

厚み比率の異なる多層フィルムをマトリックス樹脂とする 熱可塑性 CFRP のプレス成形技術の開発

地方独立行政法人大阪産業技術研究所 加工成形研究部

主任研究員 奥村 俊彦

(平成 27 年度 一般研究開発助成 AF-2015018)

キーワード:CFRTP, 多層フィルム, 円筒絞り加工

1. 研究の目的と背景

航空機およびスポーツ・レジャー分野では金属に代わる軽量化材料として、熱硬化性(エポキシ)樹脂を用いた炭素繊維強化プラスチック(CFRP)の適用が進んでいる。しかし、CFRP の成形には大型製造設備が必要であり、また、成形サイクルが長いこと、量産性が求められる部品等へ適用することは困難である。そこで、加熱すると軟化溶解し室温で固化する熱可塑性樹脂を用いた炭素繊維強化プラスチック(CFRTP)が自動車分野を中心として注目を集めている^{1,2)}。

マトリックス樹脂に熱可塑性樹脂を使用することで、射出およびプレス成形による量産が可能になる。近年、プレス成形用素材としてポリアミド(PA)66樹脂やポリフェニレンサルファイド(PPS)樹脂を用いたCFRTPシートが開発されている³⁾。しかし、樹脂の融点が高いために成形時の加熱に大量の熱エネルギーが必要となることや、成形後、樹脂が冷却固化するまでの時間が長いことが問題となっている。

熱可塑性樹脂の中で、ポリプロピレン(PP)樹脂は融点比較的低く(約 165℃)、流動性も良いこと様々な部品に多用されている。PP樹脂を用いたCFRTPシートが開発されれば、広範な分野で利用用途の拡大が期待される。しかしPP樹脂には炭素繊維との接着性に乏しい⁴⁾という欠点がある。一方、PA樹脂は、PP樹脂に比べて高価ではあるが、炭素繊維との接着性に優れている。PP樹脂の外側にPA樹脂を配置した多層フィルムを作製できれば、加工温度が低く炭素繊維との接着性に優れた材料としてCFRTPに広く用いることができる。

本研究の目的は、①成形流動性に優れたPP樹脂と炭素繊維との接着性に優れたPA樹脂で構成された多層フィルムと炭素繊維織物を用いてプレス成形用素材であるCFRTPシートを作製すること、②作製したシートの深絞り成形において、優

れた成形性を示す多層フィルムの構成比を明らかにすることである。

具体的な手順としては、まず種々の厚み比率を有する多層フィルムを作製し、次に炭素繊維織物と組み合わせて作製したCFRTPシートを用いて、サーボプレスを用いた円筒絞り加工を行う。具体的には、多層フィルムの厚み比率を検討することで、成形品の直径に対する深さの比率が0.5以上を達成し、かつ割れやしわのない成形品を得ることを目標とする。

2. 実験方法

2.1 CFRTP シートの作製

本研究では、樹脂フィルムと炭素繊維織物を交互に積層した後、加熱・加圧するフィルムスタッキング法によりCFRTPシートを作製する。まず、マトリックス樹脂として用いる三層フィルムの作製方法について説明する。使用した樹脂はPP[ノバテック PP MA3H(日本ポリプロ(株)製)、MFR=10]およびPA12(UBESTA 3024U[宇部興産(株)製)、融点 179℃、MFR=10]樹脂である。なお、PP樹脂についてはPA12樹脂との接着性を高めるために、二軸押出機[2D25WH、(株)東洋精機製作所製]を用いてマレイン酸変性PP樹脂[ユーメックス 1010、三洋化成(株)製]を5wt%練り込んだ。外層にPA12樹脂、内層にPP樹脂をそれぞれ配置した三層構造(PA12/PP/PA12)のフィルムを図1に示す三層フィルム製造装置[(株)東洋精機製作所製]を用いて作製した。

本研究で用いた三層フィルム製造装置は、フィードブロック(樹脂合流部)の構造を調整することによってフィルムを構成する樹脂の流量を制御できる。この機能を活用して各層の厚み比率が異なる三層フィルムを5種類作製した。三層フィルムの厚み比率は、作製したフィルムを1層ずつ剥がし、個々のフィ

