

「ランナーリサイクルのための断熱金型の開発」

栃木県産業技術センター / 大森 和宏、和氣 吉希、八丁 佳功

影響について検討した研究例は見当たらない。

1. はじめに

近年の世界的な環境問題への対応として、プラスチック資源循環の重要性が高まっている。政府は気候変動問題等環境問題への課題に対応するため、「プラスチック資源循環戦略」や「プラスチックに係る資源循環の促進等に関する法律」を策定し、プラスチック資源循環を推進している。プラスチック製品製造業には、プラスチック廃棄物の削減、適切な再生材の使用等、環境に配慮したものづくりが求められている。

プラスチック射出成形企業では、製品製造時に排出される「ランナー」を粉砕し、射出成形工程内でリサイクルしている。しかし、一度射出成形工程を経たランナーは劣化していると言われており、通常はランナー粉砕材を一定量のバージン材と混合して製品が製造されている。これまで、プラスチックリサイクル材の劣化は、分子鎖切断や酸化による「化学劣化」が主な要因とされてきた。一方、近年の研究で、成形加工工程を経ることにより、リサイクル材の結晶間を繋ぐタイ分子の減少等が生じ、脆化する「物理劣化」が主要因であることが明らかになってきた¹⁾。この物理劣化は、肉薄成形品で顕著に現れたとの報告があり、金型内を流動する熔融樹脂が受けるせん断応力の影響が大きいことが示されている。著者らが実施した研究においても、高せん断条件で射出成形したランナーにおいて、より物理劣化していると考えられる結果が得られている²⁾。よって、成形加工におけるせん断応力を低減できれば、ランナーの物理劣化を抑制でき、ランナーリサイクル率の向上が可能となると考えられる。ここで、金型内を流れる熔融樹脂は、金型に接触すると急冷されるが、内部は高温状態で流動しており、その温度差により生じる粘度差が原因でせん断応力を生じることが知られている³⁾。従って、せん断応力を抑えるには、金型内で流動する熔融樹脂の温度差を低減させることが有効であると考えられる。

射出成形金型に接触した熔融樹脂の急速な温度低下を抑制する方法の一つとして、断熱金型の利用が挙げられる。断熱金型は、キャビティ表面に樹脂やジルコニア等の断熱層を成膜した金型であり、成形品の外観向上や表面微細構造の転写性向上等を目的に実用化が進んでいる。一方、断熱金型がランナーの物理劣化に与える

断熱金型をランナーの物理劣化抑制に応用するには、断熱層厚さや冷却遅延効果の検証、射出成形条件等がランナーの物理劣化に与える影響の検討が必要である。

2. 目的

断熱金型によるランナーの物理劣化抑制効果を検討する。また、断熱金型が樹脂の冷却に与える影響について温度シミュレーションを用いて考察し、せん断応力低減効果を推定する。

3. 実用的な価値、実用化の見込など

ランナーのリサイクルは、多くの射出成形企業で行われており、リサイクル率の向上や物性改善が課題となっている。近年、カーボンニュートラルや資源循環の重要性が高まっており、プラスチックリサイクル材の有効活用に対する企業の注目度は高い。本研究により、ランナーリサイクル材の劣化を抑制する技術開発ができれば、高品質なリサイクル成形品が得られ、社会的意義は大きい。加えて、リサイクル率の向上はコスト削減につながるため、経済的效果も期待できる。以上より、本技術は射出成形企業を対象に幅広く活用されることが期待できる。

4. 研究内容の詳細

4. 1. 研究の方法

4. 1. 1. 射出成形

ポリプロピレン (PP) バージン材 (サンアロマー(株)製 PM600A) を、金型温度 40℃又は 75℃、シリンダ温度 180℃、射出速度 100mm/s、保圧 21MPa の成形条件で射出成形 (日精樹脂工業(株)製 NEX 80IV-9EG) し、ダンベル試験片及びランナーを得た。ダンベル試験片は、JIS K7152-1:1999 に規定される ISO 金型タイプ A 型、ランナーは同規格の Z ランナーとした。断熱層は、ランナー直線部に厚さ約 50 μm のポリイミドテープを用いて、所定の厚さ (500 μm) に重ねて貼り付けて作製した。なお、断熱層を 500 μm とした際のランナー断面積は、断熱層なしの場合と比較して 20%狭くなる。通常金型及び断熱金型において、ランナー部での樹脂流速を同一とするため、断熱金型を用いる場合は、射出速度及び保圧を 20%低く設定した。

