

ハイブリッド成形品における CFRTP シートの加熱条件が 密着性に及ぼす影響

藪谷祐希*, 森澤 諭*, 赤田英里*

Effect of Heating Condition of CFRTP Sheet on Adhesion of Hybrid Molding Parts

Yuki YABUYA, Satoshi MORISAWA and Eri AKADA

Hybrid molding parts are made through press and injection process and have high strength and complex shape-moldability. This paper defined the adhesion of injected CFRTP (carbon fiber reinforced thermoplastics) resin on CFRTP sheet as an apparent inter-laminar shear strength measured by a short-beam shear testing. The inter laminar shear strength showed the highest value about 320 °C of the CFRTP sheet-heating temperature and decreased over 320 °C due to thermal degradation of matrix resin.

Key words: Carbon Fiber Reinforced Thermoplastics, Adhesion, Inter Laminar-shear Strength, Short-beam Shear Testing, Thermal Degradation

1. はじめに

近年、地球環境問題やエネルギー問題を解決するために、金属から非鉄金属、プラスチックおよび炭素繊維強化プラスチック(Carbon Fiber Reinforced Plastic, CFRP)への材料置換の取り組みが行われている。CFRP は、金属と比較して比強度・比剛性が高い特性を有することから、航空機等の輸送機器向け軽量材料として注目されている。特に、母材に熱可塑性樹脂(Thermo Plastics)を用いた熱可塑性炭素繊維強化複合材料(CFRTP)は、加熱により成形が可能であること、高い生産性を有すること、溶着等の二次加工が可能であること、リサイクルが可能であること等から、自動車分野への適用研究が実施されている。

CFRTP の成形に従来から用いられる射出成形は、形状自由度が優れるものの、熔融混練による繊維の折損が発生してしまうので、機械的強度には限界がある¹⁾。一方で、連続繊維を用いた積層板は機械的強度に

優れるものの、その成形法として多く用いられるプレス成形法では、リブ等の複雑な 3 次元形状を有する部材への成形は困難であり、形状自由度は低い²⁾。これらのことから、製品を高強度かつ複雑形状とするためには、強化繊維の形態およびこれに応じた成形法の選択が課題である。

三重県では、経済産業省平成 26 年度補正地域オープンイノベーション促進事業において、図 1 に示すシートおよびペレットを同時に成形する「ハイブリッド成形機」を導入した。導入した「ハイブリッド成形機」は、連続繊維を用いた CFRTP シートと、射出成形用の樹脂を同一金型内で成形することを可能とする^{3,4)}。本装置では、CFRTP シートを任意の箇所に配置することで選択的に強度を付与することが可能となり、同時に、樹脂を射出成形することでリブやボス等の複雑形状を有する部位も一体成形することができる。これにより、CFRTP の適用拡大において課題とされている、強度と成形性の両立⁵⁾が可能になる。また、CFRTP は強化材の炭素繊維をマトリックス樹脂によって固め

* ものづくり研究課



図1 ハイブリッド成形機の外観

ているものであるため、外力を受けるとマトリックス樹脂と炭素繊維のひずみが異なることから境界面でせん断力が発生し、そのせん断力により両材の密着が解かれて破壊する可能性がある^{6,7)}。ハイブリッド成形品はCFRTPシートと射出樹脂で構成されることから、CFRTPシートと射出樹脂との間の密着性が重要である。そのため、本報では、ハイブリッド成形品の密着性を確認するために、ショートビーム法による見掛け層間せん断強さを測定し、成形時におけるCFRTPシートの加熱条件が見掛け層間せん断強さにおよぼす影響について検討した。

2. 1 実験方法

2. 1. 1 供試材

射出樹脂は炭素繊維強化樹脂としてCF短繊維を21%含有したポリアミド66 (PA66CF, Durethan TP-037-001 901510, LANXESS)を用いた。CFRTPシートはマトリックス樹脂にポリアミド66を使用した炭素繊維シート(CF(PA66)/シート, 厚さ1mm, Tepex® dynalite201-C200(4)/45%, LANXESS)を用い、図2に示す形状に加工した。

