

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5674341号
(P5674341)

(45) 発行日 平成27年2月25日(2015.2.25)

(24) 登録日 平成27年1月9日(2015.1.9)

(51) Int.Cl. F I
B 2 9 C 51/04 (2006.01) B 2 9 C 51/04
B 2 9 C 51/30 (2006.01) B 2 9 C 51/30
B 2 9 K 67/00 (2006.01) B 2 9 K 67:00

請求項の数 8 (全 30 頁)

(21) 出願番号	特願2010-118562 (P2010-118562)	(73) 特許権者	000005968
(22) 出願日	平成22年5月24日(2010.5.24)		三菱化学株式会社
(65) 公開番号	特開2011-245651 (P2011-245651A)		東京都千代田区丸の内一丁目1番1号
(43) 公開日	平成23年12月8日(2011.12.8)	(73) 特許権者	594128522
審査請求日	平成25年4月12日(2013.4.12)		ウツミリサイクルシステムズ株式会社
			大阪府大阪市中央区久太郎町二丁目4番27号
		(74) 代理人	110000796
			特許業務法人三枝国際特許事務所
		(72) 発明者	福村 三樹郎
			奈良県奈良市中山町西三丁目535番地の91
		審査官	増田 亮子

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ポリエステル系熱成形品およびその製造法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

延伸されたポリエステル系樹脂シートを熱成形するにあたり、成形型として、熱成型用表面層及びこれに隣接する背後層を有する熱成型型であって、

該表面層は熱浸透率 ($\text{kJ} / \text{m}^2 \text{s}^{1/2} \text{K}$) が $0.01 \sim 2.5$ の材料により形成されると共に下式：

$$F^{1/2} \times 10^3 > t > G \dots\dots\dots (1)$$

(式中、 t ；表面層の厚み (mm)、 \quad ；温度伝達率 (m^2 / s)、 F ； 30 、 G ； 0.04) で表される厚みを有し、かつ前記背後層の熱浸透率は前記表面層より大きい材料により形成されている成形型を用い、賦形から離型までの過程において少なくとも一時的にその成形型表面層の表面温度又は賦形体との界面温度を (当該成形材料樹脂の $T_g + 50$) 以上の温度にして成形を行うことを特徴とする熱成形品の製造方法。

【請求項2】

前記工程の成形サイクル中、(1) 該背後層を経由する加熱、(2) 該表面層の表面または賦形体裏面への高温気体の接触、(3) 該表面または賦形体裏面への赤外線照射、の中の少なくとも1つの手段を用いて、(成形材料樹脂の $T_g + 50$) 以上の表面温度を得る請求項1に記載の熱成形品の製造方法。

【請求項3】

前記工程の成形サイクル中、(1) 該背後層を経由する冷却、(2) 冷却用流体流の賦形体裏面へ接触、(3) 揮発性液体の賦形体裏面への接触、の中の少なくとも1つの手段

10

20

を用いて、前記表面温度を降下させて離型を行う請求項 1 又は 2 に記載の熱成形品の製造方法。

【請求項 4】

該表面、または該表面下の浅層部または賦形体裏面の成形サイクルに伴い変化する温度を計測し、賦形体の熱処理をともなうプロセスを管理または制御することを特徴とする請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の熱成形品の製造方法。

【請求項 5】

賦形の方法として、1) 真空成形法、2) 圧空成形法、3) 真空圧空成形法、4) プラグアシストを伴う前記成形法のいずれか、5) 嵌合ダイ成形法、のいずれかの方法を用いる請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載の熱成形品の製造方法。

10

【請求項 6】

成形型の該背後層温度を、該表面温度の所定の最高温度と最低温度の間で制御し、賦形と同時にあるいは賦形後に、高温気体の賦形体裏面への接触および又は同裏面への赤外線照射により所定の最高温度に到達させる工程と、冷却用気体流及び又は揮発性液体を成形体裏面に接触させ離型する工程を含む請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載の熱成形品の製造方法。

【請求項 7】

成形型の該背後層温度を該表面温度の所定の最低温度ないしこれを下回る温度に設定し、賦形と同時にあるいは賦形後に、背後層温度以上の高温気体の賦形体裏面への接触および又は同裏面への赤外線照射により加熱する工程と、次いで所定の離型温度に達するまで待つて離型する工程を含む請求項 1 ~ 5、のいずれかに記載の熱成形品の製造方法。

20

【請求項 8】

該成形型の該背後層温度を該表面温度の所定の最高温度ないしこれを上回る温度に設定しておき、賦形を行って該表面温度の所定の最高温度への到達を待つて冷却用気体流を賦形体裏面に接触させる工程、または該最高温度への到達後に賦形と同時にあるいは賦形後に冷却用気体流を賦形体裏面に接触させる工程により該表面温度を所定の離型温度に到達せしめて離型することを特徴とする請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載の熱成形品の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

30

【0001】

本発明は延伸された熱可塑性ポリエステル系樹脂のシート又はフィルムを用いた熱成型品及びその製造方法に関する。本発明の製造方法は、賦形体を高速で加熱及びまたは冷却し、更には熱成形の過程において予熱温度以上の高温の熱処理を行うことにより耐熱等の向上した透明性等の高い熱成形品を高速で効率よく製造するものである。

【背景技術】

【0002】

ポリエチレンテレフタレート(PET)を代表とする熱可塑性ポリエステルは、成形品は強度が大きく、耐薬品性、耐光性、耐摩耗性等の耐久性にも優れており、シートや各種形態の容器等に成形し飲料、液体食品等の容器や食品トレーなどとして広く用いられている。しかしながら、用途によっては、なお耐熱性、耐衝撃性、ガスバリア性などが充分でなく、古くから種々の検討がなされてきた。この結果、熱成形の過程において高温の熱処理を行うことにより耐熱性等の増加し且つ透明性等の高い熱成形品を製造する種々の方法が開発されてきた。しかしながら、このような方法で高速で効率のよい製造方法はなく、特に延伸材料を使用した透明性のあるものは未だ商業的成功には至っていない。

40

【0003】

例えば(1)特公昭44-5108には、特定の結晶化度等を有するポリエチレンテレフタレートの板またはシートを輻射熱で予熱して真空成型に賦し、そのまま再び輻射熱にて加熱するなどして成形型内で熱処理する方法が開示されているが、この方法では熱処理に非常に長い時間がかかっており実用的ではない。また、(2)特公昭56-7855に

50

はポリエステルシートを一度１軸延伸配向させ次いでこれを加熱収縮させたシートを用いて熱成形する方法が開示されている。ここでは必要により成形時に熱風を用いる方法により熱固定する方法を例示しているが熱処理に非常に長い時間がかかり実用的ではなく、また冷却離型して良品を得る概念も含まれていない。また、(３)特公平５－４５４１２では、特定条件で２軸延伸し更に熱収縮させたシートを用いて熱成形と熱処理を行う方法が開示されている。ここでは、加熱型への移し替え、熱風、熱水、赤外線などによる加熱法を例示しているが、その具体的な方法について触れておらず、また冷却して離型するプロセスは含まれていない。(４)特公昭６０－０３１６５１には特定の複屈折率を有するポリエステル延伸シートを熱成形し熱処理する方法が開示され、具体的には加熱された金型で成形し、冷却して成型品を得ることが示されているが、冷却方法は示されておらず、例えば金型ジャケットに熱媒を通じて加熱冷却しながらこのプロセスを行うとすれば時間がかかり実用的ではない。更にはまた、(５)特公昭５９－０５１４０７では、特定の複屈折率を有する２軸配向ポリエステルシートを熱盤に接触させ特定の温度に加熱し特定の圧力で圧空成形する方法が開示されているが、成形時の熱処理は実質的になされていない。また、特許３０５３２４５号は一軸延伸ポリエステルを用いた熱成形について開示しているが、熱成形方法についての開示はなく、また示された耐熱向上も微々たるもので実質的な効果はない。

10

【０００４】

一方、特開２０００－３５５０９１、特開２０００－２９７１６２等のように通常ＣＰＥＴと呼ばれる結晶化促進の為の核剤を含むポリエチレンテレフタレート樹脂を押出機よりシートに成形し、これを用いて熱成形と熱処理を行い結晶化を進める技術が知られており、球晶が発達し耐熱性については大幅に向上するものの白色不透明となり、耐衝撃性、特に低温における耐衝撃性が大きく低下する。しかし、これらのＣＰＥＴ成形では、熱処理すなわち結晶化に時間をかければ、熱処理温度以上の耐熱が得られ、材料が高温のまま離型しても変形が少なく冷却はあまり問題にならない。そして熱成形サイクル短縮とより安定な生産のために冷却型から加熱型へ、あるいは加熱型から冷却型へ移して処理することも容易である。

20

【０００５】

また、特許２６６８８４８号は、延伸された合成樹脂シートを成型する熱成形装置を開示し、その効果としては延伸により熱収縮性の材料となったポリスチレン等の材料を、加熱されたプラグと加熱された空気を用いて、深絞り等の成形ができることを述べている。この発明は熱収縮しやすくなった材料を定位置でクランプ固定して熱風で予熱しながら、延伸により成形しにくくなった材料をプラグで強制的に押し延ばしながら成形するもので、熱処理については何の記載もないが、こうした装置で予熱温度以上の熱処理はできない。また特許２６６８８４７号も前記同様の材料を同様にクランプ固定するようにし、加熱凹型に対して低温の凸型プラグを押し込み圧空成形する装置を開示している。この場合も延伸配向の熱固定を進める程の高温の熱処理については何の開示もしていないが、仮に高温の熱処理ができたとしても、シワの発生などが問題となり、またオフセットまたはアンダーカット形状のある成型品には適用しにくい。

30

【先行技術文献】

40

【特許文献】

【０００６】

【特許文献１】特公昭４４－５１０８号公報

【特許文献２】特公昭５６－７８５５号公報

【特許文献３】特公平５－４５４１２号公報

【特許文献４】特公昭６０－０３１６５１号公報

【特許文献５】特公昭５９－０５１４０７号公報

【特許文献６】特許３０５３２４５号公報

【特許文献７】特開２０００－３５５０９１号公報

【特許文献８】特開２０００－２９７１６２号公報

50

【特許文献 9】特許 2 6 6 8 8 4 8 号公報

【特許文献 1 0】特許 2 6 6 8 8 4 7 号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0 0 0 7】

本発明はこのような従来技術の問題点に鑑みてなされたものである。その主な目的は、延伸されたポリエステル系樹脂シートの熱成形の賦形から離型までの過程において、賦形のためのシート予熱温度以上の高温の熱処理を行って離型する熱成形を高速で効率良く連続的に行う方法を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0 0 0 8】

(1) 延伸されたポリエステル系樹脂シートを成形材料として熱成形するにあたり、成形型として、熱成型用表面層及びこれに隣接する背後層を有する熱成型型であって、該表面層は熱浸透率 $(k J / m^2 s^{1/2} K)$ が 0.0 1 以上(望ましくは 0.1 以上、更に望ましくは 0.3 以上)でかつ 2.5 以下(望ましくは 2.0 以下、更に望ましくは 1.0 以下)の材料により形成されると共に下式：

$$F \frac{1}{2} \times 10^3 > t > G \dots\dots\dots (1)$$

(式中、t；表面層の厚み(mm)、；温度伝達率 (m^2 / s) 、F；3.0、G；0.04)

で表される厚みを有し、かつ前記背後層の熱浸透率は前記表面層より大きい(望ましくは 7 以上)の材料により形成されている成形型を用い、賦形から離型までの過程において少なくとも一時的に該表面層の表面温度(又は賦形体との界面温度)を(当該成形材料樹脂の $T_g + 50$)以上、望ましくは($T_g + 60$)以上、且つ T_m (結晶融点)以下、望ましくは($T_m - 30$)以下の温度にして行うことを特徴とする熱成形品の製造方法を提供するものである。また、本発明は下記(2)～(9)の発明を提供するものである。なお、本発明は特に繰り返しの連続成形に適する方法である。

【0 0 0 9】

(2) 前記成形工程中、成形サイクル(賦形待ちのインターバル含む)の中で、1)該背後層を経由する加熱、2)高温気体の該表面または賦形体裏面(成形型に接触していない面)への接触、3)赤外線該表面または賦形体裏面(成形型に接触していない面)へ照射の中の少なくとも1つの手段を用いて、(成形材料樹脂の $T_g + 50$)以上の表面温度を得る(1)の熱成形品の製造方法。

