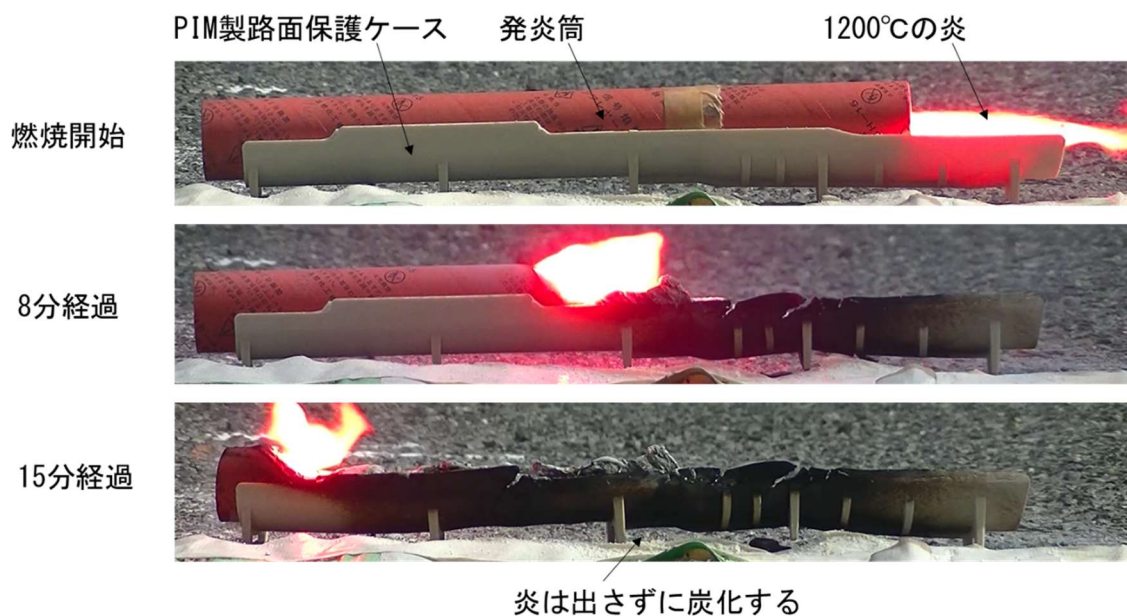


図 8.4 発炎筒路面保護ケース

## (3) 水溶性付与

PIM 成形品は水に弱く，10 分程度水に浸漬すると膨潤して崩壊されやすくなる．しかし，ごく短時間のうちに形状が崩れて崩壊されることが要望される分野がある．例えばトイレ用衛生用品用途や水回り使用品等が期待される．

課題としては，水分解の時間調整が可能となるように，系統的な実験計測が必要である．また成形後の環境湿度により変形等が顕著に現れる懸念があるため，注視する必要がある．水溶性の付与について比較した写真を，図 8.5 に示す．

