プリプレグのカット材を用いて成形した CF/PA6 プレス射出ハイブリッド成形品の機械的特性評価[†]

田中 和人* 十倉 大地** 片山 傳生*

石川 健*** 富岡 正雄***

Evaluation of Mechanical Property of Press and Injection Hybrid Molded CF/PA6 Using Cut Prepreg Sheets

by

Kazuto TANAKA*, Daichi TOKURA**, Tsutao KATAYAMA*,

Takeshi ISHIKAWA*** and Masao TOMIOKA***

In the hybrid molding of CFRTP, short or long fiber-reinforced thermoplastics, which compose rib and complicated structures, are injected on top of the continuous fiber-reinforced thermoplastics that are used for the outer shell material. In previous studies, it has been reported that fractures often occur at the interface between short or long fiber-reinforced thermoplastics of the rib structures and the continuous fiber-reinforced thermoplastic laminate of the outer shell structure. By applying cut prepreg having high formability to flow into their interface, improvement of the bond strength of the interface at the rib root portion can be expected. In this study, the press and injection hybrid molding was conducted by supplying cut prepregs to the continuous fiber-reinforced thermoplastic laminate of the outer shell structure, and T-shape specimens extracted from the rib root portion were evaluated by the tensile tests to clarify the effect of the penetration height of cut prepregs to the rib structures on the bond strength of the interface. Higher interfacial strength can be obtained when the reinforced fibers of the penetrated cut prepregs in the rib were oriented to the vertical direction to the interface.

Key words:

CFRTP, Carbon fiber reinforced thermoplastics, Press and injection hybrid molding, Rib structure, Bonded strength, Prepreg

1 緒 言

熱可塑性樹脂をマトリックスに用いた CFRTP (Carbon Fiber Reinforced Thermoplastics) は高比強度、高比剛性を有し、生産性、リサイクル性に優れるため、自動車の軽量化に貢献できるとして、その利用が期待されている^{1),2)}。繊維強化複合材料においては、繊維長や繊維含有率が成形品の機械的特性や成形性に大きく影響する³⁾。強化繊維に不連続繊維を用いる場合、短繊維や長繊維を用いる射出成形法やカット材のランダムシートを利用したプレス成形法が主な成形方法として利用される。射出成形は形状自由度が高い一方で、繊維と樹脂の混練による強化繊維の繊維折損や、成形時の強化繊維の流動により、繊維の分布ムラや配向ムラが必然的に生じてしまい、成形品の機械的特性は高いとは言えない^{4),5)}。カット材のランダムシートを用いたプレス成形は、射出成形法に比べ繊維長を保つことができることから高強度になり、連続繊維

に比べ流動性が大きく、形状自由度が高い特性など、短繊維あるいは長繊維と連続繊維との中間の特性を持つことから汎用性が高い⁶⁾。

一方で、連続繊維を強化材としたプリプレグや積層板は、機械的特性に優れるものの、成形性に限界があり^{7),8)}、シェル構造を有する部材などの簡単な形状の成形に限られており、リブやボス等の複雑形状を有する部材の成形は困難であった。そこで、リブ・ボスなどの複雑形状を有し、かつ強度・剛性に優れた FRTP を作製するために、近年、あらかじめ樹脂を含浸させた連続繊維強化熱可塑性樹脂基複合材料の積層板を加熱後、射出成形機の金型内に挿入後に射出成形を行うことでシェル構造部にあたる連続繊維強化積層板にリブ等を付与したハイブリッド成形部材の開発が進められてきた^{9),10)}。筆者等は引張試験を用いて、ハイブリッド成形品のシェル構造部であるガラス繊維とポリアミド 6 (PA6) の積層板と射出部との

[†] 原稿受理 平成28年2月8日 Received Feb.8, 2016

©2016 The Society of Materials Science, Japan

* 正 会 員 同志社大学 生命医科学部医工学科 〒610-0394 京田辺市多々羅都谷

Department of Biomedical Engineering, Doshisha University, Tataramiyakodani, Kyotanabe, 610-0394.

