

# CFRTP の低コスト成形加工技術の開発 (第 1 報)

## 熱可塑性樹脂エマルジョンによる炭素繊維中間材料の開発

田上真二, 松田亮治<sup>\*1</sup>, 池田慎哉, 佐々木秀和<sup>\*2</sup>

## Development of low-cost molding process of CFRTP I

### Development of manufacturing process of CFRTP intermediate material by thermo-plastic resin emulsion

TAGAMI Shinji, MATSUDA Ryouji<sup>\*1</sup>, IKEDA Shinya and SASAKI Hidekazu<sup>\*2</sup>

We have developed the dipping process of thermoplastic resin emulsion to the carbon fiber tape continuously. To make the test boards, we laminated the tape by emulsion process and the cloth made of Nylon6, then investigated those bending and impact strength characteristics. As a result, the bending and impact strength characteristics of CFRTP boards made from the tape by emulsion process were superior to those of CFRTP boards made with the non-emulsion resin impregnated tape.

炭素繊維トウを引き揃えて、連続で熱可塑性樹脂エマルジョンを含浸する方法を考案し、作製したエマルジョン処理テープ (EMCF テープ) とナイロン布 (ナイロン6 製) を交互に積層することによって、CFRTP (炭素繊維強化熱可塑性プラスチック) 板を作製し、その曲げ特性及び耐衝撃特性を調べた。その結果、エマルジョン処理をしたテープで作製した CFRTP 板は、処理しないテープで作製した CFRTP 板よりも短時間の熱プレスにおいても曲げ特性が優れていた。また、耐衝撃特性においては、EMCF テープとナイロン布を交互に積層して作製した CFRTP 板は、市販のナイロン6 の熱可塑性プリプレグを積層して作製した CFRTP 板よりも耐衝撃特性が優れていた。

キーワード：炭素繊維複合材料，熱可塑性樹脂，中間基材，エマルジョン

## 1. 結 言

炭素繊維は軽量かつ高強度 (比重：CF1.75, 鉄 7.8, 引張強さ：CF3.5GPa, 鉄 0.6~1.0GPa) を兼ね備えた素材であり、炭素繊維を樹脂で固めた炭素繊維強化複合材料 (CFRP) は、安全性の確保に留意しつつ成形すれば軽量化による燃費の大幅な改善が見込めることから航空機への適用が広がっている。しかし、繊維を固める樹脂 (マトリックス樹脂) として従来の熱硬化性樹脂を用いた CFRP では、加工性に乏しく成形時間が長くなり、リサイクルも困難なため、用途が限定されていた。

近年、自動車産業では、車体の軽量化が強く求められており、短時間で成形が可能な熱可塑性樹脂を用いた炭素繊維強化複合材料 (CFRTP) の適用が期待されている<sup>1)2)</sup>。

性能の良い CFRTP を成形するには、炭素繊維同士の隙間にマトリックス樹脂がよくしみ込み、成形品内の小さな空隙 (ポイド) を無くすることが重要である。そこで、

含浸性の良さに期待して熱可塑性樹脂エマルジョンを用いた中間材料の製造方法とその効果について検討し、炭素繊維トウにあらかじめ熱可塑性樹脂エマルジョンを含浸することによって、短い成形時間でポイドの少ない CFRTP 板を得ることができた。さらに耐衝撃性向上効果もあったので、その結果について報告する。

## 2. 実験方法

### 2.1 熱可塑性樹脂、炭素繊維及び熱可塑性プリプレグ

熱可塑性樹脂エマルジョンとしては、ナイロンエマルジョンを用い、また熱可塑性マトリックス樹脂としてナイロン製の布 (ナイロン6 製染色堅牢度試験用添付白布、平織り、厚さ：約 0.1mm) を使用した。サイジング処理した炭素繊維としては、三菱レイヨン (株) 製炭素繊維トウ TR50S15L (15K, 幅約 7mm) を用いた。中間基材として比較する熱可塑性プリプレグとしては、連続炭素繊維にナイロン6 樹脂を含浸させた A 社及び B 社の市販の熱可塑性プリプレグ (30cm 角, 厚さ 0.125mm) を用いた。

