

熱可塑性 CFRP のハイブリッド射出成形技術に関する研究

2017 年 11 月

富岡 正雄

— 目次 —

第1章 序論	1
1.1 緒言	1
1.2 炭素繊維強化プラスチックについて	1
1.3 CFRTTPの成形方法と技術	2
1.3.1 炭素繊維強化ペレットと射出成形	2
1.3.2 スタンパブルシートとスタンピング成形	4
1.3.3 連続繊維CFRTTPおよびその成形技術	7
1.4 CFRTTPの課題とハイブリッド射出成形技術	9
1.5 本研究と往来研究	11
1.5.1 ハイブリッド射出成形の課題と本研究の目的	11
1.5.2 スリット積層式スタンパブルシートに関する往来研究と課題	12
1.5.3 リサイクルに関する往来研究と課題	13
1.5.4 インサート材と射出樹脂の界面接着性に関する往来研究と課題	14
1.5.5 本研究の構成	15
第2章 機械物性および流動性に対するスリット積層式スタンパブルシートのスリット形状の影響	17
2.1 緒言	17
2.2 実験方法	19
2.2.1 スリット積層式スタンパブルシートの作製	19
2.2.2 流動性評価方法	22
2.2.3 流動性の可視化	23
2.2.4 機械物性評価	24
2.3 FEMによるCAE解析手法	24
2.3.1 モデル化の指針	24
2.3.2 形状および物性のモデル化と計算手法	26
2.4 結果と考察	28
2.4.1 流動性	28
2.4.2 曲げ物性	33
2.5 結言	37
第3章 スリット積層式スタンパブルシートをハイブリッド射出成形のインサート材に用いた際のハイブリッド射出成形品のリブ部の強度	39
3.1 緒言	39

3. 2	実験方法	40
3. 2. 1	材料	40
3. 2. 2	成形方法	41
3. 2. 3	リブ引張試験とインサート材引張試験	44
3. 3	結果と考察	47
3. 3. 1	リブ入り込み高さに対するスリット入りプリプレグの割合の影響	47
3. 3. 2	引張試験結果	50
3. 4	結言	54
第4章 ハイブリッド射出成形における成形条件が界面接着性に及ぼす影響		55
4. 1	緒言	55
4. 2	実験方法	57
4. 2. 1	ハイブリッド射出成形方法	57
4. 2. 2	温度圧力計測方法	60
4. 2. 3	界面接着性評価	61
4. 2. 4	熱重量分析 (TGA) の測定	62
4. 2. 5	断面顕微鏡観察	62
4. 3	結果と考察	63
4. 3. 1	ショートビーム3点曲げ試験による界面せん断強度の評価	63
4. 3. 2	界面温度および金型内圧力測定結果	65
4. 3. 3	シリンダー温度の影響	66
4. 3. 4	保圧の影響	68
4. 3. 5	金型温度の影響	70
4. 3. 6	射出速度の影響	71
4. 3. 7	インサート材加熱の影響	73
4. 3. 8	界面温度と界面せん断強度の関係	77
4. 4	結言	78
第5章 プリプレグ端材の射出成形用材料としてのリサイクル化		79
5. 1	緒言	79
5. 2	実験方法	80
5. 2. 1	材料	80
5. 2. 2	リサイクルペレットの作製	81
5. 2. 3	射出成形試験片の作製	84
5. 2. 4	流動性評価	85
5. 2. 5	繊維長測定	85

5. 2. 6	機械物性評価	86
5. 3	結果と考察	86
5. 3. 1	スクリー構成の影響	86
5. 3. 2	CF含有量低減の影響	89
5. 3. 3	流動性	93
5. 3. 4	機械特性	94
5. 4	結言	98
第6章	リサイクルペレットのハイブリッド射出成形への適用時における界面接着性	100
6. 1	緒言	100
6. 2	実験方法(1)	
-	リサイクルペレットの界面接着性評価(バージン材料との比較)	100
6. 2. 1	材料	100
6. 2. 2	ハイブリッド射出成形方法および成形条件	101
6. 2. 3	界面接着性評価	102
6. 2. 4	繊維長測定方法	103
6. 2. 5	熱重量分析(TGA)の測定	104
6. 2. 6	断面顕微鏡観察	104
6. 3	実験方法(1) - 同一のCF、樹脂による接着性向上の確認検証	104
6. 3. 1	材料	104
6. 3. 2	ハイブリッド射出成形方法	105
6. 3. 3	界面接着性評価	105
6. 4	結果と考察	106
6. 4. 1	ショートビーム3点曲げ試験による界面せん断強度の評価	106
6. 4. 2	リサイクル材料の界面接着性および成形条件の影響	108
6. 4. 3	同一のCF、樹脂による接着性向上の確認検証	111
6. 5	結言	113
第7章	結論	115
参考文献		119
付録		124

第1章 序論

1. 1 緒言

本研究は熱可塑性炭素繊維強化プラスチックのハイブリッド射出成形技術に関するものである。本章ではまず、背景として熱可塑性炭素繊維強化プラスチックの現状を述べた後、既存技術について紹介し、特に近年注目されているハイブリッド射出成形について記述する。続いて、本研究の目的・意義について述べ往來研究についてまとめた上で、本研究の構成を記述する。

1. 2 炭素繊維強化プラスチックについて

炭素繊維は比強度・比剛性に優れる高機能繊維であり、優れた機械特性以外にも高い熱伝導性や電気伝導性、耐錆性など多くの特長的な性質を有する。この炭素繊維により強化された高分子材料である炭素繊維強化プラスチック（CFRP: Carbon fiber reinforced plastics）は、その特長を活かしてゴルフシャフト等のスポーツレジャー用途からロールや電気電子機器の筐体といった産業用途、間航空機の主翼・胴体といった一次構造材など、幅広い分野で適用されており、市場規模は拡大の一途をたどっている[1]。現状、CFRPのマトリックス樹脂としてはエポキシ樹脂や不飽和ビニルエステルといった熱硬化性樹脂を用いたものが主流である。熱硬化性樹脂が主に用いられる理由は、熱硬化性樹脂は熱可塑性樹脂に比べて炭素繊維との接着性に優れ、複合材料とした際の機械物性の発現性に優れる点と、未硬化の熱硬化性樹脂は低分子量であるため粘度も低く、高分子量で粘度の高い熱可塑性樹脂よりも低コストで炭素繊維に樹脂を含浸させることができるためである。

一方で熱可塑性樹脂をマトリックス樹脂に用いた熱可塑性炭素繊維強化プラスチック（CFRTP: Carbon fiber reinforced thermoplastics）は、成形時に化学反応を伴う必要がなく、樹脂の加熱溶融と冷却固化で成形が可能であるため、成形時の金型占有時間が1分未満と、成形時間のさらなる短縮が可能である。加えて、CFRTPは2次加工性や高い耐衝撃性能、また将来的なマテリアルリサイクル性も期待されることから、近年

では盛んに材料～成形加工技術について研究されている[2-4]。

繊維強化プラスチックは含有する強化繊維の繊維長や成形方法に応じて、表1に記載の通り3つに分類でき、CFRTPもこれに当てはめることができる。繊維長が長い材料ほど優れた機械物性を発現する一方で、複雑形状を成形するための賦型性の観点からは繊維長は短い方が好ましいなど、それぞれの材料には一長一短あり、適応されるアプリケーションの要求性能に応じて使用される。それぞれの特徴は1.3.1～1.3.3項にて述べる。

表1 繊維強化プラスチックの分類

	繊維長	特徴	CFRTPにおける代表的な成形方法
1)	数mm以下	優れた賦型性と量産性	射出成形
2)	数mm～数十mm	賦型性と補強効果のバランス	スタンピング成形
3)	連続繊維	優れた補強効果	プレス成形など

1.3.1 CFRTPの成形方法と技術

1.3.1 炭素繊維強化ペレットと射出成形

身の回りにあるプラスチック製品の大半は射出成形にて製造されたものであると言える。射出成形とは、加熱により溶融した熱可塑性樹脂を射出装置を用いて金型内に流し込み、冷やして固めた後、金型から取り出すものである。この射出成形の工程の概念図を図1-1[5]に示す。この射出成形の原料に用いられる樹脂ペレットを繊維で補強したものが繊維強化ペレットであり、またその強化繊維に炭素繊維を用いたものが炭素繊維強化ペレットである。炭素繊維強化ペレットは、非強化の熱可塑性樹脂よりも流動性が低くなるため、薄肉などの形状ではCF配合量や成形条件などの適正化が必要なるケースはあるものの、基本的には熱可塑性樹脂の一般的な射出成形と同様に、成形時間は短く、量産性に優れる成形技術である。また射出成形以外にも、押出機の

ダイスからシートや棒、パイプといった形状に直接製品を押し出して成形する射出成形にも繊維強化ペレットは適応される。

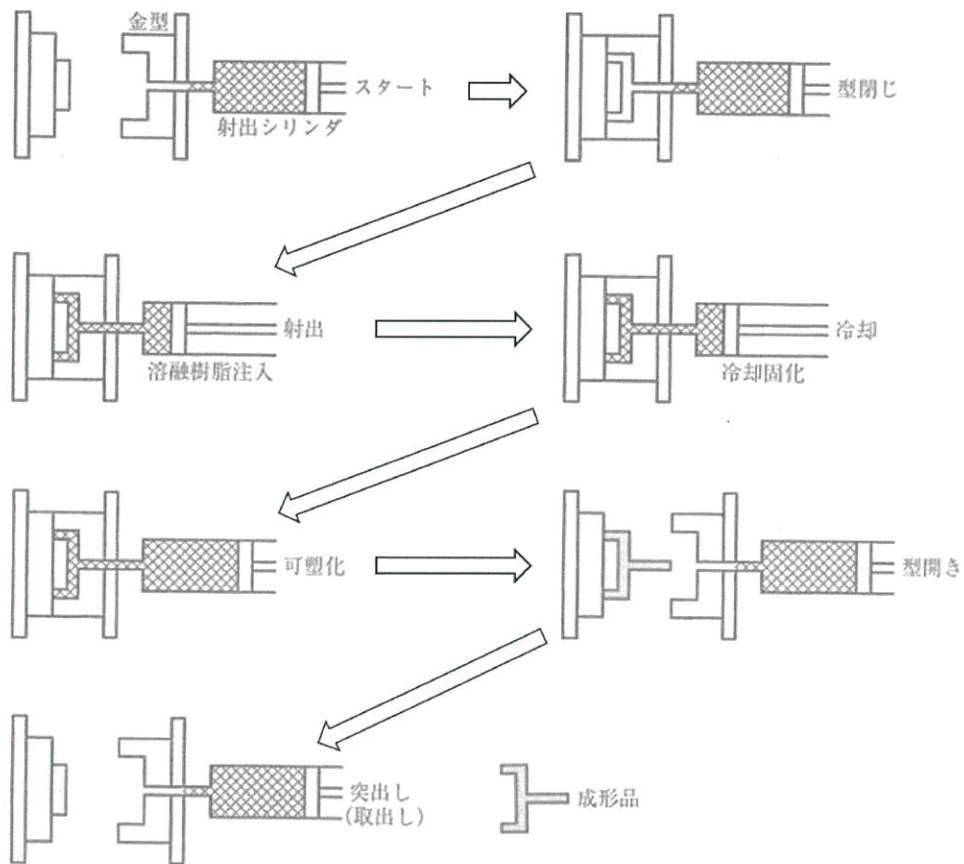


図 1 - 1 射出工程概念図

この炭素繊維強化ペレットは短繊維ペレット (SFP: Short-Fiber reinforced Pellet) と長繊維ペレット (LFP: Long-Fiber reinforced Pellet) に大別することができる[6]。

短繊維ペレットは、数ミリに裁断されたチョップド炭素繊維と熱可塑性樹脂とを二軸押出機を用いてコンパウンドすることで製造される。この短繊維ペレット中の炭素繊維の繊維長は概ね 1 mm 下であり、さらに射出成形の工程で繊維は折損し、成形品中では約 0.3 mm 以下と短くなるため、炭素繊維による補強効果は小さくなってしまう場合もある。

一方、長繊維ペレットは、連続繊維の炭素繊維に熱可塑性樹脂を被覆含浸させた後、所定の長さで裁断してペレット化することで製造されるものである。こうして製造された長繊維ペレット中に含まれる炭素繊維の繊維長は、ペレットの長さと同じにすることができる。この長繊維ペレットの製造方法の一例を図1-2[7]に示す。長繊維ペレットはコンパウンドにて製造される短繊維ペレットよりも繊維長が長く、当然射出成形後の成形品においてもより長い繊維長を確保することができるため、一般的には機械特性、電気特性、寸法安定性などの面で、短繊維ペレットよりも有利であるとされる。しかしながら、繊維長が長いほど流動性は低下するため、長繊維ペレットは短繊維ペレットと比較して成形性・賦型性に劣る傾向がある。従って、長繊維ペレットを用いた射出成形では、成形条件や成形金型をより最適化する必要性が求められることもあり、高度な成形技術を要する場合もある。

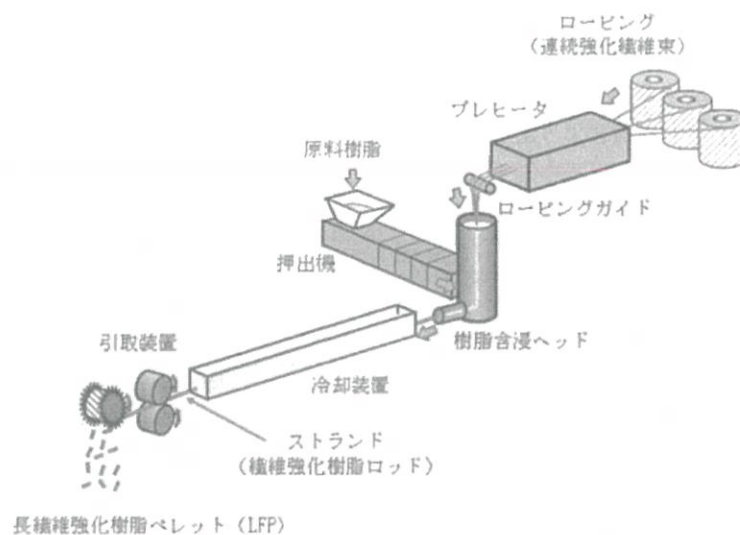


図1-2 長繊維ペレットの製造プロセス図

1. 3. 2 スタンパブルシートとスタンピング成形

数mm～数十mmの不連続な強化繊維で強化された樹脂シートを冷間プレスにて賦型する成形技術がスタンピング成形である。またこの樹脂シートをスタンパブルシートと呼ぶことがある。

このスタンピング成形の工程として、図1-3に示すように、強化繊維で補強された熱可塑性樹脂シートをIRヒーターなどで加熱して樹脂を軟化させた後、金型に投入してプレスし、熱可塑性樹脂が冷却固化された後に金型から製品を取り出す。射出成形品よりも繊維長を長く保持でき、また繊維含有量も30～50vol%程度まで高くすることができるため、比較的高い補強効果が得られやすい。

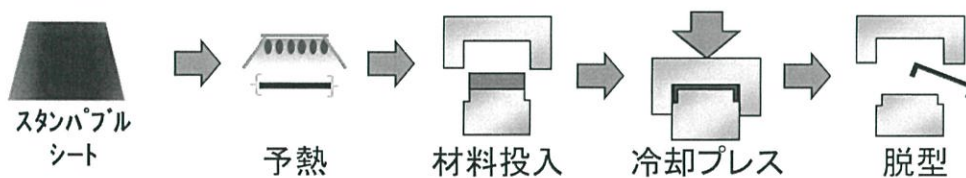


図1-3 スタンピング成形の工程図

このスタンパブルシートの製造技術に関しては、1960年代にガラス繊維強化プラスチックの分野を中心に開発が進められて以降、様々な製造手法がこれまでに報告されている。スタンパブルシートの製造例としてガラス繊維強化樹脂であるGMT (Glass-Mat reinforced Thermoplastic) の製造フローを図1-4 [8]に示すが、強化繊維を裁断して、繊維配向がランダムな繊維マットを作製した後、その繊維マットに樹脂を含浸させる手法が一般的に用いられてきた。GMTにおけるガラス繊維マットはニードルパンチによるカーディングで製造されるが、強化繊維が炭素繊維の場合は、裁断した繊維を水中で均一分散させる紙漉き法（または“抄紙法”とも）により製造された繊維マットに樹脂を含浸させることでスタンパブルシートを製造する手法も知られている [9]。

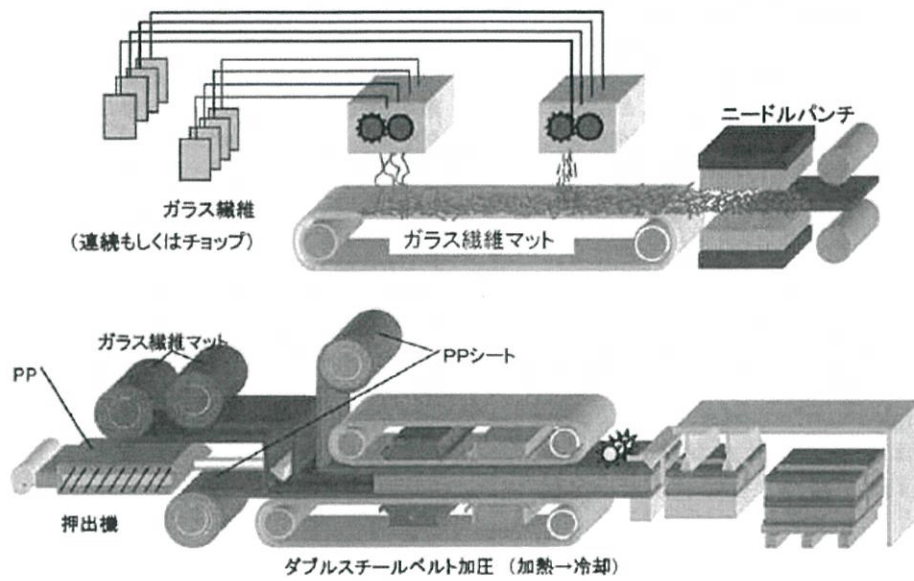


図1-4 スタンパブルシートの製造例

繊維マットではなく、連続繊維に樹脂を含浸させたUDプリプレグを原料とするスタンパブルシートも1980年代以降に報告されている。図1-5 [10]のように、予め樹脂を含浸させたプリプレグテープを原料とし、これは所定の幅・長さで裁断した後、ランダムにばら撒いて、加熱溶着により一体化させてスタンパブルシートを作製する、プリプレグテープ法と呼ばれる手法がある[11]。またプリプレグに切込みを入れた後、その積層体を加熱溶着により一体化させるスリット積層式のスタンパブルシートの製造方法もある(図1-6) [12-13]。

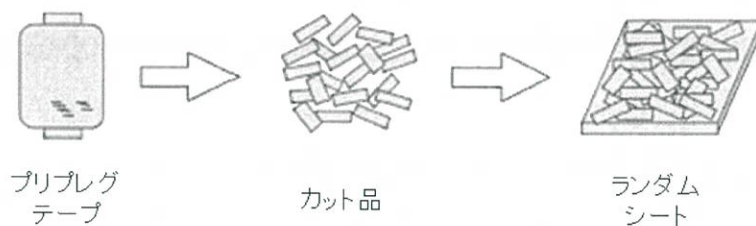


図1-5 プリプレグテープ法スタンパブルシートの製造方法

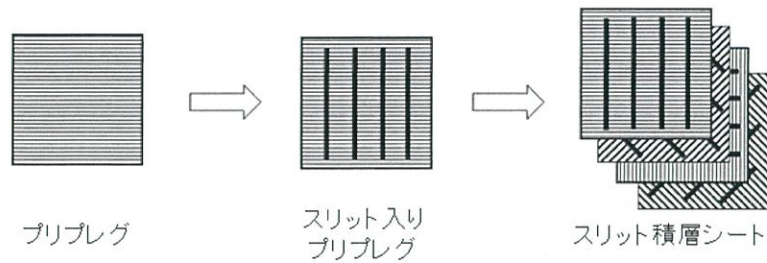


図1-6 スリット積層式スタンパブルシートの製造方法

1. 3. 3 連続繊維強化複合材料およびその成形技術

1. 3. 1および1. 3. 2項にて不連続繊維材料とその成形技術を紹介したが、炭素繊維による補強効果を最大限に引き出すためには、炭素繊維が裁断されていない、すなわち連続繊維の状態で使用する手法が最も効率的である。連続繊維の炭素繊維によって強化された複合材料の成形技術には、強化繊維とマトリックス樹脂を原料として成形品を直接成形する直接成形法と、プリプレグと呼ばれる中間基材などを介して成形される間接成形法に分類される(図1-7)。所望の成形品の形状や要求物性に応じて、適切な成形方法を選択する必要があると言える。



図1-7 連続繊維強化複合材料の成形方法の分類

FW (Filament Winding) 成形法は芯となるマンドレルに強化繊維を巻きつけて成形する手法であり、主に高圧ガス用のタンクの成形に用いられる。このFW成形法の中でも、強化繊維をマンドレルに巻きつける直前に強化繊維に樹脂を塗工するなどして一体化させる手法をウェットFW成形と呼ぶ。RTM (Resin Transfer Molding) に代表されるリキッド成形は、予め型内に強化繊維を配置させた後、そこに熔融樹脂を注入することで、強化繊維と樹脂を含浸・一体化させる手法である。マトリックス樹脂が熱可塑性樹脂の場合、粘度が高粘度であるため、通常は重合前の低粘度モノマーを金型内に注入し、金型内で重合させる手法が一般的である。引抜成形法は、金型内で強化繊維と樹脂を一体化させた後、ダイスより棒状に引き抜いて複合材料を得る手法である。この手法では連続的に同一断面の成形体を製造することができ、建築材料用途などに用いられることがある。またこの引抜成形においても、樹脂の含浸性の観点から、重合前のモノマーを含浸させた後、金型内で重合させる手法が一般的である。

一方、間接成形法は、プリプレグと呼ばれる中間基材などを介して成形する手法の総称である。そもそもプリプレグ (pre-preg) とは、pre:前もって、preg:はらんだ、すなわち「樹脂を前もって含浸させた」中間基材を意味する。このプリプレグに関しても、様々な製造方法が知られている。強化繊維を樹脂フィルムでラミネートし、加熱・加圧によって含浸させる手法や、強化繊維と樹脂繊維とを混織したもの、強化繊維に微細な樹脂粒子を絡ませたものなど、アプローチは様々である (図1-8)。間接成形法では、中間基材の製造コストは生じるものの、1) 含浸性をコントロールしやすい、2) 繊維含有率のコントロールが容易である、3) 形状の設計自由度が高い、と言った利点がある。間接成形法の例としては、このプリプレグなどの中間基材を成形品の形状にプリフォームした後、プレス機もしくはオートクレーブを用いて、加熱・冷却することで積層されたプリプレグを一体化させて成形される手法がある。またプリプレグをレーザーなどで貼り付けながら積層して成形品を得る、ATL (Automated Tape Layup) やAFP (Automated Fiber Placement) と呼ばれるプレースメント成形といった手法もある。

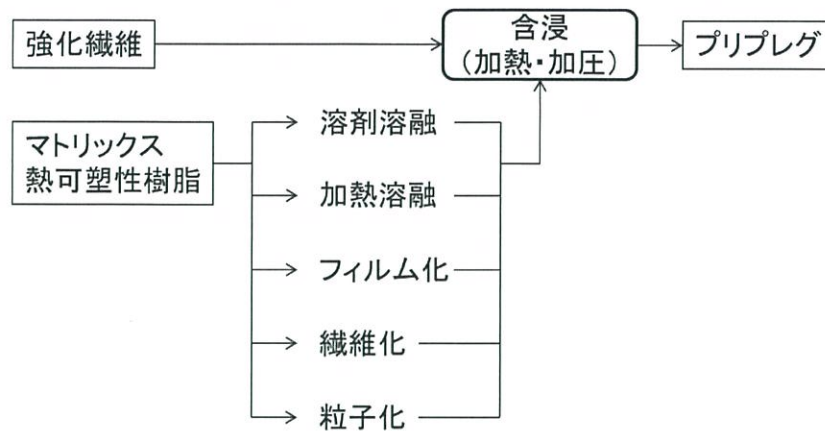


図1-8 プリプレグの各種製造方法

1. 4 CFRTP の課題とハイブリッド射出成形技術

上述の通り、CFRTPはハイサイクル成形性や2次加工性の観点から今後その利用の拡大が予想されているが、従来から使用されている熱硬化性のCFRPの代替だけではなく、鉄やアルミといった金属材料の代替としても大きく期待されている材料である[2]。しかしCFRTPを金属の代替として部品を作ろうとした時、最大の課題はコストであろう。例えば金属の材料費としてアルミニウムをとってみると、国際通貨基金の報告[14]によれば2016年度の材料1kgあたりの市場価格は約250円前後であることに対し、CFR(T)Pはコストだけでも1kgあたり数千円以上である[2, 15]。このコストバリアを超えるためには、材料費だけではなく、成形加工コストやライフサイクルアセスメントなど、トータルコストを考える必要がある[15]。

こうした中、CAE (Computer Aided Engineering) 技術などの高度化により、高コストな炭素繊維は部分的に用いながらも、その補強効果を最大限に引き出す設計技術が進歩したこともあり、近年では“ハイブリッド化”をコンセプトとしたCFRTPの用途拡大の検討が盛んに行われている[16]。CFRTPのハイブリッド化における近年の主流技術としては、繊維長の長い材料と繊維長の短い（もしくは繊維非強化の）材料のハイブリッドがある。単一の部品・部材においても、機械特性が求められる部位には長繊維材料を配置し、複雑形状部位には短繊維（もしくは繊維非強化）材料を用いて賦型するといった思想である。このハイ

ブリッド化のコンセプトは機械特性と複雑形状性を両立するとともに、高価な炭素繊維を効果的に使用することができるため、コスト的観点からもCFRTPの市場拡大へのキー技術として注目されている。

図1-9 [17]に連続繊維プリプレグのプレス成形と短繊維ペレットの射出成形のハイブリッド射出成形品の一例を示す。この成形品は、まず連続繊維プリプレグを熱プレス成形にて賦型した後、射出成形にてリブやボスを成形したものである。従来技術では、この熱プレスと射出成形は別々の工程で行われており、すなわち、まずプレス機を用いた熱プレスにてプリフォームした材料を、射出成形金型内にインサートして射出する手法（インサート射出成形）が一般的であった。

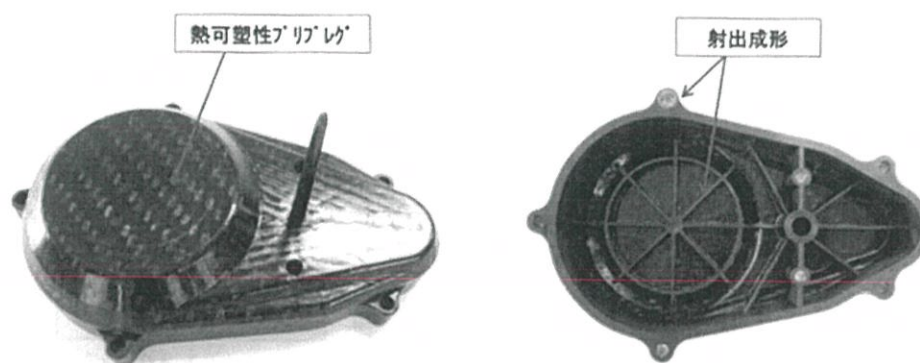


図1-9 ハイブリッド射出成形品の例

しかし近年、装置メーカーが中心となって、熱プレスと射出成形を、1つの金型・1台の成形機で行うハイブリッド射出成形機システムおよびハイブリッド射出成形機が開発されてきた [17-18]。このハイブリッド射出成形システムの概略図を図1-10に、またハイブリッド射出成形機の写真を図1-11に示す。このハイブリッド射出成形システムは連続繊維（もしくは長繊維）と短繊維（もしくは非強化）のハイブリッドの材料を成形するために、プレス成形と射出成形の成形方法をハイブリッド化したものである。ハイブリッド射出成形は、まずIRヒーターなどで加熱したCFRTPシートを金型内に配置し、型締めによりCFRTPシートを賦型した後、

金型の空いたキャビティーに樹脂を射出することで、成形品を成形する技術である。このハイブリッド射出成形により、高性能なCFRTPを高サイクル且つ低コストに成形することを可能にすると共に、従来のインサート射出成形品と比較しても、CFRTPシートを加熱した直後に射出樹脂を注入するために、インサート部であるCFRTPシートと射出樹脂の界面の接着性の向上も期待されている。

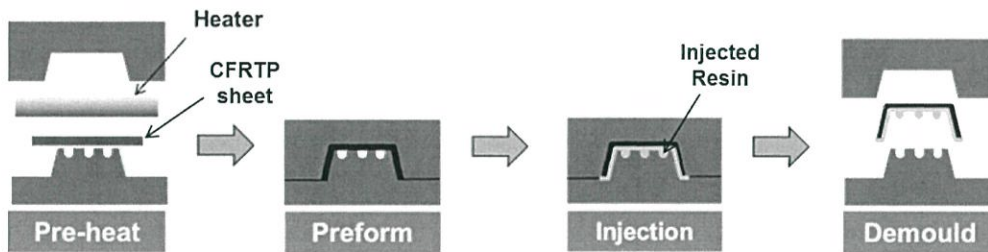


図1-10 ハイブリッド射出成形システムの概略図

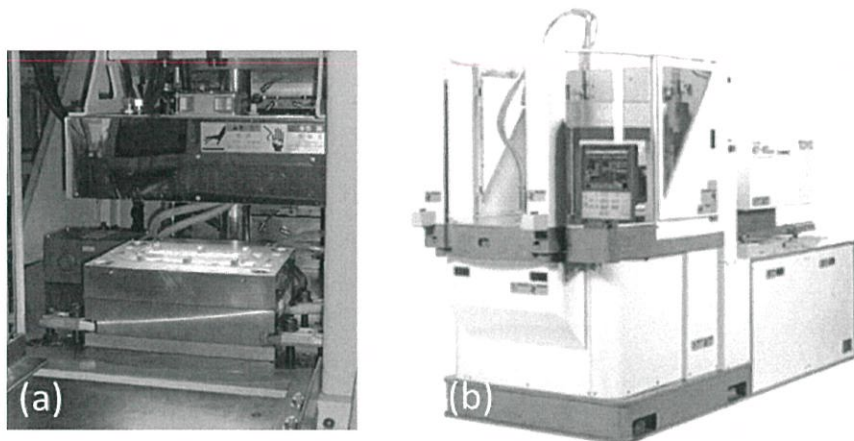


図1-11 ハイブリッド射出成形機 (東洋機械金属(株)製 ET-80HR2)
(a) : IRヒーターと下金型、(b) : 射出成形ユニット

1.5 本研究と往來研究

1.5.1 ハイブリッド射出成形の課題と本研究の目的

ハイブリッド射出成形法は装置メーカー主導のもと、成形システムおよび成形機が開発された。

しかしハイブリッド射出成形用の材料および成形条件等に関しては十分に検討されているとは言えない。

従って本研究では、これまでの往來研究を整理した上で、ハイブリッド射出成形用の熱成形用材料（インサート材）および射出成形用材料それぞれに関して、材料開発を行うと共に、インサート部と射出部の界面接着性の観点に着目し、ハイブリッド射出成形の最適成形条件の把握を目的とする。更には、CFRTPのリサイクル性にも着目し、ハイブリッド射出成形におけるリサイクル材の活用およびその利点を見出し検証することを目的とする。

1. 5. 2 スリット積層式スタンパブルシートに関する往來研究と課題

本研究では、ハイブリッド射出成形用のインサート材として、スリット積層式スタンパブルシートに着目した。スリット積層式スタンパブルシートの思想は、1980年代に児玉らにより日本の特許文献中で発表された[12]。一方向に引き揃えられた強化繊維にマトリックス樹脂を含浸させたプリプレグシート（UDプリプレグ）に切れ目（スリット）を入れることで、プリプレグシートを屈曲形状や凹凸形状への成形を可能にしている。この技術登場以前はUDプリプレグを屈曲形状や凹凸形状といった複雑な形状に成形しようとした場合、強化繊維が屈曲部や凹凸部で突っ張ってしまうために、所望の形状の成形品を得るためにはプリプレグを切り貼りするなどの作業を要していた。しかしプリプレグに切れ目を入れるという単純な操作で、その切れ目部分でプリプレグが伸縮することにより、プリプレグを雑形状部に賦型する可能とした。しかしここでは、プリプレグの切れ目に関する最適な形態に関しては、ほとんど触れられておらず、またこの切れ目による賦型性および機械的特性への影響に関しては、定量的な議論は一切なされていない。

酒井らはプリプレグに入れる切れ目を点線状にすることで、機械物性が向上することを見出している[13]。加えて酒井らは、UDプリプレグのみならず、強化繊維を織物形態であるクロスプリプレグにおいてもプリプレグに切れ目を入れる技術の効果を確認している[19]。

武田らは熱硬化性樹脂をマトリックス樹脂としたプリプレグを用いて、その強度と流動特性について調査している[20-23]。武田らは、プリプレグの強化繊維の軸に対するスリット角度 θ は鋭

角であるほど、スリット入りプリプレグ積層体の引張強度が高いことを報告している。このスリット入りプリプレグはプレスによる流動時に、強化繊維はスリット部分が離れることによる流動以外にも、繊維軸直交方向にも繊維が広がる、すなわち繊維が開織するが、スリット角度 θ が鋭角の場合は、スリット部分の強化繊維のかい離を抑えつつ、繊維開織による流動を優先的に生じさせることができるためと武田らは考察している。

しかし一方で武田らの報告は、熱硬化性樹脂を対象としており、この研究以降においても熱可塑性樹脂をマトリックス樹脂とした研究は見当たらない。熱可塑性樹脂は熱硬化性樹脂と比較して、流動時間（固化までの時間）が短く、また流動時の粘度が高い[15]ため、熱可塑性樹脂をマトリックス樹脂とした場合は、より高い流動性および賦型性を付与する必要がある。また更には、コスト的観点からも低圧で賦型できることが好ましく、より一層の流動性・賦型性の向上が求められる。

1. 5. 3 リサイクルに関する往来研究と課題

CFRPのマテリアルリサイクル手法としては、プロセスの観点から、サーマルリサイクル、ケミカルリサイクル、メカニカルリサイクルの3つに分類されるが、これらのプロセスはいずれもCFRPからマトリックス樹脂を取り除き、炭素繊維のみを取り出すものである[24-25]。取り出されたCFは、再び熱硬化性樹脂に含浸させて使用するリサイクル方法もあれば、二軸押出機を用いて熱可塑性樹脂と混練してCFRTPとしてリサイクルする手法もある[26-30]。しかしいずれにおいてもこのCFを取り出す工程では大きなエネルギーを必要としたり、人体に有害な化学物質の使用は避けられず、CFRPのリサイクル率向上の大きな障壁となっている。

一方、CFRTPは熱硬化性樹脂をマトリックス樹脂とした物とは異なり、樹脂の再溶融によるリサイクルが可能である。CFRTPのマテリアルリサイクルも大きくは2つに分類される[31]。1つ目はそのまま加熱溶融によって再賦型する手法である。この手法は、有害物質等を使用や煩雑な中間処理が不要である上、リサイクル過程で複合材料が受けるダメージも少なく、繊維長はそのまま維持されるために物性低下の懸念も最小限に抑えることができる。しかしながら