** 学生会員 同志社大学大学院 〒610-0394 京田辺市多々羅都谷

Department of Biomedical Engineering, Doshisha University, Tataramiyakodani, Kyotanabe, 610-0394.

*** 三菱レイヨン(株) 〒440-8601 豊橋市牛川通

Mitsubishi Rayon Co., Ltd. Ushikawadori, Toyohashi, 440-8601.

界面の接着強度を評価し、破壊が積層板と射出材の接合部で発生することを報告しており¹¹⁾、ハイブリッド成形法では界面の接着強度の向上が重要な課題であった。また、シェル構造部の素材である積層板連続繊維がリブ深さ方向に流入し、その流入した連続繊維部の流入高さが高いほど界面の接着強度が高くなることも報告している¹¹⁾。しかしここでは、リブ深さ方向に積層板の一部を流入させることにより接着強度の向上は見込めるものの、積層板の連続繊維がリブ深さ方向に流入するに従い、連続繊維にヨレが生じ、ヒケ等の成形品の外観不良や連続繊維積層板面内の機械的特性の低下が懸念される。つまり、シェル構造部の積層板の連続繊維を乱れさせず、接着強度を向上させるような工夫が必要とされていた。

カット材を用いたランダムシートは、成形性、機械的特性の両面において、短・長繊維と連続繊維の中間的な特性を有しており、連続繊維強化積層板と射出材の接合部に供給し、流動性の高いカット材をリブ深さ方向に大きく流入させることで、リブ根元部の界面の接着強度向上が期待できる。

そこで、本研究ではハイブリッド成形法を用いて、リブ根元部の積層板と射出部の接合部の強度向上を目的として接合部にプリプレグのカット材を供給した三層構造のハイブリッド成形品を成形すると共に、成形品のリブ部から切り出した T 字形状の試験片を用いて引張試験を実施し、ハイブリッド成形品のシェル構造部となる積層板における連続繊維のプリプレグのカット材の分量や板厚が積層板と射出部の界面の接着強度に及ぼす影響を明らかにした。

2 供試材と実験方法

2・1 供試材とシェル構造部の積層板の成形条件

熱可塑性樹脂複合材料の連続繊維強化積層板には、マトリクスとしてポリアミド 6 (PA6) を用いた CF/PA6 プリプレグ (UD プリプレグ, 三菱レイヨン, Vf48 %, 厚さ 0.12 mm) を用いた。このプリプレグを 160 mm×240 mm の寸法に切り出したものとこのプリプレグを繊維長 10 mm×横幅 3 mm の寸法に細かく裁断したカット材を用いた。なお、本研究では、プリプレグ端材のリサイクルを念頭に置いているため¹²⁾、端材をシュレッダーにより切断したカット材を用いた。また、射出成形用のペレットには PA6 樹脂単体 (1015B, 引張降伏強さ: 71MPa¹³⁾, 宇部興産) を用いた。

積層の概略図を Fig.1 に示す。ハイブリッド成形のシェル構造部には、Tables 1, 2, 3 に示すように、UD プリプレグシートだけを重ねたもの、および、UD プリプレグシートを重ねたものにプリプレグシートを裁断したカット材を積層したものを、金型温度 250 °C, 圧力 2.0 MPa, 成形温度保持時間 180 秒としてプレス成形した積層板を用いた。Table 1 に示した積層構成は、連続繊維のプリプレグシートの枚数を一定の 12 枚としており、追加したカット材の分量を、20 g, 40 g, 60 g, 80 g, 100 g, 120 g

Table 1 Laminate structure.

Specimen	The number of prepreg	The weight of cut prepreg (g)	The total weight of laminate (g)
L12-C0	12	0	120
L12-C20	12	20	140
L12-C40	12	40	160
L12-C60	12	60	180
L12-C80	12	80	200
L12-C100	12	100	220
L12-C120	12	120	240

Table 2 Laminate structure of 2mm specimens.

