

熱可塑性 CFRP の量産・再利用のための型技術

メカニクス系工学専攻 准教授	西藪 和明
濱田プレス工藝株式会社 取締役社長	濱田 恵
株式会社カツロン 代表取締役社長	石川 明一
株式会社ホーライ 代表取締役社長	鈴木 雅之
株式会社小西金型工学 専務取締役	小西 修史
株式会社マジックボックスJP 代表取締役社長	柳原 淳一
大阪大学大学院 博士後期課程学生	田邊 大貴
理工学部機械工学科 学生	倉留 京介

1. 緒言

近年注目されている熱可塑性 CFRP は、従来から多用されている短い炭素繊維を熱可塑性樹脂に添加して、プラスチック成形品の強化を目的とした材料とは異なり、連続した炭素繊維を高密度に配列させ、それを力学的および熱的特性に優れたスーパーエンブラの熱可塑性樹脂で繋ぎ止めた先進材料である。このような熱可塑性 FRP は、熱硬化性 CFRP では耐衝撃性に課題のあった大型旅客機の主翼前縁やジェットエンジンの吸気ダクトなどの部位に採用されており、アルミなどの金属材料の代替である。これはガラス繊維強化 PPS 樹脂積層板を加熱プレス成形し、誘電加熱による融着接合法の開発により実用化に至っている。近年では高い生産性を必要とされる航空機のブラケット等に熱可塑性 CFRP が採用され、水平尾翼の構造材への開発も進んでいる。電気自動車への車体全体を熱可塑性 CFRP で試作した事例も広報されているが、量産燃料電池車への熱可塑性 CFRP 部材の採用を除けば、現在のところ自動車部材への適用はガラス繊維強化熱可塑性樹脂積層板のインサート射出成形品が多い。

熱可塑性 CFRP と熱硬化性 CFRP に用いられる炭素繊維は、使用する母材樹脂に適合した表面処理が施されている点では異なるが、同材質の炭素繊維が用いられる。CFRP の成形プロセスにおいて、炭素繊維は何の材質上の変化はないが、母材樹脂は大きくその特性が変化する。熱可塑性 CFRP に用いられる樹脂は、加熱により軟化・熔融し、冷却により固化する可逆的な性質を持つため、汎用熱可塑性プラスチックと金属材料の両方の成形技術が適用可能である。それらは、射出成形や加熱プレス成形など、高い生産性と量産に富む「金型を用いた製造」技術である。近年、熱可塑性 CFRP を用いた自動テープ積層 (Auto Tape Layup, ATL) や自動繊維積層 (Auto Fiber Placement, AFP) による大型構造部材の製造法の開発が進んでいる。今後は押出や引抜き、ロール成形のような連続成形や真空成形など様々な成形技術が適用されるが、これらはすべて金型や工具を用いた製造法である。

一方、連続した炭素繊維の変形能は乏しく、金属材料のように常温での大きな塑性変形によるプレス成形は適用できない。そのため、加熱により軟化させてプレス成形が可能であるが、テキスタイル構造特有の大きな異方性により多くのシワが発生する。そのため、織物に切り目を入れたプリフォームや一方向繊維のプリプレグシートを適切に切断した複雑形状への成形性に優れたプリプレグシートも開発されている。さらに、複雑な形状を有する大型構造材を製造するには部材間の接合が必要である。一般に、熱硬化性 CFRP の接合には金属製のリベットやボルトによる機械的接合や、熱硬化性樹脂を用いた接着接合が用いられるが、金属締結具の重量増加や腐食、円孔部近傍での応力集中による強度低下が問題となる。そのため、熱硬化性樹脂による接着接合は有用であるが、熱可塑性樹脂との化学的結合が乏

しいため熱可塑性 CFRP の接合には適さない。そのため、熱可塑性 CFRP の接合は部材間の樹脂を加熱溶融・冷却固化による融着接合が望ましい。この融着接合にも何らかの加熱および加圧を行う際にツールが必要である。さらに、熱可塑性 CFRP の加熱プレス成形で行われる外形抜きにより排出された不用部材や成形不良品などを破碎粉碎して再生材として利用可能である。その際、粉碎破碎に用いられる打ち抜き金型や工具、さらに樹脂との混練のためのブレードなど、高度なツーリング技術が必要である。このように、熱可塑性 CFRP を量産・再利用を実現するためには単に素材の高性能化や安定供給のみならず、型技術が極めて重要である。本稿では、熱可塑性 CFRP の加熱プレス成形、押し出し成形、ハイブリッド射出成形、再利用のための破碎・混練および電気式融着接合などの開発事例を紹介する。

