

# 生分解性プラスチックのブロー成形統合化シミュレーションの適用

Application of Integrated Blow Molding Simulation to the Biodegradable polymer

三橋正典<sup>1)</sup>、西村敬一<sup>2)</sup>、中井猛夫<sup>2)</sup>

Masanori MITSUHASHI, Keiichi NISHIMURA, Takeo NAKAI

本研究ではパリソン形成過程とブローアップ過程を統合するプログラムを開発した。これはパリソン形成過程解析システムによって得られた2次元解析の結果データをブローアップ解析システムの3次元シミュレーションの初期データに変換するものである。このプログラムにより、ブローアップ過程の前処理（有限要素モデルの作成）が短縮され、ブロー成形の一貫シミュレーションが効率よく行える。また、本プログラムを用いることにより、生分解性プラスチックのブロー成形統合化シミュレーションが行え、製品厚さ分布の予測ができる。

## 1. 緒 言

近年、ブロー成形はプラスチック製の瓶容器等の製造に用いられ、その需要が急増している。食品や洗剤の容器以外に、ガソリンタンク等の工業用製品の成形にもブロー成形は幅広く用いられている。ブロー成形はパリソンと呼ばれる溶融した円管状のプラスチックを押し出すパリソン形成過程と、パリソンに空気を吹き込み金型内で膨張、冷却し、製品を成形するブローアップ過程からなる。パリソン形成過程ではパリソンのスウェル、ドロウダウン現象によるパリソンの偏肉、ブローアップ過程ではブロー比による製品の偏肉が生じるが、現場においては経験と感により、これらの現象を調整して製品一個に必要な材料を最小限にしている。材料を変えたり、異なった形状の製品を成形する場合は、長年の熟練者でも現場でパリソン形成をしないとスウェル、ドロウダウンが予測できず、最適なダイ、コアを選択することはできない。また、ブロー成形加工ではこのような熟練者に依存した加工が多く含まれており、熟練者がいなくなれば企業のノウハウもなくなってしまう。

ここ数年、コンピュータの性能向上と低価格化により数値シミュレーション技術が盛んになり、ブロー成形加工分野においてもスウェル、ドロウダウン現象を理論的に解明し、熟練者に依存しなくてもブロー成形を可能にするためにシミュレーション技術が研究されるようになってきた<sup>1)~5)</sup>。

一方、環境問題が注目されている現在、廃棄物処理において、廃棄プラスチックが大きな問題の一つに挙げられている。1995年で排出された廃棄プラスチックは、(プラスチック処理促進協会試算)約700万トンと言われている<sup>6)</sup>。プラスチック製品はかさが高く、運搬性が悪く、また、分解性が低いため埋め立て処理には不適である。このため、プラスチック廃棄物の減量化や再資源化が大きな技術的課題となっている。これらの対策の一つとして、土壌や水中等に存在する微生物により分解される生分解性プラスチックが注目され、これらに関連した研究開発が盛んに行われている<sup>7)</sup>。

本研究では平成11、12年度に設置したブローアップ過程解析システムとパリソン形成過程解析システム (POLYFLOW)を統合化し、生分解性プラスチックのブロー成形統合化シミュレーションを行い、その適用について検討を行った。

## 2. 生分解性プラスチックの粘度特性

数値解析を用いたブロー成形加工の統合化シミュレーションシステムを生分解性プラスチックに適用するため、市販品の生分解性プラスチックの粘度特性を調べ、ブロー成形性について検討した。本研究に用いた生分解性プラスチックは、セルグリーンPCA00、クリーンスターチ CS500、

Table 1 Biodegradable polymer.

樹脂名	グレード	メーカー名	MFR
セルグリーン	PCA00	ダイセル化学工業(株)	0.3
クリーンスターチ	CS500	クリーンアース(株)	0.72
ユーベック	550	三菱ガス化学(株)	3
ラクティ	9400	(株)島津製作所	5
ビオノーレ	#3003	昭和高分子(株)	6.2

<sup>1)</sup>高分子技術チーム (現在、企画・交流支援チーム)

<sup>2)</sup>高分子技術チーム

ユーベック 550、ラクティ 9400、ビオノーレ #3003であり、その詳細を表1に示した（MFR値：流動特性を示す量、単位はg/10min）。樹脂粘度測定は、コーン・プレート型の回転粘度計を用いて測定した。そして、定常流におけるせん断粘度を樹脂粘度とした。

図1～図5に各試料の定常流におけるせん断速度とせん断粘度の関係を示した。いずれの樹脂においても、せん断速度が増加するとせん断粘度は低下し、非ニュートン性を示している。また、温度上昇とともにせん断粘度は低下している。これらのことから、いずれの樹脂もせん断粘度のshear-shinning性を示す非ニュートン流体であることがわかる。

セルグリーン、ユーベックのゼロせん断粘度は、その他の樹脂に比較して大きな値を示し、パリソン形成における耐ドロダウニング性が強い樹脂であることがわかる。ラクティは温度変化によるせん断粘度の差が大きく、温度が少し高くなってもせん断粘度は大きく低下する。ラクティのせん断粘度は温度変化に対して大きく影響を受けるため、パリソン押出工程における押出温度の設定範囲が狭くなる。

