

Environment Research and Technology Development Fund

環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

3G2002 リサイクル炭素繊維を原料とした連続繊維強化複合材料部材の開発
(J P M E E R F 2 0 2 0 3 G 0 2)

令和2年度～令和4年度

Development of Recycled Carbon Spun Yarn for
Continuous Fiber Reinforced Thermoplastic Composite Materials

〈研究代表機関〉

国立大学法人東海国立大学機構 岐阜大学

〈研究分担機関〉

トーア紡マテリアル株式会社

国立大学法人三重大学

三重県雇用経済部

○図表番号の付番方法について

「Ⅰ．成果の概要」の図表番号は「0．通し番号」としております。なお、「Ⅱ．成果の詳細」にて使用した図表を転用する場合には、転用元と同じ番号を付番しております。

「Ⅱ．成果の詳細」の図表番号は「サブテーマ番号．通し番号」としております。なお、異なるサブテーマから図表を転用する場合は、転用元と同じ図表番号としております。

令和5年5月

目次

I. 成果の概要	1
1. はじめに（研究背景等）	
2. 研究開発目的	
3. 研究目標	
4. 研究開発内容	
5. 研究成果	
5-1. 成果の概要	
5-2. 環境政策等への貢献	
5-3. 研究目標の達成状況	
6. 研究成果の発表状況	
6-1. 査読付き論文	
6-2. 知的財産権	
6-3. その他発表件数	
7. 国際共同研究等の状況	
8. 研究者略歴	
II. 成果の詳細	
II-1 リサイクル炭素繊維の連続繊維化及び製布化技術の開発	15
要旨	
1. 研究開発目的	
2. 研究目標	
3. 研究開発内容	
4. 結果及び考察	
5. 研究目標の達成状況	
6. 引用文献	
II-2 リサイクル炭素繊維を原料としたプリプレグ成形技術の開発	24
要旨	
1. 研究開発目的	
2. 研究目標	
3. 研究開発内容	
4. 結果及び考察	
5. 研究目標の達成状況	
6. 引用文献	
II-3 リサイクル炭素繊維基材の材料特性解析	32
要旨	
7. 研究開発目的	
8. 研究目標	

9. 研究開発内容	
10. 結果及び考察	
11. 研究目標の達成状況	
12. 引用文献	
II-4 リサイクル炭素繊維基材の成形性に関する研究 要旨	42
7. 研究開発目的	
8. 研究目標	
9. 研究開発内容	
10. 結果及び考察	
11. 研究目標の達成状況	
12. 引用文献	
III. 研究成果の発表状況の詳細	51
IV. 英文Abstract	53

I. 成果の概要

課題名 3G-2002 リサイクル炭素繊維を原料とした連続繊維強化複合材料部材の開発

課題代表者名 仲井 朝美 (国立大学法人東海国立大学機構 岐阜大学 工学部 教授)

重点課題 主:【重点課題⑪】ライフサイクル全体での徹底的な資源循環に関する研究・技術開発

副:【重点課題⑪】持続可能な社会の実現に向けたビジョン・理念の提示

行政要請研究テーマ(行政ニーズ) 非該当

研究実施期間 令和2年度～令和4年度

研究経費

100,800千円(合計額)

(各年度の内訳:令和2年度:29,314千円、令和3年度:39,086千円、令和4年度:32,400千円)

研究体制

(サブテーマ1) リサイクル炭素繊維の連続繊維化及び製布化技術の開発(トーア紡マテリアル株式会社)

(サブテーマ2) リサイクル炭素繊維を原料としたプリプレグ成形技術の開発(岐阜大学)

(サブテーマ3) リサイクル炭素繊維基材の材料特性解析(三重大学)

(サブテーマ4) リサイクル炭素繊維基材の成形性に関する研究(三重県雇用経済部)

研究協力機関

研究協力機関はない。

本研究のキーワード リサイクル炭素繊維、紡績糸、プリプレグ、成形

1. はじめに(研究背景等)

炭素繊維強化プラスチック(以下、CFRP)は、高強度・軽量・耐熱性の特性を活かし、航空機、自動車、風力発電ブレード、建築土木等で採用が拡大し、2030年の世界市場は2017年比2.6倍の3兆5800億円と見込まれている。特に航空分野では大型機やビジネスジェットの新規生産本格化などによって需要が拡大するが、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端材の95%をリサイクル産業に流通させる計画があり、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。そのため炭素繊維(以下、CF)のリサイクルシステムの構築は急務であり、研究開発も展開されている。

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、取り出した炭素繊維(以下、ReCF)はチョップド繊維¹⁾またはミルド繊維²⁾として不織布や樹脂との混合、混練で、軽量部材として利用されている。これは、取り出されたReCFが短繊維の形態での利用にとどまっているため、このような限定的な利用となっている。今後、CFのリサイクルシステム構築、すなわち、持続可能な生産消費形態を維持する(SDGs目標12)には、回収したReCFの新たな形態での利用とその用途拡大が必要である。

そこで、本研究では、リサイクルにより短繊維化されたReCFを紡績技術により連続繊維(糸)と

して原料化、さらに糸から織物、編物、組物として部材化し、自動車やスポーツ用具用途向けプリプレグ加工品、今後の自動車用途が見込まれる炭素繊維強化熱可塑性プラスチック（以下、CFRTP）の中間基材等を作製する。さらに、これを用いたリサイクル炭素繊維成形品を試作・提案し、炭素繊維の持続可能な生産消費形態の維持、循環型経済（Circular Economy）の確立への貢献を目指す。

2. 研究開発目的

本研究では、CFRP のリサイクルサプライチェーンのうち、技術開発が進んでいる「廃 CFRP から分離、回収」以降の「リサイクル炭素繊維の多用途利用に向けた技術開発」を行う。すなわち、リサイクルにより短繊維化された ReCF を紡績技術により連続繊維（糸）として原料化、さらに糸から織物、編物、組物として部材化し、自動車やスポーツ用具用途向けプリプレグ加工品、今後の自動車用途が見込まれる CFRTP の中間基材等を作製する。さらに、これを用いたリサイクル炭素繊維成形品を試作・提案し、炭素繊維の持続可能な生産消費形態の維持、Circular Economy の確立への貢献を目指す。

具体的には、(1)繊維企業のモノづくり技術により分離、回収されたリサイクル炭素繊維を紡績（繊維集合体形成）して糸および布（織物、編物）を試作、(2)その糸および布を成形利用できるように中間基材化、(3)成形のための中間基材の特性解析、(4)ハイサイクルが可能なハイブリッド成形³⁾による試作品提案を目的とする。

3. 研究目標

全体目標	本件研究の最終目標は、炭素繊維強化プラスチックのリサイクルサプライチェーンの構築に貢献することである。サプライチェーン構築のためには、技術開発が進んでいる「廃CFRPから分離、回収」以降のリサイクル炭素繊維の利用部分の技術開発が必要である。すなわち、不織布やペレット以外での利用技術の開発が必要であり、連続繊維（糸）の開発（サブテーマ1）を起点に、中間基材化(サブテーマ2)、素材特性解析（サブテーマ3）及び成形技術（サブテーマ4）を連動して、リサイクル炭素繊維成形品を提案する。具体的には、(1)繊維企業のモノづくり技術により分離、回収されたリサイクル炭素繊維を紡績（繊維集合体形成）して糸および布（織物、編物）を試作、(2)その糸および布を成形利用できるように中間基材化、(3)成形のための中間基材の特性解析、(4)ハイサイクルが可能なハイブリッド成形による試作品提案を行う。一連のサブテーマの研究結果をフィードバックすることでさらなる部材開発へと反映するPDCAサイクルを構築し、研究の成果を高めていく。一方で(1)、(2)、(4)でそれぞれ試作品を提示して、アドバイザーボードの協力により実用スペック、コストを睨みながら事業を進める。
------	--

サブテーマ1	リサイクル炭素繊維の連続繊維化及び製布化技術の開発
サブテーマリーダー /所属機関	山田 隆義／トーア紡マテリアル株式会社
目標	リサイクル炭素繊維を用いた連続繊維糸（紡績糸）の試作 リサイクル炭素繊維紡績糸を用いた織物、編物の試作 リサイクル炭素繊維を用いた中間基材原料（糸、布）の試供品の提示
サブテーマ2	リサイクル炭素繊維を原料としたプリプレグ成形技術の開発

サブテーマリーダー /所属機関	仲井 朝美／岐阜大学
目標	(1) ReCF／熱可塑性樹脂界面特性の確保：表面処理、成形条件の最適化 (2) ReCF／樹脂混紡糸を用いたプリプレグの成形技術の構築 (3) ReCF／樹脂混紡糸を用いた組物（パイプ）の製造技術の開発

サブテーマ3	リサイクル炭素繊維基材の材料特性解析
サブテーマリーダー /所属機関	中西 康雅／三重大学
目標	炭素繊維連続糸、それを用いた成形品の特性評価シミュレーション技術の開発 リサイクル炭素繊維紡績糸を用いた成形品の特性評価シミュレーション リサイクル炭素繊維を原料とした連続繊維強化複合部材のシミュレーション技術の確立

サブテーマ4	リサイクル炭素繊維基材の成形性に関する研究
サブテーマリーダー /所属機関	松岡 敏生／三重県雇用経済部
目標	リサイクル炭素繊維を用いた連続繊維糸（紡績糸）の性能評価 ハイブリッド成形に適した中間基材の選定 リサイクル炭素繊維ハイブリッド成形条件の最適化と成形品の試作提案

4. 研究開発内容

本件研究の最終目標は、CFRPのリサイクルサプライチェーンの構築に貢献することである。サプライチェーン構築のためには、技術開発が進んでいる「廃CFRPから分離、回収」以降のリサイクル炭素繊維の利用部分の技術開発が必要である。すなわち、不織布やペレット以外での利用技術の開発が必

		2020	2021	2022
サブテーマ1	目標	リサイクル炭素繊維を用いた 連続繊維糸（紡績糸）の試作	リサイクル炭素繊維紡績糸を用いた 織物、編物の試作	リサイクル炭素繊維を用いた 中間基材原料（糸、布）の試作品の提示
リサイクル炭素繊維の連続繊維化及び製布化技術の開発 トータ紡マテリアル 山田隆義	内容・手法	短繊維化されたリサイクル炭素繊維を紡績技術により連続繊維化する。カード、粗糸、精紡等、工程ごとに、トライを行う。PP,Ny等の熱可塑性樹脂が炭素繊維と混紡可能を検討する。	炭素繊維紡績糸を用いて製布（織物、編物）する。 糸、組織、密度等の諸条件を検討する。 一方で、カバリング糸等、加工糸も試作する。	中間基材原料（糸、布）を試作し、川下工程（プリプレグ成形、組物試作）へ提供する。 中間基材に適した糸、布等の部材を試作開発する。
サブテーマ2	目標	リサイクル炭素繊維を用いた 中間基材及び原料の検討	リサイクル炭素繊維を原料とした 熱可塑性プリプレグ製造方法の確立	リサイクル炭素繊維を原料とした 連続繊維強化複合部材の開発
新しいリサイクル炭素繊維基材の開発 岐阜大学 仲井朝美	内容・手法	リサイクル炭素繊維を紡績するための繊維表面処理条件等を検討する。 リサイクル炭素繊維布帛をプリプレグ成形するための種々の条件（界面特性、含浸性）を検討する。	リサイクル炭素繊維紡績糸からなる布帛と組み合わせる樹脂材料、含浸方法等の条件を最適化する。 紡績糸布帛を用いたプリプレグを試作する。	連続繊維強化複合部材の特徴（衝撃吸収性能等）をシミュレーションと実験により解析して、製造にフィードバックし、市場に受け入れられるプリプレグおよびプレス品の提案につなげる。
サブテーマ3	目標	炭素繊維連続糸、それを用いた成形品の特性評価シミュレーション技術の開発	リサイクル炭素繊維紡績糸を用いた 成形品の特性評価シミュレーション	リサイクル炭素繊維を原料とした 連続繊維強化複合部材のシミュレーション技術の確立
リサイクル炭素繊維基材の材料特性解析 三重大学 中西康雅	内容・手法	市販炭素繊維紡績糸を用いた熱可塑性成形品を対象に、静的な力学的特性等をシミュレーションする方法を静的な物性評価と共に検討する。	前年度に開発した技術を利用したリサイクル炭素繊維紡績糸及びそれを用いた熱可塑性成形品に適用し、シミュレーションによる評価を行う。そして、プリプレグ製造方法へフィードバックする。	連続繊維強化複合部材の特徴（衝撃吸収性能等）をシミュレーションと実験により解析して、製造にフィードバックし、市場に受け入れられるプリプレグおよびプレス品の提案につなげる。
サブテーマ4	目標	リサイクル炭素繊維を用いた 連続繊維糸（紡績糸）の性能評価	ハイブリッド成形に適した中間基材の選定	リサイクル炭素繊維ハイブリッド成形条件の最適化と 成形品の試作提案
リサイクル炭素繊維基材の成形性に関する研究 三重県工業研究所 松岡敏生	内容・手法	サブテーマ1の試作開発糸の物理特性（力学特性、伸長特性等）を評価して、試作条件にフィードバックする。 一方で、独自に炭素繊維/樹脂のハイブリッド成形のトライも行う。	リサイクル炭素繊維紡績糸を用いたプリプレグをハイブリッド成形する。 成形品の性能と中間基材（糸、布、プリプレグ）製造条件との関係を調べ、明らかにする。	ハイブリッド成形機を用いて、リサイクル炭素繊維紡績糸プリプレグとリサイクル炭素繊維ペレットを用いたハイブリッド成形品を試作する。

要であり、連続繊維（糸）の開発（サブテーマ1）を起点に、中間基材化（サブテーマ2）、素材特性解析（サブテーマ3）及び成形技術（サブテーマ4）を連動して、リサイクル炭素繊維成形品を提案する。具体的には、(1)繊維企業のモノづくり技術により分離、回収されたりサイクル炭素繊維を紡績（繊維集合体形成）して糸および布（織物、編物）を試作、(2)その糸および布を成形利用できるように中間基材化、(3)成形のための中間基材の特性解析、(4) ハイサイクルが可能なハイブリッド成形による試作品提案を行う。一連のサブテーマの研究結果をフィードバックすることでさらなる部材開発へと反映するPDCAサイクルを構築し、研究の成果を高めていく。一方で(1)、(2)、(4)でそれぞれ試作品を提示して、アドバイザーボードの協力により実用スペック、コストを睨みながら事業を進める。

サブテーマ1：リサイクル炭素繊維の連続繊維化及び製布化技術の開発

(1) 短繊維化されたリサイクル炭素繊維の連続繊維化に向けた装置導入

炭素繊維の紡績技術の調査および連続繊維化のためのスライバー⁴⁾製造設備導入についての調査を行った。短繊維化されたReCFを連続繊維化するための工程を検討して装置導入を行った。そして、ReCFとポリプロピレン（PP）を混紡したスライバー作製を行った。

(2) 紡績技術によるリサイクル炭素繊維の連続繊維化

安定したスライバーを作製するために、ReCFとPPが均一になるような混合方法やカード⁵⁾等の設定条件を検討して、最適な装置条件を導き出した。そして、このスライバーを用いて紡績糸の高品質化のために、精紡時のドラフト⁶⁾や撚り数などの諸条件を検討した。

これらの試作紡績糸の加工、関連サブテーマに供給して布帛化を検討した。その他に、成形用の材料として紡績工程の中間材料であるスライバーの直接利用の可能性も検討した。

サブテーマ2：リサイクル炭素繊維を原料としたプリプレグ成形技術の開発

(1) ReCF／熱可塑性樹脂界面特性の確保：表面処理、成形条件の最適化

リサイクル炭素繊維を紡績するための繊維表面処理条件等を検討することを目的とし、リサイクル繊維を用いた界面評価および表面処理剤の開発をおこなった。さらに、リサイクル炭素繊維布帛をプリプレグ成形するための種々の条件（界面特性、含浸性）を検討することを目的とし、テキスタイル加工性と含浸性評価手法の確立をおこなった。

(2) ReCF/樹脂混紡糸を用いたプリプレグの成形技術の構築

リサイクル炭素繊維紡績糸からなる布帛と組み合わせる樹脂材料、含浸方法等の条件を最適化することを目的とし、一方向材料を成形し、断面観察による成形性評価、引張試験による力学的特性評価をおこなう。中間材料としてサブテーマ1の紡績糸を使用して、一方向材成形のためのプリフォームをTailored Fiber Placement⁷⁾（以下、TFP）技術で作製した。そして、このプリフォームを加熱圧縮成形することで一方向材を成形して物性等の評価を行った。

(3) ReCF/樹脂混紡糸を用いた組物（パイプ）の製造技術の開発

リサイクル炭素繊維紡績糸から、組み技術によるパイプ、編み技術による曲面形状等、複雑形状の成形が可能となる部材を試作開発する。複雑形状を実現する強化形態作製技術として、TFP 技術を採用した。パイプ形状を実現する成形技術として、フィラメントワインディング⁸⁾（以下、FW）成形技術を採用した。

サブテーマ3：リサイクル炭素繊維基材の材料特性解析

(1) 炭素繊維連続繊維糸のシミュレーション技術の開発

炭素繊維糸（フィラメント糸）をX線CTにより分析し、繊維の幾何学的構造を調査した。連続繊維糸（フィラメント糸）の弾性定数行列を糸表面の配向角度 θ と撚糸構造の撚り角度 ϕ をもとに座標変換し、紡績糸の異方性を考慮した弾性定数を算出する手法を開発した。妥当性を検証するため実験値と比較検証した。

(2) リサイクル炭素繊維紡績糸のシミュレーション技術の開発（微視的構造モデルの開発）

リサイクル炭素繊維紡績糸からなる炭素繊維強化複合材料（以下、**ReCFRP**）の数値シミュレーションモデルを開発した。開発したモデルの計算精度を検証するため、一方向材をモデル化した場合の弾性率を複合則（理論解）と比較検証した。また、連続繊維紡績糸の繊維体積含有率と撚り角が複合材料の弾性率に及ぼす影響を調査した。

(3) **ReCFRP**の振動減衰特性の評価

紡績された炭素繊維を用いたテキスタイルCFRTPの振動解析シミュレーションを行うシステムを開発した。テキスタイル構造や、撚り角度などがCFRTPの静的・動的特性に及ぼす影響を定量的に評価できる。

(4) **ReCF**を強化材としたテキスタイル複合材料の構造解析

リサイクル炭素繊維紡績糸をテキスタイル構造とした**ReCFRP**の有限要素解析を行うシステムを構築した。ここでは、紡績糸の弾性率や繊維束の形状、織り組織等を入力して有限要素モデルを生成し、有限要素解析を実施する統合システムとし、応力解析、振動解析を実施できるように構築した。

サブテーマ4：リサイクル炭素繊維基材の成形性に関する研究

(1) リサイクル炭素繊維を用いた連続繊維糸（紡績糸）の性能評価

ReCFとPPからなる紡績糸等の物理特性の評価として、紡績糸の太さ（繊度）、炭素繊維重量比（炭素繊維含有量）、引張試験による破断強度、伸度、**ReCF**原料の表面性状、繊維長の測定を実施した。

(2) ハイブリッド成形に適した中間基材の選定

試作紡績糸と**ReCF**入り樹脂ペレットとのハイブリッド成形品を作成することを目的に、紡績糸を用いた中間基材を作成した。この中間基材を積層して強度を評価した。また、より賦形性の高い中間基材を作成するため、紡績糸から織物を製作して熱プレスを行い、中間基材を試作した。

(3) リサイクル炭素繊維ハイブリッド成形条件の最適化と成形品の試作提案

CFRTPシートと射出樹脂を一体成形するハイブリッド成形により成型品を試作した。成型品は、強度とともに、しわや凹凸がないなど表面の意匠性も重視されるため、賦形性を評価できる形状とした。

5. 研究成果

5-1. 成果の概要

(1) 短繊維化されたリサイクル炭素繊維のスライバー試作

スライバー装置を導入して、カードイング⁵⁾試験、スライバーの試作を重ねながら、ワイヤーの調整、シリンダーゲージの調整などを行い、短繊維化されたリサイクル炭素繊維の連続繊維化として、スライバーの試作を行なった。試料はリサイクル炭素繊維とポリプロピレン繊維を体積比50:50の同量として混綿した。**ReCF**を用いたスライバーの試作では各種条件でスライバー状態には作製できたが、スライバーの欠点となる混紡斑が多く見られた。**ReCF**繊維は繊維径が7 μ mであり、カードワイヤー上で沈み込みが発生していると思われ、ローラー部のローラー間ゲージを小さくすること、ゲレン（カード投入量）を大きくすること

として、設備の調整を行った。その結果、図-1.7に示すような良好なスライバーが得られた。スライバー製造の次工程である粗紡工程への試料を供給するために、スライバー振込装置（コイラー）を設置し、



