

# ガラス繊維強化熱可塑性プラスチックの成形・加工と評価

可児 浩, 金野 克美, 山岸 暢, 大市 貴志, 吉田 昌充, 瀬野 修一郎, 橋本 祐二

## Molding, Processing and Evaluation of Glass Fiber Reinforced Thermoplastics

Hiroshi KANI, Katsumi KONNO, Tohru YAMAGISHI, Takashi OICHI,  
Masamitsu YOSHIDA, Shuichiro SENO, Yuji HASHIMOTO

キーワード：熱可塑性プラスチック, ガラス繊維, 炭素繊維, せん断粘度, 荷重たわみ温度

### 1. はじめに

ガラス繊維強化熱可塑性プラスチック(FRTP)は、熱硬化性プラスチックを使用したFRPとは異なり、加熱により溶融し再利用(リサイクル)が可能であること、比強度が大きい(軽いわりに強度が大きい)ことから金属代替材料として製品の軽量化を求める自動車等の部材をはじめ広く利用されている。

本研究は、現在自動車部材として多用されているガラス繊維強化ポリプロピレン及びガラス繊維強化6ナイロンを対象に、FRTP活用に必要な成形加工技術、リサイクル性を含む材料設計技術、評価技術について検討した。

### 2. 実験

#### 2.1 材料

母材としてポリプロピレン(日本ポリプロ(株)製 MA1B, MFR:21g/10min, 以下PP)及び6ナイロン(東レ(株)製 CM1017, 以下PA)を使用した。いずれも射出成形用の標準銘柄である。それらのプラスチックに混練するガラス繊維として、PP用表面処理チョップドストランド(日東紡績(株)製 CSF3PE960S, 以下CSPP), PA用表面処理チョップドストランド(日東紡績(株)製 CSX3J451S, 以下CSPA), PP・PA両用表面処理ロービング(日東紡績(株)製 RS240R-483AS, 以下RV)を使用した。当场で作製した試料と物性を比較するための市販品は、一般のガラス繊維強化プラスチックとしてPPベースの製品(株)プライムポリマー製 E7000, ガラス繊維含有率30wt%, MFR: 5 g/10min, 以下GFPP)及びPAベースの製品(東レ(株)製 CM1011G-30, ガラス繊維含有率30

wt%, 以下GFPA), ガラス長繊維強化プラスチックとしてPPベースの製品(ダイセルポリマー(株)製 プラストロンPP-GF30-01, 以下LGFPP)及びPAベースの製品(ダイセルポリマー(株)製 プラストロンPA6-GF30-01, 以下LGFPA)を使用した。さらに強化材の違いによる物性を比較するため、PA用表面処理炭素繊維チョップドストランド(三菱レイヨン(株)製 パイロフィルTR06NEB4J, 以下CSCF)を使用した。また、プラスチックと繊維の界面の密着性を高めるための改質剤として無水マレイン酸変性低分子量PP(三洋化成工業(株)製 ユーメックス1010, 以下UM)を使用した。

#### 2.2 樹脂と強化材の複合化

各プラスチックと繊維は二軸混練押出機(東芝機械(株)製 TEM-26SS[スクリュー径26mm, L/D 40]又は(株)パーカーコーポレーション製 HK-20D[スクリュー径20mm, L/D 29])を用いて複合化とペレット化を行い成形材料を作製した。なお、PPは吸湿性がないためそのまま使用したが、PAは吸湿性があるため乾燥剤とともに密閉容器に保管し、必要に応じて加熱真空乾燥を行った。

作製した成形原料は射出成形機(東芝機械(株)製 EC100SX)を用い、日本工業規格(以下JIS)に定められた成形条件(PP:JIS K6921-2, PA:JIS K6920-2)により図1に示す多目的試験片(JIS K7139 タイプA1)を作製し、物性試験に供した。なお、二軸押出機による複合化の際、プラスチックの冷却に水槽を用いたため、PAについては材料を加熱真空乾燥した後、成形した。



図1 作製した多目的試験片

左：PP樹脂のみ、  
中：ガラス繊維入り  
右：炭素繊維入り

事業名：経常研究  
課題名：FRTPの成形・加工と評価技術に関する研究  
(平成25～27年度)

