

現場重合型熱可塑性樹脂を用いた FRTP の連続成形法の開発と機械的特性の評価

日大生産工(院) ○太田智大 日大生産工 平山紀夫 金沢工業大学 西田裕文, 鵜澤潔
第一工業製薬株式会社 山田欣範, 竹川淳

1. 緒言

繊維強化熱可塑性プラスチック(FRTP)は、比強度・比剛性に優れ、二次賦形や再利用が可能であることから、金属材料に変わり構造部材として更なる軽量化実現が望めるため注目を集めている。しかしながら、FRTPの母材となる熱可塑性樹脂は、ペレットやフィルムなどの高分子状態で供給されるために、熔融時の粘度は熱硬化性樹脂と比較して非常に高く、繊維への含浸状態が機械的特性に直接影響するFRTPの成形においては、熔融粘度の高さが問題とされていた。近年では、一般的な熱可塑性樹脂とは異なり、成形時には低分子状態であるため低粘度液状を実現し、繊維へ含浸後は、直鎖状の高分子状態へと速やかに重合する現場重合型熱可塑性樹脂が新たに開発されている。また、最近では、樹脂の重合温度(約120°C)よりも高いガラス転移温度(T_g) (160°C以上)を有する現場重合型の熱可塑性ウレタン樹脂が開発された。この熱可塑性ウレタン樹脂を用いれば、FRTPを加熱重合後すぐに脱型しても成形品は十分な硬度を有しており形状変化の心配がない。このように、重合温度よりも高い T_g となることを利用することで、従来では適用ができなかった様々なFRTPの成形法が実現可能である。

本研究では、熱可塑性ウレタン樹脂の特徴を活かし、高い生産性を実現できるシート状一方向強化連続繊維プリプレグの連続引抜成形法を考案した。加えて、成形した一方向強化連続繊維プリプレグを用いてFRTPを成形し、その機械的特性を取得、評価した。

2. 実験方法

2.1 母材樹脂と強化材

FRTPの母材樹脂として現場重合型熱可塑性ウレタン樹脂(第一工業製薬株, H-6FP22)を用いた。一方、強化材としては、ガラス繊維ロービング(日東紡績株, RS 110QL-520AS)を用いた。

2.2 成形方法

現場重合型熱可塑性ウレタン樹脂(PU樹脂)を用いたプリプレグ(PU-Prepreg)の成形には、Fig.1.に示す連続引抜成形機を用いた。プリプレグの繊維体積含有率(V_f)は60%になるように繊維供給を行った。PU樹脂は、A材とB材の2液を攪拌させる必要があるため、送液機にて配合比に応じて送液機により送液し、スタティックミキサーを通して攪拌させた。PU樹脂は、攪拌した瞬間から重合反応が始まるため、連続的な引抜成形を行うには、ポットライフに達する前に新たな樹脂を供給し続け、滞留する樹脂を流し出す必要がある。そのため、樹脂を滴下させる場所を3ヶ所に分けることで、滞留する樹脂の流動を促した。その後、複数の含浸ローラを用いて、ガラス繊維に含浸させた。

型設計としては、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-Prepregの離型性や引抜時の繊維との摩擦軽減などを考慮し、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つのパーツにより型を構成した。次に、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のプリプレグとして成形する。また引抜成形の型による加熱だけでは樹脂の硬化のための加熱時間が不足するため、加熱温度120°C、加圧時間60分の条件で加圧・加熱をプレス機にて行い一方向強化GFRTP(PU-GFRTP)を製作した。

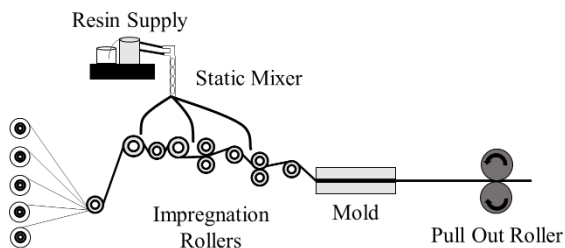


Fig.1. Schematic of Continuous Forming Machine.

Development of Continuous Forming Method of FRTP using *in-situ* Polymerizing and Evaluation of Mechanical Properties.

