研究論文

射出成形条件がCFRTPの内部構造と引張特性に及ぼす影響

吉田陽子[*1]、柴田佳孝[*1]、杉本貴紀[*1]、杉山信之[*2]
原田真[*3]、渡邉竜也[*3]、岡田光了[*4]、高橋勤子[*5]

Effect of Injection Molding Conditions on Internal Structure and Tensile Properties of CFRTP

Yoko YOSHIDA[*1], Yoshitaka SHIBATA[*1], Takanori SUGIMOTO[*1],
Nobuyuki SUGIYAMA[*2], Makoto HARADA[*3], Tatsuya WATANABE[*3],
Mitsunori OKADA[*4] and Isoko TAKAHASHI[*5]

Research Support Department[*1*2] Mikawa Textile Research Center[*3] Industrial Research Center[*4*5]

射出成形条件が炭素繊維強化熱可塑性プラスチック射出成形品の内部構造、引張特性に与える影響を調べるため、X線CTによる3次元内部構造解析と引張試験を行った。その結果、短繊維成形品では成形条件の違いによるCF配向の差は小さく、引張特性に差はなかった。長繊維成形品では炭素繊維の凝集をなくすため、スクリューの回転を上げて成形し、凝集は低減されたものの引張特性は小さくなった。繊維長が短くなっていることが確認され、高回転によりCFが折損された可能性が考えられる。

1. はじめに

炭素繊維強化熱可塑性プラスチック(CFRTP)の射出成形品は、従来のエンジニアリングプラスチックに比べて機械特性が優れることから、一般機械部品等広く活用されるようになりつつある。一般的に、射出成形時の成形条件は、寸法など外観の品質を確認しながら調整されることが多い。一方、その機械特性は内部構造と密接に関係すると考えられる。筆者らはこれまでに、物性に関係する材料側の要因のうち、炭素繊維(CF)繊維長や繊維含有量に注目し、CFRTP射出成形品の内部構造と引張特性に与える影響について研究を行った[1),2)]。その結果、CF繊維長や繊維含有量により生じる射出成形品内部のCF分布の成形品間のばらつきが、引張応力のばらつきと同様の傾向を示し、引張特性のばらつきに与える影響が大きいことが分かった。

本研究では、繊維含有量が30wt%の短繊維成形品と長繊維成形品について、物性に関係する因子のうち、成形側の要因である射出成形条件がCFRTP射出成形品の内部構造、引張特性に与える影響を調べることを目的とした。

2. 実験方法

2.1 射出成形

原料として、繊維含有量30wt%の短繊維強化66ナイロン(東レ(株)製、3101T-30V)と長繊維強化6ナイロン(東レ(株)製、TLP1060)を使用した。ペレットのCFの平均繊維長は、短繊維強化66ナイロン:0.2mm、長繊維強化6ナイロン:7mmであった[1)]。三河繊維技術センター所有の射出成形機(東洋機械金属(株)製、Si-15V)を用いて、ダンベル形の短繊維成形品と長繊維成形品(形状はJIS K 7139 タイプA13に準拠、平行部の幅:3.5mm、厚さ:2mm)を作製した。射出成形条件は**表1**の通りとした。なお、保圧については、射出時の圧力に対して一定比率の値を設定している。

表1　射出成形条件

		短繊維成形品			長繊維成形品	
工程	成形条件	A	B	C	D	E
可塑化	樹脂温度(℃)	275	290		280	
	回転速度(min^{-1})	50				300
	背圧(MPa)	0.5				10
射出	射出速度(mm/s)	30		5	30	120
保圧	保圧(MPa)	50	20	25		75
	保圧時間(s)	5				
冷却	冷却時間(s)	15				
	金型温度(℃)	80				

短繊維成形品ではCFの配向に注目して成形を行った。基準条件Aに対して、樹脂流動方向のCF配向が制御しやすくなることを想定して、樹脂温度を上げて樹脂の粘度を下げ、射出速度はそのままとして配向を強くするこ

*1 共同研究支援部　計測分析室　*2 共同研究支援部　シンクロトロン光活用推進室　*3 三河繊維技術センター　産業資材開発室　*4 産業技術センター　化学材料室（現産業科学技術課）　*5 産業技術センター　化学材料室