図-1.7-a 調整前のスライバー

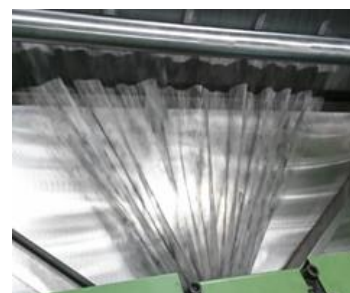


図-1.7-b 調整後のスライバー

中間品としてのスライバーの連続製造が可能となった。

(2)紡績技術によるリサイクル炭素繊維の連続繊維化

スライバーから紡績糸を試作し、それらの外観観察、X線CT画像による内部の構造観察、糸の破断強度を調べた。紡績糸の試作結果及び外観観察結果等を図-1.9に、それらの破断強度の測定結果を表-1.7に示す。試作03では、これまでの試作で紡績時の切断が見られたため、精紡時のドラフト条件を検討し、ドラフト比を5倍から2.4倍にして低ドラフト条件にて試作を行なった。その結果、試作02より太くはなったが、外観から太さのむらが減少していることが確認でき、内部構造の観察結果では白い斑状部分が減少していることが確認できた。破断強度も試作01の2倍程度となり、強度が大きく向上した。

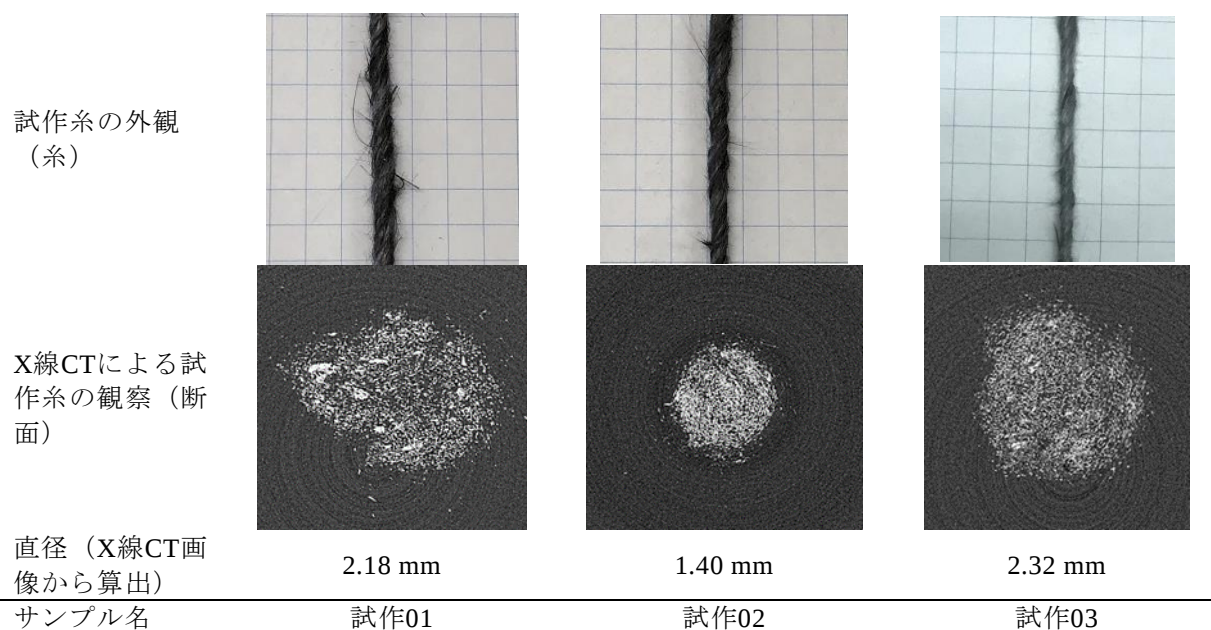


図-1.9 紡績糸の試作結果

表-1.7 試作紡績糸の破断強度

サンプル名	試作01	試作02	試作03
破断強度	49.4 N	62.2 N	109 N

以上の結果より、試作03の条件で紡績糸を作製し、サブテーマ2，サブテーマ4へのサンプル供給を行なった。

(3)ReCF/樹脂混紡糸を用いた部材の試作開発

サブテーマ1において開発した紡績糸を使用して、TFP技術により複雑形状を実現する強化形態部材の製作を行った。作製した複雑形状を有する強化形態の一例を図-2.13に示す。図に示すように、ReCF/樹脂混紡糸を使用して、連続繊維と同様にTFP技術を適用することが可能となり、曲率を有する



図-2.13 ReCF/樹脂混紡糸のTFP技術への適用

繊維配向や局所的に厚さが異なる強化形態の作製が可能となった。さらに、複雑形状を実現する強化形態作製技術として、たて編物および織物技術に展開可能であることも確認した（図-2.14）。



図-2.14 ReCF/樹脂混紡糸のたて編物技術への適用

(4)リサイクル炭素繊維紡績糸のシミュレーション技術の開発（微視的構造モデルの開発）

まず、提案手法の計算精度を検証するため、複合則によって理論計算可能な一方向（UD）材の解析を実施し、妥当性を検証した。複合則により求めた理論解と提案手法により得られた弾性率の誤差は最大でも1.5%以下であり、十分な計算精度を実現していることが確認できた。また、連続繊維と不連続繊維の弾性率を比較すると、その差の割合は1%以下と非常に小さいことが分かった。

次に、この手法を用いて繊維の撚り角と繊維体積含有率がReCFRPの弾性率に及ぼす影響について調査した。モデル化にあたっては、繊維長は50mmの不連続炭素繊維をモデル化した。また撚り角及び繊維体積含有率が弾性率に及ぼす影響についても調査した。撚り角は0度から50度まで10度刻みとし、繊維体積含有率は40%、50%、60%の場合をモデル化して解析を行った。解析結果をもとに、撚り角と弾性率の関係をまとめた結果を図-3.10に示す。図-3.10より、撚り角が大きくなると弾性率が減少するが、10度程度まではその減少率は小さいことが確認できた。一方、繊維体積含有率については、その含有率が高くなると弾性率が高くなり、その変化は含有率に比例して変化することが分かった。

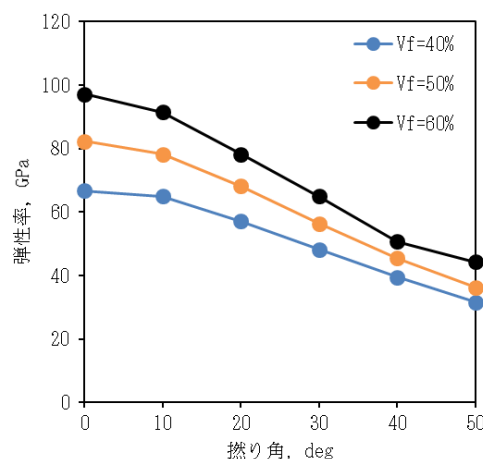


図-3.10 撚り角と弾性率の関係（紡績糸CFRP）

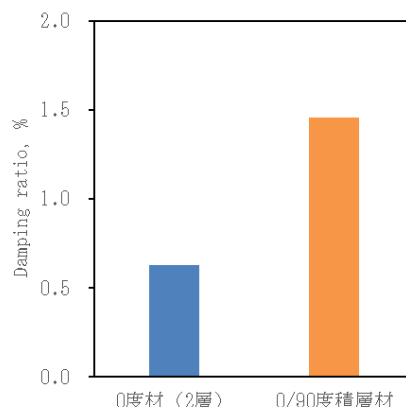


図-3.12 ReCFRP材の積層構成と減衰比の関係

(5)ReCFRPの振動減衰特性の評価

リサイクル炭素繊維紡績糸を用いたReCFRP（CF/PP）積層材の振動減衰特性について調査した。試験片形状は150×15×1mmとし、積層構成は[0/0]材と[0/90]材の2種類とした。この試験片を用いて中央支持定常加振法により1次曲げ振動モードの減衰比を求めた。実験結果を図-3.12に示す。図-3.12より、0度材と比較して0/90度材の減衰比が高いことから、一般的なUD材の振動減衰特性と同様に0度材と比較して90度材の振動減衰性能が高いためであると考えられる。

(6)リサイクル炭素繊維とPPからなる紡績糸の評価

サブテーマ1により作製した紡績糸の物性評価結果を表-4.1に示す。参考としてバージンCF（vCF）を用いた市販紡績糸の値を比較用に記載した。試作紡績糸は、市販のvCF紡績糸と比較して、強度は約1/4であったものの、破断強度は約2.7倍、伸度については約16倍の結果となり、市販のvCF紡績糸とは異なる試作紡績糸の特性を把握することができた。

表-4.1 リサイクル炭素繊維とPP繊維からなる試作紡績糸の概要

	太さ (tex)	CF割合 (wt%)	破断強度 (N)	伸度 (mm)	強度 (N/tex)
試作紡績糸	1260	59	74.9	17.6	0.059
(参考) vCF紡績糸	136	100	27.7	1.06	0.204

(7) リサイクル炭素繊維とPPからなる紡績糸を熱圧プレスした中間基材の評価

サブテーマ1で作製した紡績糸を用いて、UD材および織物の熱プレスした基材を作製した。これらの中間基材を0°-90°の2層に重ね合わせたのち再度熱プレスを行いハイブリッド成型機に用いる熱プレス中間基材とした。ハイブリッド成型機による試作成形品作成にあたり、予め賦形性評価を行うことが可能な予熱温度範囲を求めるため、加熱温度の違いによる変化を調べた。熱プレスした中間基材については、170℃を超えると煙が発生し、樹脂成分の熱分解による揮散が見られた。一方、市販品のプリプレグについては、200℃でも賦形が可能であったが、240℃を超えるとシートから煙が発生し、樹脂成分が熱分解し、揮散することが明らかになった。

(8) ハイブリッド成形品の作成と圧縮強度測定

試作紡績糸から作製したUD材および織物を熱圧プレスした中間基材とReCF入り樹脂ペレットを用いたハイブリッド成形品を作成した。図-4.15にUD材積層0°-90°のハイブリッド成形品を、図-4.16に織物のハイブリッド成形品を示す。この結果、何れもシワが発生せず、良好な賦形性が得られることが判明した。一方、図-4.15と図-4.16の熱プレス中間基材のハイブリッド成形品では、シート側の表面に粗さが見られた。

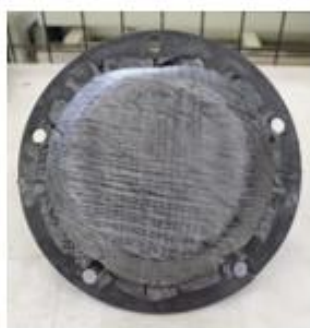


図-4.15 試験用金型を用いたハイブリッド成形試作品（UD材積層0°-90°+ReCFペレット）



図-4.16 試験用金型を用いたハイブリッド成形試作品（織物+ReCFペレット）

試作紡績糸を使用した中間基材とReCF/PPペレットによるハイブリッド成形品、vCF/PPペレットのみの成形品、PPペレットのみの成形品の圧縮強度の測定結果を表-4.4に示す。ReCFハイブリッド成形品の圧縮強度は13.2 kNであり、vCF/PPペレット成形品の14.8 kNに対して89%の強度であった。

表-4.4 成形品の圧縮強度の比較 (n=2)

	ReCF/PP織シート + ReCF/PPペレット	vCF/PPペレット	【参考】 PPペレット
圧縮強度 (kN)	13.2	14.8	6.2

5－2．環境政策等への貢献

CFRPのリサイクルに伴う最終処分量の削減

CFRPのリサイクルは、炭素繊維の取り出し技術の開発とその炭素繊維の再利用技術の開発が必要となる。使用後のCFRPは、主に埋立処分がなされているが、リサイクル炭素繊維としては、チョップド繊維、ミルド繊維をペレット、押出材、不織布原料の用途に展開を試みている。しかしながら、再製品化は一部にとどまっており、リサイクル拡大にはReCFの用途拡大が必須で、そのためには、付加価値の高い繊維集合体での利用が期待されている。本事業では、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、布帛として成形用の中間基材化を図り、用途拡大を狙った。すなわち、ReCFの新たな利用方法の提案により、最終処分量の削減に貢献できるものである。航空機向けでは2021年の受注の延期やキャンセルからのV字回復が見込まれ、CFRPの需要が拡大し、同時に機体製造時の端材も大量に発生することとなる。この端材利用の市場も右肩上がり市場は伸びており、2035年の世界市場の予測では2021年比3.9倍の648億円と見込まれ、今後の研究開発の進展によりCFRPのリサイクルに伴う最終処分量の削減に貢献できるものと思われる。

ReCFの再製品化によるCO2削減見込み

先に述べたように埋め立て処分量が減ることが大きなメリットであるが、マテリアルリサイクルを行うことで、循環が形成されるので、その効果は非常に大きなものである。

CO2削減見込みの分析は、ReCFの回収、再製品化との比較対象として、新規製造と比較して行う。CFRPの原料回収、ReCF回収部分は、本事業では取り組まず、川上事業者からのReCF購入とするが、CO2削減見込みの分析はペレット原料の事例を参考に行った。ELG社の試算では、エネルギー集約型の生産段階においてリサイクル炭素繊維は、バージン繊維の生産に必要なエネルギーの10%程度で生産されるとしている。炭素繊維の製造には、286MJ/kgのエネルギーが必要で、CO2排出量は、22.4kg-CO2/kgである。これに対して、リサイクルCFRPの製造エネルギーは1/10 (29MJ/kg, 2.2kg-CO2/kg) と算出され、国内で2万～3万トンのリサイクル市場が形成されれば、40.4万～60.6万トンのCO2削減に寄与することができる。また、本事業の紡績、製布の工程は、電力エネルギーが主で、熱エネルギーはほぼ使用しないため、同量のReCFを用いた製品では、ペレット製造、チョップド、混紡不織布製造などよりも製造エネルギーは低く、さらなるCO2削減効果も期待できる。

<行政等が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

<行政等が活用することが見込まれる成果>

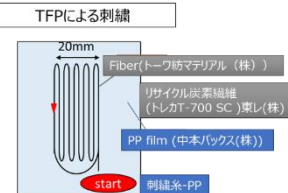
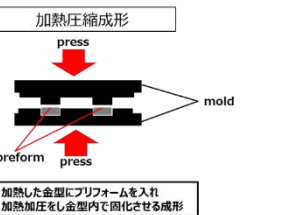
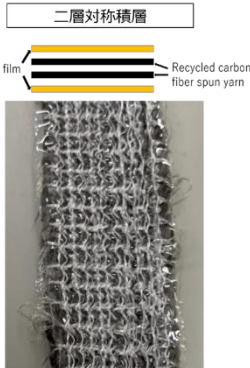
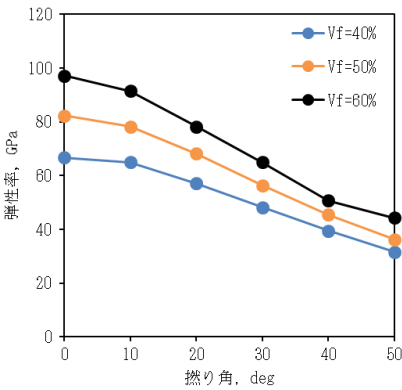
CFRPのリサイクルに伴う最終処分量の削減

本研究の成果であるReCFの連続繊維化、糸、布帛の開発が今後の研究開発の進展により実用化されれば、CFRPのリサイクルに伴う最終処分量の削減に貢献でき、プラスチックに係る資源循環の促進等に関する法律や中央環境審議会循環型社会部会自動車リサイクル専門委員会似て審議が行われている課題への貢献が見込まれる。

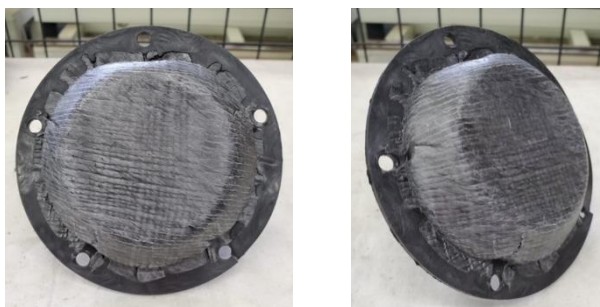
ReCFの再製品化によるCO2削減見込み

本事業の紡績、製布の工程は、電力エネルギーが主で、熱エネルギーはほぼ使用しないため、ペレット製造、チョップド、混紡不織布製造など同量のReCFを用いた従来の製品と比較すると、さらなるCO2削減効果が期待できる。このことは、パリ協定の削減目標の削減目標や地球温暖化対策計画への活用が見込まれる。

5-3. 研究目標の達成状況

全体目標	目標の達成状況																												
本件研究の最終目標は、炭素繊維強化プラスチックのリサイクルサプライチェーンの構築に貢献することである。サプライチェーン構築のためには、技術開発が進んでいる「廃CFRPから分離、回収」以降のリサイクル炭素繊維の利用部分の技術開発が必要である。 すなわち、不織布やペレット以外での利用技術の開発が必要であり、連続繊維（糸）の開発（サブテーマ1）を起点に、中間基材化（サブテーマ2）、素材特性解析（サブテーマ3）及び成形技術（サブテーマ4）を連動して、リサイクル炭素繊維成形品を提案する。 具体的には、 (1)繊維企業のモノづくり技術により分離、回収されたリサイクル炭素繊維を紡績（繊維集合体形成）して糸および布（織物、編物）を試作、 (2)その糸および布を成形利用できるように中間基材化、 (3)成形のための中間基材の特性解析、 (4)ハイサイクルが可能なハイブリッド成形による試作品提案を行う。 一連のサブテーマの研究結果をフィードバックすることでさらなる部材開発へと反映するPDCAサイクルを構築し、研究の成果を高めていく。一方で(1)、(2)、(4)でそれぞれ試作品を提示して、アドバイザーボードの協力により実用スペック、コストを睨みながら事業を進める。	<u>目標を上回る成果をあげた。</u> 4つのサブテーマが、連続繊維作製、基材化、特性解析、試作成形というそれぞれの役割で十分な成果をあげた。また各テーマで、研究開発だけでなく、試作開発、試作品の提示を行い、実証的な成果を得ることができた。 サブテーマが連動しながら事業を進めることができ、リサイクル炭素繊維の利用部分の技術開発ができたことから、「目標を上回る成果をあげた。」と自己評価した。 連続繊維（糸）の試作開発  中間基材の試作開発 TFPIによる刺繍  加熱圧縮成形  加熱した金型にプリフォームを入れ 加熱加圧をし金型内で固化させる成形 二層対称積層  紡績糸CFRPの解析 <table><thead><tr><th>捻り角, deg</th><th>Vf=40%</th><th>Vf=50%</th><th>Vf=60%</th></tr></thead><tbody><tr><td>0</td><td>85</td><td>85</td><td>100</td></tr><tr><td>10</td><td>82</td><td>80</td><td>95</td></tr><tr><td>20</td><td>78</td><td>75</td><td>85</td></tr><tr><td>30</td><td>65</td><td>65</td><td>75</td></tr><tr><td>40</td><td>45</td><td>55</td><td>60</td></tr><tr><td>50</td><td>35</td><td>45</td><td>50</td></tr></tbody></table>	捻り角, deg	Vf=40%	Vf=50%	Vf=60%	0	85	85	100	10	82	80	95	20	78	75	85	30	65	65	75	40	45	55	60	50	35	45	50
捻り角, deg	Vf=40%	Vf=50%	Vf=60%																										
0	85	85	100																										
10	82	80	95																										
20	78	75	85																										
30	65	65	75																										
40	45	55	60																										
50	35	45	50																										

ハイブリッド成形による試作



サブテーマ 1 目標	目標の達成状況
(1) リサイクル炭素繊維を用いた連続繊維糸（紡績糸）の試作 (2) リサイクル炭素繊維紡績糸を用いた織物、編物の試作 (3) リサイクル炭素繊維を用いた中間基材料（糸、布）の試供品の提示	<u>目標どおりの成果をあげた。</u> CFのリサイクルシステムの基点となる連続繊維（スライバー、紡績糸）の作製、提案ができたことから、「目標通りの成果をあげた」と自己評価した。織物、編物の試作部分は他のサブテーマとの連携となったが、全体目標である試作成形にまで至ったため、目標通りと自己評価した。 (1) 直線的な形状であるReCFと熱可塑樹脂であるPPを原料として、連続的なスライバーを作製できた。ReCFとPPを紡績技術により連続繊維化して紡績糸を試作した。 (2) 作製した連続繊維は繊維が太いため自社の製布設備では布帛の試作が困難であり、他のサブテーマと連携して布帛の試作を進めた。布帛に適した糸の供給を行ない、成形原料として有効であることを確認することができた。 (3) 紡績糸の高品質化を図り、開織工程の改善により品質が向上でき、試作糸を川下工程へ供給できた。
サブテーマ 2 目標	目標の達成状況
(1) ReCF／熱可塑性樹脂界面特性の確保：表面処理、成形条件の最適化 (2) ReCF/樹脂混紡糸を用いたプリプレグの成形技術の構築 (3) ReCF/樹脂混紡糸を用いた組物（パイプ）の製造技術の開発	<u>目標を上回る成果をあげた。</u> 複合材料（ReCF/PP混紡糸）の最適成形条件の提示、TFP技術を用いた強化形態の作製および成形、新規フィラメントワインディング技術によるパイプの成形を実現できたことから、「目標を上回る成果をあげた」と自己評価した。また、サブテーマ 1 と連携して、たて編物および織物技術に展開可能であることも確認できた。 (1) まず、界面評価手法、含浸性評価手法を確立した。リサイクル炭素繊維を紡績するための繊維表面処理条件を明らかにし、本研究で対象とするPP樹脂に対しては、界面せん断強度の向上が確認され、約 2 倍の値が得られた。ReCF/樹脂混紡糸を用いた複合材料の最適成形条件を明らかにした。 (2) TFP技術を用いた強化形態の作製および成形を可能とした。ReCF/樹脂混紡糸を用いて作製した強化形態に対し

