

編織技術を活用した炭素繊維強化樹脂の加工性向上に関する試験研究

青木 邦知* 仁平 敬治* 飯村 修志* 中野 睦子** 篠塚 雅子**

1. はじめに

炭素繊維強化樹脂（以後 CFRP）は、軽量高強度な炭素繊維とプラスチックを複合化した優れた素材である。現在、軽量化を目的に航空宇宙・次世代自動車等、種々のものづくり産業において活用が進められており、今後の需要拡大が期待できる。

しかしながら、現在、広く行われている熱硬化性樹脂を用いた CFRP は成形プロセスが大量生産には向かず、限られた用途に使われているに留まっている。また、炭素繊維は、国内のメーカーが世界シェアの約7割を有しているにもかかわらず、CFRPの加工については主に欧米が先行しているのが実状であり、国内での成形・加工技術の向上が望まれている。

2. 目的

本研究では、中小企業の参入を促すため、生産性が高いと言われている熱可塑性樹脂を用いた CFRP の成形加工に必要な基礎的データの蓄積、量産化に資する既存加工技術の転用等を進めるとともに、編織技術を活用した新たな炭素繊維クロス部材を作製し、成形性、加工性を向上させることを試みる。

今年度は、基礎データの収集のために、熱可塑性樹脂を用いた CFRP シートの作製、作製したシートの評価（断面観察、引張試験、曲げ試験）を実施した。また、新基盤技術の確立を目指し、作製したシートを用いたプレス成形実験を実施した。

3. 研究内容および研究結果

3.1 CFRP シートの作製

3.1.1 CFRP シートの作製方法

CFRP シートは図1に示したように炭素繊維クロスと樹脂フィルムを交互に積層したものを、加熱、プレスして作製した。

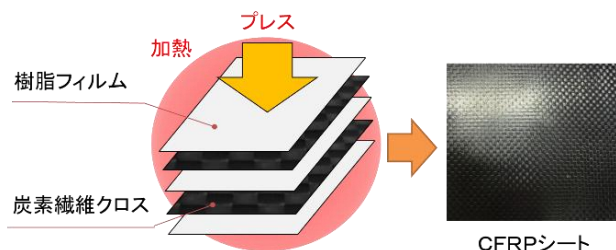


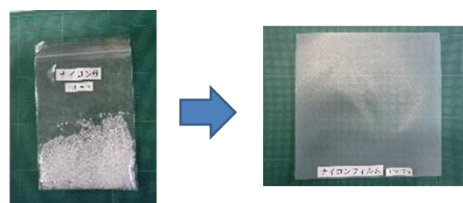
図1 CFRP シートの作製

シート作製に用いた炭素繊維クロスは、図2に示した小型レピア試織機（以後 CFRP 試織機：H25年度地域オープンイノベーション促進事業により導入）を用いて、3種類の織り方（平織、綾織、朱子織）のものを用意した。クロスの大きさは150×150 mmとした。



図2 小型レピア試織機（CFRP 試織機）

シート作製に用いる樹脂フィルムについては、図3に示したように、原料として流動性の高いグレードのナイロン6を選定し、ペレットから熱間プレスを用いて厚さおよそ100 μmのシートを成形した。



ナイロンペレット 作製した樹脂フィルム

図3 樹脂フィルムの作製

3.1.2 CFRP シートの作製時の課題と対策

熱可塑性樹脂を用いた CFRP シートの作製にあたっては、樹脂の粘性が高いため、含浸しにくいという課題がある。炭素繊維のクロスに溶解した樹脂を含浸しやすくするためには、マトリックスとなる樹脂に、流動性の高い樹脂を使うことが1つの方策である。また、他の方法として、炭素繊維のサイジング剤を除去する方法がある。炭素繊維は複数の細かい繊維を束ねて1本の糸としており、それらのまとまりをよくするためにサイジング剤と呼ばれる糊のようなものが用いられている。そのサイジング剤がクロスへの樹脂の含浸を阻害するとの報告がある¹⁾。サイジング剤を除去する方法としては、薬品を使うなどの方法があるが、本研究では、簡便な方法として、加熱により除去する方法を採用した。

サイジング剤を除去するための加熱温度決定のために、炭素繊維の加熱による重量変化を熱重量分析装置を用いて調べた。その結果を図4に示した。

炭素繊維は200℃付近から重量が減少し始め、その後300℃付近から急激に下がっているのが分かる。この重量減少がサイジング剤の減少と考えられる。一方、450～500℃の重量減少は、炭素繊維自身の重量が酸化されることにより減少しているためと考えられる。こ