### 2.2 熱可塑性樹脂エマルジョン含浸方法

図 1 に示す樹脂含浸装置を用いて、炭素繊維トウにナイロンエマルジョンを含浸した。

\*1 東部工業技術センター技術支援部

\*2 東部工業技術センター加工技術研究部

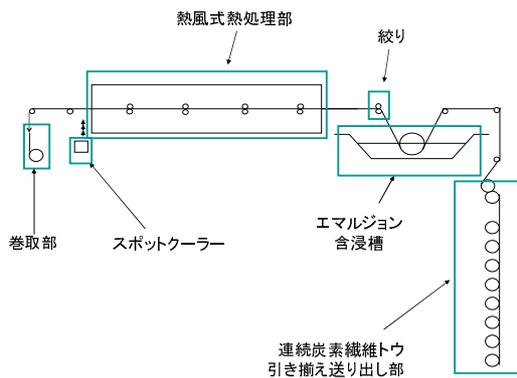


図1 樹脂含浸装置のイメージ

テープ状の中間材料を得るために、連続炭素繊維トウを8本引き揃えた後、ナイロンエマルジョンを含浸した。次いで、ナイロンエマルジョンが含浸された炭素繊維トウを絞り、余分なナイロンエマルジョンを除去した後、熱風式熱処理部でエマルジョン中の樹脂成分（以下、エマルジョン樹脂）を融点以上の温度で熱処理後、スポットクーラーで冷却して、炭素繊維の隙間にエマルジョン樹脂が含浸された EMCF テープ（幅：約 56mm、厚さ：約 0.125mm）を作製した。

絞りの隙間を最も狭めたときの、エマルジョン樹脂の樹脂付着率は、元の炭素繊維トウの重量に対して約 9% であった。

## 2.3 CFRTP 板の作製

### 2.3.1 曲げ試験用 CFRTP 板の作製

EMCF テープを使用した CFRTP 板は、EMCF テープを 4～5 枚並べて、半田ごてにより部分接着し、20cm 角のシート状の炭素繊維強化材料（EMCF シート）を作製した。次いで、図 2 のように EMCF シートの上にマトリックス樹脂として 20cm 角のナイロン布を部分接着して重ね、その上にさらに EMCF シートを炭素繊維が同一の方向に配列されるように重ねて配置して、EMCF シートが 10 枚、ナイロン布をそれぞれの EMCF シートの間に 9 枚重ねて仮留めした。この積層体を 20cm 角、厚さが 1mm の型に入れ、温度 235℃以上、圧力 6MPa で 40 分間または 8.5 分間、熱プレスを行い、厚さが約 1mm の一方方向 EMCF 成形平板を作製した。

また、上で述べた EMCF テープによる CFRTP 板の作製方法と、フィルムスタッキング法（FS 法）<sup>3)</sup>による作製方法の特性評価の比較のため、エマルジョン樹脂を含浸していない炭素繊維を使用した CFRTP 板（FS 成形平板）を作製した。この FS 成形平板の作製は次のようにして行った。

まずマトリックス樹脂として 20cm 角のナイロン布を用い、その上に 20cm の炭素繊維トウを並列させて、その端部を固定した。次いでその上にナイロン布を重ね、その上にさらに炭素繊維トウの繊維が同一の方向に配列され

るように、炭素繊維トウを並列させてその端部を固定していき、炭素繊維トウシートが 10 枚、ナイロン布をそれ

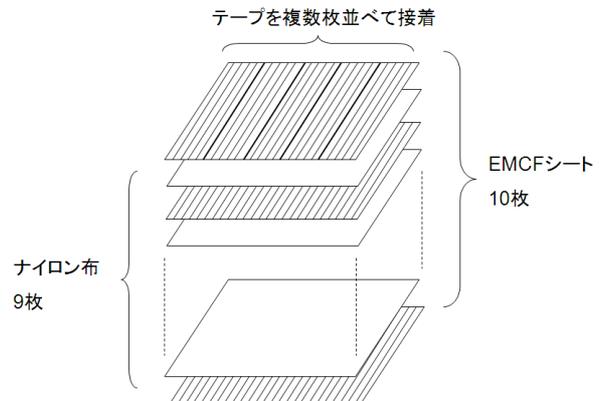


図2 EMCF シートを使用した曲げ試験用 EMCF 成形平板のイメージ

ぞれの炭素繊維シートの間と上下最外層に各 1 枚、計 11 枚重ねて仮留めした。この積層体を 20cm 角、厚さが 1mm の型に入れ、温度 235℃以上、圧力 6MPa で 40 分間あるいは 8.5 分間、熱プレスを行い、厚さが約 1mm の一方方向 FS 成形平板を作製した。