2. 加熱プレス成形⁽¹⁾

熱可塑性 CFRP の加熱プレス成形プロセスの一例を図 1 に示す。(a)プレス成形に適合する形状にトリミングした熱可塑性 CFRP 板を、(b)赤外線加熱して母材樹脂の融点近傍まで加熱する。その後、(c)プレス成形金型に搬送し、適切なプレス条件で加熱成形し、(d)樹脂のガラス転移温度以下に冷却し、離型して製品を得る製造プロセスである。熱可塑性 CFRP の赤外線加熱には、近赤外線ヒータ（短波長ヒータ）が用いられることが多い。近赤外線ヒータは中波長や遠赤外線ヒータ等と比較して昇温速度が大きく、炭素繊維のような黒体への吸収率が高いため、熱可塑性 CFRP の加熱に適している。

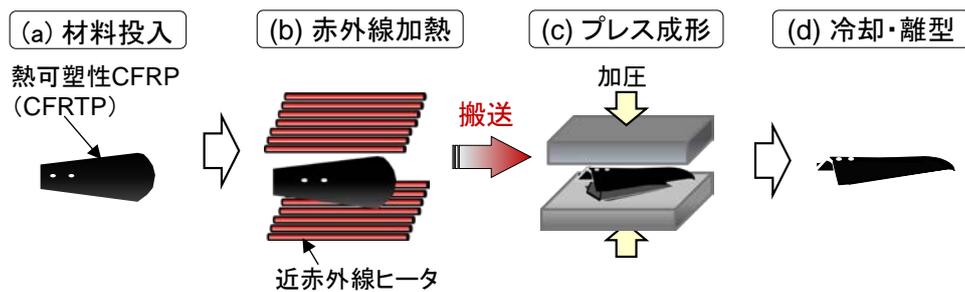


図 1 熱可塑 CFRP の加熱プレス成形プロセスの一例

熱可塑性 CFRP 用の加熱搬送装置を図 2 に示す。本装置は東大阪市内の金属プレス業やプラスチック成形業等の 5 社と近畿大学で構成される「e-コンポジット研究会」が、平成 23~25 年度の戦略的基盤技術高度化支援事業⁽²⁾で開発した“汎用金属プレス機で使用可能な”熱可塑性 CFRP 用加熱搬送装置である。適切な温度レシピで CFRP を加熱し、汎用金属プレス機の金型に自動搬送できることを特長とする。本装置を用いて成形した熱可塑性 CFRP の加熱プレス成形品例（LED ランプシェード）を図 3 に示す。多様な織物 CFRP のプレス成形品が高品質に製造可能である。

