

スタンパブルシート

Fiber-Reinforced Thermoplastics : Stampable Sheet

的 場 哲 ⁽¹⁾ Tetsu MATOBA	内 野 洋 之 ⁽²⁾ Hiroyuki UCHINO	野 沢 忠 道 ⁽³⁾ Tadamichi NOZAWA	村 田 明 博 ⁽⁴⁾ Akihiro MURATA
木 村 隆 夫 ⁽⁵⁾ Takao KIMURA	大 野 賢 祐 ⁽⁶⁾ Kenyu OHNO	西 谷 輝 行 ⁽⁷⁾ Teruyuki NISHITANI	大 沢 俊 行 ⁽⁸⁾ Toshiyuki OHSAWA

抄 錄

プラスチックの弱点である強度・剛性問題を解決し、又、大物品では巨大な成形機が必要な射出成形の欠点を解決するため、繊維で強化した熱可塑性樹脂シートをプレス機で成形するスタンパブル成形法が開発されている。新日本製鐵と三菱油化(株)が共同研究した抄紙法で作るスタンパブルシート(商品名:ラドライト)について報告した。樹脂粉と10mm長程度に切断した繊維を水溶液に分散した後、網に抄き取り、乾燥、溶融させてシートにする。シートを加熱して樹脂に可塑性を与え、流動させて金型キャビティに充満させる従来からのフロー成形法以外に、ラドライトは成形圧力の低いスタンプ成形が可能である。この成形ではシート加熱後の膨張を残して低密度の軽量成形品を作ることができる。各種樹脂スクラップを粉碎し、ラドライトに混ぜるリサイクル性も検討し、曲げ強度、弾性率の劣化が少ないので剛性を要求される用途にはリサイクル材も適合できる。

Abstract

A stampable molding method in which fiber-reinforced thermoplastic resin sheets are molded by a press has been developed to improve the drawbacks of plastics, such as low strength and low rigidity, and to overcome the disadvantage of injection molding that a huge molding machine is required for the production of large products. The present paper describes the stampable sheet (brand name : RADLITE) which is produced by the papermaking method developed by Nippon Steel Corporation jointly with Mitsubishi Petrochemical Co. Ltd. The production of RADLITE by this method consists of such steps as the dispersion of a resin powder and fibers cut to about 10 mm in length in an aqueous solution, molding the mixture using the mesh wire, drying and melting. RADLITE can be processed into desired products either by stamping molding at a low molding pressure or by the conventional flow molding method in which the mold cavity is filled with the RADLITE heated to impart plasticity and fluidity to the resin. In the stamping molding method, light-weight products with low density can be molded, taking the advantage of the swelling caused by sheet heating. Study was also made on the use of recycled resin scraps. As the RADLITE sheets produced by adding pulverized recycled resins have high flexural strength and flexural modulus of elasticity, they are usable for products requiring high rigidity.

1. はじめに

プラスチックの最大の長所は、目的とする最終製品形状に直接成形できることで、この加工性の良さは他材料の追従を許さない。又、各種要求に応えられる融通性も備えており、コストも比較的低いため、身の回りの小物類はほとんどすべてプラスチック、すなわち熱可塑性樹脂の射出成形品に置き替わってしまった。

しかし、大物形状品では強度、特に剛性が弱いことや射出成形機

が巨大になることもあり、プラスチック化は小物類ほど進んでいない。この強度、剛性の課題を解決するものにガラス繊維などの強化繊維を混ぜて射出成形する方法があるが、この方法では、繊維が混練中に0.5mm長程度以下まで細かく碎かれるため、強化効果はあまりあがらない。加工での繊維破損をさける方法として、繊維で強化した熱可塑性樹脂シートをプレス機で圧縮成形し、賦形するスタンパブル成形法が1980年頃から実用化され、その専用の樹脂シート、いわゆるスタンパブルシートが市場に出されるようになった。