2. 1. 2 試験体の作製

図1に示すハイブリッド成形機を用いて、①加熱部(2700W近赤外ヒーター, ヘレウス(株))にて加熱したCFRTPシートを、②搬送部(搬送機,

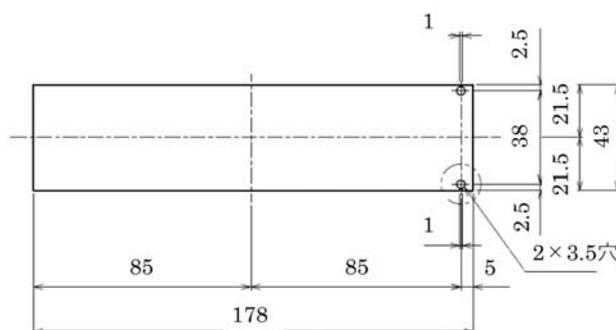


図2 CFRTPシートの加工形状

TV-1000, 東芝機械(株))にて射出成形機の金型内に搬送し、図3に示すハイブリッド成形機の射出成形部における金型のCFRTPシート用固定ピンに設置する。その後、③射出成形部(射出成形機, EC100SXII, 東芝機械(株))における型締めと同時に、樹脂の射出により図4に示すハット型ハイブリッド成形品を作製した。表1に成形条件を示す。射出成形機のシリンダ温度を280°Cに固定し、CFRTPシートの加熱時間を33~68秒に変化させた。CFRTPシートの表面温度については、シート状の熱電対(シートカップル C060-K, チノー)を用い、図5に示すようにシート表面に取り付けて測定した。各加熱時間における表面温度は260°C(33秒), 280°C(38秒), 320°C(48秒), 350°C(58秒), 370°C(68秒)であった。

表 1 射出樹脂と CFRTP シートの成形条件

射出樹脂/CFRTPシート						
PA66CF/CF(PA66)シート						
シリンダ温度 [°C]	金型温度 [°C]	スクリュ回転数 [rpm]	射出圧力 [MPa]	射出速度 [mm/s]	シート加熱時間 [秒]	シート表面温度 [°C]
280	80	100	150	100	33	260
280	80	100	150	100	38	280
280	80	100	150	100	48	320
280	80	100	150	100	58	350
280	80	100	150	100	68	370



図 3 ハイブリッド成形機の射出成形部における金型の CFRTP シート用固定ピン

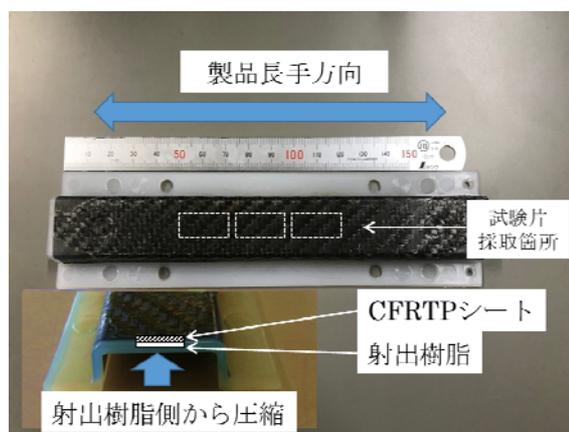


図 4 ハット型ハイブリッド成形品と試験片採取箇所

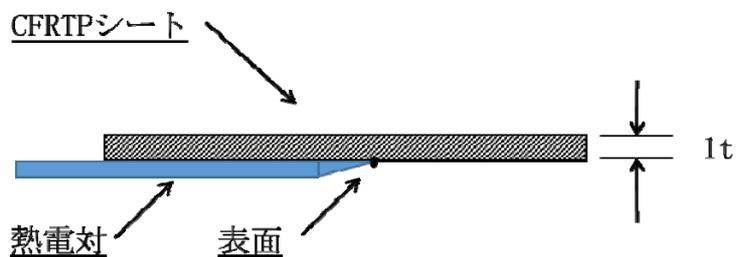
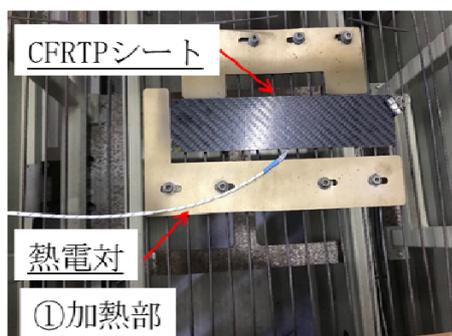


