

連続炭素繊維強化複合材料への熱可塑性プラスチック適用による超高速成形法の確立

小林 訓史(首都大学東京), 森本哲也(JAXA)

研究背景

繊維強化プラスチック **FRP**
(**F**iber **R**einforced **P**lastics)
・軽量 ・高強度 ・耐食性

熱硬化性樹脂基FRPが主流

欠点

- ・硬化に化学反応を伴う
→ 成形時間が長い
- ・リサイクルが困難
→ 焼却などの廃棄問題

熱可塑性樹脂基FRPの優位点

- ・化学反応を伴わない
→ 成形時間短縮
- ・樹脂/繊維の分離が可能
→ リサイクル性に優れる
- ・熱硬化性樹脂に比べ耐衝撃性に優れる

問題点

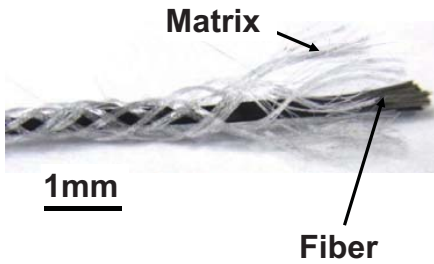
- 樹脂の溶融粘度が高い
※熱硬化性樹脂の数倍～数百倍
- 繊維への含浸性が低い
→ 強化繊維が短繊維に限られる