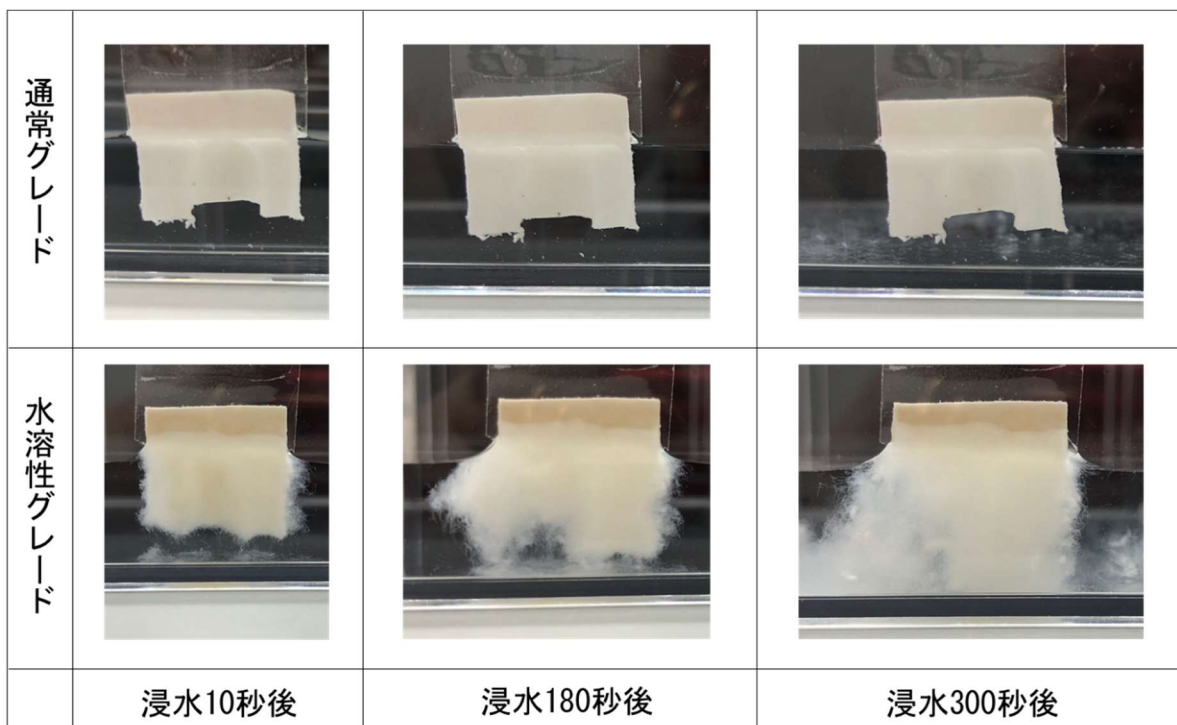


図 8.5 PIM 水溶性付与の例

## (4) セルロースナノファイバーの適用

セルロースナノファイバー（CNF）は，増粘剤，粘度安定化剤としてすでに食品や化粧品分野で採用が進められている．また CNF に疎水化処理を行い樹脂に混練する研究が進められている．しかしながら CNF は親水性素材であり，パルプや澱粉と本来は親和性の高い素材である．PIM で使用しているパルプ素材は mm オーダーであり，ナノスケールの CNF が水素結合に対し作用し，大幅な強度上昇をもたらす可能性があるかと予想している．また，強度上昇によって PIM の薄肉化の基盤技術となることが将来的に期待される．

本論文では、PIMの成形プロセスを最適化することに取り組んできた。ここで挙げた新たな事例の基礎となる部分は、本論文の研究成果の上に初めて成り立つものばかりである。PIMは材料や原料を変更することで、PIMならではの、PIM技術でのみ生産可能な開発品を世に送り出せる大きな可能性を秘めている。またプラスチックゴミに始まった世界的な環境問題の提起は、脱プラスチックの流れを確実に引き起こすものと予想される。PIM技術は、世界初の全く新しい成形技術である。本論文の成果が世の中へのPIM技術の幅広い適用を推進し、プラスチックの持つ環境問題の解決に向けて、その一助となることを期待する。

---

## 参考文献（五十音順）

<和文文献>

[浅野 2003]

浅野 強：日本接着学会誌，“真空可塑化と飢餓供給による未乾燥樹脂の射出成形”，Vol.39, No.11, pp.426-431, (2003).

[磯貝 2003]

磯貝 明：“セルロースの科学”，朝倉書店，p.37, (2003).

[伊藤 2012]

伊藤彰浩：第200回京大生存圏シンポジウム／第7回バイオ材料プロジェクト要旨集，p.27, (2012).

[岩田 2010]

岩田忠久：“生分解性バイオポリエステルの高性能化”，SPRING-8 利用者情報，Vol.15, No.3, pp.150-156, (2010).

[大島 2014]

大島一史監修：“バイオプラスチック技術の最新動向”，(2014).

[大柳 1996]

大柳 康著：“ポリマープロセッシングレオロジー入門”，アグネ承風社，p.75, (1996).