射出成形時の金型表面温度測定は、金型表面

温度センサー（双葉電子工業(株)製）をランナー直線部に配置した金型を用いて行った。金型表面温度センサー位置は、スプルー中心から 65mm の位置とした。データの採取はメモリハイロガー（日置電機(株)製 LR8431）を用いて行った。温度計測のサンプリング間隔は 10ms とした。射出成形条件は、シリンダ温度を 210℃ とし、その他については先述のダンベル試験片成形時と同様とした。

4. 1. 2. バージン及びリサイクルシートの成形

成形品からランナー直線部を切り出し、液体窒素中に 2 分間以上浸漬後、フォースミル（大阪ケミカル(株)製 FM-1）により粗粉碎した後、プラスチックカッティングミル（大阪ケミカル(株)製）を用いて微粉碎し、ランナー粉碎材を作製した。バージン粉碎材は、ペレットをプラスチックカッティングミルにより粉碎して作製した。

ステンレス（SUS304）板上に厚さ 125 μm のポリイミドフィルムを配置し、厚さ 0.5mm のアルミ製型枠（100mm×100mm）に粉碎材を約 5.2g 敷き詰めてポリイミドフィルム及び SUS304 板で挟み、ミニテストプレス（株東洋精機製作所製）を用いて 210℃ で 4 分間樹脂を溶融させた。その後、樹脂及び型枠をポリイミドフィルムごと 100℃ に加熱した熱板間に移動させ、5 分間保持して等温結晶化させた後、室温まで空冷し、100mm×100mm×t0.5mm のシートを得た。そのシートから、試験片打抜機（高分子計器(株)製）を用いて小型ダンベル試験片を作製し、引張試験に供した。ダンベル試験片形状は、JIS K6251:2017 の 6 号形とした。

4. 1. 3. 温度シミュレーション

樹脂、断熱層及び金型の温度シミュレーションは、以下の式を用いて行った⁴⁾。

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \alpha \frac{\partial}{\partial x} \frac{\partial T}{\partial x} \quad (1)$$

$$\alpha = \frac{\lambda}{\rho c} \quad (2)$$

また、各界面の温度 T_{int} は以下の式により計算した。

$$T_{int} = \frac{\lambda_m \cdot x_p \cdot T_m + \lambda_p \cdot x_m \cdot T_p}{\lambda_m \cdot x_p + \lambda_p \cdot x_m} \quad (3)$$

ここで、 α は熱拡散率、 T は温度、 t は時間、 x は距離、 λ は熱伝導率、 ρ は密度、 c は比熱である。PP、金型に用いた STAVAX 材、断熱層の熱伝導率、密度、比熱は、カタログ値及び文献⁵⁾

表 1 シミュレーションに用いたパラメータ

材料	熱伝導率 (W/mK)	密度 (kg/m ³)	比熱 (J/kgK)
PP	0.19	850	1600

STAVAX 材	16	7800	460
断熱層	0.16	1420	1100

より、表 1 のとおりとした。断熱層にはポリイミドテープを用い、その熱伝導率は迅速熱伝導率計（アドバンス理工(株)製 GH-1S）を用いて定常法により測定した。また、分割距離は 50 μm 刻みとした。

射出工程では、シリンダ内で熱せられた熔融樹脂が金型内に流入するため、金型からの冷却の影響を受ける厚さを 150 μm とし、金型表面から 200 μm の位置から中心の温度は熔融樹脂温度の 210℃ で固定した。保圧工程ではシリンダからの樹脂流量が少ないため、冷却過程をシミュレーションした。せん断発熱及び結晶化に伴う発熱は無視した。