*⁽¹⁾ 新日本製鐵(株) 技術開発本部 名古屋技術研究部 主幹研究員

*⁽⁵⁾ 三菱油化(株) 四日市総合研究所 エンプラ研究室 主任研究員

*⁽²⁾ 新日本製鐵(株) 新素材事業本部 樹脂複合材事業開発部

*⁽⁶⁾ 三菱油化(株) 四日市総合研究所 エンプラ研究室 主席研究員

*⁽³⁾ 新日本製鐵(株) 技術開発本部 先端技術研究所 掛長 工博

*⁽⁷⁾ 新日本製鐵(株) 名古屋製鐵所 事業開発推進部 部長代理

*⁽⁴⁾ 新日本製鐵(株) 技術開発本部 先端技術研究所 化学研究部 研究員

*⁽⁸⁾ 新日本製鐵(株) 新素材事業本部 樹脂複合材事業開発部 部長代理

化学研究部 主任研究員

スタンパブルシートは、強度特性の優秀さと熱硬化性樹脂成形（織維強化不飽和ポリエステルのシート成形：Sheet Molding Compound (SMC) 成形）に比べ、短時間で成形できることを特徴として自動車部品を中心に年々その適用範囲を広げてきている。スタンパブルシートの全体技術については、専門誌にくわしい解説¹⁾があるので参考されたい。

本報は、新日本製鐵が三菱油化㈱と共同でイギリスの製紙会社の研究部門から導入した抄紙型のスタンパブルシート（商品名：ラドライ）の技術について、その製造技術と特性を報告する。又、ラドライの特徴がよくあらわれている低密度化成形、スクラップのリサイクル特性についてはより詳しく報告する。

2. 製造方法と成形方法

スタンパブルシートは、その強化繊維を樹脂に含浸させる方法の違いで図1のように分類でき、連続繊維マットに樹脂を含浸させるラミネート法と適当な長さに切断した繊維と樹脂を分散させて含浸させる分散法に大別される。ラミネート法は市場に出されてすでに10年以上の実績がある。分散法はラミネート法よりも繊維分散を改

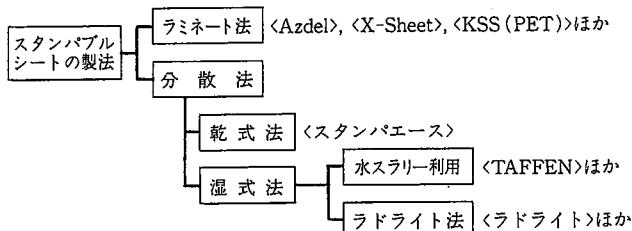


図1 スタンパブルシートの各種製造方法（＜＞内は商品名）

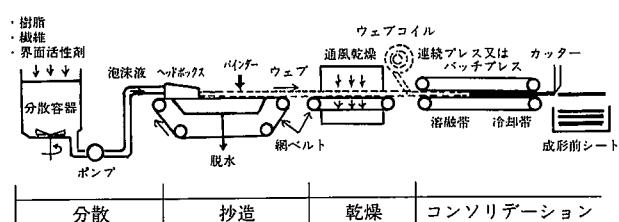


図2 スタンパブルシート：ラドライの製造工程

善する製法として開発されてきた。

ラドライは分散法の一つで紙抄き工程に類似して製造される。基本技術はイギリス Wiggins Teape R&D 社の Dr.Radvan が発明したもので、繊維分散を泡で行うのが最大の特徴である²⁾。

図2に抄紙型スタンパブルシートの製造工程概要を示す。ラドライの場合は、分散容器で界面活性剤入り水溶液を攪拌して泡立て、熱可塑性樹脂粉末と長さ5~50mm程度に切断した繊維を投入し分散させる。繊維と樹脂の分散液は紙抄きの要領で網ベルト上に抄いて脱水し、濡れた毛布状のものを得る。続いて、通風式の熱風乾燥機で乾燥して巻きとる。この毛布状の中間品をウェブと呼ぶが、ウェブは強化繊維と樹脂粉末が物理的に絡まっているだけであり、続いてコンソリデーションと呼ぶ工程で樹脂を溶融させて繊維に含浸させる。このコンソリデーション工程は、ウェブを一枚ないし必要に応じて複数枚重ね、連続式もしくはパッチ式のホットプレスとコールドプレスに通して樹脂を溶融、圧縮して繊維への含浸を図り、続いて冷却固化させる工程である。

