

低圧物理発泡射出成形装置の開発と
装置内での物理発泡剤の溶解機構の解明

内藤章弘

目次

第 1 章 緒論	1
1.1 発泡射出成形とその課題	2
1.1.1 射出成形と発泡射出成形	2
1.1.2 プラスチック発泡成形の原理	5
1.1.3 発泡射出成形装置での発泡工程	9
1.1.4 既存の発泡射出成形法とその課題	9
1.1.5 SCF 製造装置が不要な物理発泡射出成形法	13
1.2 発泡射出成形の型締めユニットにおける発泡挙動の制御法 (ショートショット法とコアバック法)	14
1.3 本研究の目的と本論文の構成	16
参考文献	18
付録 成形に関する専門用語の注釈	20
第 2 章 低圧発泡射出成形機の設計開発	21
2.1 緒言	22
2.2 超臨界流体の溶媒和効果を利用した添加物の微細分散装置の開発	22
2.3 低圧発泡射出成形機の開発 (第一世代の RIC-FIM (Resilient Innovative Cellular Foam Injection Molding))	24
2.4 低圧発泡射出成形機の開発 (第二世代の RIC-FIM (RIC-FOAM))	28
2.5 装置の性能実証試験 (種々の物理発泡剤を使用した微細発泡成形体の作成)	30
2.6 まとめ	33
参考文献	34
第 3 章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響	35
3.1 緒言	36
3.2 近赤外分光法による物理発泡剤 (CO_2) のインライン測定システム	36
3.3 低圧発泡射出成形装置 (RIC-FOAM (SOFIT))	38
3.4 検量線 (近赤外吸光度と CO_2 濃度の相関性) の導出のための測定実験	39
3.5 各種操作条件の CO_2 濃度 (A_{CO_2}) への影響	41
3.6 樹脂非充填領域のモデリング	41
3.7 結果と考察	46
3.7.1 物理発泡剤濃度と A_{CO_2} との関係 (検量線の導出)	46
3.7.2 供給ガス圧力と CO_2 濃度の関係	46
3.7.3 非充填領域における樹脂の比表面積 S_m と CO_2 濃度の関係	47
3.7.4 充填領域の圧力および圧力勾配の CO_2 濃度への影響	51

3.7.5	表面更新度の CO ₂ 濃度への影響	56
3.7.6	スクリー回転停止中の CO ₂ の溶解	56
3.8	結言	59
	参考文献	60
	付録 A-1 記号表	61
	付録 A-2 圧力勾配の導出	62
第 4 章	物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法	65
4.1	緒言	66
4.2	実験方法	66
4.3	モデリング	68
4.3.1	スクリー回転中の物理発泡剤の溶解モデル	68
4.3.2	スクリー回転中の樹脂の流動モデル	72
4.3.3	スクリー回転停止中の物理発泡剤の溶解	75
4.4	計算シミュレーション	76
4.4.1	計算フローチャート	76
4.4.2	スクリー回転中の物理発泡剤濃度の計算結果	80
4.4.3	非充填領域の長さの推定	86
4.4.4	待機時間中の物理発泡剤の溶解	88
4.5	結言	92
	参考文献	93
	付録 記号表	94
第 5 章	装置のスケールアップ時の物理発泡剤の溶解機構	95
5.1	緒言	96
5.2	発泡射出成形機の構成と成形条件	96
5.2.1	スクリーのスケールアップ乗数	96
5.2.2	2 条フライトスクリーの実機検討条件	102
5.2.3	スクリー形状の変更条件	104
5.2.4	非充填領域における樹脂の表面更新回数の推定	105
5.2.5	Active flight の樹脂表面のみからの物理発泡剤溶解量の推定	106
5.3	結果と考察	108
5.3.1	スクリーのスケールアップの影響	108
5.3.2	2 条フライトスクリーの実機での検証	109
5.3.3	スクリー形状が CO ₂ 濃度に及ぼす影響	114
5.3.4	物理発泡剤の溶解挙動を表現可能な指標の検討	121
5.3.5	Active flight の樹脂表面のみからの物理発泡剤溶解量の推定	125

5.4 結言	127
付録 記号表	129
参考文献	130
第6章 総論.....	131
6.1 本研究で得られた成果	132
6.2 今後の展望	134
謝辞	135
業績リスト	137

第 1 章

緒論

本論文において，射出成形に関する特殊性・技術性の高い用語が使用されている．本文中の文の流れを損なわない範囲で脚注において用語を解説するほかに，章末の付録に一般的な射出成形技術用語をまとめておく．

第1章 緒論

1.1 発泡射出成形とその課題

1.1.1 射出成形と発泡射出成形

プラスチックの工業化の歴史は浅く、1907年に Baekeland がフェノールとホルムアルデヒドを原料とするフェノール樹脂「ベークライト」を発明してから 110 余年しか経っていない。この間に、プラスチックは、安価で軽量、加熱して容易に成形加工でき、樹脂の組成や添加剤により、容易に物性を調整できる特徴から、金属の他、木材や繊維などの天然素材に変わる素材として急速に普及した。その結果、世界のプラスチック生産量は、1950年の2 Mt/年から2019年には460 Mt/年へと増大しており、今後も経済活動の拡大と人口増加にともなって増加し続け、OECDのレポートに記されているように2060年には2019年の約3倍の1231 Mt/年になると予想されている¹⁾。その一方で、図1-1に示すように2019年の世界のプラスチック廃棄量353Mt/年の内、サーマルリサイクルを除くと、リサイクルされるものはわずか8%程度しかなく、廃棄物の22%は不適切な管理（図中の Mismanaged）により環境中へ流出し¹⁾、これらが海洋プラスチック問題などの環境問題の原因となっている。また、プラスチックの製造、廃棄時の二酸化炭素排出も課題となっている。そのため、国内でも2022年4月にプラスチック資源循環促進法が施行されるなど、3R（Recycle, Reuse, Reduce）、もしくは4R（3R+Renewable）の更なる促進に向けた取り組みが喫緊の課題となっている²⁾。

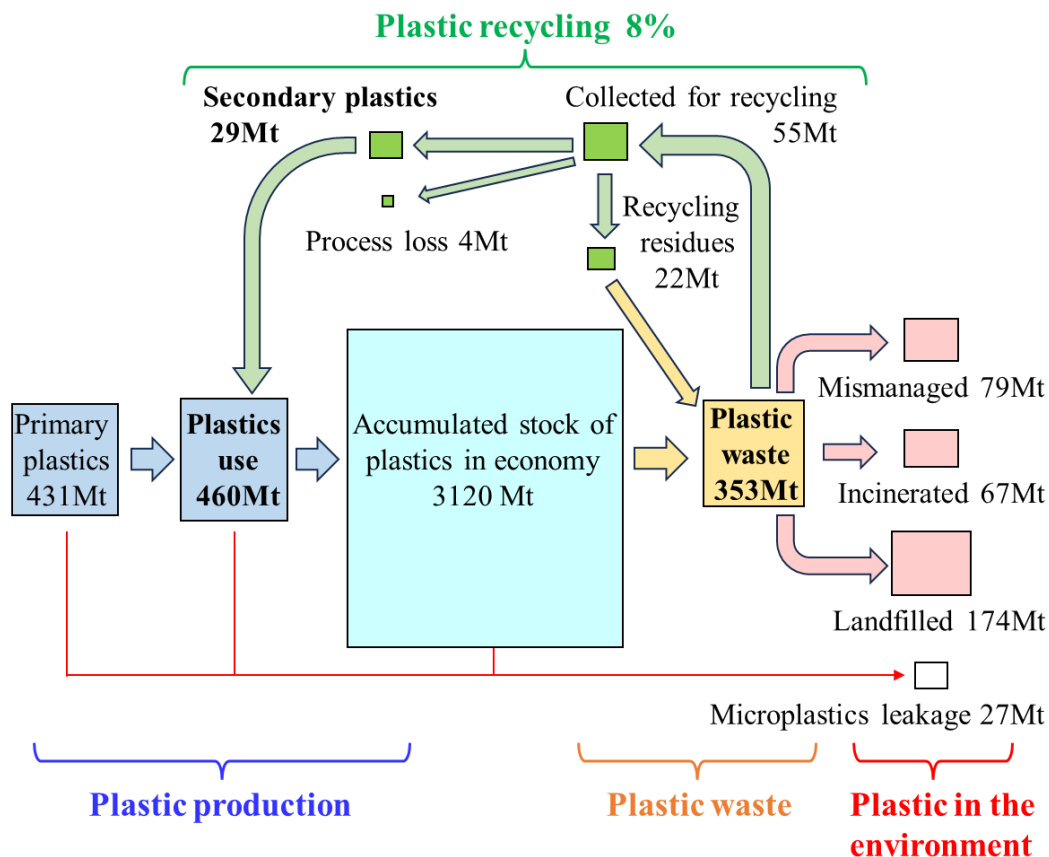


Fig. 1-1 2019 actual results for plastic production, waste, and amount released into the environment.

第1章 緒論

プラスチックの加工手段としては、板形状、棒形状、あるいはフィルム形状などの製品を連続生産する押出成形機、フィルムシート成形機、ボトル形状などの中空製品を生産するブロー成形機、そして、金型のキャビティと同じ形状の製品を生産する射出成形機がある。図 1-2 に電動式射出成形機の外観と機能を示す。射出成形機は、プラスチック材料をスクリーで可塑化する可塑化ユニットと金型を開閉する型締めユニットからなり、型締めユニット内に固定された金型のキャビティ内に溶融した溶融樹脂を流し込んで固めることで複雑な形状のプラスチック製品を大量に複製する成形機械である。この機械の機能を簡単に表すと、樹脂を「溶かして・流して・固める」であり、ペレットと呼ばれる熱可塑性樹脂の固体をホッパと呼ばれる材料タンクから投入し、バレルと呼ばれる円筒形の筒内で加熱して溶かし、スクリーで樹脂の混練と圧縮により前方へ溶けた樹脂を流す。スクリーは、回転とともに後方に移動し溶融樹脂を先端に貯める。所定量が貯まった時、スクリーを回転させずに前方に所定の速度で移動し、注射器のピストンのように、成形機先端から樹脂を金型に流し込む。

図 1-3 に操作手順を示す。操作手順を時系列的に整理すると次のようになる³⁾。

- 1) 型締めユニット (Clamping) で金型(Mold)を閉じて型締めを行う (Clamping: 図 1-3 (1))。
- 2) 射出ユニットを前進させてバレル先端のノズルを金型に押付ける (Nozzle touch : 図 1-3 (2))。
- 3) スクリューを前進させてバレル内に計量(Metering)した溶融樹脂をノズルから金型内に射出する (Injection : 図 1-3 (3))
- 4) 金型内での冷却固化中の樹脂の体積減少を補うため、スクリーをさらに前進させて金型内に圧力 (保圧) をかけて樹脂の密度の低下を抑制して成形品形状を維持する (Holding pressure : 図 1-3 (3))。
- 5) 保圧後の冷却時間を利用して、スクリーを回転させて樹脂を可塑化し、次のショットで射出する溶融樹脂をバレル内に計量する (Metering : 図 1-3 (4))。
- 6) 最後に型締め装置で金型を開いた後、固化した成形品を裏側から突き出して金型から取出す (Ejection : 図 1-3 (5))。

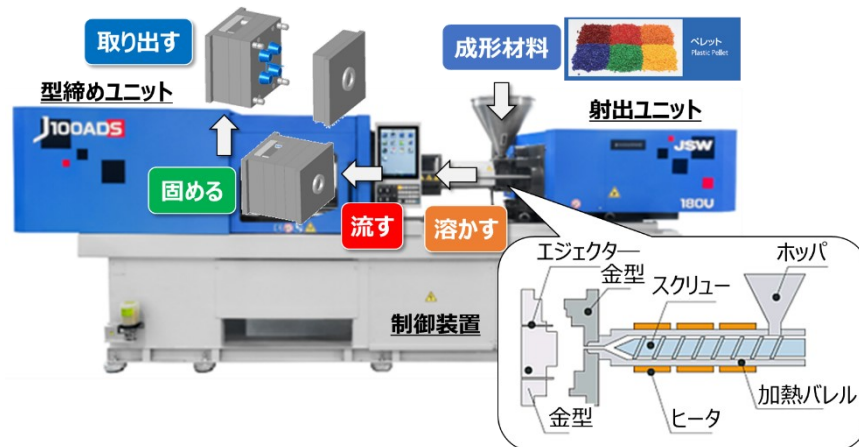


Fig. 1-2 Outline of injection molding machine and molding process.

第1章 緒論

これらの一連の操作をガントチャートの的に表現したのが図 1-4 である．1 連の操作にかかる総時間をサイクルタイムといい，1 サイクルタイムで 1 回の射出成形が行われ，成形品が 1 個，金型のキャビティの形状によっては製品が複数個作られ，このサイクルを繰り返して金型と同じ形状の製品を大量に生産する．1 回の射出をワンショット（One Shot）と呼んでいる．金型キャビティ内に射出した熔融樹脂を冷却する時間の間に，射出ユニット側ではスクリーの後退による樹脂の計量が並行して行われているのも特徴である．本論文中では，上述した技術用語を使い記述を進める．

射出成形機は，自動車や医療，半導体から雑貨などの幅広い産業分野で使用されており，日本のプラスチック加工機の国内生産実績の内，台数実績の約 90%，金額実績の 75%を占める⁴⁾．そのため，プラスチック生産量の削減に向け，射出成形における 3R の促進は重要性が高い．射出成形におけるプラスチック使用量削減の手段としては，高強度材料の使用や設計の工夫による製品の薄肉化が一般的であるが，国内の製造現場では改善の積み重ねにより，すでに薄肉化は限界に近づいている．そのため，既存の金型，および樹脂を用いて軽量化が可能な発泡射出成形が注目されている．

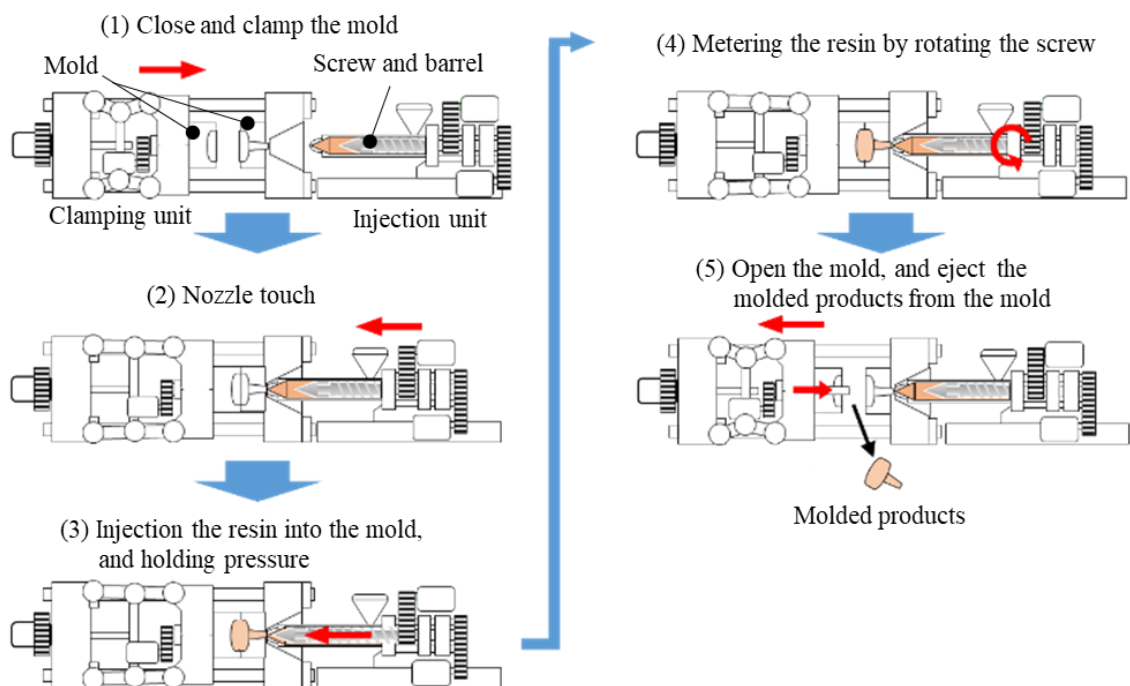


Fig. 1-3 Operation sequence of injection molding machine.

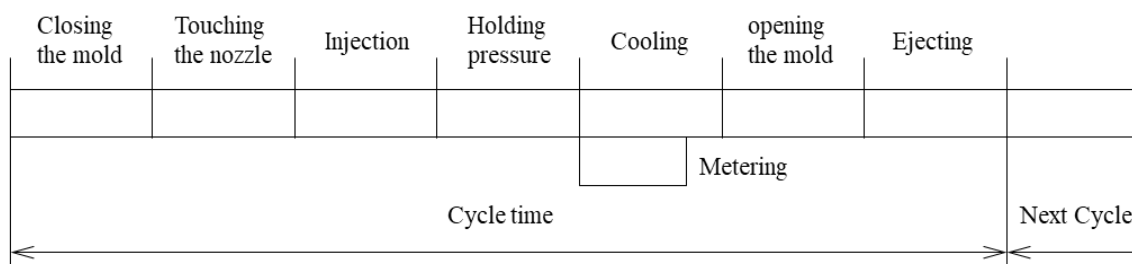


Fig.1-4 Injection molding cycle configuration.

第1章 緒論

発泡射出成形の起源は、1950年代に行われた熱可塑性樹脂材料にベーキングパウダーを混ぜて成形品を発泡させるヒケ※1の改善手法とされている^{5,6)}。しかし、当時は適切な化学発泡剤が知られていなかったため、軽量化などの用途では使われていなかった。その後、1969年に azodicarbonamide (ADCA) を化学発泡剤とする発泡射出成形機が、米国と欧州で相次いで開発され^{7,8)}、1970年台初頭に化学発泡剤による発泡射出成形部品の量産が開始された⁶⁾。現在、化学発泡剤としては、重曹（炭酸水素ナトリウム）が自動車部品などを中心に広く使われており、部品の軽量化やヒケ取りなどの用途で利用されている。

また、この他にも物理発泡剤（ガス）としてフロン系や炭化水素系のガスを発泡剤とするものや、近年では CO_2 や N_2 などを発泡剤とする発泡射出成形機も使われている。

1.1.2 プラスチック発泡成形の原理

CO_2 および N_2 を発泡剤として利用した発泡成形の成形原理は、従来のフロンや炭化水素系ガスの物理発泡と同じである。ガスを加圧して樹脂に溶解させ、その後、減圧や昇温操作を行うことによって溶解していたガスを樹脂に溶け切れない状態にし、相変化を起こさせ気泡を樹脂中に発生させる。いわゆるビールやシャンパンの栓を抜くと泡が現れる原理と同じである。この物理発泡成形は、次の4つの基本過程から成り立つとされる（図1-5）^{9,10)}。

1. 発泡剤ガスの溶解（図1-5(a)）
2. 気泡の生成（気泡核の生成）（図1-5(b)）
3. 気泡成長（図1-5(c)）
4. 気泡安定化（合一・破泡・固化）（図1-5(d)）

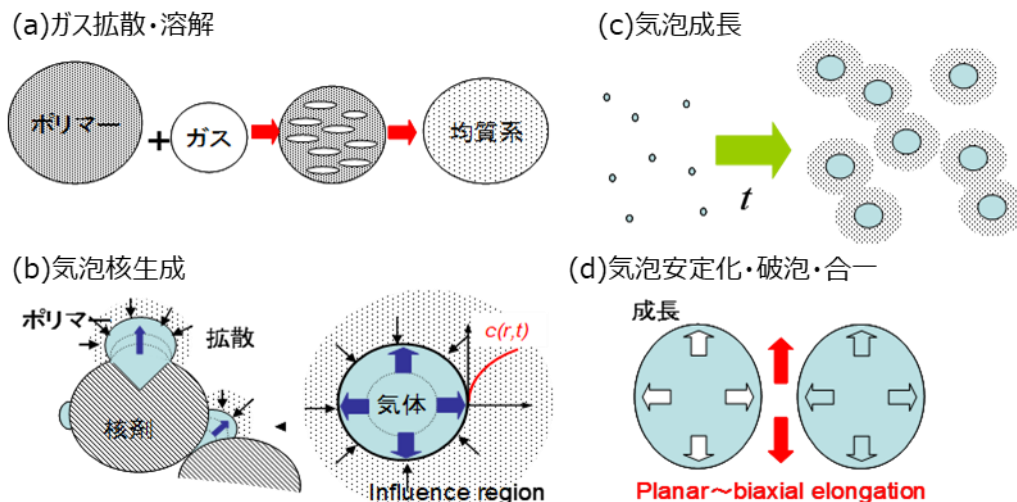


Fig.1-5 Four steps of polymer foaming

※1：ヒケとは、金型内での冷却中、あるいは成形品取出し後に成形品の厚肉部などの樹脂温度の高い部分の樹脂が収縮した際に、成形品の表面の樹脂を引っ張って凹部が生じる成形不良のことである。発泡射出成形では気泡の生成、成長により樹脂の収縮を補うことができるため、ヒケを低減できる。

第1章 緒論

発泡剤の溶解過程では、ガスの溶融樹脂への溶解度（ガスが樹脂に平衡状態において溶解している濃度）と発泡剤の樹脂中での拡散速度（係数）が重要因子となる。ガスの樹脂への溶解度は、樹脂の種類、溶解温度・加圧圧力により異なる。図 1-6 は、ポリエチレン（PE）、ポリプロピレン（PP）、ポリスチレン（PS）への 200 °C における CO₂ の溶解度を磁気浮遊天秤にて測定した結果である。図のように、CO₂ の平衡状態での溶解度は、5-15 MPa の圧力範囲では圧力に比例して増加し、いわゆる、ヘンリー則が成り立つ^{11~15}）。

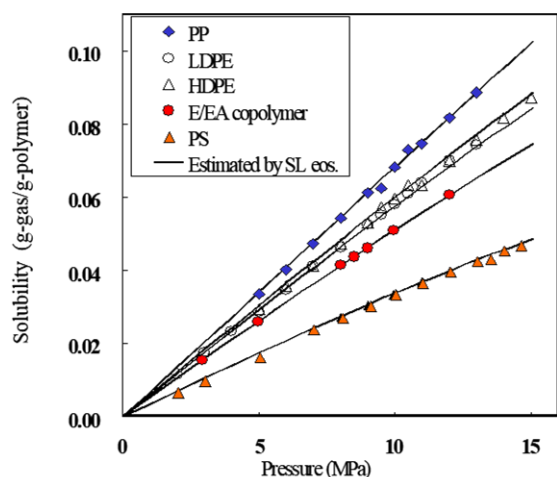


Fig.1-6 CO₂ solubility in various polymers @200 °C（京都大学データベースより）

また、拡散係数（ガスが樹脂に溶け込む速さ）も、樹脂とガスの組み合わせや温度によっても異なるが、溶融状態の樹脂に対しては、オーダー的には 10⁻⁹ から 10⁻⁸ m²/s にある^{11~13,15}）。図 1-7 は、200 °C に保った LDPE と PS の樹脂を CO₂ で 12 MPa に加圧し、それぞれの樹脂に溶かし込み平衡状態を作った後、1MPa ステップ状に圧力を変化させたときの重量変化を磁気浮遊天秤で測定した結果である。フィック則が成り立つといえる拡散挙動が観察されている。

図 1-8 は、磁気浮遊天秤で求めた 200 °C で溶融状態にある各種樹脂への CO₂ の拡散係数を示している。低分子量の物質が樹脂に混ざると可塑化効果が起こり高分子鎖の移動度が上がるため、測定の初期状態で溶解する CO₂ 濃度に応じて、拡散係数が大きくなる可能性がある。そのため、図 1-8 は、横軸が CO₂ 濃度の初期状態の濃度を示しており、樹脂に溶解する CO₂ 濃度が異なる状態での拡散係数を示している（CO₂ の含浸圧を 5 MPa 程度から 1 MPa ずつステップ状に増加させ、その重量変化を測定し、フィック則が成り立つとして重量変化のデータから拡散係数を求めている）。Areerat ら^{11,15}）は種々の樹脂への

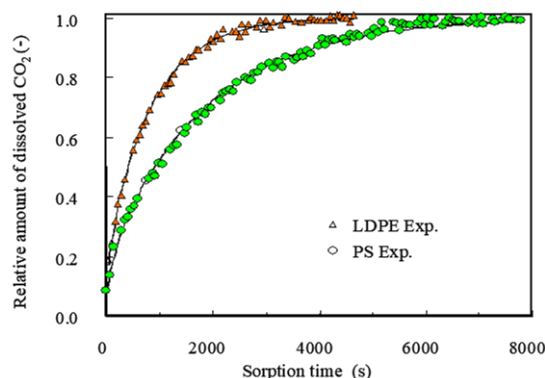


Fig.1-7 Diffusion behavior of CO₂ in LDPE and PS @200 °C . Starting from 12 MPa to 13 MPa（京都大学のデータベースより）

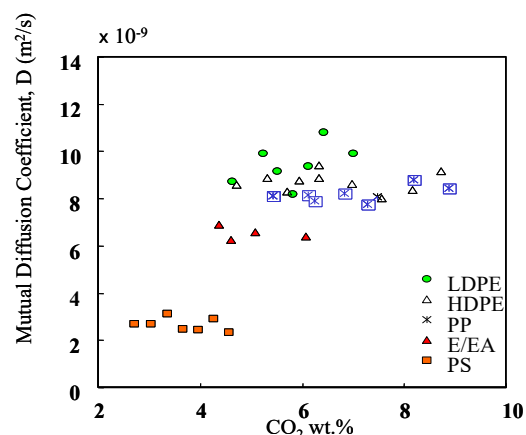


Fig.1-8 CO₂ diffusion coefficient in various polymers @200 °C（Courtesy of Kyoto Univ.）

第1章 緒論

CO₂ の拡散係数の樹脂種依存性ならびに温度依存性を次式により表現している。

$$D = \frac{x_2 D_{\text{self}}}{R_g T} \frac{\partial \mu_1}{\partial \ln x_1}, \quad D_{\text{self}} = R_g T A_c \exp \left[\frac{-B_c}{(\hat{V}_{\text{mix}} - \hat{V}_{\text{mix}}^0)} \right] \quad (1-1)$$

ここで、 A_c 、 B_c は定数であり、 D 、 D_{self} は CO₂ と樹脂の相互拡散係数と CO₂ の自己拡散係数 [m²/s]， x_1 、 x_2 は CO₂ と樹脂のモル分率， μ_1 は高分子中の CO₂ の化学ポテンシャル， R_g はガス定数 [J/(mol・K)] である。 $\hat{V}_{\text{mix}}$ 、 $\hat{V}_{\text{mix}}^0$ は樹脂と CO₂ 均質系の比容積とその占有比容積 [cm³/g] を表し、その差 $\hat{V}_{\text{mix}} - \hat{V}_{\text{mix}}^0$ は、CO₂ と樹脂の混合系の自由体積に相当する。すなわち、自由体積の増加にともない、CO₂ の拡散係数 D は増大することを意味している。

拡散により発泡剤となるガスが樹脂に溶け込む場合、樹脂温度の増加にともない、自由体積が増加し拡散係数 D が大きくなる¹⁵⁾。また、発泡剤の樹脂中への物質移動量は、拡散係数と濃度勾配だけではなく、そのガスと樹脂との接触面積の大きさにも依存する、発泡射出成形装置において、射出成形機内で発泡剤であるガスを熔融樹脂に溶解させるときには、その溶解量ならびに溶解速度（物質移動量）は、樹脂種・樹脂温度・接触面積に依存して決まることが、これらの基礎物性データとその予測式からも予測できる。

気泡生成（気液相分離）は、ガスが樹脂に溶解し平衡状態に達した後、減圧あるいは温度上昇により誘起される。現実の生産過程では、減圧・昇温の操作は瞬時には行えないため、気泡の生成の過程と気泡の成長の過程は逐次的に進行していくものではなく、同時に平行して進行する過程となる。相分離には、よく知られているようにスピノード分解と核生成がある。しかし、物理発泡で見られる気泡生成現象は、樹脂中に溶解する気体の濃度が低いことや、工業的に瞬時に高い過飽和度状態を作り出せないことから、よほど特殊な状況を作らない限り、核生成による相分離と考えてよい。この気泡核生成の現象を、物理発泡成形の分野では次式で表されるような古典的核生成理論で解釈・説明されることが多い。樹脂中の気泡生成が古典的核生成理論に従うとして、次のような気泡核生成速度式が提案されている^{9,10,16)}。

$$J = f_0 \left(\frac{2\gamma}{\pi m} \right)^{1/2} \exp \left(\frac{-16\pi\gamma^3 F}{3k_B T \{P_b - P_{\text{poly}}\}^2} \right) N_A \bar{c}$$

ただし、 $P_b < P_{\text{poly}}$ のとき $P_b - P_{\text{poly}} = 0$ (1-2)

J は気泡核生成速度 [(mm³・s)⁻¹]， m は発泡剤の粒子1個当たりの質量，気泡の内圧を P_b [Pa]，気泡の周辺の樹脂に掛かっている圧力を P_{poly} [Pa]，気泡と樹脂の界面張力を γ [N/m] としている。 $\bar{c}$ は樹脂中に溶けている発泡剤の濃度 [mol/m³]， N_A はアボガドロ定数 [mol⁻¹]， k_B はボルツマン定数 [J/K]， T は温度 [K]，また F は気泡核剤と気泡の濡れ角の関数として核剤による効果を表現する濡れ性の因子 [-] である。 f_0 は補正係数 [-] であり、発泡成形のシミュレーションでは、フィッティングパラメータとして使われている^{9,10,16)}。

第1章 緒論

気泡核生成速度 J は、単位体積の樹脂および単位時間当たりの気泡として成長する気泡核の生成数を計算している。係数や $\bar{c}$ への依存性の表現が異なる気泡核生成速度式も提案されているが、提案されているすべての式に共通しているのは、気泡の内圧 P_b と気泡の周辺の樹脂の圧力 P_{poly} の差が駆動力となっており、この差が大きいほど発生する気泡数が大きくなることを関数として表現されている点である⁹⁾。気泡核発生前では樹脂圧 P_{poly} は、気泡内圧 P_b よりも大きく、 $P_b > P_{poly}$ となったとき、過飽和状態となり気泡が生成される。 P_b の値は、溶解している発泡剤の濃度 $\bar{c}$ の平衡圧として決まる。溶解度と圧力の関係がヘンリー則に従うことから、 $P_b = K_H \bar{c}$ と求められる。（ここで K_H はヘンリー定数 [mol/(m³Pa)] である）。

気泡核生成の速度が上式で表現できているとすると、工業的な発泡射出成形機において樹脂内に数多くの気泡を作るには、溶解する発泡剤（ガス）の濃度をできる限り高くし、かつ、大きな圧力差（過飽和度）をガスが溶けている樹脂に与える操作を行う必要がある。その操作を工業的に発泡射出成形機で実現する手法が後述するコアバック法と呼ばれる操作である。

誕生した泡がどのように成長していくかは、半径 R [m] の球形の気泡を想定して、気泡の内外での圧力差と表面張力のバランス式（1-3）^{9,10)}、気泡の成長に伴って気泡の周辺樹脂から気泡内へ拡散により流れ込むガス量と気泡内のガス量のバランスを表現する物質収支式（1-4）^{9,10)}、気泡周辺樹脂におけるガス成分の濃度分布を計算するための拡散方程式（（1-5）式）⁹⁾ の次の3つの式で表現される^{9,10)}。

$$4\eta \frac{\dot{R}}{R} = P_b - P_{poly} - \frac{2\gamma}{R} \quad (1-3)$$

$$\frac{d}{d\tau} \left(\frac{4\pi P_D R^3}{3 R_g T} \right) = 4\pi R^2 D \left. \frac{\partial c}{\partial r} \right|_{r=R} \quad (1-4)$$

$$\frac{\partial c}{\partial \tau} + \frac{\dot{R} R^2}{r^2} \frac{\partial c}{\partial r} = \frac{D}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial c}{\partial r} \right) \quad (1-5)$$

ここで、 η は樹脂粘度 [Pa・s]、 R は気泡半径 [m]、 $\dot{R}$ はその時間微分、 D は物理発泡剤の樹脂内の拡散係数 [m²/s]、 r は半径方向の座標軸を意味する。

最後の気泡安定化（合一・破泡）過程は、構造を固定化・安定化させ、多孔構造をもった材料を取り出すための過程である。液体中にできた気泡は、粘性が低いままでは、気泡同士が合一し巨大化するか破泡してしまう。従って、温度を低下させるなどして気泡構造を材料内で固定化する必要がある。樹脂の物理発泡の場合、樹脂をガラス転移温度以下に温度を下げることで気泡を固定化することが一般的なやり方となる。発泡射出成形装置の場合、金型での冷却過程が固定化操作と考えてよい。図 1-5 の過程を工業的に実施するための装置がプラスチック物理発泡成形装置である。

第1章 緒論

1.1.3 発泡射出成形装置での発泡工程

発泡剤を用いる発泡射出成形機は、バレル先端に取り付けたノズルをシールして発泡による樹脂の噴出を防止するための開閉機構（シャットオフノズル）を装備しているほか、前述した通常の射出成形機（図 1-2）とほぼ同じである。ここでは化学発泡剤を用いる発泡射出成形の成形手順を以下に示す⁸⁾。

1. 計量工程：化学発泡剤を樹脂材料とともにバレル内に供給し、シャットオフノズルを閉じた状態でスクリューを回転させながら樹脂を可塑化させる。これと同時にスクリューを後退させてバレル先端に熔融樹脂を貯留する。この時、化学発泡剤の熱分解により発生したガス（ADCA の場合は、主に N_2 、 CO 、 CO_2 、 NH_3 ）が熔融樹脂中に溶解する。
2. 射出工程：シャットオフノズルの流路を開放すると同時に、スクリューを前進させてバレル先端に貯留したガスが溶解した熔融樹脂を閉鎖した金型キャビティ内に射出し充填する。この際、金型内での熔融樹脂の圧力降下により、熔融樹脂中で過飽和状態になったガスが相分離して気泡が形成される。その後、熔融樹脂中のガス成分が気泡内に拡散して気泡が成長する。樹脂の温度低下により粘度が増加すると、気泡の成長速度が低下し、最終的に樹脂が固化すると気泡成長は停止する。
3. 取出工程：型締めユニットを動作させて金型を開放し、成形品をエジェクタ（製品突き出しピン）で突き出して金型から取り出す。
4. 射出工程における射出後の冷却時間および取出工程の時間を利用して、1.の計量工程を行い、次の成形のための熔融樹脂を準備する。以下、これらの工程を繰り返す。

上記のように、発泡射出成形の操作手順は、発泡剤が樹脂材料に加えられる以外は、通常の射出成形装置と変わらない。ただし、樹脂と発泡剤の混練性の向上、 N_2 や CO_2 が溶解すると樹脂の結晶化挙動やレオロジー挙動が変化することへの対処、一度溶けたガスの相分離を防ぐ必要性から、射出圧・保圧・背圧などの最適操作条件の決定およびスクリュー形状の最適設計は通常の射出成形機のものとは異なり、難しさが生まれてくる。

1.1.4 既存の発泡射出成形法とその課題

発泡射出成形では、熔融樹脂中に溶解したガスにより樹脂の粘度が低下するため、射出工程における射出圧力、金型内圧力を低減できる。また、金型内での発泡により成形品の冷却収縮を補える。そのため、射出工程での保圧が不要で、射出後、即座に次のショットのための計量を開始でき、サイクルを短縮できる。これらにより、発泡射出成形は、製品面では、軽量化、ヒケと反り^{※2}の抑制、プロセス面では、圧力の低減、サイクルの短縮、環境面では使用材料の削減、省エネなどの効果が得られる⁸⁾。しかし、デメリットも

※2：反りとは、固化時の成形品内の圧力分布に起因する残留応力、温度分布や強化繊維などの配向、肉厚分布などに起因する成形品内の冷却収縮量差によって、成形品が変形して形状に歪みが生じる成形不良のことである。発泡射出成形では、保圧工程の省略による残留応力の低減、あるいは発泡による収縮量差の低減により反りを低減できる場合がある。

第1章 緒論

多く、製品表面での発泡による表面性状の悪化（通常は筋状の模様が発生）、気泡構造による強度の低下、化学発泡剤の分解残渣によるリサイクル性の低下などが挙げられる。また、化学発泡剤は分解温度範囲が狭く、成形温度の高いエンジニアリングプラスチック（エンブラ）※³ やスーパーエンジニアプラスチック（スーパーエンブラ）※⁴ に適用できない課題もある（表 1-1）。

Table 1-1 Advantages and challenges of chemical foam injection molding and MuCell process.

項目	化学発泡射出成形	物理発泡射出成形 (MuCell法)
成形品の強度	× 気泡を起因とした破壊により低下	○ 微細発泡により強度低下を抑制
コスト：導入時	○ 標準的な射出成形機を使用	× 特殊スクリーとSCF装置が必要 特にSCF装置が高コスト
コスト：使用時	× 化学発泡剤のコストが高い	○ ガスボンベはコストが低い
適用樹脂	× 化学発泡剤の分解温度で制限 (PP, PEが中心)	○ 幅広い樹脂に適用可能
リサイクル	△ 分解残渣が残るため、発泡成形用 にしかリサイクルできない	○ 成形品内のガスは時間が経てば抜 けるため、リサイクルは可能
法規制	○ 関連法規なし	× 高圧ガス保安法の対象(国内) (年次点検でコスト発生)
環境影響	△ ADCAは欧州のREACH規制対象 (呼吸器疾患の可能性)	○ 通常は不活性ガスを使用

これらの課題の内、表面性状を除く課題を解消する技術として、1980 年代に MIT (Massachusetts Institute of Technology) の Suh 教授のグループにより、高圧の N₂ や CO₂ などの不活性ガスを物理発泡剤とする微細発泡成形技術が開発され^{17,18)}、1998 年には Trexel 社と Engel 社が商業ベースの物理発泡射出成形機 MuCell®（図 1-9）を開発した^{6,8,19)}。物理発泡剤は、化学発泡剤に比べて微細な気泡を生成でき、発泡による強度低下を低減できる。また、汎用プラスチックからスーパーエンブラまで幅広い樹脂に適用できる。さらに、物理発泡剤は発泡残渣が残らないため、ランナーや不合格品の破砕材の再生利用（マテリアルリサイクル）に対応できるなどの利点がある（表 1-1）。以上の利点により、MuCell は、自動車部品、食品容器、大型のコンテナなどで、軽量化、薄肉化などを目的として適用されている⁸⁾。

MuCell 射出成形機は、化学発泡剤を使用する発泡射出成形機と似た構造をしているが、特殊な形状のスクリーと物理発泡剤を供給する装置を持つ点が異なる。スクリーは、上流側の樹脂材料を熔融する部分、および下流側の物理発泡剤を熔融樹脂中に溶解させる部分との大きく 2 つのステージから構成されており、上流側は一般的なスクリー形状を、

※3：使用温度が 100℃を超える耐熱樹脂を総称してエンジニアリングプラスチックと呼ぶ。代表的な樹脂にポリアミド（別名ナイロン：PA）、ポリカーボネート（PC）、ポリエチレンテレフタレート（PET）などがある。

※4：使用温度が 150℃を超える耐熱樹脂を総称してスーパーエンジニアリングプラスチックと呼ぶ。代表的な樹脂に、ポリフェニレンスルフィド（PPS）、液晶樹脂（LCP）、ポリエーテルエーテルケトン（PEEK）などがある。

第1章 緒論

下流側は樹脂と物理発泡剤を混合するためのミキシング構造（図 1-9 の Mixing zone）を用いている。物理発泡剤は、ガスを昇圧してガス供給圧力とバレル内圧（樹脂圧力）との差圧により、ガス注入口（図 1-9 中の Injector）からスクリーンの溶融樹脂中に注入され、ミキシング部において高圧下で樹脂と混練されて溶解する。ガス注入の際、ガスの注入圧力、および Injector の開閉による注入時間の制御によってガス注入量が調整される。物理発泡剤としては不活性ガスである窒素（ N_2 ）や二酸化炭素（ CO_2 ）が主に活用され、それらを臨界圧力以上の圧力にまで昇圧することで高圧のバレル内に物理発泡剤を注入する。そのための物理発泡剤の昇圧および供給量の制御を行う装置を超臨界流体（Supercritical fluid : SCF）製造装置（図中 SCF Unit）と呼称している。成形プロセスは、化学発泡剤を使用する発泡射出成形とほとんど同じであるが、化学発泡剤の入っていない樹脂材料を用い、スクリー回転中にバレルにあけたガス供給口（Injector）から物理発泡剤を供給する点が異なる。

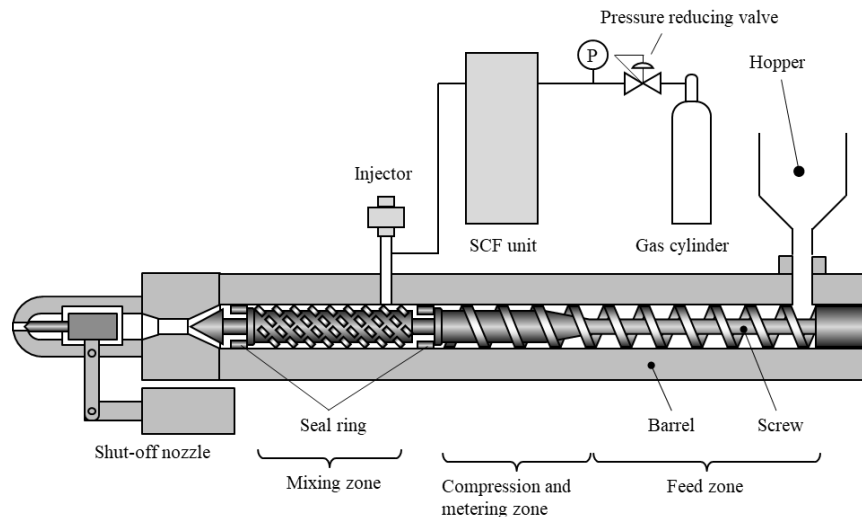


Fig.1-9 Schematics of MuCell machine.

MuCell プロセスは、従来の化学発泡射出成形法の課題を解決できる高い性能を持つが、SCF 製造装置や特殊なスクリーなどの装置構造に起因して成形機の導入コストが高く、普及の阻害要因になっている（表 1-1）。特に日本国内で SCF 製造装置は、高圧ガス保安法の第二種製造設備に該当するため、海外に比べて装置導入コストが高く、かつ法定点検のための維持コストが必要になるなどが理由となって、普及が遅れる要因となっている。また、Trexel 社は物理発泡射出成形により製造した平均気泡径 $100\mu m$ 以下の発泡成形体の特許²⁰⁾を保有していたことから、競合プロセスの参入が阻害されてきた。しかし、2018 年に特許が権利満了したことで、以下に示すように改良プロセスの開発が活発になってきた。

以下に代表的な改良プロセスを紹介する。Wittmann Battenfeld 社の CellMould®技術²¹⁾、および Sulzer Chemtech 社の Optifoam®技術^{6,22,23)}は、図 1-10 に示すようにバレル内の溶融樹脂に直接ガスを供給してスクリーで混合してガスを樹脂に溶かし込むのではなく、バレルとノズルの間にアダプター(図中の点線で囲った部分)を設け、その

第1章 緒論

円筒形の流路に多孔質金属体を通して加圧したガスを分散させて樹脂に注入する装置形状を取っている。樹脂とガスの混合と溶解は、スクリー回転ではなく、トーピード※⁵型のスタティックミキサ※⁶によって流れを調節することで行われる（図 1-10）。Demag 社（現 Sumitomo-Demag 社）の Ergocell® 技術^{6,24,25}も、ノズルから物理発泡剤を供給するという点では同様である（図 1-11）。ガスの注入の安定性を図るために金型とノズルの間にアキュムレータ、スタティックミキサ、ガス供給装置、特殊な射出システムからなる装置を設けている（図 1-11）。ノズル内に物理発泡剤を供給し、ミキサーを用いて熔融樹脂と混合することで物理発泡剤を溶解している。これらのシステムは必ずしも SCF 製造装置のような昇圧装置を必要とせず、物理発泡射出成形を行えるものの、特殊なノズルを必要とし、装置導入コストが高い課題は完全には解決できていない。

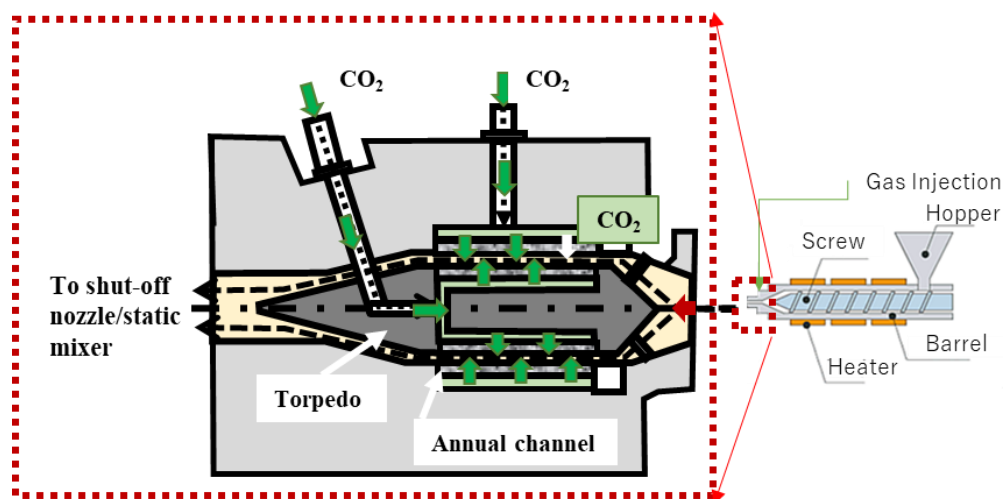


Fig.1-10 Schematic of Optifoam gas injection nozzle.

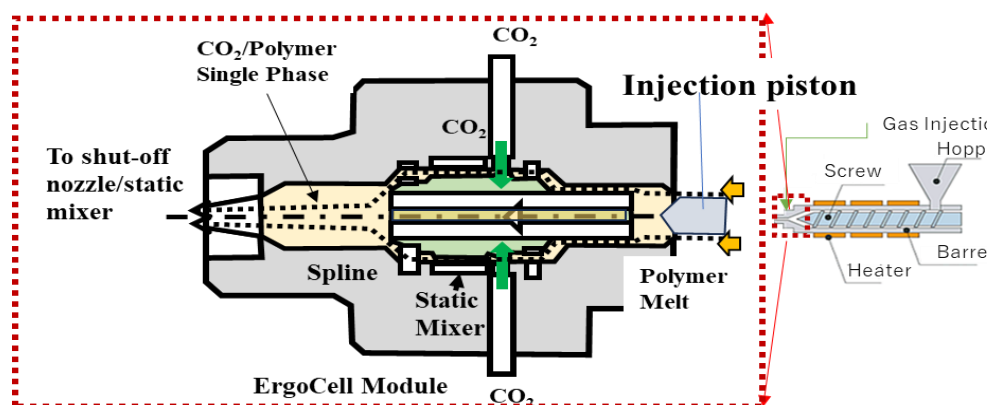


Fig.1-11 Schematic of ErgoCell Module⁶).

※5：形状が魚雷（Torpedo）に似ていることから名付けられた流路の名称。トーピードの周りに複数の細い流路があり、そこを樹脂が通過するようにできている。

※6：回転等の駆動がない静止型の混合器の総称。配管内部に特殊な形状のエレメントを設け、そこに流体を通過させることで、インラインで攪拌・混合ができる。

第1章 緒論

SCF 製造装置を必要とせず、物理発泡剤を含浸した樹脂材料を使用して化学発泡剤と同じプロセスで物理発泡射出成形を行う発泡射出成形装置も考案されている。その一つが次章で述べる京都大学とマクセルと日本製鋼所が開発した RIC-FOAM と SOFIT[®]である (26~28)。

1.1.5 SCF 製造装置が不要な物理発泡射出成形法

高圧ガス製造装置である SCF 製造装置のようなガスの昇圧装置を必要とせず、物理発泡剤を樹脂に溶かして物理発泡射出成形を行う方法として、本論文で研究している装置、次章で述べる RIC-FOAM, SOFIT 以外にもいくつか考案されている。ここで世界的に有名なものをまとめておく。

積水化学工業㈱は、密閉したホッパ内に高圧の N_2 , CO_2 などを供給し、物理発泡剤を拡散させたペレットを材料として用いるバッチ式の成形法を開発した²⁹⁾。その後、IKV (Institut für Kunststoffverarbeitung) は、ホッパにエアロック機構を設け、連続的に材料供給が可能な ProFoam[®]を開発した^{6,30)}。図 1-12 のように中間のシャッターで上下 2 段に分割した密閉式ホッパに高圧のガスを供給し、材料タンクから上段のホッパ内に材料を供給する時でも中間のシャッターを閉じて下段のホッパ内の密閉を保ち、圧力を一定に保ったまま材料供給をすることで連続成形を可能にしている。

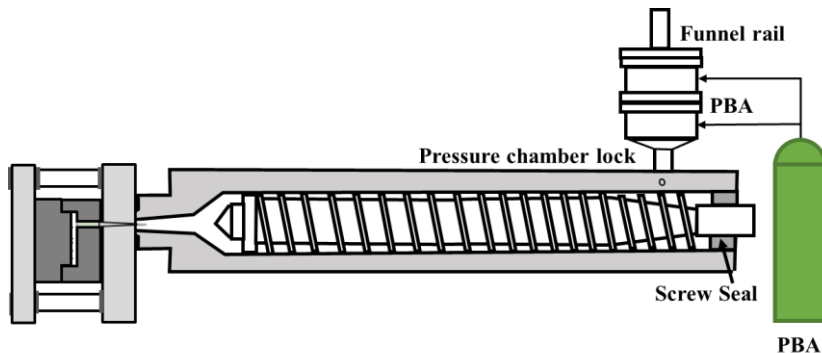


Fig.1-12 Schematic of ProFoam[®] Process⁶⁾.

これらは、ボンベから直接供給可能な数 MPa のガス供給圧力で成形できる。しかし、自由体積空間の小さい固体樹脂における CO_2 などの物理発泡剤の拡散係数 D はオーダー的には 10^{-13} から $10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ と³¹⁾、図 1-8 に示した熔融樹脂における D の 10^{-9} から $10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$ と比べて低く^{11~13,15)}、ホッパ内では樹脂の流動による混合も生じない。そのため、ペレットへの物理発泡剤の溶解には時間がかかる課題がある。そこで、ウィスコンシン大学は、図 1-13 に示すように上流に設けた押出成形機にガスを供給して製造した物理発泡剤を含浸したペレットを、射出成形機で使用する手法を開発した^{6,32,33)}。この方法は、化学発泡剤と同様に標準的な射出成形機で物理発泡射出成形ができるメリットがある。しかし、時間経過とともにペレット中の物理発泡剤が大気中に拡散し、ペレット製造後に徐々に発泡状態が変化するため、品質管理が難しい課題がある³⁴⁾。他にも、㈱ソディックは、樹脂材料を可塑化する押出成形機と、熔融樹脂を計量、射出するアキュムレータとが連結

第1章 緒論

された射出成形機において、アキュムレータ内に物理発泡剤を供給し、ピストンで繰り返し圧縮して溶解させる発泡射出成形プロセスを開発した^{35,36)}。ピストンを後退させて形成した空間に物理発泡剤を供給することで、ボンベ圧力以下の低い圧力で物理発泡射出成形できる特徴がある。また、東洋機械金属㈱は、図 1-14 に示すようにガスの代わりに溶解樹脂中に水，あるいはエタノールを物理発泡剤として使用する発泡射出成形機を開発した³⁷⁾。バレルに液体の注入口があるほかは標準的な射出成形機を使用し，かつ液体を物理発泡剤として用いることで高圧ガス保安法を回避しており，装置の導入コスト，維持コストを低減している。一方で，液体を物理発泡剤とする場合，化学発泡剤やガス（物理発泡剤）を発泡剤とする場合と比べると気泡径が大きくなる課題がある³⁷⁾。

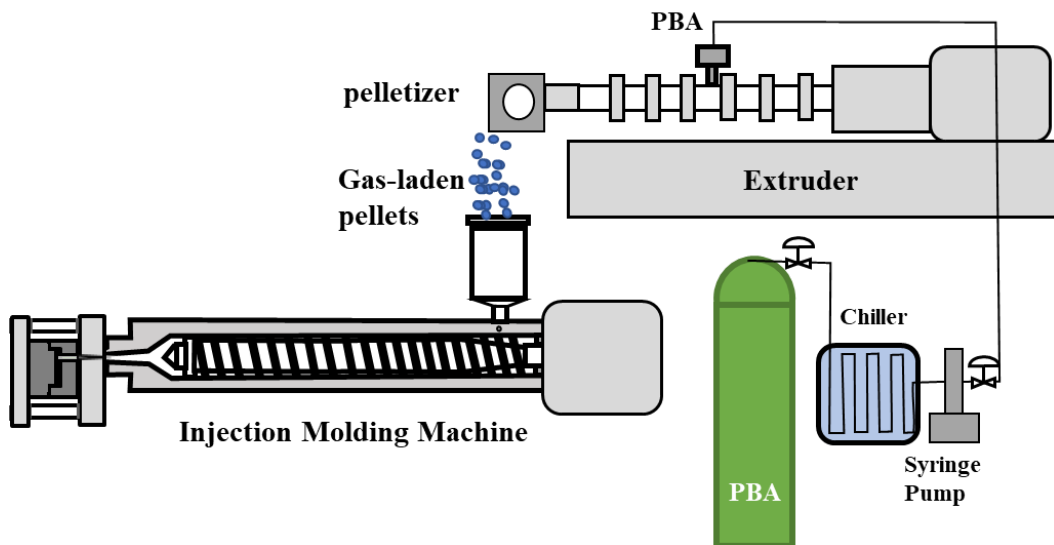


Fig.1-13 Schematic of SCF Gas-laden Pellet extrusion with Injection Molding Machine⁶⁾.

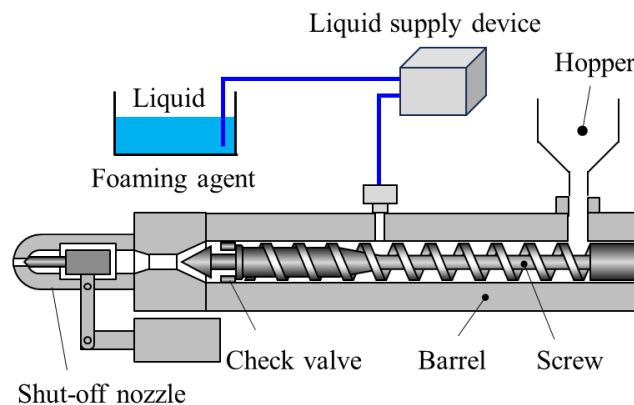


Fig.1-14 Schematic diagram of liquid foam injection molding machine.

1.2 発泡射出成形の型締めユニットにおける発泡挙動の制御法（ショートショット法とコアバック法）

前節で述べたように発泡射出機では，ホッパからノズルまでの可塑化ユニットは，発泡剤となるガスを樹脂に溶解させる（Fig.1-5(a)）ためにある。減圧による気泡生成・成

第1章 緒論

長と固定化 (Fig.1-5(b)から(c)) は、型締めユニットによる金型の操作で行われる。キャビティ内での発泡操作には、次のショートショット法とコアバック法がある。

ショートショット法とは、発泡剤が溶解した樹脂を金型キャビティ内に射出し充填させるときに、キャビティ体積よりも少ない量の樹脂を射出し、発泡で起こる体積膨張で樹脂をキャビティに充填する方法である。保圧を掛けず、樹脂がキャビティ入り口（ゲート）を通るときに起こる減圧で相変化を誘起して発泡させる (図 1-15)。キャビティ内の射出された樹脂の圧力 ((1-2) 式の P_{poly}) が常に P_b より低くなるように射出速度や保圧を低めに設定することが操作条件として重要となる。

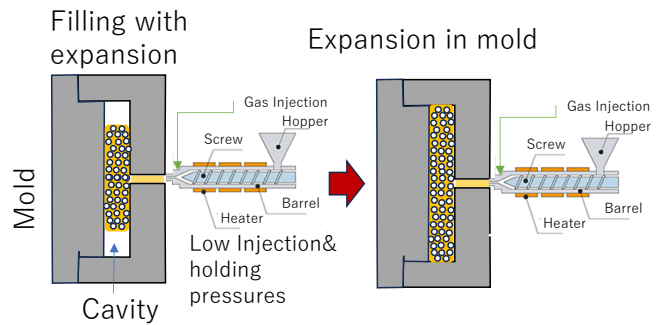


Fig.1-15 Scheme of short-shot method.

一方、コアバック法（モールドバック法ともいう）とは、発泡剤が溶解した樹脂を金型キャビティ内に射出して充填させた後、金型の可動側を作動して、キャビティ体積を広げることで樹脂に掛かっていた圧力を急低下させ、相変化を誘起して発泡させる方法である (図 1-16)。樹脂の充填が完了するまでは、発泡を防ぐために、高い射出圧と高い保圧に射出条件を設定することが重要となる。高倍率の発泡体を射出成形で製造する際には、コアバック法が採用される。図 1-17 はコアバック操作で発泡を行ったときのキャビティ内の樹脂の温度ならびに圧力変化を測定したデータの一例である。金型の一部を動かしキャビティ体積を拡張する（コアバックする）ことにより樹脂圧が急激に低下することがわかる。

コアバックするタイミングを遅くすることにより、キャビティ内の樹脂が金型で冷却されるため温度がより下がることも観察される。そのため、コアバックのタイミングにより、発泡時の樹脂温度（発泡温度）、言い換えるなら樹脂粘度を調整できることになる。

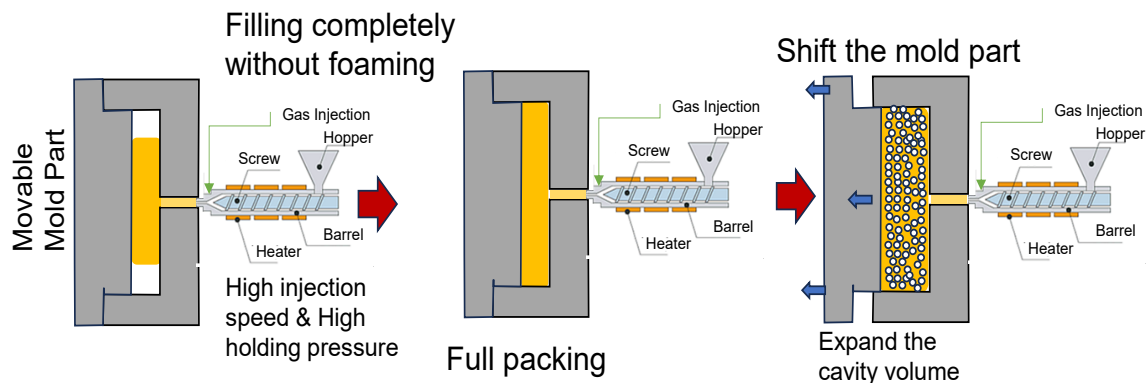


Fig.1-16 Scheme of core-back method.

