

ハイブリッド成形を用いたリサイクル炭素繊維基材の成形性

増山和晃*, 森澤 諭**, 中村創一*, 瀬戸彰文*, 松岡敏生***

Formability of Recycled Carbon Fiber Base Material by Hybrid Molding Method

Kazuaki MASUYAMA, Satoshi MORISAWA, Soichi NAKAMURA,
Akifumi SETO and Toshio MATSUOKA

Carbon fiber reinforced plastics (CFRP) are expanding their demand for aircraft material and other applications, taking advantage of their high strength, light weight, and heat resistance. On the other hand, a large amount of CFRP material is expected to be disposed in the future. Therefore, research on recycling the disposed CFRP material is urgently needed. In this study, we used a spun yarn made of recycled short carbon fiber (rCF) and polypropylene (PP) to create a heat-pressed intermediate substrate and woven fabrics by laminating the spun yarn. Molded products were also made and their formability was confirmed. As a result, it was found that the formability was equivalent to that of a commercially available woven fabric used as a comparison.

Keywords: Carbon Fiber Reinforced Plastics, Hybrid Molding Machine, Recycled Carbon Fiber, Formability, CO2 Emission reduction

1. 研究目的

1.1 研究開発の背景・目的

炭素繊維強化プラスチック（Carbon Fiber Reinforced Plastics 以下 CFRP）は高強度・軽量・耐熱性の特性を活かし、航空機、自動車、風力発電ブレード、建築、土木等で採用が拡大し、2035年の世界市場は2020年比2.8倍の3兆5800億円と見込まれている¹⁾。特に航空分野では大型機やビジネスジェットの生産本格化などによって需要が拡大しているが、同時に機体製造時の端材も大量に発生している。エアバスでは2020年から2025年にかけて生産工程で発生したCFRP端材の95%をリサイクル産業に流通させる計画があり²⁾、また、これまでに自動車や航空機用途で利用されたCFRPが2025年頃に大量の廃材となる時期

を迎える。そのため炭素繊維（Carbon Fiber 以下 CF）のリサイクルシステムの構築は急務であり、CFRP リサイクルに関する研究開発も広く展開されている。たとえば、CFRP リサイクルは、国内研究機関等で分離・取り出しの技術開発が進められている^{3)~9)}が、取り出したリサイクル炭素繊維（Recycled Carbon Fiber 以下 rCF）は短繊維であり、ペレットや不織布等の原料利用など、軽量部材としての利用に限られている。今後のリサイクルシステムの構築には、回収したrCFの新たな形態での利用、用途拡大が必要であり、そのための技術開発はCFの持続可能な生産消費形態を維持する（SDGs 目標 12）¹⁰⁾には欠かせないものである。

そこで、本研究では、rCFの有効活用を目的に短繊維化したrCFとポリプロピレン（以下PP）から紡績糸を作製し、これを熱プレスした中間基材（一方向材ベースの熱プレス中間基材）を作製した。また、この紡績糸を織物としたのち熱プレスした中間基材（織物ベースの熱プレス中間基材）

* プロジェクト研究課

** ものづくり研究課

*** (公財) 三重県産業支援センター

の2種を作製した。さらに、自動車部品など川下ユーザーへの用途展開を想定し、これら2種の間基材と市販のリサイクル炭素繊維入り熱可塑性樹脂（以下CFRTP）ペレットを用い、ハイブリッド成型による成形品を試作した。ここでハイブリッド成型とは、ヒーターで予熱したプリプレグシートと射出樹脂を一体成形することで、高強度かつシワや凹凸がない賦形性の高い成形品を得ることができる成形方法である。

この成形品の賦形性を確認したところ、良好な結果が得られたので、紡績糸及び中間基材の性状結果と共に報告する。

1.2 行政ニーズ／環境政策等への貢献、環境産業等への活用

短繊維化され用途が限られていたリサイクル材料を糸という形態に加工することで、飛躍的に広範囲で再利用することが可能となる。リサイクル原料からなる糸の用途開発を進めていくことが廃材の利用促進につながり、サプライチェーンから循環利用までを含んだライフサイクル全体での資源循環につながる。

rCFを用いたCFRPは、バージン炭素繊維（以下vCF）を用いたCFRPの製造時のエネルギー負荷の6分の1となるため、リサイクルCFRPをバージン需要と置き換えることでCO₂の削減が期待できる¹¹⁾。

経済産業省の調査「リサイクル炭素繊維の評価手法や採用状況に関する国際動向調査」¹²⁾によると、2020年時点の使用済CFRP廃材の排出量は46,500トン、CFRP製造工程から排出されるCFRP廃材の排出量は10,500トンと推計されている。これに対し、マテリアルリサイクルされているのは1割未満と推定され、大部分はサーマルリサイクル、または埋め立て処理されている。

vCFとrCFの製造時CO₂排出原単位はそれぞれ約22.6kg-CO₂/kg-CF、2.6kg-CO₂/kg-CFと算出¹³⁾されており、1kgリサイクル品に置き換えることができれば、約20kgのCO₂削減となる。この数値を用いると、2020年の排出量の合計57,000トン（46,500+10,500）の9割の51,300トンの全てをリサイクル品に置き換えると仮定した場合、2020年のCO₂削減量は、51,300トン×20＝1,026,000トンのCO₂削減に寄与すると試算できる。環境省の第4次循環基本計画¹⁴⁾において、

