

研究論文

再生炭素繊維を活用した CFRTP 廃材の 射出成形とその力学特性

岡田光了^{*1}、伊藤誠晃^{*1}、高橋勤子^{*1}、福田徳生^{*1}

Injection Molding and Mechanical Properties of Recycled CFRTP Blended with Recycled Carbon Fiber

Mitsunori OKADA^{*1}, Masaaki ITO^{*1}, Isoko TAKAHASHI^{*1} and Norio FUKUDA^{*1}

Industrial Research Center^{*1}

CFRTP の廃材や再生炭素繊維のマテリアルリサイクルを想定し、表面処理を施した再生炭素繊維を CFRTP の廃材にブレンドした射出成形の検討及びその力学特性を評価した。表面処理により再生炭素繊維の添加率が最大 10wt%の射出成形方法を見出し、その力学特性はバージン材に相当することが明らかとなった。特に、弾性率と衝撃強さはバージン材を上回り、剛性と靱性が向上することが明らかとなった。

1. はじめに

輸送機器産業では、EU を中心とした二酸化炭素 (CO₂) 排出規制に対応するため車体の軽量化を進めている。その中で、熱可塑性樹脂をマトリックス樹脂とした炭素繊維強化熱可塑性樹脂 (Carbon Fiber Reinforced ThermoPlastic, CFRTP) は、軽量かつ優れた力学的特性を有することから、軽量化効果が高い材料としてマルチマテリアル化が進む自動車部材への適用が拡大している。これにともない、製造工程の射出成形で排出される CFRTP のスプルーやランナーなどの端材は今後さらに増加すると危惧される。廃プラスチックは主にサーマルリサイクルされているが、CFRTP は難燃性のうえ、炭素繊維が飛散して短絡などの原因になるため大半は埋め立て処理される。しかしながら、その廃棄コストはここ数年で高騰しており、プラスチック成形関連企業から廃材の再利用に関する相談が増えている。

一方、炭素繊維自体も、製造時に莫大なエネルギーを消費し大量の CO₂ を排出するため、ライフサイクルアセスメントやコストの面から再生炭素繊維 (r-CF) の活用が注目されている。しかしながら、r-CF はその軽さとかさ高さゆえに、そのままの状態では樹脂ペレットとのブレンドや射出成形機への材料投入ができないなど、扱いが非常に困難とされている。

当センターでは、これまでに CFRTP の廃材 (リサイクル材) をバージン材に混合した系について DIC 法によるひずみ解析を行い、廃材活用を検討してきた¹⁾。本研究では、リサイクル材と r-CF の双方について、射出成

形によるマテリアルリサイクルを目的として、表面処理した r-CF とリサイクル材を再ペレット化することなくブレンドした射出成形を検討し、その力学特性を評価した。

2. 実験方法

2.1 r-CF の表面処理及び射出成形

r-CF は 2 段階熱分解法²⁾ (残留炭素を約 2wt% 含む) を経た 6~8mm カット品 (カーボンファイバーリサイクル工業 (株) 製) を用いた。また、表面処理剤として水溶性の炭素繊維収束剤 (ケミチレン FS-6、三洋化成工業 (株) 製) を用いた。r-CF の表面処理方法は次のとおりである。r-CF を目開き 4.75mm のふるいに通した後、テフロンシートを敷いたアルミバットに薄く広げ、水で 2 倍に希釈した表面処理剤 (r-CF 重量の 50%) を、均一にスプレー塗布した。その後 120℃ で 2 時間乾燥した。

リサイクル材には、炭素繊維を 20wt% 含有するポリアミド 66 (BADAMID A70 CF20 HHC、BADA 社製) を射出成形した際の端材 (スプルー、ランナー) の粉碎材を用いた。また、比較として、この樹脂の市販ペレットをバージン材として用いた。リサイクル材、バージン材は、上記表面処理した r-CF とともに 80℃ で 12 時間真空乾燥して使用した。射出成形機 (J85AD-110-H、(株) 日本製鋼所製) を用いて、表 1 に示す成形条件で、JIS K 7139 に規定する多目的試験片 (タイプ A1) を、T ランナー、2 個取りの金型で射出成形した。なお、リサイクル材と r-CF はバッチ式で混合し、ホoppa を外した状態で

