

論文内容要旨 (和文)

平成22年度入学 博士後期課程

専攻名 有機材料工学専攻

氏 名 平野 啓之



論 文 題 目 ポリプロピレンをマトリックス樹脂とする熱可塑性炭素繊維複合材料の開発

炭素繊維複合材料は軽量・高強度を最大の特徴とし、スポーツ用品や航空機用途に展開されてきた。近年では、環境材料としての側面も注目され、風車ブレード、自動車部品、圧力容器など一般産業用途への展開も積極的に進められている。一般産業用途では、航空機向け炭素繊維複合材料の設計思想である品質の極限追求とは異なり、品質と生産性の両方が要求される。これを満たす材料として、熱可塑性樹脂を用いた炭素繊維複合材料が注目されている。熱可塑性樹脂は、加熱・冷却により流動・固化するため、硬化反応を伴う熱硬化性樹脂よりも高速成形が可能であり、リサイクルも行いやすい。そこで、安価で加工性に優れるポリプロピレン (PP) をマトリックス樹脂に用い、機械特性と成形加工性に優れた新規なプレス成形向け炭素繊維複合材料およびそれを用いた成形品の開発を行った。具体的には、不連続炭素繊維からなる均質なマットにPPを含浸させたシート (CFRTPシート) を開発し、さらにプレス成形によりサイクルタイム1分で複雑形状を有する成形品を作製した。

PPは炭素繊維との接着が乏しく、炭素繊維と複合化しても、繊維と樹脂の界面が破壊してしまうため、十分な性能が発揮できない。そこで、繊維と樹脂の界面剪断強度 (IFSS) の測定により接着性を定量評価する手法を用い、炭素繊維との接着性に優れる変性PPの開発を行った。変性PPとしては、酸変性PPに加え、耐熱性を維持しながら優れた流動性を示すフェノールグラフトPP、および酸変性PPをアミンと反応させた新規なイミド変性PPを用いた。IFSSの評価により、これらの変性PPが、炭素繊維と優れた接着性を示す事が分かった。そこで変性PPのフィルムを作製し、これを不連続炭素繊維からなる均質なマットに含浸させてプレス成形向けのCFRTPシートを作製したところ、従来の射出材料と比べて強度が飛躍的に (77%) 向上する事が分かった。本材料は炭素繊維の強度利用率を大幅に向上させた、全く新しい不連続繊維強化複合材料といえる。

次に、IFSSによる材料設計をさらに深化させた。従来から界面接着性と機械特性の関係は経験的に認知されていたが、これらを定量的に整理した報告はなかった。そこで変性PPの含有量を変化させてIFSSを自在に制御し、コンポジット特性と関連付ける事で、初めて接着性と機械特性の定量的な解釈に成功した。

また、IFSSと繊維長を制御して、耐衝撃性を劇的に向上させたCFRTPシートの創出に成功した。一般に知られる射出成形品では、繊維と樹脂の接着が良好なほど耐衝撃性に優れる。一方CFRTPシートでは、接着性が低い場合に、劇的に耐衝撃性が向上する事が見出された。この特異的な耐衝撃性の発現は、繊維の引き抜けに伴うエネルギー吸収によるものであり、CFRTPシートがミリメートルオーダーの繊維長を持つために実現したものである。この知見を応用することで、射出成形品と比較して耐衝撃性を約9倍に向上させる事に成功した。

続いて、開発されたCFRTPシートの形状賦形時の圧延挙動を実験的に検証した。種々の繊維長および

繊維体積含有率 (Vf) のCFRTPシートを作製して成形前後の面積変化 (伸張率) を調べたところ、伸張率はシートに含まれる繊維の接点数と深い相関がある事が明らかとなった。これは、炭素繊維マットに含まれる繊維の交点の増加により、プレス成形時に繊維の摩擦による抵抗が大きくなり、伸張率が低下したものと推測された。接点数は繊維径、繊維長およびVfから計算できるため、CFRTPシートの設計段階で、形状賦形性のウィンドウが相当範囲で予測可能となった。また、プレス成形時の圧力や金型温度などの成形条件が伸張率に与える影響も整理し、複雑形状成形のための基盤技術を整えた。

次に、成形品の機械特性について検証した。CFRTPシートを用いて作製された成形品は均質性に優れ、繊維の配向やばらつきが少ない事が明らかとなった。従来の材料は繊維が流れる事で形状賦形されるため、繊維の配向や粗密が発生しやすく、これが機械特性のばらつきにつながっていた。一方でCFRTPシートは炭素繊維マットの伸張により形状賦形されるため、均一な繊維ネットワークが維持され、優れた均質性を示す事が明らかとなった。

