

令和 5 年 6 月 26 日現在

機関番号：13701

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05099

研究課題名（和文）リサイクル炭素繊維紡績糸を用いた複合材料の含浸および損傷進展モデルの構築

研究課題名（英文）Construction of impregnation and damage progress model of composite material using recycled carbon fiber spun yarn

研究代表者

仲井 朝美（Nakai, Asami）

岐阜大学・工学部・教授

研究者番号：10324724

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：リサイクル短繊維の連続繊維化技術の確立を目的として基礎技術を構築した。連続繊維とは、炭素繊維とマトリックス樹脂繊維との混合紡績糸（リサイクル紡績糸）である。リサイクル紡績糸を繊維状中間材料とし、テキスタイル技術を用いてノンクリンプファブリックを作製した。同時に、リサイクル紡績糸を用いた成形技術の確立をおこなった。リサイクル紡績糸を用いた複合材料は理論値に比べてはるかに低い力学的特性を有すること、その原因は既存の加熱方法がリサイクル紡績糸に適していない事、界面特性がバージン材に比べて低いことに起因することを明らかにした。そこで、リサイクル紡績糸に適した加熱方法の開発および表面処理条件を構築した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

不連続かつ撚り構造を有する炭素繊維集合体に対する含浸・損傷理論は確立されていないため、これらの理論体系を構築し、リサイクル紡績糸を用いた複合材料の成形性・テキスタイル加工性・力学的特性を明らかにする点に学術的意義がある。使用後の炭素繊維強化複合材料は主に埋立処分がなされており、再製品化は一部にとどまっている。リサイクル炭素繊維を紡績して連続繊維化を行うことで、糸および布帛として成形用の中間基材化を図り、リサイクル炭素繊維の新たな利用方法を提案することにより、最終処分量の削減に貢献できる点に社会的意義がある。

研究成果の概要（英文）：Basic technology was investigated for the purpose of establishing continuous fiber technology for recycled short fibers. Continuous fibers are spun yarns (recycled spun yarns) of carbon fibers and matrix resin fibers. Non-crimp fabric is realized by textile technology that uses recycled spun yarn as an intermediate fiber material. At the same time, molding technology was established using recycled spun yarn. Composites with recycled spun yarns have mechanical properties significantly lower than theoretical values due to existing heating methods that are not suitable for recycled yarns and poor interfacial properties compared to virgin materials. Therefore, a heating method suitable for recycled spun yarns and surface treatment conditions were established.

研究分野：複合材料工学

キーワード：リサイクル炭素繊維 紡績技術 連続繊維化 テキスタイル加工 複合材料 成形加工 表面処理 力学的特性

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

炭素繊維強化プラスチック (CFRP) は、高強度・軽量・耐熱性の特性を活かし、様々な分野で利用され、2030年の世界市場は、2017年比2.6倍の3兆5800億円に拡大すると見込まれ、自動車や風力発電ブレード、航空機、建築や土木で採用が拡大する見通しである。航空分野では大型機やビジネスジェットを生産本格化などによって需要が拡大する見通しであるが、同時に機体製造時の端材も大量に発生することとなる。エアバスでは2020年から2025年にかけて生産工程で発生したCFRPの端材の95%をリサイクル産業に流通させる計画がある。また、これまでに自動車や航空機用途で利用されたCFRPが2025年頃に大量の廃材となる時期を迎えるため、リサイクルシステムの構築は急務であり、炭素繊維とマトリクス樹脂の分解などリサイクル技術の研究開発は展開されている。

CFRPリサイクルは、国内研究機関等で分離・取り出しの技術開発が進められているが、取り出したCFは短繊維として用いるしか方法はなく、ペレット、不織布等の原料など、軽量部材としての限定的な利用となっている。そのため、回収したCFの新たな形態での利用、用途開発、サプライチェーンの構築が必要であり、その技術開発はCFの持続可能な生産消費形態を維持する (SDGs 目標12) には欠かせないものである。