研究背景

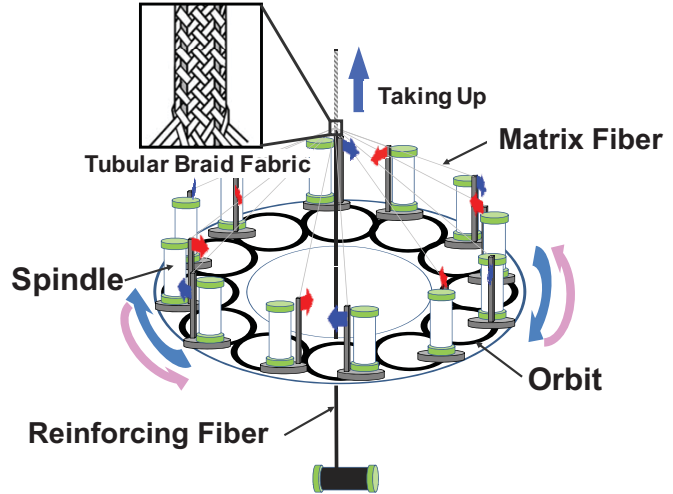
含浸性が低い → **Micro-Braiding法**

強化繊維束近傍に
母材樹脂を均一に配置

含浸性の向上 } が期待できる
均一な含浸



作製された中間材料



組機模式図

研究目的

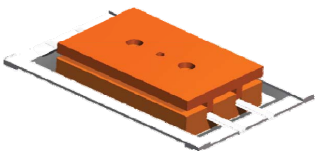
母相
ポリプロピレン PP
・安価・軽量・高疲労強度

+

強化相
炭素繊維 CF
・高強度・軽量・高疲労強度



繊維状中間材料 Micro-Braiding法



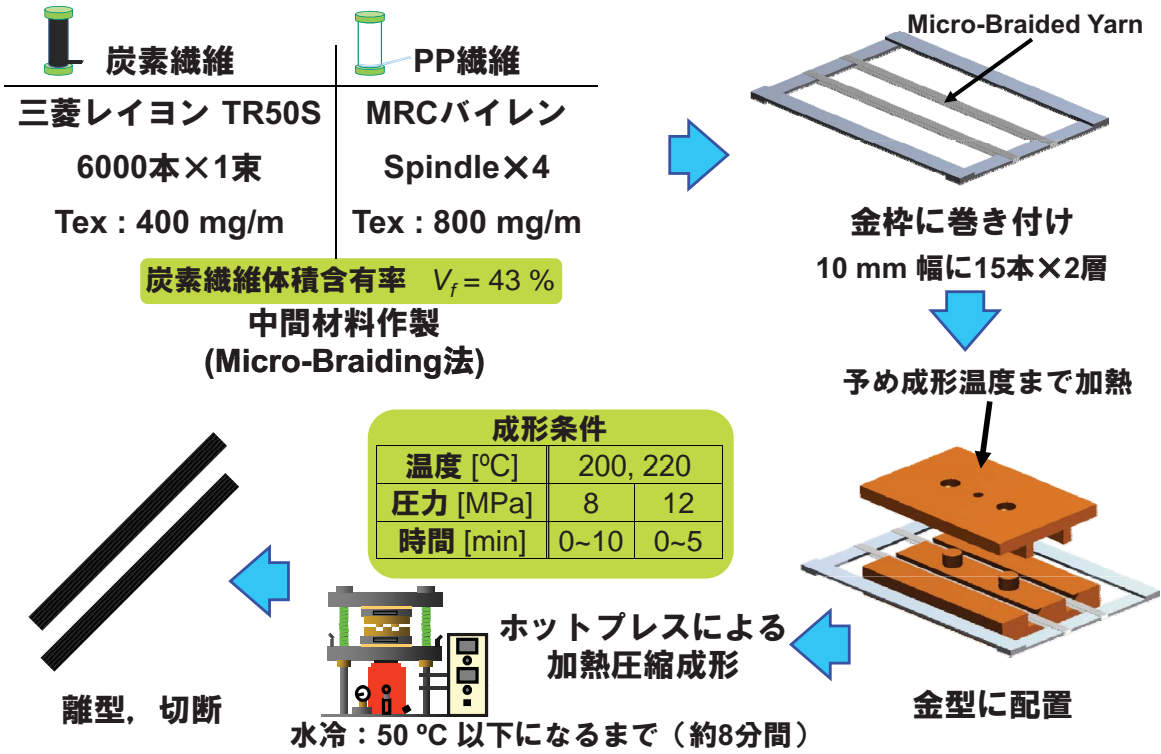
加熱圧縮成形

成形パラメータ
・時間・温度・圧力

熱可塑性樹脂基FRPの樹脂含浸性評価

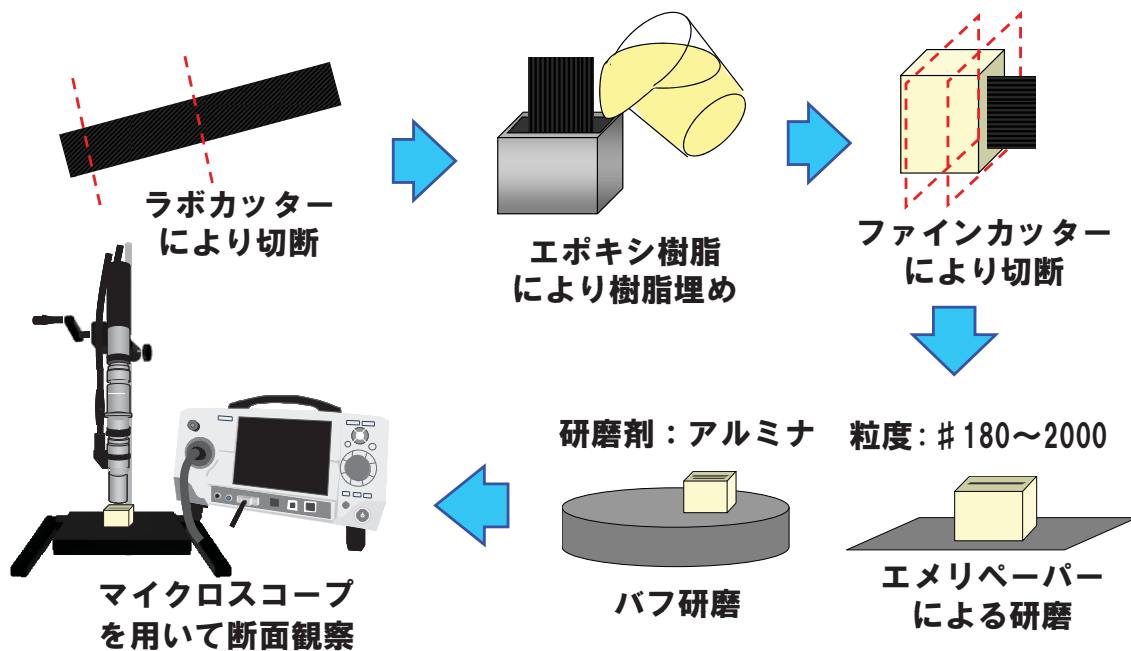
→ 最適な成形条件決定の指針

実験方法-1 <成形方法>

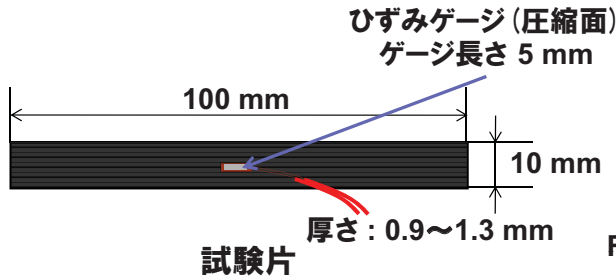


実験方法-1 <断面観察>

強化繊維への樹脂含浸挙動の観察

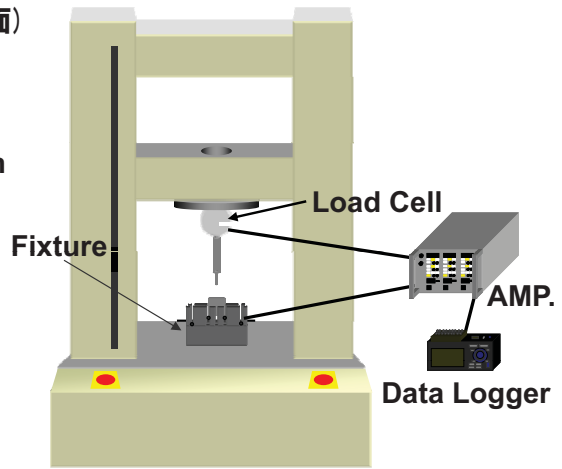


実験方法-1 <4点曲げ試験>

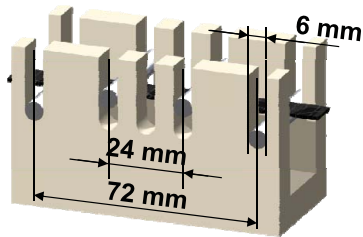


$$\sigma = \frac{3Fl}{bt^2}$$

: 曲げ応力
 l : 上部荷重点間距離
 b : 試験片の幅
 t : 試験片の厚さ
 F : 荷重



試験機 (株)島津製作所製 AG-IS 50kN
クロスヘッドスピード 1 mm/min



4点曲げ試験治具
上部荷重点間距離 24 mm
下部荷重点間距離 72 mm

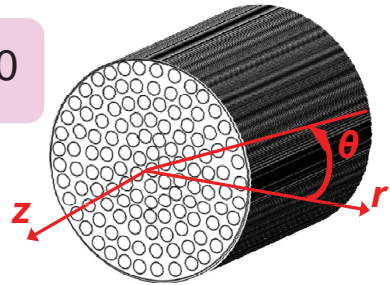
解析-1 <樹脂含浸時間の予測>

繊維間への樹脂の含浸 → 多孔体中の流動現象

Darcy則 $u_r = -\frac{k}{\mu} \cdot \frac{dP}{dr}$

連続の式 $\nabla \cdot \mathbf{u} = 0$

●仮定
 $u_z = 0$ (z方向流速0) $\frac{\partial}{\partial \theta} = 0$ (z軸対称)



●境界条件

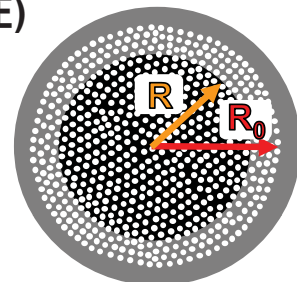
$r = R_0$ (繊維束半径) → $P = P_m$ (成形圧力)

$r = R$ (未含浸領域の半径) → $P = P_0$ (大気圧)

※ $P_0 \ll P_m$ より $P_0 \approx 0$ とする

圧力 P は r について

$$P = \frac{P_m}{\ln(R_0/R)} \ln(r/R)$$



解析-1 <樹脂含浸時間の予測>

$$\text{Darcy則 } u_r = -\frac{k}{\mu} \cdot \frac{dP}{dr} \quad P = \frac{P_m}{\ln(R_0/R)} \ln(r/R)$$

Darcy則と圧力の式から

$$u_r = -\frac{k}{\mu} \cdot \frac{P_m}{\ln(R_0/R)} \cdot \frac{1}{r} \quad \text{が得られる}$$

Flow Frontの速度は

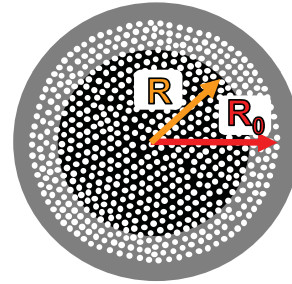
$$u_{r(r=R)} = -\frac{k}{\mu} \cdot \frac{P_m}{\ln(R_0/R)} \cdot \frac{1}{R}$$

含浸時間 t は

$$t = -\frac{\mu}{kP_m} \left\{ \frac{R^2}{2} \ln\left(\frac{R_0}{R}\right) + \frac{R^2 - R_0^2}{4} \right\}$$

また、含浸率 I は

$$I = 1 - \left(\frac{R}{R_0}\right)^2$$



解析-1 <樹脂含浸時間の予測>

含浸時間 t

$$t = -\frac{\mu}{kP_m} \left\{ \frac{R^2}{2} \ln\left(\frac{R_0}{R}\right) + \frac{R^2 - R_0^2}{4} \right\}$$

