

複合材料の熔融粘度と混練スクリーが炭素長繊維強化ポリプロピレン射出成形品の繊維長及び機械的強度に及ぼす影響

藤 和久 (マツダ株式会社 技術研究所, tou.k@mazda.co.jp)
 小川 淳一 (マツダ株式会社 技術研究所, ogawa.j@mazda.co.jp)
 松田 祐之 (マツダ株式会社 技術研究所, matsuda.yus@mazda.co.jp)
 小林 めぐみ (マツダ株式会社 技術研究所, kobayashi.me@mazda.co.jp)
 森脇 健二 (マツダ株式会社 技術研究所, moriwaki.k@mazda.co.jp)
 平本 健治 (マツダ株式会社 技術研究所, hiramoto.k@mazda.co.jp)
 金 成彦 (ダイキョーニシカワ株式会社 技術開発部, s-kim@daikyonishikawa.co.jp)
 山田 浩明 (ダイキョーニシカワ株式会社 技術開発部, hi-yamada@daikyonishikawa.co.jp)
 王 存涛 (京都工芸繊維大学 大学院工芸科学研究科, wangphilia@gmail.com)
 濱田 泰以 (京都工芸繊維大学 大学院工芸科学研究科, hhamda@kit.ac.jp)

Influence of composite melt viscosity and melting screw design on fiber length and mechanical properties of injection molded long carbon fiber reinforced polypropylene

Kazuhisa To (Technical Research Center, Mazda Motor Corporation, Japan)
 Junichi Ogawa (Technical Research Center, Mazda Motor Corporation, Japan)
 Yushi Matsuda (Technical Research Center, Mazda Motor Corporation, Japan)
 Megumi Kobayashi (Technical Research Center, Mazda Motor Corporation, Japan)
 Kenji Moriwaki (Technical Research Center, Mazda Motor Corporation, Japan)
 Kenji Hiramoto (Technical Research Center, Mazda Motor Corporation, Japan)
 Sungeon Kim (R&D, DaikyoNishikawa Corporation, Japan)
 Hiroaki Yamada (R&D, DaikyoNishikawa Corporation, Japan)
 Cuntao Wang (Graduate School of Science and Technology, Kyoto Institute of Technology, Japan)
 Hiroyuki Hamada (Graduate School of Science and Technology, Kyoto Institute of Technology, Japan)

要約

繊維強化複合材料を用いた射出成形品は、成形品中の繊維の長さが、成形品物性に大きく影響することが知られている。そこで本研究では、射出成形用の炭素長繊維強化ポリプロピレンを用いて、材料の熔融粘度や成形機の混練スクリーウの圧縮比及び背圧が、成形品中の残存繊維長に及ぼす影響について明らかにした。供試材料として、4つの熔融粘度の異なるポリプロピレンを用いて炭素繊維を30 wt%含む長さ7 mmの炭素長繊維強化ポリプロピレンペレットを調製し、圧縮比の異なる混練スクリーウにて背圧を変えて射出成形を行い、成形品中の残存繊維長、及び引張特性と衝撃強度を評価した。その結果、高熔融粘度の材料と圧縮比1.8の低せん断スクリーウを用いて、低い背圧で成形することで、成形品中に1 mm以上の炭素繊維を残すことが可能であり、それに伴いより高い物性を発現させることが可能であることを見出した。

キーワード

炭素繊維強化複合材料, 射出成形, 繊維長, 熔融粘度, 成形機スクリーウ

1. 緒言

繊維強化樹脂複合材料において、補強繊維としての炭素繊維（以下CFと略す）は、自動車産業では、高級車での限られた使用に留まっている（邊, 2010; 平松, 2014; 高橋, 2013）。その主な理由として、CFは、ガラス繊維（以下GFと略す）に比べて、性能が優れているものの、それ以上に繊維自体のコストが高く、さらに、樹脂の成形工法の中では、生産性の低いプレス工法が用いられているためと考えられる。一般に、自動車用樹脂部品の成形法としては、プレス工法より生産効率の高い射出成形が用いられているが、従来の射出成形によって得られる繊維強化樹脂複合材料の成形品物性は、プレス工法で得られる成形品物性に比べて劣っている。その原因の一つは、成形中に補強繊維が折損し、本来繊維が有する性