使用した熱プレス装置の温度プロファイルを図 3 に示す。加熱を 30 分後に停止した場合と 4 分後に停止した場合の 2 種類の温度曲線を示す。ナイロン 6 が十分に熔融している温度、すなわち 235℃以上の時間が 40 分間ものものを長時間プレス、235℃以上の時間が 8.5 分間ものものを短時間プレスとした。これは、プレス時間が樹脂の含浸状態および曲げ特性に及ぼす影響を見るために行った。

なお、このプレス装置は自然冷却しかできないため、図のような温度曲線になった。

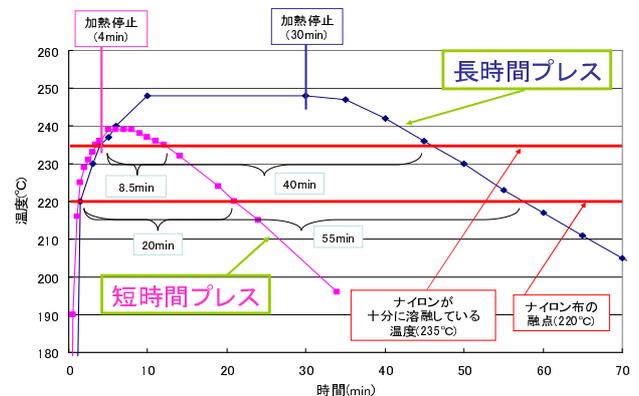


図3 使用したプレス装置の温度プロファイル

### 2.3.2 耐衝撃試験用 CFRTP 板の作製

耐衝撃試験用 CFRTP 板は、EMCF テープを使用し、曲げ試験用試料と同様に 25cm 角の EMCF シートを作製し、こ

それを16枚用意して炭素繊維が直交する方向に重ねて配置した後、それぞれのシートの上に25cm角のナイロン布を挟み込んで交互に積層し、この積層体を大きさが25cm角の型に入れ、245℃、10分間加熱後、同温度、圧力6MPaで5分間熱プレスした後冷却し、厚さが約2mmの直交EMCF成形平板を作製した。

耐衝撃試験比較用CFRTP板作製は、まず2種類の市販の熱可塑性プリプレグを25cm角に切り出し、プリプレグの炭素繊維が直交するように、プリプレグを16枚重ねて配置した。この積層体を、大きさが25cm角の型に入れ温度245℃で10分間加熱後、同温度、圧力6MPaで5分間熱プレスした後冷却し、厚さが約2mmのプリプレグ成形平板を作製した。

#### 2.4 CFRTP 積層板の断面観察

CFRTP積層板の断面のボイドの状態を見るためにレーザー顕微鏡（オリンパス（株）製OLS4000 LEXT）により行った。

#### 2.5 曲げ試験

静的特性として、曲げ強度と曲げ弾性率を求めた。

曲げ試験片として、一方向のFS成形平板とEMCF成形平板において繊維方向が試験片長手方向となるよう、幅15mm、長さ60mmの短冊状に切り出した。板厚は約1mmである。試験は、JIS K7074に準拠した三点曲げ試験法により、支点間距離40mm、試験速度5mm/minの条件で行った。

#### 2.6 耐衝撃試験

耐衝撃試験はJIS K7085に準拠して行った。具体的には、熱プレス処理を行った厚さ2mmの直交EMCF成形平板とプリプレグ成形平板を100×100mmに切り出して試験片とし、この試験片を50℃で8時間乾燥させ、23℃に温調された試験室で温度が一定になるまで1時間放置した後、耐衝撃性試験機（東洋精機製作所（株）製GRAPHIC IMPACTTESTER B）を使用して、落錘衝撃試験を行った。なお、試験機におけるホルダー径を76mm、ストライカー径12.7mm、ウェイト重量6.5kg、落下高さ100cmに設定して行った。

### 3. 実験結果と考察

#### 3.1 CFRTP 積層板の断面観察結果

写真1の(1)、(2)において、黒いところはボイド、グレーのところでは樹脂が含浸していると考えられる<sup>3)</sup>。FS成形平板では、ボイドが数多く見られるが、写真1の(3)、(4)EMCF成形平板では、長時間プレスも短時間プレスもボイドがほとんどないことが確認できた。