含浸率 I

$$I = 1 - \left(\frac{R}{R_0}\right)^2$$

含浸時間 t

$$t = -\frac{\mu R_0^2}{4kP_m} \left[(1-I)\{1 - \ln(1-I)\} - (1-I_0)\{1 - \ln(1-I_0)\} \right]$$

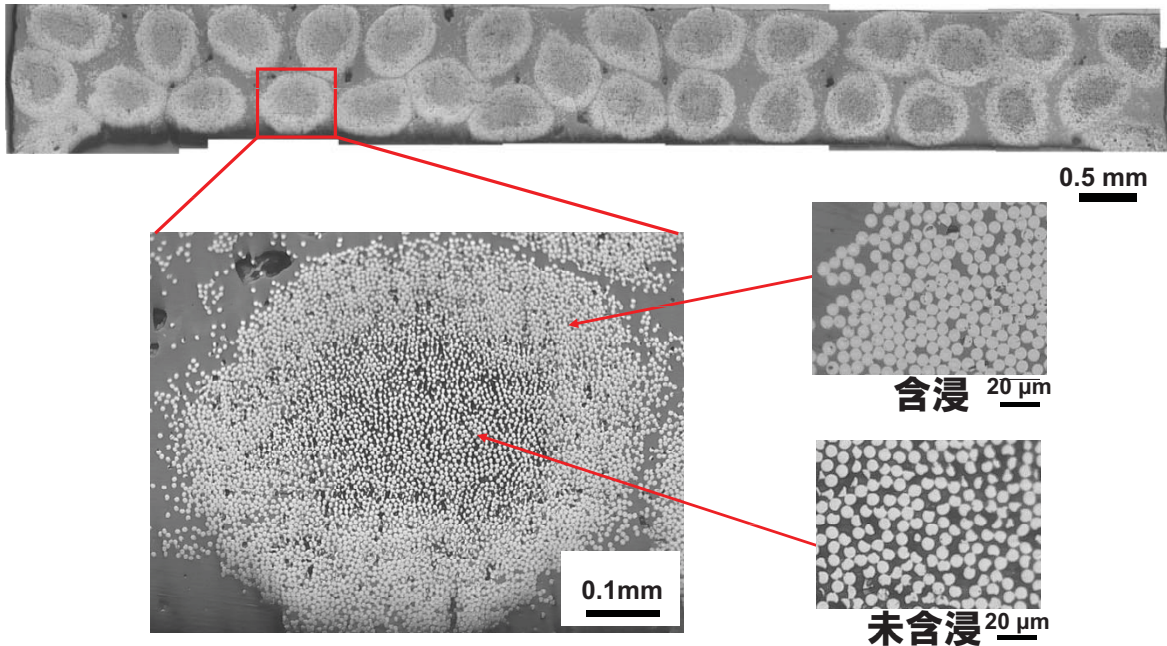
k : 浸透率 μ : 粘度 I : 含浸率 I_0 : $t=0$ における含浸率

$R_0 = 0.6 \text{ mm}$ (断面写真より測定) I_0 : 実験値により決定

P_m : 各成形圧力 $\mu/k = 5.7 \times 10^{16} \text{ kg/s} \cdot \text{m}^3$ (200°C)
 $\mu/k = 4.0 \times 10^{16} \text{ kg/s} \cdot \text{m}^3$ (220°C)