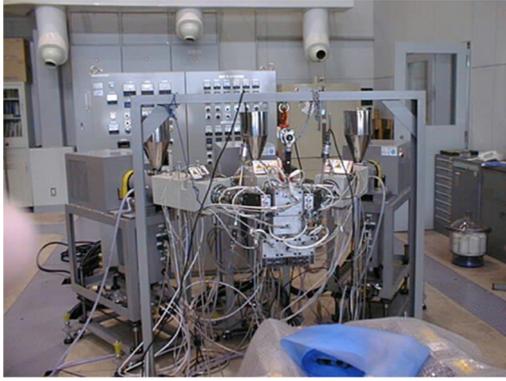


図1 三層フィルム製造装置

ルムの厚さをマイクロメータで測定し、求めた。比較検討のためPP樹脂およびPA12樹脂単層のフィルムもあわせて作製した。

CFRTPシートの厚さが約1mmとなるように、三層フィルム5枚と炭素繊維織物[3K平織, CO6343, 東レ(株)製]4枚とを交互に積層し、熱プレス機[テクノサプライ(株)製]を用いてシートを作製した。なお、炭素繊維織物への樹脂の含浸性を高めるためには、繊維表面に付着するサイジング剤を除去することが望ましい⁵⁾とされているが、本研究ではサイジング剤除去処理は行っていない。なお、積層の際には、炭素繊維がフィルム押出方向と0°/90°の向きになるように配置し、熱プレスにより成形温度190℃、成形圧力1MPaの条件で10分間加熱、加圧した後、冷却用プレスに挟み込み室温まで速やかに冷却した。

2.2 CFRTPシートのプレス成形

CFRTPシートのプレス成形性の検討においては、曲げや絞り、張出しなど様々な変形様式の中で、絞り加工を評価対象とした。実験に使用したプレス機はサーボプレス[H1F200, コマツ産機(株)製]である。金型にはパンチ直径60mm、ダイス内径62.5mmの円筒絞り金型(いずれも肩半径R5)を用いた。図2に示すようにCFRTPシートを対辺110mmの正八角形に切り出し、中心部に位置決め用の孔を開けたものを被加工材とした。

CFRTPシートは室温で絞り加工を行うと容易に破れてしまうため、成形を行う前に基材を融点以上に加熱軟化させることが不可欠である。そこで、作製したCFRTPシートを送風定温恒温器[DKN302, ヤマト科学(株)製]内で190℃、10分間加熱

した。予備加熱終了後、CFRTPシートを速やかにプレス機に設置し、絞り加工を行った。なお、金型温度は室温であった。

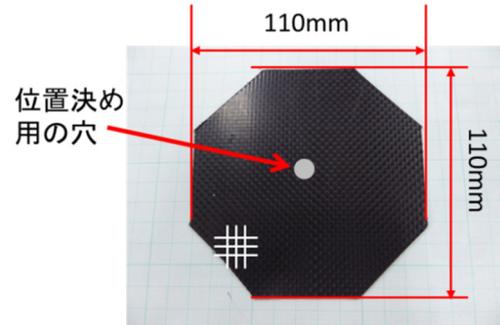


図2 プレス成形に用いたCFRTPシート

表1 プレス成形条件

成形ストローク	20 mm, 25mm, 30mm
プレス速度	40 spm 相当
下死点保持時間	10 秒
しわ抑え力	25 kN(一定)

プレス成形条件を表1に示す。なお、成形後に軟化したCFRTPシートが金型に貼り付くのを防ぐため、成形を行うたびにシリコーン系離型剤を金型に薄く塗布した。

3. 実験結果

3.1 多層フィルムの厚み比率

作製した多層フィルムの厚さは160~180μmであった。個々のフィルム厚さの測定結果をもとに、PA12樹脂層の厚みを1として計算した厚み比率を表2に示す。この表から、各層の厚み比率が大きく異なる三層フィルムが得られていることがわかる。

表2 作製した多層フィルムの厚み比率

フィルム	厚み比率 (PA12/PP/PA12)	(断面イメージ)
No.1	1/23/1	
No.2	1/18/1	
No.3	1/12/1	
No.4	1/7/1	
No.5	1/3/1	

3.2 CFRTP シートのプレス成形性

成形ストローク 20, 25 および 30mm におけるプレス成形結果を表 3 に示す。成形ストローク 20mm の場合、PP 単層フィルムを用いた CFRTP シート[以下、CFRTP(PP)シート]については、外観が良好な製品の創出、基材破れの発生、等と結果にバラツキがあった。また、PA12 単層フィルムを用いた CFRTP シート[以下、CFRTP(PA12)シート]では全て基材破れが生じた。一方、多層フィルムを用いた CFRTP シート[以下、CFRTP(多層)シート]においては、基材破れはほとんど見られず、特に No.3, および 4 においては、外観が良好な成形品を多く作製できた。しかしながら、成形ストロークが大きくなるに伴い、プレス成形性は低下し、成形ストローク 30mm では全てのシートで基材破れが生じた。