^{*1} 産業技術センター 化学材料室

表 1 成形条件

原材料		ポリアミド 66+CF20wt%				
		バージン材	リサイクル材			
r-CF の添加率		-	-	2 wt%	5 wt%	10 wt%
成形 条件	共通	シリンダ温度(℃): 270, 280, 280, 270, 260, 50 射出速度: 20mm/s 保圧: 55MPa, 12s 冷却時間: 25s 金型温度:80℃				
	計量	背圧: 8MPa 回転数: 80rpm		背圧: 5MPa 回転数: 50rpm		
	上限圧	100MPa				120MPa

成形機に投入した。r-CF 添加率 10wt%の成形を除き、投入された材料は自重落下し、計量可能であった。しかし、r-CF 添加率 10wt%の場合では r-CF が絡み合い投入口でブリッジし、スクリュが空回りして計量できなかったため、少量ずつ投入した。

2.2 非破壊内部観察及び力学特性評価

射出成形品内部のボイドと r-CF の解繊状態は、X 線 CT 装置(SMX-225CT、(株)島津製作所製)を用いて、管電圧 150kV、管電流 40 μ A の条件で成形品の中央部付近を観察した。引張特性および曲げ特性はオートグラフ (AG-Xplus、(株)島津製作所製)を用いて、試験速度 2mm/min、N=5 で試験した。引張ひずみは標線間距離を 75mm としてビデオ式非接触伸び計(TRViewX、(株)島津製作所製)を用いて計測し、また、曲げひずみはクロスヘッドの移動量から算出した。シャルピー衝撃強さは衝撃試験機(Impact Tester IT、(株)東洋精機製作所製)を用いて、公称振り子エネルギー1.0J、ノッチの形状 A、N=5 で測定した。

3. 実験結果及び考察

3.1 r-CF の性状及び射出成形特性

表面処理後の r-CF を図 1 に示す。上記表面処理によ

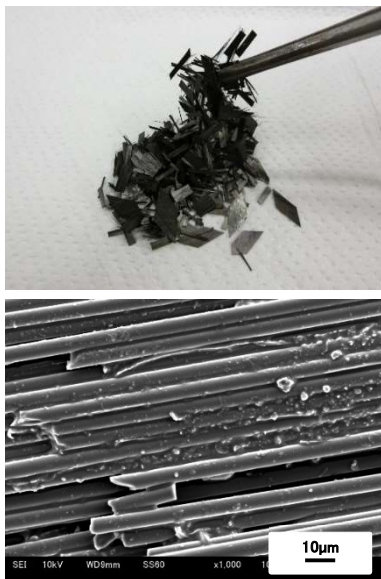


図 1 表面処理した r-CF

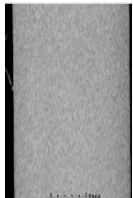
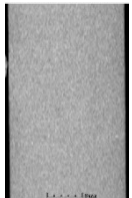
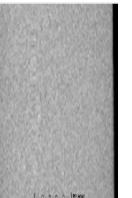
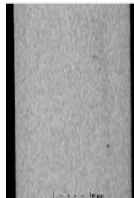
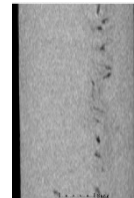
り、約 15wt%の表面処理剤が r-CF に添加され、やや粘性があり r-CF 同士が互いに絡む状態であった。SEM 観察では、滑らかな r-CF²⁾の表面が表面処理剤に覆われて r-CF 同士が収束している様子が観察され、r-CF 全体に均一に塗布されていると考えられる。なお、他の表面処理剤での検討結果ではあるが、表面処理剤の添加率が 2wt%未満と少ない場合、成形機への材料投入や計量ができなかった。射出成形では、樹脂材料と r-CF との付着性、そして r-CF とスクリュとの摩擦抵抗を発現するだけの塗布量が必要と考えられる。

成形時の計量時間、射出圧および成形品中央部の X 線 CT 画像を表 2 に示す。

バージン材と r-CF 未添加のリサイクル材の射出圧力を比較した場合、リサイクル材はバージン材に比べ約 10%低かった。これは射出成形での熱履歴による熔融粘度の低下や CF の折損による繊維長の低下に起因するものと考えられる。また、r-CF の添加率を比較すると、添加率が上がるにつれて計量時間、射出圧力ともに上昇し、ばらつきも大きくなった。計量時、r-CF はかさ高いために、供給された材料を熔融圧縮し、所定の射出量を計量する時間が長くなったと考えられる。さらに、スクリュ内に流入するリサイクル材と r-CF が不均一に混在することがばらつきに影響したと考えられる。また、射出時では、添加率が上がるにつれて r-CF の流動抵抗が大きくなり、射出圧力が増大したと考えられる。