実験結果-1 <断面観察>

成形条件 200 °C 12 MPa 1 min



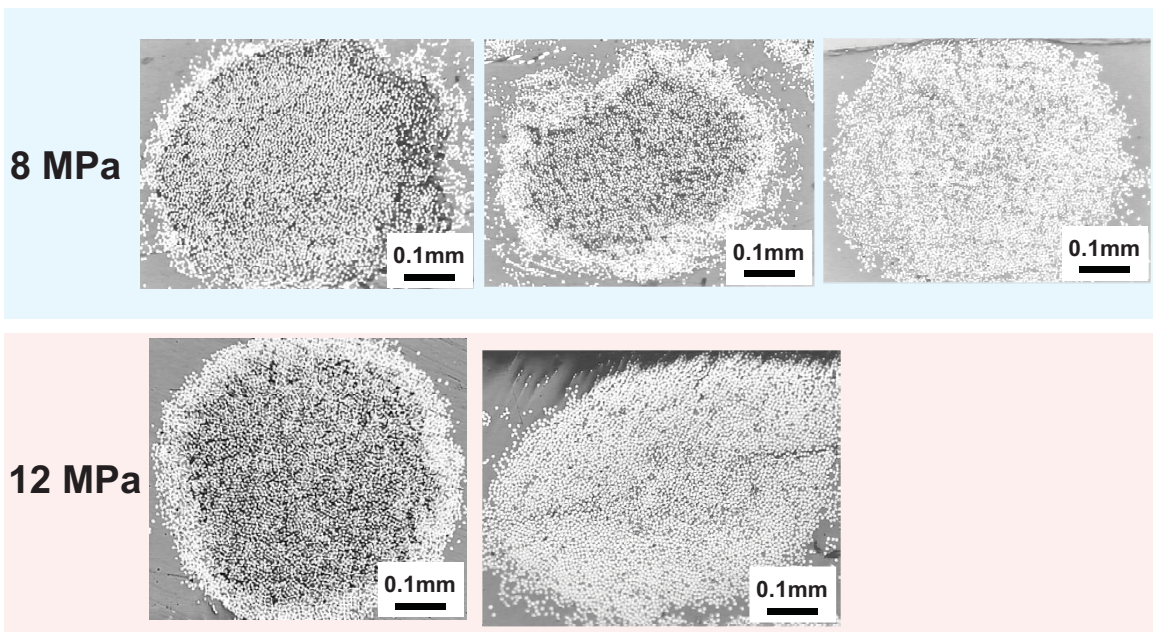
繊維束中心部分に樹脂未含浸の領域

実験結果-1 <断面観察>

0 min

4 min

10 min



成形圧力による含浸時間の差異

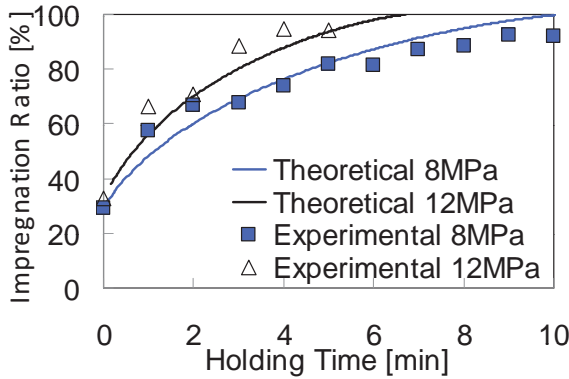
実験結果-1 <断面観察>

成形圧力による比較

$R_0 = 0.6 \text{ mm}$, l_0 : 実験値

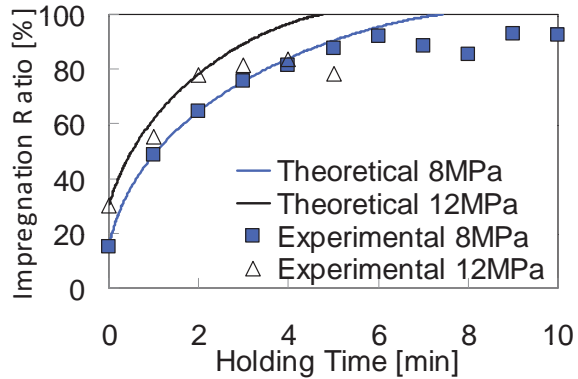
P_m : 各成形圧力

$$t = -\frac{\mu R_0^2}{4kP_m} [(1-l)\{1-\ln(1-l)\} - (1-l_0)\{1-\ln(1-l_0)\}]$$



成形温度 200°C

$$\mu/k = 5.7 \times 10^{16} \text{ kg/s}\cdot\text{m}^3$$



成形温度 220°C

$$\mu/k = 4.0 \times 10^{16} \text{ kg/s}\cdot\text{m}^3$$

実験値 → 理論式と良好な一致

μ/k を求めることで任意の成形条件で含浸時間の予測が可能

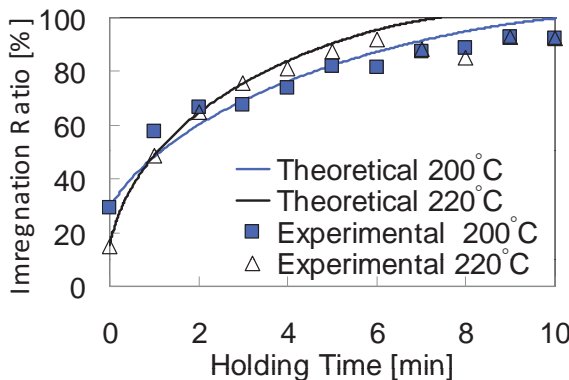
実験結果-1 <断面観察>

成形温度による比較

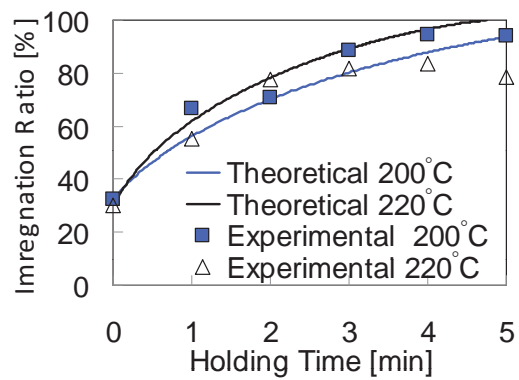
$$t = -\frac{\mu R_0^2}{4kP_m} [(1-l)\{1-\ln(1-l)\} - (1-l_0)\{1-\ln(1-l_0)\}]$$

$$200^\circ\text{C} : \mu/k = 5.7 \times 10^{16} \text{ kg/s}\cdot\text{m}^3$$

$$220^\circ\text{C} : \mu/k = 4.0 \times 10^{16} \text{ kg/s}\cdot\text{m}^3$$



成形圧力 8 MPa

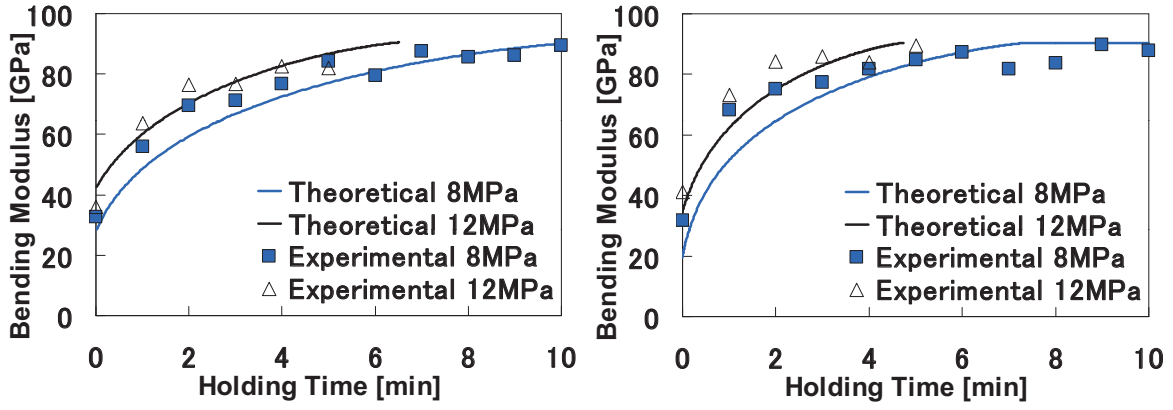


成形圧力 12 MPa

温度の上昇 → 粘度 μ の低下 → 樹脂含浸性向上

実験結果-1 <4点曲げ試験> 成形圧力による比較

$$E_b = \frac{2\alpha}{1+\sqrt{\alpha}} V_f E_{ft} \quad E_{ft}=240 \text{ GPa}, E_{fc}/E_{ft} = 0.84 \text{ (文献値)}, V_f = 43 \%$$



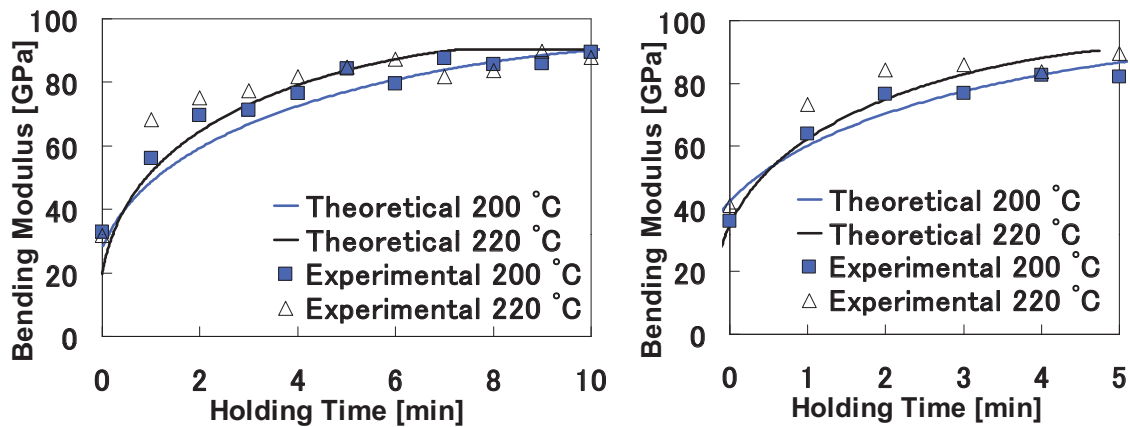
成形温度 200°C

成形温度 220°C

実験値 → 理論式と良好な一致
含浸率を求めることで曲げ弾性率の予測が可能

実験結果-1 <4点曲げ試験> 成形温度による比較

$$E_b = \frac{2\alpha}{1+\sqrt{\alpha}} V_f E_{ft} \quad E_{ft}=240 \text{ GPa}, E_{fc}/E_{ft} = 0.84 \text{ (文献値)}, V_f = 43 \%$$



