GF/PP 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* 野口 隆一** 片山 傳生*

Evaluation of Mechanical Properties of Glass Fiber Reinforced Polypropylene Composites Made by Press and Injection Hybrid Molding

by

Kazuto TANAKA*, Ryuichi NOGUCHI** and Tsutao KATAYAMA*

In the press and injection hybrid molding of GF RTP, short or long fiber reinforced thermoplastics or thermoplastics are injected on the continuous fiber reinforced thermoplastics, which allows us to obtain light weight structures with excellent strength and stiffness. In previous studies, it has been reported that the interfacial bonding strength between laminates and ribs was improved by supplying fiber of laminates to the interface. Although the interfacial bonding strength of the hybrid molded product was improved, its fracture occurred at the injected material or the interface between laminates and ribs. In the case of the fracture at the injected material, it is expected to improve the interfacial bonding strength by using fiber reinforced thermoplastic with higher mechanical properties as injection material. For the injection molding, forming a V-shaped interface by moving the melted resin was reported to improve the weld strength. This technique can be applied to the press and injection hybrid molding and may improve the interfacial bonding strength. In this study, GF RTP were molded by press and injection hybrid molding under different injection volumes using PP and the short glass fiber reinforced thermoplastics and the effect of injection material and injection volumes on the interfacial bonding strength was clarified by the tensile tests using T-shaped specimens cut out from the molded products. When larger volume of the short fiber reinforced thermoplastics was injected, fracture occurred mostly at the injected material and higher interfacial bonding strength was obtained.

Key words:

Glass fiber reinforced thermoplastics, Press and injection hybrid molding,
Rib structure, Interfacial strength, Injected material, Injected volume

1 結 言

熱可塑性樹脂をマトリックスに用いた FRTP (Fiber Reinforced Thermoplastics) は高比強度・高比剛性を有し、リサイクル性に優れていることから、車体の軽量化に貢献できる金属代替材料としてその利用が期待されている¹⁾。炭素繊維を強化材とした CFRTP は、炭素繊維自体が高価であるため²⁾、量産自動車への適用は限定的であり、現実にはガラス繊維を用いた GF RTP の適用が進められると考えられる。

GF RTP の成形に従来から用いられる射出成形は、形状自由度に優れるものの、可塑混練過程での繊維折損を避けることは難しく、長繊維強化樹脂を用いたとしても、成形品内の繊維長には限界があり^{3),4)}、成形部材の機械的特性は高いとは言えない。一方で、連続繊維を強化材とした積層板は、機械的特性に優れるものの、一般的に用いられるプレス成形では成形性に限界があり^{5),6)}、リブ等の複雑な3次元形状を有する部材の成形は困難であった。

そこで近年、強度・剛性に優れた FRTP を作製するために、あらかじめ加熱を行い溶融させた連続繊維強化積層板を、射出成形機の金型内に設置しプレス成形すると同時に、射出成形によりリブを付与したハイブリッド成形法の開発が進められてきた⁷⁾。このようなハイブリッド成形品では、プレス部に相当する連続繊維強化積層板と、射出材の接合部での界面強度が低く、破壊は界面で起こることが報告されており⁸⁾⁻¹⁰⁾、接合強度の向上が重要な課題であった。これまで筆者等は、射出材に樹脂単体を用いたハイブリッド成形において、カット材や、連続繊維に切り込みを入れて流動性を向上させたスリット材を用いた積層板をプレス成形することにより、リブにプレス部の材料を流入させ、界面において強化繊維をリブ深さ方向に配向させることで、界面の引張接合強度を向上させる手法を開発してきた^{11),12)}。このような部材では、リブにプレス部の強化繊維が流入しない場合と比べて界面の引張接合強度は高くなるものの、破壊は界面および射出材で生じている。したがって、射出部での破壊に対しては、

† 原稿受理 平成29年2月10日 Received Feb. 10, 2017 ©2018 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.

射出材に短繊維強化樹脂を用いることにより、破壊強度の向上が期待できる。一方、界面の破壊に対しては、樹脂が合流して生じるウェルドが生じない成形方法を確立する必要がある。

射出成形において、樹脂の充填後に発生させた圧力差により、熔融状態を保持しているコア層の樹脂を再流動させ、V字型の界面を形成する「逆流現象」を用いて、ウェルド部以外での破壊を促進させることにより、ウェルドの強度を向上させる試みがなされている¹³⁾。この手法をプレス射出ハイブリッド成形に応用し、界面近傍の樹脂を流動させることで、界面ではなく射出材での破壊を支配的にすることで、さらなる接合強度の向上が期待できる。