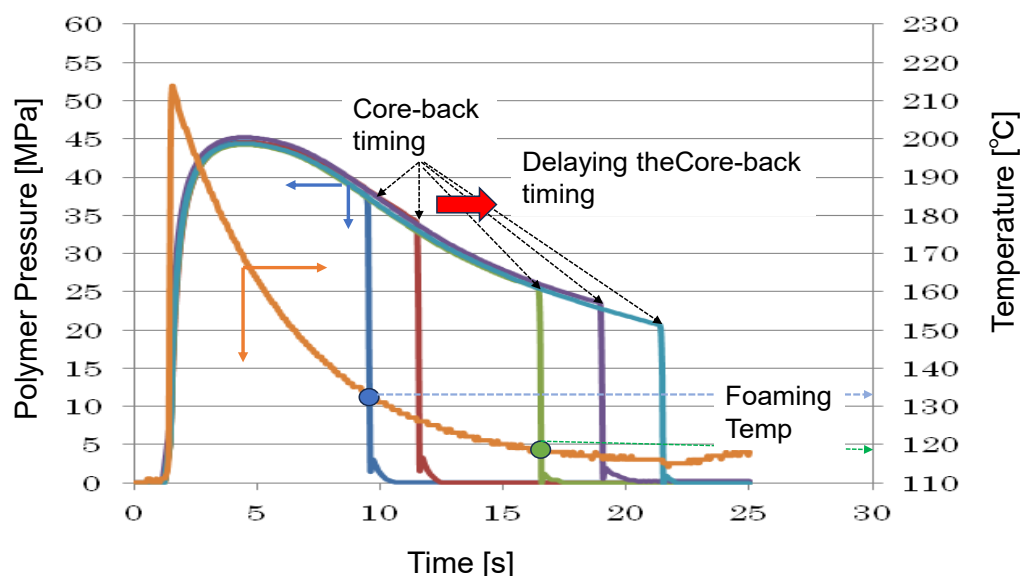


Fig. 1-17 Example of pressure and temperature profiles of polymer injected in mold cavity (PP foam injection molding with core-back operation).

1.3 本研究の目的と本論文の構成

環境負荷の低減や現状のプラスチックの環境汚染の問題から，改めてプラスチックの物理発泡成形が注目を集めている．従来の物理発泡成形で物理発泡剤（ガス）として使われていたフロンガスや代替フロンガスさらにはブタンなどの炭化水素系ガスから CO_2 や N_2 などの不活性でオゾン破壊係数が低く，温暖化係数の低いガスが物理発泡剤として使われるようになってきている．1990 年代に CO_2 ， N_2 を物理発泡剤として活用する発泡射出成形装置（MuCell）が開発され，世界中で展開されてきた．MuCell に代わる射出成形装置の開発も 2010 年ごろより世界で進められてきている．そのような中で国産技術として開発されたのが，京都大学とマクセル㈱が創案し，㈱日本製鋼所が工業的装置として作り上げた，次章で記述する RIC-FOAM，SOFIT®である．発泡射出成形装置は，可塑化ユニットと型締めユニットからなり，型締めユニットすなわち金型内のキャビティにおいて，気泡の生成・成長・固定化が行われ，可塑化ユニットでは，物理発泡剤を樹脂に溶解し発泡剤と樹脂の均相系を形成することが行われている．このことから発泡射出成形装置において，可塑化ユニットにおいて，如何にして発泡剤と樹脂の均相系を形成するかが重要で工夫されるべき点となり，装置設計に独創性が生まれる．

本研究では，まず RIC-FOAM，SOFIT®がどのような機構で，可塑化ユニットで発泡剤と樹脂の均相系を形成しているかを，装置開発の経緯とともに説明し，ガスの樹脂への溶解機構と射出成形機の操作条件との関係を実験的に明らかにした後，その機構のモデリングを試みる．その後，提案するモデルの展開性を評価する上で，型締め力の大きな発泡射出成形装置での実験を行った．

具体的に，本論文では，次のことを明らかにしようとしている：

第1章 緒論

- ・新規開発した装置（RIC-FOAM, SOFIT®）の発泡剤溶解機構と装置設計
- ・NIR法を用いたCO₂濃度測定による成形条件影響の評価とその変動要因の解明
- ・脱揮理論をもとにしたバレル内での物理発泡剤の溶解挙動の数式モデルの提案
- ・スクリー径、および形状の異なるスクリーを用いたスケールアップ時の数式モデルの推算精度・妥当性の検証

この目的を果たすため行った研究の成果を、次のような章構成でまとめている：

第2章では、RIC-FOAM, SOFIT®での発泡剤ガスの溶解機構とスクリー設計についてまとめる。

第3章では、NIR法を用いて、本工法の様々な成形条件下においてCO₂濃度を測定し、その変動要因について考察し、物理発泡剤の溶解メカニズムを検討した結果を報告する。

第4章では、第3章の結果から明らかになった物理発泡剤の溶解メカニズムを元に、ガス溶解の理論モデルを作成して物理発泡剤濃度の解析を行い、第3章で測定したCO₂濃度の実験結果との比較から理論モデルの妥当性を検討した。

第5章では、自動車部品などの分野で要求される直径の大きいスクリーにおける課題を検討するため、第4章で開発した解析モデルを用いてスクリーのスケールアップが物理発泡剤濃度に与える影響を検証した。また、直径が66 mmと大きいスクリーを製作し、物理発泡剤の溶解挙動、および解析の有効性を検証した。さらに、様々なスクリー形状、成形条件下における計算値を実験値と比較し、物理発泡剤濃度との相関性の高い指標を検討した。

第6章は論文の総まとめと今後の展望について述べている。

第1章 緒論

参考文献

1. Agrawala, S. and Monti, N. : *Global Plastics Outlook: Policy Scenarios to 2060*, Chapter 1, OECD Publishing, 21-44 (2022)
2. 長谷代子 : 廃棄物資源循環学会誌, **33** (5), 326 (2022)
3. 尾辻靖貴 : プラスチックタイムス, **138** (11), 3 (2021)
4. 柴田稔 ; プラスチックス, 2022 年 6 月号, 84 (2022)
5. Plastic Portal. eu, : *Thermoplastic Foam Injection Molding*
<https://www.plasticportal.eu/en/%20thermoplastic-foam-injection-molding/c/2416/>
[Accesses 24-Feb.-2023]
6. Ohshima, M., : *Polymeric Foams*, Chapter 8 (edited by Lee, S. T.), CRC Press, 191-205 (2022)
7. Wendle, C. B., : *J. Cell. Plast.*, **13** (3), 178 (1977).
8. Xu, J., : *Polymeric Foams*, Chapter 4 (edited by Lee, S. T.), CRC Press, 91-127 (2022)
9. 瀧健太郎, 大槻安彦 : 成形加工, **18** (3), 205 (2006)
10. Taki, K., : *Chem. Eng. Sci.*, **63**(14), 3643 (2008)
11. 大嶋正裕 : 日本ゴム協会誌, **77** (8), 266 (2004)
12. 滝瀧繁樹 : 日本ゴム協会誌, **77** (10), 336 (2004)
13. Sato, Y., Fujiwara, K., Takikawa, T., Sumarno, Takishima, S., Masuoka, H., : *Fluid Phase Equilibria*, **162**, 261 (1999)
14. Lei, Z., Ohyabu, H., Sato, Y., Inomata, H., Smith Jr., R. L., : *J of Supercritical Fluids*, **40**, 452 (2007)
15. Areerat, S., Funami, E., Hayata, Y., Nakagawa, D., Ohshima, M., : *Polym. Eng. Sci.*, **44** (10), 1915 (2004)
16. Blander, M. and Katz, J. : *AIChE J .*, **21** (5), 833 (1975)
17. Martini, J. E., Waldman, F. A., Shu, N. P., : *SP. ANTEC Technical paper*, **43**, 674 (1982)
18. Shu, N. P., : *Polym. Eng. Sci.*, **38**, 1205 (1998)
19. Xu, J., Methods for manufacturing foam material including systems with pressure restriction element, U. S. Patent 6,322,347 B1, 2001-11-27
20. Pierick, D. E., Anderson, J. R., Cha, S. W., Chen, L., Stevenson, J. F., Laing, D. E., Injection molding of polymeric material, U. S. Patent 6,884,823 B1, 2005-04-26
21. Wittmann-group, <https://www.wittmann-group.com.>, website [Accessed : 24-Feb-2023]
22. Pfannschmidt, O., Michaeli, W., : *SPE ANTEC, Tech. Paper*, 2100-2103 (1999)
23. Habibi-Naini, S., : *Sulzer Technical Review* **86** (2), 10 (2004)
24. Witzler, S.,; *Injection Molding Mag.*, December 80 (2001)

第1章 緒論

25. Berry, M., : *Applied Plastic Engineering Handbook*, (edited by Kutz, M.), Elsevier, Chapter 14, 215 (2011)
26. Wang, L., Hikima, Y., Ohshima, M., Yusa, A., Yamamoto, S., Goto, H., : *Ind. Eng. Chem. Res.*, **56**, 13734 (2017)
27. 遊佐敦：プラスチックスエーじ, **65** (1), 93 (2019)
28. 内藤章弘, 玉田光一, 中島英昭, 上園裕正, 辻和也, 引間悠太, 大嶋正裕：日本製鋼所技法, **70**, 57 (2019)
29. 原田浩次, 河内斉, 平野博之, 志村吏士, 山田英晴, 熱可塑性樹脂射出発泡成形体及びその製造方法, 特開 2002-137246, 2002-05-14
30. Defosse, M., : *Modern Plastics Worldwide*, December 14-15 (2009)
31. 永井一清：日本印刷学会誌, **52** (2), 149 (2015)
32. Lee, J., Turng, L. -S., Dougherty, E., and Gorton, P., : *Polym. Eng. Sci.*, **51** (11), 2295 (2011)
33. Turng, L. S., et al., : US Patent No. 9,630,346 B2, (2017)
34. Sun, X., and Turng, L. S., : *Polym. Eng. Sci.*, **54** (4), 899 (2014)
35. 株式会社ソディック, 久保義一, 射出装置, 射出装置のガス溶解方法および射出装置のプログラム, 特許第 6719634, 2020-06-18
36. 株式会社ソディック, 久保義一, 射出装置, 射出装置のガス溶解方法および射出装置のプログラム, 特開 2021-75037, 2021-05-20
37. 井上玲, 松尾明憲, 町屋龍乃佐：成形加工, **34** (12), 453 (2022)

第1章 緒論

付録 成形に関する専門用語の注釈

可塑化	熱可塑性樹脂などのペレット状の固形原料に熱を加えて溶融させて流動性を上げることという
可塑化ユニット	熱可塑性樹脂などに熱を加えて溶融させていくスクリーゾーンや装置部分という
ホッパ	樹脂材料（ペレット）を溜めてバレル内に供給する容器をいう
バレル	シリンダーとも呼ばれ成形機においてプランジャーまたはスクリーを内蔵するための円筒状のハウジングのことをいう．
金型	分割面（パーティング面）にある成形品の形状の空洞部（キャビティ）に溶融樹脂を流し込んで冷却して固める機能を持つ一対の金属製の型．ノズル側を固定側，ノズルと反対側を可動側という．
キャビティ	射出成形用の金型において成形品に該当する空間部分．
ランナー	ノズルから金型内に射出した樹脂が通るキャビティ入口までの流路，あるいは流路内で固化した樹脂をいう．本論文では流路内で固化した樹脂を示す．
型締めユニット	金型を開閉するための装置をいう．可動盤と固定盤からなり，可動盤を動かすことにより，金型の開閉を行う．
型締力	射出充填した溶融樹脂材料の圧力に対抗して金型を閉じておくために金型に加える力．
スクリー	成形機のシリンダー（バレル）内において回転させるスパイラル状の溝又はねじ山が切ってある棒状の部品
計量	射出する所定量の樹脂を，スクリーを後退させることにより測る操作をいう．シリンダーの径とスクリーの後退距離により射出する（計量される）溶融樹脂量が決まる．
計量部	スクリー形状において，先端部のねじ溝の深さが一定の部分という．溶融樹脂の流動性を安定化させる目的の部分とされる．
シャットオフノズル	射出成形機において流路にバルブを設けて開閉操作できるノズルのことをいう．その機能は，1)射出完了後に流路を閉じ，次の射出までの間に樹脂がノズルから流出するのを防ぐとともに，2)金型キャビティ側から，樹脂が逆流するのを防ぐ．3)射出時に流路を開き，射出する溶融樹脂を金型内のキャビティに流せるようにする．
エジェクタ	突出装置とも呼ばれ，キャビティ内で冷えた樹脂を金型から取り出すための操作を行う装置．通常，数本の棒状のピン（エジェクタピンと呼ぶ）を可動側から突き出すようにして成形品を排出する．
保圧	射出が完了して次の計量が始まるまでの間，スクリーを前進させて一定圧力をかけることをいう．金型のキャビティに充填された樹脂が時間の経過とともに冷却されて密度が上がり，収縮して金型から離れるのを防ぐためである．ひけや反りを防ぐ目的でもある．
射出圧	スクリーを前進させて溶融樹脂を射出するときのスクリー先端部にかかる圧力をいう．
背圧	スクリーが回転する計量中に成形機のスクリー先端に発生する溶融樹脂の圧力のことをいう．
化学発泡剤	バレル内の樹脂中に分散させて，熱分解，あるいは化学反応により気体を発生させるものを化学発泡剤という．発泡射出成形では，炭酸水素ナトリウム（重曹），ADCA が良く使われている．
物理発泡剤	発泡成形に用いるガスや揮発性の高い物質で，温度変化や圧力変化で相分離して気泡を形成するものを物理発泡剤という．フロン系や炭化水素系が使用されてきたが，近年はN ₂ やCO ₂ が使われている．

第 2 章

低圧発泡射出成形機的设计開発

第2章 低圧発泡射出成形機的设计開発

2.1 緒言

環境負荷の低減，現状のプラスチックの環境汚染の問題から，材料使用量が軽減できるプラスチックの物理発泡成形が改めて注目を集めている．第1章で述べたように，工業的なプラスチックの発泡成形法には，気泡形成に供する気体の発生方法の観点から化学発泡法と物理発泡法がある．物理発泡法は，気体の発生に化学反応が伴わない手法であり，気体そのものや揮発性の高い物質を樹脂に溶解させた後，温度変化や圧力変化で相分離を誘起させ，溶解していた気体や物質を気化させて気泡を樹脂中に形成する手法である．従来，物理発泡成形における物理発泡剤（ガス）としては，フロンガスや代替フロンガス，さらにはブタンなどの炭化水素系ガスが使われてきた．しかし，1990年代にMITが開発した発泡射出成形装置（MuCell®¹⁻³⁾）が上市され，欧州，米国，中国などを中心に世界中に展開されたのを契機に，窒素（N₂）や二酸化炭素（CO₂）などのオゾン破壊係数が低く，温暖化係数の低いガスが物理発泡剤として広く使われるようになっていく．近年ではプロセスコストの低廉化を図った発泡射出成形装置の開発として，第1章で紹介したように，Optifoam®^{1,4,5)}，ErgoCell®^{1,6,7)}，ProFoam®^{1,8)}などの装置も開発されている．京都大学とマクセル(株)が考案し，日本製鋼所が設計製造したRIC-FOAM®（Resilient & Innovative Cellular FOAM）^{1,9-13)}も同様にSCF装置が不要な発泡射出成形プロセスである．

2.2 超臨界流体の溶媒和効果を利用した添加物の微細分散装置の開発

装置開発の当初は，発泡成形を行う装置開発を企図したわけではなく，超臨界流体の溶媒和効果を利用した金属錯体の樹脂添加を目的とした，添加物の樹脂への微細分散装置の開発であった．具体的には，まずCO₂が超臨界状態で，金属錯体をはじめとする低分子を溶かし込める特徴を生かし，無電解メッキの触媒になるパラジウム(Pd)錯体を超臨界CO₂に圧力容器内で溶解させる^{14,15)}．その後，その流体を射出機のパレルに注入して樹脂中に溶解させ，樹脂と加熱混練し，金属錯体を還元させ，溶媒として活用したCO₂をベント孔（図中赤い容器）から射出成形機外に排気させ，表面に還元されたパラジウム触媒が存在する成形品を射出成形により製造し，最後にメッキ浴槽で無電解Ni-Pメッキを実施する（図2-1）¹⁵⁾．これら一連の操作を実施するための添加物の樹脂への微細分散装置を開発した．

樹脂を金型に射出する前にCO₂を除去するためには，樹脂に溶解していたCO₂を減圧して相変化させて気化させて気体としてベント孔から放出する，いわゆる脱揮機構を装置に組み込む必要があった．そのために，スクリーは，ホップ側から順に，樹脂を可塑化する可塑化ゾーン（図2-2中のzone A），金属錯体が溶解した超臨界CO₂を熔融樹脂に注入し，混練して物理発泡剤を溶解させる混練ゾーン（図2-2中のzone B），スクリー溝深さが深く，流路体積の増加により樹脂が飢餓状態（非充填状態）になるようにし，パレル内の樹脂圧力を低下させるとともに，ベント口より過剰な物理発泡剤を放出する減圧ゾーン

第2章 低圧発泡射出成形機的设计開発

(図 2-2 中の zone C), 溝深さが浅く, 樹脂を充満状態にしてスクリー先端の圧力を設定圧まで昇圧させる昇圧ゾーン (図 2-2 中の zone D) の 4 ゾーンから構成されるものを設計した。

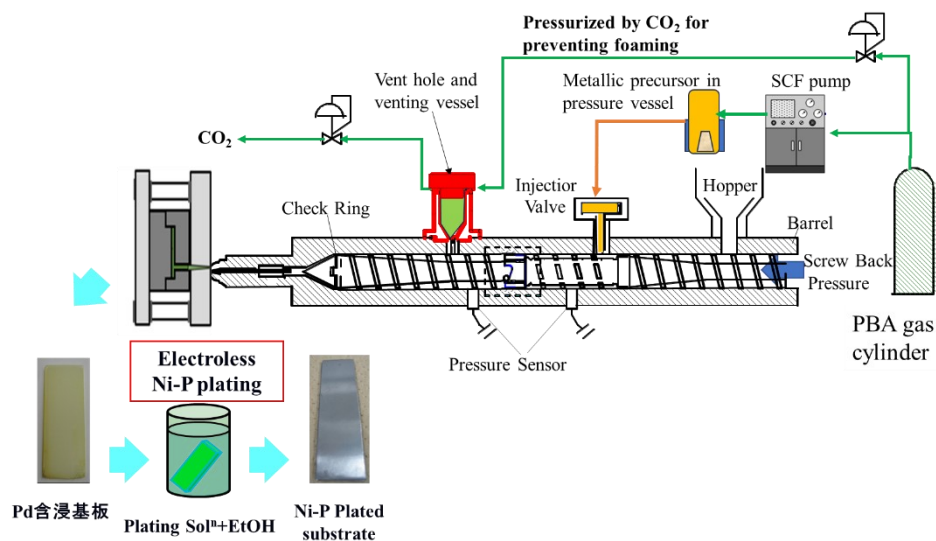


Fig.2-1 SCF-CO₂ assisted electroless plating.

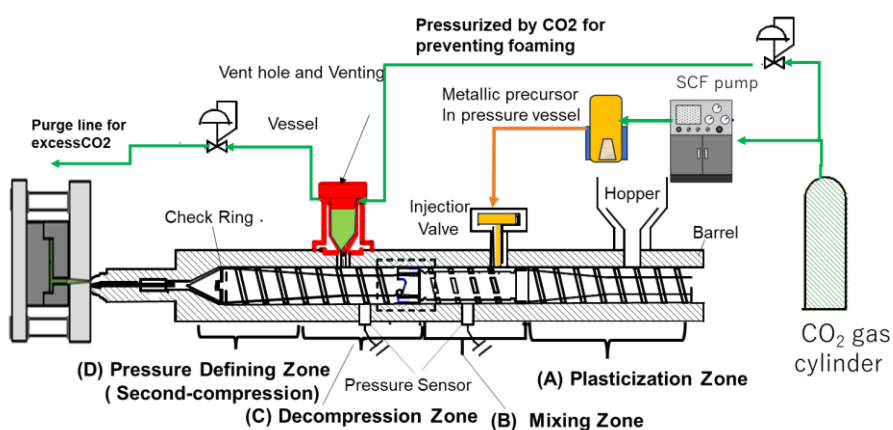


Fig. 2-2 Four zones screw design for forming a polymer-starvation zone.

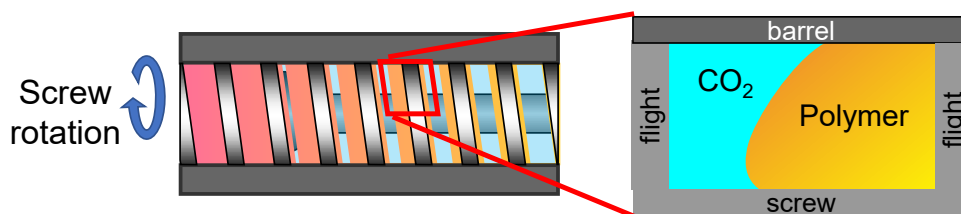


Fig.2-3 Schematic view of polymer-starvation zone

このとき樹脂が飢餓状態 (非充満状態) になる状態のイメージ (Zone C) を図 2-3 に示す。スクリー溝内の樹脂は非充満状態で, 樹脂がない空間は大気圧で, 樹脂はせん断により流動する。しかし, Zone B では, 樹脂に超臨界状態の CO₂ を溶解させるために高压であり, Zone C で高压状態の樹脂が急減圧されると, CO₂ と熔融樹脂が相分離を起こして樹

第2章 低圧発泡射出成形機的设计開発

脂が発泡してしまう。発泡すると樹脂の見かけの体積が増大し、ベント孔から樹脂までも流出してしまう現象（ベントアップと呼ぶ）が起こる。ベントアップを防ぐために、ベント孔があるベント圧容器（図 2-2：赤色容器）を CO_2 で加圧する改良を行った。しかし、この加圧により樹脂に溶解した CO_2 を完全に樹脂から除去できなくなり、金型内で射出成形品に気泡が発生する状況となる。すなわち、原理的に発泡と添加物の微細分散機能を分離できなかった。このため、樹脂中に金属錯体を微細分散させ、発泡成形品に無電解 Ni-P メッキを施すことはできたものの^{14,15)}、超臨界流体の溶媒和効果を利用した添加物の微細分散装置としての開発は失敗に終わった。

しかし、超臨界 CO_2 の注入バルブを閉じて、ベント孔を加圧した状態で射出成形を行う誤操作下で行った実験でも、金型内に射出した成形品が発泡したときがあった。この実験結果から、超臨界流体の溶媒和効果を利用した添加物の微細分散装置としてではなく、逆に、ガスを昇圧せずにベント孔から樹脂が飢餓状態である Zone C に CO_2 を導入し樹脂を金型で発泡させる発泡射出成形装置としての可能性を感じ、改良と設計に取り組むこととなった。

2.3 低圧発泡射出成形機の開発（第一世代の RIC-FIM（Resilient Innovative Cellular Foam Injection Molding^{1,9,11)}）

微細分散装置を発泡射出成形用に改良した成形機のプロット図を図 2-4 に示す^{1,9,11)}。樹脂飢餓ゾーンを Zone C で形成するためにスクリュウ形状は 4 ゾーン方式を継承している。物理発泡剤として CO_2 と N_2 を想定し、MuCell 装置や図 2-1, 2-2 の微細分散装置のように SCF 製造装置（高圧ガス発生装置）を装備せず、物理発泡剤をガスボンベから昇圧せずに直接に射出成形機に導入している点が既存のものとの大きな違いである。初号機では、どれだけの物理発泡剤を樹脂に溶かし込めるか見当がつかなかったため、注入バルブ（Injector Valve）と元ベント孔の 2 か所から物理発泡剤を注入できるように設計した。混練ゾーン Zone C に供給する物理発泡剤は流量制御されていないため、供給圧力で樹脂中に溶解する物理発泡剤の濃度を調整する。この溶解挙動の解析とモデリングは、本論文の主題の一つであり、後の章に研究結果をまとめている。注入バルブから導入した物理発泡剤が Zone B で溶けきれずに Zone C に流れてくる場合を想定し、物理発泡剤の供給配管は、減圧調整弁（図 2-4 の Back pressure regulator）に繋げ、配管内の圧力が設定圧力以上に増加したときに、余分な物理発泡剤をベント孔から減圧調整弁を介して放出する設計とした。

この装置設計で、次のステップの操作（図 2-5）^{1,9,11)}で発泡射出成形品を作製した。

Step 1 （計量）：スクリュウを正回転させながら後退させて、スクリュウ背圧をかけながら射出成形に必要な容積の樹脂を可塑化し計量する。

第2章 低圧発泡射出成形機の設計開発

- Step 2** (注入バルブからのガス注入) : 計量の途中で、スクリーを所定の時間だけ逆回転させて樹脂を逆流させ、生じた空間に注入バルブからガスをポンペ圧力以下の低圧で供給する。
- Step 3** (計量の完了) ; スクリューを正回転に戻し、混練ゾーン (Zone B) で物理発泡剤を樹脂中に拡散・溶解させるとともに、計量を完遂する。
- Step 4** (射出) : 物理発泡剤が溶解した樹脂を金型内に射出し発泡させる。

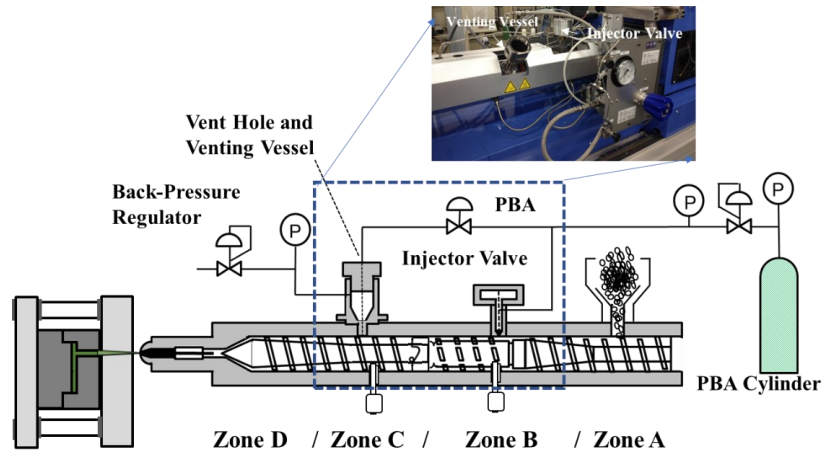


Fig. 2-4 Schematics of RIC-FIM -I

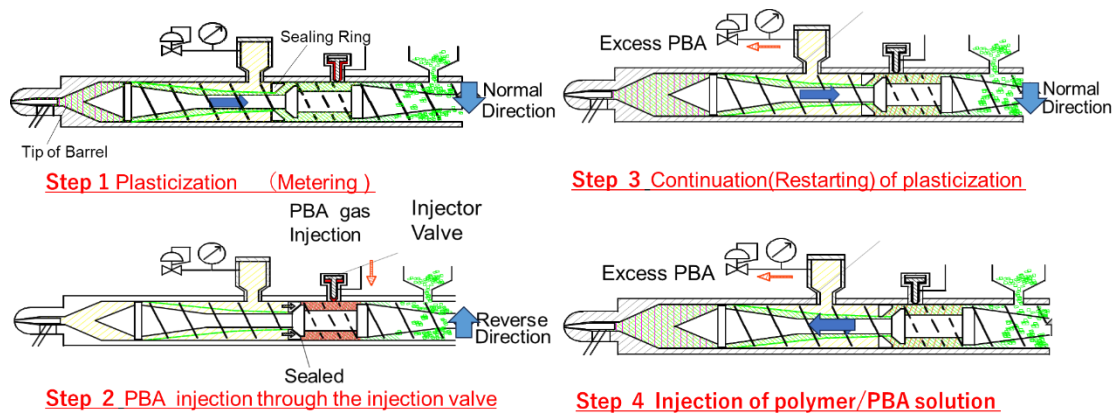


Fig. 2-5 Operation Sequence of Low-Pressure Foam Injection Molding (RIC-FIM I) ⁹⁾

この間、Zone C では、常に樹脂は非充填状態になっているため、元ベント孔から導入された CO_2 や N_2 は、そのガスの導入圧により樹脂と図 2-3 に描かれるように接触し、樹脂に溶け込んでいく。

Step 1 から Step 2 のスクリーを正回転から逆回転に移行する際に、Zone C から Zone B へ物理発泡剤や樹脂が逆流する可能性がある。これを防止するために図 2-6 のようにスクリーの Zone B と Zone C の間にシールリング (図中青色) を装備している : 正回転のとき (Step 1 と Step 3) は、リングがメカニカルな機構 (図中○で表されるピンの位置) で左側にスライドしスクリーとバレルの間にクリアランスが生まれ、そこから可塑化された樹

脂が先端にせん断力で流れて行く（図 2-6(a)）．逆回転操作に移ったとき，シールリングが右側にスライドし，スクリーとバレルの間のクリアランスを閉じ，樹脂と物理発泡剤の逆流を防ぐようにしている（図 2-6(b)）^{1,9)}．

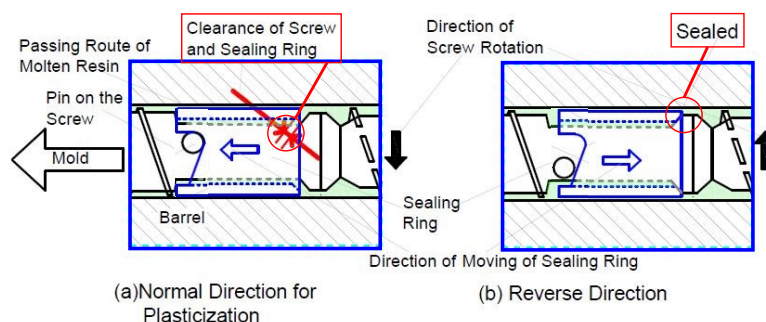


Fig. 2- 6 Movement of Sealing Ring to Control Polymer and Gas flows⁹⁾

図 2-7 は，開発した装置（RIC-FIM I : J35AD-AD30H, 日本製鋼所（株））で，結晶核剤（Gel all MD, 新日本理化（株））を 0.5 wt. % 添加したポリプロピレン（F133A, プライムポリマー（株））を材料として，CO₂ と N₂ を使用し，コアバック発泡法により発泡温度を調整して発泡射出成形し^{1,9)}，得られた発泡体のセル（孔構造）を観察した SEM 写真である．このときの成形実験条件を表 2-1 に示す．注入バルブおよび元ベント孔からの物理発

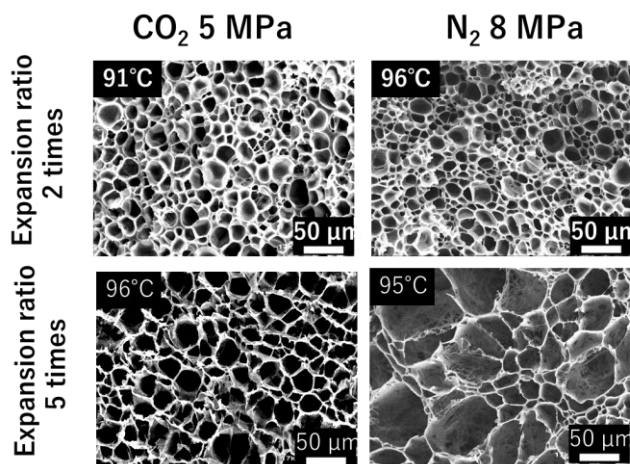


Fig. 2-7 Cell Morphology of iPP(F133A)/MD(0.5 wt.%) foams using CO₂ or N₂ as a physical blowing agent (upper-left corner of each image: foaming temp) .

かについては，本論文の後章で解析している．図 2-7 に示すように，CO₂，N₂，いずれのガスでも発泡倍率 2 倍と 5 倍の微細発泡体が成形できている^{1,9)}．

しかし，この 4 ゾーンから構成されるスクリーは，全長が長くなり，成形機の設置面積が大きくなるなどの課題があった．

泡剤の導入圧力は，CO₂ と N₂ を昇圧せずにそれぞれ 6 MPa (CO₂) と 8 MPa (N₂) で，ガスボンベの圧力をレギュレーター（減圧弁）によって調整している．スクリー背圧は，Zone D での相分離を防ぐために導入圧よりも高い 11 MPa に設定している．この背圧の設定が Zone C での物理発泡剤の溶解機構にどのような影響を与えているの

第2章 低圧発泡射出成形機的设计開発

上記の実験に加えて、注入バルブから Zone B に物理発泡剤を導入せず、ベント孔であったところのみから CO₂, N₂ を供給して一定ガス圧力で加圧するだけで発泡成形できるかを検討した¹⁾。図 2-8 は、そのとき得られた発泡体のセル（孔構造）を観察した断面 SEM 写真である。2 倍発泡では十数 μm の、5 倍発泡では 25 μm 前後の微細な空孔を有する発泡体が成形できている。また、同じガス種での発泡では導入ガス圧力が大きいほど気泡径が小さくなっていることがわかる。さらに、N₂ で発泡倍率が高い発泡体を作製するには、より高い圧力で供給する必要があることが明らかになった。

Table 2-1 Processing condition of low-pressure foam injection molding (RIC-FIM I)

Manipulated Variable	Setpoint Value	Manipulated Variable	Setpoint Value
Gas delivery pressure [MPa]	6 (CO ₂) 8 (N ₂)	Back pressure [MPa]	11 (CO ₂ & N ₂)
Metering period [s] (Step 1 and 3)	2 (Step1) & 19 (Step 3)	Screw rotation speed [rpm]	100 (@Step 1 and 3) 10-15 (@Step2)
Gas dosing period[s] (Step 2)	0.5-1.0	Injector valve opening period	0.1 (CO ₂) 0.1-0.2 (N ₂)
Injection speed [mm/s]	200	Barrel temperature Zone A to D	60, 190, 220, 230, 210, 200, 200, 200, 200
Holding pressure [MPa]	30	Mold Temp. [°C]	40
Core back time [s]	6.8-7.9	Core back rate [mm/s]	20

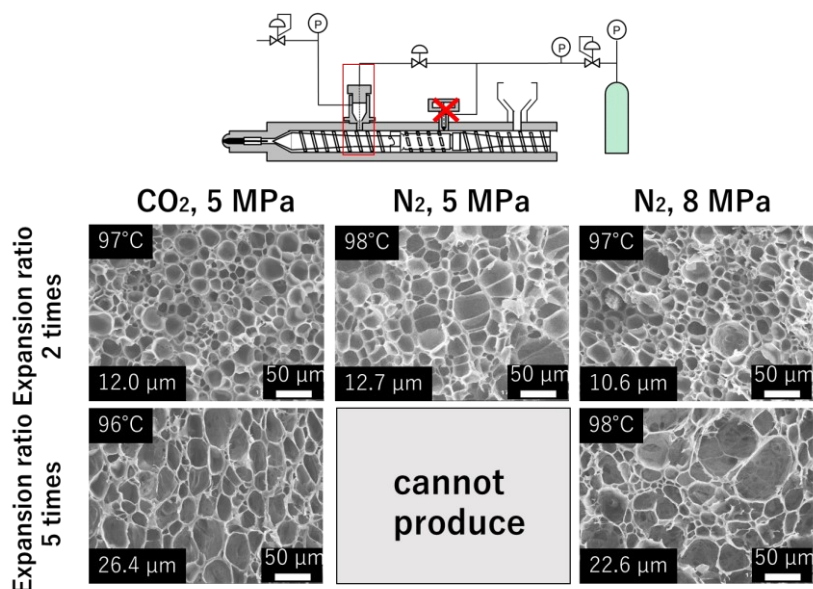


Fig. 2-8 Cell Morphology of iPP(F133A)/MD(0.5wt.%) foams without using physical blowing agent delivery from the injector valve (upper left corner of each image: foaming temp. lower-left corner: average cell diameter) .

この実験結果は、元ベント孔からの物理発泡剤の供給で微細発泡体が成形できると、さらには、スクリー回転を正逆切り替えることが必要ないこと、Zone B のガスと樹脂の混練部が不要であることを示している。これらの実験事実を踏まえて、スクリー長を短縮した次節で述べる第二世代の RIC-FOAM が生まれた。

2.4 低圧発泡射出成形機の開発 (第二世代の RIC-FIM (RIC-FOAM))^{1,10~12)}

図 2-9 は、前節の実験結果を踏まえて、設計した第二世代の発泡射出成形機の概略図である^{1,10~13)}。第二世代の発泡射出成形装置は、RIC-FIM-Iの混練ゾーン (Zone B) を、樹脂とガスを混練する目的から熔融樹脂を圧縮して樹脂圧を上げることを目的に変更して設計し、シーリングも除去しスクリー長さを短くした 2 段圧縮式のスクリーを用いている^{10~13)}。スクリーのガス供給部 (Zone C) は上流側 (Zone B) に比べて溝深さが深く、空間体積が大きくなっており、上流で可塑化された熔融樹脂が飢餓状態となる非充填領域 (図 2-3) を形成し易い設計としている。

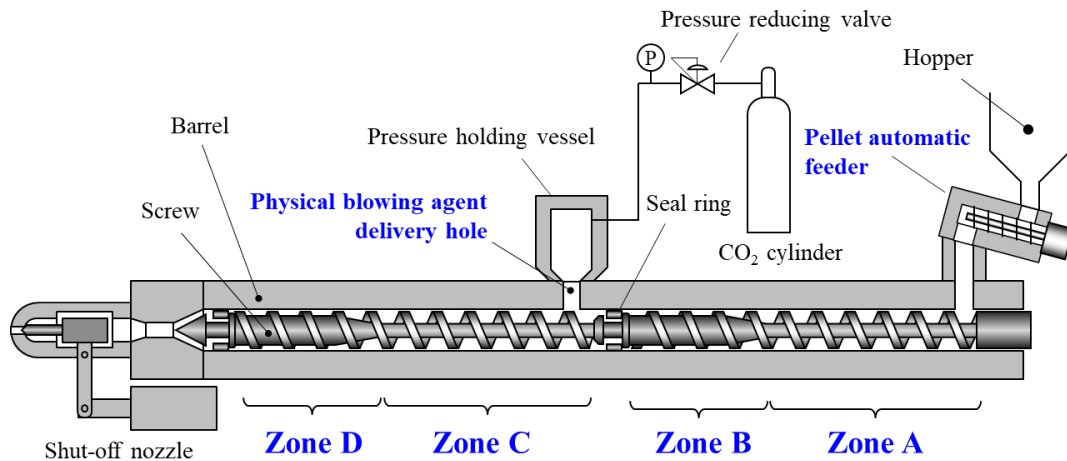


Fig. 2-9 Schematic diagram of the second generation of RIC-FIM

同じタイプのスクリーを用いるベントタイプ射出成形機のパレル内の可視化画像を図 2-10 に示す¹⁶⁾。非充填領域 (図中(b)のベント領域) においては、熔融樹脂はスクリー溝の流動方向とは逆側の押側フライト (Active flight と呼ぶ) に押付けられて、Active flight に沿って下流に樹脂が流れている姿が観察されている。このことから、本射出成形装置において熔融樹脂が非充填状態の Zone C を流れる状況を図 2-11 のようにモデル化した¹³⁾。図 2-11 は熔融樹脂の流れを描いており、スクリーの回転で誘起されるパレル壁面で起こるせん断力により、パレル近傍では引き側フライト (Passive flight と呼ぶ) から Active flight 方向への流れが起こる。この流動で Active flight に樹脂が押し付けられるため、Active flight で樹脂圧力が立ち、スクリーの溝底近傍では Active flight から Passive flight に向けた流動が起こる。この二つの流れにより、スクリー軸方向の断面では、図に描くように熔融

樹脂内で旋回流が生じる．この流れとともに，**Active flight** に沿って下流側（**Zone D**）に向かう流動もスクリー回転により生じる．本発泡射出成形装置では，非充填領域の気相空間を N_2 あるいは CO_2 などの物理発泡剤を昇圧せずにポンベ圧より低い圧力で充填させ，溶融樹脂界面から樹脂の循環流動を利用して物理発泡剤を拡散・溶解している．

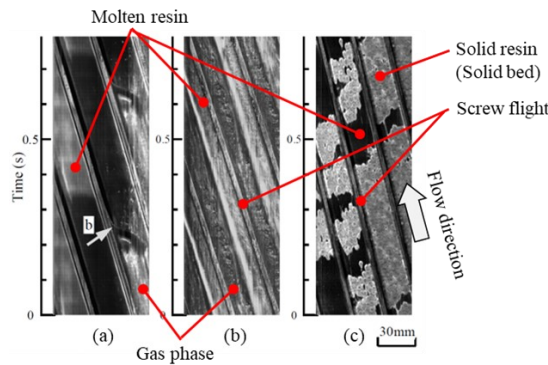


Fig. 2-10 Visual observation of resin inside the barrel of a vent-type injection molding machine (a) the tip of the vent zone of the screw, (b) the core of vent zone of the screw, and (c) the plasticization zone of the screw ¹⁶⁾.

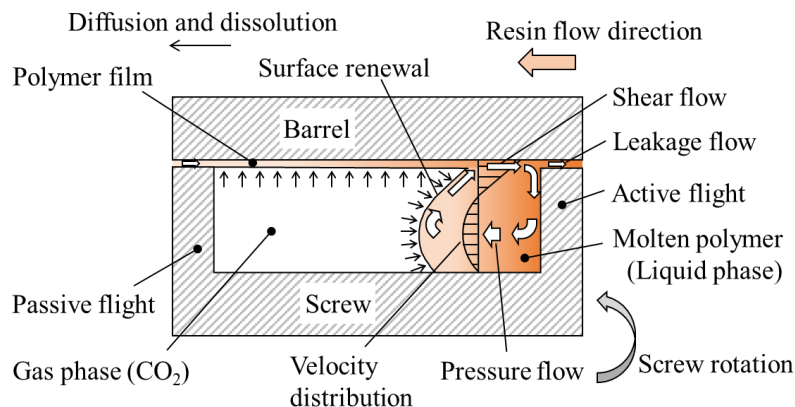


Fig. 2-11 Polymer flow in the polymer-starvation zone of the screw channel of RIC-FOA (SOFIT).

非充填領域における溶融樹脂の量は，定量フィーダ（図 2-9 中の **Pellet automatic feeder**）でバレル内に供給する樹脂の供給速度を調整して制御する．物理発泡剤の供給は，ガス供給圧力で操作するため，**SCF** 製造装置は不要で，第一世代の **RIC-FIM** の特長を継承し，従来技術の課題であった装置コストの低減を果している．この装置の成形ステップは，図 2-5 の第一世代の装置の成形ステップの **Step 2**, **3** が不要で，次のように単純なものとなる．

第2章 低圧発泡射出成形機的设计開発

Step 1 (計量) : スクリューを正回転させながら後退させて、スクリュー背圧を掛けながら射出成形に必要な容積の樹脂を可塑化し計量する。

Step 2 (射出) : 物理発泡剤が溶解した樹脂を金型内に射出して発泡させる。

この改良装置 (RIC-FOAM : J35AD-AD30H, 日本製鋼所 (株)) で、材料として結晶核剤 (Gel all MD, 新日本理化学 (株)) を 0.5 wt. % 添加したポリプロピレン (F133A, プライムポリマー (株)) を、物理発泡剤として CO₂ と N₂ を使用し、コアバック発泡法により微細発泡体を成形した。得られた発泡体のセル (孔構造) を観察した SEM 写真を図 2-12 に、このときの成形条件は表 2-2 に示す。第一世代の装置同様に、特殊なスクリュー正逆回転切り替え操作をすることなく、ポンベ圧以下のガスを使って微細発泡成形体が作成出来ている^{1,10~13)}。

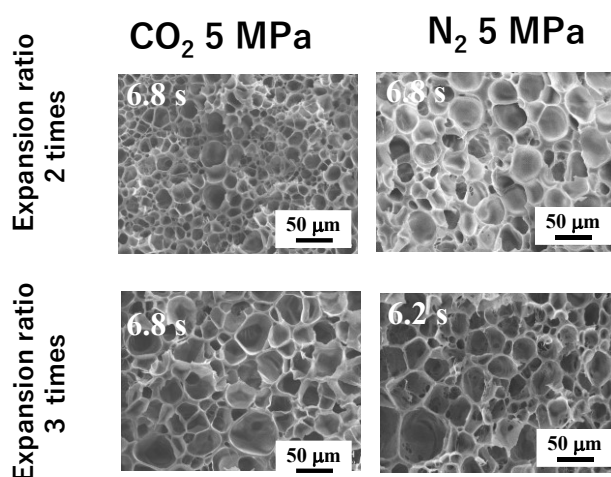


Fig. 2-12 Cellular Structure of iPP/MD (0.5wt%) at different expansion ratios using CO₂ or N₂ as a physical blowing agent.

Table 2-2 Processing condition of low-pressure foam injection molding (RIC-FIM I)

Manipulated Variable	Setpoint Value	Manipulated Variable	Setpoint Value
Gas delivery pressure [MPa]	5 (CO ₂ , N ₂)	Back pressure [MPa]	11 (CO ₂ & N ₂)
Injection speed [mm/s]	200	Barrel temperature Zone A to D	60, 190, 220, 230, 210, 200, 200, 200, 200
Holding pressure [MPa]	30	Mold Temp. [°C]	40
Core back time [s]	6.2-8.0	Core back rate [mm/s]	20

2.5 装置の性能実証試験 (種々の物理発泡剤を使用した微細発泡成形体の作成)

我々は、物理発泡剤を昇圧して供給する必要がない本装置 (RIC-FOAM : J35AD-AD30H, 日本製鋼所 (株)) の特長を生かして、N₂, CO₂, アルゴン (Ar), およびヘリウム (He) を物理発泡剤として供給し、ガス供給圧を 5 MPa と同一にし、材料として先と同様に結晶核剤 (Gel all MD, 新日本理化学 (株)) を 0.5 wt. % 添加したポリプロピレン (F133A, プライムポリマー (株)) を使用し、コアバック発泡法により微細発泡体の作成実験を行っている。

る．成形条件は物理発泡剤の種類とコアバック時間以外は表 2-2 と同じ成形条件としている¹⁷⁾．得られた発泡体のセル（孔構造）を観察した SEM 写真を図 2-13 に示す．

図 2-14 は，それぞれのガス圧 4.8 MPa，200 °Cでの iPP(F133A)への溶解度のデータである¹⁷⁾．圧力容器に一定量の樹脂試料を入れ，容器を所定のガスで 4.8 MPa に加圧し 200 °C に 1 時間保ち，圧力をかけたまま急冷して，試料を発泡させずに取り出し，処理前後の重量差から溶解したガス量を測定した（重量法）．この重量法は，溶解度に関して磁気浮遊天秤ほどの絶対精度はないが，相対的な比較はできると考えている．He については，溶解度が低すぎて重量差に現れず，この手法では溶解度は測定できなかった．

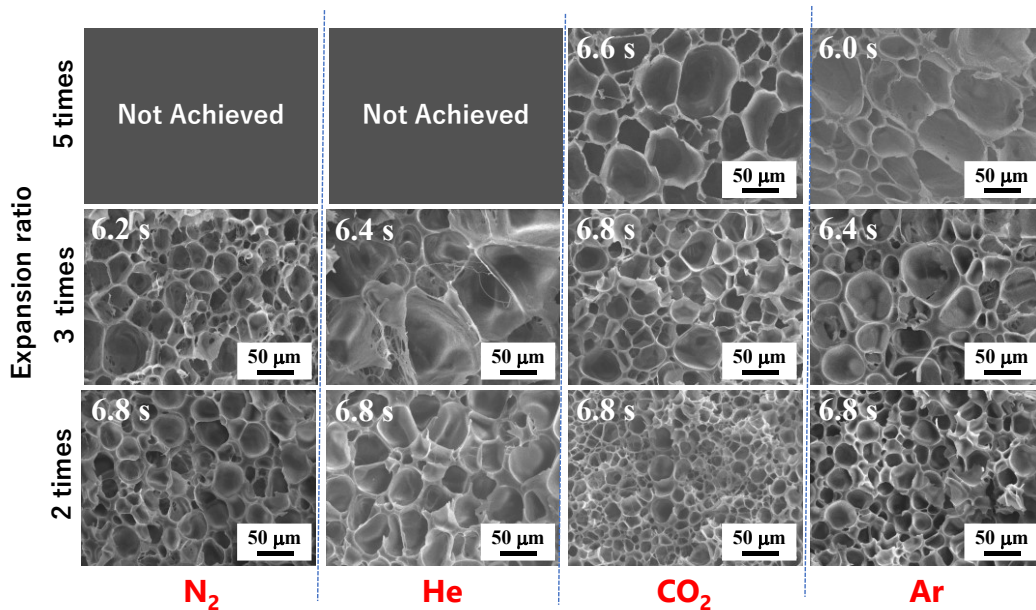


Fig. 2-13 Cellular structure of iPP/MD(0.5wt.%) foams with different physical blowing agents (N₂, He, CO₂, Ar) at different expansion ratios (2, 3 and 5 expansion ratio).

図 2-13 および 2-14 の実験結果から，溶解度が高い CO₂，および Ar で高い発泡倍率まで微細発泡体が作成できていることがわかる．すなわち，高い発泡倍率の微細発泡体を作製するには，物理発泡剤の溶解度を高いガスを使用し¹⁷⁾，ガス供給圧を高くするなど^{1,10~12)}，樹脂中に溶ける物理発泡剤の濃度を高くする操作条件とする必要がある．

また，気泡径の微細化に関しても，同様に溶解度の高いガスを使用し¹⁷⁾，ガス供給圧を高くするなど^{1,10~12)}，樹脂中に

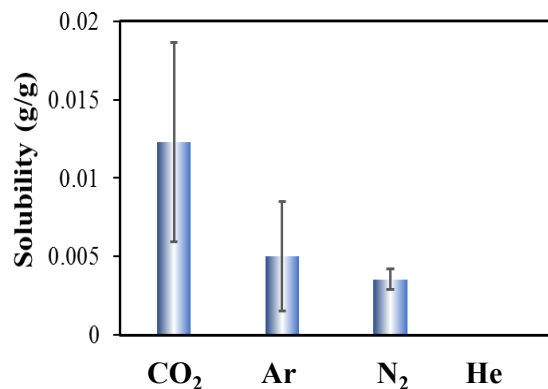


Fig. 2-14 Solubility (g-gas/g-polymer) of CO₂, Ar, N₂, and He in iPP/MD(0.5 wt.%) at 4.8 MPa 200 °C.

溶ける物理発泡剤の濃度を高くする操作条件とすることで、より微細なセル（孔）構造の発泡体ができる。遊佐らは、定量フィーダからの樹脂供給速度が遅い条件にすると、気泡密度が増加し、気泡径が小さくなることを報告している^{11,12)}。定量フィーダからの樹脂供給速度が遅い場合に、非充填領域が長くなるため¹⁸⁾、物理発泡剤との接触時間が長くなり、物理発泡剤濃度が増加したと考えられる。

図 2-15 は、ある樹脂における発泡剤の溶解度と圧力の比例関係を示した概念図である。樹脂を高圧容器（お釜）にに入れて発泡させた場合も、RIC-FOAM 装置を使用して発泡させる場合も、一定時間、一定の圧力をかけて物理発泡剤（Physical blowing agent : PBA）を樹脂に溶解させたのち、減圧させて発泡させている。この場合は、図 2-15 に示すように、溶解度の高い物理発泡剤（A）が、樹脂中に多く溶け込み、樹脂中の濃度は高くなる。第一章で述べたように、物理発泡成形における気泡核生成現象は古典的核生成理論で説明されている。この理論では、次式のような気泡核生成速度式（単位時間・単位樹脂体積当たりの気泡数の発生数）でモデル化されている¹⁹⁻²¹⁾。

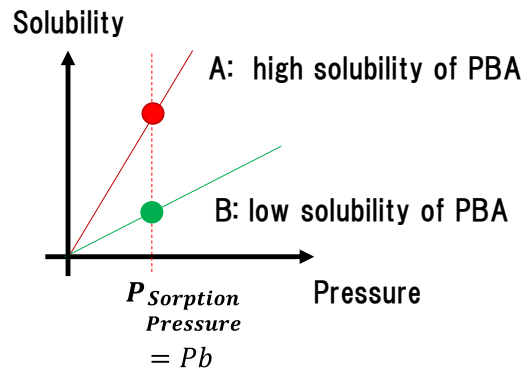


Fig. 2-15 Conceptual Picture of solubility difference of two different physical blowing agents.

$$J = f_0 \left(\frac{2\gamma}{\pi m} \right)^{1/2} \exp \left(\frac{-16\pi\gamma^3 F}{3k_B T \{P_b - P_{poly}\}^2} \right) N_A \bar{c}$$

$$\text{ただし, } P_b < P_{poly} \text{ のとき } P_b - P_{poly} = 0 \quad (2-1)$$

ここで、 J は気泡核生成速度 $[(\text{mm}^3 \cdot \text{s})^{-1}]$ ， m は発泡剤の粒子 1 個当たりの質量， $\bar{c}$ は樹脂中の発泡剤濃度 $[\text{mol}/\text{m}^3]$ ， P_b ， P_{poly} は気泡内圧と樹脂圧 $[\text{Pa}]$ を， γ は界面張力 $[\text{N}/\text{m}]$ ， N_A はアボガドロ定数 $[\text{mol}^{-1}]$ ， k_B はボルツマン定数 $[\text{J}/\text{K}]$ ， T は温度 $[\text{K}]$ ，また F は気泡核剤と気泡の濡れ角の関数として核剤による効果を表現する濡れ性の因子 $[-]$ ， f_0 は補正係数 $[-]$ を意味する。

RIC-FOAM においてガス供給圧で物理発泡剤を樹脂に可能な限り（平衡状態になる）まで溶解させた後、その供給圧（平衡圧）から大気圧にまで減圧して発泡させると、式中の $P_b - P_{poly}$ は、ガスの溶解度の高い低いにかかわらず等しくなる。一方で、溶解度の高い物理発泡剤（A）の方が $\bar{c}$ は高くなり、その結果、溶解度の高い物理発泡剤（A）の方が気泡核生成速度 J は大きくなるため、気泡径が微細化する。

2.6 まとめ

このように低圧で（昇圧せずに）物理発泡剤を供給できる低圧発泡射出成形技術を開発し、必ずしも超臨界状態の流体を物理発泡剤として使わなくとも、マイクロセル発泡体が製造できることが実証できた。我々、日本製鋼所はこの装置を工業的発泡射出成形機として SOFIT®（Simple Optimized Foam Injection molding Technology）の名称で販売している（図 2-16）¹³⁾。本章における実験は、型締め力 35 トンの小型の装置で行っているが、大型装置も開発している。写真は型締め力 100 トンの小型のものであるが、現在、650 トンクラス以上の大型機も開発し、販売展開している。表 2-3 は従来技術である MuCell 機と開発した SOFIT とを比較した結果を次表に載せている。従来の MuCell などに比べると物理発泡剤の濃度を定量的に管理できない点が開発した発泡射出成形機には課題として残されていた。この問題について検討を進めた結果を次章以降にまとめる。

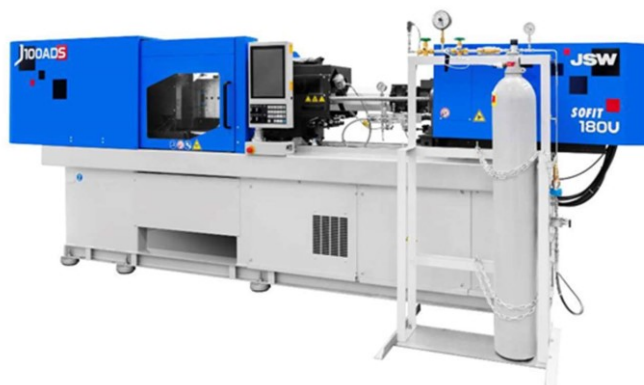


Fig. 2-16 Picture of a physical foam injection molding machine SOFIT®
(The Japan Steel Works, Ltd.).

Table 2-3 Comparison of characteristics of two FIM machines.