	て、含浸性および力学的特性の観点から最適成形条件を明らかにした。 (3) TFP技術により、従来の連続繊維と同様に試作ReCF/樹脂混紡糸でも曲率を有する繊維配向や局所的に厚さが異なる強化形態の作製が可能となった。たて編物および織物技術に展開可能であることも確認した。
--	--

サブテーマ3 目標	目標の達成状況
(1) 炭素繊維連続糸、それを用いた成形品の特性評価シミュレーション技術の開発 (2) リサイクル炭素繊維紡績糸を用いた成形品の特性評価シミュレーション (3) リサイクル炭素繊維を原料とした連続繊維強化複合部材のシミュレーション技術の確立	<u>目標を上回る成果をあげた。</u> 炭素繊維連続糸の弾性特性、リサイクル炭素繊維の繊維長や繊維含有率が弾性特性に及ぼす影響、ReCF成形品の振動減衰特性、構造部材としてのテキスタイル複合材料の特性評価を行い、試作部材の特性を明らかにできたことから、「目標を上回る成果をあげた」と自己評価した。 (1) 炭素繊維連続糸を用いた成形品の幾何学的な繊維強化構造を有限要素法によりモデル化し、弾性特性を評価する数値シミュレーション技術を開発した。撚糸の引張弾性率の実験結果より提案手法の妥当性を検証により、撚糸の弾性率を表現する材料モデルとしての妥当性を明らかにすることができた。 (2) ReCFRPの材料特性をモデル化するため、リサイクル炭素繊維の不連続性を考慮したモデル化手法を有限要素法により構築し、リサイクル炭素繊維の繊維長や繊維含有率が弾性特性に及ぼす影響について評価することが可能になった。また、ReCF成形品の振動減衰特性を評価する数値シミュレーションモデルを開発した。 (3) 構造部材として利用された際の特性評価手法を確立するため、リサイクル炭素繊維紡績糸を強化材としたテキスタイル複合材料のモデル化手法を開発した。

サブテーマ4 目標	目標の達成状況
(1) リサイクル炭素繊維を用いた連続繊維糸（紡績糸）の性能評価 (2) ハイブリッド成形に適した中間基材の選定 (3) リサイクル炭素繊維ハイブリッド成形条件の最適化と成形品の試作提案	<u>目標どおりの成果をあげた。</u> リサイクル炭素繊維を用いた試作紡績糸の破断強度や伸度等の特性を把握できた。また、試作紡績糸を用いたハイブリッド成形品の賦形性に問題がないことを確認した。ReCFハイブリッド成形品の圧縮強度はvCF/PP成形品の89%であり、目標値80%を上回る強度であった。これらの結果から「目標通りの成果をあげた」と自己評価をした。 (1) サブテーマ1により試作した紡績糸の評価を実施した。市販のvCF紡績糸と比較して、引張強度は約1/4であったものの、破断強度は約2.7倍、伸度については約16倍の結果となり、市販のvCF紡績糸とは異なる試作紡績糸の特性を

	把握することができた。 (2) 中間基材について、賦形性確認試験を行ったところ、最適賦形温度が165°Cであることを明らかにした。 (3) プリプレグの賦形性確認用の金型により、UD材の積層を0°-90°とした中間基材と織物を熱プレスした中間基材の2種類について、ハイブリッド成形品を作製したところ、賦形性に問題がないことを確認した。また試作紡績糸を使用した中間基材とReCF/PPペレットによるハイブリッド成形品とvCF/PPペレットのみの成形品の圧縮強度はそれぞれ13.2kNと14.8kNとなり、計画時の目標であるバージン材の80%以上を上回る89%を達成した。
--	---

6. 研究成果の発表状況

6-1. 査読付き論文

<件数>

- ・ ReCF紡績糸を用いた複合材料の成形に関する内容で、日本複合材料学会誌等への投稿を予定している。
- ・ ReCF紡績糸やReCFRPの力学的特性評価に関する内容で、Journal of Textile Engineering誌等への投稿を予定している。

6-2. 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

6-3. その他発表件数

査読付き論文に準ずる成果発表	0件
その他誌上発表（査読なし）	2件
口頭発表（学会等）	8件
「国民との科学・技術対話」の実施	2件
マスコミ等への公表・報道等	1件
本研究費の研究成果による受賞	0件
その他の成果発表	0件

7. 国際共同研究等の状況

サバティカル休暇プログラム（日本学術振興会、長期招へい研究者）を通じて岐阜大学に滞在していたラベルジュ・レーベル教授は連続繊維強化熱可塑性複合材料の連続成形技術の専門家である。本研究費の研究成果として得られる「リサイクル炭素繊維の連続繊維」を、現在研究代表者と実施している国際共同研究に応用展開する予定で合意している。

Louis Laberge Lebel, Associate Professor, Polytechnique Montréal

Japanese Society for the Promotion of Science Fellow, Gifu University

8. 研究者略歴

研究代表者

仲井 朝美

東京大学大学院工学系研究科先端学際工学専攻修了、博士（工学）、京都工芸繊維大学大学院工芸科学研究科先端ファイブ科学専攻助教、助教授、准教授、現在、岐阜大学工学部教授、Guコンボジット研究センター長

研究分担者

1) 山田 隆義

岐阜大学工学部卒業、現在、トーア紡マテリアル株式会社 取締役 専務執行役員

2) 中西 康雅

大阪大学大学院工学研究科生産科学専攻修了、博士（工学）、現在、三重大学教育学部教授

3) 松岡 敏生

信州大学大学院工学系研究科生物機能工学専攻、博士（工学）、三重県雇用経済部工業研究所プロジェクト研究課主幹研究員兼課長、現在、三重県雇用経済部中小企業・サービス産業振興課副参事

4) 増山 和晃

三重大学大学院工学研究科工業化学専攻修了、博士（工学）、現在、三重県雇用経済部工業研究所プロジェクト研究課主幹研究員兼課長

9. 用語集

- 1) チョップド繊維：所定の長さに切断した繊維。炭素繊維では、長さ3mm-6mm程度。
- 2) ミルド繊維：すり潰して粉（ミルド）状にした繊維。炭素繊維では、長さ30～300 μ m程度。
- 3) ハイブリッド成形：炭素繊維のシート材と射出樹脂の一体成形を行う方法で、加熱プレス成形とインサート射出成形を融合した成形方法。
- 4) スライバー：紡績工程における中間製品の一つで、繊維をまっすぐに引き伸ばし平行にそろえられた太いひも状の繊維集合体。
- 5) カード、カーディング：紡績工程において、繊維をまっすぐに引き伸ばし、繊維の方向を平行に揃える工程。
- 6) ドラフト：スライバーを細く引き伸ばす工程。糸の場合、太い糸を引き伸ばして、だんだん細くしていく工程。ドラフト比とは、引き伸ばされる比率のこと。
- 7) Tailored Fiber Placement：繊維刺しゅう技術を用いて、繊維束をいろいろな方向に配置して、必要な方向に必要な強度を持たせる設計技術。
- 8) フィラメントワインディング：炭素繊維を樹脂に含浸させながら回転する金型（マンドレル）に所定の厚さまでテンションを掛けて所定の角度で巻き付け、硬化後脱型する成形法。

Ⅱ．成果の詳細

Ⅱ－１ リサイクル炭素繊維の連続繊維化及び製布化技術の開発

トーア紡マテリアル株式会社

取締役	山田 隆義
執行役員	出口 佳史
産業資材 2 部 課長	岩月 高志
技術部 課長	竹下 隆太郎

[要旨]

炭素繊維強化プラスチック（以下、CFRP）リサイクルは、取り出された炭素繊維が短繊維であることから、ペレットや不織布等の原料利用など、軽量部材としての限定的な利用にとどまっており、取り出された炭素繊維（以下、CF）の新たな形態での利用、用途拡大が課題である。そこで、CFRP端材等からリサイクルされ短繊維となったCFを紡績技術により、連続繊維、糸として原料化、糸から布帛化、部材化を検討した。具体的には、リサイクル炭素繊維と熱可塑性化学繊維を混紡して連続繊維化、糸として原料化、糸から布帛化して、部材として供給することを試みた。

まず、原料となる炭素繊維、熱可塑性繊維の特性を、紡績加工性の点から調査した。炭素繊維は直線的な形状である上にクリンプを付与することもできないため、繊維同士が絡みにくく、カードから脱落したり、カードのワイヤーの中に沈み込んだりしやすい。そこで導入設備では単位面積あたりの山数を一般的な不織布用カードの約2倍のワイヤーを使用、炭素繊維の径が小さいため通常より幅の狭い40inch幅のカード機を採用した。これらの仕様でスライバー装置を導入し、短繊維化されたリサイクル炭素繊維（以下、ReCF）の連続繊維化を行なった。

短繊維化されたReCFを体積比50:50としてスライバーの作製を行ったところ、スライバー状態は作製できたがムラが見られ、また、つながりが悪い状態であった。不良の原因はReCF繊維のワイヤー上での沈み込みによるものと考えられ、ローラー部のローラー間ゲージを小さくすること、ゲレン（カード投入量）を大きくすることとして機器を調整した。その結果、繊維の沈み込み量は減少しており、ローラー間の繊維の移行がスムーズに行われていること、ポリプロピレン繊維（以下、PP）との混紡斑も大きく改善されていることが確認でき、スライバー作製条件の最適化が図られた。安定したスライバーの作製が見込めたので、スライバー製造の次工程である粗紡工程への試料を供給するために、スライバー振込装置（コイラー）を設置した。これにより、カード機から連続的に製造されるスライバーを巻き取りなら格納することができ、中間品としてのスライバーの連続製造が可能となり、精紡工程による紡績糸の作製を行った。初期段階では、試作紡績糸に混綿むらがあり、内部構造の観察結果でもReCFが繊維束上になっているような部分が観察された。これらの対策として、繊維配向の均一性の向上を図るために、開繊工程に、繊維開繊送綿装置を設置した。その結果、PP繊維の事前開繊が可能となり、ReCF、PP混合時の均一性が向上して繊維混合斑も解消され、良好な混綿結果が得られた。このスライバーを用いた紡績糸では繊度も細くなり、破断強度も向上しており、開繊工程の改善により品質が向上した。さらに、これまでの試作で紡績時の切断が見られたため、精紡時のドラフト条件を検討し、ドラフト比を5倍から2.4倍にして低ドラフト条件にて試作を行なった。その結果、外観から太さのむらがさらに減少していることが確認でき、破断強度も当初の2倍程度となり、強度が大きく向上した。これらの条件で紡績糸を作製し、サブテーマ2，サブテーマ4へのサンプル供給を行なった。その結果、試作糸を用いて中間基材や一方向材が試作できたため、熱可塑性繊維とリサイクル炭素繊維を混紡した紡績糸については、成形原料として有効であることが分かった。

1. 研究開発目的

CFRPリサイクルは、国内だけでも多くの機関で技術開発が進められているが、取り出されたCFの形態はミルド (<100 μm)、チョップド (～1 mm) といった短繊維がほとんどであり、おおよその長さごとに分けて、ペレットや不織布等の原料利用など、軽量部材としての限定的な利用にとどまっている。今後、大量消費されるCFの持続可能な生産消費形態を維持する (SDGs目標12) には、回収したCFの新たな形態での利用、用途拡大が必要である。

そこで、我々は、CFRP端材等からリサイクルされ短繊維となったCFを紡績技術により、連続繊維、糸として原料化、糸から布帛化、部材化を検討する。

具体的には、ReCFと熱可塑性化学繊維を混紡して連続繊維化、糸として原料化、糸から布帛化して、部材として供給することを目指す。

2. 研究目標

サブテーマ1	リサイクル炭素繊維の連続繊維化及び製布化技術の開発
実施機関	トーア紡マテリアル株式会社
目標	リサイクル炭素繊維を用いた連続繊維糸 (紡績糸) の試作 リサイクル炭素繊維紡績糸を用いた織物、編物の試作 リサイクル炭素繊維を用いた中間基材原料 (糸、布) の試供品の提示
令和2年度	短繊維化されたリサイクル炭素繊維を紡績技術により連続繊維化する。カード工程のトライを行い、粗糸、精紡等の後工程の準備を行う。 PP,Ny等の熱可塑性樹脂が炭素繊維と混紡可能か検討する。
令和3年度	炭素繊維紡績糸を用いて製布 (織物、編物) する。糸、組織、密度等の諸条件を検討する。一方で、カバリング糸等,加工糸も試作する。
令和4年度	中間基材原料 (糸、布) を試作し、川下工程 (プリプレグ成形、組物試作) へ提供する。 中間基材に適した糸、布等の部材を試作開発する。

3. 研究開発内容

(1)短繊維化されたリサイクル炭素繊維の連続繊維化に向けた装置導入

短繊維化されたReCFを連続繊維化するための工程を検討した。まず炭素繊維の紡績技術の調査および連続繊維化のためのスライバー製造設備導入についての調査を行った。そして、導入した設備により、ReCFとPPを混紡したスライバー作製を行った。図-1.1に取組内容を示す。



- 開織: 所定の混率の原料を混ぜ合わせながら解し、ある程度均一に分散された加工しやすい状態にする(オープナー)
- カード: 開織された原料を定量的に供給(ホッパー)し、さらに均一化しながら繊維方向を揃えてスライバー状にする
- 練条: 複数のスライバーを束ねながら引き揃えることによりスライバー斑を無くしながら太さを調整する

図-1.1 紡績工程の概要と取組内容

(2)紡績技術によるリサイクル炭素繊維の連続繊維化

短繊維化されたReCFをPPと混紡して、連続繊維である紡績糸を試作研究した。

まず、令和2年度に導入したスライバー製造設備及び令和3年度導入の開織装置を使用して、紡績糸と

なる前段階の中間材料であるスライバー作製について研究を行った。スライバー内でReCFとPPとがより均一になるような混合の手順や方法の検討、安定したスライバーが作成されるカードの適正条件を導くための試作を行った。また、ReCFとPPを混紡したスライバーから連続した紡績糸を作製するため、練条条件及び精紡条件を試行錯誤しながら試作研究を行った。

CYLINDER OPENER

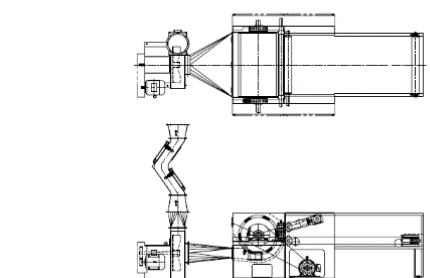


図-1.2 開繊装置の概要

さらに、紡績糸の高品質化として、均一な太さで混綿斑の少ない繊維を作ること为目标とした。混綿方法と手順の見直し、ReCF原料として焼成処理によるReCFに加え、薬剤処理によるReCFの検討、それらの油剤処理の検討を行った。また、新たに精紡機を導入して、ドラフトや撚り数などの諸条件を検討して試作紡績糸の高品質化を図った。

試作した紡績糸の加工として、カバリング糸等の加工糸も検討した。これらの紡績糸等を用いて、自社の既存設備を用いて、製布（織物、編物）の際の密度等の諸条件を検討した。

その他に、紡績は工程数が多く生産コストも嵩むことから、成形用の材料として紡績工程の中間材料であるスライバーの直接利用の可能性も検討した。



図-1.3 精紡機の概要

4. 結果及び考察

(1) 短繊維化されたリサイクル炭素繊維の連続繊維化に向けた装置導入

1) 装置の選定

紡績に関する設備導入にあたり、原料となる炭素繊維、熱可塑性繊維の特性を、紡績加工性の点から調査した（表-1.1）。

表-1.1 炭素繊維と代表的熱可塑繊維であるPETとの比較

	炭素繊維	PET(不織布用)
比重(g/cm ³)	1.76	1.38
直径(μm)	5～7	20～30
断面	○ (円型)	○ (円型)
形状		
特徴	● 直線的な形状 ● 繊維同士が絡みにくい ● 細く、ボリュームが無い	● クリンプにより屈曲 ● 繊維同士が絡みやすい ● ボリュームが有る

熱可塑性繊維を紡績原料とする場合、繊維にクリンプを持たせ、繊維同士が交絡しやすい形状とするが、炭素繊維は直線的な形状である上にクリンプを付与することもできないため、繊維同士が絡みにくく、カードから脱落したり、カードのワイヤーの中に沈み込んだりしやすい。繊維がカードを通過していくためには、ワイヤーの頂点が単位面積あたりにいくつあるかが重要となるが、一般に繊維が細ければ細いほどワイヤーの厚さは薄くピッチが細かい(単位面積あたりの山数が多い)ものが良いとされており、導入設備では一般的な不織布用カードの約2倍とした。また、カード・ホッパーの働き幅も炭素繊維の径が小さいため、ローラー間クリアランスを小さく取ることとして、通常80～100inchが主流であるが、今回の仕様では40inchとした。さらに、ホッパーで使用するスパイクラチスも、繊維径が細いこと、直線的な形状であることを考慮して、塩ビシートのタイプとした。これらの検討結果に基づき、図-1.4に示すスライバー装置を導入した。カーディング試験、スライバーの試作を重ねながら、ワイヤーの調整、シリンダーゲージの調整などを行い、短繊維化されたReCFの連続繊維化を行なった。

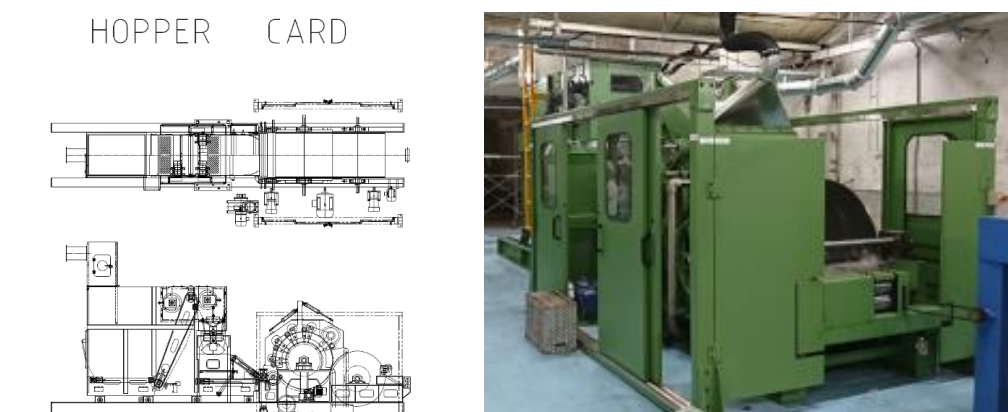


図-1.4 導入したスライバー装置の概要

2)スライバーの試作

上記のような仕様で設備を導入し、スライバー試作を行った。試作に用いた繊維は、表-1.2の通りである。ReCFは繊維長が異なる2種類を用いて、それらと混綿する熱可塑性繊維はポリプロピレン繊維とした。

スライバー作製時の試料の混綿条件は、表-1.3の通りである。導入設備の動作確認のため、PPのみでスライバー作製を行い、機器の調整及び動作の確認を行った。その後、2種類のReCFを用いて、熱可塑性繊維と混綿したスライバーの作製を検討した。混綿割合は、重量を基準に50:50の体積比とした。試作時のスライバー作製状況を図-1.5に示す。

表-1.2 試作に用いた繊維原料

試料名	原料	比重 (g/cm ³)	直径 (μm)	繊維長 (mm)
ReCF60	リサイクル炭素繊維	1.76	7	60
ReCF70	リサイクル炭素繊維	1.76	7	70
PP	ポリプロピレン繊維	0.91	20	51

表-1.3 スライバー作製条件

試料名	使用繊維	重量比 (ReCF:PP)	体積比 (ReCF:PP)
PP100	PP	0:100	0:100
ReCF60_50	ReCF60,PP	66:34	50:50
ReCF70_50	ReCF70,PP	66:34	50:50
ReCF60_100	ReCF60	100:0	100:0



図-1.5 スライバー作製

図-1.6にスライバー試作結果を示す。PP100では通常のスライバーが作製（図-1.6-a）され、導入設備の動作は確認できたため、ReCFを用いたスライバー作製へと進めた。ReCFを用いたスライバー作製を進めるにあたり、まず、体積比50:50で試料を投入、スライバー状態を確認して、機器の調整を行うこととした。その結果、ReCF60_50及びReCF70_50でもスライバー状態には作製できた（図-1.6-b、図-1.6-c）。しかしながら、目視で確認した結果、ウェブのつながりが悪く、混綿状況もややムラがあった。また、連続運転ではスライバーのつながりが悪く、切れてしまうことがあった。両者でReCFの繊維長での差はみられず、繊維長は60mm、70mmのいずれかを使用して、機器を調整していくこととした。ReCFのみのReCF60_100では、繊維がつながらず、連続スライバーが得られなかった（図-1.6-d、e、f）。これは、ReCFがワイヤー部に沈み込んで、次のローラーにうまく送り込まれず、その結果としてウェブが形成できず、連続スライバーが形成されないと思われる。