[古紙利用 2007]

財団法人 古紙再生促進センター：“平成19年度 古紙利用新規用途開拓調査報告書”，p.10, (2007).

[国連広報センター 2017]

国際連合広報センター：

[http://www.unic.or.jp/activities/economic\\_social\\_development/sustainable\\_development/2030\\_agenda/2017/10/4](http://www.unic.or.jp/activities/economic_social_development/sustainable_development/2030_agenda/2017/10/4), (2017).

[小松 2018a]

小松 道男：“ポリ乳酸の射出成形技術のバリエーション<前編>”，プラスチックタイムス，Vol.99, No.8, pp.1-4, (2018).

---

[小松 2018b]

小松 道男：“ポリ乳酸の射出成形技術のバリエーション<後編>”，プラスチックタイムス，Vol.100，No.9，pp.1-4，(2018).

[坂本 1992]

坂本 一郎：“ポリアセタール樹脂の噛み込み状態の挙動観察”，日本機械学会講演論文集，Vol.920-29，pp.21-23，(1992).

[佐藤 1996]

佐藤 勲：“射出成形金型内の保圧下における樹脂挙動と成形不良”，高圧力の科学と技術，Vol.5，No.4，pp.232-237，(1996).

[佐藤 2008]

佐藤幹彦，中川幸臣，来川保紀：“パルプモールド緩衝材の擦り傷防止に関する研究”，あいち産業科学技術総合センター 研究成果，(2008).

[白石 1995]

白石 亘，岡田 克彦，横井 秀俊：“加熱シリンダ内個体輸送・可塑化過程とペレット形状の相関解析”，成形加工'95，pp.167-170，(1995).

[先端成形 2012]

プラスチック成形加工学会 編：“先端成形加工技術I 4 巻”，p.128，(2012).

[高次 2016]

高次 総，入部 和成，横井 秀俊：“射出成形機のホッパー下における樹脂ペレット噛み込み状況の可視化解析II－ホッパー口形状影響－”，成形加工，Vol.28，No.11，pp.466-473，(2016).

[高次 2017]

高次 聡，内山 辰宏，丸山 淳平，石黒 俊夫，藤岡 修，大森 瑛：“射出成形機における射出料安定化手法の開発”，精密工学会，Vol.83，No.6，pp.613-618，(2017).

[寺澤 2008]

寺澤 勇，常岡 和記：“竹繊維植物由来樹脂複合材の開発”，第17回ポリマー材料フォーラム，講演番号2PA02，(2008).

[特許 2002]

日本国特許 第 3377775 号, (2002).

[特許 1999a]

日本国特許 第 2916136 号, (1999).

[特許 1999b]

日本国特許 第 2951933 号, (1999).

[特許 1999c]

日本国特許 第 2951955 号, (1999).

[特許 1999d]

日本国特許 第 2960920 号, (1999).

[永谷 2014]

永谷 保：“バイオマスのひとつであるケナフを利用した自動車用内装材の量産化”，塑性と加工, Vol.55, No.637, pp.108-111, (2014).

[西村 2018]

西村 巖夫：“プラスチック資源の活用と循環型社会の実現に向けて ～サステナブル化の世界潮流～”，成形加工, Vol.30, No.11, pp.577-580, (2018).

[日本バイオプラ協会 2018]

日本バイオプラスチック協会 HP：<http://www.jbpaweb.net/>.

[野々村 2004]

野々村 箒：“パルプモールド断熱カップの開発”，日本包装学会誌, Vol.13, No.1, pp.43-51, (2004).

[長谷川 2005]

長谷川 茂, 金 佑圭, 横井 秀俊：薄肉バーフロー金型による超高速充填過程の計測—第 1 報：LCP 成形品に及ぼすガスベント条件の影響—, 成形加工, Vol.17, No.10, pp.702-708, (2005).