Item	Conventional FIM	Developed FIM (SOFIT)
PBA delivery style	Intermittent Gas Injection	Constant Contact
PBA pressurization	Need the high pressure generation pump	Directly hooking up a gas cylinder (No need the pump)
PBA concentration control	Manipulation of an injector valve opening time	Manipulation of delivery pressure (keep a designated pressure level)
PBA concentration sensor	Not available	Not available
Regulation	High Pressure Gas Safety Act (High pressure gas generation system)	High Pressure Gas Safety Act (Gas consumption system)
Investment cost	High (Regulation+ pump)	Low (no pumping)

参考文献

1. Ohshima, M., : *Polymeric Foams*, Chapter 8 (edited by Lee, S. T.), CRC Press, 191-205 (2022)
2. Xu, J., : *Polymeric Foams*, Chapter 4 (edited by Lee, S. T.), CRC Press, 91-127 (2022)
3. Xu, J., Methods for manufacturing foam material including systems with pressure restriction element, U. S. Patent 6,322,347 B1, 2001-11-27
4. Pfannschmidt, O., Michaeli, W., : *SPE ANTEC, Tech. Paper*, 2100-2103 (1999)
5. Habibi-Naini, S., : *Sulzer Technical Review* **86** (2), 10 (2004)
6. Witzler, S., : *Injection Molding Mag.*, December 80 (2001)
7. Berry, M., : *Applied Plastic Engineering Handbook*, (edited by Kutz, M.), Elsevier, Chapter 14, 215 (2011)
8. Defosse, M., : *Modern Plastics Worldwide*, December 14-15 (2009)
9. Yusa, A., Yamamoto, S., Goto, H., Uezono, H., Asaoka, F., Wang, L., Ando, M., Ishihara, S., Ohshima, M., : *Polym. Eng. Sci.*, **57**, 105 (2017)
10. Wang, L., Hikima, Y., Ohshima, M., Yusa, A., Yamamoto, S., Goto, H., : *Ind. Eng. Chem. Res.*, **56**, 13734 (2017)
11. 遊佐敦, 山本智史, 後藤英人 : 成形加工, **30** (6), 234 (2018)
12. 遊佐敦 : プラスチックスエーじ, **65** (1), 93 (2019)
13. 内藤章弘, 玉田光一, 中島英昭, 上園裕正, 辻和也, 引間悠太, 大嶋正裕 : 日本製鋼所技法, **70**, 57 (2019)
14. 遊佐敦, 山本智史, 阿野哲也, 太田寛紀, 大嶋正裕 : 成形加工, **24** (11), 630 (2012)
15. Adachi, H., Taki, K., Nagamine, S., Yusa, A., Ohshima, M., : *J. of Supercritical fluids*, **49** (2), 265 (2009)
16. 龍野道宏, 横井秀俊 : 生産研究, **73** (5), 401 (2021)
17. Wang, L., Wakatsuki, Y., Hikima, Y., Ohshima, M., Yusa, A., Uezono, H., Naitou, A., : *Ind. Eng. Chem. Res.*, **58**, 17824 (2019)
18. Hisakura, Y., Hisamitsu, I., Sugihara, M., Tanifuji, S. -I., Hamada, H., : *Int. Polym. Process.*, **33** (5), 652 (2018)
19. Blander, M. and Katz, J. : *AIChE J.*, **21** (5), 833 (1975)
20. 瀧健太郎, 大槻安彦 : 成形加工, **18** (3), 205 (2006)
21. Taki, K., : *Chem. Eng. Sci.*, **63**, 3643 (2008)

第3章

物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

本章の内容の一部は、下記の論文に加筆・修正したものである。

内藤章弘，細江峻介，引間悠太，大嶋正裕：成形加工，36 (2)，79 (2024)

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

3.1 緒言

第1章、第2章で述べたように、物理発泡射出成形において物理発泡剤濃度は、発泡製品の品質を左右する重要な因子である^{1,2)}。低压物理発泡射出成形における物理発泡剤濃度も、発泡倍率ならびに気泡径を決定する重要な因子である。しかし、従来の発泡射出成形機（MuCell®）などに比べると開発した低压発泡射出成形装置では、物理発泡剤の濃度を定量的に管理できない（濃度の設定値が容易に設定できない）点が課題としてあることを第2章末で述べた。開発した低压発泡射出成形装置における物理発泡剤の樹脂への溶解は、スクリー設計により、ホッパから金型までの流路の途中で、樹脂が未充填の領域（Zone）を形成し、そこに物理発泡剤を導入して樹脂と接触させることにより、樹脂に物理発泡剤を拡散溶解させている（第2章の図2-11）。この機構による樹脂中の物理発泡剤濃度は、樹脂との接触時間、接触面積（非充填領域の体積）、樹脂の流動性、ガス圧等の操作条件の影響を受けることが予測される。従って、開発した装置において、物理発泡剤の濃度を管理するには、操作条件と物理発泡剤濃度との因果関係を明確にする必要がある。そこで、我々は、近赤外分光（NIR）法を用いて実機での様々な成形条件下で樹脂中の物理発泡剤濃度をインラインで測定し、物理発泡剤の溶解メカニズムの解析と操作条件との因果関係を定量化した。

プラスチック発泡成形装置での物理発泡剤濃度のインライン測定手法として、近赤外分光（Near-infrared spectroscopy : NIR）法が検討されている。京都大学では物理発泡成形を押出成形で行う装置で、熔融樹脂中のCO₂濃度のNIRによるオンライン測定手法の研究があった³⁾。しかし、物理発泡射出成形機に対する物理発泡剤濃度の開発には至っていなかった。その理由は、射出成形プロセスが非定常プロセスであり、樹脂の温度や圧力が動的に大きく変化する。また、射出圧力は100～200 MPa、あるいはそれ以上となることもある。そのため、NIRのプロブは、高い耐熱性と耐圧性を有していなければ適用できない。我々は、開発した発泡射出成形機内での物理発泡剤濃度のインライン測定の実施をNIRの耐熱・耐圧プロブの新規開発をも含めて行った⁴⁾。

3.2 近赤外分光法による物理発泡剤（CO₂）のインライン測定システム

NIR法は、可視光と赤外光の間の領域の波長（800 nm～2.5 μm）を有する光（近赤外光）を物質に照射すると、分子の倍音・結合音に相当する遷移が物質に生じ、そのエネルギーに相当する特定の波長の光が物質に吸収される現象を利用して、波長と光吸収強度から物質の化学構造を同定する手法であり、組成分析や製品の品質管理等に利用されている⁵⁾。近赤外領域は通常領域Ⅰ（800～1200 nm, 12500～8500 cm⁻¹）、領域Ⅱ（1200～1800 nm, 8500～5500 cm⁻¹）、領域Ⅲ（1800～2500 nm, 5500～4000 cm⁻¹）の3領域に分けられる。領域Ⅰは高い透過性を有することから生体の窓とも呼ばれ、光路長がcmオーダーの生体や農作物の評価に用いられる。領域Ⅱは主に基準振動の倍音が観測され、領域Ⅲでは主に結

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

合音が観測されることが多い。CO₂ は、波長 2010 nm から 2020 nm (4950 cm⁻¹ から 4975 cm⁻¹) 付近に吸光度のピークを持つため、この波長の吸光度を測定することで熔融樹脂中の CO₂ 濃度を定量測定できる^{3,4,6,7)}。ただし、従来の NIR プロブは耐圧が

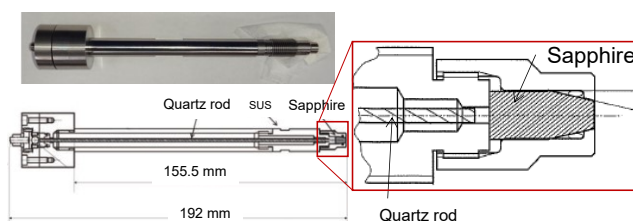


Fig. 3-1 Design and picture of NIR probe.

低く、100 MPa 以上の耐圧が要求される射出成形機への適用が困難であった。そこで、S.T Japan 社と共同で、プローブの先端に設置するサファイアの形状を工夫し、O リングによるメカニカルなシール機構をとって、耐圧性の高い (130 MPa)、耐熱性 (210 °C) の透過型の NIR プロブを作製した (図 3-1)⁴⁾。

低圧発泡射出成形機 RIC-FOAM (別名 SOFIT®, J35AD-30H, 日本製鋼所) (図 3-2) のシャットオフノズル手前 (スクリー側) に円筒状のアダプターを設計し光路長 (L) が 8mm となるように耐圧耐熱仕様の一对の透過型 NIR プロブを取り付け (図 3-3)、光ファイバーを用いてフーリエ変換型分光光度計 (FT-NIR, FLR1000L, 横河電機㈱) に接続し、表 3-1 の計測条件で熔融樹脂中の CO₂ 濃度を計測した。また、データロガー (Mini LOGGER, GL24, グラフテック㈱) により、射出速度、射出圧力、スクリー位置、スクリー回転速度、バレル内圧の信号を射出成形機から測定時間間隔 0.1s で取得記録した。バレル内圧は、ガス供給孔 (元ベント孔) がある Zone C に取り付けした圧力センサ (NP462XL-1/2-100MPa-8/45, 日本ダイニスコ㈱) で測定した (図 3-2)。

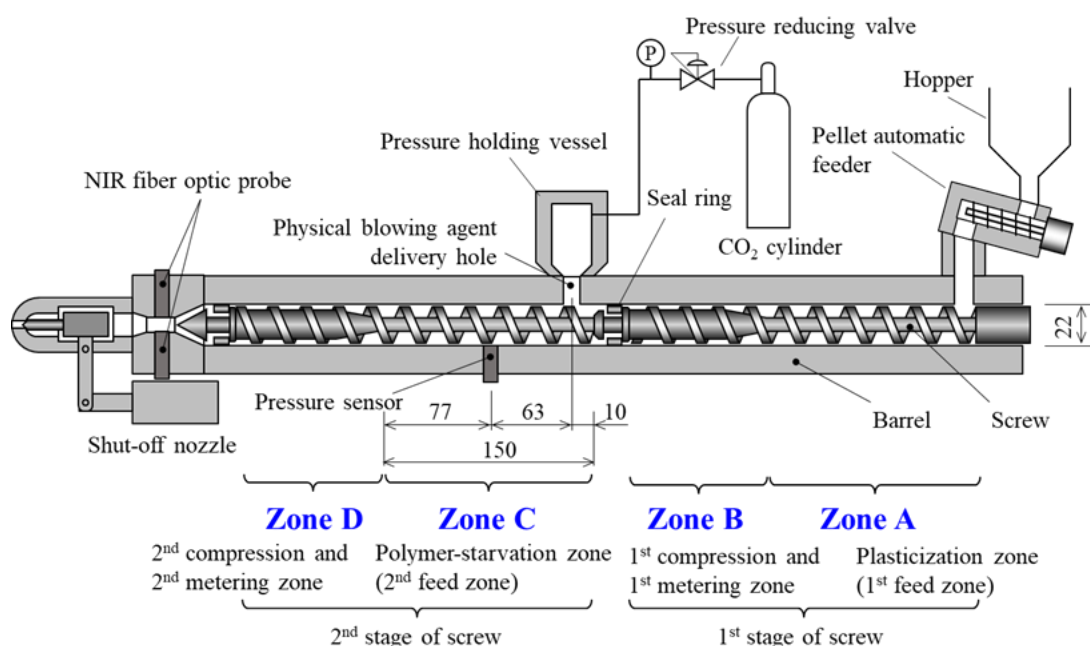


Fig. 3-2 Schematic of the developed foam injection molding machine (RIC-FOAM (SOFIT)).

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

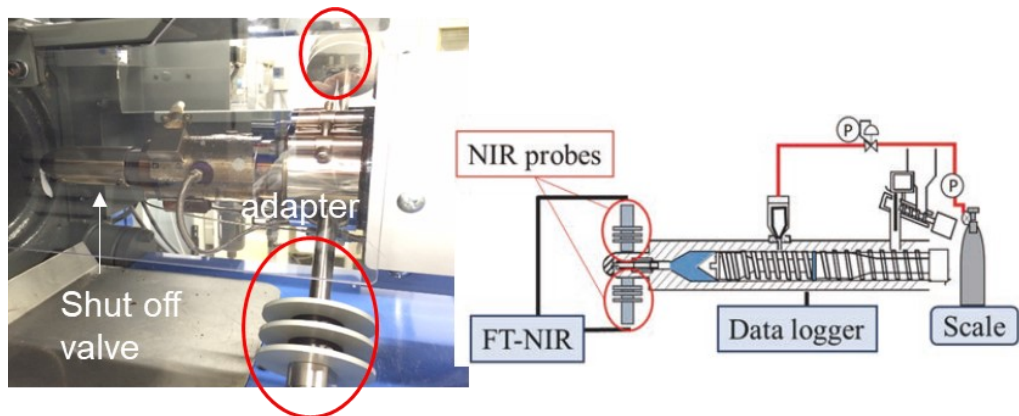


Fig. 3-3 Schematic of NIR measurement system.

Table 3.1 Measuring conditions (FT-NIR).

Time interval [s]	10~11
Wave number resolution [cm^{-1}]	8
Accumulation number	16

3.3 低圧発泡射出成形装置（RIC-FOAM（SOFIT））

第2章で述べた実験に用いた発泡射出成形装置での物理発泡剤（ N_2 、 CO_2 など）の導入方法とスクリーンの構造⁸⁻¹⁰⁾について今一度ここで簡潔にまとめておく．図3-2に示す開発した装置では，物理発泡剤として使用するガスはSCF装置などの昇圧装置を介さず，ガスボンベから直接，成形機のパレルに設置されたガス供給用圧力容器（図3-2中の **Pressure holding vessel**）を介して成形機内に供給される．成形機のスクリーンは，供給部，圧縮部，計量部が連なった2ステージ式スクリーンを用いており，圧力容器の位置する第2ステージの供給部（以下，飢餓ゾーン）は溝深さが深く，樹脂が非充填状態になるように設計されている．また，押出タイプの小型定量フィーダ（図3-2中の **Pellet automatic feeder**）のスクリーン回転数を変えてホッパからパレル内に供給する材料供給速度を調整し，樹脂の非充填領域（**Zone C**）内の樹脂量の調整が可能となっている．**Zone C**で樹脂が非充填状態の場合，圧力センサに樹脂圧力はガスの圧力と等しくなる．また，供給するガス流量は微量である．そのため，ガス供給圧力容器の圧力ならびに飢餓ゾーンの圧力は，ガス供給圧力としてボンベのレギュレータの二次圧に，配管の圧損分を，除いて等しくなる．すなわち，発泡剤の供給圧力は，ガスボンベのレギュレータで操作できる．圧力容器からパレル内に送られた物理発泡剤は，飢餓ゾーンの非充填領域で樹脂中に溶解する．飢餓ゾーンの非充填領域から圧縮部，計量部の狭い流路内に送られた物理発泡剤は，樹脂との比重の差で押し戻され，物理発泡剤が溶解した樹脂だけが下流のノズル部に輸送される．この熔融樹脂と物理発泡剤が均一相の状態での物理発泡剤濃度をNIR法により測定する^{4,6)}．

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

3.4 検量線（近赤外吸光度と CO₂ 濃度の相関性）の導出のための測定実験

物理発泡剤として CO₂（純度 99.9 %, ㈱泉産業）を用い、射出成形機への CO₂ 供給圧力を 0～5 MPa でステップ状に変化させ、ホモポリプロピレン（J105-G, ㈱プライムポリマー）に溶解する CO₂ 濃度を近赤外分光法により検出可能か、検出可能な場合に供給圧力と濃度の関係はいかなるものかを調べた。

実験は、各圧力条件で 10～50 ショットの成形を行った。供給圧力と背圧の関係を表 3-2 に射出成形条件は表 3-3 にまとめている。この射出成形装置では昇圧装置が不要なため、成形中にポンベの重量の時間変化を測定することにより、発泡成形のために消費したガス消費重量を測定でき、その重量を成形した製品の重量で除することにより、樹脂に溶けた発泡剤の重量濃度を推算することができる。これにより次節に述べるように近赤外の吸収強度との相関性（検量線）を評価した。

Table 0.2 Change in the molding conditions.

Gas delivery pressure [MPa]	0	3	4	5
Screw back pressure [MPa]	2	5	6	7

Table 3.3 Injection molding conditions.

Screw back Pressure [MPa]	2～7 (refer Table 3-2)
Screw rotation speed [rpm]	100
Metering distance [mm]	45
Injection speed [mm/s]	20, 100
Mold Temperature [°C]	30
Holding Pressure [MPa]	30
Barrel Temperature [°C] From the hopper to the nozzle zone	60, 190, 200, 210, 210, 210, 210, 210

新規開発プローブを使って測定された近赤外吸収スペクトルの一例として、プローブを設置した Zone D において、温度 210 °C の状態で CO₂ を供給していない溶融状態の PP のスペクトルを測定した。その一例を図 3-4 に示す。一般に、4950 cm⁻¹ 近傍で CO₂ ガスの分子振動の対称伸縮（ν₁）、逆対称伸縮（ν₃）および変角振動第一倍音（ν₂）の結合音に対応する吸収ピーク（ν₁+ν₂+ν₃）が現れることが知られている^{3,4,6,7)}。図 3-4 に四角で示した領域（4950 cm⁻¹ 近傍）において、SN 比の高い良好な近赤外吸

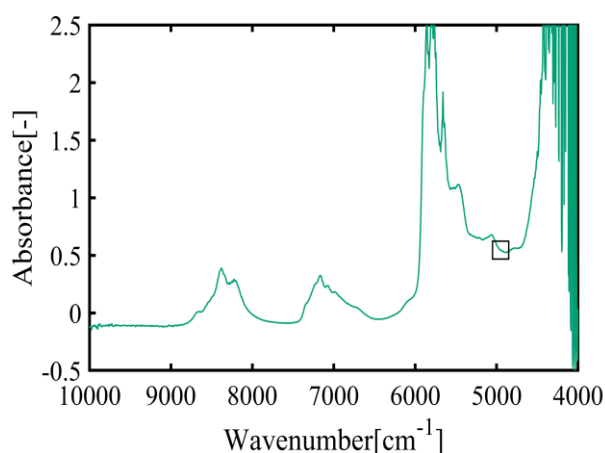


Fig. 3-4 NIR absorption spectrum of molten PP with non-foamed condition at 210 °C⁴⁾.

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

収スペクトルを測定できることが確認できた⁴⁾。

CO₂ ガス供給圧力を 0~5 MPa の範囲で、1 MPa ずつステップ状に変化させて、近赤外分光測定を行い、得られた 4950 cm⁻¹ 付近のスペクトルを図 3-5 に示す⁴⁾。CO₂ ガスを成形機に供給すると 4952 cm⁻¹ に極大を持つピークが現れ、ガス供給圧力の増加とともに吸収ピークが増加した。このことから、この波数域におけるスペクトルを解析することで CO₂ 濃度が測定可能だと考えた。

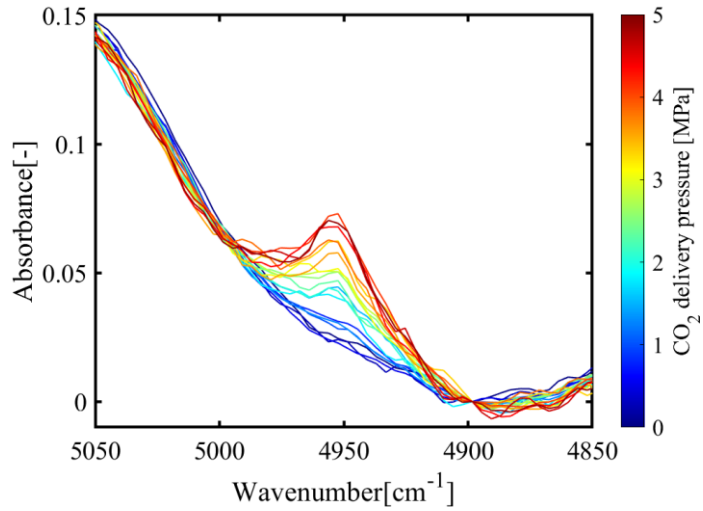


Fig. 3-5 Changes in NIR absorption peak at 4952 cm⁻¹ against the increase in CO₂ delivery pressure to RIC-FOAM (SOFIT) (@barrel temp. 210 °C)⁴⁾.

樹脂への印加圧力が非定常に変化する射出成形において、4952 cm⁻¹ の吸収ピーク強度を用いて樹脂中に溶解する CO₂ 濃度を正確に計測するためには、樹脂圧力の変動に由来するポリマー (PP) の吸収ピークの変化を除去し、さらにベースラインの変動も除去する必要がある。そのため、CO₂ 未供給時の平均スペクトルを、CO₂ 供給時に測定される各時刻のスペクトルから差し引き (図 3-6(a)) さらに、図 3-6(b)に示すように吸収ピーク外の 2 点(5022, 4875 cm⁻¹)の値を結んだ直線によりベースラインを推定し、4952 cm⁻¹

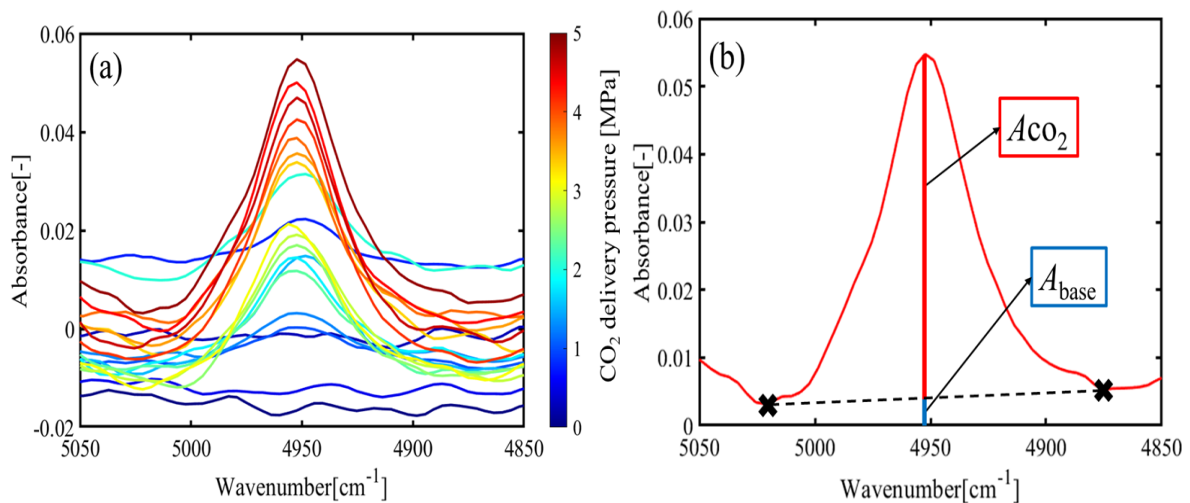


Fig. 3-6 (a) Change in NIR difference spectra around 4952 cm⁻¹ when CO₂ delivery pressure was changed, and (b) an example of baseline correction⁴⁾.

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

における吸光度とベースラインとの差（図の赤線部＝CO₂吸光スペクトル）を求めた（以下 A_{CO_2} と表現する）。

3.5 各種操作条件の CO₂ 濃度（ A_{CO_2} ）への影響

CO₂ 供給圧力を 4 MPa に固定し、表 3-4 のように基準条件（表中の Base condition）から射出成形機のスクリー回転数（以下、スクリー回転数）、フィーダのスクリー回転数（以下、材料供給速度）、バレル温度、スクリー背圧、冷却時間を変更して、各条件で 20 ショットの成形を行い、近赤外スペクトル測定を行った。

ただし、実験の際、NIR プローブへの過度な負荷を避けるため、射出速度を 20 mm/s と低めに設定し、射出圧力が 30 MPa に達すると速度制御から圧力制御に切り替わり、30 MPa 一定で射出される制御モードで発泡射出成形機を動かした。また、安定した状態を評価するため、NIR の分析には定常時の 5 ショット分のデータを用いた。

Table 3-4 Molding conditions of the RIC-FOAM (SOFIT).

Parameters	Base condition	Conditions
Gas delivery pressure [MPa]	4	4
Barrel temperature [°C] from hopper to shut-off nozzle	210	210 : 60, 190, 200, 210, 210, 210, 210 220 : 60, 190, 200, 220, 220, 220, 220 230 : 60, 190, 200, 230, 230, 230, 230
Screw rotation speed [min ⁻¹]	100	80, 100, 120, 140
Feeder screw rotation speed [min ⁻¹] (Polymer supply rate [kg/h])	37.5 (2.6)	37.5, 45.0, 60.0 (2.6), (3.1), (4.0)
Screw back pressure [MPa]	6	4, 6, 8, 10, 12
Metering period [mm]	45	45
Injection speed [mm/s]	20	20
Injection pressure [MPa]	30	30
Holding pressure [MPa]	30	30
Mold temperature [°C]	40	40
Cooling time [s]	20	20, 180, 360, 720

3.6 樹脂非充填領域のモデリング

開発した発泡射出成形装置では、非充填領域（Zone C）に作られた空間に物理発泡剤が導入されて樹脂と接触することにより、発泡剤は樹脂に溶け込む。そのため樹脂中の物理発泡剤濃度は、基本的には、この領域での物理発泡剤の供給圧力、樹脂との接触時間、接触面積、樹脂の流れなどに依存して決まると考えられる。さらに、接触時間、接触面積、樹脂の流れは、スクリー回転数、樹脂温度、供給樹脂量などの操作条件により変わるは

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

ずである．従って，近赤外スペクトルから操作条件の物理発泡剤濃度への影響を解析しようとした場合，非充填状態での樹脂の状態を把握し接触時間，接触面積，樹脂の流れと操作条件の因果関係を数式表現（モデル化）しておく必要がある．

本装置の非充填領域の状態の展開図を図 3-7 に，使用したスクリーウの設計値を表 3-5 に，式中の記号は付録 3-1 にまとめておく．図 3-7 の上図は，直径 D_b のバレルの中に置かれたスクリーウのフライト（高さ h ，幅 e ，スクリーウ軸に対する傾き θ ）と流路（高さ h ，幅 w_f ）を描いており，樹脂は右から左へと流れる．樹脂はオレンジ色で記されており，白色は物理発泡剤を供給する空間を示す．上図のように，Zone C（樹脂非充填領域）から zone D（圧縮領域）に移行するにともない樹脂の幅が広がり，スクリーウ溝中に充填していく．図 3-7 の下図は，それぞれの Zone での流路を展開した図で，最下段は，フライトに垂直な A-B 線（ x 軸）で切った断面図である．スクリーウが右上図のように時計と反対回りに回転するとき，非充填領域において樹脂はバレルとのせん断力により流動し，スクリーウ押側フライト(Active flight)に沿って（青色）矢印 $\uparrow$ の方向に輸送される^{11,12)}．また，厳密には，バレル壁面には，フライトクリアランスと同じ厚みの薄膜状の樹脂が存在する¹⁰⁻¹⁴⁾．

図 3-8 は，図 3-7 の右側の図を再掲・拡大したものである．スクリーウが図 3-7 のように一定速度で回転しているとき，スクリーウ上にある樹脂から見ると，樹脂は外側のバレルにより矢印（図 3-8 a）黒 $\uparrow$ ）の方向（スクリーウ軸に垂直）に一定のスクリーウ速度

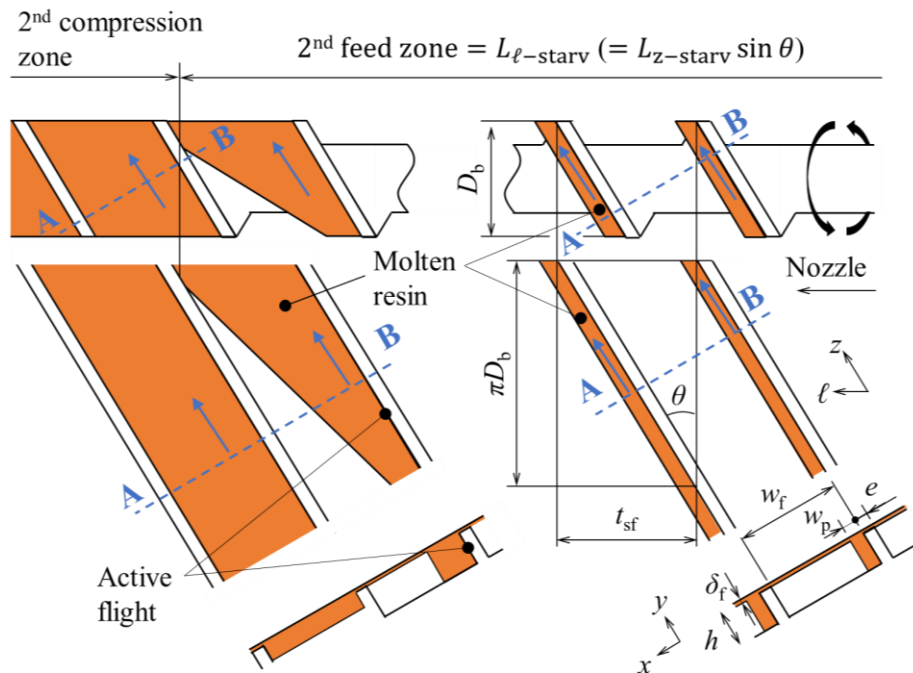


Fig. 3-7 Schematics of the zone C (polymer-starvation zone) (orange-highlighted part: molten polymer, white: space of physical blowing agent).

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

Table 3-5 Screw geometry of the zone C (Polymer-starvation zone).

Parameters	Symbol	Unit	Dimensions
Screw diameter	D_b	[m]	2.2×10^{-2}
Flight pitch	t_{sf}	[m]	2.2×10^{-2}
Flight width	e	[m]	2.2×10^{-3}
Flight height	h	[m]	4.6×10^{-3}
Flight clearance	δ_f	[m]	1.0×10^{-4}
Flight angle	θ	[rad]	0.308
Number of flight	n_f	[-]	1

で牽引される．この牽引力により，図 3-8 b) のように樹脂中の中央では，牽引流れが生じる．樹脂が左から右にけん引され Active flight にあたると圧力が発生する．この圧力により圧力流れが放物型で右から左に生ずる．厳密には樹脂は粘弾性流体であるが，低せん断では，ニュートン流体として挙動すると仮定すると，牽引流れと圧力流れが加法的に働き速度分布が形成されると考えられる¹⁵⁻¹⁷⁾．A-B 方向の樹脂中央部での速度分布は，図 3-8 c) 中の赤線のようにバレル側で左から右の牽引流れ，スクリー近傍では右から左の流れ

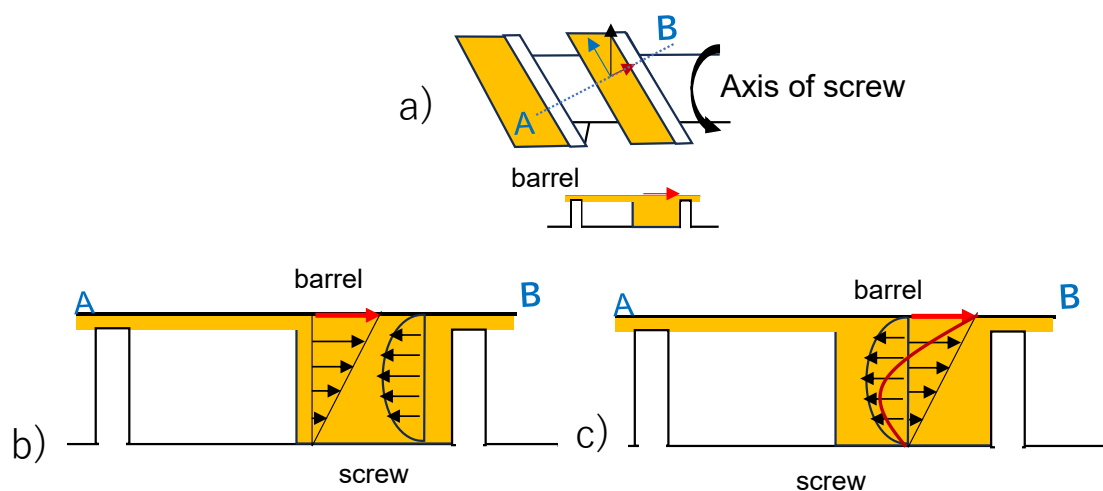


Fig. 3-8 Schematic view of the polymer flow in the screw channel at polymer-starvation zone (Zone C)

が生じ，全体としては，図 3-9（第2章の図 2-11）のように樹脂の中で，A-B 断面で旋回流が起きていると考えられるこの旋回流によって，樹脂と物理発泡剤の混練が行われる．

物理発泡剤の樹脂中への拡散・溶解の挙動を，操作変数との因果関係を踏まえてまとめ，数式モデルとして導出するために，樹脂非充填領域の樹脂の流れを次のように可能な限り簡略化した．

- 1) 樹脂の非充填状態を図 3-7, 3-8 に描くように，樹脂の自由界面での曲率を無視して，

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

樹脂の形状を矩形して取り扱う．

- 2) スクリューの溝を平行溝とし，z 軸方向（フライトに沿った方向）の速度は x 軸の値に依らず一様と見なす
- 3) 計量中はせん断速度が低いとして，樹脂をニュートン流体として扱う¹⁵⁻¹⁷⁾．
- 4) スクリュー回転中に **Active flight** 頂部から漏洩する樹脂の量とバレル壁面から **Active flight** の樹脂に取り込まれる薄膜状の樹脂の量とは等しい
- 5) フライトと平行な z 軸方向への樹脂の流動において薄膜状の樹脂の存在は無視できると仮定した．

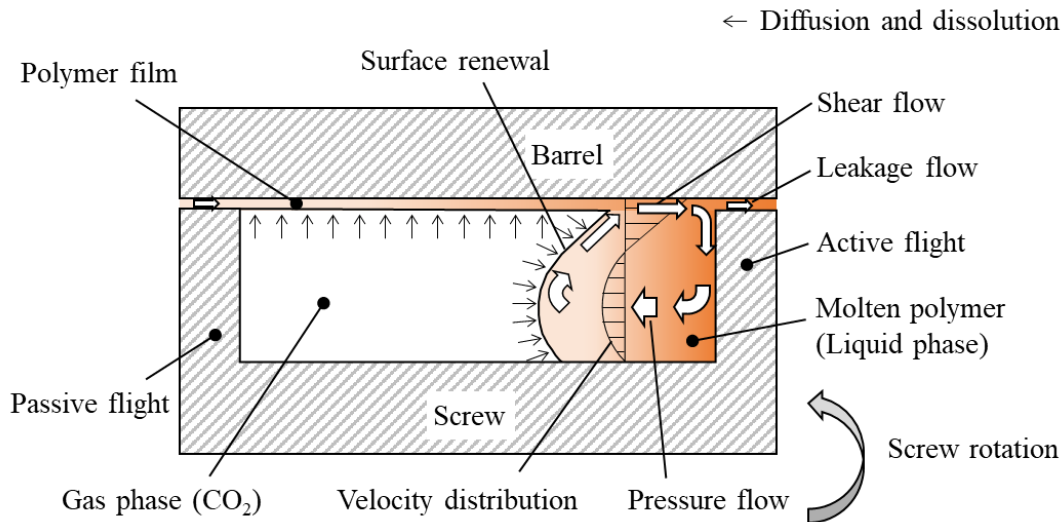


Fig. 3-9 Cross-sectional view of molten polymer flow in Zone C.

物理発泡剤は樹脂表面から溶解するため，単位質量あたり樹脂が物理発泡剤と接触することのできる表面積の割合を比表面積 S_m [m^2/kg] として(3-1)式で定義する．このときガスとの接触面は，**Active flight** の樹脂と引き側フライト (**Passive flight**) 側のバレル壁面のフィルム状の樹脂表面の2面しかないため，微粒子など単位質量あたりの表面積として定義される比表面積とは意味が異なる．

$$S_m = \frac{\{(h - \delta_f) + (w_f - w_p)\}L_{z\text{-starv}}}{\rho(V_{p\text{-starv}} + V_{p\text{-film}})} = \frac{\{(h - \delta_f) + (w_f - w_p)\}}{\rho\{w_p h + (w_f - w_p)\delta_f\}} \quad (3-1)$$

Active flight 側の回転する樹脂の塊とバレル壁面のフィルム状の樹脂の合計体積に樹脂密度 ρ [kg/m^3]をかけて（式の分母），物理発泡剤と接触することのできる面積（式の分子）を割って比表面積 S_m を定義している．

上式中の記号の意味とその操作条件との関係は次のように考えた．

- ・ **Active flight** 側の回転する樹脂体積 $[\text{m}^3]$ は次式で求める

$$V_{p\text{-starv}} = w_p h L_{z\text{-starv}} \quad (3-2)$$

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

ここで,

$L_{z\text{-starv}}$: 非充填領域の z 方向 (フライトと平行な方向) の長さ [m]

h : スクリューのフライトの溝底とバレルの距離 [m]

w_p : 樹脂の x 方向 (フライトに垂直方向) の厚み [m]

- ・ バレル壁面の薄膜状の樹脂体積[m³]は次式で求める

$$V_{p\text{-film}} = (w_f - w_p)\delta_f L_{z\text{-starv}} \quad (3-3)$$

ここで,

δ_f : フライト頂部とバレルとの隙間=フィルム状樹脂の厚み [m]

w_f : スクリューの溝幅 [m]

- ・ 樹脂の x 方向 (フライトに垂直方向) の厚み w_p は次式で求める.

$$w_p = \frac{Q_v}{n_f \bar{v}_{z\text{-starv}} h} = \frac{2Q_v}{\pi D_b N n_f h \cos \theta} \quad (3-4)$$

ここで

$\bar{v}_{z\text{-starv}}$: スクリュー回転中の非充填領域の樹脂の z 方向の平均流速 [m/s]

Q_v : 樹脂の体積流量 [m³/s]

n_f : スクリューのフライト条数^{※1} [-]

樹脂の体積流量 Q_v は物質収支が成り立つとして, 1 回で射出する樹脂体積 (先端に貯留する樹脂量) $V_{p\text{-inj}}$ [m³] を 1 回の計量時間 t_r [s] で割ることで求められる. また, 樹脂の平均体積流量 Q_{vz} , それに密度 ρ [kg/m³] を掛けたものを樹脂質量流量 Q_m [kg/s] としている.

$$Q_{vz} = \frac{V_{p\text{-inj}}}{t_r} = \frac{Q_m}{\rho} \quad (3-5)$$

先端に貯留する樹脂量 $V_{p\text{-inj}}$ は, バレル径 D_b の断面積 $\pi(D_b/2)^2$ に射出ストローク $L_{\ell\text{-st}}$ [m] ^{※2} をかけて $V_{p\text{-inj}} = \pi(D_b/2)^2 L_{\ell\text{-st}}$ と求められる.

スクリュー回転時に, 回転方向とフライトは角度 θ で傾いているため, Active flight のバレル壁面において樹脂は z 方向にせん断速度 $\pi D_b N \cos \theta$ で牽引される¹⁵⁻¹⁷⁾. N はスクリュー回転数 [s⁻¹] であり, 樹脂がスクリュー溝内で非充填状態の場合, 圧力流れが起こらないため, z 方向の流速 v_z [m/s] は, せん断流れのみで $\frac{\pi D_b N \cos \theta}{h} y$ と表せる¹⁸⁾.

z 方向の平均流速 $\bar{v}_{z\text{-starv}}$ は, 流路深さ (y 軸方向) の関数として与えられる $v_{z\text{-starv}}(y)$ を積分して計算できる.

$$\bar{v}_{z\text{-starv}} = \frac{1}{h} \int_0^h v_{z\text{-starv}} dy = \frac{1}{h} \int_0^h \frac{\pi D_b N \cos \theta}{h} y dy = \frac{\pi D_b N \cos \theta}{2} \quad (3-6)$$

※1 : スクリューの断面に配置されたフライトの個数 (第3章, 第4章では $n_f = 1$ のシングルフライトしか用いていないため, 詳細は第5章にて説明する)

※2 : 射出ストロークとは熔融樹脂を射出するときのスクリューを計量時に後方に移動する距離のことである.

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

(3-1) 式で表されるように比表面積 S_m はフライト断面の形状因子により構成されており，樹脂の x 方向厚み w_p により変化し，また， w_p は平均体積流量 Q_{Vz} およびスクリー回転数 N により変化する．実験では，成形条件と S_m の関係式を活用して CO_2 濃度への影響を解析する．

3.7 結果と考察

3.7.1 物理発泡剤濃度と A_{CO_2} との関係（検量線の導出）

成形機への CO_2 供給圧力を変えた実験（表 3-1，表 3-2）を行い，射出成形装置に供給する CO_2 の圧力（Pressure Vessel の圧力）に対してポンベの重量変化から推算した CO_2 濃度と，得られた近赤外スペクトルから計算した A_{CO_2} をともにプロットしたものを図 3-10 に示す．ポンベの重量変化から推算した CO_2 濃度と A_{CO_2} は，ともにガス供給圧力と強い線形関係にあることがわかる．これは，近赤外分光法で得られる吸光度は，次式に示すランベルト・ベールの法則に従うことを意味する．

$$A = \varepsilon LC \quad (3-7)$$

ここで， A ：吸光度， ε ：モル吸光係数， L ：光路長， C ：試料の濃度である．

CO_2 のモル吸光係数 ε は一定と見なせる．また，プローブ間の距離はアダプターで 8 mm に固定されているため光路長 L は一定である．よって，吸光度 A_{CO_2} は CO_2 濃度 C に比例して変化する．すなわち， A_{CO_2} を用いて CO_2 濃度を定量測定できることを示している．

3.7.2 供給ガス圧力と CO_2 濃度の関係

前節の結果は，開発した発泡射出成形装置（RIC-FOAM（SOFIT））では，ガスの供給圧力を操作して物理発泡剤濃度を制御できることを意味している．すなわち，ガス供給圧力を所定の値に一定に保つことによって，樹脂中の物理発泡剤の濃度を一定に保つことができることになる．

導出した検量線を用いて，ガス供給圧力を 1 から 5 MPa，スクリー背圧を 3 から 7 MPa に 1 MPa ずつ変化させて実験を行い，得られた CO_2 吸光度を CO_2 濃度に変換し，各ガス供給圧力における 210 ℃の溶解度（図中の点線）に対して

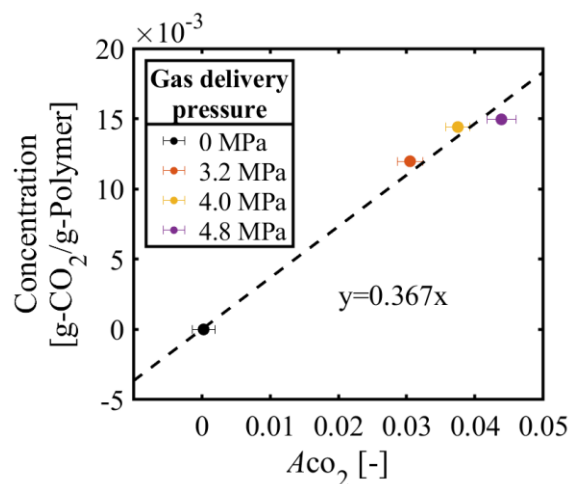


Fig. 3-10 Relationship between A_{CO_2} and CO_2 concentration

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

プロットしたのが図 3.11 である。210 °C のポリプロピレン (J105G) の CO₂ の溶解度 (図中点線) は、文献値から求めた⁶⁾。開発した射出発泡成形機で、表 3-2, 表 3-3 の成形条件下では、CO₂ 濃度は溶解度には達していないことがわかる。

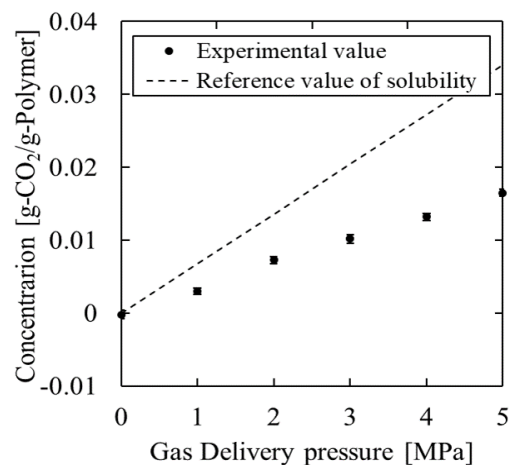


Fig. 3-11 Relationship between gas delivery pressure, CO₂ concentration and solubility.

3.7.3 非充填領域における樹脂の比表面積 S_m と CO₂ 濃度の関係

ホッパからの樹脂供給量を 3 水準変えて、スクリー回転数とバレル温度を変化させた成形過程の CO₂ 濃度を NIR 法で測定した。スクリー回転数と NIR で測定された CO₂ 濃度との関係を図 3-12(a)に、スクリー回転速度と可塑化能力の関係を図 3-12(b)に示す。図 3-13 に示すように、材料供給速度 2.6, 3.1 および 4.0 kg/h のいずれの条件下でも、CO₂ 濃度はスクリー回転数の増加にともなって増加している。材料供給速度が速い 3.1, 4.0 kg/h の場合、CO₂ 濃度は、スクリー回転速度を 80 min⁻¹ から 140 min⁻¹ に増加させると 1.07 倍に、材料供給速度が遅い 2.6 kg/h の場合、1.28 倍に増加した (図 3-12 (a))。

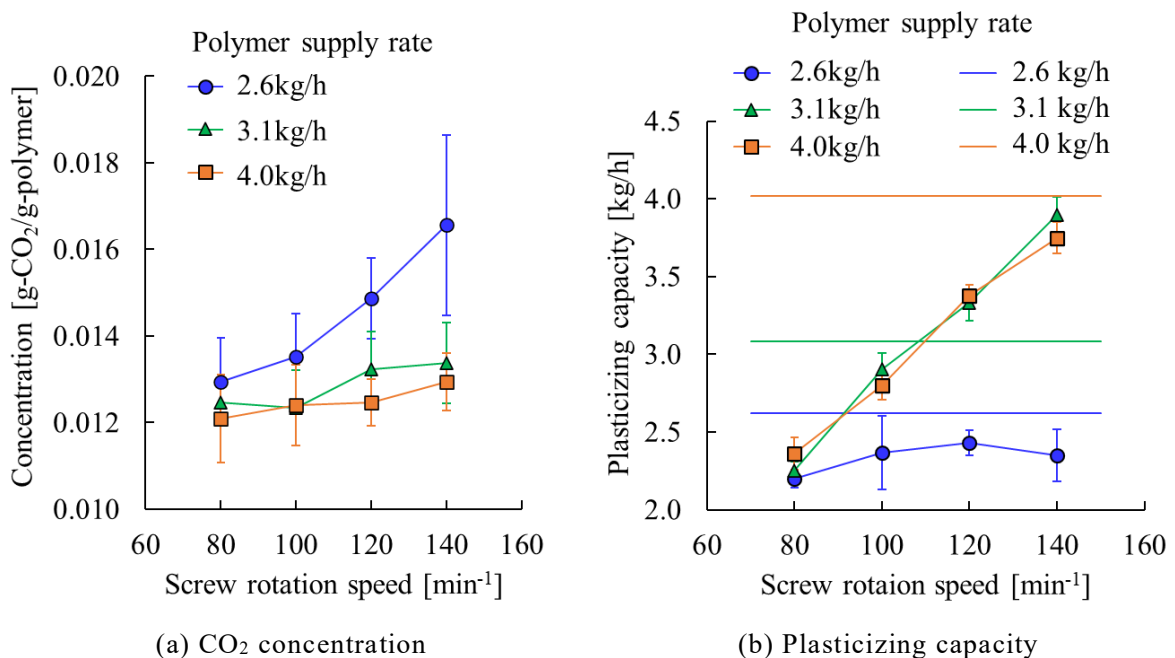


Fig. 3-12 Effect of screw rotation speed of the injection molding machine and the quantitative feeder on (a) CO₂ concentration and (b) plasticizing capacity.

(● : polymer supply rate 2.6 kg/h, ▲ : 3.1 kg/h, ■ : 4.0 kg/h)

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

一方で、スクリー回転速度と可塑化能力の関係は、図 3-12 (b) に示す。材料供給速度が 3.1 と 4.0 kg/h の場合は、スクリー回転速度の増加に伴い可塑化能力は増加するものの、2.6 kg/h の場合には可塑化能力は横這いとなっている。しかし、CO₂ 濃度は 2.6kg/h の場合に一番増加している。

(3-4) 式、および (3-5) 式より、樹脂の幅 w_p は、樹脂の体積流量 Q_v および樹脂の質量流量（可塑化能力） Q_m に比例し、スクリー回転数 N に反比例する。そのため、可塑化能力 Q_m が変わらない状態で、スクリー回転速度 N を上げると、 w_p が減少し、その結果、非充填領域で比表面積 S_m が増加し、CO₂ 濃度が増加したと実験結果を解釈できる。

図 3-13(a)からは、同じバレル温度の場合には、スクリー回転数 N が 100 min⁻¹ より 140 min⁻¹ の方が樹脂に溶解する CO₂ 濃度は高くなることが分かる。定量フィーダにより可塑化能力が 2.6 kg/h 前後に抑えられている状態（図 3-13(b)）でスクリー回転数 N を増加したため、先ほどと同様に S_m の増加により CO₂ 濃度が増加したと解釈できる。

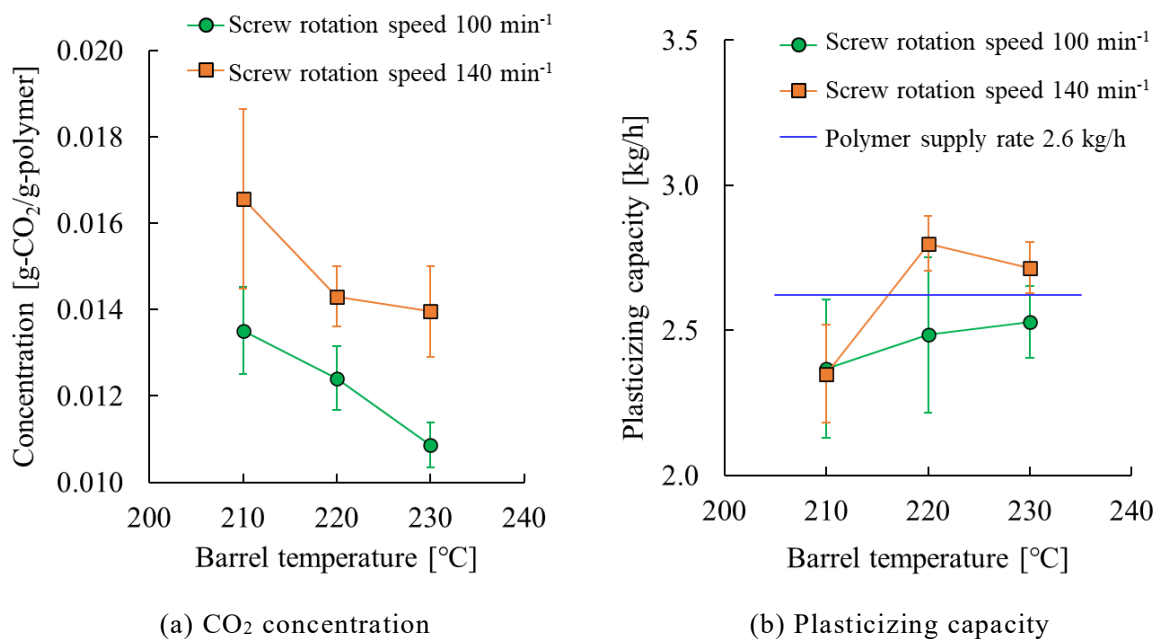


Fig. 3-13 Effect of barrel temperature on (a) CO₂ concentration and (b) plasticizing capacity. (● : Screw rotation speed 100 min⁻¹, ■ : 140 min⁻¹)

その一方で、バレル温度の上昇にともなってCO₂濃度は減少していることがわかる（図 3-13 (a)）。CO₂濃度は、 N が 100 min⁻¹ と 140 min⁻¹ のとき、バレル温度 20 °C の上昇に対して、それぞれ 80, 84 % へと低下している（図 3-13 (a)）。本発泡射出成形機では、バレルの第 1 計量部（Zone B-D）からノズル先端までのバレル温度設定は同じ（表 3-4）としており、バレル温度と非充填領域（Zone C）の樹脂温度とは等価と考えることができ

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

る．磁気浮遊天秤により測定した当該 PP への CO₂ の溶解度は，樹脂温度 10 °C の上昇に対して約 5 % 減少するが⁶⁾，このデータ（図 3-13(a)）では，CO₂ 濃度はそれ以上に減少している．この原因を，樹脂粘度の変化により充满領域における圧力勾配が変り，非充满領域の長さ $L_{z\text{-starv}}$ が変わることによる影響と考え，次のように検討した．

前述のように，熔融樹脂をニュートン流体と仮定すると，“充满状態”でのスクリューによる輸送能力 Q_V ，およびフライトと平行な方向の圧力勾配 $\Delta P_p / \Delta L_z$ [Pa/m] は以下の式のように導かれている¹⁵⁻¹⁷⁾．

$$Q_{Vz} = \alpha N - \frac{\beta}{\eta} \left(\frac{\Delta P_p}{\Delta L_z} \right) \quad (3-8)$$

α ， β はスクリュー形状（設計）の値により決まる定数である． α ， β ， L_z は次のように表される．

$$\alpha = \frac{\pi D_b n_f h w_f \cos \theta}{2}, \quad \beta = \frac{n_f h^3 w_f \sin \theta}{12}, \quad L_z = \frac{L_\ell}{\sin \theta}$$

ここで， P_p は樹脂圧力 [Pa]， η は粘度 [Pa・s]， L_z と L_ℓ はそれぞれ充满状態におけるフライトと平行な z-軸方向とスクリュー軸方向の熔融樹脂の長さ [m]， w_f はスクリューフライト間の溝幅 [m] を示す．(3-8) 式からスクリュー軸方向の圧力勾配 $\Delta P_p / \Delta L_\ell$ [Pa/m] は次式で表される．

$$\frac{\Delta P_p}{\Delta L_\ell} = \frac{\eta(\alpha N - Q_V)}{\beta \sin \theta} \quad (3-9)$$

(3-9) 式に従うと，充满領域での圧力勾配 $\Delta P_p / \Delta L_\ell$ は，樹脂の粘度 η と回転数 N に比例して増加する．バレル温度が高くなると樹脂の粘度 η が低くなり，圧力勾配が小さくなる．そのためスクリュー先端背圧の昇圧^{※3}に要する充满領域の長さが増加して非充满領域の長さ $L_{z\text{-starv}}$ が減少することが考えられる．その結果，非充满領域の比表面積 S_m が小さくなり CO₂ 濃度が低下したと推察される．充满領域における圧力勾配の影響については次節にてより詳しく考察する．

図 3-14 に CO₂ 濃度と (3-1) 式で計算した S_m の関係を示す．(3-1) 式で定義される S_m の式の分子は A-B の断面における樹脂と物理発泡剤との接触長さを意味し，z-軸方向の非充满領域での樹脂の長さ $L_{z\text{-starv}}$ と S_m の積 $S_m \times L_{z\text{-starv}}$ は，樹脂と CO₂ との接触面積と等価である．図 3-14 から CO₂ 濃度は S_m に比例して増加し，バレル温度が高い場合に CO₂ 濃度は下方にシフトしていることがわかる．

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

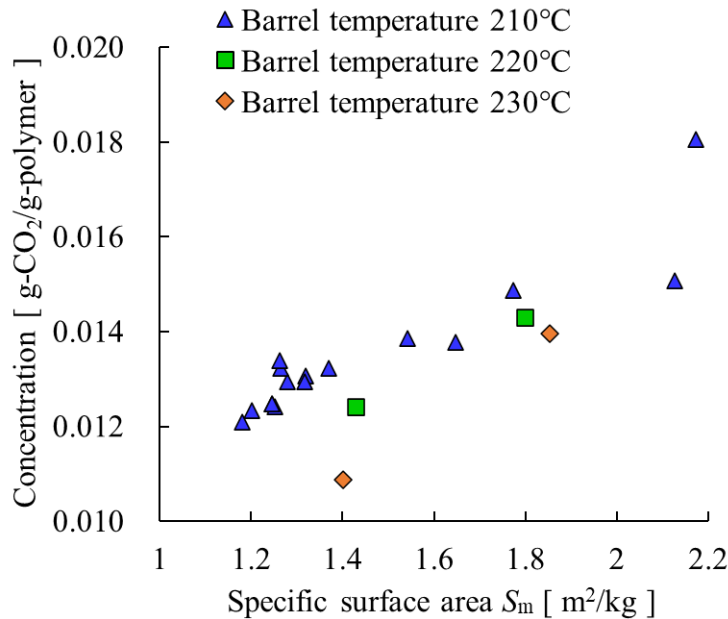


Fig. 3-14 Effect of specific surface area on CO₂ concentration in polymer-starvation zone.

(▲ : Barrel temperature 210 °C, ■ : 220 °C, ◆ : 230 °C)

構造の類似したスクリューを用いるベント式成形機では、成形機のスクリュー回転数 N が高い条件あるいは樹脂フィーダから樹脂供給速度が遅い条件では、樹脂が非充填状態から充填状態に切り替わりバレル内圧が増加し圧縮され始める増圧開始点が、スクリュー軸方向の下流側（ノズル側）に移動することが報告されている^{11,19)}。スクリュー回転数 N が高く、材料供給速度が遅い条件では、 S_m が増加し、さらに非充填領域の長さ $L_{z-starv}$ も長くなり、両者の積 $S_m \times L_{z-starv}$ が大きくなる。これにより、CO₂との接触面積が増加し、樹脂に溶解したCO₂の濃度が大きく増加したと考えられる。

一方で、スクリュー回転数 N が高い条件では、非充填領域における樹脂の滞留時間が短くなりCO₂濃度が低下すると考えられるが、実験結果では、逆にCO₂濃度は増加している。この結果から、CO₂濃度に与えるCO₂と樹脂の接触時間（飢餓ゾーンにおける樹脂の滞留時間）の影響は小さく、非充填領域における樹脂の旋回流の速度が上がったことによる影響がより大きかったと考えられる。一方で、バレル温度が高い場合、前述のように樹脂粘度 η が低下し、充填領域における圧力勾配が小さくなって非充填領域が減少し、 $S_m \times L_{z-starv}$ が小さくなり、CO₂との接触面積が減少した結果、CO₂濃度が低下したと推察

※3： 通常の射出成形機ではスクリュー背圧（表 3-3、3-4 の Screw back pressure）に相当する圧力をスクリューで昇圧するが、開発した発泡射出成形装置では、非充填領域においてガス供給圧力が等方的に作用するため、スクリュー背圧とガス供給圧力との差圧をスクリューで昇圧する。

される。

3.7.4 充満領域の圧力および圧力勾配の CO₂ 濃度への影響

基準条件に対してスクリー背圧を変化させ、バレル内 (Zone D) の樹脂圧力が CO₂ 濃度に与える影響を調べた。実験結果を図 3-15 に示す。CO₂ 濃度は背圧の増加にともなって減少し、背圧が 6 MPa から 12 MPa に増加すると 0.55 倍に減少した。可塑化能力はほぼ一定で S_m は一定となることから、背圧の増加に伴い、非充満領域の長さ $L_{z-starv}$ が短くなったと考えられる。

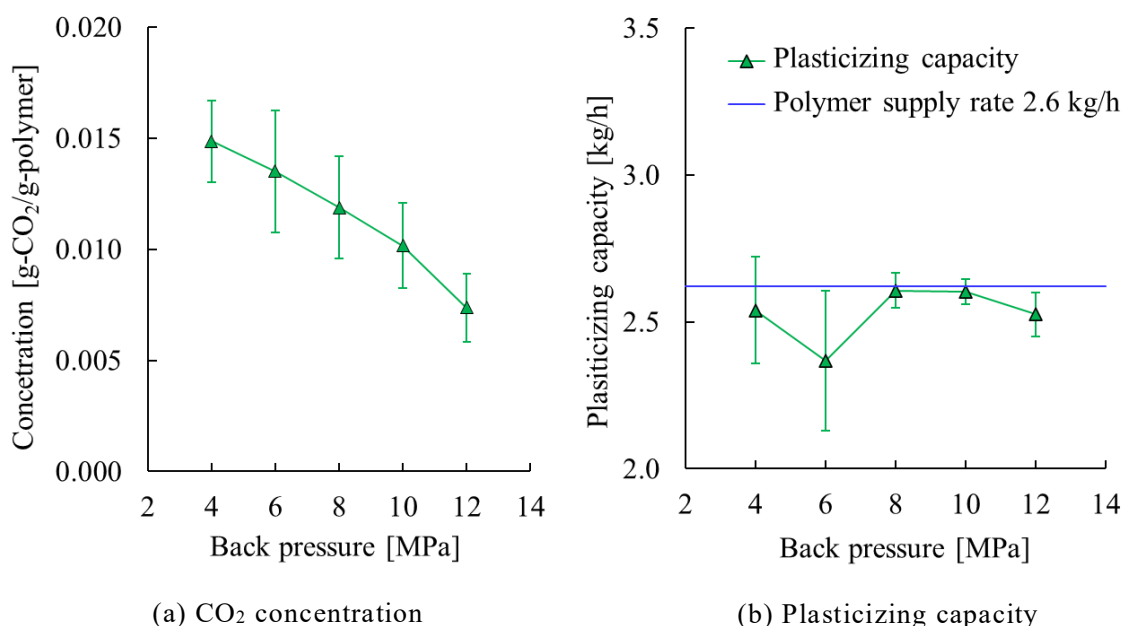


Fig. 3-15 Effect of back pressure on CO₂ concentration and plasticizing capacity.