スタンパブルシートの成形は図3に示すように、遠赤外線加熱炉で加熱して樹脂シートに可塑性を与え、続いて温度調整した金型(40°C~80°C)に投入した後、プレス機で圧縮して成形品に加工する¹⁾。このプレス機は鋼板用の板金プレス機を兼用できるが、プレストロークの下死点で樹脂が固まるまで20~60秒停止する機構を備える必要がある。

ラドライの成形法は、プレス機の必要成形圧力に応じて図4に示すような3通りがある。従来からのラミネート型スタンパブルシートの場合、成形圧力の高いフローモールド成形法が用いられるが、ラドライの場合は成形圧力の低いスタンプ成形法や圧空成形法など

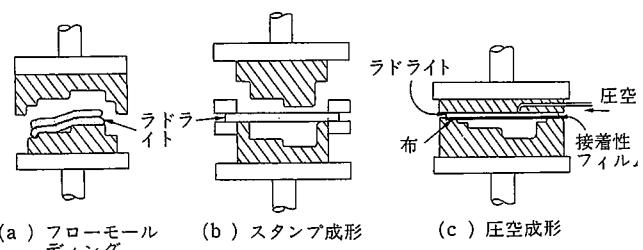


図4 ラドライの成形法

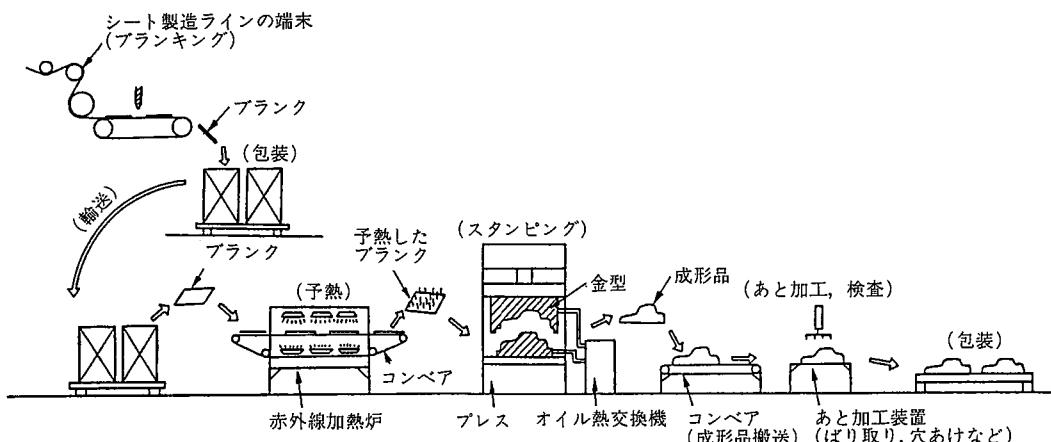


図3 スタンパブルシートの成形システム概念図¹⁾

ども可能である。スタンプ成形（製品投影面積より大きい原反シートを板金プレスの絞り成形法や張り出し成形法のように成形する）では、ラドライト原反シートが加熱によって膨張する性質を利用して密度の低い軽量成形品が作れる。又、成形と同時に不織布や各種ポリマーフィルムなどを積層プレスすることができるので、加飾工程の短縮化や外観改良が可能となっている。

3. ラドライトの主な特徴

ラドライトの特徴は泡を使う纖維分散法に起因して現れる。

(1)泡の持つ浮揚力や増粘効果のため、強化纖維は種類を問わない。ステンレス鋼、ガラス、カーボン、合成高分子から天然纖維まで使用できる。又、粉末にできる熱可塑性樹脂はほとんど制限なしに使用できる。ただし、コスト、市場ニーズなどから当面の主流はガラス纖維(GF)とポリプロピレン樹脂(PP)であり、以下の記述はGF+PPベースに限定する。