2. 研究の目的

本研究の目的は、リサイクルにより短繊維化された炭素繊維 (CF) を、紡績技術により連続繊維 (糸) として中間材料化、さらに糸から織物、組物として基材化し、連続繊維強化熱可塑性樹脂複合材料を作製することであり、そのために必要な基礎的理論を構築することである。リサイクルCFは不織布等への適用にとどまっており、炭素繊維の優れた性能を十分に活かしていない。そこで、より高度な用途展開ができる連続繊維化に着目し、性能として優位となる用途展開を狙い、現在国内研究機関等で取組みがなされている廃CFRPからのCF分離・回収技術と連動させ、マテリアルリサイクルシステムの構築に繋げるものである。一方、不連続かつ撚り構造を有する炭素繊維集合体に対する含浸・損傷理論は確立されていないため、これらの理論体系を構築し、リサイクル連続繊維を用いた複合材料の成形性・テキスタイル加工性・力学的特性を考慮したモデル化をおこなう。

3. 研究の方法

(1) リサイクル短繊維の連続繊維化技術の確立

ここで検討する連続繊維は、炭素繊維と樹脂繊維 (成形時にマトリクスとなる) との混合紡績を前提としている。紡績技術については、カード機・粗紡機・精紡機等の大型設備が必要になるため、協力企業と共同開発することを想定しており、バージン炭素繊維を用いた紡績系の作製技術についてはすでに完成していることを確認している。

(2) リサイクル連続繊維の基材化技術の確立

リサイクルにより短繊維化されたCFを、紡績技術により連続繊維として中間材料化することにより、織物、編物、組物として基材化が可能となる。一方で、これまで不連続繊維を用いたテキスタイル加工はほとんどおこなわれておらず (一部、牽切紡績によるバージン炭素繊維紡績系のテキスタイル加工は実施されているが、樹脂繊維でカバーリングされており、損傷等の影響を受けにくい構造で実施している) 加工時の繊維の損傷や表面処理がテキスタイル加工性に及ぼす影響については明らかとなっていない。本研究では、不連続かつ撚り構造を有する炭素繊維集合体を用いたテキスタイル加工性の評価に基づき、リサイクル炭素繊維の構造および表面処理の最適化をおこなう。

(3) リサイクル連続繊維を用いた成形技術の確立

不連続かつ撚り構造を有する炭素繊維集合体を用いた複合材料に対する含浸理論は確立されていない。また、成形時に負荷される圧力や繊維方向軸力に対するリサイクル連続繊維の構造変化も考慮する必要もある。さらに、熱処理を受けたリサイクル炭素繊維は、その表面性状が異なっており、表面処理の影響もバージン材とは異なる可能性がある。本研究では、まず、リサイクル連続繊維を用いた成形条件 (成形圧力・成形温度・成形時間) と含浸性・繊維配向状態の関係を明らかにする。具体的には、基本構造である一方向材料を成形対象とし、紡績系の構造、材料の組合せ (炭素繊維および樹脂の種類) 表面処理を変化させた系に対して検討する。これらの結果に基づき、リサイクル連続繊維を用いた成形条件の最適化および成形技術を確立する。

(4) リサイクル連続繊維を用いた複合材料の破壊メカニズムの解明とモデル化

不連続かつ撚り構造を有する炭素繊維集合体を用いた複合材料に対する損傷理論は確立されていない。そこで、まず、リサイクル連続繊維を用いた複合材料の破壊メカニズムを解明する。具体的には、基本構造である一方向材料および織物複合材料を成形し、静的引張試験のその場観察

を行うことで、微視的損傷の発生および進展挙動を明らかにする。明らかとなった損傷進展挙動に対して、適用可能な破壊則を提案し、損傷進展挙動のモデル化をおこなう。モデルの有効性に関しては、紡績系の構造、材料の組合せ（炭素繊維および樹脂の種類）、表面処理を変化させた系に対して適用することで検証する。

4. 研究成果

(1) リサイクル短繊維の連続繊維化技術の確立を目的として基礎技術の構築をおこなった。ここでいう連続繊維化技術の確立とは、繊維構造の最適化および表面処理の最適化を意味している。繊維構造の最適化において、具体的な検討項目として、まず、リサイクル繊維の繊維長を検討した。次に、樹脂繊維との混紡率、撚り角度といった紡績系の繊維構造を検討した。