そこで本研究では、連続繊維強化積層板をプレス成形するとともに、樹脂単体あるいは短繊維強化樹脂を、異なる

射出体積で射出成形することにより作製したハイブリッド成形部材において、リブ根本部のT字形試験片を用いた引張試験を実施し、積層板と射出材の接合強度を求めるとともに、射出材や射出体積が接合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

プレス部に使用する連続繊維強化積層板には、ガラス繊維の朱子織物にあらかじめポリプロピレン樹脂 (PP) が含浸している GF/PP 積層板 (TEPEX, 104-RG600, $V_f=47\%$, 厚さ 2 mm, Bond Laminates) を 160×240 (mm) の寸法に切り出して用いた。射出成形用材料には、PP 樹脂単体 (MA3, 日本ポリプロ) とガラス短繊維強化 PP 樹脂 ($V_f=13\%$, 日本ポリプロ) を用いた。

2・2 成形方法

プレス射出ハイブリッド成形の概略図を Fig. 1 に示す。ヒーター (TH-5, Leibrock) であらかじめ 230°C まで加熱溶解させた積層板をハイブリッド成形機 (佐藤鉄工) の金型 (上型温度: 65°C , 下型温度: 55°C) 内に設置し、10 MPa でプレス成形後、 210°C のシリンダー温度で射出成形しリブを付与することで、Fig. 2 に示すようなハイブリッド成形品を作製した。この金型では、図中の黒い部分が連続繊維強化積層板を設置してプレス成形したプレス部であり、Fig. 2 (b) に示すリブ側から見た図において白く見えている部分として、中央にリブが一本と外周部が存在し、その部分に射出材が供給されることになる。本研究では、Table 1 の上から四つの条件に示すように、樹脂単体あるいは短繊維強化樹脂を、異なる射出体積でハイブリッド成形した。成形条件の名称は、Table 1 に示すように、射出材に樹脂単体を用い、射出体積が $1.08 \times 10^{-4} \text{ m}^3$ の場合、PP-108 のように称することとする。

ハイブリッド成形において、射出成形時における積層板の変形挙動を明らかにするために、Table 1 の下から二つの条件に示すように、射出のタイミングを 60 s 遅延し、短繊維強化樹脂を射出体積 $1.16 \times 10^{-4} \text{ m}^3$ で射出成形したもの (GF-116-D60 と称する) と、PP の融点付近である金型温度 (上型温度: 160°C , 下型温度: 150°C) に保持して短繊維強化樹脂を射出体積 $1.16 \times 10^{-4} \text{ m}^3$ で射出成形したもの (GF-116-M150 と称する) を作製した。

ハイブリッド成形中の積層板のリブ部への流入部を可視化し、変形挙動を明らかにするために、射出成形を行わずに、金型 (上型温度: 65°C , 下型温度: 55°C) 内に設置した積層板のプレス成形 (プレス圧: 10 MPa) のみを行い、Fig. 3 に示すような成形品を作製した。なお、この成形品は、Pressed と称することとする。

本研究で射出材として使用した PP 樹脂単体とガラス短繊維強化 PP 樹脂の引張強度を評価するために、プレス成形を行わずに、樹脂単体あるいは短繊維強化樹脂を用いて射出成形 (上型温度: 65°C , 下型温度: 55°C , シリンダー温度: 210°C , 射出体積: $1.75 \times 10^{-4} \text{ m}^3$) のみを行っ

Fig. 1 Schematic drawing of press and injection hybrid molding.

(a) Laminate side (Press side) (b) Rib side (Injection side)

Fig. 2 Molded product manufactured by press and injection hybrid molding.

Table 1 Molding conditions of press and injection hybrid molding.

	Injection material	Injection volume [m ³]	Delay [s]	Mold Temperature [°C]
PP-108	PP	1.08×10^{-4}	-	Upper: 65 Lower: 55
PP-116	PP	1.16×10^{-4}	-	Upper: 65 Lower: 55
GF-108	GF/PP	1.08×10^{-4}	-	Upper: 65 Lower: 55
GF-116	GF/PP	1.16×10^{-4}	-	Upper: 65 Lower: 55
GF-116-D60	GF/PP	1.16×10^{-4}	60	Upper: 65 Lower: 55
GF-116-M150	GF/PP	1.16×10^{-4}	-	Upper: 160 Lower: 150

たものも作製した。これらの成形品は、それぞれ PP-In と GF-In と称することにする。

2・3 機械的特性評価方法

PP-In と GF-In のプレス部から、Fig. 4 に示すような短冊形状に試験片を切り出し、引張変位速度 1.7×10^{-5} m/s で、万能精密試験機 (5566, インストロン) を用いて引張試験を実施し、各射出材の引張強度を評価した。ここで、Table 2 に示すように、試験片の名称は、射出材に短繊維強化樹脂を用いた成形品から、リブに対して平行に切り出した場合、GF-In-0 のように称することとした。