ランナー断面形状は、計算を単純化するため、円形とした。樹脂の固化温度は条件によって大きく異なるが、文献^{6), 7)}を参考に、160℃ に設定した。

4. 1. 4. 熔融樹脂の粘度

本研究で用いた PP のフローカーブのデータは、サンアロマー(株)社より提供を受けた。粘度の温度依存性を確認するため、本データを用い、以下に示す Andrade の式を用いて、各せん断速度における温度・粘度の関係式を求めた⁸⁾。

$$\ln \eta = \ln a + \frac{b}{T} \quad (4)$$

ここで、 η は粘度、 T は温度、 a 及び b は定数である。射出時及び保圧時のせん断応力推定に、それぞれせん断速度 2,432 s⁻¹ 及び 243.2 s⁻¹ の一次式を用いて、温度シミュレーションのデータから粘度を計算した。

4. 1. 5. 評価

引張試験は、万能材料試験機（株島津製作所製 AG-50KNI M2、AGS-5kNX 又は AG-50kN-XV）を用いて、試験速度 10mm/min で引張試験を行った。引張試験数は $n=30$ とした。ランナーの分子配向評価は、顕微ラマン分光装置（日本分光(株)製 RMP-510）を用いて、偏光子を用いて測定した。

4. 2. 結果及び考察

4. 2. 1. ランナーの劣化評価

バージン材とランナーの各試験片における引張破断伸びの相対度数分布を図 1 に示す。バージン材（図 1 (a)）と比較し、ランナー（図 1 (b)、(c)）の方が、引張破断伸びが低下する結果となった。結果は示していないが、分子量分布測定、X 線回折分析及び球晶の観察結果から、バージン材とランナーで、分子量分布、結晶構造、結晶化度及び球晶サイズに大きな違いはないこと

が確認されている。この結果は既報と同様であり、ランナーが物理劣化し、引張破断ひずみに違いが現れたと考えられる。

ここで、通常金型及び断熱金型（500 μm ）で成形したランナーの引張破断ひずみを比較すると、断熱金型（500 μm ）で成形したランナーの方が、引張破断ひずみが明らかに高かった。このことは、断熱金型により物理劣化が抑制されたことを示している。断熱金型を用いることで、熔融樹脂の冷却が遅れ、ランナー中心と金型表面付近の樹脂の温度差と、それに伴う粘度差が低減し、せん断応力が低減したことにより、物理劣化が抑制されたと考えられる。

以上より、金型表面近傍の樹脂温度を高温に保つことで、ランナーの物理劣化を抑制できることが示された。

4. 2. 2. 断熱金型のせん断応力低減効果の検証

断熱金型のせん断応力低減効果を検証するため、温度シミュレーションを行った。まず、本研究で用いた温度シミュレーションの妥当性を検証するため、射出成形時の金型表面温度の計測結果と温度シミュレーション結果の比較を行った（図2）。実測データは、温度センサー上を熔融樹脂が通過した時点で温度が上昇し、その後金型温度付近まで徐々に温度が低下していく結果となった。また、断熱金型を用いた方が、金型表面温度の上昇が小さかった。断熱層の効