(2)上記のため、廃プラスチックも粉碎さえすれば、容易にリサイクルしてシートにすることができる。

(3)纖維分散と樹脂含浸が良いので、樹脂と纖維の接合界面を大きくとれ物性向上が図れる。又、成形流動時に樹脂と纖維の分離が少なく、成形品末端位置での纖維含有量のばらつきは小さい。

(4)纖維配向を抄造工程で制御することができ、配向がほとんどランダムの方位から、優先的に纖維を配向させたシートまでを作りわけることができる。(抄紙法ではちり紙などを引き裂く時に見られるように纖維に方向性を持たせることができる。)

(5)シートを加熱すると纖維のスプリングバックにより元厚の2~5倍にシートが膨張する。この膨張シートを低い圧力で成形すると理論密度まで圧縮されていない嵩高い成形品が得られる。この成形法すなわち膨張成形法を行えば密度を下げ、軽量化を図ることができる³⁾。

これらの特徴を表1に整理して示す。表2には射出成形品、SMCとの比較で整理して示す。表3にはPP+GF系の代表的な物性値を示す。標準グレードとはスタンパブルシート成形で一般的なフローモールド成形（金型キャビティに樹脂を流して充満させる成形法、図4(a)参照）に適するよう流動性を優先させたグレードである。一般に抄紙型スタンパブルシートの製法でガラス纖維量を40%程度以

表1 抄紙型スタンパブルシート：ラドライトの特徴

	特 徴	備 考
プロセス	<ul style="list-style-type: none"> 強化纖維、板厚の設定範囲が広い 強化纖維の分散が極めて均一 スクランブルサイクルが容易 	GF: ~60%, 板厚: 0.5~5 mm GF ばらつき: ±1% 分散容易
性能	<ul style="list-style-type: none"> 機械的性が高く、安定 一方向配向材 (UD材) 製造可 各種フィルムの複合が可能 	強化纖維の均一開纖 抄造技術の応用 表面加飾が容易
応用	<ul style="list-style-type: none"> 高流動性、深絞り性 フロー、スタンプ、圧空、ブロー 	均質な素材 樹脂とGFが分離しにくい

表2 ラドライトと他材料との比較

対比材料	ラドライトの長所	ラドライトの課題
射出成形品	<ul style="list-style-type: none"> GF 切断少ない ⇒ 高強度、高剛性 寸法安定性 低圧成形可能 ⇒ 大面積の成形品 薄肉、低密度製品 	<ul style="list-style-type: none"> デザイン自由度 (リブ、ボス、インサート) (塗装)外観
SMC (FRP)	<ul style="list-style-type: none"> 軽量性 低温衝撃特性 ハンドリング性 廃棄物処理性 (成形サイクル) 	<ul style="list-style-type: none"> 強度・剛性 (塗装)外観 耐火性

上にしようとしていると、流動性の低下のため成形圧力の増大などの欠点が現れてくるが、纖維と樹脂の種類、配合などを考慮することで、新日本製鐵材の場合はGF50%近くまで通常のラミネート法スタンパブルシートのみの成形条件で成形できる。

高強度配向グレードとは、纖維配向を抄造時に長手方向(MD)に優先して配向するようにしたもので、自動車バンパー部品のように、一方向の強度が主に要求される用途に適したものである。図5に高強度配向グレードと標準グレードの材料特定の方位依存性の例として、長手方向に対して種々の角度で切り出した試験片の曲げ強度測定結果を示す。0度が配向方向(MD)、90度が配向に直角な方向(TD)である。引張強度、衝撃強度なども曲げ強度と同様の傾向を示す。これらを裏付けるためシート断面に現れた纖維の切り口の形状から纖維配向を求めてみると、配向グレードでは長手方向の狭

