

ウェルドラインを有するプラスチック射出成形品の 組織構造と力学的挙動に関する研究

泊, 清隆

<https://doi.org/10.11501/3070080>

出版情報：九州大学, 1993, 博士（工学）, 論文博士
バージョン：
権利関係：

ウェルドラインを有する
プラスチック射出成形品の
組織構造と力学的挙動に関する研究

平成5年3月

泊 清 隆

①

ウェルドラインを有するプラスチック射出成形品の
組織構造と力学的挙動に関する研究

平成5年3月

泊 清 隆

目 次

| | |
|---|----|
| 第 1 章 緒 論 | 1 |
| 第 2 章 熱可塑性プラスチック射出成形品における ウェルドラインの V 溝深さおよび破壊じん性 | 11 |
| 第 1 節 緒 言 | 11 |
| 第 2 節 実験方法 | 13 |
| 2.1 成形材料 | 13 |
| 2.2 射出成形 | 14 |
| 2.3 引張試験および SEM 観察 | 18 |
| 2.4 切削法による V 溝深さの定量化 | 18 |
| 2.5 両端き裂試験片を用いた破壊力学試験 | 21 |
| 第 3 節 実験結果ならびに考察 | 23 |
| 3.1 ウェルドライン深さの評価 (V 溝深さの定量化) .. | 23 |
| 3.1.1 ポリスチレンのウェルド強度と 成形圧力条件 | 23 |
| 3.1.2 ポリスチレンのウェルド試料の破断面観察 .. | 24 |
| 3.1.3 ウェルドライン深さの測定 | 28 |
| 3.1.4 ウェルドライン深さとウェルド強度 | 32 |
| 3.1.5 ポリカーボネートのウェルドライン深さと ウェルド強度 | 32 |
| 3.2 ウェルドラインの破壊じん性 | 34 |
| 3.2.1 両端き裂試験片による ポリスチレンのじん性評価 | 39 |
| 3.2.2 ウェルド試料と両端き裂試験片 の破断面比較 | 39 |
| 3.2.3 ウェルドライン深さより求めたじん性値 | 44 |
| 3.2.4 ポリカーボネートの破壊じん性 | 44 |
| 3.2.5 ポリスチレンとポリカーボネートの 破壊力学特性の比較 | 48 |
| 3.2.6 ポリスチレンとポリカーボネートの ウェルドライン構造 | 48 |
| 第 4 節 結 言 | 52 |
| 参考文献 | 54 |
| 第 3 章 FTIR によるウェルドライン領域における 分子配向の評価 | 55 |
| 第 1 節 緒 言 | 55 |

| | | |
|-------|---|-----|
| 第2節 | 実験方法 | 56 |
| 2.1 | 成形材料 | 56 |
| 2.2 | 射出成形 | 58 |
| 2.3 | 分子配向度の測定 | 58 |
| 2.3.1 | 赤外二色比と分子配向度 | 58 |
| 2.3.2 | I R 試料作成および F T I R 計測 | 59 |
| 2.4 | 引張試験および S E M 観察 | 61 |
| 第3節 | 実験結果ならびに考察 | 61 |
| 3.1 | 引張破壊挙動とウェルドライン | 61 |
| 3.2 | 破断面の S E M 観察 | 63 |
| 3.3 | 赤外吸収スペクトルにおける特性吸収帯 | 69 |
| 3.4 | L C P の分子配向 | 69 |
| 3.5 | ポリカーボネートの分子配向 | 76 |
| 3.6 | 顕微 F T I R 法の展開 | 76 |
| 第4節 | 結 言 | 80 |
| | 参考文献 | 82 |
| 第4章 | 繊維強化熱可塑性プラスチックのウェルド強度に及ぼす 射出成形条件および繊維配向の影響 | 83 |
| 第1節 | 緒言 | 83 |
| 第2節 | 実験方法 | 85 |
| 2.1 | 対向流ウェルドライン | 85 |
| 2.1.1 | 成形材料 | 86 |
| 2.1.2 | 射出成形 | 86 |
| 2.1.3 | 引張試験および S E M 観察 | 86 |
| 2.2 | 並走流ウェルドライン | 88 |
| 2.2.1 | 成形材料 | 88 |
| 2.2.2 | 射出成形 | 89 |
| 2.2.3 | 引張試験および S E M 観察 | 89 |
| 2.2.4 | 繊維配向角測定 | 92 |
| 第3節 | 実験結果ならびに考察 | 92 |
| 3.1 | 対向流ウェルドラインの特性 | 92 |
| 3.1.1 | 金型内樹脂圧力および樹脂温度の測定 | 92 |
| 3.1.2 | ウェルドラインによる強度低下 | 93 |
| 3.1.3 | 破断面の S E M 観察 | 98 |
| 3.1.4 | ウェルドライン領域の繊維配向の観察 | 100 |
| 3.1.5 | ウェルドライン部樹脂圧力とウェルド強度 | 107 |
| 3.1.6 | 繊維強化ポリプロピレンの場合 | 110 |

| | | |
|-------|---------------------------------------|-----|
| 3.2 | 並走流ウェルドラインの特性 | 113 |
| 3.2.1 | 破断面観察 | 113 |
| 3.2.2 | 並走流ウェルドラインの強度分布 | 116 |
| 3.2.3 | 負荷角度の影響 | 116 |
| 3.2.4 | 試験片形状の影響 | 120 |
| 3.2.5 | 穴近傍の繊維配向観察 | 120 |
| 第4節 | 結言 | 125 |
| | 参考文献 | 129 |
| 第5章 | 繊維強化熱可塑性プラスチックのウェルド強度 に及ぼす表面処理剤の効果 | 130 |
| 第1節 | 緒言 | 130 |
| 第2節 | 実験方法 | 132 |
| 2.1 | 成形材料および表面処理剤 | 132 |
| 2.2 | 表面処理および混練 | 133 |
| 2.3 | 射出成形 | 134 |
| 2.4 | 分子量、繊維長およびパーフロー長の測定 | 134 |
| 第3節 | 実験結果ならびに考察 | 134 |
| 3.1 | 分子量、繊維長およびパーフロー長 | 134 |
| 3.2 | 物性に関連した因子 | 136 |
| 3.2.1 | 試験片の破壊挙動 | 136 |
| 3.2.2 | シランカップリング剤の影響 | 136 |
| 3.2.3 | 成形品物性に及ぼすウレタン結束剤の影響 | 138 |
| 3.2.4 | 処理剤濃度の影響 | 140 |
| 3.2.5 | 成形温度の効果 | 142 |
| 3.2.6 | 試験温度の影響 | 146 |
| 第4節 | 結言 | 146 |
| | 参考文献 | 149 |
| 第6章 | 射出成形におけるウェルドライン消去のための 二、三の試み | 150 |
| 第1節 | 緒言 | 150 |
| 第2節 | 実験方法 | 152 |
| 2.1 | セラミックヒーターを用いた局部加熱消去法 | 152 |
| 2.1.1 | 成形材料 | 152 |
| 2.1.2 | 金型およびセラミックヒーター | 152 |

| | | |
|-------|-----------------------------|-----|
| 2.1.3 | 射出成形 | 152 |
| 2.1.4 | ウェルドライン幅の測定および引張試験 | 155 |
| 2.2 | 多数個取り金型によるバックフロー現象を応用した強度改善 | 158 |
| 2.2.1 | 成形材料 | 158 |
| 2.2.2 | 射出成形 | 158 |
| 2.2.3 | 引張試験 | 158 |
| 第3節 | 実験結果ならびに考察 | 158 |
| 3.1 | ヒーター加熱法の効果 | 158 |
| 3.1.1 | ヒーター電圧と表面温度 | 158 |
| 3.1.2 | 金型温度とウェルドライン幅 | 162 |
| 3.1.3 | ヒーター加熱法によるウェルドライン幅の変化 | 164 |
| 3.1.4 | ヒーター加熱とウェルド強度 | 168 |
| 3.2 | バックフロー法によるFRTPウェルド強度の改善 | 168 |
| 3.2.1 | ウェルドラインによる強度低下 | 168 |
| 3.2.2 | 溶融樹脂の充てん過程 | 172 |
| 3.2.3 | 顕微鏡による繊維配向観察 | 172 |
| 3.2.4 | 破断面のSEM観察 | 174 |
| 3.2.5 | ポリカーボネートとポリアミドの比較 | 183 |
| 3.2.6 | バックフロー法を応用するための金型設計指針 | 187 |
| 第4節 | 結 言 | 192 |
| | 参考文献 | 193 |
| 第7章 | 結 論 | 194 |
| | 謝 辞 | 200 |

第1章 緒 論

射出成形法は、1930年代から行われている熱可塑性プラスチックの代表的な成形法のひとつであり、電気機器や機械部品をはじめ、家庭用雑貨品まで非常に広範囲な分野で応用されている¹⁾。その基本プロセスは、加熱シリンダ内のスクリュを用いて可塑化、溶融した成形材料を金型内に高速、高圧で充てん（射出）し、金型中で冷却、固化した後に取り出して成形品とするものである。

押出成形や吹込成形など他の成形法と比べた場合、射出成形はより複雑形状で高精度の製品を安定に大量生産することができる。しかし、他方では固有の問題点を抱えている。高粘度の溶融樹脂を狭い金型流路に充てんするために非常に高い圧力を必要とする。これは、成形機の型締力や射出圧力に高い性能を要求するとともに成形品中に残留歪みを発生させる。また、成形に際して金型内の樹脂流動をとまなうことから、分子配向や充てん材、補強材の配向といった現象が生じる。このような現象が複雑に関連しているために、射出成形には高度な成形技術が必要となる。

射出成形技術の基本因子は、①成形材料、②成形機（制御）、③金型、の3つに集約される。高性能、高精密部品を成形するためにこれらの因子の最適化が図られなければならない。例えば、プラスチックレンズへの応用のために、光学特性に優れ異物の少ない成形材料が開発されるとともに、成形機には成形品の歪みを低減するために射出圧縮の装置が付加され、さらに金型の面精度は極限まで高められる。このような技術開発は、前述の残留歪みや分子配向などの現象を理解した上ではじめてなし得るものである。しかし、射出成形における様々な現象は充分には解明されていない。

金型内を流動する樹脂の合流部に生じるウェルドラインもそのような問題のひとつである。ウェルドラインは、樹脂の合流部に生成する筋状の痕跡のことで、別名ニットラインとも呼ばれる。図1.1に示すように、成形品の形状が複雑化すると肉厚の差やピン、コアといった金型部品のために溶融樹脂が分流し、

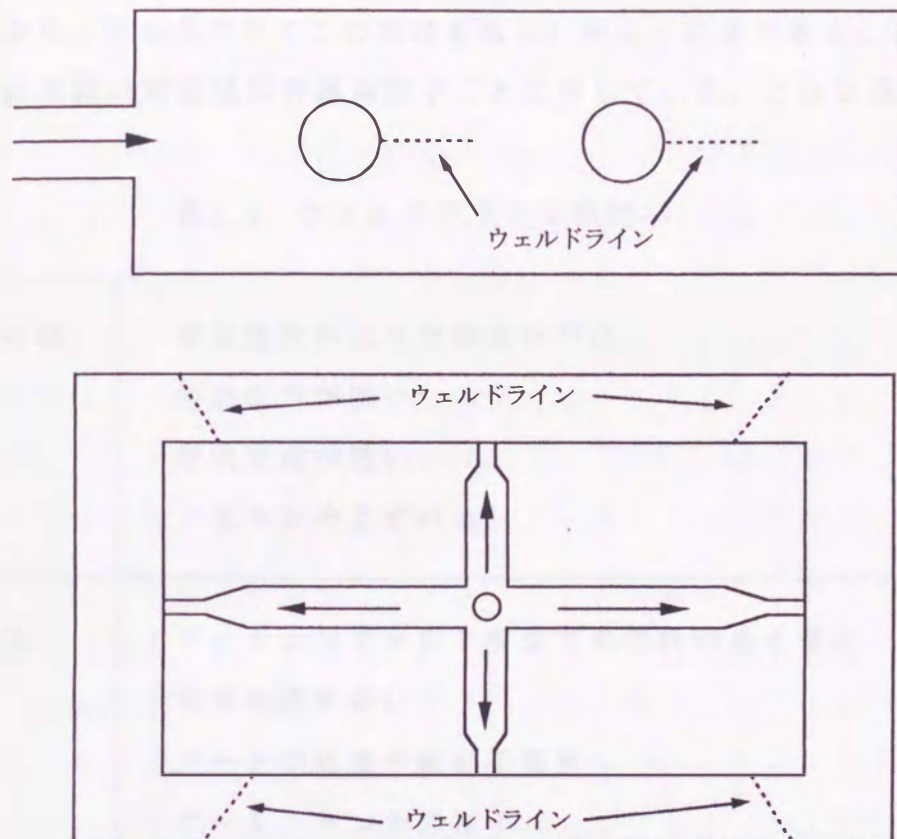


図1.1 金型内の樹脂流動とウェルドラインの発生

それらが再び合流する部分にウェルドラインが生じる。これはクラックのような外観を呈することから外装部品などで外観不良として問題となることが多い。また、より深刻な問題は機械的物性および信頼性を低下させることである。

ウェルドライン領域は、一般に非ウェルドライン領域と比べて力学的物性が低下するために、構造部品においては大きな問題となる²⁾。すなわち、低い荷重でもウェルドラインからき裂が発生する、ボルト締結する部品では締め付けトルクによりボルト穴周辺に存在するウェルドラインから破壊する、などの現象が生じる。また、許容応力以下での使用でも長期間にウェルドラインから劣化が進行して寿命が短くなるなど、製品の信頼性を低下させる。

このようなウェルドラインの対策は、個々の成形において発生した時点で対症的に講じられることが多く、熟練技術者の経験や勘に依存している。そ

の蓄積から、ウェルドラインの原因を表1.1のようにまとめることができる³⁾。ここでは上述の射出成形の基本因子ごとに示している。これに基づいたウェル

表1.1 ウェルドラインの原因

| | |
|-----|--|
| 成形機 | <ul style="list-style-type: none"> ・樹脂温度が低く流動性が不足 ・射出圧力が低い ・射出速度が遅い ・ノズルが冷えている |
| 金型 | <ul style="list-style-type: none"> ・ゲートよりウェルド部までの流れが長すぎる ・金型温度が低い ・ゲートの位置や数が不適當 ・ゲート、ランナの過小 ・排気不良 ・離型剤の使用が多すぎる |
| 材料 | <ul style="list-style-type: none"> ・材料中に水分や揮発物がある ・樹脂の流れが悪い ・材料の固化が速い ・潤滑剤の不適當あるいは多すぎる |

ドライン対策として、成形温度や金型温度を高めること、成形材料の予備乾燥を十分に行うこと、あるいはウェルドラインが発生する金型箇所にあらかじめエアベントを設けることなどが行われる。また、流動解析プログラムを用いることによりウェルドラインの発生位置を強度的に問題の少ない箇所に移動させる金型設計を行うことができる^{4) - 6)}。しかし、成形材料によってはこのような対策が必ずしも効果を発揮せず、二次的な成形不良を招くこともある。技術

者の経験や勘に頼らずウェルドラインを合理的に解決するためには、その原因に関する系統的な研究が必要となる。

熱可塑性プラスチック射出成形品のウェルドラインに関する研究として以下のような研究がある。P. Hubbauerは射出成形品の品質評価としてウェルドラインを有する硬質PVC、ABS樹脂成形品のアイゾット衝撃強度に対する射出速度や成形温度の影響を調べた⁷⁾。射出速度あるいは成形温度を上げることが衝撃強度改善に効果があり、その効果は材料によって異なると報告している。S. C. Malgurnera, A. Manisaliは、汎用ポリスチレン、耐衝撃性ポリスチレン、ポリプロピレンなどの市販ポリマーに関してウェルドラインの引張強度を測定し、成形条件の影響を検討した。彼らは特に熔融温度と金型温度の影響が大きいことを報告している⁸⁾。また、ポリプロピレンに関してアニーリングの効果について考察した⁹⁾。アニーリングはウェルド強度に対しても効果があることが分かった。R. M. Criensらはポリスチレン、ポリカーボネート、ポリオキシメチレンなどを使って、金型形状や成形条件などの因子と射出成形品のウェルドラインの有無による引張強度比（ニットラインファクタと呼んでいる。）の関係を評価した¹⁰⁾。材料ごとにウェルド強度向上に効果的な成形条件が異なることが分かった。このように、衝撃強度や引張強度に関する検討の他に、クリープ、疲労強度に及ぼす影響に関する研究もある^{7), 11), 12)}。SEMや光学顕微鏡観察によりウェルドライン領域の結晶構造を解明しようと試みた研究もある^{13), 14)}。S. Y. Hobbsはポリプロピレン平板のウェルドライン領域から切り出した薄片試料の引張試験で破壊が表面のV溝からトランスクリスタル層を経て球晶層へと進展することを明らかにした¹⁵⁾。また、S. Piccaroloらはポリアミド6に関してモルフォロジーの観察を行った¹⁶⁾。材料に着目すると、上述のように、ポリカーボネート、ポリアミドなど強度が問題となることが多いエンジニアリングプラスチックを中心として使用量の多い材料に関する研究が主であった。近年では、より高度な分野への応用を期待される材料として液晶ポリマー（LCP）がある。LCPは剛直で直線性の高い分子鎖の配向により優れた物性を持つ材料であるが、ウェルドラインによる強度低下が極めて著

しいため問題となっている。そのため関連の研究が多くみられるようになってきた^{17) - 19)}。これまでの研究は、対象とする材料や物性は異なるものの、いずれも単に成形条件とウェルド強度の関係を定性的に検討しただけであり、ウェルドラインの組織構造を定量的に検討した研究はない。

E. M. Hagermanなどによるこれまでの研究を集約すると、ウェルドラインの組織構造は以下のように考えられる(図1.2参照)²²⁾。

- (1) 空気や発生するガスなどを巻き込むために表面に生じるV溝による切り欠き効果
- (2) ファウンティンフロー効果によるウェルドライン界面に平行な分子配向
- (3) 2つの流動先端の界面での樹脂の混合不足

F R T P (繊維強化熱可塑性プラスチック)などの複合材料ではさらに、

- (4) 因子(2)と同様のファウンティンフロー効果による強化材の配向
- が因子として加わる²⁰⁾。

ファウンティンフローとは、熱可塑性プラスチック固有の金型内流動挙動で、熔融樹脂が金型面に接した樹脂固化層(スキン層)の間を流動した後に、流動先端から噴水状に噴き出す流動挙動のことを言う²¹⁾。