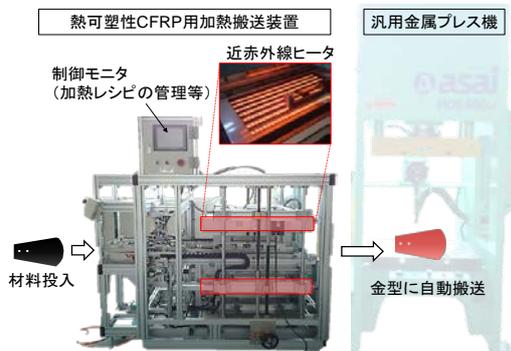


図 2 汎用金属プレス機で使用可能な加熱搬送装置

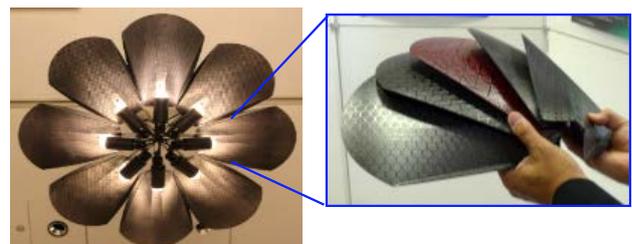


図 3 熱可塑性 CFRP の加熱プレス成形品例（LED ランプシェード）

著者らの研究室で開発した「熱可塑性CFRPの打抜き・プレス成形のミニライン」を図4に示す。熱可塑性CFRP板をプレス成形に適する形状に打抜き加工し、近赤外線ヒータで加熱した後、1トンサーボプレス機でプレス成形して、ペン立てを製造することが可能である。本装置はAC100Vで動作することが可能で、実験室や展示会等での実演により、熱可塑性CFRPの一連の成形工程を紹介することができる。

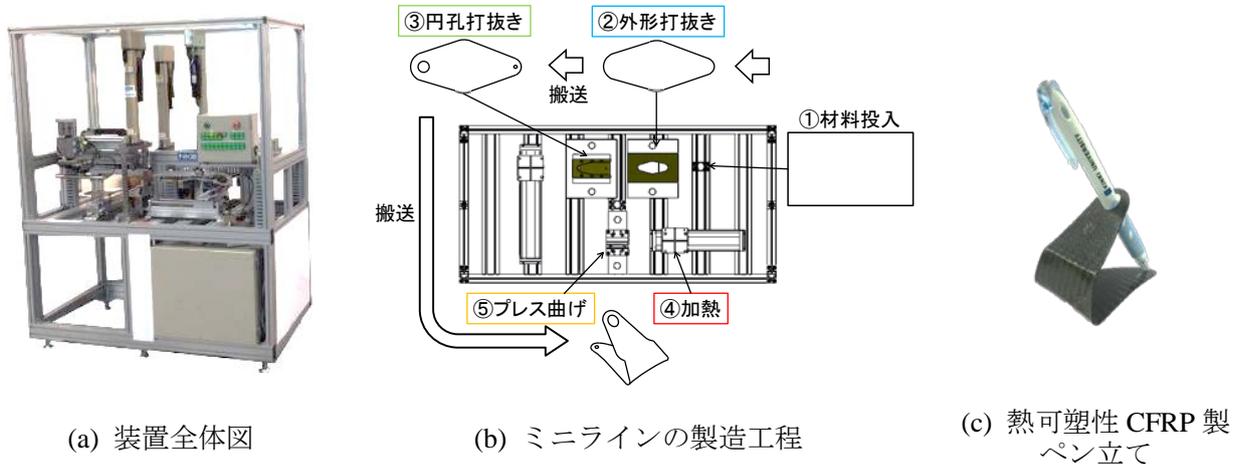


図4 熱可塑性CFRPの打抜き・プレス成形のミニライン

3. 押出成形^[1]

これまで汎用の押出し成形機を用いて金属ワイヤやシートなどの異材と熱可塑性樹脂を同時に複合押出し成形する技術が確立されてきたが、熱可塑性CFRPと熱可塑性樹脂の複合押出し成形を試みた例はあまり見られない。熱可塑性CFRPを複合押出し成形する際、熱可塑性樹脂は熔融粘度が高いために繊維束内に樹脂を含浸させることが困難である。しかし、高剛性で高い強度信頼性を有する複合押出し成形品を熱可塑性CFRPで得るには高い繊維体積割合で、高い繊維/樹脂界面特性を確保する必要がある。

炭素繊維束とPA66樹脂の複合押出し成形プロセスを図5に示す。押出し材料であるPA66樹脂ペレットを押し出し成形機に投入し、押し出しスクリーを用いて加熱溶融させ、押し出し金型から所望の形状で溶融材を吐出する。その際、押し出し金型の背面から2本の炭素繊維束をインサートさせ、溶融材と共にサイジング機に挿入し、冷却水槽内で固化冷却させて引取装置を用いて連続的に成形する。これにより得られた複合押出し成形品の外観像を図6に示す。炭素繊維束の周りのPA66樹脂を減らせる押し出し金型技術が求められる。

