

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 9 日現在

機関番号：34419

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05120

研究課題名(和文)熱可塑性CFRPの繊維/樹脂界面近傍での融着過程のマイクロ・ナノ粒子の現象解明

研究課題名(英文)Elucidation of micro / nano particle phenomena in welding process of carbon fiber reinforced thermoplastics near the fiber / polymer interface

研究代表者

西藪 和明(Nishiyabu, Kazuaki)

近畿大学・理工学部・教授

研究者番号：30208235

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)：本研究は、炭素繊維強化熱可塑性プラスチック(熱可塑性CFRP)の繊維/樹脂界面近傍での融着接合過程の現象解明を目的とし、融着接合部に添加するマイクロ・ナノ粒子の影響を調査した。具体的には、単層および多層カーボンナノチューブを融着接合層の熱可塑性樹脂と均一に熔融混練し、超音波融着接合や抵抗融着接合の融着接合層として用いた。融着接合挙動や引張せん断強度を評価した結果、カーボンナノチューブを添加することで、融着接合層の樹脂溶融が促進され、カーボンナノチューブの3次元ネットワーク構造により、引張せん断強度が向上することが示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の成果は、熱可塑性樹脂複合材料の融着接合プロセスにおける普遍的な影響因子を明らかにするものであり、熱可塑性CFRP等の先進材料の融着接合プロセスの高度化に貢献できる。これにより、熱可塑性複合材料の用途拡大をより進めることが可能となり、学術的な独創性や工業的有用性は極めて高いと考えられる。また、マイクロ・ナノテクノロジーとCFRPの成形加工技術を融合した先進的な技術分野を開拓し、普遍性の高い研究成果が産業応用につながると考えられる。

研究成果の概要(英文)：This study aims to revealed that the phenomenon in fusion joining process near fiber/polymer interface in carbon fiber reinforced thermoplastic (CFRTP). Specifically, the effect of micro-nanoparticles added to the fusion joint was experimentally investigated. In the experiments, single-walled and multi-walled carbon nanotubes were homogeneously melt-kneaded with the thermoplastic polymer of the fusion joining layer and used as joining layers for ultrasonic welding and electric resistance welding. As a result of evaluating the fusion joining behavior and tensile shear strength, the addition of carbon nanotubes promoted the polymer melting of the fusion joining layer. In addition, it was found that the tensile shear strength is improved due to the three-dimensional network structure of carbon nanotubes.

研究分野：機械工学

キーワード：熱可塑性CFRP 融着接合 接合界面 引張せん断強度 超音波融着接合 抵抗融着接合

1. 研究開始当初の背景

近年、環境・エネルギー問題の深刻化やSDGsの推進により、航空機や電気自動車等の次世代輸送機器や産業機器の構造部材の軽量化を目的に、鋼の高張力化や軽金属への代替、さらに樹脂および炭素繊維強化プラスチック (Carbon Fiber Reinforced Plastics, CFRP) への材料転換への動きが国内外で活発に行われている。

今日では、CFRPの母材樹脂に熱可塑性樹脂を用いた炭素繊維強化熱可塑性プラスチック (熱可塑性CFRP) に代表されるような熱可塑性樹脂複合材料が、次世代輸送機器の構造部材等での利用が期待されている。その熱可塑性樹脂複合材料は、従来の短繊維で強化された射出成形品ではなく、一方向や織物などの連続した炭素繊維等で強化された連続繊維強化熱可塑性樹脂複合材料である。

上述の熱可塑性CFRPのような熱可塑性樹脂複合材料を用いて構造部材を製造する際には、プレス成形やハイブリッド射出成形、自動積層成形等が用いられるが、強化繊維の変形能が乏しく、樹脂の熔融粘度も高いため複雑形状を製造することは困難であるため、何らかの手法で接合する必要がある。

図1に示すように、接合面の樹脂を加熱溶解させて接合を行う“融着接合”は、熱可塑性樹脂複合材料の有効な接手法の一つとして注目されているが、その際に重要な技術的課題は、融着部における繊維/樹脂界面の材料設計とそのプロセス、および強度耐久性であるが、さらなる性能向上と実用化のためには、より広範な材料と先進的な加工法を融合した学際的な提案が必要である。