そこで、樹脂圧力の変動から $L_{z-starv}$ を推算することを試みた。図 3-16 に非充満領域 (Zone C) に設置した樹脂圧力計 (図 3-2) で測定されたバレル内圧力の測定結果を示す。背圧 8 MPa 以下では、バレル内圧力はガス供給圧力 4 MPa を維持している。圧力センサによってバレル内の CO₂ の供給圧力と同じ値が検出されたことから、圧力センサの位置では非充満状態が維持されている、すなわち、気相が Zone C に存在することが分かる。これに対し、背圧 10 MPa 以上では、測定圧力は、周期 0.6 s, ± 0.3 MPa の振幅で増減しながら時間経過とともに徐々に増加し、背圧 12 MPa のときには、ガス供給圧力 4 MPa よりも高くなり、計量完了時には最大 6.6 MPa に達している。測定された圧力の振動周期 0.6 s は、スクリー回転数 100 min⁻¹ に呼応して振動している。どちらの背圧条件でも、ガス供給圧力よりもセンサ値が低くなることはない。振動はセンサ下をスクリーフライトが通過する際の熔融樹脂の圧力によって生じたと考えられる。すなわち、背圧が 10 MPa 以上の設定では、Zone D の充満状態の樹脂が、Zone C の圧力センサ位置まで伸びて来ていることを意味する。

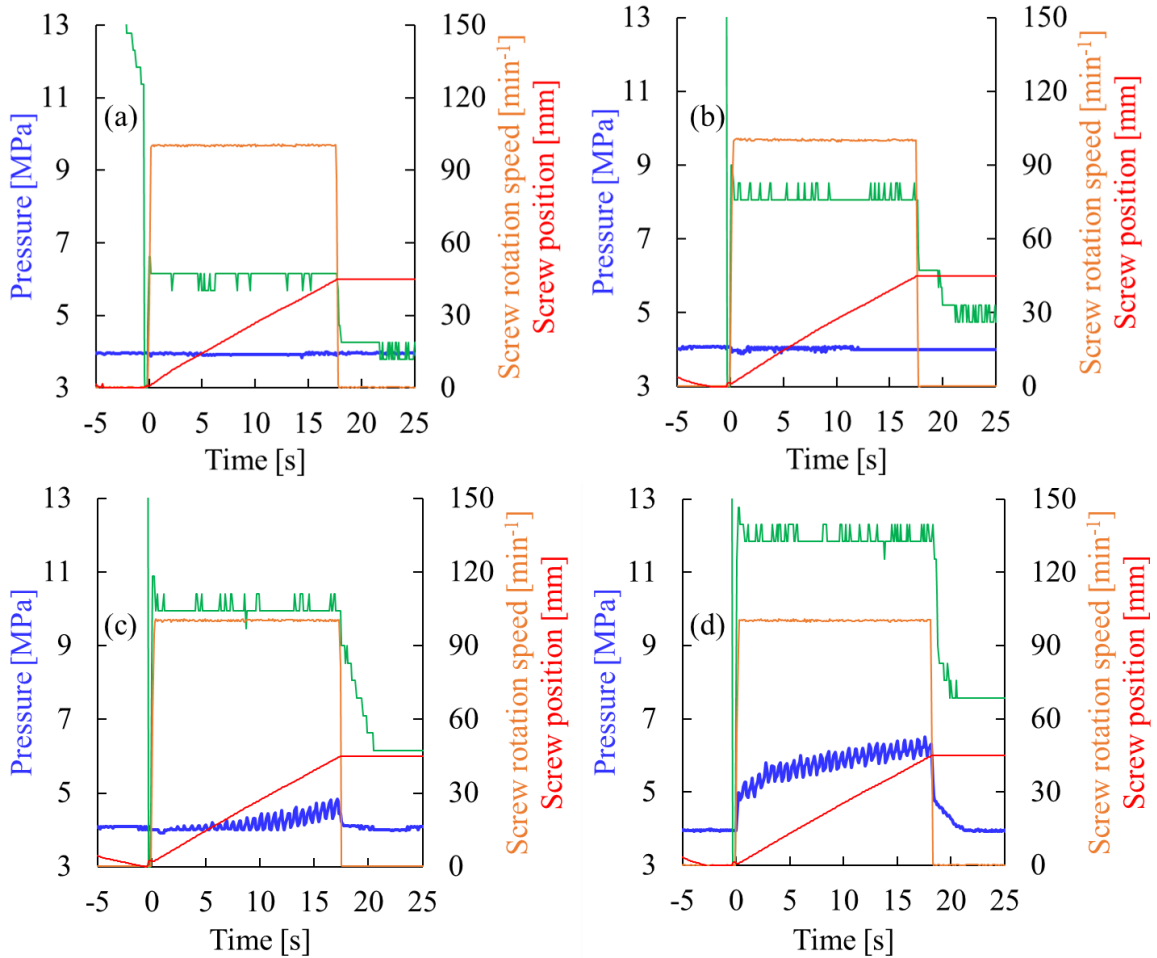


Fig. 3-16 Temporal data screw rotation speed, screw position, polymer pressure at zone C of one injection molding operation (a) back pressure = 6 MPa, (b) 8 MPa, (c) 10 MPa, (d) 12 MPa (— Barrel pressure, — injection pressure, — screw rotation speed and — screw position under each back pressure condition).

図 3-17 に射出成形機のスクリーを後退させながら実施する計量操作中に測定したスクリー位置（最前進位置を 0mm）と Zone C で計測した圧力変動の波形の一例を示す。背圧 10 MPa と 12 MPa では、測定圧が、ガス供給圧力（図中青線）よりも高くなり、スクリー位置が大きくなる（スクリーが計量のために後退する）にともない、増加している。その増加速度（図中赤線で示す傾き）は 10 MPa と 12 MPa の背圧の実験でほぼ等しい（図中赤線の傾き）。圧力の波形の上昇が Zone D の樹脂充満状態が Zone C まで伸びて Zone C が樹脂充満領域になり、スクリーの中の樹脂の圧力勾配と呼応すると考え、圧力とスクリー後退量のデータから最小 2 乗法により、回帰直線を導き、その圧力勾配を求めた。その際のショット間での昇圧開始点のばらつきのデータ処理方法については、付録 3-2 にまとめておく。

推定結果を表 3-6 に示す。スクリーの軸方向距離 L_ℓ に対するバレル内圧力 P_b [Pa] の圧力勾配は概ね 31 MPa/m であり、切片の差 1.85 MPa は両者の背圧の差（12－10＝2 MPa）

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

に相当する．設計上で Zone C の軸方向長さは 150 mm のため，背圧 10 MPa，12 MPa の場合，非充填領域の長さは各々 104 mm，46 mm と推定される．この実験から，ガス供給圧力より背圧を上げるにともない，非充填領域の長さ $L_{z-starv}$ が減少し，樹脂と CO₂ との接触面積が減少し，CO₂ 濃度が低下したといえる．

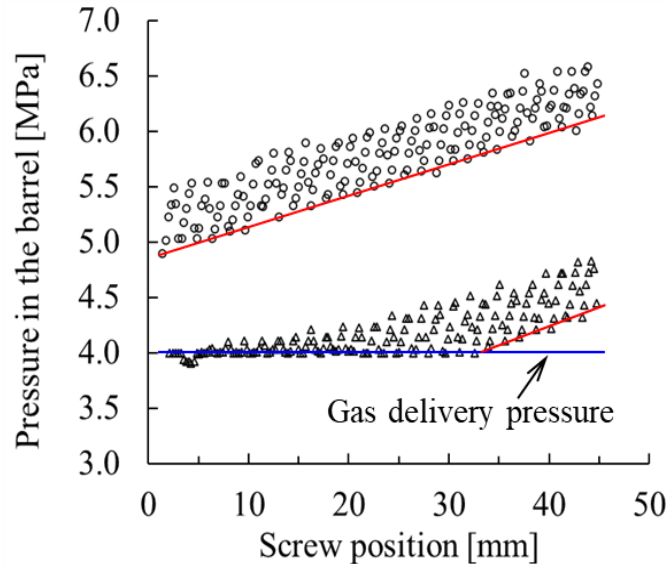


Fig. 3-17 Relationship between screw position and polymer pressure in zone C during metering operation under two back pressure conditions.
The lower lines: the lowest value of pressure fluctuation.
(Δ : Back pressure 10MPa, $\circ$: Back pressure 12 MPa)

Table 3-6 Estimated relationship between polymer pressure at Zone C of the screw position under the high back pressure. P_b of the resin pressure

Conditions	Regression equation]
Back pressure 10 MPa	$P_b \text{ MPa} = 31.0L_\ell + 3.04 \text{ (} P_b \geq 4 \text{ MPa)}$
Back pressure 12 MPa	$P_b \text{ MPa} = 30.6L_\ell + 4.89 \text{ (} P_b \geq 4 \text{ MPa)}$

実験結果では，図 3-15 (a) に示すように背圧 4 MPa から 8 MPa の範囲でも CO₂ 濃度が変化しており，Zone C への充填状態の延伸による非充填領域の長さの変化だけでは，CO₂ の濃度変化を説明できない．背圧を下げていくと，Zone C だけでなく，第 2 圧縮部や第 2 計量部 (Zone D) の一部も非充填状態になっていく可能性があると考える．

次に，(3-9) 式を使って Zone C における圧力勾配 $\Delta P_p / \Delta L_\ell$ を計算し，背圧とバレル温度の設定が CO₂ 濃度に与える影響を，バレル温度を変えたときに起こる圧力勾配と非充填領域の長さの変化から検討した．背圧およびバレル温度を変化させた時の圧力勾配 $\Delta P_p / \Delta L_\ell$ の推算値を背圧とバレル温度に対してプロットしたものを図 3-18 に示す．圧力勾配 $\Delta P_p / \Delta L_\ell$ は，背圧に対して一定になっている．一方で，圧力勾配は，バレル温度に対して

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

は反比例して減少し、210 °Cに対して 230 °Cで 20 %減少した．スクリー回転数に対しては 100 min⁻¹に対して 140 min⁻¹で 20%増加した．圧力勾配の推定値は実験値（表 3-6）の 6 割程度と低く，計算精度には課題を残したものの，図 3-13 および図 3-14 に示した樹脂（バレル）温度を変更した際の CO₂ 濃度の変化に対応している．

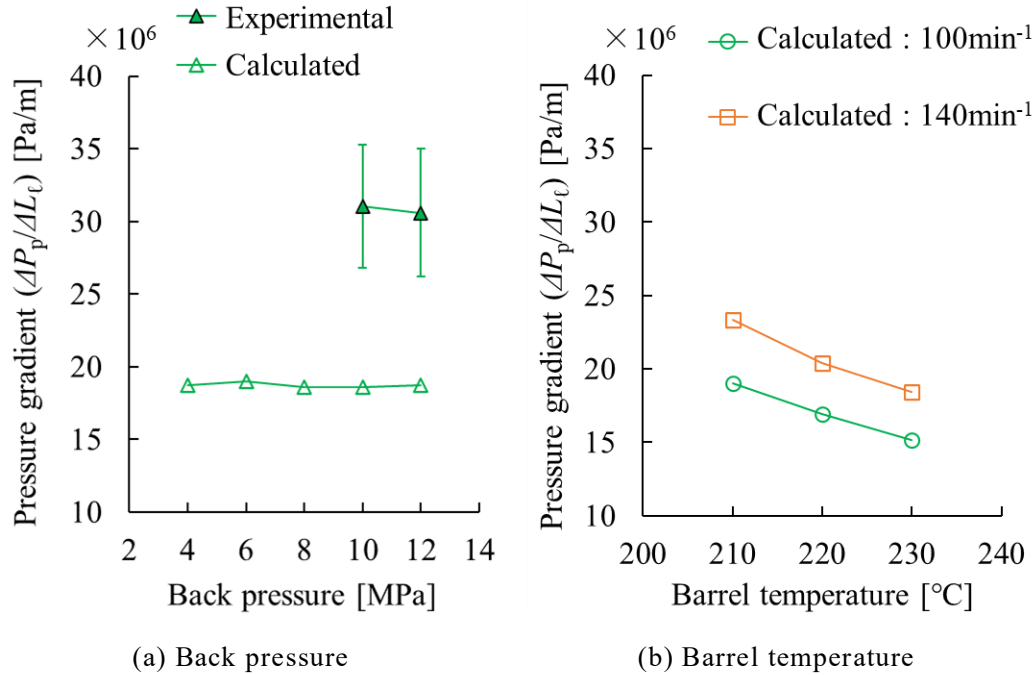


Fig. 3-18 Relationship between (a) back pressure, (b) barrel temperature and the estimated pressure gradient in Zone C.

図 3-19 に圧力勾配 $\Delta P_p / \Delta L_\ell$ と CO₂ 濃度の関係を示す．圧力勾配に $\Delta P_p / \Delta L_\ell$ 比例して CO₂ 濃度は増加し， s_m が大きい場合には，その比例関係は高濃度側にシフトしていることがわかる．スクリー先端の樹脂圧力は背圧により決まり，圧力勾配が大きいことは，圧縮・昇圧に要する充満領域の長さが Zone D 減少して非充満領域の長さが Zone C の長さよりも長くなっている可能性を意味する．これにより，CO₂ と樹脂の接触面積が大きくなり CO₂ 濃度が増加したと考えられる．以上より，スクリー回転中の CO₂ の溶解には，背圧と圧力勾配により決まる非充満領域の長さ $L_{z-starv}$ ，および比表面積 S_m の双方が影響するといえる．

3.7.3 節では，樹脂と CO₂ との接触面積は $S_m \times L_{z-starv}$ に比例し，接触面積が増加することにより CO₂ 濃度も増加すると述べた．一方で，表 3-6 に提示した式より，背圧を変更した場合の $L_{z-starv}$ は推定できるものの，背圧以外の条件の変更については計量中に樹脂圧力の増加を検出できなかったため，圧力増加の開始位置（非充満領域と充満領域の境界）および圧力勾配が不明確で， $L_{z-starv}$ の正確な値を推定することは難しい．背圧が一定の条件下では， $L_{z-starv}$ は圧力勾配に比例して増加すると考えられるので， $L_{z-starv}$ の代替指標

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

として圧力勾配 $\Delta P_p/\Delta L_\ell$ を用い、 $S_m \Delta P_p/\Delta L_\ell$ と CO_2 濃度の関係を検討した。スクリー回転数および樹脂温度を変化させた場合の $S_m \Delta P_p/\Delta L_\ell$ [$\text{Pa} \cdot \text{m}/\text{kg}$]と CO_2 濃度との関係を図 3-20 に示す。 $S_m \Delta P_p/\Delta L_\ell$ の増加にともなって CO_2 濃度が増加しており、これらのデータより、非充填領域の樹脂の表面積に比例して CO_2 濃度が増加するという仮説が裏付けられた。

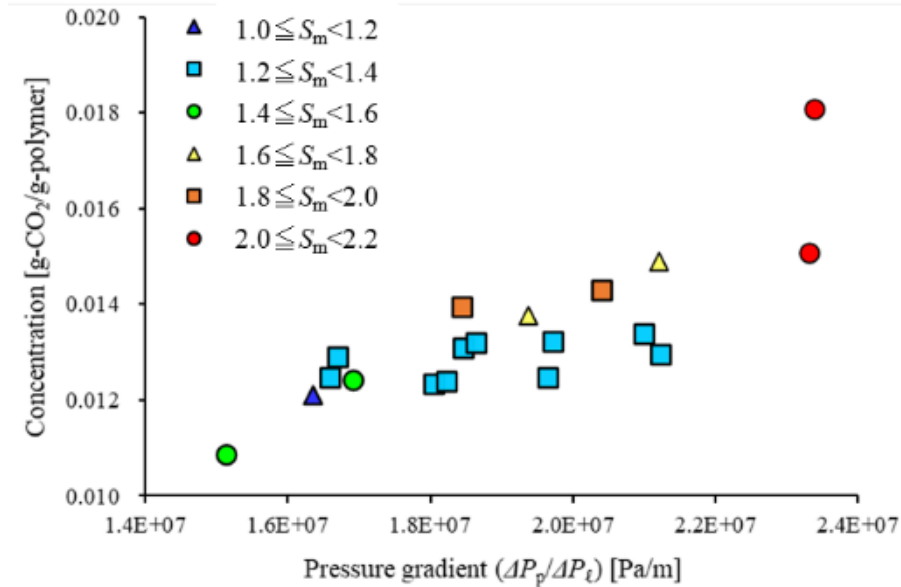


Fig. 3-19 Effects of pressure gradient $\Delta P_p/\Delta L_\ell$ and specific surface area S_m on CO_2 concentration.

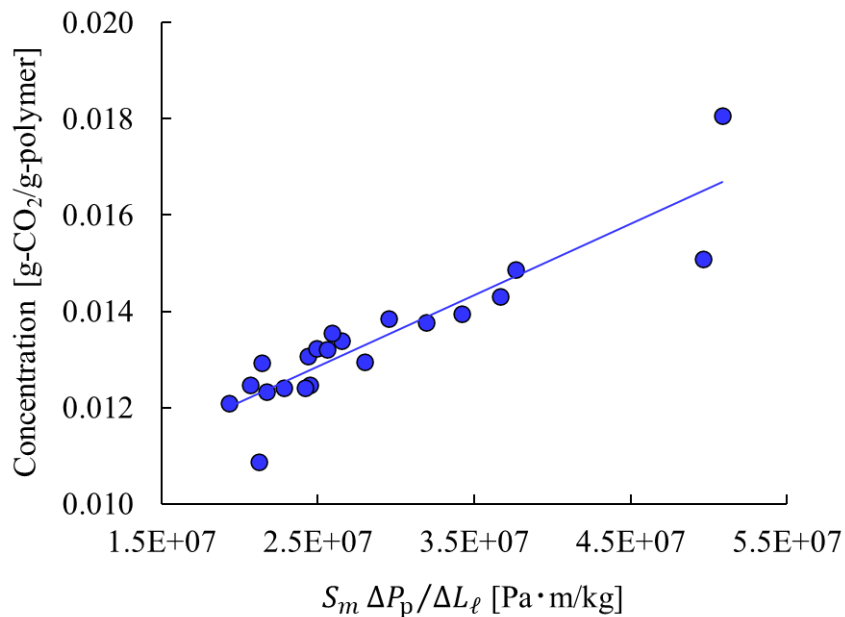


Fig. 3-20 Effects of specific surface area S_m and pressure gradient $\Delta P_p/\Delta L_\ell$ on CO_2 concentration.

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

3.7.5 表面更新度の CO₂ 濃度への影響

スクリー回転中のフライトに垂直な x 方向(A-B断面)の樹脂の流速 v_x [m/s] は, z 方向の流速 v_z と同様に x 方向のバレル壁面の樹脂のせん断速度 $\pi D_b N \sin \theta$ に起因するせん断流れおよびそれにより生じる圧力流れによって与えられる¹⁷⁾. 本試験でのスクリー回転数 80 min^{-1} から 140 min^{-1} において, 平均流速 $|\bar{v}_x|$ は, 0.008 m/s から 0.014 m/s と速いため, 旋回流による物質移動が樹脂中の濃度を決める上で支配的となると考えられる. 非充填領域の長さが同じ場合, 樹脂の流速はスクリー回転数 N に比例し, 非充填領域における滞留時間はスクリー回転数 N に反比例するため, 樹脂の y 方向流速と滞留時間の積である樹脂の表面更新流れの流動距離は, スクリー回転数によらず一定となると考えられる.

また, 非充填領域における樹脂の滞留時間は非充填領域の長さに比例する. そのため, 単位体積当たりの樹脂の表面更新回数は, 樹脂の z 方向流動距離と S_m に比例して増加するといえる.

スクリー回転数 N が高い場合, 充填領域における圧力勾配 $\Delta P_p / \Delta L_\ell$ が大きくなり, 非充填領域の長さが増加するため, 樹脂の表面積および z 方向流動距離はいずれも増加し, 単位体積当たりの表面更新回数が増加する. その結果, CO₂ 濃度は, S_m および充填領域の樹脂の圧力勾配に比例する. これらのことより, スクリー回転により CO₂ の溶解は, 表面更新により促進されることが示唆された.

3.7.6 スクリー回転停止中の CO₂ の溶解

計量工程の終了後, 冷却工程でスクリー回転が停止中の CO₂ の溶解挙動を検討するため, 基準条件に対して冷却時間を変化させてスクリー回転が停止し待機する間の時間 (待機時間※4) における CO₂ 濃度の変化を検討した. その結果を図 3-21 に示す.

CO₂ 濃度は, 300 s までは, 冷却時間に比例して 1.51 倍に増加したが, その増加速度は徐々に緩やかになった. 図 3-22 に描くように, (a) スクリー回転中は旋回流により樹脂が流動するが, (b) 待機中は外力が働かず, また樹脂粘度が高いことから, 樹脂はスクリー回転中と同じ状態で静止した状態となり, 樹脂との接触界面から CO₂ が拡散すると考えられる. 本研究で用いた NIR 法では, 射出中に吐出される樹脂の物理発泡剤濃度 C_{inj} [g-CO₂/g-polymer] を評価している. 非充填領域内の樹脂量 $V_{p-starv}$ は, 射出する樹脂量 V_{p-inj} より少ないため, 計量工程中に入れ替わることになる. そのため, 射出中に吐出される樹脂の物理発泡剤濃度 C_{inj} は, 待機時間 t 秒後の非充填領域内の滞留樹脂の物理発泡剤濃度

※4: 本論文における待機時間は, サイクル時間の内, 計量工程を除いたスクリーが回転していない時間とした. 本試験では, サイクルタイムは冷却時間 + 20s であり, その内の約 18s が計量時間である. 冷却時間を 20s とすると, サイクルタイムは 40s, 待機時間は 22s となる.

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

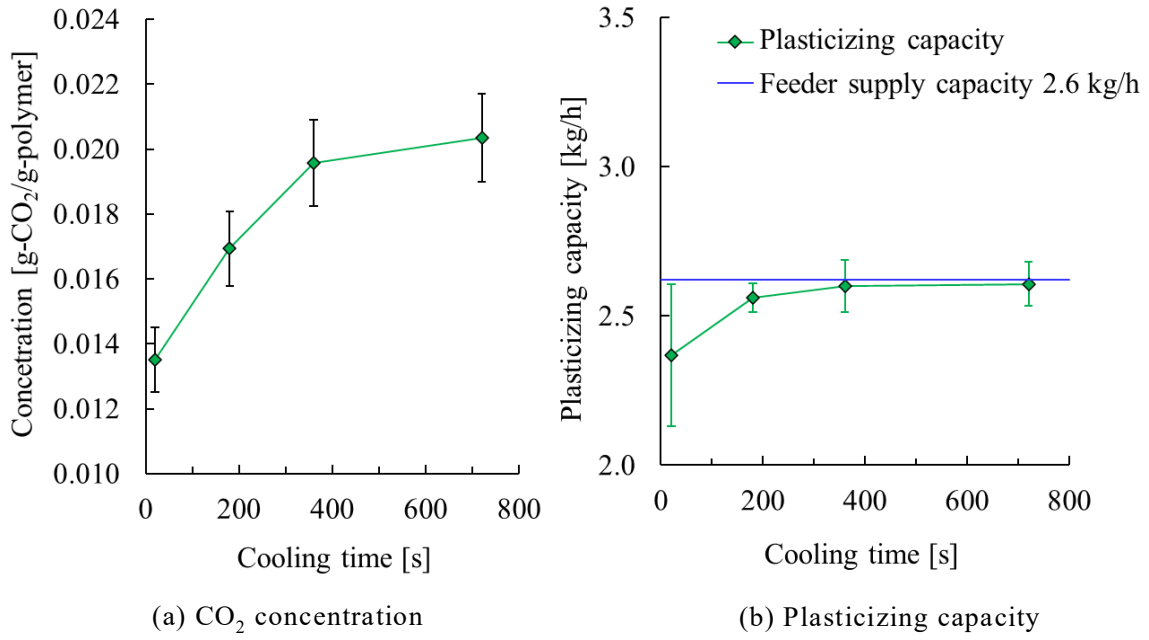


Fig. 3-21 Effect of cooling time on (a) CO₂ concentration and (b) plasticizing capacity.

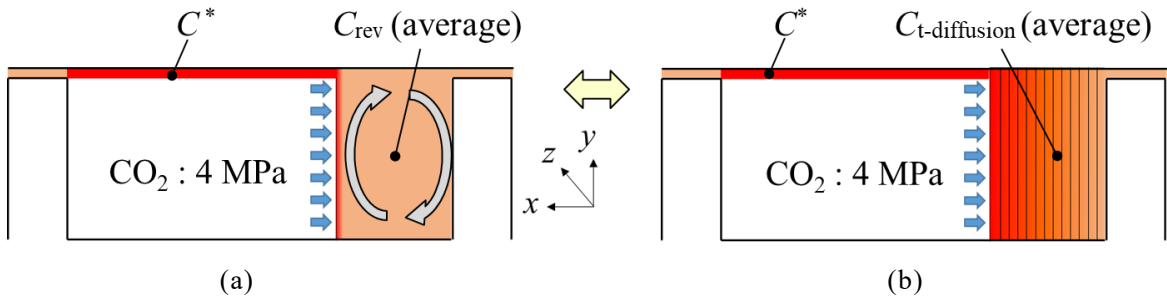


Fig. 3-22 Cross-sectional view of the polymer flow in zone C.

(a) During screw rotation,

(b) t seconds after the screw stops rotating.

$C_{t\text{-diffusion}}$ [g-CO₂/g-polymer] と、スクリー回転中に待機時間を経ずに射出される樹脂の平均物理発泡剤濃度 C_{rev} [g-CO₂/g-polymer] の合計の平均値として以下の式で求められる。

$$C_{\text{inj}} = \frac{\rho(V_{\text{p-inj}} - V_{\text{p-starv}} - V_{\text{p-film}})C_{\text{rev}} + \rho V_{\text{p-starv}}C_{t\text{-diffusion}} + \rho V_{\text{p-film}}C^*}{\rho V_{\text{p-inj}}} \quad (3-10)$$

ここで、 C^* はガス供給圧力における CO₂ の溶解度 [g-CO₂/g-polymer] を表す。

また、バレル壁面のフィルム状の樹脂は短時間で溶解度 C^* になると考えられるため、次のスクリー回転までに C^* になるという意味で、物理発泡剤濃度を C^* と設定した。

待機時間中、CO₂ は Active flight の樹脂の表面から拡散溶解する。その拡散挙動は、Fick の第 2 法則に従うと考える。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_m \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (3-11)$$

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

D_m は拡散係数 [m^2/s] である．境界条件として， $0 \leq x \leq w_p$ ， $t=0$ ， $C=C_{\text{rev}}$ ，および $x=0$ ， $C=C^*$ を与えた（図 3-22）．また，モデルを単純化するため，非充填領域の Active flight の樹脂の形状は矩形で，スクリー回転停止時には物理発泡剤濃度に分布がなく全体が同じ濃度であるとした．

物理発泡剤濃度の計算には有限体積法的一种であるコントロールボリューム法²¹⁾を用い，フライトと垂直な x 方向における CO_2 濃度の時間変動について一次元解析を行った．表 3-7 に解析条件を示す．拡散係数 D_m ²⁰⁾，および CO_2 の溶解度 C^* ⁶⁾ は，文献値を用いた．このとき， C_{rev} は未知の値であるため，最小二乗法により，(3-10) 式で求めた解析値と実験値との誤差が最小になる C_{rev} ，および $C_{\text{t-diffusion}}$ を求めた．

C_{inj} の推定結果を図 3-23 に示す． CO_2 は， C^* との差分に比例して溶解するため， CO_2 濃度の増加にともない曲線の傾きは小さくなる．実験値と推定値とは，この傾向が一致して

Table 3-7 parameter values for CO_2 concentration calculation.

Parameters	Symbol	Unit	Conditions
Cycle time		[s]	Cooling time +20
Screw recovery time	t_r	[s]	18
Diffusion coefficient	D_m	[m^2/s]	8.0×10^{-9} (at 190°C) ²¹⁾
Solubility	C^*	[g- CO_2 /g-polymer]	2.72×10^{-2} (at 207°C , 4MPa) ⁶⁾
Polymer width	w_p	[m]	3.75×10^{-3}
Length of polymer-starvation zone	$L_{z\text{-starv}}$	[m]	4.95×10^{-1}

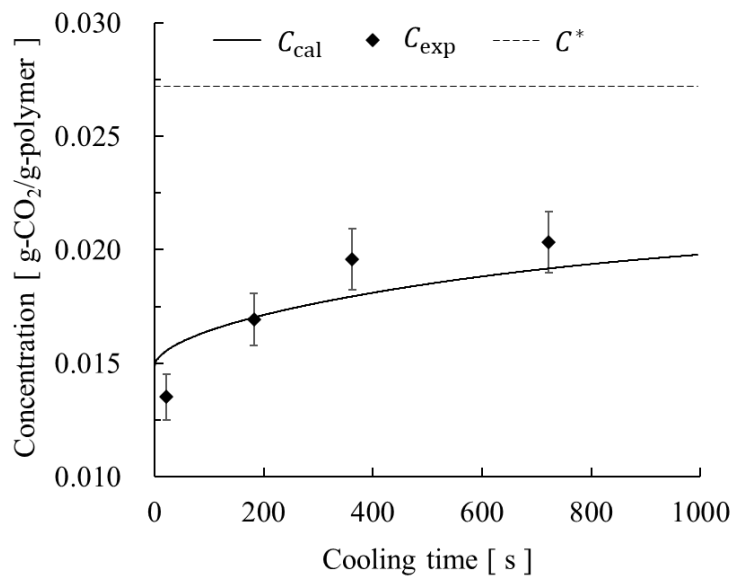


Fig. 3-23 Relationship between CO_2 concentration and cooling time.

(C_{exp} : experiment, C_{cal} : calculation, C^* : solubility)

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

おり、待機時間中にも、CO₂が樹脂に拡散・溶解することが示された。一方で、CO₂濃度の推定値は、実験値と比べて傾きが小さかった。熔融樹脂断面を矩形として計算したが、スクリー回転にともなうバレル壁面とのせん断による流動と樹脂の流動がフライトと衝突して生じる圧力により、図 3-9 のように、樹脂は、バレル壁面側が狭く、高さ方向中央付近が膨らんだ形状になるはずである。この形状の差により、実験では非充填領域の樹脂の表面積の増加し、物理発泡剤の溶解量が増加するため、CO₂濃度の傾きが計算値より大きくなったと思われる。一方で、射出成形で一般的な 60 s 以下の成形サイクルに限定すると、樹脂形状による表面積増加の影響は軽微であり、誤差として無視できるものといえる。

3.8 結言

近赤外分光法を適用して、開発した低圧物理発泡射出成形機（SOFIT）において樹脂中に溶解する物理発泡剤（CO₂）を測定し、各種操作条件と濃度の因果関係を明確にした。射出樹脂中に溶解する CO₂ の濃度はスクリー回転数と冷却時間に比例し、材料供給速度、バレル温度、背圧に反比例した。また、その影響度は、実験条件の範囲内では、背圧 > 冷却時間 > 材料供給速度 > バレル温度 > スクリー回転数の順となった。これらの条件を変更することで、非充填領域の樹脂の比表面積 S_m とその長さ $L_{z-starv}$ が変化しており、その影響で CO₂ 濃度が変化したと推察される。CO₂ は、スクリー回転中とスクリー回転停止中で異なる溶解方式を示す。スクリー回転中の CO₂ 濃度は、非充填領域における比表面積 S_m 、および背圧と充填領域の圧力勾配により決まる非充填領域の長さ $L_{z-starv}$ の増加にともなって増加した。 $L_{z-starv}$ の代替指標として計算可能な $\Delta P_p / \Delta L_\ell$ を用いて、比表面積との積 $S_m \Delta P_p / \Delta L_\ell$ とすると、CO₂ の挙動を精度よく予測できることを示した。スクリー回転中、CO₂ は、樹脂の表面から拡散・溶解し、バレルと樹脂とのせん断により生じる表面更新により増進されることが示唆された。また、待機中の CO₂ の溶解は、非充填領域の樹脂表面からの拡散により生じることが示された。これらの結果は、図 3-22 のガス溶解モデルを支持している。第 4 章では、本章で導出した式と、これらの結果を基に、バレル内での樹脂の流動挙動、表面更新による物理発泡剤の溶解挙動をモデル化し、計算シミュレーションを実施した結果について述べる。

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

参考文献

1. 瀧健太郎, 大槻安彦 : 成形加工, 18 (3), 205 (2006)
2. Taki, K. : *Chem. Eng. Sci.*, 63, 3643 (2008)
3. Nagata, T., Tanigaki, M. and Ohshima, M., : *Polym. Eng. Sci.* 40 (8), 1843 (2000)
4. 細江俊介, 引間悠太, 大嶋正裕, 渡正博, 内藤章弘 : 成形加工, 33 (5), 176 (2021)
5. 尾崎幸洋, 池羽田晶文 : 分光研究, 53 (1), 43 (2004)
6. Yoshikawa, I., Hosoe, S., Hikima, Y., Watari, M. and Ohshima, M. : *Ind. Eng. Chem. Res.*, 62 (15), 6338 (2023)
7. Guadagno, T. and Kazarian, S. G., : *J. Phys. Chem. B*, 108 (37), 13995 (2004)
8. Wang, L., Hikima, Y., Ohshima, M., Yusa, A., Yamamoto, S. and Goto, H. : *Ind. Eng. Chem. Res.*, 56, 13734 (2017)
9. 遊佐敦, 山本智史, 後藤英人 : 成形加工, 30 (6), 234 (2018)
10. 内藤章弘, 玉田光一, 中島英昭, 上園裕正, 辻和也, 引間悠太, 大嶋正裕 : 日本製鋼所技法, 70, 57 (2019)
11. 龍野道宏, 横井秀俊 : 生産研究, 73 (5), 401 (2021)
12. Marschik, C., Löw-Baselli, B. and Miethlinger, J., : *AIP Conf. Proc.* 1914, 080006 (2017)
13. Latinen, G. A. : *ACS Adv. Chem.*, 34, 235 (1962)
14. 富山秀樹, 高本誠二, 新谷浩昭, 井上茂樹 : 成形加工, 19 (9), 565 (2007)
15. 久保田威夫 : 日本ゴム協会誌, 31 (4), 290 (1958)
16. 村上健吉監修 : 押出成形 改訂第7版 (高島直一, 田中勝一, 梶田好平, 村上健吉, 八木博編), *プラスチック・エージ*, 48-50 (1985)
17. Tadmor, Z. and Klein, I., : *Engineering Principles of Plasticating Extrusion*, Van Nostrand Reinhold Company, 209 (1970)
18. Squires, P. H., : *SPE Journal*, 14, 24 (1958)
19. Hisakura, Y., Hisamitsu, I., Sugihara, M., Tanifuji, S. -I. and Hamada, H. : *Int. Polym. Process.*, 33 (5), 652 (2018)
20. Otsuki, Y. and Kanai, T. ; *Polym. Eng. Sci.*, 45 (9), 1277 (2005)
21. スハス V. パタンカー 原著, 水谷幸夫, 香月正司 訳 : コンピュータによる熱移動と流れの数値解析, 森北出版 (1985)

付録 A-1 記号表

Nomenclature	
A	Absorbance
C	CO ₂ concentration [g-CO ₂ /g-polymer]
C^*	Solubility [g-CO ₂ /g-polymer]
C_{inj}, C_{rev}	Average CO ₂ Concentration of polymer at barrel outlet during injection and screw rotation [g-CO ₂ /g-polymer]
$C_{t-diffusion}$	Average CO ₂ Concentration of polymer at barrel outlet t seconds after the screw stops [g-CO ₂ /g-polymer]
D_b	Screw diameter [m]
D_m	diffusion coefficient [m ² /s]
e	Flight width of screw [m]
h	Flight height [m]
L	Optical path length
L_z, L_ℓ	Parallel and axial length [m]
$L_{\ell-st}$	Injection stroke [m]
$L_{z-starv}$	Parallel length of screw flight in polymer-starvation zone [m]
$L_{\ell-starv}$	Axial length of polymer-starvation zone [m]
N	Screw rotation speed [s ⁻¹]
n_f	Number of flight [-]
P_b	Pressure at resin pressure sensor [Pa]
P_p	Pressure of resin [Pa]
Q_m	Plasticizing capacity [kg/s]
Q_{Vz}	volumetric flow rate of resin [m ³ /s]
S_m	Specific surface area [m ² /kg]
t	Time [s]
t_r	Recovery time [s]
t_{sf}	Flight Pitch [m]
$v_{z-starv}$	Flow velocity parallel to the screw flight in polymer-starvation zone [m/s]
$V_{p-film}, V_{p-starv}$	Volume of film polymer on barrel and polymer on active flight in polymer-starvation zone [m ³]
V_{p-inj}	Volume of injection polymer [m ³]
w_f, w_p	Width of screw channel and polymer in polymer-starvation zone [m]
x, y, z	Perpendicular, height, parallel direction to screw flight
α, β	Constants
δ_f	Thickness of film polymer on barrel (Flight clearance) [m]
ε	molar extinction coefficient
η	Viscosity [Pa/s]
θ	Flight angle of screw [rad]
ρ	Density of polymer [kg/m ³]

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

付録 A-2 圧力勾配の導出

以下では、3.7.4 で表 3-6 に示した圧力勾配の導出について説明する．本文にも書いたが、圧力波形は各ショットで圧力増加の開始位置などのばらつきがあったため、以下のデータ処理を行った．

1. 各スクリー位置における圧力の振動波形で最も低い値を抽出した（図 A-1 (a), (b)）．
2. 1. の値から、計量工程開始前の待機時間中の測定圧力（平均値）とガス供給圧力 4 MPa（図 A-2）の差分を差し引き、供給ガス圧力の影響を除去した圧力値を樹脂圧の値 P_b とした（図 A-3 (a), (b)）．
3. 連続 20 ショットの内の 10 ショット分について、1., 2. の処理を行い、それぞれのショット内において、樹脂圧力が 4.1 MPa を超えるデータ（図 A-4 (a), (b)）の回帰直線の傾きと切片を求めた．10 ショットの内、傾きの最大値、最小値となったデータを除いた 8 ショット分のデータの平均値を充满領域の始まりのスクリー位置として回帰直線を導出した（表 A-1）．

まず、1. 工程においてバレル内圧力の振動波形で最も低い値を抽出したものを図 A-1 に示す．背圧 10 MPa においては、圧力が増加し始めてからの傾きはいずれも同程度であるが、圧力増加の開始位置にばらつきが大きいことが分かる（図 A-1(a)）．また、背圧 12 MPa においても、スクリー回転開始直後にバレル内圧力が 5 MPa に達してからの圧力増加開始の開始位置にばらつきがあることが分かる（図 A-1(b)）．

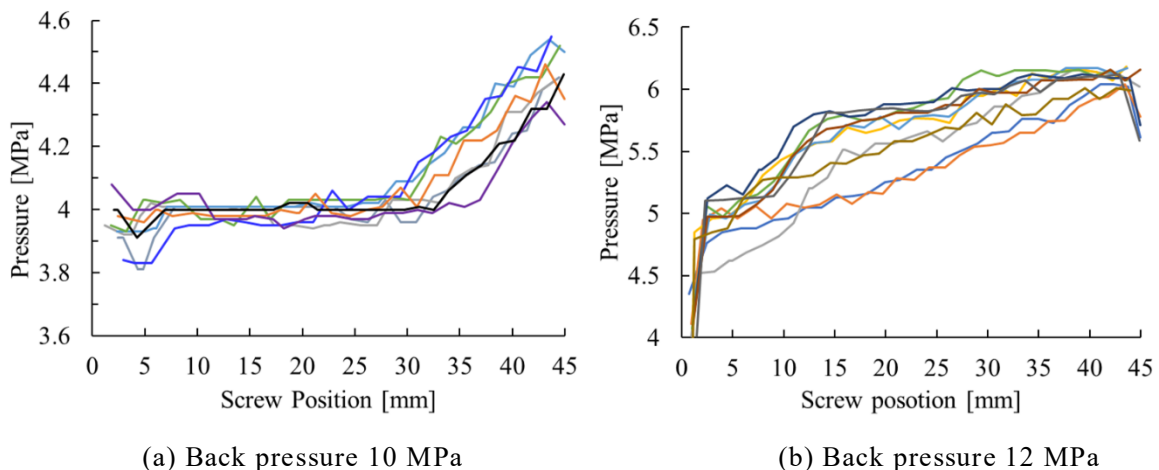


Fig. A-1 Overlay of screw position and pressure waveforms during screw rotation at screw back pressure 10 MPa and 12 MPa.

この時の背圧 10 MPa の条件下での圧力増加の開始位置と前ショットの待機時間中^{※5}の平均バレル内圧力との関係を図 A-2 に示す．傾向の異なる 2 点（図中の▲）を除く 8 ショット分のデータ（図中の◆）では、圧力増加の開始と待機中のバレル内圧力は線形関係にあり、強い相関を示した．待機中、樹脂圧力センサは非充满状態にあり、非充满領域に供

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

給されたガスの圧力は等方的に作用するため、スクリー回転中のスクリー先端圧力（背圧）は、スクリーで昇圧した圧力とガスで後方から押される圧力との合成となる。そのため、バレル内に作用するガス供給圧力が高い場合は、スクリーで昇圧する圧力が低くなるため、圧力増加の開始位置が下流側に移動し、逆の場合には圧力増加の開始位置が上流側に移動すると考えた。そこで、図 A-1 の値から、計量工程開始前の待機時間中の測定圧力（平均値）とガス供給圧力 4 MPa の差分を差し引いて、供給ガス圧力の影響を除去した圧力値を樹脂圧の値 P_b とした。また、背圧 12 MPa についても同様に処理した。

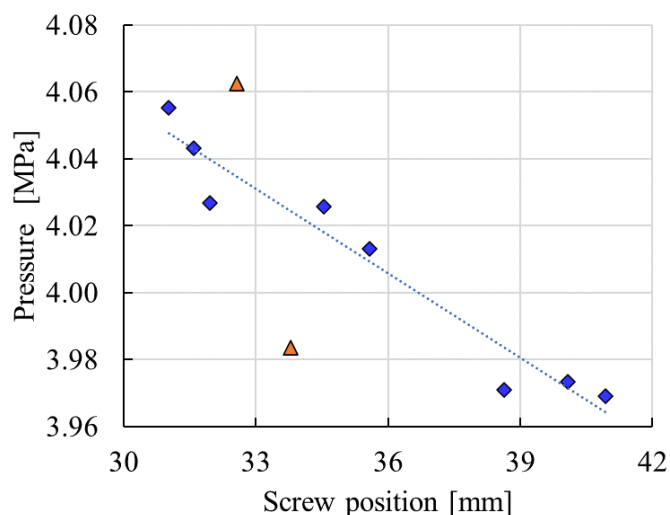


Fig. A-2 Relationship between screw position where pressure begins to increase and pressure in barrel at screw in waiting time at back pressure 10 MPa.

スクリー位置と樹脂圧の値 P_b の関係を図 A-3 に示す。図 A-1 に比べると圧力増加の開始位置などのばらつきが減少していることが分かる。

図 A-3 の圧力増加の開始位置以降よりスクリー位置の大きいデータを抽出し、プロットしたものが図 A-4 である。スクリー位置 0～3 mm ではスクリー回転直後の昇圧過程のデータが含まれるため、またスクリー位置 43～45 mm ではスクリー回転の減速の影響でバレル内圧力が低下したデータが含まれるため、図 A-4 からは除いている。当初、図 A-4 の全データから回帰直線を求めることを考えた。しかし、図 A-4(a)に示した背圧 10 MPa のデータでは、図 A-4(a)の右下の圧力増加の開始位置の高いグループ（図中の●）は、左側の圧力増加の開始位置の低いグループ（図中の○）と比べて 1 ショット当たりのデータ点数が少ない。そのため、前標本データからの最小二乗法で得られた直線は、傾きが小さく、切片が大きくなり、図 A-3 の各波形の傾きと異なる結果となった。そこで、ショット毎に傾きと切片を算出し、その平均値から回帰直線の傾きと切片を求めた結果を表

※5：20 ショットの連続成形中の圧力波形を検討しているため、ここでの成形開始前の待機時間中とは、前の成形における計量完了後の冷却、型開き、製品取出し、型閉じなどの各工程を表す。

第3章 物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響

A-1 に示す。本文では、この結果を表 3-6 として示した。

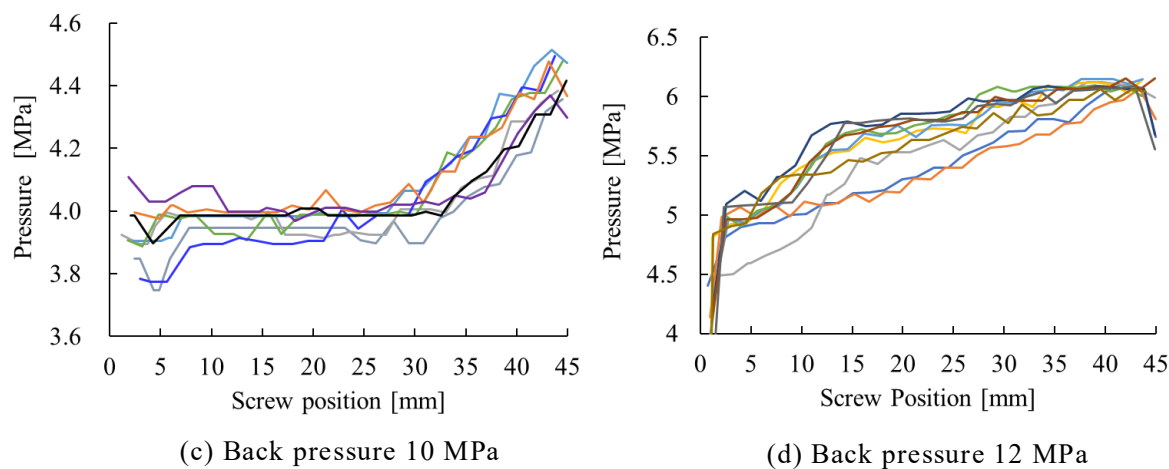


Fig. A-3 Overlay of screw position and pressure waveforms during screw rotation at screw back pressure 10 MPa and 12 MPa after pressure correction.

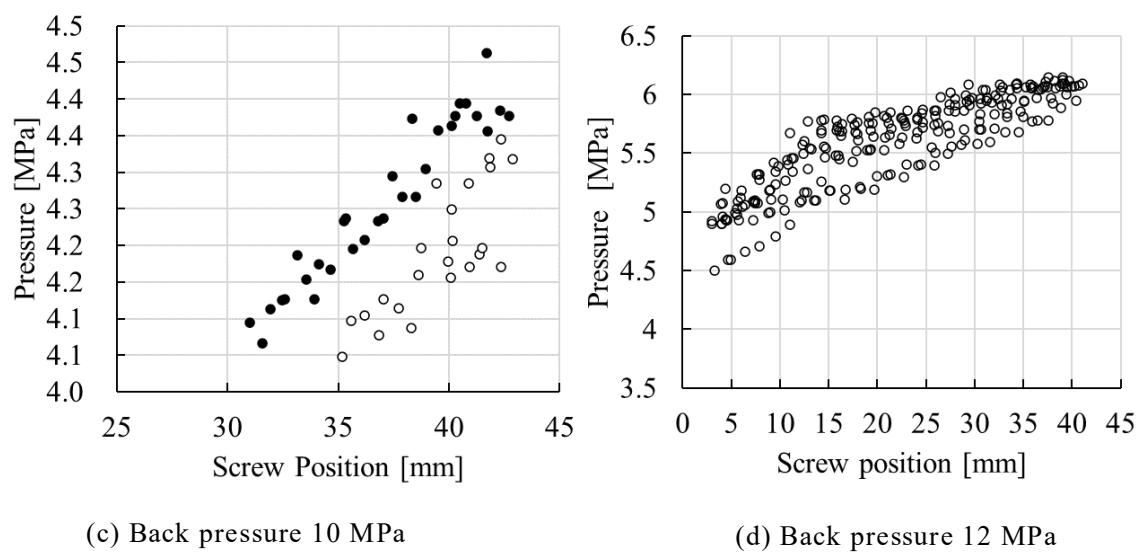


Fig. A-4 Plot of screw position and barrel pressure for each shot at screw back pressure 10 MPa and 12 MPa.

Table A-1 The slope and intercept of the estimated regression line.

	Back pressure 10 MPa		Back pressure 12MPa	
	Slope	Intercept	Slope	Intercept
Estimated value	0.0310	3.04	0.0306	4.89
Standard deviation	0.0042	0.20	0.0044	0.18

第 4 章

物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法

第4章 物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法

4.1 緒言

発泡射出成形において、樹脂の発泡挙動は樹脂物性、温度、圧力および樹脂中に溶けている物理発泡剤の濃度に依存する^{1,2)}。樹脂中の発泡剤の溶解度はヘンリー則に従い、開発した低圧発泡射出成形装置では、樹脂に溶解する物理発泡剤の濃度は物理発泡剤として使用するガスの供給圧力に比例する^{3,4)}。ただし、成形プロセスでは溶解平衡に達する時間よりも短い時間で成形しているため、物理発泡剤濃度は溶解度に達しておらず、スクリー回転数やフィードからの樹脂供給速度、バレル温度、冷却時間などの成形条件によっても変化する。第3章では、物理発泡剤の溶解に及ぼすこれらの成形条件の影響を検討し、スクリー回転中の物理発泡剤濃度は、非充填領域の表面積（比表面積×長さ）に比例し、非充填領域での滞留時間よりも単位体積当たりの樹脂の表面更新回数に依存することを明らかにした。また、物理発泡剤濃度は、スクリー回転停止時間が長いほど増加した。これらは、非充填領域において、物理発泡剤が樹脂とガスの接触界面から拡散により樹脂に溶解することを示唆している。これらの結果を発展させ、型締め力の異なる装置の設計に活用できるようにするために、本章では、非充填領域における物理発泡剤の溶解挙動を数式モデル化し計算機シミュレーションによる検討を行った。

開発した発泡射出成形機の非充填領域における物理発泡剤の溶解挙動のモデル化には、ほぼ同じ形状のスクリーを用いるベント付き押出機の脱揮の数値モデルを参考にした^{5,6)}。ベント付き押出機も、スクリー途中に樹脂の非充填領域を形成し、樹脂に溶解している水分や低分子の揮発性物質を、樹脂相から気相に拡散させベント孔より装置系外に排出すること（脱揮）を目的としている。すなわち、脱揮の理論では、非充填領域の樹脂と気相の気液界面から拡散により気相中に低分子が揮発すると考える。脱揮の理論モデルでは、樹脂表面からの揮発量を浸透説⁵⁻⁹⁾により推定する事例が多いが^{5,6,9,10)}、二軸押出機ではスクリー溝内での樹脂の旋回流動だけでなく、2本のスクリー間での樹脂の授受の際に生じる表面更新を考慮した解析事例も報告されている¹⁰⁾。本研究で開発した低圧物理発泡成形法では、脱揮とは逆に、物理発泡剤は第3章に示したように気相から樹脂内への拡散により溶解すると考える。また、射出成形機で使用する単軸スクリーでは、二軸押出機のようなスクリー間での樹脂の授受はないため、旋回流動に起因する表面更新のみが生じる。そこで、本章では、浸透説を基本とした非充填領域の樹脂の旋回流動による物理発泡剤の溶解の理論モデルを導出するとともに、有限体積法の一つであるコントロール・ボリューム法¹¹⁾による数値解析を行い、数値解析の結果からバレル内で生じる現象を推定することを目的とした。

4.2 実験方法

実験値とモデルによる計算値との比較には、第3章の物理発泡剤（CO₂）濃度のデータを用いた。成形プロセスやスクリーの構成については、第3章で述べたので本章では概

第4章 物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法

略の説明に留める．第3章と同様に型締め力35トンの低圧物理発泡射出成形機（SOFIT, J35AD-30H, (株)日本製鋼所）を実験とモデルによる推算値の検証に用いた．本成形機のシャットオフノズルの手前に流路長 8mm となるように耐熱耐圧性の透過型近赤外分光（near-infrared spectroscopy : NIR）プローブを取り付け（第3章の図 3-2, 図 3-3），光ファイバーを用いてフーリエ変換型分光光度計（FT-NIR, FLR1000L, 横河電機(株)）に接続した．物理発泡剤として CO₂（純度 99.9%, (株)泉産業）を用い，ホモポリプロピレン（PP, J105G, (株)プライムポリマー）に溶解した CO₂ 濃度を 4950cm⁻¹ 近傍の近赤外吸光スペクトルの変化により測定した^{3,4)}．これらは第3章に記述した装置セットアップと同じである．

射出成形条件を表 4-1 に示す．基準条件（表 4-1 の Base condition : 青字部）に対して，成形機のスクリー回転数（以下，スクリー回転数），フィーダのスクリー回転数（以下，材料供給速度），バレル温度，冷却時間を変更して，各条件で 20 ショットの成形を行い，NIR により，熔融樹脂中の CO₂ 濃度を測定した．表中の青文字は基準状態の設定値を示し，各項目で右欄は，その項目の物理発泡剤濃度への影響を見るために変更した値を示している．バレル温度に関しては，ホップ側からシャットオフノズルまで，8 ブロックで独立に温度設定ができ，ブロックごとの設定値を示している．以下の議論の中でバレル温度とは，Zone B-D の温度制御をするブロックの設定値（表 4-1 中の赤字部）を意味する．NIR の測定実験の方法^{3,4)}および結果の詳細は，第3章に詳述したので省略する．

Table 4-1 Molding conditions of the physical foam injection molding machine.

Parameters	Symbol	Base conditions	Conditions
Material		PP	PP (J-105G, Prime Polymer Co., Ltd.)
Physical blowing agent		CO ₂	CO ₂
Gas delivery pressure [MPa]	-	4	4
Barrel temperature [°C]			210 : 60, 190, 200, 210, 210, 210
from hopper to	-	210	220 : 60, 190, 200, 220, 220, 220
shut-off nozzle			230 : 60, 190, 200, 230, 230, 230
Screw rotation speed [min ⁻¹]	60N	100	80, 100, 120, 140
Polymer supply rate [kg/h]	-	2.6	2.6, 3.1, 4.0
Screw back pressure [MPa]	-	6	6
Metering period [mm]	L _{ℓ-st}	45	45
Injection speed [mm/s]	-	20	20
Injection pressure [MPa]	-	30	30
Holding pressure [MPa]	-	30	30
Mold temperature [°C]	-	40	40
Cooling time [s]	-	20	20, 180, 360, 720

4.3 モデリング

4.3.1 スクリュー回転中の物理発泡剤の溶解モデル

提案するモデルは、スクリューの第2ステージ供給部（第3章の図3-2 Zone C）の非充填領域における物理発泡剤の溶解および樹脂の流動を表現したものである。非充填領域のスクリューフライトの展開図を図4-1及び溶解モデルを図4-2に、数式の導出などで用いた記号の一覧は付録としてまとめておく（各記号は論文内で共通のものを用いている）。スクリューのフライトと垂直な断面における幅方向、高さ方向を各々 x 軸、 y 軸、フライトと平行な方向を z 軸、スクリューの軸方向を ℓ 軸とした。また、図4-1は第3章の図3-7に似ているが、数式モデル導出において簡単化のために非充填領域の長さを第2ステージの供給部の長さと同じとした点、非充填領域の出口（スクリューの第2ステージ供給部のノズル側の終端）を矩形の形状にした点異なる。本来、非充填領域の出口では、押側フライト（図4-1中の Active flight）の樹脂の幅が徐々に広がって引き側フライト（図4-1中の Passive flight）に繋がる遷移領域があるが¹²⁾、モデルでは遷移領域は設けず、非充填領域の出口に続けて充填領域が始まる形状と仮定した。

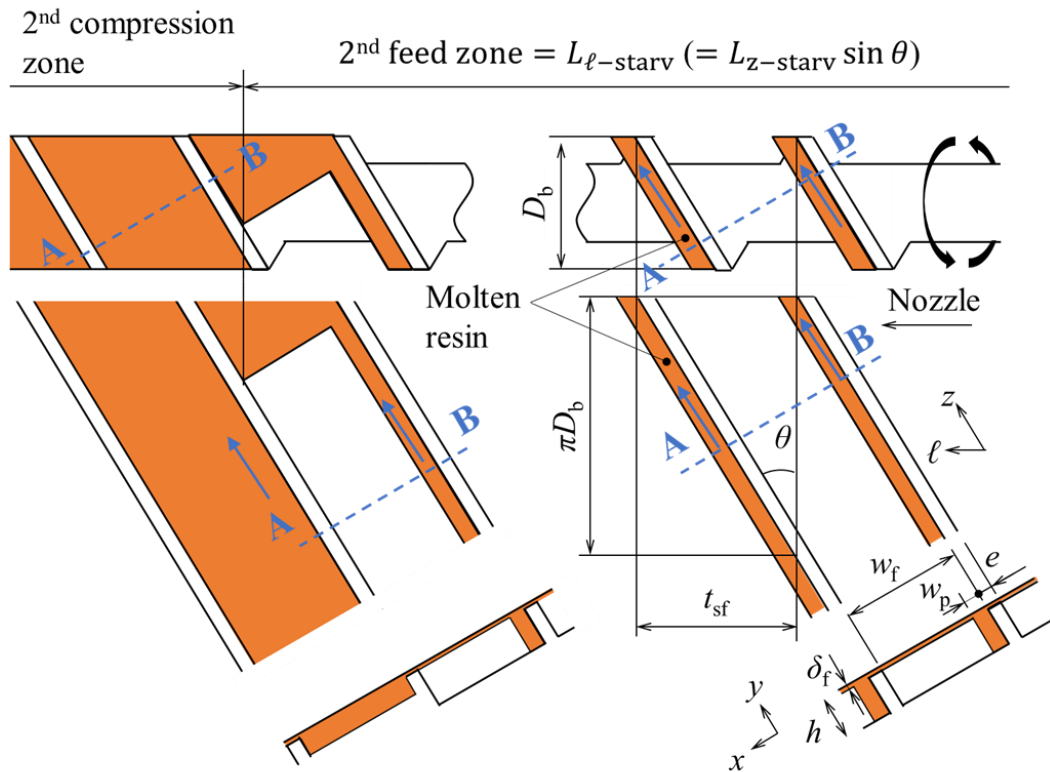
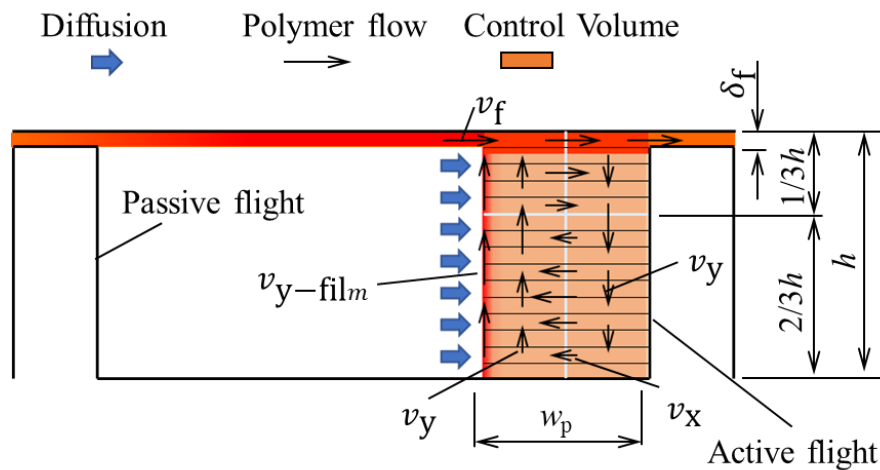


Fig.4-1 Schematic and deployment diagram of polymer-starvation zone of screw, and molten polymer in barrel.