なお、本方法において用いられる高温気体は、強制的な気体流であることが望ましい。

【0 0 1 0】

(3) 前記工程の成形サイクル中、1)該背後層を経由する冷却、2)冷却用流体流の賦形体裏面へ接触、3)揮発性液体の賦形体裏面への接触の中の少なくとも1つの手段を用いて、前記表面温度を降下させて離型を行う(1)～(2)の方法。なお、この方法において、この温度降下は 5 以上でることが望ましく、また用いられる冷却用気体は強制を伴う気体流であることが望ましい。

【0 0 1 1】

(4) 該表面温度、または該表面下の浅層部または賦形体裏面の成形サイクルに伴い変化する温度(以下サイクル温度という)を計測し、賦形体の熱処理を伴うプロセスを管理または制御する(1)～(3)の方法。

【0 0 1 2】

(5) 賦形の方法として、1)真空成形法、2)圧空成形法、3)真空圧空成形法、4)プラグアシストを伴う前記成形法のいずれか、(5) 嵌合ダイ成形法、のいずれかの方法を用いる(1)～(4)の方法。

なおこれらの賦形方法の中で、真空圧空成形法または圧空成形法の方法が特に好ましく用いられる。

【0 0 1 3】

(6) 成形型の該背後層温度を、該表面温度の所定の最高温度と最低温度の間で制御し、賦形と同時にあるいは賦形後に、高温気体の賦形体裏面への接触および又は同裏面への赤外線照射により所定の最高温度に到達させる工程と、冷却用気体流を成形体裏面に接触させ離型する工程を含む(1)~(5)の方法(パターンA)。

【0014】

(7) 成形型の該背後層温度を該表面温度の所定の最低温度ないしこれを下回る温度に設定し、賦形と同時にあるいは賦形後に、背後層温度以上の高温気体の賦形体裏面への接触および又は同裏面への赤外線照射により加熱する工程と、次いで所定の離型温度に達するまで待つて離型する工程を含む(1)~(5)の方法(パターンB)。

【0015】

(8) 該成形型の該背後層温度を該表面温度の所定の最高温度のないしこれを上回る温度に設定しておき、賦形を行って該表面温度の所定の最高温度への到達を待つて冷却用気体流を賦形体裏面に接触させる工程、または該最高温度への到達後に賦形と同時にあるいは賦形後に冷却用気体流を賦形体裏面に接触させる工程により該表面温度を所定の離型温度に到達せしめて離型することを特徴とする(1)~(5)の方法(パターンC)。

【0016】

(9) ポリエステル系の同樹脂の非延伸シートを用いた通常の熱成形品に比べ、耐熱性が少なくとも10 向上した熱成型品を得ることを特徴とする(1)~(8)の何れかの方法。

【0017】

(10) 上記(1)~(8)の何れかの方法を用いることにより得られたものが、ポリエステル系の同樹脂の非延伸シートを用いた通常の熱成形品に比べ、耐熱性が少なくとも10 向上した熱成型品

【図面の簡単な説明】

【0018】

【図1】本発明の成形型の断面図である。

【図2】本発明の成形型の断面図である。

【図3】連続繰り返し成形中の成形表面温度の変化を示す模式図である(パターンA)。

【図4】連続繰り返し成形中の成形表面温度の変化を示す模式図である(パターンB)。

【図5】連続繰り返し成形中の成形表面温度の変化を示す模式図である(パターンC)。

【発明を実施するための形態】

【0019】

以下本発明の内容をさらに詳細に説明する。

ポリエステル樹脂

本発明の延伸されたシートに用いられポリエステル系樹脂は、ポリエチレンテレフタレート系樹脂、ポリ乳酸系等の結晶性熱可塑ポリエステル系樹脂であり、ポリエチレンテレフタレート系樹脂が好ましく、ポリエチレンテレフタレートホモポリマーは勿論のこと、エチレンテレフタレート単位を65モル%以上、より好ましくは90%以上含む実質的に線状のコポリエステルを含有する。このコポリエステルを構成する成分として例えば、イソフタル酸、ナフタレン-2,6-ジカルボン酸、ジフェニルジカルボン酸、ジフェノキシエタンジカルボン酸、ジフェニルエーテルジカルボン酸、ジフェニルスルホンジカルボン酸、ヘキサヒドロテレフタル酸、ヘキサヒドロイソフタル酸、アジピン酸、セバチン酸、アゼライン酸、p- -ヒドロキシエトキシ安息香酸、 -オキシカプロン酸の如き芳香族、脂環族、脂肪族の二官能性カルボン酸、トリメチレングリコール、テトラメチレングリコール、ネオペンチルグリコール、ヘキサメチレングリコール、デカメチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、1,1-シクロヘキサジメチロール、1,4-シクロヘキサジメチロール、2,2-ビス(4'- -ヒドロキシエトキシフェニル)スルホン酸のようなグリコール等が挙げられる。ここに挙げた化合物の1種または2種以上を含んでいてもよい。

【0020】

ポリエステルは、実質的に線状である範囲で少量の3官能以上の他官能化合物を共重合成分として含んでいるものであってもよい。

【0021】

またポリエステルの極限粘度(試料1.0gをフェノール/テトラクロロエタン50/50(重量比)の混合溶媒100ml中に溶解した溶媒について30 で測定した値)は0.5以上~1.3dl/g、好ましくは0.6~1.1dl/gの範囲にあることが好ましい。またガラス転移点(Tg)(シートより5mg採取して、それを窒素中にて285 で5分間熔融後急冷し、急冷物をDSCにて昇温速度20 /分の条件下で測定した値)は、40~110 の範囲のものが好ましく、50~100 の範囲のものは更に好ましく、60~100 の範囲のものが特に好ましい。Tgがこれより小さい場合も大きい場合も、延伸シートの面配向度(P)を適正な範囲に制御することが困難になり好ましくない。

10

【0022】

更に融点(Tm)(上記Tgと同条件で測定した値)は150~300 の範囲が好ましく、200~280 の範囲が更に好ましく、230~270 の範囲が特に好ましい。

【0023】

またポリエステルの添加剤、たとえば核剤、滑剤、紫外線吸収剤、熱安定剤、酸化防止剤、着色剤、帯電防止剤等を添加してもよい。さらに、ポリメチルペンタンや、ポリカーボネート、ポリメチルメタクリレート等の強化材も場合によっては添加してもよい。

20

【0024】

延伸シート

前記のポリエステル樹脂からなるシートは実質的に延伸配向したものが用いられる。延伸方法は特に限定されるものではなく公知の延伸方法がいずれも用い得る。

ポリエステルシート(未延伸)を製造するには、例えば、原料樹脂を押出機に供給し、樹脂温度260~320 程度で熔融押出し、押出機に接続したフラットダイを通じて押出されたシート状熔融物をキャストイングロールで引取り冷却固化して製造する。また、押出機にサーキュラーダイを接続してインフレーション成型したものを使用してもよく、またカレンダー機によりシーティング成形したものを使用してもよい。

【0025】

30

このようにして得られたシートは通常は有効な延伸処理はなされておらず、これをインラインあるいはアウトラインで延伸処理する。延伸装置は特に限定されず、物理的に延伸可能な方法であれば適宜の装置を採用することができ、1軸延伸、2軸延伸のいずれも採用することができる。

【0026】

これらの内で、1軸延伸方式は温度調整したシートを1方向にのみ延伸する方法であり、通常は、複数のローラーを組合わせた装置あるいは拡幅用のテンターと呼ばれる装置が用いられる。また、2軸延伸は予熱したシートを縦横2方向に延伸するものであり、通常は上記の1軸延伸に続いて、更に拡幅用のテンターにて幅方向の延伸が行われる。2軸延伸方式では、縦横交互に延伸する逐次法と、縦横ほぼ同時に延伸する同時法があるが何れの方法を用いてもよい。又上記した1軸延伸方式あるいは2軸延伸方式以外の方法として、例えば円筒状フィルムのバルーンを高い空気圧により膨張させることによって延伸してもよく、また温度調整したシートをローラーにより圧延してもよい。このようにして得られる市販の延伸シートには通常熱固定処理が施されているが、本発明ではこうした熱固定処理が施されたものも、施されていないものも使用できるが、施されていないものが特に好ましい。また、こうした延伸方法の中では1軸延伸によるシートは、延伸装置も製造方法も比較的簡易で低コストででき、熱成形性も良く残して調整することができ、連続成形機へのクランプも容易で、また本発明の熱処理構成により配向の異方性のも問題も解消することができ非常に好ましい。

40

【0027】

50

このような延伸は、通常、ポリエステル樹脂シートをその樹脂のガラス転移点以上、かつ結晶融点以下にして行われるが、延伸による配向効果をより発揮させるためには、ガラス転移点以上で、かつ結晶融点より60以上低い温度に調整して行われる。また、延伸プロセスの最後に延伸状態を保持しつつ通常は延伸時よりも高い温度で短時間加熱する所謂熱固定(ヒートセット)処理を行い配向効果(配向結晶化度)の向上をはかることが行われる。本発明の成形法では、このような熱固定を行っていないシートも、熱固定を行ったシートも用いることができるが、熱固定を行っていないシートはより好ましく、より大きな絞り率の成形が、また細部の成型状態がより良い成形が可能である。

【0028】

上記のようにして製造され本発明に使用される延伸シートは、その延伸配向効果を示す指標として面配向度(P)が0.015~0.15であることが好ましく、0.02~0.10であることは更に好ましく、0.02~0.08であることが特に好ましい。また、かかるシートは流れ方向と幅方向のうち少なくとも一方向の延伸が1.2倍~6倍に、より好ましくは1.8~4倍に延伸して得られる。こうした中で1軸延伸で、延伸倍率が1.5~3倍のもの、あるいはPが0.02~0.08のものが特に好ましく使用できる。

【0029】

また延伸したシートに熱をかけて収縮処理したシートも好ましく利用することができ、この場合は収縮処理した状態で上記の面配向度を有していることが好ましい。

【0030】

面配向度(P)がこれより小さい場合は、熱成型品の耐熱性をはじめ機械的特性等の改善が十分ではなく、また、これらを超えるものは熱成形性に劣り深絞りのものや、精密に成形ができない。あるいは圧空賦形に非常に高い圧力を必要とし、商業生産にとうてい適さない程の堅固で高価な圧空成型機が必要になってしまう。

【0031】

上記の面配向度(P)は延伸による分子配向を示す指標であり、次式により求められたものである。

シートの面配向度(P) = $(n_1 - n_2) / 2 + (n_2 - n_3) \cdots (2)$ 式シートの複屈折率(n) = $n_1 - n_2 \cdots (3)$ 式

ここで n₁ ; シート面方向の最大屈折率

n₂ ; n₁に直角する屈折率

n₃ ; シート厚さ方向屈折率

ただし、n₁、n₂、n₃ はアッペ屈折計を用い、ナトリウムD線を光源として25の温度による測定値とする。

本発明にて用いられる延伸されたポリエステルシートの平均厚みは、通常0.003~1.5mmであり、0.06~1mmであるのが好ましく、0.1~0.6mmであることが更に好ましい。樹脂シートの厚みが前記の範囲より薄いと強度が不足するなど成形品として実用的でなく、一方、前記の範囲を超えると延伸シートの製作が難しくなる。

【0032】

ポリエステル樹脂は上記延伸工程により、長鎖の分子配向と結晶化が進み、延伸に際して熱固定処理がなされると更に結晶化が進み配向が安定する。そして、その結晶化度は熱成形性や成形品の特性に影響する。本発明に用いられる延伸シートのポリエステル樹脂がポリエチレンテレフタレートホモ樹脂である場合、結晶化度は3~35%であることが好ましく、5~25%であるのが更に好ましい。結晶化度がこの範囲より低いと最終成形品の耐熱性向上効果が小さい。一方、この範囲を越えると熱成形が困難になり、また耐衝撃性が低下する傾向がある。なお、こうした配向結晶をしたものは着色剤等を配合したものではない限り高度に透明であるが、前記の熱固定処理に際して過剰に加熱したものなどは球晶が成長し透明度が低下したり、白化したりし熱成形性や耐衝撃性を低下させるので、これは避けることが好ましい。なお、結晶化度は密度勾配管を用いる常法によって求めることができる。