能を十分に発現できていないことに起因する。従って、CF強化樹脂複合材料の射出成形品の性能を向上させるための様々な研究が行なわれている（Arao et al., 2013; Unterweger et al., 2014; Vivekanandhana et al., 2009; Wong et al., 2012）。また、GFに関しては、2002年に、プレス成形品であるガラスマット熱可塑性強化樹脂を置換できる射出成形用の高強度GF長繊維強化複合材が開発され、量産車の部品に適用された。この技術のポイントの一つは、射出成形品中のGF長さをいかに維持するかで、低せん断スクリーウを用いることで、射出成形中にGFにかかるストレスを低減させ、繊維をより長く維持して成形できるとしている（栃岡他, 2002）。我々はこれまで、繊維強化複合材料の射出成形時の熔融粘度を測定する独自の金型を製作し、これを用いることで、複合材料としての熔融粘度や成形条件が、CF強化複合材料の射出成形品中の繊維長への影響について検討した（藤他, 2014）。本研究では、CFに関して、複合材料の熔融粘度と併せて、スクリーウ圧縮比と射出成形の背圧の違いが、CF長さ及び成形品の機械的特

性に対する影響について検討を行った。

2. 実験方法

2.1 供試材料

供試材料は、CFロービングを溶融合浸装置によって、溶融した樹脂を通して引き取り、特殊な型から引出し、7 mmの長繊維の成形ペレットとして調製した（以下、本材料をL-CFPPと略す）。また、マトリックス樹脂は、樹脂溶融粘度の指標となるMelt Flow Rate（以下MFRと略す）の異なる4種類のホモPP（MFR; 2.1, 11, 21 及び75）を使用した。なお、CFは直径7 μ mの繊維を用いた。

2.2 射出成形条件

本研究では、成形機として、圧縮比の異なる2本のスクリーが装備された日本製鋼所電動横型220 t射出成形機（J220AD-2M460H/30、スクリー圧縮比：1.8及び2.5）を用いた。成形条件を、シリンダ温度：230 $^{\circ}$ C、金型温度：40 $^{\circ}$ C、射出速度：32.9 mm/s、保圧時間：40 s、スクリー回転数120～220 rpm（設定値）として、引張試験用標準ISOダンベル試験片（長さ175 mm、幅10 mm、厚さ4 mm）を成形した。なお、スクリーの圧縮比は、供給部（V2）および計量部（V1）の1つのネジ溝内の空間容積の比（V2/V1）として表される数値で、ここでは、圧縮比2.5を高せん断スクリー、圧縮比1.8を低せん断スクリーとする。

2.3 機械特性の評価

引張特性は、射出成形したダンベル試験片を万能試験機を用いてJIS K 7161に従い、評価した。その際、テストスピードは、1 mm/min、グリップ間距離は、115 mmとした。また、シャルピー衝撃試験は、東洋精機製作所 DG-CBを用いて行った。

2.4 CF長さの測定

ダンベル試験片から20 mm \times 10 mm \times 4 mmの試験片を採取して、500 $^{\circ}$ Cで2時間加熱し、PPをすべて焼き飛ばした後、ランダムに採取した300本の繊維の長さを測定した。重量平均繊維長（Lw）は次式により、計算した。

$$Lw = \frac{\sum (Ni \times Li^2)}{\sum (Ni \times Li)} \quad (1)$$

ここで、Niは繊維の数、Liは繊維の長さである。

2.5 CFの配向調査

ダンベル試験片をX線CT（ヤマト科学TDM1000H-II（2K））により、表面より、3 μ m刻みで、スライス画像にして撮影して、CFの配向を観察した。サンプルサイズは、5 mm \times 2 mm \times 2 mmで、採取した位置は、図1に示す通りである。