この手法でのリサイクルは、単純な平面形状のCFRTPパネルを、もしくは部材から平面形状部分のみを切り出し、再プレスしてリサイクルする場合に限定されている[30]。複雑な形状の成形品をリサイクルするとなると、繊維配向およびその分布の予測は困難であり、物性の安定した成形品を得がたいといった課題がある。2つ目の手法は、CFRTPを粉砕し、その粉砕物を射出成形もしくはプレス成形でリサイクルするものである。この粉砕による手法は、強化繊維にガラス繊維を用いたガラス繊維強化プラスチック（GFRTTP）のリサイクルに関して、1990年代からいくつかの研究報告例がある[32-36]。しかしこれらの報告では、ポリアミド樹脂やポリエステル樹脂をはじめとする接着性官能基を有するポリマーに限定されており、かつPedrosらの報告[36]を除きマトリックス樹脂は芳香環を有するリジッドなポリマーのケースのみで、ポリオレフィンなどの汎用プラスチックをマトリックス樹脂としたリサイクル例は報告がない。更には、繊維強化ペレットの成形品のような短繊維強化プラスチックの機械特性は、強化繊維の繊維長や、強化繊維と樹脂の界面接着強度、繊維含有量、および繊維の分散性が影響するという研究報告がなされている[37-38]。加えて、押出機内での混練においては、そのスクリー形状が混練状態に大きく影響することも報告されている[38-39]。しかしながら、前述のリサイクル文献においてはそのほとんどが、リサイクル材とバージン材の機械特性の比較をしているのみで、繊維長に関して議論している報告例は稀であり、またリサイクル過程での繊維の分散性や混練時のスクリー形状の影響について議論した研究は見当たらない。

1. 5. 4 インサート材と射出樹脂の界面接着性に関する往來研究と課題

ハイブリッド射出成形システムが開発されてからまた日が浅いため、ハイブリッド射出成形に関する界面接着性の研究はほとんど報告されていない。しかしながらプリフォームと射出を別々の工程で行う従来のインサート射出成形によるインサート材と射出樹脂の界面接着性に関する研究報告はいくつか存在し、これらは射出成形条件が界面接着性に及ぼす影響を調べたものである。Carrellaらはポリオレフィン系エラストマー樹脂（TPO樹脂）を用いて、あらかじめ射出成形により作製されたものをインサート材とし、インサート材と同じ種類の樹脂、すなわちT

PO樹脂をオーバーモールドした試験片の接着強度を、射出温度、金型温度、保圧といった射出成形条件の影響の観点から調査している[40]。Aurrekoetxeaらは自己強化材と呼ばれるポリプロピレン（PP）繊維強化PP樹脂複合材をインサート材として、これにPP樹脂をオーバーモールドした際の試験片の接着強度を、同じく射出温度、金型温度、保圧といった射出成形条件の影響の観点から調査している[41]。またCandalらは使用する樹脂にPPと加硫エラストマーを用いて、Aurrekoetxeaらと同様の手法で試験片を準備し、その接着性を射出速度の影響も加えた射出成形条件の影響の観点から調査している[42]。加えて大石らは連続繊維のガラス繊維強化ポリアミド6樹脂をインサート材とし、短繊維のガラス繊維強化ポリアミド6樹脂を射出材とした時のハイブリッド射出成形におけるインサート材の加熱条件と射出樹脂の温度が界面接着性に及ぼす影響について調査している[43]。しかしこれらの報告ではインサート材の強化繊維にはPP繊維やガラス繊維を用いているが、炭素繊維（CF）はこれらの強化繊維と比較して高い熱伝導性を有するため、CFRTPのハイブリッド射出成形では、界面接着性向上には、より成形条件の最適化が重要になると考える。

1. 5. 5 本研究の構成

本研究では1. 5. 1～1. 5. 4項で述べた課題解決のため、具体的には、大別して下記5つの検討についてまとめる。図1-12は本研究における研究フローの概略図である。

1) ハイブリッド射出成形用の熱成形用材料（インサート材）として、機械特性と流動性の両立性に優れるスリット積層式スタンパブルシートのスリット形状について提案し、それを検証する。・・・本論文の第2章

2) スリット積層式スタンパブルシートをハイブリッド射出成形のインサート材に用いた際のハイブリッド射出成形品のリブ部の強度に関して、インサート材のリブ部への入り込み量に着目し、その影響および破壊機構に及ぼす影響を明らかにする。・・・本論文の第3章

3) ハイブリッド射出成形におけるインサート材と射出樹脂の界面接着性の定量化手法を確立し、ハイブリッド射出成形品の界面接着性を評価するとともに、界面接着性が向上する成形条件

について提案・検証する。・・・本論文の第4章

4) スリット積層式スタンパブルシートの製造では、プリプレグの端材が生じてしまうが、この端材プリプレグを射出成形用材料のペレットとしてマテリアルリサイクルする手法を提案・検証する。・・・本論文の第5章

5) プリプレグの端材のリサイクルにより作製された射出成形材料（リサイクルペレット）をハイブリッド射出成形に用いて、同一のプリプレグより作製されたインサート材と射出成形材の界面接着性に着目し、その効果を検証する。・・・本論文の第6章

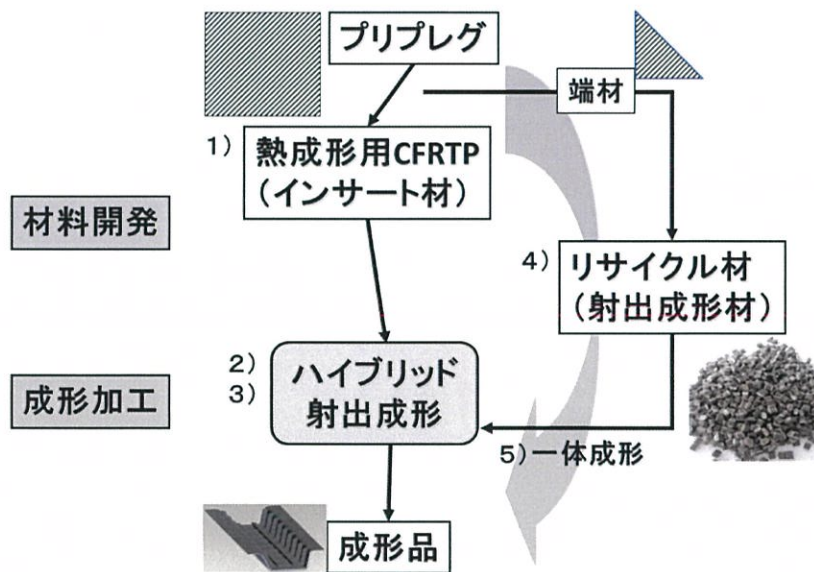


図1-12 本研究の研究フロー概略図

第2章 機械物性および流動性に対するスリット積層式スタンパブルシートのスリット形状の影響

2.1 緒言

序論で述べた通り、ハイブリッド射出成形法は装置メーカー主導のもと開発が進められた経緯があり、ハイブリッド射出成形に適した材料に関する研究は十分に行われていない。ハイブリッド射出成形の材料には、インサート材と射出材に分けられるが、本章では、インサート材の開発について研究を行う。ハイブリッド射出成形におけるインサート材は、1.3.2項で述べたスタンパブルシートが適応できる。しかしながら既存のスタンパブルシートはプレス機を用いて比較的高圧で成形されることが多いが、ハイブリッド射出成形においては、射出成形機の型締めにより賦型するケースがほとんどであるため、通常のプレス成形よりも低圧で賦型できることが望まれる。

上述の課題を解決するための手法として、連続繊維プリプレグに切込みを入れた後、積層する、スリット積層式スタンパブルシートについて着目した。1.3.2項で挙げた種々のスタンパブルシートと比較して、スリット積層式スタンパブルシートの利点は、繊維長と繊維配向のコントロールが可能である点である。図2-1に示すように、強化繊維を任意の長さになるようにプリプレグに切込みを入れることで繊維長を制御できる上、通常の連続繊維のプリプレグと同様に、各プリプレグを任意の繊維方向に積層（図2-2）するため、スタンパブルシートとしての繊維配向をコントロールすることもできる。

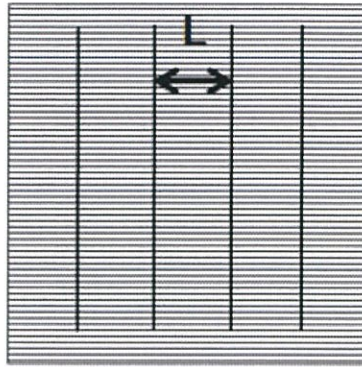


図2-1 プリプレグのスリットによる繊維長制御
 細線：強化繊維、太線：スリット（切込み）

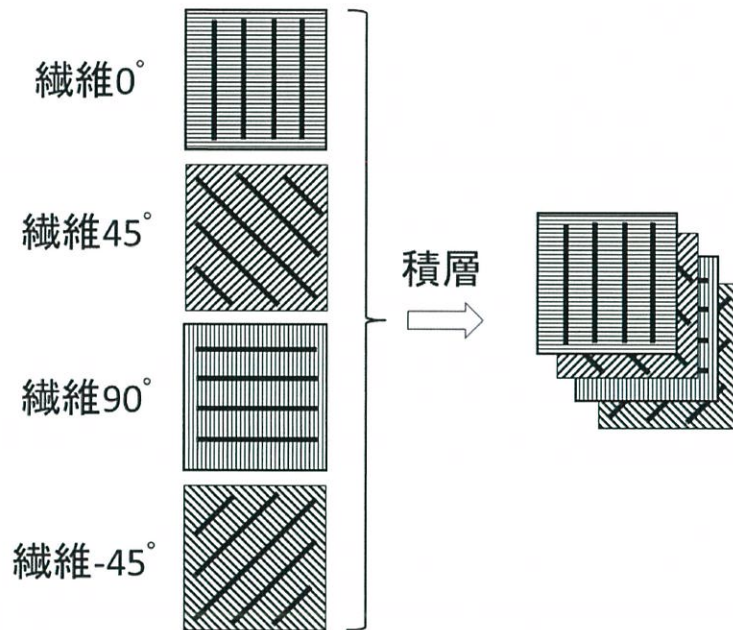


図2-2 スリット入りプリプレグの積層

本章ではこのスリット積層式スタンパブルシートにおいて、スリット形状が機械物性および流動性にどのように影響しているかを明らかにする。しかしながら、このスリット積層式スタンパブルシートは日本の特許文献[12-13,19]にて公開され、熱硬化性樹脂をマトリックスとした場合ではあるが、スリットパターンと機械物性の関係について議論した研究[20-23]も知られている。そこで本章では、熱可塑性樹脂をマトリックスとした場合におけるスリットパターンと機械物性および流動性との関係について明らかにする。加えて、本章ではスリット積層式スタンパブルシートの機械物性をシュミレーション（CAE解析）するための新たな有限要素法（FEM）モデルの構築を行い、その検証を行った。

2. 2 実験方法

2. 2. 1 スリット積層式スタンパブルシートの作製

まず図2-3に示す工程にてプリプレグを作製した。炭素繊維（三菱ケミカル製、商品名：パイロフィルトウ TR 50S15L、比重：1.82）を一方向にかつ平面状に引きそろえて、繊維目付72 g/m²である繊維シートを作製した。無水マレイン酸変性ポリプロピレン（三菱ケミカル製、商品名：モディック P958V、比重：0.91、融点：165℃）からなる目付が36 g/m²であるフィルムを繊維シートの両側から挟み、更にその両側から離型紙を挟んだ。これを260℃に加熱したカレンダーロールを通して加熱と加圧を行い、樹脂を繊維シートに含浸させて、繊維体積含有率33 vol%、厚み120 μmのプリプレグを作製した。このプリプレグの品番は“PPUD-33”とする。用いた炭素繊維の一般特性を表2-1に示す。

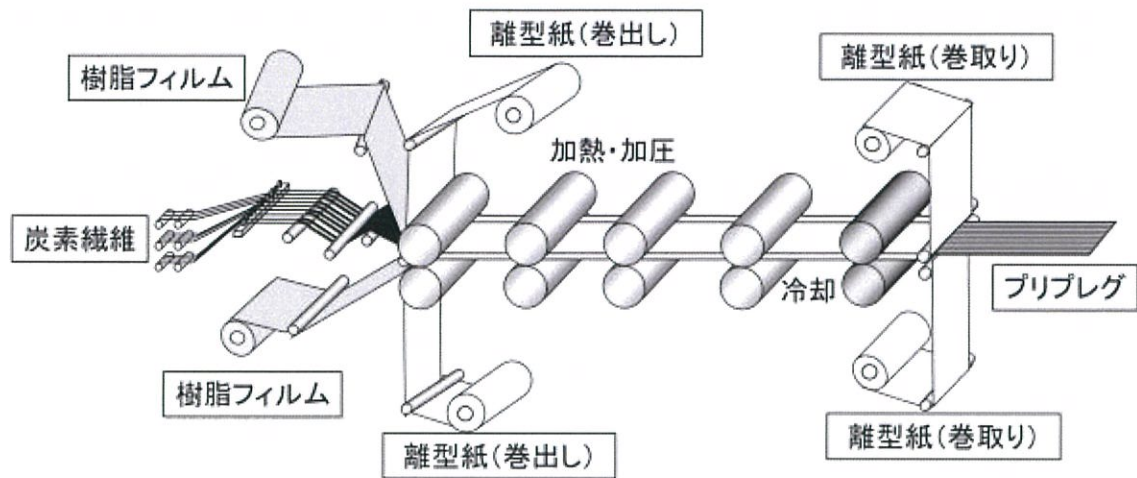


図 2-3 プリプレグ作製工程図

表 2-1 炭素繊維 一般特性

タイプ	フィラメント数	フィラメント径	目付	引張強度		引張弾性率		伸度	密度
		μm	mg/m	GPa	Ksi	GPa	Msi	%	g/cm ³
TR 50S15L	15,000	7	1,000	4.90	710	235	34	2.09	1.82

得られたプリプレグを300mm角に切り出し、カッティングプロッター（レザック製、製品名：ZUND G3 L-2500）を用いて、プリプレグの連続繊維を裁断するように切込みを入れた。ここでは図2-4のように、繊維に対するスリット角度 θ と繊維長L、およびスリット投影長 W_s を制御するように切込みを入れ、スリット入りプリプレグとした。またこの時のスリット角度 θ 、繊維長Lおよびスリット投影長 W_s を表2-2に示す。なおスリット投影長 W_s は、スリットの長さを1とした時、“ $1 \times \sin \theta$ ”で表される。スリット入りプリプレグを繊維方向が $[0/45/90/-45]_{s2}$ となるように16枚を擬似等方に積層し、積層体とした。この積層体を300mm角で深さ15mmの印籠金型内に配置して、2段プレス機（神藤金属工業所製圧縮成形機、製品名：SFA-50HH0）で210℃の盤面で0.1MPaの圧力で7

分間加熱・加圧後、同一の圧力で室温まで冷却し、厚さ 2 mm のスリット積層式スタンパブルシートを得た。

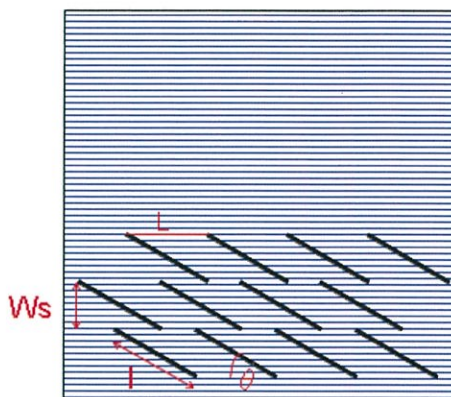


図 2-4 スリット形状 (スリット角度 θ および繊維長 L)

表 2-2 スリット形状：スリット角度 θ 、繊維長 L およびスリット投影長さ W_s

L	W_s	θ [deg]				
		15	30	45	60	90
[mm]	[mm]					
12.5	20			●		
25	10		●	●		
	20	●	●	●	●	●
	30		●	●		
37.5	20			●		

(●セル部分のスリット形状で実験を実施)

2. 2. 2 流動性評価方法

本評価方法は、実際にプラスチックのプレス成形に用いられる条件を理論的に導かれるスケールダウン則を用いて、小面積かつ低圧力で再現したものである。用いたダウンスケール則については付録1を参照のこと。

2 mm厚の評価用サンプルを78 mm角に切り出した後、2枚重ねて4 mm厚の試験片とした。この試験片を230℃に設定した熱風乾燥炉にて、試験片温度が230℃になるまで5分間加熱した。加熱した試験片を、プレス機（東洋精機製、製品名：ミニテストプレスMP-2FH）を用いて、プレス盤面温度145℃で、17 kNおよび33 kNで30秒間プレスした。この時、レーザー位置センサーを用いて試験片の厚みを、材料の中心部に熱電対を挿入して材料温度をそれぞれモニタリングした。本研究では、初期厚みとプレス後の最終厚みの比をとって流動性と定義した。図2-5には本研究における流動性評価方法の模式図を、図2-6には本評価によって得られた試験片厚み・温度のチャートの1例を示す。

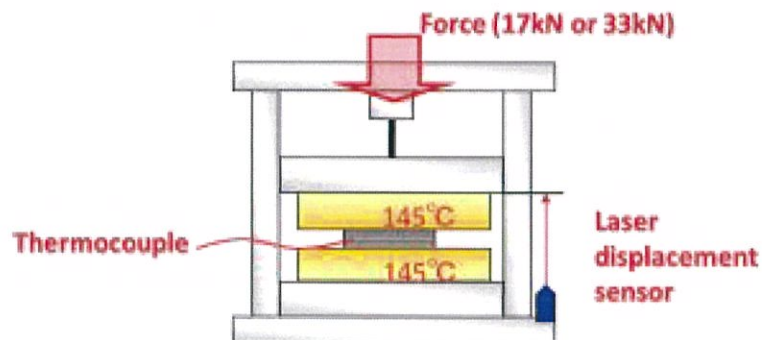


図2-5 流動性評価方法の模式図

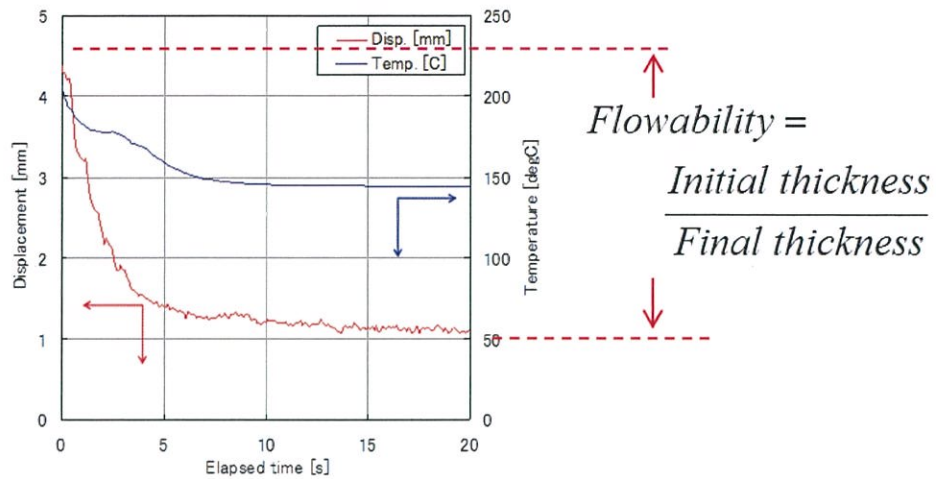


図 2-6 厚み・温度チャート

2. 2. 3 流動性の可視化

本章では、スリット形状の違いによる流動性の違いを可視的に考察するため、図 2-7 に示すプレス装置を作製した。プレス金型のキャビティ側の底面の素材をガラスにすることで、CCDカメラによってプレス時の金型内を観察できる構造とした。金型温度を200℃に設定し、面積200mm×300mmのキャビティに対し、100mm×100mm×2mm厚のスリット積層式スタンパブルシートを金型内に配置して、一定速度で金型を閉じてプレスした。この時のスリット式スタンパブルシートの流動の様子をCCDカメラで記録した。

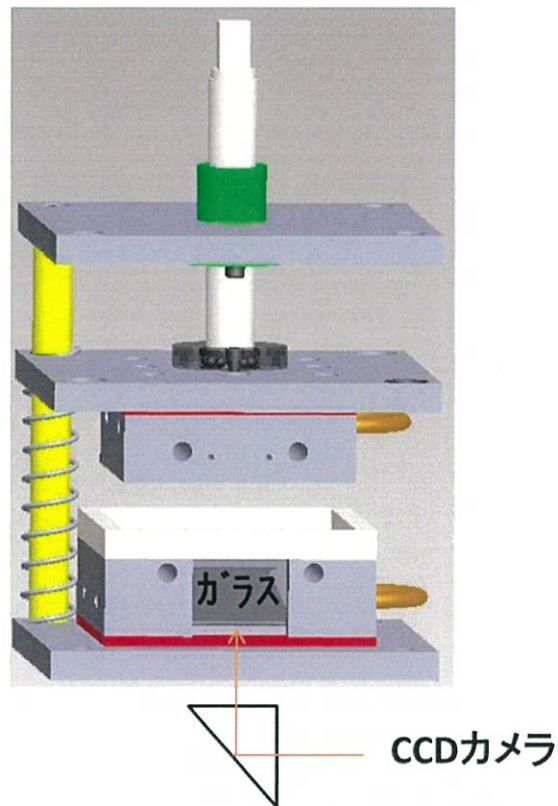


図 2-7 流動性可視化プレス機

2. 2. 4 機械物性評価

2. 2. 1項で作製した2mm厚のスリット積層式スタンパブルシートを、湿式カッターを用いて25mm幅×100mm長に切り出した後、万能試験機（インストロン製、製品名：インストロン5565）を用いてJIS K7074に準拠した3点曲げ試験を行い、曲げ強度および曲げ弾性率を算出した。この時の試験治具として、圧子R=5、支持R=2、支持間距離=80mmとした。試験速度は5mm/minで行った。

2. 3 FEMによるCAE解析手法

2. 3. 1 モデル化の指針

FEMを用いてスリット入りプリプレグを表現する場合、マトリックス樹脂とその中に存在するスリットにより切断された強化繊維を、ある形状で分割する必要が生じる。すなわちマトリックス樹脂と強化繊維の両者を有限要素の組み合わせで表現することになるが、その組み合わせには以下の①～③のケースが考えられる。

①マイクロモデル：マトリックス樹脂および繊維をそれぞれ有限要素で表現する。なおこの場合、繊維は1本1本をそれぞれ別個に表現する場合と、繊維束としてまとめて表現する場合が考えられる。

②メソモデル：マトリックス樹脂と繊維束の複合材をある異方性をもった均質材料とみなし、同一の有限要素で表現する。この場合は積層構成や場所による異方性の違いを表現するために、この異方性均質材料を十分に小さくすることにより与えられた解析空間に自由に配置できるように工夫する必要がある。

③マクロモデル：上記と同様にマトリックス樹脂と繊維束の複合材をある異方性をもった均質材料とみなすが、計算コストの削減のために、この異方性均質材料を十分に大きいものとする。

上記の方法のうち、①マイクロモデルが最も高い精度で解が得られるが、形状作成の手間と計算時間が膨大になり、現状のコンピューターの処理能力および汎用性を考えると、有効な手法であるとは言えない。また③マクロモデルの方法はもっとも簡便ではあるが、そもそも精度の良い予測結果は期待できないことと、さらには今回の対象であるスリット入りプリプレグの場合はスリット部の適切なモデル化方法がないことが問題となる。

以上のことより②メソモデルの方法を用いることとし、異方性均質材料モデルとして積層前のプリプレグを薄肉のシェル要素で表現することにした。つまり自由に裁断されたシェル要素を厚み方向に積層、もしくは平面方向に配置することによりスリット入りプリプレグをモデル化した。また平面内のスリット間隙を表現するために、ソリッド要素で表したマトリックス樹脂中にシェル要素を配置することにより、この間隙をマトリックス樹脂で満たすこととした。

2. 3. 2 形状および物性のモデル化と計算手法

構造解析ソフトLS-DYNA (Ver. 971) を用いた。解析プリプレグを最小単位として、これをシェル要素で表し、この要素を目的の形状に裁断して積層配置することでスリット積層式スタンパブルシートを表現した。先述の通りスリット間隙にはマトリックス樹脂が存在するために、ソリッド要素でモデル化したマトリックス樹脂中のシェル要素を両者の節点の整合性が無い状態で配置した。またシェル要素の厚み方向の層間にはマトリックス樹脂が存在しないために、層間は接着境界条件を与えて、層間の剥離強度を樹脂強度と同一と設定した (図2-8)。

物性のモデルとして、2. 2. 1項で作製したプリプレグを、スリットを入れない状態でUD物性評価を行い、主要な物性値を決定した。それ以外はスリットの無い疑似等方積層の3点曲げ試験結果を再現するフィッティングパラメータとして物性値を設定した。またマトリックス樹脂の物性はこれも3点曲げ試験結果を再現するように決定した。この時に用いた数値を表2-3および表2-4に示す。なお、この3点曲げ試験の解析モデルは、JIS K7074に準拠し、試験片サイズは25mm幅×100mm長、またサポート間距離は80mmとして、実際の3点曲げ試験そのものを再現するようにモデル化した (図2-9)。

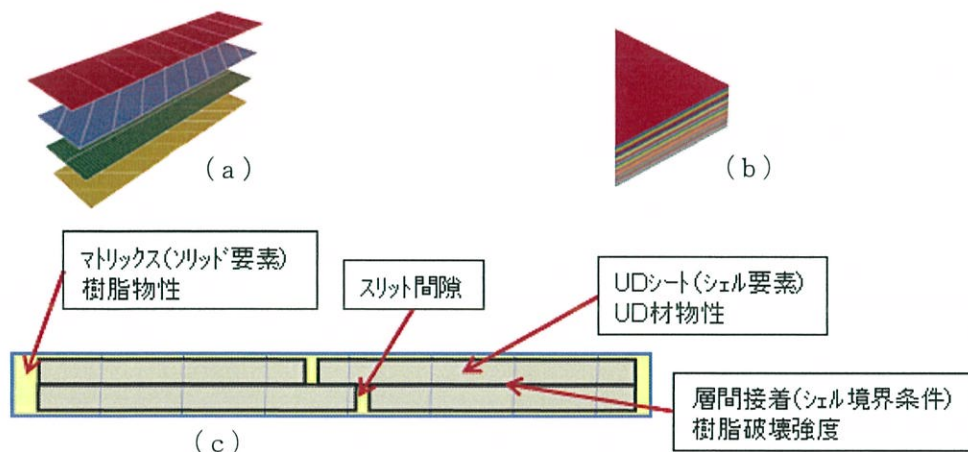


図2-8 スリット積層式スタンパブルシートの有限要素分割モデル
(a) 積層パターン、(b) 積層後のイメージ、(c) 断面構造

表 2-3 計算に用いた物性値

	物性値	決定方法
密度 ρ [kg/m ³]	1360	実測値
引張剛性 E11 [GPa]	104	実測値
引張剛性 E22 [GPa]	4.8	実測値
せん断剛性 G12 [GPa]	5.0	フィッティング
ポアソン比 ν	0.1	フィッティング
せん断強度 Sc [MPa]	20	フィッティング
繊維方向引張強度 XT [MPa]	869	実測値
横向き引張強度 YT [MPa]	41	実測値
横向き圧縮強度 YC [MPa]	60	フィッティング

表 2-4 擬似等方積層材の実測値と計算値の比較

	実測値	計算値
最外層繊維方向 0° 曲げ強度 [MPa]	464	458
最外層繊維方向 90° 曲げ強度 [MPa]	431	413
最外層繊維方向 0° 曲げ弾性率 [GPa]	39.7	41.8
最外層繊維方向 90° 曲げ弾性率 [GPa]	29.5	35.1

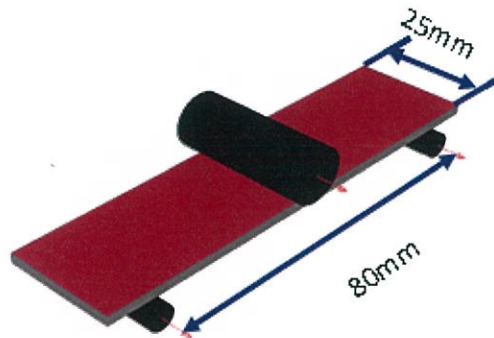


図2-9 3点曲げ試験用の解析モデル

2.4 結果と考察

2.4.1 流動性

流動性評価結果を図2-10に示す。これらの結果より、スリット形状の流動性への影響として以下の傾向が明らかになった。

1) 繊維長 L が短いほど、流動性は高いが、繊維長 12.5 mm と 25 mm では大きな差はなく、繊維長 37.5 mm では大きく流動性が低下した。

2) スリット投影長 W_s が大きいほど、流動性が高いが、繊維長の影響よりも小さい。

3) スリット角度 θ が大きいほど、流動性が高く、特にスリット角度 30° 未満では大きく流動性が低下した。一方、スリット角度 45° 以上では、流動性への影響は小さい。

4) プレス圧力が大きい程、高い流動性を示すが、いずれの圧力においても上記1)～3)の傾向が確認された。

繊維長が短いほど、流動性が高いことに関しては、繊維長が長い（もしくは繊維のアスペクト比が大きい）ほど、樹脂の粘度が上昇する[44]が、繊維長が短いと樹脂の粘度上昇を抑制できたためと考えられる。スリット投影長さ W_s およびスリット角度 θ の流動性への影響を考察するため、流動時の様子を、流動可視化装置を用いて観察した。なお流動性評価結果より W_s の影響は

小さかったため、より傾向が顕著に出るように、 W_s は2.5 mmの場合と、一つながりのスリット（すなわち W_s は無限大）の場合で比較した。この時の流動の様子を図2-11および2-12に示す。この図より、スリット角度 30° の場合はスリットにより切断された繊維はほとんど開裂せず隣接していることに対し、スリット角度 45° および 90° の場合は、スリットにより繊維同士が開裂していることがわかる。すなわち、スリット角度 45° および 90° の場合は、繊維直進方向への流動も確認されたが、スリット角度 30° の場合は、流動はほとんど繊維方向と直交直交方向への流動のみであり、この差が流動性に影響を及ぼしたと考える。

またスリット投影長さ W_s が小さい場合は、流動方向が不均一になる現象が観察された。図2-13に示すように、1つのスリットとその隣接するスリットによって分断されたプリプレグの1片をここではバンドルと呼ぶ。このバンドルが広がるように流動するが、スリット投影長さ W_s が小さい場合はこの1つのバンドルも小さくなり、隣接するバンドルの干渉に流動が抑制されるために、流動が不均一になり、流動性も低下したと考えられる。

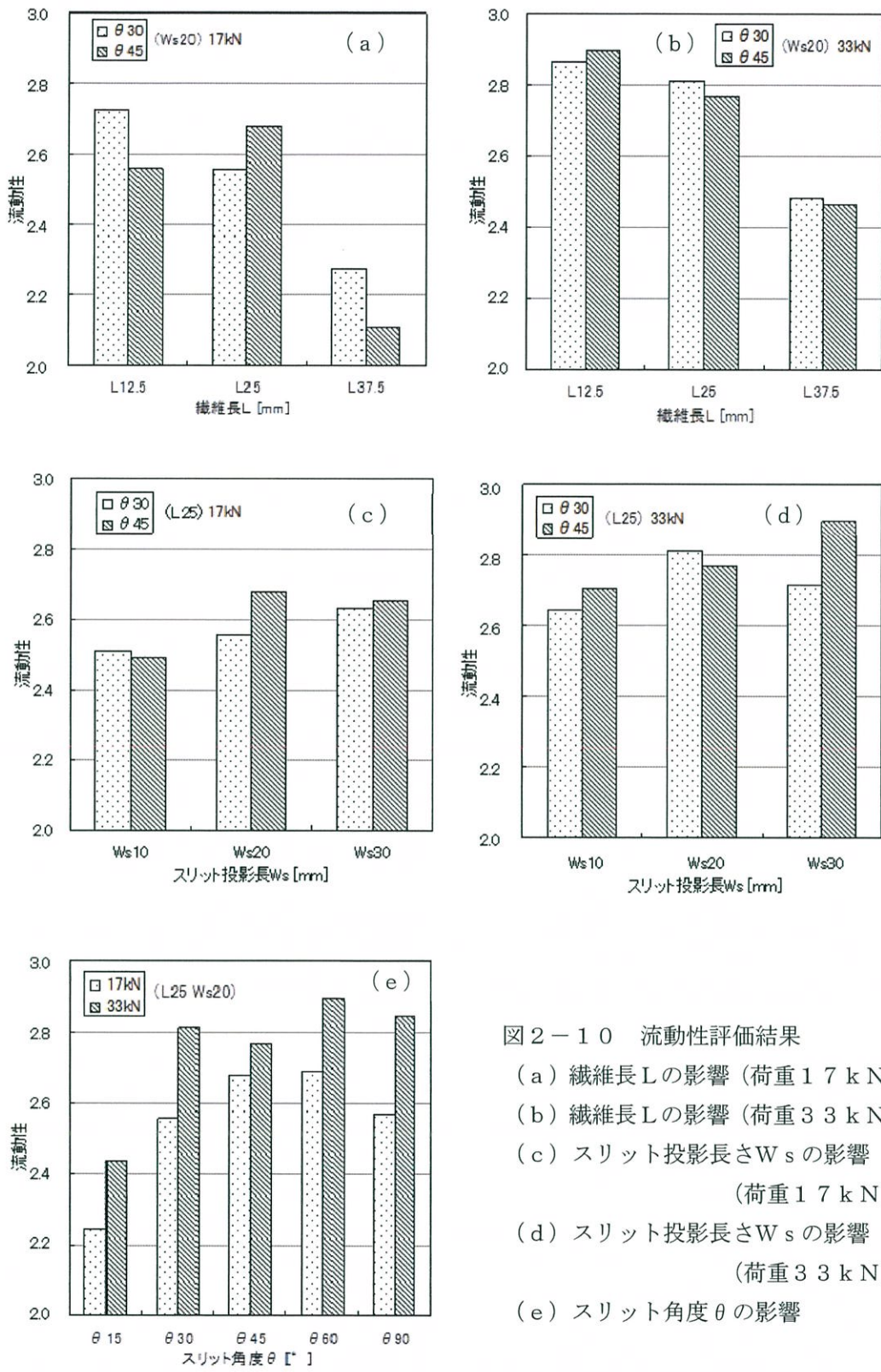
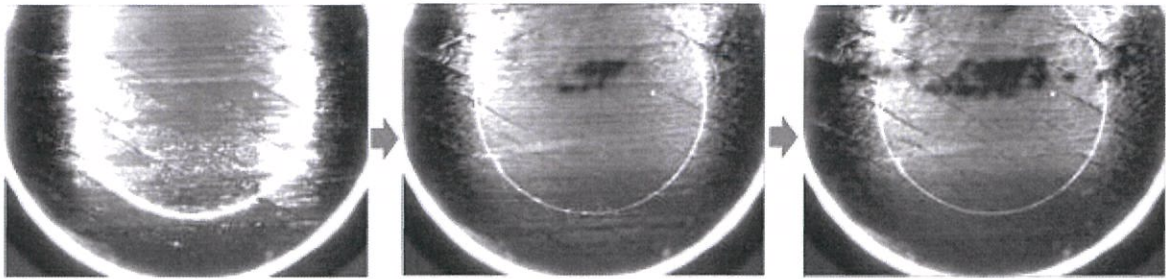
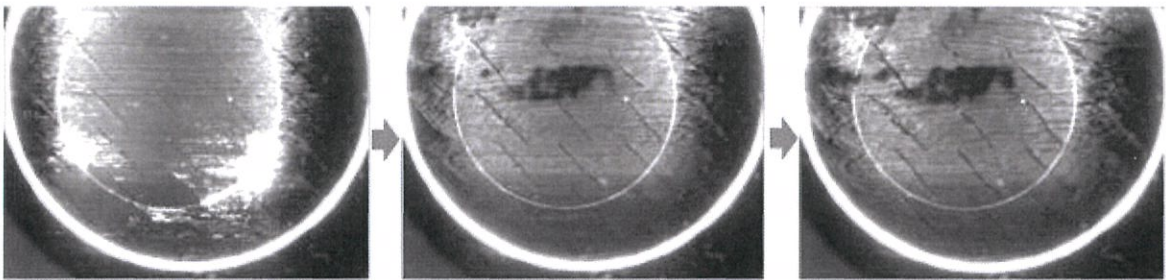