---

[畑中 1993]

畑中 貞男, 北川 博 : “射出工程中の逆流防止弁の閉鎖特性と射出樹脂量の安定性”, 日本機械学会論文集 (B 編), Vol.59, No.567, pp.3529-3536, (1993).

[原 2002]

原 啓志 : “紙のおはなし改訂版”, 日本規格協会, p.183, (2002).

[プラ循環利用協会 2015]

プラスチック循環利用協会 : プラスチックのマテリアルフロー図 (2015 年), プラスチックリサイクルの基礎知識 2017, pp.6-7, (2017).

[本田 1989]

本田 篤, 矢口 忠平 : “紙及びパルプの繊維長試験方法 光学的自動計測法について”, 紙パ技協誌, Vol.43, No.5, pp.39-45, (1989).

[村田 1991]

村田 泰彦, 岡 克典, 出口 好希, 横井 秀俊 : “可視化加熱シリンダによるスクリュチェック挙動解析”, 成形加工'91, pp.19-22, (1991).

[森井 2011]

森井 亨 : “天然繊維強化プラスチック成形品の耐水性”, 湘南工科大学紀要, Vol.45, No.1, pp.71-78, (2011).

[矢野 2012]

矢野浩之 : “セルロースナノファイバーとその利用”, 日本ゴム協会誌, Vol.85, No.12, pp.376-381, (2012).

[山脇 2008]

横井 秀俊, 山脇 靖広, 増田 範通 : “パルプ射出成形における型内現象の実験解析 II”, 成形加工シンポジウム'08, pp.151-152, (2008).

[山脇 2009]

横井 秀俊, 山脇 靖広, 増田 範通 : “パルプ射出成形における型内現象の実験解析 III”, 成形加工'09, pp.368-367, (2009).



[横井 1999]

横井 秀俊, 小野 英伸: “磁歪式センサによるチェックリング挙動の計測”, 成形加工’99, pp.287-288, (1999).

[横井 2000]

横井 秀俊, 高次 聡: 成形加工, “射出成形機のホッパー下における樹脂ペレット噛込み状況の可視化解析I—噛込み不良現象の解析—”, Vol.12, No.7, pp.457-463, (2000).

[横井 2008]

横井 秀俊, 山脇 靖広, 増田 範通: “パルプ射出成形における型内現象の実験解析 I”, 成形加工’08, pp.83-84, (2008).

[Patent 1999e]

US Patent 6254814 号, (1999).

[Patent 2011b]

WIPO 059013, (2011).

[WDCGG 2018]

温室効果ガス世界資料センター (World Data Centre for Greenhouse Gases: WDCGG), “温室効果ガス年報”, Vol.14, (2018).

---

< 英文文献 >

[Aungsuma 2011]

Aungsuma, B., Juntima, C. : “Biodegradable Foams Based on Cassava Starch by Compression Process”, The 5th PSU-UNS International Conference on Engineering and Technology, pp.71-74, (2011).

[Chayapa 2015]

Chayapa, W., Jutarat, P., : “Properties of Biodegradable Thermoplastic Cassava Starch/Sodium Alginate Composites Prepared from Injection Molding”, Polymer Composites, Vol.37, No.12, pp.3365-3372, (2015).

[Dufresne 2017]

Dufresne, A. : “Cellulose Nanomaterial Reinforced Polymer Nanocomposites”, Current Opinion in Colloid & Interface Science, Vol.29, pp.1-8, (2017).

[Hamad 2015]

Hamad, K., Kaseem<sup>1</sup>, M., Yang<sup>1</sup>, H.W., Deri, F., Ko, Y. G. : “Properties and Medical Applications of Polylactic Acid : A review”, eXPRESS Polymer Letters, Vol.9, No.5, pp.435–455, (2015).

[Hieber 1983]

Hieber, C. A., Socha, L. S., Shen, S. F., Wang, K. K., Lsayev, A. I. : “Filling Thin Cavities of Variable Gap Thickness -A Numerical and Experimental Investigation-”, *Plym. Eng. Sci.*, Vol.23, No.1, pp.21-26, (1983).