ハイブリッド成形品のリブ部から Fig. 5 左下に示すような T 字形状に試験片を切り出し、Fig. 5 右下に示すような治具を用いて、引張変位速度 1.7×10^{-5} m/s で、万能精密試験機 (5566, インストロン) を用いて引張試験を実施し、界面の接合強度を評価した。なお、Fig. 5 左下に示すように、試験片の積層板上面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た。ここで、界面の接合強度は、引張試験により得られた最大荷重を破断部の断面積で除した値と定義した。

ハイブリッド成形においては、積層板がリブ部に流動するため、リブ深さ方向へ流入した積層板の高さを測定

Fig. 3 Molded product manufactured by press molding (Pressed).

Fig. 4 Schematic drawing of specimens of injected products.

Table 2 Conditions of specimens of injected products.

	Injected material	Specimen longitudinal direction against rib [°]
PP-In	PP	-
GF-In-0	GF/PP	0
GF-In-90	GF/PP	90

した。本研究では、Fig. 6 に示すように、試験片の両端で測定したリブ根元部の中央から界面までの高さの平均を、平均流入高さと定義した。

引張試験後の破面観察には、デジタルマイクロスコープ (VHX-5000, キーエンス) と走査型電子顕微鏡 (JSM-7500FD, 日本電子) を用いた。

3 実験結果および考察

3・1 射出材の引張強度

後述する T 字形状試験片の引張試験において、ハイブリッド成形の供試材として用いた射出材で破壊が生じる場合があるため、まず、Table 2 の条件で Fig. 4 のように切り出した短冊形状試験片に対して引張試験を実施した結果を Fig. 7 に示す。短繊維強化樹脂を用いた射出成形品

Fig. 5 Schematic drawing of T-shaped specimen and tensile test.

Fig. 6 Definition of penetration height of specimens.

Fig. 7 Results of tensile tests of injected products.
(N = 5, mean $\pm$ S. D.)

において, GF-In-90 の引張強度は, GF-In-0 と比較して高い値を示した. また, PP-In は, 射出材の引張強度のカタログ値 (35.0 MPa) と同程度の値を示した.

3・2 界面の接合強度に及ぼす射出材の影響

Pressed と GF-108 のリブ根元部の断面観察を Fig. 8 に, Pressed, GF-108 と PP-108 の平均流入高さを Fig. 9 に示す. Pressed では, 積層板の連続繊維と樹脂は, リブ深さ方向 (写真上方) ヘリブの中央部が先行する形 (凸型) で流入していた. 一方, GF-108 では, リブの両端に黒い積層板が存在しているものの, 中央部は比較的水平であり, その部分で射出部との界面を形成していた. なお, PP-108 も GF-108 と同様の界面形状であった. これらのことから, Fig. 10 に示すように, GF-108 や PP-108 では, Fig. 8 (a) の Pressed のようにプレス成形により流入していた積層板が, プレス後の射出成形により, 図中下方へ押し戻されたものと考えられる. なお, リブに接している両端は金型による冷却のために早期に固化したため, 押し戻されずに残ったものと考えられる.

PP-108 と GF-108 の T 字形状試験片の引張試験により求めた荷重変位曲線と, 界面の接合強度を Fig. 11 に示す. 射出材に短繊維が入っている GF-108 は, PP-108 に比べて高い接合強度を示した. き裂発生時と進展時の GF-108 の試験片を観察した結果を Fig. 12 に示す. これらは, Fig. 12 の上の図に示すように試験片の界面近傍を観察した結果である. 界面近傍で発生したき裂は, 界面および界面近傍の射出材中を荷重軸に対してほぼ垂直に進展した. な

Fig. 8 Magnified cross-section view of specimens at rib root of pressed and GF-108.

Fig. 9 Penetration height of specimens of Pressed, PP-108 and GF-108. (N = 5, mean $\pm$ S. D.)

Fig. 10 Interface forming of GF-108.

(a) Load-displacement curve

(b) Interfacial tensile strength (N = 5, mean $\pm$ S. D.)

Fig. 11 Results of T-shaped tensile tests of PP-108 and GF-108.

(a) Initiation of crack (Displacement = 0.9 mm) (b) Propagation of crack (Displacement = 0.9 mm)

Fig. 12 Observation of specimens during T-shaped tensile tests of GF-108.