国は循環形社会形成に向けた取り組みの中長期的な方向性として「急速に普及が進む炭素繊維強化プラスチック等の新製品・新素材について、3R（リデュース、リユース、リサイクル）に関する技術開発・設備導入を支援するとともに、リユース・リサイクル・処分のためのシステム構築を推進する」ことを示しており、本研究は、我が国の環境政策とも合致している。

2 実験方法

2.1 リサイクル炭素繊維（rCF）とポリプロピレン（PP）の2材料からなる紡績糸の評価

rCFの評価は、rCFとPPの2種の材料からなる紡績糸等の物理特性（力学特性、伸長特性等）とした。紡績糸（トーア紡マテリアル（株）製）を用い、太さ（tex）、炭素繊維（CF）重量%のほか、力学特性を求めるため、引張試験による破断強度（N）、伸度（mm）、強度（N/tex）を測定した。炭素繊維重量%については、JIS K 7075：1991「炭素繊維強化プラスチックの繊維含有率及び空洞率試験方法」¹⁵⁾の燃焼法に準じて行った。引張試験についてはJIS R 7606：2000「炭素繊維—単繊維の引張特性の試験方法」¹⁶⁾に準じ、試験速度：1mm/min、つかみ間距離：25mmで行った。また、rCF原料（カーボンファイバーリサイクル工業（株）製）繊維の表面性状を評価した。測定は、SEM（走査型電子顕微鏡）による表面観察およびEDS（エネルギー分散型X線分析法）により行った。

2.2 リサイクル炭素繊維（rCF）とポリプロピレン（PP）の2材料からなる紡績糸を熱プレスした中間基材の評価

2.2.1 熱プレス中間基材（一方向材ベース、織物ベース）の作製

物性評価を行うため、rCFとPPからなる紡績糸を熱プレスした一方向材ベースの中間基材と織物ベースの2種類の中間基材を作製した。一方向材ベースの中間基材の作製フローを図1に示す。2.1に記載のrCFとPPの2材料からなる紡績糸を上下端に切り込みが入った金属板治具(a)を用い、(b)のように紡績糸を楕型の溝に沿って一方向となるように巻いた。そして、(c)の熱プレス機器を用いヒーター温度200℃、加圧時

