

現場重合型熱可塑性ウレタン樹脂をマトリックスとするGF RTP プリプレグの連続成形に関する研究

日大生産工(院) ○有働 大輝 日大生産工 平山 紀夫

1. 諸言

近年、世界規模での温室効果ガス排出量削減や燃料価格高騰の問題に対応するため、自動車や航空機等の構造部材の軽量化が重要な課題となっている¹⁾。この課題を解決する手段の一つとして、比強度・比剛性に優れた繊維強化熱硬化性プラスチック(Fiber Reinforced Plastic: FRP)の適用が検討されている。現在、品質の高いFRPを成形できることから予め繊維に樹脂を含浸させた状態で供給されるプリプレグを用いた成形法が、自動車の構造材料として適用されている²⁾。しかしながら、これまでに実用化されているプリプレグの多くは熱硬化性樹脂を母材としているため、成形後は再溶融が不可能であり再利用、二次加工が困難である。そのため、再溶融が可能である熱可塑性樹脂を用いたプリプレグが開発されているが、溶融粘度が非常に高く、連続繊維への含浸・成形には高温・高圧の成形設備を要するため、製造コストが高くその用途は限定的である³⁾。

本研究では、従来の熱可塑性樹脂の含浸性の問題を改善した現場重合型熱可塑性ウレタン樹脂(以下、PU樹脂)を用いた熱可塑性プリプレグ(以下、PU-プリプレグ)の連続成形方法を考案し、PU-プリプレグを用いて成形したガラス繊維強化熱可塑性プラスチック(以下PU-GFRTP)の機械的特性を評価した。

2. 実験

2.1 母材樹脂と強化剤

FRTPの母材樹脂としてPU樹脂(第一工業製薬株, H-6FP22)を用いた。一方、強化材にはガラス繊維ロービング(日東紡績株, RS 1100QL-520AS)を用いた。以上の母材樹脂と強化材を用いた。

2.2 成形方法

2.2.1 PU-プリプレグ成形

本研究では、図1に示す連続引抜成形機を用いた。PU樹脂は、主剤と硬化剤の2液を混合させる必要があるため、配合比に応じた樹脂量を

定量送液ポンプにて送液し、スタティックミキサーを通過し混合させる。混合後は、ボビンから繊維体積含有率(V_f)が60%になるように供給したガラス繊維ロービングの表面に樹脂を滴下させ、常温下で複数の含浸ローラーを用いて含浸させる。この時、連続的な引抜成形を実現するため、ローラー一部などで滞留する樹脂が可使用時間に達する前に流し出す必要があるため、樹脂を滴下させる部分を3ヶ所に分けることで、新たな樹脂を供給し続け、滞留する樹脂の流動を促した。型設計は、繊維投入口付近で滞留する樹脂の流動を保つため、水冷管を設け、25°C付近を保つようにした。また、型とPU-プリプレグの離型性を考え、加熱ヒータ棒と接するアルミニウム合金部と成形品と接するPTFE部の2つの部品により型を構成した。次に型入口から出口にかけて40°Cから80°Cの温度分布を持った型内で、幅14~15mm、厚さ0.5~0.7mmのPU-プリプレグとして成形した。

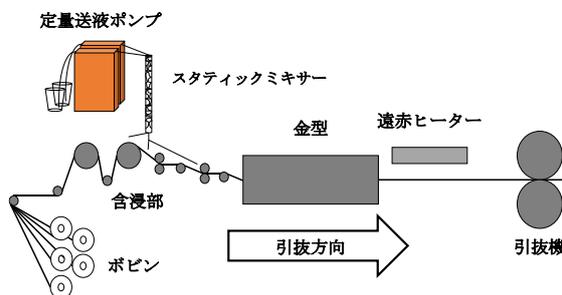


図1 連続成形機概略図

2.3.2 PU-GFRTP成形

引抜成形の型による加熱だけではPU樹脂の硬化のための加熱時間が不足するため、プレス機にて2次硬化を行い、一方向強化GF RTP (PU-GFRTP)を製作した。また、プレス成形条件を探索するべく、表1に示す成形条件で成形を行った。

Study on continuous molding of GF RTP prepreg with *in-situ* polymerized thermoplastic urethane resin as matrix

Taiki UDOU, Norio HIRAYAMA

3. 試験

3.1 繊維体積含有率(V_f)の測定

V_f の測定は、JIS K7052に準じて燃焼法により行った。燃焼法による計測の結果、PU-プリプレグは、約53%であったため、概ね目標としていた V_f の成形品が得られることを確認した。