お, PP-108 も GF-108 と同様に界面近傍でき裂が生じ, 水平方向へ進展していた. GF-108 の試験片の破断部を側面から観察した結果と破面の観察結果を Fig. 13 (それぞれ観察方向は図の上に記載) に示す. 破面には一部射出材が残っており, 破壊は界面と射出材で生じ, 界面での破壊が支配的であることがわかる. なお図は省略するが, PP-108 も GF-108 と同様の破壊形態を示した. 山口等は, 射出成形により異種材料の接合を行うとともに, 成形品の接合強度を評価しており, 母材で破壊する場合, 引張強度により優れる母材を用いると高い接合強度を示すことを報告している¹⁴⁾. 本研究においても, 同様の傾向を示し, 射出材に引張強度の高い短繊維強化樹脂を用いた場合, 樹脂単体を用いた場合と比較して高い接合強度を示した.

3・3 界面の接合強度に及ぼす射出体積の影響

GF-116 と GF-116-D60, GF-116-M150 の各試験片のリブ根元部の断面観察結果を Fig. 14 に, これらの試験片の平均流入高さと Fig. 9 に示した結果をあわせて Fig. 15 に示す. また, Fig. 14 の界面の位置を模式的に示した図を Fig. 16 に示す. GF-116 の界面は, リブ根元方向へリブの中央部がへこんだ形(凹型)で形成されており, GF-116 の平均流入高さは, Pressed や GF-108 と比較して低い値を示した. 射出体積を大きくした GF-116 では, 小さい場合 (GF-108) と比較して, リブ部へ流入した積層板をより下方へ押し戻しており, 流動の程度はリブの中央部に近づくにつれて大きくなっている. 射出のタイミングを 60 s 遅延した GF-116-D60 では, GF-116 のように射出体積を大きくしても, 凸型に界面が形成されており, 平均流入高さも Pressed と同程度であった. 60 s 遅延させることで流入した積層板が固化したため, 射出成形では押し戻されなかったと考えられる. PP の融点温度付近に保持した金型で成形した GF-116-M150 の場合, 積層板が本来存在するプレス部内にも射出材が流入しており, 平均流入高さは他と比較して低い値を示した. したがって, プレス成形後に射出により積層板を押し戻す流動を生じさせるためには, 射出成形時において, リブ部へ流入した積層板を熔融状態に保持することが重要であることがわかる. また, 積層板の融点付近の金型温度で成形を行うと, リブの中央部だけでなく, リブの端部においても, リブ部へ深さ方向に流入した積層板が, リブ根元方向へ押し戻されている部分が見られた.

Table 1 の上から四つの条件で成形した T 字形試験片の引張試験により求めた荷重変位曲線と界面の接合強度の結果を Fig. 17 に示す. GF-116 は GF-108 と比較して, PP-116 は PP-108 と比較して高い接合強度を示し, 破断時の変位も大きくなった. き裂発生時と進展時の GF-116 の試験片の界面近傍を観察した結果を Fig. 18 に示す. GF-108 の試験片と同様に, 界面近傍で発生したき裂は, 界面に沿わず, 射出材中を荷重軸と直角方向となる図中の水平方向に進展していた. なお, PP-116 の結果は省略するが, GF-116 と同様にき裂は界面近傍で発生し, 水平方向に進展していた. GF-116 の破断面を側面から観

Fig. 13 Observation of fracture of GF-108.

Fig. 14 Magnified cross-section view of specimens of GF-116, GF-116-D60 and GF-116-M150.

Fig. 15 Penetration height of specimens. (N = 5, mean ± S. D.)

Fig. 16 Interface forming of GF-116.

察した結果と積層板側の破面の観察結果を Fig. 19 に示す。破壊は Fig. 13 に示した GF-108 と同様、界面と射出材で生じていたが、射出体積が多い GF-116 では、界面での破壊はわずかであり、射出材での破壊が支配的であった。なお、PP-116 の破壊形態は省略するが、GF-116 と同様であった。射出成形品において、ウェルド近傍のコア層の樹脂を再流動させ、V 字型のウェルドを形成することで¹³⁾、ウェルド強度を向上させる手法が開発されている。本研究のハイブリッド成形品においても、射出体積を大きくし、リブ部へ流入した積層板の中央部をリブ根元部方向へ押し戻すことで、U 字型の界面を形成し、界面近傍で生じたき裂が、射出材中を水平方向に進展したため、射出材での破壊が支配的となり、界面の接合強度が向上したと考えられる。

GF-116 の引張強度は、Fig. 7 に示した GF-In-0 と GF-In-90 の引張強度の間の値を示した。繊維強化の射出材においては繊維配向分布や繊維長分布が機械的特性に大きな影響を及ぼす。さらなる接合強度の改善のためには、繊維配向分布や繊維長分布を評価するとともに、それらの制御が必要と考えられる。

4 結 言

本研究では、連続繊維強化積層板をプレス成形するとともに、樹脂単体あるいは短繊維強化樹脂を、異なる射出

(a) Load-displacement curve

(b) Interfacial tensile strength (N = 5, mean ± S. D.)