しかし、このような因子とウェルド強度との因果関係は充分には解明されていない。少なくとも、因子(1)~(4)を考慮している研究には以下のものがある。例えば、因子(1)、つまり切り欠き効果については、E. M. HagermanがABS樹脂射出成形品のウェルドライン表面に存在するV溝を研磨することによって機械的な物性が大幅に向上したと述べている²²⁾。しかし、V溝深さは全く測定されていない。割野らはメタクリル樹脂のウェルドライン表面のV溝を表面粗さ計で測定するとともにウェルドライン接合部の樹脂温度を熱電対で計測しV溝深さとの関連を検討した²³⁾。S. Y. Hobbsはポリプロピレン平板に生成したV溝深さを測定し、これが金型温度に依存して変化することを見出した¹⁵⁾。彼らの研究によればV溝深さは5~20 μ mであると考えられる。新しい試みとして、ガラスインサート金型を用いてV溝形成過程を可視化しようとする研究もなされている²⁷⁾。しかし、これらの研究においてはV溝と強度との関連につ

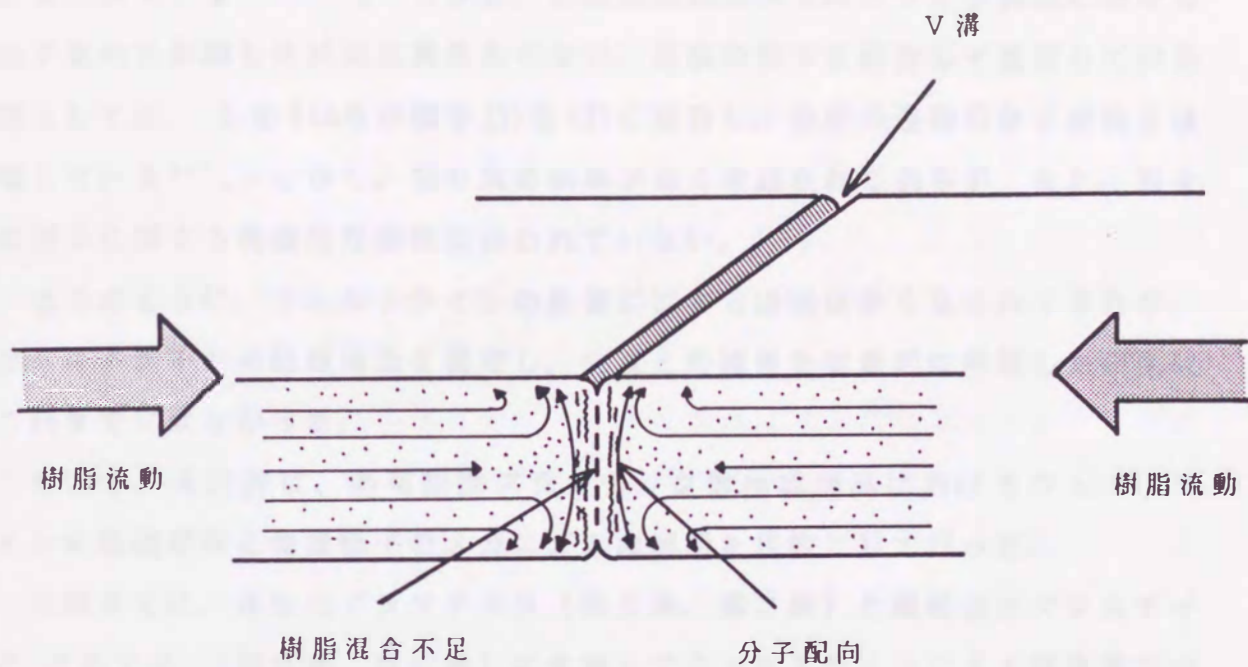


図1.2 ウェルドラインの強度低下要因

いてはほとんど触れていない。因子(2)については、ウェルドラインの無い射出成形品あるいはフィルムなどに関しては複屈折率や成形収縮率を因子として研究されている^{24)・25)}。しかし、射出成形品のウェルドライン領域における分子配向を評価した研究は見あたらない。複数の因子を総合して検討している例としては、S.G.Kimらが因子(2)と(3)に着目し、強度の理論的な予測法を提唱している²⁶⁾。しかし、切り欠き効果が全く考慮されておらず、また、個々の因子に関する実験的な検証は行われていない。

以上のように、ウェルドラインの影響に関する研究は多くなされてきたが、ウェルドラインの組織構造を測定し、強度との関係を定量的に評価した研究はこれまでにはなかった。

そこで、本研究は、熱可塑性プラスチック射出成形品におけるウェルドラインの組織構造と強度低下のメカニズムの解明を目的として行った。

本論文では、非強化プラスチック(第2章、第3章)と繊維強化プラスチックFRTP(第4章、第5章)に大別してウェルドラインによる強度低下の因子を定量化し、ウェルドラインの組織構造を明かにするとともに、得られた知見に基づいてウェルドライン欠陥の効果的な改善策を検討した(第6章)。

第2章では、ポリカーボネート、ポリスチレンの非強化材料に関してV溝深さおよび破壊じん性について研究した。ウェルドライン表面を逐次切削した時の強度変化からV溝深さを求める方法を提案し、単なる形状的因子ではないV溝深さとウェルド強度の関係を明かとした。さらに、ウェルドラインの両端に微細なき裂を導入した試験片を用いて破壊じん性を求め、材料の切り欠きに対する破壊挙動の違いを検討した。

第3章では、ウェルドライン領域における分子配向を評価した。ポリカーボネートおよび液晶ポリマー成形品に関してマイクロトームを用いて薄片試料を作製し、顕微法FTIRを用いて赤外二色比を測定し、ウェルドラインを含む微小領域の分子配向度を測定した。前者は比較的分子配向性の低い材料であり、後者は分子配向による異方性が最も顕著な材料である。この両者の比較からウェルドライン領域における分子配向の影響を検討した。

第4章では、FRTP射出成形品のウェルド強度に及ぼす成形条件の影響を研究した。FRTPでは強化繊維はウェルドライン合流面に平行に配向するために強度低下が問題となることが多い。繊維配向は金型内の樹脂流動と密接に関係があることから、金型内における流動先端の会合挙動の違いにより、対向流ウェルドライン（会合と同時に流動停止する流動方向に垂直に生成するウェルドライン）と並走流ウェルドライン（コア穴の後方などに発生する流動方向と平行に生成するウェルドライン）の2種類に分類して、射出圧力が各々のウェルド強度に及ぼす影響を検討した。対向流ウェルドラインに関しては、ウェルドライン領域の樹脂圧力との関連性を検討した。

第5章では、繊維強化ポリカーボネートのウェルド強度に及ぼすガラス繊維の表面処理剤の影響について研究した。繊維が補強効果を発揮しないウェルド強度を改善する方法は最適な表面処理剤を選択することである。代表的な表面処理剤であるシランカップリング剤の処理濃度や末端の有機反応基を変えてウェルド強度を調べることにより、ウェルドラインにおける繊維/樹脂界面の効果を解明した。

第6章では、ウェルドライン欠陥を改善する方法として2つの方法を考案した。まず、キャビティ表面に設置したヒーターを用いてポリスチレン射出成形品のウェルドライン表面に存在するV溝を消去する方法を研究した。本法では、ウェルドライン以外の部位に影響を及ぼすことなくV溝を消去できると期待される。ヒーター加熱電圧や金型温度とウェルドライン幅の関係から最適加熱条件を検討した。

また、第4章で検討したFRTP射出成形品のウェルド強度を改善するための金型設計について研究した。これは、2点ゲート金型を左右非対称の多数個取り構造にすることにより金型内の樹脂流動挙動を変化させウェルドライン領域に平行な繊維配向の改善を図る試みである。ポリカーボネートやポリアミドをマトリックスとした強化材料に関してその効果を検討した。

参考文献

- 1) 廣恵章利, プラスチック加工の基礎, p. 175, 高分子学会編 (1982). 他
- 2) P. J. Cloud et al., *Plastics Technology*, **48**, (Aug. 1976).
- 3) 伊藤 忠 他, 射出成形, p. 167, *プラスチックエージ* (1990).
- 4) K. J. Singh, *SPE ANTEC Tech. Papers*, **30**, 783 (1984).
- 5) W. L. Krueger, *SPE ANTEC Tech. Papers*, **24**, 87 (1978).
- 6) W. R. Jong, K. K. Wang, *SPE ANTEC' 91*, 197 (1991).
- 7) P. Hubbauer, *Plast. Eng.*, **29**, 37 (1973).
- 8) S. C. Malguarnera, A. I. Manisali, *Polym. Eng. Sci.*, **21**, 586 (1981).
- 9) S. C. Malguarnera, A. I. Manisali, D. C. Riggs, *Polym. Eng. Sci.*, **21**, 1149 (1981).
- 10) R. M. Criens, H. G. Mosle, *Polym. Eng. Sci.*, **23**, 591 (1983).
- 11) R. J. Crawford, P. P. Banham, *J. Mech. Eng. Sci.*, **16**, 44 (1974).
- 12) R. Boukhili, R. Gauvin, M. Gosselin, 34th International SAMPE Symposium, p. 2096 (1989).
- 13) 柿崎哲司, 遠藤 紘, 黒田敏彦, *プラスチックス*, **25**, 58 (1974).
- 14) G. R. Bell, D. C. Cook, *Plast. Eng.*, **35**, 18 (1979).
- 15) S. Y. Hobbs, *Polym. Eng. Sci.*, **14**, 621 (1974).
- 16) S. Piccarolo, A. Rallis, G. Titomanlio, *Intern. Polym. Proc.*, **2**, 137 (1988).
- 17) Z. Ophir, Y. Ide, *Polym. Eng. Sci.*, **23** (14), 792 (1983).
- 18) G. Menges, T. Schacht, H. Becker, S. Ott, *Intern. Polym. Proc.*, **2**, 77 (1987).
- 19) K. Engberg, A. Knutssen, P. -E. Werner, U. W. Gedde, *Polym. Eng. Sci.*, **30** (24), 1620 (1990).
- 20) B. Fisa, J. Dufour, T. Vu-Khanh, *Polym. Compos.*, **8** (6), 408 (1987).
- 21) R. H. Ballman, H. L. Toor, *Mod. Plast.*, **38**, 113 (1960).
- 22) E. M. Hagerman, *Plast. Eng.*, **29**, 67 (1973).

- 23) 割野孝一, 田村 弘, 松丸重雄, 第2回プラスチック成形加工学会
年次大会予稿集, 207 (1990).
- 24) J. L. S. Wales, J. Van Leeuwen, R. Van Der Vijgh, Polym. Eng. Sci.,
12, 358 (1972).
- 25) 藤山光美, 木村修吉, 高分子論文集, 32, 581 (1975).
- 26) S. G. Kim, N. P. Suh, Polym. Eng. Sci., 26, 1200 (1986).
- 27) 村田泰彦, 岡 克典, 渡辺広三, 横井秀俊, 第2回プラスチック成形加工学会
年次大会予稿集, 209 (1990).

第2章 熱可塑性プラスチック射出成形品における

ウェルドラインのV溝深さおよび破壊じん性

第1節 緒言

プラスチック射出成形品におけるウェルドラインの発生は重大問題であるにも関わらず、対症療法的な成形技能に頼った解決策しか見出せなかったのがこれまでの現状である。それは、ウェルドラインによる物性低下の要因が全く把握されなかったことためである。その要因のひとつは、樹脂合流に際して巻き込まれた空気が金型壁面に封入されて形成するV字状の溝（V溝）と考えられている^{1)・2)}。V溝は割れのような外観不良の原因となるばかりでなく、切り欠き効果を誘発するために成形品強度を著しく低下させる。したがって、ウェルドライン欠陥を解決するためにはV溝の大きさや強度に及ぼす影響を解明しなければならない。

E. M. HagermanはV溝の影響に着目してウェルドラインの研究を行った¹⁾。彼は、ABS樹脂射出成形品の表面を注意深く研磨してウェルドラインを取り除くことにより降伏強度および破断強度が向上したと報告した。しかし、研磨条件や取り除かれたV溝の深さや構造などに関する詳細な記述は無い。B. Fisaらは、光学顕微鏡観察によりポリプロピレン射出成形品の表面に生じたV溝について考察し³⁾、充てん材の形状によってV溝の幅や形状が変化することが見出したが、表面観察しか行っていないためにやはりV溝深さに関する詳細な情報は得られていない。S. Piccaroloらは、ポリアミド6に関して側面からV溝の観察を試みた^{4)・5)}。ウェルドラインに対して垂直に切断した試料断面を観察した結果、金型温度が低い場合（30°C）には試料表面に数 μm の深さのV溝が存在することが分かった。また、黒田らはアクリル樹脂成形品表面の段差量を表面粗さ計を用いて測定し、ウェルドラインの切り欠き深さは数 μm であったと報告している⁶⁾。これらの研究によって射出成形品に生じたウェルドライン

表面のV溝については明らかされてきたが、V溝深さが成形品ウェルド強度に及ぼす影響についての定量的な検討はなされていない。

一方、V溝深さの定量化と同様に、成形材料固有のV溝に対する抵抗力は切り欠き効果を論じる上で重要となる。材料の表面、あるいは内部に存在する微小な欠陥から生じたき裂が成長して材料破壊が生じるという仮定に基づいた材料評価手法に破壊力学がある。破壊力学を用いた破壊安全性評価技術は、原子力容器などの設計において大いに活用され発展しており、最近ではプラントや構造物を対象とした劣化診断や寿命予測に応用されている。高分子材料の寿命や破壊過程を検討したこれまでの研究においても破壊力学的なアプローチが多くみられる。L. Rollandらは、屋外暴露やエージング操作によって表面が劣化した場合の高分子材料の破壊挙動の変化を、臨界応力拡大係数、すなわち破壊じん性、 K_{Ic} で評価している⁷⁾。また、百武らはポリカーボネート切り欠き平板の静的降伏現象とそれに及ぼす板厚効果について破壊力学的な検討を行っている⁸⁾。ウェルドラインを持つ射出成形品の破壊じん性についてはR. Boukhiliらが片側き裂試験片を用いて検討を行った⁹⁾。しかし、彼らの実験では試験片に深さ6mm以上のき裂が導入されており、数 μ m程度の微細な溝と言われているウェルドラインの評価には適していない。また、用いた樹脂によって応力拡大係数やJインテグラルなど異なる因子で評価しているために、樹脂による切り欠き効果の差異を論じることができない。

これまでの研究を総括すると、ウェルドライン表面のV溝の深さと材料の破壊じん性を総合してウェルドライン強度を検討した研究はこれまで全く行われていない。

そこで筆者は、熱可塑性プラスチック射出成形品のウェルドラインにおける切り欠き効果を明らかにする目的で研究を行い、その成果を本章にまとめた。まずV溝深さの定量化方法について検討した。表面粗さ計による段差測定は非常に簡便ではあるが、鋭利な溝に対しては正確な測定が行えず、また、単なる形状測定であるために樹脂の収縮率の異方性などの影響を受ける。強度との関連を評価するためには、強度と密接に関連した方法でV溝の深さを検討する必

要がある。そこで、ウェルドライン表面を切削することによってウェルド強度が向上するならば、逆にその取り除く深さを求めることによってV溝深さが明らかになると考えた。そこで、フライス盤を用いてウェルドライン表面の切削深さ条件を変化させて切削した場合の強度変化を測定する方法を試みた。用いた材料は、切り欠き感度が高いぜい性材料のポリスチレンと、対照的にエンジニアリングプラスチックのひとつで強靱材料であるポリカーボネートを選びV溝深さを測定した。

次に、同様の材料について、V溝存在下での材料強度を調べるためにウェルドラインの両端に鋭利なき裂を導入した両端き裂試験片を用いて破壊力学試験を行った。R. Boukhiliらの研究とは異なり、樹脂の種類によらず、応力拡大係数を因子とした評価を行った。材料の破壊じん性の観点からウェルドラインの切り欠き効果を検討するとともに、V溝深さの知見と合わせてウェルドライン構造の推定を行った。

第2節 実験方法

2.1 成形材料

成形材料として、汎用ポリスチレン（PS；三菱化成ポリテック(株)製ダイアレックス HF-77グレード）とポリカーボネート（PC；三菱ガス化学(株)製ユーピロン）を用いた。前者は特に家電製品を中心としてウェルドラインによる外観不良や強度低下が問題となることが多く、また後者は強度を必要とする工業分野に応用されることが多いためウェルドライン欠陥について検討するのに最適であると考えた。PSは、メルトフローインデックスが7.5g/10min程度の流動性を持つ（JIS K7210、200°C、荷重5kgf）。PCは中流動性の射出グレード材料であり、分子量の異なる2種類、S2000グレード（重量平均分子量 $M_w = 2.3 \sim 2.6 \times 10^4$ ）とS3000グレード（ $M_w = 2.2 \sim 2.3 \times 10^4$ ）を用いた。

2.2 射出成形

射出成形に用いた金型を図2.1に示す。これは、ダンベル型引張試験片の金型である。試験片の両端にサイドゲートを設けた2点ゲート構造になっているため、試験片平行部中央にウェルドラインが生成する。この試験片を「ウェルド試料」と呼ぶことにする。また、ランナ上に設けた栓（図中Pで示した）を回転させて右側のゲートを閉鎖すれば、通常の1点ゲート構造となり、ウェルドラインの無いダンベル型引張試験片が成形される。これを「ノンウェルド試料」と呼ぶことにする。

成形機はインラインスクリュ式射出成形機、日本製鋼所(株)製N100BII、である。これは、型締め力100トン、最大射出圧力は170MPaである。この成形機にはクローズドループのプロセス制御機（ニレコ(株)製、モバック410）が設置されており、充てん速度および保圧を各々4段階に制御可能である。

各成形材料に関する主な射出成形条件を表2.1に示す。

本研究では、射出圧力とは、充てん圧力 P_f と保圧（2次圧） P_h を意味する。ウェルド試料の成形に関しては、熔融樹脂の流動先端が金型中で合流する時点で P_f 、 P_h の切り替えを行う「2段階圧力制御」を行った。制御パターンを図2.2に示す。(1) $P_f = P_h$ 、(2) $P_f < P_h$ 、(3) $P_f > P_h$ の3

表2.1(a) 射出成形条件 (I)

| ポリスチレン | | |
|-------------|--------------|------------|
| | ノンウェ ルド試料 | ウェルド試料 |
| シリンダ温度 (°C) | 180 | 180 |
| 金型温度 (°C) | 40 | 40 |
| 充てん圧力 (MPa) | 59.8 | 41.9, 59.8 |
| 保圧 (MPa) | 59.8 | 0, 131.5 |
| 射出時間 (s) | 12.0 | 12.0 |
| 冷却時間 (s) | 20.0 | 20.0 |