表3 ラドライト (GF/PP) の代表的物性測定例

試験項目	試験方法	単位	標準グレード		高強度配向グレード		軽量グレード
			GF 30%	GF 40%	GF 35%	GF 40%	
密度	水中置換法	10 ³ kg/m ³	1.11	1.21	1.16	1.21	0.6
引張強度	MD TD JIS K 7113	MPa	80	110	160 70	190 90	50
曲げ強度	MD TD JIS K 7203	MPa	120	150	230 130	260 150	40
曲げ弾性率	MD TD JIS K 7203	MPa	4500	6200	7800 5500	8500 6000	2300
圧縮強度	MD TD JIS K 7056	MPa	90	100	180 120	200 140	—
Izod衝撃	MD (ノッチ付) TD JIS K 7110	kJ/m ²	60	90	55 30	60 40	30
熱変形温度 (参考値)	JIS K 7207 (1.82MPa)	°C	158	162	160	162	152
熱膨張係数	ASTM D 696	10 ⁻⁵ /°C	2.5	2	2	2	1.5

注) 軽量グレードは膨張成形した後の成形品物性、他は原反シート物性

MD: 抄造時の長手方向、TD: 抄造時の直角方向

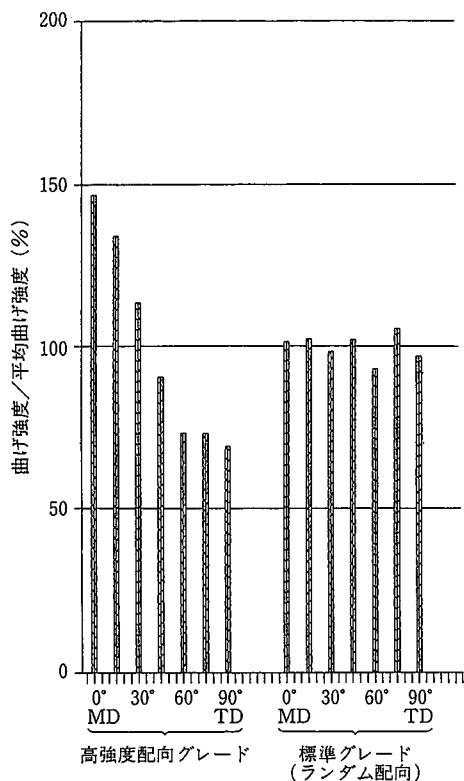


図 5 曲げ強度の方位依存性

い範囲に全体の70%程度の繊維が配向している結果を得ており、図5の値は繊維配向に起因するためと結論付けられた。

又、実験室的には繊維の方向を徹底して揃える抄造を行うことで、複合則を用いて求めた理論強度に近い結果まで得ている。この高強度配向グレードもキャビティに材料を充満させてつくるフローモールド法で成形するので、材料の流動性は標準グレードと同様の配慮をして加工性を確保している。

軽量グレードとは、スタンプ成形で(5)項に述べた膨張成形法を用いて理論密度の1/2～1/4程度の低密度化成形品を得るためのもので、このような使用法は、他の種類のスタンパブルシートにない特徴である。表3では代表値としてGF40%，密度 $0.6 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ (cgs単位系では 0.6 g/cm^3 、以下本文の密度はcgs単位を用いる) の結果を示した。

ラドライトでは成形時に繊維と樹脂が分離することが少ないので、表3に示した特性値が成形品の端の方までほぼ実現できる。写真1に細いリブのついた箱の成形品を蒸し焼きにしてガラス繊維だけにした写真を示す。写真から、繊維が壁厚と高さの比が20倍を超える細いリブの端まで流動していることが読み取れる。

ラドライトの標準材、高強度配向材は、実績のあるラミネート法スタンパブルシートに追いつくための各種の検討が進んでいるが、割愛し、以下にはラドライトの特徴が良く現れている軽量グレードとリサイクル性について記す。