図1 接合方法の比較

2. 研究の目的

本研究は、熱可塑性複合材料の繊維/樹脂界面近傍の融着過程に着目し、繊維/樹脂界面におけるマイクロ・ナノ粒子が融着過程に及ぼす現象を解明することを目的とする。

具体的には、単層カーボンナノチューブ (SWCNT) や多層カーボンナノチューブ (MWCNT) を熱可塑性樹脂と均一に熔融混練したナノコンポジットを融着接合層として用い、炭素繊維強化熱可塑性プラスチック (熱可塑性CFRP) の超音波融着接合や抵抗融着接合を行った際の融着界面の発熱効率の向上や繊維強化能を向上させる。

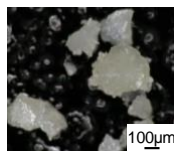
また、研究分担者がこれまで取り組んできた熱可塑性複合材料の各種融着接合手法における研究成果を応用し、融着過程での加熱・加圧・冷却工程が繊維/樹脂界面や接合強度に及ぼす影響を実験的に解明することを目的とする。

3. 研究の方法

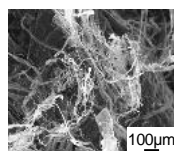
(1) 使用材料

接合対象には、織物炭素繊維強化ポリフェニレンサルファイド樹脂積層板 (5H 朱子織, 繊維体積割合 $V_f=45$ vol.%, 厚さ $t=2.5$ mm, 積層構成 $[0/90]_8$, 以下織物CF/PPS積層板) をダイヤモンドカッターを用いて、長さ 60 mm × 幅 20 mm に湿式切断したものを使用した。

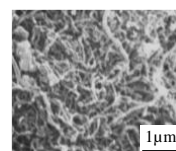
融着接合層となるエネルギーダイレクタには、PPSフィルム (厚さ 0.1 mm) および PPSペレットを冷凍粉碎して得られた図2(a)に示す PPS粉末 (粒径 100-300 μ m) と、図2(b)に示す単層カーボンナノチューブ (外径 1.2-2.0 nm, 長



(a) PPS powder



(b) SWCNT



(c) MWCNT

図2 使用材料

さ5 μm 以上, 以下 SWCNT) および図2(c)に示す多層カーボンナノチューブ (外径10-30 nm, 長さ1-10 μm , 以下 MWCNT) を使用した。

(2) エネルギーダイレクタの作製方法

CNT 添加エネルギーダイレクタの作製方法を図3に示す。

(a) PPS 粉末に対し, 種々の CNT を任意の重量割合で添加して NMP 溶媒中に超音波分散させ, (b) CNT/NMP 溶液を金型温度 320°C のポットに投入し熔融混練を行い, (c) 金型温度 290°C, 荷重 1.5ton, 保持時間 10min. の条件で真空加熱プレス成形を行い, 厚さ 0.2mm のシート状の成形品を得た。

その後, (d) 超音波カッターを用いて, 幅 25mm×長さ 25mm に切断することでエネルギーダイレクタを得た。

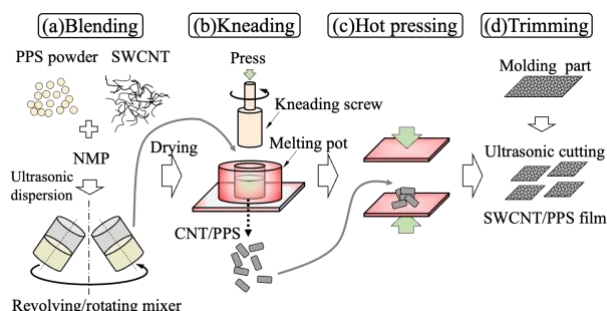


図3 エネルギーダイレクタの作製方法

(3) 超音波融着接合方法

超音波融着接合装置の概要図を図4に示す。超音波発振器 (最大出力 2600 W, 周波数 20 kHz) から得られる超音波エネルギーを, ボルト締めランジュバン型振動子に印加することで微小な振幅の超音波振動が発生する。

超音波振動を超音波ホーン (ホーン先端寸法 27mm×27 mm) で増幅し, サーボプレス装置を用いて 0.5 kN の一定荷重を負荷しながら超音波振動を与えると, エネルギーダイレクタが表面摩擦と粘弾性摩擦により PPS 樹脂の融点 ($T_m=290^\circ\text{C}$) 以上に発熱し, 融着接合面近傍の樹脂が加熱・熔融する。その後, 加圧しながら空冷で PPS 樹脂のガラス転移温度 ($T_g=90^\circ\text{C}$) 以下まで冷却し, 樹脂を固化することにより融着接合を行った。