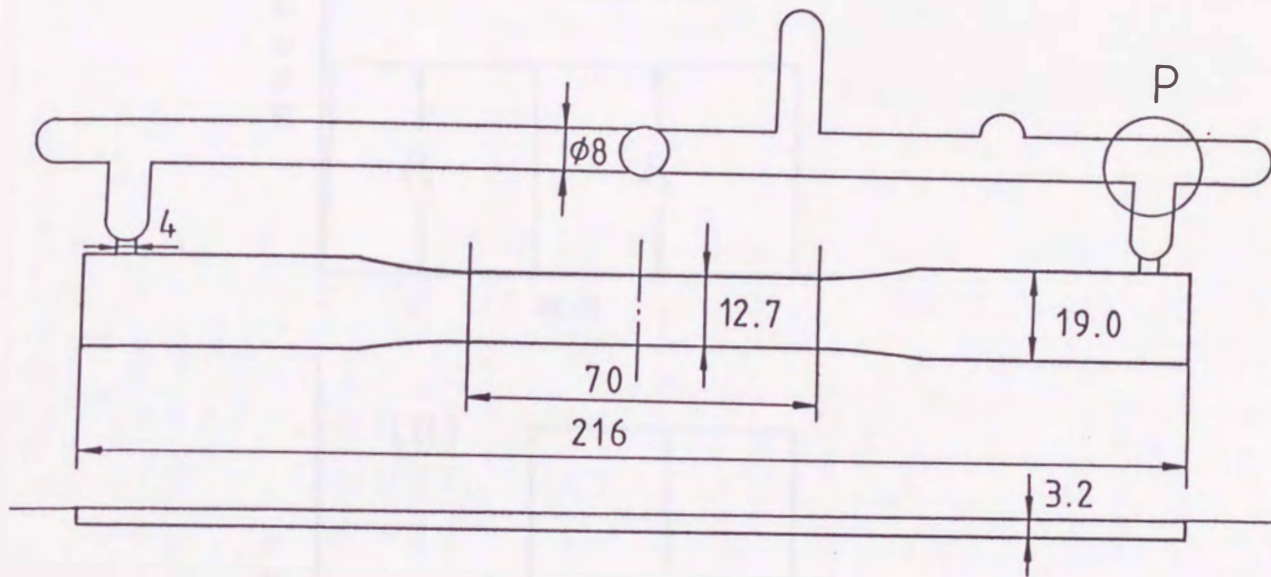


図 2.1 射出成形金型のキャビティ形状
(P は流路閉鎖用回転栓)

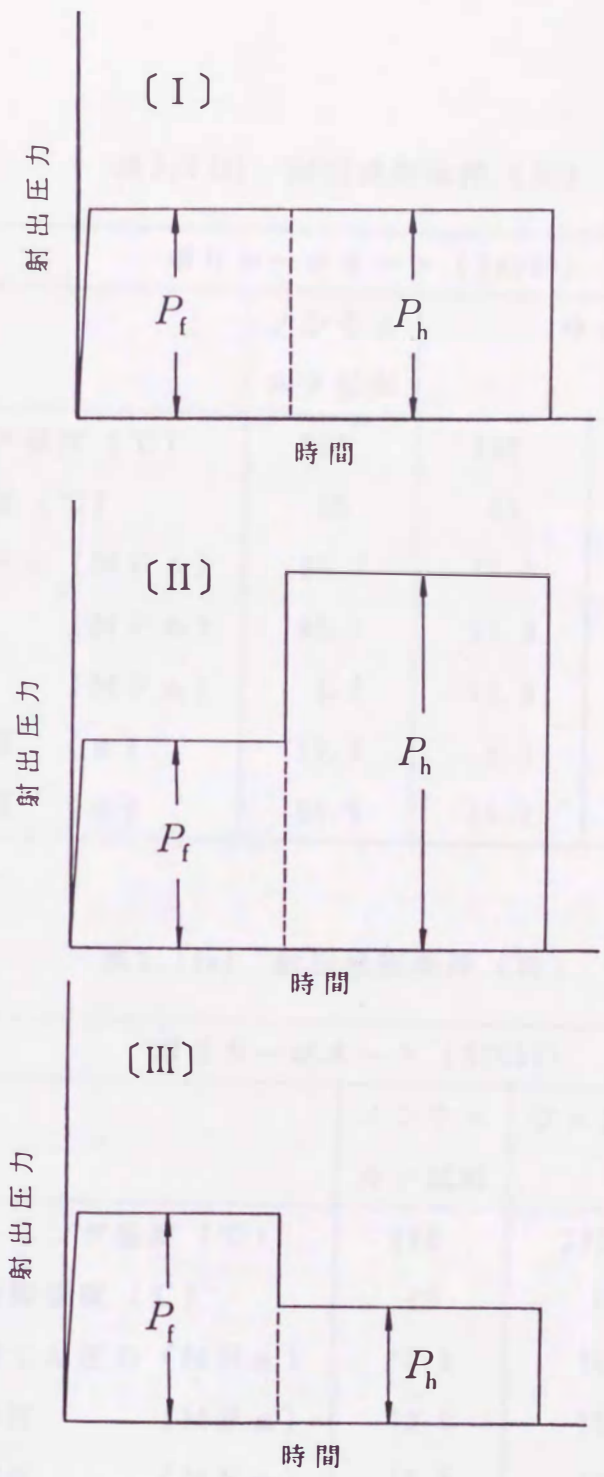


図2.2 射出圧力条件の設定パターン
 (a) $P_f = P_h$ (b) $P_f < P_h$ (c) $P_f > P_h$
 (P_f : 充てん圧力、 P_h : 保圧)

表 2.1 (b) 射出成形条件 (II)

| ポリカーボネート (S3000) | | | | |
|------------------|--------------|--------|------|------|
| | ノンウェ ルド試料 | ウェルド試料 | | |
| シリンダ温度 (°C) | 280 | 280 | 290 | 320 |
| 金型温度 (°C) | 80 | 80 | 80 | 80 |
| 充てん圧力 (MPa) | 95.7 | 77.8 | 75.0 | 47.9 |
| 保圧 (MPa) | 95.7 | 77.8 | 75.0 | 47.9 |
| 背圧 (MPa) | 3.6 | 10.8 | 10.8 | 10.8 |
| 射出時間 (s) | 10.0 | 5.0 | 7.0 | 5.0 |
| 冷却時間 (s) | 20.0 | 15.0 | 20.0 | 25.0 |

表 2.1 (c) 射出成形条件 (III)

| ポリカーボネート (S2000) | | |
|------------------|--------------|----------|
| | ノンウェ ルド試料 | ウェルド試料 |
| シリンダ温度 (°C) | 290 | 290, 300 |
| 金型温度 (°C) | 80 | 80 |
| 充てん圧力 (MPa) | 75.0 | 75.0 |
| 保圧 (MPa) | 75.0 | 75.0 |
| 背圧 (MPa) | 10.8 | 10.8 |
| 射出時間 (s) | 6.0 | 6.0 |
| 冷却時間 (s) | 20.0 | 20.0 |

つの制御パターンで成形を行った。ノンウェルド試料に関しては、 $P_f = P_h$ のパターンで成形を行った。充てん速度は任意の P_f 条件下で最大速度となるように設定した。したがって、射出開始時に最大射出速度となり、流動にともなう圧力損失や冷却固化現象により次第に速度低下する。

2.3 引張試験およびSEM観察

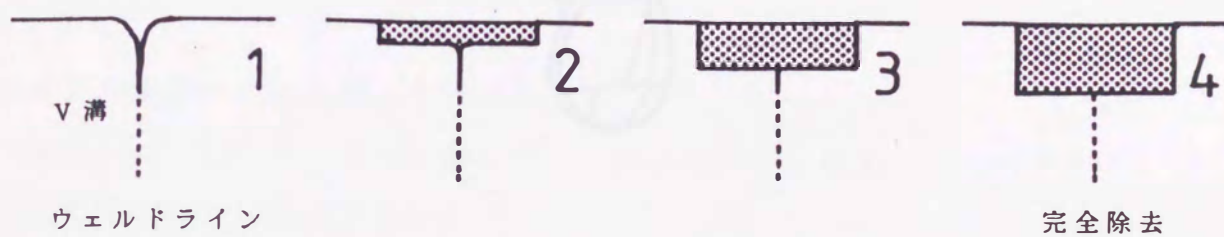
射出成形品の物性評価は、引張試験によって行った。試験条件は、JISK7113に準じて行い、引張試験速度 1mm/min、つかみ具間距離 115mm、雰囲気温度 23°C、50%RHとした。試験機はインストロン万能試験機1125型である。

破断面を走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いて観察した。用いたSEMは日本電子(株)製T300である。

2.4 切削法によるV溝深さの定量化

V溝深さを定量化する方法として、ウェルドライン表面を切削、除去し、強度を測定する方法を考えた。その原理を図2.3に示す。ウェルドライン表面に図中1に示すようにV溝が存在し、これによって強度低下が生じると考えられ、このV溝を機械的に完全に切削、除去すれば(図中4)、成形品強度は向上すると考えられる。切削量がV溝深さよりも少ない場合(図中2、3)は、V溝が残存するため強度低下が生じる。したがって、強度低下の無くなるときの最小切削量がV溝深さと定義できる。以上のような原理によるウェルドライン表面に存在するV溝深さの測定方法を本論では「切削法」と呼ぶことにする。

フライス盤を用いたウェルドライン表面の切削法を図2.4に示す。切削刃として先端半径10mmのボールエンドミルを用いた。これによって切削溝角部への応力集中を回避した。金属に比べて剛性の低いプラスチックの切削を精度良く行うために、また、後述する破壊力学試験の場合と対応づけるために、試験片両端に存在するウェルドラインについて測定を行った。試験片の全周に存在するV溝のうち試験片の幅方向に存在するウェルドラインを上下面ともに除去した後に(切削深さ約0.5mm)、厚さ方向に存在する試験片両端のV溝を段階的に



ウェルドラインは段階的に除去される
➔

図2.3 切削法によるウェルドライン深さの定量化の方法
 1では表面のV溝が残存しているが、2、3、4と段階的に切削するにしたがって完全に除去される。

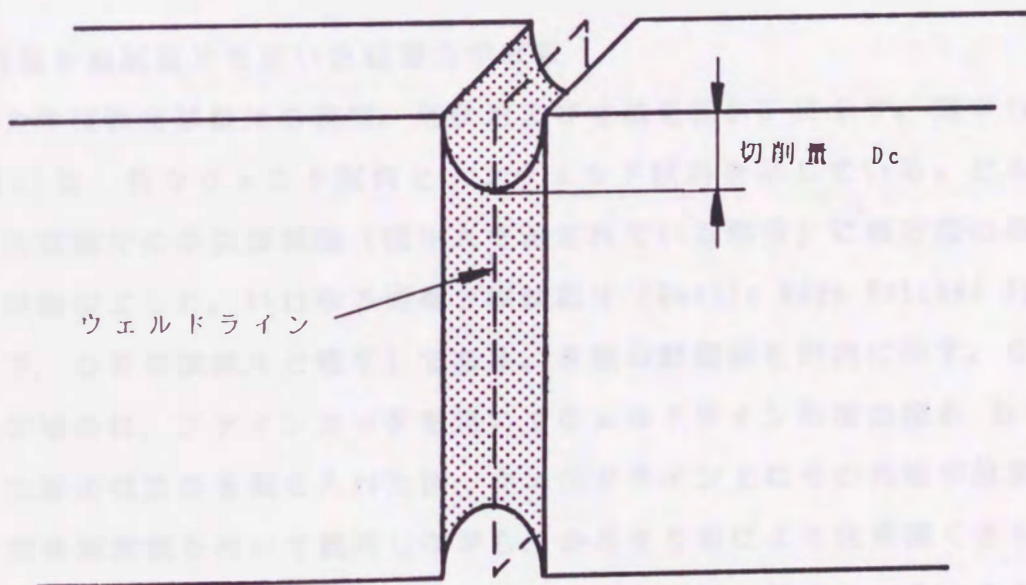
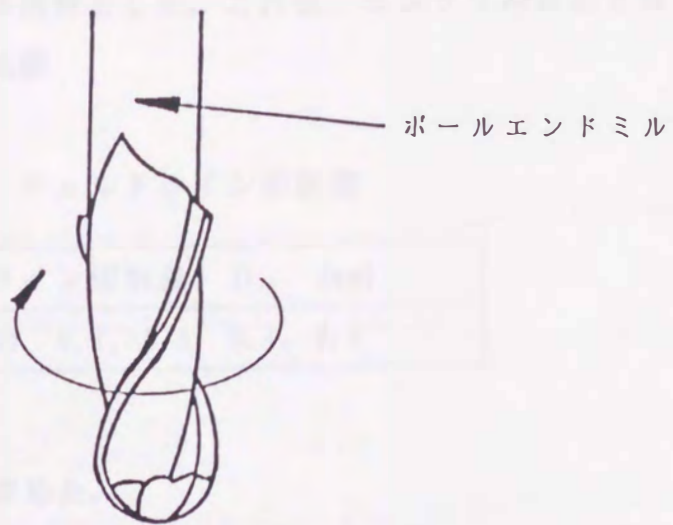


図 2.4 ウェルドライン表面の切削除去方法

切削、除去し、V溝の深さを評価した。ウェルドの切削量、 D は、表2.2に示すように0~0.7mmの範囲で6段階とした。これは、エンドミルの送り量であり、実際の切削量は切削した試験

表2.2 ウェルドライン切削量

| ウェルドライン切削量、 D 。(mm) |
|------------------------|
| 0、0.05、0.1、0.2、0.4、0.6 |

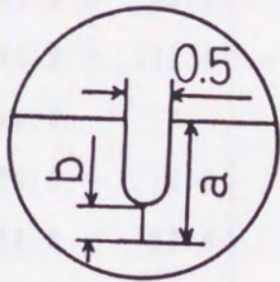
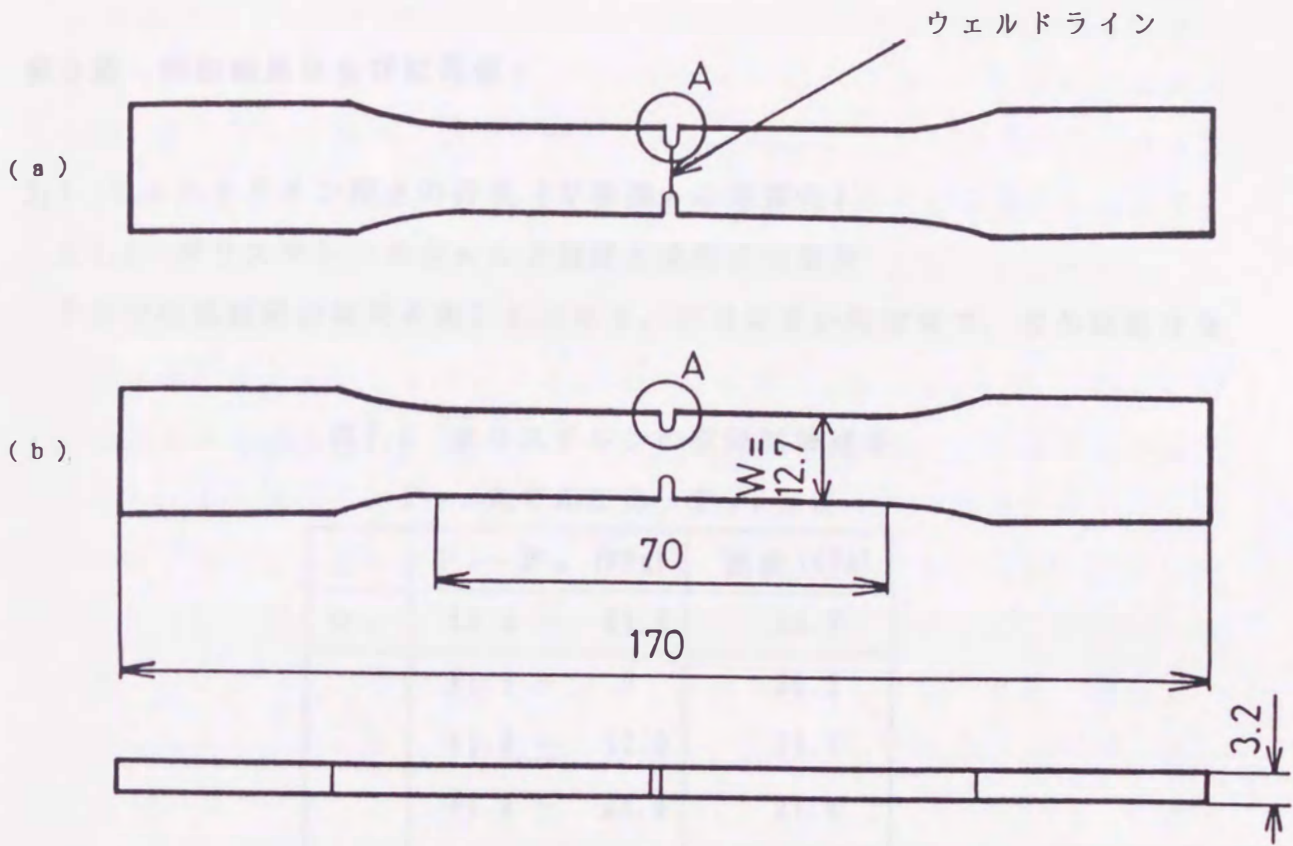
片の切削溝部の幅を実測して求めた。

また、ノンウェルド試料に関しても、同様に成形品表面のウェルドラインと同位置を切削し、試験片とした。

2.5 両端き裂試験片を用いた破壊力学試験

破壊力学試験用試験片の種類、形状および寸法を図2.5に示す。図中(a)および(b)は、各々ウェルド試料とノンウェルド試料を示している。どちらもダンベル試験片の中央部両端(図中Aで示されている部分)に幅方向の鋭利なき裂を切削加工した。いわゆる両端き裂試験片(Double Edge Notched Specimen;以下、DEN試験片と略す)である。き裂の詳細図を円内に示す。ウェルド試料の場合は、ファインカッタを用いてウェルドライン両端の深さ $b=1\text{mm}$ までに比較的幅広のき裂を入れた後、ウェルドライン上にその先端が位置するように実体顕微鏡を用いて観察しながら、かみそり刃により注意深くさらに鋭利なき裂を導入した(深さ a)。ノンウェルド試料の場合は、ウェルド試験片の場合とほぼ同位置にファインカッタでき裂を入れた後、その先端にかみそり刃により所定の深さ a までさらに鋭いき裂を入れた。導入したき裂の深さは、PSの場合で $a=0.7\sim 3.2\text{mm}$ 、PCの場合で $a=1.3\sim 2.9\text{mm}$ の範囲とした。

これらDEN試験片について、島津製作所(株)製オートグラフIS-10T形を用いて引張試験を行った。引張試験速度は、PSの場合で $1.0\text{mm}/\text{min}$ 、PCの場合



A の詳細図

図 2.5 破壊力学試験用試験片（両端き裂試験片）

(a) ウェルド試料 , (b) ノンウェルド試料

で 2.5mm/minとした。PCの場合、引張試験速度1.0mm/min ではぜい性破壊しなかったため、2.5mm/minとした。試験温度は $20 \pm 2^\circ\text{C}$ 、湿度は $60 \pm 5\% \text{RH}$ であった。