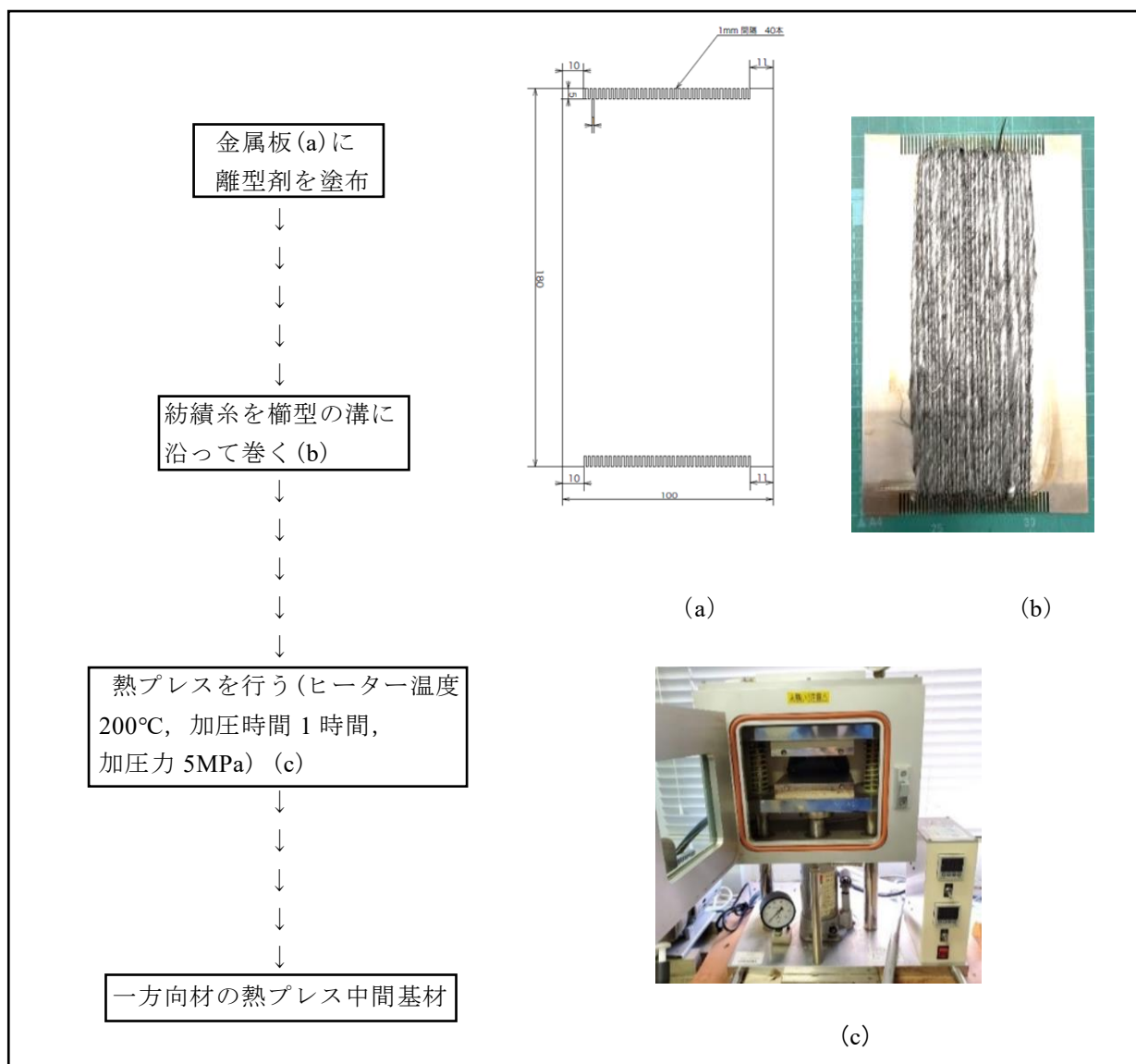


図 1 一方向材ベースの熱プレス中間基材作製フロー

間 1 時間、プレス圧力 5MPa の条件で熱プレスを
行い、中間基材を作製した。織物ベースの中
間基材の作製フローを図 2 に示す。2.1 に記載
の rCF と PP の 2 材料からなる紡績糸を(a)の手織
り機を用い織物とした。そして(b)の熱プレス機
器を用いヒーター温度 210 ℃、加圧時間 1 時間、
加圧力 5MPa の条件で熱プレスし、中間基材を作
製した。

2.2.2 熱プレスした中間基材の曲げ強度 測定

中間基材の曲げ強度は、JISK 7074:1988「炭素
繊維強化プラスチックの曲げ試験方法」¹⁷⁾に準じ
て測定した。試験片は平板状とし、3点曲げ試験

を行った。また、試験速度は 6.67 mm/min.とし、
N 数は 2 とした。その他、密度と CF 含有率の測
定を実施した。

一方向材ベースの熱プレス中間基材について
は、4 種、すなわち繊維角度 90°-90°-90°、繊維角
度 90°-0°-90°、繊維角度 0°-90°-0°、0°-0°-0°層 [以
下 90-90-90, 3ply / 90-0-90, 3ply / 0-90-0, 3ply /
0-0-0, 3ply と記載] の 3 層積層構造として強度
等の特性を比較した (模式図を図 3 に示す)。ま
た、これらと比較するため、バージン材の連続炭
素繊維に PP 樹脂を含侵させた市販品 (一村産業
(株) 製) のプリプレグ (カーボンなどの繊維に
前もって樹脂を含侵させた中間基材) から 2 種、