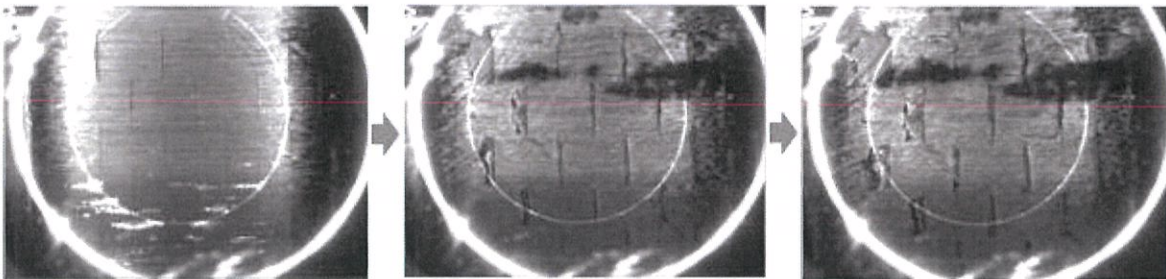
図2-10 流動性評価結果
 (a) 繊維長Lの影響 (荷重17kN)
 (b) 繊維長Lの影響 (荷重33kN)
 (c) スリット投影長さWsの影響 (荷重17kN)
 (d) スリット投影長さWsの影響 (荷重33kN)
 (e) スリット角度 θ の影響



(a)



(b)



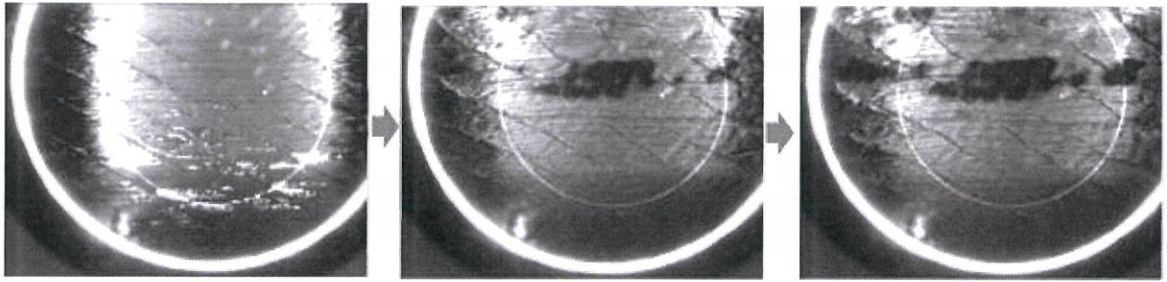
(c)

図2-11 流動の様子 (スリット長 L 25 mm、スリット投影長さ W_s 20 mm)

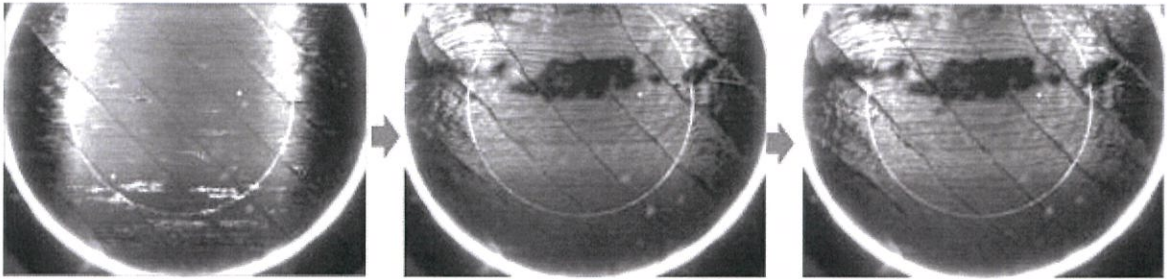
(a) スリット角度 θ 30°

(b) スリット角度 θ 45°

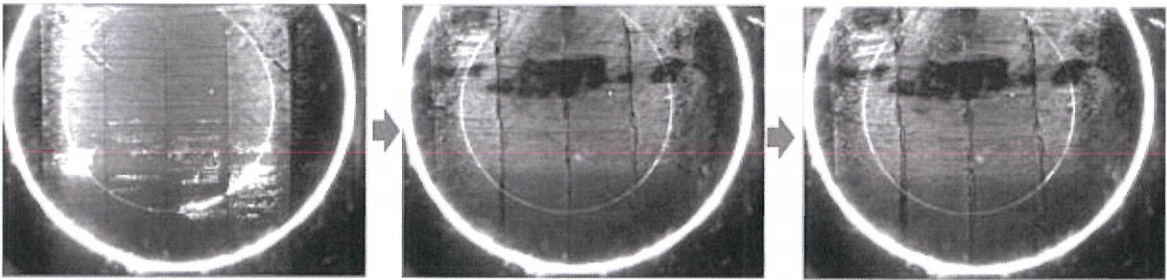
(c) スリット角度 θ 90°



(a)



(b)



(c)

図2-12 流動の様子 (スリット長 L 2.5 mm、スリット投影長さ W_s 無限大)

(a) スリット角度 θ 30°

(b) スリット角度 θ 45°

(c) スリット角度 θ 90°

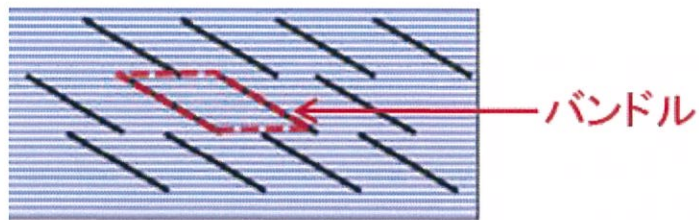


図2-13 スリットにより分割されたバンドルの模式図

2. 4. 2 曲げ物性

図2-14、2-15、2-16に曲げ物性に対するスリット形状の影響を示す。まずこの図より、CAEによる物性予測と実測の物性測定値は、強度と弾性率共に非常に高い精度で一致していることがわかる。この結果より、本章におけるモデルにより、スリット積層式スタンパブルシートを表現できたことを確認した。また曲げ物性の実測およびCAE解析結果より、スリット形状と曲げ物性の関係は、以下の3点が明確となった。

- 1) スリット投影長さ W_s は、曲げ強度・曲げ弾性率に対して、共に影響はほとんどない。
- 2) 繊維長 L が長いほど、曲げ強度・曲げ弾性率は向上するが、その影響は曲げ強度に対しては顕著に表れるが、曲げ弾性率に対しての影響は小さい。
- 3) スリット角度 θ が小さいほど、曲げ強度・曲げ弾性率が向上し、特にスリット角度 15° の時にはその影響が顕著であった。

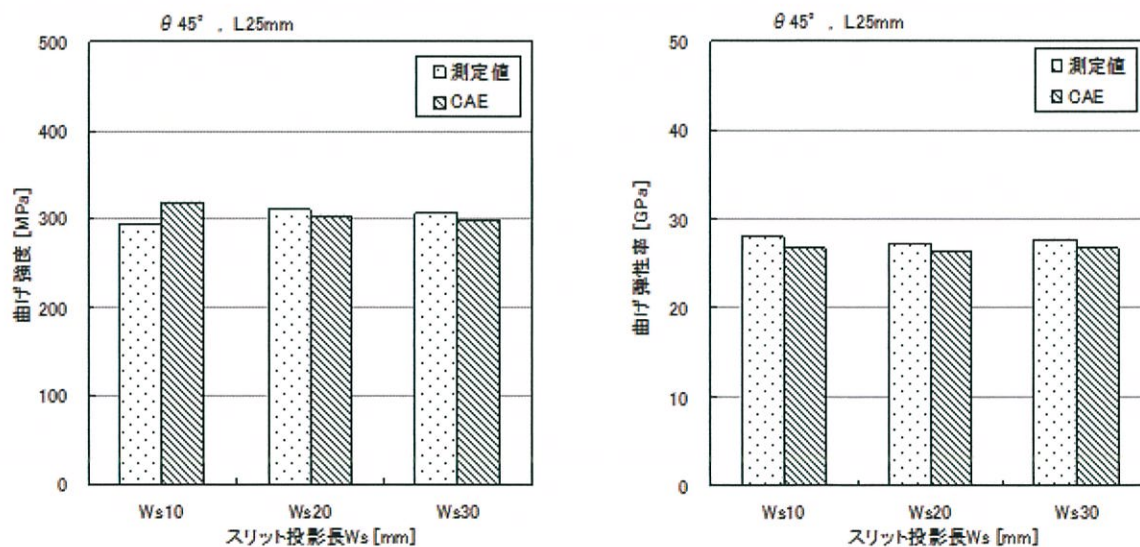


図2-14 曲げ物性 (スリット投影長さ W_s の影響)

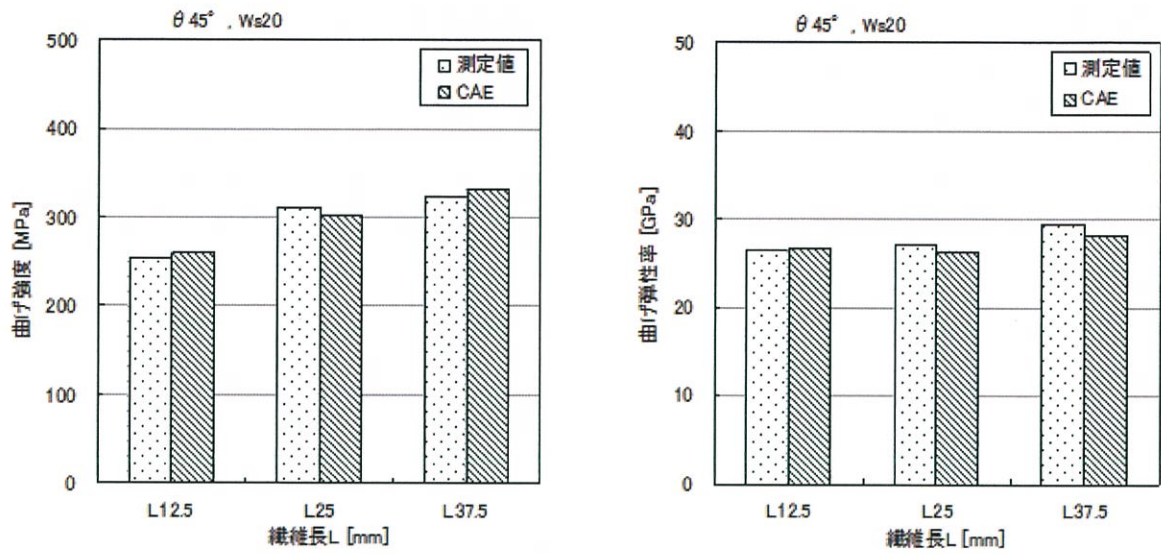


図 2 - 1 5 曲げ物性 (繊維長 L の影響)

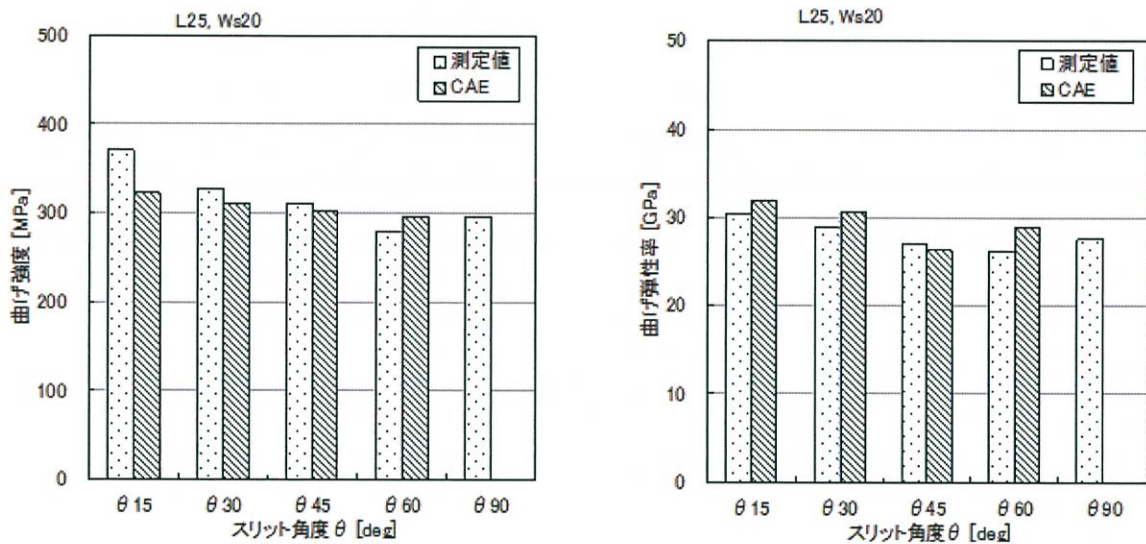


図 2 - 1 6 曲げ物性 (スリット角度 θ の影響)

図 2 - 1 7 にはスリット形状が $\theta 45^\circ$ 、L 25 mm、W s 20 mm の時の CAE における 3 点曲げ試験での破壊の進展の様子を示す。ここでは、初期の層間剥離と表層における圧縮破壊が確認された。これらは経験的にはあるが、実際の 3 点曲げ試験結果を再現している。

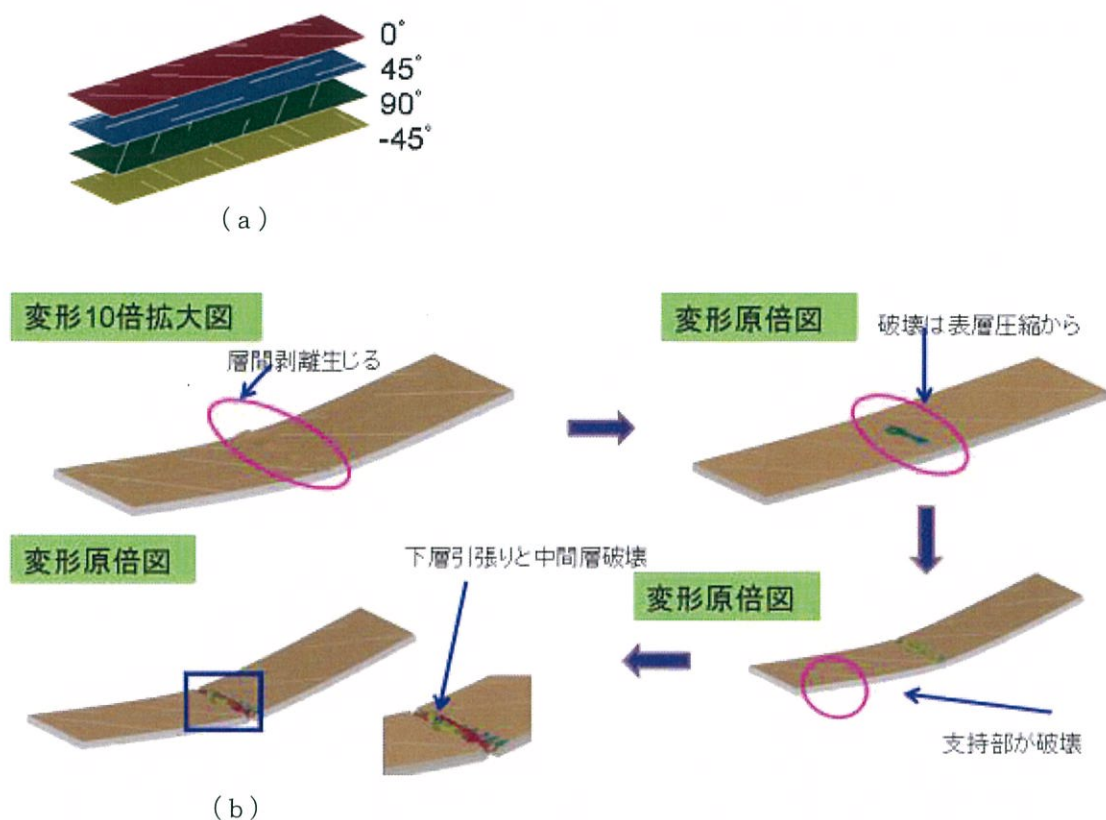


図2-17 CAEにおける3点曲げ試験での破壊の進展
 (a) 積層パターン図 (16ply中における表層の4ply)
 (b) 破壊の進展

図2-18に、圧縮変形を受ける表面の第1層のスリット角度と第一不変量で表した応力分布と破壊箇所(要素の欠落で表示)を示す。これらの図より θ が大きいくほど破壊が進展していることが確認できる。この理由として、図中の赤色で表現される圧縮応力が、 θ が大きくなるほど中央部に集中する傾向が見られる。しかしながら、破壊が生じた場合には、その要素で応力を保持できなくなるため、破壊の瞬間の応力状態が不明確になる傾向がある。そこで、破壊の生じておらず、かつ繊維配向が 0° の第8層の応力分布を図2-19に示す。この図より明らかなように、スリット角度 θ を小さくすることで応力集中を抑制することができ、つまりは破壊強度の向上につながるものと考えられる。

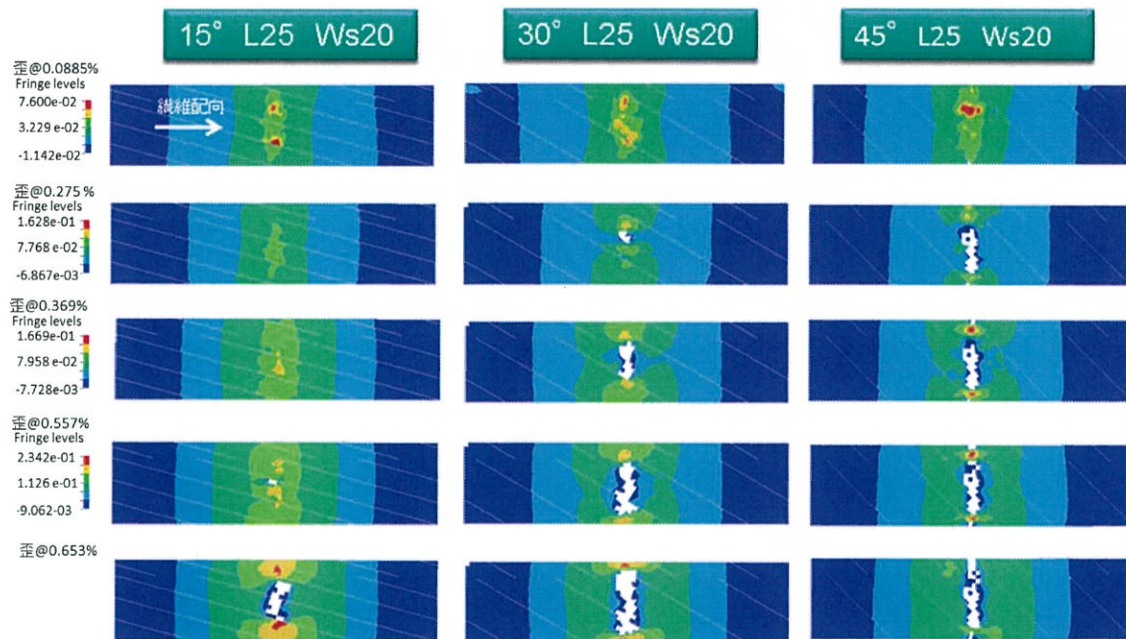


図 2 - 1 8 圧縮変形を受ける表面の表面から第 1 層の応力分布と破壊の進展
 (※ $p = -(\sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33})/3$: 正値が圧縮を表す)

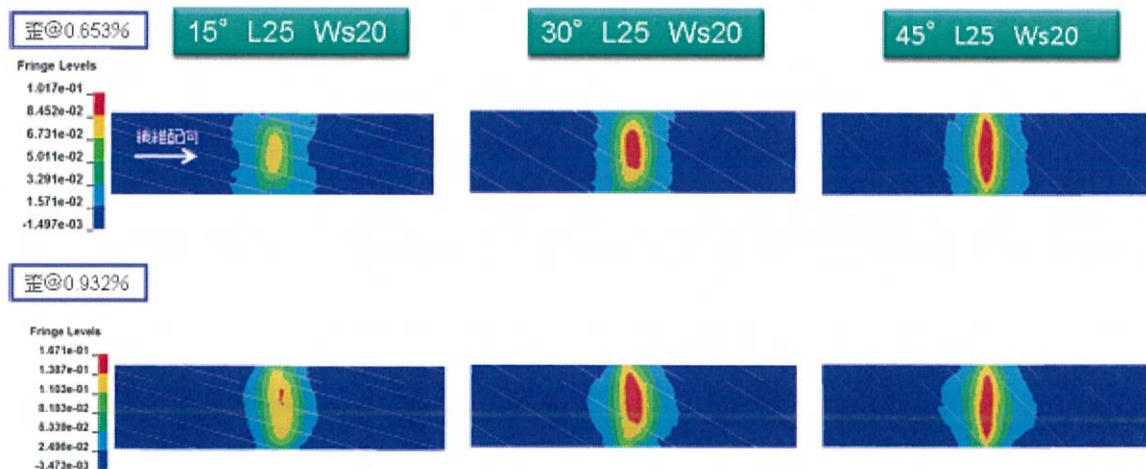


図 2 - 1 9 圧縮変形を受ける表面の表面第 8 層の応力分布と破壊の進展
 (※ $p = -(\sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33})/3$: 正値が圧縮を表す)

2. 5 結言

本章では、スリット積層式スタンパブルシートにおけるスリット形状の影響を明らかにする目的で、材料にCF/PPのプリプレグを用いて、スリット形状を繊維長 L 、スリット投影長さ W_s 、スリット角度 θ のパラメーターに分けて、その各パラメーターの影響について検証した。作製した試験体はプレス成形および曲げ試験を行い、流動性および機械物性を評価した。更には、FEMを用いたCAE解析によるスリット積層式スタンパブルシートの解析モデルを提案し、物性予測および実測値との比較による検証を行った。その結果、以下のことが明らかになった。

流動性

- ・繊維長 L が短いほど、流動性は高いが、繊維長12.5mmと25mmでは大きな差はなく、繊維長37.5mmでは大きく流動性が低下した。
- ・スリット投影長さ W_s が大きいほど、流動性が高いが、繊維長の影響よりも小さい。
- ・スリット角度 θ が大きいほど、流動性が高く、特にスリット角度 30° 未満では大きく流動性が低下した。一方、スリット角度 45° 以上では、流動性への影響は小さい。
- ・プレス圧力が大きい程、高い流動性を示すが、いずれの圧力においても上記スリット形状の影響による流動性への傾向は同様である。

機械物性

- ・スリット投影長さ W_s は、曲げ強度・曲げ弾性率に対して、共に影響はほとんどない。
- ・繊維長 L が長いほど、曲げ強度・曲げ弾性率は向上するが、その影響は曲げ強度に対しては顕著に表れるが、曲げ弾性率に対しての影響は小さい。
- ・スリット角度 θ が小さいほど、曲げ強度・曲げ弾性率が向上し、特にスリット角度 15° の時にはその影響が顕著であった。

解析モデル

- ・シェル要素で表したプリプレグをソリッド要素であるマトリックス樹脂中に自由に配置すること（メソモデル）で、スリット積層式スタンプ用シートをモデル化することが可能であることを確認した。

- ・計算結果は実験による実測値を精度よく再現することができ、更にはスリット形状の違いによる破壊の進展を再現することができた。

第3章 スリット積層式スタンパブルシートをハイブリッド射出成形のインサート材に用いた際のハイブリッド射出成形品のリブ部の強度

3. 1 緒言

第2章にて、スリット積層式スタンパブルシートのスリット形状が機械物性および流動性に及ぼす影響について明らかにした。この中で、流動性に関しては、スリット角度が 45° 以上、繊維長は 2.5 mm 以下、スリット投影長さは 2.0 mm 以上あれば、比較的低い圧力下においても、高い流動性を発現させることが可能であることが明らかになった。第1章の序論で述べた通り、この流動性に優れるスリット積層式スタンパブルシートはハイブリッド射出成形におけるインサート材として期待される。例えば、平板形状のCFRP板に射出成形（オーバーインジェクション）でリブを形成して、T字の成形品を作製した場合は、リブ部の根本に応力が集中しやすい形状であるため、そのリブの根本、つまりCFRPの平板と射出部の界面で破壊することが報告されている[45-46]。一方で田中ら[47]は、連続繊維のガラス繊維強化ポリアミド6樹脂をインサート材としてハイブリッド射出成形を行ってT字にリブを形成した場合、図3-1のようにリブの根本にインサート材の強化繊維の一部が入り込むことによって、リブ根本の強度が向上することを報告している。このことから流動性の高い材料をインサート材に用いれば、リブ部へのインサート材の入り込み量も増大し、リブ根本強度も向上することが期待できる。しかしながら、スリットが施されていない連続繊維積層体と比較すると、スリットの影響によりインサート材自体の強度は低下するため、ハイブリッド射出成形品においては、スリットに関する更なる適正化が必要である。

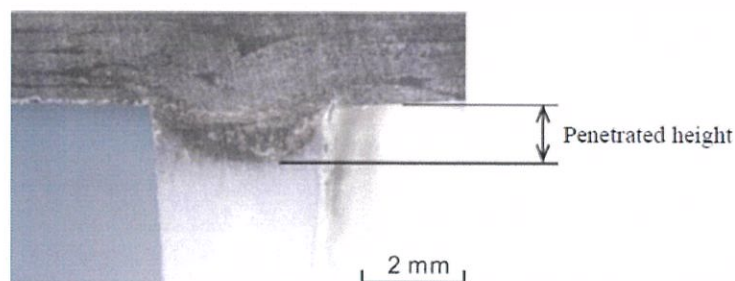


図3-1 リブ根本へのインサート材の入り込み

そこで本章では、スリット積層式スタンパブルシートの製造時に用いるプリプレグにおいて、一部にスリットを施していないプリプレグを積層し、スリットを施しているプリプレグとスリットを施していないプリプレグの積層枚数を変更することで、そのスリット入りプリプレグの分量がハイブリッド射出成形品におけるリブ根元部の機械的特性に及ぼす影響を明らかにすることを検証する共に、その破壊形態についても考察することとした。

3. 2 実験方法

3. 2. 1 材料

インサート材を作製する材料として、PPマトリックスの炭素繊維プリプレグである前章2. 2. 1項で作製したPPUD-33を用いた。スリット入りプリプレグとしては、図3-2に示す様なスリット角度 θ が 45° 、繊維長Lが25.4mm、スリット投影長さ W_s が20mmのスリットをPPUD-33に入れたものを用いた。またハイブリッド射出成形の射出工程に用いる材料として、非強化のPP樹脂（日本ポリプロ製、商品名：ノバテックPP MA3）を用いた。このPPの一般特性（カタログ値）を表3-1に示す。

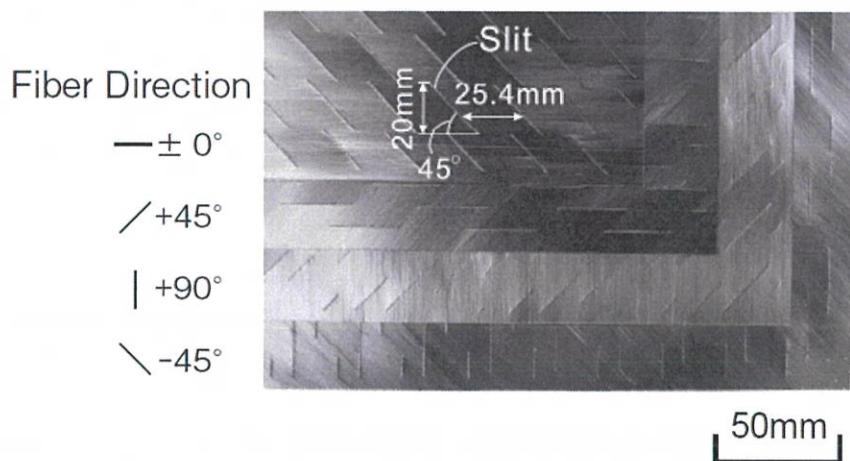


図3-2 スリット入りプリプレグ

表 3-1 ノバテック P P MA 3 の一般特性

項目	試験法	単位	数値
MFR	JIS K7210:1999	g/10min	11
密度	JIS K7212:1999	g/cm ³	0.90
曲げ強度	JIS K7171:1994	MPa	43
曲げ弾性率		GPa	1.5
引張降伏応力	JIS K7161,7162:1994	MPa	35
引張弾性率		GPa	1.6
引張破断呼び歪		%	100
シャルピー衝撃値 (23℃)	JIS K7111:1996	kJ/m ²	3.5
HDT (0.45MPa)	JIS K7191-1,2:1996	°C	100
ロックウェル硬度 (Rスケール)	JIS K7202-2:2001	—	100
光沢	JIS Z 8741:1997	%	90
HAZE (1mm)	JIS K7136:2000	%	80

3. 2. 2 成形方法

インサート材は積層構成が [0 / 45 / 90 / -45] s 2 となるようにプリプレグを 16 枚積層し、図 3-3 に示すハイブリッド射出成形機 (佐藤鉄工所製) の平板用金型を用いてプレス成形することで製造した。インサート材成形条件は、金型温度 200℃、プレス圧力 3.0 MPa、プレス時間 120 秒とした。プリプレグ積層枚数の 16 枚の内、全てのプリプレグにスリットが施されていないものと、図 3-4 に一例を示すように、16 枚の内の一部もしくは全てにスリット入りプリプレグを用いたもののインサート材を成形した。表 3-2 に、本章における各インサート材の名称およびスリット入りプリプレグおよびスリットの施されていないプリプレグの枚数を示す。インサート材の名称は図 3-4 に示すように、スリット入りプリプレグが 4 枚、スリットなしプリプレグが 12 枚の場合、S4-N12 と称することとした。なおインサート材の流動の様子を確認するため、一部のインサート材では、成形前の積層プリプレグ 16 枚の内、8 枚目と 9 枚目の層間の全面に予め白色のスプレー塗料 (ソフト 99 コーポレーション製、商品名: ソフト 99 ペイントボデーペン ホワイトプラサフ) を塗布した。

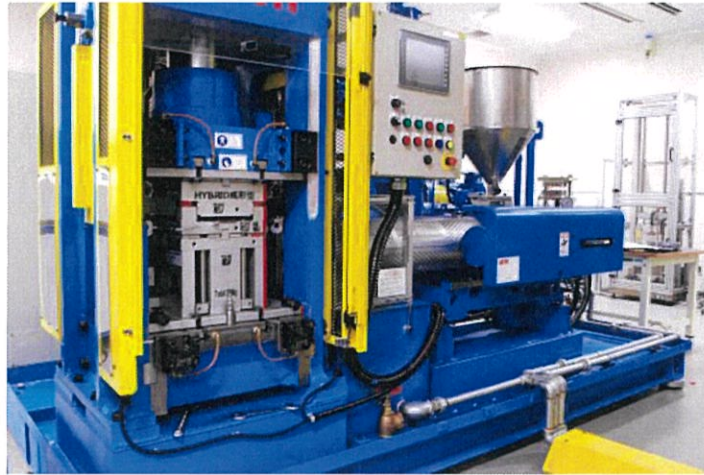


図3-3 ハイブリッド射出成形機（佐藤鉄工所製）

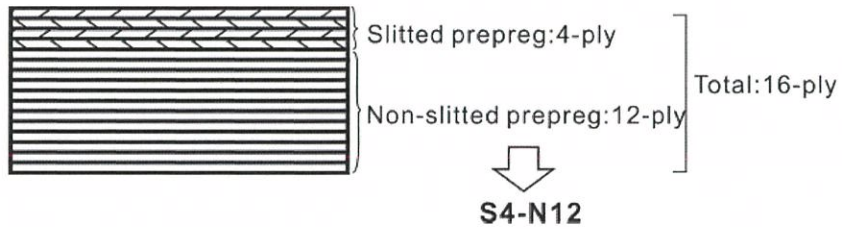


図3-4 インサート材の積層構成の一例（S4-N12）

表3-2 インサート材名称と積層構成

インサート材 名称	スリット入り プリプレグ枚数	スリットなし プリプレグ枚数	スリット入り プリプレグの割合
S0-N16	0	16	0%
S1-N15	1	15	6.3%
S4-N12	4	12	25%
S8-N8	8	8	50%
S16-N0	16	0	100%

本章におけるハイブリッド射出成形の概略図を図3-5に示す。インサート材を加熱ヒーター（LEIBROCK製、製品名：コンタクトヒーター TH-5）を用いてあらかじめ、インサート材の成形温度と同じ200℃まで加熱溶融させて、金型温度80℃に設定したハイブリッド射出成形用の金型内に設置し、型締めによりプレスした後、金型下部から射出成形を行うことで、リブ構造を有するハイブリッド射出成形品を得た。この時の成形条件として、型締圧力：25MPa、射出成形シリンダ温度：200℃、射出圧力：124MPa、射出速度：60mm/sとした。なお、スリット入りプリプレグを積層したインサート材を用いる場合は、スリット入りプリプレグがリブ側になるように金型内に配置した。また射出工程を行わず、ハイブリッド射出成形用の金型で型締めによるプレス成形のみを行うことで、インサート材の一部がリブ部に入り込んだ成形品も作製した。これは、ハイブリッド射出成形品においてインサート材部分だけを抽出した成形品に相当する。以下、成形したリブは、図3-6に示すように、Rib-DやRib-Eなどと称することとし、リブ長手方向に対するプリプレグ最外層の繊維およびスリットの角度を、それぞれ繊維相対角度およびスリット相対角度と定義する。また表3-3に本章で成形したハイブリッド射出成形品におけるRib-D、Rib-E、Rib-Fのリブ高さ、繊維相対角度およびスリット相対角度を示す。

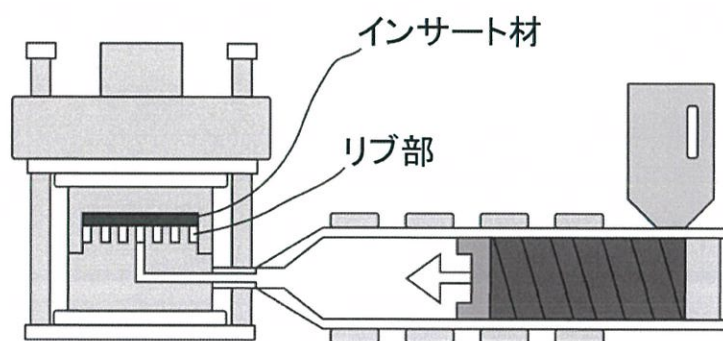


図3-5 本章におけるハイブリッド射出成形の概略図

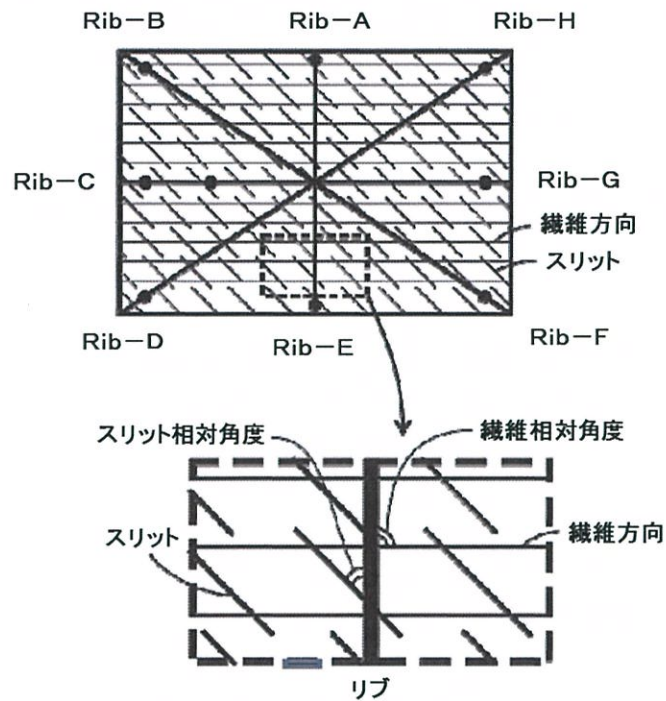


図 3-6 ハイブリッド射出成形品のリブ構造および繊維相対角度・スリット相対角度

表 3-3 リブ高さおよび繊維相対角度・スリット相対角度

	リブ位置		
	Rib-D	Rib-E	Rib-F
リブ高さ [mm]	40	40	40
繊維相対角度 [°]	34	90	34
スリット相対角度 [°]	79	45	11