図-1.6-a PP100



図-1.6-b ReCF60_50



図-1.6-c ReCF70_50

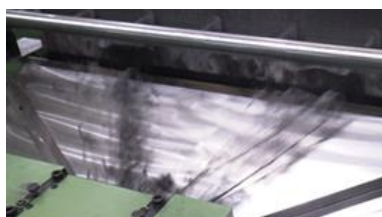


図-1.6-d ReCF60_100



図-1.6-e ReCF60_100



図-1.6-f ReCF60_100

図-1.6 スライバー試作結果

3)カード機の調整

ReCF繊維は繊維径が $7\mu\text{m}$ であり、通常の紡績糸に用いられる合成繊維（繊維径 $10\sim 20\mu\text{m}$ ）よりかなり細いため、カードワイヤー上で沈み込みが発生し、ローラー間で繊維が移行しづらいことが分かった。これは、スライバーの欠点となる混紡斑の出現にもつながっている。ReCF繊維径への対策として、図-1.6に示したローラー部のローラー間ゲージを小さくすること、ゲレン（カード投入量）を大きくすることとして、設備の調整を行った。

ゲージ変更等の機器調整を行った後のReCF60_50のスライバー試作結果を図-1.7に示す。機器運転時の目視での確認ではあるが、調整前に比べて、繊維の沈み込み量は減少しており、ローラー間の繊維の移行がスムーズに行われていることが確認できた。その結果、PPとの混紡斑も大きく改善されていることが確認できた（図-1.7-b）。



図-1.7-a 調整前のスライバー

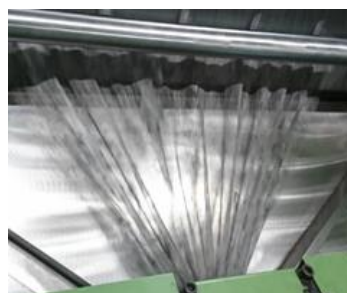


図-1.7-b 調整後のスライバー

4)スライバー製造ラインの完成

機器の調整により、安定したスライバーの作製が見込めたので、連続運転に向けた機器の設置を行った。スライバー製造の次工程である粗紡工程への試料を供給するために、スライバー振込装置（コイラー）を設置した（図-1.8）。これにより、カード機から連続的に製造されるスライバーを巻き取りながら格納することができ、中間品としてのスライバーの連続製造が可能となった。

また、繊維配向の均一性を向上させ、繊維混合斑を解消するために、開繊工程に、繊維開繊送綿装置を設置した。その結果、PP繊維の事前開繊が可能となり、ReCF、PP混合時の均一性が向上して良好な混綿結果が得られた（図-1.9）。



図-1.8 スライバー振込装置（コイラー）

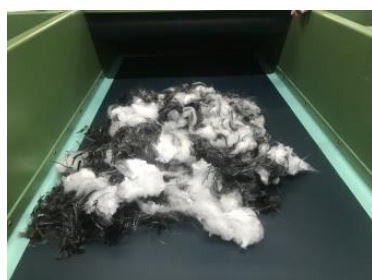


図-1.9 繊維開繊送綿装置設置後の混綿結果

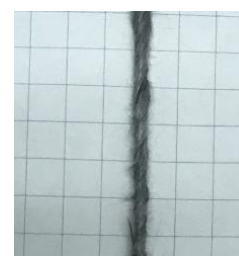
(2)紡績技術によるリサイクル炭素繊維の連続繊維化

装置導入とそれに伴う試作、機器調整の結果から、表-1.5の原料に対して、紡績糸を試作した。そして、それらの試作紡績糸の外観観察、X線CT画像による内部の構造観察、糸の破断強度を調べた。

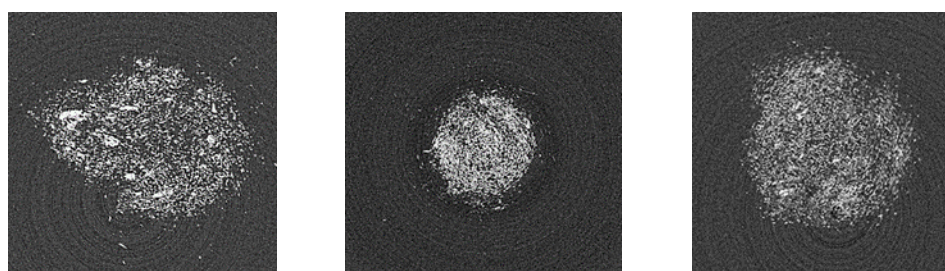
表-1.5 原料

繊維	太さ	体積比	重量比
PP	2.2TX76	50%	34%
ReCF	7 μ m	50%	66%

紡績糸の試作結果及び外観観察結果等を図-1.10に、それらの破断強度の測定結果を表-1.7に示す。試作01は上記の条件で作製したが、外観からも確認できるように太さむらがあり、X線CT画像による内部構造の観察結果でも局所的に開繊されずにReCFが繊維束状になっているような部分（白い斑状部分）が観察された。これに対して、開繊工程に繊維開繊送綿装置を設置して紡績糸を試作02として試作した。内部構造の観察結果から、白い斑状部分が減少しており、また、画像から算出した紡績糸の径も細くなった。破断強度も試作01より強くなっており試作02では開繊工程の改善により品質が向上した。さらに試作03では、これまでの試作で紡績時の切断が見られたため、精紡時のドラフト条件を検討し、ドラフト比を5倍から2.4倍にして低ドラフト条件にて試作を行なった。その結果、試作02より太くはなったが、外観から太さのむらが減少していることが確認でき、内部構造の観察結果では白い斑状部分が減少していることが確認できた。破断強度も試作01の2倍程度となり、強度が大きく向上した。

試作糸の外観
(ボビン巻取)試作糸の外観
(糸)

X線CTによる試作糸の観察（断面）



直径（X線CT画像から算出）

2.18 mm

1.40 mm

2.32 mm

サンプル名	試作01	試作02	試作03
-------	------	------	------

図-1.10 紡績糸の試作結果

表-1.7 試作紡績糸の破断強度

サンプル名	試作01	試作02	試作03
破断強度	49.4 N	62.2 N	109 N

以上の結果より、試作03の条件で紡績糸を作製し、サブテーマ2、サブテーマ4へのサンプル供給を行なった。サブテーマ2、サブテーマ4では、試作03を用いて、中間基材や一方向材が試作できたため、熱可塑性繊維とリサイクル炭素繊維の混紡については、成形原料として有効であることが分かった。紡績による加工のみで利用の可能性が示されたため、熱可塑性繊維によるカバリング糸等の加工糸の検討は行わず、紡績糸の高品質化に重点を置き開発を進めることとした。また、製布（織物、編物）については、試作糸の繊度が大きいため通常の自社製布工程での試作は困難であった。そのため、サブテーマ2、サブテーマ4と連携して布帛の製作に取り組むこととした。

5. 研究目標の達成状況

当初コロナ感染症の影響もあり、導入設備に関する調査、調整に難航し、設備導入に遅れが出たがその後は効率的に試作開発を進め、上記「2. 研究目標」に掲げた当該サブテーマの目標に対して、計画通り達成できた。

令和2年度	【目標】短繊維化されたリサイクル炭素繊維を紡績技術により連続繊維化する。カード工程のトライを行い、粗糸、精紡等の後工程の準備を行う。 PP,Ny等の熱可塑性樹脂が炭素繊維と混紡可能か検討する。 【達成状況】直線的な形状であるReCFと熱可塑樹脂であるPPを原料として連続繊維化を試みた。その結果、カード機での種々条件を検討して、ReCFとPPを混合したスライバーの作製条件を見出し、連続的なスライバーを作製できた。
令和3年度	【目標】炭素繊維紡績糸を用いて製布（織物、編物）する。糸、組織、密度等の諸条件を検討する。一方で、カバリング糸等,加工糸も試作する。 【達成状況】ReCFとPPを紡績技術により連続繊維化して紡績糸を試作した。ReCFとPPの調合方法や作業手順を検討することによって、連続繊維糸の試作品が完成できた。作製した連続繊維は繊度が太いため自社の製布設備では布帛の試作が困難であり、他のサブテーマと連携して布帛の試作を進めた。布帛に適した糸の供給を行ない、成形原料として有効であることを確認することができた。

令和4年度	【目標】中間基材原料（糸、布）を試作し、川下工程（プリプレグ成形、組物試作）へ提供する。 中間基材に適した糸、布等の部材を試作開発する。 【達成状況】他のサブテーマへReCF紡績糸を供給するために紡績糸の高品質化を図った。開繊工程の改善により品質が向上でき、試作糸を川下工程へ供給できた。
-------	--

6. 引用文献

特に記載すべき事項はない。

Ⅱ－２ リサイクル炭素繊維を原料としたプリプレグ成形技術の開発

国立大学法人東海国立大学機構岐阜大学

Guコンポジット研究センター センター長

仲井 朝美

Guコンポジット研究センター 特任教授

名合 聡

【要旨】

サブテーマ2では、サブテーマ1で作製した紡績糸を成形利用できるように中間基材化することを目的とする。ReCFを紡績するための繊維表面処理条件等を検討することを目的とし、リサイクル繊維を用いた界面評価および表面処理剤の開発をおこなった。次に、ReCF/樹脂混紡糸からなる強化形態の作製および成形を可能とした。作製した強化形態に対して、樹脂の繊維束への含浸性および力学的特性の観点から最適成形条件を明らかにした。複雑形状を実現する強化形態作製技術として、Tilored Fiber Placement（以下、TFP）技術を採用した。ReCF/樹脂混紡糸を使用して、連続繊維と同様にTFP技術を適用することが可能となり、曲率を有する繊維配向や局所的に厚さが異なる強化形態の作製が可能となった。さらに、たて編物および織物技術に展開可能であることも確認した。パイプに関しては、フィラメントワインディング成形技術を採用した。ReCF/樹脂混紡糸を用いるのではなく、その前駆体であるReCF/樹脂スライバーを用いてテープを作製することでパイプの成形が可能となった。

1. 研究開発目的

本研究では、CFRPのリサイクルサプライチェーンのうち、技術開発が進んでいる「廃CFRPから分離、回収」以降の「リサイクル炭素繊維の多用途利用に向けた技術開発」を行う。すなわち、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（糸）として原料化、さらに糸から織物、編物、組物として部材化し、自動車やスポーツ用具用途向けプリプレグ加工品、今後の自動車用途が見込まれるCFRTPの中間基材等を作製する。さらに、これを用いたリサイクル炭素繊維成形品を試作・提案し、炭素繊維の持続可能な生産消費形態の維持、循環型経済（Circular Economy）の確立への貢献を目指す。

サブテーマ2では、サブテーマ1で作製した紡績糸を成形利用できるように中間基材化することを目的とする。

2. 研究目標

サブテーマ2	リサイクル炭素繊維を原料としたプリプレグ成形技術の開発
実施機関	岐阜大学
目標	（１）ReCF／熱可塑性樹脂界面特性の確保：表面処理、成形条件の最適化 （２）ReCF/樹脂混紡糸を用いたプリプレグの成形技術の構築 （３）ReCF/樹脂混紡糸を用いた組物(パイプ)の製造技術の開発
令和2年度	リサイクル炭素繊維を紡績するための繊維表面処理条件等を検討する。 リサイクル炭素繊維布帛をプリプレグ成形するための種々の条件（界面特性、含浸性）を検討する。
令和3年度	リサイクル炭素繊維紡績糸からなる布帛と組み合わせる樹脂材料、含浸方法等の条件を最適化する。 紡績糸布帛を用いたプリプレグを試作する。
令和4年度	リサイクル炭素繊維紡績糸から、組み技術によるパイプ、編み技術による曲面形状等、複雑形状の成形が可能となる部材を試作開発する。

3. 研究開発内容

(1) ReCF／熱可塑性樹脂界面特性の確保：表面処理、成形条件の最適化

ReCFを紡績するための繊維表面処理条件等を検討することを目的とし、ReCFを用いた界面評価および表面処理剤の開発をおこなった。さらに、ReCF布帛をプリプレグ成形するための種々の条件（界面特性、含浸性）を検討することを目的とし、テキスタイル加工性と含浸性評価手法の確立をおこなった。

(2) ReCF/樹脂混紡糸を用いたプリプレグの成形技術の構築

ReCF紡績糸からなる布帛と組み合わせる樹脂材料、含浸方法等の条件を最適化することを目的とし、一方向材料（UD材）を成形し、断面観察による成形性評価、引張試験による力学的特性評価をおこなう。

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）を混合した紡績糸（サブテーマ1において開発）を使用した。UD材成形のためのプリフォームをTFP 技術で作製した。図-2.1に作製したプリフォームの写真を示す。紡績糸を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本の紡績糸を引き揃えたプリフォームとした。紡績糸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。図-2.1に示すように、樹脂フィルムが表面になるように2層対称積層した。これを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-2.1に示す。成形圧力、成形時間、成形温度をそれぞれ1MPa, 5min, 200℃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。

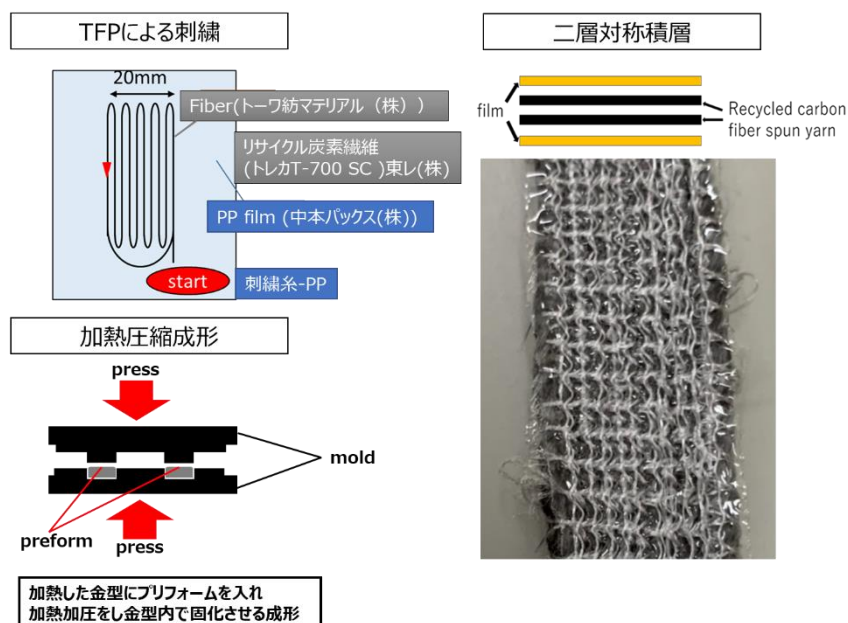


図-2.1 ReCF/樹脂混紡糸を用いたプリプレグの成形

表-2.1 ReCF/樹脂混紡糸を用いたプリプレグの成形条件

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

(3) ReCF/樹脂混紡糸を用いた組物(パイプ)の製造技術の開発

リサイクル炭素繊維紡績糸から、組み技術によるパイプ、編み技術による曲面形状等、複雑形状の成形が可能となる部材を試作開発する。複雑形状を実現する強化形態作製技術として、TFP技術を採用した。パイプ形状を実現する成形技術として、フィラメントワインディング（以下、FW）成形技術を採用した。

図-2.2に、TFP技術の模式図を示す。TFP技術は刺繍技術に基づいており、強化繊維束を任意の方向に配置できるため、強化繊維の異方性の観点から最大限繊維の能力を発揮することができる。また、TFPは強化繊維束を適切な箇所に必要量配向、配置できるため、トポロジー最適化が実現でき、材料の無駄をなくすることができる。

図-2.3に加熱単給糸フィラメントワインディング成形（以下、加熱FW成形）装置の模式図を示す。加熱FW成形は回転機構と移動機構から構成される。ReCF/樹脂混紡糸は設置されているボビンからノズルガイドを通して、マンドレル上に供給される。マンドレルを一定の速度で回転させ、トラバース装置によりReCF/樹脂混紡糸がマンドレルと平行に一定速度で左右に往復し、マンドレルにReCF/樹脂混紡糸を巻き付けることでパイプ形状を形成する。マンドレルの回転速度とトラバース装置の移動速度の相対比によって、マンドレル長手方向に対するPCYの配向角度を設定することができる。加熱ブレイディング成形と同様にマンドレル内部には、内部加熱装置が設置されており、パイプ内径側から加熱することができる。

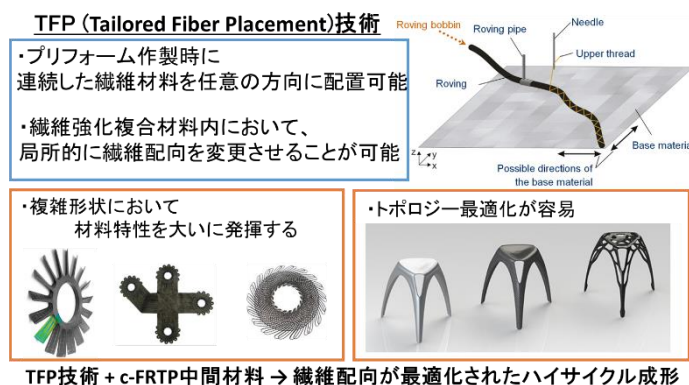


図-2.2 TFP (Tailored Fiber Placement)技術

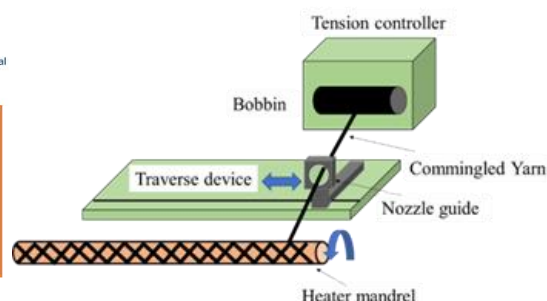


図-2.3 加熱FW成形装置

4. 結果及び考察

(1) ReCF/熱可塑性樹脂界面特性の確保：表面処理、成形条件の最適化

リサイクル炭素繊維を紡績するための繊維表面処理条件等を検討することを目的とし、リサイクル繊維を用いた界面評価および表面処理剤の開発をおこなった。リサイクル繊維を用いた界面評価手法

として、マイクロドロプレット試験を採用した。開発した表面処理剤を用いて、炭素繊維/PP樹脂および炭素繊維/低吸水性ナイロン樹脂（Lexter8500）の界面せん断強度を評価した結果を図-2.4に示す。低吸水性ナイロン樹脂に対しては、表面処理により界面せん断強度は低下したが、本研究で対象とするPP樹脂に対しては、界面せん断強度の向上が確認され、約2倍の値が得られた。

さらに、ReCF布帛をプリプレグ成形するための種々の条件（界面特性、含浸性）を検討することを目的とし、テキスタイル加工性と含浸性評価手法の確立をおこなった。一般的に、テキスタイル加工性と含浸性は相反するものであると言われている。強化繊維と樹脂繊維を混織した混織糸は、テキスタイル加工性に優れるが、樹脂繊維の熱収縮による繊維束配向の乱れや強化繊維束への含浸に時間を要することが問題とされている。一方で、樹脂の含浸が完了した含浸テープは、含浸特性が極めて高いが、テキスタイル加工性に乏しいという問題点を有する。本研究では、ReCF布帛をプリプレグ成形するために、テキスタイル加工性と含浸性を両立する必要がある。【サブテーマ1】においてリサイクル炭素繊維紡績糸の開発を実施している間に、連続繊維からなる混織糸およびPCY（Partially-impregnated Commingled Yarn）を用いて、テキスタイル加工性の評価手法および含浸性の評価手法を確立した。テキスタイル加工性については、図-2.5に示すように、絞り治具によって生じる材料の変形抵抗を抵抗荷重として測定し評価する、変形抵抗試験が有効であることを確認した。また、含浸性については、光学顕微鏡を用いた断面観察より定量的に評価することが可能であることを確認した。一方で、含浸が完了した際に、繊維の分散状態が異なることが明らかとなったため、繊維の分散性評価もおこなう必要がある可能性が示唆された（図-2.6）。

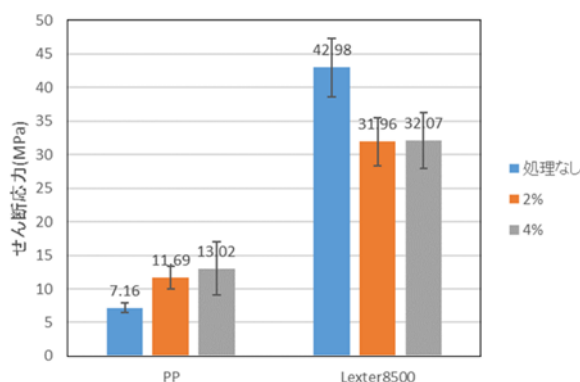


図-2.4 界面せん断強度

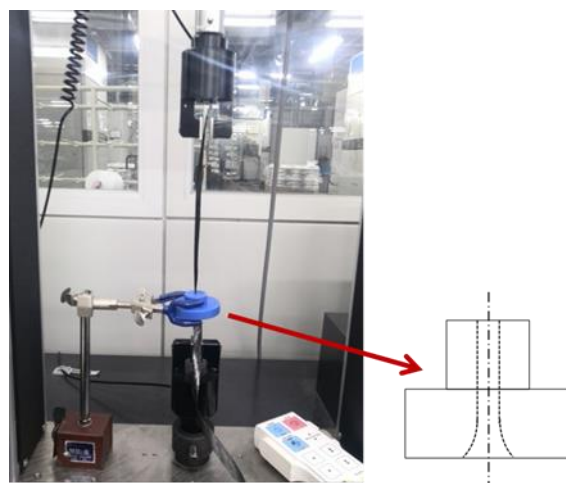


図-2.5 テキスタイル加工性の評価手法

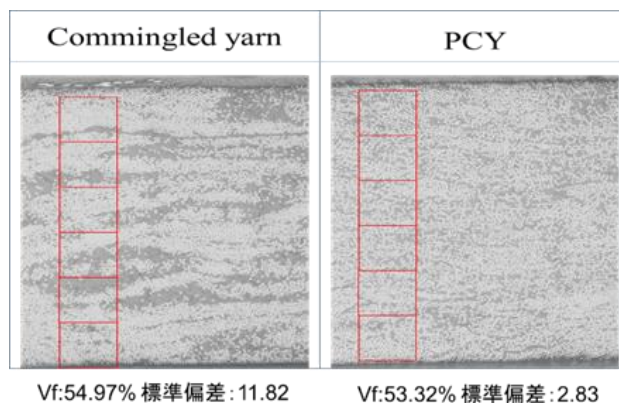


図-2.6 繊維の分散性評価手法

(2) ReCF/樹脂混紡糸を用いたプリプレグの成形技術の構築

図-2.7に未含浸率と成形温度の関係を示す。成形温度の増加により未含浸率が200℃までは一定値を示し、以降は増加していることがわかる。190℃から200℃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℃で樹脂が含浸に必要な溶融粘度に達しているといえる。210℃では樹脂の熱分解によるガス発生によりボイドが成形時に発生したものと考えられる。