最後に、CFRTPシートを使用した複雑形状品の高速成形を実証した。リブや絞り形状など、複数の要素形状含む成形体を、型締め時間1分で成形することに成功した。これは、熱硬化性樹脂を使用したCFRPの成形時間 (最速10分) の約10倍であり、CFRPの成形サイクルとしては世界最速である。

本研究で開発された材料および成形品は、一般産業用途へのCFRP普及のキーポイントである機械特性と生産性の両立に解を与えるものであり、今後の幅広い普及が期待される。

学位論文の審査及び最終試験の結果の要旨

平成25年8月7日

理工学研究科長 殿

課程博士論文審査委員会

主査	熊木 治郎	
副査	伊藤 浩志	
副査	杉本 昌隆	
副査		
副査		
副査		

学位論文の審査及び最終試験の結果を下記のとおり報告します。

記

1. 論文申請者

専攻名 有機材料工学 専攻
氏 名 平野 啓之

2. 論文題目（外国語の場合は、その和訳を併記する。）

ポリプロピレンをマトリックス樹脂とする熱可塑性炭素繊維複合材料の開発
.....
.....

3. 審査年月日

論文審査 平成25年 7月23日 ~ 平成25年 7月31日
論文公聴会 平成25年 7月31日
場所.....工学部4号館211号室
最終試験 平成25年 7月31日

4. 学位論文の審査及び最終試験の結果（「合格」・「不合格」で記入する。）

(1) 学位論文審査 合格
(2) 最終試験 合格

5. 学位論文の審査結果の要旨（1,200字程度）

別紙のとおり

6. 最終試験の結果の要旨

別紙のとおり

別 紙

専 攻 名	有機材料工学専攻	氏 名	平野 啓之
学位論文の審査結果の要旨			
炭素繊維強化樹脂（CFRP）は軽量化の切り札として期待される先端材料で、環境材料としての側面も注目されている。近年航空機への本格適用が開始されているが、量産性の高い一般産業への展開には、さらなるブレークスルーが必要とされている。本論文は、ポリプロピレンをマトリックス樹脂に用いた新規なプレス成形用CFRPシートの創出により、その解決を図った研究である。 第1章では、炭素繊維およびCFRPの特徴、用途ならびに市場動向を示し、本論文の背景を説明している。また、航空機で実現したCFRPによる軽量化を自動車でも行なうにあたり、従来の機械特性と加工性のトレードオフを超えた新規な材料開発の必要性を示している。 第2章では、炭素繊維の等方・均質分散の設計方針を提示し、汎用性の高いポリプロピレンマトリックスで課題となる炭素繊維との接着性を、各種変性ポリプロピレンの適用により解決している。また、従来間接的であった界面接着性の議論に、界面せん断強度の測定によって定量性を与え、その知見をもとに創出したプレス成形用熱可塑性CFRPシートが、不連続繊維でありながら連続繊維並みの機械特性を示しており、従来の不連続繊維強化材料の考え方を大きく変えるものであることを示している。 第3章では、界面接着性の評価技術および樹脂変性技術を応用し、炭素繊維とポリプロピレンとの界面接着性を積極的に変化させることで、界面せん断強度と耐衝撃性の関係が、繊維長を変えると逆転することを見出している。繊維の引き抜けエネルギーが関与する現象であり、界面制御技術により耐衝撃性も制御できることを示した。 第4章では、開発したCFRPシートの賦形時における圧延挙動を調べている。炭素繊維のネットワークの緻密さが圧延挙動と密接に関係することを見出し、繊維アスペクト比と体積含有率から圧延挙動を推測する手法を提案している。 第5章では、CFRPシートを用いた成形品が、リブなどの複雑形状においても繊維充填のバラツキが小さく、均質性に優れる事を実証している。また、複数の要素形状を含む成形体につき、CFRPの成形としては世界最速の型締め1分での高速成形に成功しており、材料がコンセプト通りに設計された事を実証している。第6章では、本研究の総括を述べている。 以上の研究成果は、炭素繊維複合材料の一般産業用途への展開に、大きなインパクトを与える新規なプレス成形用CFRPを開発したものであり、工業的に重要であるとともに、界面接着性と材料特性を系統的に解析する等、学術的にも重要な貢献をしている。本研究内容は邦文・欧文の学術論文2報に纏められ、1報が掲載済み、1報が掲載決定している。また、複数の国際学会で計5件の発表を行い、Best Paper Awardを受けるなど高い評価を受けている。 以上により、本論文は博士の学位を授与するのに十分と認め、合格と判定した。			
最終試験の結果の要旨			
学力確認は、学位論文公聴会における学位論文の口頭発表、博士論文に関する複合材料力学および高分子化学につき、主査、副査による口頭試問を実施した。その結果、専門知識、理解力について博士として十分な能力を有していると認められた。また、英語による筆頭学術論文、複数の国際学会での発表実績から、十分な英語能力を有していると判断された。以上により、審査員全員による協議の結果、合格と判定した。			