3. 結果および考察

3.1 L-CFPPの溶融粘度が射出成形品物性に及ぼす影響

MFRの異なる4種類のPPの単体の引張特性を評価した。図2に引張弾性率、図3に引張強度を示す。その結果、4種のPPの引張弾性率と引張強度に大きな差はなかった。

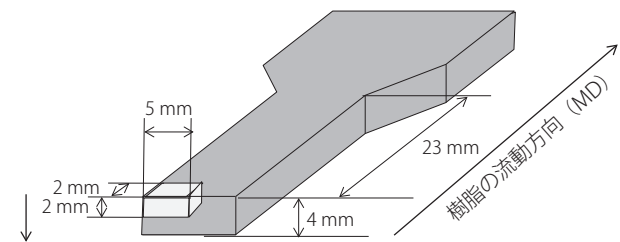


図1：X線CT画像撮影のサンプル位置

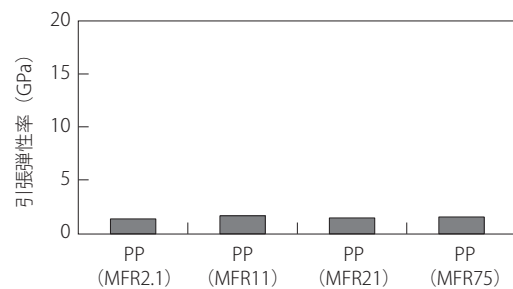


図2：PP単体の引張弾性率

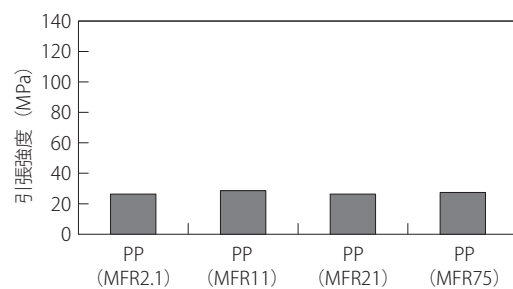


図3：PP単体の引張強度

次に、高せん断スクリー（圧縮比2.5）を用い、背圧10 MPaで得られたL-CFPP（CF30 wt%）の射出成形品の引張弾性率及び引張強度を測定した。その結果を図4及び図5に示した。CFを30 wt%混入することで、引張弾性率、引張強度とも大幅に向上していることを確認すると共に、低溶融粘度のL-CFPPは、引張強度、引張弾性率が、高溶融粘度のものよりも高くなることが明らかになった。