成形ストローク 20mm におけるプレス成形品の外観を図 3 に示す。図 3 より、CFRTP(PP)シートでは成形品表面にフィルムの破れが、CFRTP(PA12)シートでは基材の破れの発生が認められる。このような成形不良が発生した原因としては、PP は炭素繊維との接着性が低く、PA12 では炭素繊維への樹脂含浸が十分でなかったためと考えられる。一方、CFRTP(多層)シートでは、No.3 および 4 フィルムを用いた場合にフィルムや基材の破れがなく良好な外観を示す成形品が得られた。

次に、成形ストローク 25mm におけるプレス成形品の外観を図 4 に示す。図より、CFRTP(PP)および CFRTP(PA12)シートに基材の破れが認められる。一方で、CFRTP(多層)シートでは、No.2 フィルムを用いた場合にフィルムや基材の破れがなく良好な外観を示す成形品が得られた。

さらに、成形ストローク 30mm におけるプレス成形品の外観を図 5 に示す。CFRTP(多層)シートでは、No.2 フィルムを用いた場合に、微小な穴が開いているものの外観的に良好な成形品が得られた。

これらのことから、多層フィルム No.2 および 3 といった外層(PA12)の薄い多層フィルムを用いて作製した CFRTP(多層)シートが、他のシートと比較して優れた成形性を示し、良好な外観を有する成形品が得られることがわかった。

フィルムの厚み比率によってプレス成形性に差異が見られた原因について検討するため、JIS K 7075 を参考に作製した CFRTP シートの見かけのボイド率を測定した。測定結果を表 4 に示す。表より、外層である PA12 が厚くなるに伴いボイド率が

増加することがわかる。特に、PA12 単層ではボイド率が 4.4% と高く、このことが基材破れの原因と考えられる。また、ボイド率が最も低いにもかかわらず PP 単層の成形性が悪かったのは、PP と炭素繊維との接着性が悪いためと考えられる。次に、CFRTP シート断面写真を図 6 に示す。成形性が最も良好な No.2 ではボイドは観察されず樹脂がよく含浸していることがわかる。一方で、No.4 では繊維束内部に樹脂が含浸していない部分(未充填部)が観察された。

表 3 プレス成形結果

	PP	No.1	No.2	No.3	No.4	No.5	PA12
成形ストローク 20mm	×○ △	×△ △	△△ ○△	○○ ○○	○○ ○△	○× △	×× ×
成形ストローク 25mm	×× ×	×× ×	△○ △	×× △△	△× △	×× ×	×× ××
成形ストローク 30mm	×× ×	×× ×	×× △	×× ×	×× ×	×	×

○:外観良好, △:軽微な不良(樹脂フィルム破れ等),
×:基材破れ



図 3 プレス成形品の外観(成形ストローク:20mm)



図 4 プレス成形品の外観(成形ストローク:25mm)



図5 プレス成形品の外観(成形ストローク:30mm)

表4 作製したCFRPシートのポイド率

	PP	No.1	No.2	No.3	No.4	No.5	PA12
繊維体積含有率(%)	40.6	-	41.4	40.8	41.7	-	38.5
ポイド率(%)	1.6	-	1.9	2.6	3.2	-	4.4

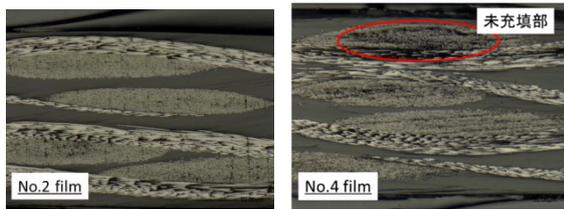


図6 CFRTPシートの断面写真

3.3 金型の温度制御効果

前項の実験結果から、金型温度を室温で行うプレス成形では、成形性が向上しないと判断し、金型の一部を加熱して成形実験を行った。使用した金型を図7に示す。blankホルダにカートリッジヒータ(4本)を取り付け、温調器を用いて60℃一定となるように温度制御を行った。