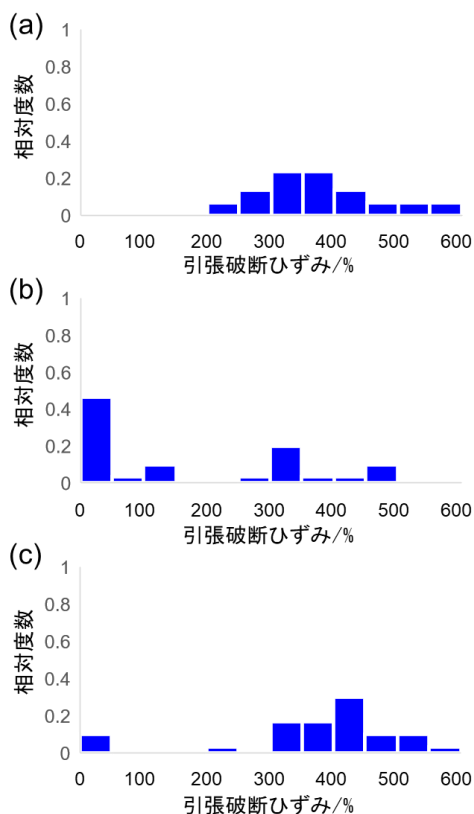


図1 引張破断ひずみの相対度数分布；

- (a)バージン材, (b)ランナー（通常金型）,
(c)ランナー（断熱金型 500 μm ）

果により、熔融樹脂からの伝熱が抑えられていることが伺えた。これらの測定結果に、シミュレーション結果を重ね合わせると、若干の誤差はあるものの概ね一致した。本シミュレーションを用いて樹脂温度を推定することは妥当であると考ええる。

せん断応力 τ は、以下の式で算出できる²⁾。

$$\tau = \dot{\gamma} \cdot \eta \quad (5)$$

ここで、 $\dot{\gamma}$ はせん断ひずみ速度、 η は熔融樹脂の粘度である。

射出工程で金型表面に接触した樹脂が固化すると、流路が狭くなり、ランナーを通過する樹脂の流速が速くなることでせん断ひずみ速度が上昇し、式（5）によりせん断応力は上昇すると考えられる。そこで、流路内での樹脂の固化状況を検討した。結果を図3に示す。通常金型では、射出後すぐに固化層厚さが急増し、その後徐々に固化層が厚くなっていることが伺える。これに対し、断熱金型では、徐々に固化層の厚さが増加していくことが明らかとなった。また、断熱層が厚いほど固化層の成長が遅く、断熱金型（500 μm ）では、射出工程で固化はほとんど起こらない結果となった。この結果を基に、射

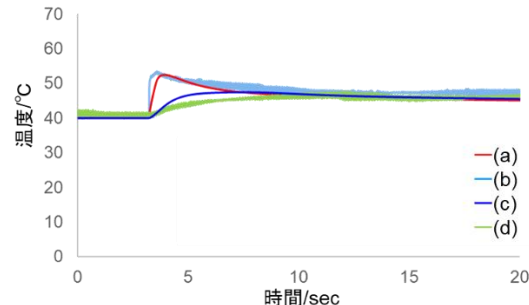


図2 射出成形における金型温度推移；
(a)シミュレーション結果（通常金型），
(b)実測値（通常金型），
(c)シミュレーション結果（断熱金型, 500 μm ），
(d)実測値（断熱金型, 500 μm ）

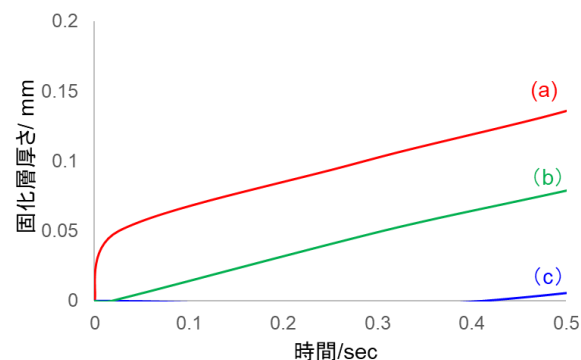


図3 射出工程における固化層厚さの時間推

移 ; (a)通常金型, (b)断熱金型 (100 μm) ,
(c)断熱金型 (500 μm)

出工程での樹脂流速の時間推移を求めた結果を図4に示す。断熱金型 (500 μm) では流速は変化しないが、通常金型及び断熱金型 (100 μm) では流速が上昇する結果となった。この結果より、通常金型と比較し、断熱金型では、断熱層厚さが100 μm では3%程度、断熱層厚さが500 μm では10%程度流速の上昇を抑えられることが明らかになった。