(2) リサイクルにより短繊維化された CF を、紡績技術により連続繊維として中間材料化することにより、織物等の基材化が可能となる。本研究では、不連続かつ撚り構造を有する炭素繊維集合体を繊維状中間材料とし、たて編物および織物技術を用いてノンクリンプファブリックを作製した。

(3) 中間材料としてリサイクル炭素繊維（トレカ T-700 SC, 東レ（株））と樹脂繊維（Polypropylene: PP）を混合した紡績系を使用した。UD 材成形のためのプリフォームを TFP（Tailored Fiber Placement）技術で作製した。図 1 に作製したプリフォームの写真を示す。紡績系を 20mm 幅で長手方向に 10 本引き揃えるように二層フィルム上に刺繍することで、20 本の紡績系を引き揃えたプリフォームとした。紡績系を縫いとめるための刺繍糸やフィルムは樹脂繊維と同じ PP を使用した。これらは成形時に熔融し、母材樹脂の一部となる。樹脂フィルムが表面になるように 2 層対称積層し、加熱圧縮成形することで一方向材を成形した。プレス機は、型式 STVP-10（佐藤鉄工（株）製）を用いた。成形条件を表 1 に示す。成形圧力、成形時間、成形温度をそれぞれ 1MPa, 5min, 200°C を基準に成形条件を変更して成形をおこなった。

成形品の含浸状態を比較するため断面観察をおこなった。一方向材を長手方向に対して垂直に切断した断面を、光学顕微鏡（GX41F-OLYMPUS（株）社製）を用いて観察した。静的引張試験には万能試験機（INSTRON（株））を使用し、試験片寸法を長さ 200mm, 幅 20mm, 標点間距離 100mm, 試験速度 1mm/min とした。両端に長さ 50mm, 幅 20mm, 厚さ 2mm のアルミニウム製タブを貼り付けた。また、試験片中央部にひずみゲージを貼付し、ひずみを測定した。

表 1 リサイクル紡績系を用いた一方向材料の成形条件



図 1 リサイクル紡績系プリフォーム

Molding Pressure (MPa)	Molding Time (min)	Molding Temperature (°C)
1	5	200
1	3	200
1	10	200
2	5	200
1	5	190
1	5	210
3	5	200
1	20	200

成形温度の増加により未含浸率が 200°C までは一定値を示し、以降は増加した。190°C から 200°C までが一定値であったことから、この圧力と時間の条件下においては、190°C で樹脂が含浸に必要な熔融粘度に達しているといえる。210°C では樹脂の熱分解によるガス発生によりポイドが成形時に発生したものと考えられる。成形時間 5min で未含浸率が最小値を示したことから、5min が最適といえる。これは 5min で樹脂含浸が完了し、5min 以降では樹脂の熱分解によるガスの発生によりポイドが発生したためと考えられる。未含浸率は圧力によらず一定値を示し、圧力による影響を受けないことがわかる。しかし、厚みが大きく変化しているにもかかわらず未含浸率に変化がなかったことを考慮すると、ポイド量が減少していることがわかる。そこで、単位面積当たりではなく、単位長さあたりの未含浸領域で比較した。これより、3MPa で減少していることから、圧力を増加させることでポイド量が小さくなっていることがわかる。

引張強度は 190°C ~ 200°C で一定値を示し、200°C 以降は低下した。これは成形温度を上昇させたことで、樹脂の熱分解による劣化が進行したため強度低下したものだと考えられる。10min までは成形時間の増加に伴い強度が向上し、10min 以降は減少傾向を示した。このことから 10min までは含浸が進行したことによる影響を受け強度が向上し、10min 以降では熱劣化による影響を

受け、強度低下したと考えられる。よって最適時間条件は 10min 付近に存在するとい。2MPa までは強度が向上し、それ以降は強度が低下した。強度が向上したのは、高圧力ほど成形品の厚みが小さくなっていることから、圧力を高くすることで樹脂が流動し、繊維体積含有率が向上したためと考えられる。また、2MPa 以降では繊維が流動したことにより強度が低下したものと考えられる。よって、2MPa 以下でなら成形可能である。