### 2.3 リサイクルを模した再成形

成形した試験片を粉碎機（㈱ホーライ製 P-1328, 篩目：7mm）により粒状に粉碎し、そのままあるいは新品の成形原料に所定割合を混合した後、射出成形により試験片を作製した。

### 2.4 各物性の測定

せん断粘度の測定は溶融樹脂粘度計（Malvern Instruments社製 ROSAND ツインキャピラリーレオメータRH2000）、荷重たわみ温度の測定は高温HDT試験装置（㈱東洋精機製作所製 S-3）、引張試験及び曲げ試験は万能材料試験機（㈱島津製作所製 オートグラフ AG-100kNXplus）、衝撃試験は万能衝撃試験機（㈱安田精機製作所製 No.258）を用い、それぞれJISに定められた方法に準拠し行った。なお、PAの試験片でのせん断粘度以外の試験は、JIS K7143に従い促進状態調節を行った後、物性試験に供した。

## 3. 結果

### 3.1 ガラス繊維含有率とせん断粘度

PP及びPAに所定量のガラス繊維を複合化した試料におけるガラス繊維含有率とせん断速度及びせん断粘度の関係をそれぞれ図2、図3に示した。いずれの試料においてもガラス繊維含有率の増加とともに粘度が増加している。溶融状態のプラスチックは典型的な非ニュートン流体であることから、せん断速度が高くなるとせん断粘度も低下し、射出成形のようなせん断速度の高い成形方法においてはその影響は小さく考えられる。また、当场で複合化したガラス繊維含有率30wt%の試料と市販品を比較するといずれの試料も市販

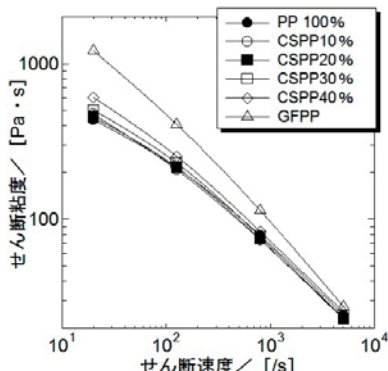


図2 ガラス繊維含有率とせん断速度—せん断粘度の関係  
母材：PP  
測定温度：210℃

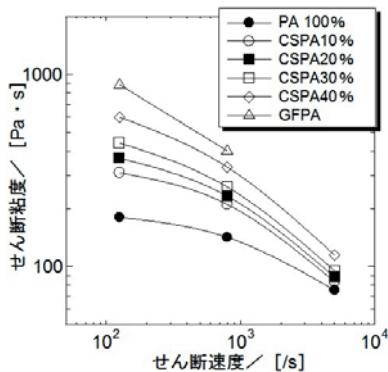


図3 ガラス繊維含有率とせん断速度—せん断粘度の関係  
母材：PA  
測定温度：250℃

品の方がせん断粘度が高いことから、母材となるプラスチックは当场で使用したものより溶融粘度が高いものを使用しているものと考えられる。

### 3.2 ガラス繊維含有率と荷重たわみ温度

PP及びPAに所定量のガラス繊維を複合化した試料の荷重たわみ温度をそれぞれ図4、図5に示した。いずれの試料においてもガラス繊維含有率の増加とともに荷重たわみ温度が上昇していることから、その成形品はより高温で使用可能であることが期待できる。

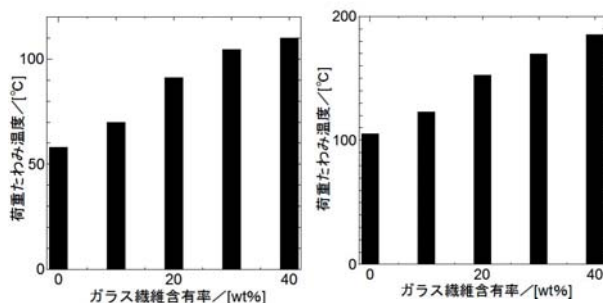


図4 ガラス繊維含有率と荷重たわみ温度の関係  
母材：PP  
曲げ応力：1.8MPa

図5 ガラス繊維含有率と荷重たわみ温度の関係  
母材：PA6  
曲げ応力：1.8MPa

### 3.3 ガラス繊維・改質剤の添加と力学的物性

FRTPに使用されるガラス繊維は、表面処理を行い母材となるプラスチックとの反応性や相溶性を持つ官能基を表面に導入することで、母材とのぬれ性及び接着性を向上させ、複合材料としての性能を確保している。また、プラスチックに改質剤を添加することにより、同様の効果を得ることも可能である。