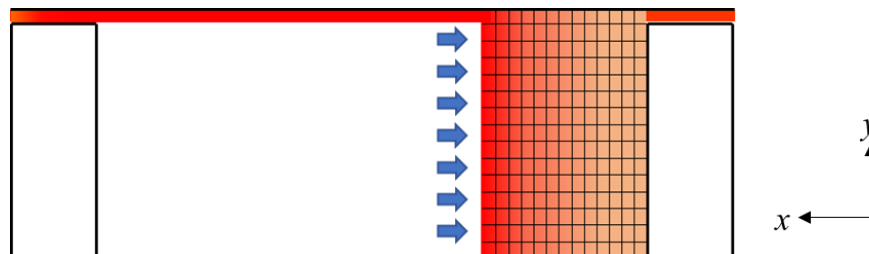
第4章 物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法

非充填領域の樹脂の Active flight の樹脂への物理発泡剤の溶解現象を、Laitinen⁵⁾の脱揮理論を参考に以下のような前提の下でモデル化した：

- 非充填領域の樹脂は，Active flight に沿って下流に向かって流動する樹脂およびバレル壁面の薄膜状の樹脂（バレルとフライトの隙間から漏洩した樹脂）より構成される（図 4-1）^{5,6)}。
- Active flight の樹脂は，スクリー回転時には，バレルと樹脂との x 方向成分のせん断力により生じるせん断流れ，その流れにより生じる圧力流れにより図 4-2 (a)に示すように樹脂は時計回りに旋回流動する^{5,6,13,14)}。
- 浸透説により，気液界面において樹脂側に薄膜層の存在を仮定し，物理発泡剤は，その薄膜層から内部へ拡散・溶解する（図 4-2 (a)の濃いオレンジ色の層）。
- スクリー回転が止まった状態（計量終了後の冷却時），慣性力は働かず，せん断流れと旋回流は瞬時に止まり，表層および Active flight 側にある樹脂だまりの中の物理発泡剤の物質移動だけが起こる（図 4-2(b)）この状況のモデル化は節を改めて述べる。



(a) Polymer flow and mass transfer when screw is rotating



(b) Polymer flow and mass transfer when screw rotation is stopped

Fig. 4-2 Polymer flow and diffusion surfaces model.

第4章 物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法

単位面積当たりの物理発泡剤の平均溶解速度 N_{gs} [g/(m²s)] と物質移動係数 k [m/s] を、以下の式で表す^{5~8)}。

$$N_{gs} = k(C^* - C) \quad (4-1)$$

$$k = 2 \sqrt{\frac{D_m}{\pi \tau_R}} \quad (4-2)$$

ここで、 C^* および C は物理発泡剤供給圧力における溶解度および樹脂内部の物理発泡剤濃度 [g/cm³]、 D_m は供試樹脂における物理発泡剤の拡散係数 [m²/s]、 τ_R は物理発泡剤への暴露時間 [s] を表す。

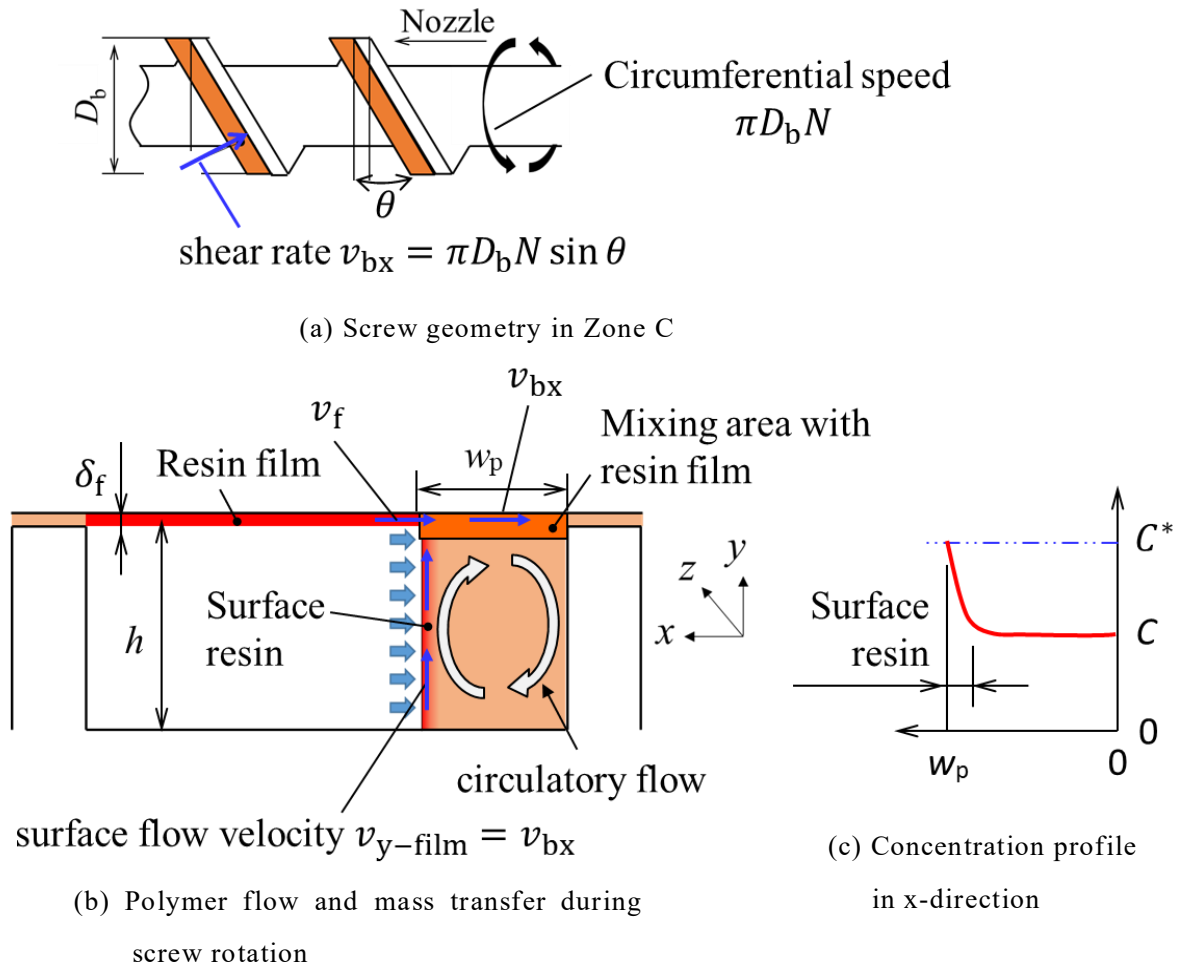


Fig.4-3 Schematic view of polymer-starvation zone (Zone C)

樹脂非充填領域 (Zone C : 図 4-3) において、バレル表層の樹脂は、 $-x$ 方向の樹脂の流動により **Active flight** 側に引き込まれ、旋回流れの樹脂と混ざる。旋回流は溝底部で $+x$ 方向に流れ、気液界面で y 方向に流動し、表面更新が生じると考えた。これにより樹脂が、物理発泡剤 (気相) に暴露する時間 τ_R を (4-3) 式で表した。

第4章 物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法

$$\tau_R = \frac{h - \delta_f}{v_{y\text{-film}}} = \frac{h - \delta_f}{\pi D_b N \sin \theta} \quad (4-3)$$

Latinen の脱揮モデルより, $v_{y\text{-film}} = v_{bx} = \pi D_b N \sin \theta$ の関係を使っている⁵⁾。

ここで, h はバレル壁面とフライト溝底の距離 [m], δ_f はフライトとバレル壁面とのクリアランスでありバレル壁面に形成される薄膜層の樹脂の厚みである, $v_{y\text{-film}}$ は, 旋回する樹脂の気液界面での y 方向の流速 [m/s], D_b はバレル内径 [m], N はスクリー回転数 [s^{-1}], θ はフライト角 [rad], v_{bx} はスクリー回転時のバレル壁面とスクリーのフライト頂部との x 方向 (フライトに垂直な方向) の相対速度 [m/s] である (図 4-3(b))^{13,14)}。この記号の振り方は, $v_{y\text{-film}}$, v_{bx} はここで新たに定義したもので, それ以外の変数は第3章の図 3-7 および表 3-5 と同じである (本章で使う記号は本章付録にまとめている)。

自由界面では層流層を仮定し, その樹脂流速 $v_{y\text{-film}}$ は, Latinen の脱揮の理論式と同様に, 物質収支からバレル表面における樹脂のせん断速度の x 方向成分 v_{bx} と等価であると仮定した⁵⁾。また, 表層より内側の体積 $dz w_p (h - \delta_f)$ の樹脂中の物理発泡剤濃度の変化は, x 方向の樹脂の流動により均質化されるとし完全混合層を想定した。バレル壁面の薄膜状の樹脂を除いた Active flight 側の樹脂と物理発泡剤とのメッシュ 1 個当たりの接触面積を S_p [m^2] (図 4-2(a)), 接触時間を t [s] と表記し, (4-1) ~ (4-3) 式から単位時間当たりの樹脂中の物理発泡剤の濃度変化を導くと, 以下の式ようになる。

$$\frac{dC}{dt} = \frac{N_{gs} S_p}{V_p} = \frac{4}{w_p} \sqrt{\frac{D_m D_b N \sin \theta}{h - \delta_f}} (C^* - C) \quad \text{for } t = 0, C = 0 \text{ and } z = 0, C = 0 \quad (4-4)$$

$$S_p = dy dz \quad \text{for } 0 \leq y \leq h - \delta_f$$

$$V_p = dy dz w_p / 2 \quad \text{for } 0 \leq y \leq h - \delta_f$$

ここで, V_p は Active flight 側の樹脂のメッシュ 1 個あたりの樹脂の体積 [m^3] (図 4-2(a)), w_p は x 方向における樹脂の幅 [m], dy, dz は各々 y 方向, z 方向の微小長さ [m], δ_f はバレル壁面の薄膜状の樹脂の厚み [m] であり, 先に述べたように δ_f はスクリーのフライト頂部とバレル壁面との隙間に等しいとした。表層からの物理発泡剤の拡散・溶解の境界条件として, 時刻 $t = 0, C = 0$ および $z = 0, C = 0$ を与えた。

さらにモデル化に際して物理発泡剤の物質移動 (拡散・溶解・混合) に関して以下のような仮定を設けた。

- 通常はフライト頂部とバレルとの隙間 δ_f は 0.1 mm 程度と狭く, 樹脂厚みは薄いいため, 暴露時間の間に物理発泡剤の拡散が進み, Active flight の樹脂に取り込まれるまでの間に薄膜内で一様に溶解度 C^* に到達する。
- スクリー回転中, バレル壁面の薄膜状の樹脂は, Active flight の樹脂に取り込まれる。
- 取り込まれた樹脂は Active flight の樹脂の旋回流と混ざり, 同体積流量の樹脂が押側フライト頂部の隙間 δ_f から右隣 (図 4-3(b)) の流路に漏洩する

第4章 物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法

- 取り込まれた薄膜層と旋回する樹脂との混練と物理発泡剤の混合は非常に狭い $2\delta_f$ (図 4-3(b)の Mixing area with resin film) の範囲で生じるとし, $2\delta_f w_p dz$ の体積層の物理発泡剤濃度を C と表現し, 濃度 C^* の体積流量 $\delta_f w_p dz$ の樹脂が流入し, 濃度 C で同体積 ($v_{bx} \delta_f dz$) の樹脂がフライト頂部とバレルとの隙間から隣のピッチに流出する完全混合層を想定する.

上述の仮定のもとで, 体積 $\delta_f w_p dz$ の薄膜層の物理発泡剤濃度の時間変化を次式で求める

$$\frac{dC}{dt} = \frac{v_{bx} \delta_f dz (C^* - C)}{2\delta_f w_p dz} = \frac{\pi D_b N \sin \theta (C^* - C)}{2w_p} \quad \text{for } h - \delta_f \leq y \leq h \quad (4-5)$$

4.3.2 スクリュー回転中の樹脂の流動モデル

前節で述べた物質移動のモデルに加えて, 樹脂非充填領域のスクリュー溝内の溶融樹脂の流動を次の仮定の下でモデル化する,

- 溶融樹脂をニュートン流体として近似する^{13,14)}.
- スクリュー溝を矩形の流路とし, スクリューおよびバレルの壁面において樹脂の滑りがなく, 非充填領域内の樹脂の温度と粘度およびバレル内の物理発泡剤 (気相) の圧力は均一である.
- 物理発泡剤濃度が増加しても樹脂粘度は低下しない.

x 方向の流速 v_x [m/s] はせん断流れと圧力流れの和として, また z 方向の微小距離 dz の中で, Active flight から Passive flight の方向 ($-x$ 方向) へ流れる体積流量 Q_{vx} [m³/s] は, y 方向に v_x を積分して表される^{13,14)}. ただし, $h - \delta_f \leq y \leq h$ の範囲では, バレルとフライトの隙間からの漏洩流があるため, 以下のようになる.

$$v_x = - \left\{ \frac{y}{h} \pi D_b N \sin \theta - \frac{1}{2\eta} \frac{\delta P_p}{\delta x} (y^2 - (h - \delta_f)y) \right\} \quad \text{for } h - \delta_f \leq y \leq h \quad (4-6)$$

$$Q_{vx} = -dz \int_0^{h-\delta_f} v_x dy = -dz \left(\frac{\pi D_b N h \sin \theta}{2} - \frac{(h - \delta_f)^3}{12\eta} \frac{\delta P_p}{\delta x} \right) \quad (4-7)$$

ここで, η は樹脂の粘度 [Pa·s], $\delta P/\delta x$ は x 方向の圧力勾配 [Pa/m] を表す.

定常状態では, $0 \leq y \leq h - \delta_f$ の範囲で x 方向の流量 $Q_{vx} = 0$ となることから, (4-7) 式から (4-8) 式が導ける¹³⁾.

$$\frac{1}{2\eta} \frac{\delta P_p}{\delta x} = \frac{3\pi D_b N \sin \theta}{h(h - \delta_f)} \quad (4-8)$$

さらに, (4-8) 式を (4-6) 式に代入すると v_x が求まる.

$$v_x = -\pi D_b N \sin \theta \left\{ 3 \frac{y^2}{h(h - \delta_f)} - 2 \frac{y}{h} \right\} \quad (4-9)$$

第4章 物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法

y 方向の流れは現象をできるだけ単純化し、次のようにモデルを構築した．図 4-2(a)のように、幅 w_p の樹脂の塊を、 x 方向に2等分割し、左側の Passive flight 側では、スクリーフ溝底部からせん断流れと圧力流れが釣り合い $v_x=0$ となる y 軸高さ y^* ($0 \leq y \leq y^*$)まで、 $+x$ 方向に v_x の流速で流れた樹脂が、 $+y$ 方向（上向き）に流れを変え、右側の Active flight では、 y^* からスクリーフライト高さ h までの範囲で $-x$ 方向に v_x の流速で流れた樹脂が $-y$ 方向（下向き）に流れを変え、各ブロックでの平均流速を求めた．Passive flight 側および Active flight 側のそれぞれのブロックの y 方向の平均流速 v_x を (4-10) 式、(4-11) 式に示す．

$$v_y = \int_0^{y^*} \frac{2v_x}{w_p} dy = -\frac{2\pi D_b N \sin \theta}{w_p} \left(\frac{y^{*3}}{h(h-\delta_f)} - \frac{y^{*2}}{h} \right) \quad \text{for } \frac{w_p}{2} \leq x \leq w_p \quad (4-10)$$

$$v_y = \int_{y^*}^{h-\delta_f} \frac{2v_x}{w_p} dy = \frac{2\pi D_b N \sin \theta}{w_p} \left(\frac{y^{*3}}{h(h-\delta_f)} - \frac{y^{*2}}{h} \right) \quad \text{for } 0 \leq x \leq \frac{w_p}{2} \quad (4-11)$$

これらの簡略化を踏まえて導出したモデルを用いて旋回流れを計算した．スクリーフライトと垂直な x - y 軸断面における流れによる物理発泡剤濃度の時間変化は、Marschik らを参考に以下の式で表した¹⁵⁾．

$$\frac{\partial C}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \nabla C) = \frac{\partial C}{\partial t} + v_x \frac{\partial C}{\partial x} + v_y \frac{\partial C}{\partial y} = 0 \quad (4-12)$$

本来は拡散項も表現すべきであるが、スクリーフ回転中は樹脂の流速が実験条件では、流速を 0m/s とした壁面付近を除くと概ね 0.01m/s 前後であり、旋回流の影響が支配的になると考え、また計算負荷を低減するためもあり、移流による物質移動のみを考慮した．

時間に対する離散化に前進オイラー法、空間に対する離散化に風上差分法を用い、図 4-4 (a), (b) に示すコントロール・ボリューム界面での物質収支を計算した¹¹⁾． x 方向のメッシュ数は y 方向の流れの向きの異なる 2 としてモデルを簡略化している（図 4-2(a), 図 4-4(a)）．

離散化の過程を以下に示す．(4-12) 式を $0 \leq x \leq w_p$, $0 \leq y \leq h$ の範囲で積分し、図 4-4 (a) の平面上のコントロール・ボリューム（黄色のメッシュ）界面における物質収支を求めた．

$$\begin{aligned} \iint \frac{\partial C}{\partial t} dx dy + \iint \frac{\partial}{\partial x} (v_x C) dx dy + \iint \frac{\partial}{\partial y} (v_y C) dx dy &\simeq \left\{ \frac{C_p^n - C_p^{n-1}}{\Delta t} + \frac{(v_x C)_w^{n-1} - (v_x C)_e^{n-1}}{\Delta x} \right. \\ &\quad \left. + \frac{(v_y C)_n^{n-1} - (v_y C)_s^{n-1}}{\Delta y} \right\} \Delta x \Delta y = 0 \end{aligned}$$

$$\frac{C_p^n - C_p^{n-1}}{\Delta t} = \frac{(v_x C)_e^{n-1} - (v_x C)_w^{n-1}}{\Delta x} + \frac{(v_y C)_s^{n-1} - (v_y C)_n^{n-1}}{\Delta y} \quad (4-13)$$

第4章 物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法

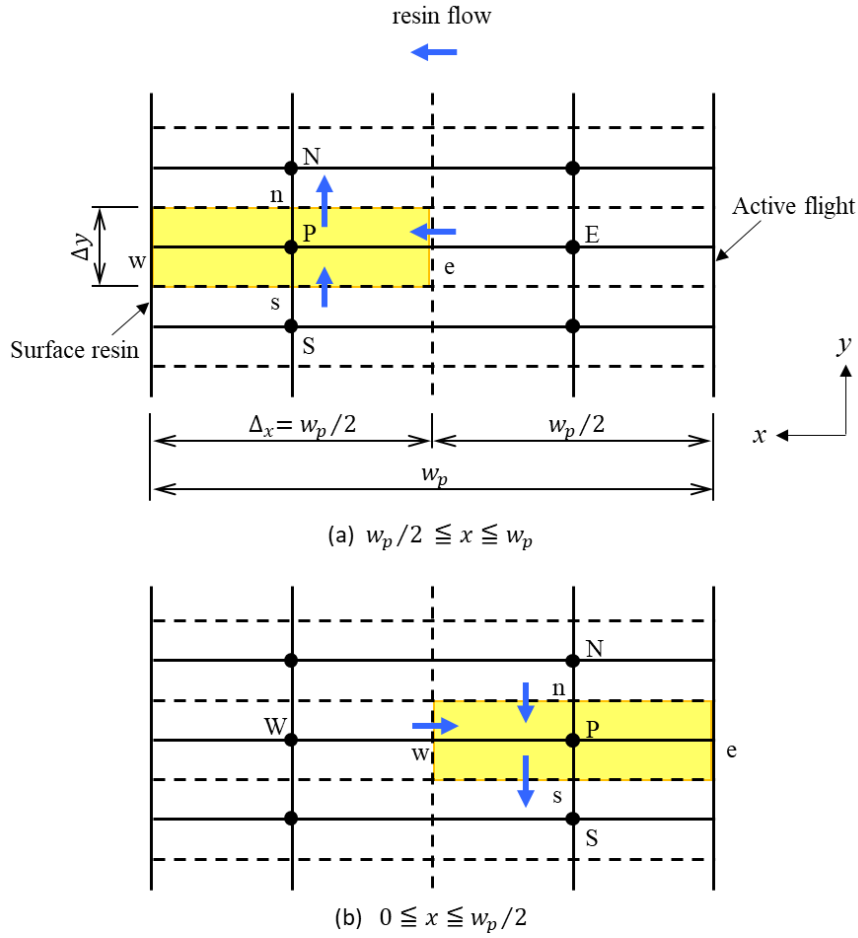


Fig.4-4 Mesh Configuration in a control volume.

各記号の上側の添え字 n , $n+1$ は時間ステップを, 下側の添え字 e , w , n , s は各コントロール・ボリュームの界面, E , W , N , S は格子点 P に隣接する格子点を表し, C_P^n は時間ステップ n における格子点 P の物理発泡剤濃度 $[\text{g}/\text{m}^3]$ を表す (図 4-4). また, 時間ステップの間隔を Δt とし, x , y , z 方向の格子点間距離を各々 Δx , Δy , Δz とした.

x の範囲を $w_p/2 \leq x \leq w_p$ とした場合, 格子点 P の x , y 方向の座標を (i, j) , x , $x + \Delta x$ を i , $i + 1$ と, y , $y + \Delta y$ を j , $j + 1$ と表す. また, 格子点 W は存在しないため, $v_{x(i+1,j)} = 0$ となる (図 4-4 (a)). これらより, (4-13) 式から格子点 P の物理発泡剤濃度 $C(i, j)^n$ は以下の式で表される.

$$\text{For } \frac{w_p}{2} \leq x \leq w_p, \quad \Delta x = \frac{w_p}{2}$$

$$C(i, j)^n = C(i, j)^{n-1} + \Delta t \left\{ \frac{v_{x(i,j)} C_{(i-1,j)}^{n-1}}{\Delta x} + \frac{v_{y(i,j-1)} C_{(i,j-1)}^{n-1} - v_{y(i,j)} C_{(i,j)}^{n-1}}{\Delta y} \right\} \quad (4-14)$$

$0 \leq x \leq w_p/2$ においても同様である. 図 4-4 (b) に示すように, $v_{x(i-1,j)} = 0$ となり, また v_y が下向きの流れに変わるので, (4-13) 式は下記のようなになる.

$$\text{For } 0 \leq x \leq \frac{w_p}{2}, \quad \Delta x = \frac{w_p}{2}$$

$$C(i,j)^n = C(i,j)^{n-1} + \Delta t \left\{ \frac{v_{x(i,j)} C_{(i+1,j)}^{n-1}}{\Delta x} + \frac{v_{y(i,j+1)} C_{(i,j+1)}^{n-1} - v_{y(i,j)} C_{(i,j)}^{n-1}}{\Delta y} \right\} \quad (4-15)$$

フライトと平行な z 軸方向への流れも (4-12) 式を z 軸方向に拡張した式を立てられるが、本研究では計算負荷を軽減するため、フライトと平行な z 方向の微小長さ dz の距離の樹脂の滞留時間 $\tau_{dz} = h dz / v_{z\text{-starv}}$ を経過すると、樹脂がプラグフローとして dz 移動するとした。

このとき、充满状態で、スクリーフライトと平行な z 方向の樹脂の流速流れと圧力流れの流速の和として表されるが^{13,14)}、非充满状態における流速 $v_{z\text{-starv}}$ [m/s] では、下流からの圧力が作用せず、スクリーからのせん断力だけのため、(4-16) 式で表せる。

$$v_{z\text{-starv}} = \frac{y}{h} \pi D_b N \cos \theta \quad (4-16)$$

このとき、 z 方向の平均流速 $\overline{v_{z\text{-starv}}}$ は (4-7) 式で表される。

$$\overline{v_{z\text{-starv}}} = \frac{1}{h} \int_0^h v_{z\text{-starv}} dy = \frac{\pi D_b N \cos \theta}{2} \quad (4-17)$$

τ_{dz} は (4-7) 式より、以下のように表せる。

$$\tau_{dz} = \frac{h dz}{\overline{v_{z\text{-starv}}}} = \frac{2 h dz}{\pi D_b N \cos \theta} \quad (4-18)$$

4.3.3 スクリュー回転停止中の物理発泡剤の溶解

射出成形機では計量工程以外は、スクリー回転が停止する。この旋回流動が停止する時間を待機時間と称す。その間の物理発泡剤の溶解挙動も次のようにしてモデル化した。待機時間中は、非充满領域の樹脂は流動しないため、図 4-5 に示すように樹脂表面から物理発泡剤が拡散・溶解すると考え、フィック則に従うとして $x-y$ 方向の 2 次元の拡散方程式 (4-19) で表現した。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_m \left(\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} \right) \quad (4-19)$$

境界条件、 $0 \leq x \leq w_p$ および $x = w_p$, $C = C^*$

このとき、 x 方向の濃度勾配を上記の拡散方程式を精度よく計算するため、図 4-2(b) および図 4-5(a) に示したように、 x 方向のメッシュも 2 ではなく細かく設定した。

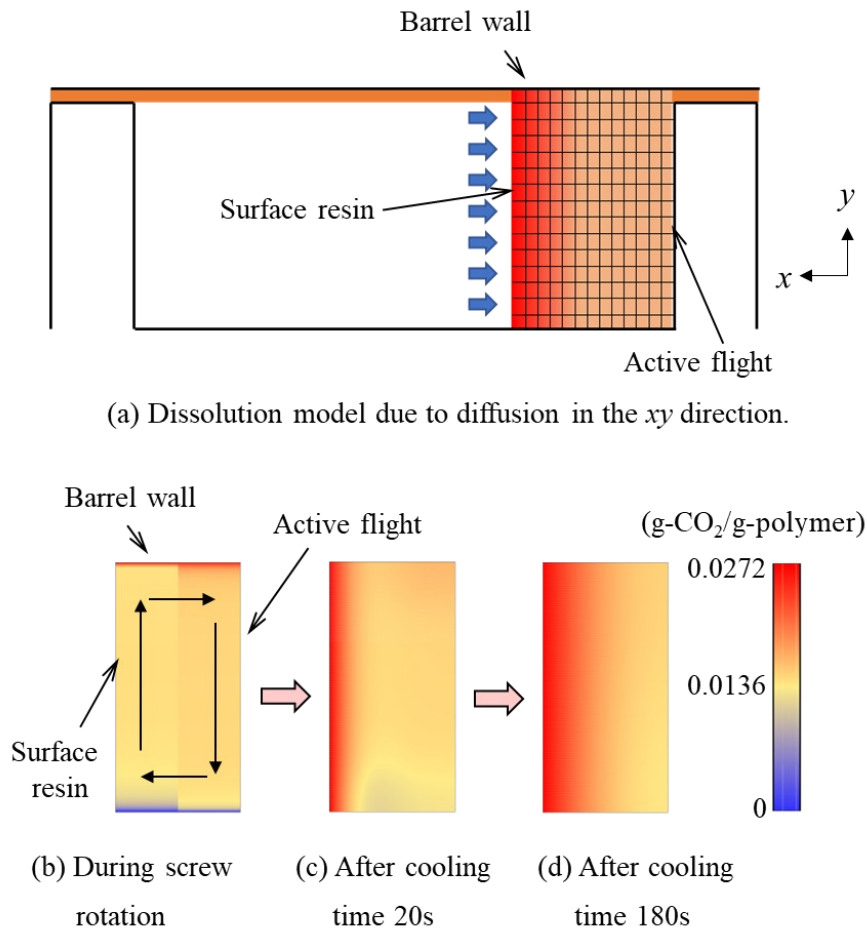


Fig.4-5 Dissolution model of physical blowing agent (PBA) during a waiting time and PBA concentration distribution in molten polymer in cross-sectional area of polymer-starvation zone.

4.4 計算シミュレーション

4.4.1 計算フローチャート

導出した式を用い、物理発泡剤の濃度変化を、有限体積法的一种であるコントロール・ボリューム法¹¹⁾により計算した。モデルでは、物理発泡剤濃度 $C = 0$ の熔融樹脂が非充満領域の入口 ($z = 0$) から流入し、非充満領域の出口に到達するまでの発泡剤濃度の変化を計算した。また、非充満領域の出口以降では、気体の物理発泡剤は存在しないため新たな物理発泡剤の樹脂への溶解は起こらず、射出機のノズルから射出されるまで物理発泡剤濃度は変化しないと考える、ノズルの手前の NIR プロブで測定した物理発泡剤の濃度の実験値を計算値と比較し、モデルによる計算精度を検証できると考えた。また、計算中、樹脂の温度と粘度、バレル内の物理発泡剤の圧力および非充満領域の長さは変化しないとした。さらに、通常、樹脂中の物理発泡剤濃度が増加すると樹脂が膨潤する¹⁶⁾。それとともに、自由体積が増加して粘度が低下、拡散係数は増加する^{17,18)}。しかし、本

第4章 物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法

研究で検討している CO₂ 濃度の範囲では樹脂の膨潤度は低く¹⁶⁾、拡散係数の変化は小さい^{17,18)}と考え、本モデルでは CO₂ 濃度の変化による樹脂の幅 w_p や拡散係数 D_m は変化ないとした。

計算は、図 4-6 に示すフローチャートに従い、次のように実施した。

- 1) スクリュー回転中の層流層への物理発泡剤の拡散による濃度変化を計算する(4-4)式。
- 2) バレル壁面の薄膜状の樹脂の取り込みによる濃度変化を計算する (4-5) 式。
- 3) 樹脂の流動によって生じる物理発泡剤の濃度変化を計算する (4-9) から (3-12) 式。
- 4) 1)~3) のステップを計量時間の間繰り返す。
- 5) 計量時間の終了判断をし、次のステップに移る
- 6) 待機時間中の拡散による濃度変化を計算する (4-19) 式。
- 7) 待機時間及びサイクルタイムの終了判断をし、1 ショット分の計算を完了する。
- 8) 1)~7) のステップを所定ショット数になるまで繰り返し行う。

図 4-2 に示したように、スクリュー回転中の x 軸方向のメッシュを 2 メッシュにしているのに対し、待機時間はメッシュを細かく設定している。このとき x 方向の物理発泡剤の濃度は x 方向の樹脂の流動により均一化されると仮定し、メッシュ内に濃度勾配がないものとして、単純にメッシュ数を増加させている。一方、待機時間からスクリュー回転中に切り替わる際の間中処理では、樹脂の流動が始まると x 方向の物理発泡剤濃度が均一化されると仮定し、上述したように、スクリュー回転が始まる直前に、物理発泡剤濃度を x 方向の 2 メッシュの各々に対して平均化し、各々の平均値を 2 つのメッシュの初期値とした。

プログラム言語には Fortran を使用し、表 4-1 の成形条件および表 4-3 の入力・計算条件^{4,19,20)}にて非充填領域の出口における CO₂ 濃度を計算した。射出成形におけるサイクル時間は、射出、保圧、冷却、型開、製品取出し、型閉の各工程からなるが、実験では計量工程は冷却工程中に完了し、かつ冷却工程以外の工程に要する時間はいずれの条件も 20 s 前後であったことから、サイクル時間を冷却時間に 20s 加算した値とした。1 ショット目は非充填領域の CO₂ 濃度が定常状態になるまでの過渡領域を含むため、過渡領域を含む 1 ショット目を除いた定常状態の 4 ショット分のデータの平均値を計算値とした。

第 3 章では、物理発泡剤濃度は非充填領域の樹脂の表面積（比表面積 S_m ×長さ $L_{z-starv}$ ）に比例すると結論付けた、これらは樹脂充填領域（Zone B）の可塑化能力 Q_m の影響を受ける。 Q_m は、市販の流体計算ソフトを使用して求めることもできるが、バレルの内部状態を実験結果と揃えるため、 Q_m [kg/h] は、実験からの推算した計量時間 t_r [s] 値を用いて (4-20) 式により推算した。

$$Q_m = \frac{3600\rho\pi(D_b/2)^2 L_{\ell-st}}{t_r} \quad (4-20)$$

第4章 物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法

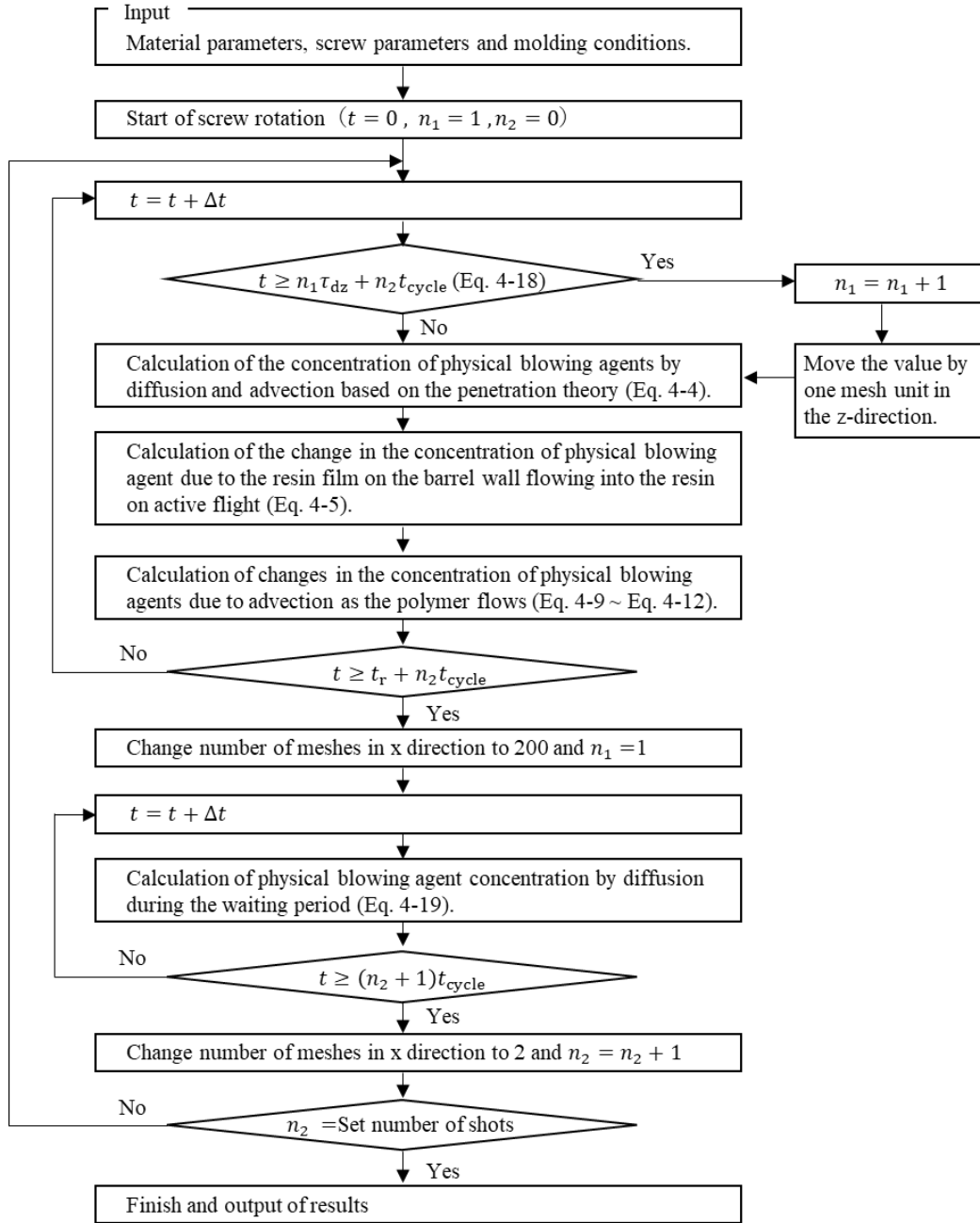


Fig.4-6 Calculation flow chart

$$\rho Q_{Vz} = \rho Q_{Vz-\text{starv}} = \frac{Q_m}{3600} \quad (4-21)$$

ρ は溶融樹脂の密度 $[\text{kg}/\text{m}^3]$, Q_{Vz} , $Q_{Vz-\text{starv}}$ は各々充滿状態, および非充滿状態での体積流量 $[\text{m}^3/\text{s}]$, $L_{\ell-\text{st}}$ は射出ストローク $[\text{m}]$ である.

非充滿状態での z 方向の体積流量 $Q_{Vz-\text{starv}}$ は, 平均流速 $v_{z-\text{starv}}$ と樹脂の断面積の積として, (4-17) 式から導出できる^{13,14)}.

第 4 章 物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法

Table 4-3 Input parameter values of the polymer-starvation zone of the screw,

Parameters	Symbol	Unit	Conditions	
Screw parameters				
Screw diameter	D_b	[m]	2.2×10^{-2}	Input
Flight height	h	[m]	4.6×10^{-3}	Input
Flight clearance	δ_f	[m]	7.5×10^{-5}	Input
Flight pitch	t_{sf}	[m]	22	input
Flight angle	θ	[rad]	0.308	Estimate
Flight channel width	w_f	[m]	1.88×10^{-2}	Estimate
Number of flight	n_f	[-]	1	Input
Length of the polymer-starvation zone	$L_{z-starv}$	[m]	4.95×10^{-1}	Input
Material parameters				
Density of molten polymer	ρ	[kg/m ³]	740 ¹⁹⁾	Input
Diffusion coefficient	D_m	[m ² /s]	8.0×10^{-9} (for 190°C) ²⁰⁾	Input
Solubility	C^*	[g-CO ₂ /g-polymer]	2.72×10^{-2} (for 207°C, 4MPa) ⁴⁾	Input
Molding parameters				
Plasticizing capacity	Q_m	[kg/h]	Table 4-1	input
Screw rotation speed	N	[s ⁻¹]	Table 4-1	input
Metering period	$L_{\ell-st}$	[m]	Table 4-1	input
Cycle time	t_{cycle}	[s]	Cooling time + 20	Input
Shot number	-	[-]	5	Input
Analysis parameters				
Number of analysis meshes				
x direction		[-]	2 or 200	Input
y direction		[-]	200	Input
Analysis mesh size of z direction	dz	[m]	3.63×10^{-3}	Input

$$Q_{Vz-starv} = hn_f w_p \bar{v}_{z-starv} = \frac{\pi D_b N h n_f w_p \cos \theta}{2} \quad (4-22)$$

ここで、 n_f はフライト条数 [-]である。

また、非充満領域における樹脂の幅 w_p を求めるため、(4-20)式から(4-22)式を用いて w_p を求めた。

$$w_p = \frac{Q_m}{1800 \rho \pi D_b N h n_f \cos \theta} = \frac{D_b L_{\ell-st}}{2 N h n_f t_r \cos \theta} \quad (4-23)$$

(4-23)式から、樹脂幅 w_p はスクリー形状に由来するものを除くと、可塑化能力 Q_m とスクリー回転数 N の比に比例して変化することが分かる。

また、第3章で指標として用いた比表面積 S_m [m²/kg] は第3章の(3-1)式を用いて、以下のように表せる。

$$S_m = \frac{\{(h - \delta_f) + (w_f - w_p)\}}{\rho\{w_p h + (w_f - w_p)\delta_f\}} \quad (4-24) \quad (3-1)$$

ここで、 w_f は Active flight と Passive flight の間の距離 [m] である。

(4-24) 式より、同じスクリーを用いる場合、 S_m は樹脂幅 w_p によって変化することがわかる。すなわち、(4-23) 式より、 S_m は可塑化能力 Q_m とスクリー回転数 N の比が増減すると変化し、 Q_m と N の比が一定であれば一定になるといえる。

4.4.2 スクリュー回転中の物理発泡剤濃度の計算結果

表 4-1 の基準条件でのバレル出口の樹脂中の CO_2 濃度の時間変化を図 4-7 に示す。成形開始直後は、樹脂中の CO_2 濃度は、スクリー回転と同時に増加しはじめ、約 10 s 後以降は $0.0143 \text{ g-CO}_2/\text{g-polymer}$ で一定となった。その後、待機中にスクリー回転が停止すると徐々に発泡剤濃度が増加した。また、2 ショット目以降の成形では、待機時間中にバレル内に滞留していた樹脂が射出成形される間は CO_2 濃度が $0.0160 \text{ g-CO}_2/\text{g-polymer}$ と高く、バレル内の滞留樹脂が更新されると CO_2 濃度が $0.0143 \text{ g-CO}_2/\text{g-polymer}$ に戻るサイクルを繰り返した。基準条件においてスクリー回転中に溶解した CO_2 量と待機時間中にバレル内に滞留する樹脂に溶解した CO_2 量の比率は、概ね 19 : 1 となり、スクリー回転中に溶解する CO_2 量が極めて多いことが分かる。

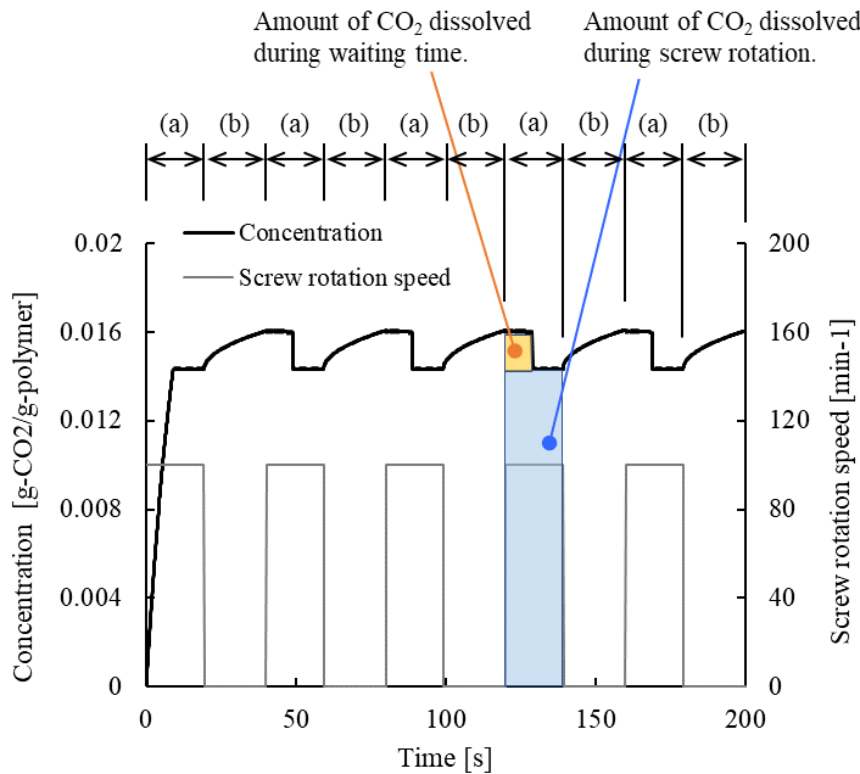


Fig.4-7 Changes in the calculated CO_2 concentration under the base condition.

(a) Metering period (Screw rotation) and (b) waiting time.

第4章 物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法

図 4-8(a)にスクリー回転数 N と材料供給速度の変化に対する CO_2 濃度の変化の実験値とモデルによる計算値を、図 4-8(b)にそのときの可塑化能力 Q_m の実験値と比表面積 S_m の推定値を示す。 CO_2 濃度は計算値の方が 10%程度高い値を示したが、樹脂供給速度が 2.6 kg/h の場合、 N を 80 min^{-1} から 140 min^{-1} に変更すると、 CO_2 濃度は、計算値、実験値ともに約 1.3 倍に増加した。また、樹脂供給速度 3.1 kg/h、4.0 kg/h の場合、計算値、実験値ともに概ね 1.07 倍に増加しており、計算値と実験値で変化の傾向は一致した。図 4-8(b)より、 Q_m は樹脂供給速度 2.6 kg/h ではほぼ一定となり、樹脂供給速度 3.1 kg/h、4.0 kg/h では N に比例して増加した。このとき、 S_m は、樹脂供給速度 2.6kg/h では N に比例して増加し、樹脂供給速度 3.1 kg/h、4.0 kg/h ではわずかな増加にとどまっている。 CO_2 濃度と S_m との挙動は一致しており、樹脂供給速度 2.6 kg/h かつ N が速い条件では、フィーダからの樹脂供給速度が律速となって、スクリー1回転当たりの樹脂の通過流量が減少して、樹脂の S_m が増加し CO_2 濃度が増加したと考えられる。これらの傾向が計算結果にもみられる。

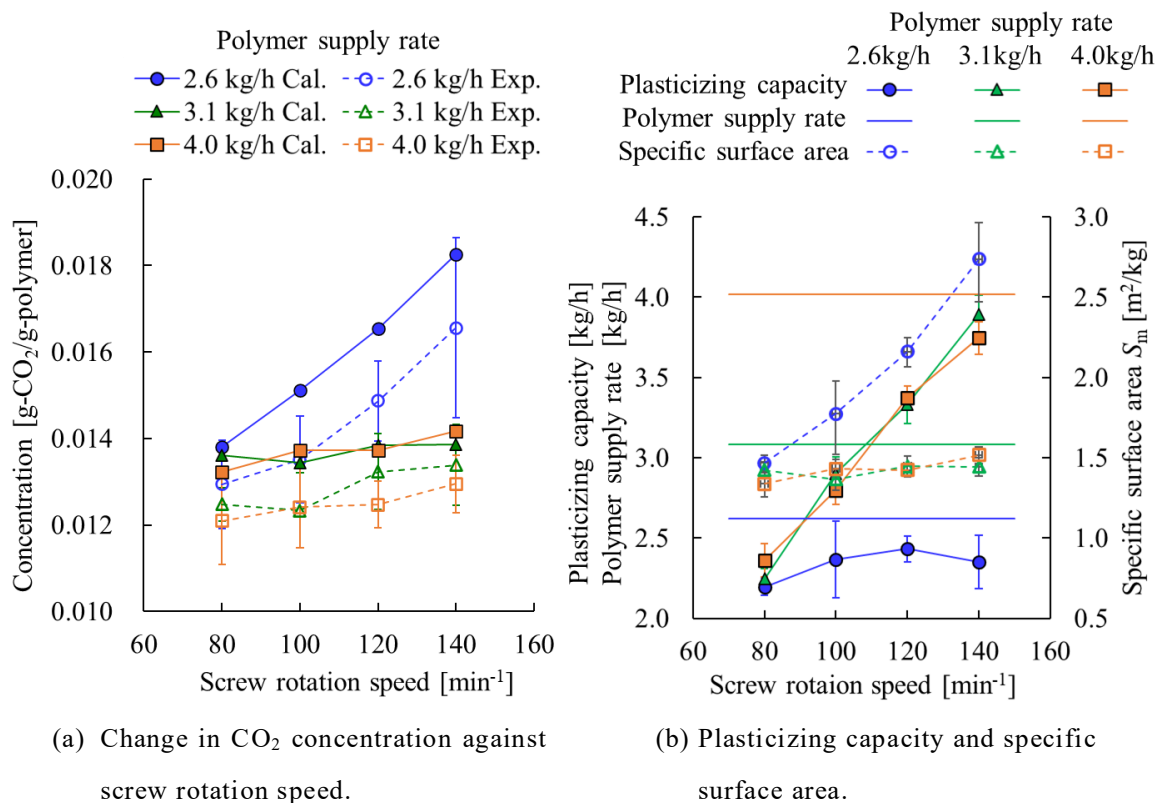


Fig.4-8 Effect of screw rotation speed and polymer supply rate on (a) CO_2 concentration, (b) plasticizing capacity and specific surface area in polymer-starvation zone.

第3章でも述べたが、比表面積 S_m は樹脂の単位重量当たりの表面積を示す。開発した低圧物理発泡成形装置において S_m は、非充填領域のフライト断面の Active flight 側の樹脂の表面とバレル壁面の樹脂表面の 2 面の面積とフライト内の樹脂量で決まり、スクリー1

第4章 物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法

回転当たりの樹脂の通過流量（可塑化能力 Q_m とスクリー回転数 N の比）により（4-24）式で示したように変化する．すなわち、 Q_m が N に比例して増加して、スクリー1回転当たりの樹脂の通過流量が変化しなければ、 S_m は一定となり濃度への影響はない．一方、フィーダからの樹脂供給量を減らして Q_m を減少させた場合、スクリー1回転当たりの樹脂の通過流量が減少するため、 S_m は増加し、溶解する CO_2 の濃度も増加する．

図 4-8(a)(b)においてスクリー回転数の増加に対する CO_2 濃度と S_m の挙動が一致している．

Table 4-4 Molding conditions for the influence of specific surface area.

Parameters	Symbol	Conditions	
Common conditions			
Gas delivery pressure [MPa]	-	4	-
Metering period [mm]	$L_{\ell-st}$	45	Input
Cycle time [s]	-	40	Input
(a) Plasticizing capacity Q_m is fixed			
Screw rotation speed [min^{-1}]	$60N$	80, 100, 120, 140, 160	Input
Plasticizing capacity [kg/h]	Q_m	2.37	Input
Specific surface area [m^2/kg]	S_m	1.18, 1.51, 1.83, 2.13, 2.43	Estimate
(b) Q_m/N is fixed			
Screw rotation speed [min^{-1}]	$60N$	80, 100, 120, 140, 160	Input
Plasticizing capacity [kg/h]	Q_m	1.89, 2.37, 2.84, 3.32, 3.79	Input
Specific surface area [m^2/kg]	S_m	1.51	Estimate

作製したシミュレーションプログラムを使って、基準条件から可塑化能力 Q_m を一定にして、スクリー回転数 N を変化させた場合（表 4-4(a)）と基準条件から N とともに Q_m を変化させて、可塑化能力とスクリー回転数の比 Q_m/N と比表面積 S_m を一定にした場合（表 4-4(b)）の感度解析シミュレーションを行った．

まず、非充填領域における樹脂の S_m の CO_2 濃度への影響について検討した．定量フィーダからの樹脂供給速度を固定し、 Q_m を固定にして、スクリー回転数 N を $80 \sim 160 \text{ min}^{-1}$ の範囲で変えて S_m を変化させ CO_2 濃度を計算するシミュレーションを行った．計算値を図 4-8 の実験値を比較した結果を図 4-9 に示す．材料供給速度が一定の場合、 CO_2 濃度の計算値は樹脂の S_m の増加にともなって計算値も実験値も増加している．図 4-9 において計算値と実験値との相対誤差は 10%前後であった．

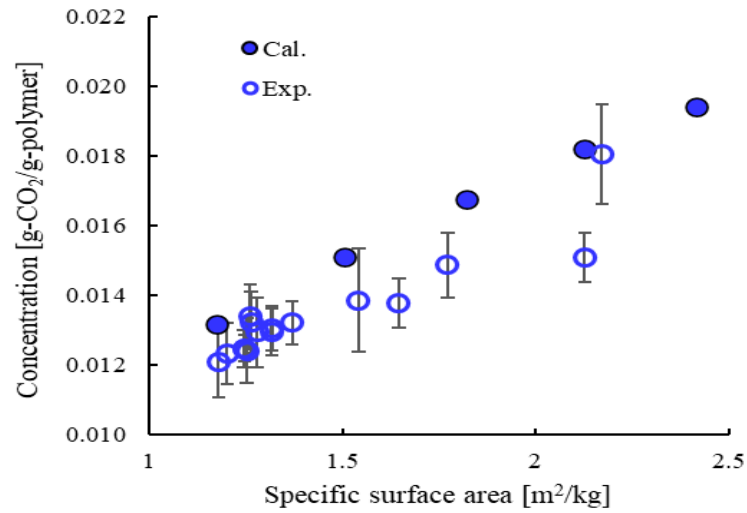


Fig.4-9 Effect of specific surface area on CO₂ concentration.

また，スクリー回転数 N に比例して可塑化能力 Q_m が増加し，比表面積 S_m が一定となることを想定して計算した場合の CO₂ 濃度の計算値を図 4-10 に示す． S_m が一定の場合に CO₂ 濃度は変化せず横這いとなっている． N が高いほど非充填領域における滞留時間は短くなるが， S_m が一定ならば，CO₂ 濃度には影響していない．この結果は，第3章の図 3-12 の N と材料供給速度 3.1, 4.0 kg/h の関係を検討した結果とも概ね一致する．

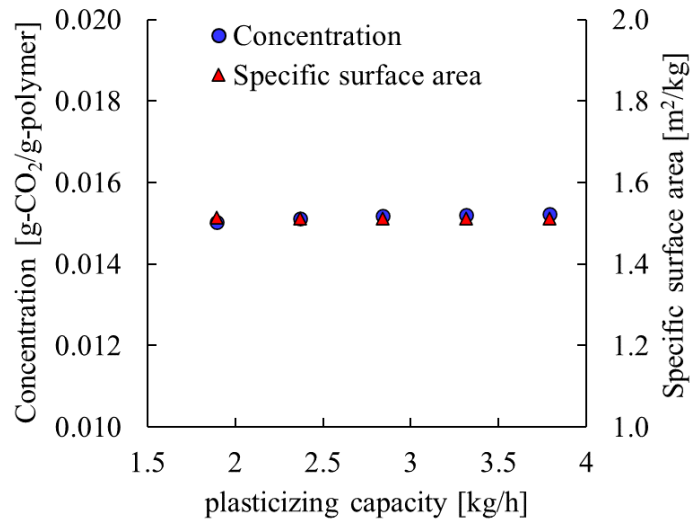


Fig. 4-10 Effect of plasticizing capacity on CO₂ concentration when the specific surface area is fixed.

バレル温度の変化に対する CO₂ 濃度の濃度変化の実験値と計算値を図 4-11(a)に，そのときの比表面積の推定値を図 4-11(b)に示す．CO₂ 濃度の計算値と実験値はともに，バレル温度が高くなると減少した．しかし，計算値の方が実験値よりも高い値を示した．また，

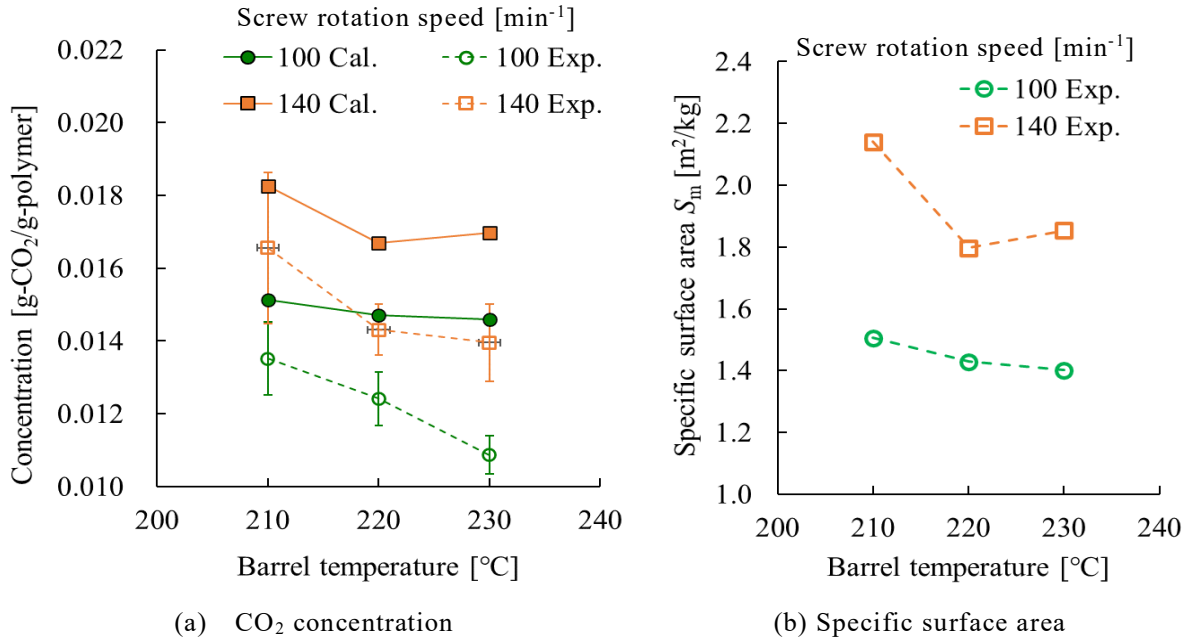


Fig.4-11 Effect of barrel temperature and screw rotation speed on (a) CO₂ concentration and (b) specific surface area in polymer-starvation zone.