[James 2006]

James H., Dan H., : “Natural-Fiber-Reinforced Polymer Composites in Automotive Applications”, *JOM*, Vol.58, No.11, pp.80-86, (2006).

[Kostadinovic 2014]

Kostadinovic, D. Y., “Packing Innovation for Food-Attractive for Eyes, Easy to Carry and Environment Friendly”, *Review on Agriculture and Rural Development 2014*, Vol.3, pp.20-26, (2014).

[Kristiina 2016]

Kristiina, O., Yvonne, A., Aji, P. M., Gilberto, S., Qi, Z., Svetlana, B., Supachok, T., Xiaojian, Z., Saleh, H., : “Review of the Recent Developments in Cellulose Nanocomposite Processing”, *Composites Part A*, Vol.83, pp.2-18, (2016).

[Omar 2012]

Omar, F., Andrzej, K. B., Hans-Peter, F., Mohini, S., : “Biocomposites Reinforced with Natural Fibers: 2000–2010”, *Progress in Polymer Science*, Vol.37, pp.1552-1596, (2012).

[Omar 2013]

Omar, F., Andrzej, K. B., Hans-Peter, F., Mohini, S., : “Progress Report on Natural Fiber Reinforced Composites”, *Macromolecular Materials and Engineering*, Vol.229, No.1, pp.9-26, (2013).

[Pickering 2016]

Pickering, K.L., Aruan Efendy, M.G., Le, T.M.: “A Review of Recent Developments in Natural Fibre Composites and their Mechanical Performance”, *Composites Part A*, Vol.83, pp.98-112, (2016).

[Lui 2009]

Liu, L., Yu, J., Cheng, L., Qu, W. : “Mechanical Properties of Polybutylene Succinate (PBS) Biocomposites Reinforced with Surface Modified Jute Fibre”, *Composites Part A*, Vol.40, No.5, pp.669-674, (2009).

[Martien 2017]

Martien van den Oever, Karin Molenveld, “Maarten van der Zee, Harriëtte Bos : Bio-based and Biodegradable Plastics - Facts and Figures”, *Wageningen Food & Biobased Research number 1722*, p.31, (2017).

[Martin 2017]

Martin, K., Lukáš, M., Miguel, M., Sousa, Diasd., Gerhart, B., “Producing Microbial Polyhydroxyalkanoates (PHA) Biopolyesters in a Sustainable Manner”, *New Biotechnology Part A*, Vol.37, pp.24-38, (2017).

---

[Mastura 2017]

Mastura, M. T., Sapuan, S. M., Mansor, M. R., Nuraini, A. A., : “Environmentally Conscious Hybrid Bio-Composite Material Selection for Automotive Anti-roll Bar”, *The International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, Vol.89, No.5-8, pp.2203-2219, (2017).

[Missouri 1993]

Missouri Department of Conservation : <https://mdc.mo.gov/>, (1993).

[Moore 2012]

Moore, Charles : “Plastic Ocean: How a Sea Captain's Chance Discovery Launched a Determined Quest to Save the Oceans”, (2012).

[Murdani 2015]

Murdani, A., Maskuri, Profiyanti, S. Hermin., Chobin, M. : “Fracture Mechanism of Polypropylene-Kenaf Composite under Cyclic Loading”, *Advanced Materials Research*, Vol.1119, pp.223-228, (2015).

[Nobile 2018]

Nobile, R. M., Crocittia, A., Malinconicob, M., Santagatab, G., Cerrutib, P. : “Preparation and Characterization of Polybutylene Succinate (PBS) and Polybutylene Adipate-terephthalate (PBAT) Biodegradable Blends”, *AIP Conference Proceedings*, Vol.1981, No.1, (2018).

[Nagarajan 2016]

Nagarajan, V., Mohanty, K. A., Misra, M. : “Perspective on Polylactic Acid (PLA) based Sustainable Materials for Durable Applications: Focus on Toughness and Heat Resistance”, *ACS Sustainable Chemistry Engineering*, Vol.4, No.6, pp.2899–2916, (2016).