10

20

30

40

50

【0033】

なお上記のシートは事前に製作しておいたものを熱成形すればよいが、本発明においては延伸と熱成形を一貫ラインでおこなうこともでき、その場合延伸時の熱をできるだけ逃がさないようにして熱成形に利用することもできる。なおその場合は成形前の延伸品をそのまま冷却したとして前記のシートの諸特性を考慮すればよい。

【0034】

賦形方法と熱成形装置

熱成形あるいは圧空成形という用語はプロセス全体を表すもので、賦形はその中の一つ工程として説明する。本発明において賦形の基本的な方法としては、1) 真空成形法、2) 圧空成形法、3) 真空圧空成形法、4) プラグアシストを伴う前記成形法のいずれか、5) 10 嵌合ダイを用いたプレス成形法など通常の熱成形に使われる方法は何れも利用することができる。そしてこれらの方法の中では、真空圧空による賦形または圧空による賦形の方法が特に好ましく用いられる。

なおこの賦形に先だっては、成形シートの予熱が行われるが、本発明で使用する前記の材料シートを過剰な高温にしたり、長い時間予熱すると成形性が低下するなど好ましくない。材料の予熱温度は材料温度として $T_g \sim (T_g + 50)$ 程度とすることが好ましく、また $75 \sim 120$ 程度とすることが好ましい。また迅速に予熱し予熱後は迅速に賦形することが好ましい。

【0035】

本発明の製造法にて用いられる熱成形装置としては、圧空成型機、真空圧空成型機などの圧空を使用して成形を行う通常の熱成型機に高温高压の気体を供給しあるいは冷却用気体をブLOWする機構を付加することにより用いることができる。また、真空成型機、嵌合ダイのプレス成型機なども高温気体あるいは冷却用気体をブLOWする機構などを付加して用いることができる。プラグアシストなど、公知の補助的方法も適宜組合せて使用してよい。

【0036】

このような熱成形機には通常はシート予熱機構が備えられており、その予熱機構には遠赤外線ヒーター加熱などのオープンによる間接加熱法か、あるいは加熱されたローラーや金属板等に接触させる直接加熱法が採用されているが何れも利用でき、シートの予熱と温度調整が可能な方法はどのような方法も利用できる。

【0037】

なお、本発明の特別な対応として後述するようにこのような予熱機構を有しない熱成型機も利用できる。

【0038】

またこれらの熱成型機には、シートを一枚ずつ成形する枚葉成型機と、長尺のシートを連続的に順次成型する連続成型機がありいずれも利用できるが、本発明の方法は後者の連続成型機を用いて連続成形を行うことを本領とする方法である。

< 成形型の構造 >

本発明の型構成は、雄型、雌型、嵌合ダイ(マツチドダイ)など熱成形に通常使われているどのような成形型にも適用できる。なお、嵌合ダイの場合は雌雄何れかの型法が後述する構造と機構を備えておればよい。具体的な例として図1のような構造を示すことができる。図1において1は成形体本体、2は成形用表面層で t はその厚み、3は真空孔、4は導気孔、5は熱媒通路を示す。

【0039】

< 熱浸透率について >

本発明では特定の特性値すなわち熱浸透率を有する材料からなる表面層と背後層を組み合わせる。すなわち表面層は熱浸透率 $(k \text{ J} / \text{m}^2 \text{ s}^{1/2} \text{ K})$ が $0.1 \sim 25$ の材料により形成され、これに隣接する背後層は表面層より大きな浸透率を有する。この熱浸透率は次式(2)にて得られる値である。

【0040】

熱浸透率 (b) = $\frac{(C)^{1/2}}{\dots\dots\dots(2)}$

；熱伝導率 ($J s^{-1} m^{-1} K^{-1}$)

；密度 ($kg m^{-3}$)

C ；非熱容量 ($J kg^{-1} K^{-1}$)

かかる熱浸透率は二つ物体の界面を通過して移動する熱量にかかわる特性値であり、この値が小さいと界面は少ない熱量しか流さない。特定の熱浸透率 (b 値) を有する材料を組み合わせる技術的意義については後述する。

【 0 0 4 1 】

< 温度伝達率について >

本発明の成形型は前記の材料を組み合わせると共に、その表面層は下式 (1)

10

$F \frac{1}{2} \times 10^3 > t > G \dots\dots\dots(1)$

(式中、 t ；表面層の厚み (mm)、 ；温度伝達率 (m^2 / s)、 F ； 3 0、 G ； 0 . 0 4)

を満足する厚さ (t) を有する。上記の式中、温度伝達率 (値) は次式にて得られる特性値である。

【 0 0 4 2 】

= $\frac{\dots}{C} (m^2 / s)$

(式中、 、 、 C は前記式 (2) の場合と同じものを意味する)

この 値は、温度拡散率等とも呼ばれ、物体内の任意の点の温度の時間的变化を示す指標となる。またこの式は温度の時間的变化は、温度の傾斜の位置的变化に比例することを意味している。

20

【 0 0 4 3 】

下記の表 1 に、いくつかの材料の b 値と 値の参考値を示す。なお b 値も 値も測定温度により若干違った値を示すが、本願においては、厳密には 2 0 の値にて規定する。

また、使用温度範囲で相変化をする材料を含むなどにより、これらの値が直線的变化を示さない場合は、2 0 と 1 5 0 の時の値の平均値をもってこれに代えるものとする。

【 0 0 4 4 】

【表 1】

整理 番号	材料名	b値 $\text{kJ}/\text{m}^2\text{s}^{1/2}\text{K}$	α 値 m^2/s	備考
1	石膏	0.75	0.33×10^{-6}	
2	大理石	2.4	1.33×10^{-6}	
3	木材 まつ	0.32	0.11×10^{-6}	
4	ソーダガラス	1.44	0.38×10^{-6}	
5	アルミナ (キョーセラ A479)	4.7	9.7×10^{-6}	
6	ジルコニア (キョーセラ Z220)	2.8	1.2×10^{-6}	
7	炭化珪素 (東海高熱RS900)	21	97×10^{-6}	
8	炭化珪素 (東海高熱RS230)	16	79×10^{-6}	気孔含む
9	窒化珪素 (キョーセラ SN220)	6.5	9.5×10^{-6}	
10	窒化アルミ (キョーセラ SN215)	19	62×10^{-6}	
11	エポキシ樹脂 (日新樹脂 CEP-7)	0.67	0.11×10^{-6}	
12	エポキシ樹脂 (アルミ粉入り) (日新樹脂*)	1.66	0.58×10^{-6}	* RT461
13	硬質ウレタンフォーム (サンモジュール33)	0.70	0.11×10^{-6}	
14	グラファイトシート SS400 (大塚電機)	29.1 3.5	189×10^{-6} 1.66×10^{-6}	平面方向 厚み方向
15	亜鉛	17.5	42×10^{-6}	
16	亜鉛合金 (鋳物)	17.7	36×10^{-6}	
17	アルミニウム (A1050)	23.3	90.6×10^{-6}	
18	同 (A5052)	17.4	53.0×10^{-6}	
19	鉄 (純)	16.1	20.4×10^{-6}	
20	鑄鉄 (4C以下)	12.6	17.2×10^{-6}	
21	炭素鋼 (0.5C以下)	14.0	14.7×10^{-6}	
22	ニッケル鋼 (10Ni)	9.7	17.2×10^{-6}	
23	不銹鋼 (SUS 304)	8.0	6.7×10^{-6}	
24	銅	33.9	129×10^{-6}	

【0045】

表面層の材料は、固体であって無害かつ強度や耐熱性等が熱成形に耐えられるものであり、b値（熱浸透率）が0.1以上、望ましくは0.3以上であり、そして25以下、望ましくは20以下、更に望ましくは10以下であれば何れの材料を用いてもよい。参考として身近な各種の材料の材料についてのb値と α 値を表1に示すが、この表の中にあるものも、表以外のものも任意の材料を任意に選んで組み合わせ使用することができる。

【0046】

こうした材料の中で、表面層材料としては、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、ウレタン樹脂、熱硬化性ポリエステル樹脂、フォスファゼン樹脂、熱硬化性ポリイミド等の熱硬

10

20

30

40

50

化性樹脂、あるいはポリアミドイミド、POM、PEEK、等の耐熱性のある熱可塑性樹脂、あるいはこれらの樹脂の発泡体または多孔体、あるいはまたこれらの樹脂にアルミニウム、鉄、酸化チタン、グラファイト、ガラス、各種セラミックス等の粉体あるいは繊維材料との複合体は、型の製作も容易で比較に安価であり特に好適に用いることができる。あるいはまた、アルミナ、ムライト、コージライト、イットリア、チタニア、炭化珪素、窒化珪素、窒化アルミ、ジルコニア、サーメット、あるいはこれらを含む複合物や珪瑯等のセラミックス材料は耐熱性、耐久性等が優れておの特に好適に用いられる。金属材料としては、ニッケル成分の多いニッケル鋼、SUS、チタン系材料等が利用でき、SUS材料等が好適に利用できる。こうした材料により前記(1)式に示した範囲内の厚みの成形用表層を形成させる。

10

【0047】

なお、このようなb値は物体としてその値を示しておれば良く、例えば内部に気泡等の空隙含んだもの、あるいは他の物体を含んだ複合体も好適に使用することができる。この複合体は例えば多層体であってもよく、その場合は表面層全厚みを考量したb値の測定値あるいは計算値が上記を満足しておればよい。従って本発明の表面層の表面に上記の限りにおいてどのような層を形成させてもよく、例えばどのような材料でメッキ保護層を形成させてもよい。

【0048】

こうした材料により前記(1)式に示した範囲内の厚みの成形用表面層を形成させる。

【0049】

20

$$F \quad 1 / 2 \times 10^3 > t \quad > \quad G \quad \cdots \cdots (1)$$

(式中、t；表面層の厚み(mm)、；温度伝達率(m^2/s)、F；30
G；0.04)

なおここに示す温度伝達率(値)は次の式で求められる特性値である。

【0050】

$$= \quad / \quad C \quad (m^2/s) \cdots \cdots (5)$$

なお、 α 、 β 、Cは前述の熱浸透率の算出に用いた名称と同じ単位。

【0051】

(1)式においてFの値は30であること、望ましくは15であること、更に望ましくは8であることが必要であり、またGの値は0.04であり、望ましくは0.06、更に望ましくは0.09、そして特段に望ましくは0.13であることが必要である。

30

【0052】

本発明の範囲でtを大きくしていく、すなわちF値を大きくしていくと、成形サイクルに伴う該表面温度の頂点、低点の復帰に次第に時間がかかるようになり、また該表面温度の部位によるバラツキを補正する能力がなくなり、そしてまた条件の定常化に時間がかかるようになり、F値が30を超えると本発明の実用的な意義がなくなる。反対にF値を小さくしていくと、より高速サイクル、よりバラツキを小さく、より短時間に定常化できる可能性がでてくるが、成形材料厚み違いや種々の成形条件に対する汎用性が小さくなる。そして更にtを小さく、すなわちG値を小さくしていくと背後層の熱量の影響がおおきくなり、熱容量の比較的ちいさな気体のブLOWでは賦形体を加熱冷却することが次第に困難になり、G値が0.04より小さい場合は本発明の意義がなくなる。

40

【0053】

なお、表面層材料としてb値が10以上の材料を用いる場合は、t値は比較的が大きくなり、それでも上記(1)式の上限以下であれば背後層の温度を必要な速度で伝える機能はあるのであるが、現実的には次の観点からはt値は更に小さくしてもよく、小さいことがより望ましい。一方、通常の成形材料のb値は0.3~1.0程度で、t値は0.03~0.1 $\times 10^{-6}$ 程度であり、このような表面層材料(b値が10以上の場合は特に)よりも大きく下回ってくるので、気体接触による加熱冷却に際しては、賦形体の厚み方向温度勾配が急激になる一方、成形型の表面および表面直下の温度の変化は小さく留まることになる。これらの温度変化が小さければ、背後層への温度影響は実質的になくなるの

50

で t 値は小さくてもよくなり、これをより小さくして、背後層と表面（界面）との間の熱量の授受をある程度までは速くすることは望ましく、 F 値を15とすることが望ましく、8とすることが更に望ましい。

【0054】

またこうした基準とは別に、表面層の厚を小さくし、重量を軽減し、表面層での蓄積熱量を小さくすることは、取り扱い上も、操作能率の点からも望ましく、 t 値を30mm以下とすることが望ましく、15mm以下とすることが更に望ましい、6mm以下とすることは更に更に望ましい。