図 5 CFRTP シート表面温度の測定方法

2. 2 ショートビーム法による見掛け層間せん断試験

ハイブリッド成形品の CFRTP シートと射出樹脂の密着性を評価するために、JIS K 7057 に準拠し、図 6 に示す 3 点曲げショートビーム法を用いて試験を行った。試験片は、図 4 に示すようにハット型ハイブリッド成形品から製品長手方向に平行して中央部から対称に長さ 20 mm の試験片を採取し、厚さ(h) 2 ± 0.2 mm、長さ(l) 20 ± 1 mm、幅(b) 10 ± 0.2 mm の短冊状に機械加工した。万能試験機(AG-X100kN plus, (株)島津製作所)を用い、圧子の先端の半径 5 mm、支点の先端の半径 2 mm の 3 点曲げ治具を用いた。試験温度は室温、試験速度は 1 mm/min、支点間距離は 10 mm とし、射出樹脂側から圧縮した。試験体の状態調節は JIS K 7100 に準拠し⁸⁾、23 °C、50 %RH の恒温恒湿中に 88 時間以上静置した。見掛け層間せん断強さ τ [MPa] は、

$$\tau = 0.75 \times \frac{F}{b \times h} \quad (1)$$

により求めた。ここで、 F [N] は最大荷重、 b [mm] は試験片の幅、 h [mm] は試験片の厚さである。それぞれの加熱条件について 3 試料ずつ試験し、平均値と標準誤差を算出した。

2. 3 X 線 CT システムによる試験片内部の観察と破壊様相

見掛け層間せん断強さの試験片は、試験前後に X 線 CT システム(Microfocus X-Ray CT System inspeXio SMX-225CT, (株)島津製作所)により撮影し、試験片内部の状況と破壊様相を確認した。

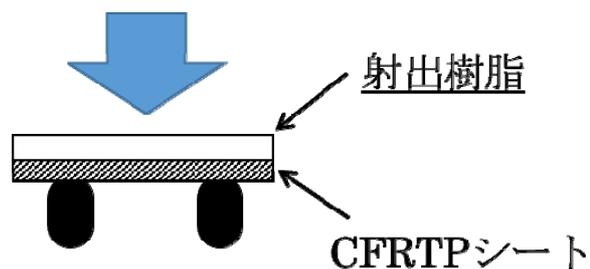
2. 4 CFRTP シートの熱重量測定

CFRTP シートの熱分解温度を確認するために、熱重量測定を行った。大気中で室温から 700 °C まで 10 °C/min で昇温し、測定した。

3. 実験結果および考察

図 7 に加熱した CFRTP シートの表面温度と見掛け層間せん断強さの測定結果を示す。図 7 において、棒の高さは標本平均、エラーバーは標準誤差を表す。見掛け層間せん断強さは、シート表面温度が高くなるにつれて高くなっており、320 °C で最も高くなった。一方で、シート表面温度が 370 °C のものは見掛け層間せん断強さに低下がみられた。

射出樹脂側から圧縮



$$\tau = 0.75 \times \frac{F}{b \times h}$$

τ : 見掛け層間せん断強さ [MPa]
 F : 最大荷重 [N]
 b : 試験片の幅 [mm]
 h : 試験片の厚さ [mm]

図 6 見掛け層間せん断強さの測定方法 (3 点曲げショートビーム法)

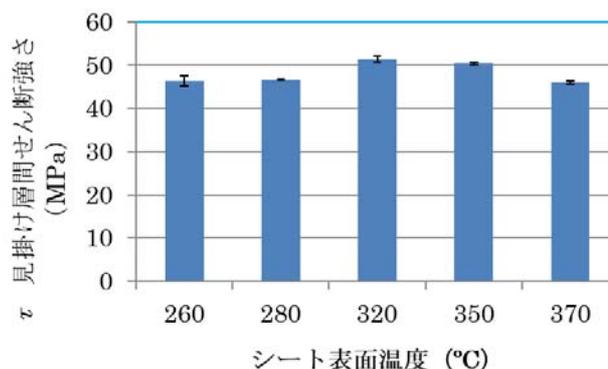


図 7 加熱した CFRTP シートの表面温度と見掛け層間せん断強さの測定結果

X 線 CT システムにおける試験前後の試験片内部の観察結果を図 8 に示す。表面温度が 260~280 °C 場合は、CFRTP シート内部に剥離がみられた。加熱前の CFRTP シート内部にこのような剥離はみられないことから、加熱した CFRTP シートをハイブリッド成形機の①加熱部から③射出成形部へ搬送する段階で、

CFRTP シート表面の温度低下により、CFRTP シート内のマトリックス樹脂が固化し、炭素繊維とマトリックス樹脂との間に剥離が生じたと考えられる。このような剥離が見掛け層間せん断強さに影響したと推定する。

次に、CFRTP シートの熱重量測定結果を図 9 に示す。この結果より、CFRTP シートは 320 °C より高くなると重量低下がみられ、370 °C より高くなるとさらに急激な変化が起こることが確認された。加熱による重量減少の原因は樹脂の揮発により生じていると考えられる。このことから、370 °C の場合は、CFRTP シートのマトリックス樹脂が分解し劣化することにより見掛け層間せん断強さが低下したと考えられた。