Specimen	The number of prepreg	The weight of cut prepreg (g)	The total weight of laminate (g)
L16-C0	16	0	160
L12-C40	12	40	160
L8-C80	8	80	160
L4-C120	4	120	160

Table 3 Laminate structure of 3mm specimens.

Specimen	The number of prepreg	The weight of cut prepreg (g)	The total weight of laminate (g)
L24-C0	24	0	240
L20-C40	20	40	240
L16-C80	16	80	240
L12-C120	12	120	240

Fig. 1 Laminate configuration of CFRTP.

の 6 種類とした。連続繊維のプリプレグの積層構成は [0/90]₆ とした。Table 2, 3 に示した積層条件は、それぞれ、積層板の板厚が 2 mm, 3 mm になるように、UD プリプレグシートとカット材の総量を一定とし、UD プリプレグシートとカット材の比率が異なるものである。積層構成は [0/90] とした。なお、積層板の名称は、連続繊維のプリプレグが 12 枚、カット材の分量が 20 g の場合、L12-C20 のように称することとする。

2・2 ハイブリッド成形方法

プレス射出ハイブリッド成形機 (佐藤鉄工所) の概略図を Fig. 2 に示す。ヒーターであらかじめ 270 °C まで加熱溶融させた連続繊維積層板を 100 °C の温度に保った金型内に挿入し、金型内でプレス成形を行った後に、熱可塑性樹脂を射出成形することで、Fig. 3 に示すようなリブ部を備えた複雑形状の成形品を作製した。

ハイブリッド成形中のシェル構造部の積層板の温度履歴を明らかにするため、Fig. 4 に示すように、積層板と射出材の接合部に相当する積層板の表面に k 型熱電対を取り付け、Table 2, 3 に示した板厚 2 mm および 3 mm の積層板を用いて温度履歴を測定した。2 mm 厚では L12-C40、3 mm 厚では L12-C120 の積層板を用いた。ヒーター (TH-5, LEIBROCK) により 270 °C になるまで加熱溶解させた積層板を 100 °C の金型内に設置し、PA6 の融点である 210 °C 以下になるまでの温度履歴を測定した。

ハイブリッド成形においては、シェル構造部の積層板の変形特性を明らかにするために、一部の材料 (L12-C40, L12-C80) に対してハイブリッド成形工程において射出成

形を行わずにプレス成形のみを行ったものを作製した。これにより、リブへの積層板の流入部が可視化できるため、リブ深さ方向に流入したカット材の繊維の状態をデジタルマイクロスコープ (VHX-5000, KEYENCE) を用いて観察をした。

2・3 リブ根元部 T 字形状試験片の引張試験による積層板と射出材の界面の接合強度評価

シェル構造部となる積層板と射出材の界面の接合強度を評価するために、ハイブリッド成形した成形品のリブ根元部から Fig. 5 左に示すような T 字形状に試験片を切り出し、Fig. 5 右に示すような治具を用いて、試験速度 1.7×10^{-5} m/sec で、万能精密試験機 (5566, Instron 社) を用いて引張試験を実施した。なお、T 字形状試験片の積層板部にはアルミニウム製のタブを、エポキシ系接着剤を用いて接着している。T 字形状試験片では、Fig. 6 に示すように、積層板の一部がリブ部に流入する。そこで、試験片ごとに流入面積を算出し、底面長さで除すことで平均入り込み高さを算出した。なお、リブには 1° の抜き勾配を設けているためリブの厚さがリブ高さによって異なる。そこで、それぞれの試験片における平均入り込み高さにおけるリブ厚さを算出し、平均入り込み高さにおける断面積を算出した。また、引張試験後の破面は、デジタルマイクロスコープ (VHX-5000, KEYENCE) を用いて観察し、試験片の内部観察には、X 線 CT の一種である高分解能 3DX 線頭微鏡 (nano3DX, リガク) を用いた。

Fig. 2 Schematic drawing of the press and injection hybrid molding process.

Fig. 3 Demonstrator manufactured by the press and injection hybrid molding.

Fig. 4 Temperature history of laminate.

Fig. 5 Schematic drawing of T shape specimen and tensile test.