* 素材開発部門 ** 紬技術部門

これらの結果からサイジング剤を除去するための加熱温度は、電気炉により 350℃ に設定した。加熱処理の結果、加熱前の炭素繊維は細かい繊維が束となってまとまっていたが、加熱後の外観を見ると全体的に繊維がふっくらとまとまりのない状態に変化しており、サイジング剤が除去できていることが確認できた。

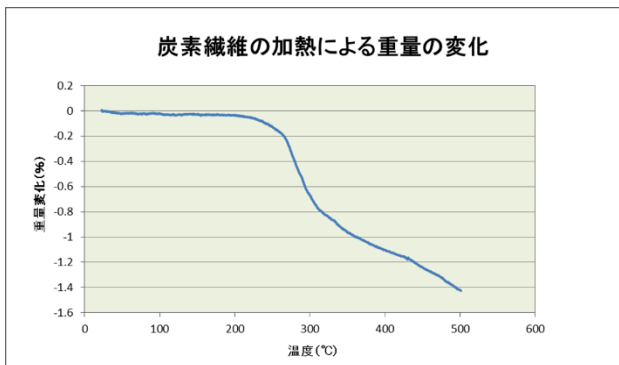


図4 炭素繊維の加熱による重量変化

3.1.3 CFRP シート作製時の条件設定

CFRP シート作製における加熱プレスの際には、炭素繊維に樹脂を含浸させるために、積層したシート材料を樹脂の融点以上の温度で保持する必要がある。そこで、樹脂フィルムに使用したナイロン6の融解ピーク温度を調べるために示差走査熱量計 (DSC) を用いた分析を行った。図5にその結果を示した。

図5より、融解ピーク温度は 225℃ 付近であることが分かった。また、今回使用したナイロン6の分解温度は 300℃ 程度である (ユニチカ樹脂事業部ホームページナイロン6成形条件より) ことから、樹脂の含浸温度は 240℃ とした。

これらの条件で、加熱プレスすることにより図1に示すような CFRP シートを作製した。

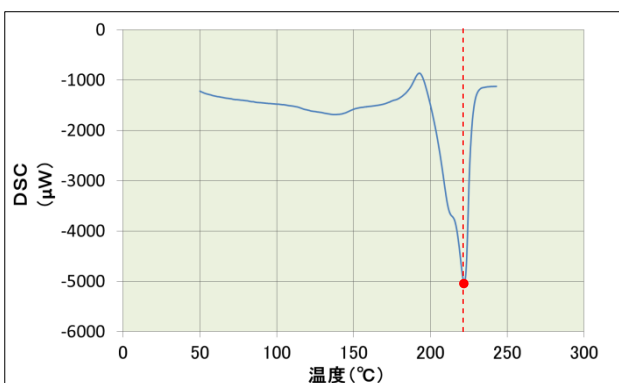


図5 ナイロン6のDSC分析結果

3.2 CFRP シートの評価

3.2.1 断面観察

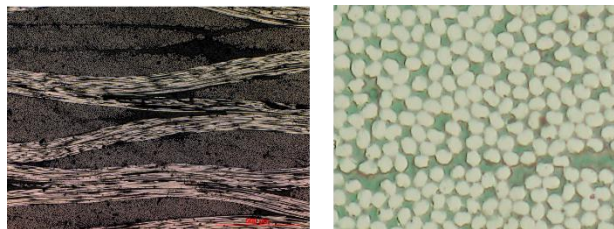
作製した CFRP シートの積層状態を評価するために、断面観察を行った。結果を図6, 7, 8に示した。断面観察は、CFRP シートを切断し樹脂埋めしたものを研磨した後、光学顕微鏡により観察するという手順で実施した。

図6の50倍の写真を見ると炭素繊維の束とそれと直行する炭素繊維の束、ナイロン6の樹脂が確認できる。

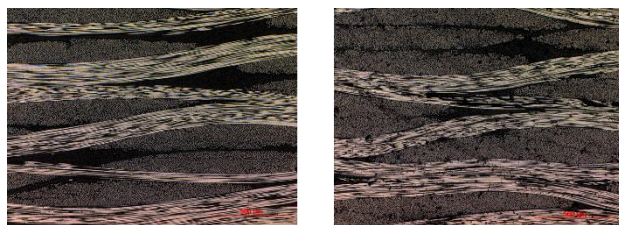
また、1000倍の写真より繊維の間にナイロン6の樹脂が入り込んでいることが確認できた。