PP、GFPP、LGFPF及びPPにCSPP、RVを30wt%複

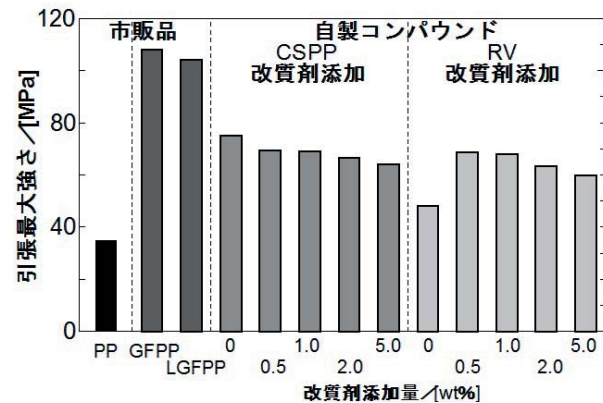


図6 ガラス繊維の種類及び改質剤の添加量と引張最大強さの関係  
母材：PP  
ガラス繊維含有率：30wt%

合化し、さらに所定量のUMを添加した試料の引張最大強さを図6に示した。いずれも市販品であるGFPP及びLGFPはPP単体に比べ約3倍の引張最大強さとなった。これに対し、当场で複合化を行った改質剤を添加しない試料では、いずれも市販品には及ばないものの、RVに比べCSPPの方がより大きい値が得られた。CSPP及びRVに所定量のUMを添加した試料では、前者では添加量の増加とともに引張最大強さが低下していくのに対し、後者では0.5wt%添加した場合に最大値となり、その後添加量の増加と共に徐々に低下した。これは、CSPPはポリプロピレン専用に表面処理を行った銘柄であるのに対し、RVはポリプロピレンとナイロン兼用に表面処理が行われた銘柄であり、異なる処方で行われていると推察でき、母材とのぬれ性及び接着性はCSPPの方が優れているためと考えられる。しかし、この改質剤のプラスチックとしての物性は高くはないことから、添加量の増加とともに引張強さは低下していくと考えられる。また、曲げ最大強さにおいても同様の傾向が見られた。

同じ試料の引張弾性率を図7に示した。引張弾性率は市販品及び当场で複合化した試料の間で数値に大きな差はみられず、PP単体の約2倍の値となった。また、UM添加の有無による大きな差はみられなかった。なお、曲げ弾性率についても同様の結果が得られた。

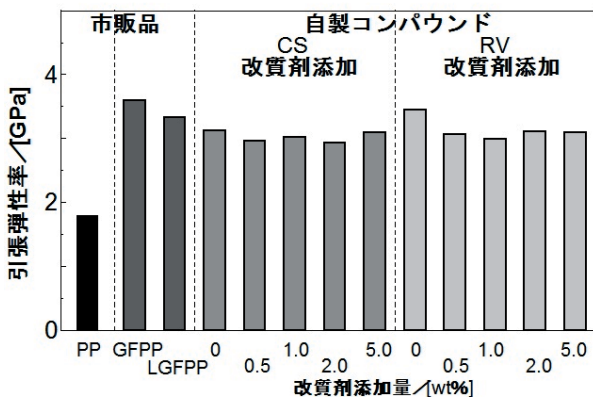


図7 ガラス繊維の種類及び改質剤の添加量と引張弾性率の関係

母材：PP  
ガラス繊維含有率：30wt%

同じ試料のシャルピー衝撃強さ(ノッチ付き)を図8に示した。いずれも市販品であるGFPP及びLGFPはPP単体に比べ約6~10倍の衝撃強さとなった。これに対し当场で複合化を行った試料ではいずれも市販品には及ばない値となった。また、シャルピー衝撃強さにおいてはUMの添加による衝撃強さの向上はみられなかった。