【0055】

なお、一般的には表面層の厚みは均一にし、界面温度が各部分等しくなるように意図すれば良いが、それが問題にならない程度においては厚みの不均一は許容され、背後層との界面は概ね成形面形状に沿ったものであればよい。

10

【0056】

しかしながら、成形品の形状と加熱気体あるいは冷却気体のブLOW方法や強さ等により、局部的に過剰な加熱や冷却がなされ大きな表面温度バラツキとなり障害が発生することがあり、これを緩和するためにこの局部の表面層の厚みを故意に加減することは望ましく、その加減程度は制約の限りではない。こうした部分を例示するならば、エッジや先端の部分は過熱あるいは過冷となりやすく、又狭い窪み部分などは十分な加熱冷却がなされないことになりやすい。また、分散性の悪い気体ブLOWノズルの直下や、複雑形状の成形品でも同様に表面温度バラツキがおきやすい。

20

【0057】

なお、本発明では、該表面から背後層までの最短距離をその部分の t 値と規定する。それは、成形品の形状は限定されるものではなく複雑なものもあり、また背後層との界面は必ずしも成形品の形状に相似しない部分もあり、必ずしも該表面の垂直下に背後層があるとは限らないからである。更に、本発明では、規定する t 値の部分が該表面の面積の70%以上、望ましくは85%以上あればよく、他の部分はこの規定外の値であることも許容される。 t 値が規定外の値の位置に該当する成形体の部分では適切な熱処理、あるいは冷却が行われてない可能性がある。しかし、成形品の形状にもよるが、適切な熱処理あるいは冷却が行われて堅固な部分が、軟弱な部分を支持して全体形状保全してくれ、離型時、あるいは耐熱負荷時の収縮あるいは変形を防いでくれる。なお、表面層の厚さが成形品の高さを超えないようにすることが望ましい。

30

【0058】

背後層は、熱浸透率（ b 値）が該表面形成層以上であり、且つ望ましくは5以上、更に望ましくは10以上である材料により形成させる。さらには、背後層の熱浸透率は前記表面層のそれより1.2倍以上であることが望ましく、1.4倍以上にすることは更に好ましい。このようにすることにより本発明の効果をより鮮明にすることができる。

【0059】

この背後層の b 値をこのように大きくすることにより、 b 値の小さな表面層との熱の出入りを容易にし、表面層の温度プロファイルを短時間に定常状態化し、また変化した表面温度を迅速に背後層温度 S （後述）に対応する温度に引き戻す働きをする。背後層の厚みあるいは形状は特に規定するものではないが、その体積として表面層以上の熱容量を有することが望ましい。この背後層には必ずしも特別な温度調節を設けず、成型型の置かれた環境との熱の自由な出入りにまかせただけでも成形することもできる。すなわち成型材料、成型型の設計等に合わせ背後層定常温度（ S 値）の設定を変えて成形することができるからである。

40

【0060】

具体的な成型型の材料構成としては、鉄、アルミニウム、亜鉛、銅、あるいはこれらをベースとした合金材料或いはグラフアイトが好適に利用できる。そうしてこれらの中から選ばれた材料を背後層とし、前述の材料を表面層として組み合わせればよいが、金属系材料と樹脂系材料、あるいはセラミックス系材料セラミックス系材料、セラミックス系材料

50

と樹脂系材料の組み合わせは、性能、製作のし易さ、価格等から特に好ましい。

【0061】

このようにして表面層と背後層を組み合わせた成形型は単独で用いてもよいが、多くの場合は複数成形型を共通のボックスに収容するかあるいは共通のパネルに集積して、いわゆる多数個どりの成形が行われるが、このような多数個どりにも好適に用いることができる。

【0062】

一方、本発明の別の形態として、前記の表面層のみからなる成形型部品を複数個製作し、これらを共通のボックスに収容するかあるいは共通のパネルに集積し、このボックスあるいはパネルに後述の温度調節機構を内蔵あるいは外部付加することにより本成形型を構成することができ好ましく使用することができる。

【0063】

背後層の温度調節機構

この背後層には、温度調節機構を設けることが望ましい。この温度調節機構は、加熱手段、あるいは冷却手段いずれものでもよいが、両者を兼ねて行うことのできるものはより好ましい。例えば具体的な加熱の手段として、電気ヒーターを貼附あるいは内包させ、自然冷却とあわせて温度制御を行うことができる。あるいは又内部に設けたジャケットに適度な温度の熱媒を通ずる方法もあり、この方法は好ましい。冷却はを促進するためのフィンなど放熱手段を設けたりしてもよく、また、このフィン部に通風するようにしてもよい。加熱あるいは冷却の手段は特に限定するものではなく、誘導加熱、誘電加熱、赤外線加熱、ペルチェ素子など公知の加熱冷却手段がいずれも採用できる。なお、補助的な方法として背後層を多孔体にしておき気体を通ずることにより背後層の冷却あるいは加熱を促進する方法、或いは背後層と表面層共に多孔体にしておき、成形の间歇時に背後層を通じて気体を表面層に送り表面層の加熱冷却を促進する方法などを用いてよい。

【0064】

背後層に対する前記の加熱、冷却手段の熱源、冷却源は背後層の内部に設けてもよくまた内部に設けてもよい。この熱源あるいは冷却源は面状の広がりをもつ均一な伝熱ができるかぎり該表面層との境界に近い程このましく、そのようでない場合は境界層に至るまでにこの境界温度ができる限り均一になるよう適当な距離を設けるのが好ましい。

【0065】

なお、この境界温度を均一にするには、別途の手段を取り入れることをしてもよく、例えばヒートパイプ等の高熱伝導材料の挿入やヒートパイプ構造を設けるなど種々の温度均一化手段を採用してよい。特別な構成として例えば、厚み方向に対して面方向の熱伝導率が極端に大きいグラファイトシート材料を挿入してもよい。

【0066】

成形型の温度変化の計測

熱処理を伴う熱成形サイクルを管理あるいは制御するためには賦形体自体の温度変化を測定することが望ましいが、それは必ずしも容易ではない。本発明の方法では、成形型の該表面温度の変化、又はこれに代わる位置の温度変化あるいは賦形体裏面の温度変化を測定し、熱成形サイクルを管理あるいは制御を行ってもよい。具体的には賦形体裏面からの測定は赤外線測定してもよいが、測定には物理的障害もあり工夫を要する。該表面温度の測定は比較的容易で、本出願においては、この表面温度（離型前は界面温度でもある）で説明することとし、後述の成形パターンと管理または制御について述べる。しかしこの測定は成型品上に痕跡を残すなどの障害もあるので、これを嫌う場合は代わるものとして該表面下の浅層部で成形サイクルに伴う変化がある位置で温度測定し利用してもよい。しかしこの浅層部温度の軌跡は該表面温度軌跡に比べ振幅が小さくなり、成形条件によっては振幅の中心位置等も変わるので、両者の違いを把握することが望ましい。その具体的な位置は該表面下12mm以内の位置で求めることもできる。しかし、この範囲内であっても深部は応答性が悪く成形条件によっては殆ど応答しないこともあるので、該表面下2mm以下であることが望ましく、更には該表面に可能な限り近いことが望ましい。

【0067】

なお、このような温度測定は成形品の形状に対応して複数部位で行うようにすることは望ましい。

【0068】

まず、背後層を加熱して温度制御するためには、成形サイクルに直接追従せずに一定温度を示す温度を測定する必要がある、それは一定温度を示すならば加熱冷却源から該表面の下層に至るまでの間で任意に選べるが、通常は背後層の中で表面層に近いところがより好ましく。ここではこの位置の温度を深層又はP点の温度と称する。そしてこのP点の温度を背後層温度とし、成形サイクルの中で定常状態となった温度を定常温度Sと称することとする。

10

【0069】

一方、背後層の温度(成形サイクルに直接応答しない)を背後層の中で測定することは望ましいが、これを行わずこれは付加されている温度制御に委ねることは可能で、例えば熱媒温度によって熱処理工程を制御あるいは管理することは可能である。

【0070】

なお、このような温度測定を行う成形型は、成形型を集積した多数個どりのセットの中で少なくとも一個あればよいが、複数個あることは望ましい。

【0071】

このようにして測定した結果をもとに、手動で成形条件の諸設定の修正を行ってもよいが、自動でこれを行うようにすることは望ましい。

20

【0072】

表面層表面(賦形体との界面)の昇温と降温手段

成形型の表面(賦形体との界面)の昇温または降温は、前記の背後層温度によって常時なされるが、間歇的な昇温手段としては該表面または賦形体裏面への高温気体の接触または赤外線照射による方法が用いられ、また間歇的な降温手段としては該表面または賦形体裏面へ冷却用気体を接触させる方法が用いられる。本発明では、背後層を経由する加熱または冷却効果の他に、上述の昇温手段と降温手段の少なくとも何れか、そして昇温手段を用いる場合は高温気体接触法と赤外線照射法の少なくとも何れかを用いることが必要である。高温気体あるいは冷却用気体等との接触は、賦形と同時に進めてもよく又賦形後に行って離型してもよく、賦形方法の特性に合わせ任意に行うことができる。高温気体あるいは冷却用気体は静止状態よりも気体流であることが、また気体流は高速であるほど熱伝達率が大きくなり加熱冷却が効果的である。用いる気体は空気、あるいは窒素など任意のものが利用できる。適用のタイミング及び温度等については後述する。

30

赤外線照射の方法は、高温気体接触法と同様に賦形と同時に進めてもよく又賦形後に行ってもよく、又高温気体接触法と併用してもよく単独で用いても良い。用いる赤外線は遠赤外線、近赤外線いずれも好適に利用できる。

【0073】

昇温手段として加熱気体を単独で用いる場合、の温度は、少なくとも150 以上、望ましくは200 以上、更に望ましくは材料のT_m以上、更に更に望ましくは300 以上であることが望ましい。その上限は限定するものではなく、例えば1000 超える温度でも可能な場合もあるが、しかし鋭い角や先端部のある成形品では過剰に加熱され不都合を避けるために1000 以下が良い場合もある。加熱効果を良くするために加湿することも好ましく、また過熱蒸気も効果的に利用でき乾燥過熱蒸気、飽和過熱蒸気いずれも利用できる。

40

【0074】

降温手段として用いられる冷却用気体流の温度は低いほど良く、又高速であるほど良いと云えるが、通常的手段で得られる圧縮空気や送風空気そのまま好適に利用することができる。しかし、場合個によっては、かなりの高温も許容され極端には加熱手段として用いた高压気体を次の段階で周辺空気を巻き込みながらブロウして冷却をおこなうこともできる場合もある。

50

降温手段として 用いられる冷却用液体は水やアルコール、炭化水素、フッ化炭化水素など気化潜熱の大きいものが利用できるが、水が最もこのましい。具体的には 1) 水噴霧または水の微滴散布を行う、2) 水噴霧と気体ブロウを順次行う、3) 気体ブロウと平行して水噴霧を行うなどの方法がある。この 2) の方法は特に好適に利用できる。

なお、予め加湿した冷却用気体の利用も熱容量が大きく能率的に冷却することができ好ましい。

【0075】

このような、気体のブロウは先ずはブロウ面に対してできるだけ均一に行うことが必要であり、また、必要に応じ賦形体の特定位置に対し強弱をつけて行ってもよい。なお、均一にブロ - するためには、無数の孔あるいは多孔体から噴出させるようにした平板形状デバイスが好ましい。噴射ノズルは多数の孔を四方向けて開口するなどして、どの方向にも噴射するようにすることが好ましい。また単なる圧空ボックスの側面からの給気口であっても複数個にしたり、周囲を巡らすスリット状にするなどすることも好ましい。また、気体の排出についても同様に配慮することが好ましい

また、成型型を集積した多数個取りの場合も、どの賦形体に対してもできるだけ同一の処理がなされるように配慮することが必要であり、上記のような平板デバイスは好ましく、また単なる給排気口の場合ならばスリット状にしたりあるいは複数個を配置し、ノズルの場合ならば数多く用いることが好ましい。