次に、ブロー成形におけるパリソン形成過程、およびブローアップ過程で重要な要因となる耐伸長特性について検討した。せん断粘度に加えて法線応力差の測定を行い、それらの測定値から粘弾性流体のパラメータを求め、伸長粘度の計算を行った。粘弾性流体の構成方程式として、次式のGiesekusモデルを用いて計算を行った。

$$\tau = 2\eta_s D + \tau_p$$

$$\tau_p + \lambda \overset{\nabla}{\tau}_p + \alpha \frac{\lambda}{\eta_p} \tau_p^2 = 2\eta_p D$$

ここで、 $D$ ：変形速度テンソル、 $\eta_s$ 、 $\eta_p$ ：それぞれ粘度の溶媒の寄与分、溶質の寄与分、 $\tau_p$ ：溶質の寄与する応力、 $\lambda$ ：緩和時間、 $\alpha$ ：非線形性を表す物質パラメータ、 $\tau_p$ ：次式で定義される $\tau_p$ の上対流時間微分である。

$$\overset{\nabla}{\tau}_p = \frac{\partial \tau_p}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \tau_p - (\nabla \mathbf{v})^t \cdot \tau_p - \tau_p \cdot (\nabla \mathbf{v})$$

図6、8、10、12、14は、使用した生分解性プラスチックのせん断粘度と法線応力差の測定値と計算値を示したものである。測定値に近似するように粘弾性流体のパラメータを決定し、計算値を求めた。表2に使用した生分解性プラスチックのGiesekusモデルのパラメータを示す。図7、9、

11、13、15は、せん断粘度と法線応力差から求めたパラメータを用いて計算した伸長粘度を示したものである。伸長特性において、伸長速度の増加にともない、セルグリーンとユーベックは伸長粘度が増加するが、伸長速度が10 1/sec以上では一定となる。その定常値は、他の樹脂に比較して高い値を示している。その他の樹脂においては伸長速度の増加にともなう伸長粘度の変化はみられず、若干低下傾向を示している。これらのことから、セルグリーンとユーベックは伸長粘度のstretch-shickening性を示し、耐ドロダウニング性に優れ、ブローアップによる伸長が強いことがわかる。

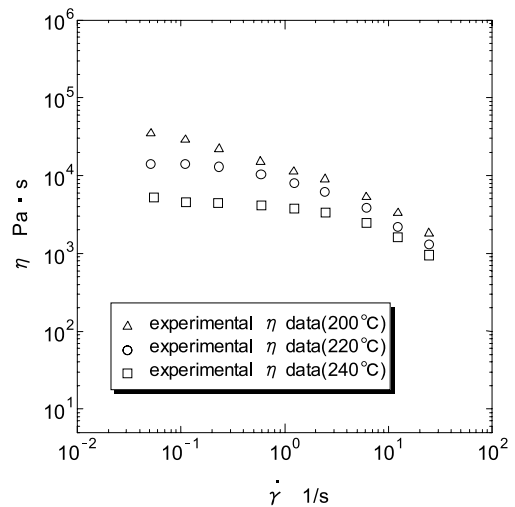


Fig.1 Shear viscosity  $\eta$  versus shear rate  $\dot{\gamma}$  or CELGREEN.

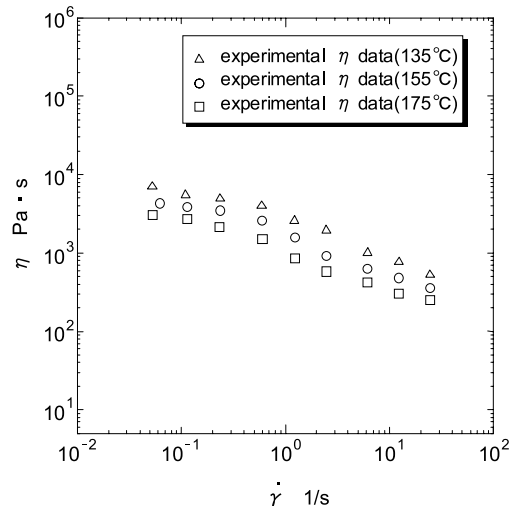


Fig.2 Shear viscosity  $\eta$  versus shear rate  $\dot{\gamma}$  for CLEANSTARCH.

Table 2 Giesekus model parameter.

樹脂名	$\alpha$	$\lambda$ (s)	$\eta_p$ (Pa·s)	$\eta_s$ (Pa·s)
セルグリーン	0.35	1.0	12200	800
クリーンスターチ	0.85	1.0	3700	300
ユーベック	0.30	0.5	17200	800
ラクティ	0.90	0.07	2000	400
ビオノーレ	0.70	0.05	1800	400

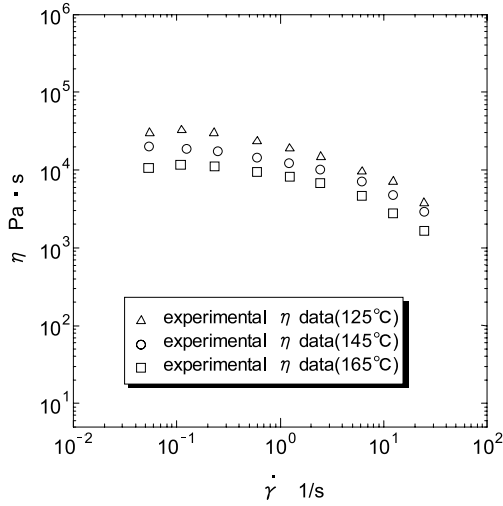


Fig.3 Shear viscosity  $\eta$  versus shear rate  $\dot{\gamma}$  or IUPEC.