3. 2. 3 リブ引張試験とインサート材引張試験

ハイブリッド射出成形品のリブ部分を、図 3-7 に示すように 35 mm (X 方向) × 15 mm (Y 方向) の寸法で T 字形状に切り出し、引張試験を行うことでリブ根元の接合強度を評価した。以後、この T 字形状の試験片を用いた引張試験を、リブ引張試験と称する。試験片は Rib-D、Rib-E、Rib-F からそれぞれ 2~3 本ずつ切り出した。図 3-7 に示すように、試験片

の表面にはアルミニウム製のタブをエポキシ系接着剤によって接着し、固定治具を用いて万能精密試験機（Instron製、製品名：万能試験機5556）を用いて、引張変位速度を1.0 mm/minとしてリブ引張試験を実施した。

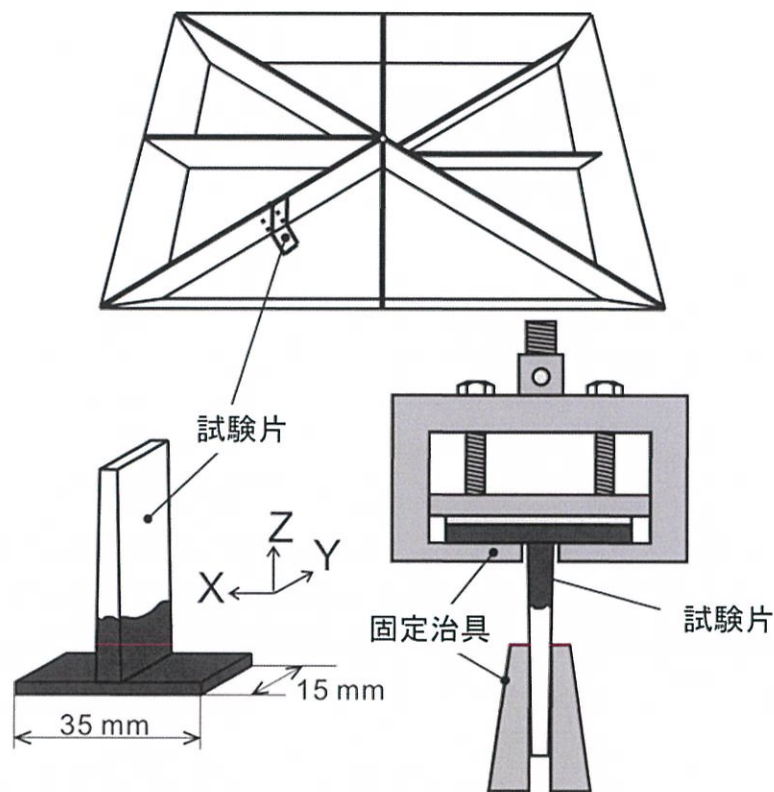


図3-7 T字引張試験片および引張試験の模式図

ハイブリッド射出成形における射出工程を行わず、インサート材のプレス成形のみを行った成形品より、図3-8に示すように15mm幅×150mm長に切り出し、インサート材の引張試験片とした。試験片の両端には、アルミニウム製のタブをエポキシ系接着剤により接着し、万能精密試験機（島津製作所製、製品名：オートグラフAG-100kN）を用い、引張変位速度を1.0mm/minとして、引張試験を行った。以後、このインサート材の引張試験を、インサート材引張試験と称する。

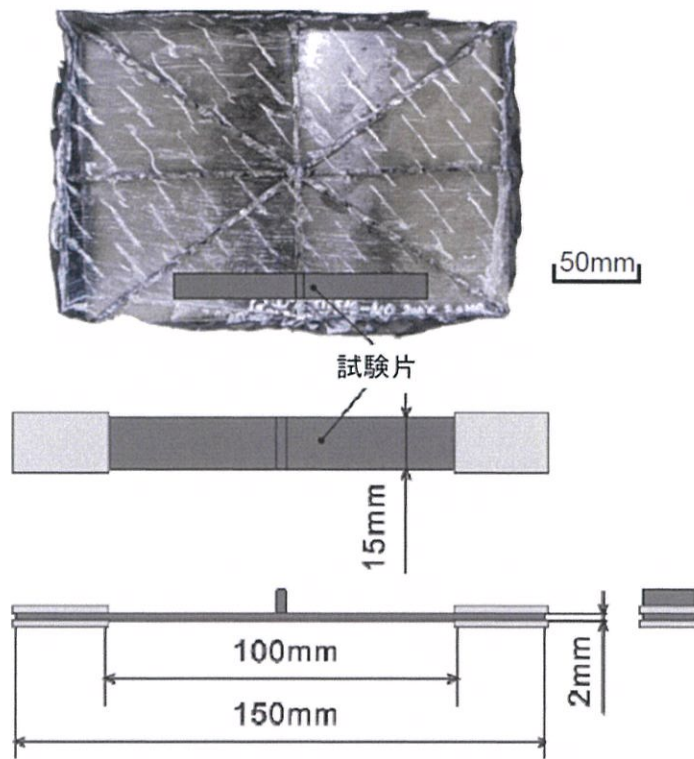


図 3-8 インサート材引張試験片の模式図

ハイブリッド射出成形品のインサート材の一部がリブ部へ流入している量は、図 3-9 に示すように試験片のインサート材と射出部の界面の高さの平均をリブ入り込み高さとして定義して求めた。このリブ入り込み高さは画像処理ソフトウェアを用いて、インサート材がリブに入り込んでいる面積を測定し、測定幅で除すことで算出した。またハイブリッド射出成形品におけるインサート材と射出部の界面部分は、X 線 CT 装置の一種である高分解能 3DX 線頭微鏡（リガク製、製品名：Nano 3DX）を用いて観察した。

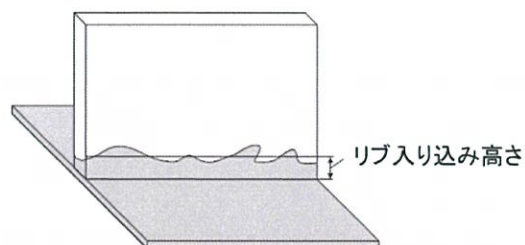


図 3-9 インサート材のリブ入り込み高さ

3. 3 結果と考察

3. 3. 1 リブ入り込み高さに対するスリット入りプリプレグの割合の影響

スリット入りプリプレグの積層枚数が0枚であるS0-N16および積層枚数の全てがスリット入りプリプレグであるS16-N0をインサート材に用いたハイブリッド射出成形品およびそのリブ部の外観写真を図3-10に示す。S0-N16では、リブ部へのインサート材の入り込みはほとんど見られなかったが、S16-N0を用いた場合は、インサート材の一部がリブ部へ入り込み、界面は波打っているような形状となった。

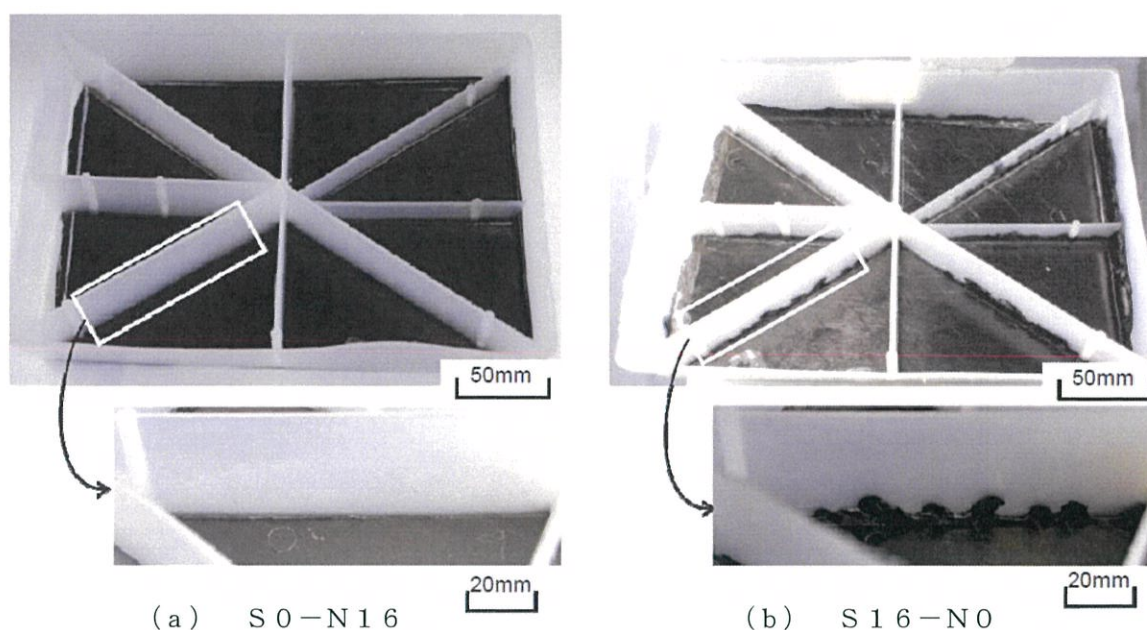


図3-10 ハイブリッド射出成形品の外観図

スリット入りプリプレグの割合が異なるインサート材を用いた成形品において、リブの位置やスリットの方向を考慮せず、スリット入りプリプレグの割合とハイブリッド射出成形品のすべてのリブのリブ入り込み高さの平均値の関係を図3-11に示す。スリット入りプリプレグの割合が多いほどリブ入り込み高さが高くなった。スリット入りプリプレグの割合が増やすことでインサート材の流動性が高くなり、インサート材からリブ部への入り込み量が多くなったと考えられ

る。

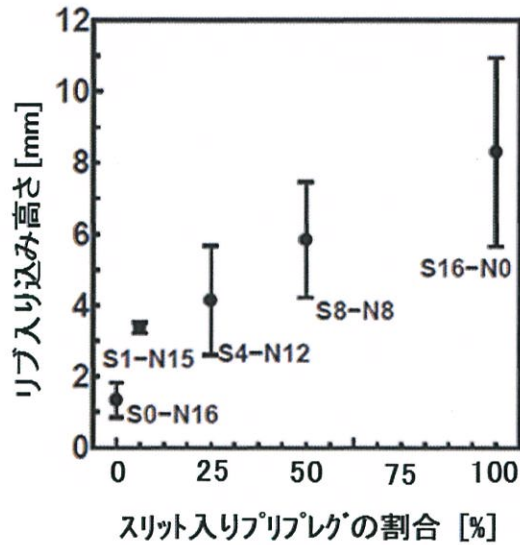


図 3-1-1 スリット入りプリプレグの割合とリブ入り込み高さの関係

図 3-1-2 に示すようにリブ長手方向に対するプリプレグ最外層の繊維相対角度が共に 34° であり、スリット相対角度が 79° である R i b - D およびスリット相対角度が 11° である R i b - F を比較する。R i b - D と R i b - F のスリット入りプリプレグの割合とリブ入り込み高さの関係を図 3-1-3 に示す。スリット相対角度の大きい R i b - D に比べて、スリット相対角度が小さい R i b - F の方がリブ入り込み高さが高くなる傾向が見られた。図 3-6 の R i b - D と R i b - F の部分を拡大して模式的に表したものを図 3-1-4 に示す。リブ長手方向とスリットの方向が平行に近いほど (スリット相対角度が 0° に近いほど)、リブとスリットが近い距離にある区間がリブ長手方向に長くなり、繊維の流動性が高いリブ部が多くなったためリブ入り込み高さが高くなったと考えられる。

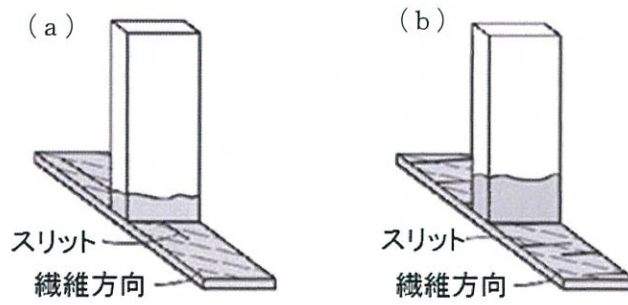


図3-12 T字試験片における繊維相対角度およびスリット相対角度の模式図
 (a) Rib-D (スリット相対角度: 79°)
 (b) Rib-F (スリット相対角度: 11°)

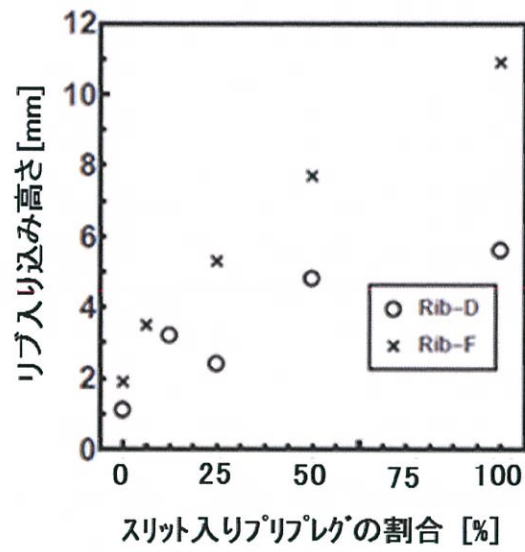


図3-13 Rib-DおよびRib-Fにおける
 スリット入りプリプレグの割合とリブ入り込み高さの関係

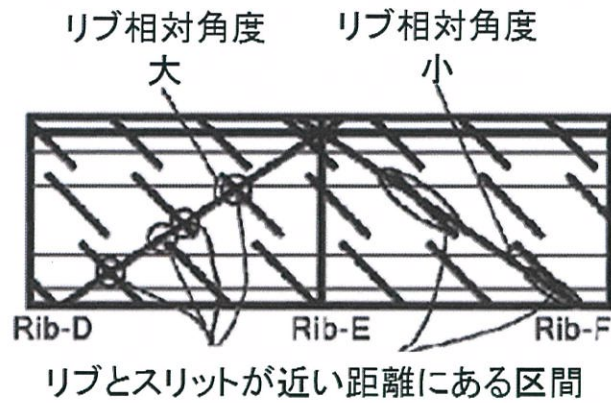


図3-14 Rib-DおよびRib-Fの拡大模式図

3.3.2 引張試験結果

スリット入りプリプレグの割合が異なるインサート材を用いた際のハイブリッド射出成形品のリブ引張試験結果を図3-15に示す。リブ入り込み高さが7.0mm程度になるまでは、リブ入り込み高さが高い試験片ほど、リブ根本の接合強度は高くなるが、リブ入り込み高さが7.0mm以上では接合強度に差が見られなかった。しかしながら接合強度が26MPa以上の試験片11個の内9個の試験片が、図3-16に示すように射出材部分で破壊した。これはインサート材と射出部の界面の接合強度が射出部の樹脂強度より高くなったため、射出部で破壊が生じたと考えられる。

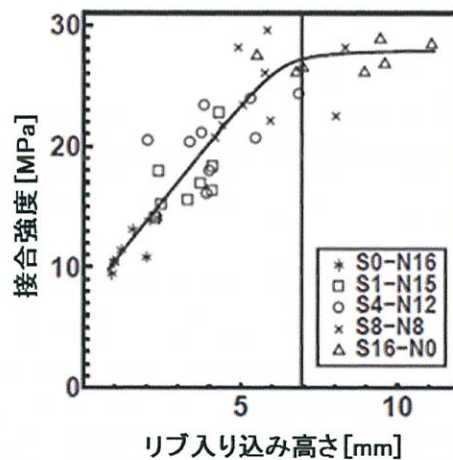


図3-15 リブ引張試験結果 (リブ入り込み高さ と リブ根本接合強度の関係)

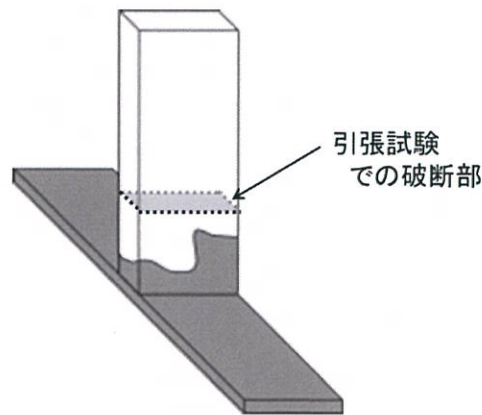


図3-16 リブ引張試験における射出材部分での破断

スリット入りプリプレグの割合が25%であるS4-N12をインサート材に用いたハイブリッド射出成形品のRib-Eの根元部を図3-17のように切り出し、インサート材と射出部の界面部分を高分解能3DX線頭微鏡(X線CT)により観察した結果を図3-18に示す。図3-18(a)のリブ入り込み高さは2.6mmであり、図3-18(b)のリブ入り込み高さは5.3mmであった。図3-18(a)のようにリブ入り込み高さが低い試験片はインサート材と射出部の界面付近の繊維がリブ深さ方向と直交平面方向に配向しているのに対し、図3-18(b)のようにリブ入り込み高さが高い試験片はインサート材と射出部の界面付近の繊維がリブ深さ方向に配向していた。リブ入り込み高さが高くなるほど、界面付近の繊維がリブ深さ方向に配向したため、界面と射出部の界面の接合強度が高くなったと考えられる。つまり、インサート材をリブに入り込ませることによって高い接合強度を得ることが可能である。この手法では、界面付近のインサート材の繊維をリブ深さ方向に配向させるだけの高さがあれば十分であるため、本章の条件では、図3-15に示したようにリブ入り込み高さは7mm程度確保すれば十分であり、これを実現するためには、図3-11に示したようにスリット入りプリプレグの割合が50%以上必要となることがわかる。

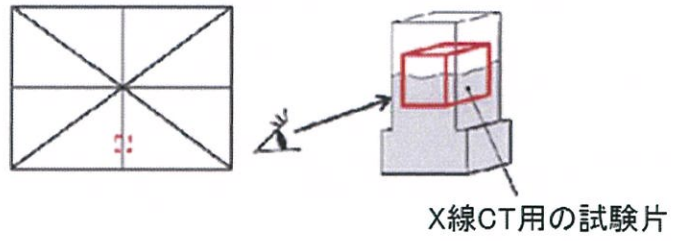


図3-17 X線CT用の試験片切り出し位置

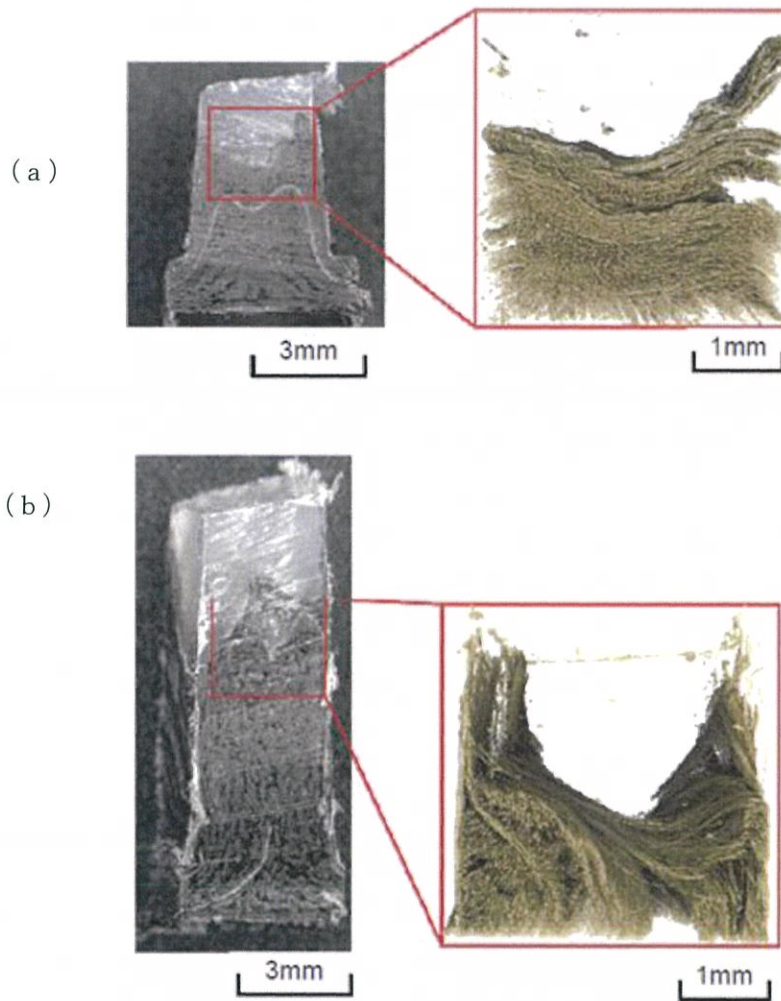


図3-18 X線CT観察結果

(a) リブ入り込み高さ2.6mmのサンプル

(b) リブ入り込み高さ5.3mmのサンプル

スリット入りプリプレグの割合が0%、50%、100%のインサート材を用いて、射出工程なしでハイブリッド射出成形用金型によるプレス成形のみを行った際のインサート材引張試験結果とスリット入りプリプレグの割合が0%、6.3%、25%、50%、100%のインサート材を用いたハイブリッド成形品のリブ引張試験結果を合わせて図3-19に示す。インサート材の引張強度は、スリット入りプリプレグの割合が0%と50%の試験片では大きな差はなかった、100%の試験片では大きく強度が低下した。リブ引張試験から求めた接合強度においては、スリット入りプリプレグの割合が50%までは、スリット入りプリプレグの割合が多いほど強度が高くなった。以上より、スリット入りプリプレグの割合が50%であるS8-N8は、スリット入りプリプレグの高い流動性によりリブ部への入り込み高さが高くなり、高い接合強度を示すものの、インサート材の引張強度は、スリットがない材料と同等であり、本章の条件内では、最適なスリット入りプリプレグの割合を有していることを見出した。つまり、リブ根元部強度とインサート材強度を考慮し、リブへのインサート材の流入量を支配するスリット入りプリプレグの割合を選択する必要があることがわかる。

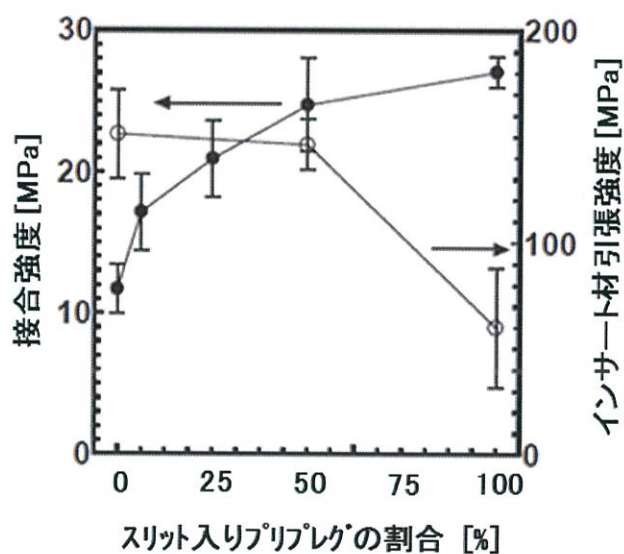


図3-19 リブ根本接合強度とインサート材引張強度

3. 4 結言

本章では、スリット積層式スタンパブルシートのスリットを施したプリプレグの枚数の割合が異なる材料をインサート材に用いてハイブリッド射出成形を行い、ハイブリッド射出成形品のインサート材の引張試験とリブ部をT字形状に加工した試験片を用いたリブ根元部の接合強度評価を行った。スリットを施したプリプレグの割合がその破壊機構に及ぼす影響を評価した結果、以下の知見が得られた。

- ・スリット入りプリプレグの積層枚数の割合が多いほどリブ入り込み高さが高くなった。
- ・ハイブリッド射出成形において、リブ長手方向とプリプレグ最外層のスリットの方向が平行に近い箇所、インサート材の一部がリブ部へ多く流入した。
- ・リブ入り込み高さが7.0 mm程度になるまでは、リブ入り込み高さが高くなるほど、界面で繊維がリブ深さ方向に配向し、接合強度が高くなった。
- ・スリット入りプリプレグの割合が50%であるS8-N8は、スリット入りプリプレグの高い流動性によりリブ部への入り込み高さが高く、高い接合強度を示すものの、インサート材の引張強度は、スリットがない材料と同等であり、本実験の条件内では、最適なスリット入りプリプレグの割合を有していた。

第4章 ハイブリッド射出成形における成形条件が界面接着性に及ぼす影響

4.1 緒言

3章ではインサート材にスリット積層式スタンパブルシートを用いてハイブリッド射出成形を行い、インサート材と射出樹脂の接合強度を評価した。ここではインサート材に、より流動性の高い材料を用いることで、リブ部の根本にインサート材を入り込ませると、インサート部と射出樹脂の接合強度が向上することを見出した。しかしながらリブ部根本へのインサート材の入り込み量が一定以下の場合には図4-1(a)のようにインサート材と射出樹脂の界面付近で破断が生じたが、入り込み量が一定以上の場合には、図4-1(b)のように射出樹脂部での破断が起こり、インサート部と射出樹脂の界面の接着性が評価できない問題も生じていた。また図4-1(c)のように界面付近で破断が起こっていても、インサート部の入り込み形状によっては、破断面の一部のみが界面で、ほとんどの破断部が樹脂部での破断であり、部材としての強度は見積もれるものの、純粋な界面強度の測定・算出には至っていない。

一方で、第1章の序論での述べた通り、成形条件も界面接着性には大きく影響を及ぼすことが知られている。Carellaら[40]、Aurrekoetxeaら[41]、Candalら[42]は、ハイブリッド射出成形ではなく、プリフォームと射出を別々の工程で行う従来のインサート射出成形によるインサート材と射出樹脂との界面接着性を調査している。Carellaら、Aurrekoetxeaら、Candalらは、いずれも射出樹脂の温度や金型温度、保圧などの射出成形条件の界面接着強度への影響を明らかにし、実際の界面成形時の現象に関しては、CAE解析を用いて予測を試みている。なお用いる材料に関しては、Carellaらはインサート材および射出樹脂は共にポリオレフィン系エラストマー樹脂(TPO樹脂)を、Aurrekoetxeaらはインサート材にPP繊維強化PP樹脂、射出樹脂にPP樹脂を、またCandalらインサート材および射出樹脂にPPおよび加硫エラストマー樹脂を用いている。加えて大石ら[43]は連続繊維のガラス繊維強化ポリアミド6樹脂をインサート材として、短繊維のガラス繊維強化ポリアミド樹脂を射出するハイブリッド射出成形を行っている。大石らはインサート材の加

熱の影響および射出樹脂の温度の観点からその界面接着性を、本研究の第2章での評価手法同様に引張試験にて評価している。しかしこれらの報告ではインサート材の強化繊維にはPP繊維やガラス繊維を用いているが、炭素繊維（CF）はこれらの強化繊維と比較して高い熱伝導性を有するために成形温度の影響をより受けやすく、CFRTPのハイブリッド射出成形における界面接着性の向上のためには、より成形条件が重要になると考える。

従って上記の先行研究を鑑みて、本章で取り組む課題は以下の3点とする。

- ・インサート材が熱伝導率の高い炭素繊維によって強化されているものを用いた場合において、優れた界面接着性が発現する成形条件を把握する。
- ・ハイブリッド射出成形における各成形条件が接着性に及ぼす影響を、界面形成時の状態を実測して考察する。
- ・界面の接着性を評価するより定量性の高い手法を確立する。

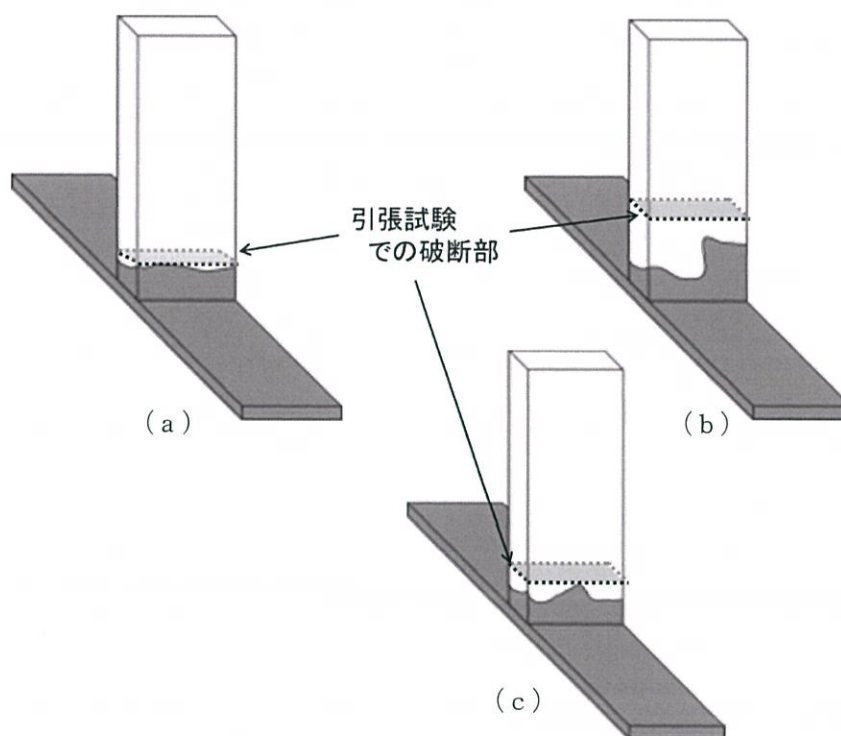


図4-1 リブ部引張試験における破断部の模式図

- (a) インサート材の入り込み量が少なく、界面部で破断している場合
- (b) インサート材の入り込み量が多く、樹脂部で破断している場合
- (c) インサート材の入り込み量が少ないが、ほとんどが樹脂部で破断している場合

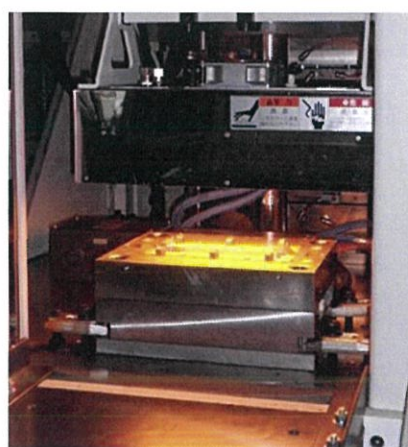
本章では、インサート材にCF強化PP樹脂を用いて、ハイブリッド射出成形における射出成形条件、およびインサート材の加熱条件が界面接着性に及ぼす影響について検証した。また加えて、ハイブリッド射出成形を行う金型内に温度センサーおよび圧力センサーを取り付け、成形条件を変更した際の界面温度や金型内の圧力を実測して、界面接着性への影響を直接的に考察した。更には、ハイブリッド射出成形におけるプレス工程によるインサート材の形状変化がない状態を模擬的に作り出し、界面をせん断力により剥離させることでその界面接着性を定量化することを検証した。

4. 2 実験方法

4. 2. 1 ハイブリッド射出成形方法

ハイブリッド射出成形機として、図4-2に示す昇降式IRヒーターを付属した最大型締め力78kNの東洋機械金属(株)製の全電動型成形機ET-80HR2を使用した。IRヒーターとしては、ヘレウス(株)製の短波長赤外線加熱ヒーターIRMA550/220(最大エネルギー波長 $1.5\mu\text{m}$)を用いた。上下一対の金型の下金型キャビティー内にインサート材を配置した後、IRヒーターにて下金型内キャビティー内のインサート材を加熱して樹脂を熔融させ、IRヒーターを取り除いて、型締めの後、金型内に熔融樹脂を供給してハイブリッド射出成形品を得た。なおIRヒーターによるインサート材の加熱終了から型締めまでの時間は20秒である。25mm幅×200mm長×2.0mm厚の金型キャビティーに対し、半分の厚み、すなわち25mm幅×200mm長×1.0mm厚の三菱ケミカル(株)製のCF/PPスタンパブルシートTRR10P35(不連続繊維、マット状ランダム繊維配向、繊維長25mm、繊維体積含有率35vol%)をインサート材として金型内に配置させ、残りの1.0mm厚分のキャビティーに日本ポリプロ(株)製のノバテックPPMA04Aを射出して、25mm幅×200mm長×2.0mm厚のハイブリッド射出成形品を得た。産業的に行われているハイブリッド射出成形では、型締めによりインサート材を賦型するが、本章のハイブリッド射出成形では、インサート部と射出部の界面の位置を明確する目的で、インサート材をキャビティー内部に配置し、型締

めによるプレス圧がインサート材に作用しない条件で行った。この時の成形条件を表4-1に示す。標準の射出条件（成形条件“STD”）を、シリンダー温度：240℃、金型温度：70℃、保圧：30MPa、射出速度：100mm/sとして、ここではIRヒーターによるインサート材の加熱は行わず、シリンダー温度：220～280℃、金型温度：40～90℃、保圧：10～50MPa、射出速度：50～200mm/sの範囲で各パラメーターを変更させて、その各条件パラメーターの影響を調査した。なお保圧保持時間はいずれも5秒、冷却時間はいずれも30秒とした。またインサート材の加熱条件として、加熱なし、150℃加熱、230℃加熱、270℃加熱の4条件でも評価用ハイブリッド射出成形品を作製した。図4-3にインサート材のIRヒーター加熱時の温度プロファイルを示す。ここではインサート材を下金型のキャビティ内に配置した状態で、インサート材の加熱面に熱電対を取り付け、IRヒーターにて30秒、60秒、90秒間加熱した。この時のインサート材表面の最大温度はそれぞれで150℃、230℃、270℃あった。IRヒーターでの加熱終了後におけるインサート材の放冷時の温度履歴も記録しているが、熱電対の噛み込みを防ぐため、型締めは行わずに温度計測を行った。



(a)



(b)

図4-2 ハイブリッド射出成形機（東洋機械金属(株)製 ET-80HR2）

(a) IRヒーターおよび下金型

(b) 射出成形ユニット

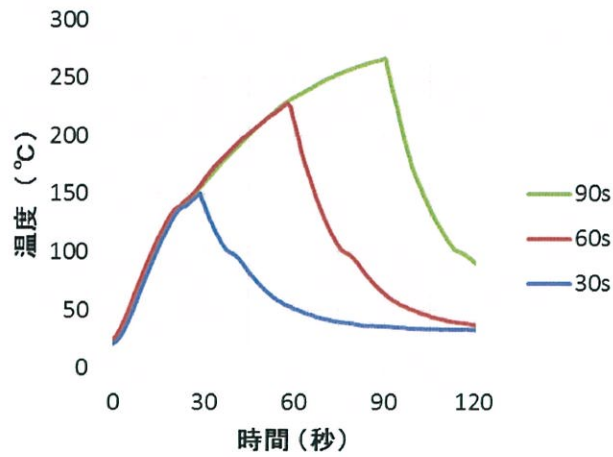


図 4-3 インサート材加熱時の温度プロファイル

表 4-1 ハイブリッド射出成形条件

成形条件	シリンダー 温度 T_c (°C)	保圧 P_h (MPa)	金型温度 T_m (°C)	射出速度 R_i (mm/s)	インサート材 加熱温度 T_h (°C)
STD	240	30	70	100	加熱なし
L-Tc	220	30	70	100	加熱なし
H-Tc	260	30	70	100	加熱なし
H2-Tc	280	30	70	100	加熱なし
L-Ph	240	10	70	100	加熱なし
H-Ph	240	50	70	100	加熱なし
L-Tm	240	30	40	100	加熱なし
H-Tm	240	30	90	100	加熱なし
L-Ri	240	30	70	50	加熱なし
H-Ri	240	30	70	200	加熱なし
150IR	240	30	70	100	150
230IR	240	30	70	100	230
270IR	240	30	70	100	270