3.2 引張試験

静的引張試験はJIS K7165に準拠し、試験片寸法は、全長230mm、幅15mm、板厚0.5mmとし、成形品の両端部40mmの部分にアルミニウムタブを両面に接着することでチャック部の応力集中による破壊を防いだ。試験機はサーボパルサー（株島津製作所、EFH-EG100KN-20L）を使用し、試験速度は2mm/sで行った。

3.3 光学顕微鏡による断面観察

試作したPU-GFRTPの含浸状態を評価するために、光学顕微鏡による断面観察を行った。断面観察は、光学顕微鏡（GX51, OLYMPUS）を使用して倍率20倍で行った。

4. 結果および考察

成形したPU-GFRTPの各温度条件の引張試験結果を図2に示す。この結果より、160°C/10分で成形したPU-GFRTPが最も高い引張強度約946MPaを示し、最も低い引張強度を示した120°C/10分の約798MPaと比べると約16%の差が生じていた。この原因を調査するべく各温度条件で、断面観察を行った結果を図3~6に示す。これらの図から明らかなように、160°C/10min以外の成形品では多数のボイドが確認された。PU樹脂はガラス転移温度(T_g)を約150°Cにもっているが120°C/10minおよび60minでは、加熱温度が足りず、樹脂の軟化が十分ではないため、ボイドが抜けきらずこのような結果になったのではないかと考えられる。次に180°C/10minの成形品には、大きなボイドが確認された。これは連続成形機内で未反応のモノマーが、180°Cという高温に急激に晒されることで、揮発してしまっていると推測される。これらの結果から、PU-プリプレグを用いたPU-GFRTPの成形は、PU樹脂のガラス転移温度(T_g)である150°C以上、未反応モノマーの揮発する180°C以下である160°Cが適切であると推測される。

5. 結言

PU-プリプレグの成形およびPU-プリプレグを用いたPU-GFRTPの試作を行い、機械的特性の評価を行い、以下の結論を得た。PU-GFRTPの成形には、PU樹脂のガラス転移温度(T_g)であ

る150°C以上、未反応モノマーの揮発する180°C以下である160°Cが適切であると推測される。

参考文献

- 1) 石川隆司, 航空機における先進複合材料の適用の新展開, 日本船舶海洋工学会誌, 26, 2009, p.27-32
- 2) 影山裕史, 自動車用CFRP技術の最新動向「自動車用の材料技術について」53, 12, 2014, p.612-615
- 3) 西田裕文, 熱可塑性エポキシ樹脂及びそれを用いた連続繊維強化熱可塑性プラスチックの開発, 日本接着学会誌, 51, 12, 2015, p.516-523

表.1 PU-GFRTP成形条件

成形品		PU-GFRTP			
使用樹脂		H-6FP22			
成形温度	°C	120	120	160	180
時間	min	10	60	10	10

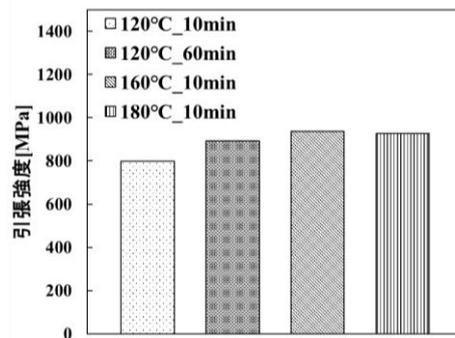


図2 引張強度の比較

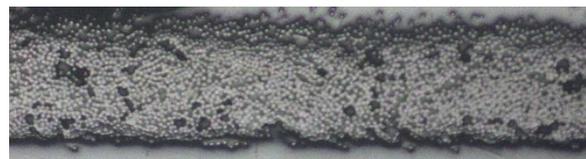


図3 120°C_10min成形品断面写真

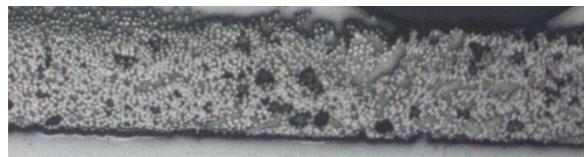


図4 120°C_60min成形品断面写真



図5 160°C_10min成形品断面写真

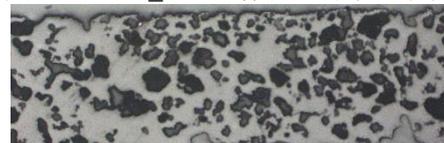


図6 180°C_10min成形品断面写真