[Patent 1939]

US Patent 2,163,585, (1939).

[Patent 1940]

US Patent 2,192,937, (1940).

[Patent 2015]

US Patent 0054190 A1, (2015).

[PaperFoam HP]

PaperFoam HP, <https://www.paperfoam.com/technology/>, (2018) .

[Penlapus 2007]

Penlapus, Y., Prayoon, S., Jedsada, Wong-o. : Mechanical and Physical Properties of Green Particle Board Produce from Corncob and Starch Binder Composite : PSU-UNS International Conference on Engineering and Environment, pp.348-350, (2007).

[Sakurada 1962]

Sakurada, I., Nukushina, Y., Ito, T. : “Experimental Determination of the Elastic Modulus of Crystalline Regions in Oriented Polymers”, Journal of Polymer Science Part A, Vol.56, No.165, pp.651-660, (1961).

[Saito 2013]

Saito, T., Kuramae, R., Wohlert J., Berglund, L.A., Isogai, A. : “An Ultrastrong Nanofibrillar Biomaterial: the Strength of Single Cellulose Nanofibrils Revealed via Sonication-induced Fragmentation.”, Biomacromolecules, Vol.14, No.1, p.248, (2013).

[Strand 1992]

Strand,S.R., Spalding,M.A. and Hyun,K.S. : “Molding of the Solid-Conveying Section of a Starven-Fed Single-Screw Plasticating Extruder”, Plastics Engineering, Vol.48, No.7, pp.17-21, (1992).

[YouTube 2015]

YouTube “Sea Turtle with Straw up its Nostril - "No" to Plastic Straws”  
<https://www.youtube.com/watch?v=4wH878t78bw>, (2015).

---

## 本論文に関する公表文献

## 1. 原著論文

- 1) 横井秀俊, 松坂圭祐, 丸野満義: パルプ射出成形の研究 第1報 —バーフロー金型による流動特性の計測と成形品特性の評価—, 成形加工, Vol.22, No.11, pp.645-651, (2010).
- 2) 松坂圭祐, 横井秀俊: パルプ射出成形の研究 第2報 —機械的諸特性と内部空隙の生成に及ぼす材料組成の影響—, 成形加工, Vol.24, No.12, pp.712-717, (2012).
- 3) 松坂圭祐, 横井秀俊: パルプ射出成形の研究 第3報 —肉厚変動領域における材料流動挙動の静的可視化解析—, 成形加工, Vol.28, No.5, pp.201-207, (2016).  
<プラスチック成形加工学会 第27回論文賞受賞>
- 4) 松坂圭祐, 丸野満義, 増田範通, 横井秀俊: パルプ射出成形の研究 第4報 —計量工程安定化および乾燥工程型開閉動作の最適化によるハイサイクル化の検討—, 成形加工, Vol.29, No.12, pp.441-447, (2017).
- 5) 松坂圭祐, 横井秀俊: パルプ射出成形の研究 第5報 —金型内材料流動挙動の動的可視化解析—, 成形加工, Vol.30, No.9, pp.470-475, (2018).

---

## 2. 国際学会

- 1) A Study on Pulp Injection Molding : H.Yokoi, K.Matsuzaka, M.Maruno, H.Miyashita, N.Masuda, Abstracts for the 22nd Annual Meeting of the Polymer Processing Society : p.182(CD-ROM;File No.G06.11), (2006).
- 2) Evaluation of Characteristics of Pulp Injection Molded Products : K.Matsuzaka, H.Miyashita, N.Masuda, H.Yokoi, Europe/Africa Regional Meeting of the Polymer Processing Society for 2009, p.55(CD-ROM;File No.114), (2009).
- 3) Visualization Analysis of Material Flow inside Simple Rib Cavity in Pulp Injection Molding : K.Matsuzaka, H.Yiyashita, N.Masuda, H.Yokoi Proceedings of The Polymer Processing Society 26th Annual Meeting (PPS-26), (USB;File:G06-443.pdf), (2010).