図-2.8に未含浸率と成形時間の関係を示す。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ボイドが発生したためと考えられる。

図-2.9に未含浸率と成形圧力の関係を示す。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、ボ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。この結果をオレンジ色で示す。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ボイド量が小さくなっていることがわかる。

以上の結果より、含浸特性に関しては成形温度200℃、成形時間5min、成形圧力1MPaが最適といえる。

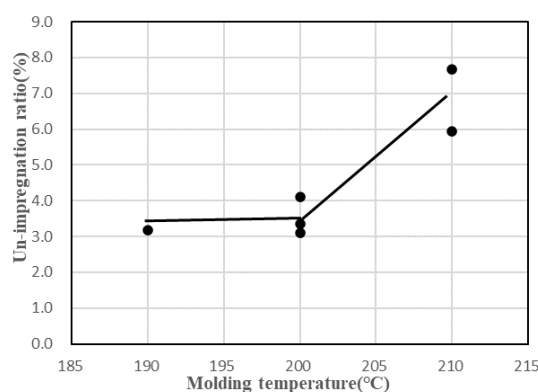


図-2.7 未含浸率と成形温度の関係

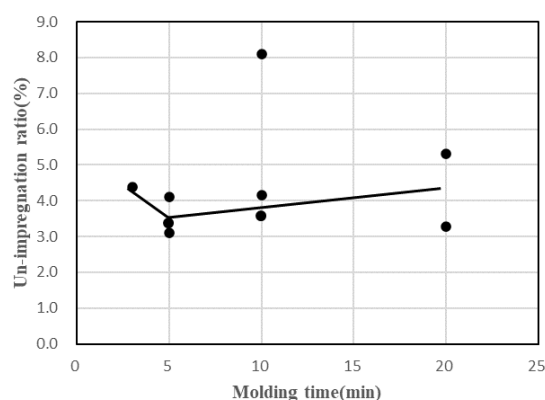


図-2.8 未含浸率と成形時間の関係

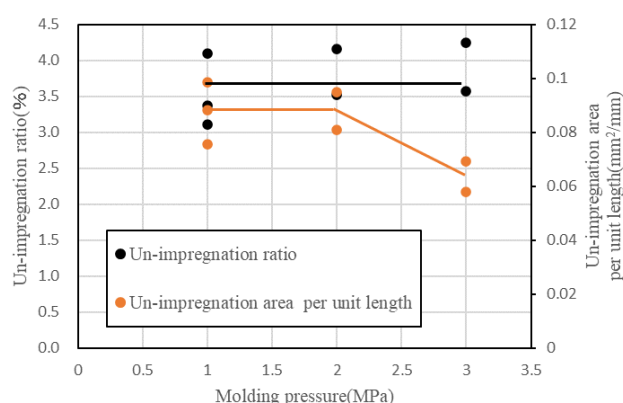


図-2.9 未含浸率と成形圧力の関係

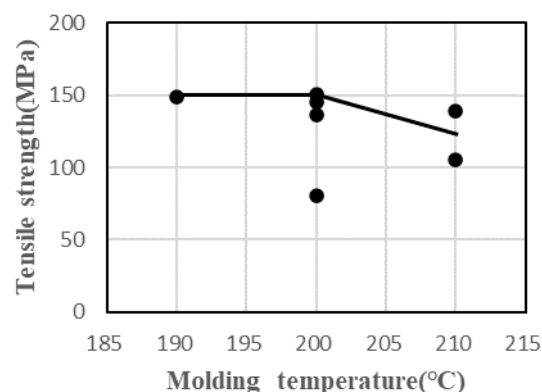


図-2.10 引張強度と成形温度の関係

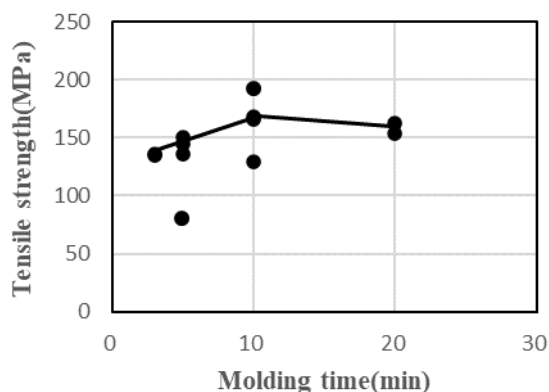


図-2.11 引張強度と成形時間の関係

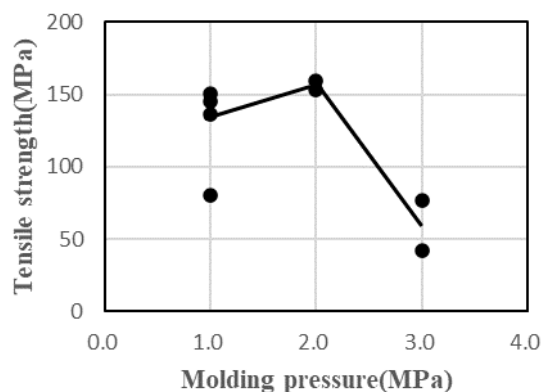


図-2.12 引張強度と成形圧力の関係

引張強度と成形温度の関係を図-2.10に示す。引張強度は190℃～200℃で一定値を示し、200℃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と考えられる。よって最適温度条件は190℃、もしくは200℃であるといえる。

引張強度と成形時間の関係を図-2.11に示す。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。

引張強度と成形圧力の関係を図-2.12に示す。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と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。

(3) ReCF/樹脂混紡糸を用いた組物（パイプ）の製造技術の開発

複雑形状を実現する強化形態作製技術として、TFP技術を採用した。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）を混合した紡績糸（サブテーマ1において開発）を使用した。紡績糸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。作製した複雑形状を有する強化形態の一例を図-2.13に示す。図に示すように、ReCF/樹脂混紡糸を使用して、連続繊維と同様にTFP技術を適用することが可能となり、曲率を有する繊維配向や局所的に厚さが異なる強化形態の作製が可能となった。また、TFPは強化繊維束を適切な箇所に必要量配向、配置できるため、トポロジー最適化が実現でき、材料の無駄をなくすることができるため、リサイクル炭素繊維を利用した最適な強化形態作製技術であるといえる。

さらに、複雑形状を実現する強化形態作製技術として、たて編物および織物技術に展開可能であることも確認した（図-2.14）。



図-2.13 ReCF/樹脂混紡糸のTFP技術への適用

項目		①-1		①-2	
たて糸	たて密度	CF紡績糸	5.00 本/25mm	CF紡績糸	5.00 本/25mm
よこ糸	よこ密度	CF紡績糸	6.25 本/25mm	CF紡績糸	6.25 本/25mm
ステッチ組織		トリコット		コンビネーション	
写真		表面		表面	
		裏面		裏面	
トリコット		コンビネーション		コンビネーション	
コンビネーション		コンビネーション		コンビネーション	
フックリンプファブリック（多軸挿入たて編物）		フックリンプファブリック（多軸挿入たて編物）		フックリンプファブリック（多軸挿入たて編物）	

図-2.14 ReCF/樹脂混紡糸のたて編物技術への適用

5. 研究目標の達成状況

上記「2. 研究目標」に掲げた当該サブテーマの目標に対して、以下の通り、すべて達成した。

令和2年度	【目標】リサイクル炭素繊維を紡績するための繊維表面処理条件等を検討する。リサイクル炭素繊維布帛をプリプレグ成形するための種々の条件（界面特性、含浸性）を検討する。 【達成状況】まず、界面評価手法、含浸性評価手法を確立した。リサイクル炭素繊維を紡績するための繊維表面処理条件を明らかとし、本研究で対象とするPP樹脂に対しては、界面せん断強度の向上が確認され、約2倍の値が得られた。ReCF/樹脂混紡糸を用いた複合材料の最適成形条件を明らかにした。
令和3年度	【目標】リサイクル炭素繊維紡績糸からなる布帛と組み合わせる樹脂材料、含浸方法等の条件を最適化する。紡績糸布帛を用いたプリプレグを試作する。 【達成状況】TFP技術を用いた強化形態の作製および成形を可能とした。ReCF/樹脂混紡糸を用いて作製した強化形態に対して、含浸性および力学的特性の観点から最適成形条件を明らかにした。
令和4年度	【目標】リサイクル炭素繊維紡績糸から、組み技術によるパイプ、編み技術による曲面形状等、複雑形状の成形が可能となる部材を試作開発する。 【達成状況】複雑形状を実現する強化形態作製技術として、TFP技術を採用し、ReCF/樹脂混紡糸を使用して、連続繊維と同様にTFP技術を適用することが可能となり、曲率を有する繊維配向や局所的に厚さが異なる強化形態の作製が可能となった。たて編物および織物技術に展開可能であることも確認した。

6. 引用文献

特に記載すべき事項はない。

Ⅱ－３ 【サブテーマ３】リサイクル炭素繊維基材の材料特性解析

<サブテーマリーダー>

三重大大学

教育学部 教授

中西 康雅

〔要旨〕

リサイクル炭素繊維紡績糸を使用した炭素繊維強化複合材料を対象としたモデル化手法を開発することを目標とした。リサイクル炭素繊維紡績糸の利用にあたっては、繊維長や繊維の幾何学的構造といった繊維の不均質性を考慮する必要がある。そこで、有限要素法に基づいて繊維強化構造をモデル化し、材料特性を評価する手法を構築した。この提案手法の妥当性を検証するため、撚糸の引張試験から求めた撚り角と弾性率の関係を比較したところ、最大誤差5%と十分な計算精度であることを示した。また、テキスタイル複合材料の数値シミュレーション技術も開発し、撚り角が平織物複合材料の弾性特性に及ぼす影響についても調査した。

１．研究開発目的

炭素繊維強化複合材料は、材料の種類、含有率、繊維配向角など考慮すべき材料レベルでの設計変数が多く、新規材料開発の課題となることも多い。また、近年の加工技術の向上によって複雑な形状の成型も可能となっていることから、有限要素法に代表される数値シミュレーション技術を援用した材料開発・材料設計が主体となっている。しかしながら、本研究で開発するリサイクル炭素繊維紡績糸を使用した炭素繊維強化複合材料（以下、**ReCFRP**）については、数値シミュレーションモデルに関する研究はほとんど行われておらず、材料特性評価の推定やマイクロレベルでの力学的特性評価において課題となる。

そこで、リサイクル炭素繊維紡績糸を使用した炭素繊維強化複合材料を対象としたモデル化手法を開発することを目標とした。具体的には、リサイクル炭素繊維紡績糸の撚り構造や繊維長などを考慮することで、**ReCFRP**の弾性特性を評価するための数値シミュレーションモデルを開発する。これにより、**ReCFRP**の微視的な応力分布や振動特性の評価が可能となる。また、これを基盤技術とすることで、**ReCF**を布帛としたテキスタイル複合材料などの数値シミュレーションも可能となり、材料開発の指針や開発した材料の特性評価の分析等にフィードバックすることを目的としている。

２．研究目標

サブテーマ３	リサイクル炭素繊維基材の材料特性解析
実施機関	三重大大学
目標	炭素繊維連続糸、それを用いた成形品の特性評価シミュレーション技術の開発 リサイクル炭素繊維紡績糸を用いた成形品の特性評価シミュレーション リサイクル炭素繊維を原料とした連続繊維強化複合部材のシミュレーション技術の確立
令和２年度	（研究内容） 市販炭素繊維紡績糸を用いた熱可塑性成形品を対象に、静的な力学的特性等をシミュレーションする方法を静的な物性評価と共に検討する。
令和３年度	（研究内容） 前年度に開発した技術をリサイクル炭素繊維紡績糸及びそれを用いた熱可塑性成形品に適用し、シミュレーションによる評価を行う。そして、プリプレグ製造方法へフィードバックする。

令和4年度	(研究内容) 連続繊維強化複合部材の特徴（衝撃吸収性能等）をシミュレーションと実験により解析して、製造にフィードバックし、市場に受け入れられるプリプレグおよびプレス品の提案につなげる。
-------	--

3. 研究開発内容

(1) 炭素繊維連続繊維糸のシミュレーション技術の開発

ReCF紡績糸は短繊維を紡績した糸であるが、ReCF紡績糸を対象にした研究はほとんど行われていない。一方、撚糸や紡績糸を対象にその弾性率を推定する手法に関する研究はあるが、その多くは糸の軸方向の物性評価に限られる。また、炭素繊維強化複合材料は繊維配向角を変化させた積層材料や、複雑な強化構造を有するテキスタイル複合材料として利用されることを考慮すれば、三次元的な異方性を考慮した弾性定数を算出する必要がある。

そこで、連続繊維糸（フィラメント糸）の弾性定数行列を糸表面の配向角度 θ （図-3.1）と撚糸構造の撚り角度 ϕ をもとに座標変換し、紡績糸の異方性を考慮した弾性定数を算出した。例えば、糸表面の軸方向に対する繊維配向角 θ をもとに弾性定数行列の成分を求めると式(1)のように求めることができ、これらをもとに弾性定数行列は式(2)のようになる。さらに、撚糸の繊維構造と樹脂との含有率等との関係から、三次元直交異方性材料としてCFRPの物性値を算出する手法を構築した。これを用いることで、使用する繊維・樹脂の弾性率と糸径、糸表面の配向角度、そして繊維含有率の情報をもとに、CFRPの弾性定数行列を算出することが可能である。

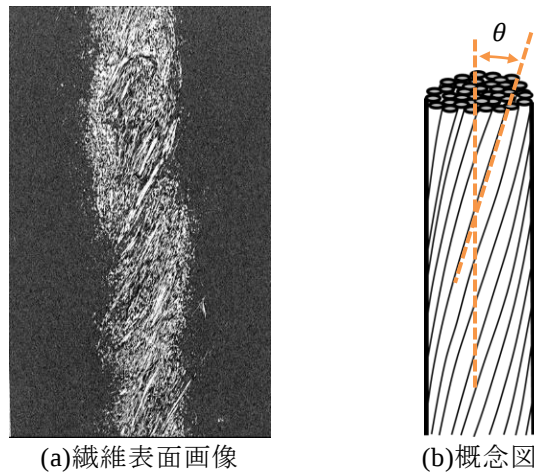


図-3.1 紡績糸表面における配向角

$$S_{ij} = \frac{1}{\pi R^2} \int S_{ij}^f(\theta) 2\pi r dr \quad (1)$$

$$S_{ij}^y = \begin{pmatrix} S_{11} & S_{12} & S_{13} & 0 & 0 & 0 \\ S_{21} & S_{22} & S_{23} & 0 & 0 & 0 \\ S_{31} & S_{32} & S_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & S_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & S_{55} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & S_{66} \end{pmatrix} \quad (2)$$

(2) リサイクル炭素繊維紡績糸のシミュレーション技術の開発（微視的構造モデルの開発）

(1)で述べた通り、ReCFは不連続な短繊維となるため、紡績糸として利用することとなる。そのため、ReCF紡績糸の弾性特性を評価する数値シミュレーション手法を構築する必要がある。

紡績糸を強化材として複合材料を製造する場合、繊維の強化構造が力学的特性の大きな影響を及ぼす。そこでX線CTにより炭素繊維紡績糸（図-3.2(a)）の内部構造を含めた三次元画像を撮影し、繊維の幾何学的構造を同定した。その結果を図-3.2(b)、(c)に示す。側面及び断面画像のサンプリングは0.05mm間隔である。単糸であれば、側面画像から単繊維の角度を算出することで撚り角が求められるが、試料は双糸のため、側面画像からの算出は困難であり、繊維軸方向の複数の断面画像から繊維束の回転を求め、撚り角を算出した。その結果、撚り角は $81\pm5^\circ$ で、撚り数にすると100.8T/mであった。このような画像分析結果に基づいて、紡績糸表面の撚り角から繊維の内部構造を推定し、繊維強化構造を考慮した微視的構造モデルの基礎的情報とした。

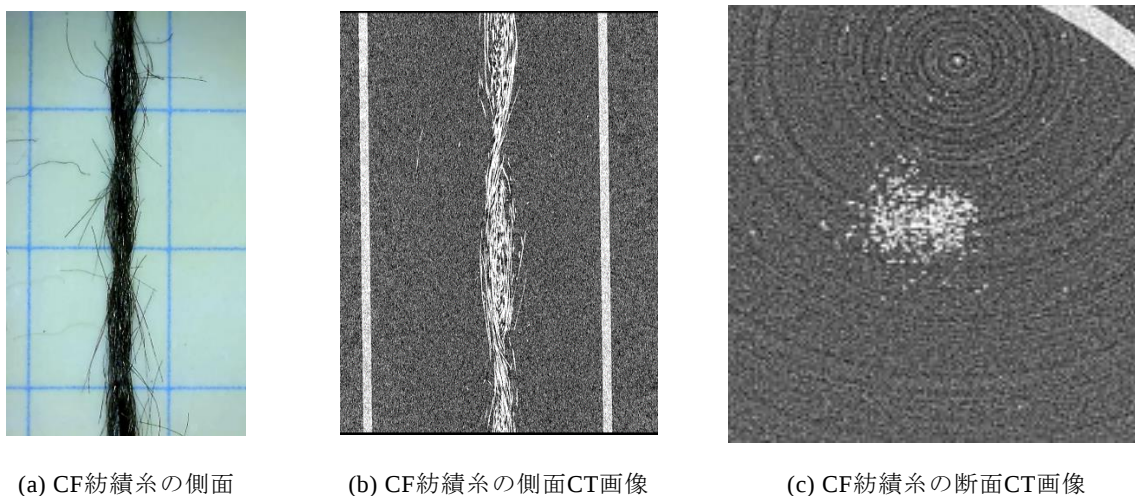


図-3.2 リサイクル炭素繊維紡績糸の観察画像

次に、撚糸や紡績糸を対象にその弾性率を推定する手法に関する研究はあるが、その多くは糸の軸方向の物性評価に限られる。また、繊維-樹脂の微視的構造を均質化された直交異方性体モデルとして表現されることが多く、繊維-樹脂それぞれに生じる応力を評価することができないという課題がある。しかしながら、本研究で取り組む紡績糸を強化材としたFRP内部の応力状態に関する研究はほとんど行われておらず、高強度・高弾性材料開発の課題となる。

そこで本研究では、図-3.3に示すように紡績糸の繊維部と母材の樹脂部をそれぞれ独立してモデル化することで、繊維-樹脂それぞれの応力状態を算出できる手法を開発することとした。

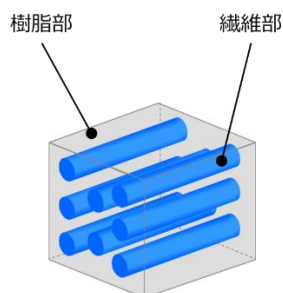


図-3.3 シミュレーションモデルの概念図

まず、糸内部の繊維構造を、画像分析結果をもとに算出し、その幾何学的構造を有限要素法によりモデル化した。なお、本研究では繊維長を 7mm、繊維径は 7 μ m の不連続繊維の撚り構造をモデル化した。次に樹脂部をモデル化し、式(3)に示す通りそれぞれの剛性行列を加算することによって、材料全体の剛性行列を算出した。これに境界条件（荷重条件や拘束条件等）を付与し、有限要素解析を実施し、繊維や樹脂部に生じる応力分布を評価した。

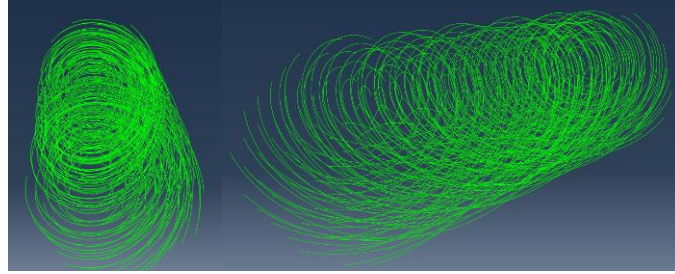


図-3.4 繊維強化構造のモデル例

$$K = \int_{\Omega_{R \setminus F}} \mathbf{B}_R^T \mathbf{D}_R \mathbf{B}_R d\Omega_{R \setminus F} + \int_{\Omega_F} \mathbf{B}_F^T \mathbf{D}_F \mathbf{B}_F d\Omega_F \quad (3)$$