Fig. 17 Results of T-shaped tensile tests of hybrid products.

体積で射出成形することにより作製したハイブリッド成形部材において、リブ根本部の T 字形状試験片を用いた引張試験を実施し、積層板と射出材の接合強度を求めるとともに、射出材や射出体積が接合強度に及ぼす影響を明らかにした。

1. 射出材に短繊維強化樹脂を用いることで、破壊箇所の一つである射出材部分の機械的特性が高くなり、高い界面の接合強度が得られる。
2. プレス成形後にリブ部へ流入した積層板を、射出によりリブ根元部方向へ押し戻すためには、射出成形時において、リブ部へ流入した積層板を溶融状態に保持する必要がある。
3. 射出体積を大きくすることで、界面近傍におけるリブの中央部の樹脂が、リブ深さ方向からリブ根元方向へ流動するため、積層板側から見て凹型の界面が形成され、射出材での破壊が支配的となるため、高い界面の接合強度が得られる。

Fig. 18 Observation of specimens during T-shaped tensile tests of GF-116.

Fig. 19 Observation of fracture of GF-116.

参 考 文 献

- 1) K. Uzawa, "Present and future state of FRP processing", *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, Vol.55, No.1, pp.131-137 (2006).
- 2) F. A. Michael, "Material selection in mechanical design", *Butterworth-Heinemann*, pp.482-483 (2011).
- 3) T. Watanabe and T. Fujii, "Long fiber effect on static and fatigue strengths of discontinuous fiber reinforced thermoplastics with polypropylene matrix", *The Japan Society of Mechanical Engineers*, Vol.64, No.623, pp.224-231 (1998).
- 4) K. Morita, T. Tanaka, Y. Imaida and A. Inoue, "Study on injection molding of glass fiber reinforced polypropylene with fiber length and dispersion", *Proceeding of the 86th JSME annual meeting*, No.114-1 (2011).
- 5) N. O. Cabrera, C. T. Reynolds, B. Alcock and T. Peijs, "Non-isothermal stamp forming of continuous tape reinforced all-polypropylene composite sheet", *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, Vol.39, No.9, pp.1455-1466 (2008).
- 6) B. Zhu, T. X. Yu, H. Zhang and X. M. Tao, "Experimental investigation of formability of woven textile composite preform in stamping operation", *International Journal of Material Forming*, Vol.1, No.1, pp.969-972 (2008).
- 7) A. M. Harte and J. F. Mc Namara, "Use of micromechanical modelling in the material characterization of overinjected thermoplastic composites", *Journal of Materials Processing Technology*, Vol.173, No.3, pp.376-383 (2006).
- 8) M. Fiorotto and G. Lucchetta, "Experimental investigation of a new hybrid molding process to manufacture high-performance composites", *International Journal of Material Forming*, Vol.6, No.1, pp.179-185 (2013).
- 9) N. Asanuma, "Applying direct injection molding process and hybrid molding system to CFRP molding", *Journal of JSPP*, Vol.27, No.3, pp.89-93 (2015).
- 10) K. Tanaka, Y. 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).
- 11) K. Tanaka, D. Tokura and T. Katayama, "Evaluation of mechanical property of press and injection hybrid molded CF/PA6 using cut prepreg sheets", *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, Vol.65, No.10, pp.713-720 (2016).
- 12) K. Tanaka, Y. Harada and T. Katayama, "Press and injection hybrid molding using CF/PP unidirectional slit prepreg and evaluation of bonding strength at rib root", *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, Vol.65, No.10, pp.721-726 (2016).
- 13) K. Tomari, H. Hamada and Z. Maekawa, "Study on the weld strength of fiber reinforced polyamide injection moldings", *Journal of JSPP*, Vol.1, No.1, pp.71-78 (1989).
- 14) S. Yamaguchi, "Study on welding mechanism of injection welding process", *Journal of JSPP*, Vol.11, No.5, pp.440-450 (1999).
- 15) M. Suzuki, S. Sohmiya, M. Maeda and H. Katagiri, "Tensile properties of fiber reinforced nylon 6", *Journal of the Society of Materials Science, Japan*, Vol.28, No.309, pp.1-7 (1971).