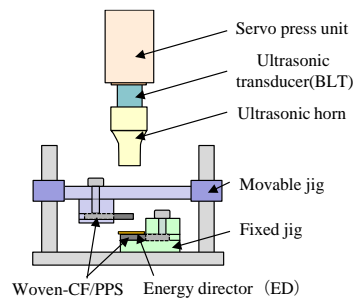


図4 超音波融着接合方法

本研究では, 融着接合現象を評価するために, 融着接合部に負荷される荷重や超音波ホーン of 押し込み量をモニタリングした。また, 超音波接合強度を評価するために, 小型の引張せん断試験片を作製し, 精密万能試験機を用いて引張せん断強度を評価した。また, 引張せん断試験後の破面をマイクロ스코プおよび SEM を用いて観察した。

4. 研究成果

(1) CNT 添加が融着接合時の樹脂熔融挙動に及ぼす影響

CNT を添加したエネルギーダイレクタが樹脂熔融挙動に及ぼす影響を明らかにするために, PPS 樹脂単体のエネルギーダイレクタ (PPS-ED) と, PPS 樹脂に MWCNT を 1.0 wt% 添加したエネルギーダイレクタ (MWCNT/PPS-ED) を用いて, 超音波発振時間を $t=0-1.5$ s の間で種々変化させて超音波融着接合を行った。

PPS-ED および MWCNT/PPS-ED を用いて, 各発振時間で融着接合を行った試験片の融着接合面のマイクロSCOPE 像を図5に示す。どちらのエネルギーダイレクタでも, 0.3 s 発振時では, 織物 CF/PPS 積層板の樹脂ポケット周囲のエネルギーダイレクタに熔融スポットが局所的に形成されていることが確認された。

その後, 0.6 s 発振時では熔融スポットから樹脂熔融域が拡大しており, 0.9 s 発振時では継手部全体に樹脂熔融域が拡大していることが確認された。1.2 s 以上発振を行うと, 樹脂熔融がさらに進行し, 織物 CF/PPS 積層板の繊維束やマトリックスが接合面外に流出し, 繊維束の変形やボイドの発生も確認された。

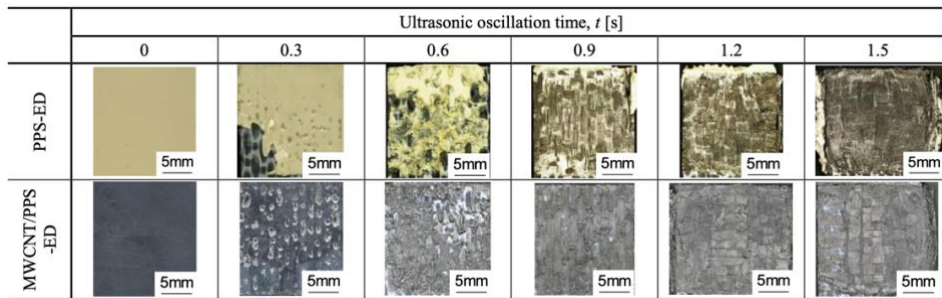


図5 超音波発振時間を変化させた際の破面観察像

PPS-ED および MWCNT/PPS-ED を用いて、超音波発振時間を変化させて融着接合を行った際の超音波発振時間と熔融面積率の関係を図6に示す。MWCNT添加の有無による樹脂熔融挙動の差異として、発振時間0.3 sおよび0.6 sにおいてMWCNTを添加した場合には樹脂の熔融面積率が増加していることが確認された。この理由は、CNTを添加することで熱伝導率が向上し、樹脂熔融が促進されていると考えられる。

これらの実験的事実により、高い熱伝導率を有するCNT等のマイクロ・ナノ粒子を融着接合層に添加することにより、融着接合時の樹脂熔融が促進される効果があることが分かった。