X 線 CT による成形品の非破壊内部観察では、r-CF 10wt%の成形品にボイドが顕著に観察された。しかし、明るいコントラストで検出される r-CF の塊は観察されなかったことから、r-CF は十分に解繊されたと考えられる。シリンダ内での熔融混練に加え、射出時にノズル先端や金型内でのせん断応力により r-CF は解繊され、さらには折損することで分散したと推察される。ボイドに関しては、シリンダ温度や背圧の調整で改善されることが考えられる。また、r-CF 添加率の上昇とともに成形品は表面の光沢が失われ曇りが顕著に出現したが、これはシリンダ温度や射出速度の調整により改善されることが考えられる。

表 2 成形データおよび成形品中央部の X 線 CT 画像

原材料		ポリアミド 66+CF20wt%				
		バージン材	リサイクル材			
r-CF の添加率		—	—	2 wt%	5 wt%	10 wt%
測定値	計量時間	10.3s (0.6)	13.1s (1.0)	16.2s (0.9)	17.3s (1.7)	21.6s (3.6)
	射出圧	63.3MPa (2.1)	57.8MPa (1.1)	63.4MPa (3.1)	79.6MPa (3.3)	91.1MPa (5.5)
X 線 CT 画像						

()内は 3 σ 、N=6(安定成形時)

3.2 引張特性及び曲げ特性

引張特性、曲げ特性の試験結果を図 2 に示す。r-CF 未添加のリサイクル材は、強さ、弾性率ともにバージン材に対して 10%を超える低下を示し、熔融粘度や繊維折損によるアスペクト比の低下が示唆された。これに対して、r-CF を添加した場合、2wt%の添加でバージン材の 90%以上に、10wt%の添加で 100%以上に回復し、r-CF の添加が力学特性の向上に寄与することが示唆された。特に、各弾性率は添加率 10wt%ではバージン材に比べ 17%以上大きくなり、バージン材よりも高い剛性を発現した。

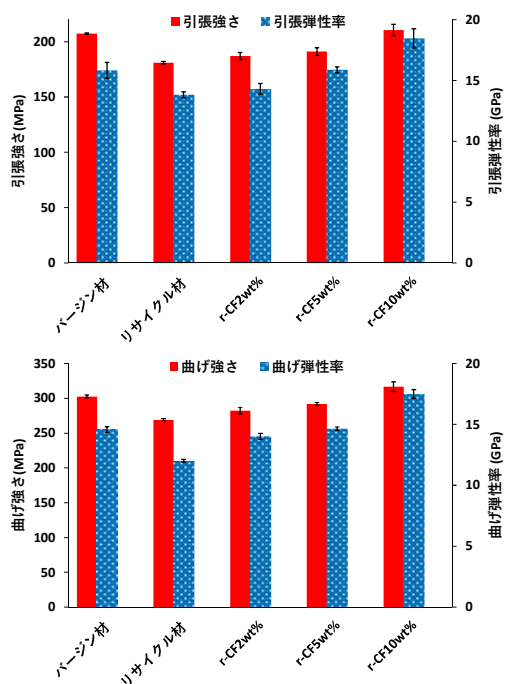


図 2 引張および曲げ試験の結果

図 3 に引張試験における応力/ひずみ曲線の一例を示す。リサイクル材はバージン材に比べて破断に至るまでの塑

性領域が大きく、樹脂の特性が顕著に現れた。これは、炭素繊維の折損に加えて、熱履歴による炭素繊維と樹脂との界面せん断応力の低下によると考えられる。r-CF の添加率が上がるにつれて塑性領域は減少し、弾性領域の近傍で脆性破壊し、引張応力と弾性率は大きくなった。このことから、r-CF が成形品の力学特性に支配的になっていることが示唆された。これは r-CF の表面処理剤が、樹脂と r-CF の界面での接着性の向上に寄与し、界面せん断応力が向上したことに起因すると考えられる。