この理由を明らかにするために、まず、初めに、射出成形品のCFの重量平均繊維長を測定した。その結果を図6に示す。

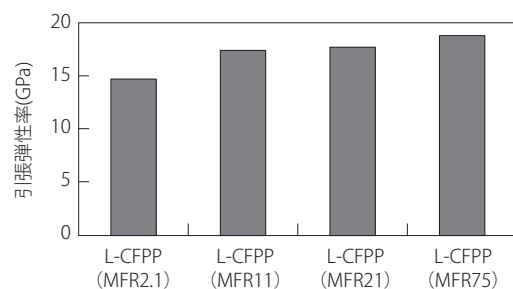


図4：L-CFPPの引張弾性率

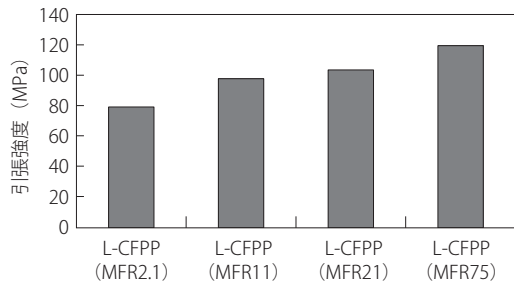


図5：L-CFPPの引張強度

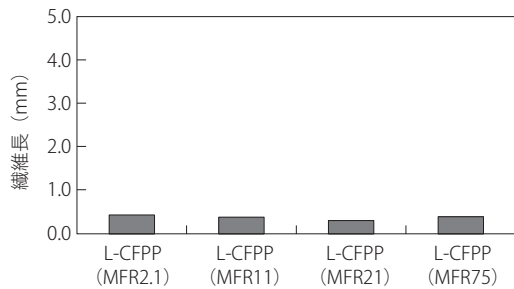


図6：成形品中の残存CF長さ

初期に7 mmあったCF長さは、いずれも0.5 mm以下に折損していた。また、それぞれの材料で、大きな差はなく、引張特性との相関は見られなかった。

次に、CFの配向が引張特性に影響している可能性が考えられたため、MFR 2.1のマトリックスPPで調製したL-CFPPとMFR 75のマトリックスPPで調製したL-CFPPの射出成形品のX線CT画像を撮影した。その結果を図7から図9に示す。図7は、表面から100 μmの深さ、図8は、1000 μmの深さ、図9は、1900 μmの深さの画像をMFR 2.1とMFR 75のマトリックスPPで調製したL-CFPPを比較して示す。L-CFPP (MFR 75)のCFは、L-CFPP (MFR 2.1)に比べると、表面から1000 μmでは、差が確認できないが、表面から100 μm及び1900 μmでは、樹脂の流動方向（以下MDと略す）に、より配向していることが確認できた。従って、低熔融粘度のL-CFPPの引張強度、引張弾性率が、高熔融粘度のL-CFPPよりも高くなった理由は、低熔融粘度のL-CFPPがCFをよりMD方向に配向させやすいためと考えられた。

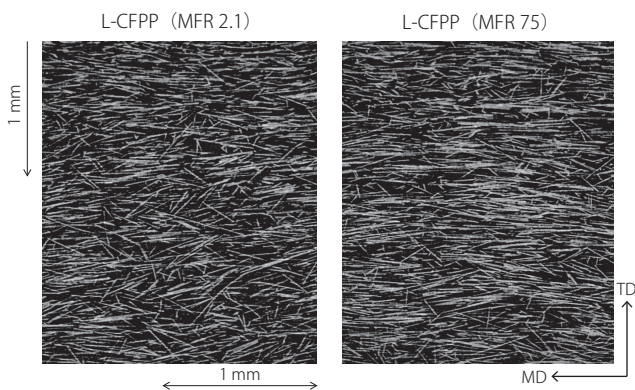


図7：繊維配向X-CT画像(深さ100 μm)

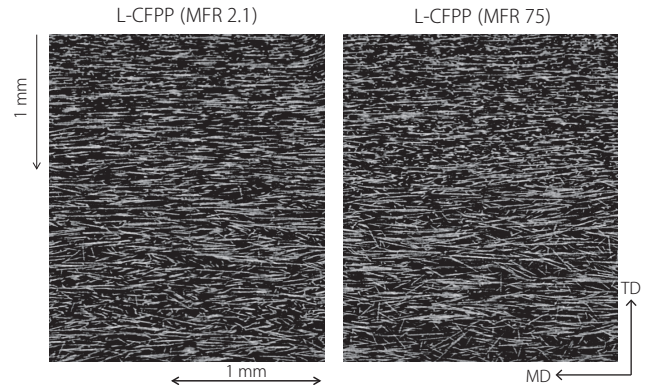


図8：繊維配向X-CT画像(深さ1000 μm)

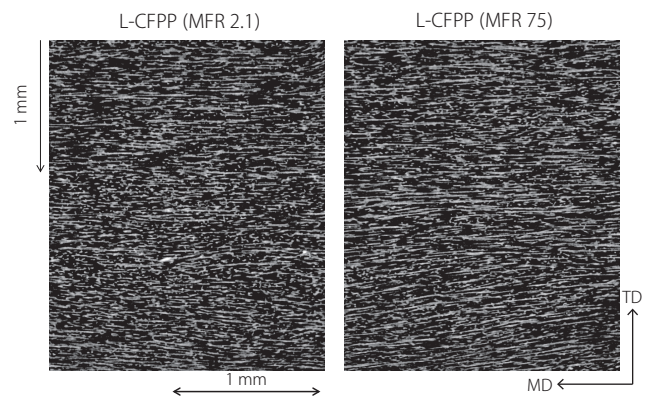


図9：繊維配向X-CT画像(深さ1900 μm)