ここで、熔融樹脂は非ニュートン流体であり、せん断速度の上昇により、粘度は低下する。フローカーブから、せん断速度が3%又は10%上昇した際の粘度低下は、それぞれ約2%及び7%であった。一方、金型/樹脂界面付近 (金型/樹脂界面から150 μm) の、通常金型と断熱金型での熔融樹脂の樹脂温度差は、断熱層厚さによらず最大40℃であり、フローカーブのデータからAndradeの式により換算した図5の結果から、粘度は通常金型の方が23%高い結果となった。

以上の結果を用いて、式(5)よりせん断応力を計算すると、通常金型と比較して断熱金型 (100 μm) で23%、断熱金型 (500 μm) で24%低減できることが明らかとなった。更にせん断応力を低減させる目的で、断熱金型 (500 μm) の金型温度を75℃とし、同様のシミュレーションを行ったところ、通常金型と比較してせん断応力を37%低減できることが明らかとなった。

続いて、保圧工程でもせん断応力の上昇が報

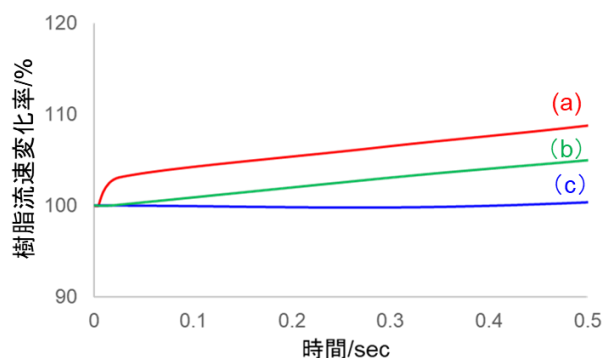


図4 射出工程における樹脂流速変化率の時間推移 ; (a)通常金型, (b)断熱金型 (100 μm) ,
(c)断熱金型 (500 μm)

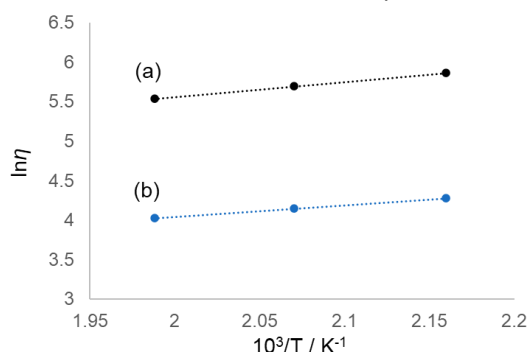


図5 各せん断速度での $\ln \eta$ と $1/T$ の関係 ;

(a) 243.2s⁻¹, (b) 2,432s⁻¹

告されていることから³⁾、保圧工程についてもせん断応力の計算を行った。ランナー流路断面積の時間推移を図6に示す。この結果から、通常金型と比較して、断熱金型 (100 μm) では5%、断熱金型 (500 μm) では25%、断熱金型 (500 μm , 75℃) では35%せん断速度を低減できることが明らかになった。なお、粘度に大きな変化はなかった。

以上の結果より、断熱金型を用いた射出成形により、樹脂の固化を遅らせることで、せん断応力を低減できることが明らかになった。また、断熱層厚さを厚く、更に金型温度を高く保つことで、せん断応力低減効果が大きくなることが示された。なお、金型温度75℃で射出成形したダンベル試験片を用いて引張試験を行うと、金型温度40℃で射出成形した試験片と同様のS-S曲線となることを確認している。

射出成形では、樹脂流動中のせん断応力により分子配向が生じることが知られている。そこで、断熱金型のせん断応力低減効果の検証のため、各金型条件で射出成形したランナーの分子配向評価をラマン分光測定により行った。樹脂流動方向と偏光子の振動方向の成す角度を0°としてラマン分光測定を行い、結晶の螺旋鎖由来の809cm⁻¹のピーク (P₈₀₉) 及び非晶由来の841cm⁻¹のピーク (P₈₄₁) の面積比 (P₈₀₉/P₈₄₁) を計算した⁹⁾。P₈₀₉/P₈₄₁の値が大きいほど、高度に分子配向していることを示している。