【0076】

なお、本発明においては、上記の加熱冷却気体は多くの場合、高速の気流が賦形体に接触し加熱冷却し、該表面（界面）は間接的に加熱冷却されることになる。秒単位でこの操作をおこなう一方成形材料の熱浸透率は一般的に小さいので該表面と賦形体裏面との間には大きな温度傾斜が生まれている。本願においては、熱処理温度あるいは離型温度は熱処理温度等は該表面温度で表すこととするが、真の材料温度とは乖離し、該表面層材料、成形条件、材料厚みによりその適正温度が変わることに留意する必要がある。

【0077】

温度パターンの制御

本発明では、上記の 1) 背後層の設定温度、2) 賦形体裏面への加熱手段、3) 賦形体裏面への冷却手段を主要な手段として、成形に必要とする該表面温度の温度サイクル（後述の温度パターン）を形成させ遂行する。そして、各手段の適用条件の組み合わせを最適にして最適最高速の成形サイクルを実現することができる。

【0078】

熱成形サイクルの該表面（賦形体との界面）の温度変化を制御する第 1 の手段は成型型に付加した温度調節機構により背後層温度を特定の定常温度（S）になるように調整または制御することである。通常は付加した前述の温度調節機構によってこれを行うが、該表面温度が所定の最高温度（頂点）及び最低温度（底点）を繰り返すように特定温度を選択する。しかしこの定常温度 S は該温度調節機構のみによって決らず、前記の加熱冷却の強弱条件とバランスして決まる。しかし、この定常温度の該表面温度への反映は表面層の厚みが小さいときは大きく、厚みが大きいときは小さい。またそれは表面層の α 値が大きい時は大きく、 α 値が小さい時は小さい。またそれは背後層材料の b 値が大きい時は大きく、 b 値が小さい時は小さい。

【0079】

第 2 の制御手段は該裏面への加熱手段の要素群の制御である。加熱気体についてはその温度、適用時間、流速、圧力、風量等、又赤外線照射についてはその強さ、適用時間、照射距離等の例を挙げることができる。なお、前者については湿度等も挙げることができ加湿や、過熱蒸気利用等も挙げることができる。表面温度のサイクルを観察し最高温度が低ければ加熱条件を強めた設定にすれば良い。なお、加熱を強めて頂点を上昇させると底点も上昇し、次のサイクルで更にある程度頂点が増加していくことは留意して調整する必要がある。

【0080】

第3の制御手段は該裏面への冷却手段である冷却用気体の要素群の制御である。具体的には冷却用気体の温度、適用時間、流速、圧力等を挙げることができる。またこれに加えて加湿、水噴霧の併用なども挙げることができる。表面温度のサイクルを観察し最低温度が高ければ冷却条件を強めた設定にすれば良い。なお、冷却を強めて底点を降下させると、次のサイクルで頂点もある程度降下していくことは留意して調整する必要がある。

【0081】

以上三つのグループの手段(要素)を特定の条件の組み合わせとして選ぶことにより最適あるいは最速の成形サイクルを実行することができる。また、背後層の温度Sに注目して最適あるいは最速となる成形サイクルの設定条件を容易に発見することができる。端的に説明するならば、温度Sを高くすれば、加熱気体による温度、接触時間等の加熱条件は控えめでもよいが、冷却条件は強く設定しなければならず、この温度S設定を低くすればこれらは逆になる。また、加熱冷却の強さのバランスが適当でない場合は、成形サイクルの繰り返しと共に背後層温度は自動的に調整されて定常状態になる。そうして、このようにして発見された温度Sになるように予め背後層温度を調整して生産を開始すれば最短で定常状態となり、場合によっては最初から定常状態で操業ができる。

【0082】

制御の方法は発見された各要素の条件を手動設定し、固定的なパターンとして操業運転してもよく、各要素の状態変動を手動で他に要素条件設定へ手動で反映させてもよい。しかし、何れかの要素の変動を自動的にフィードバックさせ他の要素の条件を自動的に調整すれば環境温度等不足の変動にも対応できて好ましい。

【0083】

以上のようにして、背後層の温度Sの設定を調整し、次の(1)(2)、
(1)；賦形体裏面への高温気体の接触及び又は赤外線照射による加熱、
(2)；賦形体裏面への冷却用気体流の接触による冷却、
の少なくとも一つの手段を用い、その適用条件を調整することにより、成形型の表面温度を成形サイクル中において所定の最高温度(頂点温度)と所定の最低温度(底点温度)が得られるようにし、且つ両者を一定の値として繰り返すように制御し、この温度サイクルの中で所定のパターン(後述)の賦形から離型までのプロセスを繰り返す連続熱成形が行われる。

【0084】

熱成形の温度パターン

上記の加熱手段により、シートの予熱温度以上の温度の熱処理が行われるが、この熱処理(すなわち配向の熱固定)のためには、賦形体が接した成形型表面温度が(成形材料の $T_g + 50$)以上、望ましくは(成形材料の $T_g + 60$)以上である時間を経過する必要がある、この温度に達しない場合は熱処理効果がない。またこの表面温度は、成形材料の T_m 以下で望ましくは($T_m - 30$)以下の温度であることが必要であり、この温度を超える場合は、材料が白化あるいは溶融してしまう。このような熱処理を伴う繰り返し連続熱成形の典型的パターンとして図に3パターンを示し、これらについて順次説明する。なお、本発明に利用できる方法はこれらに限定するものではなく、本発明の温度サイクルの中で任意に賦形と離形を行うことができ、これらの変形、一部混合など様々なパターンが考えられる。

【0085】

図3に示す温度軌跡はパターンAで、背後層温度を最高表面温度と最低表面温度との間となるように設定し、賦形体裏面から加熱に続いて冷却ブローを行う方法である。図4の温度軌跡はパターンBで、背後層温度を最低表面温度ないしはそれ以下になるように設定し、賦形体裏面から加熱を行う方法である。図5の温度軌跡はパターンCで、背後層温度を最高表面温度又はそれ以上になるように設定し、賦形体裏面から冷却を行う方法である。

【0086】

なお、パターン A、B、C の各図は連続繰り返し成形中の表面温度（賦形体があるときは界面）の変化を概念的な模式図として示したものである。実際のプロセスではこのような滑らかな曲線ではなく、少なくとも賦形と離形に際してはかなりの跛行がある。パターンの軌跡では、太線部分が賦形体が成形型表面と接触した状態を、細線部分は賦形体が除去されている状態を示し、また太点線は賦形材料を密着させたまま放置されている状態を示す。S 線は背後層 P 点の定常温度（背後層温度）を示している。なお図においては表現されていないが、実質的な賦形作用は太線または点線の最初の部分で短時間に完了し、それに続く太線部分又は点線部分で賦形体の昇温または温度降下がなされる。

【0087】

パターン A は成形型の該背後層温度を、該表面温度の所定の最高温度と最低温度の間で制御し、賦形と同時あるいは賦形後に、高温気体の賦形体裏面への接触および又は同裏面への赤外線照射により所定の最高温度に到達させる工程と、冷却用気体を成形体裏面に接触させ離型する工程からなるパターンである。

【0088】

a ゾーンで賦形及び高温気体との接触が行われ、b ゾーンでは冷却ブローがおこなわれ、c ゾーンでは賦形体の離型排出と新成形材料の配置が同時に行われる。なお、a ザーンの賦形と高温気体接触は、両者を順次行ってもよいが高温気体により圧空賦形を行うかあるいは真空賦形を行いながら高温気体ブローを行えばそれらを同時に始めることができ、又そのとき排気を行いながら圧空を行えばプロセスの効率が良い。このパターンでは、最高温度への昇温は前出の加熱手段によりなされ、最低温度への降下は前出の冷却手段によりなされ、背後層温度はこの両者をバランスさせる働きをする。

【0089】

この a から c までの 1 サイクルの更なる詳細は図中で 1~5 のように区分して示しているが、1 では、背後層の高温により表面温度の自然回復がなされ、2 では背後層温度と高温気体の両者により、3 では高温気体のみにより界面温度が上昇する。また、4 背後層温度と冷却ブローの両者により、5 では冷却ブローによってのみ界面温度が冷却されて離型可能な状態になる。

【0090】

パターン B は、成形型の該背後層温度を該表面温度の所定の最低温度ないしこれを下回る温度に設定し、賦形と同時あるいは賦形後に、背後層温度以上の高温気体の賦形体裏面への接触および又は同裏面への赤外線照射により加熱する工程と、次いで所定の離型温度に達するまで待つて離型する工程からなるパターンである。このパターンでは、所定の最低温度への回帰が背後層からの冷却によって自動的になされる。

a ゾーンではパターン A と同様に賦形と高温気体接触がなされるが、b ゾーンでは放置するのみで背後層からの冷却を受け離型可能に達する。c ゾーンでは A と同様に離型移動と新成形材料の配置が行われる。

【0091】

パターン C は、該成形型の該背後層温度を該表面温度の所定の最高温度ないしはこれを上回る温度に設定しておき、賦形を行って該表面温度の所定の最高温度への到達を待つて冷却用気体流を賦形体裏面に接触させる工程、または該最高温度への到達後に賦形と同時あるいは賦形後に冷却用気体流を賦形体裏面に接触させる工程により該表面温度を所定の離型温度に到達せしめて離型するパターンである。このパターンでは高温温度への回帰が該背後層から加熱によって自動的になされる。

【0092】

a ゾーンでは、賦形を行って表面温度の所定の最高温度への上昇を待ち、b ゾーンで冷却ブローが行われ、そして c ゾーンで離型排出と新成形材料の配置が行われる。

なお、a ゾーンは極限まで短縮して行き、表面温度の最高温度への到達を待つて賦形を行ってもよく、この場合は実質的に a ゾーンはなくなる。そして、このとき通常の圧空賦形に続いて冷却ブローする方法も望ましいが、一部の空気を排出しながら圧空賦形続ければ

、賦形、熱処理、冷却工程で進行しただちに離型でき非常に簡便で望ましい方法となる。

【0093】

なお、上記の3パターンは典型的な態様を模式的に示したもので、これに限るものではなく、これパターンの境界型、混合型、変形型等は種々考えられる。たとえば、上記のパターンで、離型後の該表面に賦形体が存在しない期間に、該表面直接に気流を接触させて加熱冷却を補助支援することを行ったとしても、本発明を回避するものではない。

【0094】

成形型の表面層材料として低い b 値(0.1~2)の材料を用いた場合は、賦形体との間で熱の授受が少ないことにより、(1)高温気体で容易に短時間で熱成型品を熱処理温度に昇温することができ、また(2)低温気体で容易に短時間で熱成型品の離型温度に冷却することができる。従って、Aパターンの成形に適する。Bパターン、Cパターンを実行するときは背後層に大きな b 値例えば7以上の材料を用い、表面層の厚さ t を小さくすれば望ましい設計となる。

【0095】

該表面層材料として中間的な b 値(1~10)の材料を用いた場合は、Aパターン、Bパターン、Cパターンいずれにも適し、Aパターンでは t が比較的大きな場合でも比較的短時間に定常状態をつくり高速成形が可能である。また設計が適切であれば一つの成型型でこれらの成形パターンが自由に選択できる。

【0096】

また、該表面層材料として高い b 値(8~25)の材料を用いた場合は、背後層温度を高く設定したAパターンが好ましく、またCパターンが好ましい。

【0097】

なお、上記のパターンで表面温度の軌跡をみると、最初の離型後次の賦形にいたるまでに成形表面温度が元の温度に完全戻るような状態であれば、定常状態として均一な成型品を連続生産できていることになる。完全に元に戻らない状態でも連続的に成形をすると最高温度と最低温度は共に次第に低下するか上昇するかして、時間の経過とともにいずれ定常状態に至る。そして場合によっては適切な熱処理ができない状態になることもあるが、この場合は背後温度を変更し或いは加熱冷却の強弱を加減することによりこれを解消する。本発明では成形開始後実用的な短時間に定常状態を達成し、また成形開始と同時定常状態が得られる構成となっている。

【0098】

<各種の変形態様>

高温気体による圧空成形を行う場合は完全密閉で行ってもよいが、圧空ボックスから高温気体を適度に漏洩するようにすれば、気体流が生まれ熱伝達率を大きくすることができ賦形体および該表面温度をよりより速くより高くすることができ好ましい。具体的には圧空ボックスにリークのためのスリットを設けたり、レギュレータ、フローバルブ、チェックバルブ、ニードルバルブ、開閉バルブ等を設けることにより実施でき任意に好ましく利用できる。例えば、低温あるいは高温の圧空に引き続き、バルブを操作して低压あるいは無圧で高温気体あるいは低温気体を吹き付ける方法も実施できる。このときも高速の気流である方が効率的であるが、加熱の場合は周囲の空気を巻き込むことが無いようにある程度閉鎖された空間でおこなうことが好ましい(熱圧空の漏洩又は高温気体プロウ)。