とを意図した条件を B とした。また、樹脂流動方向の CF 配向を弱くするため、射出速度を下げた条件を C とした。長繊維成形品では CF 繊維長が長いため、CF の分布が不均一となり CF の凝集が生じやすい [1]。そこで、基準条件 D に対して CF 分布をより均一とするため、可塑化時のスクリューを高回転にして樹脂をより混錬し、射出速度を上げた成形条件を E とした。なお、スクリューの高回転に伴い、空気の巻き込みを予防するため、背圧を 10MPa に設定した。

2.2 X 線 CT 測定による成形品内部構造の観察

あいちシンクロトロン光センターBL8S2 にて X 線 CT 測定を行い、成形品の内部構造を観察した。CF 分布・配向を観察するため公称 5 倍(視野サイズ:2.6mm×2.6mm、1.3μm/voxel)と、空隙を観察するために公称等倍(視野サイズ:13.3mm×13.3mm、6.5μm/voxel)を観察倍率とした。測定箇所は**図 1** に示す。5 倍では、平行部の幅方向半分が収まる箇所で測定を行った。等倍では、成形品 4 体を同一視野内に収まるようセットし、1 測定で各成形品の平行部の中央付近を取得した [2]。

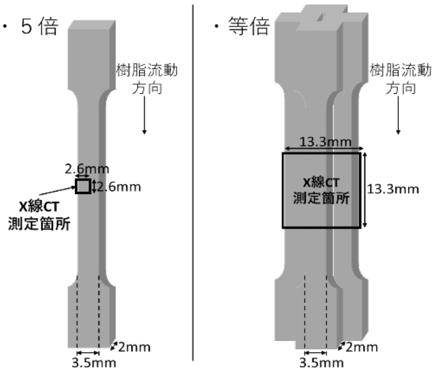

図 1　X 線 CT の測定箇所について

2.3 X 線 CT 断層像の解析

画像解析ソフトの Dragonfly(Object Research System 社製)を使用し、X 線 CT 断層像の解析を行った。

5 倍の断層像について、2 値化により樹脂相を抽出し、相に内接する球の直径を算出するという方法で、CF 分布の解析を行った(**図 2**)。CF が分散して均一に分布している場合、球の直径は小さく、直径の大きさのばらつきも小さくなる。一方、CF の凝集が存在し、分布が不均一な場合、球の直径は大きくなり、直径の大きさにばらつきが生じる。このため、CF の分布状態が内接球の直径の大小に反映されると考えた。

また、5 倍断層像について、2 値化により CF 相を抽出し、Watershed 処理により CF の 1 本 1 本を個別認識させ、角度情報(Φ)を取得した(**図 3**)。Φ=0°であれば CF が樹脂流動方向に平行、Φ=90°であれば CF が樹脂流動方向に垂直であることを意味する。

等倍断層像については、成形品 4 体を 1 体ずつに画像を切り分け、2 値化により成形品内の空隙相を抽出した。Watershed 処理により空隙 1 つ 1 つを個別に認識させ個数・体積の算出を行った。いずれの解析も各成形条件につき、n=3 ずつ実施した。

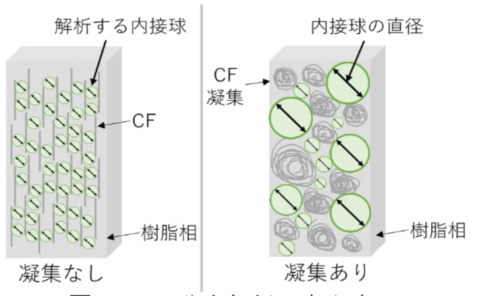

図 2　CF 分布解析の考え方

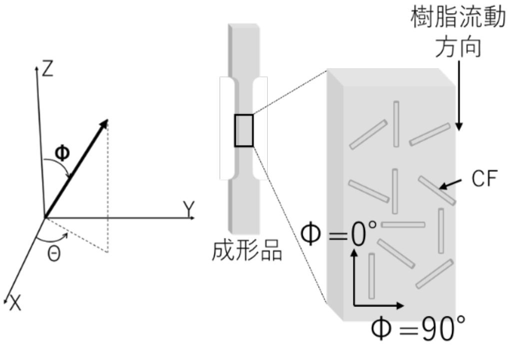

図 3　CF 配向解析の考え方

2.4 射出成形後の繊維長の計測

繊維長計測用の試料は、各成形条件の射出成形品 1 体ずつについて、ランナー部分から採取し、マッフル炉にて 450℃で 5 時間灰化した。その灰化物を水中に分散させてシャーレに滴下し、デジタルマイクロスコープ(ライカマイクロシステムズ(株)製 DVM6)で撮像した。画像解析ソフトの ImageJ[3]を使用し、各成形条件につき 500 本ずつ CF 繊維長の計測を行った。