3 実験結果および考察

3・1 温度履歴測定

各板厚の連続繊維積層板の温度履歴結果を Fig. 7 に示す。2 mm 厚の連続繊維積層板は急激に温度低下しているのに対して、3 mm 厚の連続繊維積層板は緩やかに温度が低下していることがわかる。シェル構造部となる積層板の板厚が厚くなることで、熱容量が増加し温度低下に違いがみられたと考えられる。

3・2 積層板と射出部接合強度に及ぼすカット材分量の影響

Table 1 に示した、L12-C40 と L12-C80 の積層板を用いて、射出成形を行わずにプレス成形のみを行った成形品の観察結果を Fig. 8 に示す。それぞれの拡大観察結果は写真中の矢印方向から観察した結果である。L12-C40 に比べてカット材の分量が多い L12-C80 では、リブに流入する量が多くなっている。カット材の分量が少ない条件である L12-C40 の成形品では強化繊維が隆起しているだけなのに対して、カット材の分量が 80 g である L12-C80 の試験片では強化繊維がリブ深さ方向に大きく立ち上がっていることが観察できる。

Table 1 の各条件の積層板を用いてハイブリッド成形を行った成形品のリブ根元部の断面図を Fig. 9 に示す。Fig. 8 に示した積層板だけのプレス成形結果と同様にカット材

Fig. 6 Schematic drawing of penetration height from surface layer.

Fig. 7 Temperature history of CF/PA6 laminates with 2.0 mm and 3.0 mm.

の分量が大きくなるに従い、リブ深さ方向に積層板の不連続繊維部の流入量が大きくなっていることが分かる。カット材が 20 g あるいは 40 g である L12-C20 と L12-C40

Fig. 8 Observation of fiber orientation.

Fig. 9 Magnified cross-sectional view of T shape tensile test specimen of each process parameter.

では、リブに入り込んだ積層板の一部は弓なりになっているだけであるのに対して、カット材が 60 g 以上である L12-C60, L12-C80, L12-C100, L12-C120 の成形品では強化繊維がリブ深さ方向に向かって配向していることが分かる。これはカット材の強化繊維がリブ深さ方向に流れ、繊維がともに流動したことが原因と考えられる。

次に L12-C40 の試験片と L12-C80 の試験片を高分解能 3DX 線頭微鏡で積層板と射出部の界面を観察した結果を Fig. 10 に示す。L12-C40 の試験片では強化繊維が界面に対して水平になっているが、L12-C80 の試験片では強化繊維がばらけ、繊維がリブ深さ方向（図中の上下方向）に立ち上がっている状態が確認できる。

リブ根元内部の繊維の様子を模式的に記載した図を Fig. 11 に示す。カット材の分量が少ない状態で成形した成形品は Fig. 11(a)のように不連続繊維が隆起する状態になるだけで繊維はリブに対して水平に配向している。しかし、カット材の分量が多くなると融解したカット材がリブ方向に流れ、カット材の繊維端面が深さ方向に配向することで、Fig. 11(b)のように積層板と射出部の界面に架

橋したと考えられる。また Fig. 11(c)に示すようにリブへの流入量が大きくなるとリブ根元からの流入量が増加するだけで、強化繊維端面が深さ方向に向いた状態は変わらないことが考えられる。

それぞれの条件において切り出した試験片の平均入り込み高さを Fig. 12 に示す。平均入り込み高さはカット材の分量が多いほど、高くなることが分かった。Table 1 の条件における T 字形試験片を用いたリブ部引張試験結果を Fig. 13 に示す。平均入り込み高さの値が 5.7 mm よりも大きくなる L12-C80, L12-C100, L12-C120 の条件では、

(a) CT bata of interface of L12-C40 specimen

(b) CT bata of interface of L12-C80 specimen

Fig. 10 X-ray CT images of T shape tensile test specimen with L12-C40 and L12-C80.

Fig. 11 Schematic drawing of rib structure.

Fig. 12 Penetrated height of T shape specimen of Table 1.