(4)(3)において最適な成形条件を検討したものの、紡績糸を用いた複合材料は、理論値に比べてはるかに低い力学的特性を有することが明らかとなった。その原因は、バージン材に対して使用されている既存の加熱方法がリサイクル紡績糸に適していない事、界面特性がバージン材に比べて低いことに起因する。そこで、リサイクル紡績糸に適した加熱方法の開発および表面処理条件を構築した。プリフォームをエマルジョン（開発品）に 10 分浸漬させた後、90°C で 5 時間乾燥させた。この処理済みプリフォームを(3)において得られた成形条件で成形をおこなった。図 2 に未含浸率とエマルジョン付着量の関係を示す。含浸性はエマルジョンを付着させることで改善したといえるが、付着量増加による含浸性の差はみられなかった。図 3 に引張強度とエマルジョン付着量の関係を示す。引張弾性率、引張強度が最大値を示したのはともにエマルジョン付着量が 4.7% の時である。図 4 にエマルジョンによる浸漬処理前と後の引張破断面の SEM 画像をそれぞれ示す。浸漬処理した試験片は樹脂の付着量が増加していることから界面接着性が向上していることが明らかとなり、成形品の引張特性向上の要因であることが確認できた。また、引張弾性率と強度の減少は PP エマルジョンが付着したことで厚さが増加しており、繊維体積含有率が低下したことが原因である。

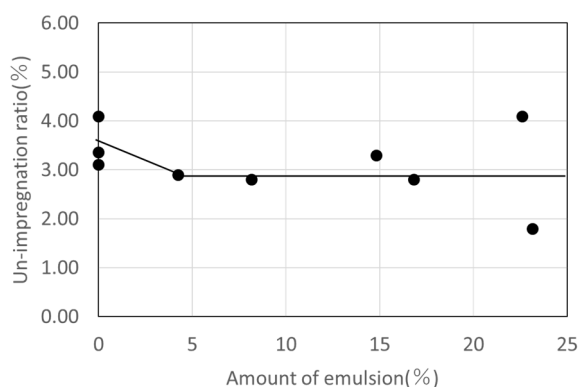


図 2 未含浸率とエマルジョン付着量の関係

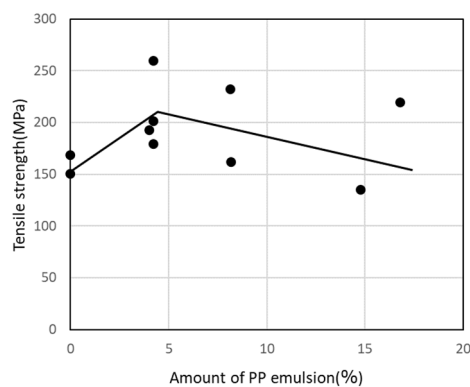


図 3 引張強度とエマルジョン付着量の関係

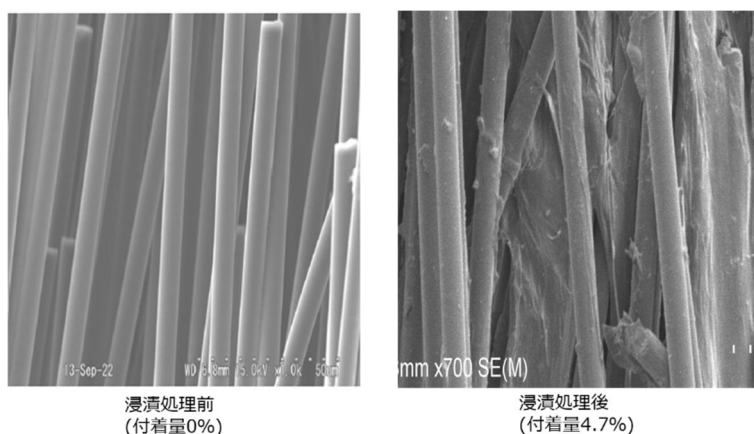


図 4 引張破断面の SEM 画像

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 高畑圭吾、札内彰、大谷章夫、仲井朝美
2. 発表標題 リサイクル炭素繊維紡績糸を用いたCFRTPの力学的特性向上に向けた検討
3. 学会等名 第14回日本複合材料会議(JCCM-14)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------