図7, 8によりサイジング剤の除去効果の検証を行った。図7を見ると、サイジング剤を除去していない方には、樹脂フィルムの層がはっきりと残っているのが見られるのに対し、サイジング剤を除去した方は、その層があまり目立たなくなっているのが分かる。

図8は樹脂フィルムの層の部分付近を1000倍にしたものである。サイジング剤を除去していない方には樹脂フィルムの層がはっきりと確認できる。以上の結果から、サイジング剤の除去は炭素繊維と樹脂の一体化に効果があると考えられる。



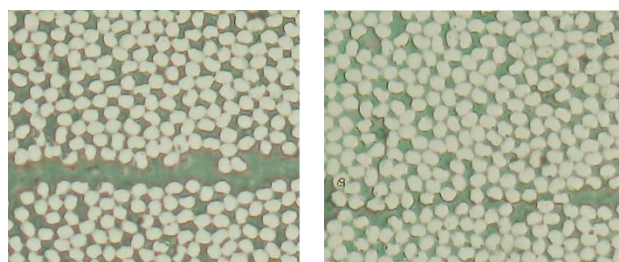
50倍 1000倍
図6 断面観察結果



サイジング剤を除去していないもの(50倍)

サイジング剤を除去したものの(50倍)

図7 断面観察結果 (サイジング剤除去の効果1)



サイジング剤を除去していないもの(1000倍)

サイジング剤を除去したものの(1000倍)

図8 断面観察結果 (サイジング剤除去の効果2)

3.2.2 引張試験

次に作製したシートの引張試験を行った。実験にはインストロン製万能試験機を使用した。ロードセルは 100 kN を使い、引張速度は 1 mm/min, チャック間 50 mm の条件で試験を実施した。使用した試料の寸法は厚さ約 1 mm, 幅約 25 mm で、平織、綾織、朱子織の3種類の織り方及びサイジング剤を除去していない試料を用意した。図9に示したように織り方により性質に違いがあり、例えば、平織は経糸 (たていと) と緯糸 (よこいと) が交互に交差しており、丈夫で変形しにくい。また、朱子織は糸の交差が少なく柔らかく変形しやすい。

いなどの特徴がある。

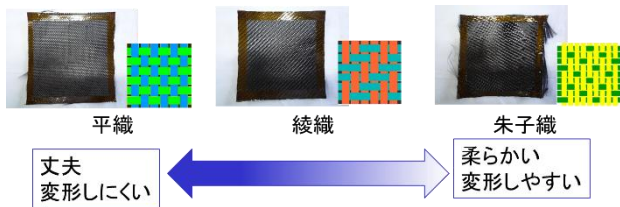


図 9 炭素繊維クロス織りの方

引張試験の結果で特徴的なものを図 10, 11 に示した。図 10 は平織と朱子織を比べたグラフ, 図 11 はサイジング剤を除去した朱子織の試料とサイジング剤を除去していない朱子織の試料のグラフを示した。

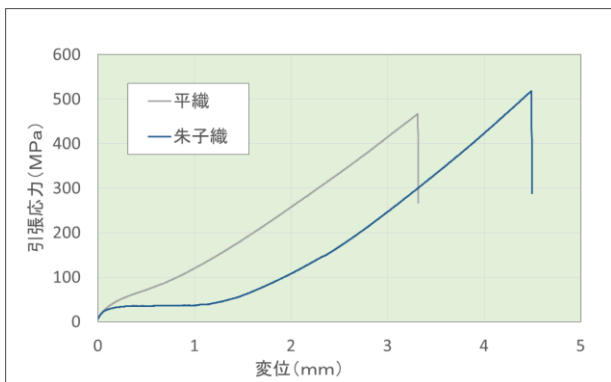


図 10 引張試験結果 (サイジング剤無 平織, 朱子織)

図 10 を見ると, 平織は試験開始とともに引張応力が増え続けているのに対し, 朱子織は変位 1 mm 付近まで引張応力が増加せず横ばいになっている。これは, 朱子織が平織より繊維同士の拘束が少ないため, 積層・クロス化する過程で織組織の拘束間でわずかなたるみを生じているためではないかと推察される。また, 最大引張応力については, 平織, 朱子織で大差なく, 両者の繊維密度が同じであることから, 引張方向の炭素繊維の数に一義的に依存するものと考えられる。