第3節 実験結果ならびに考察

3.1 ウェルドライン深さの評価（V溝深さの定量化）

3.1.1 ポリスチレンのウェルド強度と成形圧力条件

PSの引張試験の結果を表2.3に示す。PSはぜい性材料で、どの試験片も

表2.3 ポリスチレンの引張試験結果

P_f : 充てん圧力 P_h : 保圧

| | $P_f - P_h$ (MPa) | 強度 (MPa) |
|------------|-------------------|----------|
| σ_n | 59.8 - 59.8 | 53.7 |
| | 41.9 - 0 | 20.3 |
| | 41.9 - 12.0 | 21.1 |
| | 41.9 - 23.9 | 21.4 |
| | 41.9 - 41.9 | 22.8 |
| | 41.9 - 59.8 | 24.6 |
| | 41.9 - 89.7 | 24.3 |
| | 41.9 - 131.5 | 25.5 |
| σ_w | 59.8 - 0 | 25.1 |
| | 59.8 - 12.0 | 23.9 |
| | 59.8 - 23.9 | 23.5 |
| | 59.8 - 41.9 | 24.7 |
| | 59.8 - 59.8 | 25.8 |
| | 59.8 - 89.7 | 25.5 |

弾性限界内で破断した。図2.6に射出圧力条件とウェルド試料の引張強度（以後、ウェルド強度 σ_w とする）の関係を示す。 $P_f = 59.8 \text{ MPa}$ で成形した場合のウェルド強度は P_h に依存せず約 25 MPa で一定であった。一方、 $P_f = 41.9 \text{ MPa}$ の場合のウェルド強度は P_h によって変化した。 $P_h = 0 \text{ MPa}$ として後充てんを行わない時が最も強度が低く約 20 MPa で、 P_h の増加にともない直線的に増加した。 $P_h = 60 \text{ MPa}$ 以上では、ウェルド強度は $P_f = 59.8 \text{ MPa}$ の場合と同じであった。充てん圧力が低い場合、流動先端の樹脂温度が流動中に低下するためにウェルドラインにおける樹脂の融着力が低下するものと思われる。しかし、充てん圧力が低くても、保圧（2次圧力）を高くすることによってウェルド強度を改善できることが分かる。ノンウェルド強度（ $\sigma_n = 53.7 \text{ MPa}$ ）に対する強度保持率は最も高い場合で 0.45 となり、ウェルドラインにより材料強度が約 2 分の 1 に減少することが分かった。ウェルドラインの解消方法のひとつとしては、充てん速度を高めること、すなわち充てん圧力を高くすることが効果的であるといわれている¹⁰⁾。これは、樹脂温度が低下する前に樹脂を合流させることによって樹脂の融着を促進するためと考えられる。また、合流部の樹脂を外部から加熱する方法も有効であり、これについては第6章で述べる。

3.1.2 ポリスチレンのウェルド試料の破断面観察

破断面の形態からPS射出成形品の破壊挙動を検討した。図2.7はPSウェルド試料の破断面のSEM写真である。破断面の様相からウェルド試料の破壊挙動が推察できる。破断面の周辺部分は上下方向で 0.05 mm 、左右で 0.5 mm 程度の幅を持った平滑なぜい性破損領域が存在している（領域I）。その内側の領域では白い波状模様が観察される粗面状態となっている（領域II）。波状模様は、周辺から試料内部へと向かって並んでおり、それらが合流する中心部でその規則性が乱れている（領域III）。このような破断面の形態から以下のような破壊過程が推察される。荷重初期段階に表面付近（領域I）に初期き裂が発生する。初期き裂は領域IIを経由してさらに内層へと不安定伝播する。それらのき裂は領域IIIにおいて合流し最終的な製品破断となる（図2.8参照）。V溝は

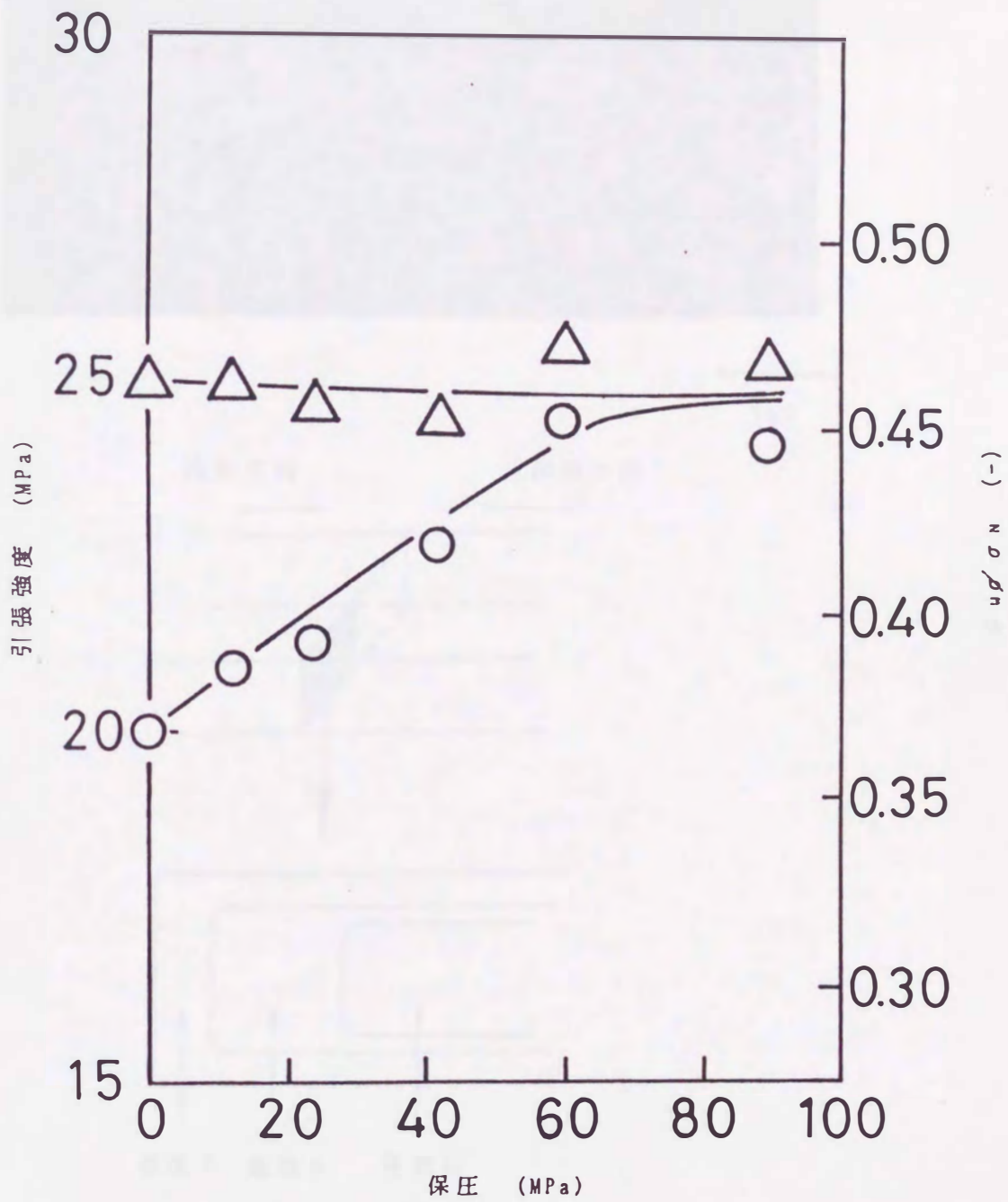
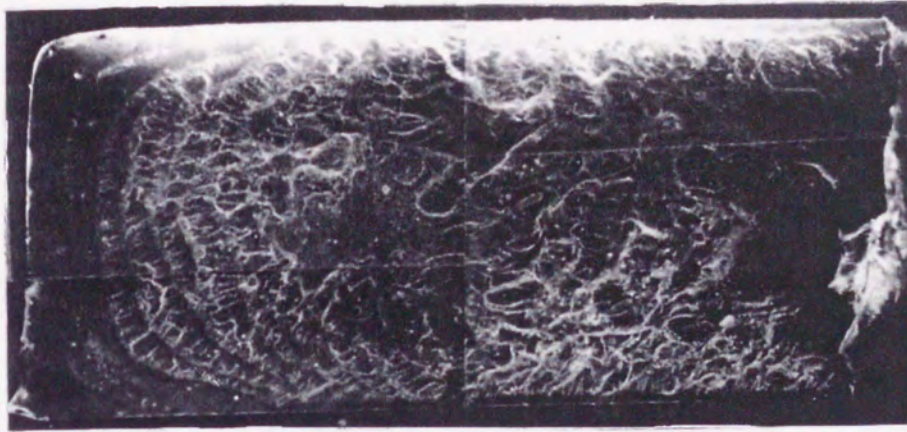


図2.6 ウェルド強度に及ぼす成形条件の影響 (ポリスチレン)
 ○ : $P_r = 41.9 \text{ MPa}$, △ : $P_r = 59.8 \text{ MPa}$



1 mm

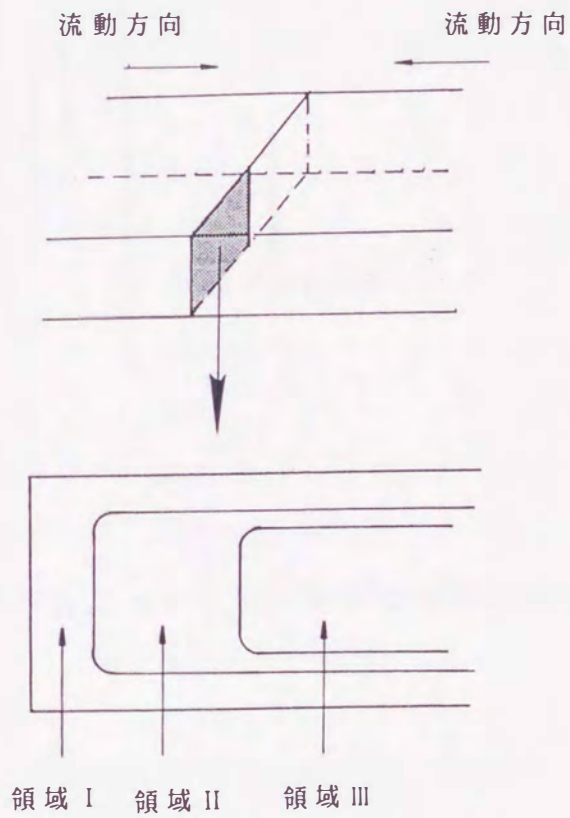


図 2.7 ウェルド試料の破断面 SEM 写真 (ポリスチレン)

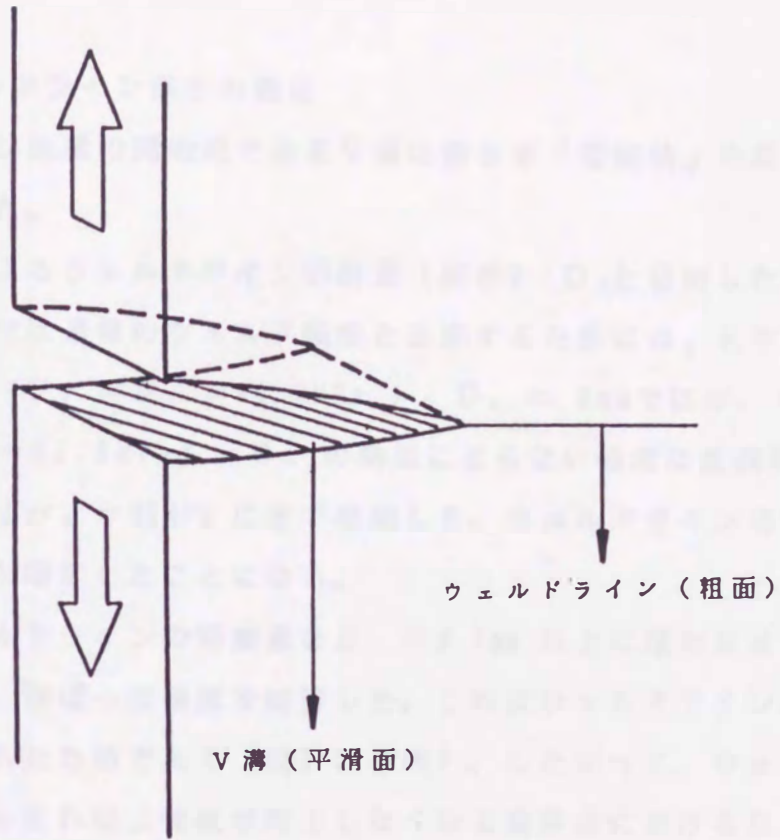


図2.8 ウェルドラインにおけるき裂伝播のモデル図

写真では識別できないが、以上の破壊様相からウェルドライン破壊は表面に存在するV溝を開始点としていることは明かである。

3.1.3 ウェルドライン深さの測定

ウェルドライン破壊の開始点であるV溝の深さを「切削法」を用いて定量化することを試みた。

エンドミルによるウェルドライン切削量（深さ） D_c と切削したウェルド試料の強度（ここでは通常のウェルド強度と区別するために σ_c とする）の関係を図2.9に示す（ $P_f = P_h = 41.9\text{MPa}$ ）。 $D_c = 0\text{mm}$ では $\sigma_c = 23\text{MPa}$ であったが（ $\sigma_w = 22.8\text{MPa}$ ）、 D_c の増加にともない強度は直線的に増加し、 $D_c = 0.2\text{mm}$ では $\sigma_c = 35\text{MPa}$ にまで増加した。ウェルドラインの切削、除去により σ_c は50%増加したことになる。

しかし、ウェルドラインの切削量を $D_c = 0.2\text{mm}$ 以上に増加させても強度は増加しなくなり、ほぼ一定強度を維持した。これはウェルドライン表面のV溝が完全に除去されたためである（図2.3参照）。したがって、ウェルドライン表面を切削してもそれ以上強度が向上しなくなる臨界点における D_c をV溝深さ、すなわち「ウェルドライン深さ（ D_w ）」と定義することにした。

切削法では試験片形状が変化するため、ウェルド強度も変化する可能性がある。そこで、ノンウェルド試料にも同様に切削法を適用した。ウェルド試料と同様に $D_c = 0.2\text{mm}$ まで切削してもノンウェルド強度の変化はわずか10%以内であった。したがって、ウェルド試料に切削法を適用した場合の50%の強度向上はV溝除去の効果であることが分かった。

図2.10は、 P_h を0~131.5MPaの範囲で変化させた場合（ $P_f = 59.8\text{MPa}$ ）の切削法適用の結果である。いずれの成形条件でも D_c に対する強度変化は図2.9と同様の臨界点を持っており、この場合、いずれも $D_w = 0.2\text{mm}$ 程度であることが分かった。

ウェルドライン深さ D_w と射出圧力の関係を図2.11に示す。充てん圧力 $P_h = 59.8\text{MPa}$ の場合には、保圧によらず $D_w = 0.2\text{mm}$ と一定になった。 $P_h =$

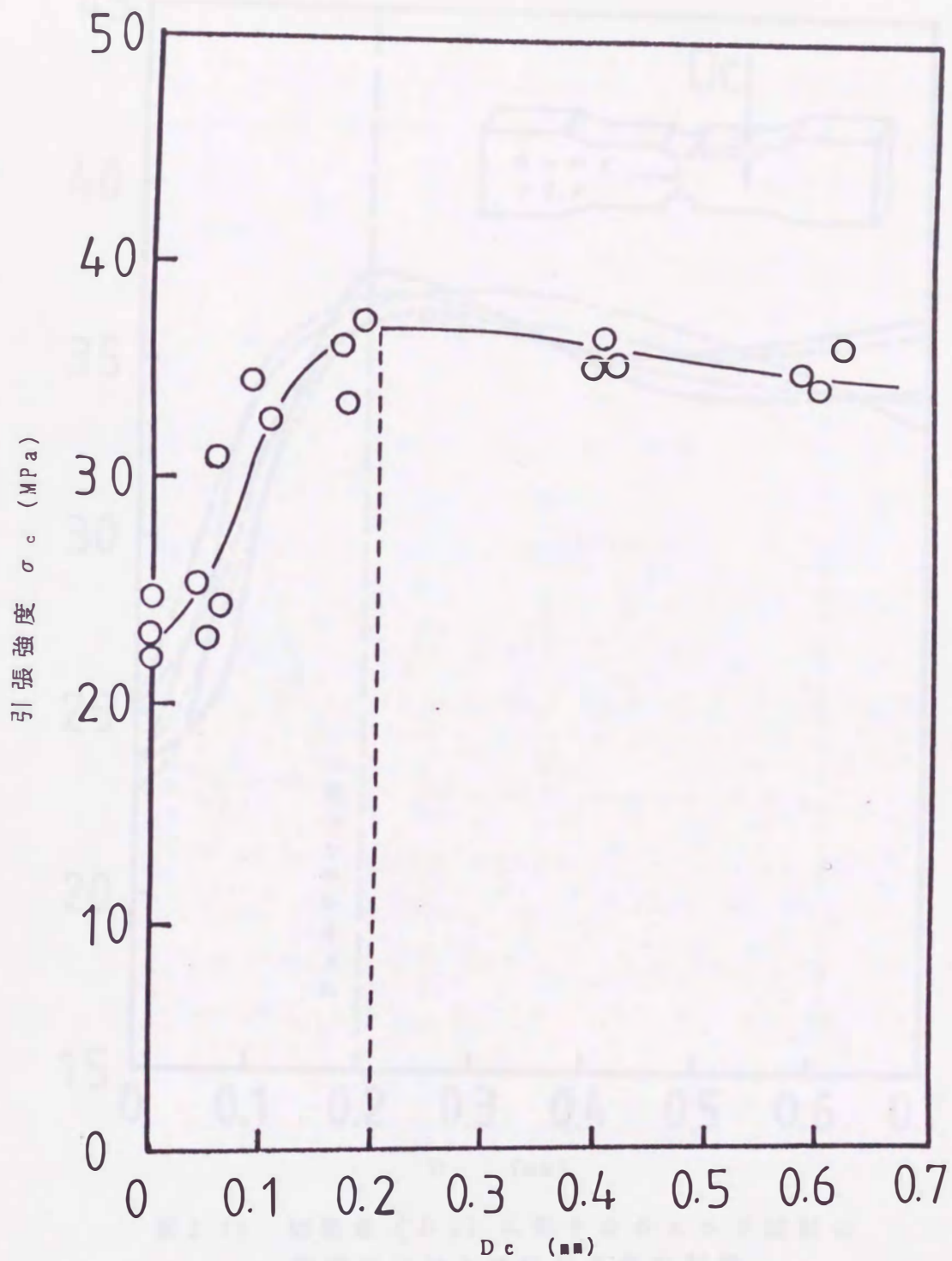


図 2.9 ウェルドライン切削量 (D_c) に対する
ウェルド試料の強度変化 (ポリスチレン)