## 3. 国内学会

- 1) 横井秀俊, 丸野満義, 松坂圭祐, 宮下治樹, 増田範通 : パルプ射出成形の研究 – バーフロー金型による流動特性計測 –, 成形加工シンポジア'05, pp.139-142, (2005).
- 2) 松坂圭祐, 丸野満義, 宮下治樹, 増田範通, 横井秀俊 : パルプ射出成形II – 成形品の特性評価 –, 成形加工シンポジア'05, pp.143-146, (2005).
- 3) 丸野満義, 松坂圭祐, 宮下治樹, 増田範通, 横井秀俊 : パルプ射出成形の研究VI – 大型成形品での流動特性ならびにハイサイクル化 –, 成形加工シンポジア'06, pp.95-96, (2006).
- 4) 松坂圭祐, 成岡弘康, 丸野満義, 宮下治樹, 増田範通 : 横井秀俊パルプ射出成形の研究VII – 成形品内部空隙の評価と成形条件との相関 –, 成形加工シンポジア'06, pp.97-98, (2006).
- 5) 丸野満義, 松坂圭祐, 宮下治樹, 増田範通, 横井秀俊 : パルプ射出成形の研究IV – 大型成形品での流動特性ならびにハイサイクル化 –, 成形加工'06, pp.149-150, (2006).



- 6) 松坂圭祐, 成岡弘康, 丸野満義, 宮下治樹, 増田範通, 横井秀俊: パルプ射出成形の研究V –成形品の特性評価II–, 成形加工'06, pp.151-152, (2006).
- 7) 丸野満義, 松坂圭祐, 宮下治樹, 増田範通, 横井秀俊: パルプ射出成形の研究VIII—可塑化条件の最適化—, 成形加工'07, pp.197-198, (2007).
- 8) 丸野満義, 松坂圭祐, 宮下治樹, 清水久登, 増田範通, 横井秀俊: パルプ射出成形の研究IX –低圧縮スクリュによるハイサイクル化の検討–, 成形加工'08, pp.85-86, (2008).
- 9) 松坂圭祐, 丸野満義, 宮下治樹, 清水久登, 増田範通, 横井秀俊: パルプ射出成形の研究X –X線CT撮影による成形品の評価–, 成形加工'08, pp.87-88, (2008).
- 10) 松坂圭祐, 丸野満義, 宮下治樹, 清水久登, 増田範通, 横井秀俊: パルプ射出成形における成形品特性評価 I, 成形加工シンポジウム'08, pp.147-148, (2008).
- 11) 丸野満義, 田中義照, 宮下治樹, 山脇靖広, 増田範通, 横井秀俊: パルプ射出成形におけるランナーレス化の検討, 成形加工シンポジウム'08, pp.149-150, (2008).
- 12) 松坂圭祐, 丸野満義, 宮下治樹, 増田範通, 横井秀俊: パルプ射出成形におけるウェルドラインの生成と特性評価, 成形加工'09, pp.369-370, (2009).
- 13) 松坂圭祐, 丸野満義, 宮下治樹, 新田和男, 増田範通, 横井秀俊: パルプ射出成形における単純リブ内部の材料マーキング可視化解析, 成形加工シンポジウム'09, pp.253-254, (2009).
- 14) 松坂圭祐, 丸野満義, 宮下治樹, 増田範通, 横井秀俊: パルプ射出成形品ウェルド領域の材料マーキング可視化解析, 成形加工'10, pp.185-186, (2010).
- 15) 松坂圭祐, 丸野満義, 宮下治樹, 増田範通, 横井秀俊: パルプ射出成形における肉厚変動領域のポイントマーキング可視化解析, 成形加工シンポジウム'10, pp.309-310, (2010).
- 16) 松坂圭祐, 丸野満義, 宮下治樹, 増田範通, 横井秀俊: パルプ射出成形におけるシボ転写特性の検討, 成形加工'11, pp.277-278, (2011).

