炭素繊維強化ナイロン 66 成形物の 繊維配向と力学的性質

小川 俊夫*・美馬 正道*・田 矢 直 紀*

Fiber Orientation and Mechanical Properties for Molded Articles of Carbon Fiber Reinforced Nylon 66

Toshio OGAWA*, Masamichi MIMA*, Naoki TAYA*

Carbon fiber reinforced nylon 66 was molded by an injection machine. The fiber orientation was determined for the molded articles. In the low fiber content (~ 15 wt %), the fiber was oriented to the flowing direction of the resin. However, in the high fiber content, the fiber was only oriented in the center of the articles, and disoriented in the surface layer. The elastic modulus and the tensile strength of the articles increased with the fiber content, but the elongation at break decreased drastically with the increase of the fiber content. Namely, the behavior changed from ductile fracture to brittle one.

Key words : Carbon fiber/Nylon 66/Molded article/Fiber orientation/Tensile properties

1. 緒 言

前報¹⁾において、著者らは射出成形機を用い、各射出条件と炭素繊維含有量などの因子が、平均繊維長さおよび確率密度分布に及ぼす効果について検討を行った。その結果、炭素繊維含有量の増加に伴って数平均繊維長さがやや短くなり、また、確率密度の分布幅についても減少するという結果を得た。

しかし、次に問題となるのが短繊維入り複合材の射出成形を行うと、成形品の形状や成形条件により、繊維が局所配向するため、機械的性質²⁾が影響を受けると考えられている。このため繊維配向^{3)~7)}が機械的性質にどの程度影響を及ぼすのか知ることは極めて重要

である。

また、短繊維入り複合材は、強化繊維の含有量や繊維配向が力学的挙動に大きく関係することが知られている^{8)~12)}。構造材料としての用途を拡大していくためには、これら強度に及ぼす各種因子の影響を系統的に明らかにすることが急務である。しかしながら、いずれも特定の特性に注目したものが大部分で、実用的な観点からの考察が少ない。

今回は、炭素繊維含有量の変化や繊維方向が機械的性質に及ぼす影響について、実際の射出成形機を用いて詳しく調べた。

2. 実験方法

2.1 材 料

材料にはナイロン 66 (宇部興産製 2020 C) および同一のナイロン 66 を使用した炭素繊維強化ナイロン (東邦レーヨン製 S-1002 G, 繊維充填率 30 wt%) を使用した。異なる繊維含有率の試料は上の二者をベレ

* 金沢工業大学 大学院 工学研究科 材料設計工学専攻
石川県石川郡野々市町扇が丘 7-1 (〒921)
Laboratory for Material Design Engineering
Kanazawa Institute of Technology
7-1 Ohgigaoka, Nonoichi, Ishikawa 921 Japan
1995. 12. 4 受理

Fig. 1 Measured point of fiber orientation angle for tensile specimen

ット状態で混合して得られた。

2.2 成 形

ナイロンは水分吸収量が大きいので、恒温槽内で約5時間かけて乾燥後、実験に供した。成形機は日精樹脂工業製汎用射出成形機 PS 40 E 5 ASE（インラインスクリュ型）を使用した。金型としては JIS K 7113 試験片作成用金型を作製し、引張試験片の部分を本実験で使用した。

射出条件は射出温度 290°C、金型温度 20°C、射出速度 58.4 cm³/s、スクリュ回転数 105 rpm、射出圧力 153.5 MPa である。

2.3 配向角度分布

ここでの繊維方向の測定は、二次元的なものに限った。測定位置については、実際にもっとも多く破壊が起こった Fig. 1 に示す位置を選び、その位置については、この図における下側の表面 G、上側の表面 N および中間層の3箇所について行った。また、測定する繊維含有量は、5 wt%、15 wt%、25 wt% の3種類の場合について行った。

測定方法は、適当な大きさに試験片を切り出し、溶解しやすくするため耐水ペーパーで測定面を粗くした。次に、メタクレゾールを染み込ませたキムワイプで試験片の測定位置を中心に軽く叩くように塗布し、30～60秒後、キムタオルで溶液を吸い取った。溶液を揮発させた後、その測定面について、一例を Fig. 2 に示すような走査電子顕微鏡写真を撮影した。したがって、撮影面は高々数十μmの深さまでの状態を示すものである。この写真では、あまり流れ方向に繊維が配向していないことを示している。

次に、以下に示す定義に従って写真内の繊維約100本について角度の測定を行った。まず、Fig. 1 に示すように樹脂の流れ方向を0°、それより左側に向いた場

Fig. 2 Electron micrograph for measuring orientation angle in the fiber content of 30 wt%

合を正、左側に向いた場合を負と定義した。したがって、G表面では逆の表現になる。これはあくまでも二次元的な配向だけを調べたもので、繊維が垂直に近い状態で配向した物は除外した。