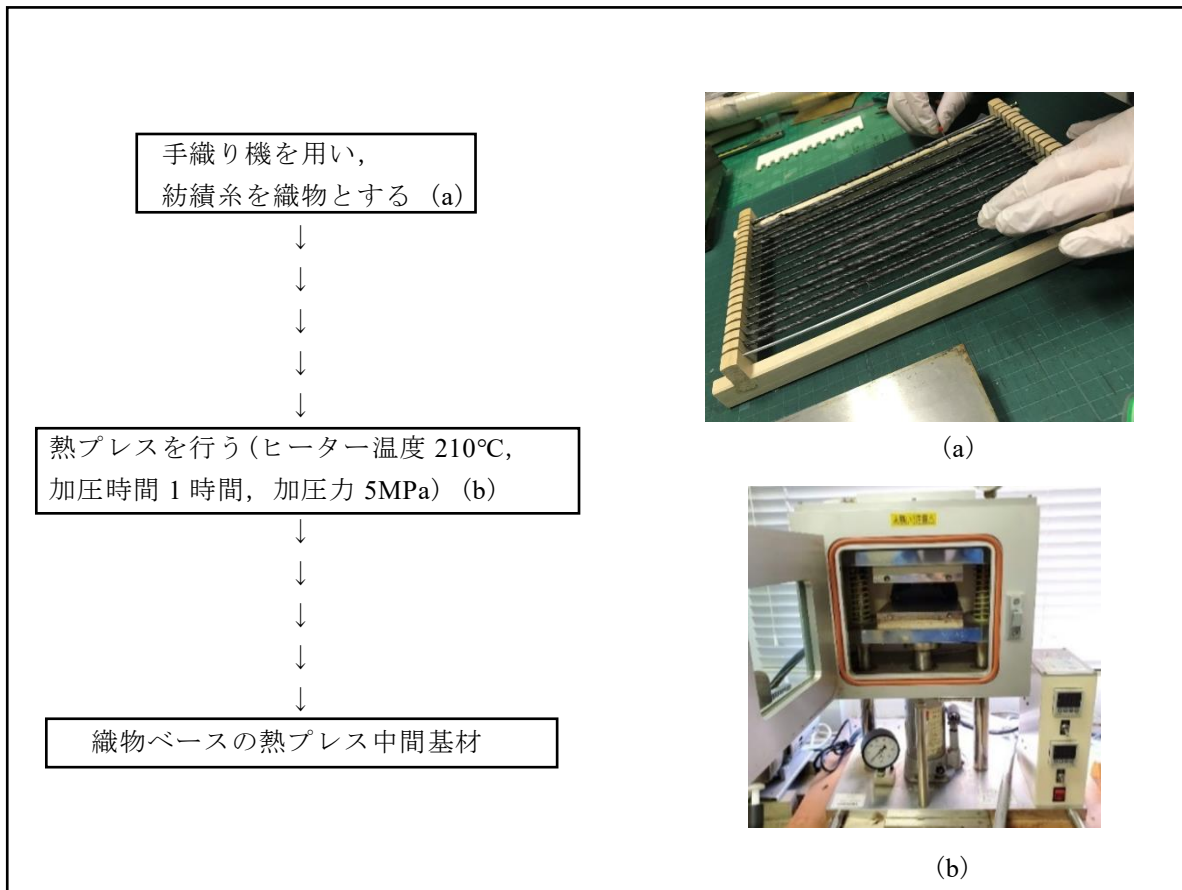


図 2 織物ベースの熱プレス中間基材作製フロー

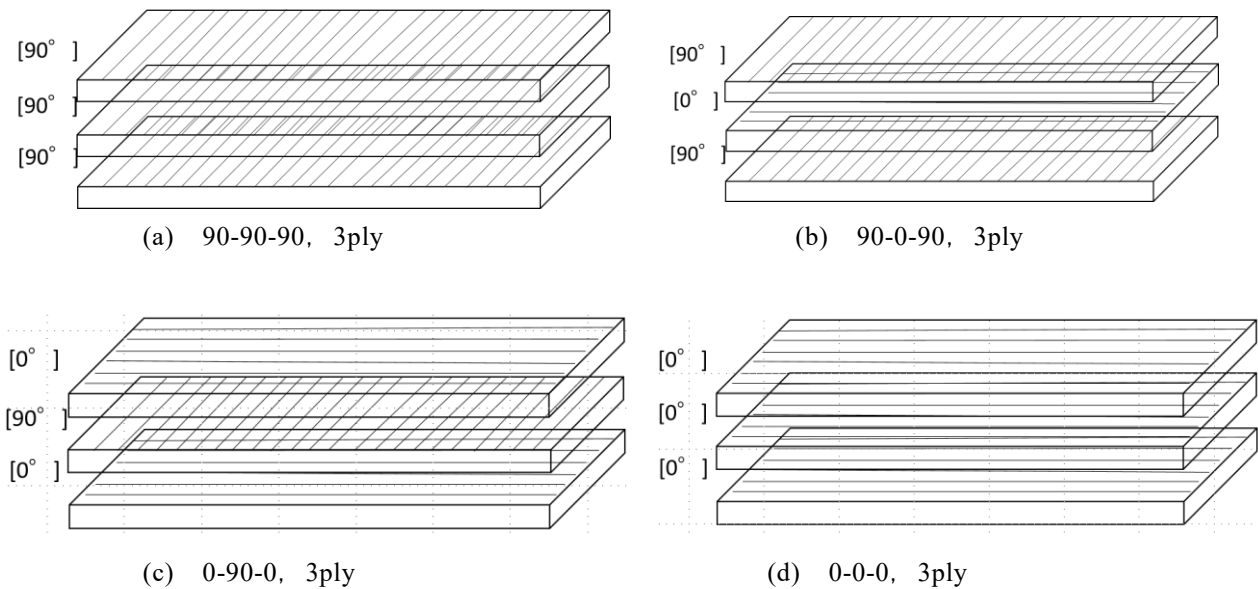


図 3 積層構造の模式図

すなわち平織[PP-3KP4]，および綾織[PP-3KT4]いずれも 4ply の計 6 種 (=4+2) について，曲げ強度のほか，曲げ弾性率についても測定した。

2.2.3 熱プレスした中間基材の賦形性評価

ハイブリッド成形機による試作成形品作製にあたり，予め賦形性評価を行うことが可能な予熱温度範囲を求めるため，図 4 に示す半球状の金型を用い賦形(素材を削らずに変形させることで製品を成形する方法)性を確認した。賦形性確認は予め設定した温度(160℃～240℃)にした電気炉に一方向材ベースの熱プレス中間基材(0-90, 2ply)または市販品プリプレグ 2 種(平織，綾織)を所定時間(15 分間)入れ，恒温としたのち，これを取り出し，それぞれを直ちに半球金型に押し付け実施した。