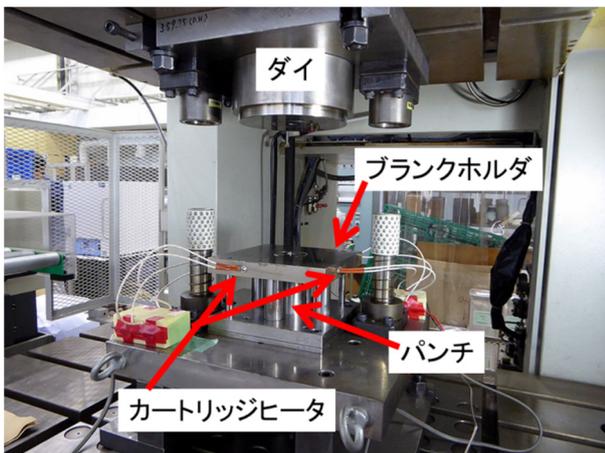


図7 温調プレス成形金型

金型温度が室温および60℃の場合の成形ストローク25mmにおけるプレス成形結果を表5に示す。表より、金型を一部加熱することにより、プレス成形性が大幅に向上することがわかった。プレス成形品の外観を図8に示す。図よりCFRTP(多層)

シートはCFRTP(PP)シートと比較して、良好な外観を有する成形品が得られることが認められる。

CFRTP(PA12)シートについては、金型温度が室温の場合と同様に基材破れが発生しており、金型の加熱による成形性の改善は見られなかった。さらに、成形ストローク30mmの場合をCFRTP(PP)シートについてのみ行ったが、基材破れが発生し成形できなかった。

表5 プレス成形に及ぼす金型温度の影響

(成形ストローク 25mm)

	PP	No.1	No.2	No.3	No.4	No.5	PA12
金型温度: 常温	×× ×	××	△○	×× △△	△× △	××	×× ××
金型温度: 60℃	△△ ○	○○	○○	△△	△○	××	×× ×

○: 外観良好, △: 軽微な不良(樹脂フィルム破れ等),

×: 基材破れ



図8 プレス成形品の外観

(成形ストローク:25mm, 金型温度 60℃)

3.4 CFRTPシートの作製条件再検討

表3におけるポイド率の測定結果に対し、温度制御を行い成形した結果から、プレス成形性をさらに向上させるには、シートのポイド率を下げる必要があると考えた。そのため、熱プレスにおける加熱、加圧条件の再検討を行った。具体的には、成形温度220℃、低圧(0.1MPa)で5分間加熱をし、樹脂を十分に溶解させてから成形温度220℃、成形圧力1.6MPaの条件で10分間加熱、加圧した。新しい成形条件で作製したCFRTPシートを図9に示す。多層フィルムを用いた場合は炭素繊維が押し流されず良好なシート作製が行えた。

多層

PP

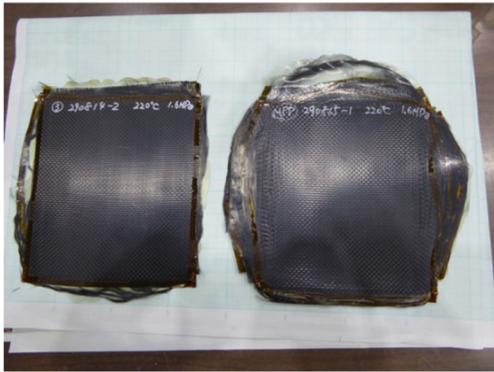


図9 新しい成形条件で作製したCFRTPシートの外観

一方、単層PPフィルムで作製したCFRTPシートは炭素繊維が外側へ押し流されていた。これは、炭素繊維とPP樹脂との接着性が十分でないことが要因と考えられ、加圧時の熔融樹脂の流動に伴ったものと推察される。

新しい成形条件で作製したCFRTPシートのボイド率を表6に示す。表4と比較して、高温・高圧での成形を行うことによりCFRTPシートのボイド率は概ね低下した。

表6 作製したCFRPシートのボイド率(新成形条件)

	PP	No.1	No.2	No.3	No.4	No.5	PA12
繊維体積含有率(%)	51.2	49.5	48.1	47.0	46.5	45.0	44.2
ボイド率(%)	1.3	1.5	2.1	1.5	2.3	3.7	2.3

次に、プレス成形性について調べた。金型温度が室温および60°Cで、成形ストローク30mmにおけるプレス成形結果を表7に示す。表より、金型を加熱することでプレス成形性が大幅に向上することがわかった。併せて、プレス成形品外観を図10に示す。No.2のCFRTP(多層)シートにおいては5回成形を行ったが、1回も外観不良品は発生しなかった。また、成形品の深さは30mmに達し、成形品の直径に対する深さの比率は0.5となった。