【0099】

冷却用気体の適用関しては、できるだけ低温の気体を用い、できるだけ高速の気体流を賦形体裏面に接するようにすることが好ましい。このような気体の吹き付けは略閉鎖された空間で行ってもよいが、開放空間で周囲の空気を引き込みながら吹き付ける方法も効率的で好ましい。あるいはベンチュリー管の原理を利用し周囲の空気を吸い込みながらブロウすれば圧縮空気の消費も少なくなり効率的で好ましい(ベンチュリー管)。

【0100】

上記に説明した高速の高温あるいは低温の気体流を適用する手段として、成型型の面形

10

20

30

40

50

状に略対応する形状の気体噴き出し（あるいは吸引）デバイスを賦形体に接近させて高速流を発生させる方法が好ましく採用できる。なお、このような気体流の高速化は、該表面層材料が b 値10以上の大きな値を有する場合、例えばアルミ、鋼、SUS等の金属材料などの場合は特に必要性が高く望ましく利用できる（気体高速化デバイス）。

【0101】

前述の成形パターンのA、B、Cにおいて、高温気体のかわりに、高温気体の適用と平行して遠赤外線あるいは近赤外線等の赤外線による加熱作用を利用することができ、具体的には、圧空ボックスの中に赤外線ラジエーターを設けておいて圧空と同時にあるいは、高温気体に吹き込み時に賦形体背面を加熱するようにしても良く好適に利用できる（赤外線照射）。

10

【0102】

熱成形法では通常、加熱オープンあるいは熱盤接触等によりシートを熱成形適温に予熱するが、本発明の方法では予熱を行っていないシートを成形型の位置にセットして、高温気体、あるいは上記の赤外線ラジエーターを用いて予熱を行いながら賦形することができる。なお、高温気体を用いる場合は気体の温度に合わせて緩慢な速度で加圧する必要があり、また気体温度は高すぎないようにする必要がある。この方法も、仔細に観察すれば、シートの予熱がある程度先行して行われ、次いで賦形が同時進行し、次いでシート予熱温度以上の熱処理が行われるもので本発明の範囲を超えるものではない。これを例えば280の高圧空成形でおこなうこともできるが、ゆっくり且つ適正な速度で加圧する必要があり、急激に高温圧空を行えば材料は予熱不足のために破断してしまう。また加圧をゆっくりして高温に加熱しすぎたものは、伸びが失われまた成形不良となりまた白化などが発現してしまい、あるいは溶融してしまう。本発明に用いる材料は適正熱処理温度以上に予熱すると伸びが失われ成形不良となりまた白化などが発現してしまうので、成形材料は賦形中もある程度昇温してよいが厳密には賦形後に熱処理がなされなければならない。（予熱即賦形）

20

高温気体として過熱蒸気を通常の加熱空気の代わり用いることができ、乾燥過熱水蒸気、飽和過熱水蒸気いずれも熱容量が大きく効果的に該表面層あるいは賦形体を昇温させることができ好ましい。また条件設定により、その蒸発潜熱を利用できれば該表面層あるいは賦形体を効果的に冷却することができ好ましい。この冷却は、例えば過熱蒸気を用いて圧空を行い、途中でその圧力を下げ接触表面への結露を促し、次いで圧空を開放すれば、結露水は気化し効果的に冷却してくれる。さらにこの時、該表面層あるいは賦形体の冷却を100まで終えるようにすれば、成形品に結露水をのこらないようにすることも容易で、優れた成形方法となる（過熱水蒸気の利用）。

30

【0103】

嵌合ダイあるいは雌雄型を用いて賦形し、賦形体を本発明の構造を有する雌雄いずれか片方の型（以下下型という）に残して他（以下上型という）を開けば、本文記載のとおり賦形体裏面に対して自由に加熱冷却を行うことができる。しかし特別な態様として、下型は本発明通りの構成とし、上型は気体ブロウのできる構造にし、両型を合わせるようにプレス賦形の後、上型を少し持ち上げるかあるいは取り去って、加熱気体あるいは冷却気体をブロウすることにより記述の自由な成形パターンを実行することができる。（雌雄型）

40

気体による加熱あるいは冷却の効率を高めるために、対象物表面でできるだけ高速の流れをつくり熱伝達率を高くすることは好ましい。そしてその手段の一つとして、成形型の該表面と略相似形のガイドブロックとの間に狭い間隙をつくり、この間に気体を通すようにすれば容易に高速流をつくることができ、好ましい方法として用いることができる。そしてこの場合、ガイドブロックから気体を噴出させるようにしてもよく、またガイドブロックへ吸い込んで外部へ排出させるようにしてもよく、また両機構を併せ持つようにしてもよく、いずれも好ましい方法として用いることができる。

なお加熱あるいは冷却を均一に行うために、少なくとも気体を噴出させる場合は、噴出孔は複数であることが好ましく、又ガイドブロック材として多孔体を利用することも好ましい。なお、このようなガイドブロックは、賦形後に賦形体裏面に近づけてもよいが、賦

50

形の補助に用いるプラグアシストと兼ねてもよい。(気体流ガイド)

赤外線放射源の形状は、特に限定するものではなく、平面体にして賦形体の上空に配置してもよい。しかし、赤外線照射の効率を高めて、あるいは均一に照射するために、成形型の該表面と略相似形の照射表面にして、賦形後に賦形体裏面表面への接近させまた離反するようにすることができ、好ましい方法として用いることができる。なお、このような照射体には気体のブLOWあるいは排気機能を兼ね備えることもでき好ましい方法として用いることができる(IR接近ブロック)。

【0104】

その他付記事項

上記のプロセスで得られた、本発明の成形品は、同材料シートの熱成形に比べ耐熱性が向上したものとなっており、少なくとも10 以上向上させることは容易であり、ホモのPET材料の場合であれば耐熱80 以上にすることは容易であり、90 以上、あるいは100 以上、あるいは120 以上、あるいは140 以上とすることもでき、併せて透明性の高いものにすることができる。なお、ここでは耐熱性は、成形品を特定温度に加熱されたサラダオイル中に2分間浸漬して取り出し、肉眼判断で一見してわかる収縮変形の有無で耐熱性の判断とする。

【0105】

なお、本願に記載した表面温度については部位によるバラツキが想定されるが、成型型表面のうち成形品の有効部分が接する少なくとも1点の温度が記載の規定の範囲を満足させておればよい。また、複数の成型型を集積して成形を行う場合は必ずしも全ての成型型について管理あるいは制御する必要はなく少なくとも1つの成型型でこれを行えばよい。

【実施例】

【0106】

(実施例1)

成形材料

共重合成分としてジエチレングリコール2モル%を含有し、エチレンテレフタレート単位が構成繰返し単位の98モル%を占めるポリエチレンテレフタレート樹脂を、ベント付き押出機にて樹脂温度290 で熔融押出し、キャストイングロールで引き取り冷却固化しシート成形した。得られた実質的に未延伸のシートを縦方向に2.5倍に1軸延伸し、厚さ0.23mmの延伸シートを得た。なお、このシートは延伸に際するヒートセット処理はおこなっていない。

【0107】

このシートにおける樹脂の極限粘度は0.69dl/g、ガラス転移転(Tg)は75、融点(Tm)は253、複屈折率(n)は0.049、面配向度(P)は0.037であった。

【0108】

成型型

円周に嵌合溝つきの大略半球のカップ(内形100mm、深さ35mm)のキャビティ型(外寸110×110×高さ53mm)で、成形時の真空孔(排気孔)を備えた図2の1に示す形状のものを製作して使用した(表2)。これは、ステンレス鋼(SUS304)の表面層は平均厚みを5mmとし切削加工によりで製作し、またアルミ材(A5052)の背後層(本体)も切削加工にて製作しこれに前者を嵌め込んで密着一体化したものである。

【0109】

そしてこのキャビティを蛇管を内包したアルミニウム(A15052)製の温調プレートに乗せ、蛇管には連続して熱媒を通す図2の構成とした。なお成型型にはカップ底部に近い側面の成形層表面と、同じ部分から内部へ15mmの位置にそれぞれ熱電対を配置し温度を計測した。また、温調プレートはカップ底部から18mm下層に位置する構成とした。

【0110】

成形方法

この成形型装置を枚葉の真空圧空成形機（浅野研究所製）に装着し成形を行った。
上記成形材料をオープンで8秒保留しシートを85℃に予熱し、該表面を（ $T_g + 50$ ）以上である180℃に予熱しておいた成形型の上に移動させ、4秒間真空圧空賦形を行って離型した。圧空には約30℃で元圧0.4 MPaの圧縮空気を用い、圧空ボックスは0.15 MPaの排気弁を装着し、一定圧で圧空と同時に排気となされるようにして、大きな気流により強力な冷却となされるようにした。離型時の該位置の表面（賦形体との界面）温度は160℃まで低下していた。

【0111】

成形結果

成形品は透明で良好な形状をしており、加熱オイルに浸漬するテストを行った結果からは、少なくとも120℃では変形が無く耐熱性の高いものであった。ちなみに延伸を行っていない同樹脂のシートはこのような成形方法では成形品は得られないが、通常の熱成形法による成形品の耐熱性は約65℃であった。

本方法では、材料シートの賦形と加熱と冷却が殆ど同時になされ、4秒間という驚異的な短時間に効果的な熱処理を伴う成形が可能であることを確認した。

【0112】

連続成形性の確認

更に連続成形を近似的に模して、上記成形品を成形型に真空固定し、上記の条件の高温圧空と、表面（界面）温度回復待ちの繰り返しテストを行った結果、[4秒圧空11秒待ち]のサイクルでは、約5分という短時間で定常状態となり表面頂上温度は165℃となり安定した。なお、実際の連続成形における材料交換は上記待ち時間の中で行うことができるので1サイクル15秒となる。

【0113】

この定常状態でも有効な熱処理を伴った熱成形が可能である。しかし上記の180℃設定で成形することを望むならば背後温度の設定を15～20℃程度を上昇させて実現することができる。本成形型はその設定調整も容易に迅速行うことができる。また、この材料を使う場合には、該層の厚みもっと小さくして、待ち時間、及び定常化時間をもっと短縮をはかることは可能である（パターンC）。

【0114】

（実施例2）

成形材料

実施例1に用いたものと同じものを用いた。

【0115】

成形型

実施例1に用いたものを用い、この成形型を実施例と同じ温調プレートに乗せ、同じようにして温度計測を行うようにした。

【0116】

成形装置

実施例1に使用した成形機に、高温の加熱空気を製造する装置を特別に付加してこの装置を経由して成型機の圧空用空気を圧空ボックス導入するようにし、更に圧空ボックス内の天井には電熱ヒーター内蔵のスチール製多孔板を設け、この多孔板を通じて加熱空気が賦形体裏面に向けて排出されるようにした。またこれとは別に外部から元圧0.7 MPaの圧縮空気を同ボックス内部に導き分散ノズルを通じて賦形体を裏面からブLOW冷却できる機構を付加した。なお、圧空ボックスには0.15 MPaの排気弁を設置してあり一定圧を保ちながら排気となされる。この冷却ブLOWの機構は加熱気体導入のものとは全く別のものであり、圧空ボックスの閉鎖時も開放時も任意な時ブLOW冷却できるようにした。上記多孔板は導入気体の再加熱と同時に赤外線照射の働きもする。同板の赤外線放射率は約0.75で成形型上面までの距離は約100 mmである。また成形型該表面の放射率は0.3程度と低く、ここで反射された赤外線は再度賦形体加熱に寄与しているものと

10

20

30

40

50

思われる。

【 0 1 1 7 】

成形方法

上記成形材料をオープンで 8 秒保持して 8 5 に予熱し、該表面温度 1 6 7 の成形型の上に移動させ、加熱空気で 3 . 5 秒間真空圧空賦形を行い、次いで圧空ボックスを上昇させながらノズルから空気ブロウ冷却を 4 . 5 秒行い離型した。圧空中にボックス内は 2 9 0 に達した。また離型時の表面（界面）温度は 1 6 3 まで低下していた。なお、用いた加熱空気は、3 5 0 設定の気体加熱装置を経由し、3 5 0 の該多孔板を通じて圧空に供した。なお、高温多孔盤からは赤外線照射がなされ、又賦形体の昇温には補助的に貢献しているものと思われる。