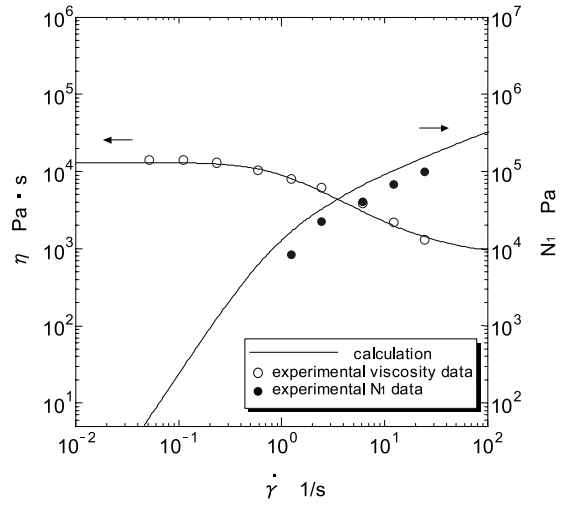


Fig.6 Shear viscosity  $\eta$  and the first normal stress difference  $N_1$  versus shear rate  $\dot{\gamma}$  for CELGREEN at 220°C.

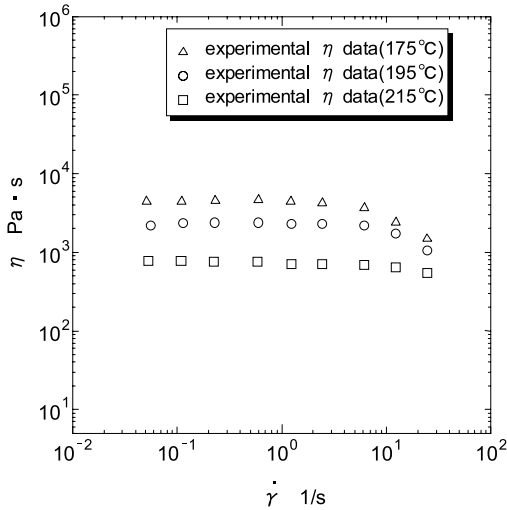


Fig.4 Shear viscosity  $\eta$  versus shear rate  $\dot{\gamma}$  for LACTY.

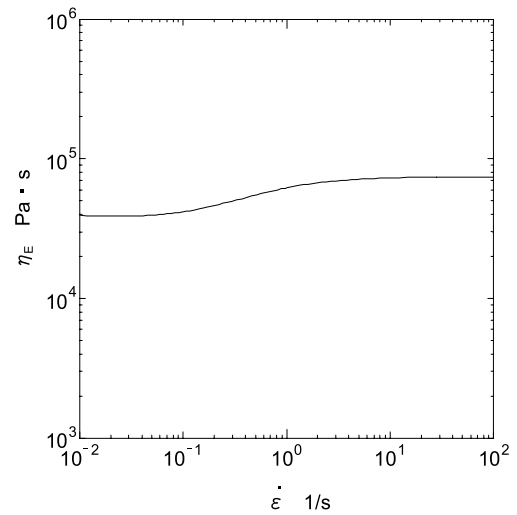


Fig.7 Uniaxial elongational viscosity  $\eta_E$  versus elongational rate  $\dot{\epsilon}$  for CELGREEN at 220°C.

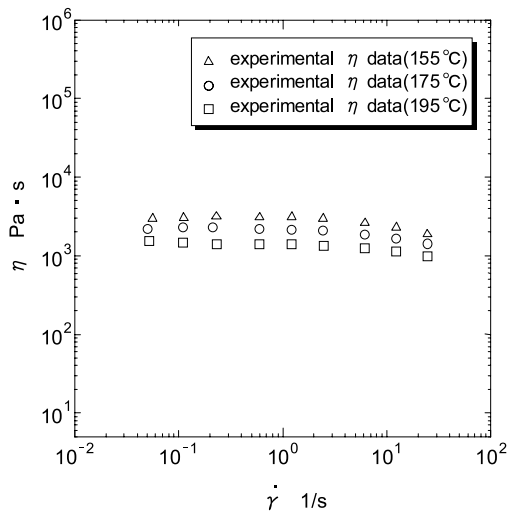


Fig.5 Shear viscosity  $\eta$  versus shear rate  $\dot{\gamma}$  for BIONOLLE.