3.2 スクリュー圧縮比がL-CFPPのCF長さ及び機械的物性に及ぼす影響

スクリーアの圧縮比がCF長さ及び機械的特性に対する影響を調査するため、4つの異なる熔融粘度を有するL-CFPPを低せん断スクリーアによって背圧を変えて射出成形し、高せん断スクリーア成形品と比較した。その結果、引張弾性率は、図10に示すように、低せん断と高せん断スクリーアで射出成形したL-CFPPの値はほぼ同等だった。また、背圧の影響も見られなかった。一方、熔融粘度の影響については、高せん断スクリーアで成形した成形品同様に、低熔融粘度のL-CFPPは、高熔融粘度のものよりも高くなった。これは、低せん断スクリーア成形品においても、低熔融粘度のL-CFPPの成形品では、CFがMD方向により配向しているためと推定された。

図11に引張強度を示す。低せん断スクリーアによって成形されたL-CFPPの成形品の引張強度は、高せん断スクリーアで成形されたL-CFPPに比べて20%以上も向上していることが分かった。また、背圧が高くなるとL-CFPPの引張強度は、背圧が低いものと比べて低下しており、背圧が引張強度に大きく影響することが確認できた。さらに、熔融粘度の影響については、引張弾性率同様に、低熔融粘度のL-CFPPは、高熔融粘度のL-CFPPよりも高くなる傾向にあることが明らかになった。