2.5 引張試験

産業技術センター所有のオートグラフ((株)島津製作所製、AG-50kNXplus)を用いて、各成形条件につき、n=6 ずつ引張試験を行った。5kN のロードセルを用い、引張速度を 2mm/min とした。また、成形品平行部に白色の標線(標線間距離:20mm)を引き、ビデオ式非接触伸び幅計により伸びを測定し、引張ひずみを算出した。

3. 実験結果及び考察

3.1 CF の分布・配向

短繊維成形品について、算出された内接球の直径から球の体積割合を換算し、CF 分布を比較した結果を**図 4** に示す。また、CF の配向を解析した結果を**図 5** に示す。図 5 のグラフは、Φ が 0~90°のうち 10°刻みで区間を区

切り、解析した全 CF の本数に対して各区間に存在する割合を表している。

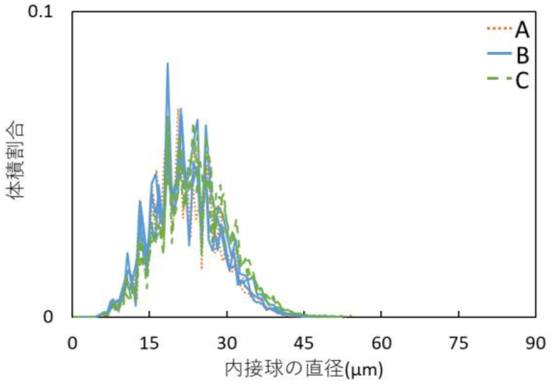

図 4　短繊維成形品の CF 分布解析結果

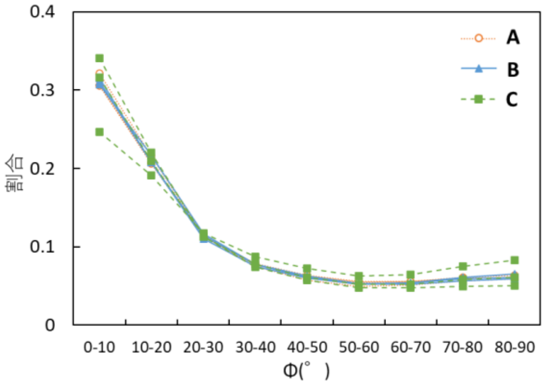

図 5　短繊維成形品の CF 配向解析結果

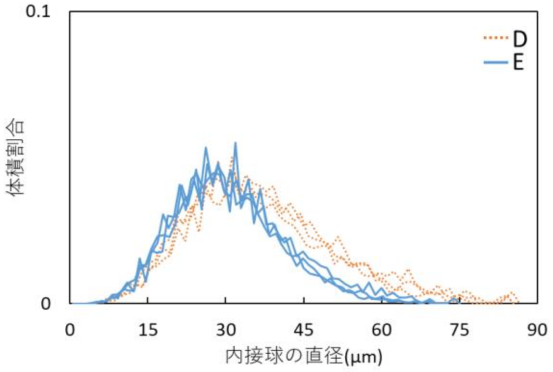

図 6　長繊維成形品の CF 分布解析結果

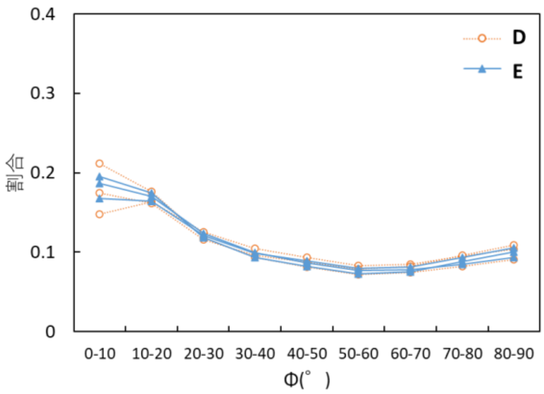

図 7　長繊維成形品の CF 配向解析結果

短繊維成形品の CF 分布について(図 4)、どの条件においても内接球の直径が 20~25μm の時の体積割合が最も多く、成形条件 A~C のグラフ形状はほぼ同様であった。また CF の配向について(図 5)、樹脂流動方向に平行な 0~10°の CF は 3 割程度で、樹脂流動方向に垂直な 80~90°では 1 割以下、20~80°における配向の変化の傾向は、成形条件 A~C において同様であった。基準条件 A に対して CF の配向を変えるために設定した成形条件 B,C について、本研究で変えた条件の範囲においては、CF の分布・配向にほとんど影響を及ぼさなかったと考えられる。

次に、長繊維成形品の CF 分布について(**図 6**)、基準条件 D の内接球直径のグラフが、径の大きい方に広がる形状に対し、成形条件 E はグラフの広がりが小さくなっていた。成形意図通り、成形条件 E は CF の凝集が低減され、基準条件 D に比べて成形品内の CF 分布が均一な状態になっていると考えられる。CF の配向について(**図 7**)、成形条件 D,E どちらにおいても 0~10°の CF は 2 割程度、80~90°の CF は 1 割程度、20~80°の配向の変化は同様の傾向を示した。成形条件の変更により、CF の凝集は成形意図通り低減されていたが(図 6)、CF 配向に与える影響は小さいことが判明した。