以上のようにしてデータを取り、5wt%、15wt%、25wt% の繊維含有量の配向角および配向パラメーターを求めた。ここで、配向パラメーターとは、平均繊維方向に対する全体の繊維の分散具合を示すパラメーターであり、この配向パラメーター f_p は、次式で計算された^{3)・4)}。

$$f_p = 2 \cos^2 \phi - 1 \quad (1)$$

$$\cos^2 \phi = \frac{1}{N_{\text{total}}} \times \sum_j N(\phi_j) \cos^2(\phi_j) \quad (2)$$

ここで、 f_p は配向パラメーター、 ϕ_j は区分 j の平均繊維方向の角度、 $N(\phi_j)$ は ϕ_j に含まれる繊維の本数、 N_{total} は測定した繊維の総数である。実際には $-90^\circ < \phi < 90^\circ$ の範囲とし、 ϕ_j を 10° ごととして繊維の本数を数え、 f_p を求めた。

2.4 機械的性質

引張試験は、JIS K 7113 に従って行った。使用した試験片は JIS K 7113 にある2号型試験片で射出成形されたものであり、繊維の重量含有率で0～30 wt%までの5 wt% 間隔で7種類、それぞれ5本用意した。試験速度は5 mm/min で、引張強さ、引張弾性率および標線間距離25 mm に対する伸びを求めた。引張弾性率は、荷重-ひずみ線図の初期勾配より求めた。

曲げ試験は、JIS K 7203 に従って行った。使用した試験片は JIS K 7203 に規定されたもので、ゲート位置は試験片の末端とした。曲げ試験片は引張試験片と同時に射出成形し、引張試験同様7種類、それぞれ5本試験を行った。試験速度は3 mm/min で、曲げ強さおよび曲げ弾性率を求めた。曲げ弾性率は、荷重-たわみ線図の初期勾配より求めた。

Fig. 3 Distribution of fiber orientation

3. 実験結果および考察

3.1 配向分布

繊維方向分布について、5 wt%，15 wt%，25 wt% における測定結果をそれぞれ Fig. 3(a)～(c) に、配向パラメーターの計算結果を Fig. 4 に示す。繊維含有量 5 wt%，15 wt% において各層での平均繊維方向や配向パラメーターには変化が見られないが、繊維含有量が 25 wt% のとき表面層における配向パラメーターの値が減少し、無配向になってきている。

これに対し、中間層では繊維含有量が増加してもその配向パラメーターは 1 に近いままで、また、Fig. 3 (b) から繊維配向は 0° に最大値があることから平均繊維方向は射出方向に優先配向していることがわかる。

ここで、表面層の繊維含有量増加に対して中間層では変わらない原因は以下のように考えられる。

まず、繊維含有量の少ないときの熔融樹脂の熱伝導率は低いため、熔融した樹脂が金型表面に接触してもすぐに硬化せず、ある程度流動することができる。このとき、金型表面における材料の流れは、硬化した材料と金型に充填しようとする熔融材料の流れにより、材料充填方向に引っ張りの力を受けるようになる。このような流れを伸長流れといい、その流れにある繊維の方向は充填方向と平行になろうとする。

いっぽう、繊維含有量増加によって熱伝導率が高くなると、熔融樹脂は金型に触れるとすぐに硬化してしまい、先に述べたような伸長流れ現象が金型表面で起こらず、繊維方向も配向することなく固定されてしまう。このような急激な硬化は、金型表面に対して熱の吸収がされにくい中間層ではほとんど起こらないため、

Fig. 4 Relationship between orientation parameter and fiber content in different places of tensile test specimen

(○ : Surface layer (N), △ : Middle layer, ● : Surface layer (G))

Fig. 5 Effect of fiber content on tensile strength and flexural strength (○: Tensile, ●: Flexural)

中間層における繊維方向は繊維含有が増加しても、充填方向（射出方向）に向いていると考えられる。

3.2 力学的性質

各繊維含有量の増加における引張試験、曲げ試験の各強度の変化について調べた。それぞれの強度は繊維含有増加とともに強くなることが Fig. 5 からわかる。しかし、繊維含有量が 20 wt% を越えたあたりから強度の増加率は減少している。これは、繊維含有量が増すと射出成形段階において、繊維長さが減少したことが一つの原因と考えられる¹⁾。

もう一つの原因としては繊維方向が Fig. 3 (a), (c) に見られるように、試験片表面付近で無配向化することによる繊維同士の接触の増加や射出方向に垂直な繊維の増加による影響と思われる。