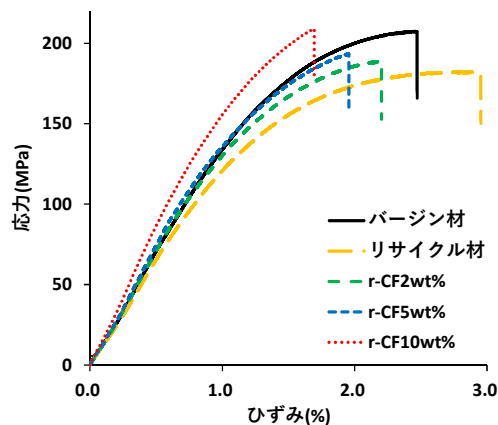


図 3 引張試験における応力/ひずみ曲線の一例

図 4 に添加率 5wt%の引張破断面の SEM 観察写真を示す。所々に矢印に示すような炭素繊維が引き抜かれた痕跡が観察されたが、これはバージン材の引張破断面と比較しても大きく違いはなかった。繊維一本に着目すると、表面が粘性のある表面処理剤で覆われている様子が観察された。射出成形過程においても表面処理剤がはく離することなく表面に残存したことが、先述の界面せん断応力の向上を支持している。

他方、r-CF を添加した場合、各物性値のばらつきは大きかった。非破壊内部観察では繊維の塊は観察されな

かったが、X 線 CT では検出されない成形品内部の微小領域において、炭素繊維の体積含有率や繊維配向に局所的な差が生じたことで、ばらつきを生じたと考えられる。材料の均一なブレンド方法や投入方法の検討、そして各添加率に対して計量と射出が安定する成形条件の最適化が力学特性の安定につながると考えられる。

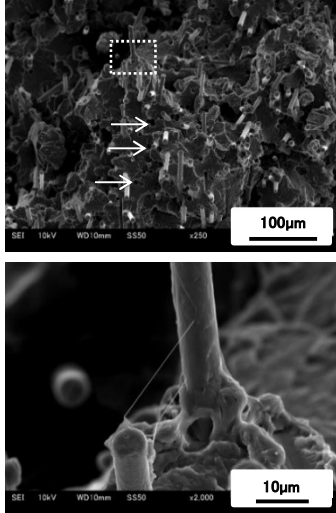


図 4 引張破断面の SEM 観察写真

3.3 衝撃特性

衝撃特性の試験結果を図 5 に示す。

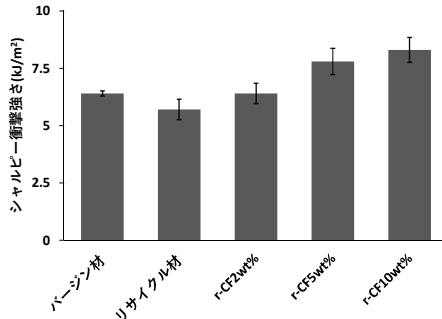


図 5 シャルピー衝撃試験の結果

2wt% 添加でバージン材と同程度に回復し、添加率 10wt% では約 1.3 倍に達し、引張強さや曲げ強さと比べて r-CF の添加効果が大きく現れた。繊維長が長いほど引き抜きやクラックの進展が抑制され、衝撃強さは大きくなることから³⁾、射出成形前に 6~8mm ある r-CF は、射出工程で繊維折損が発生するものの、靱性の向上に寄与するだけの繊維長が保持されていると考えられる。

4. 結び

本研究では、表面処理した r-CF を CFRTP のリサイクル材にブレンドし、その射出成形を行い、力学特性を評価した。結果は以下のとおりである。

- (1) r-CF の表面処理の検討により、最大 10wt% 添加したブレンド材の射出成形が可能となった。
- (2) 添加率に比例して物性値は上がり、バージン材に相当する力学特性を発現した。特に弾性率と衝撃強さはバージン材を上回り、剛性と靱性が付与されることがわかった。

本研究では、繊維含有率 20wt% の原材料を用いたため、r-CF 添加での力学特性の変化が小さかった。また、成形温度も高いため、表面処理剤の熱分解も懸念される。今後、繊維含有率が低く、230℃ 前後で成形可能な POM や ABS などでの検討を進め、廃材活用に向けたデータ収集を進める予定である。

文献

- 1) 門川泰子, 岡田光了, 高橋勤子, 福田徳生: あいち産業科学技術総合センター研究報告, **10**, 36(2021)
- 2) 板津秀人, 神吉肇, 守富寛: 廃棄物資源循環学会誌, **24**(5), 371(2013)
- 3) 三辻祐樹, 吉弘一貴, 平田慎, 土谷敦岐: プラスチックス, **69**(4), 51(2018)