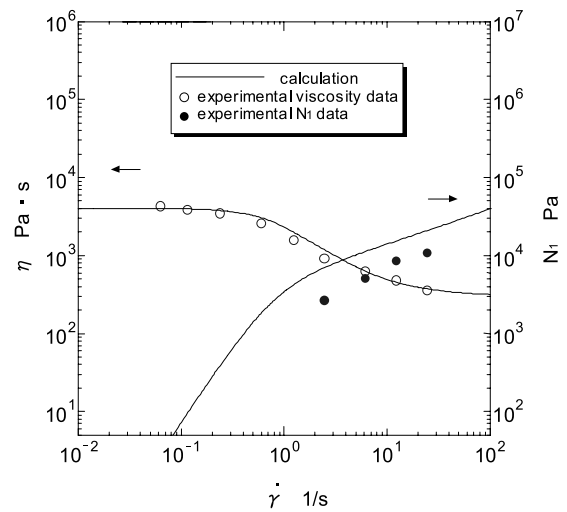


Fig.8 Shear viscosity  $\eta$  and the first normal stress difference  $N_1$  versus shear rate  $\dot{\gamma}$  for CLEAN-STARACH at 155°C

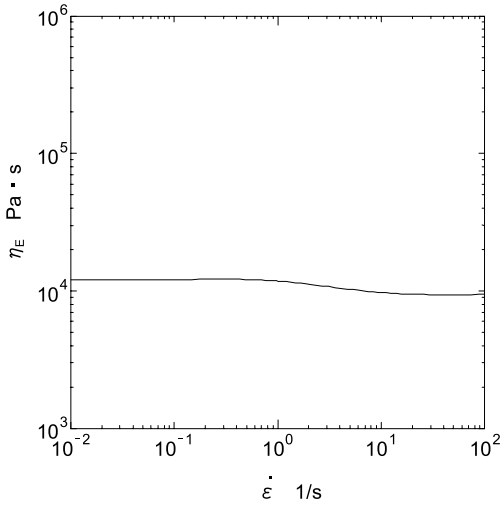


Fig.9 Uniaxial elongational viscosity  $\eta_E$  versus elongational rate  $\dot{\epsilon}$  for CLEANSTARCH at 155°C.

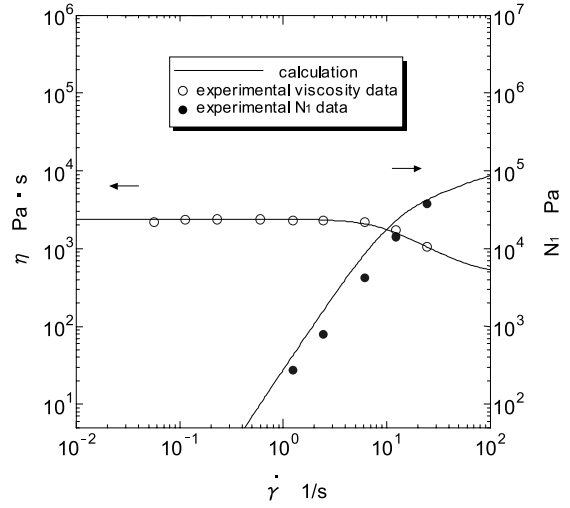


Fig.12 Shear viscosity  $\eta$  and the first normal stress difference  $N_1$  versus shear rate  $\dot{\gamma}$  for LACTY at 195°C.

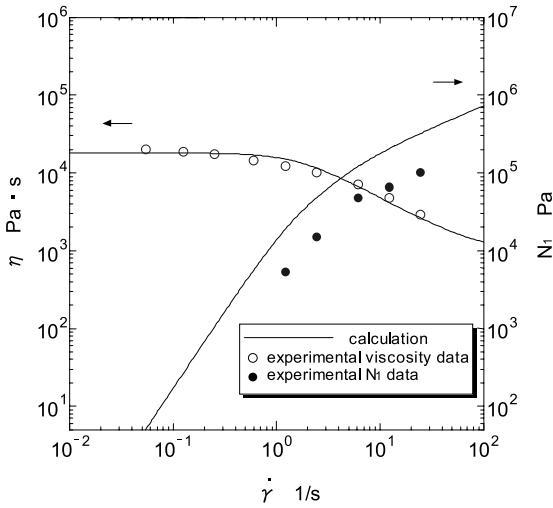


Fig.10 Shear viscosity  $\eta$  and the first normal stress difference  $N_1$  versus shear rate  $\dot{\gamma}$  for IUPEC at 145°C.

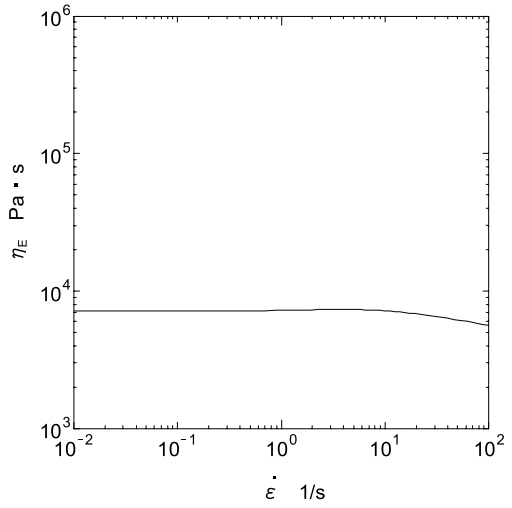


Fig.13 Uniaxial elongational viscosity  $\eta_E$  versus elongational rate  $\dot{\epsilon}$  for LACTY at 195°C.