各ランナーのP₈₀₉/P₈₄₁の結果を表2に示す。金型温度にかかわらず、通常金型と比較し、断熱金型 (500 μm) の方が、値が小さい結果となった。この結果から、断熱金型を用いた場合、

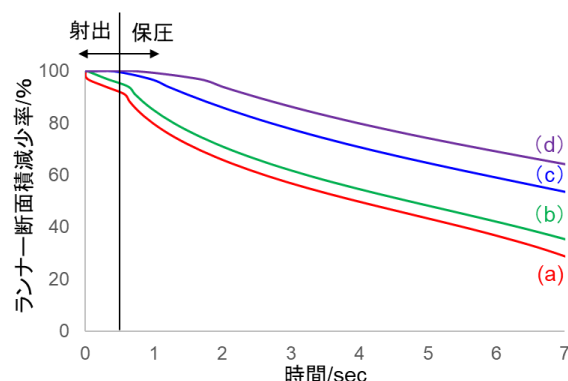


図6 ランナー流路断面積の時間推移 ; (a)通常金型, (b)断熱金型 (100 μm) ,
(c)断熱金型 (500 μm) ,
(d)断熱金型 (500 μm , 75℃)

表2 各ランナーの P_{809}/P_{841} 値

金型温度(℃)	40		75	
断熱層厚さ(μm)	0	500	0	500
P_{809}/P_{841} 値	1.40	1.32	1.45	1.22

通常金型よりもランナー表面付近の分子配向度が低下していることが明らかになった。この結果は、断熱金型を用いることにより、せん断応力が低下することを示しており、温度シミュレーションを用いたせん断応力推定を裏付ける結果となっている。従って、断熱金型を用いた射出成形により、せん断応力を低減させ、リサイクル材の物理劣化を低減できることが示された。

5. まとめ(結言)

射出成形時に排出されるランナーの物理劣化に与える断熱金型の影響について調査し、以下の知見を得た。

- (1) 熱プレスシートの引張試験では、通常金型(40℃)と断熱金型(500 μm 、40℃)を比較すると、断熱金型で成形したランナーの方が、引張破断ひずみが大きかった。
- (2) シミュレーションの結果、射出工程でのせん断応力は、通常金型(40℃)に対して、断熱金型(500 μm)で76%、断熱金型(500 μm 、75℃)では63%となることが明らかとなった。
- (3) 断熱金型を用いて成形したランナーは、通常

金型と比較し、分子配向度が低減していることがラマン分光測定により明らかになった。

6. 参考文献等

- 1) Aya Tominaga, Hiroshi Sekiguchi, Ryoko Nakano, Shigeru Yao, Eiichi Takatori: "J. Mater. Cycles Waste Manag.", 21, 116, (2019)
- 2) 大森和宏, 男澤嶺, 益子朱音, 渡辺克人, 八丁佳功, 池添亮, 太田好和, 小橋川浩, 谷越健太: "型技術", 38 (10), 82, (2023)
- 3) 石島守, 山部昌, 永田真一, 新保實, 宮野靖: "成形加工", 7 (9), 582, (1995)
- 4) (社)プラスチック成形加工学会: "成形加工における移動現象", 森北出版(株), 80-191, (2011)
- 5) 榊原充: "射出成形作業 ここまでわかれば「一人前」", 日刊工業新聞社, 209, (2011)
- 6) 菊地時雄, 長谷川隆, 渡部修, 小山清人: "成形加工", 8 (2), 92, (1996)
- 7) 後藤昌人: "成形加工", 31 (8), 297, (2019)
- 8) 山田信夫, 岸直行, 飯塚博之: "高分子化学", 22 (244), 513, (1965)
- 9) J. Martin, S. Margueron, M. Fontana, M. Cochez, P. Bourson: "Polym. Eng. Sci.", 50 (1), 138, (2010)