(3) ReCFRPの振動減衰特性の評価

複合材料構造物の第 n 次モードの減衰比 ζ_n は、振動する構造物全体の1周期の消散ひずみエネルギー ΔU_n と、そのときの最大ひずみエネルギー U_n より次式で定義される。

$$\zeta_n = \frac{\Delta U_n}{U_n} \quad (4)$$

ここで、紡績糸で強化された繊維強化複合材料は紡績糸部と樹脂から構成される。したがって、織物複合材料の最大ひずみエネルギー U_n は次式で定義される。

$$U_n = \int_{V^F} \boldsymbol{\epsilon}_n^F{}^T \mathbf{D}^F \boldsymbol{\epsilon}_n^F dV + \int_{V^R} \boldsymbol{\epsilon}_n^R{}^T \mathbf{D}^R \boldsymbol{\epsilon}_n^R dV \quad (5)$$

ここで、 V^F 、 V^R はそれぞれ紡績糸部と樹脂部の体積、 $\boldsymbol{\epsilon}_n^F$ 、 $\boldsymbol{\epsilon}_n^R$ はそれぞれ紡績糸部、樹脂部のひずみベクトル、 $\mathbf{D}^F$ 、 $\mathbf{D}^R$ は紡績糸部と樹脂部の応力-ひずみ関係マトリックスを表す。

また消散ひずみエネルギー ΔU_n は次式のようになる。

$$\Delta U_n = \int_{V^F} \boldsymbol{\epsilon}_n^F{}^T \boldsymbol{\psi}^F \mathbf{D}^F \boldsymbol{\epsilon}_n^F dV + \int_{V^R} \boldsymbol{\epsilon}_n^R{}^T \boldsymbol{\psi}^R \mathbf{D}^R \boldsymbol{\epsilon}_n^R dV \quad (6)$$

ただし $\boldsymbol{\psi}^F$ 、 $\boldsymbol{\psi}^R$ はそれぞれ材料座標系における紡績糸部と樹脂部の減衰能マトリックスである。なお、紡績糸部は直交異方性体、樹脂部は等方性体としてモデル化した。

したがって、式(6)で算出した振動する構造物全体の1周期の消散ひずみエネルギー ΔU_n と、式(5)で求めた最大ひずみエネルギー U_n より、式(4)に基づいて減衰比を算出することができる。

次に、振動減衰測定の方法について説明する。本研究では、中央支持定常加振法により振動減衰特性として1次固有振動時の減衰比を計測した。試験装置の接続図を図-3.5に示す。正弦波掃引加振を行い、振動状態の試験片の加速度と力をインピーダンスヘッドで計測し、周波数分析した。減衰比は周波数応答関数から半値幅法により求めた。

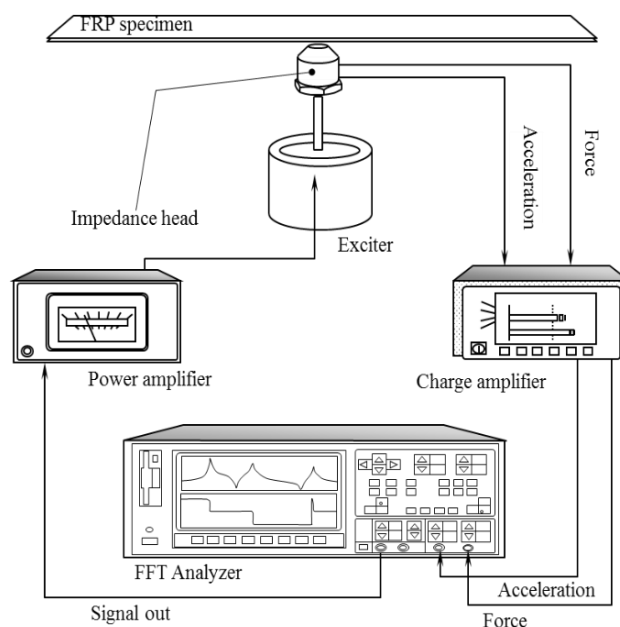


図-3.5 試験装置接続図

(4) ReCFを強化材としたテキスタイル複合材料の構造解析

テキスタイルを強化材とした繊維強化複合材料は、従来の一方向繊維強化材と比較して横方向強度や耐衝撃性に優れるといった利点を有しており、構造部材などにも使用されている。そこで、リサイクル炭素繊維紡績糸をテキスタイル構造としたReCFRPの有限要素解析を行うシステムを構築した。ここでは、紡績糸の弾性率や繊維束の形状、織り組織等を入力して有限要素モデルを生成し、有限要素解析を実施する統合システムとし、応力解析、振動解析を実施できるように構築した。図-3.6に綾織の応力解析の事例を示す。

この解析システムを用いた紡績糸によるテキスタイル複合材料のモデル化について検討するため、炭素繊維紡績糸を強化材とした平織CF/PP材を対象に解析を行い、紡績糸の繊維強化構造が弾性特性に及ぼす影響について検討した。

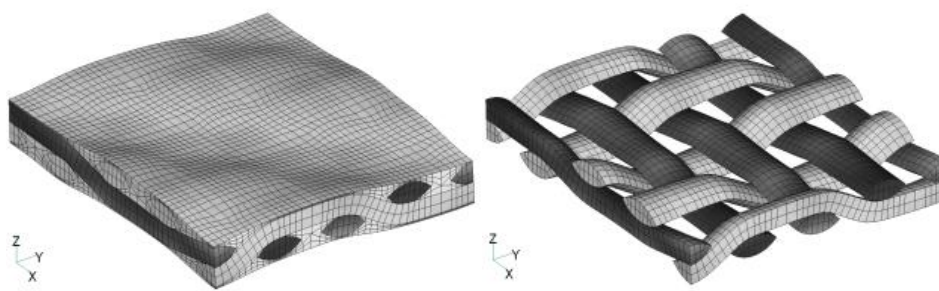


図-3.6 テキスタイル複合材料（綾織）の応力解析事例

4. 結果及び考察

(1) 炭素繊維連続繊維系のシミュレーション技術の開発

開発した数値シミュレーション技術の妥当性を検証するため、実験結果と比較することとした。ここでは文献1)の実験結果をもとに、撚糸の撚り角が糸軸方向の弾性率に及ぼす影響をもとに比較検証した。撚り角 0 度を基準として正規化した正規化弾性率と撚り角の関係を示した結果を図-3.7に示す。その結果、撚糸撚り角による弾性率の変化の挙動を最大誤差5%以下で精度よくモデル化することが明らかになった。このことから、本手法の妥当性を明らかにすることができたと考える。また、この結果から、撚り角が大きくなると弾性率は低下するものの、撚り角が約5度までであれば弾性率の低下は5%程度の低下に抑制できることが分かる。

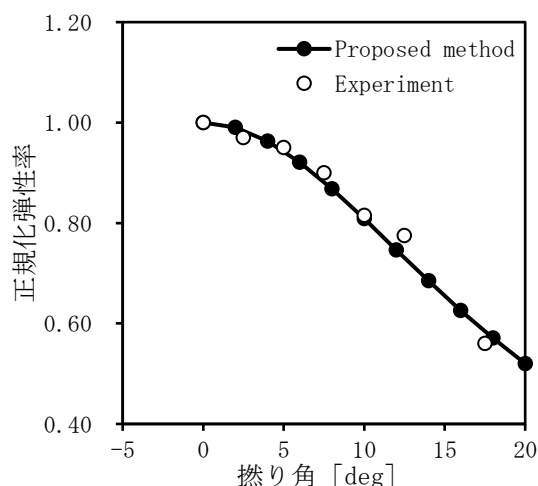


図-3.7 撚糸の撚り角と弾性率の関係

(2) リサイクル炭素繊維紡績系のシミュレーション技術の開発（微視的構造モデルの開発）

まず、提案手法の計算精度を検証するため、複合則によって理論計算可能なUD材の解析を実施し、妥当性を検証した。解析モデルの概念図を図-3.8に示す。なお、荷重は繊維方向に引張荷重を載荷することとした。また、繊維の不連続性の影響を調査するため、モデル全長に連続した繊維を配した場合と、50mmの不連続繊維を配したモデルを作成し比較した。その解析結果を図-3.9に示す。図-3.9より、複合則により求めた理論解と提案手法により得られた弾性率の誤差は最大でも1.5%以下であり、十分な計算精度を実現していることが確認できた。また、連続繊維と不連続繊維の弾性率を比較すると、その差の割合は1%以下と非常に小さいことが分かった。

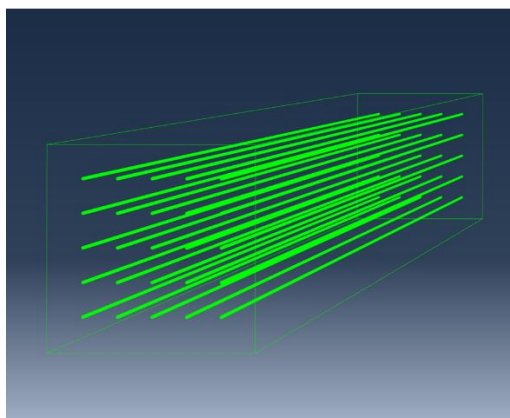


図-3.8 一方向材の解析モデル（連続繊維のみ表示）

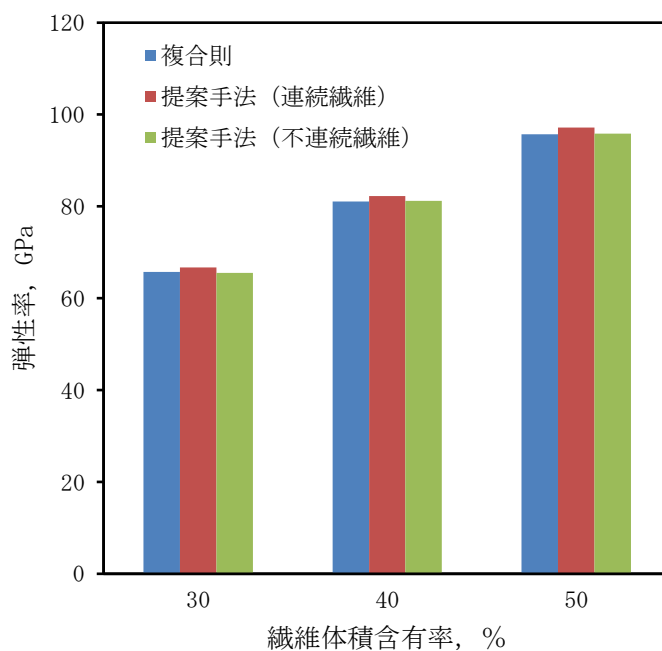


図-3.9 繊維体積含有率と弾性率の関係（一方向CFRP材）

次に、この手法を用いて繊維の撚り角と繊維体積含有率がReCFRPの弾性率に及ぼす影響について調査した。モデル化にあたっては、繊維長は50mmの不連続炭素繊維をモデル化した。また撚り角及び繊維体積含有率が弾性率に及ぼす影響についても調査した。撚り角は0度から50度まで10度刻みとし、繊維体積含有率は40%、50%、60%の場合をモデル化して解析を行った。解析結果をもとに、撚り角と弾性率の関係をまとめた結果を図-3.10に示す。図-3.10より、撚り角が大きくなると弾性率が減少するが、10度程度まではその減少率は小さいことが確認できた。一方、繊維体積含有率については、その含有率が高くなると弾性率が高くなり、その変化は含有率に比例して変化することが分かった。

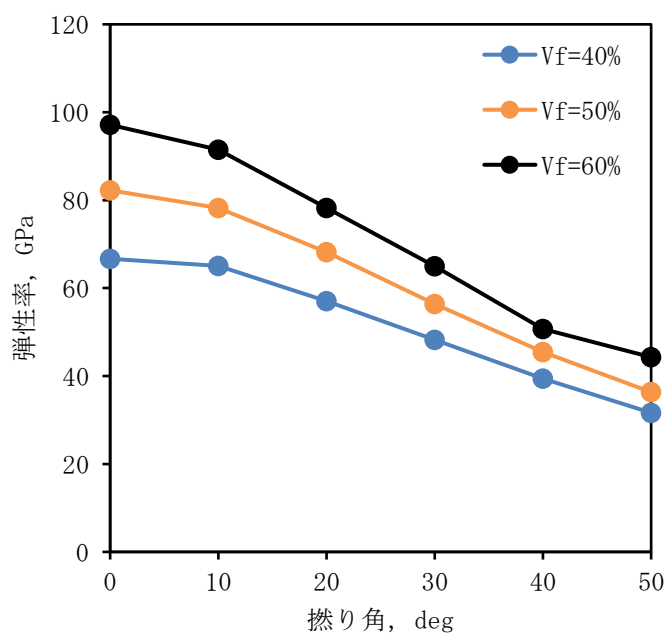


図-3.10 撚り角と弾性率の関係（紡績糸CFRP）

(3) ReCFRPの振動減衰特性の評価

リサイクル炭素繊維紡績糸を用いたReCFRP（CF/PP）積層材の振動減衰特性について調査した。試験片形状は150×15×1mmとし、積層構成は[0/0]材と[0/90]材の2種類とした。この試験片を用いて中央支持定常加振法により1次曲げ振動モードの減衰比を求めた。実験結果を図-3.11、3.12に示す。図-3.12より、0度材と比較して0/90度材の減衰比が高いことから、一般的なUD材の振動減衰特性と同様に0度材と比較して90度材の振動減衰性能が高いためであると考えられる。

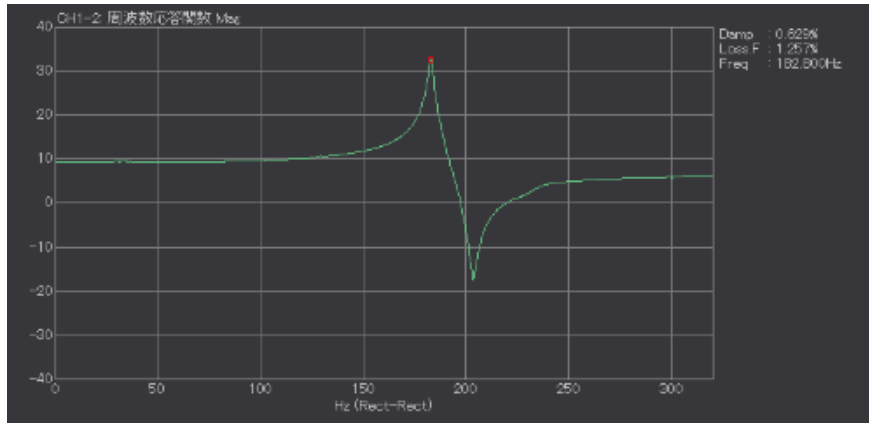


図-3.11 実験により得られた周波数応答関数

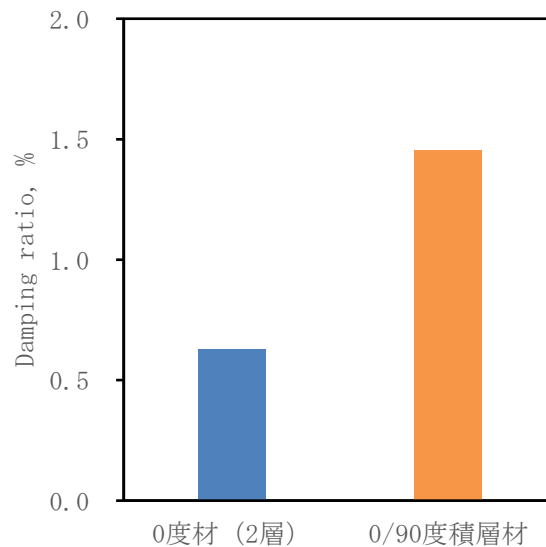


図-3.12 ReCFRP材の積層構成と減衰比の関係

(4) ReCFを強化材としたテキスタイル複合材料の構造解析

紡績糸を強化材としたテキスタイル複合材料のモデル化について検討するため、70mm長のReCFからなる紡績糸を強化材とした平織CF/PP材を対象に解析を行うこととした。まず、紡績糸の弾性率を算出し、樹脂と複合させたReCFRP一方向材としての弾性率を算出した。この弾性率をもとに織物の幾何学的な構造を計算し、図-3.13に示した平織物複合材料の解析モデルを生成し応力解析を実施した。また、ここでは撚りの有無が平織物複合材料の弾性率に及ぼす影響を調査するため、撚りがない場合と撚り角10度の場合の応力解析を行い、等価弾性率を算出し比較した。

荷重方向の応力分布図を図-3.14に、紡績糸の撚りの無い弾性率を基準とした正規化弾性率を比較した図を図-3.14に示す。図-3.14より、荷重方向に配された繊維束の応力が高くなっており、荷重を受け持っていることが分かる。これに対し、荷重方向と直交して配された繊維束の応力は低くなっていないこと

が分かる。次に、図-3.15より撓りの有無がReCFRPの弾性率に及ぼす影響について検討すると、撓り角10度で20%ほど弾性率が低下しており、(2)で検討した一方向ReCFRP材よりも低下率の大きいことが分かった。また、振動減衰解析を行い、1次振動モードの減衰比について調査したところ、撓り角の有無によらず減衰比に変化はほとんどなかった。

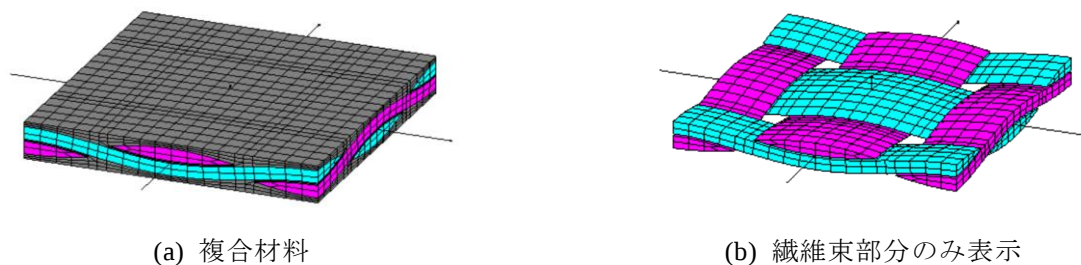


図-3.13 平織物複合材料の解析モデル

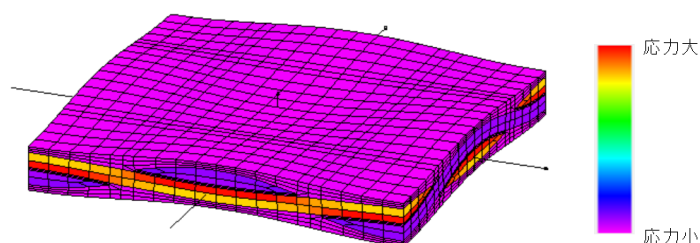


図-3.14 平織物複合材料の応力解析結果

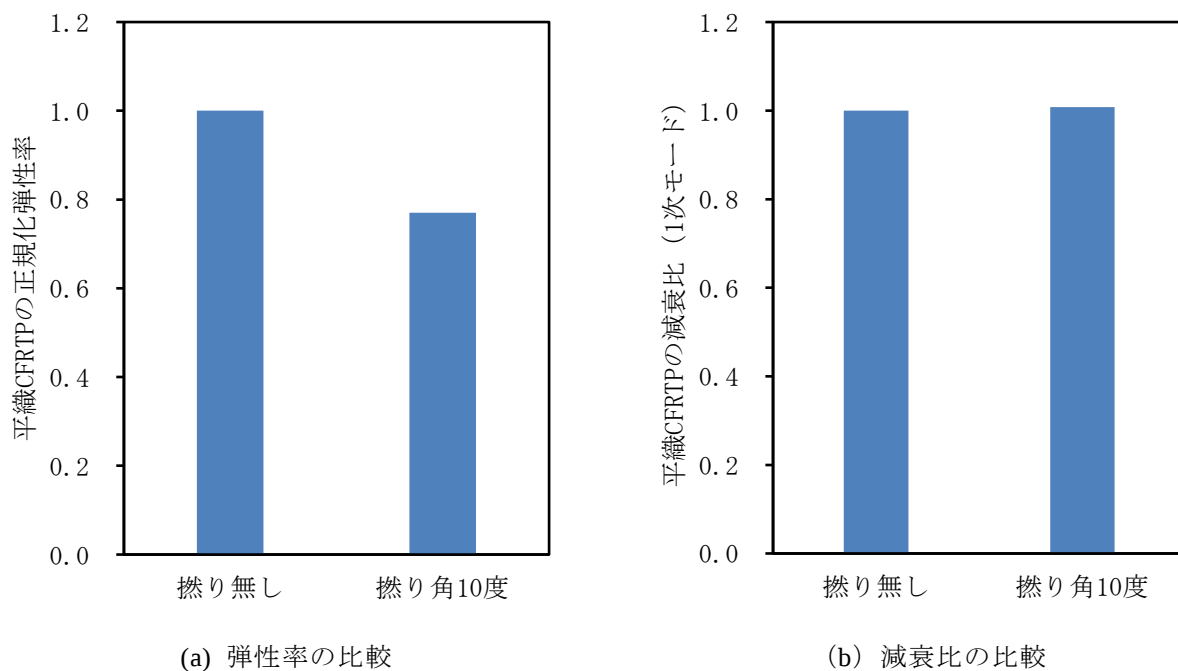


図-3.15 平織物複合材料の撓り角が材料特性に及ぼす影響

5. 研究目標の達成状況

上記「2. 研究目標」に掲げた当該サブテーマの目標に対して、以下の通り、すべて達成した。

令和2年度	【目標】市販炭素繊維紡績糸を用いた熱可塑性成形品を対象に、静的な力学的特性等をシミュレーションする方法を静的な物性評価と共に検討する。 【達成状況】炭素繊維連続糸を用いた成形品の幾何学的な繊維強化構造を有限要素法によりモデル化し、弾性特性を評価する数値シミュレーション技術を開発した。そして、提案手法の妥当性を検証するため、撚糸の引張弾性率を提案手法と実験結果で比較検証した。その結果、撚り角に対する弾性率の変化を表現できていることから、撚糸の弾性率を表現する材料モデルとしての妥当性を明らかにすることができた。
令和3年度	【目標】前年度に開発した技術をリサイクル炭素繊維紡績糸及びそれを用いた熱可塑性成形品に適用し、シミュレーションによる評価を行う。そして、プリプレグ製造方法へフィードバックする。 【達成状況】ReCFRPの材料特性をモデル化するため、リサイクル炭素繊維の不連続性を考慮したモデル化手法を有限要素法により構築した。これにより、リサイクル炭素繊維の繊維長や繊維含有率が弾性特性に及ぼす影響について評価することが可能になった。また、短繊維のリサイクル炭素繊維からなるReCFRPの振動減衰特性を評価する数値シミュレーションモデルを開発した。
令和4年度	【目標】連続繊維強化複合部材の特徴（衝撃吸収性能等）をシミュレーションと実験により解析して、製造にフィードバックし、市場に受け入れられるプリプレグおよびプレス品の提案につなげる。 【達成状況】構造部材として利用された際の特性評価手法を確立するため、リサイクル炭素繊維紡績糸を強化材としたテキスタイル複合材料のモデル化手法を開発した。