バレル温度 210 °Cでは、計算値と実験値の相対誤差は 10%程度であったが、バレル温度が高くなると相対誤差が大きくなり、230 °Cではスクリー回転数 100 min⁻¹の時に相対誤差は 34 %、140 min⁻¹の時に 22 %になった。供試樹脂 (PP) では、樹脂温度 10 °Cの増加に対して溶解度は約 5 %減少するが⁴⁾、それ以上に CO₂濃度が減少している。

一方で、バレル温度の変化による CO₂濃度と図 4-11(b)に示した比表面積の挙動は、計算値では波形の形が一致するものの実験値には部分的にしか一致していない。図 4-9 のように比表面積と CO₂濃度が比例するならば、実験値とも波形の形が一致するはずである。これは、モデルで記述できていない比表面積以外の要素 (例えば粘度変化) が存在し、CO₂濃度に影響していると示唆している。その要素について考える。

シミュレーションでは、スクリーの第2供給部 (Zone C) の長さ L_{z-sf} と非充填領域の長さ $L_{z-starv}$ を等価として値を設定したが、実験では圧力勾配の影響で $L_{z-starv}$ の長さに差異が生じていると考えられる。本計算に用いたモデル式では、樹脂の粘度の影響を無視しており、また、樹脂圧力に起因する $L_{z-starv}$ の変化を考慮できていない。

スクリーの充填部における圧力勾配は、充填領域における z 方向の流量から求めることができ、第3章の (3-8) 式、および (3-9) 式から以下の式で表せる。

$$\frac{\Delta P_p}{\Delta L_z} = \frac{\eta(\alpha N - Q_{Vz})}{\beta} \quad (4-25)$$

$$\alpha = \frac{\pi D_b n_f h w_f \cos \theta}{2}, \quad \beta = \frac{n_f h^3 w_f \sin \theta}{12}$$

第4章 物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法

α , β はスクリーウの形状により決まる定数である。

樹脂の温度が高く粘度 η が低くなり、圧力勾配 $\Delta P_p / \Delta L_z$ が小さくなって、Zone D（第2計量部、圧縮部）だけでスクリーウ先端の圧力を背圧まで昇圧することができなくなると、Zone C（第2供給部）の一部も充填領域に置き変わり、非充填領域の長さが短くなる^{12,21)}。これにより、非充填領域の樹脂の表面積が減少してCO₂溶解量が少なくなり、CO₂濃度が低下する。一方で、スクリーウ回転数が高い場合は、 αN が大きくなってせん断流れが強くなり、圧力流れの影響が相対的に低下するため、粘度の影響による非充填領域の樹脂の表面積の減少の影響が弱くなっている。このように、粘度の影響を考慮していないため、シミュレーション値と実験値に乖離が起こったといえる。

さらに、非充填領域の長さの影響も検討した。背圧の増加や圧力勾配の減少の影響で非充填領域の長さ $L_{z-starv}$ が短くなったことを想定し、基準条件から $L_{z-starv}$ のみを変更して行ったシミュレーション結果を図4-12に示す。物理発泡剤濃度は、 $L_{z-starv}$ の増加に伴って増加している。基準条件におけるCO₂濃度0.0135g-CO₂/g-polymerとの交点から、 $L_{z-starv}$ は約420mmと推察される。第3章の実験結果では、背圧が減少するとCO₂濃度は増加し、背圧が増加するとCO₂濃度は減少した。その実験結果の解釈は、背圧の増減に伴わない $L_{z-starv}$ が増減し、CO₂濃度が変わったとするものであった。図4-12の結果は、 $L_{z-starv}$ にほぼ比例してCO₂濃度が変わることを示しており、第3章の実験結果の解釈を裏付けるものである。これらのことから、温度の影響については、樹脂の粘度と温度を関数とする充填領域と $L_{z-starv}$ を計算する補正式を導入すれば、計算精度がより高まると考える。

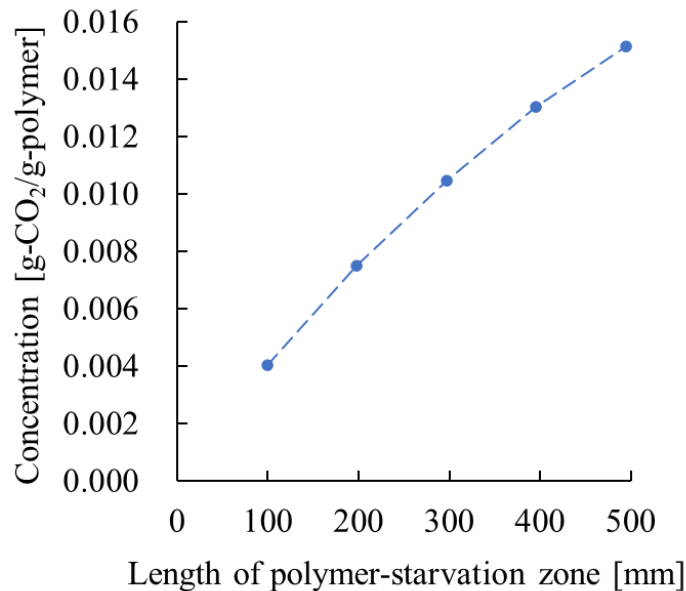


Fig.4-12 Effect of length of the polymer-starvation zone on CO₂ concentration at basic molding conditions.

第4章 物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法

一方で、第3章の図3-18に示したように、圧力勾配 $\Delta P_p/\Delta L_z$ の実測値と(4-25)式による推定値の誤差は大きく、より精度の高い計算手法が求められる。そのため、本論文では実験値から推算可能な変数を用いて非充填領域の長さ $L_{z\text{-starv}}$ の補正を試みた。

4.4.3 非充填領域の長さの推定

第3章の結果から、 CO_2 濃度は非充填領域の樹脂の表面積（比表面積 S_m と非充填領域の長さ $L_{z\text{-starv}}$ の積）に比例し、 $L_{z\text{-starv}}$ は背圧と充填領域の圧力勾配に依存すると考えられる。また、第3章の図3-19、3-20に示したように、 CO_2 濃度に対し、圧力勾配と比表面積とは相互に影響するため、どちらかだけのデータを使って、実験値に計算値をフィッティングできない。そこで、第3章と同様 $L_{z\text{-starv}}$ に比例する代替変数として、圧力勾配 $\Delta P_p/\Delta L_z$ と比表面積との積 $S_m \Delta P_p/\Delta L_z$ を用いることを考えた。

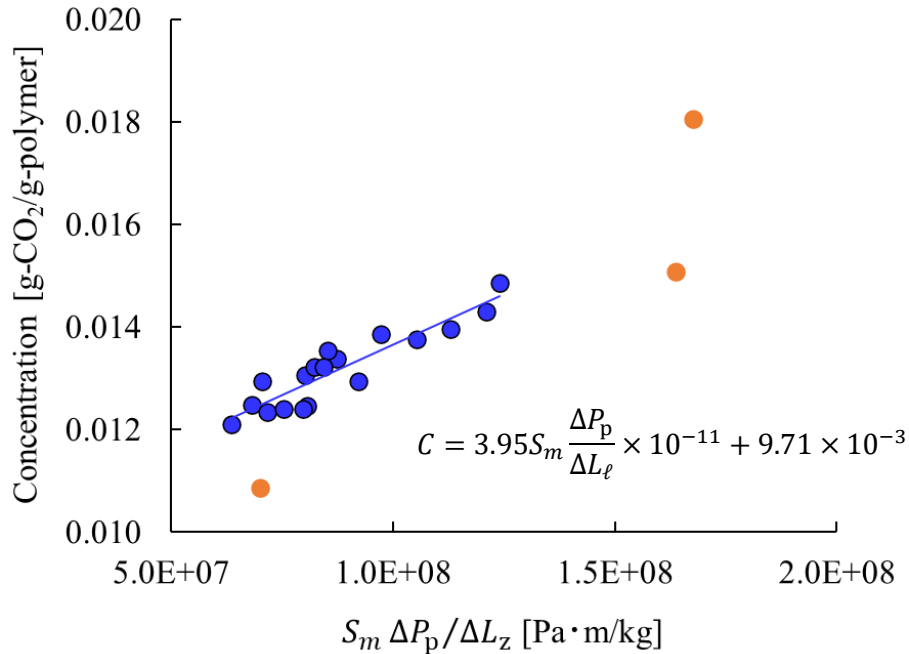


Fig.4-13 Relationship between $S_m \Delta P_p/\Delta L_z$ and CO_2 concentration.

図4-13に CO_2 濃度の実験値と $S_m \Delta P_p/\Delta L_z$ の関係を描いている。このデータから $S_m \Delta P_p/\Delta L_z$ と CO_2 の相関関係を表現する回帰曲線を求めた。この際、乖離が大きい3点のデータ（図中●）は除外し、最小二乗法で回帰方程式を求めた。基準条件では、 $S_m \Delta P_p/\Delta L_z = 9.47 \times 10^7 \text{ Pa} \cdot \text{m}/\text{kg}$ であり、この値を図4-13から得られた回帰方程式に代入すると、基準条件における CO_2 濃度は、 $0.0134 \text{ g-CO}_2/\text{g-polymer}$ と求まる。

図4-12より、 CO_2 濃度が $0.0134 \text{ g-CO}_2/\text{g-polymer}$ となる $L_{z\text{-starv}}$ を416 mmと推算できる。第2供給部の長さ495 mmと416 mmの差が昇圧に要した距離と考えることができる。ここで、スクリー部の第2供給部の出口の樹脂圧力 $P_{sf} [\text{Pa}]$ 、第2供給部の長さを $L_{z\text{-sf}} [\text{m}]$

第4章 物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法

とすると、非充填領域の長さ $L_{z\text{-starv}}$ は、以下の式で表せる。

$$L_{z\text{-starv}} = L_{z\text{-sf}} - P_{\text{sf}} \frac{\Delta L_z}{\Delta P_p} \quad (4-26)$$

上式を変形し次式を得る..

$$P_{\text{sf}} = (L_{z\text{-sf}} - L_{z\text{-starv}}) \frac{\Delta P_p}{\Delta L_z} \quad (4-27)$$

ここで、スクリーンの第2供給部の出口の樹脂圧力 P_{sf} は成形条件、圧力勾配が変わっても一定であると仮定して、(4-27)式を用いて、表4-1のスクリー回転数、材料供給速度および樹脂温度を変化させた条件での非充填領域の長さ $L_{z\text{-starv}}$ を求めた。背圧および冷却時間が一定の条件において、 $L_{z\text{-starv}}$ は396 mmから431 mmの間にあり、条件間での大きな差異はなかった。 $L_{z\text{-starv}}$ の補正値を元に CO_2 濃度の再計算を行った。その結果を図4-14に示す。

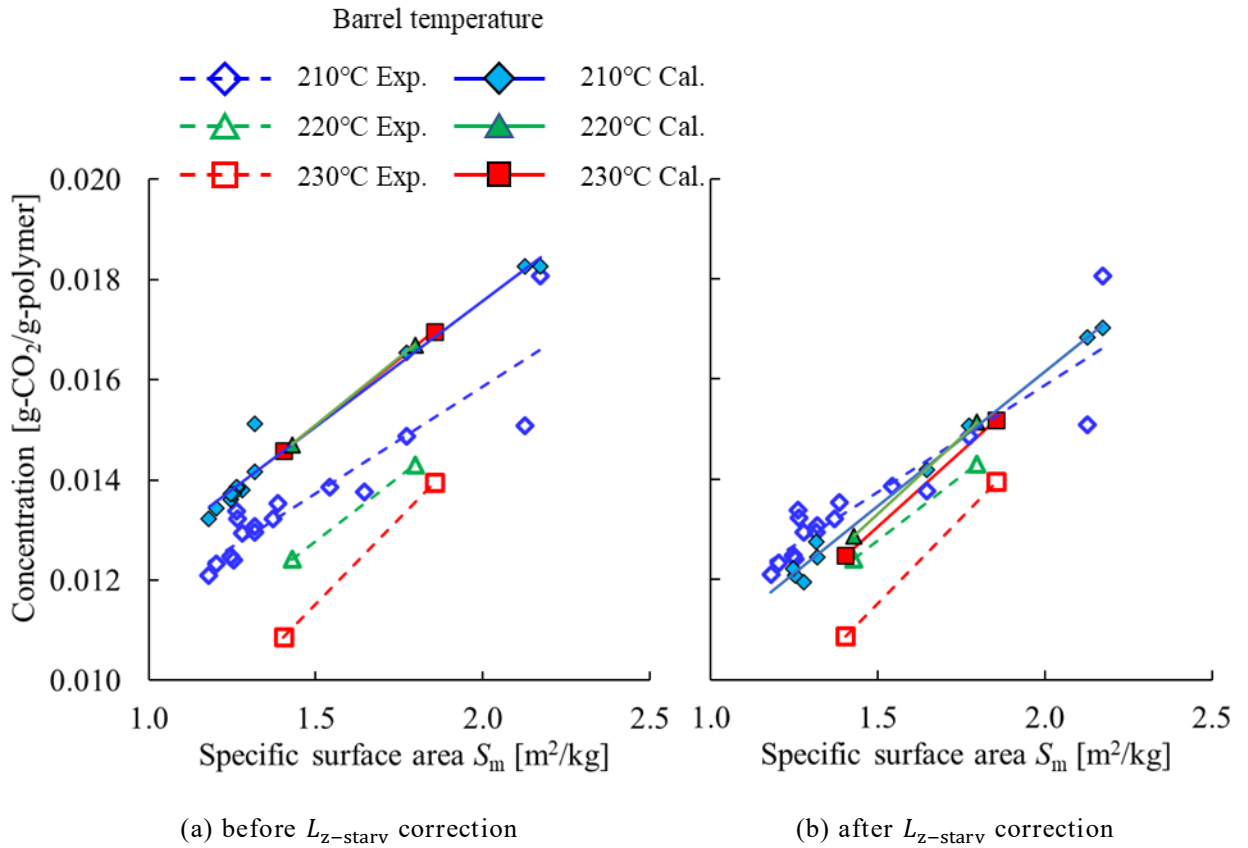


Fig.4-14 Relationship between specific surface area and CO_2 concentration (a) before $L_{z\text{-starv}}$ correction (b) after $L_{z\text{-starv}}$ correction

第4章 物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法

補正前の $L_{z-starv}$ が一定の場合、バレル温度210℃から230℃の解析値が重なっており、解析値と実験値との間の乖離はバレル温度が増加するほど大きくなっている（図4-14(a)）。このことから、まだ、樹脂温度の増加にともなう樹脂粘度低下と圧力勾配の低下の影響が検討できていないことが分かる。 $L_{z-starv}$ を補正した場合、バレル温度210℃の実験値と解析値は重なっており、フィッティングできている。バレル温度220℃、230℃では、210℃に比べて誤差が大きいものの、 $S_m \Delta P_p / \Delta L_z$ でフィッティングすることで計算精度を向上できた。一方、本項では、第2供給部の出口の樹脂圧力 P_{sf} は一定という条件の元で $L_{z-starv}$ を推定したが、 P_{sf} はスクリーウの第2ステージ供給部より下流側の圧縮部および計量部での圧力勾配の影響を受けるため、圧力勾配の大小により増減する。これにより、バレル温度が高い条件で計算誤差が生じたものと推察される。 CO_2 濃度のフィッティングについては、第5章でより広範な条件で検討を行い、精度の高い補正係数の導出、および指標について検討したため、本章ではこれ以上の検討は省略する。

4.4.4 待機時間中の物理発泡剤の溶解

最後に、冷却時間と CO_2 濃度の関係を図4-15に示す。物理発泡剤濃度は、計算値と実験値はともに冷却時間の増加とともに増加した。一方で、冷却時間を20sから720sに伸ばした場合、 CO_2 濃度は実験では1.51倍に増加したのに対し、計算値は1.21倍と増加量が少なく、計算精度に課題を残した。

そこで、冷却時間中（スクリーウ回転停止中）のスクリーウの非充填領域における CO_2 濃度分布を検証した。スクリーウ回転停止後の非充填領域における y 方向および z 方向の CO_2 濃度分布の時間変化を図4-16に示す。

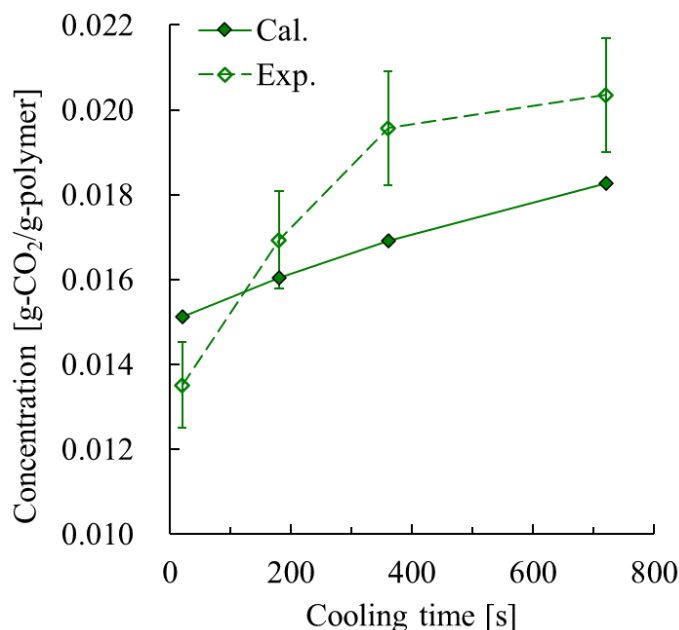


Fig.4-15 Effect of cooling time on CO_2 concentration.

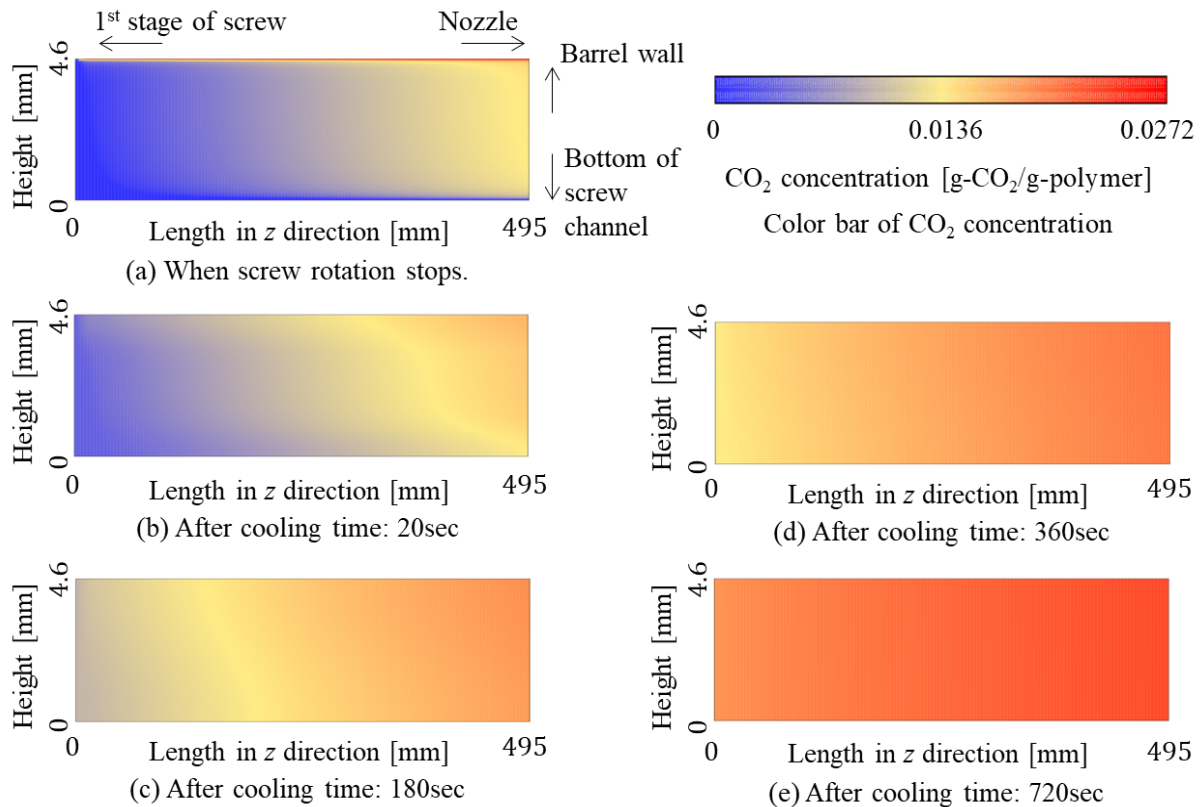


Fig.4-16 CO₂ concentration distribution in polymer-starvation zone in y-z direction.

スクリー回転停止直後の CO₂ 濃度の y 方向（フライト高さ方向：Height）の平均値は、非充填領域の入口が 0 g-CO₂/g-polymer と低く、出口が 0.0136 g-CO₂/g-polymer と高かった。また、バレル壁面の樹脂の取り込みの影響でバレル壁面付近の CO₂ 濃度が特に高い値を示したが、全体的には CO₂ 濃度は低い状態にあった。冷却時間 20 s 後の CO₂ 濃度の y 方向の平均値は、非充填領域の入口（0 mm）、出口（495 mm）で各々 0.0034, 0.0153 g-CO₂/g-polymer と全体に CO₂ 濃度が増加した。また、y 方向の CO₂ の拡散により、バレル壁面側の CO₂ 濃度の高い領域は消失した。その後、非充填領域全体に CO₂ 濃度が増加していき、冷却時間 720 s 後で CO₂ 濃度の y 方向の平均値は、非充填領域の入口、出口で各々 0.0187, 0.0229 g-CO₂/g-polymer となっていることがわかる。

図 4-16 における非充填領域の入口、および出口の CO₂ 濃度をプロットしたものが図 4-17 である。非充填領域の出口の CO₂ 濃度（図中▲）と 1 ショットの CO₂ 濃度の実験値（図中◇）とを比較すると、非充填領域出口の CO₂ 濃度が 0.002g-CO₂/g-polymer 程度高いものの、両者のサイクル時間に対する挙動はよく一致していた。これに対して、1 ショットの CO₂ 濃度の計算値（◆）は、冷却時間の増加に対する変化量が少なく、冷却時間が長いほど実験値との誤差が大きくなった。

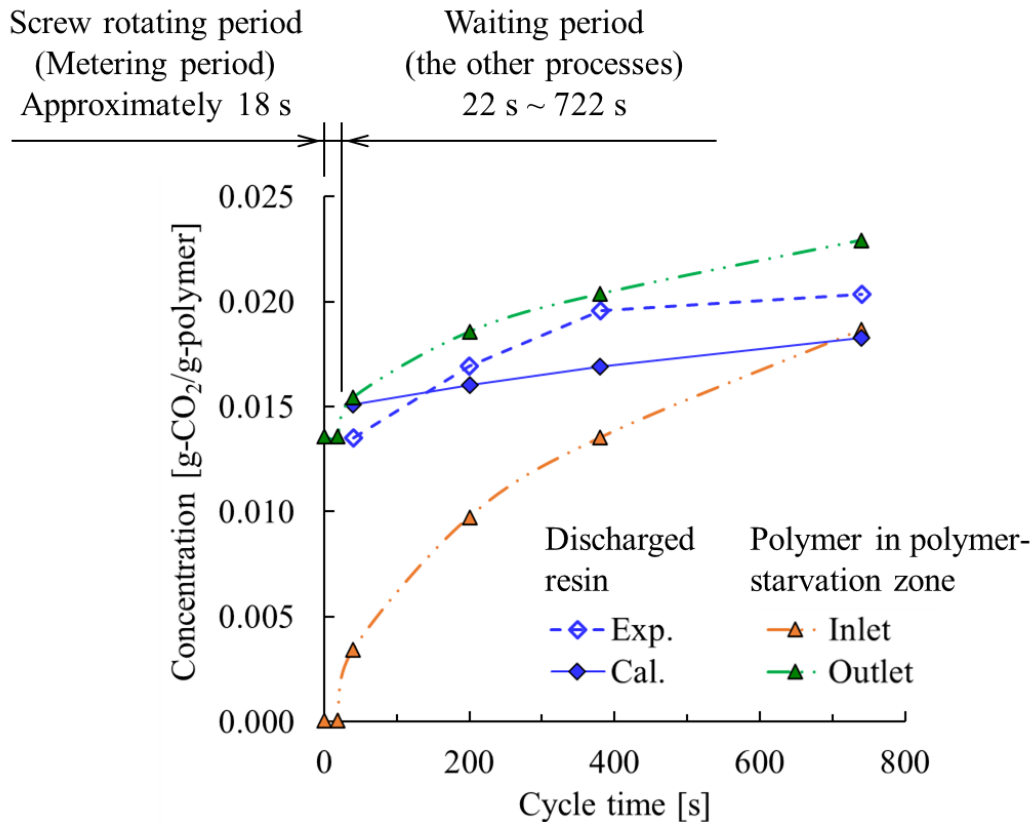


Fig.4-17 Effect of waiting time on CO₂ concentration in polymer-starvation zone of screw.

図 4-18 に冷却時間を 720s に設定したときの非充填領域の出口における CO₂ 濃度の時間変化（図 4-18(a)）とその中の四角で囲んだ部分を拡大した拡大図（図 4-18(b)）を示す。図 4-18(b)のようにスクリー回転直後は、待機時間中に非充填領域に滞留していた樹脂が、それ以降はスクリー回転中に非充填領域に新たに流入した CO₂ 濃度が低い樹脂が非充填領域の出口を通過する。可塑化能力 Q_m は計量中一定としており、待機時間中に非充填領域に滞留した樹脂が吐出される時間が計量時間の約半分であることから、待機時間中に非充填領域に滞留した樹脂は射出樹脂量の約半分であることが分かる。ここで、スクリー回転中の CO₂ 濃度が実験値の 0.0203 g-CO₂/g-polymer と同程度まで増加するためには、待機時間中に非充填領域の出口の CO₂ 濃度が溶解度（0.0272 g-CO₂/g-polymer）に達する必要があるが、計算結果は 0.0229 g-CO₂/g-polymer であり、両者の差は大きい。

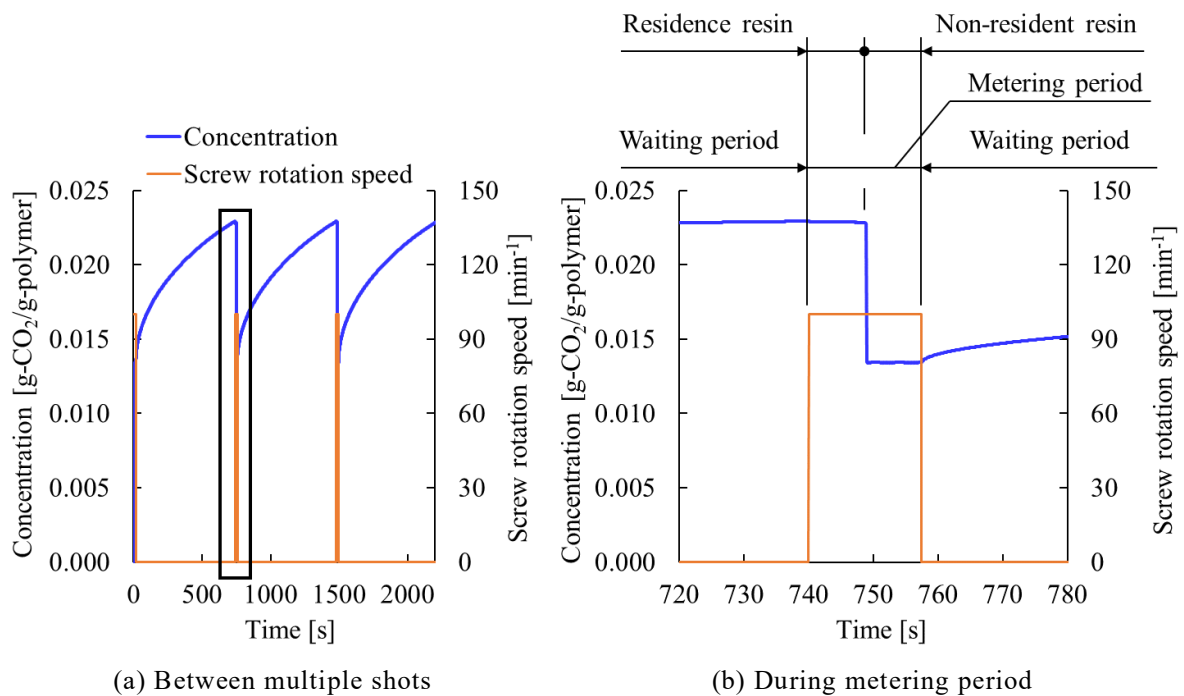


Fig.4-18 Change of the calculated CO_2 concentration at the outlet of polymer-starvation zone along time (Cooling time 720 s).

これらの結果は、ガス供給圧力に起因する樹脂の逆流により、待機時間中に非充填領域に滞留する樹脂量がモデルよりも多くなっている可能性を示唆している。待機時間中、ノズルの先端はシャットオフノズルにより閉じられているが、ホッパ側は熔融樹脂と固体樹脂が詰まった状態にあるため、圧力がかかれば熔融樹脂がホッパ側のソリッドベッドの固体樹脂の隙間に向けて逆流する可能性がある^{※1}。

開発した低圧発泡射出成形機では、 CO_2 の供給により、常時 $\Delta P_p = 4 \text{ MPa}$ の静圧が生じる。スクリー回転数 $N=0 \text{ min}^{-1}$ における圧力差誘起の流量（逆流量）は h^3 に比例する。流動抵抗の最も大きい第1ステージの計量部の形状により逆流量が決まると仮定すると、 z 方向の逆流量 Q_{Vz} は数 $10 \text{ mm}^3/\text{s}$ のオーダーとなる。ホッパに近い領域での圧力損失を加味しても、冷却時間が長い条件で樹脂が逆流した可能性は否定できない。樹脂が逆流すると、流路中央部に 4 MPa の CO_2 を満たした空洞ができ、待機時間中にその周囲の樹脂の CO_2 濃度が増加する。これにより、スクリー回転初期に CO_2 濃度が高い樹脂がスクリーの第1ステージから第2ステージに流入する。その結果、実験値では CO_2 濃度が計算値よりも高くなったと推察される。

※1： ホッパ側への物理発泡剤の逆流による噴き出しは、ガス供給圧力が高い場合、定量フィーダで樹脂供給量を絞りすぎた場合などに、しばしば出くわす開発した低圧発泡射出成形機に特有の現象である。

第4章 物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法

モデル化では、待機時間中に樹脂は流動しないものと仮定しているため、VOF (Volume Of Fluid) 法などの液体と気体との二相系の流れを取り扱える計算手法で物理発泡剤の供給圧力に起因した樹脂の逆流による流路内の樹脂の変化を推定した後、物理発泡剤濃度を解析することで、さらに計算精度が高まる可能性がある。ただし、射出成形では生産性を高めるため、サイクルタイムは、数 s から数 10 s 程度とするのが一般的で、数 min 以上とすることは少ない。そのため、実際の成形では、待機時間の長さに起因する CO₂ 濃度の計算誤差は、問題にならない場合の方が多いものと推察される。

4.5 結言

低圧物理発泡射出成形における溶融樹脂中への物理発泡剤の溶解挙動を、浸透説に基づいてモデル化し、その妥当性を評価し、以下を明らかにした。

- ・非充填領域の長さおよび待機時間が一定の条件において、スクリー回転中の物理発泡剤濃度は、実験値との相対誤差 10% 前後でモデルにより推算できた。浸透説を用いたモデルにより、樹脂中の物理発泡剤濃度を精度よく推算できることが示唆された。
- ・本モデルでは非充填領域の変化を考慮できないため、非充填領域の長さが変化する成形条件では、その条件の変化に対して、CO₂ 濃度の計算値と実験値との相対誤差が大きくなった。非充填領域の長さを比表面積と圧力勾配で補正した場合、解析値と実験値とは概ね一致したが、バレル温度が高くなると乖離が大きくなった。
- ・待機時間中の物理発泡剤の溶解は、拡散現象として表現できるが、その計算精度には課題を残した。計算精度の向上のためには、待機時間中の非充填領域の長さの変化の推定が求められると推察される。

第5章では、直径やフライト条数などの形状の異なるスクリーでの評価を行い、本理論モデルの有効性を検証するとともに、スクリーのスケールアップ時の物理発泡剤濃度への影響を検討する。

参考文献

1. 瀧健太郎, 大槻安彦 : 成形加工, **18** (3), 205 (2006)
2. Taki, K. : *Chem. Eng. Sci.*, **63**, 3643 (2008)
3. 細江俊介, 引間悠太, 大嶋正裕, 渡正博, 内藤章弘 : 成形加工, **33** (5), 176 (2021)
4. Yoshikawa, I., Hosoe, S., Hikima, Y., Watari, M. and Ohshima, M. : *Ind. Eng. Chem. Res.*, **62** (15), 6338 (2023)
5. Latinen, G. A. : *ACS Adv. Chem.*, **34**, 235 (1962)
6. Collins, G. P., Denson, C. D., Astarita, G. : *AIChE*, **31** (8), 1288 (1985)
7. 只木楨力 : 化学工学, **27** (11), 864 (1963)
8. Cussler, E. L. : *Diffusion : Mass Transfer in Fluid Systems 3rd Edition*, Cambridge University Press, 274-303 (2009)
9. Foster, R. W., and Lindt, J. T. : *Polym. Eng. Sci.*, **30** (7), 424 (1990)
10. 富山秀樹, 高本誠二, 新谷浩昭, 井上茂樹 : 成形加工, **19** (9), 565 (2007)
11. スハス V. パタンカー 原著, 水谷幸夫, 香月正司 訳 : コンピュータによる熱移動と流れの数値解析, 森北出版 (1985)
12. 龍野道宏, 横井秀俊 : 生産研究, **73** (5), 401 (2021)
13. Tadmor, Z. and Klein, I. : *Engineering Principles of Plasticating Extrusion*, Van Nostrand Reinhold Company, 209 (1970)
14. 久保田威夫 : 日本ゴム協会誌, **31** (4), 290 (1958)
15. Marschik, C., Löw-Baselli, B. and Miethlinger, J. : *AIP Conf. Proc.* **1914**, 080006 (2017)
16. 扇澤 敏明 : 高圧力の科学と技術, **5** (4), 216 (1996)
17. Otsuki, Y. and Kanai, T. : *Polym. Eng. Sci.*, **45** (9), 1277 (2005)
18. Lei, Z., Ohyabu, H., Sato, Y., Inomata, H., Smith Jr., R. L. : *J of Supercritical Fluids*, **40**, 452 (2007)
19. Sato, Y., Fujiwara, K., Takikawa, T., Sumarno, Takishima, S., Masuoka, H. : *Fluid Phase Equilibria*, **162**, 261 (1999)
20. 滝島繁樹 : 日本ゴム協会誌, **77** (10), 336 (2004)
21. Hisakura, Y., Hisamitsu, I., Sugihara, M., Tanifuji, S. -I., Hamada, H. : *Int. Polym. Process.*, **33** (5), 652 (2018)

付録 記号表

C	CO ₂ concentration [g/cm ³]		
C^*	Solubility [g/cm ³]	V_p	Volume of polymer in polymer-starvation zone excluding film polymer on barrel wall [m ³]
D_b	Screw diameter [m]		
D_m	diffusion coefficient [m ² /s]	v_{bx}, v_{bz}	Relative velocity of screw flight top and barrel wall in x - and z -directions [m/s]
e	Flight width of screw [m]		
h	Flight height [m]	v_f	Flow velocity of the polymer on the barrel wall in the x -direction toward the active flight [m/s]
k	Mass transfer coefficient [m/s]		
L_ℓ, L_z	Axial and parallel length [m]	v_x, v_y	Flow velocity of the polymer in x -direction and y -direction in polymer-starvation zone [m/s]
$L_{\ell-st}$	Injection stroke [m]		
L_{z-sf}	Parallel length of screw flight in second feed zone of screw [m]	v_{y-film}	y -direction flow velocity of polymer surface on active flight in polymer-starvation zone [m/s]
$L_{z-starv}$	Parallel length of screw flight in polymer-starvation zone [m]		
$L_{\ell-starv}$	Axial length of polymer-starvation zone [m]	$v_{z-filled}, v_{z-starv}$	Flow velocity of resin in z -direction in polymer-filling zone and polymer-starvation zone [m/s]
N	Screw rotation speed [s ⁻¹]		
N_{gs}	Average dissolution rate of physical blowing agents [g/(m ² s)]	w_f, w_p	Width of screw channel and polymer [m]
n_f	Number of flight [-]	n	Time step in time discretization
P_{sf}	Pressure at the tip of the second feed zone of screw [Pa]	i, j	x, y coordinates
P_p	Pressure of polymer [Pa]	w, e, n, s	Boundary surface between grid point "P" of central cell and adjacent cells
Q_m	Plasticizing capacity [kg/s]		
Q_{Vz}	volumetric flow rate of polymer [m ³ /s]	W, E, N, S	Grid points of cells adjacent to grid point "P" of the center cell
Q_{Vx}	volumetric flow rate of polymer in x -direction [m ³ /s]	x, y, z, ℓ	Width, height, parallel of flight, and axial coordinate
$Q_{Vz-filled}, Q_{Vz-starv}$	volumetric flow rate of polymer in z -direction in polymer-filling zone and polymer-starvation zone [m ³ /s]	α, β	Constants
S_m	Specific surface area [m ² /kg]	δ_f	Thickness of film polymer on barrel [m]
S_p	Surface area of polymer in polymer-starvation zone excluding film polymer on barrel wall [m ²]	η	Viscosity [Pa/s]
t	Time [s]	θ	Flight angle of screw [rad]
t_{cycle}	Cycle time of injection molding [s]	ρ	Density of polymer [kg/m ³]
t_r	Recovery time [s]	τ_R	exposure time [s]
		τ_{dz}	Average residence time in a space of length dz [s]

第 5 章

装置のスケールアップ時の物理発泡剤の溶解機構

第5章 装置のスケールアップ時の物理発泡剤の溶解機構

5.1 緒言

発泡射出成形の適用例が多い自動車部品などの分野で使用される中・大型の射出成形機では、直径 50mm 以上のスクリーが多く使用される。第4章では、浸透説に基づいた拡散溶解挙動のモデル化とシミュレーションにより、スクリー回転中のガス溶解量を精度よく推算できる可能性が示された。第3章、第4章で用いた小型発泡射出成形機のデータを基にした発泡剤の溶解挙動の知見およびモデルは中型大型の成形機についても適用できると考えられるが、スケールアップした際の課題については十分に検討できていない。また、第3章、第4章ではスクリーの形状を固定して実験、モデルによる計算を行っており、スクリーの形状が物理発泡剤の溶解に及ぼす影響については十分に検討できていない。特に、多条フライト※1について検討が必要である、多条フライトは、スクリーの流路を複数のフライトで分割することで流路内の樹脂の幅を減少させ、物理発泡剤（気体）と樹脂の接触界面積（比表面積×非充填領域の長さ）を安定に増やすことができ、その結果、物理発泡剤濃度を増加させる効果が期待できる^{1,2)}。

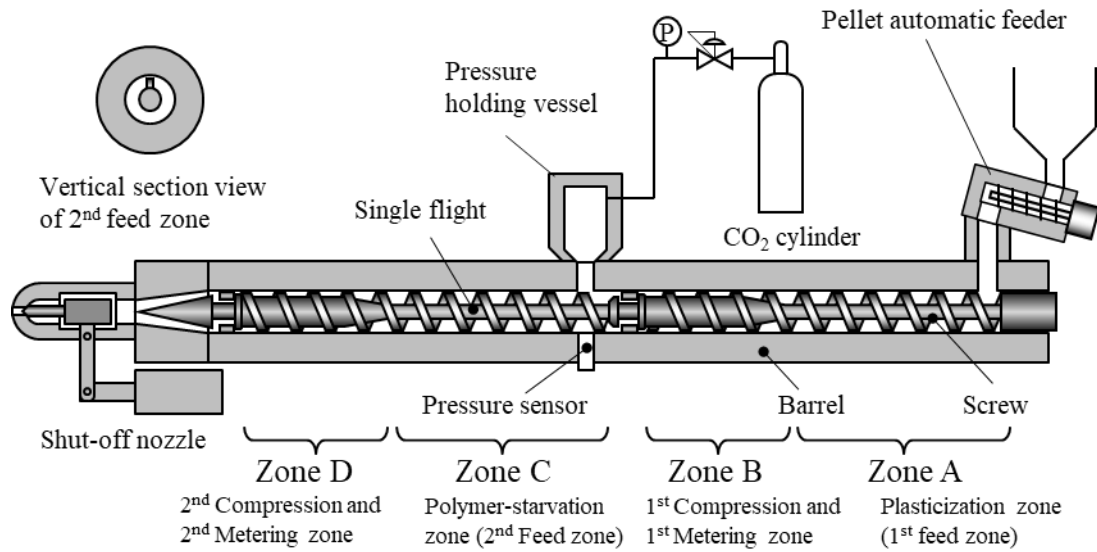
本章では、一般的なスクリーのスケールアップ則を適用した場合にスクリーの直径が物理発泡剤濃度に与える影響およびスクリーの第2ステージのガス供給部（Zone C）をシングルフライト※1（図5-1（a）の Single flight）から2条フライト※1（図5-1（b）の Double flight）に変更した時の効果を検討した。実験データから、スクリー形状の物理発泡剤濃度への影響について検討し、物理発泡剤濃度の支配要因を明らかにした。

5.2 発泡射出成形機の構成と成形条件

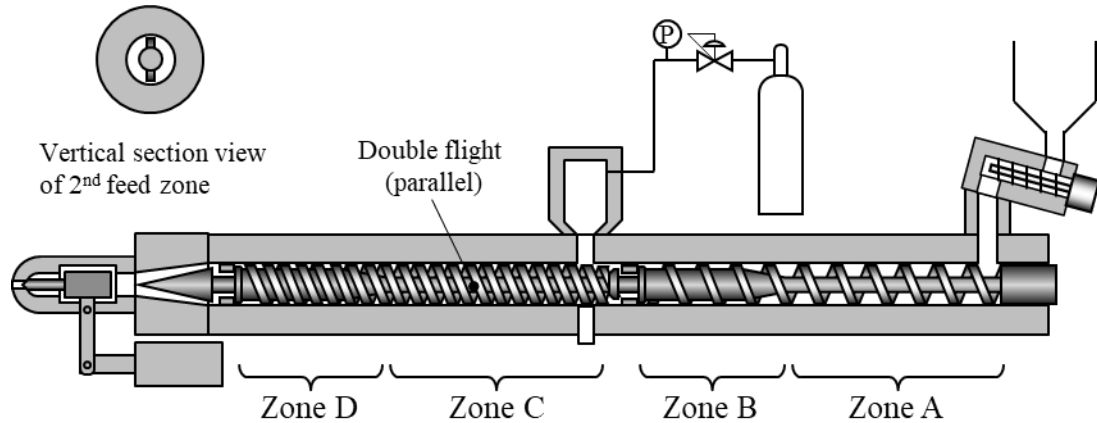
5.2.1 スクリーのスケールアップ乗数

第3章、第4章で使用した直径 22mm のスクリーを大型化した際の物理発泡剤の溶解機構への影響を計算した。単軸スクリーのスケールアップ則では、せん断速度 $\dot{\gamma} [s^{-1}]$ が一定、かつスクリーの供給部、圧縮部および計量部の構成比率、フライト角 [rad] が一定の条件下において、過度なせん断発熱などによる悪影響を避けながら、装置を大型化することを目的とした係数が提案されている^{3~5)}。

※1：多条フライトは、スクリー断面に 2 個以上のフライトを有し、フライトが同じフライト角で平行に配置されている形状を表す。本論文では、スクリー断面にフライトが 1 個あるものをシングルフライト（図 5-1(a)）2 個あるものを 2 条フライト（図 5-1(b)）、フライトが 2 個以上あるものを多条フライトと表した。



(a) 2nd feed zone is single flight



(b) The 2nd feed zone is modified with double flight

Fig.5-1 Differences in screw shape using single flight and double flight.

スクリュウの各部を表す記号を図 5-2 に示す（第 4 章の図 4-1 を 2 条フライトに変更した図）。各部の寸法，可塑化能力などは，一般的な単軸押出機のスケールアップ則³⁻⁵⁾に従うものとした。表 5-1 にモデルによる計算に用いたスクリュウのスケールアップ乗数を示す。直径に比例して増加するものはスケールアップ乗数を 1 とし，直径の n 乗に比例して増加するものはスケールアップ乗数を n と表した。

各記号の右下の添え字の 0 をスケールアップ前，1 をスケールアップ後として，スケールアップ前後のスクリュウの直径 D_b [m] をそれぞれ D_{b0} ， D_{b1} とおくと，スクリュウの第 2 ステージ供給部（非充填領域）の z 方向の長さ $L_{z-starv}$ [m]，フライトの溝幅 w_f [m]，フライトの溝深さ h [m]，スクリュウ回転数 N [s^{-1}]，可塑化能力（押出量） Q_m [kg/h] との間には，以下の関係が成り立つ³⁻⁵⁾：

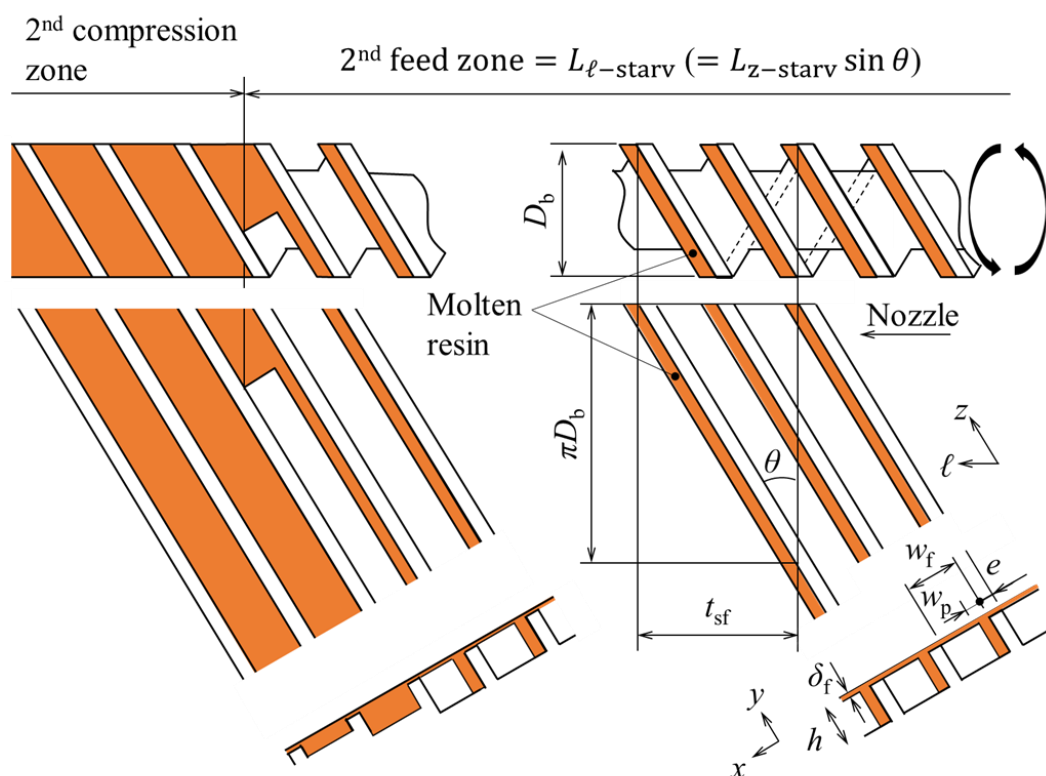


Fig.5-2 Schematic and deployment diagram of 2nd feed zone of double flight screw and molten polymer in barrel.

Table 5-1 Typical scale-up factors for single screw extruder.

Parameters	Symbol	Scale up multiplier
Screw diameter [m]	D_b	1
Flight pitch [m]	t_{sf}	1
Flight angle [rad]	θ	0
Flight width [m]	e	1
Flight height [m]	h	0.5
Flight clearance [m]	δ_f	0
Polymer width [m]	w_p	1
Length of the polymer-starvation zone [m]	$L_{z-starv}$	1
Volume of flight channel [m ³]		2.5
Plasticizing capacity [kg/h]	Q_m	2
Shear rate [s ⁻¹]	$\dot{\gamma}$	0
Circumferential speed [m/s]		0.5
Screw rotation speed [s ⁻¹]	N	-0.5
Residence time in the polymer-starvation zone [s]	τ_{starv}	0.5

第5章 装置のスケールアップ時の物理発泡剤の溶解機構

$$L_{z\text{-starv}1} = L_{z\text{-starv}0} \left(\frac{D_{b1}}{D_{b0}} \right) \quad (5-1)$$

$$w_{f1} = w_{f0} \left(\frac{D_{b1}}{D_{b0}} \right) \quad (5-2)$$

$$h_1 = h_0 \left(\frac{D_{b1}}{D_{b0}} \right)^{0.5} \quad (5-3)$$

$$N_1 = N_0 \left(\frac{D_{b1}}{D_{b0}} \right)^{-0.5} \quad (5-4)$$

$$Q_{m1} = Q_{m0} \left(\frac{D_{b1}}{D_{b0}} \right)^2 \quad (5-5)$$

(5-1) ～ (5-5) 式からわかるように, $L_{z\text{-starv}}$, w_f , h , N , Q_m のスケールアップ乗数は, 各々 1, 1, 0.5, -0.5, 2 となっている (表 5-1)^{3~5)}.

非充填領域の樹脂の幅 w_p については, 従来のスケールアップ則には提示されておらず, 本論文で新たに w_p のスケールアップ則を第4章の (4-22) 式 (本章 (5-6) 式) と (4-21) 式 (本章 (5-7) 式) から求めた^{6,7)}.

$$Q_{Vz\text{-starv}} = \frac{\pi D_b N h n_f w_p \cos \theta}{2} \quad (5-6) \quad (4-22)$$

$$Q_{Vz\text{-starv}} = \frac{Q_m}{3600\rho} \quad (5-7) \quad (4-21)$$

$$w_p = \frac{Q_m}{1800\rho\pi D_b N h n_f \cos \theta} \quad (5-8)$$

ここで, $Q_{Vz\text{-starv}}$ は非充填領域の樹脂の体積流量 [m^3/s], ρ は熔融樹脂の密度 [kg/m^3], n_f はスクリュウのフライト条数 [-], θ はスクリュウフライトのフライト角 [rad] を表す (変数の定義は章を通して変わらない).

スケールアップ前後の樹脂幅はそれぞれ w_{p0} , w_{p1} と表わすと, スケールアップ後の w_{p1} は以下の式で表される.

$$w_{p1} = \frac{Q_{m1}}{1800\rho\pi D_{b1} N_1 h_1 n_f \cos \theta} \quad (5-9)$$

(5-9) 式に (5-3) から (5-5) 式の $Q_{m1} = Q_{m0}(D_{b1}/D_{b0})^2$, $N_1 = N_0(D_{b1}/D_{b0})^{-0.5}$, $h_1 = h_0(D_{b1}/D_{b0})^{0.5}$ を代入すると, 次式が得られる.

$$w_{p1} = \frac{Q_{m0}}{1800\rho\pi D_{b0} N_0 h_0 n_f \cos \theta} \left(\frac{D_{b1}}{D_{b0}} \right) = w_{p0} \left(\frac{D_{b1}}{D_{b0}} \right) \quad (5-10)$$

(5-10) 式より, 樹脂の幅 w_p のスケールアップ乗数は 1 とした (表 5-1). また, (5-8) 式より, w_p はフライト条数 n_f に反比例して減少することが分かる.

第5章 装置のスケールアップ時の物理発泡剤の溶解機構

表 5-1 のスケールアップ条件下で第 4 章のモデルを使って数値シミュレーションを行い，スクリー直径が物理発泡剤濃度に与える影響を検討した．第 3 章，第 4 章で用いた直径 22mm のスクリー（表 5-2 の青字部）を基準に表 5-1 のスケールアップ乗数を適用して設計したスクリーの寸法，スクリー回転数，可塑化能力を表 5-2 に，モデルによる計算条件を表 5-3^{8~10)}に示す．溶解度，拡散係数などの樹脂物性は第 3 章，4 章と同じホモポリプロピレン（PP, J105G, プライムポリマー（株））の物性を用いた．第 4 章の表 4-1 の基準条件を成形条件として設定し，スクリー形状，スクリー回転数，可塑化能力などはスケールアップ則に従うものとした．また，本検討では，待機時間中の物理発泡剤の溶解の影響を除くため，

Table 5-2 Screw design and operation parameters of the polymer-starvation zone

Parameters	Symbol		Conditions					Note
Screw diameter [mm]	D_b	22	44	66	88	110		Input value
Flight height [mm]	h	4.6	6.5	8.0	9.2	10.3		Input value
Flight clearance [mm]	δ_f	0.075	0.075	0.075	0.075	0.075		Input value
Flight pitch [mm]	t_{sf}	22	44	66	88	110		Input value
Flight width [mm]	e	2.2	4.4	6.6	8.8	11		-
Number of flight [-]	n_f	1 or 2	1 or 2	1 or 2	1 or 2	1 or 2		Input value
Length of the polymer-starvation zone [mm]	$L_{z-starv}$	495	990	1485	1980	2475		Input value
Screw rotation speed [min^{-1}]	N	100	70.7	57.7	50	44.7		Input value
Plasticizing capacity [kg/h]	Q_m	2.37	9.48	21.3	37.9	59.3		Input value
Metering period [mm]	L_{t-st}		Continuous screw rotation					Input value
Cycle time [s]	t_{cycle}		40					Input value

Table 5-3 The calculation conditions.

Calculation conditions	Symbol	Conditions	Note
Density of molten resin [kg/m^3]	ρ	740 ⁸⁾	Input value
Diffusion coefficient [m^2/s]	D_m	8.0×10^{-9} (at 190°C, CO_2) ⁹⁾	Input value
Solubility [$\text{g-CO}_2/\text{g-polymer}$]	C^*	2.72×10^{-2} (at 207°C, 4MPa) ¹⁰⁾	Input value
Shot number [-]	-	5	Input value
Number of meshes in x direction	-	During screw rotation : 2 During waiting time : 200	Input value
Number of meshes in y direction	-	200	Input value
Mesh size in z direction [m]	-	$0.165 D_b$	Input value

第5章 装置のスケールアップ時の物理発泡剤の溶解機構

サイクル時間中，スクリューは回転し続ける条件で計算を行った．

ここで，スクリュー径が大きくなった際の樹脂の比表面積 S_m [m^2/kg] を検討した．第3章の(3-1)式より，樹脂の比表面積は以下の式で表される．

$$S_m = \frac{\{(h - \delta_f) + (w_f - w_p)\}}{\rho\{w_p h + (w_f - w_p)\delta_f\}} \quad (5-11) \quad (3-1)$$

ここで， δ_f はスクリューのフライト頂部とバレル壁面との隙間 [m]， w_f はスクリューのフライトの溝幅 [m] である．また， w_f は以下の式で表される．

$$(w_f + e)n_f = \pi D_b \sin \theta$$

$$w_f = \frac{\pi D_b \sin \theta}{n_f} - e \quad (5-12)$$

ここで， e はスクリューのフライト幅 [m] である．

表5-2のスクリュー形状と成形条件においてスクリュー溝内の樹脂の比表面積 S_m と樹脂幅 w_p を計算した結果を図5-3に示す．従来のフライト条数 n_f が1条（図5-3中の Single flight）の場合， S_m はスクリュー径 D_b の増加にともなって減少し， w_p は D_b に比例して増加した．第4章の図4-9に示された結果から， S_m が減少すると物理発泡剤濃度が減少すると予測される．物理発泡剤濃度が低いと気泡の生成数が減少し，軽量化には不利に働く^{11,12)}．そこで， S_m を増加させて物理発泡剤濃度の低下を抑えるため，非充填領域のスクリュー形状のフライト条数を $n_f = 1$ のシングルフライト（図5-1(a)）から $n_f = 2$ の2条フライト（図5-1(b)，図5-2の Double

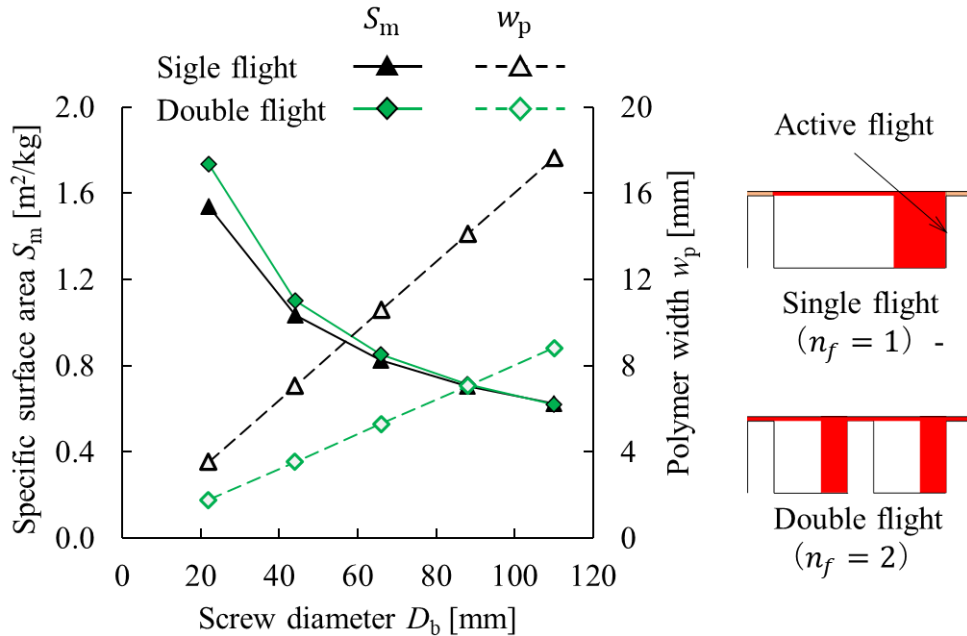


Fig.5-3 Effect of screw diameter on specific surface area and polymer width in polymer-starvation zone .

flight) にしたスクリーを検討した^{1,2)}。2条フライトでは、第1ステージ (Zone B) から第2ステージ供給部 (Zone C) に流入した樹脂が、2つのフライトに分かれて進むように設計されている。2条フライト (図 5-3 中の Double flight) では、押側フライト (Active flight) の樹脂の表面積は2倍になるが、バレル壁面の薄膜状の樹脂の表面積は減少する (図 5-3)。そのため、 D_b が 22~66mm では、 S_m は 2条フライトの方が大きくなるが、88mm 以上ではシングルフライトとの差がなくなった。 S_m に大きな差異はないものの、2条フライトでは、樹脂の幅 w_p が半減し、Active flight 側にある樹脂の表面積が倍増するため、物理発泡剤濃度の向上が期待できる。上記の条件下において、第4章の計算プログラムを用いて樹脂中の物理発泡剤濃度を推算した。

5.2.2 2条フライトスクリーの実機検討条件

型締め力 450 トンの低圧発泡射出成形機 (SOFIT, J450ADS-1400H, (株)日本製鋼所) にスクリー直径 D_b が 66 mm, フライト条数 n_f が 2 条のスクリーを搭載し、 N_2 , CO_2 を物理発泡剤とした時の樹脂中の物理発泡剤濃度を推定した。

実験装置の概要と配管系統図を図 5-4 に示す。物理発泡剤は小型のボンベより供給し、試験期間中のボンベの重量変化を電子天秤 (BX22KH, (株)島津製作所) により測定時間間隔 1 s で計測した。圧力容器近傍の高圧配管に配置した圧力電送器 (KM31-3X4-Q7X7, 長野計器(株)) で配管内のガス圧力を、バレルのガス供給口と同円周上に配置した樹脂圧力センサ (NP462XL-1/2-200MPa-8/45, 日本ダイニスコ(株)) でバレル内圧力を測定した。また、配管上に設置したコリオリ流量計 (Promass A 300 8A3C02, Endress+Hauser AG) で質量流量を計測した。電子

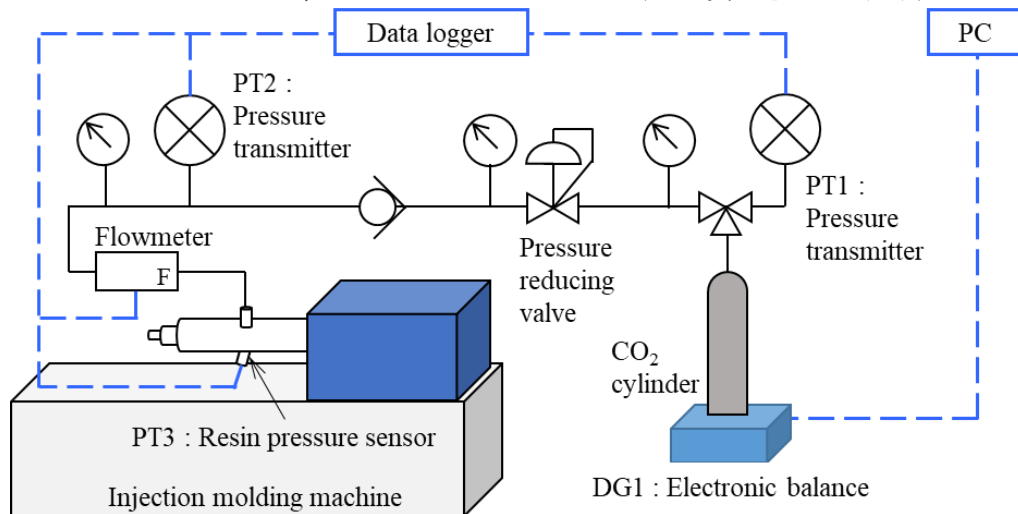


Fig. 5-4 Configuration of experimental equipment and piping system diagram.