4. 2. 2 温度圧力計測方法

本章ではインサート材と射出樹脂の界面温度および金型内圧力を測定するために、図 4-4 に示す構造の金型を使用した。温度・圧力センサーとして、双葉電子工業（株）製の MOLD MARSHALLING SYSTEM EPD-S001 を使用し、型締め完了を測定開始トリガー

として、50ms 間隔で金型内の温度および圧力を測定した。なおこの温度測定では測定温度範囲 100 ~ 300℃の赤外線放射温度計を使用した。本章では射出材料にポリオレフィン系樹脂である PP を使用しており、熔融した PP は赤外線を透過するため[14]、赤外線放射温度計で温度を計測している位置は黒色であるインサート材の表面、すなわちインサート材と射出樹脂の界面となる（図 4-5）。接触式温度計による測定温度との対比から、赤外線放射温度計によるインサート材表面温度測定時の放射率は 0.91 とした。

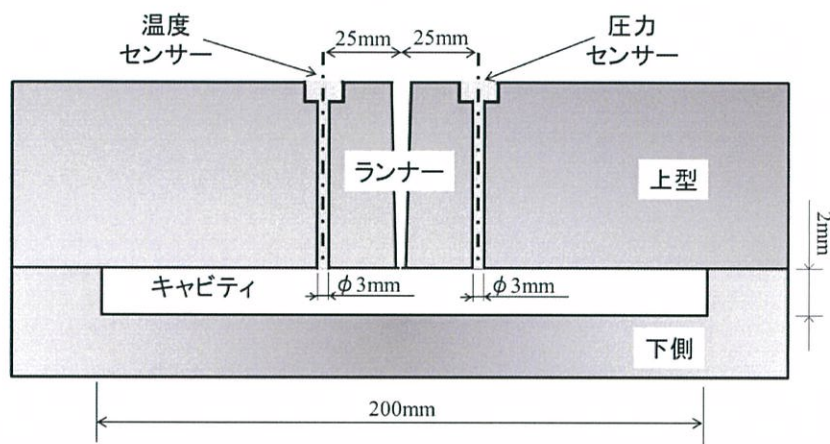


図 4-4 センサーを付属した金型の模式図

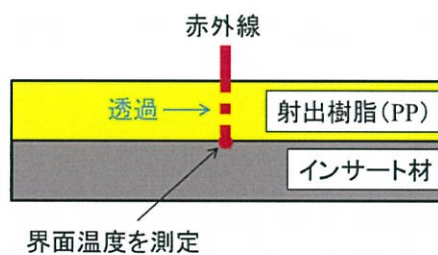


図 4-5 赤外線温度センサーによる温度測定位置の模式図

4. 2. 3 界面接着性評価

作製したハイブリッド射出成形品より、図4-6に示す位置から湿式のダイヤモンドカッターを用いて6.3mm幅×25mm長×2mm厚の試験片を切り出した。この試験片切り出し位置は、金型内に配置したセンサーにてハイブリッド射出成形品の界面温度および金型内圧力を計測している位置に相当している。同条件にて成形した2つのハイブリッド射出成形品から試験片を2つずつ切り出し、各条件における試験片数は4とした。切り出した試験片はASTM D2344に従い、インストロン製の万能試験機5565を用いてショートビームの3点曲げ試験を行った。500Nのロードセルを用い、試験速度1.27mm/min、支点間距離8mmとした。この時、試験片のインサート材が圧子側に、射出材が支点側になるようにして試験を行った。試験時の荷重-変位曲線において、荷重が低下した点を破断荷重 P_m として、下記式(4-1)よりせん断強度 τ_i を算出し、これを界面せん断強度(接着強度)とした。なお、下記式(4-1)においては、3点曲げ試験における中立軸は試験片の厚み方向における中間点にあるものとしている。実際は、インサート材と射出材の剛性が異なるため、中立軸は厚み方向における中間点よりも若干剛性の高いインサート材側にズレるが、そのズレはほぼ無視できる程度であるため、近似的に下記式(4-1)によりせん断強度を算出できるものとした。

$$\tau_i = \frac{3P_m \left(1 - \frac{t}{h}\right)t}{bh^2} \quad \dots \text{式(4-1)}$$

τ_i : せん断強度 (MPa)

P_m : 破断荷重 (N)

b : 試験片の幅 (mm)

h : 試験片の厚み (mm)

t : インサート材の厚み (mm)

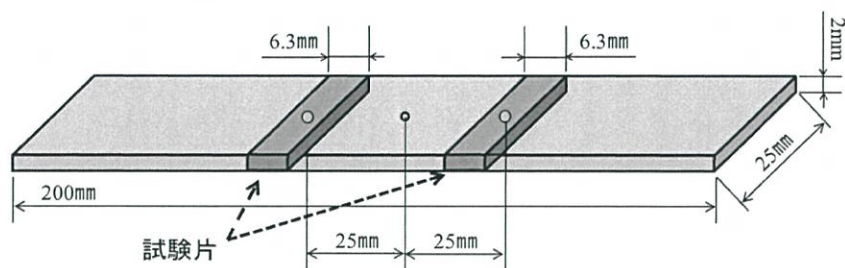


図4-6 赤外線温度センサーによる温度測定位置の模式図の模式図

4. 2. 4 熱重量分析 (TGA) の測定

射出成形時のシリンダー温度上昇による樹脂の熱分解の影響調べるため、射出前のペレット状態のPP樹脂の熱重量減少率を島津製作所(株)製の示差熱・熱重量同時測定装置DTG-50Hを用いて測定した。測定条件として、空気雰囲気下、昇温速度10℃/分で測定した。

4. 2. 5 断面顕微鏡観察

インサート材加熱時におけるインサート材と射出材の界面状態を考察するため、断面観察を行った。作製したハイブリッド射出成形品をメタクリレート樹脂((株)マルトー製、テクノビット4004)に包埋し、鏡面研磨後、キーエンス製のデジタルマイクロスコープVHX-5000を用いて倍率150倍でインサート材と射出樹脂の界面を観察した。

4. 3 結果と考察

4. 3. 1 ショートビーム3点曲げ試験による界面せん断強度の評価

図7に成形条件“STD”にて作製したハイブリッド射出成形品より切り出した試験片のショートビーム3点曲げ試験で得られた荷重-変位曲線図を示す。変位0.35mmで曲線の傾きの変曲点がみられた。これはハイブリッド射出成形品におけるインサート材と射出樹脂の線膨張係数の違いから生じた試験片の反りに起因するものである。CFを含有するインサート材は低線膨

張特性を有するがPP単体からなる射出樹脂はインサート材と比較して成形後の収縮も大きいため、ハイブリッド射出成形品は図4-8に示すように、インサート材側が凸になる向きに反りが生じたと考える。本章のショートビーム3点曲げ試験ではインサート材側を圧子側として試験を行っているため、試験初期ではこの反りを矯正する方向に荷重を加えており、比較的低荷重で変形が生じる。試験片の反りが矯正された後は試験片本来の剛性が効いてくるため、この荷重-変位曲線図における傾きの変化を生じさせている。

この試験では247Nで荷重が低下したため、その後試験を終了した。この荷重の低下はインサート材と射出樹脂の界面剥離によるものであった。図4-9に試験前後の試験片の写真を示す。この写真は射出樹脂側を上にして撮影したものであるが、目視でも界面で剥離が生じていることが分かる。いずれの成形条件にて作製した試験片においても、荷重の低下点では界面剥離が生じた。以上より、ショートビーム3点曲げ試験によるせん断強度の測定で、界面接着性の評価が可能であることを確認した。

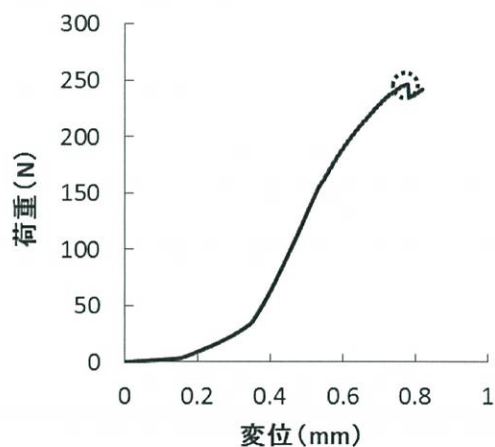


図4-7 荷重-変位曲線

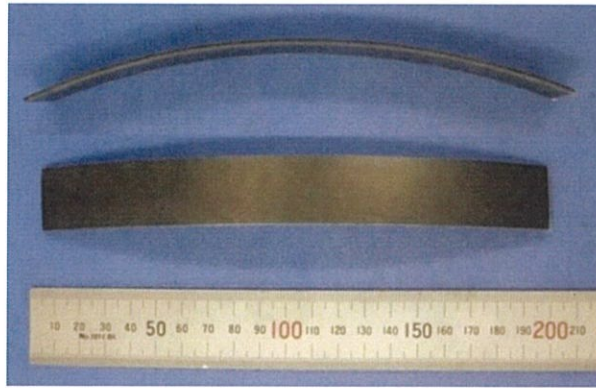
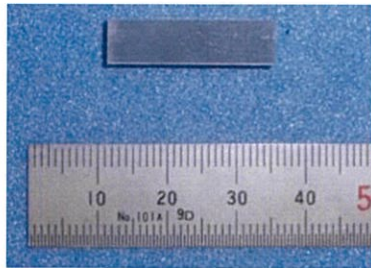
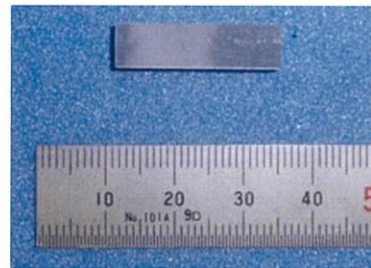


図4-8 ハイブリッド射出成形品の反りの様子



(a)



(b)

図4-9 試験片 (a) 評価前、(b) 評価後

4. 3. 2 界面温度および金型内圧力測定結果

図4-10に成形条件“STD”にてハイブリッド射出成形品を作製した際の温度・圧力測定結果を示す。ここでは金型の型締めが計測開始のトリガーとなっており、型締めのおよそ4.2秒後に射出樹脂が金型内に注入されたことがわかる。また射出成形機のシリンダー温度は240℃に設定しているが、シリンダーから放流された樹脂の温度を熱電対にて測定したところ、247℃であった。これは射出時にシリンダー内のせん断力により生じた摩擦によって樹脂が発熱(せん断発熱)したため、シリンダー温度よりも樹脂温度が高温になったものである。実際はシリンダーノズルから射出された樹脂は金型のゲート・スプール・ランナーを通過する際もせん断発熱が生じるため、キャビティーに注入される際の樹脂温度は更に高温になっていると考えられ

る。そして赤外線放射温度計にて計測されたインサート材表面温度の最大値は227℃であった。これは金型内に注入された熔融樹脂からの伝熱によりインサート材表面が加熱されたことにより温度が上昇したものである。本章ではこの温度をインサート材と射出樹脂の界面温度とした。また金型内圧力に関して、金型内への樹脂の充填直後に射出圧により圧力が上昇し、その最大値は27.7MPaであった。その後樹脂の冷却収縮により金型内圧力が低下していくが、設定30MPaの保圧によって、およそ25MPaの圧力が金型内で保持されていることがわかる。保圧保持時間は5秒に設定していたが、実際は3秒程度しか圧力が保持されておらず、この原因はスプールおよびランナー部分の樹脂が冷却により固化したため、シリンダー内の樹脂からの圧力が伝わらなくなったためであり、これにより徐々に金型内圧力が低下していることがわかる。

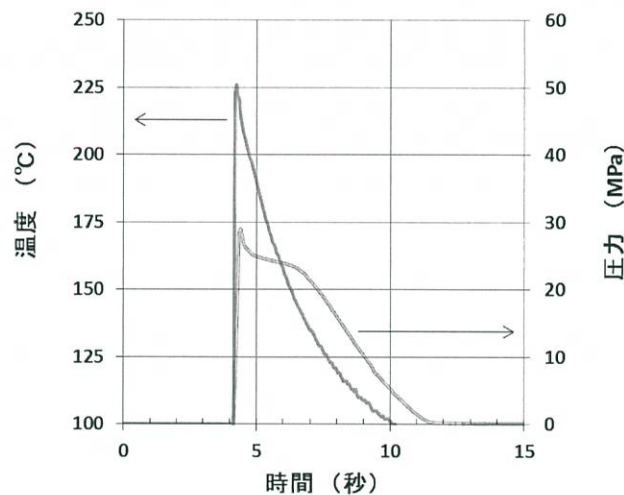


図4-10 成形時の温度・圧力プロフィール (成形条件 “STD”)

4. 3. 3 シリンダー温度の影響

図4-11にはシリンダー温度を220℃、240℃、260℃、280℃とした際（成形条件：L-Tc、TSD、H-Tc、H2Tc）の、金型内センサーにより計測したインサート材と射出樹脂の界面温度および金型内圧力を示す。この時のシリンダーノズルから射出される樹脂の熱電対による実測温度は、それぞれ228℃、247℃、267℃、285℃であった。図4-11より、シリンダー温度の上昇に伴い界面の最大温度の上昇も確認され、最大温度はそれぞれ216℃、227℃、240℃、255℃であった。金型内への樹脂充填直後の射出圧による金型内圧力の最大値には違いはみられなかったが、シリンダー温度が260℃および280℃の場合は、樹脂温度が高い分、スプールおよびランナー樹脂が固化するまでの冷却時間が長くなったため、保圧保持終了までの5秒間金型内の圧力も保持されていることがわかった。

これらの成形条件にて得られた試験片の界面せん断強度の評価結果を図4-12に示す。なおシリンダー温度220℃の場合、成形直後はインサート材と射出樹脂は接着していたが、ダイヤモンドカッターにて評価用試験片を切り出す際に界面が剥離したため、界面せん断強度の評価は行わなかった。ここではシリンダー温度の上昇に伴い、界面せん断強度の向上が確認された。この結果Carrellaら[41]、Aurrekoetxeaら[42]、Candalら[43]、大石ら[44]の研究報告結果とも一致する。

シリンダー温度の上昇により界面せん断強度の向上は確認されが、加熱による樹脂の熱分解の挙動を確認するため、PP樹脂ペレットの熱重量減少率（TGA）を測定した。その熱重量減少率曲線を図4-13に示す。PP樹脂は250℃以上の高温では徐々に熱分解による重量減少が観測され、260℃は2.1%、280℃では8.0%の重量減少が確認された。実際の射出成形での樹脂の加熱では、酸素の影響や加熱時間も異なるものの、シリンダー温度260℃以上ではPP樹脂の熱分解の懸念があるため、接着性の観点からは射出樹脂の温度上昇が効果的ではあるが、成形品の用途・用法に応じて温度を選択する必要があると考える。

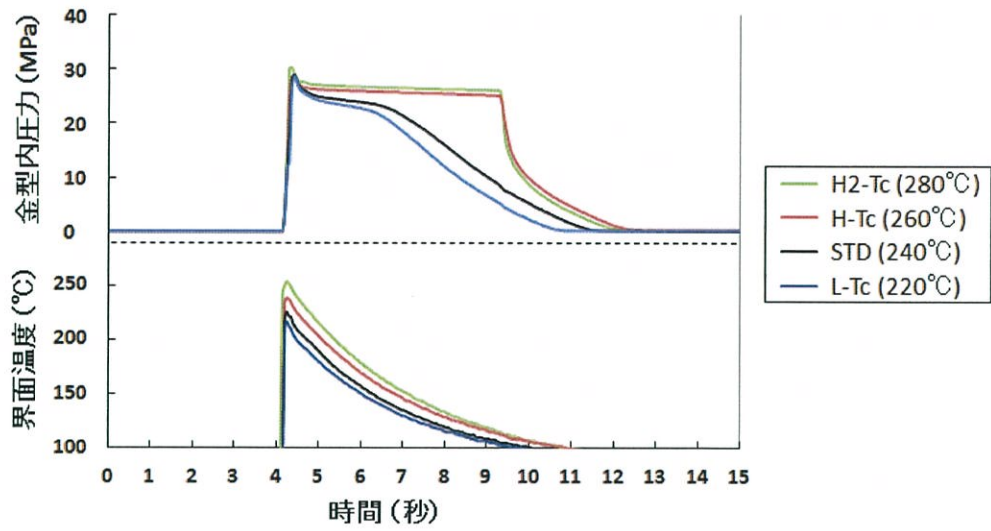


図4-1-1 温度・圧力プロフィール —シリンダー温度の影響—

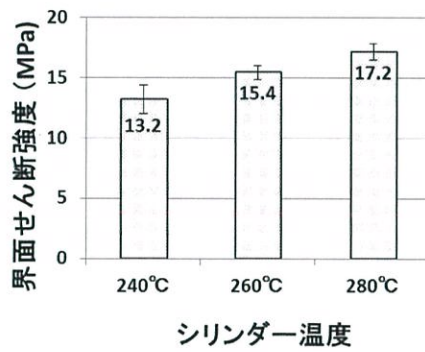


図4-1-2 界面せん断強度 —シリンダー温度の影響—

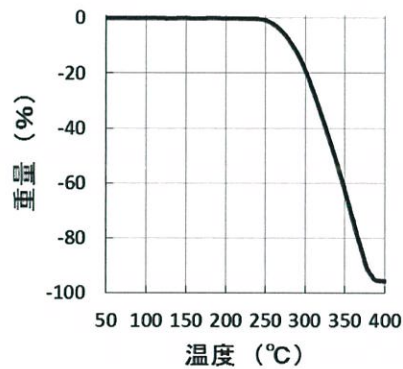


図4-1-3 PP樹脂ペレットの重量減少カーブ (TGA測定結果)

4. 3. 4 保圧の影響

シリンダー温度の上昇により界面せん断強度の向上は確認されたが、シリンダー温度の上昇は界面温度および金型内圧力の双方に影響を及ぼしていた。そこで界面温度と金型内圧力が界面せん断強度に及ぼす影響を分離して考察する目的で、保圧の影響を確認した。図4-14に保圧を10MPa、30MPa、50MPaとした際（成形条件：L-Ph、STD、H-Ph）の温度・圧力測定プロファイルを、図4-15には保圧の影響による界面せん断強度測定結果を示す。保圧を変更することによる界面の最大温度への影響はなかったが、保圧50MPaの場合のみ、僅かながら冷却速度の低下が確認された。これは保圧によるシリンダー樹脂からの熱供給があったためと推察される。金型内圧力に関しては、保圧10MPaと30MPaの場合では、金型内の最大圧力に有意差は確認されなかった。これは保圧ではなく射出圧が金型内の最大圧力値への支配的要因となっているためである。しかし、保圧10MPaの場合は射出樹脂の充填後1秒程度で金型内圧力5MPa程度まで急激な低下が確認され、保圧による圧力保持は5MPa程度であることが分かった。一方保圧50MPaの場合は、射出から保圧切り替え後も金型内圧力の上昇が確認され、最終的に42MPa程度まで金型内圧力は上昇した。この様に保圧の変更により、界面温度への影響は最小限にとどめながら大きく金型内圧力は変動させたが、界面せん断強度への明確な影響は確認されなかった。Carrellaらの研究結果[41]では、保圧の上昇により接着強度の向上も確認されているが、本章の実験では低保圧の条件でも、射出圧によって接着には十分な圧力がかかっていたためと考えられる。

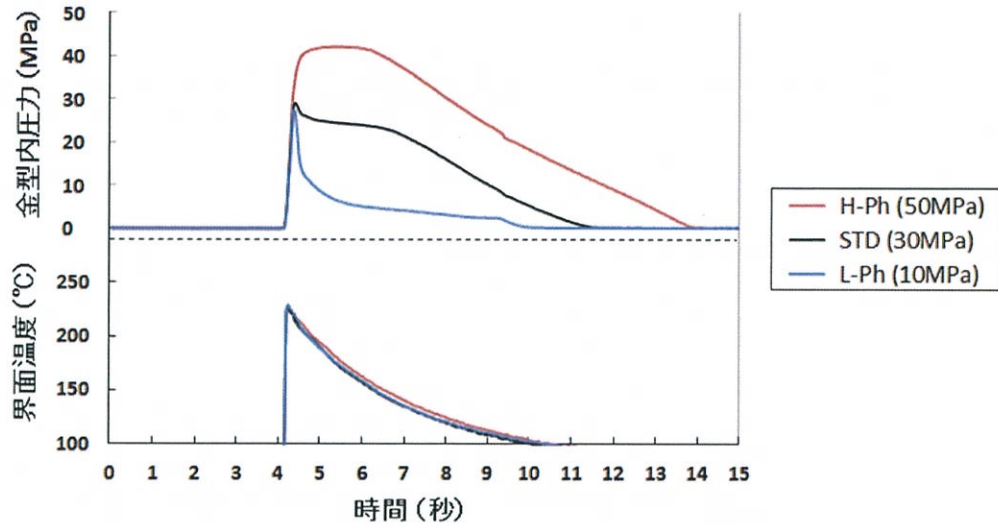


図4-14 温度・圧力プロフィール —保圧の影響—

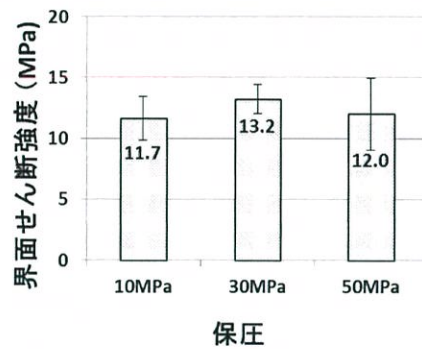


図4-15 界面せん断強度 —保圧の影響—

4. 3. 5 金型温度の影響

金型温度を40℃、70℃、90℃とした際（成形条件：L-Tm、STD、H-Tm）の温度・圧力測定プロフィールを図4-16に、これら金型温度の影響による界面せん断強度測定結果を図4-17に示す。金型温度の上昇により界面温度の最大値はそれぞれ226℃、227℃、227℃とほとんど変化は見られなかったが、冷却速度はわずかながら低下することがわかる。

また冷却速度の低下により、樹脂の冷却収縮速度も低下したために、金型内圧力においても保圧による圧力保持時間も長くなることがわかった。しかし界面せん断強度の差はほとんど確認されず、金型温度が界面せん断強度に及ぼす影響は小さいことが示唆された。

なお金型温度の上昇により界面せん断強度のバラつきが低下する傾向がみられた。成形時の射出樹脂の冷却収縮によりハイブリッド射出成形品の界面に応力が生じるが、この応力を緩和するために図8に示すように成形品には反りが生じる。射出直後から脱型までの冷却時には金型により成形品が拘束されているため、反ることによる応力緩和ができず、界面に残留応力が生じる。界面接着性は少なからず界面の残留応力による影響も受けると考えられるが、ここでは金型温度が高い状態で脱型することにより、ハイブリッド射出成形品の界面に生じる残留応力が低減したことで、接着性のバラつきが低下したためと考える。しかしながら金型温度が高いと、成形の反りも大きくなる傾向があるため注意が必要である。

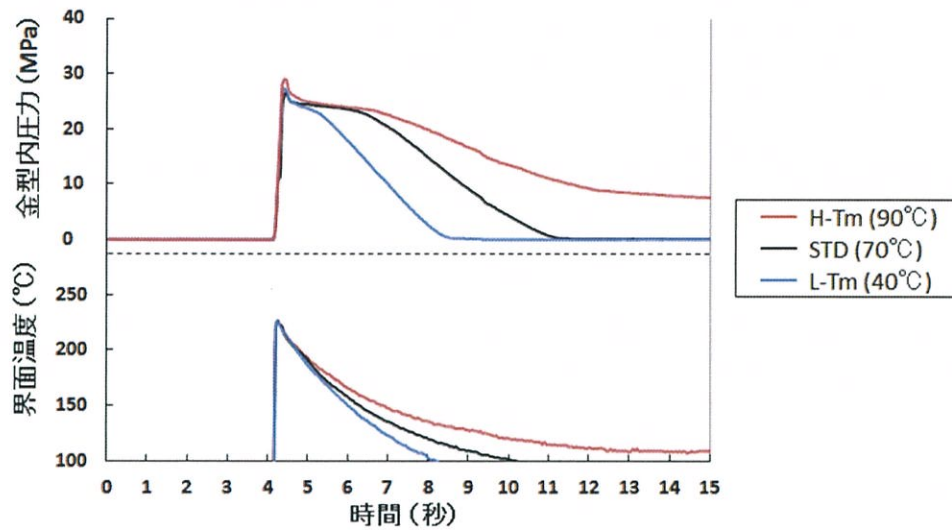


図4-16 温度・圧力プロフィール —金型温度の影響—

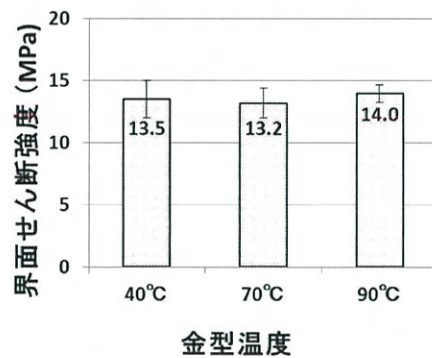


図4-17 界面せん断強度 —金型温度の影響—

4. 3. 6 射出速度の影響

射出速度を50 mm/s、100 mm/s、200 mm/sとした際（成形条件：L-Ri、STD、H-Ri）の温度・圧力プロファイルを図4-18に示す。ここでは型締め瞬間を0秒として計測を開始としており、射出速度が速いほど金型内に樹脂が注入される時間も早いため、温度・圧力のプロファイルの立ち上がりも早い。また射出速度が速いほど界面の最高温度および

射出圧による金型内の最高圧力は高いことがわかった。圧力に関しては高速で金型内に樹脂が注入されることは、すなわち高圧で樹脂が注入されることと同じであり、射出速度の増加に伴い射出圧も増加したため、金型内圧力の最大値も増加したと考える。また射出速度が高速であるほど、射出樹脂にかかるせん断力も増加するため、せん断発熱により金型内に流入する樹脂の温度が上がり、その結果、界面温度も上昇したと推察される。また図4-19には射出速度による界面せん断強度への影響を示す。射出速度の上昇に伴い、界面せん断強度も向上することが分かった。上述の通り、金型内圧力よりもインサート材と射出材の界面温度の方が界面せん断強度に影響を及ぼすことから、ここでは高速で射出することによりせん断発熱で樹脂温度が上昇し、それに伴い界面温度も上昇したことが界面せん断強度の向上に繋がったと考える。

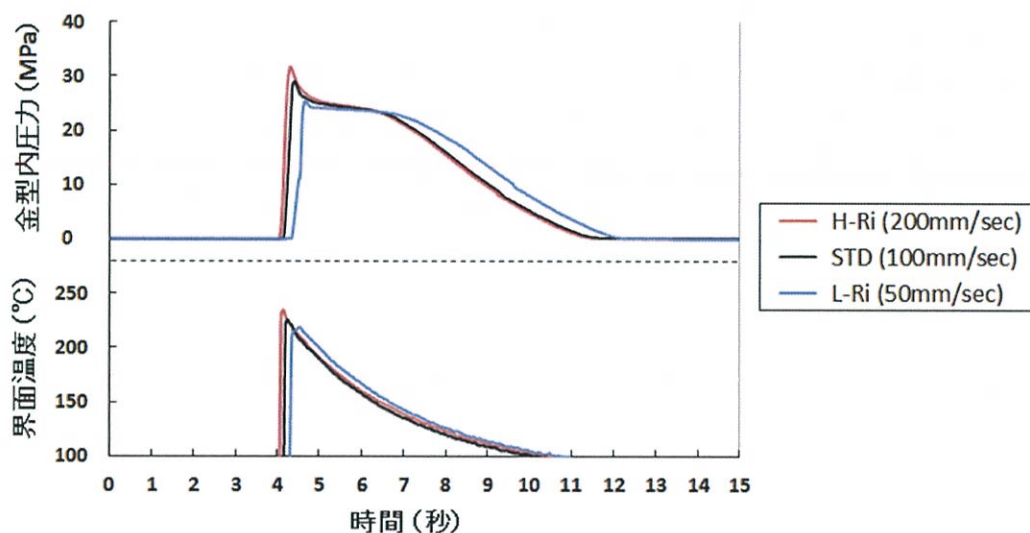


図4-18 温度・圧力プロフィール —射出速度の影響—

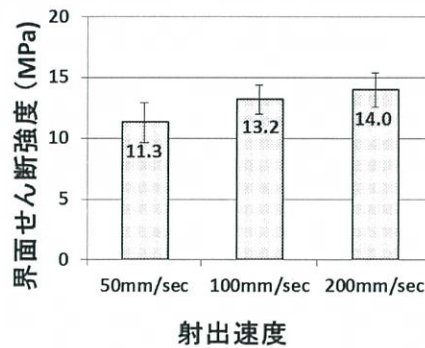


図4-19 界面せん断強度 —射出速度の影響—

4. 3. 7 インサート材加熱の影響

続いてインサート材の加熱条件を変更した際（成形条件：STD、150IR、230IR、270IR）の温度・圧力プロファイルを図4-20に、インサート材加熱による界面せん断強度の影響を図4-21に示す。またIRヒーターによる加熱前後のインサート材の写真を図4-22に示すが、強化繊維のCFが不連続でマット状であるインサート材を加熱すると、樹脂が溶解し、CFの残留応力によってスプリングバックと呼ばれる基材の膨張が生じた。そのためインサート材と射出樹脂の界面位置も加熱前のインサート材厚みからは特定できないと考え、ショートビーム3点曲げ試験後の試験片より剥離したインサート材部分を取り出し、その厚みを測定することで、界面位置を特定し、界面せん断強度を4. 2. 3項に記載の式（4-1）より算出した。なお成形前およびショートビーム3点曲げ試験後のインサート材の厚みを表5-2に記載する。インサート材の加熱時間が長いほどスプリングバック量も大きくなる傾向であったが、この膨張を押し返す向きに射出樹脂は金型内に注入されるために、結果的にインサート材の膨張量も少なく、また図4-23における射出圧による樹脂充填直後の金型内圧力も低下したと考える。

一方で界面温度に関しては、インサート材加熱の影響はほとんど確認されなかった。本章で用いた金型内の赤外線放射温度計の測定範囲は100～300℃であるが、インサート材を加熱しても、図4-20から読み取れる通り、型締め時（温度計測開始時）にはインサート材の表面

温度は100℃未満になっている。またIRヒーターによる加熱終了から型締めまでは20秒要しており、図4-3の温度プロファイルからも加熱終了の20秒後の型締め時には、いずれも100℃以下までインサート材が冷却されていることが示唆される。すなわち射出樹脂を金型内に注入する時点では、インサート材は100℃未満まで冷却されており、界面温度には影響を及ぼさなかったためと考える。また産業的な観点からはハイブリッド射出成形においては型締めによりインサート材は賦型されるが、この時、CFの高い熱伝導のために、より冷却が加速すると考えられる。インサート材の熱伝導率が高い場合、インサート加熱により界面温度を上昇させるためには、加熱終了から型締め・射出までの時間を短縮するなどの対策が必要であることがわかった。

しかしながらインサート材を加熱することにより界面せん断強度の向上が確認された。いずれの場合も破壊の形態は界面剥離であったが、加熱温度が高いほど、剥離の面積が小さい傾向にあった。図4-23にIRヒーターでインサート材を加熱しない場合（成形条件：STD）および加熱した場合（成形条件：150IR、230IR、270IR）のハイブリッド射出成形品の断面観察写真を示す。加熱しない場合に比べ、加熱した場合は界面の位置が乱れており、また加熱温度が高いほど、その程度も大きいことが分かる。このことからIRヒーターでインサート材表面が加熱されることにより、インサート材表面に凹凸が形成されたことによるアンカー効果によって界面せん断強度が向上したと考えられ、また剥離の進展も抑制されて剥離の面積も小さくなったことが示唆された。なお界面せん断強度は230℃で加熱した場合が最大値を取り、270℃で加熱すると若干低下した。スプリングバック量は270℃で加熱した際の方が大きく、アンカー効果による接着性向上も期待されたが、これはスプリングバックによる膨張分だけインサート材表面のVfは低下し、アンカー効果に寄与するCFの量も低減したためと考える。また加えて、図4-13から明らかな通り、270℃ではPP樹脂が熱劣化したことにより、界面のPP樹脂自体の強度が低下したためと考えることもできる。なお4.3.3項におけるシリンダー温度の上昇でも同様にPP樹脂自体の熱劣化は起きているが、シリンダー温度の上昇に伴い界面せん断強度が上昇したことに关しては、PP樹脂自体の強度低下の影響よりも、界面温度の上昇