6. 引用文献

- 1) Y.Rao & R.J.Farris : "A modeling and experimental study of the influence of twist on the mechanical properties of high-performance fiber yarns", Journal of Applied Polymer Science, Vol.77, pp.1938-1949 (2000)

Ⅱ－４ リサイクル炭素繊維基材の成形性に関する研究

三重県雇用経済部

・ 中小企業・サービス産業振興課

松岡 敏生

・ 工業研究所

プロジェクト研究課

増山 和晃

ものづくり研究課

森澤 諭

ものづくり研究課

市川 幸治

ものづくり研究課

松浦 真也（令和２年度）

プロジェクト研究課

瀬戸 彰文（令和４年度）

【要旨】

炭素繊維強化プラスチックのリサイクルサプライチェーンの構築に貢献する本研究の最終目標に向け、リサイクル炭素繊維を用いた連続繊維（糸）からハイブリッド成形用中間基材の作成を行った。さらに、この中間基材の特徴である伸び性を活かした試作成形品を作製し、提案を行った。

ReCF紡績糸の性能評価を行ったところ、市販のバージンCF（以下、vCF）紡績糸と比較して、強度は約1/4であったものの、破断強度は約2.7倍、伸度については約16倍の結果となり、試作紡績糸の特性を把握できた。

ハイブリッド成形用の中間基材については、ReCF紡績糸を一方向に揃え熱プレスを掛けて一方向材の中間基材を作成し、半球金型治具を用いた賦形性確認試験を行ったところ、試作紡績糸の最適成型温度が165℃であることが判明した。一方、成形時に紡績糸間に空隙が生じたため、これに対処するため0°-90°の2層に重ねて再度熱プレスした中間基材と手織り機を用いた紡績糸織物を作成し、これを熱プレスした中間基材の2点をハイブリッド成型機用試作品の作製に使用した。

リサイクル炭素繊維ハイブリッド成形条件の最適化と成形品の試作提案については、ハイブリッド成型機用金型を設計し、これを用いて賦形性の詳細な確認を実施した。結果、（サブテーマ１）により試作された紡績糸からなる上記2点の中間基材を用いた試作成形品は、比較として使用した市販プリプレグを用いた成形品と同様、賦形性に問題がないことを確認した。またバージンCFペレットのみからなる成形品と、手織り機を用いた紡績糸織物を熱プレスした中間基材とリサイクル炭素繊維入りペレットからなるハイブリッド成型品の圧縮強度はそれぞれ14.8kNと13.2kNとなり、研究計画時の目標であるバージン材の80%以上を上回る89%を達成した。

1. 研究開発目的

本研究では、炭素繊維強化プラスチックのリサイクルサプライチェーンの構築に貢献する本研究の最終目標に向け、サブテーマ４では、（サブテーマ１）により開発されるリサイクル炭素繊維を用いた連続繊維（糸）からハイブリッド成型機用中間基材の作成を行う。さらに、現在市販されている長繊維からなるプリプレグとは異なり、この中間基材の特徴である伸び性を活かした試作成形品を作製し、提案を行うことで、リサイクル炭素繊維の利活用促進を通じたCO2削減への効果を狙うことを目的とした。

2. 研究目標

サブテーマ４	リサイクル炭素繊維基材の成形性に関する研究
実施機関	三重県雇用経済部
目標	リサイクル炭素繊維を用いた連続繊維糸（紡績糸）の性能評価 ハイブリッド成形に適した中間基材の選定 リサイクル炭素繊維ハイブリッド成型条件の最適化と成形品の試作提案

令和2年度	サブテーマ1の試作に供するリサイクル炭素繊維を評価して、試作条件にフィードバックする。 一方で、独自に炭素繊維/樹脂のハイブリッド成形のトライも行う。
令和3年度	試作開発系の物理特性（力学特性、伸長特性等）を評価する。 リサイクル炭素繊維紡績糸を用いたプリプレグをハイブリッド成形する。 成形品の性能と中間基材（糸、布、プリプレグ）製造条件との関係を調べ、明らかにする。
令和4年度	ハイブリッド成形機を用いて、リサイクル炭素繊維紡績糸プリプレグとリサイクル炭素繊維ペレットを用いたハイブリッド成形品を試作する。

3. 研究開発内容

（1）リサイクル炭素繊維（ReCF）とポリプロピレン（PP）からなる紡績糸の評価

（サブテーマ1）で試作したReCFとPPからなる試作紡績糸等の物理特性（力学特性、伸長特性等）を評価した。測定項目は、紡績糸の太さ、炭素繊維重量比、引張試験による破断強度、伸度、強度とした。また、リサイクル炭素繊維原料（単繊維）の表面性状、繊維長も測定した。

（2）試作紡績糸を用いた中間基材の作製と評価

1) 熱プレス中間基材の作成

試作紡績糸を一方方向に引き揃えたUD材の中間基材を作製した。図-4.1のような切り込みが入った金属板治具を用い、図-4.2の手順で作成を行った。この中間基材を適宜積層し強度評価のための試験片とした。積層角度は 0° - 0° または、 0° - 90° のいずれかとした。また、層間剥離による強度不足に対応しつつ、より賦形性の高い中間基材を作成するため、図-4.3のように紡績糸から織物（図-4.4）を作製し、同様に熱プレスを行い、中間基材を得た。

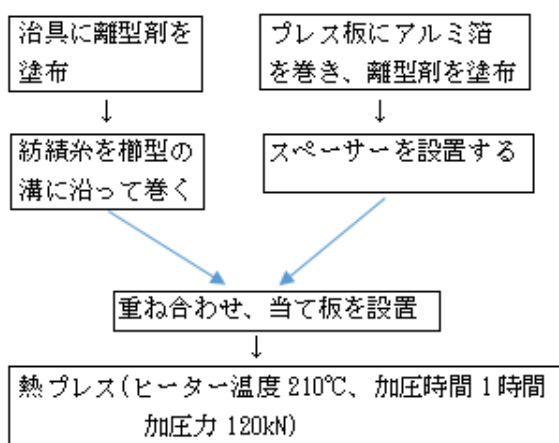


図-4.2 中間基材作成フロー

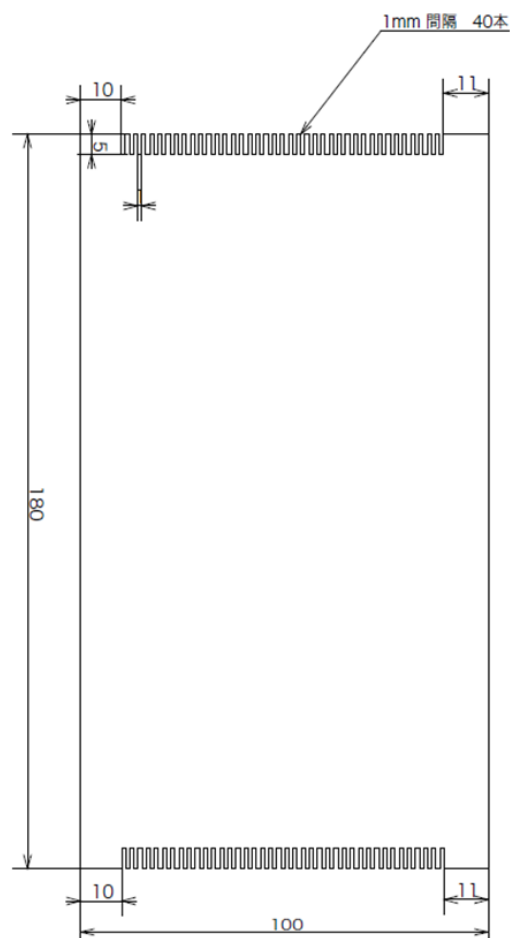


図-4.1 金属治具の概要

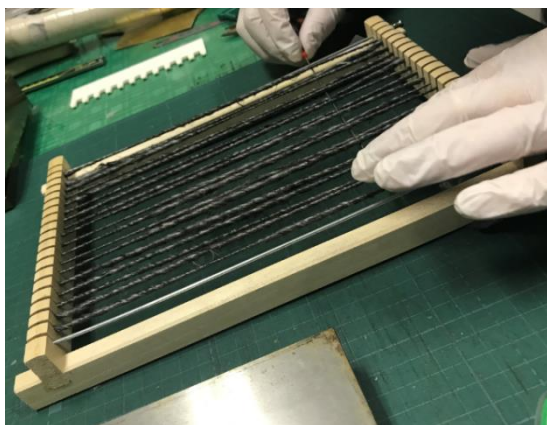


図-4.3 紡績糸からの織物作製



図-4.4 試作紡績糸を用いた織物

2) 熱プレスした中間基材の曲げ特性

中間基材の評価として、曲げ特性をJISK7171:2016「プラスチック曲げ特性の求め方」¹⁾に準じて測定した。試料は、熱プレス中間基材2点（3層、0°-0°-0°、0°-90°-0°）と市販品プリプレグ2点（4層、平織、綾織）の4点として、曲げ強度と曲げ弾性率を測定した。

3) 熱プレスした中間基材の賦形性評価

ハイブリッド成形品の作成条件のうち成型温度について絞り込みを行うため、図-4.5に示す半球状の金型を用い賦形性（素材を削らずに変形させて成形する際の特性）の確認を行った。試料は試作紡績糸による熱プレス中間基材とバージン材の連続炭素繊維にPP樹脂を含浸させたの市販品のプリプレグ（平織[PP-3KP4]、綾織[PP-3KT4]いずれも4層/厚さ約1mm、一村産業（株）製）とした。試料を予め温度を設定した電気炉に所定の時間だけ静置したのち、取り出し、直ちに常温に設置した半球金型（図-4.5）に押し付けることで賦形性確認を実施した。

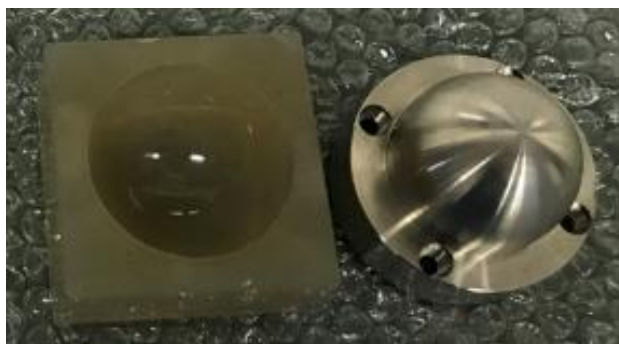


図-4.5 賦形性確認用の半球金型

（3）試作紡績糸を用いたハイブリッド成形品の試作と評価

ハイブリッド成形とは、ヒーターで予熱したCFRTPシートと射出樹脂を一体成形することで、比較的短いサイクルタイムで、高強度かつ複雑な形状の成形品を得ることができる成形方法である。炭素繊維複合樹脂成形品は、製品の強度とともに、しわや凹凸がないなど表面の意匠性も重視される。そこで賦形性の詳細な検討を行うため、図-4.6に示す金型を用いてReCF紡績糸の中間基材、または市販プリプレグとReCF入りPPペレットを用いてハイブリッド成形品を試作した。成形機のヒーター予熱温度と時間は、ReCF紡績糸の中間基材では160℃、5分間とし、市販プリプレグは200℃、5分間とした。ハイブリッド成形条件は、射出温度230℃、射出圧力100MPa、金型温度40℃とした。

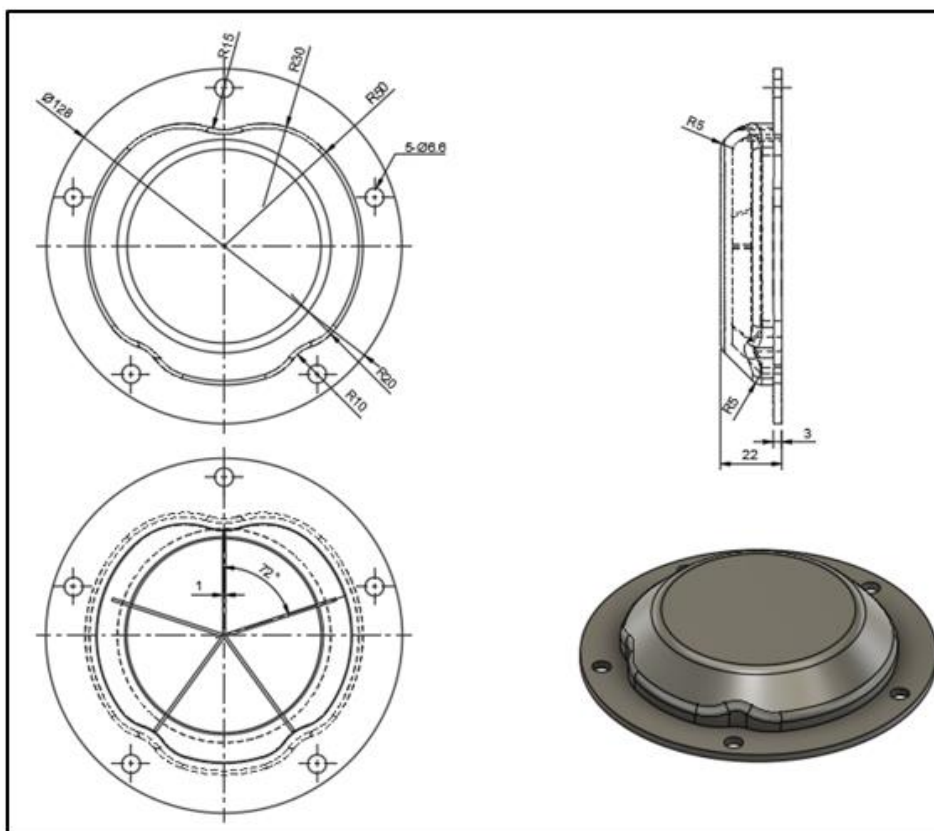


図-4.6 ハイブリッド成型機用試作金型設計図面

4. 結果及び考察

(1) リサイクル炭素繊維とPPからなる紡績糸の評価

ReCFを用いた試作紡績糸及び市販のバージンCF（以下、vCF）紡績糸の概要を表-4.1に、外観を図-4.7に示す。試作紡績糸は、vCF紡績糸と比較して、強度は約1/4であったものの、破断強度は約2.7倍、伸度については約16倍の結果となり、vCF紡績糸とは異なるReCF試作紡績糸の特性を把握することができた。

紡績原料となるリサイクル炭素繊維（カーボンファイバーリサイクル工業（株）製）の表面性状の評価及び繊維長の計測を行った。ReCF繊維の走査電子顕微鏡（SEM）観察結果を図-4.8に、ReCF繊維表面の元素分析結果を図-4.9に示す。試料の繊維径は7 μm 程度であり、残留有機物は加工工程でほぼ熱分解により除去できており、紡績工程での課題となるような残留物は観察されなかった。また、炭素繊維の形状はいずれも剛直で熱処理による変形は見られなかった。

ReCF繊維を水溶液に分散させ、繊維長の計測をJISL1015:2010の直接法（C法）²⁾に準じて行った。分散液画像から繊維部分を抽出し、繊維長を計測した結果を図-4.10、図-4.11に示す。繊維長は最長で50 mm程度であることが明らかとなった。

表-4.1 リサイクル炭素繊維とPP繊維からなる試作紡績糸の概要

	太さ (tex)	CF割合 (wt%)	破断強度 (N)	伸度 (mm)	強度 (N/tex)
試作紡績糸	1260	59	74.9	17.6	0.059
（参考） vCF紡績糸	136	100	27.7	1.06	0.204

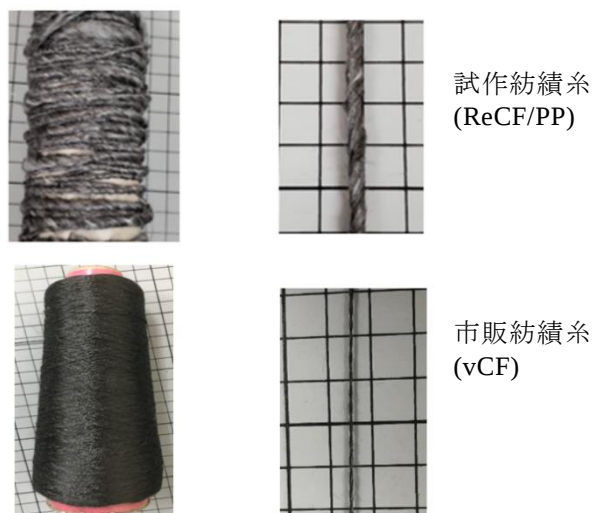


図-4.7 試作紡績糸および市販紡績糸の外観

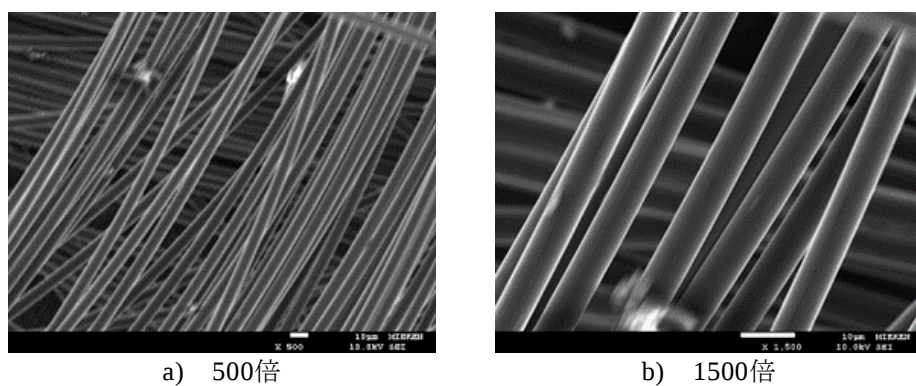


図-4.8 ReCF繊維のSEM写真

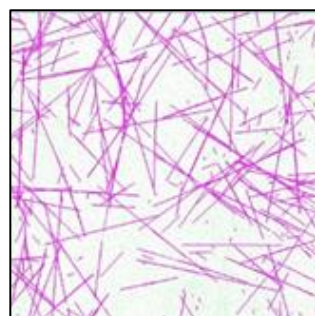
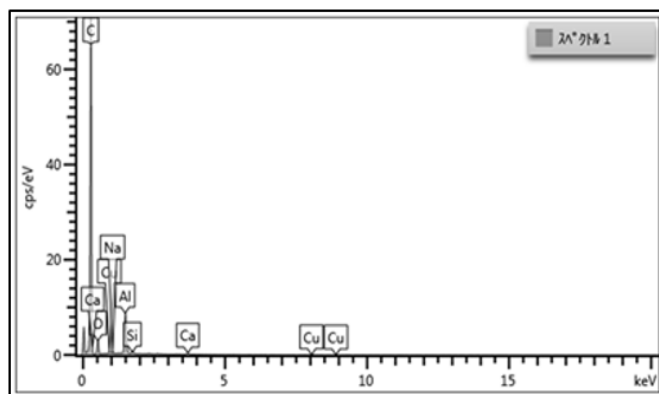