シャルピー衝撃試験を行った後の試験片について、その破断面の電子顕微鏡写真を図9に示した。左上の市販品である

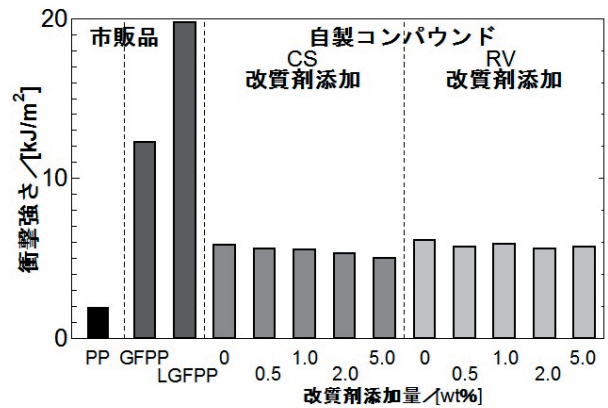


図8 ガラス繊維の種類及び改質剤の添加量とシャルピー衝撃強さの関係

母材：PP  
ガラス繊維含有率：30wt%

GFPPではガラス繊維の側面に母材が付着している様子が確認でき、両者のぬれ性及び接着性が良好であることがわかる。一方、右上のポリプロピレン用グレードであるCSPPと複合化したPPにおいては、若干の繊維への付着が確認できる程度であるほか、左下のポリプロピレン・ナイロン兼用グレードのRVで複合化したPPや、複合化の際に改質剤としてUMを添加した右下の試料では繊維表面への母材の付着をほとんど確認することができず、GFPPほど繊維と母材のぬれ性及び接着性が低いと推察できる。この母材とガラス繊維界面のぬれ性及び接着性の違いが、前述の物性差の要因の一つになっているものと考えられる。物性差についてはこれ以外にも母材となるプラスチックの選択も重要であると考えられ、汎用グレードではなく例えば耐衝撃性グレードを選択することにより、衝撃強さを市販品に近づけることができると考えられる。

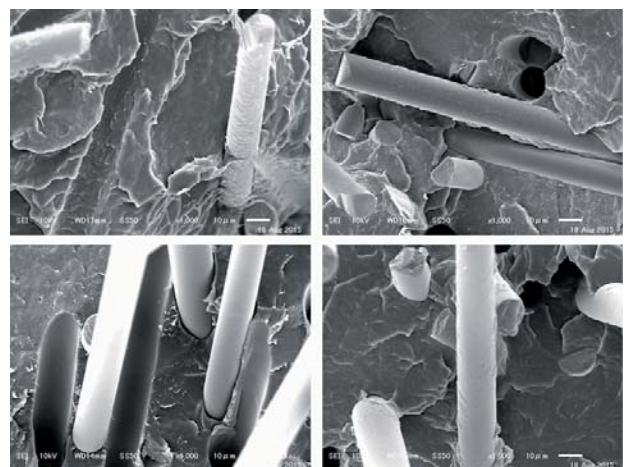


図9 試験片破断面の電子顕微鏡写真

左上：GFPP、右上：CSPP強化PP  
左下：RV強化PP、右下：UM 5%添加RV強化PP

### 3.4 再成形(リサイクル)と力学的物性

プラスチックのリサイクルには一旦市場に流通したプラスチックを回収し再生品化する場合と、射出成形でのスプールやランナーを粉砕し新品のプラスチックと混合して使用する場合などがある。本研究では後者(工程内リサイクル)を想定し、力学的物性への影響を検証した。

一度成形したGFPP及びLGFPF試験片を顆粒状に粉砕し、そのままあるいは新品に所定量混合し再度成形した試験片の引張最大強さを図10に示した。GFPP及びLGFPFいずれも全量を再生品で成形した試験片は、ともに引張強さは新品に比べ20%程度低下した。しかし新品に10から30wt%程度混合した場合では、引張強さは10%以内の低下であった。