による接着性向上の影響の方が大きかったためと考える。

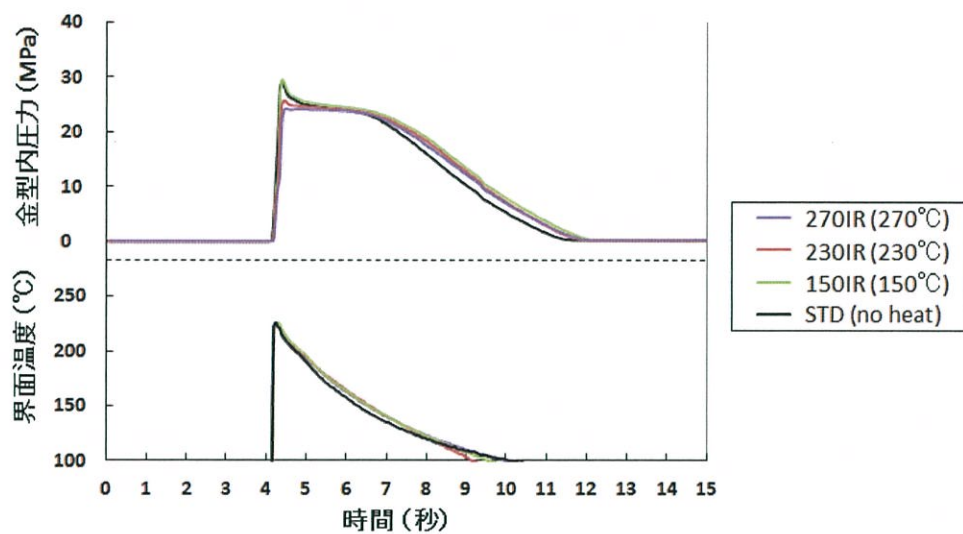


図4-20 温度・圧力プロフィール —インサート材加熱の影響—

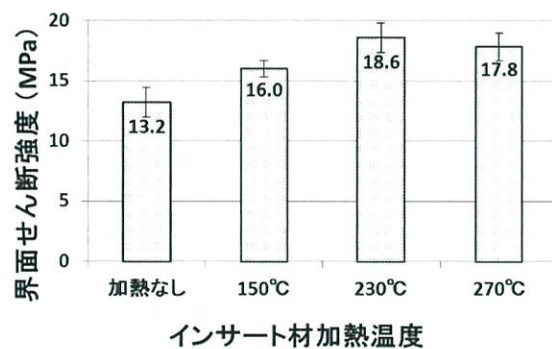


図4-21 界面せん断強度 —インサート材加熱の影響—



図4-22 インサート材 (a) 230°C加熱後、(b) 加熱前

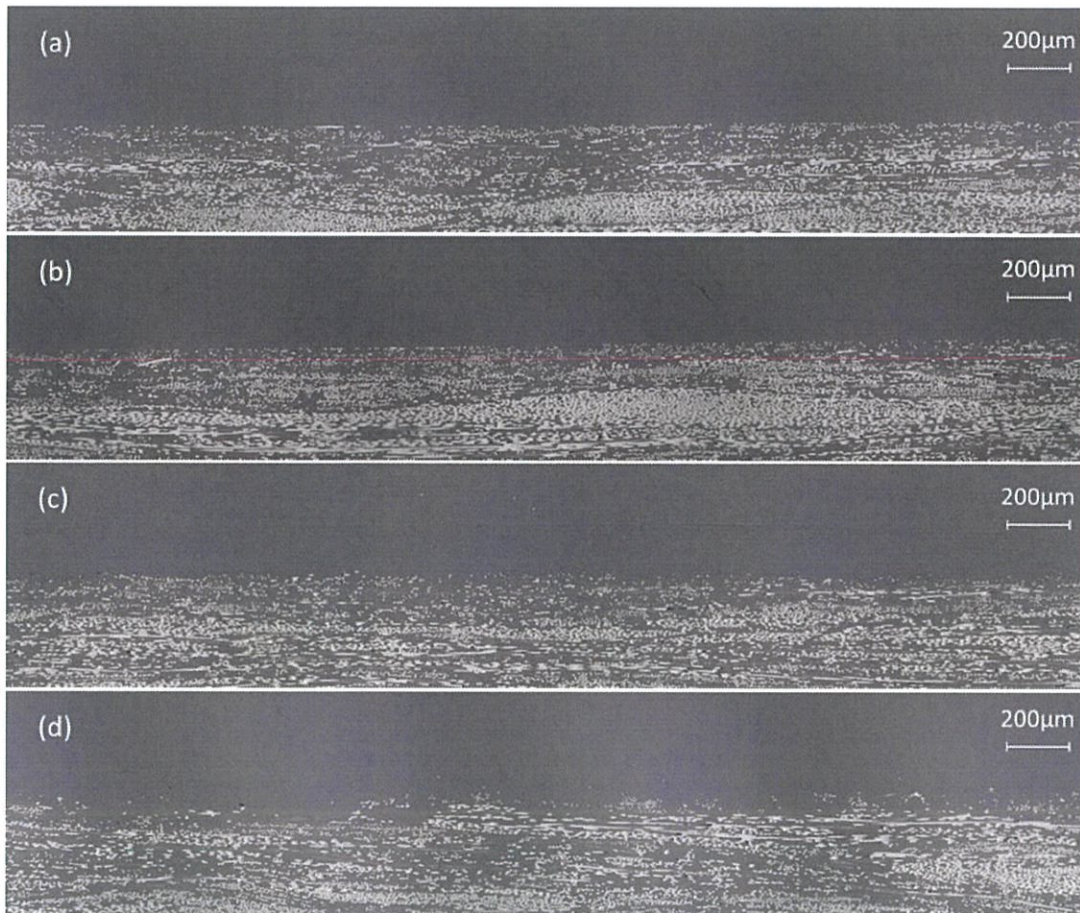


図4-23 界面の断面観察写真

- (a) 加熱なし (成形条件: STD)
- (b) 150°C加熱 (成形条件: 150 IR)
- (c) 230°C加熱 (成形条件: 230 IR)
- (d) 270°C加熱 (成形条件: 270 IR)

4. 3. 8 界面温度と界面せん断強度の関係

図4-24には界面温度の最大値と界面せん断強度の関係を示す。インサート材を加熱した場合を除くと、界面温度の最大値の上昇に伴い、界面せん断強度も向上していることが分かる。また界面温度の上昇により、界面せん断強度を向上させるためには、ハイブリッド射出成形の成形条件としては、特にシリンダー温度を上昇させることが効果的であることが明らかになった。Carellaら[41]、Aurrekoetxeaら[42]、Candalら[43]の研究報告でも射出樹脂の温度上昇により接着強度の向上は報告されているが、射出樹脂温度の上昇が他の条件パラメーターの影響に比べて特別効果的という考察はなされていない。この違いは、本章ではインサート材が高い熱伝導性を有するCFを含有するため、射出樹脂の熱がより効果的にインサート材の表面に伝わることに起因していると考えられる。

一方でインサート材を加熱した場合、界面温度の上昇の効果を上回るほど高い界面せん断強度を発現した。過度なシリンダー温度の上昇は、図4-13からも示唆されるように樹脂の熱分解の懸念があるため、ハイブリッド射出成形における界面接着性の向上には、インサート材の加熱がもっとも有効な手段の1つであると示唆される。

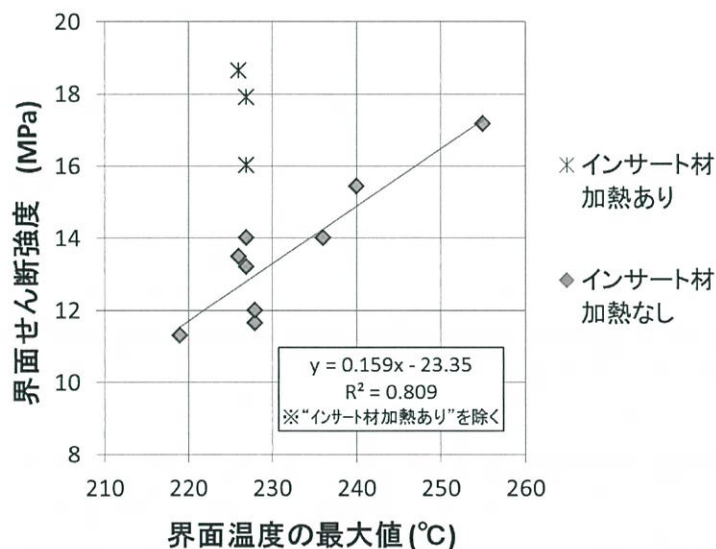


図4-24 界面温度の最大値と界面せん断強度の関係

4. 4 結言

ハイブリッド射出成形における成形条件がインサート材と射出材の界面接着性に及ぼす影響について調査した。結果、界面接着性の向上には、“①射出樹脂の温度上昇”、“②射出速度の上昇”、“③インサート材加熱”が効果的であることが明らかになった。本章では金型内にセンサーを取り付け、インサート材と射出樹脂の接着時の界面の温度・圧力を計測した。計測結果より、“①射出樹脂の温度上昇”、“②射出速度の上昇”による界面接着性の向上は、接着時の界面温度の上昇が支配的に影響を及ぼしており、一方で接着時の圧力は界面接着性への寄与は小さいことが明らかになった。また“③インサート材の加熱”による界面接着性の向上に関しては、射出時には既に加熱されたインサート材の温度は下がっており、加熱の有無による界面温度の変化は見られなかった。“③インサート材加熱”による界面接着性の向上は、加熱によりインサート材表面が荒れることによるアンカー効果で接着性が向上していることが示唆された。

第5章 プリプレグ端材の射出成形用材料としてのリサイクル化

5.1 緒言

第2章では強度と流動性を両立するスリット積層式スタンパブルシートのスリットパターンを提案したが、このスリット積層式スタンパブルシートはプリプレグの繊維方向が擬似等方になるように積層したものである。疑似等方積層の場合、例えば第2章と同様に $[0/45/90/-45]_s$ という積層構成をとると、準備するプリプレグの半数は図5-1のようにプリプレグを繊維方向に対して 45° 方向に切り出す必要がある。切り出しパターンを工夫することで、多少の歩留り改善はできるものの、少なからずプリプレグの端材は発生してしまう。第1章でも述べた通り、熱可塑性樹脂は熱分解温度未満では熱的に可逆性を有しているため、CFRTPにはリサイクル性が大いに期待されている。ガラス繊維により強化されたFRTPも含めると、FRTPを粉砕して二軸押出機で混練することで射出成形用のペレットとしてリサイクルする手法が往來研究にて検証されている[32-39]。

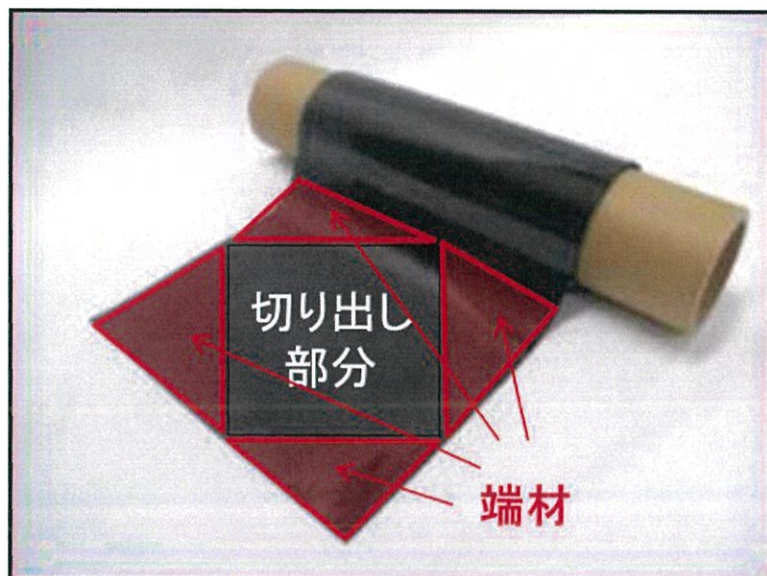


図5-1 プリプレグの繊維 45° 方向切り出しと端材

本章では、第2章で用いたCF/PPのプリプレグから生じた端材を原料として、二軸押出機による混練によりペレット化することで射出成形用の材料としてリサイクルすることを検討した。また加えて、第1章で述べた通り、押出機内での混練においてはスクリーンの形状が繊維長および分散性に大きく影響を及ぼすため、CF/PPプリプレグのリサイクルに好適なスクリーン構成について検証した。更には、本章で作製したリサイクル材料の特性を明らかにする目的で、既存の製法で作製されたバージン材料の繊維強化ペレットとの比較を行った。

5.2 実験方法

5.2.1 材料

プリプレグの端材として、三菱ケミカル社製のCF/PPプリプレグ、PPUD-31を用いた。これは第2章で用いたプリプレグと同様の原料・製法で製造されているが、目付のみが異なり、繊維目付が 75 g/m^2 、繊維体積含有率(Vf)が31vol%、厚みが $130 \mu\text{mm}$ のプリプレグである。プリプレグの端材と共混練してVf調整用の非強化のPP樹脂としては、日本ポリプロ製、商品名：ノバテックPP SA06GAを用いた。このPPの一般特性(カタログ値)を表5-1に示す。比較のための既存の製法で作製されたバージン材料として、短繊維強化および長繊維強化の材料を用いた。短繊維ペレット(SFP)として、三菱ケミカル製、商品名：パイロフィルペレット C-PP-10A、C-PP-20A、C-PP-30Aを用いた。それぞれ繊維質量含有率が、10wt%、20wt%、30wt%であり、繊維体積含有率はそれぞれ5vol%、11vol%、17vol%である。以後、それぞれSFP-5、SFP-11、SFP-17と称する。長繊維ペレット(LFP)として、三菱ケミカル製、商品名：パイロフィルペレット試作品 LFP-5、LFP-11、LFP-15を用いた。それぞれ繊維質量含有率が、10wt%、20wt%、27wt%であり、繊維体積含有率はそれぞれ5vol%、11vol%、15vol%である。以後、これらは単にLFP-5、LFP-11、LFP-15と称する。なお、原料の端材プリプレグおよび各ペレット材料は同グレートの炭素繊維(三

菱ケミカル製、商品名：パイロフィルトウ TR 50S15L) を用いている。また各材料のマトリックス樹脂はいずれもPP樹脂であり、その粘度もほぼ同じになるように調整したものを
用いている。

表5-1 ノバテックPP SA06GAの一般特性

項目	試験法	単位	数値
MFR	JIS K7210:1999	g/10min	60
密度	JIS K7212:1999	g/cm ³	0.90
曲げ強度	JIS K7171:1994	MPa	45
曲げ弾性率		GPa	1.7
引張降伏応力	JIS K7161,7162:1994	MPa	35
引張弾性率		GPa	1.7
引張破断呼び歪		%	100
シャルピー衝撃値 (23°C)	JIS K7111:1996	kJ/m ²	3.0
HDT (0.45MPa)	JIS K7191-1,2:1996	°C	100
ロックウェル硬度 (Rスケール)	JIS K7202-2:2001	—	100
光沢	JIS Z 8741:1997	%	90
HAZE (1mm)	JIS K7136:2000	%	80

5. 2. 2 リサイクルペレットの作製

プリプレグの端材は二軸押出機へ投入するために、オフィスシュレッダー (明光商会製、製品名：MSシュレッダー) を用いて3mm×10mmのサイズに裁断した。シュレッダーに掛ける際は、繊維方向をコントロールせずに、裁断した。なおプリプレグの端材を3mm幅の長尺の短冊状に裁断した際は、定量的に二軸押出機に投入できなかったため、3mm×10mmのサイズを選択した。裁断されたプリプレグは同方向噛み込みの図5-2の二軸押出機 (コペリオン社製、製品名：40D ZSK 18 MEGA lab) を用いて混練した。

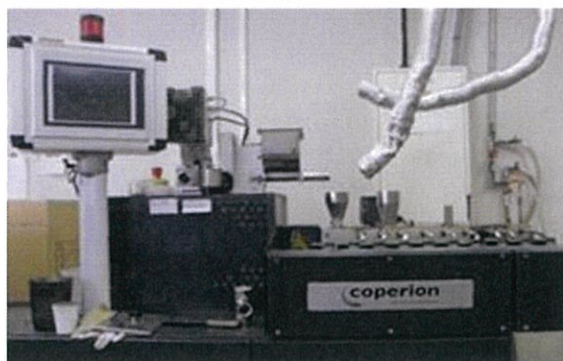


図5-2 二軸押出機

押し混練においては、図5-3の(A)および(B)に示す2パターンのスクリーエメント構成で比較検討を行った。スクリー(A)は、押し出し機内のポリマーへのせん断応力を相対的に低減させるフルフライトエメントのみから構成され、スクリー(B)はフルフライトエメントに加えて、ニーディングエメントおよびミキシングエメントを部分的に用いたものである。ニーディングエメントは押し出し機内のポリマーへのせん断応力を増加させ、ミキシングエメントは流体の分散性を向上させる機能を有する。スクリー(A)、(B)共にスクリー直径Dは18mmで、スクリー長さをLとした時のL/Dは40である。スクリー(A)を用いる際は、混練履歴を最低限に抑えるために押し出し機の出口から200mmの位置にあるベント口より裁断したプリプレグを投入した。一方、スクリー(B)を用いる際は、裁断したプリプレグはスクリーの根本に位置しているメインフィーダーより投入した。すなわち混練距離はスクリー長と同じ720mmである。押し出し機はスクリーに沿って10個の温度制御バレルを有し、表5-2(a) - (b)に示すようにフィード位置から押し出しダイに向けて160℃~200℃に設定した。なお押し出しダイ位置に相当する最後のバレルは175℃に設定した。スクリー回転数は120rpmで、直径3mmの円形のダイよりストランドを押し出して、ウォーターバスにて冷却固化させた後、このストランドを6mm長にカットしてペレットとした。作製したペレットは80℃雰囲気下で24時間乾燥させた。以後、本章において作製したこのリサイク

ル材料をリサイクルペレットと称する。

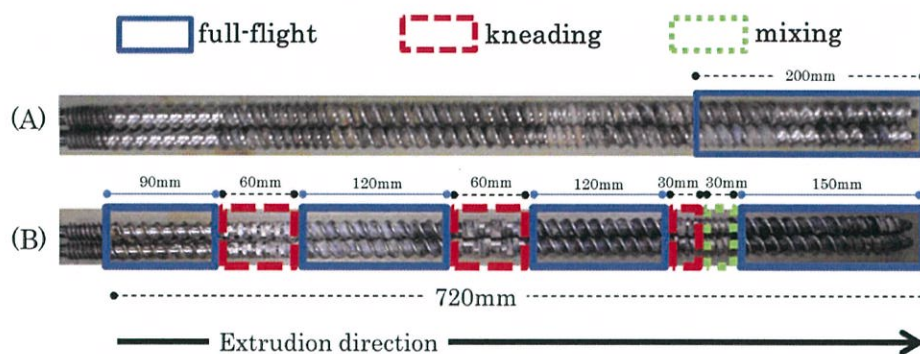


図 5 - 3 二軸スクリュウエレメントの構成

表 5 - 2 押出機のパレル温度

Condition	Screw	Temperature of barrel zone										
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	
(a)	A	160	160	160	160	160	160	160	160	180	200	175
(b)	B	160	180	200	200	200	200	200	200	200	200	175
(c)	A	160	200	200	200	200	200	160	180	200	175	

さらに、裁断したプリプレグと非強化のPP樹脂をコンパウンドして、繊維体積含有率(Vf)を低減させたリサイクル材料も作製した。この時の混練仕込み混合比とVfの理論値を表5-3に示す。なお、このVfを低減させた材料はスクリュウAを用いて、非強化のPPはメインフィーダーから投入し、裁断したプリプレグはベントロ口から投入した。この時のパレル設定温度は表5-2(c)とした。

表 5-3 混合比および理論 V f

Sample	Mixing ratio (weight)		Fiber volume fraction (vol%)
	prepreg	polypropylene	
A-31	100	0	31
B-31	100	0	31
A-25	85	15	25
A-18	66	34	18
A-12	45	55	12
A-5	20	80	5

5. 2. 3 射出成形試験片の作製

各種射出成形用のペレット(リサイクルペレットおよび比較用のバージン材の SFP、LFP)を原料として、東洋機械金属製の最大型締め力 36 kN のプラスチック射出成形機(製品名: TOYO 全電動型成形機 ET-40V)を用いて、ISO 20753:2008 に準拠した多目的ダンベル試験片を作製した。この時の射出成形機の成形条件は表 5-4 に示す。なお、以後、この射出成形試験片やその評価結果についても、リサイクルペレット、SFP、LFP と称することができる。

表 5-4 射出成形条件

Screw rotation speed (rpm)	100
Injection pressure (MPa)	150
Back pressure (MPa)	2.7
Holding pressure (MPa)	25
Cylinder temperature (°C)	200
Mold temperature (°C)	80
Injection speed (mm/s)	50
Holding time (s)	12
Cooling time (s)	12

5. 2. 4 流動性評価

射出成形時の流動性は、図5-4に示すスパイラルフロー金型を射出成形機に取り付けて、射出成形を行い、その時の成形品の長さを流動長として評価した。この時の金型内の流路は、半径6mmの半円状である。射出成形機および射出条件は、5. 2. 3項に記載の条件と同様にして行った。



図5-4 スパイラルフロー金型

5. 2. 5 繊維長測定

ペレットおよび射出成形後の試験片における繊維長は、下記手順で測定した。測定用の試料を電気マッフル炉（ヤマト科学製、製品名：マッフル炉KDF S70）を用いて、720℃で加熱して、試料中のマトリックス樹脂を焼き飛ばした。繊維を含む残渣を水中に分散させ、無作為に繊維を1000本を抽出し、光学顕微鏡（松電舎製、製品名：実体顕微鏡GR1040-65S3）およびデジタル画像解析ソフト（HULINKS製、製品名：シグマスキャンプロ5）を用いて、繊維長を測定した。測定した繊維長を L 、繊維数を N_i として、下記式（5-1）より重量平均繊維長 L_w を算出し、また下記式（5-2）より正規分布 $f(x)$ を作成した。なお、ここで σ は測定した繊維長の標準偏差である。

$$L_w = \frac{\sum N_i L^2}{\sum N_i L} \quad \cdot \quad \cdot \quad \cdot \quad \text{式 (5-1)}$$

$$f(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma^2}} \exp\left(-\frac{(L(x) - Lw)^2}{2\sigma^2}\right) \quad \cdot \quad \cdot \quad \cdot \quad \text{式 (5-2)}$$

5. 2. 6 機械物性評価

機械物性の評価として、3点曲げ試験、引張試験、ノッチ付きアイゾット衝撃試験を行った。試験片としては、5. 2. 3項に記載の射出成形試験片を用いた。3点曲げ試験および引張試験は、精密万能試験機（島津製作所製、商品名：オートグラフ AG-I 100kN）を用いて、それぞれISO 178:2001、ISO 527:2012に準拠して行った。いずれもクロスヘッドスピードは1mm/minとした。ノッチ付きアイゾット衝撃試験は、エネルギー容量5.5Jの振り子を付属したヨネクラMFG製の製品名：アイゾットテスターを用いて、ISO 180:1993に準拠して行った。3点曲げ試験、引張試験、ノッチ付きアイゾット衝撃試験は、いずれも試験数はn=10以上とし、それぞれその平均値を算出して評価結果とした。なお引張試験後の試験片は、その破断面をFE-SEM（日本電子製、製品名：ショットキー電界放出形走査電子顕微鏡 JSM7001FD）を用いて観察した。

5. 3 結果と考察

5. 3. 1 スクリュー構成の影響

リサイクル材料として作製したA-31およびB-31のリサイクルペレットの外観写真を図5-5に示す。作製したこれらのペレットは形状が不安定であることがわかり、特にA-31は樹脂に被覆されたCFがペレットから飛び出しており、より不安定なものであった。これは実験装置の都合上、押出機のダイスから押し出されたストランドがウォーターバスに浸かって冷却される前にスプリングバックすることにより、膨張してCFが露出したためである。工業的には水中でダイよりストランドを押し出すことで改善可能であるが、今回作製したペレット形状でも、

射出成形は可能であったため、本章の研究では、このペレット形状で評価を進めた。既存の S F P 製造方法としては、樹脂中に強化繊維を効果的に分散させるためにはそれ相当のせん断力を加えながら混練する必要があるとされているが、リサイクルペレット A-31 では極めて低いせん断力でも作製することができた。これは原料であるプリプレグ（端材）が既に十分に繊維中に樹脂が含浸していたため、二軸押出機内での混練で更に含浸させる必要がなかったためであると考えられる。この原料プリプレグを 6 枚積層して作製したコンポジットの断面観察写真を図 5-6 に示すが、プリプレグの層内にはボイドはなく、含浸性が良好であることがわかる。



図 5-5 リサイクルペレットの外観写真 (A) A-31、(B) B-31

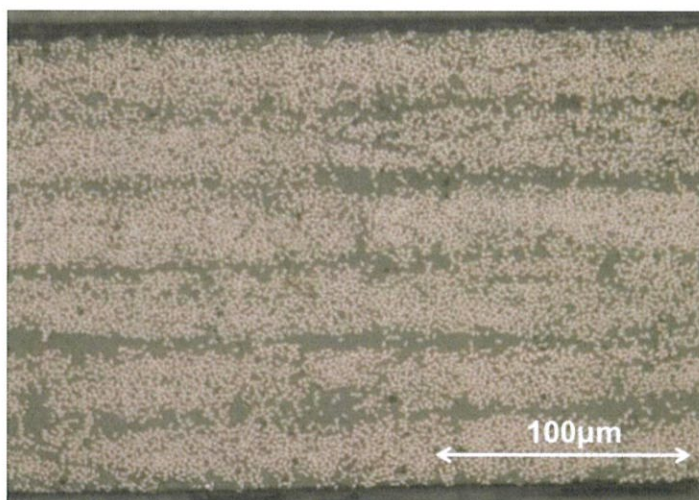


図 5-6 原料プリプレグの 6 枚積層体コンポジットの断面観察写真

A-31、B-31のペレットおよび射出成形試験片の繊維長分布を図5-7、そして重量平均繊維長 L_w と標準偏差 σ の値を表5-5に示す。ニーディングエレメントおよびミキシングエレメントを有するスクリー（B）を用いて作製したB-31よりも、フルフライトのみから構成されるスクリー（A）で作製したA-31の方が、より長い繊維が残っていることがわかる。往來研究同様に、低せん断下で混練した方が、繊維の折損が抑制され、より長い繊維長を保持できたと考える。しかしながら、射出成形試験片では繊維長に大きな差がなかった。これは、リサイクルペレットA-31は形状がより不安定であったため、射出成形における計量工程に時間を要してしまい、その間に、射出成形機のスクリーによって繊維が折損したと考えられる。図5-8に、A-31およびB-31の射出成形試験片の引張特性を示す。より繊維長が長いA-31の方がわずかに高い物性を示していることがわかる。ペレットの形状の不安定さは、ペレットの高い繊維含有率および長い繊維長に由来し、長い繊維はその分、ペレットからも飛び出しやすくなる。低せん断で混練することにより、ペレット中の繊維をより長い状態で残すことが可能であったが、高い機械物性を得るためには、射出成形後における繊維長をより長く残す必要がある。この射出成形後において長い繊維長を残すためには、ペレットの形状の安定化が重要であることが明らかになった。

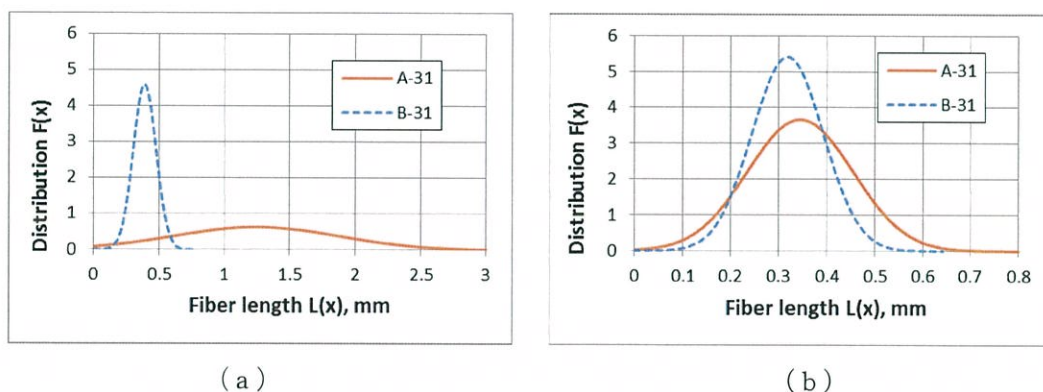


図5-7 繊維長分布 (a) ペレット、(b) 射出成形試験片

表 5-5 重量平均繊維長 L_w および標準偏差 σ

	A-31		B-31	
	pellet	injected specimen	pellet	injected specimen
L_w (mm)	1.248	0.344	0.389	0.319
σ (mm)	0.629	0.109	0.087	0.074

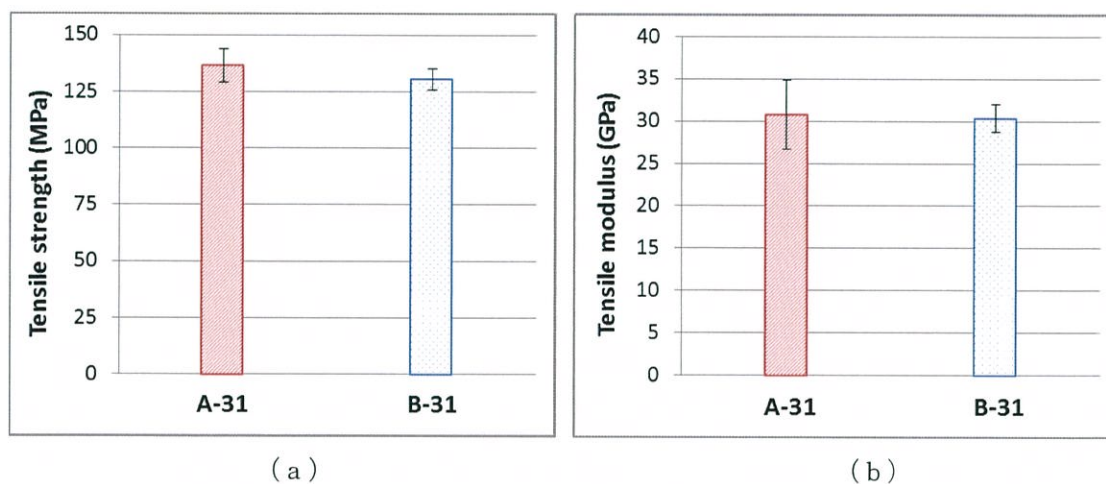


図 5-8 A-31 および B-31 の引張特性 (a) 強度、(b) 弾性率

5.3.2 CF含有量低減の影響

リサイクルペレット A-5、A-12、A-18、A-25、A-31 および既存の製法で作製されたバージン材料 (SFP および LFP) の写真を図 5-9 に示す。A-5、A-12、A-18、A-25 のリサイクルペレットは、裁断されたプリプレグに非強化の PP 樹脂を加えて、スクリー A を用いて混練することにより作製した。繊維含有率が低いほど、ペレットの形状は安定していることがわかる。

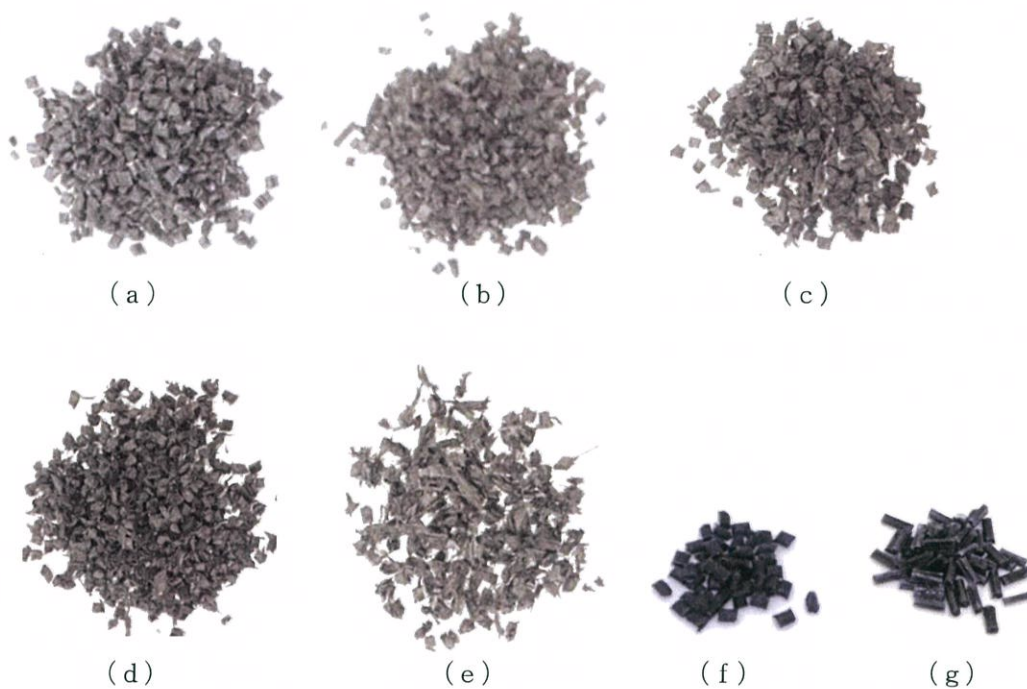


図5-9 リサイクルペレットおよびバージン材料の外観写真

(a) A-5、(b) A-12、(c) A-18、(d) A-25、(e) A-31
 (f) SFP ($V_f=17\text{vol}\%$)、(g) LFP ($V_f=17\text{vol}\%$)

図5-10にはこれらのペレットの重量平均繊維長 L_w の値を示す。なお、LFP中の繊維長はすべてペレット長と同じ6mmであるため、図中には記載していない。リサイクルペレットの繊維体積含有率が18%以下の場合において、特にペレットの形状が安定していた。これは繊維長が短いことにより、飛び出す繊維量も低減したためと考える。すわなち、非強化PP樹脂の添加量を増加することによって繊維体積含有率を低減させることは、ペレットの形状安定化に寄与することが示唆された。

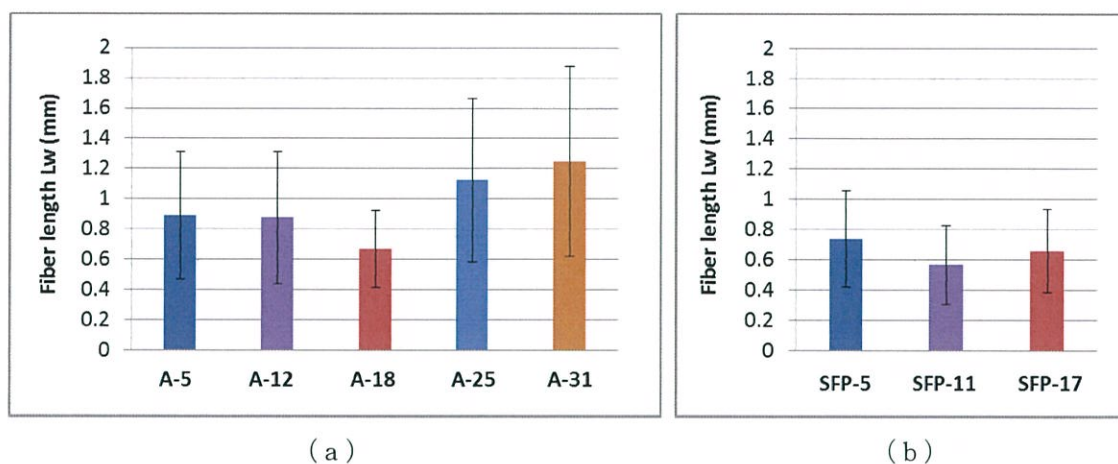
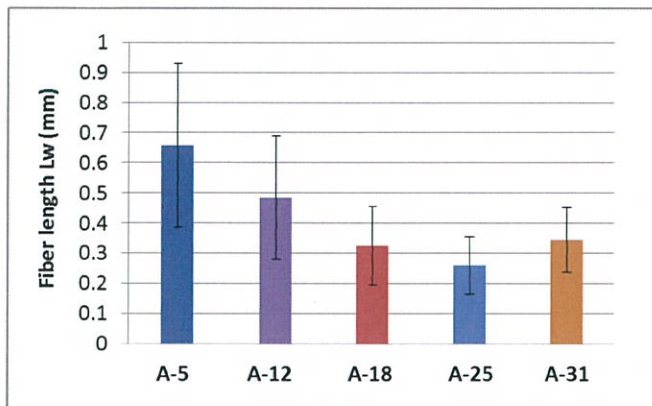
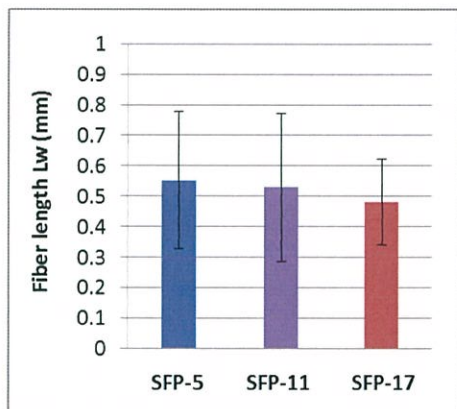