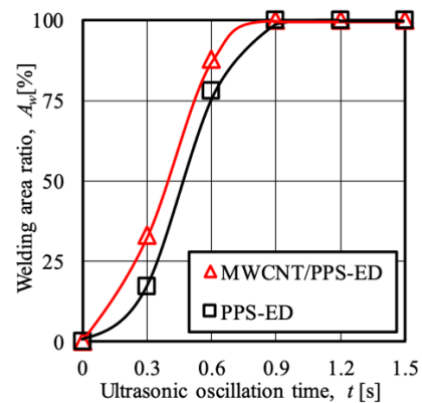


図6 熔融面積率の挙動

(2) CNT添加が引張せん断強度に及ぼす影響

融着接合面に挿入するエネルギーダイレクタへのSWCNTおよびMWCNTの添加率が引張せん断強度に及ぼす影響を明らかにするために、本研究ではPPS樹脂単体と、PPS樹脂にSWCNTおよびMWCNTを添加したエネルギーダイレクタを用いて超音波融着接合を行った。

エネルギーダイレクタ中の各種CNTの重量含有率が引張せん断強度に及ぼす影響を図7に示す。MWCNTを $W_{CNT}=0.5-1.0$ wt%添加することで融着接合部がナノ繊維強化され、引張せん断強度が向上することが確認された。一方で、CNT未添加時の平均の引張せん断強度は35.7 MPaであるが、SWCNTを添加した場合には、引張せん断強度は未添加時より低下した。これは、図8に示す融着接合部の破面SEM像からもわかるように、SWCNTを添加した場合にはSWCNT同士の凝集体が確認された。SWCNTには強い凝集力があり、接合界面にSWCNTが局所的に凝集し、引張せん断強度が低下したと考えられる。