第5章 装置のスケールアップ時の物理発泡剤の溶解機構

天秤を除く各センサおよび成形機からの信号をデータロガー（NR-200，株キーエンス）に取り込み，測定時間間隔 0.05 s で測定した．

樹脂材料に，前項と同じホモポリプロピレン（PP，J105G，株プライムポリマー）（第3章と同じ材料），物理発泡剤に CO₂（純度 99.9 %，容量 2 kg，富永商事株），および N₂（純度 99.99 %，容量 1.5 m³，富永商事株）を用いた．表 5-4 の成形条件で長さ 360 mm，幅 250 mm，厚み 1.5 mm の平板を 20 ショット連続して成形した．バレル温度設定欄に青字で示したのはガス供給部，および非充填領域の設定温度である．また，表 5-4 の可塑化能力 Q_m は実験値を表す．バレル内の飢餓状態（非充填状態）の安定には時間を要するため，試験に先だって類似条件で 20 ショットの連続成形を 2 回実施してバレル内の状態が安定した後に試験を実施した．

本試験では設備上の制約から NIR センサを使用できなかったため，樹脂中の物理発泡剤濃度を直接評価できない．そこで，バレル内に供給された物理発泡剤量と樹脂に溶解した物理発泡剤量は等しいという仮定の下，成形品の重量とガス消費量から樹脂中の物理発泡剤濃度を推定した．また，表 5-4 の成形条件，表 5-5 の計算条件^{8~10,13)}および第4章の計算プログラムを用いて樹脂中の物理発泡剤濃度を計算し実験値と比較した．その結果は 5.3 節にまとめる．

Table 5-4 Molding conditions in physical foam injection molding.

Parameters	Symbol	Conditions		Note
Gas		CO ₂	N ₂	
Gas delivery pressure [MPa]		5	6	
Screw rotation speed [min ⁻¹]	N	100	100	Input value
Back pressure [MPa]		7	8	
Metering period [mm]	L_{t-st}	59.88		Input value
Barrel temperature from hopper to shut-off nozzle [°C]		50, 210, 220, 220, 220 , 220, 220		
Plasticizing capacity [kg/h] (Experimental value)	Q_m	50.2	47.7	Input value
Polymer supply rate [kg/h]		Do not use feeder		
Injection speed [mm/s]		60		
Maximum injection pressure [MPa]		140		
Holding pressure [MPa]		10		
Holding time [s]		0.5		
Cooling time [s]		42		
Mold temperature [°C]		40		
Cycle time [s]	t_{cycle}	60		Input value

Table.5-5 The calculation conditions.

Calculation conditions	Symbol	Conditions	Note
Density of molten resin [kg/m ³]	ρ	740 ⁸⁾	Input value
Shot number [-]	-	2	Input value
Number of meshes in x direction		During screw rotation : 2 During waiting time : 200	Input value
Number of meshes in y direction		200	Input value
Mesh size in z direction [mm]		8.1	Input value
Polymer properties for CO₂			
Diffusion coefficient [m ² /s]	D_m	8.0×10^{-9} (at 190°C) ⁹⁾	Input value
Solubility [g-CO ₂ /g-polymer]	C^*	3.40×10^{-2} (at 207°C, 5MPa) ¹⁰⁾	Input value
Polymer properties for N₂			
Diffusion coefficient [m ² /s]	D_m	7.3×10^{-9} (at 180°C, 6MPa) ¹³⁾	Input value
Solubility [g-N ₂ /g-polymer]	C^*	7.32×10^{-3} (at 200°C, 6MPa) ¹⁰⁾	Input value

5.2.3 スクリュー形状の変更条件

第3章、第4章では、スクリューのフライト形状を固定して検討したため、スクリューのフライト高さ h やフライトピッチ t_{sf} （フライト角 θ ）などのスクリュー形状の影響を検討できていない。また、第4章の検討において、計算値と実験値との比較では、樹脂温度が変化した場合に、計算値はCO₂濃度変化を十分表現できないなどの課題を残した。本章では、様々なスクリュー形状、成形条件で第4章のモデルを用いた計算を行い、その影響を検討するとともに、CO₂濃度の支配要因を、比表面積 S_m などのこれまで用いた指標によって整理した。

計算に用いたスクリューの形状および成形条件を表5-6に示す。モデルとして、直径 D_b が22mmと66mm、かつフライト条数 n_f が1条と2条のスクリューを検討した。基準条件（表5-6の青字部）には、表5-2に示した直径22mmと66mmのスクリュー形状と成形条件を用いた。操作条件として、スクリューのフライト高さ h 、フライトピッチ t_{sf} （フライト角 θ ）、可塑化能力 Q_m 、スクリュー回転数 N 、非充填領域の軸方向長さ $L_{\ell\text{-starv}}$ を用い、CO₂濃度に及ぼす影響を検討した。 h 、 t_{sf} 、 Q_m は、それぞれ基準条件の0.8、1.0、1.2、1.4倍の4水準に、また N は直径22mmのスクリューでは基準条件の0.6、0.8、1.0、1.2、1.4倍、直径66mmのスクリューでは基準条件の0.8、1.0、1.2、1.4倍の5水準とした。非充填領域の軸方向長さ $L_{\ell\text{-starv}}$ [m]^{※2}は、圧力勾配などの影響による非充填領域の減少を想定し、基準条件の値の0.4、0.6、0.8、1.0倍の4水準とした。計算プログラムへの入力変数のパラメータ値は表5-3の条件とし、待機時間の影響を除いた連続スクリュー

回転中の CO₂ 濃度を評価した。

Table 5-6 Simulation parameters of two screw with different diameters
(Bold blue indicates the parameters of the base condition.)

Parameters	Symbol	Operating conditions		Note
Screw diameter [mm]	D_b	22	66	Input value
Flight height [mm]	h	3.68, 4.60 , 5.52, 6.44	6.4, 8.0 , 9.6, 11.2	Input value
Flight clearance [mm]	δ_f	0.075	0.075	Input value
Flight pitch [rad]	t_{sf}	17.6, 22.0 , 26.4, 30.8	52.8, 66 , 79.2, 92.4	Input value
Number of flight [-]	n_f	1 or 2	1 or 2	Input value
Axial length of polymer-starvation zone [mm]	$L_{\ell\text{-starv}}$	60, 90, 120, 150	180, 270, 360, 450	Input value
Gas delivery pressure [MPa]		4	4	
Screw rotation speed [min ⁻¹]	N	60, 80, 100 , 120, 140	46.2, 57.7 , 69.2, 80.8, 92.3	Input value
Plasticizing capacity [kg/h] (Polymer supply rate)	Q_m	1.90, 2.37 , 2.84, 3.32	17.0, 21.3 , 25.6, 29.8	Input value
Metering period [mm]	$L_{\ell\text{-st}}$	Continuous screw rotation		Input value
Cycle time [s]	t_{cycle}	40	40	Input value

5.2.4 非充填領域における樹脂の表面更新回数の推定

第4章で提案したモデルにおいて物理発泡剤は、樹脂表面から拡散し、樹脂の流動（旋回流）により促進されるとしている。物理発泡剤の溶解量は、樹脂表面の表面更新により促進される。ここで、表面更新に要する時間 τ_R [s] は、第4章の（4-3）式より以下のように表される。

$$\tau_R = \frac{h - \delta_f}{v_{y\text{-film}}} = \frac{h - \delta_f}{\pi D_b N \sin \theta} \quad (5-13)(4-3)$$

$$v_{y\text{-film}} = v_{bx} = \pi D_b N \sin \theta \quad (5-14)$$

$v_{y\text{-film}}$ は樹脂表面の流速 [m/s] を表し、Latinen の脱揮モデルより、 $v_{y\text{-film}} = v_{bx} = \pi D_b N \sin \theta$ の関係を使っている¹⁴⁾。 v_{bx} はスクリー回転時のバレル壁面とスクリー一のフライト頂部との x 方向（フライトに垂直な方向）の相対速度 [m/s] である。

※2：これまでの検討では、非充填領域の長さはフライトと平行な z 方向の長さ $L_{z\text{-starv}}$ を基準として用いたが、 $L_{z\text{-starv}}$ を基準としてフライトピッチを変更すると、非充填領域の軸方向長さ $L_{\ell\text{-starv}}$ が変化し、スクリー全長が変化する。そのため、本検討における非充填領域の長さは、スクリー全長の基準となる軸方向の長さ $L_{\ell\text{-starv}}$ を基準とした。

第5章 装置のスケールアップ時の物理発泡剤の溶解機構

非充填領域の入口に流入した樹脂が非充填領域の出口から流出するまでの滞留時間 τ_{starv} [s] についても次のように導いた.

非充填領域における樹脂の z 方向の流速を $v_{z\text{-starv}}$ [m/s] とすると, 第4章の (4-17) 式より平均流速 $\overline{v_{z\text{-starv}}}$ [m/s] は以下の式で表される^{6,7)}.

$$\overline{v_{z\text{-starv}}} = \frac{1}{h} \int_0^h v_{z\text{-starv}} dy = \frac{1}{h} \int_0^h \frac{y}{h} \pi D_b N \cos \theta dy = \frac{\pi D_b N \cos \theta}{2} \quad (5-15) \quad (4-17)$$

非充填領域をスクリーンの第2ステージ供給部 (Zone C) の全域と仮定し, その z 方向長さを $L_{z\text{-starv}}$ とすると, 滞留時間 τ_{starv} は $L_{z\text{-starv}}$ と $\overline{v_{z\text{-starv}}}$ の比により, 以下の式で表される.

$$\tau_{\text{starv}} = \frac{L_{z\text{-starv}}}{\overline{v_{z\text{-starv}}}} = \frac{2L_{z\text{-starv}}}{\pi D_b N \cos \theta} \quad (5-16)$$

この時, 表面更新回数 N_R は, 表面更新時間 τ_R と非充填領域における滞留時間 τ_{starv} の比として, 以下の式で表される.

$$N_R = \frac{\tau_{\text{starv}}}{\tau_R} = \frac{2L_{z\text{-starv}} \tan \theta}{h - \delta_f} \quad (5-17)$$

(5-17) 式を用いて表面更新回数 N_R を推定し, 物理発泡剤の溶解に及ぼす影響を検討した.

5.2.5 Active flight の樹脂表面のみからの物理発泡剤溶解量の推定

Active flight の樹脂の表面からの物理発泡剤 (CO_2) 溶解量を計算により求め, 移流やバレル壁面の樹脂の取り込みにより溶解する物理発泡剤 (CO_2) との割合を検討した. 第4章の (4-4) 式を変形し, Active flight の樹脂全体の単位時間当たりの物理発泡剤濃度 C [g-gas/g-polymer] の時間変化は, 以下の式で表される^{14,15)}.

$$\frac{dC}{dt} = \frac{N_{\text{gs}} S_p}{V_p} = \frac{2}{w_p} \sqrt{\frac{D_m D_b N \sin \theta}{h - \delta_f}} (C^* - C) \quad \text{for } t = 0, C = 0 \quad (5-18) \quad (4-4)$$

ここで, N_{gs} は単位面積当たりの物理発泡剤の平均溶解速度 [g/(m²s)], S_p は非充填領域の微小領域における樹脂と発泡剤との接触面積 ($S_p = dydz$) [m²], V_p はバレル壁面の薄膜状の樹脂を除いた非充填領域の面積 S_p における樹脂の体積 ($V_p = dydz w_p$) [m³], D_m は拡散係数 [m²/s], δ_f はバレル壁面の薄膜状の樹脂の厚み [m], C^* は物理発泡剤の樹脂に対する溶解度 [g-gas/g-polymer] である. (5-18) 式の詳細は, 第4章の (4-1) から (4-4) 式の導出で説明しているので省略する.

(5-18) 式の両辺に $dt/(C - C^*)$ をかけた後, 積分して (5-19) 式を得た.

$$\int \frac{1}{(C - C^*)} dC = - \int \left(\frac{2}{w_p} \sqrt{\frac{D_m D_b N \sin \theta}{h - \delta_f}} \right) dt$$

$$\ln |C - C^*| = - \frac{2t}{w_p} \sqrt{\frac{D_m D_b N \sin \theta}{h - \delta_f}} + A \quad (5-19)$$

ここで、 A は積分定数を表す．非充填領域の流路入口（ $t = 0$ ）における物理発泡剤濃度 $C = 0$ を（5-19）式に代入して A を求めた

$$A = \ln C^*$$

また、 $C \leq C^*$ より $|C - C^*| = C^* - C$ となる．これらを（5-19）式に代入して（5-20）式を得た．

$$\ln \frac{C^* - C}{C^*} = - \frac{2t}{w_p} \sqrt{\frac{D_m D_b N \sin \theta}{h - \delta_f}}$$

$$\frac{C^* - C}{C^*} = \exp \left(- \frac{2t}{w_p} \sqrt{\frac{D_m D_b N \sin \theta}{h - \delta_f}} \right)$$

$$C = \left(1 - \exp \left(- \frac{2t}{w_p} \sqrt{\frac{D_m D_b N \sin \theta}{h - \delta_f}} \right) \right) C^* \quad (5-20)$$

ここで、右辺のスクリュウ形状と成形条件により決まる項を $\alpha [s^{-1}]$ として定義する．

$$\alpha = \frac{2}{w_p} \sqrt{\frac{D_m D_b N \sin \theta}{h - \delta_f}} \quad (5-21)$$

スクリュウ回転中の非充填領域における樹脂の滞留時間 $t = \tau_{\text{starv}}$ 後の物理発泡剤濃度を求めたため、（5-20）式に（5-21）式ともに $t = \tau_{\text{starv}}$ を代入すると（5-22）式が得られる．

$$C = (1 - \exp(-\alpha \tau_{\text{starv}})) C^* \quad (5-22)$$

（5-22）式は **Active flight** の樹脂の表面からの拡散・溶解のみとした場合の物理発泡剤濃度 C を表している．そのため、バレル壁面の薄膜状樹脂の取り込みと移流による物質移動を考慮したモデルにより求めた値と（5-22）式により求めた値との差がバレル壁面の薄膜状樹脂の取り込みと移流の影響による物理発泡剤濃度変化ということになる．

本論文では、第4章のモデルにより求めた物理発泡剤濃度 C と区別するため、（5-22）式により求めた **Active flight** の樹脂の表面から表面更新による拡散・溶解のみによる物理発泡剤濃度 C_s を期待値（**Expected value**）として表した．

5.3 結果と考察

5.3.1 スクリューのスケールアップの影響

直径 D_b とフライト条数 n_f の異なる 10 種のスクリーでスケールアップ則を適用し、非充填領域の出口における樹脂の CO_2 濃度、および樹脂の比表面積を求めた。結果を図 5-5 に示す。 CO_2 濃度の計算値（図中の▲, ◆）は、 D_b の増加にともなって減少し、シングルフライトでは直径 22mm の 0.0143 g- CO_2 /g-polymer から直径 110mm の 0.0081 g- CO_2 /g-polymer へと、 D_b の約 0.35 乗に反比例して減少した。また、2 条フライトでの CO_2 濃度- D_b の曲線は上側にシフトしてシングルフライトに比べて 1.47~1.68 倍高い値を示し、直径 22mm の 0.0210 g- CO_2 /g-polymer から直径 110mm の 0.0137 g- CO_2 /g-polymer へと D_b の約 0.27 乗に反比例して減少した。

スクリューの直径 D_b の増加にともなって比表面積 S_m （図中の△, ◇）が減少する挙動は、 CO_2 濃度が D_b の増加にともなって減少する挙動と似ているが、2 条フライトでの S_m は D_b の増加に対して大きく減少し、直径 88mm 以上の場合、シングルフライトと差がなくなっている。これに対し、 CO_2 濃度は 2 条フライトとシングルフライトの差は概ね一定で、 S_m と CO_2 濃度とで D_b に対する変化の仕方と異なっている。このことは、 S_m は D_b やフライト条数などが変わった際の物理発泡剤の濃

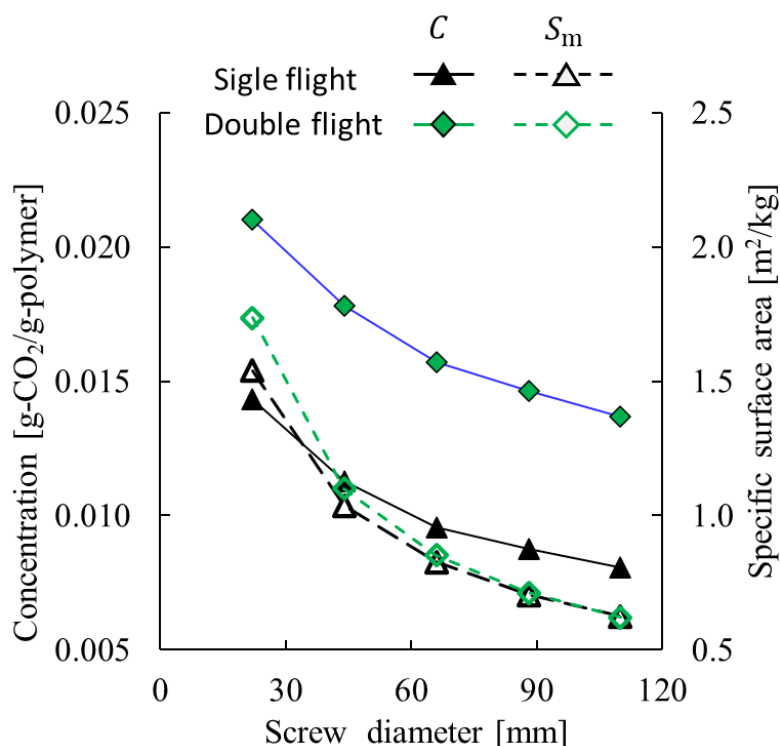


Fig. 5-5 Effect of scale-up of the screw diameter and number of flights on CO_2 concentration and specific surface area.

第5章 装置のスケールアップ時の物理発泡剤の溶解機構

度変化を検討する評価指標としては十分でないことが示唆している．なお，評価指標についてはは 5.3.4 で改めて検討している．

上述の結果は， D_b が大きいスクリュウでは物理発泡剤濃度が低下するため，発泡倍率を上げるためには非充填領域における樹脂と CO_2 の接触面積を増加させる必要があり，そのための手段として2条フライトなどの多条フライトが有効なことを示唆している．

5.3.2 2条フライトスクリュウの実機での検証

直径 66mm，2 条フライトのスクリュウを搭載した実機を用いて連続成形した際のボンベ重量の減少量（ガス消費量）を図 5-6 に示す．物理発泡剤として CO_2 ， N_2 のどちらを使用する場合もガス消費速度は一定であり， CO_2 は N_2 の約 2 倍の速度で溶解した．

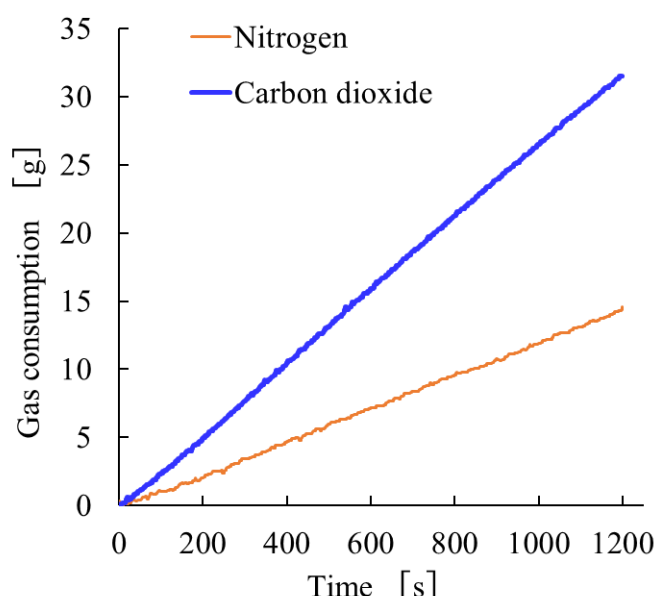


Fig. 5-6 Gas consumption during Foam injection molding for a 66 mm diameter screw.

それぞれの物理発泡剤における成形サイクル中の配管内のガス圧力，バレル内圧力の変化を図 5-7 に示す．物理発泡剤として CO_2 ， N_2 のどちらを用いた場合も射出工程（図中の Injection）においてバレル内圧力が一時的に増加し，計量工程（図中の Metering）に移行してスクリュウ回転が始まるとバレル内圧力が減少してガス流量が増加する点，また．その後の待機中（図中の Other processes：計量工程に続く冷却，型開き，製品取出し，型閉じなどの工程）になるとバレル内圧力が元の圧力に戻ってガス流量が減少する点も CO_2 と N_2 使用時に共通に見られる挙

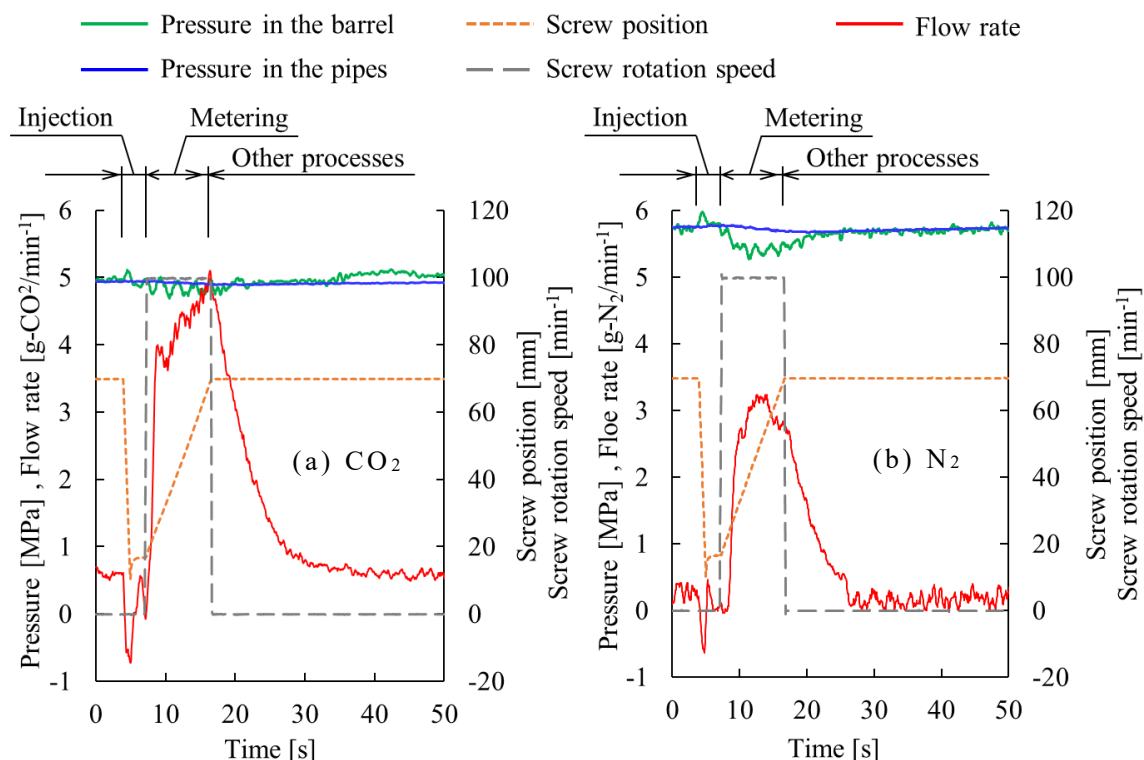


Fig. 5-7 Effect of gas type on polymer pressure in the barrel, gas pressure in the pipe, and flow rate during foam injection molding.

動であった。すなわち、どちらの物理発泡剤でも、物理発泡剤はスクリー回転中（計量工程）により多く溶解することがわかる、その中で、 CO_2 を用いた場合、ガス供給圧力 5 MPa に対して、配管内のガス圧力、バレル内圧力ともに 5 MPa 近傍を維持したのに対し、 N_2 を用いた場合、ガス供給圧力の 6 MPa に対して配管内のガス圧力（青線）、バレル内圧力（緑線）ともに約 5.7 MPa まで低下しており、スクリー回転中にはショット間平均で約 5.5 MPa まで低下した。これらは、流速の増加による圧力低下を表しており、 N_2 がスクリー回転中（計量工程中）により多く溶解することを示している。これは、第4章の図4-7に示した計算結果とも一致する。

図5-8に成形直後と約4か月後の成形品の重量、およびその間の重量減少量を示す。成形品重量は、 CO_2 、 N_2 で各々成形直後に 131.66, 131.26 g から、4か月後には 130.45, 130.91 g に減少した。成形品の重量減少は、成形品中に溶解している物理発泡剤が大気中に拡散することにより生じ、2日間程度の間で急激に減少した後、緩やかに減少する¹⁶⁾。成形直後の成形品の内部には CO_2 、 N_2 で各々1.2, 0.35 g の物理発泡剤が溶解していたと推察される。

ボンベ重量、コリオリ流量計、および成形品重量から推定した物理発泡剤濃度、および第4章のモデルにより推算した物理発泡剤濃度を図5-9に示す。ボンベ重量

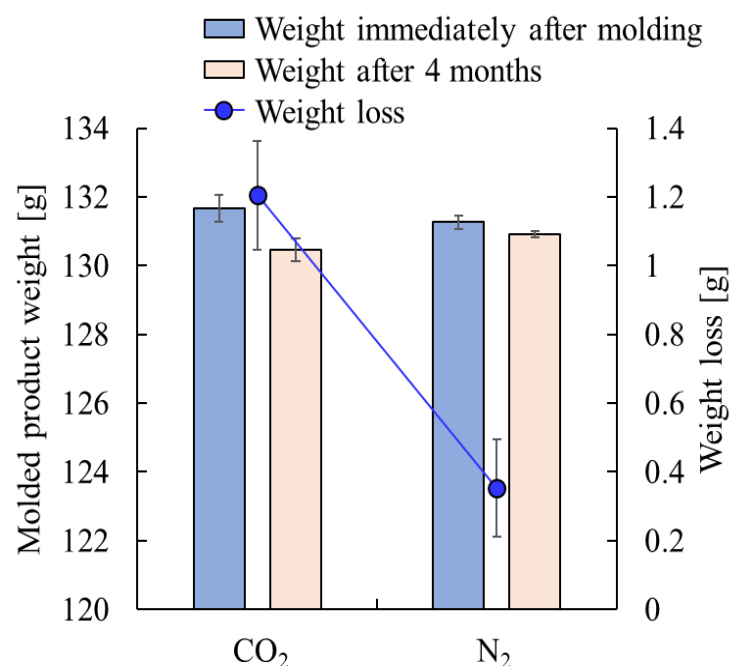


Fig. 5-8 Change in weight of molded product and amount of weight loss after foam injection molding.

から推定した CO₂ 濃度と N₂ 濃度（図中の■）は、各々 0.0120, 0.0054 g-gas/g-polymer と、流量計の測定結果から推定した物理発泡剤濃度（図中の■）はほぼ同じ値を示した。成形品の重量減少から推定した成形品中の CO₂, N₂ 濃度は、各々 0.0091, 0.0027 g-gas/g-polymer とボンベ重量から推定した物理発泡剤濃度よりも低かった。これは、射出工程において金型内の流動先端での圧力降下で破泡を伴い発泡し、物理発泡剤が気体として樹脂から散逸し金型内に放出されたためと考えられる。また、N₂ で差が大きいのは、後述するように N₂ 濃度がガス供給圧力における溶解度に近く、射出工程において金型内で減圧された際により高い圧力で過飽和状態となって相分離し、より多くの気泡を生成するためと推察される¹⁷⁾。

本実験において同一供給圧の条件下では N₂ 濃度は CO₂ 濃度の半分以下となった。しかし、PP に対する CO₂ と N₂ との溶解度には 4.6 倍の差があるため（表 5-5）、溶解度への到達率（図中の Percentage of solubility : ◆）を計算すると、CO₂ が 35.4 % と低いのにに対し、N₂ が 75.1 % と高い値を示した。第 3 章の図 3-19, 図 3-20 において、直径 22 mm のスクリーでは多くの成形条件でも、CO₂ 濃度が 0.012 ~ 0.014 g-CO₂/g-polymer（ガス供給圧力が図 5-9 の計算とは違いがあるため、溶解度への到達度 44 ~ 51 % であった（第 3 章））であったが、そこでも CO₂ 濃度の到達度は低く、N₂ 濃度は高くなっている。

第 4 章の計算プログラムにより計算した物理発泡剤濃度（図 5-9 中の⊗）では、CO₂ 濃度は 0.0194 g-gas/g-polymer とボンベ重量からの推算値（濃いグレー色バ

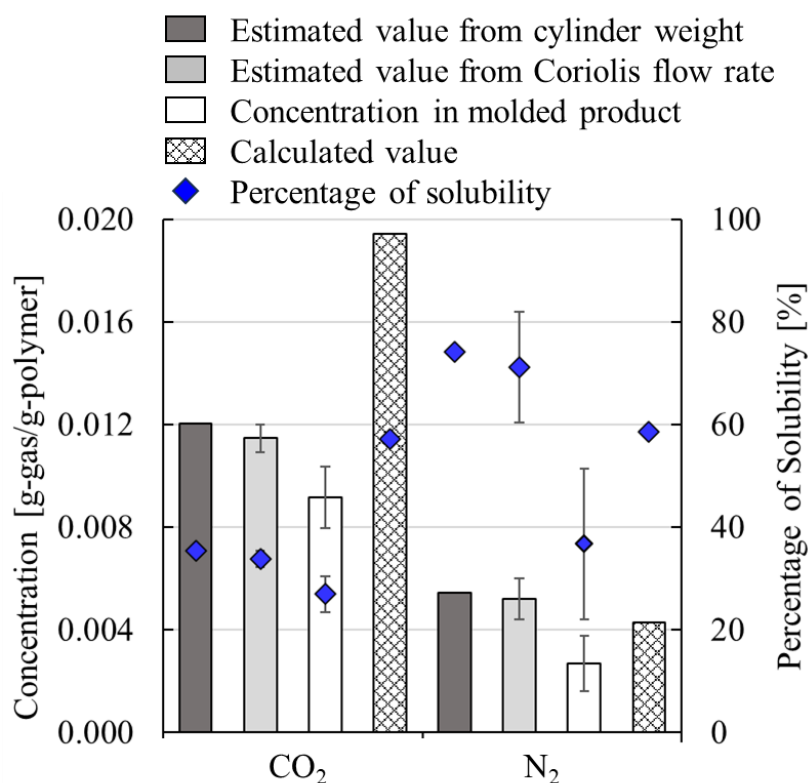


Fig. 5-9 Physical blowing agent concentration in polymer during injection molding

一) に比べて高い値を示したのに対し、N₂では 0.0043 g-gas/g-polymer とボンベ重量からの推算値に比べて低い値を示した。

PP の拡散係数 D_m は CO₂ と N₂ とで大きな差はなく (表 5-5), 物理発泡剤は樹脂中の発泡剤濃度と溶解度との差分に比例して溶解するため, モデルによる数値計算では CO₂ と N₂ で溶解度への到達率はほぼ同じ値となった。しかし, 実験では計算結果と異なる傾向を示した。これは, CO₂ と N₂ が溶解する濃度の差により, 非充填領域の長さ $L_{z-starv}$ が大きく異なっていることが原因であると次のように考えた。

気体が溶解した樹脂は, ポリマーの自由体積が増加して粘度が低下する^{18~20)}。物理発泡剤濃度の違いから, 非充填領域の出口より下流側ではガスが溶解していない場合と比べて CO₂, N₂ で粘度が各々 10, 5 % 程度低下したと考えられる²⁰⁾。第 3 章の 3.6.3 で検討したように, 粘度は非充填領域の下流の充填領域 (図 5-1 の Zone D) における z 方向の圧力勾配に影響し, 粘度が低下して圧力勾配が減少すると非充填領域の長さ $L_{z-starv}$ が短くなって物理発泡剤濃度が低下する。非充填領域の下流側の充填領域におけるスクリュウ回転中の z 方向の圧力勾配 $\Delta P_p / \Delta L_z$ [Pa/m] は, 第 3 章の (3-8) 式, (3-9) 式を変形して, 以下の式で表される^{6,7,21)}。

$$\frac{\Delta P_p}{\Delta L_z} = \frac{\eta(\alpha N - Q_V)}{\beta} \quad (5-23)$$

$$\alpha = \frac{\pi D_b n_f h w_f \cos^2 \theta}{2}, \quad \beta = \frac{n_f h^3 w_f \sin \theta \cos \theta}{12}$$

ここで、 P_p はバレル内の樹脂の圧力 [Pa]、 L_ℓ はスクリーンの ℓ （軸）方向の長さ [m]、 η は樹脂の粘度 [Pa/s]、 Q_V は樹脂の体積流量 [m^3/s]で可塑化能力 Q_m に比例する。 α [m^3]と β [m^4]はスクリーンの形状により決まる係数である。

(5-23) 式から圧力勾配は粘度の低下に比例して減少し、その結果、非充填領域の長さ $L_{z\text{-starv}}$ が短くなる。物理発泡剤濃度の高い CO_2 は、 N_2 よりも強い可塑化効果を示し、より大きな粘度低下効果をもたらすため、同じ成形条件でも CO_2 を使うと、 N_2 を使ったときよりも $L_{z\text{-starv}}$ が短くなったと考えられる。また、粘度の影響に加えて、体積流量 Q_V も圧力勾配に影響する。表 5-4 より CO_2 の場合の可塑化能力 Q_m ($\propto Q_V$) は N_2 よりも約 5 % 高く、充填領域における圧力勾配は Q_V が増加すると小さくなる。粘度の低下と Q_V の増加の影響により、 CO_2 を発泡剤として使用する場合の Zone D における圧力勾配は N_2 と比べて約 12 %、物理発泡剤がない場合と比べて約 16 % 低下すると推算することができる。

本実験において、非充填領域が形成される第2ステージの供給部（図 5-1 の Zone C）は、溝深さを深く設定しており、圧力勾配が Zone D の約 1/10 になる。そのため、圧力勾配の低下によってスクリーン先端圧力を背圧まで昇圧するための昇圧領域が長くなり、Zone C に及んだ場合、最大で Zone C の 1/2 程度が充填領域に置き換わる可能性がある。また、粘度の影響は非充填領域における樹脂の流動にも影響する。第4章の図 4-5(b)に示したように、スクリーン回転中はフライトの高さ方向に物理発泡剤濃度の勾配があり、バレル壁面側の濃度が高く、スクリーン溝底側の濃度が低くなっている。構築したモデルは流路内の樹脂の粘度は一定と仮定しているため、樹脂の流速を過大に評価している可能性があり、この粘度の溶解ガス依存性を考慮していないことが、 CO_2 濃度の計算値が実験値（ボンベ重量変化からの推算値）から大きく乖離した原因と推察される。今後、物理発泡剤濃度の予測精度をさらに高めるためには、物理発泡剤の溶解にともなう粘度低下と樹脂の流動への影響を考慮する必要がある。

以上、直径 66 mm の第2ステージが2条フライトのスクリーンを用いた実験により、物理発泡剤はスクリーン回転中に多く溶解し、また2条フライトにより流路を分割することでスクリーン直径の増加にともなう物理発泡剤濃度の低下を抑制できることを実証した。一方で、計算結果と異なり、実験では N_2 に比べて CO_2 では

溶解度への到達率が低くなった。溶解度の高い物理発泡剤を用いる場合、物理発泡剤の溶解にともなう粘度の低下と圧力勾配の減少により非充填領域の長さが短くなって溶解度への到達率が低くなるものと推察される。

5.3.3 スクリュー形状が CO₂ 濃度に及ぼす影響

次にスクリー形状が物理発泡剤濃度に及ぼす影響を4章のモデルによる計算を行って検討した。スクリーのフライト高さ h と CO₂ 濃度の関係を図 5-10 に示す。スクリーのフライト高さ h の増加にともない比表面積 S_m (図中△と◇) は増加したが、CO₂ 濃度 (図中▲と◆) はほとんど変化しなかった。また図 5-5 と同様に、スクリーの直径 D_b が小さく、フライト条数 n_f が多い場合に CO₂ 濃度が増加し、また直径 22 mm のシングルフライトのスクリーと比べると直径 66 mm の2条フライトのスクリーの CO₂ 濃度が高くなった。

可塑化能力 Q_m とスクリー回転数 N が一定のため、 z 方向の流量 Q_v と平均流速 $\overline{v_{z-starv}}$ [m/s] はフライト高さ h に対して一定となる。そのため、 $S_c = (h - \delta_f)w_p$ で定義される流路断面における樹脂の断面積 S_c [m²] もフライト高さ h に依存せずほぼ同じとなる。一方、 h が増加すると反比例して w_p が減少して比表面積 S_m が増加する。第3章の図 3-14 から S_m が増加すると CO₂ 濃度は増加するため、 h が増加すると

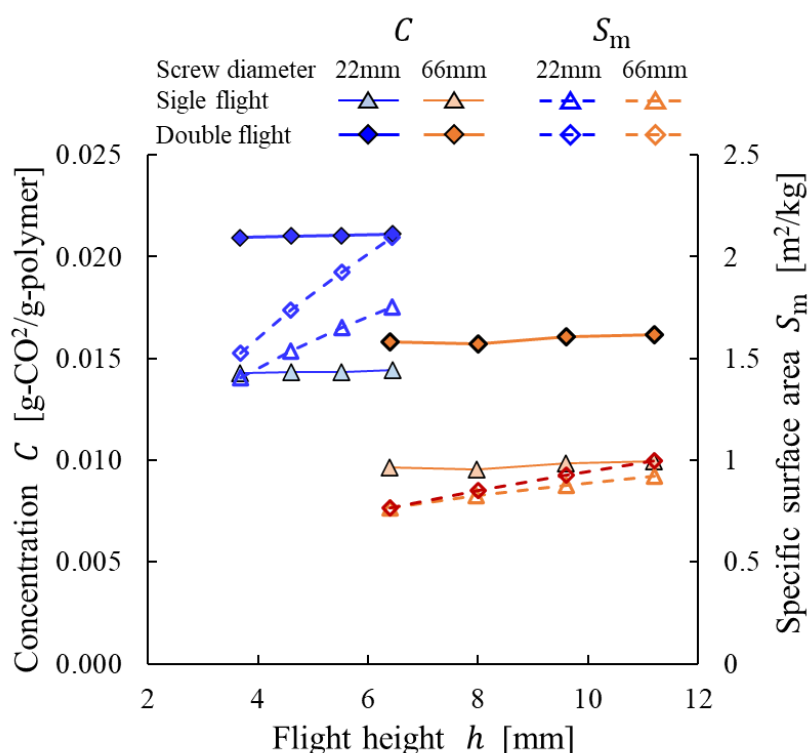


Fig. 5-10 Effect of flight height on CO₂ concentration during continuous screw rotation and specific surface area.

CO₂ 濃度は増加するはずである．しかし，モデルによる数値計算では CO₂ 濃度はほぼ一定となった．この原因は次のように考えられる．押出機では， h が低いスクリーンでは混練性が良くなることが報告されており²²⁾，移流（旋回流）により CO₂ 濃度の高いバレル壁面側の樹脂と CO₂ 濃度の低い溝底側の樹脂との置換が促進されて，単位面積当たりの CO₂ 溶解量が増加し，CO₂ 濃度が一定に保たれていると考えられる．前項において，直径 66 mm のスクリーンで CO₂ の溶解による粘度低下の影響が表れたのは，第 3 章の直径 22 mm のスクリーンに比べてフライト高さが高く，移流の影響が表れにくいことも原因があったものと推察される．

次にスクリーンのフライトピッチ t_{sf} の変化に対する CO₂ 濃度の関係を図 5-11 に示す． t_{sf} の増加に伴って，比表面積 S_m （図中△と◇）は増加するものの，CO₂ 濃度（図中▲と◆）の計算値は，ほぼ一定の値を示した．

この結果から，比表面積 S_m の物理発泡剤の濃度への影響だけではなく，次のように表面更新回数 N_R と樹脂の幅 w_p も物理発泡剤濃度を推算する重要な因子となることを導いた．

t_{sf} を変化させた場合，フライト角 θ も同時に変化する．

これにより，非充填領域の長さ $L_{z-starv}$ と滞留時間 τ_{starv} ，Active flight の樹脂表面の y 方向流速 v_{y-film} が変化する． $L_{z-starv}$ は以下の式で表される．

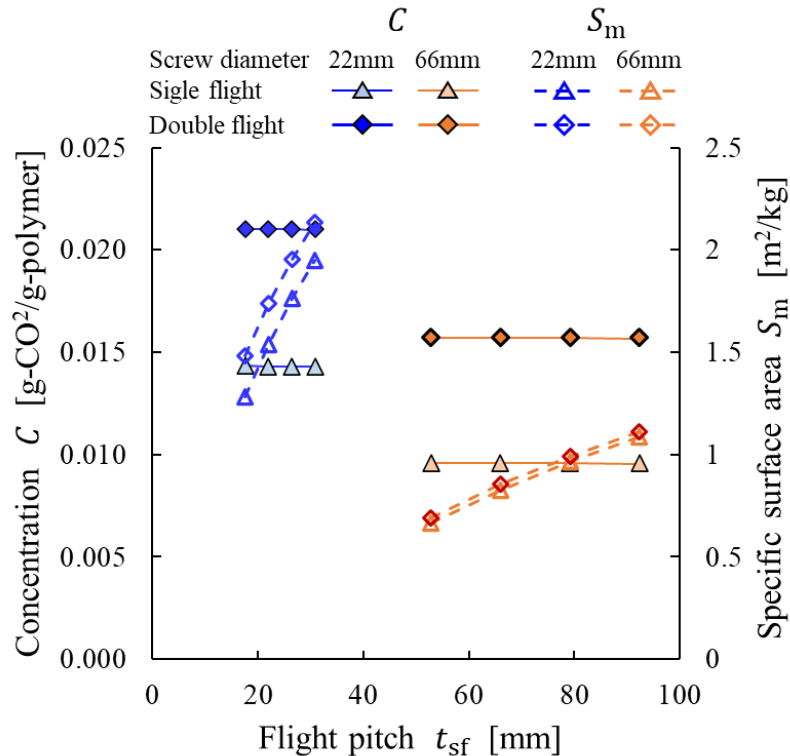


Fig. 5-11 Effect of screw flight pitch on CO₂ concentration and specific surface area.

$$L_{z\text{-starv}} = \frac{L_{\ell\text{-starv}}}{\sin \theta} \quad (5-24)$$

図 5-12(a)に示すように $L_{\ell\text{-starv}}$ が一定の時, $L_{z\text{-starv}}$ はフライトピッチ t_{sf} が狭く, フライト角 θ が小さいほど長くなる. また (5-14) 式より, $v_{y\text{-film}} = \pi D_b N \sin \theta$ は t_{sf} が広く, θ が大きいほど速くなる. さらに, (5-13) 式, (5-16) 式および (5-17) 式より, フライト 1 個当たりの表面更新回数 N_R は $L_{z\text{-starv}}$ と $v_{y\text{-film}}$ の積に比例することがわかる. 図 5-12(b)に示すように N_R はシングルフライトと 2 条フライトで同じ値を示すが, t_{sf} の増加にともないわずかに増加している. 樹脂の幅 w_p は 2 条フライトではシングルフライトの 1/2 の値を示し, t_{sf} の増加に伴ってわずかだが増加した (図 5-12(b)). このときの N_R と w_p の挙動は樹脂中の CO_2 濃度の挙動に近いといえる. しかし, まだ, CO_2 濃度の挙動と完全には一致していない.

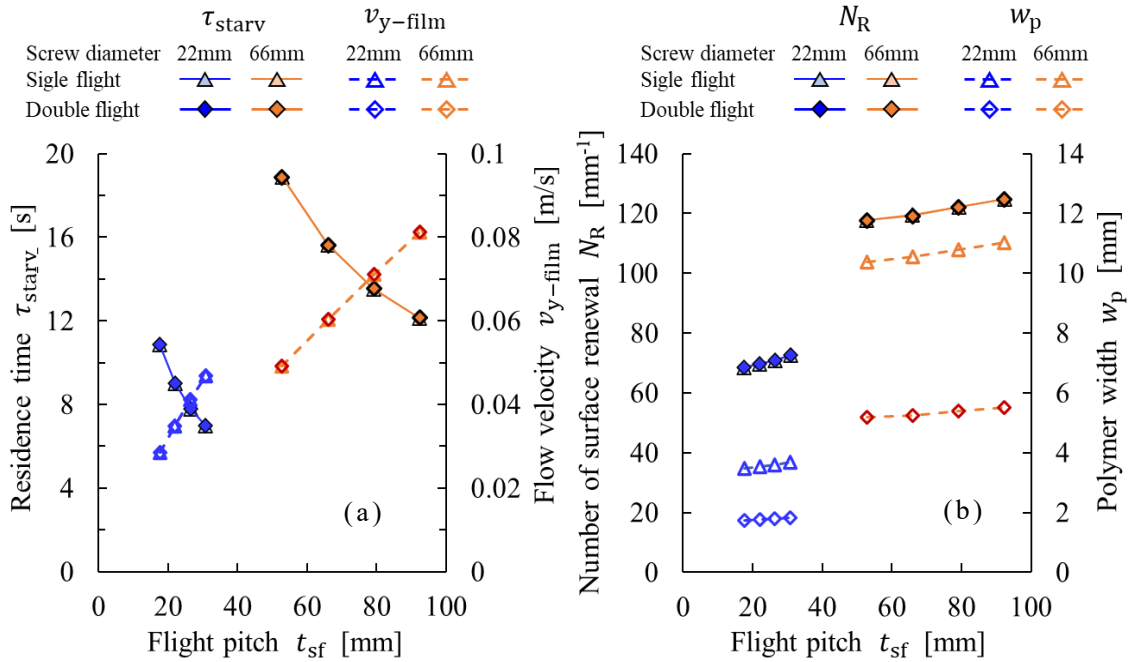


Fig. 5-12 Effect of screw flight pitch on (a) residence time in polymer-starvation zone, flow velocity, (b) number of surface renewal on polymer surface and polymer width.

そこで, 表面更新回数 N_R の増加にともなって物理発泡剤の溶解量が増加し, $L_{z\text{-starv}}$, および h が一定の時, 非充满領域に滞留する樹脂の量は樹脂の幅 w_p に比例することから, N_R/w_p [mm⁻¹] が CO_2 濃度の指標になると考えた. フライトピッチ t_{sf} の変化に対する CO_2 濃度および N_R/w_p の変化を図 5-13 に示す. CO_2 濃度と N_R/w_p とはシングルフライトと 2 条フライトに対する大小関係が一致しており, t_{sf} の変化に対して, どちらも一定となった. このことから, N_R/w_p は CO_2 濃度を表す指標とで

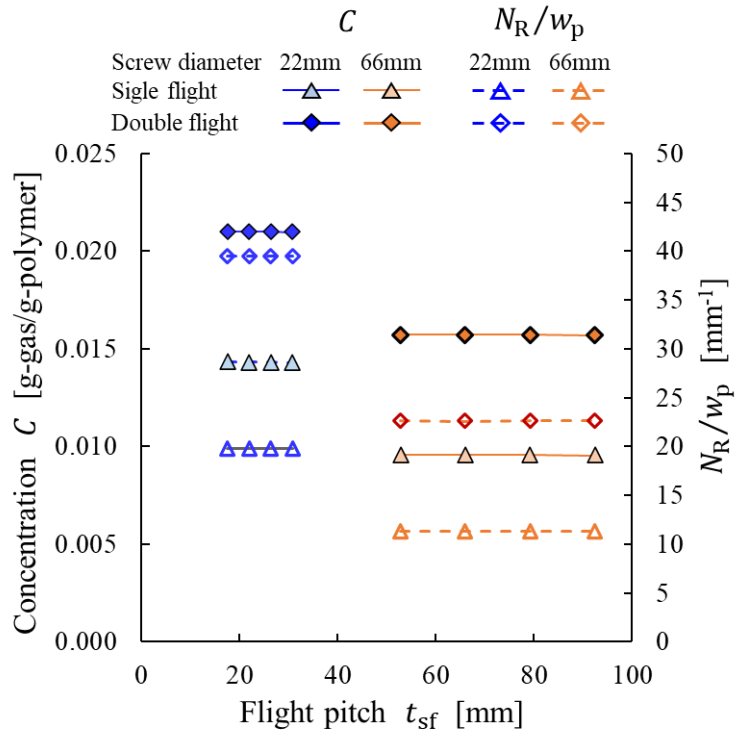


Fig. 5-13 Effect of flight pitch on CO₂ concentration and ratio of number of surface renewal and polymer width.

きることが明らかとなった。

次に、定量フィーダによる材料供給速度（可塑化能力 Q_m ）が一定の条件で、スクリー回転数 N を変化させた場合のCO₂濃度、樹脂の幅 w_p 、 N_R/w_p の変化を検討した。図5-14(a)に示すように、CO₂濃度（図中▲と◆）は、 N の増加にともなって増加した。また、スクリー径22mmと66mmは一つの曲線上にプロットされ、2条フライトではシングルフライトに比べて高い値を示した。本検討では、 Q_m を一定としたため、 N が高いほど w_p （図中△と◇）が減少した。これにより、CO₂濃度が増加したと考えられる。また、図5-14(b)に示すように、 N_R/w_p （図中▲と◆）は、 N に比例して増加し、スクリー径22mmと66mmのデータは一つの直線上にプロットされ、2条フライトはシングルフライトの2倍となった。 N_R/w_p とCO₂濃度は、曲線と直線の違いを除くとほとんど同じ挙動を示した。

スクリー回転数 N が一定の条件で可塑化能力 Q_m を変化させた場合のCO₂濃度と樹脂幅 w_p の変化を図5-15に示す。CO₂濃度（図中▲と◆）は Q_m の増加にともなって大きく減少した一方で、 w_p （図中△と◇）は大きく増加した。 N が一定のため、 Q_m の増加によりスクリーフライト内の単位時間当たりの流量 Q_v が増加して、 w_p が増加する。 $L_{z-starv}$ と h が一定の条件では、 w_p に比例して非充填領域の樹脂量が増加するため、 Q_m が高い条件では、樹脂中の物理発泡剤が希釈されて濃度が低下し

たと思われる。

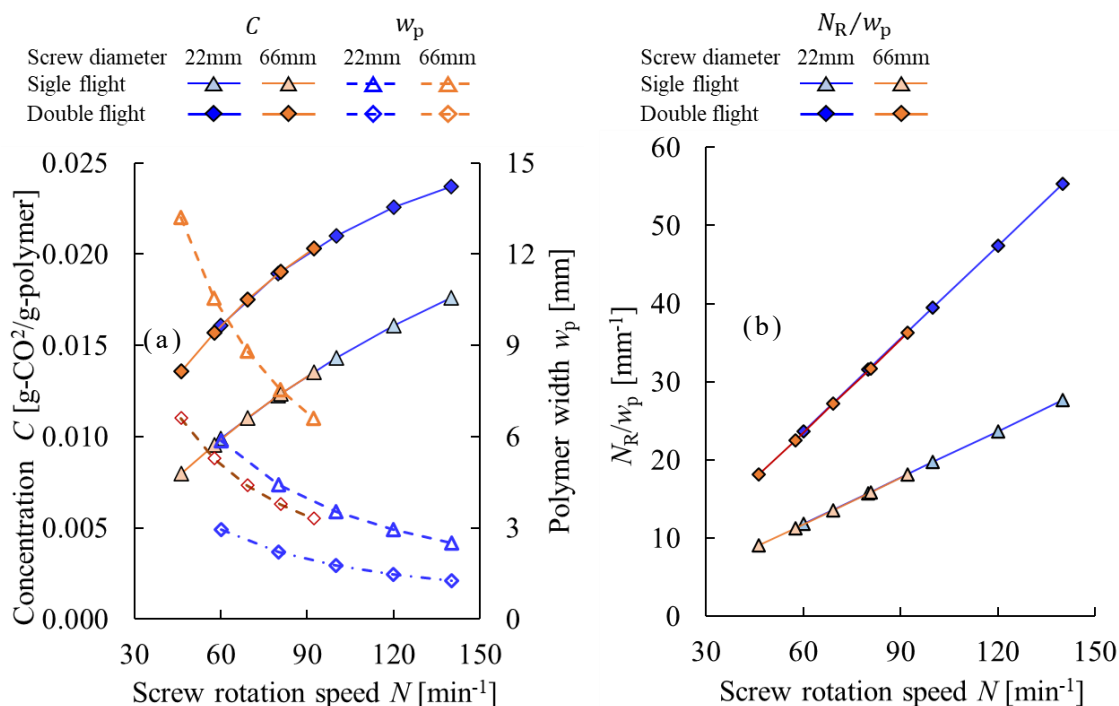


Fig. 5-14 Effect of screw rotation speed on (a) CO₂ concentration, polymer width, (b) residence time in polymer-starvation zone and number of surface renewal on polymer surface.

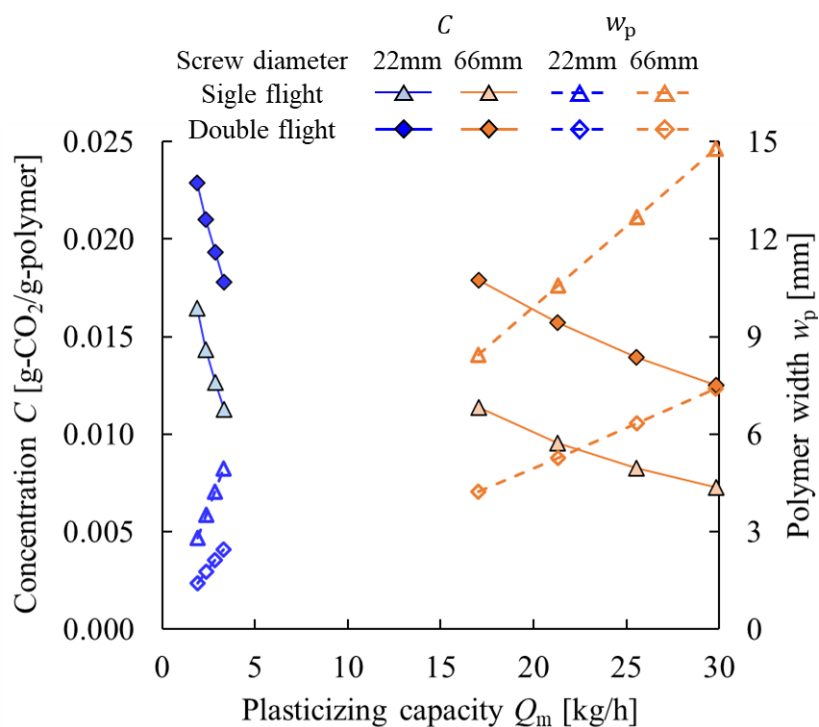


Fig. 5-15 Effect of plasticizing capacity on CO₂ concentration and polymer width.

第5章 装置のスケールアップ時の物理発泡剤の溶解機構

可塑化能力 Q_m を変化させた場合の滞留時間 τ_{starv} 、表面更新回数 N_R 、 N_R/w_p の変化を図 5-16 に示す。 τ_{starv} (図中▲と◆) と N_R (図中△と◇) は、 Q_m およびフライト条数によらず、スクリー径毎に一定の値を示した (図 5-16(a))。これは、 τ_{starv} と N_R は各々樹脂の z 方向、 y 方向の流速により決まり、流速はスクリー回転数 N により決まるためである。一方で、 N_R/w_p (図中▲と◆) は可塑化能力に反比例して減少し、2 条フライトはシングルフライトの 2 倍の値を示した (図 5-16(b))。この挙動は図 5-16 に示した CO_2 濃度の挙動と類似しており、 Q_m を変化させた場合についてもフライトピッチ t_{sf} 、スクリー回転数 N を変化させた場合と同様であった。

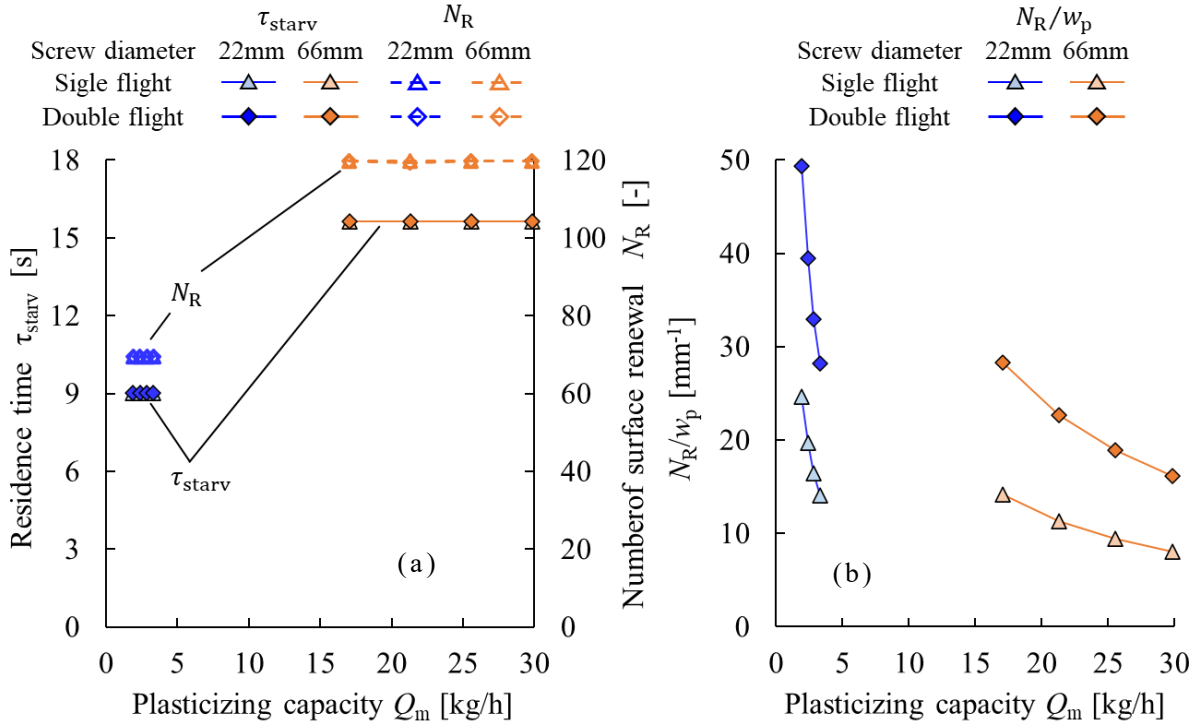


Fig. 5-16 Effect of plasticizing capacity on (a) residence time in polymer-starvation zone, number of surface renewal on polymer surface and (b) ratio of number of surface renewal and polymer width.