10

【 0 1 1 8 】

成形結果

成形品は透明で良好な形状をしており、実施例 1 と同様の耐熱テストの結果からは、少なくとも 1 2 0 の耐熱性があった。

本方法では、材料シートの賦形と兼ねた加熱を 3 . 5 秒、冷却を 4 . 5 秒という驚異的な短時間で効果的な熱処理を伴う成形が可能であることを確認した。

【 0 1 1 9 】

連続成形性の確認

実施例 1 と同様に、上記結果をもとに連続成形を近似的に模した繰り返し加熱冷却テストを行った結果、[3 . 5 秒加熱、4 秒冷却、2 . 5 秒待ち] のサイクルでは頂上温度、冷却温度共に上昇する傾向があったので少し条件修正を行った。

20

その結果、[3 秒加熱、4 秒冷却、2 秒待ち] という設定にしたところ 1 分以内に定常状態の温度曲線となった。定常状態の頂上温度は 1 8 9 、冷却温度は 1 5 0 であり熱処理と離型には十分な温度である。また待ち時間の 2 秒は、実際の連続成形における成形材料交換を想定したもので、1 サイクルは 9 秒となる（パターン A）。

【 0 1 2 0 】

（実施例 3）

成形材料

実施例 1 に用いたものと同じものを用いた。

【 0 1 2 1 】

成形型

表に示す構成のものを、実施例 1 と形状同寸のものを製作して使用した。アルミ粉含有エポキシ樹脂は日新樹脂製 R T - 4 6 1（表 1 に示す）を用い、これをアルミニウム本体にキャストする方法で一体化した。この成形型を実施例 1 と同じ温調プレートに乗せ、同じようにして温度計測を行うようにした。

30

【 0 1 2 2 】

成形装置

実施例 2 に用いた成型機を用い、同じ装置構成とした。

【 0 1 2 3 】

成形方法

実施例 2 と同じ方法で行った。上記成形材料をオープンで 8 秒間保持して 8 5 に予熱し、成形面を 1 4 5 に予熱しておいた成形型の上に移動させ、加熱空気で 5 秒間真空圧空賦形を行い、次いで圧空ボックスを上昇させながらノズルから空気ブロウ冷却を 5 秒行い離型した。圧空中にボックス内は 3 2 8 に達した。また表面（界面）温度は 1 8 6 に達した後 1 4 6 まで冷却され離型されている。なお用いた加熱空気は、4 0 0 設定の気体加熱装置を経由し、4 0 0 の該多孔板を通じて圧空に供した。

40

【 0 1 2 4 】

成形結果

成形品は透明で良好な形状をしており、実施例 1 と同様の耐熱テストの結果からは、少なくとも 1 2 0 の耐熱性があった。

50

本方法では、材料シートの賦形と兼ねた加熱を5秒、冷却を5秒という驚異的な短時間で効果的な熱処理を伴う成形が可能であることを確認した。

【0125】

連続成形性の確認

実施例2と同様に、上記結果をもとに連続成形を近似的に模した繰り返し加熱冷却テストを行い、そして若干補正を行った結果、[3秒加熱、1秒待ち、5秒冷却、1秒待ち]というサイクル設定では1分半程度で温度曲線は安定な定常状態となった。このときの頂点温度(最高温度)は約178、底点温度(最低温度)は約142で安定しており、熱処理と離形を行うには十分な温度である。また待ち時間の2秒は、実際の連続成形における成形材料交換時間に想定できるので、1サイクルは10秒となる。

10

(実施例4)

成形材料

実施例1に用いたものと同じものを用いた。

【0126】

成形型

実施例1と同形状、同寸法のも表に示す構成にて製作した。まず、成形表層より0.3mm削り込んだ寸法の背後層(本体)をアルミ材(A5052)で切削加工により製作し、内面に強力な改質エポキシ系接着剤を薄く塗布し、これに対して結晶核剤作用物質を含んだ結晶性ポリエチレンテレフタレート樹脂シート、いわゆるCPEET用シート(東洋紡製、厚み0.5mm)を真空圧空成形して一体化した。この表面層の厚み平均して0.3mmに仕上がった。なお、真空圧空は10分間続け、成形材料の結晶化と接着剤の固化を十分に行った。また当然ながら必要な場所には真空孔を設けた。この成形型を加熱プレートに乗せて真空圧空成型機に装着した。

20

【0127】

成形装置

実施例2に用いた成型機を用い、同じ装置構成とした。

【0128】

成形方法

実施例2と同じ方法で行った。上記成形材料をオーブンで8秒間保持して85に予熱し、成形用表面を128に予熱しておいた成形型の上に移動させ、加熱空気で6秒間真空圧空賦形を行い、次いで圧空ボックスを上昇させながらノズルから空気ブLOW冷却を9秒行い離型した。圧空中にボックス内は331に達した。また表面(界面)温度は175に達した後117まで冷却され離型されている。なお用いた加熱空気は、400設定の気体加熱装置を経由し、400の該多孔板を通じて圧空に供した。

30

【0129】

成形結果

成形品は透明で良好な形状をしており、実施例1と同様の耐熱テストの結果からは、少なくとも120の耐熱性があった。

本方法では、材料シートの賦形と兼ねた加熱を6秒、冷却を9秒という驚異的な短時間で効果的な熱処理を伴う成形が可能であることを確認した。

40

【0130】

連続成形性の確認

実施例2と同様に、上記結果をもとに連続成形を近似的に模した繰り返し加熱冷却テストを行い、そして若干補正を行った結果、[背後層温度124、5秒加熱、1秒待ち、8秒冷却、1秒待ち]というサイクル設定では4分程度で温度曲線は安定な定常状態となった。なおこの定常状態では背後層温度は57、頂点温度は191、底点温度は141となりほぼ一定に安定しており一定温度のサイクルが続いた。また待ち時間の2秒は、実際の連続成形における成形材料交換時間に想定できるので、1サイクルは15秒となる。

(実施例5)

50

成形材料

実施例 1 と同じものを用いた。

【 0 1 3 1 】

成形型

表に示す構成のもので、実施例 1 と形状同寸のものを製作して使用した。純エポキシ樹脂は日新樹脂製 C E P - 7 を用い、実施例 3 と同様にして製作し、実施例 1 と同じ温調プレートに乗せ、同じようにして温度計測を行うようにした。

【 0 1 3 2 】

成形機及び関連装置

実施例 3 と同じものを用いた。ただし圧空ボックスの排気弁は 0 . 3 M P a 設定のものとした。

【 0 1 3 3 】

成形方法および成形条件

材料シートをパターン B で成形した。具体的には材料シートをオープンで 8 秒間保持して 8 5 予熱し、迅速に成形型上に移動させて圧空ボックスを閉鎖させるとほぼ同時に高温高圧の圧空気をボックス内に導いた。この高温高圧気体は、0 . 4 M P a の圧縮空気を 4 0 0 に設定した空気加熱装置と 4 0 0 の該多孔板を通過させて供給した。圧空に際して高温気体の一部漏洩し、その内部は 3 3 0 、 0 . 2 5 M P a となった。この操作で圧空と真空引きをほぼ同時に作動させ、次いで 4 秒間の圧空を行い、圧空ボックスを開放して 1 0 秒間そのまま待って真空を解除して成形品を離型させた。なお、温調プレートのジャケットには熱媒を常時通じ、表面層の表面が安定して 1 0 0 となるようにして一連の操作を行った。該表面温度の最高温度は 1 7 0 / 1 6 5 (底面 / 側面)、離型時温度は 1 3 0 / 1 3 0 (底面 / 側面) であった。

【 0 1 3 4 】

(成形結果)

得られた成形品はシワやタルミがなく嵌合溝等の細部まで精密に良く成形されていた。また、成形品には、くもり、乳白化が全くなく透明性に優れる。この成形品は、耐熱性が 1 1 0 であった。圧空賦形と昇温加熱処理が殆ど同時に行われ、次いで時間待ちするだけで冷却され、合計 1 4 秒という短時間で成形できることを確認した。

【 0 1 3 5 】

連続成形性について

上記各実施例と同様にして連続成形性は確認でき、また実際の連続成形が可能であることは明らかである。

【 0 1 3 6 】

10

20

30

【表 2】

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5
材料	ホモ2.5	ホモ2.5	ホモ2.5	ホモ2.5	ホモ2.5
表面層	SUS304	同左	アルミ入りエポキシ	CPET	純エポキシ樹脂
t mm	5		2	0.3	2
b値	8.0		1.66	0.57	0.67
α 値	6.7×10^{-6}		0.58×10^{-6}	0.1×10^{-6}	0.11×10^{-6}
t の範囲	0.02~77.7		0.02~22.8	0.02~9.5	0.02~9.9
背後層	A 5052	同左	同左	同左	同左
b値	17.4				
成形パターン	パターンC	パターンA	パターンA	パターンA	パターンB
定常化サイクル例	15sec	10	10	10	14
成形状態	良	良	良	良	良

10

20

【0137】

(比較例1)

先行技術である特公平5-45412号公報の提案する方法を検証するために下記内容のテストを行った。

成形型をアルミニウム(A5052)の単体構造とし、実施例1と同形状同寸法のカップ成形用キャビティ型を製作し、実施例1に使用し温調プレート上に乗せて固定しキャビティ型を温度制御できるようにした。成形材料は実施例1に用いたものと同じものを用いた。成形装置は、実施例2に使用にしたものを使用したが、圧空ボックスには必要により加熱気体を導入するようにし、また排気弁などないものとした。なお、またボックス閉鎖時に空気漏れ防止のシールを設けたもので、公知の方法どおり圧空成形するようにした。

30

次の各方法について調べてみた。

1) 材料シートをオープン中に8秒間置いて85 に予熱し、キャビティ表面温度を190、220、240 に調整してあるキャビティ上に移動させ、およそ30 の圧縮空気を1分間(非効率な時間であるが熱処理のための十分時間をかけて)の圧空賦形を行いそのまま離型する試みを行った。表面温度が190、220 に調整したものはいずれも離型に際して収縮変形してしまった。また240 に調整して行ったものは白化しそして破損してしまった。この結果から、少なくとも用いた材料では良品が得られないことがわかった。

2) 次に、キャビティ表面温度を低温30及び60 に調整して、上記同様の条件で圧空賦形を行い、次いで圧空ボックスを開放しながら220 の熱風を1分間吹き付けた後に離型する試みを行った。30及び60 調整のものはいずれものも良好な成形品となっていたが、耐熱性試験の結果その向上は全くなかった。この熱処理可能温度の上限に近い高温の熱風を用いても少なくとも短時間には熱処理がなされないことがわかった。なお、220 の加熱空気は、元圧0.7MPaの圧縮空気を22 設定の加熱装置を經由し220 の該多孔盤を通じて放出するようにした。

40

3) 上記公報には記載も示唆もないが、敷衍して表面温度をある程度高温にして2)と同じ条件で賦形し、同条件で熱風ブロウする試み行ってみた。

表面温度を80、100、120 と高くした場合には離型に際して激しく収縮変形してしまった。また、140、160、180 とした場合は、離型に際して程度の成形形状は保持したものであったが、変形やシワなどの発生があり良品ではなかった。しか

50

し、これら中で160、180 設定の成形品は耐熱性試験では耐熱性は向上してるとみなすことはでき、特に180 設定のものは120 の試験でも成形時の状態以上には変形の悪化はしなかった。

【0138】

以上3件の検証テストの結果からは、本公報の提案する熱処理の方法は、少なくともテストした延伸ポリエステル材料に適用できる方法ではない。

良好な良品を得るには本発明の如く少なくとも賦形体を冷却して離型するプロセスが必要である。

(比較例2)

先行技術である特公昭59-051407号公報の方法及び敷衍して考えられる方法を検証するために下記内容のテストを行った。

10

【0139】

熱成形の成形型として最も汎用されるアルミニウム材(A5052)の単体構造とし、実施例1と同形状同寸法のカップ成形用キャビティ型を製作し、実施例1に使用し温調プレート上に乗せて固定しキャビティ型を温度制御できるようにした。