Tomohiro OTA, Norio HIRAYAMA, Hirofumi NISHIDA and Kiyoshi UZAWA
Yoshinori YAMADA, Tadashi TAKEKAWA

3. 試験方法

3.1 引張試験

成形品の機械的特性を評価するため、JIS K7165に準じて引張試験を行った。試験体寸法は、全長230mm、幅15mm、板厚0.5mmとし、チャック部の応力集中による破壊を防ぐため、全長40mmのアルミ製のタブを試験体に接着剤で接着した。試験片本数は5本で試験を行った。

3.2 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-Prepreg 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。

4 実験結果および考察

成形したPU-GFRTPの引張試験の結果を、評価するべく、理論引張強度との比較を行った。理論値の算出には、繊維と樹脂が完全に接着していると仮定して次式に示す複合則を用いた。

$$\sigma_c = \alpha \sigma_{fu} V_f + (\sigma_m)_{fu} (1 - V_f)$$

ここで、 α は繊維形態によって決まる係数（一方向強化は $\alpha = 1.0$ ）、 σ_{fu} は繊維の引張破壊応力、 $(\sigma_m)_{fu}$ は繊維破断伸びに対する樹脂破壊応力、 V_f は繊維体積含有率である。複合則を用いて計算した引張強度の理論を求めて、実験値と比較した結果を、Fig.2に示す。

引張試験の結果、PU-GFRTPの引張強度は、平均値892MPaを示した。複合則より算出した引張理論強度2067MPaと比較して約43%程度の低い値となった。PU-GFRTPの引張試験の結果が理論値と比較して低い原因を推定するために、PU-GFRTPおよびPU-Prepregの断面観察を行った。Fig.3(a),(b)には走査型電子顕微鏡と光学顕微鏡による断面観察結果を示す。この図から、Fig.3(a)ではPU樹脂の接着性は良好であり、繊維の輪郭に樹脂が多く付着していることが確認できる。しかしながら、Fig.3(b)に示すように、PU-GFRTPおよびPU-Prepregの断面からは多数のボイドが確認された。

一方、Fig.4(a),(b)には連続引抜成形の樹脂含浸ローラ付近と型出口付近のPU-Prepregの状態を示す。Fig.4(a)からは、含浸ローラ付近において、PU樹脂がガラス繊維に十分に含浸していることが確認できる。しかしながら、Fig.4(b)からは、型出口において多数の細かなボイドが確認された。このため、PU-Prepregは成形型内で多数のボイドが発生したと推定される。この原因として、PU樹脂は、水分と

反応し発泡するため、重合反応が急速に進む型内で大気中の水分が付着したガラス繊維表面で樹脂が反応し、ボイドが発生したと推測される。

5 結言

本研究では、現場重合型熱可塑性ウレタン樹脂 (PU樹脂) を用いて連続引抜成形方法を行いPU-GFRTPを成形し、機械的特性の比較・評価を行った。その結果、以下の結論が得られた。

1. PU樹脂は、熱可塑性樹脂でありながら低粘度であり、簡易な含浸ローラ設備であっても良好な含浸性を示した。また、断面観察の結果から PU樹脂の優れた接着性を確認した。
2. PU-Prepreg を用いて成形した、PU-GFRTPは、ボイドが確認され、理論強度の約 43%を示す結果となった。ガラス繊維表面の水分が問題である可能性から、成形条件や繊維処理などの再検討が必要である。

参考文献

- 1) 三井物産戦略研究所,西野浩介,世界の自動車燃費規制の進展と電動化の展望, (2018)
- 2) 中村ら,現場重合型ポリアミド6をマトリックスとする FRTP の機械的特性,日本複合材料学会誌 35,5 (2009) 195-202
- 3) 西田裕文,日本接着学会誌,51,12, (2015),p.516-523

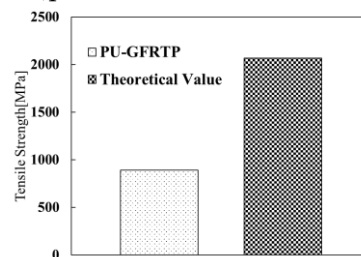


Fig.2. Comparison of Tensile strength.

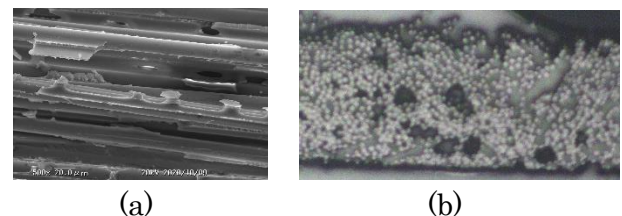


Fig.3. Observation of cross section for PU-GFRTP.

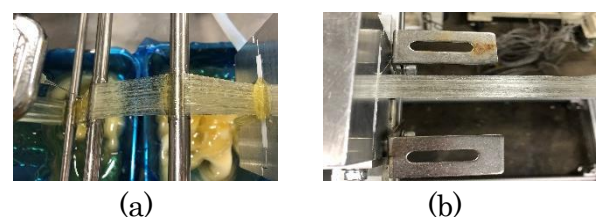


Fig.4. Molding of PU-Prepreg.