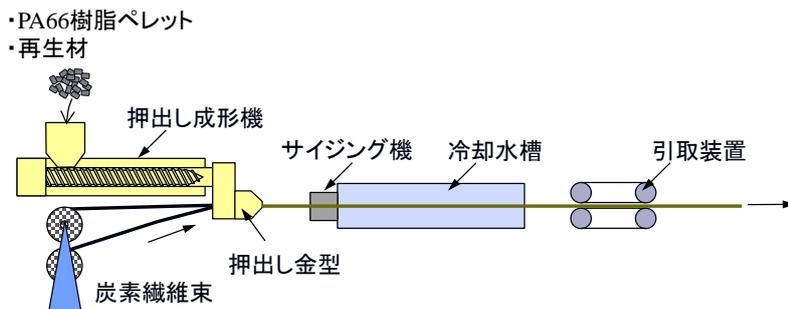


図5 複合押出し成形プロセス



図6 複合押出し成形品の例

4. 再利用のための破碎・混練¹⁾

プレス成形の前後に排出された熱可塑性 CFRP の不用品を再利用するためには、加熱により樹脂を変形または溶融させて、繊維を元のシート状に戻すことが最も優れたリサイクル法であるが、繊維の連続性から容易に元の形態に復元することは容易ではない。そのため、繊維強化熱可塑プラスチックを所望の形状に制御して破碎し、再利用しやすいサイズや形状に加工する必要がある。これは、不用品や廃棄物を単に破壊させ、減容化により搬送または燃焼・埋め立てしやすい形状にする廃棄処理とは全く異なる。破碎粉碎には、シートペレタイザー、二軸式破碎機、およびスクリーン付き一軸せん断式粉碎など様々な種類の破碎機が使用できる。破碎方法とメッシュサイズにより、図7に示すように織物 CFRP 積層の破砕片サイズを変化させることが可能である。織物 CFRP 積層の破砕片の繊維体積割合は 45vol.% であり、溶融押し出し成形や加熱プレス成形は可能である。また、織物 CFRP 積層の破砕片に母材樹脂を添加して混練押し出し成形により、図8(a)に示すような再生ペレットを作製し、これを用いて押し出し成形や射出成形により図8(b)や(c)のような再生成形品が得られる。図8(d)は織物 CFRP 積層板とその破砕片を用いて加熱プレス成形により作製したリブ構造板である。