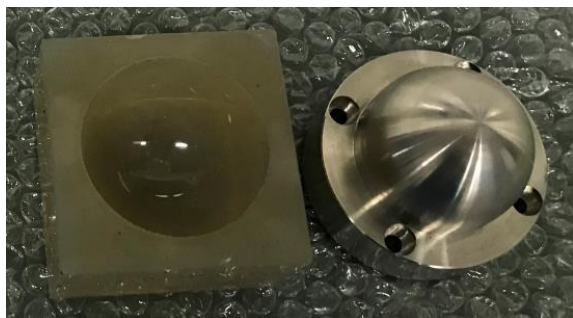


図 4 半球状金型

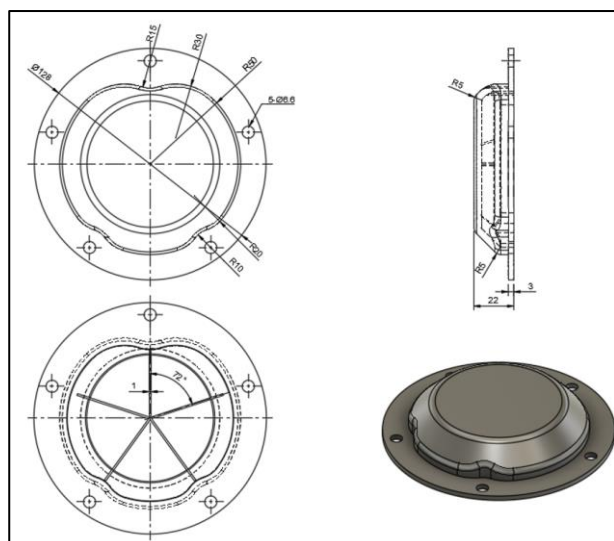


図 5 ハイブリッド成形品試作用金型図面

2.3 熱プレス中間基材とリサイクル炭素繊維入り熱可塑性樹脂(CFRTP)ペレットからなるハイブリッド成形品の作製と

圧縮強度測定

賦形性について詳細に検討するため，図 5 に示すハイブリッド成形品試作用金型を用いて，一方向材ベースの熱プレス中間基材のハイブリッド成形品を作製した。作製フローを図 6 に示す。熱プレス中間基材の予備加熱温度と時間は，160℃，5 分間とし，市販品プリプレグについては 200℃，5 分間とした。加熱した中間基材と市販のペレットを用い，ハイブリッド成形機にて試作品を作製した。ハイブリッド成形条件は，射出温度 230℃，射出圧力 100 MPa，金型温度 40℃とした。

3 結果及び考察

3.1 リサイクル炭素繊維と PP 繊維からなる紡績糸の評価

rCF と PP 繊維からなる試作紡績糸の評価結果を表 1 に示す。参考として vCF を用いた市販 vCF 紡績糸の値を併記した。試作紡績糸は，市販の vCF 紡績糸と比較して，強度は約 1/4 であったものの，破断強度は約 2.7 倍，伸度については約 16 倍の結果となり，市販の vCF 紡績糸とは異なり，特に伸縮性に優れた特性を持つことを把握した。

なお，繊維に関しては，

$$\text{破断強度(N)} = \text{太さ(tex)} \times \text{強度(N/tex)}$$

なる関係がある。

rCF と PP からなる試作紡績糸および市販 vCF 紡績糸の外観を図 7 に示す。上段の試作紡績糸は下段の市販 vCF 紡績糸と比較して太く，全体的に色目が斑模様となっており，紡績糸製造時に炭素繊維と PP 繊維の混紡が不均質であったことがうかがわれる。この混紡工程をより均質に混紡を行うことで，表 1 の数値が改善されると期待される。

rCF (カーボンファイバーリサイクル工業(株)製)の表面観察結果を図 8 に，rCF 表面の元素分析結果を図 9 に示す。図 8 の結果より炭素繊維の形状は剛直であり，その繊維径は 7 μm であった。また，図 9 より炭素繊維以外に明らかな不純物は見られなかった。すなわち，図 9 の元素分析結果から検出された元素は炭素(C)が炭素繊維に由来するピークとして検出された他，ナトリウム(Na)，アルミニウム(Al)，カルシウム(Ca)であり，残留有機物の存在の可能性を示す窒素(N)や酸素(O)のピークは見られなかった。これ