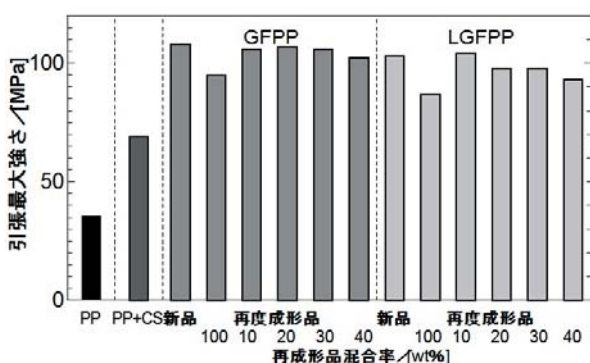


図10 再生品の混合量と引張最大強さの関係

母材：PP  
ガラス繊維含有率：30wt%

同じ試料のシャルピー衝撃強さ(ノッチ付き)を図11に示した。全量を再生品で成形したGFPPのシャルピー衝撃強さは新品に比べ約20%，LGFPFは約30%低下した。しかしGFPPにおいては新品に10から30wt%程度混合する場合は衝撃強さはほとんど低下せず，LGFPFにおいても10から20wt%程度混合する場合でも10%程度の低下であった。

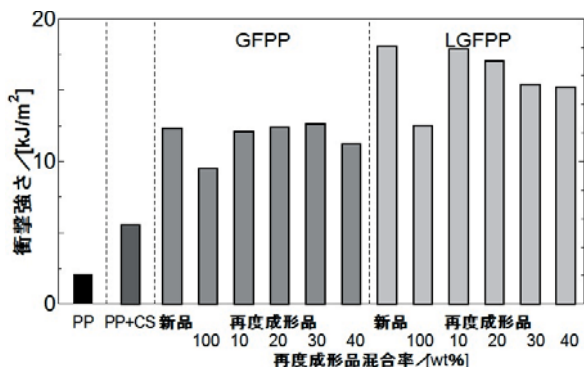


図11 再生品の混合量とシャルピー衝撃強さの関係

母材：PP  
ガラス繊維含有率：30wt%

### 3.5 ガラス繊維と炭素繊維

炭素繊維強化熱可塑性プラスチック(CFRTP)は、軽量・高強度であること、熱硬化性樹脂を用いたCFRPと比べ成形サイクルが短いことから近年注目されている材料である。本研究ではプラスチック強化材として用いた場合のガラス繊維との物性の違いを比較した。

当场で複合化したガラス繊維強化PP，市販のGFPP，LGFPF，当场でPPとCFCSを複合化した炭素繊維強化PP及びUMを添加した炭素繊維強化PPの引張最大強さを図12に示した。ガラス繊維強化PPにおいては，図6でも示したとおりRVを複合化した試料のみではCSPPに及ばないが，UMを添加することによりほぼ同等の引張最大強さが得られた。炭素繊維強化PPにおいてはUMを添加しない試料はGFPPやLGFPFの半分程度の値である。これにUMを添加することにより，GFPPとほぼ同等の引張強さとなった。これは，今回使用したCFCSがPA用に表面処理された製品であり，改質剤を添加しないPPとはぬれ性及び接着性が良好ではないが，UMの添加によりそれが向上し本来の性能を得られるようになったためと考えられる。

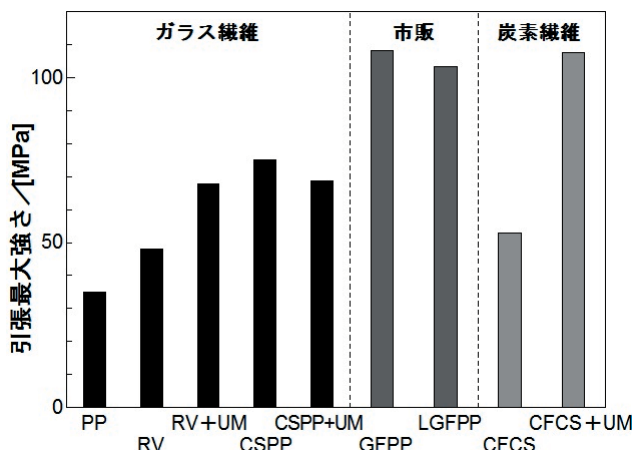
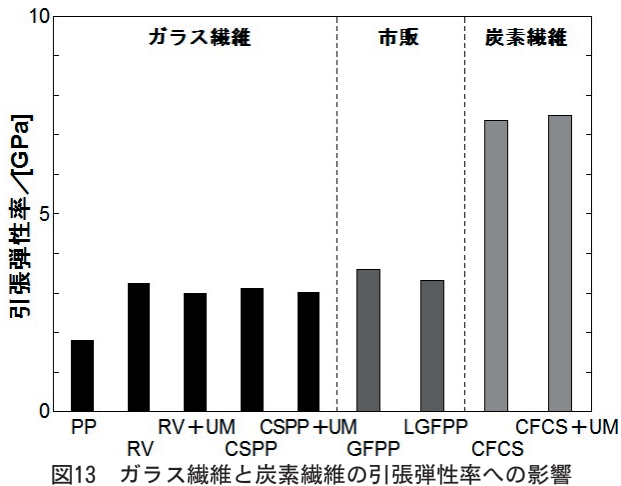