図5-10 リサイクルペレットおよびバージン材料の重量平均繊維長
(a) リサイクルペレット、(b) SFP

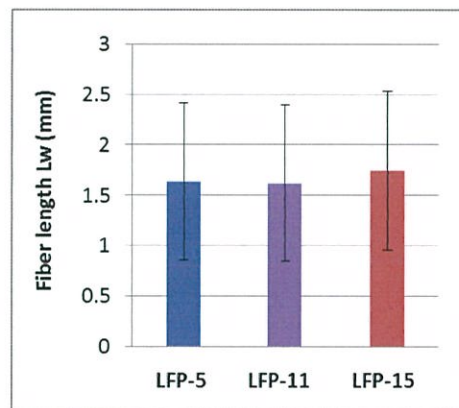
一方で、繊維体積含有率が低いA-5およびA-12は、繊維含有率が中程度のA-18に比べて、ペレット中の繊維長は長かった。これは添加した非強化のPP樹脂が押出機内において潤滑剤の様な役割を果たし、繊維折損を抑制したためと考えられる。図5-11には射出成形後の試験片における重量平均繊維長を、表5-6には射出成形前後の繊維長の差を示す。繊維体積含有率が低いリサイクルペレットほど、射出成形工程での繊維折損量が小さいことがわかる。繊維体積含有率が低いほど、ペレットの形状も安定しているため、射出成形における計量工程に要する時間が短くなったためと考えられる。図5-10より、本章のリサイクルペレットの繊維長は、バージンSFPよりも長い。形状の不安定さ故に射出工程で繊維が折損するため、射出成形後の試験片においては、繊維長にほとんど差はなくなったと考えられる。研究の次のステップとしては、ペレット形状の安定化させるため、リサイクル過程におけるペレタイズ工程を見直す必要があると考える。



(a)



(b)



(c)

図5-11 射出成形後の試験片における重量平均繊維長

(a) リサイクルペレット、(b) SFP、(c) LFP

表5-6 リサイクルペレットおよびバージン材料の重量平均繊維長

	A-5	A-12	A-18	A-25	A-31	SFP-5	SFP-11	SFP-17	LFP-5	LFP-11	LFP-15
before injection Lw (mm)	0.892	0.875	0.669	1.125	1.248	0.737	0.564	0.658	6.0	6.0	6.0
after injection Lw (mm)	0.656	0.484	0.326	0.259	0.344	0.552	0.529	0.481	1.635	1.620	1.741
breakage length ΔLw (mm)	0.235	0.391	0.343	0.865	0.903	0.185	0.035	0.177	4.365	4.380	4.259

5. 3. 3 流動性

射出成形によるスパイラルフローテストの流動長を図5-12に示す。リサイクルペレットおよび比較のバージン材料（SFP、LFP）、共に繊維含有率が高い程、流動長は短くなる傾向であった。これは繊維含有率の増加に伴い、材料の粘度が上昇したためである。リサイクルペレットでは、Vf 25 vol%から31 vol%で流動長が微増しているが、これは実験誤差によるものとする。これらの材料のマトリックス樹脂の粘度はほぼ同じになるように調整しているが、同じ繊維含有率で比較すると、流動性はSFP > リサイクルペレット > LFPの順に高くなった。LFPの流動性の低さは、その長い繊維長に起因している。リサイクルペレットとSFPの流動性の違いに関しては、リサイクルペレットは射出成形において、より多く繊維折損が起きており、射出のエネルギーはこの繊維を切断するエネルギーに使われたため、流動長が短くなったと考える。しかしながら、SFPとリサイクルペレットの流動性の差は僅かであり、本章のリサイクルペレットは、流動性の観点からは十分に射出成形に用いることが可能であることがわかった。

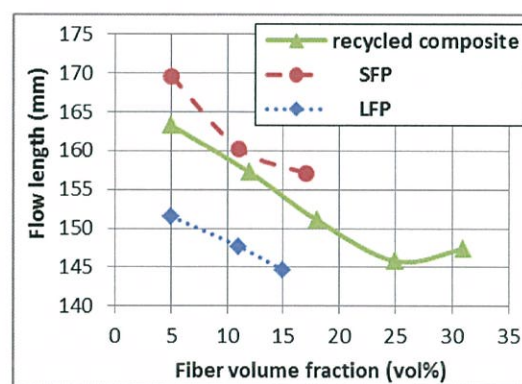
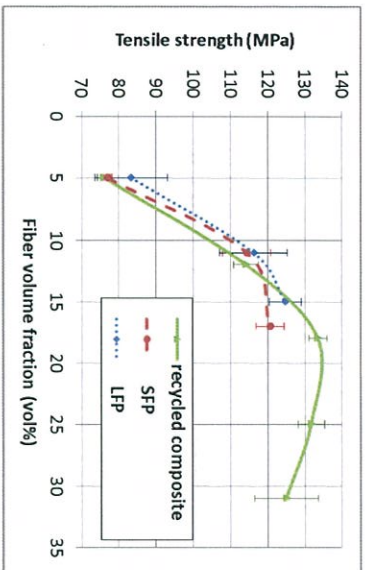


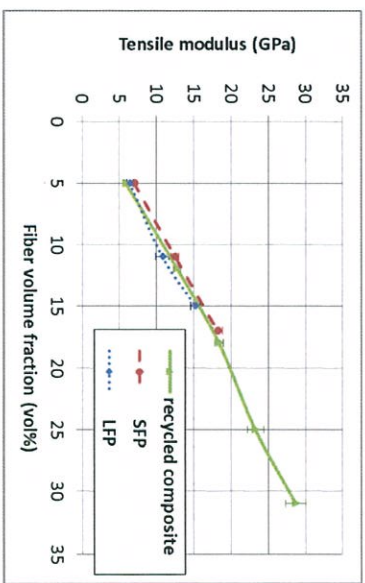
図5-12 スパイラルフローテストにおける流動長

5. 3. 4 機械特性

リサイクルペレットおよび比較用バージンペレット材料（SFP、LFP）を用いて射出成形したコンポジット試験片の引張特性を図5-13に、曲げ特性を図5-14に、衝撃特性を図5-15にそれぞれ示す。引張弾性率および曲げ弾性率に関しては、いずれの材料も繊維含有率の増加に伴い、向上していることがわかる。引張強度および曲げ強度に関しては、Vf17vol%以下では、繊維含有率の増加に伴い強度は向上している。しかしリサイクルペレットにおいてVf17vol%以上では、繊維含有率が増加しても強度はあまり向上しなくなり、とりわけVf25vol%以上では強度の低下が確認された。図5-16に、リサイクルペレットの引張試験後の試験片の破断面のSEM画像を示す。A-25およびA-31の試験片の破断面において、強化繊維の凝集が観察された。このことから、繊維の凝集による、応力集中および繊維と樹脂の界面量の低下が強度の低下を引き起こしたことが示唆された。加えて、図5-16の破断面における単繊維部分をデジタル拡大した写真を図5-17に示す。A-12およびA-18では繊維表面に樹脂の付着が観察され、繊維と樹脂は良好な接着性を有していたことが示唆される。一方で、A-25およびA-31では繊維表面への樹脂の付着量は極めて少ないことが分かり、このことから繊維凝集により強度低下を引き起こしたことが支持された。以上の結果から、機械物性の発現性の観点からは、繊維長よりも繊維の分散性が重要であることがわかった。

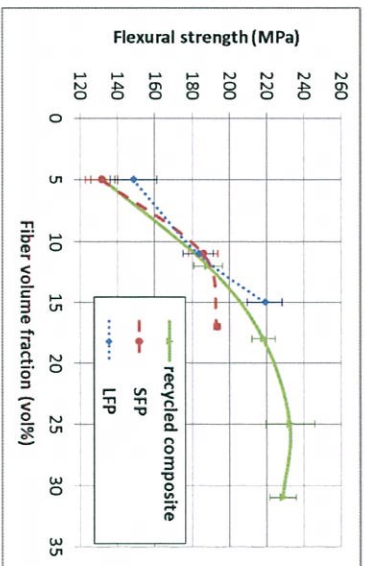


(a)

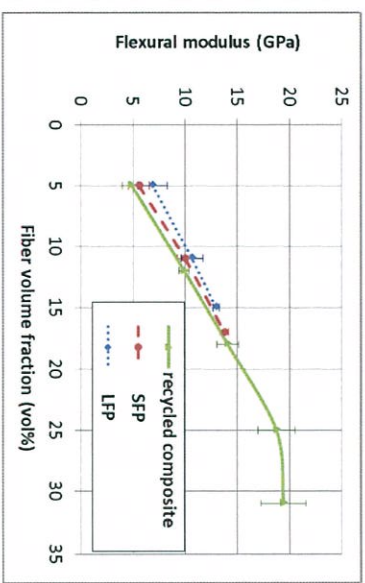


(b)

図 5-13 引張特性 (a) 引張強度、(b) 引張弾性率



(a)



(b)

図 5-14 曲げ特性 (a) 曲げ強度、(b) 曲げ弾性率

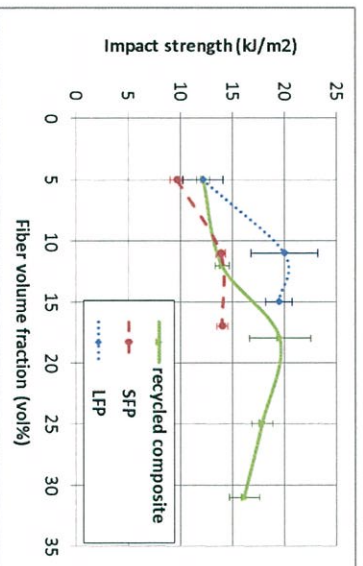


図 5-15 衝撃特性

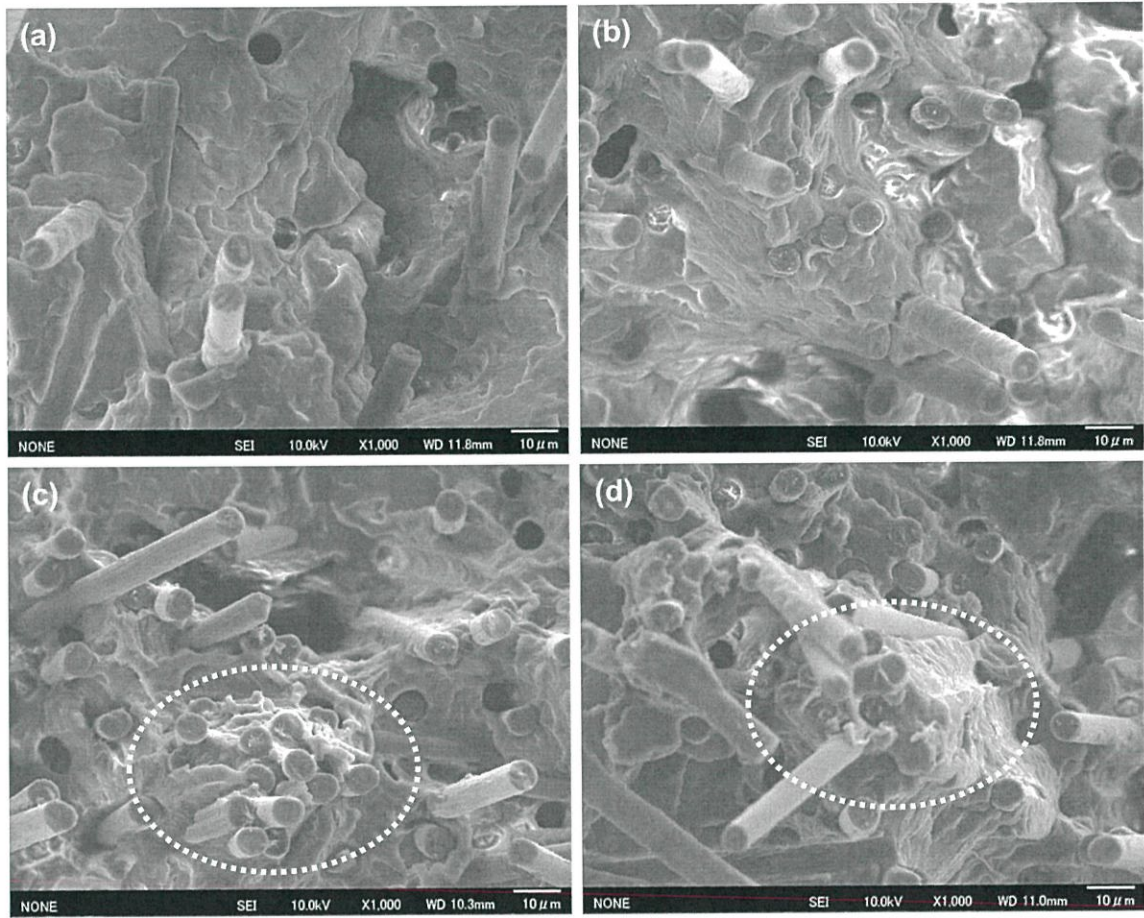


図5-16 引張試験後の破断面のSEM画像

(a) A-12、(b) A-18、(c) A-25、(d) A-31

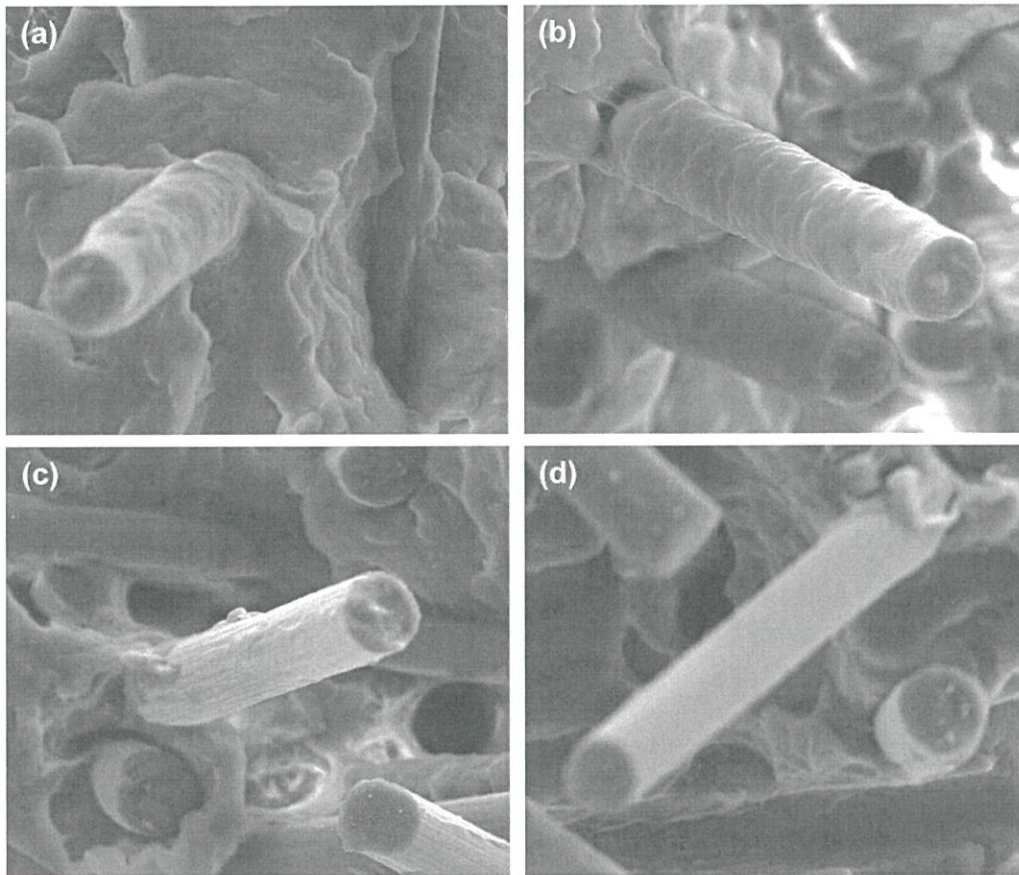


図5-17 引張試験後の破断面における単繊維のSEM画像
 (a) A-12、(b) A-18、(c) A-25、(d) A-31

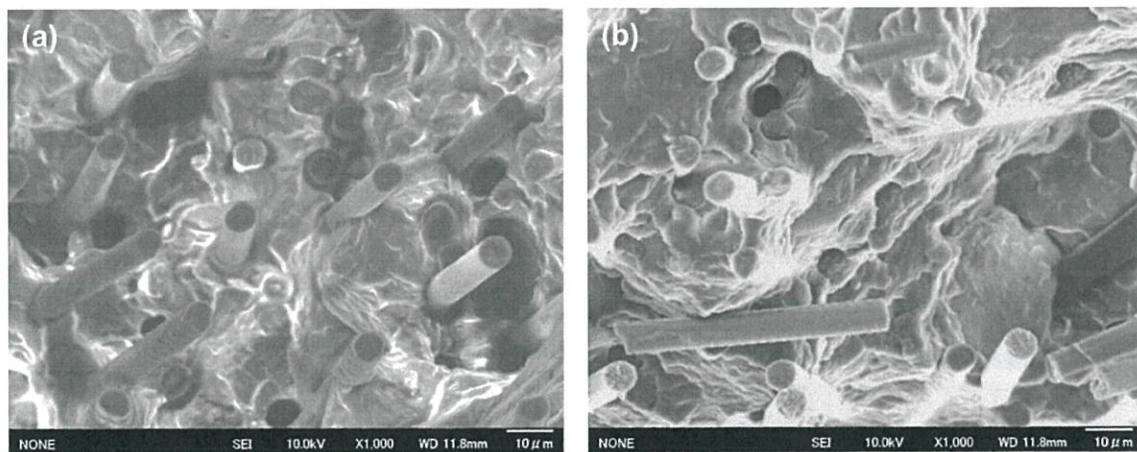


図5-18 比較材料における引張試験後の破断面SEM画像
 (a) SFP-17、(b) LFP-15

各材料間の違いに目を向けると、引張特性に関しては、実験誤差を上回るほどの差は見られなかった。曲げ弾性率に関しては、より長い繊維長を有する試験片ほど、高い弾性率を発現した。しかしながら、曲げ強度および衝撃強度に関しては、リサイクルペレットとSF Pにおいて、繊維長と強度に逆転が生じた。当然ながら、繊維長が長いほど、曲げ強度および衝撃強度が向上することは知られているが[48-49]、本章のリサイクルペレットは繊維長が短いにも関わらず、SF Pを上回る曲げ強度および衝撃強度を発現した。図5-18に比較用のバージン材料であるSF PおよびLF Pの引張試験後の判断面のSEM画像を示すが、同じ繊維含有率のリサイクルペレットと比較して、単繊維表面へのマトリックス樹脂の付着量が少なく、接着性に劣ることが分かる。このことから、リサイクルペレットはバージン材料よりも強化繊維とマトリックス樹脂の界面の接着性に優れることが示唆された。Steenkamerら[35]は含浸が不十分なプリプレグからリサイクル材を作製すると、強化繊維とマトリックス樹脂の界面接着性が不良になるといった結果を報告しており、本章リサイクルペレットでは、原料プリプレグの優れた含浸性が、強化繊維とマトリックス樹脂の優れた界面接着性に寄与したと考える。

産業的な観点からも、一般的に繊維強化プラスチックのリサイクル材はバージン材と比較して、機械特性が劣るケースが大半である。それは混練時に繊維が短くなるなど、リサイクル過程において繊維が損傷するためであると考えられている。しかしながら本研究におけるリサイクル材料は、適度な繊維長および良好な繊維の分散性を有するため、優れた機械物性を発現した。特に、リサイクル工程で樹脂を追加して繊維含有率を低下させた低繊維含有率品においては、顕著にバージン材と同等以上の機械特性を発現した。

5.4 結言

本章では、二軸押出機を用いてCFRTPプリプレグの端材を射出成形用の原料としてリサイクルするプロセスを提案した。さらに作製したリサイクル材料の特性を明らかにするため、バージン材の射出成形用材料であるSF PおよびLF Pとの物性比較を行った。その結果、以下の知

見が得られた。

- ・含浸性の優れるプリプレグを原料として用いれば、低せん断で混練しても射出成形用材料が製造可能であった。
- ・プリプレグの端材を非強化の樹脂と共混練し、繊維含有率を低減させて、射出成形として一般的に用いられる繊維含有率とすることで、比較用のバージン材射出成形材料と比較しても遜色のない流動特性および機械特性を発現した。
- ・本章におけるリサイクル材料は、原料プリプレグの含浸性の良さに起因して、強化繊維とマトリックス樹脂の優れた界面接着性が示唆された。

第6章 リサイクルペレットのハイブリッド射出成形への適用時における界面接着性

6. 1 緒言

第5章ではCFRTPプリプレグの端材を二軸押出機にて低せん断の条件で混練し、ペレット化して射出成形用の短繊維ペレットとしてリサイクルする手法を確立した。このリサイクル材料（リサイクルペレット）は、バージン材料の短繊維ペレットと比較して同等の機械特性および流動特性を発現する上、強化繊維とマトリックス樹脂の優れた界面接着性が示唆された。本章では、このリサイクルペレットをハイブリッド射出成形に適応するべく、リサイクルペレット使用によるハイブリッド射出成形品の界面接着特性への影響を調査し、またリサイクルペレット使用時における最適成形条件の把握を目的とする。さらには、このリサイクルペレットはプリプレグ積層体を作製する際に発生する端材を原料とするため、ハイブリッド射出成形において、プリプレグ積層体をインサート材とし、そのプリプレグの端材から作製したリサイクルペレットを射出材料に用いることは、ライフサイクルアセスメントの観点からも有用である。加えて、これらの材料から作製したハイブリッド射出成形品は実質的に単一材料から製造されたことになる。このインサート材と射出材の材料としての同一性が、ハイブリッド射出成形品の界面接着性に及ぼす影響についても調査することとした。

6. 2 実験方法（1）ーリサイクルペレットの界面接着性評価（バージン材料との比較）

6. 2. 1 材料

インサート材として、CFにPP樹脂が含浸したプリプレグ（三菱ケミカル製、製品名：PPUD-34-54A、繊維体積含有率34%、厚み110 μ m）を[0/90/0/90/0/90/0]sの構成で14ply積層後、200 $^{\circ}$ Cで加熱溶着して一体化した1.5mm厚のCFRTP板を用いた。なお、本章で用いたプリプレグは後述の比較用のバージン材料の短繊維ペレットのマトリックス樹脂と条件を合わせるため、PP樹脂は部分的に無水マレイン酸により変性されている。射出材料として、リサイクル材料とバージン材料の2種を用いて比較検討を行っ

た。リサイクル材料としては、インサート材に用いたプリプレグの端材を二軸押出機（コペリオン社製、製品名：40 ZSK 18 MEGA 1 a b）を用いて、前章5. 2. 2項の表5-2に記載の（a）条件で作製した、繊維体積含有率34%のCF/PP短繊維ペレットを用いた。以後、この材料をリサイクルペレット（Vf34）と称する。比較用のバージン材料として、上記CF/PPプリプレグ（PPUD-34-54A）に使用しているCFおよびPPと同グレードもの（いずれも三菱ケミカル製）を原料として、二軸押出機を用いて前章5. 2. 2項に記載の（b）条件で混練して作製した繊維体積含有率34%のCF/PP短繊維ペレットを用いた。以後、この材料をバージンペレット（Vf34）と称する。なおバージンペレット（Vf34）の作製においては、PPはメインフィーダーから投入し、CFは6mm長にカットしてサイドフィーダーから投入した。

6. 2. 2 ハイブリッド射出成形方法および成形条件

ハイブリッド射出成形機として、第4章で用いた昇降式IRヒーターを付属した最大型締め力78kNの東洋機械金属(株)製の全電動型成形機ET-80HR2を使用した。成形方法としても第4章と同様であり、具体的には、上下一対の金型の下金型キャビティー内にインサート材を配置した後、IRヒーターにて下金型キャビティー内のインサート材を加熱して樹脂を溶融させ、IRヒーターを取り除いて、型締めの後、金型内に射出成形にて溶融樹脂を供給してハイブリッド射出成形品を得た。なお本章では、IRヒーターによるインサート材の加熱終了から型締めまでの時間を12秒とした。25mm幅×200mm長×3.0mm厚の金型キャビティーに対し半分の厚み、すなわち5mm幅×200mm長×1.5mm厚のインサート材を金型内に配置させ、残りの1.5mm厚分のキャビティーに射出成形して25mm幅×200mm長×3.0mm厚のハイブリッド射出成形品を得た。産業的に行われているハイブリッド射出成形では、型締めによりインサート材を賦型するが、本研究のハイブリッド射出成形では、インサート部と射出部の界面の位置を明確する目的で、インサート材はキャビティー内部に配置され、型締めによるプレス圧が作用しない条件で行った。この時の成形条件を表6-1に示す。標準の射出条件（成形条

件：1-STD)を、シリンダー温度：240℃、保圧：70MPa、射出速度：100mm/secとして、ここではIRヒーターによるインサート材の加熱は行わず、シリンダー温度：220～280℃、保圧：50～100MPa、射出速度：50～200mm/secの範囲で各パラメーターを変更させて、その各条件パラメーターの影響を調査した。なおいずれも、金型温度は70℃、保圧保持時間は5秒とした。またインサート材の加熱条件として、加熱なし、表面温度150℃加熱、表面温度230℃加熱の3条件とした。上記条件にて、射出材料にリサイクルペレット(Vf34)およびバージンペレット(Vf34)を用いて、それぞれハイブリッド射出成形品を作製した。

表6-1 6.2項におけるハイブリッド射出成形条件

成形条件	シリンダー 温度 T_c (°C)	保圧 P_h (MPa)	射出速度 R_i (mm/s)	インサート材 加熱温度 T_h (°C)
1-STD	240	70	100	no heat
1-L- T_c	220	70	100	no heat
1-H- T_c	260	70	100	no heat
1-H2- T_c	280	70	100	no heat
1-L-Ph	240	50	100	no heat
1-H-Ph	240	100	100	no heat
1-L-Ri	240	70	50	no heat
1-H-Ri	240	70	200	no heat
1-150IR	240	70	100	150
1-230IR	240	70	100	230

6.2.3 界面接着性評価

第4章の4.2.3項に記載と同様の手法によって、ハイブリッド射出成形品の界面接着性を評価した。具体的には、作製したハイブリッド射出成形品より、図6-1に示す位置から湿式のダイヤモンドカッターを用いて6.3mm幅×25mm長×3.0mm厚の試験片を切り出した。同条件にて成形した2つのハイブリッド射出成形品から試験片は2つずつ切り出し、各条件における試験片数は4とした。切り出した試験片はASTM D2344に従い、インストロン製の万能試験機5565を用いてショートビームの3点曲げ試験を行った。5kNのロードセルを用い、試験速度1.27mm/min、支点間距離10mmとした。この時、試験片のインサート

材側が圧子側に、射出材側が支点側になるようにして試験を行った。試験時の荷重-変位曲線において、荷重が低下した点を破断荷重 P_m として、下記式 (6-1) よりせん断強度 τ_i を算出し、これを界面せん断強度 (接着強度) とした。

$$\tau_i = \frac{3P_m \left(1 - \frac{t}{h}\right) t}{bh^2} \quad \dots \text{式 (6-1)}$$

τ : せん断強度 (MPa)

P_m : 破断荷重 (N)

b : 試験片の幅 (mm)

h : 試験片の厚み (mm)

t : インサート材の厚み (mm)

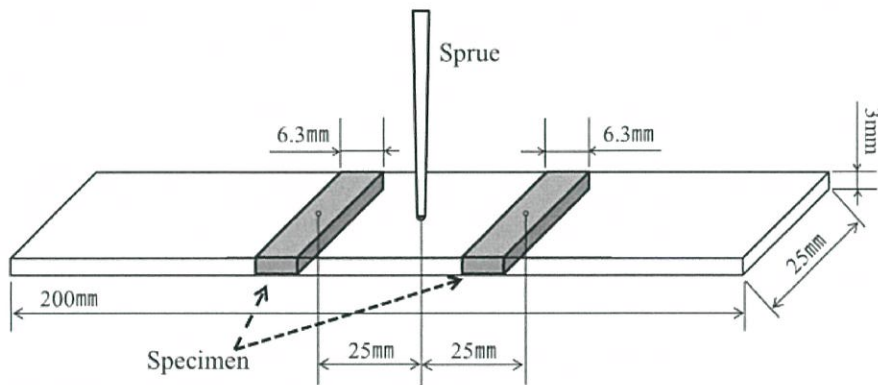


図6-1 6.2項におけるハイブリッド射出成形品および試験片の寸法

6.2.4 繊維長測定方法

界面せん断強度への繊維長の影響を確認するため、リサイクルペレット (Vf34) とバージンペレット (Vf34) の繊維長、およびそれぞれのペレットを用いて成形条件: 1-STDで

作製したハイブリッド射出成形品の射出部の繊維長を測定した。測定方法は以下の通りである。測定用の試料を電気マッフル炉（ヤマト科学製、製品名：マッフル炉KDF S70）を用いて、720℃で加熱して、試料中のマトリックス樹脂を焼き飛ばした。繊維を含む残渣を水中に分散させ、無作為に繊維を500本抽出し、光学顕微鏡（松電舎製、製品名：実体顕微鏡GR1040-65S3）およびデジタル画像解析ソフト（HULINKS製、製品名：シグマスキャンプロ5）を用いて、繊維長を測定した。測定した繊維長を*L*、繊維数を*N_i*として、下記式（6-2）より重量平均繊維長*L_w*を算出した。

$$L_w = \frac{\sum N_i L^2}{\sum N_i L} \quad \dots \text{式 (6-2)}$$

6. 2. 5 熱重量分析（TGA）の測定

射出成形時のシリンダー温度上昇による樹脂の熱分解の影響を調べるため、リサイクルペレット（Vf34）およびバージンペレット（Vf34）の熱重量減少率を島津製作所(株)製、示差熱・熱重量同時測定装置DTG-50Hを用いて測定した。測定条件として、空気雰囲気下、昇温速度10℃/分で測定した。

6. 2. 6 断面顕微鏡観察

インサート材加熱時におけるインサート材と射出材の界面状態を考察するため、断面観察を行った。作製したハイブリッド射出成形品をメタクリレート樹脂（(株)マルトー製、テクノビット4004）に包埋し、鏡面研磨後、キーエンス製のデジタルマイクロスコープVHX-5000を用いて倍率150倍でインサート材と射出樹脂の界面を観察した。

6. 3 実験方法（2）—同一のCF、樹脂による接着性向上の確認検証

6. 3. 1 材料

インサート材として、CF/PPプリプレグの積層構成を [0/90/0/90/0/90/0/90/0/90/0] の 11ply で 1.2mm 厚の CFRTP 板を用いた以外は、本章 6.2.1 項に記載のインサート材と同様に作製したものを用いた。射出材料としては、下記 3 種を用いて比較検討を行った。1 つ目は原料プリプレグをリサイクルすることで作製した CF/PP 短繊維強化ペレットとして、前章 5.2.2 項に記載の条件 (c) の条件および手法に従って、プリプレグの端材と、プリプレグのマトリックス樹脂と同グレードの PP 樹脂をコンパウンドすることにより作製した、繊維体積含有率 11% の CF/PP 短繊維強化ペレットを用いた。以後、この材料をインサート材と同グレードの CF および PP を用いているという意味で、リサイクル同種ペレット (Vf11) と称する。2 つ目は上記 CF/PP プリプレグに使用している CF および PP と同グレードのものを原料として作製したバージンの繊維体積含有率 11% の CF/PP 短繊維強化ペレット (三菱ケミカル製、製品名: パイロフィルペレット PP-C20A) を用いた。以後、この材料をバージン同種ペレット (Vf11) と称する。そして 3 つ目は上記材料に用いている CF および PP とは異なるグレードを原料として作製した繊維体積含有率 11% の CF/PP 短繊維強化ペレット (ダイセルポリマー製、製品名: ダイセル PP PMG 276) を用いた。以後、この材料をバージン異種ペレット (Vf11) と称する。

6.3.2 ハイブリッド射出成形方法

ハイブリッド射出成形機として、最大型締め力 39kN の東洋機械金属(株)製の全電動型成形機 ET-40V を使用した。金型のキャビティ寸法 70mm 幅×120mm 長×2.4mm 厚に対し、70mm 幅×120mm 長×1.2mm 厚のインサート材を金型内に配置して、型締めの後、射出材料を金型内に供給することにより、70mm 幅×120mm 長×2.4mm 厚のハイブリッド射出成形品を得た。この時の射出成形条件を表 6-2 に示すが、成形条件: 2-STD を標準射出条件として、シリンダー温度と保圧を変更し、界面接着性への影響を確認した。なお、ここでは IR ヒーターによるインサート材の加熱は行っていない。その他の条件については、6.2.2 項に記載のハイブリッド射出成形品の作製時の成形条件: 1-STD と同じとした。

表 6-2 6.3 項におけるハイブリッド射出成形条件

成形条件	シリンダー 温度 T_c (°C)	保圧 P_h (MPa)
2-STD	240	50
2-H- T_c	260	50
2-H2- T_c	280	50
2-L-Ph	240	10
2-H-Ph	240	30

6.3.3 界面接着性評価

作製したハイブリッド射出成形品より、図 6-2 に示す位置より 6.3 mm 幅 × 25 mm 長 × 2.4 mm 厚の試験片を切り出し、試験機として 500 N のロードセルを備え付けた島津製作所製オートグラフ AG-I を用いた以外は、6.2.3 項に記載の評価方法と同様にショートビーム 3 点曲げ試験を行うことで、界面せん断強度を評価した。

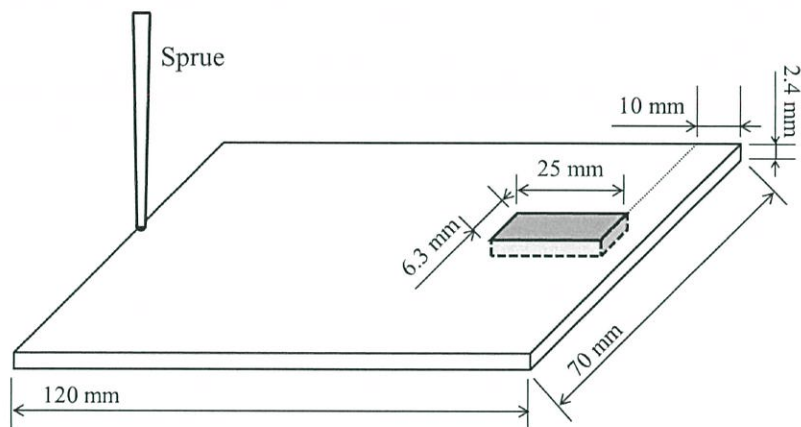


図 6-2 6.3 項におけるハイブリッド射出成形品および試験片の寸法

6.4 結果と考察

6.4.1 ショートビーム 3 点曲げ試験による界面せん断強度の評価

図 6-3 に成形条件：2-STD にて作製したハイブリッド射出成形品より切り出した試験片

のショートビーム3点曲げ試験結果の荷重－変位曲線を示す。この試験では328Nで荷重が低下したため、その後試験を終了した。目視では試験片表面に破壊は生じていなかったが、この荷重の低下がインサート材と射出材の界面剥離に起因するものであるかを確認するため、このショートビーム3点曲げ試験後の試験片を、X線CT装置（東陽テクニカ製、製品名：高分解能マイクロX線CTシステム SkyScan 1172、検出分解能：700nm）を用いて、界面部分を観察した。この観察画像を図6-4に示すが、インサート材と射出材の界面で剥離が生じていることが確認できた。しかしIRヒーターでインサート材を加熱した成形条件（1-150IRおよび1-230IR）の試験片では、ショートビーム3点曲げを行ったところ、いずれも試験片の射出材側の引張破断にて荷重が低下した。当初は界面接着強度の向上を期待したが、断面観察を行ったところ、図6-5に示す通り、IRヒーターで加熱した場合はインサート材の積層プリプレグの枚数が減っており、また加熱温度が高いほどその減少量も大きいことが確認された。これは加熱により溶融したプリプレグが射出樹脂の流れと共に試験片端部に流出してしまったためと考える。実際、ハイブリッド射出成形品の端部では、射出成形側の表面にもプリプレグ由来と思われるCFの連続繊維が存在していた。このことより、IRヒーターで加熱した場合の界面接着強度を評価することができなかったが、プリプレグ積層体をインサート材とする場合は、加熱によるプリプレグの流出に注意する必要があることが分かった。