成形材料は実施例1に用いたものと同じものを用いた。

【0140】

成形装置は、実施例1に使用にしたものを使用した。シートの直接加熱方式の定法通りに、プレス天板下に熱盤をセットし熱盤からの空気により圧空賦形すると方式とした。従って上部の圧空ボックスはなく、また公知の定法に従い、キャビティ型を収納した下部ボックスの周縁にはシール材を取り付け、熱盤で封鎖して圧空を行う時に空気漏れがないようにして成形試験を行った。

20

【0141】

材料シートを所定の各温度に調整してある熱盤と下部ボックスの間に挟み、この熱盤に真空圧接して予熱し、次いでこの熱盤を通じて通常の圧縮空気を送り表面温度を65 に調整にしてあるキャビティ型で圧空賦形を行い離型した。

この時の熱盤温度は100、150、180、220 とし、真空圧接時間はいずれも10秒間とした。なお、キャビティ表面温度の65 は、材料PETのT_g(80)以下の温度であり、離型時の収縮を回避できるように材料を十分冷却できる温度である。圧空賦形は、通常の圧縮空気をを用い0.4MPaの圧力で2秒間で、ほぼ参考公報に示されている条件どおり行った。

30

テストの結果、

a) 熱盤温度100 のものは、良好な形状の成形品となったが、75 の温水浸漬で激しく収縮し耐熱性の向上は全くなかった。圧空に際して表面温度は瞬間的に71 に達したが圧空開放時(離型時)は約66 になっていた。この表面昇温は熱処理には不十分である。

b) 熱盤温度150 と高くしたものは大きなネックインが入ってしまった。そこで追加試験として同樹脂で延伸倍率のみ低くした材料(延伸2.0倍) を用い同様に成形しものは激しく白化してしまった。このものは 圧空に際して表面温度は瞬間的に93 に達したが圧空開放時(離型時)は約69 になっていた。この表面昇温は熱処理に不十分である。

40

【0142】

c) 熱盤温度180 と更に高くしたテストが、2.5倍延伸品は大きなネックインが入ってしまった。そこで追加試験として、このもので熱盤への接触予熱時間を、3秒、1秒、0.5秒と順次短くしてみたが結果は同様であった。

【0143】

また、同樹脂の延伸2.0倍延伸シートの成形品は激しく白化し、また厚みムラのあるものとなってしまった。圧空に際して表面温度は瞬間的に93 に達したが圧空開放時(離型時)は約69 になっていた。この表面昇温はこれでも熱処理には不十分である。なお表面温度の変化は、昇温は主として予熱シートのも熱によるもので、この熱はただち

50

に成形型に拡散し、圧空空気の運ぶ熱量は大きくなかったことを意味する。

< 註、実施例 1 の材料シートに用いたものと同じ樹脂で、同様に溶融押出してシート成形し、同様に 1 軸延伸したもので、延伸倍率は 2.0 倍、厚み 0.23 mm のもので延伸に際するヒートセット処理の行っていないものである。なおこのシートの複屈折率 (n) は 0.013、面配向度 (P) は 0.011 であった。 >

d) 熱盤温度 220 のものは、成形品にネックイン状の大きな亀裂が入ってしまい製品となるようなものではなかった。因みに、表面温度は 90 に達したが直ちに低下し圧空開放時 (離型時) は約 70 となっていた。この表面温度の昇温は熱処理には不十分である。

【0144】

この結果からは、引用公報記載の方法は少なくともテストに用いた成形材料の熱処理成形には適切な方法ではないことは明かである。また、熱盤により材料シートを予熱し、そのままの位置で熱盤を通ずる空気により圧空成形を行う方法は公知の方法であり、この方法では空気は熱盤を通るとき期せずして加熱されて加熱空気による圧空が行われることになる。しかしながら、(1) 表面温度の一時的昇温は予熱された材料によるもので、加熱気体による表面温度昇温の効果は殆どなく、また(2) 圧空温度を高くすべく熱盤温度を高くすると適切な成形がなされなくなる。従って、こうした公知の方法では、本願の期待する熱処理を伴う成形は実現できず、またこれを敷衍して考えてもその実現は容易ではない。

(比較例 3)

比較例 2 の公熱盤予熱圧空成形法を敷衍して下記の種々の方法を試みた。成形型の材料として硬質発泡ウレタンフォーム材 (サンモジュール 33 三洋化成製 熱浸透率 b 値 0.7) を用い、比較例 2 のものと同形同寸法の成形型を製作し同様に温調プレート上に設置し、比較例 2 に用いた成形装置をそのまま用いた。なおこの材料は機械加工が容易なことからテスト用あるいは小数成形の熱成形型に用いられているが、この熱浸透率 b 値が 0.7 と小さく熱が蓄積しやすく高速の連続成形には向かないとされている。

1) 比較例 2 に準じた成形試験

a) 熱盤温度 100 の試験結果は、比較例 2 と同様に、良好な形状の成形品となったが、同様に 75 のサラダ油浸漬で激しく収縮し耐熱性の向上は全くなかった。

なお、10 秒間の圧空中に表面温度は主要部平均で 78 に達し 71 に低下したとき圧空が開放され、その 40 秒後の離型時には全ての部位が 70 以下になっていた。

【0145】

b) 熱盤温度 150 の試験結果は、比較例 2 と同様にネックインキレツが発生したので、同様に成形材料を 2.0 倍延伸のものに変更して成形した。このものも同様に成形品の形状は保っているものの白化し製品としては不適であった。この後者の 10 秒間の圧空中に表面温度は 92 に達し 80 に低下したとき圧空は開放され、その 40 秒後の離型時には全ての部位が 70 以下になっていた。

【0146】

c) 熱盤温度 180 の試験結果は、比較例 2 と同様にネックインキレツが発生したので、上記同様に成形材料を 2.0 倍延伸のものに変更して成形した。この後者の 10 秒間の圧空中に表面温度は 106 に達し 102 に低下したとき圧空は開放され、その 40 秒後の離型時には全ての部位が 75 以下になっていた。成形品は収縮変形し、また激しく白化したものであった。

d) 熱盤温度 220 試験結果は、比較例 2 と同様にネックインキレツが発生したので、上記同様に成形材料を 2.0 倍延伸のものに変更して成形した。しかしこのものは激しく白化した多数の孔があき成形状態にならなかった。

【0147】

この結果からは、本公報記載の方法は少なくともテストに用いた成形材料には適切な方法ではない。なお、本成形型の表面温度調整に関しては、温度バラツキが大きく、また安定になりにくく、高温部位がおよそ 65 程度の時を見計らって成形をおこなった。

2) この成形型の温度特性について調べてみた。

この成形型で表面温度を高温にして圧空賦形を行うこと狙いに、下記を試みた。

【0148】

A) 100及び125の温度に調整したプレートに常温の成形型を乗せて加熱したとき、それぞれ表面温度の昇温定常化には約60、90分と極めて長い時間を要した。

【0149】

B) このときの表面温度の下部、中位、上部の平均はそれぞれ50、62で、部位による大小の温度差がいずれも20～25と大きい値であった。そして加熱プレートとの温度差は非常に大きくなり、部位によっては71にも達していた。

【0150】

C) 上記は静止した空気での値であるが、環境の影響を調べてみたところ、空調機による気流、熱盤による放射熱等により変わり、また温度バラツキが更に大きくなった。

【0151】

D) 表面温度を平均100以上の設定にする試みを行った。しかしプレート温度を型材の耐久耐熱温度(80)を遙かに超える180以上の設定にしてもそれわ達成することはできず型を損傷してしまった。

この2)のテスト結果から、次の結論を導くことができる。

【0152】

このようなb値の小さな材料を用いた成形型では表面温度調整に関して；

a) 自由な温度設定がしにくく、特に高温設定ができない。

【0153】

b) 昇温安定化に非常に長い時間を要する。

【0154】

c) 部位による温度バラツキが大きい。

【0155】

d) 環境条件の影響を受けやすい。

以上1)2)のテスト結果からは次の結論を導くことができる。

【0156】

a) 公知の圧空成形条件では熱処理を伴う成形が実現できない。

【0157】

b) 圧空時の熱処理温度到達を容易にするために、表面温度を高温に設定しよとしても任意の高温設定ができない。

【0158】

c) 仮に設定可能範囲で熱処理可能な材料を選ぶことができたとしても、能率的連続成形には不都合である。

【0159】

d) 大きな温度バラツキは均一で欠陥のない製品づくりの障害となる。

【産業上の利用可能性】

【0160】

(本発明の効用)

適度な延伸配向を行ったポリエステル系樹脂シートを熱成形過程において熱固定を行うことにより、耐熱性、透明性、剛性等の高い熱成形品が得られるが、その成型品を、

(1) 高温の熱処理を伴う熱成形が容易にできる。

【0161】

(2) 容易に高速で安定した連続成形を実現できる。すなわち背後層温度の調整により最短サイクルを容易に実現でき、その調整が容易に短時間に行うことができる。すなわち、成形材料、高温気体の温度や接触の条件、冷却気体の温度や接触条件等により加熱プロセス、冷却プロセス等の時間が大きく変わるが、境界温度サイクル等をモニターしながら、背後層温度を上下させることにより加熱時間と冷却時間のバランスをとりサイクル時間を最短にすることができる。

10

20

30

40

50

【 0 1 6 2 】

(3) 短時間にヒートアップして生産開始ができ、また連続成形開始後、も短時間に定常状態を実現し品質不良品を最少にすることができる。

【 0 1 6 3 】

(4) 一つの成形型で、A から C パターン（混合パターン、変形バーン含む）まで任意の成形パターンを、装置や製品設計に合わせ選ぶことができる。

【 0 1 6 4 】

(5) 均一な加熱冷却ができ 高品質な熱成型品が得られる。

【 0 1 6 5 】

(6) 高温の火傷しやすい材料に対しも、火傷や曇りのないきれいな成形品が得られる（特に A パターン、B パターン）。 10

【 0 1 6 6 】

(7) 気体加熱装置、あるいは気体冷却機構を有しないあるいは機構しか有しない成形機でも、高速の熱処理成形が実現できる（C パターン）。

【 0 1 6 7 】

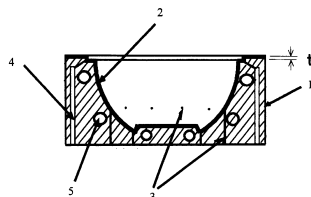
(8) 成型機をシートの予熱オーブンを有しないコンパクトな装置にして利用することもできる。

【 符号の説明 】

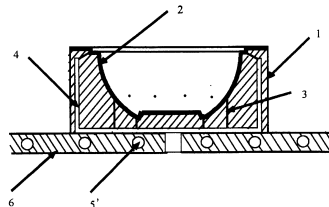
【 0 1 6 8 】

- | | | | |
|---------|----------|-------|----|
| 1 成形型本体 | 2 成形用表面層 | 3 真空孔 | 20 |
| 4 導気孔 | 5 熱媒通路 | | |

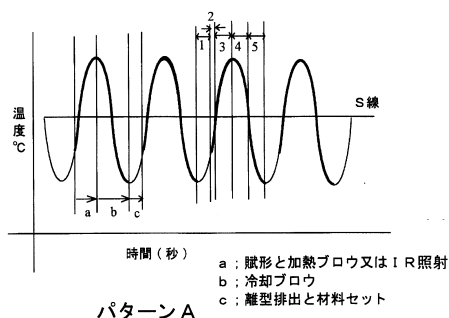
【 図 1 】



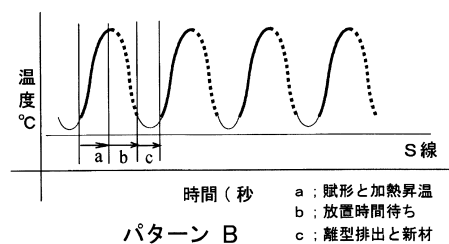
【 図 2 】



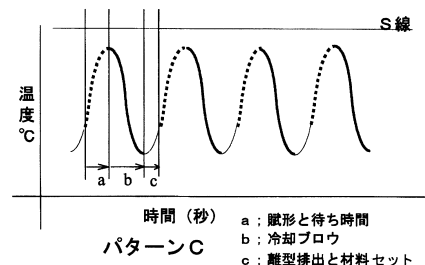
【 図 3 】



【 図 4 】



【 図 5 】



フロントページの続き

(56)参考文献 特開2003-276080(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

B29C 51/00 - 51/46

B29C 33/00 - 33/76