リブ部引張強度に差が見られなかった. それぞれの試験片における破面観察結果を Fig. 14 に示す. これらは, Fig. 14 の写真上にある図のように接合部近傍の破断部を上部から観察した結果である. 黒く見える部分が積層板のカット材であり, 白い部分は破断した射出材である. カッ

Fig. 13 Tensile bonding strength of T shape specimen of Table 1.

Fig. 14 Observation of fracture surfaces of T-shape specimen.

ト材の入り込み高さが低い L12-C20, L12-C40 では, Fig.9 に示したようにリブに入り込んだカット材は弓なりになっているだけであり, 繊維は荷重方向に対して主に垂直方向に配列しているため, 積層板とリブの接合部近傍の界面で破断し, 破面に多くのカット材が観察される. カット材の分量が増え, カット材のリブへの入り込みが多くなり, 入り込み高さが高くなれば, 徐々に繊維配向が荷重方向に沿い, カット材の繊維が強化材として働き, 接合部の引張強度が上昇し, 積層板とリブの接合部近傍ではなく, 射出材での破壊が支配的となる. このため破面で観察されるカット材の比率が低下している.

以上のことから, カット材の強化繊維がリブ方向に配向する高さまで, シェル構造部となる積層板のカット材の強化繊維をリブに流入させることにより, 接合強度が高くなることがわかる. なお, この高さは, リブの幅, 不連続繊維の繊維長などに大きく影響されると考えられるので, それぞれの寸法により最適値を求める必要がある.

3・3 積層板と射出部の界面接合強度に及ぼす積層板の板厚の影響

Table 2, 3 に示した厚さが 2 mm と 3 mm と異なる積層板を用いてハイブリッド成形した T 字形試験片の入り込み高さを Fig. 15 に示す. いずれの厚さにおいても積層板に対するカット材の割合が多くなるにつれ, 平均入り込み高さが高くなっていることが分かる. 各条件における T 字形試験片を用いたリブ部引張試験結果を Fig. 16 に示す. いずれの厚さにおいてもカット材が 80 g 以上では, 引張強度はカット材の量に関係なくそれぞれ一定の値となった. これらは, Fig. 15 に示した平均入り込み高さは 5.5 mm よりも高い値を示した. また, Table 1 に示した積層条件の結果である Fig. 12 と 13 においても, 平均入り込み高さが 5.7 mm 以上を示した試験片では引張強度に差が見られなかった. 前節に示したように, 本研究の条件下では, 平均入り込み高さが 5.7mm 程度になるとリブに入り込んだカット材の繊維がリブ深さ方向に配向する. 一方, カット材の分量が多いほどシェル構造部の面内の引張強度は小さくなるため, カット材は少ない方が望ましい. したがって, シェル構造部の高い機械的特性と射出材との高い界面接合強度を実現するためには, カット材の最適値が存在し, 本研究では 80 g が適当であることがわかる.

一方, カット材が 80 g である L8-C80 (板厚 2 mm) と L16-C80 (板厚 3 mm) の引張強度は, 42 MPa と 54 MPa であり, 積層板の厚さで引張強度に差が見られた. Fig. 7 に示したように, 3 mm 厚の成形品では PA6 の融点 210 °C 以下になるまでに 20 秒かかるのに対して 2 mm 厚の成形品では 8.4 秒である. また, ハイブリッド成形の成形工程において, 270 °C にプレヒートした積層板を金型に移動し, プレス成形を行い, 11 秒後に射出成形が開始され, 19 秒後に射出成形が完了する. 3 mm 厚の成形品では射出成形が完了するまで接合部の表面温度が融点以上を

保っていたのに対して、2 mm 厚の成形品では射出成形開始時に積層板表面が融点以下となっている。つまり、ハイブリッド成形において、ヒーターから積層板を取り出し射出成形が完了するまでの間、積層板が熔融状態となり高い温度を維持することで、射出成形された熱可塑性樹脂との界面での接合強度が高くなったと考えられ、温度コントロールが接合強度に大きく影響することが分かる。