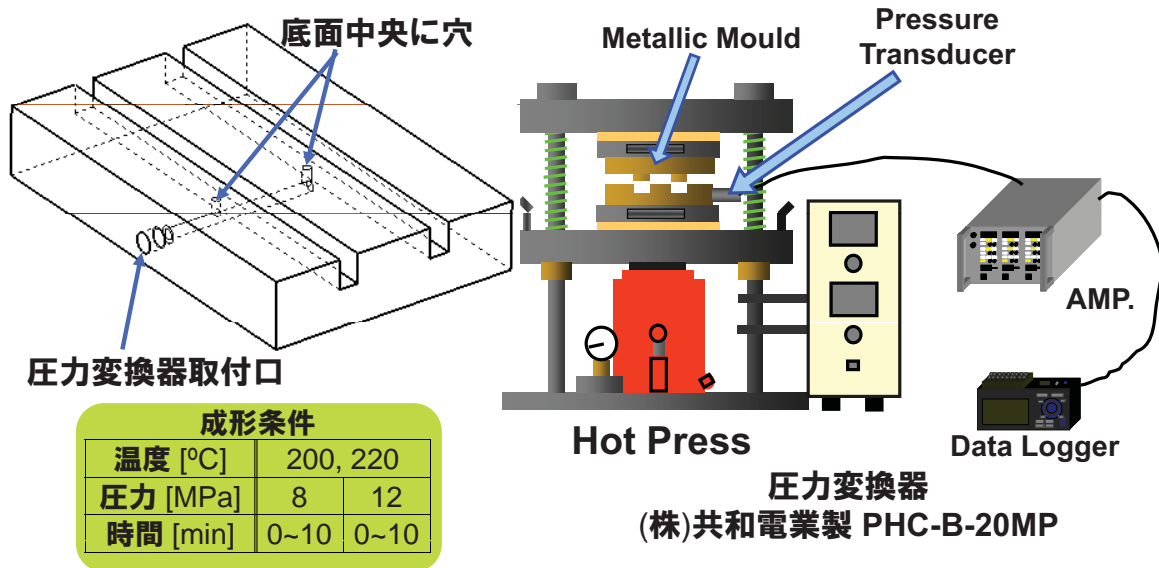
成形圧力 8 MPa

成形圧力 12 MPa

温度上昇 → 含浸率向上 → 曲げ弾性率向上

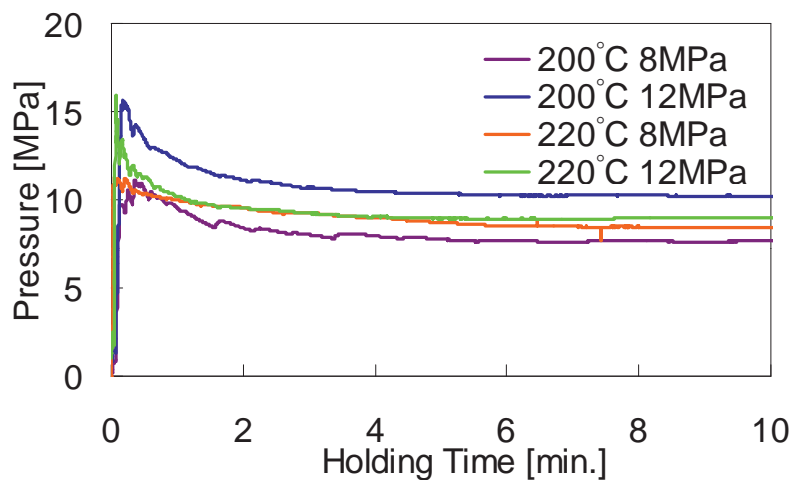
実験方法-2 <圧力測定>

圧力変換器を用いて 実際に成形品に負荷される圧力を測定



実験結果-2 <圧力測定>

$$\int P_m dt = -\frac{\mu R_0^2}{4k} \left[(1-l) \{1 - \ln(1-l)\} - (1-l_0) \{1 - \ln(1-l_0)\} \right]$$



圧力の時間変化 → 急激に圧力上昇後徐々に低下
→ 金型から流出する樹脂の影響が考えられる

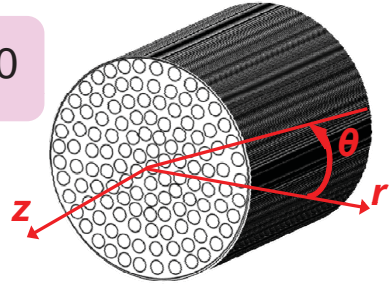
解析-2 <樹脂含浸時間の予測>

繊維間への樹脂の含浸 → 多孔体中の流動現象

$$\text{Darcy則 } u_r = -\frac{k}{\mu} \cdot \frac{dP}{dr}$$

$$\text{連続の式 } \nabla \cdot \mathbf{u} = 0$$

● 仮定
 $u_z = 0$ (z方向流速0) $\frac{\partial}{\partial \theta} = 0$ (z軸対称)



● 境界条件

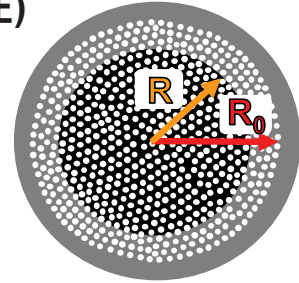
$r = R_0$ (繊維束半径) → $P = P_m$ (成形圧力)

$r = R$ (未含浸領域の半径) → $P = P_0$ (大気圧)

※ $P_0 \ll P_m$ より $P_0 \approx 0$ とする

圧力 P は r について

$$P = \frac{P_m}{\ln(R_0/R)} \ln(r/R)$$



解析-2 <樹脂含浸時間の予測>

$$\text{Darcy則 } u_r = -\frac{k}{\mu} \cdot \frac{dP}{dr}$$

$$P = \frac{P_m}{\ln(R_0/R)} \ln(r/R)$$

Darcy則と圧力の式から

$$u_r = -\frac{k}{\mu} \cdot \frac{P_m}{\ln(R_0/R)} \cdot \frac{1}{r} \quad \text{が得られる}$$

Flow Frontの速度は

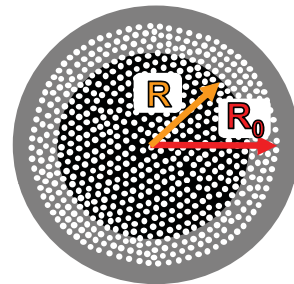
$$u_{r(r=R)} = \frac{dR}{dt} = -\frac{k}{\mu} \cdot \frac{P_m}{\ln(R_0/R)} \cdot \frac{1}{R}$$