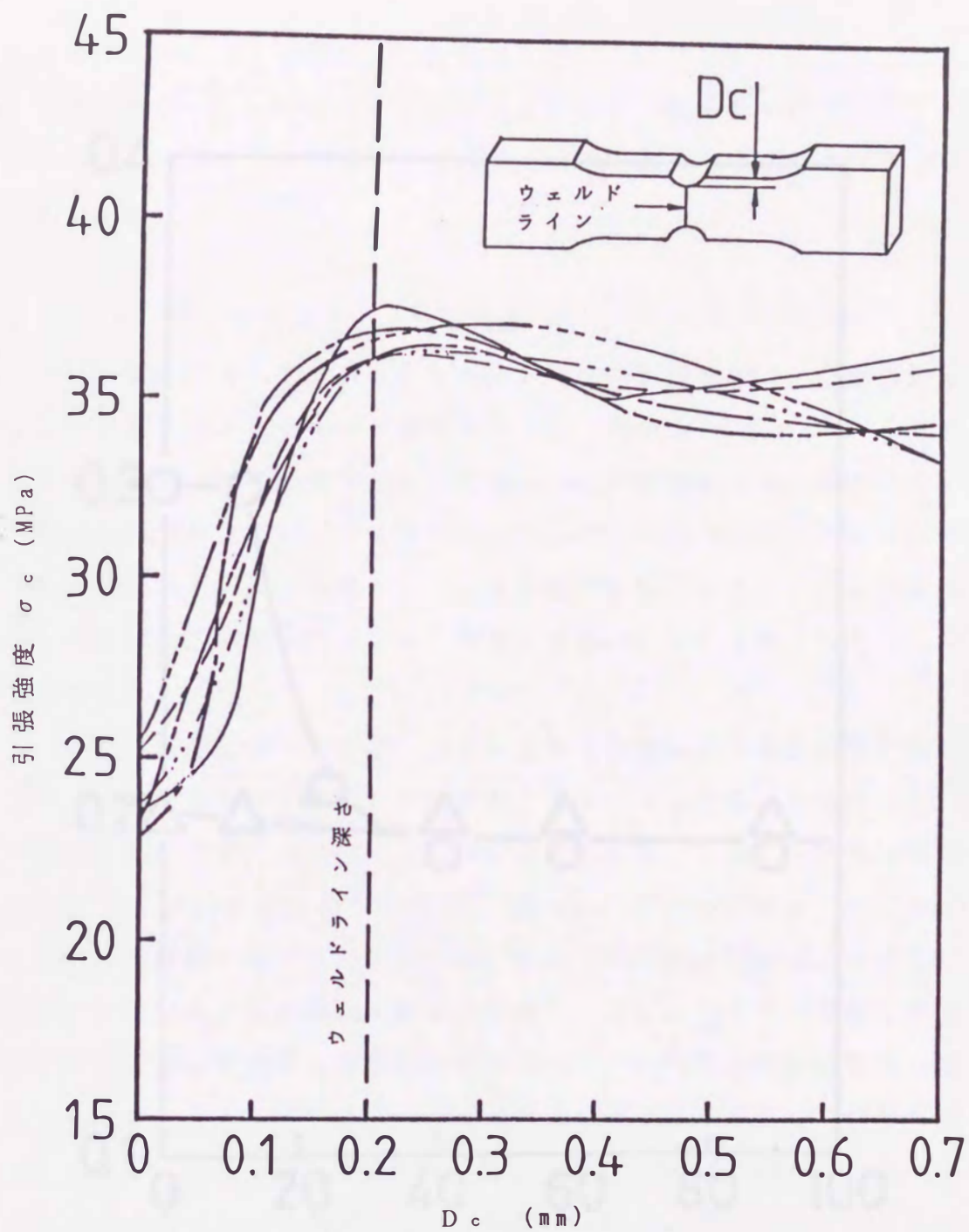


図 2.10 切削量 (D_c) に対するウェルド試料の強度変化および成形条件の影響

Pf=41.9MPa

Ph: ——— : 0MPa , - - - - : 12.0MPa , - · - · - : 23.9MPa ,
 - · · · - : 41.9MPa , - · · · - : 59.8MPa , - · · · - : 89.7MPa

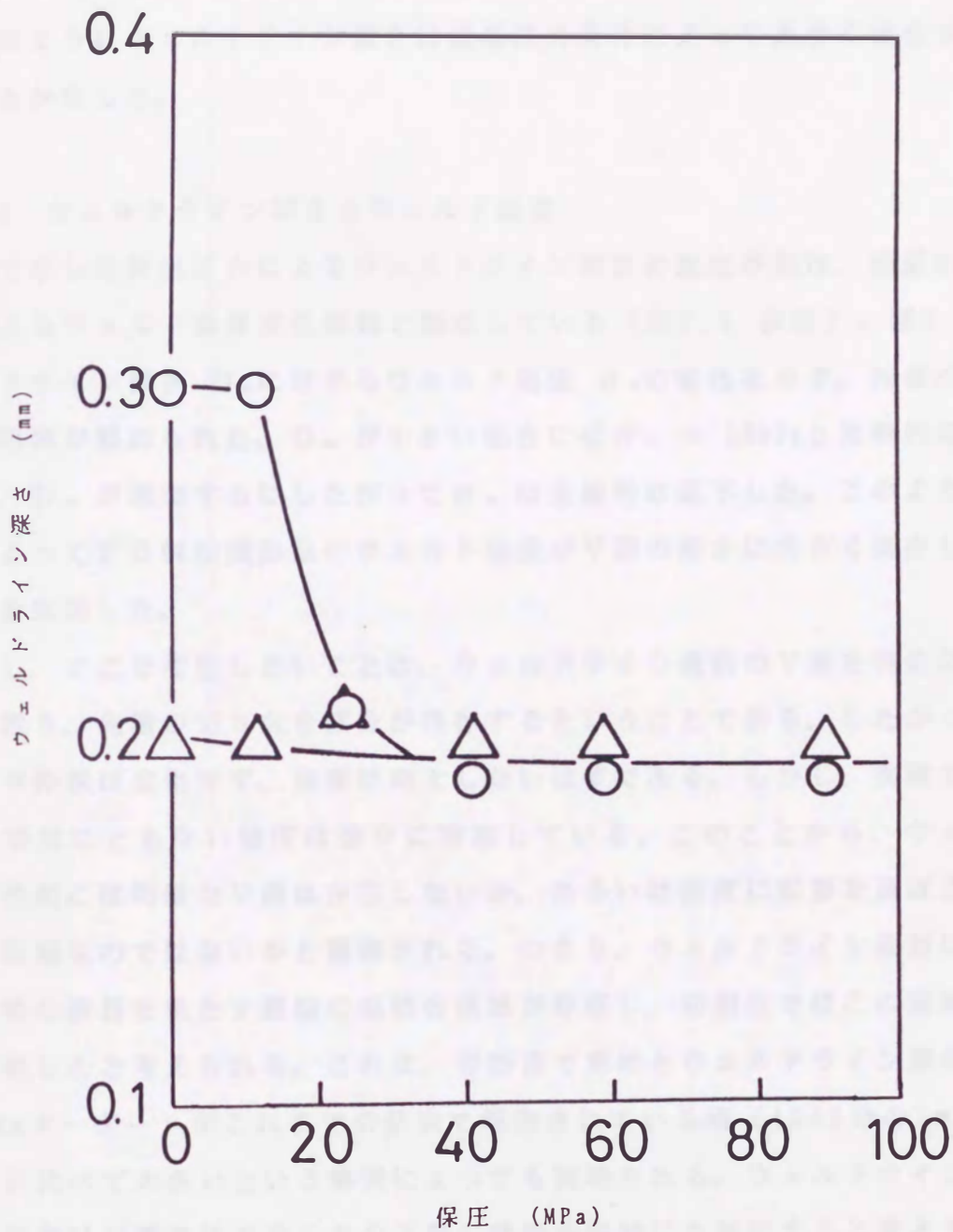


図2.11 保圧とウェルドライン深さの関係 (ポリスチレン)

充てん圧力、○: 41.9MPa , △: 59.8MPa

41.9MPa の場合には、 D_w は保圧 P_h に依存した。 $P_h = 15\text{MPa}$ 以下では $D_w = 0.3\text{mm}$ であったが、 $P_h = 15\text{MPa}$ 以上では $D_w = 0.2\text{mm}$ と急激に小さくなった。このようにウェルドライン深さは成形圧力条件によって大きく変化することを明らかにした。

3.1.4 ウェルドライン深さとウェルド強度

前項で示した射出圧力によるウェルドライン深さの変化挙動は、前述の射出圧力によるウェルド強度変化挙動と類似している（図2.5 参照）。図2.12はウェルドライン深さ D_w に対するウェルド強度 σ_w の変化を示す。両者の間には強い相関が認められた。 D_w が小さい場合には $\sigma_w = 25\text{MPa}$ と比較的高い値を示し、 D_w が増加するにしたがって σ_w は直線的に低下した。このように切削法によってPS射出成形品のウェルド強度がV溝の深さに大きく依存していることを解明した。

ただし、ここで注意したいことは、ウェルドライン表面のV溝を完全に除去しない限り、先端の切り欠き部分が残存するということである。したがって、応力集中係数は変化せず、強度は向上しないはずである。しかし、実験では切削量の増加にともない強度は徐々に増加している。このことから、ウェルドライン表面には明確なV溝は存在しないか、あるいは強度に影響を及ぼさないくらい微細なのではないかと推察される。つまり、ウェルドライン表面にはV溝と同様の役目を果たす樹脂の低結合領域が存在し、切削法ではこの領域の深さを計測したと考えられる。これは、切削法で求めたウェルドライン深さ（10分の1mmオーダー）がこれまでの研究で報告されている値（1000分の1mmオーダー）に比べて大きいという事実によっても証明される。ウェルドラインの切り欠き効果はV溝だけでなくその下層の低結合領域にも起因すると考えられる。

3.1.5 ポリカーボネートのウェルドライン深さとウェルド強度

これまでは、PSに関してウェルドライン深さの測定方法と強度に及ぼす影響を検討した。次に、ポリカーボネート（PC）について検討した。

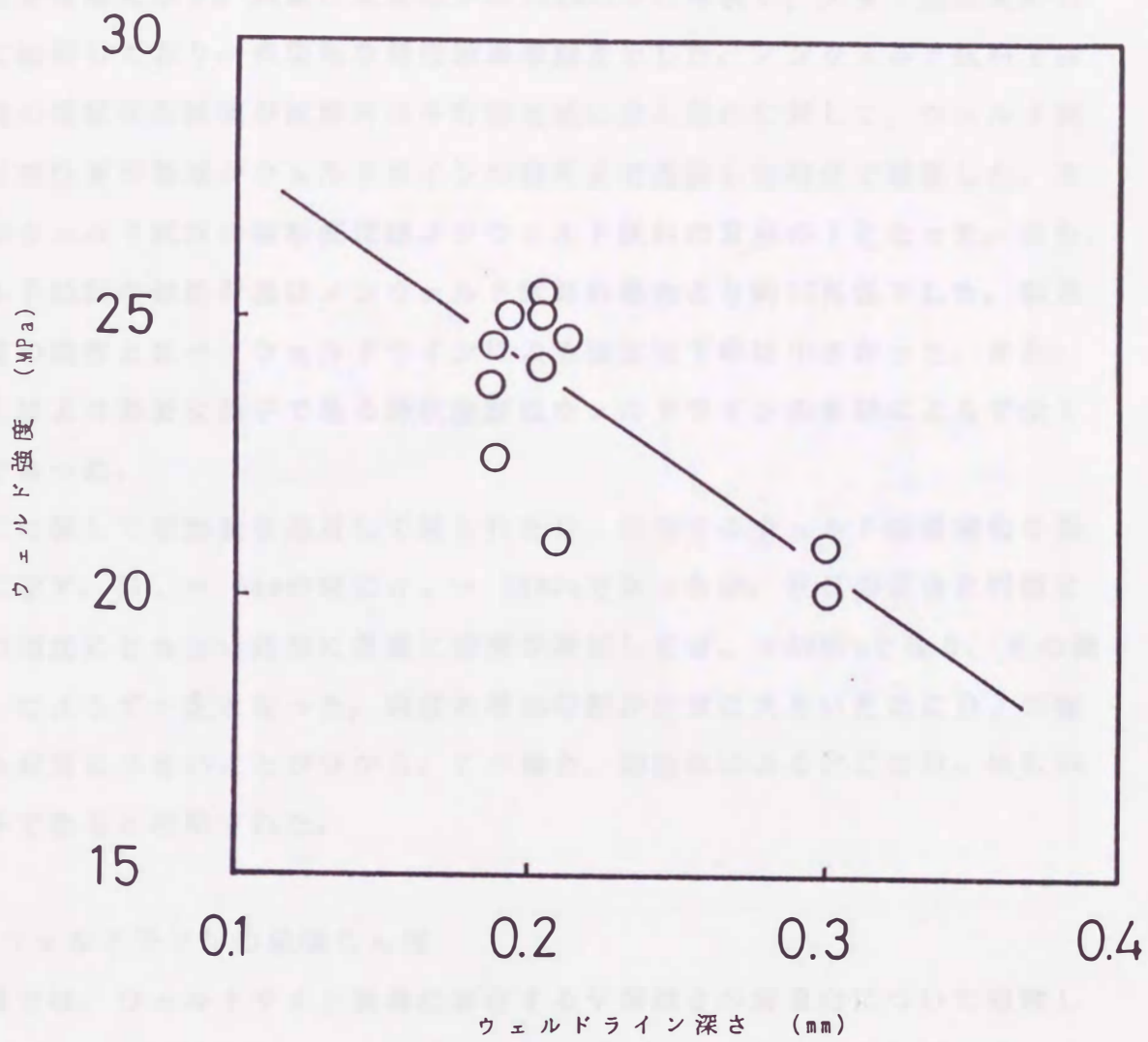


図2.12 ウェルドライン深さとウェルド強度の関係 (ポリスチレン)

図2.13、2.14は、PCに関してノンウェルド試料およびウェルド試料の荷重-変位曲線を示す。試験片は変位が約10mmの時に降伏し、大きく塑性変形した後破断しており、典型的な延性破壊挙動を示した。ノンウェルド試料では降伏後の塑性変形領域が試験片の平行部全域に及んだのに対して、ウェルド試料では塑性変形領域がウェルドラインの箇所まで進展した時点で破断した。そのためウェルド試料の破断変位はノンウェルド試料の2分の1となった。また、ウェルド試料の破断荷重はノンウェルド試料の場合より約30%低下した。前述のPSの場合と比べてウェルドラインによる強度低下率は小さかった。また、実用上はより重要な因子である降伏強度はウェルドラインの有無によらず全く同じであった。

PCに関して切削法を適用して得られた D_w に対するウェルド強度変化を図2.15に示す。 $D_w = 0\text{mm}$ の時に $\sigma_w = 50\text{MPa}$ であったが、PSの場合と同様に D_w の増加にともない非常に急激に強度が増加して $\sigma_w = 60\text{MPa}$ となり、その後は D_w によらず一定となった。強度の増加勾配が非常に大きいため D_w の臨界点も非常に小さいことが分かる。この場合、切削法によるPCの D_w は 0.05mm 以下であると判断された。

3.2 ウェルドラインの破壊じん性

前項では、ウェルドライン表面に存在するV溝深さの定量化について検討した。次に、V溝から発生する破壊に対する樹脂の抵抗力を検討すれば、ウェルドラインの切り欠き効果を解明できると思われる。そこで破壊力学試験を適用した。