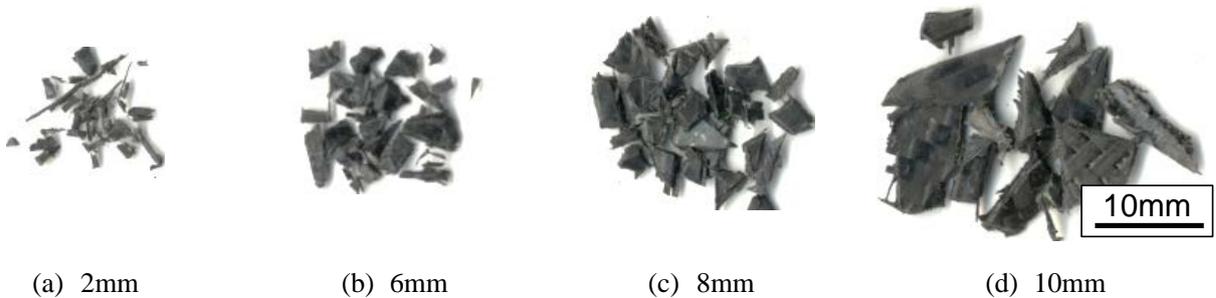


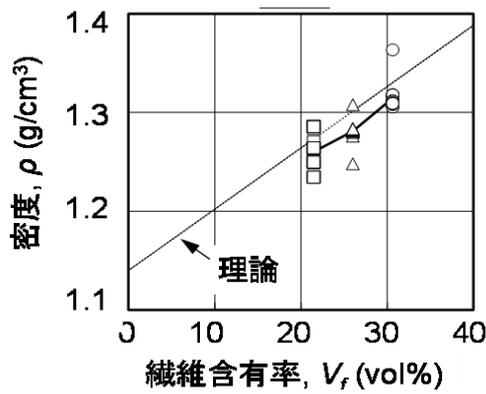
図7 織物 CFRP 積層板の破砕片



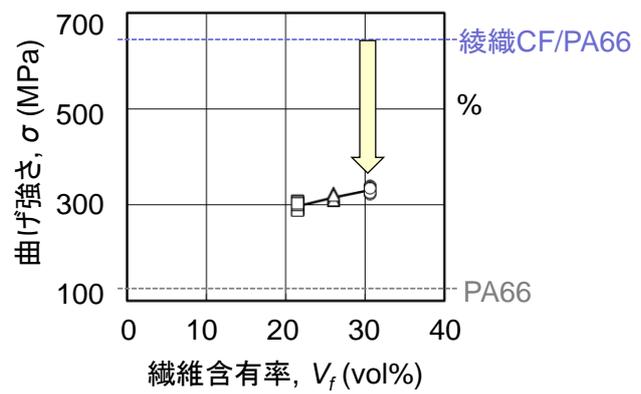
図8 再生ペレットおよび再生成形品の例

5. 射出成形

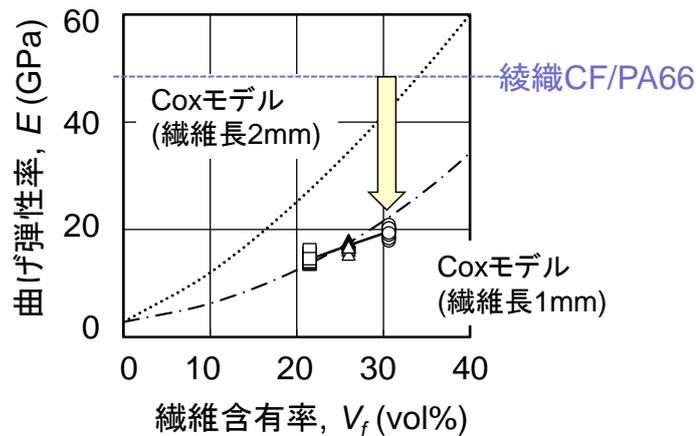
再生 CFRTP ペレット材を小型電動射出成形機（株住友重機械，SE18DUZ）で、長さ 80mm、幅 10mm、厚さ 4mm の形状の 3 点曲げ試験片を成形した。その後、卓上万能試験機（株島津製作所製，AG-50kN XDplus）を用いて 3 点曲げ試験を行い、再生材の曲げ特性を評価した。小型電動射出成形機を用いて射出成形した 3 点曲げ試験片の繊維含有率が密度、曲げ強さおよび曲げ弾性率に及ぼす影響を図9に示す。繊維含有率が増加するほど(a)密度はほぼ線形的に増加した。また、(b)曲げ強さおよび(c)曲げ弾性率も同様に繊維含有率が増加するほど線形的に向上した。 $V_f=30.6\text{vol}\%$ の再生材の場合では、未使用板と比較して曲げ強さは 52%、曲げ弾性率は 40%の強度特性が得られることが分かった。しかし、曲げ強度および曲げ弾性率においても偏差が見られる。これは、繊維含有率が一定でも試験片ごとに密度の偏差が大きいことが原因であると考えられる。短繊維複合材料の Cox モデルに繊維長 1mm として当てはめてみたところ、実験値と一致した。



(a)密度



(b)曲げ強さ



(c)曲げ弾性率

図9 再生CFRTP材を用いた射出成形品の三点曲げ試験結果

破砕片のサイズの異なる再生ペレットの繊維長を測定した。試験片の一部を切り出し、それを卓上マッフル炉（山田電機株，YF-120）で加熱して樹脂を除去し、炭素繊維のみを取り出す。デジタルマイクロスコープ（オリンパス株，DSX500）で炭素繊維を観察して測長した結果の100本の平均値を表1に示す。これらの繊維長は各破砕片サイズに比べてかなり小さい値であり、偏差も大きい。どの破砕片サイズにおいても、混練時に大きいせん断力により、繊維が短く切断され、その長さはほぼ一定であり、樹脂との混練が比較的均一に行われていると言える。

表1 破砕片のサイズの異なる再生ペレットの繊維長の測定結果

破砕片サイズ	平均繊維長
50wt%_φ2	119.34μm
50wt%_φ6	108.86μm
50wt%_φ8	103.55μm
50wt%_φ10	79.93μm
70wt%_φ2	159.23μm
70wt%_φ6	150.76μm
70wt%_φ8	110.52μm
70wt%_φ10	91.18μm