続いて図 11 のサイジング剤の有無に着目してみると, サイジング剤を除去していない朱子織の試料の応力変化は, 図 10 の平織に近い挙動を示していることがわかる。これはサイジング剤により, 朱子織の積層・クロス化する過程で織組織の拘束間に生じる繊維のたるみが抑えられたためではないかと考えられる。

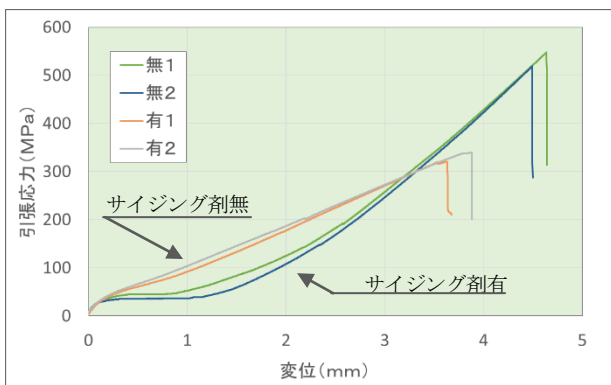


図 11 引張試験結果 (サイジング剤の有無)

図 12 にサイジング剤を除去した試料としていない試料の引張試験後の写真を示した。サイジング剤を除去した試料は完全に破断しているのに対し, サイジング剤を除去していない試料は表面にヒビが見られる程度で, 完全に破断してはいない。これは, サイジング剤を除去していない試料では, 樹脂と繊維がよく密着していないこと, 加えて朱子織の試料であるため経糸と緯糸の交差が少なく拘束が弱いことから, 表層部分と内部が一体でなく, チャックと接触している表層部分が先に破断することが原因ではないかと考えられる。このことは, 図 11 においてサイジング剤を除去していない試料の最大引張応力が低いこととも合致している。

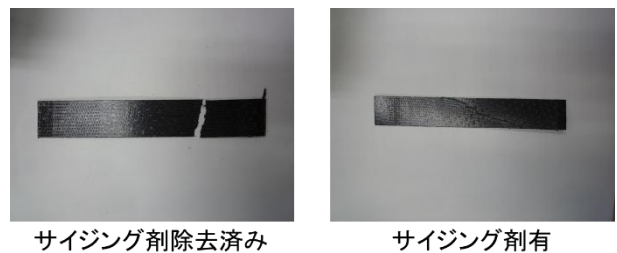


図 12 引張試験試料 (朱子織, サイジング剤有無)

3.2.3 曲げ試験

次に作製したシートの曲げ試験を行った。使用した装置はインストロン製万能試験機であり, ロードセルは 150 kN を用い, 曲げ速度は 1 mm/min, 標点間距離 80 mm の条件で実施した。試験に使用した試料の寸法は厚さ約 2 mm, 幅約 15 mm, 長さ約 100 mm とし, 引張試験同様, 平織, 綾織, 朱子織の 3 種類の織り方及びサイジング剤を除去していない試料を用意した。

曲げ試験の結果で, 特徴的なものを図 13 に示した。図 13 は平織と朱子織の試料の試験結果である。引張試験 (図 10) においては, 荷重が上昇し始めてからの平織の試料と朱子織の試料の荷重たわみ曲線の傾きがほぼ一緒だったのに対し, 曲げ試験 (図 13) においては荷重たわみ曲線の傾きに違いが見られた。これは, 朱子織の炭素繊維のたるみが引張試験の時と異なり試料の一番外側 (荷重を加えている点の反対側) から徐々に伸びていくことによるものと考えられる。

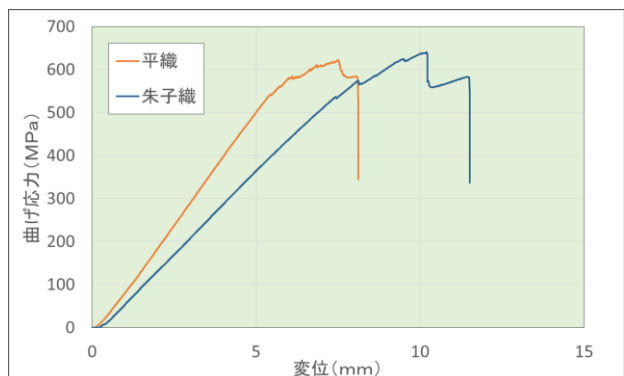


図 13 曲げ試験結果 (サイジング剤無 平織, 朱子織)