破壊力学ではき裂先端の状態を一意的に表せる力学的なパラメータを取り出し、このパラメータの限界値を考察する。そのパラメータにはおもに以下の3種類が存在する。

- (i) 応力拡大係数
- (ii) J積分値
- (iii) き裂開口変位

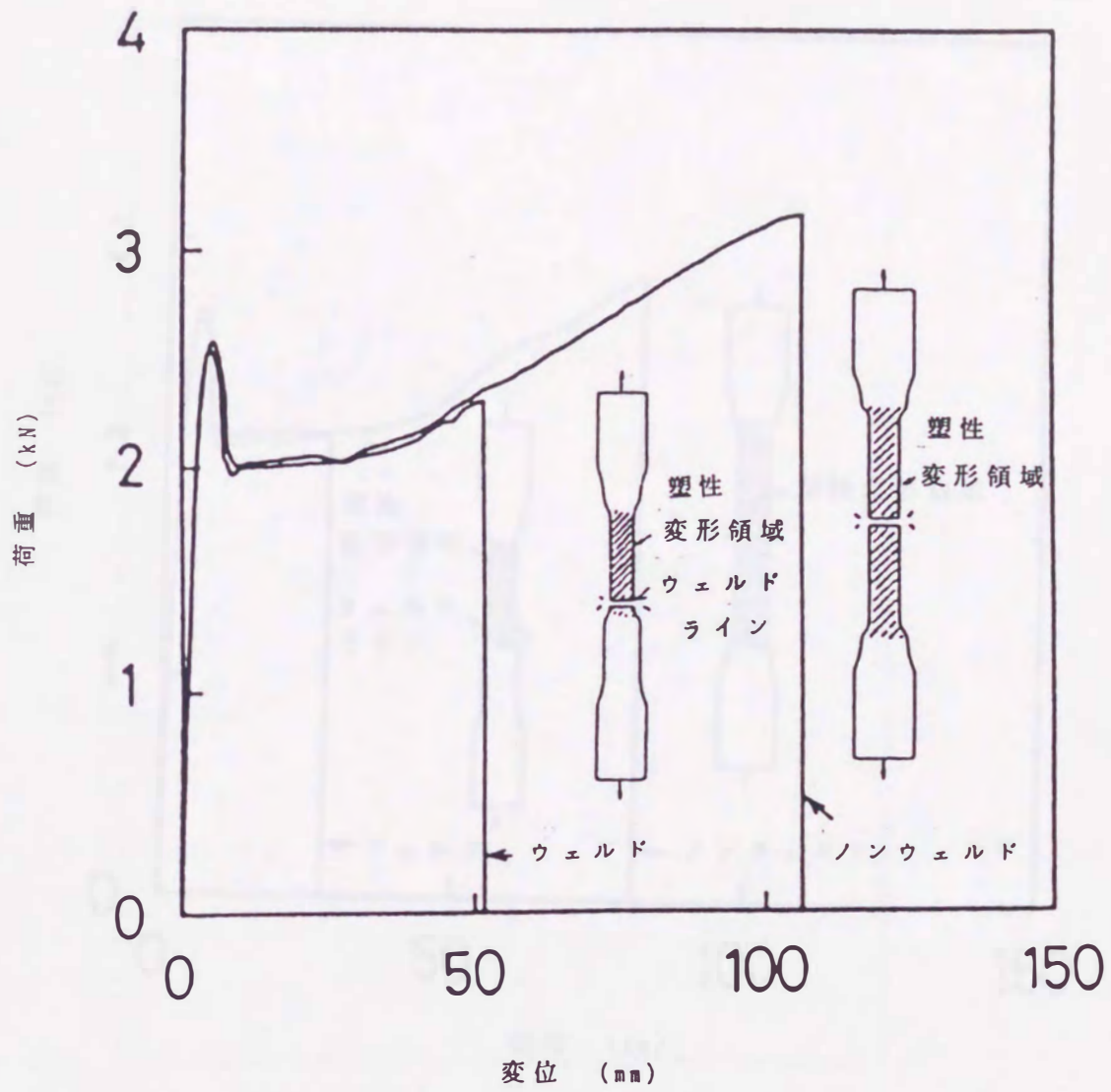


図 2.13 ポリカーボネート (S2000) の荷重 - 変位曲線

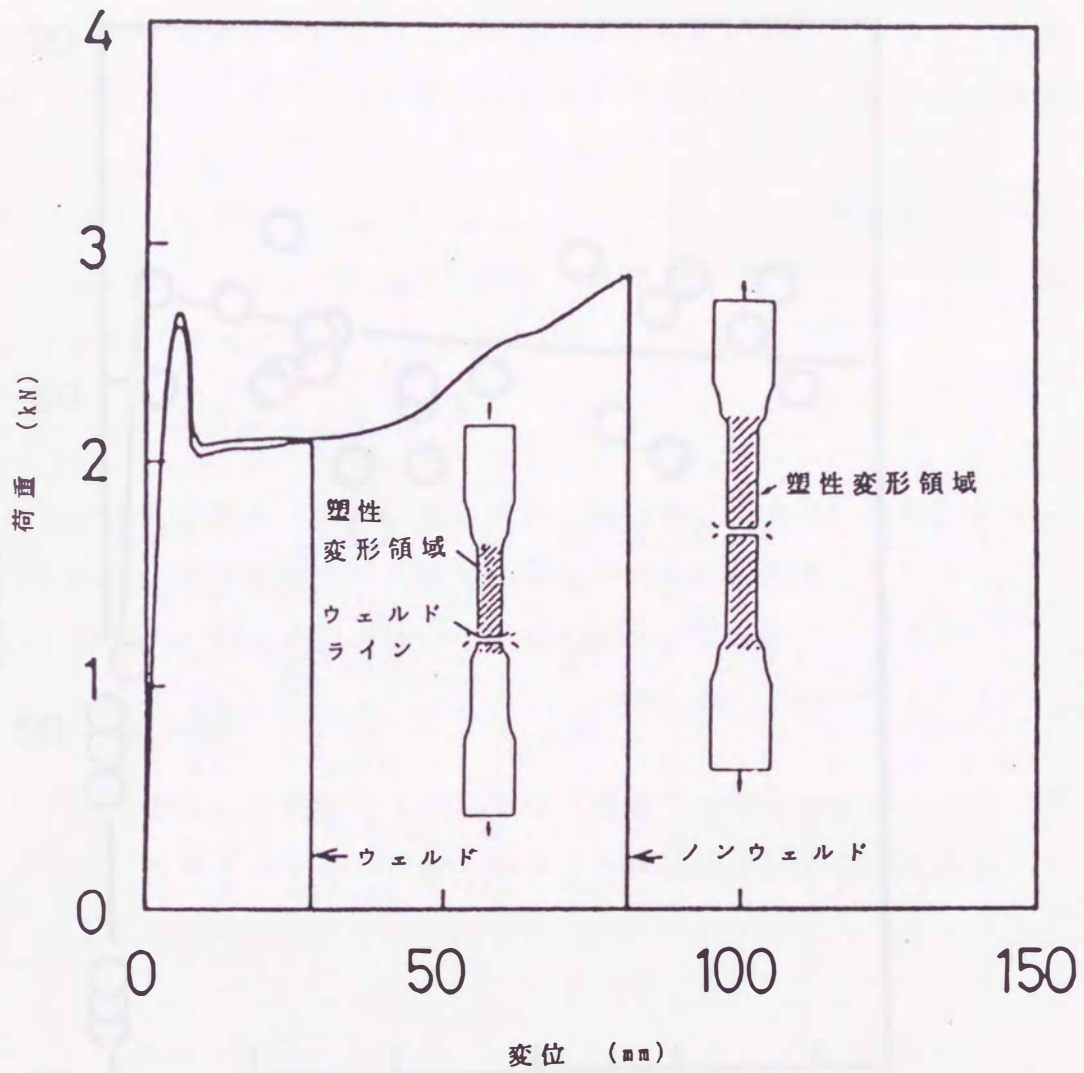


図 2.14 ポリカーボネート (S3000) の荷重 - 変位曲線

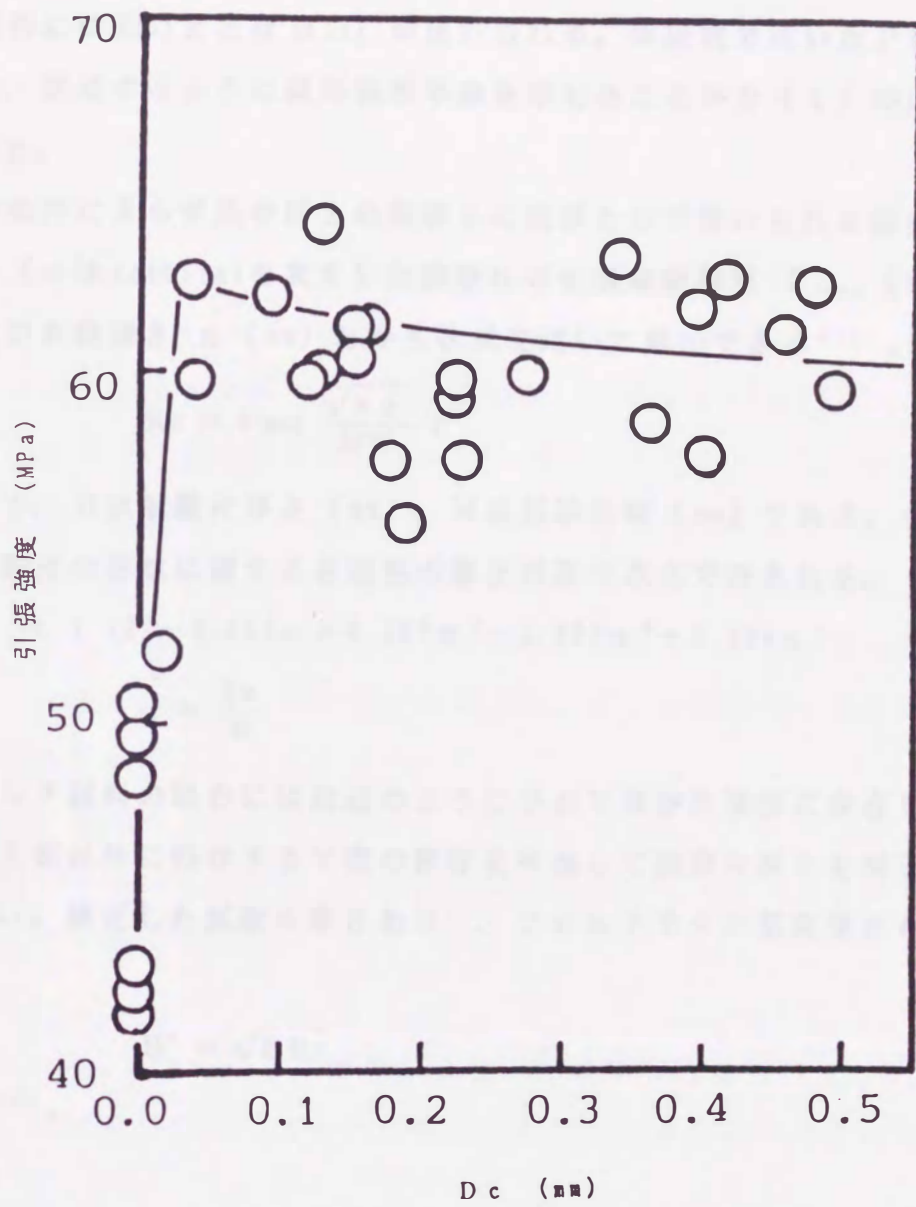


図 2.15 ウェルドライン切削量 (Dc) に対する強度変化 (ポリカーボネート)

これらのパラメータはき裂のある材料の破壊挙動に応じて選択される。材料が弾性破壊（あるいはぜい性破壊）を示す場合には (i) を、また弾塑性破壊を示す場合には (ii) または (iii) が用いられる。本研究で用いた PS と PC に関しては、後述するように線形破壊挙動を示したことから (i) の応力拡大係数を用いた。

試験条件によらず見かけ上の破壊じん性値として用いられる臨界応力拡大係数 K_c (c は critical を表す) は試験片の引張破断荷重 P_{max} (kN) と、各試験片のき裂深さ a (mm) とから次式を用いて算出できる¹¹⁾。

$$K_c = P_{max} \frac{\sqrt{\pi a}}{BW} F \quad (1)$$

ここで、 B は試験片厚さ (mm)、 W は試験片幅 (mm) である。また、 F は D E N 試験片の形状に関する有限幅の修正係数で次式で表される。

$$F = 1.122 - 0.154\alpha + 0.807\alpha^2 - 1.869\alpha^3 + 2.494\alpha^4 \quad (2)$$

$$\alpha = \frac{2a}{W}$$

ウェルド試料の場合には前述のように予め V 溝が外周部に存在しているので、き裂導入面以外に残存する V 溝の影響を考慮して試験片厚さを補正しなければならない。補正した試験片厚さを B' 、ウェルドライン部実厚さを B_n とすると、

$$B' = \sqrt{B B_n} \quad (3)$$

となる¹²⁾。

また、

$$B_n = B - 2V \quad (4)$$

ただし、 V は試験片厚さ方向の V 溝の深さであり、ここでは $V = 0.1\text{mm}$ と仮定した。

3.2.1 両端き裂試験片によるポリスチレンのじん性評価

図2.16は、PSに関してノンウェルドおよびウェルド試料のDEN試験片を引張試験して得られた荷重-変位曲線の一例である。曲線は低歪み領域から破断時まではほぼ線形性を示しており、線形破壊力学が適用可能であることが分かった。

そこで、ノンウェルド試料とウェルド試料に関して、(1)式より臨界応力拡大係数 K_c を求め、相対き裂長さ $2a/W$ との関係を図2.17に示した。ここでは、 $2a/W=0.1\sim 0.5$ の範囲におけるき裂長さに対して、 K_c は一定値を示した。ノンウェルド試料の K_c の平均値は $3.1\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ であった。DEN試験片の破壊はモードI(き裂開口モード)であることから、この K_c の平均値を材料の破壊じん性 K_{Ic} (IはモードIの意)として取り扱う。試験片の板厚が充分大きければ、平面歪み状態が満たされるので、その場合の K_{Ic} は平面歪み破壊じん性と呼ばれる。Marshallらの報告によると、PSの K_{Ic} は約 $1.0\sim 4.5\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ であった¹³⁾。本実験で求めた K_{Ic} はこの範囲内にあることから、同様に平面歪み状態であると考えられる。

ウェルド試料の K_{Ic} の平均値は $0.71\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ であった。これはノンウェルド試料の場合の約20%であり、PSの破壊じん性はウェルドラインにより顕著に低下することが分かった。

3.2.2 ウェルド試料と両端き裂試験片の破断面比較

ウェルド試料およびウェルドDEN試験片の破断面の破壊形態を比較検討した。

図2.18はウェルド試料のV溝先端の、図2.19はそのDEN試験片のき裂先端のSEM写真である。写真左側がき裂先端で、矢印がき裂伝播方向を示している。これらの写真では同様にき裂伝播方向に直角の多数のリブ模様やリップル模様が観察された。これは約 $100\mu\text{m}$ の間隔で規則的に繰り返されている。このような模様はPSの破断面にしばしば観察されるものである。き裂先端とウェルドライン先端が類似の形態であることから、射出成形品のウェルドライン表

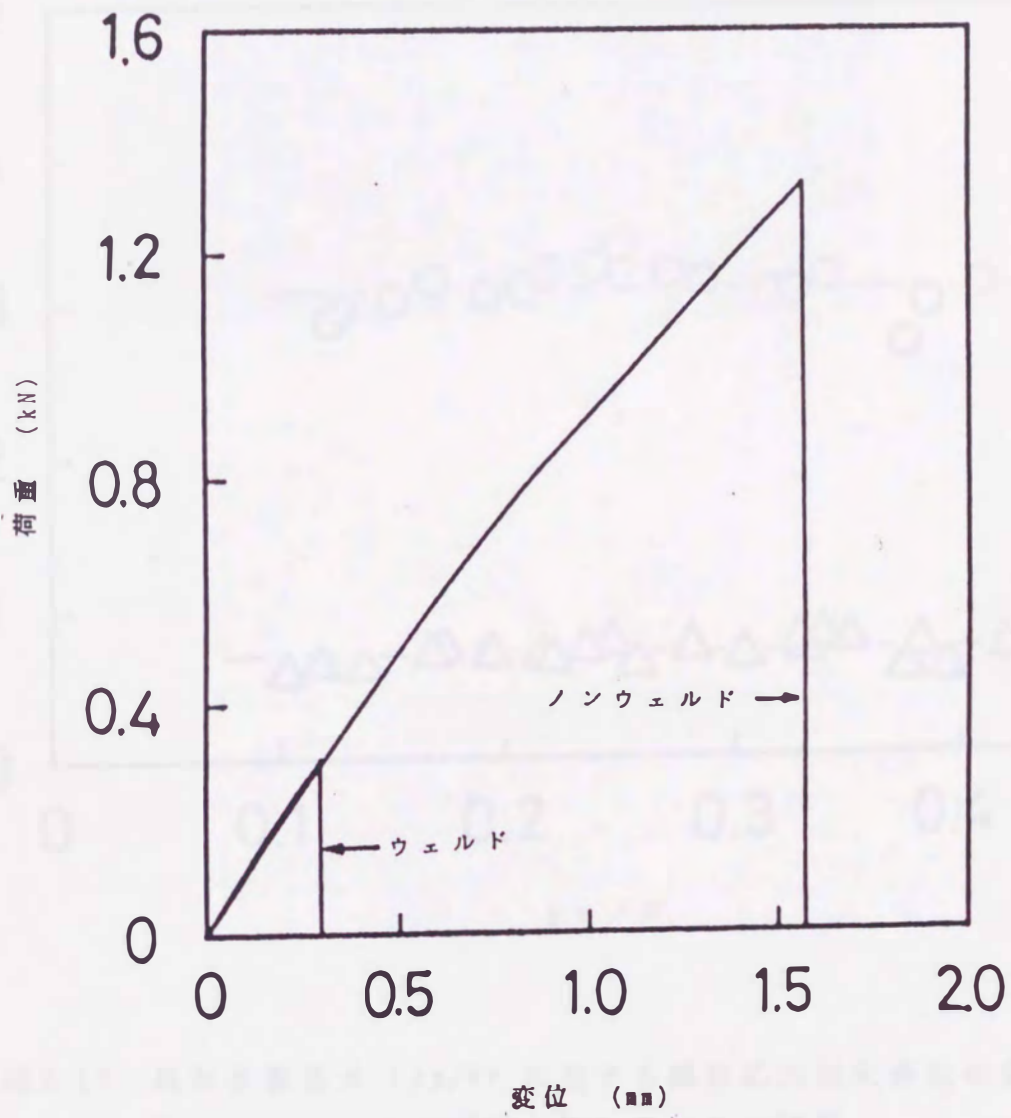


図 2.16 ポリスチレン DEN 試験片の荷重 - 変位曲線

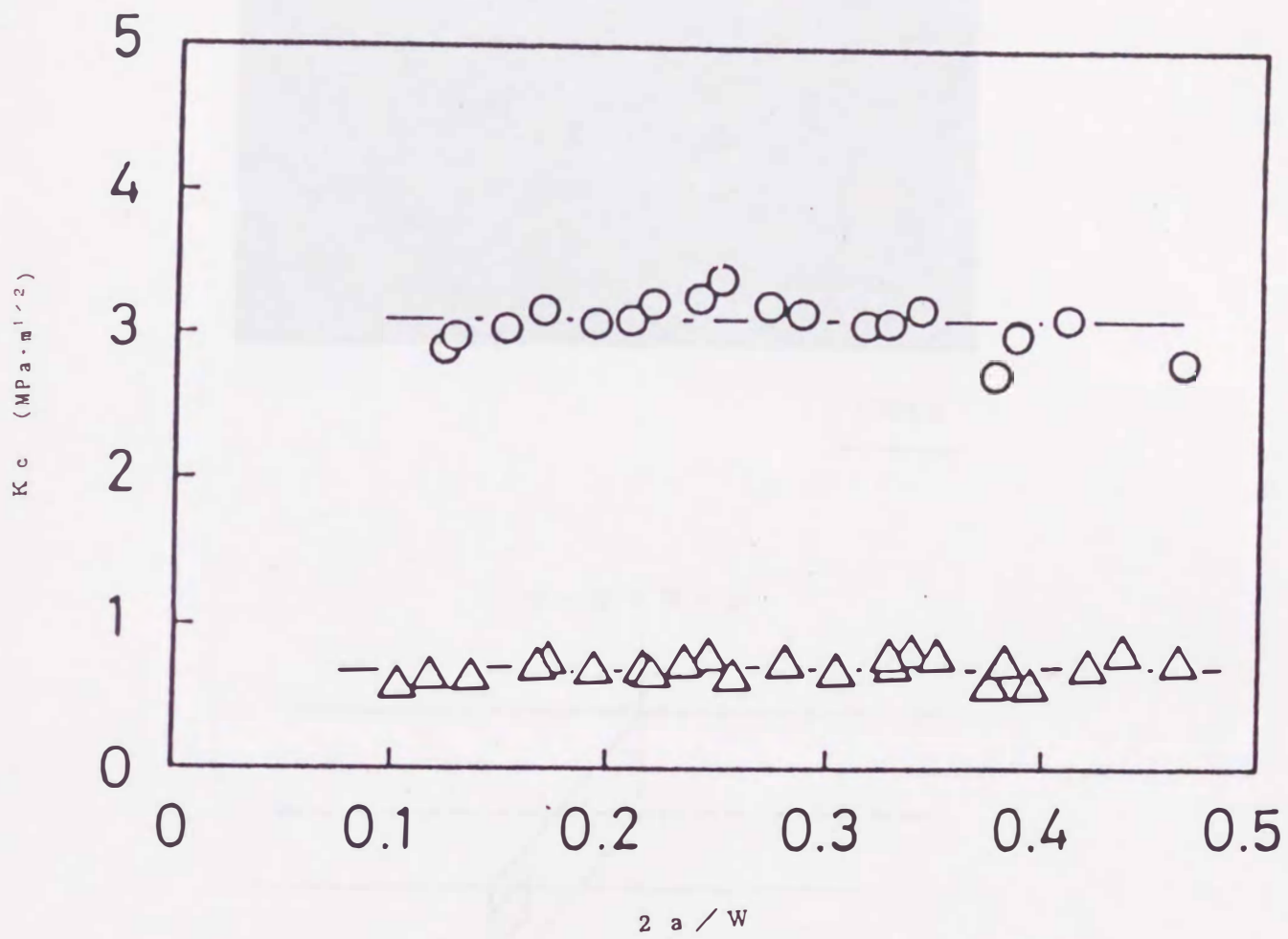
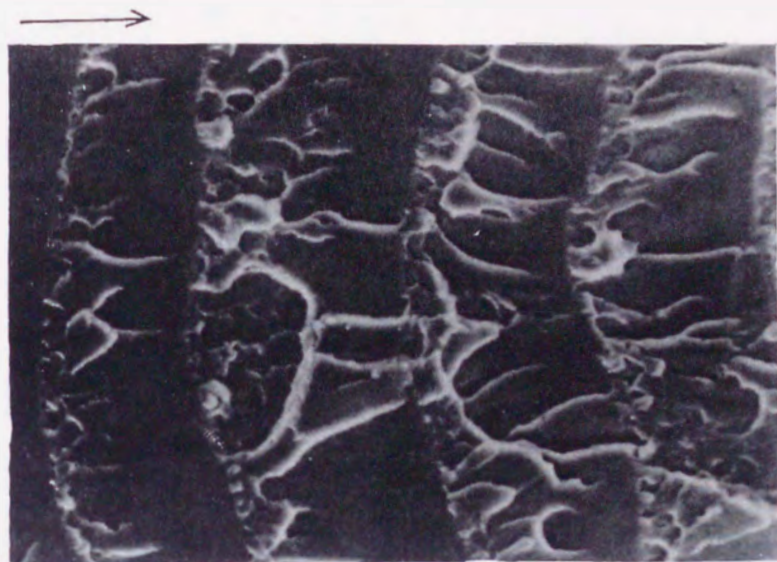