図12 ガラス繊維と炭素繊維の引張最大強さへの影響

母材：PP  
繊維含有率：30wt%

同じ試料の引張弾性率を図13に示した。引張弾性率はガラス繊維強化PPは図7で示したとおり，RVとCS及びUM添加の有無で大きな差はみられなかった。一方，炭素繊維強化PPはガラス繊維強化PPの2倍以上の数値となり，炭素繊維の高剛性が反映された結果が得られた。UMの添加の有無では結果に差はみられないが，これは引張試験において弾性率を測定するようなく小さな変位においては母材と繊維の間の接着性の影響が出ないためと考えられる。

また，同じ試料のシャルピー衝撃強さ(ノッチ付き)を図14に示した。シャルピー衝撃強さはガラス繊維強化PPは図8で示したとおり，RVとCS及びUM添加の有無で大きな差



母材：PP  
繊維含有率：30wt%

はみられなかった。一方、炭素繊維強化PPはガラス繊維強化PPの半分以下の数値となり、弾性率とは逆の結果が得られた。衝撃強さは試験片が破壊される際に吸収する単位面積あたりのエネルギーであり、力と長さの積である。従って両繊維の強度がほぼ同じである(同じ力を受け止める)にもかかわらず炭素繊維の方が弾性率が高く、破壊に至るまでの歪みが小さいことから、ガラス繊維に比べ炭素繊維の方が衝撃強さが小さくなると考えられる。

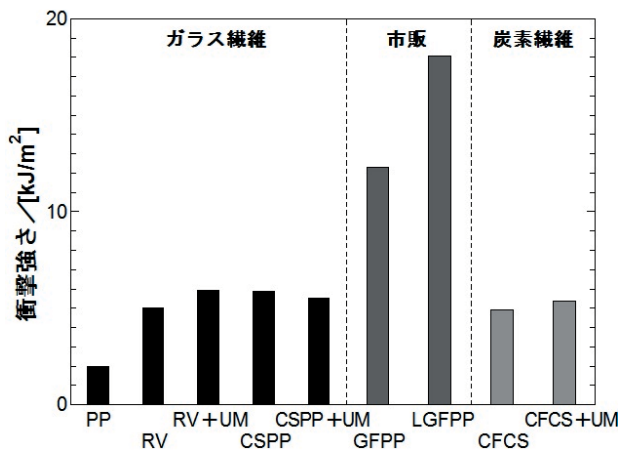


図14 ガラス繊維と炭素繊維のシャルピー衝撃強さへの影響  
母材：PP  
繊維含有率：30wt%

#### 4. まとめ

1) FRTPの性能には繊維と母材のぬれ性及び接着性が重要であり、適切な表面処理がなされている繊維を用いるだけでなく、母材となる樹脂にも必要に応じ改質剤を添加することにより物性が良好な成形原料を作製すること

が可能となることが明らかとなった。

- 2) 工程内で生じた廃棄物を粉砕し新品の成形材料に混合し再使用することは良く行われる再生方法であるが、再生原料の添加量を適切に管理し過剰に使用しなければ物性には大きく影響しないことが明らかとなった。
- 3) CFRTPについては比重が軽いことから同じ強度を持つ製品を軽量にすることが可能であり、その剛性も高い。ただし衝撃強さはガラス繊維に比べ低いほか、高価であるなど実際の製品に活用するにはそのメリットを十分検証した上で使用する必要があると考えられる。

#### 謝辞

本研究で使用したプラスチック射出成形機、二軸混練押出機(東芝機械(株)製)及び溶融樹脂粘度計は独立行政法人科学技術振興機構の地域産学官共同研究拠点整備事業により、万能材料試験機及び二軸混練押出機(株)パーカーコーポレーション製)は公益財団法人JKAの機械工業振興補助事業により整備されました。ここに記して感謝いたします。