3.2 空隙の個数･体積

空隙の平均個数・体積平均について比較した結果を**図 8** に示す。空隙体積は画像解析領域の成形品体積で除し、体積割合で比較した。

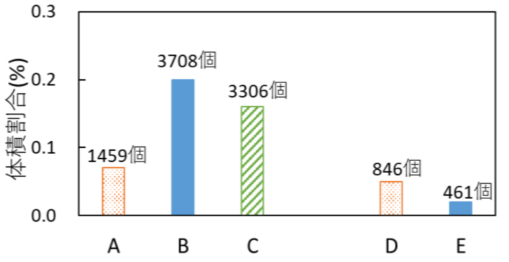

図 8　空隙解析結果

短繊維成形品では、基準条件 A の空隙個数・体積に比べて、成形条件 B,C は約 2 倍という結果であった。条件 B,C は樹脂温度が高いため、冷却・固化の過程で成形品表面に比べて内部は固化が遅く、樹脂収縮に伴い空隙がより多く発生したと考えられる。

長繊維成形品では、成形条件 D,E どちらも空隙の体積割合は 0.1%以下となり小さかった。条件 E はスクリューが高回転であるため、樹脂に巻き込まれる空気の存在が考えられたが、背圧(スクリュー後退に抵抗する圧力)を高く設定したため、空気が除去され、空隙が少なくなったと考えられる。

3.3 CF 繊維長

各成形条件の計測した CF 繊維長について、式(1)、(2)より求めた数平均繊維長 Ln と長さ加重平均繊維長 Lw、および繊維長分布の尺度として Lw/Ln を求め、**表 2** に示す [4),5)]。

$$Ln=\frac{\Sigma l_i}{\Sigma n_i} \quad (1)$$

$$Lw=\frac{\Sigma l_i^2}{\Sigma l_i} \quad (2)$$

短繊維成形品の成形条件 A~C において、平均繊維長、繊維長分布の広がりに大きな差はなかった。長繊維成形品では、基準条件 D に比べて成形条件 E の方が、平均繊維長と繊維長分布の広がりが小さいという結果であった。成形条件 E は CF の凝集が低減されていたが(図 6)、可塑化時のスクリューの高い回転速度と射出速度により CF 繊維長が短くなったと考えられる。

表 2　各成形条件における平均繊維長と繊維長分布

	成形条件	Ln(μm)	Lw(μm)	Lw/Ln
短繊維成形品	A	198.9	267.5	1.34
	B	189.6	264.4	1.39
	C	194.2	268.8	1.38
長繊維成形品	D	645.9	3302	5.11
	E	298.7	725.6	2.43