4 結 言

本研究では、プレス射出ハイブリッド成形機を用いて連続繊維プリプレグと射出部の接合部に連続繊維プリプレグのカット材を供給した三層構造のハイブリッド成形品を作製した。この部材のリブ部の機械的特性の評価を行い、ハイブリッド成形品のシェル構造部となるプリプレグのカット材と連続繊維のプリプレグで成形した表面材の積層板のリブ深さ方向への流入がリブ部機械的特性に及ぼす影響を明らかにした。以下に得られた知見を示す。

1. プリプレグのカット材をプレス部と射出部の接合部に供給したプレス射出ハイブリッド成形品において、プレス成形により生じる不連続繊維部のプリプレグの強化繊維の繊維配向がリブ部の機械的特性に大きく影響し、不連続繊維がリブ方向に配向した場合に、リブ根元部にあたるプレス部と射出部の界面の接合強度が高くなることが分かった。
2. プリプレグのカット材をプレス部と射出部の接合部に供給したプレス射出ハイブリッド成形品において、成形時に生じる界面の温度が機械的特性に大きく影響し、連続繊維と不連続繊維の積層板の板厚が厚い場合、積層板が熔融状態となり高い温度を維持することで、射出成形された熱可塑性樹脂との界面での接合強度が高くなった。

参 考 文 献

- 1) E. Wadahara and A. Kitano, "Automotive lightweight structural elements of carbon fiber reinforced plastics", The Society of Materials Science Japan, Vol.64, No.9, pp.295-301 (2008).
- 2) "Composites penetration growth in Automotive: towards mass production 2010-2020 trends and forecasts", JEC composites, pp.13-22 (2011).
- 3) J. L. Thomason and M. A. Vlug, "Influence of fibre length and concentration on the properties of glass fibre-reinforced polypropylene: 4. Impact properties", Composites, Part A, pp.277-288 (1997).
- 4) T. Ogawa, M. Mima and N. Taya, "Change of fiber length in injection molding of carbon fiber reinforced nylon 66", Seikei-Kakou, Vol.7, No.5, pp.315-320 (1995).
- 5) S. Sakata, F. Ashida and R. Tanaka, "Hierarchical stochastic homogenization analysis of a short-fiber reinforced composite material considering a non-uniform microscopic random variation", Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers Series A, Vol.77, No.783, pp.1945-1955 (2011).
- 6) M. Yamane "Technical Collection of Carbon Fiber Reinforced Thermoplastics", Technical Collection of Carbon Fiber Reinforced Thermoplastics, pp. 34-42 (2016).
- 7) M. D. Wakeman, P. Blanchard and J.-A. E. Manson, "Void evolution during stamp-forming of thermoplastic composites", International Conference on Composite Materials (2005).
- 8) S. J. Medwin and E. J. Coyle "Thermoplastic composite parts manufacture at du pont", Society of Manufacturing Engineers, pp. 3-20 (1993).
- 9) J. Aurrekoetxea, G. Castillo, F. Cortes and M. A. Sarrionandia, "Failure of multimaterial fusion bonding interface generated during over-injection molding/thermoforming hybrid process", Journal of applied polymer science, Vol. 102, No. 1, pp. 261-265 (2006).
- 10) A. M. Harte and J. F. Mc Namara, "Overinjection of thermoplastic composites", Journal of materials processing technology, Vol. 182, No. 1-3, pp. 12-20 (2007).

Fig. 15 Penetrated height of T shape specimen of Table 2 and Table 3.

Fig. 16 Tensile bonding strength of T shape specimen of Table 2 and Table 3.

- 11) K.Tanaka K. Fujita and T. Katayama, “Press and injection hybrid molding of glass fiber reinforced thermoplastics” , WIT transactions on engineering sciences, Vol 90, No. 7, pp. 225-232 (2015).
- 12) Mitsubishi Rayon Co., Ltd. and Doshisha University, “Recycling method of fiber reinforced thermoplastics and molded products obtained by same”, JP 2015-77790 (P2015-77790A), (2015)
- 13) Technical data of UBE NYLON 1015B, UBE Industries Ltd.