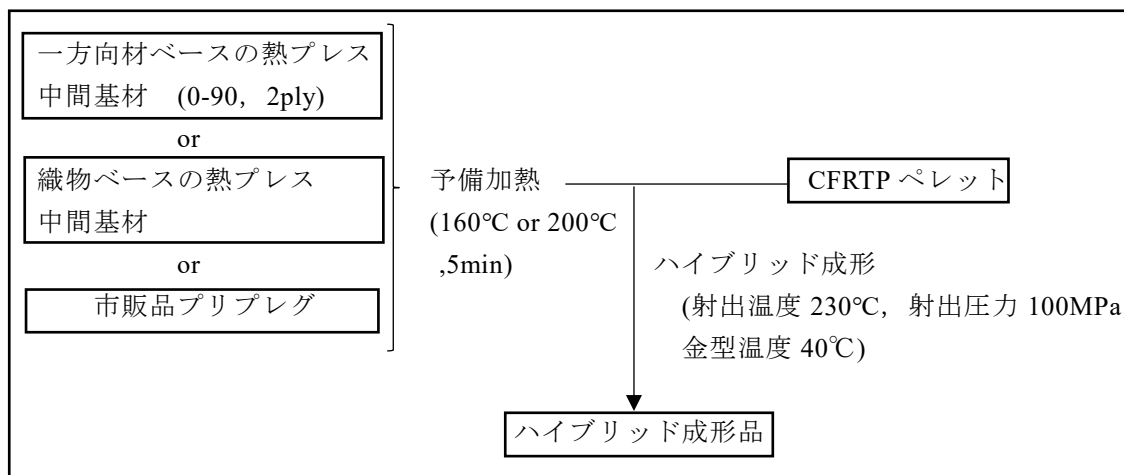


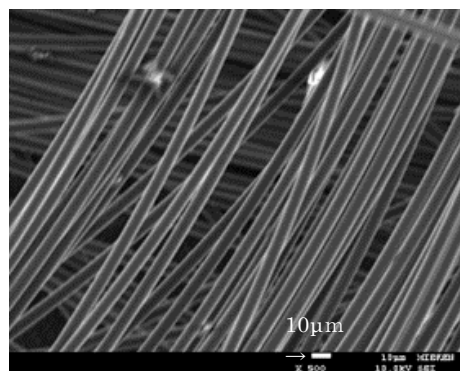
図6 ハイブリッド成型品作製フロー

表1 リサイクル炭素繊維とPP繊維からなる
試作紡績糸の概要

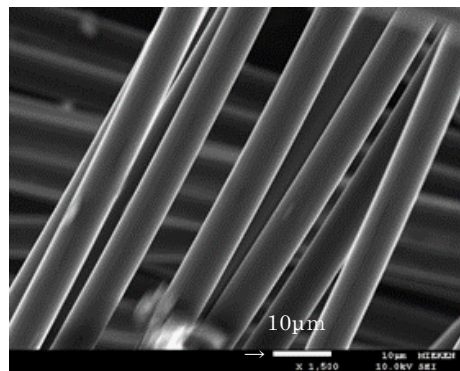
	太さ (tex)	CF 割合 (wt%)	破断 強度 (N)	伸度 (mm)	強度 (N/tex)
紡績糸	1260	59	74.9	17.6	0.059
(参考)市 販 vCF 紡 績糸	136	100	27.7	1.06	0.204



図7 リサイクル炭素繊維とPP繊維からなる
試作紡績糸の外観
(上段:試作紡績糸, 下段:(参考)市販 vCF 紡績糸)



a) 500倍



b) 1500倍

図8 rCFのSEM写真

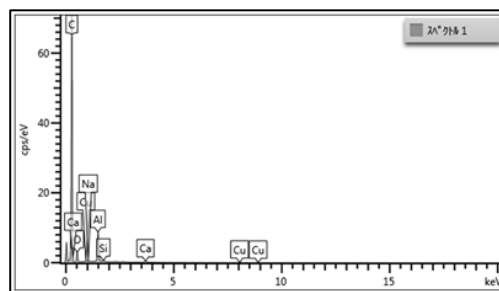


図9 rCF繊維表面の元素分析結果



図 10 一方向材ベースの熱プレス中間基材



図 11 織物ベースの熱プレス中間基材
(プレス条件: 温度 200°C, 時間 1h, 圧力 150kN)

らのことから紡績糸作製工程で課題となるような残留有機物は除去されていることが推定される。

3.2 リサイクル炭素繊維と PP 繊維からなる紡績糸を熱プレスした中間基材の評価

3.2.1 熱プレス中間基材の作製

一方向材ベースの熱プレス中間基材を図 10 に、織物ベースの熱プレス中間基材を図 11 に示す。このうち図 10 の一方向材ベースの中間基材については、繊維方向に強度が依存する異方性材料のため、必要に応じ、重ね合わせたうえ再度熱プレスした積層材を作製した。

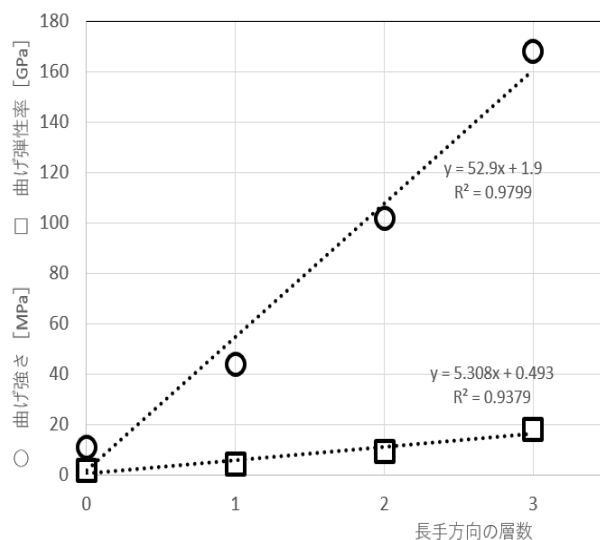


図 12 熱プレス中間基材の曲げ強さおよび曲げ弾性率測定結果

3.2.2 熱プレスした中間基材の曲げ強度測定

一方向材ベースの熱プレス中間基材の曲げ強さを○、曲げ弾性率を□として、測定結果を図 12 に示す。一方向材ベースの熱プレス中間基材は、90-90-90, 3ply, 長手方向の層数 0 では曲げ強さは 11 MPa で曲げ弾性率は 18 GPa であった。それに対して、長手方向の層数が増えるに従い曲げ強さ、曲げ弾性率とも数値が大きくなり、0-0-0, 3ply, 長手方向の層数 3 になると、曲げ強さ 102 MPa, 曲げ弾性率 9.4 GPa となり最大となった。これに対して、市販品プリプレグは、平織で曲げ強さは 302 MPa, 曲げ弾性率 31 GPa, および綾織で曲げ強さ 414 MPa, 曲げ弾性率 46 GPa であり、

表 2 半球治具を用いた賦形性確認試験結果

加熱温度	一方向材ベースの熱プレス中間基材 (2ply, 0-90)	(参考) 市販品プリプレグ (平織, 綾織 4ply)
160°C	賦形中に硬化	賦形不可
170°C	賦形可能	賦形不可
180°C	分解ガス発生	賦形中に硬化
200°C	分解ガス発生	賦形可能
240°C	分解ガス発生	分解ガス発生