4. 軽量材料としての抄紙型スタンパブルシート

スタンパブルシートは構造材料として使われる所以、他の構造材である金属や樹脂類との得失比較ではまず同一強度を得る場合の重量、コストの検討が必要である。コスト比較は製造から成形まですべてを含む必要があり、簡単ではないので、以下では重量の比較に

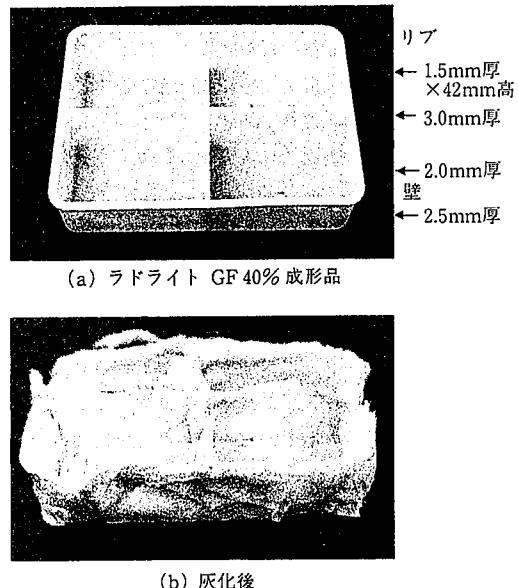


写真 1 フロー成形品のガラス繊維分布状態

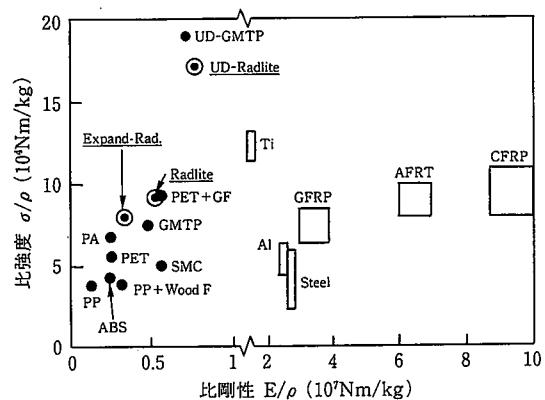
限定する。

材料の弾性係数をE、引張り又は圧縮強度をσ、密度をρとして、強度、剛性が等しくなるよう板厚だけを調整した時の成形品重量を材料力学に基づいて計算してみる。

成形品がトレイやビームのように垂直壁がある形状の場合は、航空・宇宙材料の検討に用いられる比強度、比剛性が軽量化の指標となる。同一強度当たりの重量は、 $\rho\sigma^{-1}$ 、同一剛性当たりの重量は ρE^{-1} に比例する。

平板に近いパネル類の形状の場合、強度当たりの重量は $\rho\sigma^{-1/2}$ 、剛性あたりの重量は $\rho E^{-1/2}$ に比例する。パネル類の場合の重量はE、σに平方根、3乗根がかかるため、E、σを大きくするよりは、密度ρを下げた方が軽量化には寄与する。

図6はトレイ・ビーム類として使う場合の各種材料を比強度、比

図 6 各種材料の比強度、比剛性
(ビーム類の重量は各指標の逆数)

データは理科年表及び各種カタログ類による。

Expand-Rad.: 膨張ラドライト, UD-Radlite: 高強度配向ラドライト, GMTP: ラミネート法スタンパブルシート, UD-GMTP: 一方向強化GMTP, PP: ポリプロピレン, ABS: ABS樹脂, PP+Wood F: PP+木繊維, PA: ナイロン, PET: ポリエチレンテレフタート, PET+GF: GF強化PET, SMC: GF強化熱硬化樹脂成形品, Al: アルミニウム, Ti: チタン, GFRP: GF強化エポキシ樹脂, AFRT: アラミド繊維強化樹脂, CFRP: 炭素繊維強化樹脂