成形圧力の時間積分 $\int P_m dt$ は

$$\int P_m dt = -\frac{\mu}{k} \left\{ \frac{R^2}{2} \ln\left(\frac{R_0}{R}\right) + \frac{R^2 - R_0^2}{4} \right\}$$

また、含浸率 I は

$$I = 1 - \left(\frac{R}{R_0}\right)^2$$



解析-2 <樹脂含浸時間の予測>

成形圧力の時間積分 $\int P_m dt$

$$\int P_m dt = -\frac{\mu}{k} \left\{ \frac{R^2}{2} \ln\left(\frac{R_0}{R}\right) + \frac{R^2 - R_0^2}{4} \right\}$$

含浸率 I

$$I = 1 - \left(\frac{R}{R_0}\right)^2$$

成形圧力の時間積分 $\int P_m dt$

$$\int P_m dt = -\frac{\mu R_0^2}{4k} \left[(1-I)\{1 - \ln(1-I)\} - (1-I_0)\{1 - \ln(1-I_0)\} \right]$$

k : 浸透率 μ : 粘度 I : 含浸率 I_0 : $t=0$ における含浸率

$R_0 = 0.6 \text{ mm}$ (断面写真より測定) I_0 : 実験値により決定

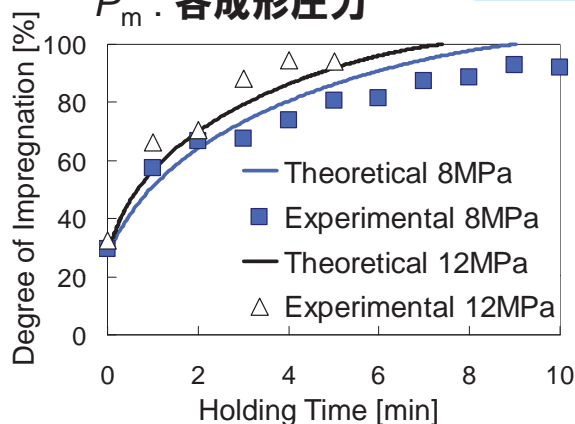
$\int P_m dt$: 各成形圧力測定値より算出 $\mu/k = 5.7 \times 10^{16} \text{ kg/s}\cdot\text{m}^3$ (200°C)
 $\mu/k = 4.3 \times 10^{16} \text{ kg/s}\cdot\text{m}^3$ (220°C)

実験結果-2 <断面観察>

成形圧力による比較

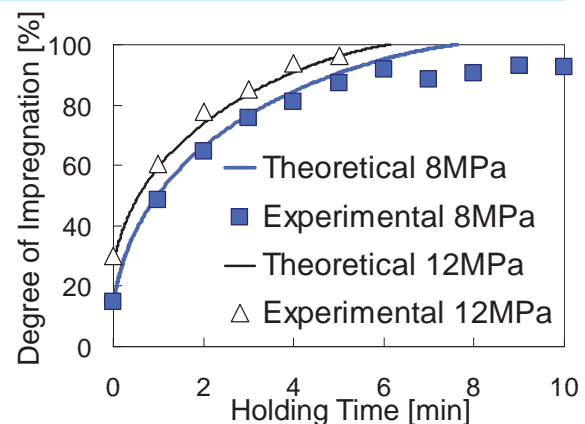
$R_0 = 0.6 \text{ mm}$, I_0 : 実験値
 P_m : 各成形圧力

$$\int P_m dt = -\frac{\mu R_0^2}{4k} \left[(1-I)\{1 - \ln(1-I)\} - (1-I_0)\{1 - \ln(1-I_0)\} \right]$$



成形温度 200°C

$\mu/k = 5.7 \times 10^{16} \text{ kg/s}\cdot\text{m}^3$



成形温度 220°C

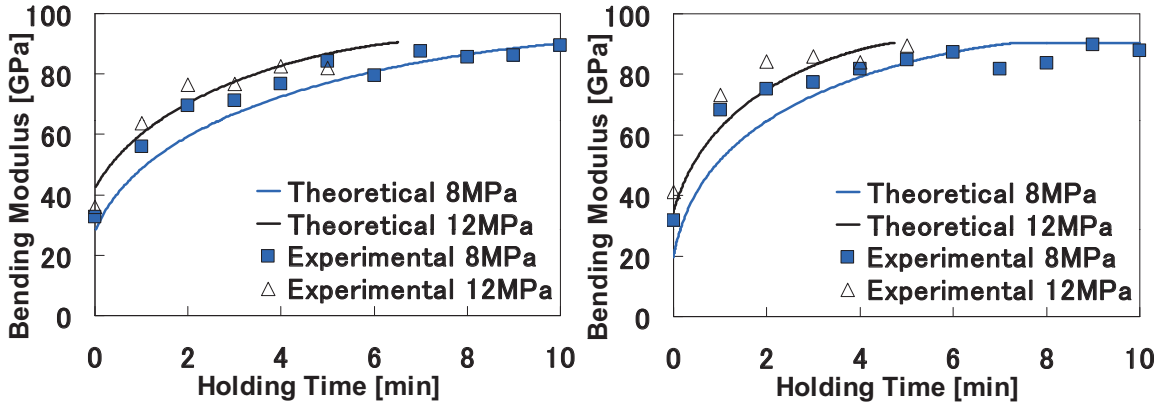
$\mu/k = 4.3 \times 10^{16} \text{ kg/s}\cdot\text{m}^3$

実験値 → 理論式と良好な一致

μ/k を求めることで任意の成形条件で含浸時間の予測が可能

実験結果-2 <4点曲げ試験> 成形圧力による比較

$$E_b = \frac{2\alpha}{1+\sqrt{\alpha}} V_f E_{ft} \quad E_{ft}=240 \text{ GPa}, E_{fc}/E_{ft} = 0.84 \text{ (文献値)}, V_f = 43 \%$$