3.5 熱電対を用いたCFRTPシートの温度変化測定

金型の温度制御について有効性を確認するため、熱電対を用いてCFRTPシートの温度変化を測定した。まず、図11に示すようにCFRTPシートの両面に熱電対を貼り付けた。貼り付けた位置は絞り加工時のフランジ部に当たるCFRTPシートの縁から10mm離れた場所である。次に、熱電対を貼りつけた

表7 プレス成形に及ぼす金型温度の影響

(成形ストローク 30mm)

	PP	No.1	No.2	No.3	No.4	No.5	PA12
金型温度: 常温	×× ×	×× ×	×× △	×× ×	×× ×	×	×
金型温度: 60°C	○△ △△ ○		○○ ○○ ○	○			×

○: 外観良好, △: 軽微な不良(樹脂フィルム破れ等),
×: 基材破れ



図10 プレス成形品外観

(多層 No.2, 成形ストローク:30mm, 金型温度 60°C)

シートを190°Cに加熱後、恒温器から取り出し、すぐに室温および60°Cの金型に置き、その後の温度変化を測定した。測定結果を図12に示す。図より、金型温度60°Cでは、室温の場合と比較してCFRTPシートの温度の低下が抑えられている。そのため、シートの温度が低下する前にプレス成形を完了させた結果、プレス成形性が向上した。

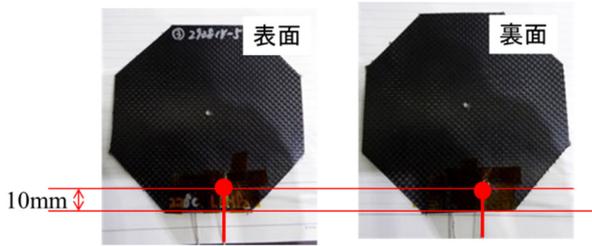


図 11 熱電対貼り付け位置

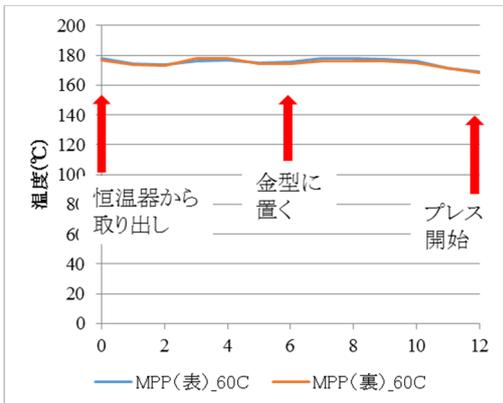
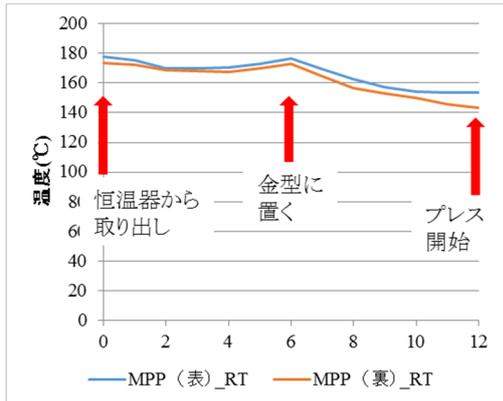


図 12 熱電対を用いた CFRTP シートの温度測定結果
(上:金型温度:室温, 下:金型温度 60°C)

4. 結言

本研究において、PP 樹脂および PA12 樹脂で構成される多層樹脂フィルムをマトリックスとする熱可塑性 CFRP シートの作製およびプレス成形性評価を行った結果、以下のことがわかった。

1. PP 樹脂の両外層に PA 樹脂を配置した三層樹脂フィルムを用いて作製した CFRTP シートは、単層樹脂フィルムを用いて作製した CFRTP シートと比較して、プレス成形性に優れている。
2. 多層フィルムの厚み比率について検討した結果、フィルム外層(PA 樹脂)の厚さが薄い方がプレス成形性は向上する。
3. 金型に対し温度制御を行うことにより、プレス成形性は向上する。

謝辞

本研究は公益財団法人天田財団平成 27 年度一般研究開発助成(AF-2015018)により実施したものであり、ここに感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 米山猛, 型技術, Vol.30, No.5, pp.18-22(2015)
- 2) 新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO) ニュースリリース
http://www.nedo.go.jp/news/press/AA5_100221.html
- 3) 馬場俊一, 精密工学会誌, Vol.81, No.6, pp.503-506 (2015)
- 4) 圖子博昭ほか, 日本複合材料学会誌, Vol.32, No.4 pp.153-162(2006)
- 5) 奥村航ほか, 繊維学会誌, Vol.69, No.9, pp.177-182 (2013)