図12に低せん断及び高せん断スクリーアによって射出成形されたL-CFPPのシャルピー衝撃強度の測定結果を示す。低せ

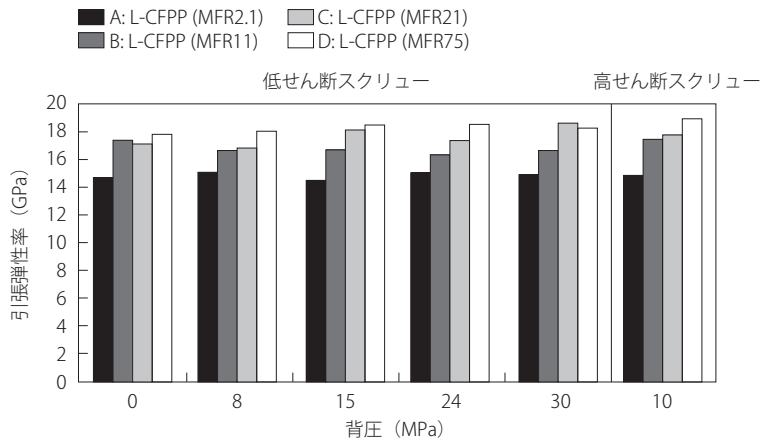


図10：スクリー圧縮比及び背圧と引張弾性率の関係

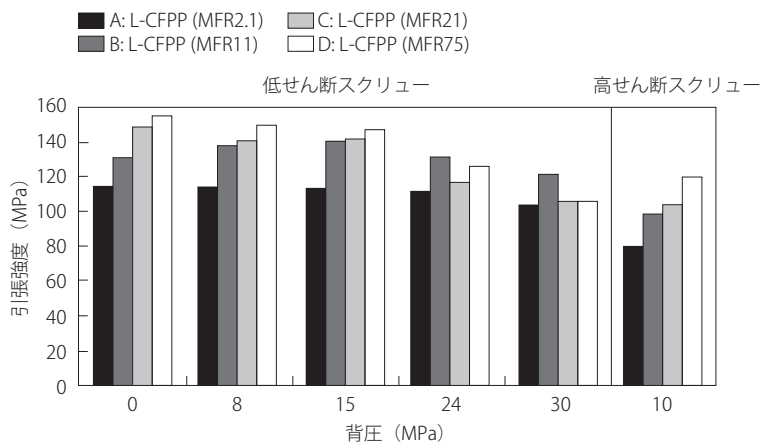


図11：スクリー圧縮比及び背圧と引張強度の関係

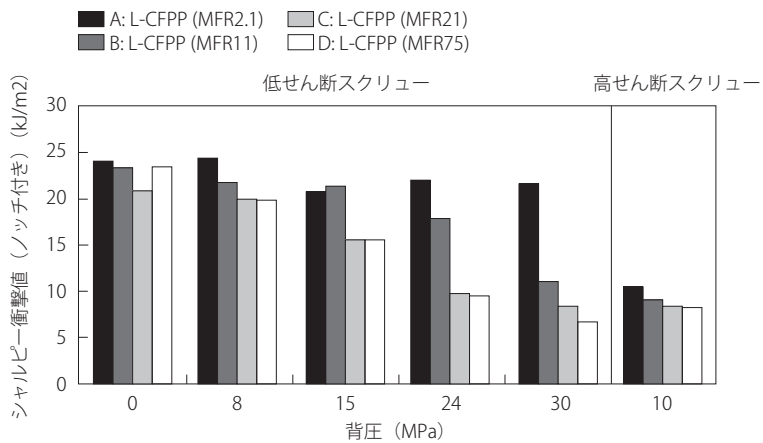


図12：スクリー圧縮比及び背圧とシャルピー衝撃値(ノッチ付き)の関係

ん断スクリーによって成形されたL-CFPPのシャルピー衝撃値は、高せん断スクリーによって成形されたL-CFPPよりも明らかに高いことが分かった。しかしながら、引張弾性率や引張強度と異なり、L-CFPPの熔融粘度が高いとシャルピー衝撃値も高くなる傾向を示した。これは、先に述べた引張弾性率、引張強度と逆の傾向にあることから、衝撃特性に大きく影響すると考えられる成形品中の繊維長を測定した。その結

果、図13に示すように、低せん断スクリーにより成形されたL-CFPPのCF長は、高せん断スクリーによって成形されたL-CFPPより数倍以上長く残っていることが確認できた。また、低せん断スクリーによって射出成形されたL-CFPPのCFは、背圧が低いほど、さらに、L-CFPPの熔融粘度が高い方がより長いことが分かった。このことから、低せん断スクリーで成形した場合においては、熔融粘度が高い方が、衝

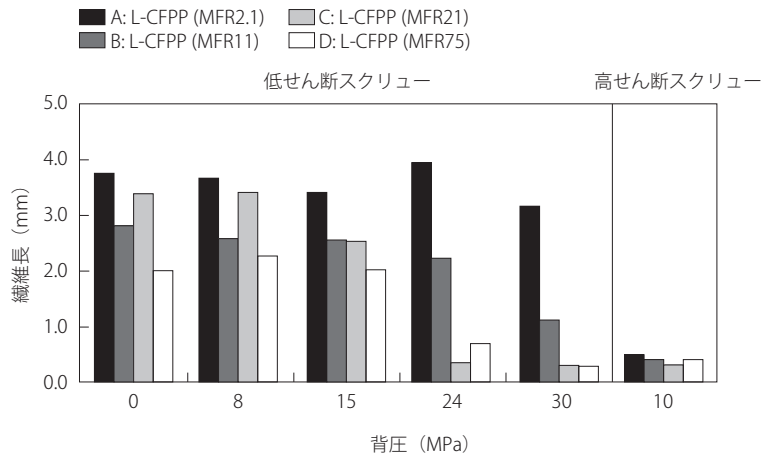


図13：スクリー圧縮比及び背圧と繊維長の関係

撃特性を向上させたものと考えられた。

3.3 射出成形機のスクリー回転数がCF長さに及ぼす影響

低せん断スクリーで射出成形した場合、溶融粘度が高い方がより繊維を長く残して成形できるメカニズムを推定するために、成形品中のCF長に対するスクリー回転数の影響を確認した。図14にスクリー回転数を計量時にスクリーが1 mm 移動するのに必要としたスクリー回転数と定義し、CF長さとの関係を示す。スクリー回転数が増加すると、CF長が短くなっていることが分かった。また、溶融粘度の高いL-CFPPは、スクリー回転数が少なく、溶融粘度の低いL-CFPPは回転数がより多く必要となっていることも確認できた。この理由として、低せん断スクリーは圧縮比が低く、溶融粘度が低い場合には、溶融粘度が高い樹脂に比べて、溶融樹脂を計量する時間が長い、すなわちCFに対して、よい長い時間、せん断応力がかかるため、結果として、CFが折損し、成形品中の最終的なCF長さが短くなったと考えられた。一方、高溶融粘度を有するL-CFPPは、短時間で計量できるため、CFにかかるストレスの時間が短くなり、結果として、CFの折損が抑制されると考えられた。