- 
- 17) 松坂圭祐, 丸野満義, 宮下治樹, 増田範通, 横井秀俊 : パルプ射出成形におけるシボ転写特性の検討II, 成形加工シンポジウム'11, pp.325-326, (2011).
  - 18) 松坂圭祐, 丸野満義, 宮下治樹, 増田範通, 横井秀俊 : パルプ射出成形材料の粘度特性評価装置の開発, 成形加工'13, pp.193-194, (2013).
  - 19) 松坂圭祐, 丸野満義, 宮下治樹, 増田範通, 横井秀俊 : パルプ射出成形材料の粘度特性評価装置の開発II, 成形加工シンポジウム'14, pp.227-228, (2014).
  - 20) 松坂圭祐, 丸野満義, 宮下治樹, 増田範通, 横井秀俊 : パルプ射出成形における型内現象の可視化解析, 成形加工'12, pp.161-162, (2012).
  - 21) 松坂圭祐, 丸野満義, 宮下治樹, 増田範通, 横井秀俊 : パルプ射出成形における型内現象の可視化解析II, 成形加工シンポジウム'12, pp.261-262, (2012).

#### 4. その他

- 1) 松坂圭祐, 横井秀俊 : パルプ射出成形材料の粘度特性評価装置の開発, 生産研究, Vol.67, No.6, pp.9-12, (2015).
- 2) 横井秀俊, 丸野満義, 松坂圭祐 : 三次元立体形状の紙素材成形体を実現するパルプ射出成形, プラスチックス, Vol.65, No.4, pp.17-21, (2014).
- 3) 日本国特許 第 04444201 号 “射出成形装置”, (2005).
- 4) 日本国特許 第 04482529 号 “建築補助材”, (2006).
- 5) 日本国特許 第 04446352 号 “紙繊維を主成分とする成形材料の調整方法”, (2006).
- 6) 日本国特許 第 04395552 号 “射出成形装置の寸型開制御方法”, (2009).
- 7) 日本国特許 第 05055480 号 “射出スクリュ”, (2012).
- 8) 日本国特許 第 04716969 号 “医療用トレイ”, (2006).

---

# 謝辭

---

本論文は、東京大学生産技術研究所 横井秀俊教授のご指導のもとにまとめたものです。研究開始から、約 15 年間の長きにわたり、ご指導を賜りました横井秀俊教授に心より感謝申し上げます。PIM 成形技術の現象解明について、ご専門のプラスチックとは違うにも関わらず、真剣に議論していただけたことは、とても貴重な経験であり、自身の考えの殻を取り除くことが出来たことは大きな喜びでした。

博士論文の副査として本論文をご査読いただき、多くの貴重なご助言を賜りました、東京大学生産技術研究所の新野俊樹教授および東京大学先端科学技術研究センター 高橋 哲教授、同生産技術研究所 梶原優介准教授、古島 剛准教授に、深く感謝申し上げます。研究内容について、適切かつ的確なご指導の数々を頂戴できたことは、大きな財産として心に留めて置きたく存じます。

そして、本論文執筆の貴重な機会を与えて頂き、公私にわたるご指導を頂いております、大宝工業株式会社 代表取締役会長 兼 社長 國友省爾氏、大宝工業株式会社 関西カンパニー社長 田中規之氏、そして私が不在の間、工場の運営に尽力してくれました大宝工業株式会社 関西カンパニー 鳥取工場の関係者各位に感謝を申し上げます。

また、東京大学生産技術研究所の共同研究員として横井研究室と一緒に在籍した研究開始当時から、ご助言やご協力を数多く頂きました、大宝工業株式会社 丸野満義氏、横井研究室の技術専門職員であった増田範通氏（現・古島研究室）、同助教であった金藤芳典工学博士（現・三菱電機株式会社）に心より感謝を申し上げます。

平成 30 年 11 月

松坂 圭祐