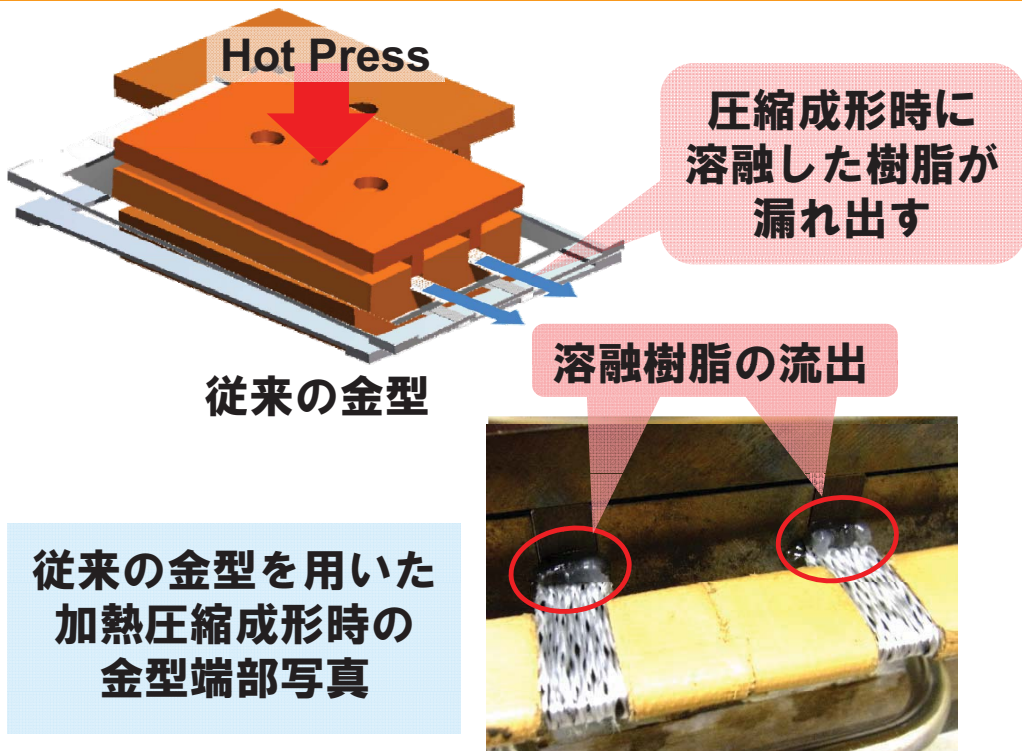
成形温度 200°C

成形温度 220°C

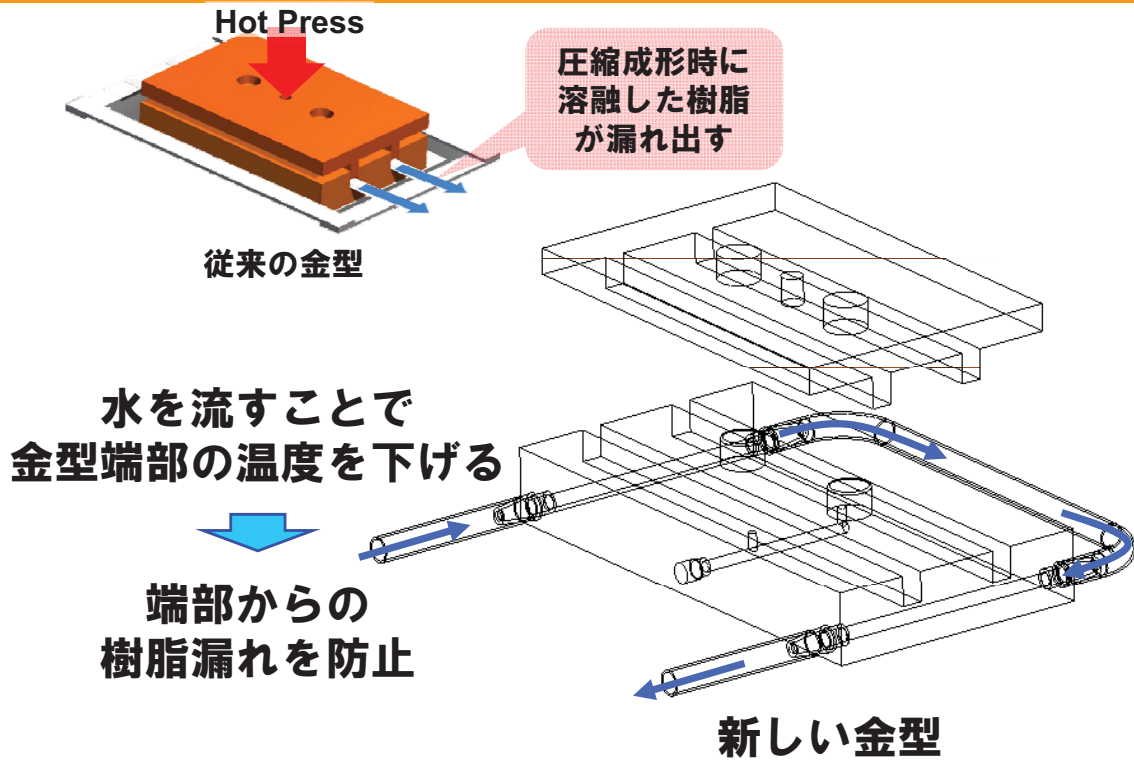
実験値 → 理論式と良好な一致

含浸率を求めることで曲げ弾性率の予測が可能

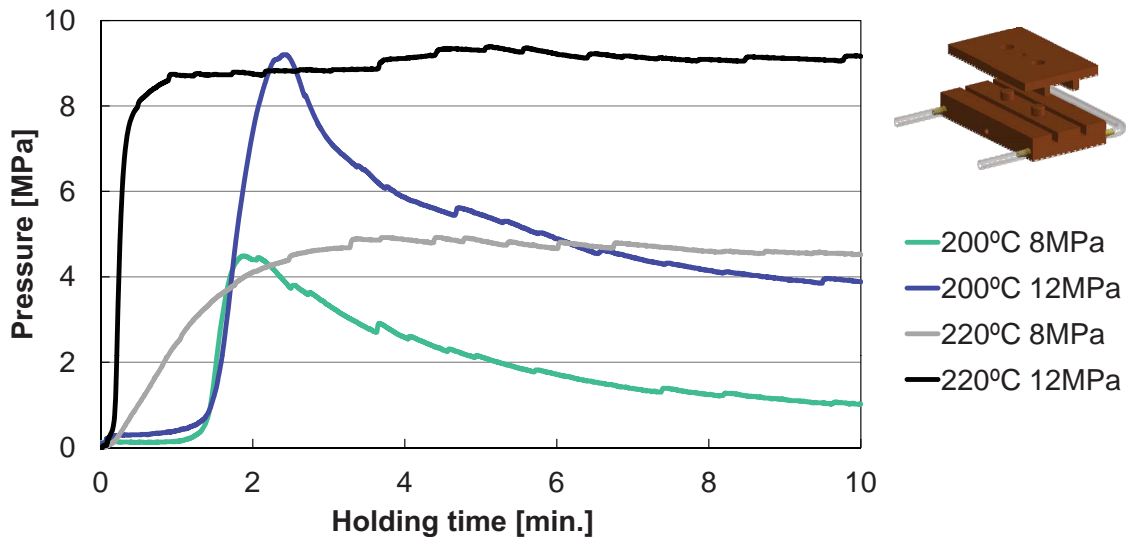
実験方法-3 <圧力損失の低減>



実験方法-3 <圧力損失の低減>



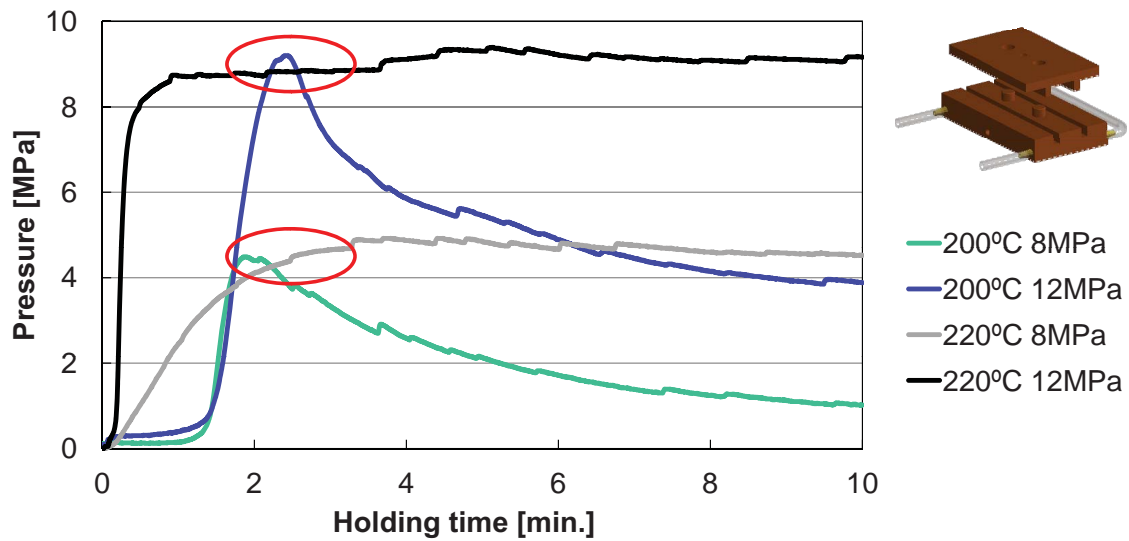
実験結果-3 <圧力測定 (新しい金型) >



成形温度によって圧力履歴が異なる

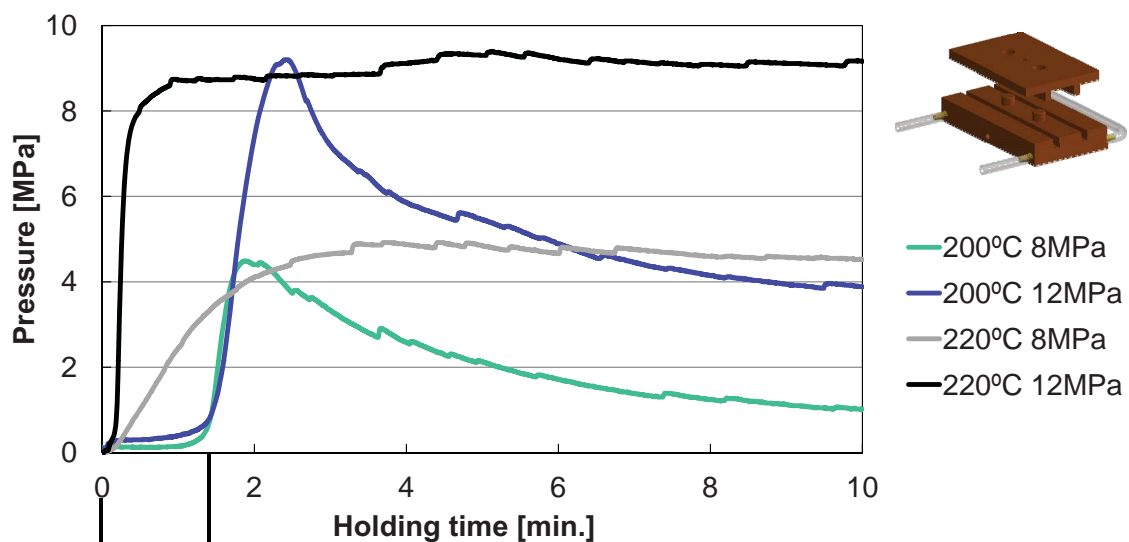
- 200°C ➡ ピーク後、徐々に圧力低下