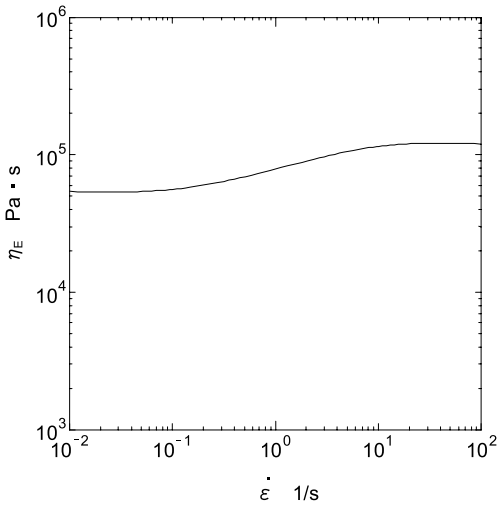


Fig.11 Uniaxial elongational viscosity  $\eta_E$  versus elongational rate  $\dot{\epsilon}$  for IUPEC at 145°C.

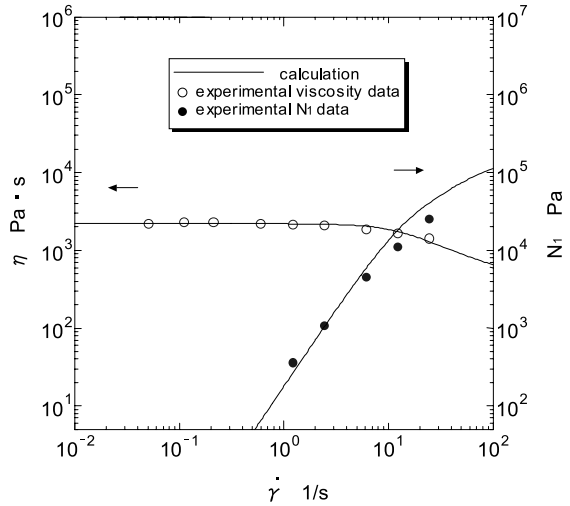


Fig.14 Shear viscosity  $\eta$  and the first normal stress difference  $N_1$  versus shear rate  $\dot{\gamma}$  for BIONOLLE at 175°C.

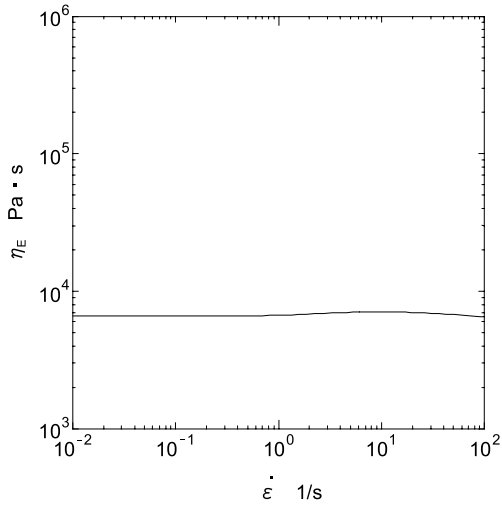


Fig.15 Uniaxial elongational viscosity  $\eta_E$  versus elongational rate  $\dot{\epsilon}$  for BIONOLLE at 175°C.

### 3. 統合化シミュレーションシステムの構築

ブロー成形加工の統合化シミュレーションを生分解性プラスチックに適用するために、ブローアップ過程解析システムとパリソン形成過程解析システムに対するインターフェースプログラムを作成した。図16にパリソン形成過程-ブローアップ過程インターフェースプログラムのフローチャートを示した。このプログラムはパリソン形成過程解析システムで、得られた2次元軸対称のパリソン形状をブローアップ過程解析システムの3次元初期データに変換するプログラムである。パリソン形成過程解析システムの計算結果は、2次元の節点と要素で構成されているため、ブローアップ過程解析システムの3次元シェル要素と節点に変換する必要がある。最初に2次元のパリソン形状の中立面を計算し、軸の円周方向に3次元的に節点を生成し、次にパリソン全体を覆うようにシェル要素を自動生成するものである。ま