ここで、試験片の中心付近における引張試験後の破断面について見ると、繊維含有量の Fig. 6 (a) 5 wt% および Fig. 6 (b) 15 wt% のとき、中心付近でナイロンが塑性的な破壊を起こしている部分が多く見られ、繊維が破断し、繊維を中心としてくぼみが見られる。このくぼみは、ナイロンの塑性変形に伴い、材料中の繊維が核となってナイロンとの剝離を起こし、これらの剝離個所が局部的に引張応力の下で拡大して形成されると考えられる⁶⁾。しかし、繊維含有量が 25 wt% (Fig. 6 (c)) に至ると、ナイロンが延性破壊している部分はほとんどなく、脆性的な破壊を起こしている。荷重を受けた際、試験片の内部において繊維とナイロンの剝離が生じ、そこにき裂が発生しても、繊維含有量が少ない場合は、接触している繊維もほとんどなく、繊維を伝わっていくき裂が急激に進展しないため、その破壊の形態はナイロンの大きな伸びが寄与する延性破壊となると考えられる。

Fig. 6 Photographs of fracture surfaces in a variety of fiber content

いっぽう、繊維含有量が 25 wt% と増加したときには、中間層では射出方向に平行に優先配向しているものの、表面層では無配向状態となり、繊維とナイロンが剝離しやすくなる。き裂が発生した場合、そこに応力集中が生じ、引張方向に垂直な繊維はナイロンのき裂の進展を速めて成長し、一気に破断してしまい、全体的に破断面は脆性破壊を起こしていると考えられる。

次に、弾性率は引張および曲げともに Fig. 7 で示されたように繊維含有量増加とともに大きくなっているが、強さのときの傾向と異なり、その増加率は減少していない。弾性率の測定は初期勾配で行うため、この時点では破壊が起こっておらず、また変形も小さいため、繊維長さや方向の影響をほとんど受けないためと考えられる。

また、曲げ弾性率は二次曲線的に増加し、繊維含有量の多いところで増加率が大きい。これは、曲げ特性は引張と同時に、圧縮特性が反映されるため、繊維含有率の多い領域で繊維接触の効果が現れたものと考えられる。

Fig. 8 に示した破断伸びは、繊維含有量がわずか 5

Fig. 7 Effect of fiber content on tensile modulus of elasticity and flexural modulus of elasticity (○: Tensile, ●: Flexural)

wt% の含有によって著しく低下することが認められた。これは、前述の通り、この程度の繊維含有量では繊維配向の濃度依存性はまだ見られない。したがって、見掛け上、延性破壊から脆性破壊への急激な変化は、樹脂のひずみ速度の影響が強いと推定されるが、これについてはさらなる検討が必要である。

4. 結 言

炭素繊維入りナイロン 66 を射出成形し、繊維含有量が繊維配向や力学的性質及にぼす影響について調べた結果、次の結論を得た。

- ① 繊維含有量が増加すると、試験片表面層における繊維方向は無配向になるが、中間層においては樹脂の充填方向に配向している。
- ② 繊維含有量が増加すると、強度は増加するが、増加率は減少する。これは繊維同士の接触や射出方向に垂直な繊維割合の増加によると考えられる。
- ③ 繊維含有量が増加すると、強度、弾性率は上昇するが、伸びが著しく減少する。

Fig. 8 Effect of content on elongation at break

参 考 文 献

- 1) 小川俊夫, 美馬正道, 田矢直紀: 成形加工, **7**, 315 (1995)
- 2) Curtis, P. T., Bader, M. G. and Bailey, J. E.: *J. Mater. Sci.*, **13**, 377 (1978)
- 3) McGee, S. H. and McCullough, R. L.: *J. Appl. Phys.*, **55** (5), 1394 (1984)
- 4) 菊池博之, 小川清人: 成形加工, **5**(2), 129(1993)
- 5) Folkes, M. J. and Russell, D. A. M.: *Polymer*, **21**, 1251 (1980)
- 6) 倪 慶清, 自念榮一: 材料, **42**, 255 (1993)
- 7) Fologar, F.: *J. Reinforced. Plast. Composite*, **3**, 98 (1984)
- 8) 木天泰宏, 阿部一登, 児玉明德, 稲葉 充: 成形加工, **5** (11), 741 (1993)
- 9) Sato, N., Kurauchi, T., Sato, S. and Kamisaito, O.: *J. Mater. Sci.*, **19**, 1145 (1984)
- 10) Fukuda, H. and Chou, T.: *J. Mater. Sci.*, **16**, 1088 (1981)
- 11) Mandell, J. F., Huang, D. D. and McGarry, F. J.: *Short Fiber Reinforced Composite Materials* (Sanders, B. A., editor), **3** (1980), ASTM Special Technical Publication 772
- 12) 成澤郁夫: プラスチックの破壊靱性, 188 (1993), シグマ出版