また、試験後の破壊様相は、図 8 に示すように表面温度が 350 °C までは CFRTP シート内部にせん断破壊の様相がみられた。一方で、370 °C では CFRTP シート内部にせん断と引張の混合破壊となり層間せん断破壊としない様相であった。

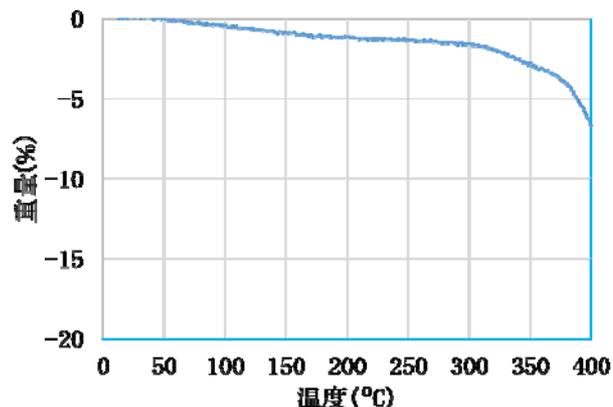


図 9 CFRTP シートの熱重量測定結果
(昇温速度 10 °C/min)

これは、CFRTP シートのマトリックス樹脂の分解劣化により破壊様相に差異が発生したと推定する。今回、いずれの加熱条件においても CFRTP シートと射出樹脂の間での剥離はみられなかった。

表面温度 (°C)	試験前	試験後	破壊様相
260	剥離 射出樹脂 CFRTP シート 3.5mm	せん断破壊 射出樹脂 CFRTP シート 2.5mm	せん断破壊
280	剥離 3.5mm	せん断破壊 2.5mm	せん断破壊
320	3.5mm	せん断破壊 2.5mm	せん断破壊
350	3.5mm	せん断破壊 3.0mm	せん断破壊
370	3.5mm	せん断破壊 引張りの破壊 3.0mm	混合破壊 (せん断と引張)

図 8 X 線 CT システムによる試験前後の試験片内部の観察結果と破壊様相

4. まとめ

連続繊維を用いた CFRTP シートと射出成形樹脂を同一金型内で成形を可能とするハイブリッド成形機について、ハイブリッド成形品の CFRTP シートと射出樹脂との間の密着性を確認するために、ショートビーム法による見掛け層間せん断強さを測定し、CFRTP シートの加熱条件が見掛け層間せん断強さにおよぼす影響について検討したところ、次のことがわかった。

- ・CFRTP シートと射出樹脂との間の密着性は良好であった。
- ・CFRTP シートの加熱は、表面温度 320 °C まで、表面温度の増加に伴って見掛け層間せん断強さが高くなった。
- ・CFRTP シートの表面温度が 260~280 °C の場合は、CFRTP シート内部に剥離が発生し、見掛け層間せん断強さが低下した。
- ・CFRTP シートの表面温度が 320 °C を越えて高くなると、CFRTP シートのマトリックス樹脂の劣化により見掛け層間せん断強さが低下した。
- ・本研究では、CFRTP シートの表面温度が 320 °C の場合に最も高い見掛け層間せん断強さが得られ、最も密着性が良いと考えられた。

参考文献

- 1) 田中和人ほか：“GF/PP プレス射出ハイブリッド成形品の機械的特性評価”. *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, Vol.67(1), p107-113 (2018)

- 2) T. Watanabe and T. Fujii, “Long fiber effect on static and fatigue strengths of discontinuous fiber reinforced thermoplastics with polypropylene matrix”, *The Japan Society of Mechanical Engineers*, Vol.64, No.623, pp.224-231 (1998).
- 3) M. Ohishi et al. : “Effect of heater system on heating efficiency and interfacial properties between prepreg and injected part in hybrid molding”. *Journal of Mechanical Engineering and Automation*, 7(1), p1-7 (2017)
- 4) 大野秋夫ほか：“セミアプレグを用いた革新的 CFRTP 成形加工技術の開発”. *日本製鋼所技報*, 66, p129-134 (2015)
- 5) 寺田幸平：“炭素繊維強化熱可塑性プラスチック - 現状、応用分野および課題 - ”. *精密工学会誌*, 81(6), p485-488 (2015)
- 6) JIS K 7057:2006 炭素繊維強化プラスチック—ショートビーム法による見掛け層間せん断強さの求め方
- 7) JIS K 7078:1991 炭素繊維強化プラスチックの層間せん断試験法
- 8) JIS K 7100:1999 プラスチック—状態調節及び試験のための標準雰囲気

(本研究は、法人県民税の超過課税を財源としていません。)