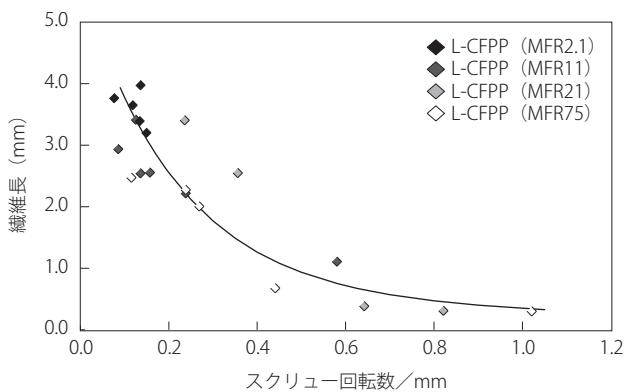


図14：スクリー回転数と繊維長の関係

4. 結言

L-CFPPの溶融粘度に加えて、混練スクリーのデザインを含む射出成形条件が、L-CFPPのCF長さや射出成形品の機械的物性に及ぼす影響について研究を行った。その結果、CF長さは、L-CFPPの溶融粘度とスクリーデザイン及び背圧の組み合わせによって影響されることを明らかにした。この研究においては、高溶融粘度のL-CFPPと圧縮比1.8の低せん断スクリーを用いて、低い背圧で成形することで、長いCFを残して成形することが可能となり、より高い機械的特性を発現させることが出来ることを見出した。

引用文献

- Arao, Y., Yumitori, S., Suzuki, H., Tanaka, T., Tanaka, K. and Katayama, T. (2013). Mechanical properties of injection-molded carbon fiber/polypropylene composites hybridized with nanofillers. *Composites: Part A*, Vol. 55, 19-26.
- 邊吾一 (2010). 先進複合材料の構造設計 先進複合材料の自動車構造部品設計への応用. *設計工学*, Vol. 45, No. 9, 405-411.
- 平松徹 (2014). よくわかる炭素繊維の基礎と応用(13) 応用(その5) 産業用途/輸送機器分野: 自動車用途への応用(上). *航空技術*, No. 711, 46-53.
- 高橋淳 (2013). 次世代新材料レーザー加工の新たな挑戦 次世代CFRPの技術的課題と応用の将来展望. *Optronics*, No. 373, 84-89.
- To, K., Kobayashi, M., Moriwaki, K., Matsuda, U., Hamada, H., Wang, C., Kim, S. and Yamada, H. (2014). Influence of carbon fibers used in composites on melt viscosity of composites in the injection molding process. *ANTEC 2014 Proceedings of the Technical Conference & Exhibition*, 196-200.
- 橋岡孝宏・田中高廣・田中力 (2002). 射出成形ガラス長繊維強化複合材によるモジュールキャリアの開発. *自動車技術会 2002年春季大会 学術講演会講演予稿集*, No. 145-2, 1-4.
- Unterweger, C., Brüggemann, O. and Fürst, C. (2014). Effects of different fibers on the properties of short-fiber-reinforced polypropylene composites. *Composites Science and Tech-*

nology, Vol. 103, 49–55.

Vivekanandhan, S., Misra, M. and Mohanty, A. K. (2012). Thermal, mechanical, and morphological investigation of injection molded poly (trimethylene terephthalate)/carbon fiber composites. *Polymer Composites*, Vol. 33, 1933-1940.

Wong, K. H., Mohammed, D. S., Pickering, S. J. and Brooks, R. (2012). Effect of coupling agents on reinforcing potential of recycled carbon fibre for polypropylene composite. *Composite Science and Technology*, Vol. 72, 835-844.

(受稿：2015年1月27日 受理：2015年2月2日)