汎用射出成形機（ファナック株, α -S100iA）を用いて、表 2 に示す成形条件で図 10 に示すような連結式三角スケールを作製した。その際、破碎・粉砕片に PA66 樹脂を 50wt% 添加した再生 CFRTP 材ペレットを用いた。得られた成形品を非接触式三次元デジタル画像計測ロボット（GOM 社, ATOS® SCANBOX）を用いて形状測定し、図 10 に示す箇所について金型の設計値と比較した。

表 2 連結式三角スケールの作製のための射出成形条件

Injection speed, v	31 mm/s
Pressure keeping, P	30 MPa
Pressure keeping time, t_p	4 s
Maximum injection pressure, P_{max}	50 MPa
Back pressure, P_b	10 MPa
Cooling time, t_{cool}	20 s
Mold temperature, T_{mold}	80 °C

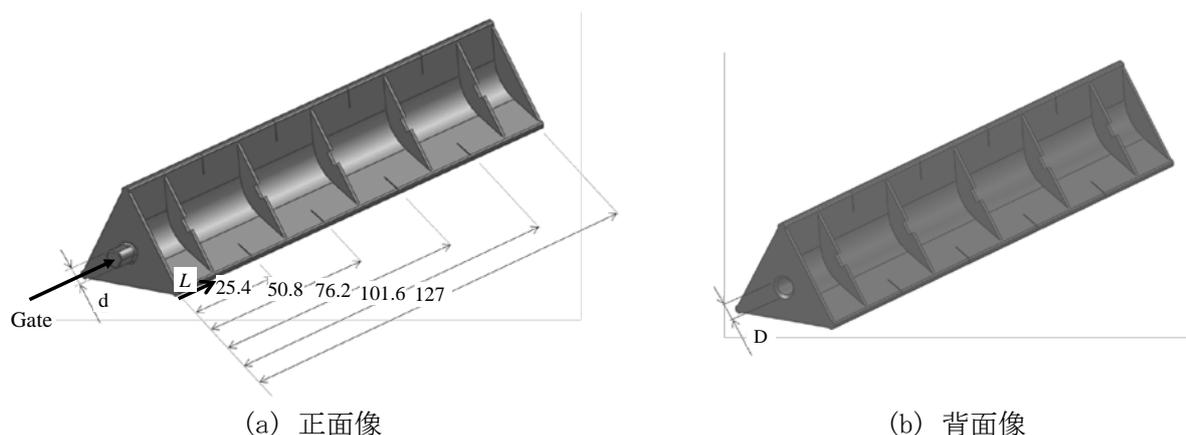


図 10 連結式三角スケールおよび形状測定箇所

破碎片サイズの異なる再生材を用いて作製した連結式三角スケール成形品の長手方向の寸法差率を図 11 に示す。破碎片サイズが $\phi=8\text{mm}$ より小さい場合はゲート部に近い $L=25\text{mm}$ で寸法差率が最大となり、ゲート部から離れるほど寸法差率は小さくなった。一方、破碎片サイズ $\phi=10\text{mm}$ の場合は $L=25\text{mm}$ で寸法差率が最小となり、ゲート部から離れるほど寸法差率が大きくなった。このように、破碎片サイズによってゲートからの距離に対する寸法差率の傾向が異なることが分かった。これは、破碎片が長くなるとゲート通過後の流動挙動に影響を及ぼし、成形品に繊維長の偏差が生じたためであると考えられる。

汎用射出成形機を用いて成形した三角スケール成形品の穴部および軸部の寸法差率を図 12 に示す。穴部の内径 D はゲート部付近の軸部の外径 d に比べて収縮が大きく生じ、結果として寸法差率が大きくなることが分かった。また、内径 D の場合は破碎片サイズが大きくなるほど寸法差率が小さくなることが分かった。これは繊維長が大きいほど、成形品の固化収縮率が小さく、成形品の寸法安定性が高くなったためであると考えられる。ただし、外径 d の場合は、破碎片サイズが $\phi=10\text{mm}$ の場合は繊維長が大きすぎて軸部に高密度に充填することが困難であったと考えられる。