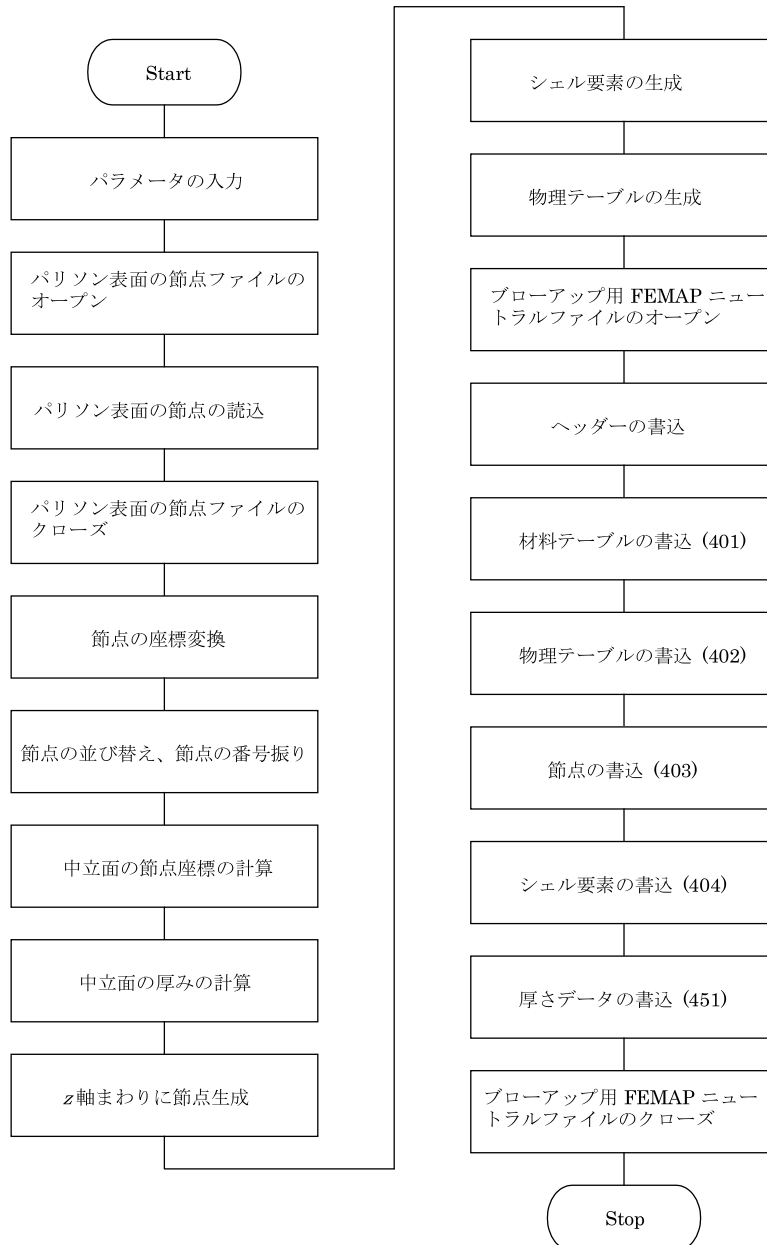


Fig.16 Flow diagram of interface program.

た、パリソン形成過程解析システムにおいて、解の収束安定と精度向上を図るため、ダイ出口に近接するメッシュを軸方向に細かくした。しかし、節点データをブローアップ過程解析システムに直接入力するとメッシュサイズのアンバランスが生じるため、図17に示すように軸方向の分割パラメータにより、パリソン軸方向のメッシュサイズが一定になるようにした。

```

*****
*
*  PARISON-EXTRUSION --> BLOW-UP  *
*
*****
ニュートラルファイル名(*.NEU)をいれてください (MAX.48 CHART.)
in.NEU
ニュートラルファイル名(*.NEU)をいれてください (MAX.48 CHART.)
out.NEU
アウトプットファイル名(*.neu)をいれてください (MAX.48 CHART.)
BL3D-F.neu
円周方向の分割数 ?
32
32.00000000000000
軸方向の分割数 ?
30
30.00000000000000
軸対称:1、非軸対称:0
0
0
スケール ?
1000.

```

Fig.17 Computer Screen of parameter input in the interface program.

#### 4. 生分解性プラスチックへの適用

開発したパリソン形成過程—ブローアップ過程インターフェースプログラムを組込んだブロー成形統合化システムを用いて、生分解性プラスチックに対してブロー成形加工のシミュレーション、およびブロー成形加工の実験を行った。図18にシミュレーションと実験に用いたダイ、コアの形状と寸法を示した。図に示したように熔融樹脂の流れ方向をY軸とし、ダイ、コアの隙間を変えるため、ダイ、コアの端面の差 $w$ を1.0mmと2.0mmにした。また、ダイ、コアの中心軸線上のダイ出口端面に座標系の中心を置いた。実験に使用した生分解性プラスチックはセルグリーンである。本研究では質量流量 $Q$ が11.0kg/hr、樹脂温度が220℃（ダイの出口温度）の条件に対するシミュレーションと実験を行った。  
(unit:mm)

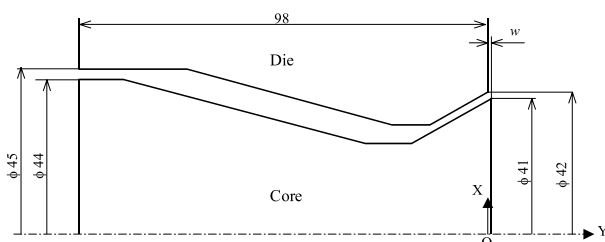


Fig.18 Die, core dimensions and the coordinate system used.

図19にブロー成形機に装着した金型の外観写真を示した。製品の形状は非軸対称で、円周方向においてブローアップ比が変化する形状である。

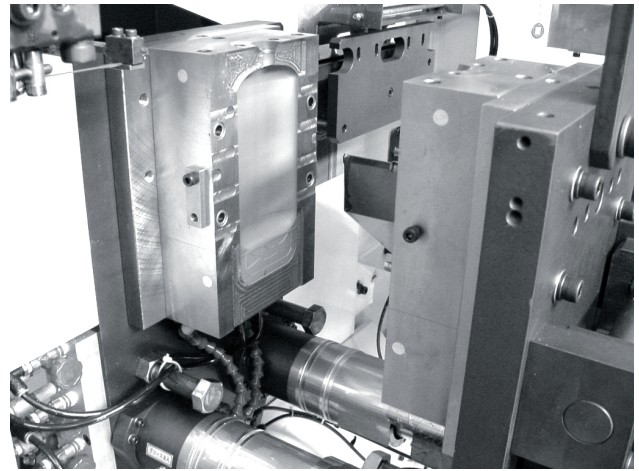


Fig.19 Photograph of a mold for BLOW-UP.