図 2.17 相対き裂長さ ($2a/W$) に対する臨界応力拡大係数の変化
 ○: ノンウェルド試料、△: ウェルド試料



100 μ m

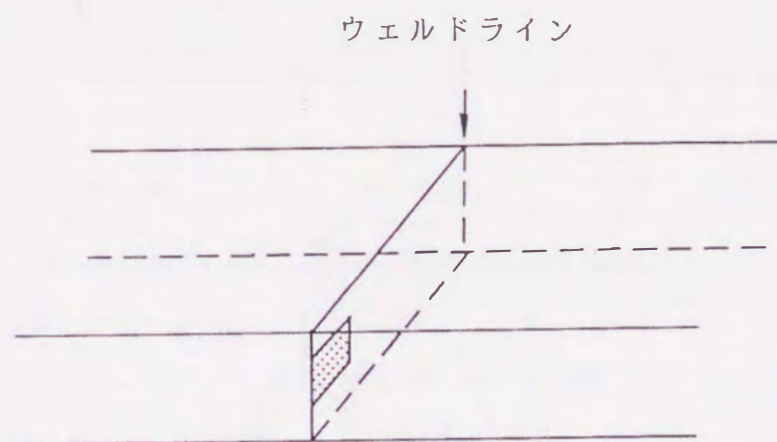
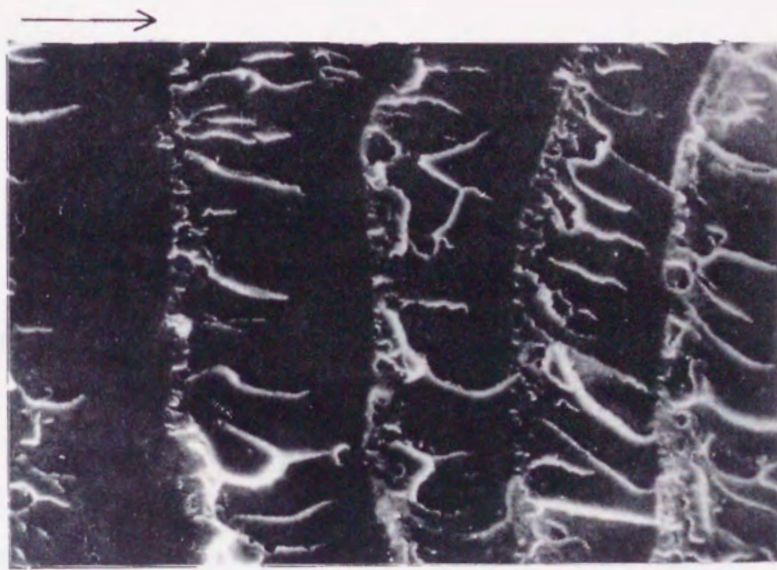


図2.18 ウェルド試料のV溝先端付近の微視的様相（ポリスチレン）
（矢印はき裂伝播方向を示す）



100 μ m

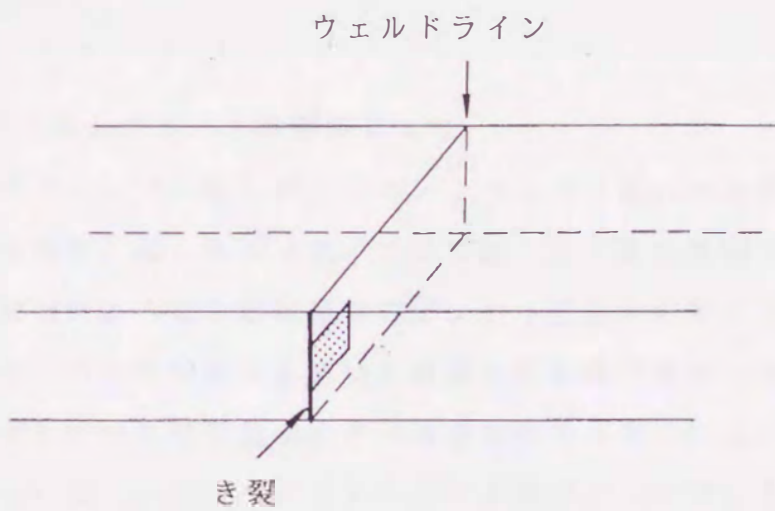


図2.19 ウェルドDEN試料のき裂先端付近の微視的様相 (ポリスチレン)
(矢印はき裂伝播方向を示す)

面に存在するV溝が破断開始点として作用するものと考えられる。

3.2.3 ウェルドライン深さより求めたじん性値

V溝が破断開始点として作用すると考えると、3.1.4で述べたウェルドライン深さのデータからPSの破壊じん性 K_{Ic} を求めることができる。き裂深さ a としてウェルドライン深さ D_w を、破断荷重 P_{max} としてウェルド強度 σ_w を各々(1)式に代入した。計算によって得られた K_{Ic} を見かけの破壊じん性 $(K_{Ic})^*$ と呼ぶことにする。図2.20は2通りの充てん圧力条件下での種々の保圧条件で得られたウェルド試料の $(K_{Ic})^*$ を示す。充てん圧力や保圧によらず $(K_{Ic})^*$ は一定値を示し、その平均値は $0.71 \text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ となった。これはDEN試験片を用いて得られた K_{Ic} の値と全く一致した。この結果とSEM観察結果により、切削法で求めたPSのウェルドライン深さ ($0.2 \sim 0.3 \text{mm}$) が正しいことが立証された。

3.2.4 ポリカーボネートの破壊じん性

ポリカーボネート(PC)についてノンウェルド試料およびウェルド試料の臨界応力拡大係数、 K_c を求めた。ここでは、分子量の影響も検討した。

3.1.5で示したようにPCは通常のダンベル試験片を用いた引張試験では延性破壊したが、DEN試験片を用いた破壊力学試験ではぜい性破壊した。したがって、PSと同様に線形破壊力学が適用可能であることが分かった。図2.21、2.22は、S2000およびS3000に関する相対き裂長さ $2a/W$ と臨界応力拡大係数 K_c の関係を各々示している。PSの場合に較べて測定値の変動が大きい、 $2a/W = 0.2 \sim 0.5$ の範囲では、 K_c はき裂長さによらず一定の値を示した。この平均値を破壊じん性 K_{Ic} として求めると、ノンウェルド試料とウェルド試料の K_{Ic} は同じ値となり、ウェルドラインによるじん性の低下は認められなかった。

分子量の影響に着目すれば、比較的高分子量のS2000 ($M_w = 2.3 \sim 2.6 \times 10^4$) のじん性は $3.3 \text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ となり、低分子量のS3000 ($M_w = 2.2 \sim 2.3 \times 10^4$) の

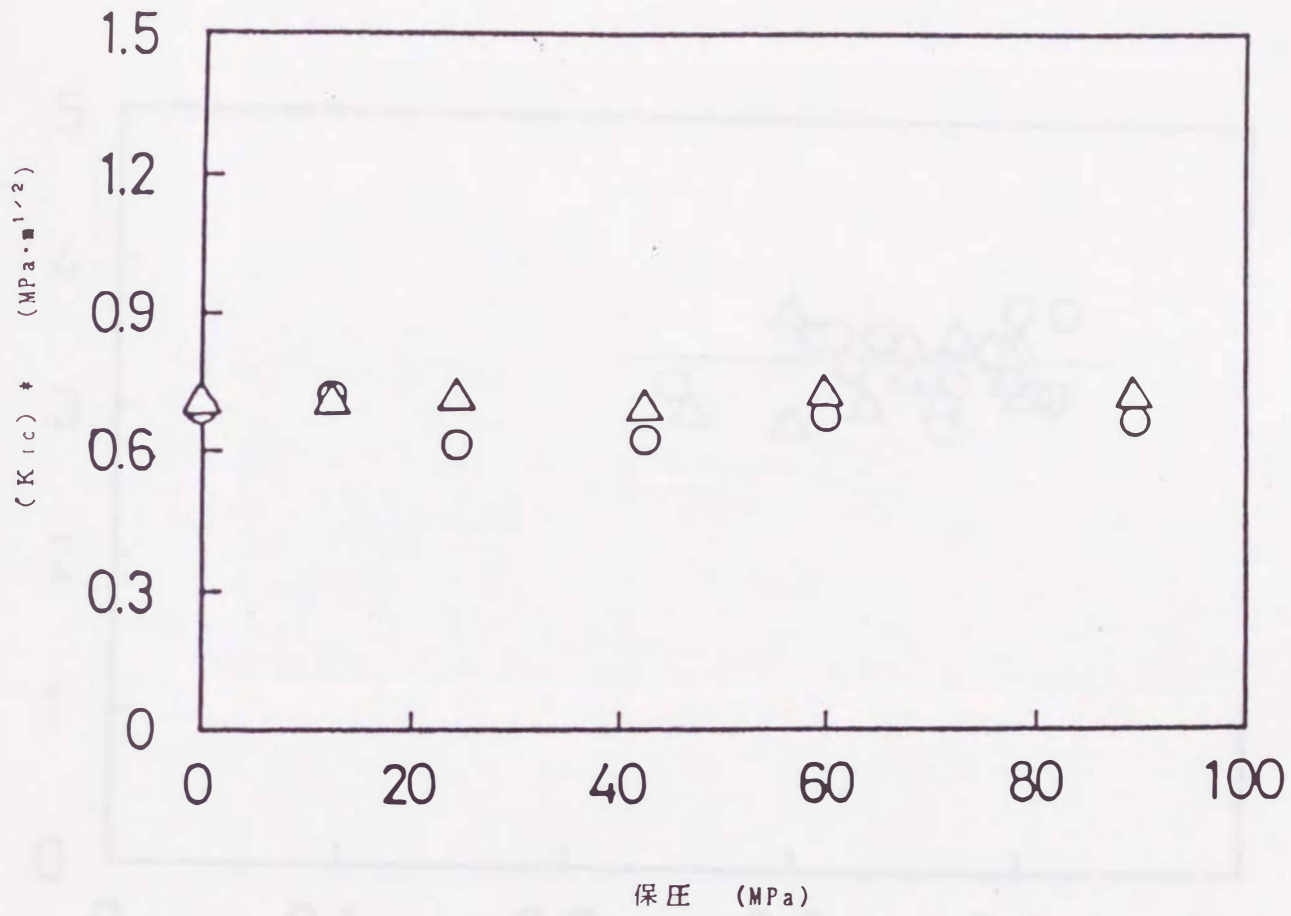


図 2.20 切削法で得られたデータより求めた見かけのじん性
 充てん圧力、○：41.9 MPa，△：59.8 MPa

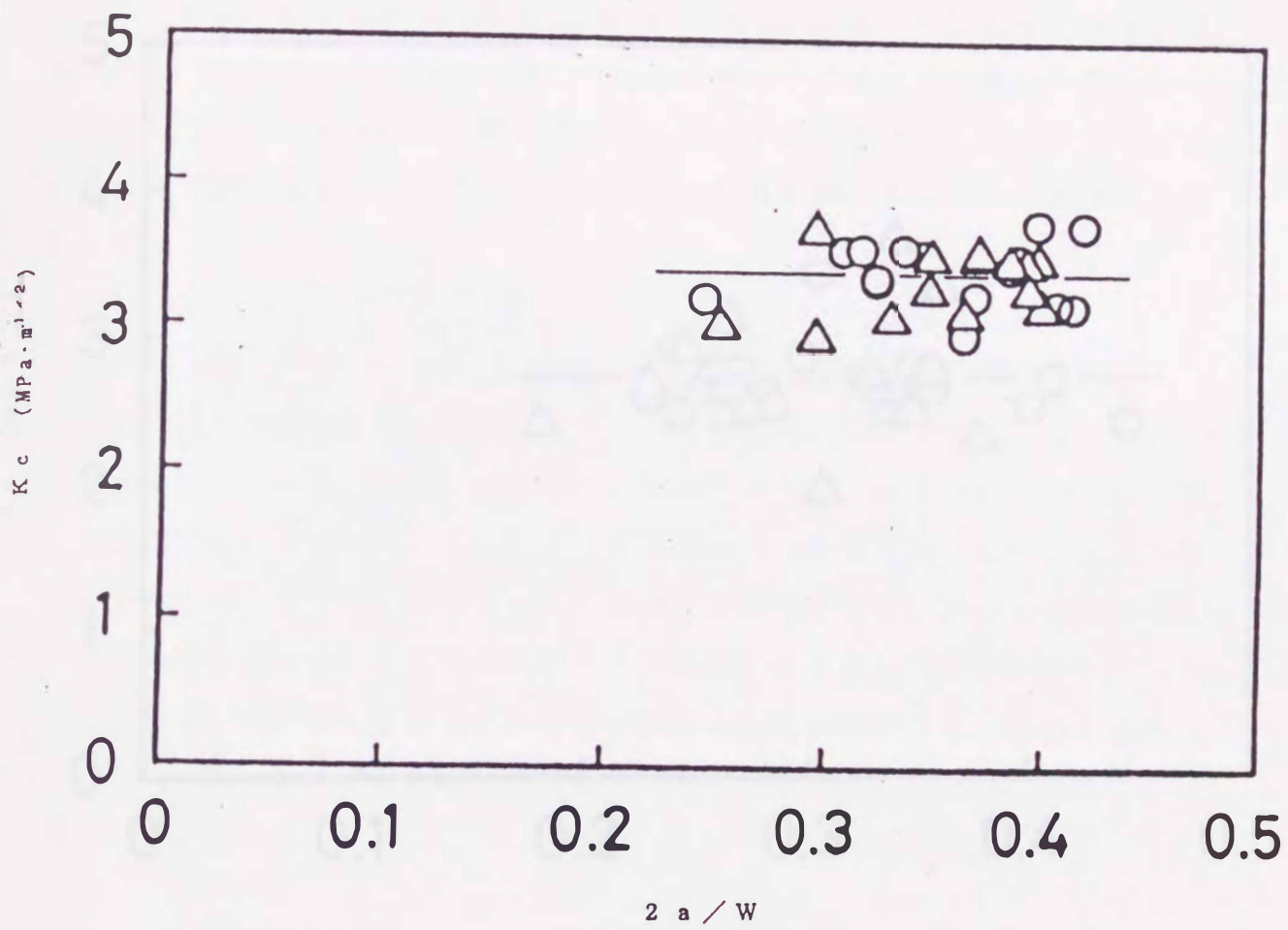


図 2.21 ポリカーボネート (S2000) の K_c 値と $2a/W$ の関係
 ○: ノンウェルド試料、△: ウェルド試料

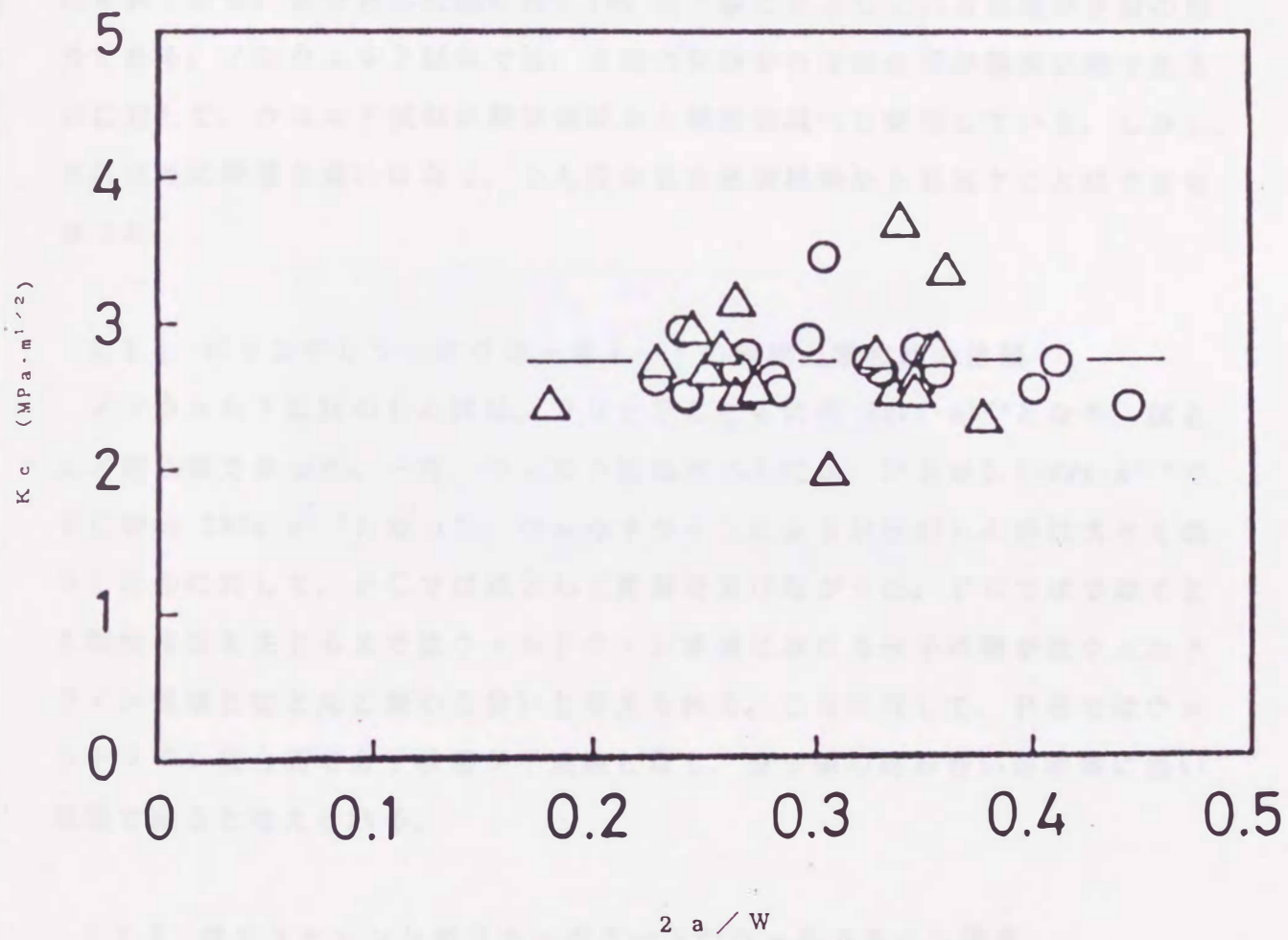


図2.22 ポリカーボネート (S3000) の K_{Ic} 値と $2a/W$ の関係
 ○: ノンウェルド試料、△: ウェルド試料

じん性 $2.7\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ より高かった。分子量が高いほどじん性が高くなることはこれまでも報告されている^{14), 15)}。分子量が大きくなれば分子鎖の絡み合い度が高くなるため、き裂進展に対する抵抗が強くなるものと思われる。