3.4 引張特性

引張試験から得られた、短繊維成形品と長繊維成形品の応力-ひずみ曲線を**図 9**、**図 10** に示す。

短繊維成形品では、成形条件による引張特性に大きな差はなかった。3.1 で述べた通り CF の分布・配向が大きく変わっておらず、平均繊維長や繊維長分布にも大きな差がないため(表 2)、引張特性も変わらなかったと考えられる。また、空隙については成形条件により差が見られたが(図 8)、どの条件においても空隙体積は 0.2% 以下であったため、引張特性には影響を及ぼす量ではなかったと考えられる。

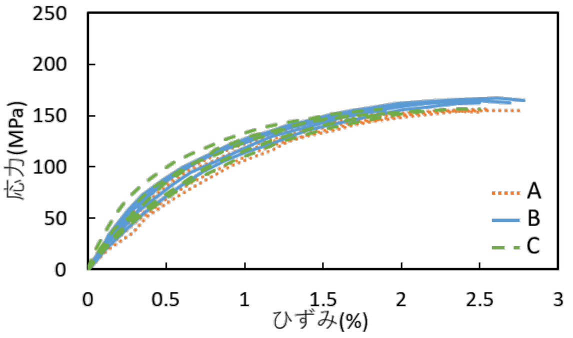

図 9　短繊維成形品の応力-ひずみ曲線

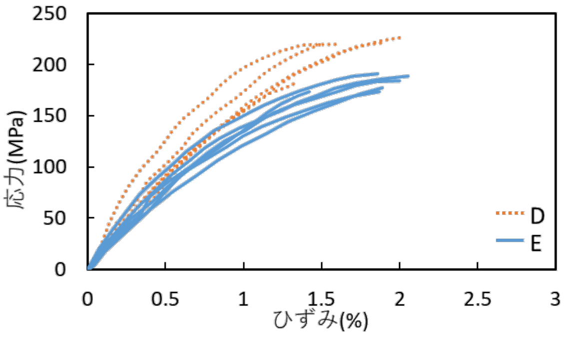

図 10　長繊維成形品の応力-ひずみ曲線

長繊維成形品では、成形条件 E は 3.1 で述べた通り、CF 配向の差は小さいが、CF の分布は、凝集が低減され、均一となっていたにも関わらず、基準条件 D に比べて成形条件 E の方が引張特性は低いという結果であった。表 2 で示した通り、CF 繊維長が短くなっており、また他の材料側の要因(繊維含有量、繊維径、CF と樹脂の界面特性)は成形条件により変わらないと考えられるため、成形条件 E の引張特性が低い理由は、CF 繊維長が短くなったことが要因と考えられる。

4. 結び

本研究では、射出成形条件が、CFRTP 射出成形品の 3 次元内部構造、引張特性に与える影響について調べた。本研究の結果は、以下のとおりである。

(1) 短繊維成形品では、CF の配向が変わることを想定して成形条件を設定したところ、どの成形条件においても CF 分布や配向の内部構造は同様の傾向を示し、今回変えた成形条件では、引張特性には影響を及ぼすほどの差は生じなかった。

(2) 長繊維成形品では、CF 分布がより均一な成形品の作製を目的としたところ、成形意図通り CF 凝集は低減されたが、引張特性は小さくなった。繊維長を測ったところ短くなっていることが確認され、可塑化・射出時に CF が折損されたと考えられる。引張特性に CF 繊維長の与える影響が大きいことが分かった。

文献

1) 吉田陽子, 杉本貴紀, 村瀬晴紀: あいち産業科学技術総合センター研究報告, **10**, 10(2021)

2) 吉田陽子, 杉本貴紀, 杉山信之: あいち産業科学技術総合センター研究報告, **11**, 18(2022)

3) Rasband, W.S.: ImageJ, U. S. National Institutes of Health, Bethesda, Maryland, USA, http://imagej.nih.gov/ij/, 1997-2012(2023/05/31)

4) 岡田光了, 福田徳生, 松原秀樹: あいち産業科学技術総合センター研究報告, **7**, 10(2018)

5) 村山正樹, 藪谷祐希, 森澤諭, 矢田喜大, 舟木淳夫: 三重県工業研究所研究報告, **44**, 78(2020)