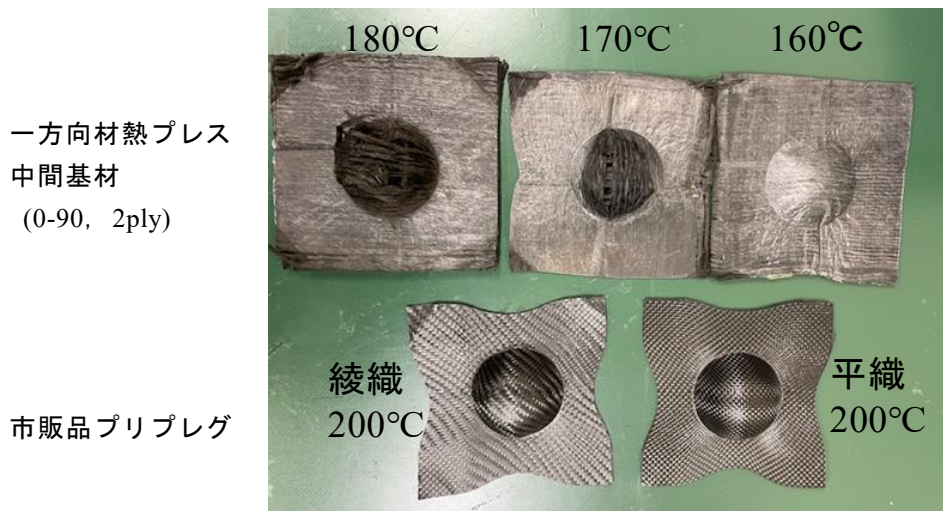


図 13 半球治具を用いた賦形性確認試験結果（下段綾織と平織は 200 °C）



図 14 試験用金型を用いたハイブリッド成形試作品

（一方向材ベースの熱プレス中間基材を積層 [(2ply,0-90)] + 市販 CF RTP ペレット）

綾織



平織



図 16 試験用金型を用いたハイブリッド成形試作品

（市販品プリプレグ + 市販 CF RTP ペレット）

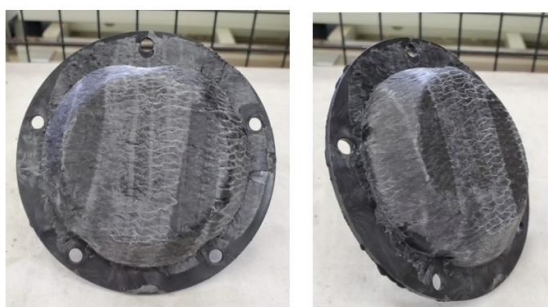


図 15 試験用金型を用いたハイブリッド成形試作品

（織物ベースの熱プレス中間基材 + 市販 CF RTP ペレット）

曲げ強さおよび曲げ弾性率の何れも市販品プリプレグの方が高かった。市販品プリプレグは、紡績糸ではなく長繊維からなることから、曲げ強さおよび曲げ弾性率とも高い結果になったと示唆される。なお、今回試作した一方向材ベースの熱プレス中間基材の密度は 1.1 g/m³、CF 含有率は 69%，これに対して市販品プリプレグの密度は 1.3 g/m³、CF 含有率は 71%であった。

3.2.3 熱プレスした中間基材の賦形性評価

一方向材ベースの熱プレスした中間基材（0-

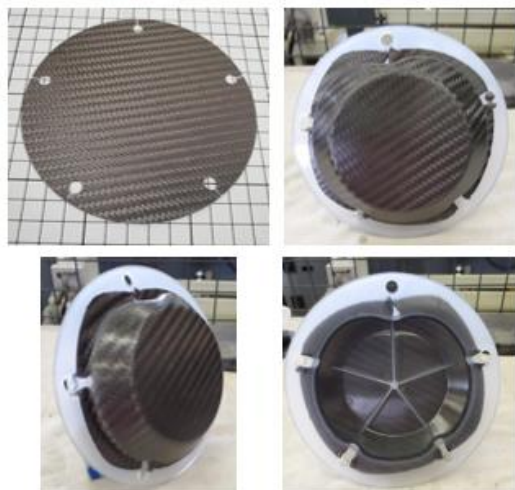


図 17 試験用金型を用いたハイブリッド成形試作品
(市販品プリプレグ[綾織]+市販 PP ペレット)

90, 2ply) について加熱温度の違いによる賦形性を確認した。結果を表 2 に、賦形性確認後の写真を図 13 に示す。一方向材ベースの熱プレスした中間基材 (0-90, 2ply) は、160℃では半球治具に押し当て賦形した際に硬化し、僅かに変形が起きる程度であった。170℃では、半球に沿って中間基材が変形し、賦形が可能であった。180℃を超えると樹脂成分の熱分解による煙が発生し、炭素繊維のみが残存する様子が見られた。一方、参考として賦形性確認を行った市販品プリプレグ(平織、綾織)については、160℃、170℃では変形が起きず、180℃では賦形中に硬化した。さらに温度を上げると 200℃で賦形が可能となり、240℃では樹脂成分の熱分解による煙が発生した。材料は同じであるにも拘わらず一方向材ベースの熱プレス中間基材と比較して賦形可能温度が高い結果となった。一方向材ベースの熱プレス中間基材は市販プリプレグと比較して密度が低い結果が得られていることから、加熱時に空隙内の酸素が樹脂成分の助燃材となり、より低い温度での樹脂成分の熱分解が進んだものと示唆される。