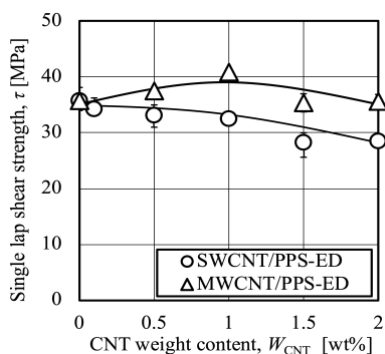


図7 エネルギーダイレクタへのCNT添加が引張せん断強度に及ぼす影響

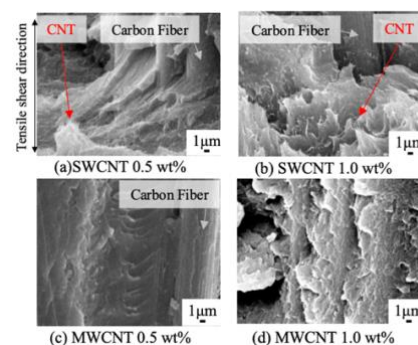


図8 引張せん断試験後の破面SEM像

本研究の成果により、熱可塑性CFRP等の先進材料の融着接合プロセスの高度化に貢献でき、熱可塑性複合材料の用途拡大をより進めることが可能となり、学術的な独創性や工業的有用性は極めて高いと考えられる。今後、マイクロ・ナノテクノロジーとCFRPの成形加工技術を融合した先進的な技術分野をさらに開拓し、普遍性の高い研究成果が産業応用につながると考えられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 TANABE Daiki, HORIUCHI Tokiyuki, NISHIMURA Souma, NISHIYABU Kazuaki	4. 巻 71
2. 論文標題 Reinforcing Effect by Carbon Fibers for Energy Director on Ultrasonic Spot Welding of Woven-CF/PPS Laminates	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Society of Materials Science, Japan	6. 最初と最後の頁 495 ~ 500
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2472/jsms.71.495	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 TANABE Daiki, HORIUCHI Tokiyuki, NISHIYABU Kazuaki	4. 巻 69
2. 論文標題 Effects of Thickness of Polymer Based Energy Director on Ultrasonic Spot Welding Behavior of Woven-CF/PPS Laminates	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Society of Materials Science, Japan	6. 最初と最後の頁 373 ~ 378
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2472/jsms.69.373	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計17件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 田邊大貴, 竹澤 明日也, 西藪和明
2. 発表標題 織物CF/PPS積層板の抵抗融着接合挙動に及ぼす抵抗発熱体のマイクロ・ナノ繊維添加の影響
3. 学会等名 第13回 日本複合材料会議 (JCCM-13)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田邊大貴, 高橋省吾, 西藪和明
2. 発表標題 織物CF/PPS積層板の抵抗融着接合挙動に及ぼす抵抗発熱体のCNT添加の影響
3. 学会等名 日本複合材料学会 第47回複合材料シンポジウム (2022)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西村壮真, 田邊大貴, 西藪 和明
2. 発表標題 ナノ繊維添加エネルギーダイレクタを用いた織物CF/PPS積層板の超音波融着接合挙動
3. 学会等名 日本複合材料学会 第47回複合材料シンポジウム (2022)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Soma Nishimura, Daiki Tanabe, Kazuaki Nishiyabu
2. 発表標題 Ultrasonic welding behavior of woven-CF/PPS laminates by using carbon nanotube added energy director
3. 学会等名 JSME International Conference on Materials and Processing 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Daiki Tanabe, Soma Nishimura, Kazuaki Nishiyabu
2. 発表標題 Effects of carbon nanotube added resistance heating element on resistance welding behavior of Woven-CF/PPS laminates
3. 学会等名 JSME International Conference on Materials and Processing 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田邊大貴, 高橋省吾, 西藪和明
2. 発表標題 CF/PPS積層板の抵抗融着接合挙動に及ぼすCNT添加抵抗発熱体の影響
3. 学会等名 第14回 日本複合材料会議 (JCCM-14)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 西村 壮真, 田邊大貴, 西藪 和明
2. 発表標題 CNT添加エネルギーダイレクタを用いたCF/PPS積層板の超音波融着接合挙動と健全性モニタリング評価
3. 学会等名 第14回 日本複合材料会議 (JCCM-14)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 田邊 大貴, 谷 悠希, 早稲田 一嘉, 西藪 和明
2. 発表標題 熱可塑性CFRPの融着接合挙動に及ぼす融着層へのマイクロ・ナノ粒子添加の影響
3. 学会等名 日本材料学会 第70期学術講演会 講演論文集
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 西村 壮真, 河田 孝平, 田邊 大貴, 西藪 和明
2. 発表標題 織物CF/PPS積層板の超音波融着接合部に及ぼすCNT添加エネルギーダイレクタの影響
3. 学会等名 日本機械学会 機械材料・材料加工部門 第29回機械材料・材料加工技術講演会 (M&P2021)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田邊 大貴, 西藪 和明
2. 発表標題 熱可塑性CFRPの融着接合挙動に及ぼす融着接合層へのマイクロ・ナノ粒子添加の影響
3. 学会等名 JCOM若手ウェビナー2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 西村 壮真, 田邊 大貴, 西藪 和明
2. 発表標題 CNT添加エネルギーダイレクタを用いた織物CF/PPS積層板の超音波融着接合挙動
3. 学会等名 JCOM若手ウェビナー2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 田邊 大貴, 竹澤 明日也, 西藪 和明
2. 発表標題 織物CF/PPS積層板の抵抗融着接合挙動に及ぼす抵抗発熱体のマイクロ・ナノ繊維添加の影響
3. 学会等名 第13回日本複合材料会議 (JCCM-13)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西村 壮真, 田邊 大貴, 西藪 和明
2. 発表標題 マイクロ・ナノ繊維添加エネルギーダイレクタを用いた織物CF/PPS積層板の超音波融着接合挙動
3. 学会等名 第13回日本複合材料会議 (JCCM-13)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 長谷川 晴海, 田邊 大貴, 西藪 和明
2. 発表標題 織物CF/PPS積層板の高周波誘導融着接合における積層板表面の過熱の抑制と融着接合挙動の評価
3. 学会等名 第13回日本複合材料会議 (JCCM-13)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 裏野 葵生, 田邊 大貴, 西藪 和明
2. 発表標題 超音波加熱を用いた一方CF/Ep積層板とAl板の接合挙動に及ぼすエネルギーダイレクタの影響
3. 学会等名 第13回日本複合材料会議 (JCCM-13)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 田邊大貴
2. 発表標題 種々の加熱法を用いた熱可塑性CFRPの接合技術と接合強度評価
3. 学会等名 2020年度 JCOM若手 ウェビナー予稿集
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 田邊大貴, 谷悠希, 早稲田一嘉, 西藪和明
2. 発表標題 熱可塑性CFRPの融着接合挙動に及ぼす融着層へのマイクロ・ナノ粒子添加の影響
3. 学会等名 日本材料学会 第70期学術講演会
4. 発表年 2021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
研究 分担者	田邊 大貴 (Tanabe Daiki) (70792216)	神戸市立工業高等専門学校・その他部局等・准教授 (54502)	

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
---------	---------