図-4.10 画像処理結果

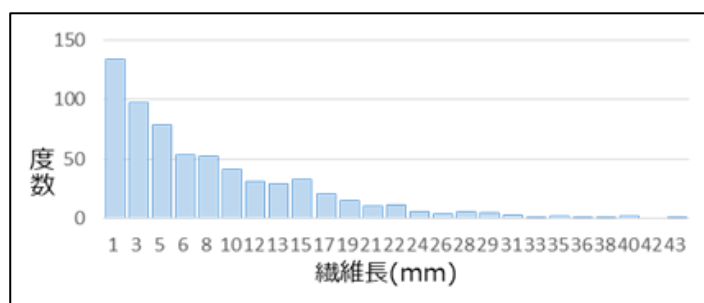


図-4.11 繊維長の計測結果

(2) 試作紡績糸を用いた中間基材の評価

1) 熱圧プレス中間基材の作成

熱プレスしたUD材中間基材及び紡績糸織物中間基材を、それぞれ図-4.12、図-4.13に示す。ハイブリッド成形を行うには、シート強度の異方性を小さくする必要があるため、図-4.12のUD材中間基材は0°-90°を2層に積層して再度熱プレスを行いハイブリッド成形用の熱プレス中間基材とした。

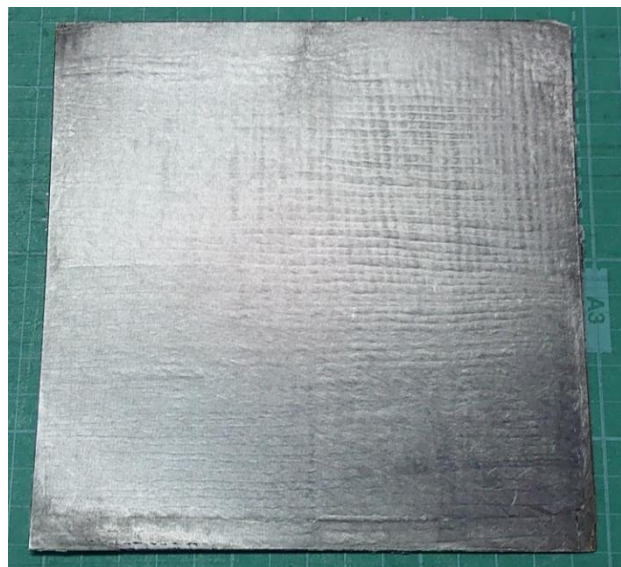
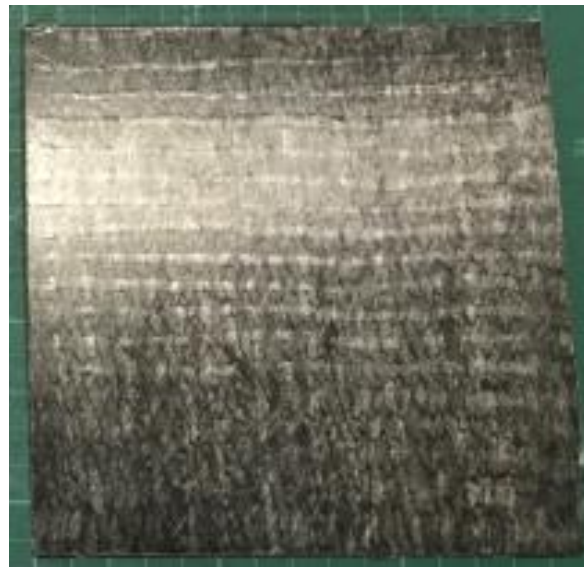


図-4.12 紡績糸の熱プレス成形中間基材(0°-90°)

図-4.13 紡績糸織物の熱プレス中間基材
(プレス条件：200℃、1h、150kN)

2) 熱圧プレスした中間基材の曲げ強度測定

試作紡績糸を用いた中間基材の物性及び曲げ特性の測定結果を表-4.2に示す。0°-0°-0°の3層で積層した、中間基材の曲げ強さは168MPaで曲げ弾性率は18GPaであり、0°-90°-0°の3層で積層した中間基材に比較し何れも高くなった。一方、曲げ強さ、曲げ弾性率ともに、試作紡績糸中間基材は市販品プリプレグには及ばない結果となった。市販品プリプレグは、長繊維で炭素繊維密度も高いことからこのような結果となったと考えられ、ReCF紡績糸中間基材の性能を高めるには、紡績糸の織度を小さくしてUD材の密度を高めることが必要である。

表-4.2 熱プレスした中間基材の曲げ強度測定結果

	作製中間基材 (3ply,0-0-0)	作製中間基材 (3ply,0-90-0)	(参考) 市販品 PP/CF 平織(4ply)	(参考) 市販品PP/CF 綾織(4ply)
厚さ [mm]	1.1	1.1	0.84	0.85
密度 [g/m ³]	1.11	1.10	1.31	1.36
CF含有率 [wt%]	69	68	72	69
曲げ強さ [MPa]	168	102	302	414
曲げ弾性率 [GPa]	18	9.4	31	46

3) 熱圧プレスした中間基材の賦形性評価

電気炉での予熱温度が中間基材試料に及ぼす影響を調べた結果を表-4.3に示す。試作紡績糸を用いた中間基材試料では加熱温度が170℃を超えると煙が発生し、樹脂成分の熱分解による揮散が見られた。一方、市販プリプレグについては、200℃でも賦形が可能であったが、240℃を超えるとシート

から煙が発生し、樹脂成分が熱分解し、揮散することが明らかになった。

半球状金型を用いた賦形性確認結果を図-4.14に示す。試作紡績糸を用いた中間基材試料はPPと炭素繊維からなる素材にも拘わらずより低温で樹脂成分の熱分解が進む挙動が見られた。これは基材の空隙率の影響と考えられ、すなわち空隙率の比較的大きい試作紡績糸を用いた中間基材は繊維空隙内の酸素がPP樹脂燃焼の助燃材となり、より低い温度での熱分解が進んだものと考えられる。

表-4.3 半球治具を用いた賦形性確認試験結果

加熱温度	熱プレス中間基材	市販プリプレグ板材 (平織、綾織)
160℃	賦形中に硬化	—
165℃	賦形可能	—
170℃	賦形可能	—
180℃	分解ガス発生	賦形不可
～		～
200℃	—	賦形可能

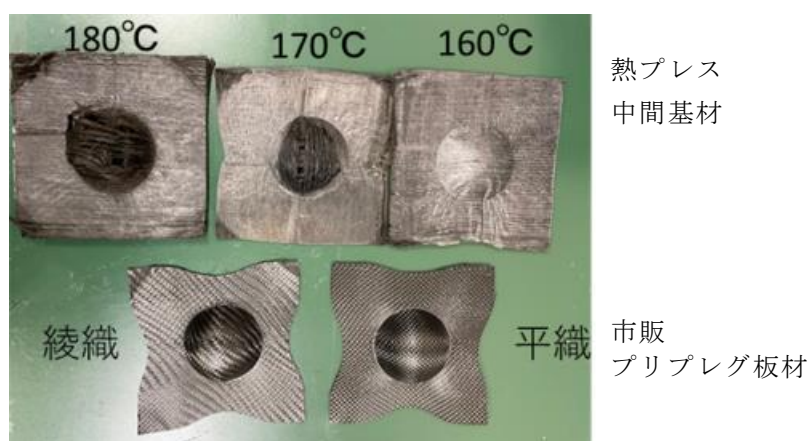


図-4.14 半球治具を用いた賦形性確認試験結果
(下段綾織と平織は200℃)

(3) 試作紡績糸を用いたハイブリッド成形品の試作と評価

試作紡績糸から作製したUD材および織物を熱圧プレスした中間基材とReCF入り樹脂ペレットを用いたハイブリッド成形品を作成した。図-4.15にUD材積層0°-90°のハイブリッド成形品を、図-4.16に織物のハイブリッド成形品を示す。また、市販プリプレグとReCF入りPPペレットを用いた成形品を図-4.17に、市販プリプレグとPPペレットを用いた成形品を図-4.18に示す。この結果、何れもシワが発生せず、良好な賦形性が得られることが判明した。一方、図-4.15と図-4.16の熱プレス中間基材のハイブリッド成形品では、シート側の表面に粗さが見られた。

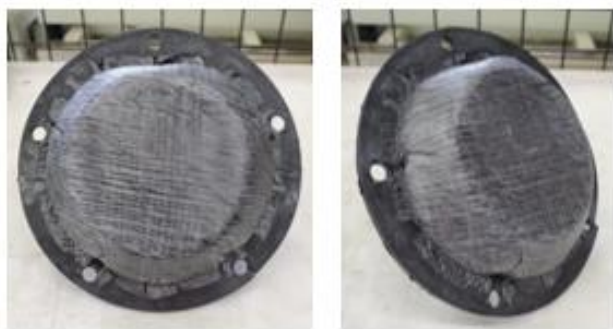


図-4.15 試験用金型を用いたハイブリッド成形試作品（UD材積層0°-90°+ReCFペレット）



図-4.16 試験用金型を用いたハイブリッド成形試作品（織物+ReCFペレット）

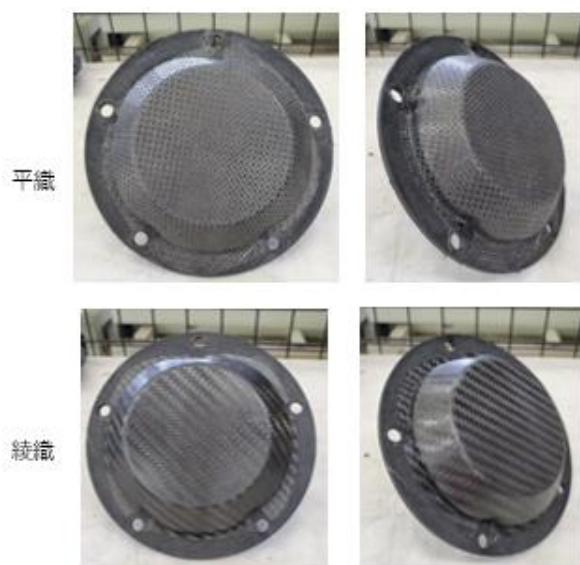


図-4.17 試験用金型を用いたハイブリッド成形試作品（市販プリプレグ+ReCF入りPPペレット）

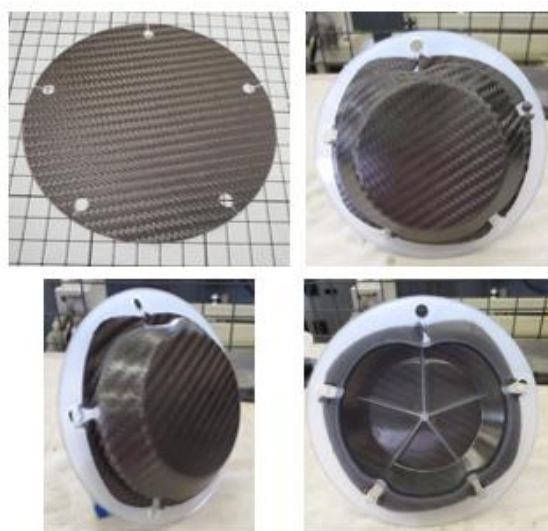


図-4.18 試験用金型を用いたハイブリッド成形試作品（市販プリプレグ+PPペレット）

表面粗さは、シート加熱時の表面温度が高く、射出圧力が高い方が低下するため、試作紡績糸を用いた中間基材のハイブリッド成形については、金型温度を上げるなど、樹脂の溶解性と流動性を上げるの対策が有効であると考えられた。図-4.16に示した試作紡績糸を使用した中間基材とReCF/PPペレットによるハイブリッド成形品、vCF/PPペレットのみの成形品、PPペレットのみの成形品の圧縮強度の測定結果を表-4.4に示す。ReCFハイブリッド成形品の圧縮強度は13.2 kNであり、vCF/PPペレット成形品の14.8 kNに対して89%の強度であった。一方、比較として測定したPPペレットのみの成形品は6.2 kNであり、何れも2倍以上の強度であった。

表-4.4 成形品の圧縮強度の比較 (n=2)

	ReCF/PP織シート + ReCF/PPペレット	vCF/PPペレット	【参考】 PPペレット
圧縮強度 (kN)	13.2	14.8	6.2

5. 研究目標の達成状況

令和2年度	【目標】サブテーマ1の試作に供するリサイクル炭素繊維を評価して、試作条件にフィードバックする。一方で、独自に炭素繊維/樹脂のハイブリッド成形のトライも行う。 【達成状況】サブテーマ1により試作した紡績糸の評価を実施した。測定内容は、太さ（tex）、炭素繊維（CF）重量%のほか、紡績糸の引張試験による破断強度（N）、伸度（mm）、強度（N/tex）の測定も行い、製造条件の絞り込みが進むにつれ、紡績糸の性能が向上していることを確認できた。その他、試作紡績糸の原料として使用したReCF繊維の電子顕微鏡による表面観察と元素分析を行い、試作紡績糸に影響を与える不純物がないことを確認した。また、市販のプリプレグおよびvCFペレットを用いたハイブリッド成形を行い、成形条件の確認を行った。
令和3年度	【目標】試作開発糸の物理特性（力学特性、伸長特性等）を評価する。リサイクル炭素繊維紡績糸を用いたプリプレグをハイブリッド成形する。成形品の性能と中間基材（糸、布、プリプレグ）製造条件との関係を調べ、明らかにする。 【達成状況】引き続き試作紡績糸の評価を行った。試作紡績糸は、市販のvCF紡績糸と比較して、引張強度は約1/4であったものの、破断強度は約2.7倍、伸度については約16倍の結果となり、市販のvCF紡績糸とは異なる特性を把握することができた。また、リサイクル炭素繊維紡績糸を用いたプリプレグおよびvCFペレットによるハイブリッド成形を行い、成形条件の最適化を行った。中間基材については、一方向材を作製し、賦形性確認試験を行ったところ、最適賦形温度が165℃であることを明らかにした。また、試作紡績糸の一方向材については、賦形時に、紡績糸間に空隙が観測された。このことから積層を0°-90°とした中間基材および紡績糸織物をハイブリッド成形用のシート基材に使用することとした。
令和4年度	【目標】ハイブリッド成形機を用いて、リサイクル炭素繊維紡績糸プリプレグとリサイクル炭素繊維ペレットを用いたハイブリッド成形品を試作する。 【達成状況】リサイクル炭素繊維紡績糸プリプレグの賦形性の詳細な確認を行うために、0°-90°の2層に重ねて再度熱プレスした中間基材と織物を熱プレスした中間基材の2種類について、ハイブリッド成形を行った。その結果、試作紡績糸を用いた試料でも市販プリプレグと同様に賦形性に問題がないことが確認できた。試作紡績糸を使用した中間基材とReCF/PPペレットによるハイブリッド成形品の圧縮強度は13.2kNであり、vCF/PPペレット成形品の14.8 kNに対して89%の圧縮強度であり、計画時の目標であるバージン材の80%以上を上回る結果であった。

6. 引用文献

- 1) 日本産業規格 JISK7171 “プラスチック 曲げ特性の求め方” (一財)日本規格協会 (2016)
- 2) 日本産業規格 JISL1015 “化学繊維ステープル試験方法” (一財)日本規格協会 (2010)

Ⅲ. 研究成果の発表状況の詳細

(1) 誌上発表

<査読付き論文>

【サブテーマ2】

ReCF紡績糸を用いた複合材料の成形に関する内容で、日本複合材料学会誌等への投稿を予定している。

【サブテーマ3】

ReCF紡績糸やReCFRPの力学的特性評価に関する内容で、Journal of Textile Engineering誌等への投稿を予定している。

<査読付き論文に準ずる成果発表>

【サブテーマ2】

早稲田大学 客員教授 加茂徹先生 監修の書籍『CFRPのリサイクル・再利用技術最前線(仮)』に、

第6章 再生炭素繊維を利用した材料開発

第2節 再生炭素繊維を原料とした連続繊維強化複合部材の開発
の執筆が確定している。

<その他誌上発表(査読なし)>

【サブテーマ4】

1) 森澤諭, 市川幸治, 増山和晃, 松岡敏生: 令和2年度三重県工業研究所研究報告, 45, 143-144 (2021)

「リサイクル炭素繊維を原料とした連続繊維強化複合材料部材の開発」

2) 森澤諭, 中村創一, 瀬戸彰文, 増山和晃, 松岡敏生: 令和4年度三重県工業研究所研究報告, 47, 印刷中 (2023)

「ハイブリッド成型機を用いたリサイクル炭素繊維基材の成形性に関する研究」

(2) 口頭発表(学会等)

【サブテーマ1】

1) 山田隆義, 出口佳史, 仲井朝美, 中西康雅, 森澤諭, 松岡敏生: 日本複合材料学会第46回複合材料シンポジウム(2021)

「リサイクル炭素繊維を原料とした連続繊維強化複合材料部材の開発」

2) 兒玉哲一, 山田隆義, 森澤諭, 瀬戸彰文: 第34回東海支部若手繊維研究会(2021)

「リサイクル炭素繊維の連続繊維化技術の開発とその評価」

3) 竹下隆太郎, 出口佳史, 山田隆義, 岩月高志, 増山和晃, 森澤諭, 松岡敏生, 中西康雅, 仲井朝美: 日本繊維機械学会 第76回年次大会(2023)

「リサイクル炭素繊維を原料とした繊維強化複合材料の開発」(アブストラクト提出済み)

【サブテーマ2】

1) 高畑圭吾, 札内彰, 大谷章夫, 仲井朝美: 材料シンポジウム「若手学生研究発表会」(2022)

「リサイクル炭素繊維紡績糸を用いたCFRTPの成形条件が含浸特性および力学的特性に及ぼす影響」

2) 高畑圭吾, 札内彰, 大谷章夫, 仲井朝美: 第14回日本複合材料会議(JCCM-14)

「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」

【サブテーマ 3】

- 1) 中西康雅：日本繊維機械学会第74回年次大会（2021）
「撚糸構造を有する繊維強化複合材料の振動解析技術の開発」
- 2) Kazuaki Masuyama, Satoshi Morisawa, Toshio Matsuoka, Yasumasa Nakanishi:14th International Conference on Textile Composites(2022)
“An Estimation of Elastic Modulus of CFRP made from Recycled Discontinuous Carbon Fibers”

【サブテーマ 4】

- 1) 森澤諭、瀬戸彰文、松岡敏生、出口佳史、山田隆義：日本繊維機械学会第75回年次大会（2022）
「リサイクル炭素繊維／PP紡績糸による強化複合材料の作製とその物性」

（3）「国民との科学・技術対話」の実施

【サブテーマ 1～4】

- 1) みえ産学官技術連携研究会・広域連携研究会「第1回マルチマテリアル検討会」（主催：三重県、令和3年6月11日、オンライン開催）にて、「炭素繊維強化樹脂材料（CFRP）の利活用」として、各サブテーマの成果等を講演。参加者約30名。
- 2) 14th International Conference on Textile Composites（共催：日本繊維機械学会、京都工芸繊維大学、令和4年9月14日～9月16日、会場：京都工芸繊維大学）にて、「Development of Reinforced Composite Material using Recycled Carbon Spun Yarn」として、取組概要や各サブテーマの成果を展示した。参加者約90名。

（4）マスコミ等への公表・報道等

【サブテーマ 1】

- 1) 繊維ニュース（2020年8月21日、「トーア紡マテリアル／炭素繊維利用を共同研究／岐阜大、三重大、三重県工業研究所と」）

（5）本研究費の研究成果による受賞

特に記載すべき事項はない。

（6）その他の成果発表

特に記載すべき事項はない。

IV. 英文Abstract

Development of Recycled Carbon Spun Yarn for Continuous Fiber Reinforced Thermoplastic Composite Materials

Principal Investigator: Asami NAKAI

Institution: Gifu University, 1-1 Yanagido, Gifu City 501-1193, JAPAN

Tel: +81-58-293-2400 / Fax: +81-58-293-2400

E-mail: nakai@gifu-u.ac.jp

Cooperated by: TOABO MATERIAL Co., Ltd., Mie University, Mie Prefecture Industrial Research Institute

[Abstract]

Key Words: Recycled carbon fiber, Spun yarn, Prepreg, Molding

For recycling of carbon fiber reinforced plastics, separation and extraction technologies are being developed by domestic research institutes. The extracted carbon fiber is chopped or milled and mixed with non-woven fabric or resin, and its use as lightweight member is limited. This is because the extracted carbon fibers are short fibers, not continuous or long fibers. In order to construct a recycling system for carbon fiber, it is necessary to use the extracted carbon fiber in a new form and expand its application.

In this study, we blended recycled staple carbon fibers with polypropylene fibers to fabricate yarn by spinning technology. Compared to commercially available carbon fiber spun yarn, the trial spun yarn had about 1/4 the strength, but about 2.7 times the breaking strength and about 16 times the elongation. The effects of twist angle and fiber volume content of spun yarn on elastic modulus were also investigated. The results showed that the elastic modulus decreased as the twist angle increased, but the elastic modulus increased as the fiber volume content increased, and the change was proportional to the content.

The prototype yarn was used to fabricate an intermediate material for thermoplastic carbon fiber-reinforced plastics, and the validity of the Tailored Fiber Placement technique was verified by fabricating reinforcements with complex geometries. Furthermore, it was confirmed that the technology could be applied to warp knitting and weaving technologies to fabricate reinforcement forms that realize complex shapes.

Hybrid molding was performed using an intermediate substrate made from the prototype yarn containing recycled carbon fiber. Hybrid molded products made from recycled carbon fiber spun yarn were found to have 89% of the compressive strength of hybrid molded products made from commercial carbon fiber raw materials.

From these trial results and others, the possibility of developing new forms of applications for recycled carbon fiber was found.