図2.23はPCS2000、図2.24はPCS3000に関するDEN試験片破断面のSEM写真である。各写真の左側に約0.5mm幅で縦に分布している領域がき裂の部分である。ノンウェルド試料では、き裂の先端からほぼ全面が鏡面状態であるのに対して、ウェルド試料は鏡面領域から粗面領域へと変化している。しかし、それ以外に顕著な違いはなく、じん性の差を破壊様相から見出すことはできなかった。

3.2.5 ポリスチレンとポリカーボネートの破壊力学特性の比較

ノンウェルド試料のじん性は、PSとPCともに約 $3\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ となり、ほとんど同じ値であった。一方、ウェルド試料のじん性は、PSが $0.71\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ で、PCが約 $3\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ となった。ウェルドラインによりPSのじん性は大きく低下したのに対して、PCではほとんど影響を受けなかった。PCでは少なくとも塑性変形を生じるまではウェルドライン領域における分子状態が非ウェルドライン領域とほとんど変わらないと考えられる。これに対して、PSではウェルドライン接合面で分子状態が不連続となり、分子鎖の絡み合いが非常に弱い状態であると考えられる。

3.2.6 ポリスチレンとポリカーボネートのウェルドライン構造

切削法で求めたウェルドライン深さと破壊力学試験で得られたじん性の知見から図2.25に示すようなウェルドライン構造が考えられる。PSではウェルドライン表面に微細なV溝が存在し、さらにその内層には低結合領域が存在する。この2つを合わせた領域が切り欠き効果を発揮する。一方、PCではV溝はほとんど存在せず、しかもウェルドライン全域にわたって高結合領域となっている。

このようなPSとPCのウェルドライン構造の違いはウェルドライン合流後

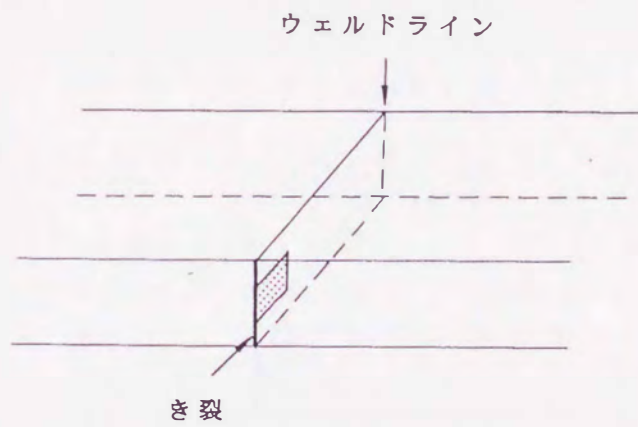
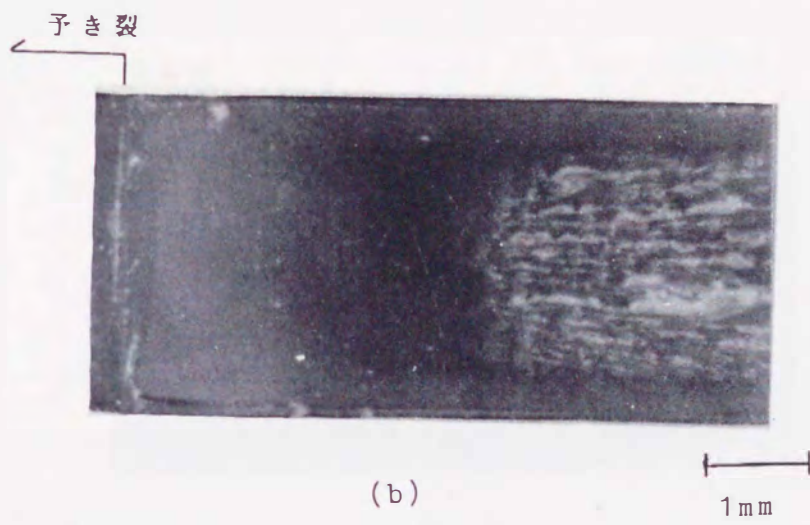
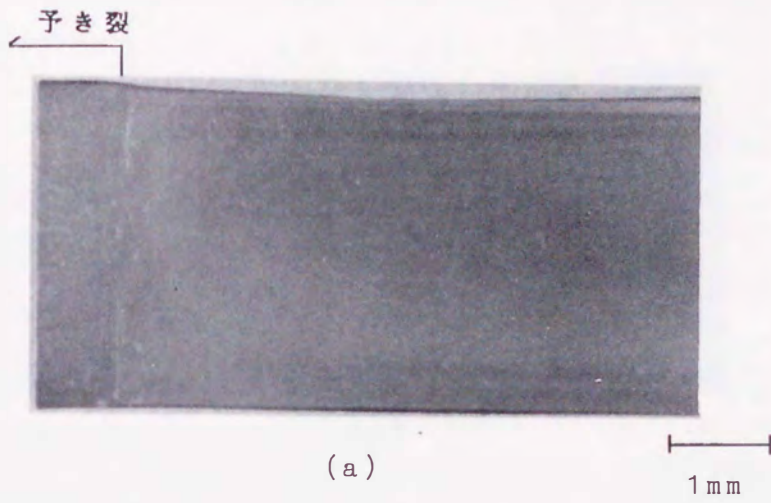


図2.23 ポリカーボネート (S2000) の破面の微視的様相
 (a)ノンウェルド試料、(b)ウェルド試料

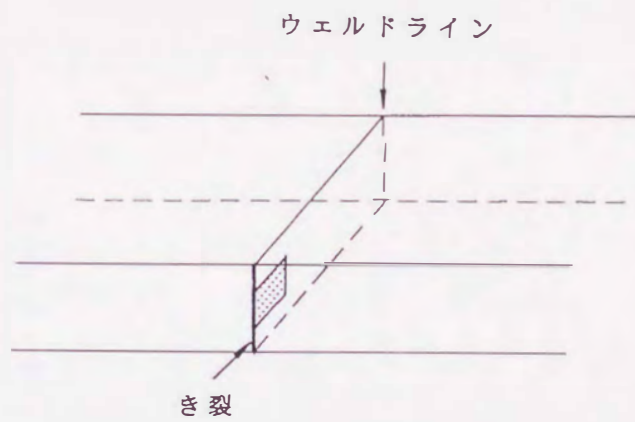
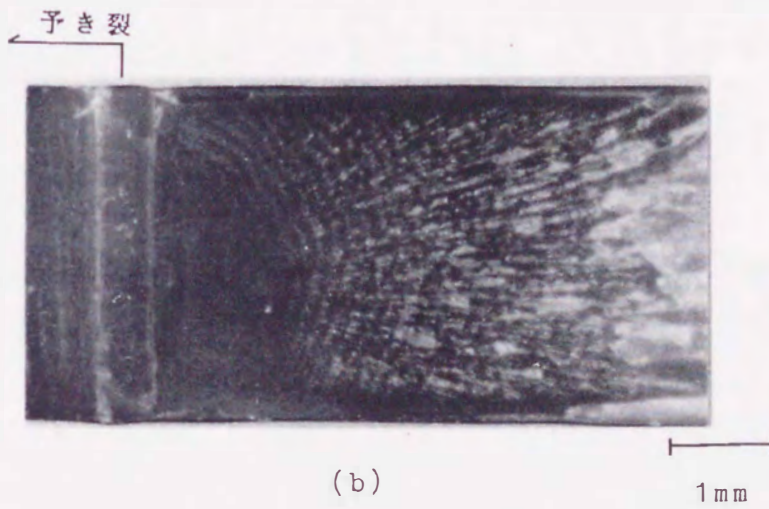
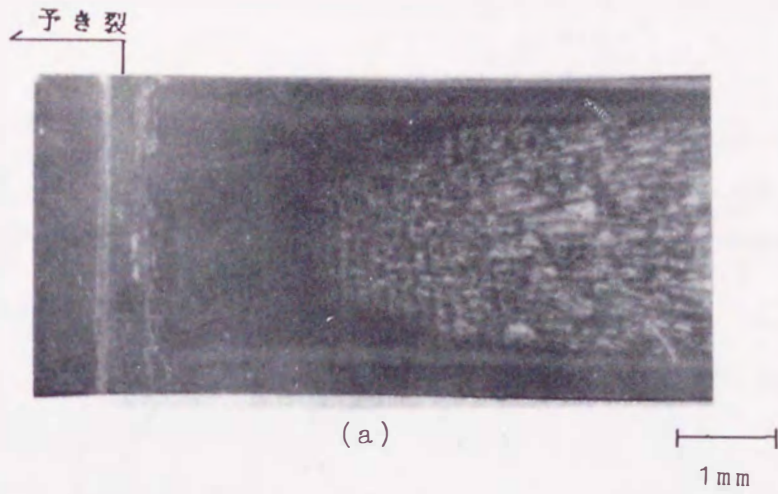


図 2.24 ポリカーボネート (S3000) の破面の微視的様相
 (a) ノンウェルド試料、(b) ウェルド試料

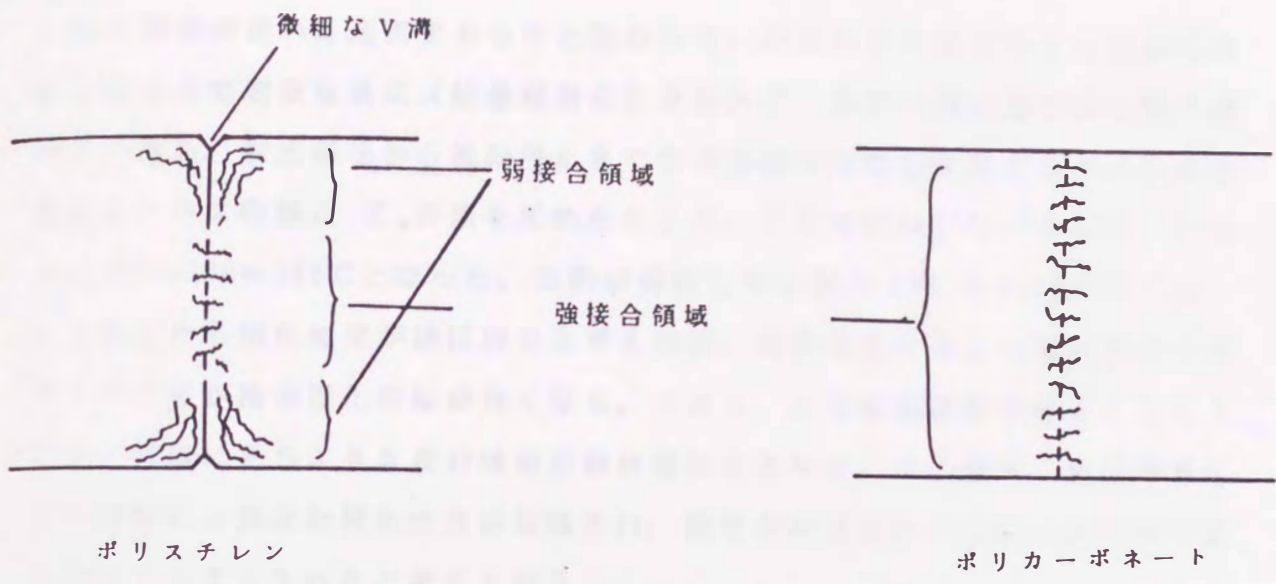


図 2.25 ポリスチレンとポリカーボネートのウェルドライン構造の比較

の固化過程の違いに起因するものと思われる。PSとPCはどちらも非晶性材料であるので明確な融点（結晶融解点）を持たず、樹脂の固化過程は比較的緩やかである。射出開始から流動停止までの冷却固化時間を検討するために成形温度とガラス転移点 T_g の差を求めたところ、PSでは $180 - 100 = 80^\circ\text{C}$ 、PCでは $300 - 150 = 150^\circ\text{C}$ となった。比熱が両者ともに同じ（約 $0.3\text{cal}/^\circ\text{C}/\text{g}$ ）ことなどから固化速度がほぼ同じと考えれば、成形温度と T_g の温度差の大きなPCの方が冷却固化時間が長くなる。つまり、PCは樹脂合流後もウェルドライン領域にPSよりも長い時間溶融状態に保たれる。その結果、金型壁面付近の樹脂にも十分な射出圧力が伝達され、融着が促進されるためにPCのV溝が極めて小さくなったと考えられる。

また、ウェルドライン内層の接合強度には「溶融体緩和時間」の影響が考えられる^{16)・17)}。これは溶融樹脂分子鎖が流動過程で変形した状態から流動停止により自然な状態まで戻るまでの時間である。固化時間が同じであっても緩和時間の短い材料ほどウェルドライン領域での分子の絡み合いが増すため接合強度も増加する。この緩和時間は、コーンプレート式粘弾性測定装置で測定できるが、これまでにプラスチック溶融体に関する測定例はほとんど無い¹⁸⁾。緩和時間の短い材料ほど溶融樹脂が合流してから固化が完了するまでの間にウェルドライン合流面における分子の絡み合い度が増加して樹脂接合力が向上する。したがって、成形材料の溶融体緩和時間が測定されれば、上述のV溝深さを考慮することによりウェルドライン領域におけるじん性を予測できると考えられる。

第4節 結 言

代表的な熱可塑性プラスチックであるポリスチレン（PS）およびポリカーボネート（PC）射出成形品のウェルドラインに関して切り欠き効果の観点から検討した。

まず、これまで定量的な評価のなされなかったV溝深さの測定方法について

検討した結果、射出成形品の表面を段階的に切削、除去した時のウェルド強度の変化を測定することによってV溝の深さを定量化する方法（「切削法」と呼ぶ）を確立した。切削法によると、ウェルドライン深さ D_w と定義したV溝深さは、PSでは0.2~0.3mmと比較的大きかったのに対して、PCの D_w はほとんど0mmであることを明らかにした。PSに関しては、 D_w の増加にともないウェルド強度が低下する傾向が認められ、両者の間には非常に強い相関があることが分かった。

次に、ウェルドラインの両端にき裂を導入した両端き裂（DEN）試験片を用いて破壊力学試験を行い破壊じん性 K_{Ic} を求め、これによりV溝に対する材料特性を評価した。ノンウェルド試料に関しては、PSとPCはともにほぼ同じ K_{Ic} であったことから、き裂に対する材料の抵抗力には差は認められなかった。しかし、ウェルド試料に関しては、PSの K_{Ic} がノンウェルド試料の約5分の1に低下したのに対して、PCではノンウェルド試料と同じ値であった。また、切削法で得られたウェルドライン深さを破壊力学におけるき裂深さであると仮定して、ウェルドライン深さとウェルド強度の関係から求めた「見かけのじん性値」は、先に求めたウェルド試料の K_{Ic} と全く一致したことから、切削法によるウェルドライン深さの定量化方法が適切であることが分かった。

以上の結果からPSとPCのウェルドライン構造の違いを固化時間や溶融体緩和時間の違いにより説明した。

「切削法」によるV溝深さの測定方法は、表面粗さ計のように簡便な測定法ではないが、単なる形状的なV溝深さだけでなく、その内層の樹脂の低結合領域をも含んで応力集中を招く領域を定量化することができた。「切削法」により種々の材料について同様の検討を行い、ウェルドライン深さの分布を明らかにするとともに、破壊じん性を求めておけば、切欠き効果を主因子としたウェルド強度の予測が容易になることが期待される。

参考文献

- 1) E. M. Hagerman, *Plast. Eng.*, **29**, 67 (1973).
- 2) S. Y. Hobbs, *Polym. Eng. Sci.*, **14**, 621 (1978).
- 3) B. Fisa, J. Dufour and T. Vu-Khanh, *Polymer Composites*, **8**, 408 (1987).
- 4) S. Piccarolo, A. Rallis and G. Titomanlio, *Intren. Polym. Proces.*, **2**, 137 (1988).
- 5) G. Titomanlio, S. Piccarolo and A. Rallis, *Polym. Eng. Sci.*, **29**, 209 (1989).
- 6) 黒田英夫, 下平勝義, *成形加工*, **2**, 159 (1990).
- 7) L. Rolland and L. J. Broutman, *Polym. Eng. Sci.*, **25**, 207 (1985).
- 8) 百武 秀, 西谷弘信, *日本機械学会論文集 (A編)*, **50**, 888 (1984).
- 9) R. Boukhili and R. Gauvin, *Plast. Rub. Proc. Appl.*, **11**(1), 17 (1989).
- 10) 伊藤 忠, 洲崎 均, 曾根忠利, 中川 曠, *射出成形 (第9版)*, p. 169 (1990).
- 11) H. Nishitani, *Tension of a Strip with Symmetric Edge Crack or Elliptical Notches*, *Transaction Japan Society Mechanical Engineering*, **49**, No. 349 (1975), 2518.
- 12) F. A. Johnson and J. C. Radon, *Engineering Fracture Mechanics*, 559 (1979).
- 13) G. P. Marshall, L. E. Culver and J. G. Williams, *Int. J. Fract.*, **9**(3), 295 (1973).
- 14) L. E. Miller, K. E. Puttick and J. G. Rider, *J. Polym. Sci., C*, **33**, 13 (1971).
- 15) L. J. Broutman and F. J. McGarry, *J. Appl. Polym. Sci.*, **9**, 609 (1965).
- 16) 大柳 康訳, Z. Tadmor, C. G. Gogos, 「プラスチック成形加工原論」, p. 529, シグマ出版 (1991).
- 17) P. Hubbauer, *Plast. Eng.*, **29**, 37 (1973).
- 18) 繊維高分子材料研究所、北野 武博士との質疑応答による