次に、非充填領域の軸方向長さ $L_{\ell-starv}$ を変化させた場合の CO_2 濃度の変化を図 5-17 に示す。いずれの条件も CO_2 濃度は直径 22 mm の 2 条フライト、シングルフライト、直径 66 mm の 2 条フライト、シングルフライトの順になり、 $L_{\ell-starv}$ が長くなるほど増加した。

$L_{\ell-starv}$ が変化した時の τ_{starv} 、 N_R 、 w_p 、および N_R/w_p を図 5-18 に示す。 τ_{starv} (図中▲と◆) および N_R (図中△と◇) は $L_{\ell-starv}$ に比例して増加した (図 5-18(a))。これにより、物理発泡剤の溶解量が増加する。一方で、 w_p (図中▲と◆) は $L_{\ell-starv}$ によらず一定となった (図 5-18(b))。これらの結果、 $L_{\ell-starv}$ の増加にともなって CO_2

濃度が増加したと推察される．この時， N_R/w_p （図中△と◇）も $L_{\ell\text{-starv}}$ に比例して増加した（図 5-18(b))． N_R/w_p は2条フライトではシングルフライトの2倍となり，他の操作条件と同様に，直線と曲線の違いを除くと， CO_2 濃度と同じ挙動を示した．

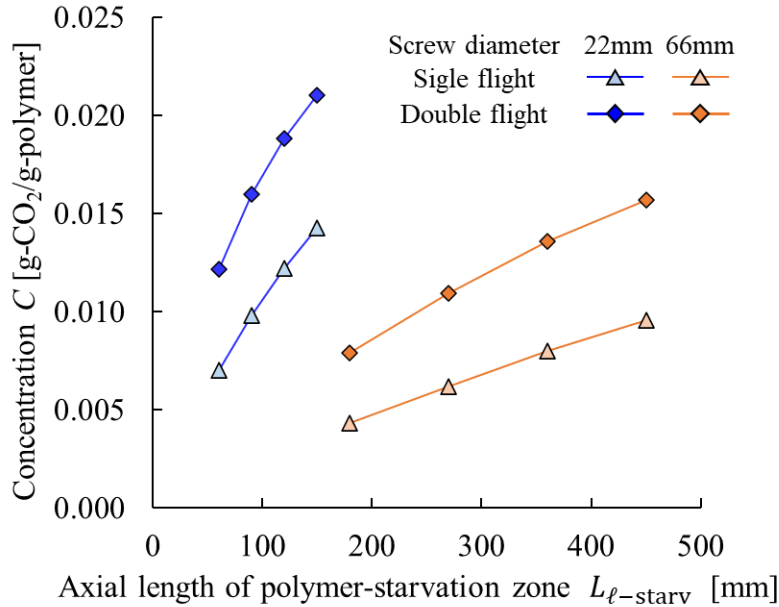


Fig. 5-17 Effect of axial length of polymer-starvation zone on CO_2 concentration.

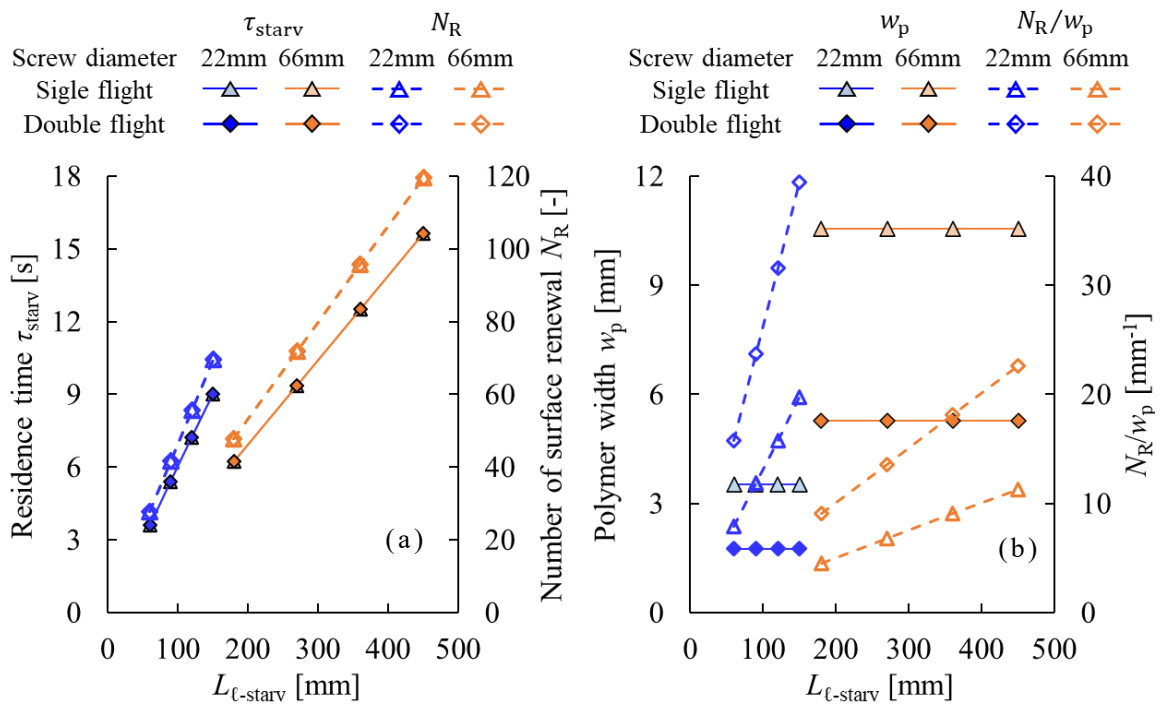


Fig.5-18 Effect of axial length of polymer-starvation zone on (a) residence time, number of surface renewal on polymer surface, (b) polymer width and ratio number of surface renewal and polymer width.

第5章 装置のスケールアップ時の物理発泡剤の溶解機構

以上より、スクリーンのフライト高さ h やフライトピッチ t_{sf} は CO_2 濃度にほとんど影響しておらず、スクリーンの非充填領域の軸方向長さ $L_{\ell\text{-starv}}$ を長くするか、フライト条数を増やすかフィーダからの材料供給速度を調整するなどしてフライト溝内の樹脂の幅 w_p を小さくすることでのみ、 CO_2 濃度を増加することが明らかになった。また、非充填領域通過中の表面更新回数 N_R と樹脂幅 w_p の比である N_R/w_p は CO_2 濃度と類似した挙動を示した。

5.3.4 物理発泡剤の溶解挙動を表現可能な指標の検討

モデルによる計算結果から導出した物理発泡剤濃度と相関の高い指標に関してより詳細な検討を行う。前節で示した表 5-6 の各条件のデータに加えて、表 5-6 の $L_{\ell\text{-starv}}$ を除く各操作条件を 0.8 倍、1.0 倍、1.2 倍、1.4 倍に変更した条件で計算を行った結果も指標検討のためのデータとして用いた。また、第 4 章の 4.4.3 の図 4-12～4-14 では圧力勾配 $\Delta P_p/\Delta L_z$ [Pa/m] により非充填領域の長さ $L_{z\text{-starv}}$ が変化して CO_2 濃度が変化することから、 CO_2 濃度を $S_m \Delta P_p/\Delta L_z$ [Pa・m/kg]でフィッティングして、 CO_2 濃度と $L_{z\text{-starv}}$ の関係から $L_{z\text{-starv}}$ を推定した。この $L_{z\text{-starv}}$ を補正した第 4 章の図 4-14(b)のデータを実験値、計算値（図に□、■で示す Correction value）として指標の検討のためのデータに加えた。

計算データを S_m で整理した結果を図 5-19 に示す。同一形状のスクリーンについて検討した第 4 章のデータ（図 5-19 の Chapter 4 の実験値□、計算値■）に対しては、 S_m でグルーピングできている。しかし、図 5-9、5-10 に示したスクリーンのフライト高さ h やフライトピッチ t_{sf} のように S_m が変化しても CO_2 濃度が変化しない操作条件もあり、本章の検討データに対しては一定の傾向は認められなかった。そのため、 S_m はスクリーン形状などを含む幅広い条件下において、 CO_2 濃度を表す指標としては機能しないことが分かる。

第 4 章の 4.4.3 では CO_2 濃度に影響する非充填領域の長さ（ $L_{\ell\text{-starv}}$ および $L_{z\text{-starv}}$ ）を推定するため、 $\Delta P_p/\Delta L_{\ell}$ を用いて、 $S_m \Delta P_p/\Delta L_{\ell}$ でデータを整理したが、本検討では $L_{z\text{-starv}}$ が既に分かっているため、 $S_m L_{z\text{-starv}}$ を指標としてデータを整理した。結果を図 5-20 に示す。スクリーン直径およびフライト条数毎に、傾きの異なる 4 つのグループに分けられ、直径 22 mm のシングルフライト（図中の▲、□、および■）において、計算値と実験値の傾向は一致した。しかし、 $S_m L_{z\text{-starv}}$ ではスクリーン形状、成形条件によらず CO_2 濃度を表すことはできていない。

図 5-13～5-18 において、 CO_2 濃度と表面更新回数 N_R と樹脂の幅 w_p の比である

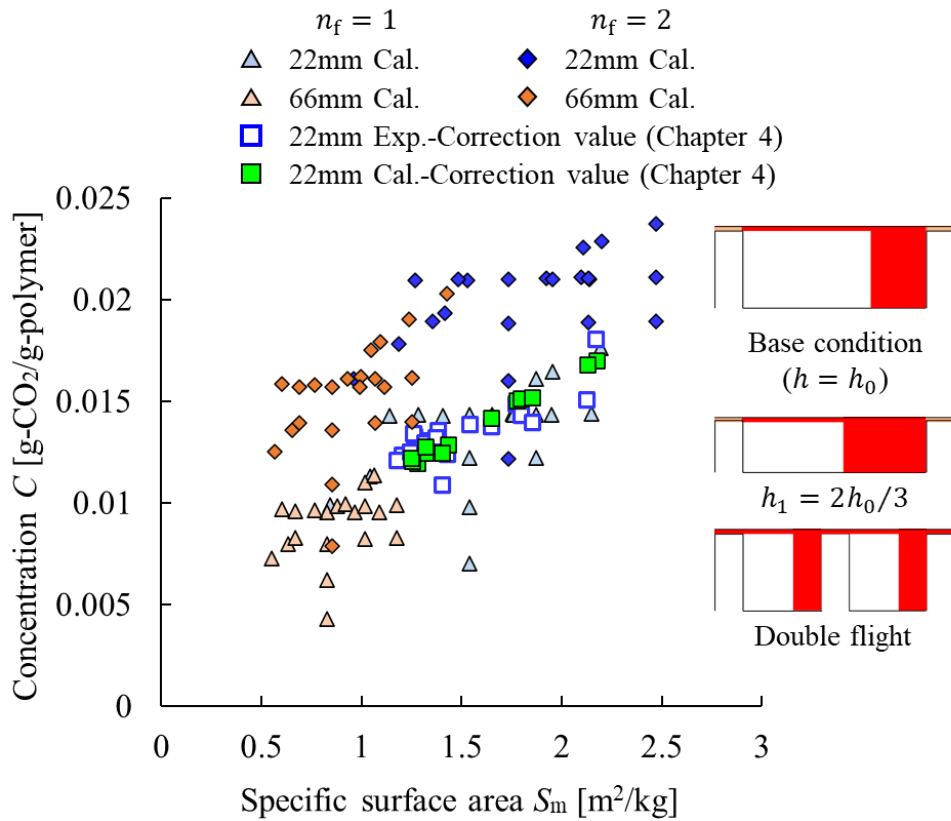


Fig. 5-19 Effect of specific surface area S_m on CO_2 concentration.

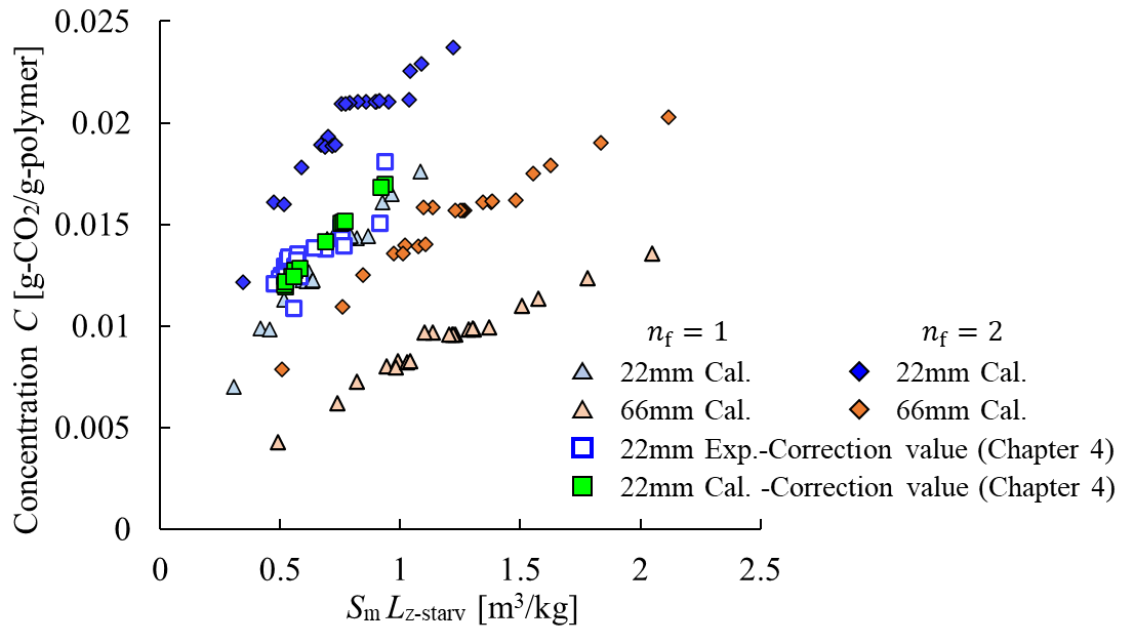


Fig. 5-20 Effect of specific surface area S_m and parallel length of screw flight in polymer-starvation zone on CO_2 concentration.

N_R/w_p の挙動に多くの共通点が見られた．そこで，計算データを N_R/w_p で整理した．その結果を図5-21に示す． N_R/w_p を用いることで，スクリー直径，フライト条数などによらず，データが一つにグルーピングできている．第4章の実験値，計算値

の大半が本章の計算値に比べてわずかに CO_2 濃度が高いのは、本章はスクリー回転中の CO_2 の溶解のみを評価したのに対し、第4章ではスクリー回転中に加えて待機時間中の CO_2 の溶解も含めて評価したためである。

モデルにおいて物理発泡剤は Active flight の樹脂の表面から拡散・溶解し、フライト断面における旋回流とそれによる表面更新により溶解が促進されと考えられる。そのため、(5-22) 式と同様に指数関数で表すことができると考え、 N_R/w_p を変量として、以下の式で検討に使った計算データをフィッティングした。

$$C = \left(1 - \exp\left(\frac{-k_c N_R}{w_p}\right) \right) C^* \quad (5-25)$$

$$k_c = 3.75 \times 10^{-5}$$

その結果を図 5-21 に破線で示す。図から、(5-25) 式の関数で、結果を表現できていることがわかる。

ここで、 k_c は $k_c = \beta \sqrt{D_m}$ と物理発泡剤の樹脂への拡散係数の関数として、 β をフィッティングパラメータとして決定した。

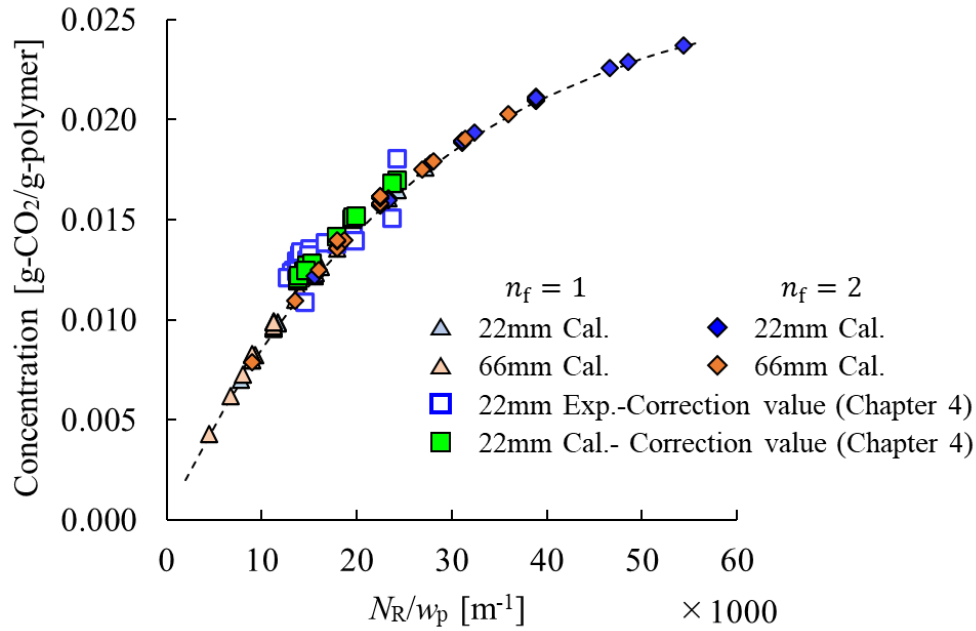


Fig. 5-21 Effects of ratio of number of surface renewal and polymer width (N_R/w_p) on CO_2 concentration.

$k_c = \beta \sqrt{D_m}$ とした理由は以下のとおりである：非充填領域の樹脂がスクリー回転時のバレル壁面から与えられるせん断力により旋回流動しながらノズル方向（下流）に流動する。その過程で、 CO_2 が樹脂に拡散・溶解し、樹脂中の CO_2 濃度が増加する。この挙動を、モデルは考慮している。従って、物理発泡剤の拡散と溶解度を検討した (5-18) ～ (5-21) 式から、 k_c は $\sqrt{D_m}$ に比例する関数となってい

ると考えられ、定数 β を用いて、 $k_c = \beta\sqrt{D_m}$ とした。

PP における CO_2 の拡散係数 $D_m = 8.0 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ より $\beta = 0.419$ が図 5-21 のデータより求まる。

(5-25) 式から $-k_c N_R/w_p$ で物理発泡剤の濃度を推算できることを活かして、次に $-k_c N_R/w_p$ がどのような設計変数や操作変数の関数となっているかを読み解くことで、上述してきた検討結果がスクリー形状の最適化設計あるいは操作条件の最適化に繋がられないかを検討した。

まず、 $k_c = 0.419\sqrt{D_m}$ として次式から $k_c N_R/w_p$ の関数関係を導く。

$$\frac{k_c N_R}{w_p} = \frac{0.419 N_R \sqrt{D_m}}{w_p} \quad (5-26)$$

N_R/w_p は (5-13) 式、(5-16) 式、(5-17) 式から以下の式で表される。

$$\frac{N_R}{w_p} = \frac{\tau_{\text{starv}}}{w_p \tau_R} = \frac{L_{z\text{-starv}}/\bar{v}_{z\text{-starv}}}{w_p (h - \delta_f)/v_{y\text{-film}}} = \frac{2L_{z\text{-starv}} \tan \theta}{w_p (h - \delta_f)} \quad (5-27)$$

(5-27) 式の分母の $w_p(h - \delta_f)$ は Active flight における樹脂の断面積 S_c を表しており、 N_R/w_p は、フライトの非充満領域における流路の長さ ($L_{z\text{-starv}}$) と樹脂の面積の比に比例することを示している。また、(5-17) では N_R/w_p は $\tan \theta$ に比例するはずであるが、図 5-13 の結果では、非充満領域の軸方向長さ $L_{\ell\text{-starv}}$ が一定の条件下では、フライトピッチ t_{sf} 、フライト角 θ が変化しても N_R/w_p は変化しなかった。

この理由を数式上で確かめるするために (5-27) 式の非充満領域の長さ $L_{z\text{-starv}}$ に (5-24) 式、樹脂の幅 w_p に (5-8) 式を代入して N_R/w_p に関して (5-28) 式を求めた。

$$\frac{N_R}{w_p} = \frac{2L_{z\text{-starv}} \tan \theta}{w_p (h - \delta_f)} = \frac{3600\rho\pi D_b N n_f L_{\ell\text{-starv}}}{(h - \delta_f) Q_m} \quad (5-28)$$

(5-28) 式から、フライト角 θ が相殺され、 N_R/w_p には影響を与えないことが明確になった。

次に (5-26) 式と (5-28) 式から、 $(h - \delta_f) \cong h$ として次式の関数関係を導いた。

$$\begin{aligned} \frac{k_c N_R}{w_p} &= \frac{0.419 N_R \sqrt{D_m}}{w_p} = \frac{1.51 \times 10^3 \rho\pi D_b N n_f L_{\ell\text{-starv}} \sqrt{D_m}}{(h - \delta_f) Q_m} \\ &\cong \frac{1.51 \times 10^3 \rho\pi D_b N n_f L_{\ell\text{-starv}} \sqrt{D_m}}{Q_m} \end{aligned} \quad (5-29)$$

(5-29) 式の $k_c N_R/w_p$ は、スクリー直径 D_b 、フライト条数 n_f 、非充満領域の軸方向長さ $L_{\ell\text{-starv}}$ 、スクリー回転数と可塑化能力の比 N/Q_m 、および拡散係数 D_m を変数としていることが分かる。この内、スクリー形状により調整可能なのは、スク

リユー直径 D_b ，フライト条数 n_f ，非充填領域の軸方向長さ $L_{\ell\text{-starv}}$ であるが，通常はスケールアップの際には変更しないパラメータのため，フライト条数 n_f を増やすことを除いてスクリー設計面での変更は難しいことがわかった．また，成形条件として調整可能なのは，定量フィーダとスクリー回転数で調整可能な N/Q_m ，および圧力勾配により間接的に調整可能な $L_{\ell\text{-starv}}$ であり，これらは第3章の実験結果とも矛盾しない結果が得られた．

以上，モデルを用いた計算によりスクリー形状が CO_2 濃度に与える影響について検討し，非充填領域内での樹脂の表面更新回数 N_R ，樹脂の幅 w_p の比である N_R/w_p を評価指標（変量）として CO_2 濃度を推算できることが分かった．また， CO_2 濃度は，スクリー直径 D_b ，フライト条数 n_f ，非充填領域の軸方向長さ $L_{\ell\text{-starv}}$ ，スクリー回転数と可塑化能力の比 N/Q_m ，および拡散係数 D_m を変数となっていることも明らかにできた．

5.3.5 Active flight の樹脂表面のみからの物理発泡剤溶解量の推定

(5-22) 式により推定した非充填領域の出口における CO_2 濃度の期待値 C_s とモデルによる計算値 C を図 5-22 に示す． C_s （白抜き◇と△）と C （塗り潰し◆と▲）は N_R/w_p に対して同じ挙動を示したが， C_s はばらつきが大きく， C を中心にその上下に分散した．(5-22) 式には移流やバレル壁面の薄膜状の樹脂の取り込みによる CO_2 濃

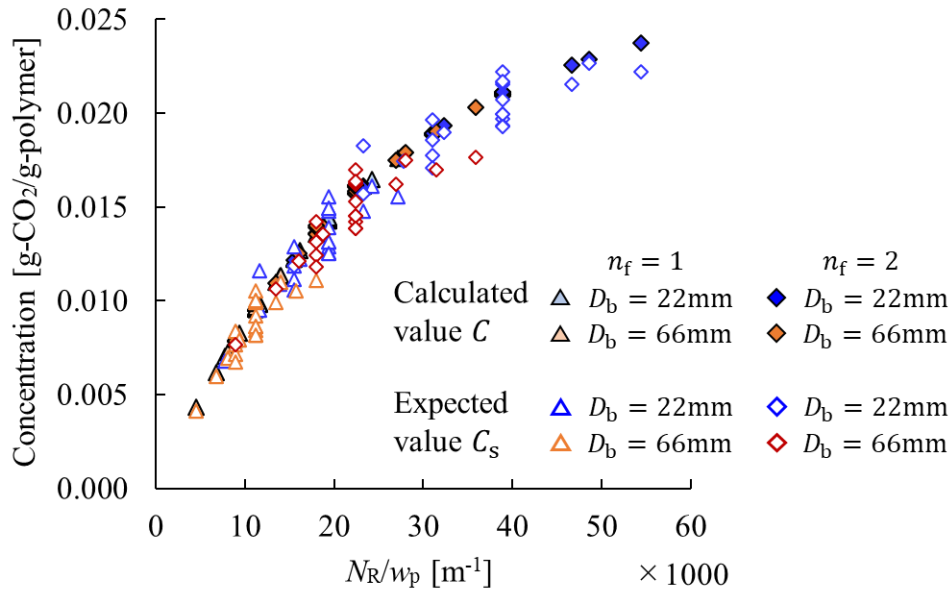


Fig. 5-22 Effects of ratio of number of surface renewal and polymer width (N_R/w_p) on calculated value and expected value of CO_2 concentration (C and C_s).

度変化が含まれないため、モデルによる計算値 C よりも CO_2 濃度が低くなると考えたが、予想に反して CO_2 濃度が高い条件もあることが明らかになった。

図 5-22 において N_R/w_p と CO_2 濃度 C が一定の条件で CO_2 濃度の期待値 C_s が増減したのは、図 5-23(a), (b) に示すフライト高さ h , フライトピッチ t_{sf} を変化させた時であった。 h の増加にともなって C_s は増加し, t_{sf} の増加にともなって C_s は減少した。また、フィードで可塑化能力を一定に調整した条件でスクリー回転数 N を変化した時の C_s の変化は C の変化より小さい (図 5-23(c))。この時, h が大きい条件, t_{sf} が小さい条件, あるいは N が遅い条件の時に $C_s > C$ となった。

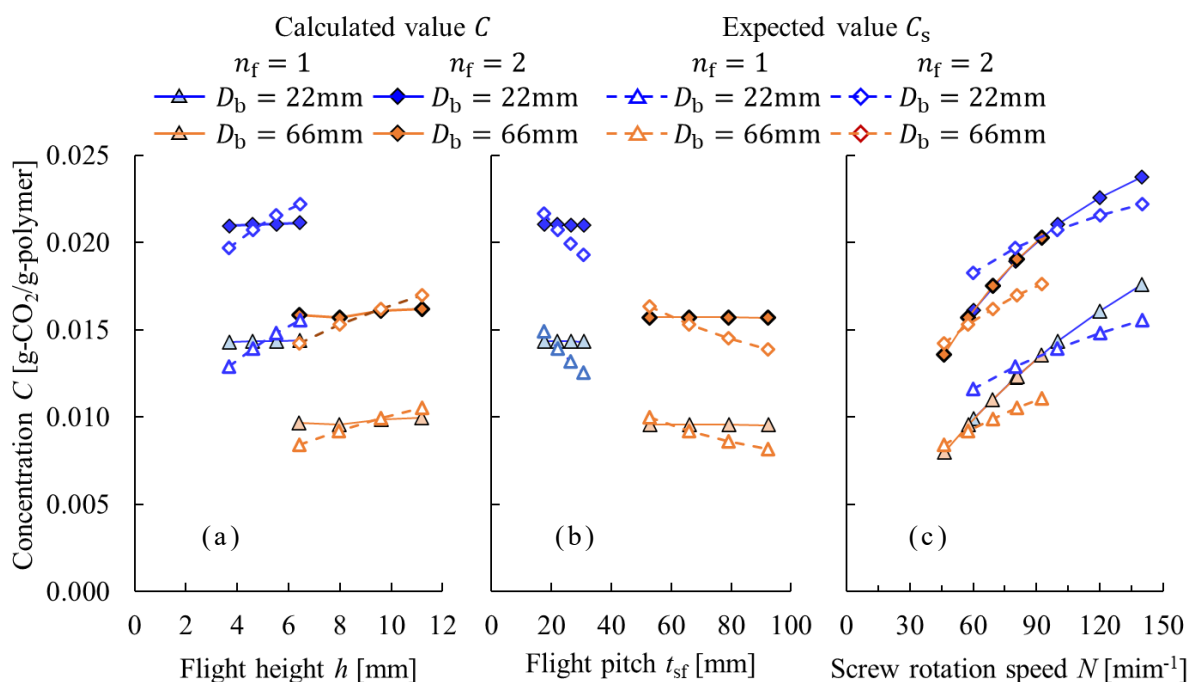


Fig. 5-23 Effects of (a) flight height h , (b) flight pitch t_{sf} and (c) screw rotation speed N on CO_2 concentration (C and C_s).

(5-22)式では、非充填領域における Active flight の樹脂からの物理発泡剤の溶解を計算していることから、表面積に影響するフライト断面における樹脂の縦横比 (アスペクト比: h/w_p), および非充填領域における滞留時間 τ_{starv} の影響について検討した。図 5-24 に示すように CO_2 濃度の期待値 C_s は, h を増加させた場合は h/w_p (塗り潰し $\blacklozenge$ と $\blacktriangle$) の増加による表面積の割合の増加によって増加し, t_{sf} を増加させた場合は, 非充填領域における滞留時間 τ_{starv} (白抜き $\diamond$ と $\triangle$) の減少にともなって減少した。また, N を増加させた場合は, その両方が影響するが, h/w_p の増加の影響が大きく, C_s は増加した。

これに対して, モデルによる計算値 C は, 図 5-10, 5-11 に示したように Active flight の樹脂の旋回流による移流の影響で h , あるいは t_{sf} が変化した場合でも CO_2

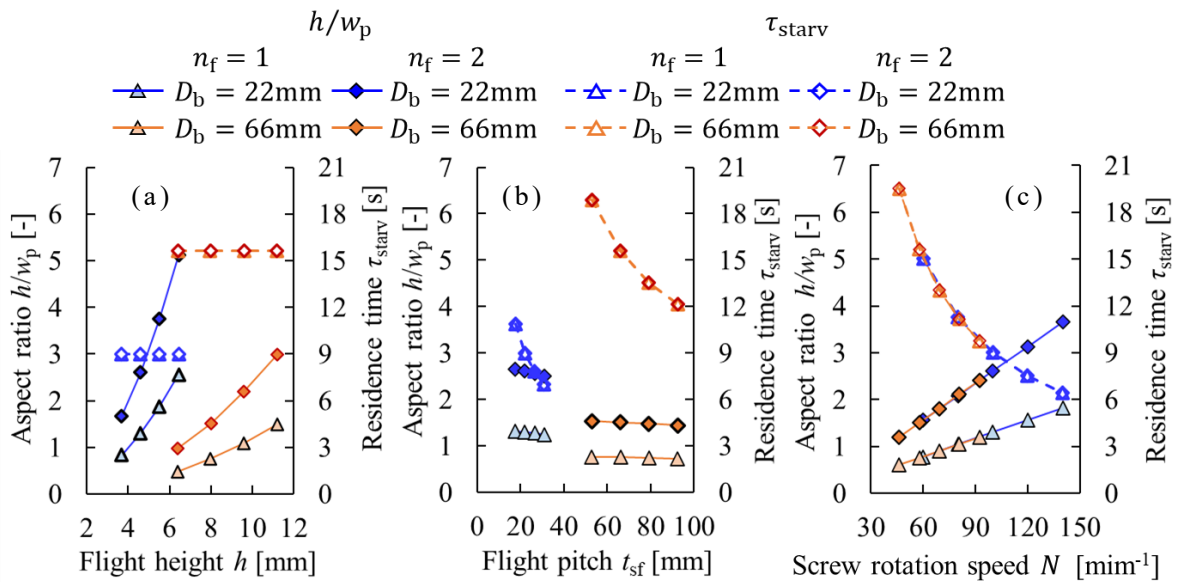


Fig. 5-24 Effects of (a) flight height h , (b) flight pitch t_{sf} and (c) screw rotation speed N on aspect ratio of polymer cross-section h/w_p and residence time in polymer-starvation zone τ_{starv} .

濃度が一定に保たれている．モデルによる計算値 C と第 4 章の図 4-8 のスクリー回転数 N に対する実験結果とは傾向が一致しており，モデルを用いた計算の方が実機に近い計算結果が得られることが分かる．

以上より，(5-22) 式により非充填領域の樹脂の表面からの物理発泡剤濃度を計算するよりも，構築したモデルを用いて移流の影響も含めた計算を行う方がより実機に近い計算結果が得られることを確認した．

5.4 結言

本章では，中・大型射出成形機への低圧発泡射出成形法の展開を検討するため，スクリーのスケールアップを検討するとともに，比表面積を増加させた 2 条フライトを非充填領域に適用して，その効果をシミュレーションにより確認した．また，低圧物理発泡射出成形における樹脂中の物理発泡剤濃度の支配要因を検討して，次のことを明らかにした．

- ・スクリーの直径が増加した場合，物理発泡剤濃度は，非充填領域のスクリー形状がシングルフライトと 2 条フライトの場合に各々スクリー径 D_b の 0.35 乗，および 0.27 乗に反比例して減少した．また，2 条フライトを用いて非充填領域の流路を分岐して樹脂の表面積を増加させることで CO_2 濃度がシングルフライトの 1.47～1.68 倍に増加することが示唆された．
- ・直径 66mm の 2 条フライトのスクリーを用いた実験を行い，物理発泡剤

第5章 装置のスケールアップ時の物理発泡剤の溶解機構

は、モデルと同様に、スクリー回転中に多く溶解した。また、直径の大きいスクリーに対して溶解度の高い物理発泡剤を用いる場合、物理発泡剤の溶解にともなう樹脂の粘度の低下、および圧力勾配の減少にともなう非充填領域の長さの減少により物理発泡剤濃度が低下しやすいことを明らかにした。

- ・スクリー形状が CO_2 の溶解に及ぼす影響を検討し、スクリーのフライト高さ h やフライトピッチ t_{sf} は CO_2 濃度にほとんど影響しておらず、フライト条数 n_f を増やすかフィードからの材料供給速度を調整するなどして、フライト溝内の樹脂の幅 w_p を小さくするか、スクリーの非充填領域の軸方向長さ $L_{\ell\text{-starv}}$ を長くすることでのみ、 CO_2 濃度を増加させることができることを明らかにした。
- ・モデルを用いた計算によりスクリー形状が CO_2 濃度に与える影響について検討し、非充填領域内での樹脂の表面更新回数 N_R 、樹脂の幅 w_p の比である N_R/w_p を評価指標（変量）として CO_2 濃度を推算できることを明らかにした。また、この時、 CO_2 濃度は、スクリー直径 D_b 、フライト条数 n_f 、非充填領域の軸方向長さ $L_{\ell\text{-starv}}$ 、スクリー回転数と可塑化能力の比 N/Q_m 、および拡散係数 D_m を変数として変化することを明らかにした。
- ・非充填領域における樹脂の表面からの物理発泡剤の拡散溶解による濃度変化を検討し、構築したモデルを用いて旋回流による移流の影響を含めた計算を行う方がより実機に近い計算結果が得られることを明らかにした。

本研究により、スクリー径をスケールアップして直径を大きくした場合や、多条フライトの適用を考えた場合、それらの物理発泡剤の樹脂への溶解性促進のための有効性を定性的には確認できた。また、モデルを用いた計算により、スクリー形状や成形条件の妥当性、 CO_2 濃度を予測できることを示した。一方で、構築したモデルでは、物理発泡剤の溶解にともなう粘度の低下の影響などの考慮できていないことも多く、計算精度にはまだ課題があることも明らかになった。

付録

記号表

C	Physical blowing agent concentration [g-gas/g-polymer]	S_m	Specific surface area [m ² /kg]
C_s	Physical blowing agent concentration due to surface renewal only [g-gas/g-polymer]	t	Time [s]
C^*	Solubility [g-gas/g-polymer]	t_{cycle}	Cycle time of injection molding [s]
D_b	Screw diameter [m]	t_r	Recovery time [s]
D_m	Diffusion coefficient [m ² /s]	t_{sf}	Flight pitch of screw [s]
e	Flight width of screw [m]	v_{bx}	Relative velocity of screw flight top and barrel wall in x -directions [m/s]
h	Flight height [m]	$v_{y-\text{film}}$	Flow velocity in y -direction of polymer surface on active flight in polymer-starvation zone [m/s]
k_c	Fitting parameter of physical blowing agent concentration [s ⁻¹]	$v_{z-\text{starv}}$	Flow velocity of polymer in z -direction in resin-starvation zone [m/s]
L_ℓ, L_z	Axial and parallel length [m]	w_f, w_p	Width of screw channel and polymer [m]
$L_{\ell-\text{st}}$	Injection stroke [m]	n_0	n before applying scale-up rule
$L_{z-\text{starv}}$	Parallel length of screw flight in polymer-starvation zone [m]	n_1	n after applying scale-up rule
$L_{\ell-\text{starv}}$	Axial length of screw in polymer-starvation zone [m]	x, y, z, ℓ	Width, height, parallel of flight, and axial coordinate
N	Screw rotation speed [s ⁻¹]	α	Coefficient [s ⁻¹]
N_{gs}	Average dissolution rate of physical blowing agents [g/(m ² s)]	$\dot{\gamma}$	Shear rate [s ⁻¹]
N_R	Number of surface renewal on polymer surface in polymer-starvation zone [-]	δ_f	Clearance between screw flight top and barrel [m]
n_f	Number of flight [-]	θ	Flight angle of screw [rad]
P_p	Pressure of polymer [Pa]	ρ	Density of polymer [kg/m ³]
Q_m	Plasticizing capacity [kg/s]	τ	exposure time [s]
$Q_{Vz-\text{starv}}$	volumetric flow rate of polymer in z -direction in polymer-starvation zone [m ³ /s]	τ_{dz}	Average residence time in a space of length dz [s]
S_C	area of cross-section polymer in polymer-starvation zone excluding film polymer on barrel wall [m ²]	τ_R	Average time of surface renewal[s]
S_p	Surface area of polymer in polymer-starvation zone excluding film polymer on barrel wall [m ²]	τ_{starv}	Average residence time in polymer-starvation zone [s]

参考文献

1. ㈱日本製鋼所, 内藤章弘, 玉田光一, 上園裕正, 発泡成形用の射出成形機のスクリュおよび射出成形機, 特許第 6758790 号, 2020.9.4
2. 三恵技研工業㈱, マクセル㈱, ㈱日本油機, 遊佐敦, 山本智史, 並木和也, 発泡成形体の製造装置, 発泡成形体の製造方法および発泡成形体製造装置用スクリュ, 特許第 6560470 号, 2019-7-26
3. 富山秀樹 : 成形加工, **25** (8), 376 (2013)
4. Carley, J. F. and McKelvey, J. M. : *Ind. Eng. Chem.* **45**, 989 (1953)
5. Rauwendaal, C. : *Polym. Eng. Sci.*, **27** (14), 1059 (1987)
6. Tadmor, Z. and Klein, I., : *Engineering Principles of Plasticating Extrusion*, Van Nostrand Reinhold Company, 209 (1970)
7. 久保田威夫 : 日本ゴム協会誌, **31** (4), 290 (1958)
8. 扇澤敏明 : 高圧力の科学と技術, **5** (4), 216 (1996)
9. Otsuki, Y. and Kanai, T. : *Polym. Eng. Sci.*, **45** (9), 1277 (2005)
10. Yoshikawa, I., Hosoe, S., Hikima, Y., Watari, M. and Ohshima, M. : *Ind. Eng. Chem. Res.*, **62** (15), 6338 (2023)
11. 瀧健太郎, 大槻安彦 : 成形加工, **18** (3), 205 (2006)
12. Taki, K. : *Chem. Eng. Sci.*, **63**, 3643 (2008)
13. Sato, Y., Fujiwara, K., Takikawa, T., Sumarno, Takishima, S., Masuoka, H., : *Fluid Phase Equilibria*, **162**, 261 (1999)
14. Latinen, G. A., : *ACS Adv. Chem.*, **34**, 235 (1962)
15. Cussler, E. L., : *Diffusion, Mass Transfer in Fluid System*, 3rd Edition, Cambridge University Press, 277-279 (2009)
16. 瀧健太郎, 大嶋正裕 : 成形加工年次大会'06 予稿集, 113 (2006)
17. Ishikawa, T., Taki, K., Ohshima, M., : *Polym. Eng. Sci.*, **52** (4), 875 (2012)
18. 滝島繁樹 : 日本ゴム協会誌, 177 (10), 336 (2004)
19. Areerat, S., Nagata, T., Ohshima, M., : *Polym. Eng. Sci.*, **42** (11), 2234 (2002)
20. 永田武史, Areerat, S., 大嶋正裕, 谷垣昌敬 : 化学工学論文集, **28** (6), 739 (2002)
21. 村上健吉監修 : 押出成形 改訂第7版 (高島直一, 田中勝一, 榊田好平, 村上健吉, 八木博 編), プラスチックス・エーヅ, 48-50 (1985)
22. 林田建世 : 高分子化学, 17, 725 (1960)

第 6 章
総論

第6章 総論

6.1 本研究で得られた成果

環境負荷の低減やプラスチックによる環境汚染の問題から、改めてプラスチックの発泡射出成形が注目を集めている。物理発泡剤としてオゾン破壊係数、温暖化係数の低い CO_2 や N_2 を使用する物理発泡射出成形では、可塑化ユニットにおいて、如何にして物理発泡剤と樹脂の均相系を形成し、濃度を高めるかが重要な点となる。

本研究では、新開発した低圧物理発泡射出成形（RIC-FOAM, SOFIT®）における物理発泡剤の溶解機構を明らかにし、それをモデル化し、物理発泡剤の定量管理を行うことを目的とした。まず、低圧物理発泡射出成形における物理発泡剤溶解機構を装置開発の経緯とともに説明し、NIR 法を用いた PP 中の CO_2 濃度測定により物理発泡剤の樹脂への溶解機構と射出成形の操作条件との関係を実験的に明らかにした後、その機構をモデル化した。その後、提案するモデルの展開性を評価する上で、型締め力の大きな発泡射出成形装置への適用可能性を計算および実験により検討し、以下に挙げる成果を得た。

第2章では、パラジウム（Pd）錯体などの添加物の微細分散装置として開発された射出成形機がどのようにして低圧物理発泡射出成形装置に展開されてきたかを、ガス溶解機構の変遷とともに振り返り、過去の実験結果から物理発泡剤濃度が成形品の発泡状態に与える影響を検討した。また、低圧物理発泡射出成形では、ボンベから昇圧せずに物理発泡剤を供給でき、従来技術のように超臨界状態の流体を物理発泡剤として使わなくともマイクロセルラー発泡体が製造できることを実証した。

第3章では、近赤外分光（NIR）法を用いて、低圧物理発泡射出成形機において樹脂中に溶解する物理発泡剤（ CO_2 ）濃度を測定し、各種操作条件と濃度の因果関係を明確にした。射出樹脂中に溶解する CO_2 の濃度はスクリー回転数と冷却時間に比例し、材料供給速度、バレル温度、背圧に反比例した。また、その影響度は、実験条件の範囲内では、背圧 > 冷却時間 > 材料供給速度 > バレル温度 > スクリー回転数の順となった。これらの条件を変更することで、非充填領域の樹脂の比表面積 S_m とその長さ $L_{z\text{-starv}}$ が変化し、その影響で CO_2 濃度が変化した。 CO_2 は、スクリー回転中とスクリー回転停止中で異なる溶解方式を示す。スクリー回転中の CO_2 濃度は、非充填領域における比表面積 S_m 、および背圧と充填領域の圧力勾配 $\Delta P_p / \Delta L_\ell$ により決まる非充填領域の長さ $L_{z\text{-starv}}$ の増加にもなって増加した。 $L_{z\text{-starv}}$ の代替指標として計算可能な $\Delta P_p / \Delta L_\ell$ を用いて、比表面積との積 $S_m \Delta P_p / \Delta L_\ell$ とすると、 CO_2 の挙動を精度よく予測できることを示した。スクリー回転中、 CO_2 は、樹脂の表面から拡散・溶解し、バレルと樹脂とのせん断により生じる表面更新により増進されることが示唆された。また、待機中の CO_2 の溶解は、非充填領域の樹脂表面からの拡散により生じることが示された。

第4章では、バレル内の樹脂が非充填領域で物理発泡剤が樹脂に溶解する挙動を浸透説に基づいてモデル化し、その妥当性を評価した。プロセス時間をスクリー回転中（計量工程）、および待機中（その他の工程）の二つに分け、物理発泡剤の樹脂への溶解挙動を

第6章 総論

表す数値モデルを構築した。計量工程では、物理発泡剤はスクリー回転中に浸透説に基づき非充填領域の樹脂表面から拡散・混練されると仮定し、拡散と移流モデルで溶解挙動を表現した。また、待機中では、非充填領域での樹脂の流動が停止していることから、気液界面から樹脂厚み方向への拡散モデルで溶解挙動を表現した。非充填領域の長さが一定の変化しない条件下においては、スクリー回転中の物理発泡剤濃度を実験値と計算値との相対誤差は 10 % 前後であった。この原因として、非充填領域の長さの影響が考えられたため、圧力勾配と比表面積との積 $S_m \Delta P_p / \Delta L_z$ を用いて非充填領域の長さを補正したところ、誤差を最小にできた。これらの結果から、スクリー回転中の物理発泡剤濃度を精度よく推定できることが示された。

一方で、提案するモデルでは非充填領域の長さを操作変数の関数とできておらず、バレル温度や背圧等による非充填領域の長さの変化が考慮できていないため、計算値と実験値との差異は大きい。また、待機中の物理発泡剤溶解量は、実験値に比べて計算値の方が小さく、ガス供給圧力に誘起された樹脂と物理発泡剤の第 1 計量部 (Zone B) への逆流の可能性が疑われるなど、精度上の課題をも明らかにしている。

第 5 章では、第 4 章のモデルを用いてスクリーのサイズや形状が物理発泡剤の溶解に与える影響を検討した。単軸押出機の一般的なスケールアップ則を適用してせん断速度が一定の条件でスクリーサイズを変更した場合、物理発泡剤濃度はスクリー径 D_b の 0.35 乗に反比例して減少すること、また非充填領域のスクリー形状を 2 条フライトにして流路を 2 分割して樹脂の比表面積を増加させると、スケールアップ時の濃度の減少を D_b の 0.27 乗に低減し、また従来のシングルフライトに比べて発泡剤濃度が 1.47 ~ 1.68 倍に増加した。これを直径 66 mm のスクリーを用いた実験により確認した。物理発泡剤として N_2 を用いた時と CO_2 を用いた時とで溶解度への到達度が大きく異なるなど、2 条フライトによる物理発泡剤の濃度の向上は確認できなかったが、物理発泡剤がスクリー回転中 (計量工程) に多く溶解する挙動がモデルと一致することを確認した。また、溝深さの深いスクリーで溶解度の高い物理発泡剤を用いる場合、物理発泡剤の溶解にともなう樹脂粘度の低下の影響で圧力勾配が減少し非充填領域の長さが減少し、モデルによる計算値に比べて物理発泡剤濃度が低下することを明らかにした。

最後にスクリー形状の影響を検討し、フライト高さやフライトピッチなどのスクリー形状は CO_2 濃度にほとんど影響しておらず、フライト条数 n_f を増やすかフィーダからの材料供給速度を調整するなどしてフライト溝内の樹脂の幅 w_p を小さくするか、スクリーの非充填領域の軸方向長さ $L_{\ell-starv}$ を長くすることでのみ、 CO_2 濃度を増加させることができることを明らかにした。また、連続スクリー回転中の CO_2 濃度は、非充填領域内での樹脂の表面更新回数 N_R 、樹脂の幅 w_p の比である $k_c N_R / w_p$ を評価指標 (変量) として以下の式でフィッティングした。

$$C = \left(1 - \exp\left(\frac{-k_c N_R}{w_p}\right)\right) C^*$$

$$\frac{k_c N_R}{w_p} = \frac{0.419 N_R \sqrt{D_m}}{w_p} = \frac{1.51 \times 10^3 \rho \pi D_b N n_f L_{\ell\text{-starv}} \sqrt{D_m}}{(h - \delta_f) Q_m}$$

$$\cong \frac{1.51 \times 10^3 \rho \pi D_b N n_f L_{\ell\text{-starv}} \sqrt{D_m}}{Q_m}$$

上記式から，CO₂ 濃度は，スクリー直径 D_b ，フライト条数 n_f ，非充満領域の軸方向長さ $L_{\ell\text{-starv}}$ ，スクリー回転数と可塑化能力の比 N/Q_m ，および拡散係数 D_m を変数とすることを明らかにした．

6.2 今後の展望

本研究により開発した数理モデルは，樹脂の挙動を簡易な式で記述し，比較的軽い計算負荷と現実的な時間で高精度に発泡剤濃度を予測できる実用性の高い手法と考える．また，CO₂ 濃度のフィッティングパラメータとして求めた $k_c N_R/w_p$ は，第3章の実験結果やこれまでの先行研究事例の結果とも一致する．

低压物理発泡射出成形機は産業機械であり，その主たる目的は，一定の品質の発泡製品を安定して量産することであり，品質管理の上では，一般的な射出成形機としての安定性に加えて樹脂中の物理発泡剤濃度を安定させることが重要となる．実験に用いた NIR プロブをノズル周辺に設けることで，物理発泡剤濃度をオンライン計測し，その安定性を確認することもできるが，ノズル周辺での清掃などの作業性が低下，設置コストなどの課題も発生する．一方で， $k_c N_R/w_p$ を構成するパラメータから成形時の状態により変動するパラメータを洗い出し，その変動をモニタリングすることで物理発泡剤濃度を直接測定しなくても発泡状態を管理することが可能になる．

また，開発したモデルにより物理発泡剤濃度を推定した後，金型内流動解析により成形品の発泡状態を推定することで，発泡射出成形品内の発泡状態に起因する課題を抽出することも可能になり，発泡製品開発のための開発期間を短縮できる．

本研究は，これらを通じて発泡射出成形品の適用範囲を広げ，プラスチック使用量の削減やプラスチックに起因する CO₂ 排出量の削減に繋がるものと期待する．

謝辞

本研究を遂行するにあたり，筆者が博士課程に入学する以前より物理発泡射出成形の基礎から研究の進め方，論文作成について終始御懇切にご指導を賜り，また思うように研究成果を出せない中でも暖かく見守って頂いた京都大学大学院工学研究科化学工学専攻教授大嶋正裕先生（現，京都大学国際高等教育院院長）に深謝の意を表する．

同専攻教授外輪健一郎先生には，主査として，また同専攻教授山本量一先生，同専攻教授佐野紀彰先生には，副査として本論文の細部にわたり有益な助言を賜った．ここに深謝の意を表する．

前同専攻助教引間悠太先生（現，産業技術総合研究所）には，NIR 法による CO_2 濃度の測定技術を確立して頂くとともに，データ整理や論文作成についてご助言頂いた．ここに深謝の意を表する．

元同専攻研究員細江峻介氏には，本研究の第 2 章の実験データを使わせて頂いた．同専攻研究員吉川樹氏には NIR 法による CO_2 濃度のデータの測定，整理にご協力頂いた．また，本研究の第 3 章の発泡剤濃度の数値解析では，元(株)日本製鋼所技術開発部研究員中川一馬氏に解析プログラムの作成，理論モデルの構築に協力して頂いた．データについての彼らとの議論は筆者の低圧物理発泡射出成形についての理解を深め，研究の立ち位置を確認する上でも大変貴重な経験となった．ここに深謝の意を表する．

(株)日本製鋼所先端技術研究所成形加工グループ担当課長福澤洋平博士にはプログラムの修正や論文における数式の記述などを助言して頂いた．同グループ研究員森重謙治氏には樹脂物性の測定などに協力して頂いた．また同社射出機械部成形技術グループ秦康夫氏，尾辻靖貴氏，城田祐太氏には第 5 章の実験に協力して頂いた．ここに感謝の意を表する．

実験や授業，論文執筆のために大学を訪問する度に筆者を暖かく受け入れてくれた京都大学大学院工学研究科化学工学専攻准教授長嶺信輔先生をはじめとする大嶋研究室の各位にも感謝の意を表する．

(株)日本製鋼所には，社会人博士後期課程への入学の機会を与えて頂き，本研究の遂行に必要な支援を頂いた．ここに感謝の意を表する．特に 2016 年 10 月に「熔融微細転写装置」の開発が中止になった筆者に新しいテーマ「発泡射出成形」への道を示して頂いた前(株)日本製鋼所広島研究所所長井上茂樹氏（現，取締役専務執行役員），社会人博士後期課程への進学を推薦し，背中

を押して頂いた前同社技術開発部部長武谷健吾博士（現同社執行役員，兼日本製鋼所 M&E(株)代表取締役社長），前同社射出機械部部長植田祐治氏（現，(株)タハラ代表取締役社長），前同部成形技術グループ GM 辻和也氏（現，生産部機械生産管理グループ GM）に深謝の意を表する．筆者とともに低圧発泡射出成形機「SOFIT」の装置開発およびスクリーン開発を行った前同部担当部長上園裕正氏（現，生産部調達グループ担当部長），同社部システム技術グループ担当課長森川雅之氏，元同部成形技術グループ担当課長中島英昭氏，前同グループ玉田光一氏，前同グループ原政樹氏（現，営業部関東営業所）にも感謝の意を表する．また，平常時でも仕事が滞りがちな筆者の日常業務をサポートし，必要な支援を与えて頂いた同社イノベーションマネジメント本部先端技術研究所所長富山秀樹博士，同社射出機械部部長面林孝英氏，前同部成形技術グループ GM 安江昭氏（現，イノベーションマネジメント本部先端技術研究所担当部長），同グループ GM 木村公一博士，同グループ担当課長油布拓也氏をはじめとする成形技術グループ各位にも感謝の意を表する．

最後に，仕事も筆も遅い筆者が社会人博士課程に挑むという無謀な取り組みを陰ながら支えてくれた妻愛子と 3 人の子供たち（凜，栞，慧）に感謝の意を表する．

業績リスト

査読付きの論文

1. 内藤章弘, 細江峻介, 引間悠太, 大嶋正裕 : 「低圧物理発泡射出成形法における物理発泡剤の溶解挙動の解明 (第一報) ～物理発泡剤濃度に及ぼす成形条件の影響～」, 成形加工, 36 (2), 79-86 (2024) (第3章)
2. 内藤章弘, 引間悠太, 大嶋正裕 : 「物理発泡剤の溶解過程のシミュレーション手法～低圧物理発泡射出成形法における物理発泡剤の溶解挙動の解明 (第二報)～」, Article in press, 成形加工 (2024年4月25日 Accept, 2024年8月号 (36巻8号) 掲載予定) (第4章)
3. Naito, A. : “Numerical Simulations and Experiments of Estimating Physical Blowing Agent Concentration Dissolved in Polymer at a Low-pressure Foam Injection Molding.”, Article in preparation, *Polym. Eng. Sci.*, (第5章)

共著論文

1. Wang, L., Wakatsuki, Y., Hikima, Y., Ohshima, M., Yusa, A., Uezono, H., Naitou, A., : “Preparation of Microcellular Injection-Molded Foams Using Different Types of Low-Pressure Gases via a New Foam Injection Molding Technology”, *Ind. Eng. Chem. Res.*, 58, 17824-17832 (2019) (第2章)
2. 細江俊介, 引間悠太, 大嶋正裕, 渡正博, 内藤章弘 : 「近赤外分光法を用いた発泡射出成形プロセスにおける発泡剤濃度モニタリング手法の開発」, 成形加工, 33 (5), 176-181 (2021)

その他の発表資料

1. 内藤章弘, 玉田光一, 中島英昭, 上園裕正, 辻和也, 引間悠太, 大嶋正裕 : 「新物理発泡射出成形技術「SOFIT」における成形安定性および発泡能力」, 日本製鋼所技法, 70, 57-62 (2019)
2. 内藤章弘 : 「新物理発泡成形システムの紹介」, 産業機械, 823, 25-28 (2019)

共同発表

1. Hikima, Y., Hosoe, S., Wang, L., Wakatsuki, Y., Ohshima, M., Yusa, A., Uezono, H., Naitou, A., : “A Simplified Foam Injection Molding Machine with Near Infrared (NIR) Monitoring System of Physical Blowing Agent Concentration”, International conference on Advances in Foam Materials & Technology (FOAMS2019), Valladolid, Spain, 2019.10.2-3
2. Yoshikawa, I., Naitou, A., Hosoe, S., Hikima, Y., Ohshima, M., : “The Dissolution Mechanism of a Blowing Agent in the Novel Foam Injection Molding Process, SOFIT®

(RIC-FOAM)”, 9.2C, The 38th Annual Meeting of Polymer Processing Society, St. Gallen, Switzerland, 2023.5.22-26

その他の講演

1. 成形加工学会 30 周年記念特別交流会, ポスター発表, 「当社の物理発泡成形技術の特徴と課題解決状況」, 内藤章弘, 2018.6.20
2. 株式会社 andtech 主催セミナー: 『発泡成形における材料技術と製品・プロセスの最新技術』, 第三部「物理発泡成形の実用化とこれからの取り組み」, 内藤章弘, 2018.6.28
3. 公益財団法人ひろしま産業振興機構主催セミナー: 自動車用材料の高機能化研究会 第6回講演会, 第二部「新発泡成形技術「SOFIT」の紹介」, 内藤章弘, 2019.1.31
4. 株式会社技術情報協会主催セミナー: 発泡樹脂の材料配合と成形・気泡コントロール, その応用, 第三部「高圧ガス発生装置が不要な物理発泡成形技術「SOFIT」の紹介と最新技術トピックス」, 内藤章弘, 2020.7.17
5. 株式会社技術情報協会主催セミナー: 発泡成形のメカニズム, 気泡コントロール, 測定, 第三部「高圧ガス発生装置が不要な物理発泡成形技術とその応用について」, 内藤章弘, 2023.9.7

特許

1. 特許第 6570582 号, 「発泡成形用の射出成形機」, 内藤章弘, 荒木克之, 中川一馬, 玉田光一, 古木賢一, 2019.8.16
2. 特許第 6762679 号, 「発泡成形用の射出成形機のスクリュおよび射出成形機」, 内藤章弘, 荒木克之, 玉田光一, 上園裕正, 中島英昭, 2020.9.11
3. 特許第 6758790 号, 「発泡成形用の射出成形機のスクリュおよび射出成形機」, 内藤章弘, 玉田光一, 上園裕正, 2020.9.4
4. 特許第 7463261, 「発泡成形を実施する射出成形機および射出成形機の制御方法」, 内藤章弘, 油布拓也, 2024.3.29
5. 特許第 7463262, 「発泡成形用の射出成形機および射出成形機の制御方法」, 内藤章弘, 油布拓也, 2024.3.29
6. 特開 2022-89258, 「ガス供給装置、射出成形機および発泡成形方法」, 内藤章弘, 油布拓也, 2022.6.16
7. 特開 2022-190230, 「発泡成形用の射出成形機」, 内藤章弘, 油布拓也, 2022.12.26
8. 特開 2023-127419, 「発泡成形用の射出成形機および発泡成形品の成形方法」, 内藤章弘, 油布拓也, 2023.9.13

共同発明

1. 特開 2023-74097, 「発泡成形用の射出装置、射出成形機および発泡成形方法」, 油布拓也, 内藤章弘, 2023.5.29