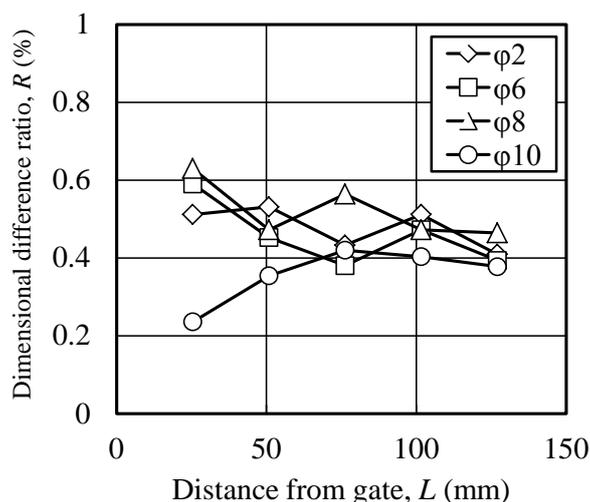


図 11 破砕片サイズの異なる再生材を用いて作製した三角スケール成形品の寸法差率の変化

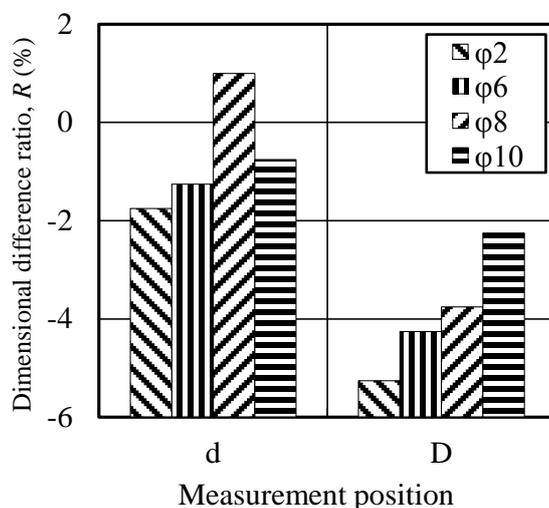


図 12 三角スケール成形品の穴部および軸部の寸法差率

6. 電気式融着接合 [2,3]

熱可塑性 CFRP の電気式融着の適用事例として、ステンレス鋼メッシュを抵抗発熱体に用いた研究があるが、著者らは Ni-Cr 線に用いて一方向および織物炭素繊維強化 PPS 樹脂積層板の電気式融着接合を行った [2]。PPS 樹脂は融点 290°C の高い熱的特性を有する結晶性樹脂であるが酸化が著しく、汎用樹脂に比べて融着は非常に困難である。金属線を抵抗発熱体に用いて熱可塑性 CFRP の融着接合は可能であるが、抵抗発熱体が融着層内部に残留するため強度低下や抵抗発熱体の腐食や廃棄処理の問題がある。そこで、図 13 に示すように高強度で耐食性に富む炭素繊維束および開織炭素繊維シートを抵抗発熱体として用いた電気式融着接合法を開発した [3]。炭素繊維束よりも開織炭素繊維シートを抵抗発熱体として用いた場合は、継手面全域が均一に樹脂溶解し、良好な融着接合が可能である。3 本の Ni-Cr 線と炭素繊維束、および開織炭素繊維シートを抵抗発熱体として用いた融着接合部材の引張せん断試験結果を図 14 に示す。エポキシおよびアクリル系接着剤で接着接合した試験片の引張せん断強度は極めて低いが、炭素繊維束を抵抗発熱体として用いた場合は Ni-Cr 線を用いた場合と比較して接合強度が向上した。特に、0° 試験片は融着層が繊維強化されたため、Ni-Cr 線を用いた場合と比べて約 3 倍の接合強度が得られた。炭素繊維を熱可塑性 CFRP の電気式融着時の抵抗発熱体として用いると接合強度を大幅に向上でき、軽量化、廃棄・再利用性にも優れている。