- 220°C ➡ ピーク後も圧力保持

実験結果-3 <圧力測定 (新しい金型)>



圧力ピークは各成形圧力で等しい

実験結果-3 <圧力測定 (新しい金型)>

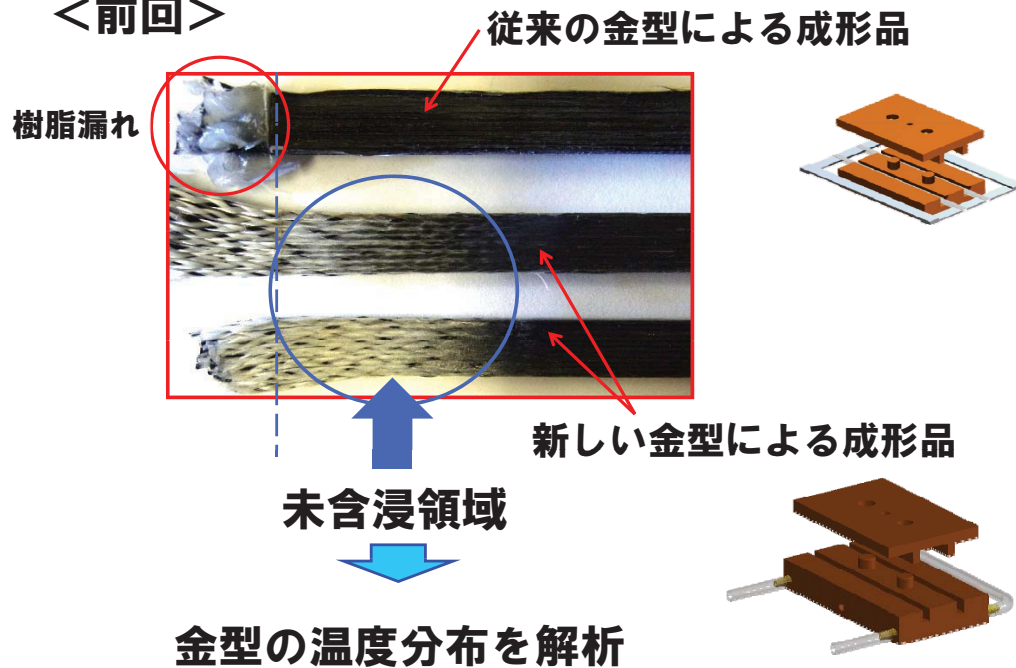


(成形温度200°Cにのみ見られる)

樹脂溶融までにかかる時間?

実験結果-3 <新しい金型を用いた成形>

<前回>



結言

含浸性

Darcy則, 連続の式による含浸時間予測式の提案

→ 実験値に良好な一致 → μ/k を求めることで含浸時間予測可能

4点曲げ試験

樹脂含浸率を考慮した曲げ弾性率予測式の提案

→ 実験値と良好な一致 → 樹脂含浸率により曲げ弾性率予測可能

圧力損失の低減

水冷による樹脂流出抑制

→ 温度分布の存在 → 金型形状の改良が必要