3.3 CFRP のプレス成形加工実験

3.3.1 試験方法

作製した CFRP シートを用いて、プレス成形加工実験を行った。実験は、電気炉で加熱した CFRP シートをサーボプレス機まで運び、プレス加工を行うという手順で実施した。実験にはアマダ製油圧サーボプレス機 (110 t) を用いた。加工条件として、加工速度 20 mm/s、CFRP の温度は加熱用の電気炉の設定温度で 255 °C とした。加工速度についてはシートの温度低下の観点から早い方が良いとの報告がある²⁾ことから、実験に使用した装置の最大速度とした。また、シート温度についても、プレス加工時に樹脂の融点以下の温度にならないように、CFRP シート作製時の温度より少し高めの設定とした。

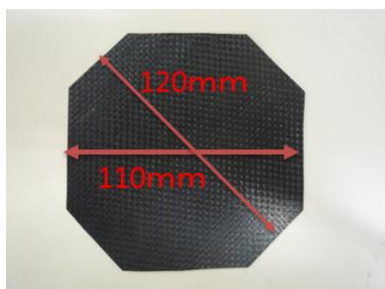


図 14 プレス用 CFRP シート

実験には辺の長さが 50×50 mm の角筒絞りの金型を用いた。また、使用した金型に合わせて八角形のシートを用意した。厚さは 0.5 mm で平織、綾織、朱子織の 3 種類の織り方と、それぞれの織組織の角度を 45 度傾けて作製したシート、併せて 6 種類の試料を用意した。図 14 は今回のプレス加工実験に用いた CFRP シートである。

3.3.2 試験結果

実際にプレス加工した試料の写真を図 15～17 に示した。図 15 が平織、図 16 が綾織、図 17 が朱子織のクロスを用いた試験結果である。各写真の右側の試料が左側の試料に比べて 45 度傾けたものである。

炭素繊維は伸縮性がないため、プレス時に繊維方向に引き込まれた。図 15～17 左側 (織組織の傾けなし) の試料は、十字方向に繊維が交差しており、その方向に引き込まれるため、コーナー部では繊維が集中し、しわが多く発生した。逆に、図 15～17 右側 (45 度傾けたもの) の試料では、四角形の対角線方向に繊維が交差しているため、四角形の各辺の中央に繊維が集中した。実験の結果を見ると、実験に用いた試料すべてに上述のような傾向が見られた。この傾向は平織で強く現れており、繊維組織の乱れは見られないが、プレス時に繊維が集中するコーナー部で多量のしわの発生を確認できた。逆に朱子織は平織に比べ成形時のしわなどは少ないが、繊維組織の乱れが見られた。また、繊維組織を 45 度傾けて作製したシートとの比較により、配置する繊維方向の違いによってシートの変形の仕方が大きく異なることが確認できた。

4. まとめ

- 1) 織組織の異なる 3 種類の CFRP シートを作製した。
- 2) 作製したシートの評価 (断面観察, 引張試験, 曲げ試験) を行い、平織と比べて朱子織で作製したシートの柔軟性が高いことを確認した。
- 3) 作製したシートを用いてプレス加工実験を行い、織組織の異なることにより変形の仕方が違うことを確認した。



図 15 プレス加工後の試料 (平織)
(左: 織組織の傾けなし, 右: 45 度傾けたもの)



図 16 プレス加工後の試料 (綾織)
(左: 織組織の傾けなし, 右: 45 度傾けたもの)



図 17 プレス加工後の試料 (朱子織)
(左: 織組織の傾けなし, 右: 45 度傾けたもの)

5. 参考文献

- 1) 奥村航・木水貢・長谷部裕之・惣川武勇・曾原隆夫・柏崎雅彦・松村峰彰・蓬澤博信・斉藤博嗣・石田応輔: 平成 25 年度研究報告 VOL. 63 (2014)
- 2) 道家康雄, 千原健司, 仙石倫章, 萱岡誠, 西村太志: 岐阜県工業技術研究所研究報告 第 3 号 (2015)
- 3) 米山猛・伊藤拓実・増澤健太・立野大地・西原嘉隆・守安隆史・長島重憲・岡本雅之・根田崇史: 塑性と加工, 55-636 (2014-1)
- 4) 米山猛・寺岡達也・増澤健太・西原嘉隆・長島重憲・吉田春夫: 塑性と加工, 53-613 (2012-2)