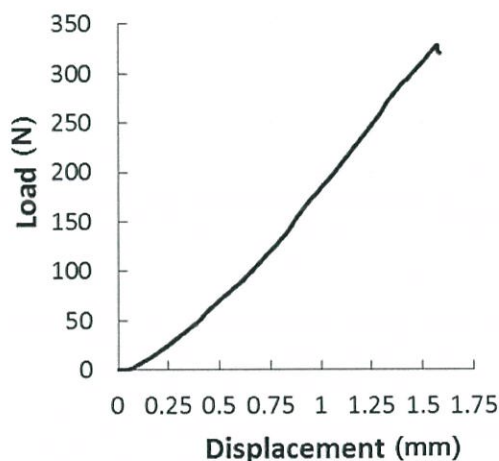


図6-3 荷重－変位曲線

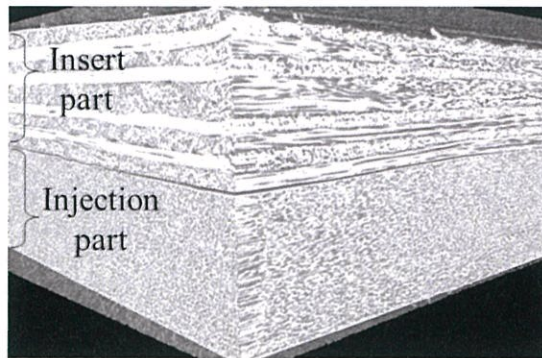


図6-4 試験後試験片のX線CT画像

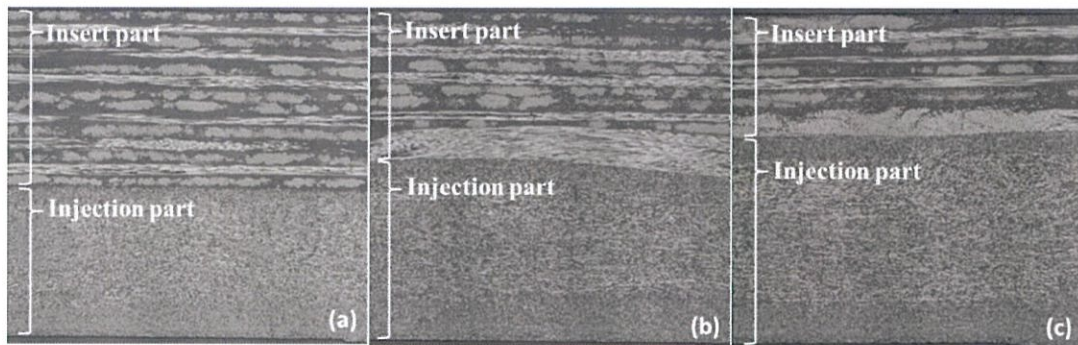


図6-5 断面観察写真

- (a) 加熱なし (成形条件: 1-STD)
- (b) 150°C加熱 (成形条件: 1-150IR)
- (c) 230°C加熱 (成形条件: 1-230IR)

その他の界面せん断強度を評価した全ての試験片において断面観察等による剥離確認は行っていないが、荷重が低下した際、目視で試験片の引張側および圧縮側の表面に破損が生じなかった場合は、せん断力により界面が剥離していると判断することとした。以上より、試験片が適切に成形できていれば、ショートビーム3点曲げ試験によるせん断強度の測定で、界面接着性の評価が可能であることを確認した。

6.4.2 リサイクル材料の界面接着性および成形条件の影響

リサイクルペレット（Vf34）およびバージンペレット（Vf34）を射出材料としたハイブリッド射出成形品のインサート部と射出部の界面せん断強度の評価結果を図6-6、6-7、6-8に示す。図中のエラーバーはバラつきの指標である標準偏差を示しているが、リサイクル材料とバージン材料で、この標準偏差を上回る差が見られた条件は、保圧が低い場合（成形条件：1-L-P h）およびシリンダー温度が最も高い場合（成形条件：1-H2-T c）のみであった。この2条件では、いずれもリサイクル材料はバージン材料と比較して界面接着性が劣る結果であった。保圧40MPa（成形条件：1-L-P h）では、リサイクルペレット（Vf34）を用いた場合のみ、樹脂が端部まで流動せず、成形品に欠けが生じていた。樹脂が必要量金型内に注入されていたため、接着性が低下したと考えられる。表6-3には、リサイクルペレット（Vf34）およびバージンペレット（Vf34）の射出成形前後の繊維長測定結果を示す。本研究で用いるリサイクル材料は低せん断な条件で混練して短繊維ペレットを作製するため、繊維長を長く保つことができているが、リサイクルペレット（Vf34）はこの長い繊維長が流動性の低下を引き起こしたと考える。なお流動性への影響以外の観点からは、繊維長が界面接着性に及ぼす影響は確認できなかった。

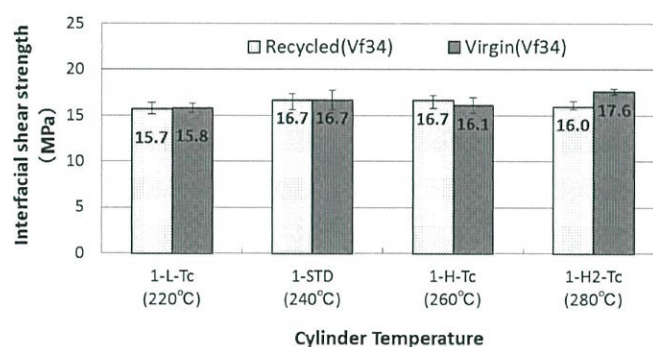


図6-6 リサイクル材料の界面せん断強度 —シリンダー温度の影響—

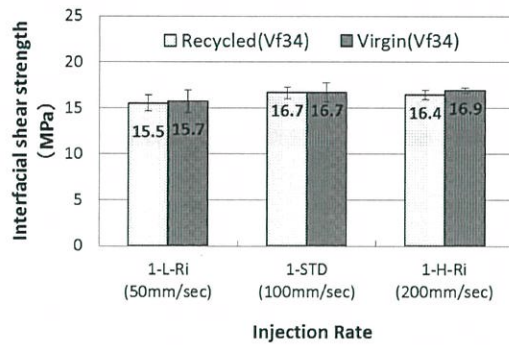


図6-7 リサイクル材料の界面せん断強度 —射出速度の影響—

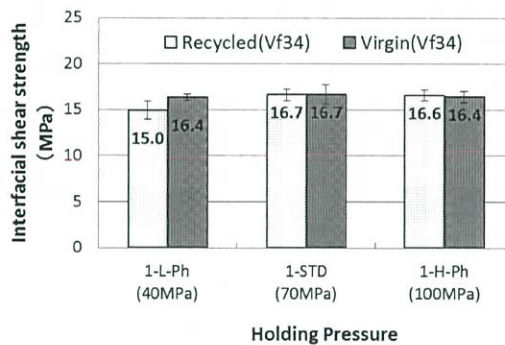


図6-8 リサイクル材料の界面せん断強度 —保圧の影響—

一方、シリンダー温度280℃（成形条件：1-H2-Tc）では、シリンダー温度240℃の標準条件（成形条件：STD）と比較して、バージンペレット（Vf34）を用いた際は接着性が向上し、文献 [40-42]においても射出成形する樹脂をより高温にすることで接着性が向上することが報告されているが、リサイクルペレット（Vf34）では接着性は若干低下した。図6-9にはリサイクルペレット（Vf34）およびバージンペレット（Vf34）のTGA測定結果を示す。TGA測定環境と射出成形機内での環境が異なるものの、リサイクルペレット（Vf

34)の方が熱分解しやすいことがわかり、280℃という成形温度では熱分解により界面接着性が低下したことが示唆された。これらの材料には同一グレードのCFおよびPPを用いているが、リサイクルペレット(Vf34)はプリプレグ製造時などの熱履歴によって部分的に熱劣化していると考えられ、その熱劣化に起因して、熱分解のしやすさを引き起こしていると考えられる。

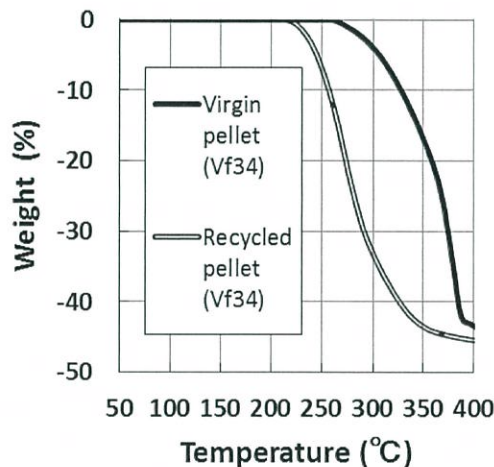


図6-9 重量減少曲線(1)

以上より、リサイクル材料用いる際は射出成形条件を最適化する必要があるが、適切な条件で成形すればバージン材料と同等の界面接着性を発現することを確認した。

6.4.3 同一のCF、樹脂による接着性向上の確認検証

リサイクル同種ペレット(Vf11)、バージン同種ペレット(Vf11)およびバージン異種ペレット(Vf11)を射出材料としたハイブリッド射出成形品のインサート部と射出部の界面せん断強度の評価結果を図6-10および図6-11に示す。標準の成形条件(2-STD)において、射出材にインサート材と同一のCF、PPから成るリサイクル同種ペレット(Vf11)およびバージン同種ペレット(Vf11)を用いた場合は、インサート材と異なるCF、PPか

ら構成されるバージン異種ペレット（V f 1 1）を用いた場合よりも、界面接着性は約10%優れることがわかった。なおシリンダー温度を上昇させた場合、リサイクル同種ペレット（V f 1 1）およびバージン異種ペレット（V f 1 1）に関しては界面接着性の向上は僅かであったが、バージン同種ペレット（V f 1 1）は大幅に接着性が向上した。図6-12にこれらの材料のTGA測定結果を示す。リサイクル同種ペレット（V f 1 1）は図6-9のリサイクルペレット（V f 3 4）と同様にプリプレグ製造時の熱履歴により熱分解しやすくなっていると考え、リサイクルして短繊維ペレットを製造する過程で、非強化のPP樹脂をコンパウンドしているために熱安定性が改善したと考えられる。図6-6に示す評価結果と異なり、この熱安定性の改善によって、シリンダー温度280℃（成形条件：2-H2-Tc）という高温でも、僅かながら接着性が向上したと考えられる。一方、バージン異種ペレット（V f 1 1）はバージン同種ペレット（V f 1 1）と同様にTGAの結果からは熱劣化は確認されなかったが、シリンダー温度を上昇させた際の界面接着性の向上はわずかであった。これらの結果より、インサート材と同一のCF、PPから成る射出材料を用いることにより、界面接着性が向上し、さらに射出樹脂の温度を上昇させることでその効果は顕著になることが示唆された。なお、V f 1 1の射出材料はV f 3 4の材料よりも流動性に優れるため、保圧が低い条件でも成形品に欠けが生じることはなく、保圧変更による接着性への影響に関して、明確な傾向は確認されなかった。

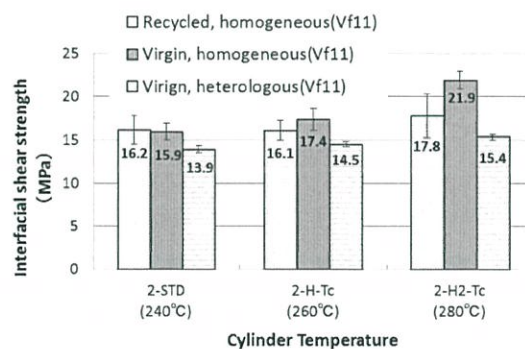


図6-10 同種材の界面せん断強度 —シリンダー温度の影響—

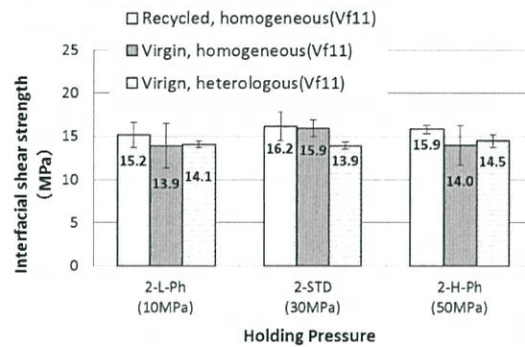


図6-11 同種材の界面せん断強度 —保圧の影響—

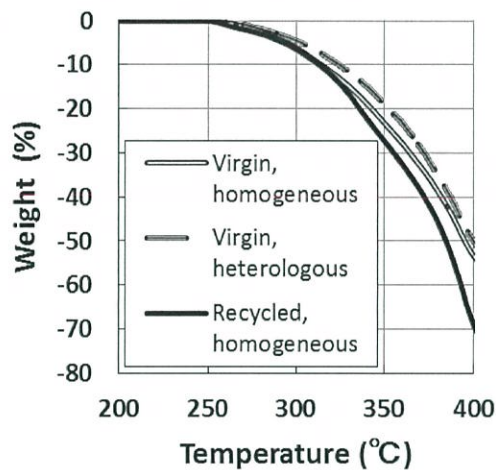


図6-12 重量減少曲線

6.5 結言

本研究では、プリプレグの端材をリサイクルして作製した短繊維強化ペレット（本研究のリサイクルペレット）を用いて、そのインサート材と射出材の界面特性への影響およびハイブリッド射出成形条件に対する依存性を、バージン材料との比較の観点から調査した。結果、以下の知見が得られた。

- ・本研究のリサイクルペレットは、本研究の成形条件における標準成形条件では、同グレードのCFおよび樹脂から成るバージン材料と比較して、ほぼ同等の接着性を発現することを確認した。
- ・本研究のリサイクルペレットは、熱劣化しやすいため高温での成形には不向きであり、また繊維長が長く、流動性は低下傾向にあるためハイブリッド射出成形品に欠けが生じた場合には界面接着性も低下する懸念がある。このため、成形条件を決定する際には注意が必要であることがわかった。
- ・本研究のリサイクルペレットは、インサート材の端材から作製することが可能であり、この材料としての“同一性”に起因して、異なるグレードの材料を用いた場合よりも界面接着性に優れることが示唆された。

なおこの材料の“同一性”に起因した優れた界面接着性は、そのメカニズムおよびCFと樹脂、どちらの“同一性”の寄与が大きいのかなどは明らかになっていない。従って、これらは今後の課題として、研究を進める必要がある。

第7章 結論

本研究は、ハイブリッド射出成形用の熱成形用材料（インサート材）および射出成形用材料それぞれに関して、材料開発を行うと共に、ハイブリッド射出成形品のインサート部と射出部の界面接着性に着目し、ハイブリッド射出成形の最適成形条件の把握を検討し、更にはCFRTPのリサイクル性にも着目し、ハイブリッド射出成形におけるリサイクル材の活用を検討したものである。以下に本論文について総括する。

第1章では、本研究の背景として、往來研究例およびハイブリッド射出成形の課題を述べ、研究の方針について説明した。

第2章では、スリット積層式スタンパブルシートにおけるスリット形状の影響を明らかにする目的で、材料にCF/PPのプリプレグを用いて、スリット形状を繊維長 L 、スリット投影長さ W_s 、スリット角度 θ のパラメーターに分けて、その各パラメーターの影響について検証した。作製した試験体はプレス成形および曲げ試験を行い、流動性および機械物性を評価した。更には、FEMを用いたCAE解析によるスリット積層式スタンパブルシートの解析モデルを提案し、物性予測および実測値との比較による検証を行った。その結果、以下のことが明らかになった。

- ・繊維長 L が短い程、流動性は高いが、繊維長12.5mmと25mmでは大きな差はなく、繊維長37.5mmでは大きく流動性が低下した。
- ・スリット投影長さ W_s が大きい程、流動性は高くなるが、その影響は繊維長の影響よりも小さいことがわかった。
- ・スリット角度 θ が大きい程、流動性が高くなり、特にスリット角度 30° 未満では大きく流動性が低下した。一方、スリット角度 45° 以上では、流動性への影響は小さいことがわかった。
- ・スリット投影長さ W_s は、曲げ強度・曲げ弾性率に対して、共に影響はほとんどないことが

わかった。

- ・繊維長 L が長い程、曲げ強度・曲げ弾性率は向上するが、その程度としては、曲げ強度に対しては顕著であるが、曲げ弾性率に対しての影響は小さいことがわかった。
- ・スリット角度 θ が小さい程、曲げ強度・曲げ弾性率が向上し、特にスリット角度 15° の時にはその影響が顕著であることがわかった。
- ・シェル要素で表したプリプレグをソリッド要素であるマトリックス樹脂中に自由に配置すること（メソモデル）で、スリット積層式スタンパブルシートをモデル化することが可能であることを確認した。
- ・計算結果は想定値を精度よく再現することができ、更にはスリット形状の違いによる破壊の進展を再現することができた。

第3章では、スリット積層式スタンパブルシートのスリットを施したプリプレグの枚数の割合が異なる材料をインサート材に用いてハイブリッド射出成形を行い、ハイブリッド射出成形品のインサート材の引張試験とリブ部をT字形状に加工した試験片を用いたリブ根元部の接合強度評価を行った。スリットを施したプリプレグの割合がその破壊機構に及ぼす影響を評価した結果、以下の知見が得られた。

- ・スリット入りプリプレグの積層枚数の割合が多いほどリブ入り込み高さが高くなった。
- ・ハイブリッド射出成形において、リブ長手方向とプリプレグ最外層のスリットの方向が平行に近い箇所、インサート材の一部がリブ部へ多く流入した。
- ・リブ入り込み高さが7.0 mm程度になるまでは、リブ入り込み高さが高くなるほど、界面で繊維がリブ深さ方向に配向し、接合強度が高くなった。
- ・スリット入りプリプレグの割合が50%であるS8-N8は、スリット入りプリプレグの高い流動性によりリブ部への入り込み高さが高く、高い接合強度を示すものの、インサート材の引張強度は、スリットがない材料と同等であり、本実験の条件内では、最適なスリット入りプリプレグの割合を有していた。

第4章では、ハイブリッド射出成形における成形条件がインサート材と射出材の界面接着性に及ぼす影響について調査した。さらには金型内にセンサーを取り付け、インサート材と射出樹脂の接着時の界面の温度・圧力を計測し、考察した。結果、以下の知見が得られた。

- ・界面接着性の向上には、“射出樹脂の温度上昇”、“射出速度の上昇”、“インサート材加熱”が効果的であることが明らかになった。
- ・“射出樹脂の温度上昇”および“射出速度の上昇”による界面接着性の向上は、接着時の界面温度の上昇が支配的に影響を及ぼしており、一方で接着時の圧力は界面接着性への寄与は小さいことが明らかになった。
- ・“インサート材の加熱”による界面接着性の向上に関しては、射出時には既に加熱されたインサート材の温度は下がっており、加熱の有無による界面温度の変化は見られなかったが、加熱によりインサート材表面が荒れることによるアンカー効果で接着性が向上していることが示唆された。

第5章では、二軸押出機を用いてCFRTPプリプレグの端材を射出成形用の原料としてリサイクルするプロセスを提案した。さらに作製したリサイクル材料の特性を明らかにするため、バージン材の射出成形用材料であるSFPおよびLFPとの物性比較を行った。その結果、以下の知見が得られた。

- ・含浸性の優れるプリプレグを原料として用いれば、低せん断で混練しても射出成形用材料が製造可能であった。
- ・非強化の樹脂をと共混練し、繊維含有率を低減させて、射出成形として一般的に用いられる繊維含有率とすることで、比較用のバージン材射出成形材料と比較しても遜色のない流動特性および機械特性を発現した。
- ・本章におけるリサイクル材料は、原料プリプレグの含浸性の良さに起因して、優れた強化繊維とマトリックス樹脂の界面接着性が示唆された。

第6章では、プリプレグの端材をリサイクルして作製した短繊維強化ペレット（本研究のリサイクルペレット）を用いて、そのインサート材と射出材の界面特性への影響およびハイブリッド射出成形条件に対する依存性を、バージン材料との比較の観点から調査した。結果、以下の知見が得られた。

- ・本研究のリサイクルペレットは、本研究の成形条件における標準成形条件では、同グレードのCFおよび樹脂から成るバージン材料と比較して、ほぼ同等の接着性を発現することを確認した。

- ・本研究のリサイクルペレットは、熱劣化しやすいため高温での成形には不向きであり、また繊維長が長い場合、流動性は低下傾向にあるためハイブリッド射出成形品に欠けが生じた場合には界面接着性も低下する懸念があるため、成形条件を決定する際には注意が必要であることがわかった。

- ・本研究のリサイクルペレットは、インサート材の端材から作製することが可能であり、この材料としての“同一性”に起因して、異なるグレードの材料を用いた場合よりも界面接着性に優れることが示唆された。

参考文献

- [1] “革新炭素繊維基盤技術開発の概要について”，経済産業省製造産業局繊維課，産業技術環境局研究開発課(2016)
- [2] “「サステナブルハイパーコンポジット技術の開発」成果報告書”，独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構(2013)
- [3] 高橋 淳，鶴澤 潔，松尾 剛，山根 正睦，“新しい炭素繊維強化プラスチック - 熱可塑性 CFRP の可能性”，未来材料, NTS inc., 13.1 (2013), 36-41.
- [4] 山根 正睦 編著，熱可塑性 CFRP 技術集 - 材料・成形・加工・リサイクル - ，サイエンス&テクノロジー(2015)
- [5] 有方 広洋，射出成形加工の不良対策，日刊工業新聞社(2003)
- [6] 土谷 敦岐，“炭素繊維強化ペレットの開発と材料特性・用途事例”，熱可塑性 CFRP 技術集, サイエンス&テクノロジー(2015), 148-156.
- [7] 藤浦 貴保，“天然長繊維強化熱可塑性生分解樹脂複合材料における成形プロセス最適化に関する研究”，同志社大学, 2014, 博士論文
- [8] 堺 大，“スタンピング成形用熱可塑性プリプレグとその成形”，プラスチック成形加工学会誌, 27, 3(2015), 85-88.
- [9] 土谷 敦岐，本間 雅登，佐々木 英晃，“プリプレグ、プリフォーム、成形品およびプリプレグの製造方法”，特許国際公開公報 WO2010/013645A, 2010-02-04
- [10] 東洋紡(株)，“高機能スタンパブルシート「クイックフォーム」技術資料”，(2002)
- [11] 林原 幹也，小野 修，北洞 俊明，“繊維強化熱可塑性樹脂シート及びその製造方法”，特開平 7-164439, 1995-06-27
- [12] 児玉 斎，今尾 正治，“プリプレグシート”，特開昭 58-201614 公報, 1983-11-24
- [13] 酒井 英男，中倉 敏行，岸 智，“繊維強化熱可塑性プラスチックの製造方法”，特開昭 63-247012 公報, 1988-10-13

- [14] IMF – International Monetary Fund, <http://www.imf.org/external/>, 2017年7月25日アクセス
- [15] 林 崇寛, “熱可塑性 CFRP の含浸性定量法及び高効率成形プロセスに関する検討”, 東京大学, 2016, 博士論文
- [16] 仲井 朝美, “複合材料実現のキーテクノロジーは成形加工にあり”, *プラスチック成形加工学会誌*, 27, 3(2015), 77.
- [17] 浅沼 信行, “CFRP 成形における直接射出成形法とハイブリッド成形システム”, *プラスチック成形加工学会誌*, 27, 3(2015), 89-93.
- [18] 下楠 菌 壮, 井上 玲, 田中 達也, 石川 健, “FRTP プリプレグシートを用いたハイブリッド射出成形システムの開発”, *第7回 自動車用途コンポジットシンポジウム 講演論文集*, GS-04, 2015, 11.
- [19] 酒井 英男, 中倉 敏行, 岸 智, “繊維強化熱可塑性プラスチックの製造方法”, 特開昭 63-267523 公報, 1988-11-04
- [20] I. Taketa, T. Okabe, A. Kitano, “A New Compression-Molding Approach Using Unidirectionally Arrayed Chopped Strands”, *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 39 (2008), 1884-1890.
- [21] I. Taketa, T. Okabe, A. Kitano, “Strength Improvement in Unidirectional Arrayed Chopped Strands with Interlaminar Toughening”, *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 40 (2009), 1174-1178.
- [22] I. Taketa, N. Sato, A. Kitano, T. Okabe, “Enhancement of Strength and Uniformity in Unidirectionally Arrayed Chopped Strands with Angles Slits”, *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 41 (2010), 1639-1646.
- [23] I. Taketa, T. Okabe, H. Matsutani, A. Kitano, “Flowability of Unidirectionally Arrayed Chopped Strands in Compression Molding”, *Composites Part B: Engineering*, 42 (2011), 1764-1769.

- [24] Pimenta Soraia, Silvestre T. Pinho, "Recycling carbon fibre reinforced polymers for structural applications Technology review and market outlook", *Waste Management*, 31, 2 (2011), 378-392.
- [25] Sun Hongfang, et al., "Recycling of carbon fibers from carbon fiber reinforced polymer using electrochemical method", *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 78 (2015), 10-17.
- [26] Jiang Long, et al., "Recycling carbon fiber composites using microwave irradiation: Reinforcement study of the recycled fiber in new composites", *Journal of Applied Polymer Science*, 132, 1, 41 (2015), DOI: 10.1002/APP.42658
- [27] Asmatulu Eylem, Janet Twomey, Michael Overcash, "Recycling of fiber-reinforced composites and direct structural composite recycling concept", *Journal of Composite Materials*, 48, 5 (2014), 593-608.
- [28] Ogi Keiji, et al., "Mechanical properties of ABS resin reinforced with recycled CFRP", *Advanced Composite Materials*, 16, 2 (2007), 181-194.
- [29] Pickering S. J., "Recycling technologies for thermoset composite materials—current status", *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 37, 8 (2006), 1206-1215.
- [30] Wong K. H., et al., "Effect of coupling agents on reinforcing potential of recycled carbon fibre for polypropylene composite", *Composites Science and Technology*, 72, 7 (2012), 835-844.
- [31] Schinner G., J. Brandt, H. Richter, "Recycling carbon-fiber-reinforced thermoplastic composites", *Journal of Thermoplastic Composite Materials*, 9, 3 (1996), 239-245.
- [32] Henshaw John M., et al., "Recycling of a cyclic thermoplastic composite material by injection and compression molding", *Journal of Thermoplastic Composite Materials*, 7, 1 (1994), 14-29.
- [33] Chu J., J. L. Sullivan, "Recyclability of a glass fiber poly (butylene terephthalate) composite", *Polymer Composites*, 17, 3 (1996), 523-531.

- [34] Chu, J., J. L. Sullivan, "Recyclability of a continuous E - glass fiber reinforced polycarbonate composite", *Polymer composites*, 17, 4 (1996), 556-567.
- [35] Steenkamer David A., John L. Sullivan, "On the recyclability of a cyclic thermoplastic composite material", *Composites Part B: Engineering*, 29, 6 (1998), 745-752.
- [36] Pedroso A. G., et al., "Properties that characterize the propagation of cracks of recycled glass fiber reinforced polyamide 6", *Polymer testing*, 18, 3 (1999), 211-215.
- [37] Thomason J. L., "The influence of fibre length and concentration on the properties of glass fibre reinforced polypropylene: 7. Interface strength and fibre strain in injection moulded long fibre PP at high fibre content", *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 38, 1 (2007), 210-216.
- [38] Inoue Akira, et al., "Effect of screw design on fiber breakage and dispersion in injection-molded long glass-fiber-reinforced polypropylene", *Journal of Composite Materials*, 49, 1 (2015), 75-84.
- [39] Ishikawa Takeshi, et al., "Flow patterns and mixing mechanisms in the screw mixing element of a co - rotating twin - screw extruder", *Polymer Engineering & Science*, 42, 5 (2002), 925-939.
- [40] Carella, A. R, Alonso, C., Merino, J. C., Pastor, J. M, "Sequential injection molding of thermoplastic polymers. Analysis of processing parameters for optimal bonding conditions", *Polymer Engineering and Science*, 42, 11 (2002), 2172-2181.
- [41] Aurrekoetxea, J., Castillo, G., Sarrionandia, M. A., Urrutibeascoa, I., "Failure of multimaterial fusion bonding interface generated during over - injection molding/thermoforming hybrid process", *Journal of Applied Polymer Science*, 102, 1 (2006), 261-265.
- [42] Candal, M. V., Gordillo, A., Santana, O. O., Sanchez, J. J., "Study of the adhesion strength on overmoulded plastic materials using the essential work of interfacial fracture

(EWIF) concept”, *Journal of Materials Science*, 43,15 (2008), 5052-5060.

[43] 大石 正樹, 大谷 章夫, 仲井 朝美, “ハイブリッド成形におけるプリプレグ加熱条件および射出樹脂温度と界面特性との関係”, *プラスチック成形加工学会誌*, 29, 4(2017), 135-141.

[44] Kitano, T., T. Kataoka, T. Shirota, “An empirical equation of the relative viscosity of polymer melts filled with various inorganic fillers.” *Rheologica Acta*, 20, 2 (1981), 207-209.

[45] Key Christopher T., Mark. R. Garnich, Andrew C. Hansen, “Progressive failure predictions for rib-stiffened panels based on multicontinuum technology”, *Composite Structures*, 65, 3 (2004), 357-366.

[46] Stickler P. B., M. Ramulu, “Investigation of mechanical behavior of transverse stitched T-joints with PR520 resin in flexure and tension”, *Composite structures*, 52, 3 (2001), 307-314.

[47] Tanaka, K., Y. Fujita, T. Katayama, “Press and injection hybrid molding of glass fiber reinforced thermoplastics”, *WIT transactions on engineering sciences*, 90, 7 (2015), 225-232.

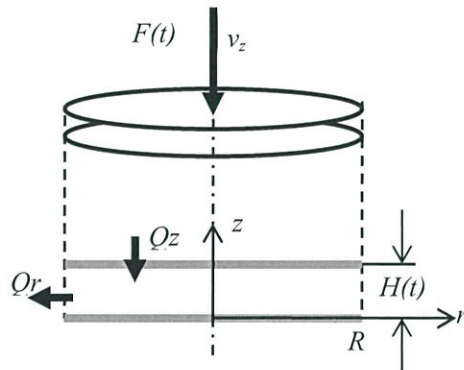
[48] Thomason J.L., Vlug M. A., Schipper G., “Influence of fibre length and concentration on the properties of glass fibre-reinforced polypropylene: Part 3. Strength and strain at failure”, *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 27, 11 (1996), 1075–1084.

[49] Thomason J.L., Vlug M. A., “Influence of fibre length and concentration on the properties of glass fibrereinforced polypropylene: 4. Impact properties”, *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 28, 3 (1997), 277–288.

Appendix 1

※本付録は三菱ケミカル(株) 石川健博士の報告書を引用したものである

プレス成形による樹脂の流動モデルは、化学工学の教科書 (R. B. Bird, W. E. Stewart, E. N. Lightfoot, "Transport Phenomena 2nd", John Wiley & Sons, Inc., p.110 (2002)) に記載のものを
用いた。



このモデルは軸対象のディスク形状を対象にしたものであり、2枚のプレートに挟まれた樹脂を速度 $v_z (=v_0)$ で押しつぶす際、流量の保存より、

$$\begin{aligned} Q_r &= Q_z \\ 2\pi R H \bar{v}_r &= \pi R^2 v_0 \\ \bar{v}_r &= \frac{R v_0}{2H} \quad (3C.1-1) \end{aligned}$$

また樹脂をニュートン流体と仮定することで v_r を二次式で近似し、 z 方向に積分すると Q_r は、

$$\begin{aligned} v_r &= Az(H-z) \\ Q_r &= 2\pi R \int_0^H v_r dz = \frac{1}{3} A \pi H^3 R \\ v_r &= \frac{3Rv_0}{H^3} z(H-z) \quad \ominus Q_r = Q_z \end{aligned}$$

よってせん断速度は、

$$\dot{\gamma} = \left. \frac{dv_r}{dz} \right|_{z=0} = \frac{3Rv_0}{H^2}$$

また教科書より、連続の式と運動方程式は下記の通り。

$$\text{continuity : } \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (rv_r) + \frac{\partial v_z}{\partial z} = 0 \quad (3C.1-6)$$

$$\text{motion } 0 = -\frac{dp}{dr} + \eta \frac{\partial^2 v_r}{\partial z^2} \quad (3C.1-7)$$

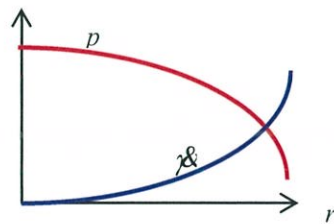
これらより半径方向の圧力分布を求めると、これも教科書より下記となる。

$$p = p_{atm} + \frac{3\eta v_0 R^2}{H^3} \left[1 - \left(\frac{r}{R} \right)^2 \right] \quad (3C.1-13)$$

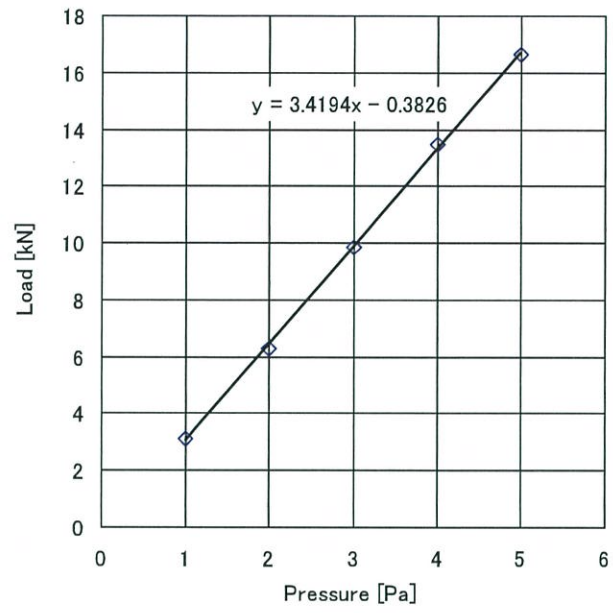
すなわち、プレス成形においては半径方向に対してせん断速度も圧力も一定ではなく、分布を持つことが解る。そのためここでは場所に依らず一定であるプレス力に着目する。

こちら教科書によると、プレス力 $F(t)$ は下記の通りである。

$$F(t) = \frac{3\pi\eta v_0 R^4}{2[H(t)]^3} \quad (3C.1-14)$$



つまり一定圧縮速度 v_0 でのプレス力は半径の4乗に比例し、厚みの3乗に反比例する。言い換えると、弱い力でプレスする場合は半径を小さく、厚みを厚くすることで、強いプレス力と同等の圧縮速度が得られることを示している。



謝辞

本論文は同志社大学理工学部 田中達也教授のご指導のもとに行った研究をまとめたものです。田中教授には本研究を遂行するにあたり、終始ご指導、ご鞭撻を賜りましたことを心から深く感謝申し上げます。

同志社大学理工学部 藤井透教授および徳島大学工学部 高木均教授には本論文を審査頂き、数々の有用なご助言を賜りましたこと、深く感謝申し上げます。

本研究を行うにあたり、同志社大学生命医科学部 田中和人教授、元同志社大学理工学部 荒尾与史彦助教（現・東京工業大学大学院理工学研究科）、東洋機械金属株式会社 井上玲氏および三菱ケミカル株式会社 石川健氏には多くのご助言ご指導を頂きました。ここに心より感謝申し上げます。

また本研究の遂行に多大なご協力を頂いた元同志社大学の学生の奥山賢人氏、川嶋正哉氏、寺田恭介氏、蔵野章太郎氏、原田雄大氏、糸川幸輝氏、塩出純也氏には心から感謝致します。

加えて、本研究に取り組むにあたり、三菱ケミカル株式会社の多くの方々のご協力賜り、また大変お世話になりました。厚くお礼申し上げます。

2018年4月

富岡 正雄