#### 3.2 CFRTP 積層板の曲げ特性

表1に試作したCFRTP積層板の曲げ試験結果を示す。なお、表に示すVf（繊維体積含有率）は、プレス前の樹脂と炭素繊維の重量及び比重から計算した値である。

表1に示すように、EMCF成形平板では、短時間及び長

時間の成形いずれの場合も、FS成形平板に比べて、曲げ強度及び曲げ弾性率の値が大きく、静的強度が良好である。

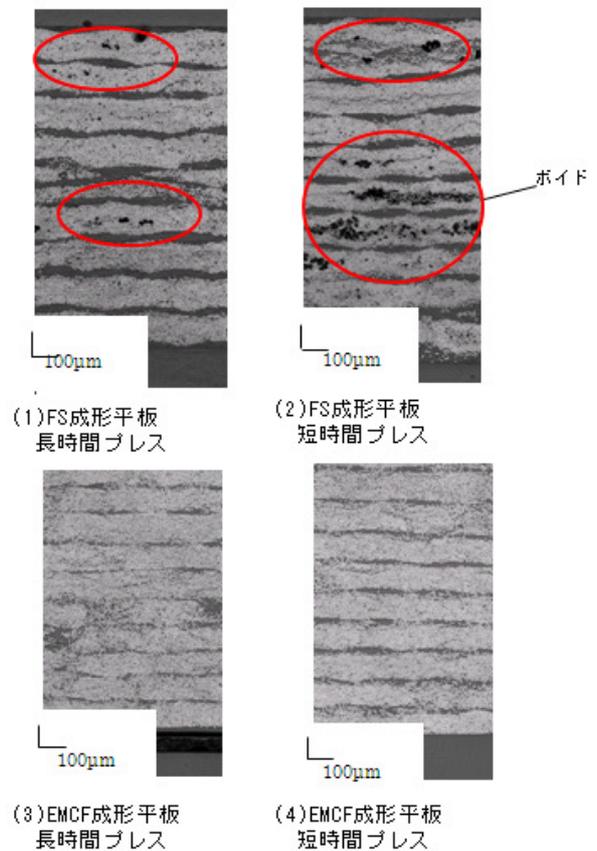


写真1 CFRTP 積層板の断面観察

表1 試作したCFRTP 積層板の曲げ特性

プレス条件	長時間プレス	短時間プレス
高温(235℃以上) の時間	40分	8.5分
FS成形平板(10層)	強度 1181MPa 弾性率 93GPa Vf=57%	強度 486MPa 弾性率 78GPa Vf=57%
EMCF成形平板 (10層)	強度 1335MPa 弾性率 115GPa Vf=58%	強度 1259MPa 弾性率 107GPa Vf=58%

このことから、エマルジョン処理により成形時間が短縮できる可能性があることがわかった。

#### 3.3 耐衝撃性試験結果

耐衝撃性試験の結果を表2に示す。

表2に示すように、耐衝撃性試験の結果は、EMCFテープを使用したEMCF成形平板の衝撃強度が市販のナイロンプリプレグを使用したプリプレグ成形平板よりも、全吸収エネルギーが高かった。

今後、EMCF 成形平板の衝撃強度が高くなるメカニズムを解明するとともに、さらに高い耐衝撃特性を有するCFRTP板の開発を行っていく予定である。

表 2 耐衝撃性試験結果

	全吸収エネルギー (J)
EMCF 成形平板	27.78
市販プリプレグ成形平板 A	21.25
市販プリプレグ成形平板 B	14.73

## 文 献

- 1) 山口晃司：自動車技術，61(10)，21-25 及び 26-31 (2007) .
- 2) 河野洋輔ほか 9 名：第 3 回日本複合材料合同会議 (JCCM 3) 講演論文集，京都市，2012，p. 188-191.
- 3) 繊維学会編：繊維便覧第 3 版，丸善，2004，p. 629-631.

## 4. 結 言

炭素繊維トウを引き揃えて、連続で熱可塑性樹脂エマルジョンを含浸する方法を考案した。その方法で作製した EMCF シートとナイロン布を交互に積層することによって、一方向積層板及び直交積層板を作製し、その曲げ特性及び耐衝撃特性等を調べた結果、あらかじめエマルジョンを含浸したテープを使用して作製した EMCF 成形平板は、エマルジョン処理をせずに作製した FS 成形平板よりもボイドが少なく、短時間の熱プレスで曲げ特性に優れた成形板を得ることができ、かつ市販のプリプレグを用いた成形体よりも耐衝撃特性に優れていた。

今後は、エマルジョン含浸技術を利用して、耐衝撃特性に優れた自動車用部品の開発を行っていく予定である。