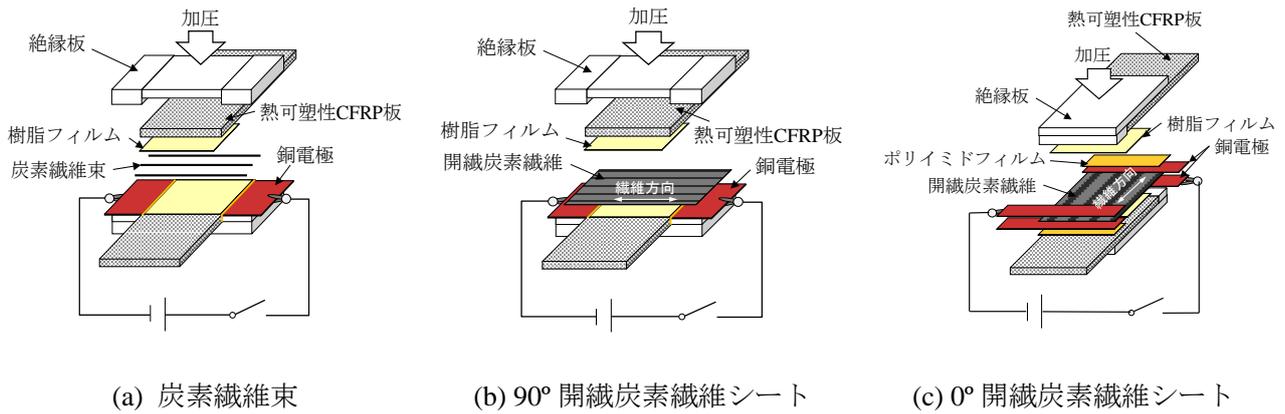


図 13 炭素繊維抵抗発熱体を用いた電気式融着方法

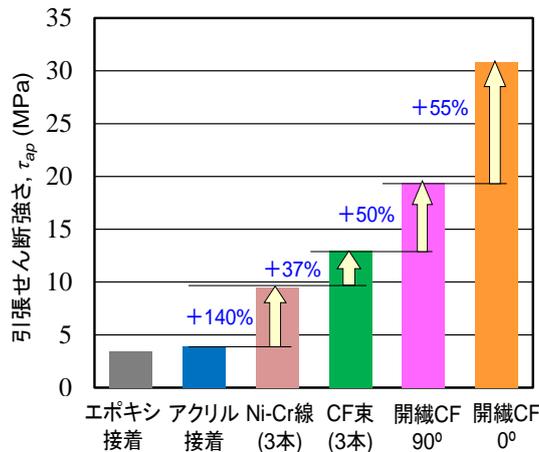


図 14 CF/PPS 積層板の接着接合と電気式融着接合の引張せん断強度の比較

7. まとめ

省エネ・環境適合性の観点から、主に輸送機器の軽量化を目的に熱可塑性 CFRP が大きく注目されているが、最大の課題は高い材料および製造コストに見合う用途探索である。熱可塑性 CFRP は従来の熱硬化性 CFRP の製造法とは全く異なり、金属加工業が参入しやすい先進材料であり、様々な技術シーズが提供可能である。その一つに、型技術がある。本稿で紹介した様々な成形や再利用・接合には何らかの形で型や工具など高度なツーリング技術が必要とされており、熱可塑性 CFRP の量産・再利用において型技術がその成功の鍵を握っていると言っても過言ではない。しかし、熱可塑性 CFRP はテキスタイルベースの材料であるため、金属材料のような使いやすい素材ではなく、また成形の前後において変化する母材樹脂であり、異分野の材料に対する理解が必要である。

8. 参考文献

- [1] 平成 25 年度戦略的基盤技術高度化支援事業「熱可塑性 CFRP プレス成形品の高度マテリアルリサイクルシステムの構築」研究開発成果等報告書(2014)
- [2] 田邊大貴, 西藪和明, 倉敷哲生, Ni-Cr ワイヤ抵抗発熱体を用いた CF/PPS 積層板の電気式融着挙動, 機論, Vol.80, No.815, DOI: 10.1299/transjsme.2014smm0189 (2014).
- [3] 田邊大貴, 西藪和明, 倉敷哲生, 炭素繊維を発熱体として用いた CF/PPS 積層板の電気式融着接合に及ぼす影響因子, 機論 (2015 印刷中).