図20は、パリソン形成過程に用いたダイ、コア、およびパリソンの解析領域に対する有限要素モデルを示したものである。要素は2次元軸対称要素で、節点数は1135、要素数は1364である。パリソン形成過程解析における粘弾性流体の構成方程式は、Giesekusモデルを用いた。

この数値解析は、ワイセンベルグ数が高いため、計算方法は、ニュートン流体で計算を行った後、その結果を初期値に用いて、粘弾性流体の計算により、ワイセンベルグ数を徐々に上げて収束解を求めた。

図21は、粘弾性流体の計算により $w=2.0$ mm条件時の予測パリソン形状である。外形状、肉厚形状をみると粘弾性流体の特徴であるダイ流出後のスウェル現象が小さくなっている。これは用いたダイ、コアの形状がダイバージ形（樹脂の流出方向に対してダイ、コアの径が大きくなる形状）で、コンバージ形（樹脂の流出方向に対してダイ、コアの径が小さくなる形状）に比較してダイ内で受ける変形が小さくなり、ダイ流出後における熔融樹脂の弾性回復が小さくなったためである。

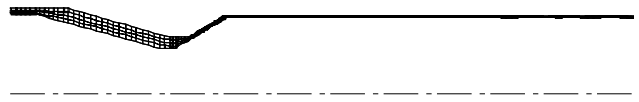


Fig.20 Finite element mesh in the computational domain.



Fig.21 Finite element mesh calculated by viscoelastic model for CELGREEN at 220°C.

次にパリソン形成過程の解析結果をパリソン形成過程—ブローアップ過程インターフェースプログラムに入力して、ブローアップ過程解析システムの3次元初期データを作成した。図22は、インターフェースプログラムを用いて、パリソン形成過程の解析結果を変換したブローアップ過程解析のための初期3次元シェル要素を示したものである。

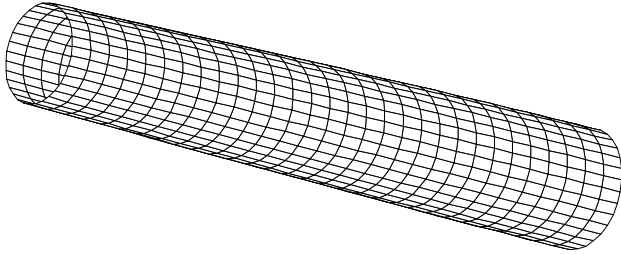


Fig.22 Finite element shell mesh of parison for BLOW-UP system.

図23にインターフェースプログラムによって得られた初期3次元シェル要素のデータを用いて、ブローアップ過程解析システムより計算した製品の厚さ分布のコンター図を示した。ダイ、コアの間隙が大きい $w=2.0\text{mm}$ の場合、パリソンの厚さが大きくなるため、製品全体の厚さは $w=1.0\text{mm}$ の場合より大きくなっている。中央部で厚く、端部で薄い分布傾向は $w=1.0\text{mm}$ と $w=2.0\text{mm}$ の両者において同様であった。

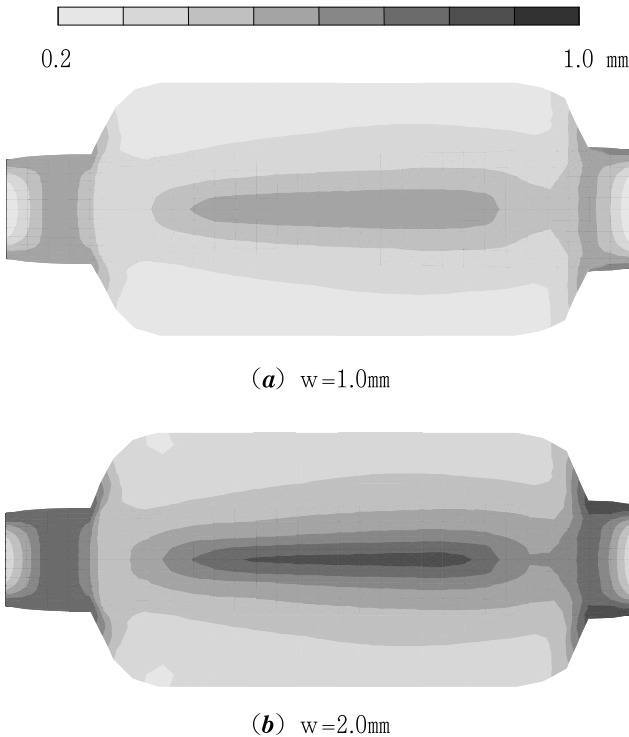


Fig.23 Thickness distribution of products calculated using BLOW-UP system.