3.3 熱プレスした中間基材とリサイクル炭素繊維入り熱可塑性樹脂(CFRTP)ペレットからなるハイブリッド成形品の作製

熱プレス中間基材と市販 CFRTP ペレット (3~5 mm 程度の粒子状にしたもの) を用い、試験用

金型を用いたハイブリッド成形品を作製した。図 14 に一方向材を 0°-90°の 2 層で熱プレスした中間基材 (2ply, 0-90) と市販 CFRTP ペレットを用いたハイブリッド成形品を、図 15 に織物ベースの熱プレス中間基材と市販ペレットを用いた成形品を示す。また、市販品プリプレグと市販 CFRTP ペレットを用いた成形品を図 16 に、市販品プリプレグと市販 PP ペレットを用いた成形品を図 17 に示す。図 14, 図 15, 図 16, 図 17 の何れの成形品も金型に施した曲面箇所にはシワや凹凸は発生せず、一方向材ベースの熱プレス中間基材と織物ベースの熱プレス中間基材はともに市販品プリプレグと同様に、良好な賦形性を持つことが示唆される。一方、図 14 と図 15 の一方向材ベースの熱プレス中間基材と織物ベースの熱プレス中間基材の表面を確認したところ、図 16, 図 17 と比較して、シート側の表面全体 (図中の手前側) に粗さが見られた。表面粗さは、シート加熱時の表面温度が高いほど樹脂の流動性が上がり改善する¹⁸⁾ため、熱プレスした中間基材のハイブリッド成形については、成形時の金型温度を上げるなど、樹脂の溶解性と流動性を上げる対策が有効であると思われる。

4. 結論

リサイクル炭素繊維の多用途展開を図る技術開発を進めることを目標に、リサイクル炭素繊維 (rCF) を含む混紡紡績糸を熱プレスし、一方向材ベースの熱プレス中間基材と織物ベースの熱プレス中間基材の作製を行った。中間基材の作製と評価を繰り返すことで中間基材を作製する条件の絞り込みを行うことができた。また、この中間基材と市販 CFRTP ペレットの 2 種の素材を用い、ハイブリッド成形機による試作品を作製した。試作品の賦形性を確認したところ、熱プレス中間基材を使用したハイブリッド成形品は市販品プリプレグを用いたハイブリッド成型品と同等、良好な賦形性を持つことが示唆される。

今後は、これらの試作品の提示等を通じて、リサイクル炭素繊維の利活用と CO₂ 排出量削減の促進および市場への展開を見据えた技術開発、コスト分析及びコスト目標算定のための調査を行っていく。

謝辞

本研究は、2020（令和2）年度環境研究総合推進費委託研究（JPMEERF20203G02）の支援を受け、実施したものである。この場を借りて深くお礼申し上げます。

参考文献

- 1) 株式会社富士経済：炭素繊維複合材料（CFRP／CFRTP）関連技術・用途市場の展望 2021
- 2) 株式会社矢野経済研究所 令和2年度地球温暖化・資源循環対策等に資する調査委託費：リサイクル炭素繊維の利用・評価手法等に関する国際動向調査 経済産業省委託調査 (2021)
- 3) 柴田勝司：“常圧溶解法による CFRP リサイクル技術” 廃棄物資源循環学会誌, 24, p358-363 (2013)
- 4) 板津秀人ほか：“省エネ型熱分解法による長繊維リサイクル炭素繊維回収技術” 廃棄物資源循環学会誌, 24, p371-378 (2013)
- 5) 藤井 透ほか：“炭素繊維のリサイクル最前線” 繊維学会誌, 71, p535-546 (2015)
- 6) 高橋将士ほか：“リサイクル炭素繊維の用途開発” 廃棄物資源循環学会研究発表会講演集 第27回廃棄物資源循環学会研究発表会 講演原稿, p305-306 (2016)
- 7) 田中公美子ほか：“炭素繊維強化プラスチックの新しいリサイクル技術の開発に向けたキャビテーション加工からのアプローチ” 日本機械学会論文集, 85,p1-10 (2019)
- 8) 入澤寿平：“炭素繊維強化プラスチックに関する最近の動向（その二：CFRTP 開発とCFRP リサイクル技術に関する研究動向）” 成型加工,28, p 260-264 (2016)
- 9) 島袋 出：“未来社会を支える炭素繊維の研究開発を目指して” 炭素,303,p305 (2023)
- 10) 経済産業省：“SDGs 経営ガイド” (2019)
- 11) 経済産業省：第4回スマート・エコパークに関する検討会 資料3 山藤家嗣, 炭素繊維複合材料とリサイクル(2015年2月)
- 12) 経済産業省：令和3年度産業標準化推進事業委託費(戦略的国際標準化加速事業 ルール形成戦略に係る調査研究) リサイクル炭素繊維の評価手法や採用状況に関する国際動向調査 (2022年3月)
- 13) 日本化学繊維協会 炭素繊維協会委員会：炭素繊維サステナビリティビジョン 2050 (2022)
- 14) 環境省：第4次循環基本計画(平成30年6月)
- 15) 日本工業規格 JISK7075“炭素繊維強化プラスチックの繊維含有率及び空洞率試験方法” (一財)日本規格協会 (1991)
- 16) 日本工業規格 JISR7606“炭素繊維—単繊維の引張特性の試験方法” (一財)日本規格協会 (2000)
- 17) 日本工業規格 JISK7074“炭素繊維強化プラスチックの曲げ試験方法” (一財)日本規格協会 (1988)
- 18) 津川大輔ら：“射出成形における樹脂の温度変化を考慮した金型内流動解析” 精密工学会誌 58,p87-92(1992)