図24に製品の中央部 ( $y=0\text{mm}$ ) と端部 ( $y=50\text{mm}$ ) における厚さ分布の計算値と実験値を示した。 $w=1.0\text{mm}$ では中央部、端部ともに計算値が実験値より若干大きくなっている。一方、 $w=2.0\text{mm}$ では端部における計算値が実験値より大きくなっているが、中央部では計算値と実験値とはほぼ等しくなっている。 $w=1.0\text{mm}$ で中央部の計算値が大きくなるのは、中央部ではブローアップがされなく、ブローアップ過程解析の初期データ、すなわち $w=1.0\text{mm}$ で計算したパリソン肉厚が大きくなるのが原因していると考えられる。これは $w=1.0\text{mm}$ の場合、ダイ、コアの間で形成されるダイ内流路の幅が狭くなり、粘弾性流体が実際より過大スウェルしたためと考えられる。一方、端部において $w=1.0\text{mm}$ と $w=2.0\text{mm}$ のいずれの場合も計算値が大きくなるのは、ブローアップ解析における端部のメッシュ粗さが影響を及ぼしていると考えられる。しかし、 $w=1.0\text{mm}$ で中央部と端部との差が少なく、 $w=2.0\text{mm}$ でその差が大きくなる現象は、ブロー成形実験とシミュレーションの両方において同様であり、粘弾性流体を用いたシミュレーション予測は実験値と近似している。これらのことから、本研究で開発したブロー成形統合化シミュレーションは生分解性プラスチックに対しても、肉厚分布の予測ができるものである。

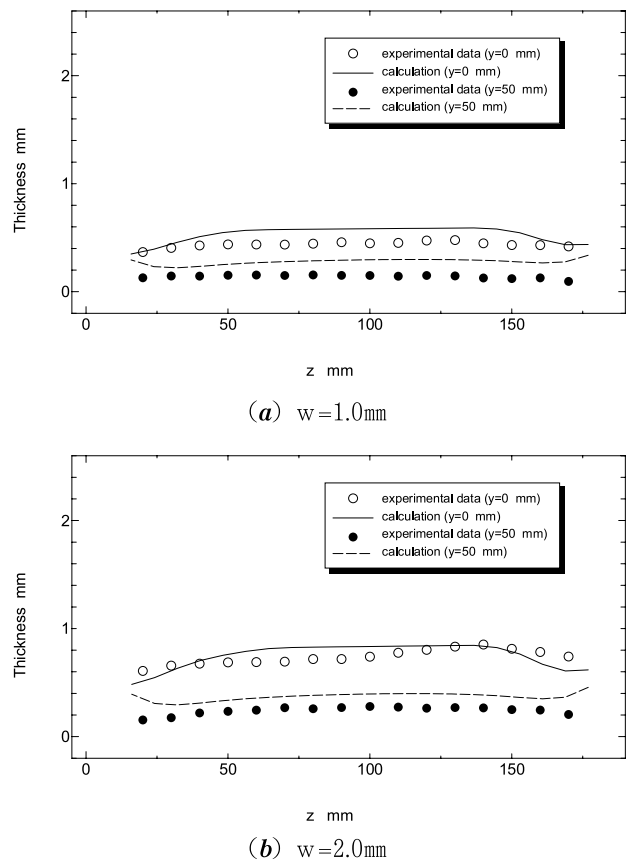


Fig.24 Thickness distribution of products for CELGREEN.

## 5. 結 言

本研究ではブロー成形において溶融樹脂を二重管から押し、パリソンと呼ばれる袋状の樹脂を形成するパリソン形成過程と、形成したパリソンを金型内で膨張させて製品を成形するブローアップ過程を統合するプログラムを開発した。すなわち、パリソン形成過程の解析で得られた2次元の解析データをブローアップ解析の初期3次元シェルデータに変換するものである。本プログラムにより、ブローアップ過程解析において、パリソンの有限要素モデルを作成するための形状定義や要素を分割する作業を省略し、ブロー成形のシミュレーションが行えるようになった。CAEにおける前処理は製品開発・設計・試作工程に大きく占める部分であり、前処理の短縮は大幅なコスト低減につながると考えられる。さらに、本プログラムは生分解性プラスチックにも適用でき、製品の厚さ分布にも適用可能である。

## 参考文献

- 1) 谷藤眞一郎,滝本淳一,小山清人;成形加工,Vol.8, No. 9,590,(1996)
- 2) 篠原正之,梶原稔尚,船津和守;成形加工,Vol.9, No.5, 385,(1997)
- 3) Y.Otsuki,T.Kajiwara,K.Funatsu; Polym. Eng. Sci., Vol.37,No.7,1171,(1997)
- 4) Y.Otsuki,T.Kajiwara,K.Funatsu; Polym. Eng. Sci., Vol.39,No.10,1969,(1999)
- 5) S.Tanoue,Y.Iemkoto; Polym. Eng. Sci.,Vol.39,No. 11, 2172,(1999)
- 6) 澤田秀雄,福田和彦;合成樹脂,Vol.42,No.6,9,(1996)
- 7) 野村賀寿雄,三橋正典,西村敬一;奈良県工業技術センター研究報告,No.26,18(2000)