剛性で比較したもので、繊維配向を揃えて強化したスタンパブルシート(UD-ラドライ)が他の金属、樹脂に比べて優位にあることを示している。

図7はパネル類に適用した場合で、同一の強度、剛性を持つパネル重量を普通鋼板重量で無次元化して示す。標準グレードのスタンパブルシートは強度的には良いが、剛性的には鋼板の50%の重量減に止まり、アルミニウム程度の軽量化である。軽量グレード(膨張ラドライ)の場合は、剛性的には鋼板の70%の重量減で同一性能が出せ、一般的な樹脂類のパネルとの比較でも30~50%の軽量化が図れる。これは密度を本来の理論密度(1.2g/cm^3)の半分まで下げたことの効果である。

軽量化の限界は用途や表皮の貼りかたなどで左右されるが、強度の必要な乗用車のドアトリムなどでは2倍(密度 0.6g/cm^3)程度、天井材などでは3倍近く(0.4g/cm^3)まで膨張させて作ることができる。

又、この軽量グレードを用いて木材代替品を作ることができる。熱帶雨林保護問題で木材の使用量の削減が要請されており、コンクリート型枠用として試作したラドライ製パネルは、板厚12mmで密度 $\rho=0.6\text{g/cm}^3$ 、曲げ弾性率 $E=3000\text{MPa}$ (合板の強度規格JASを越えている)の物性を持ち、コンクリートの打設テストでは30回の繰り返し使用の実績も確認できている。しかも、鋸切断が可能で釘が効くなど木材に近い特性があり、これから材料としての可能性は高い。

5. リサイクル性

本製法は、スクラップをミリメートルサイズに粉碎できれば均一混合できるし、成形工程も加熱して圧縮するだけの単純なものであるため、スクラップの再利用過程で生ずる問題は比較的少ない。以下、各種の成形品を1~5mm程度の大きさに粉碎し、バージンのPPとGFに混入し、抄造して作ったシート物性を示す。

図8はGF40%のラドライ成形品を粉碎し、バージン材に50%の比率でリサイクルして元のGF40%のシートに戻した時の結果で、3回までの繰り返しリサイクルの影響を見ている。まず、初回のリサイクルで劣化が見られるが、更に繰り返しリサイクルしても劣化はあまり進まない。又、シートの最弱点を評価しているアイゾット衝撃強度、引張強度についてはスクラップ粉碎による繊維破損の影響が出て劣化度が大きくなるが、平均的物性の評価となる曲げ強度などの物性低下は少ない。特に弾性率の劣化度は少ない。

スクラップの粉碎では、連続繊維強化樹脂の場合、繊維の抜け切

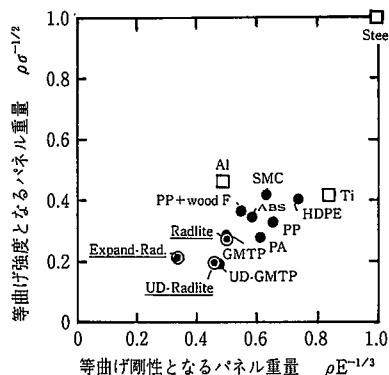


図7 曲げ剛性、曲げ強度が等しくなるパネルの重量
(普通鋼板の重量で無次元化) HDPE:高密度ポリエチレン

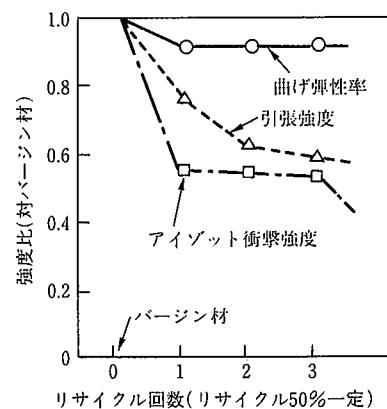


図8 リサイクル回数と物性
(GF40%, リサイクル率50%)

れのために綿状になって嵩が増え、数mm程度以下の粒径までの粉碎が困難な場合が多いが、ラドライの場合は1mm程度までの粉碎ではそのような現象は生じない。

図9はリサイクル率の効果を見たもので、スクラップとバージン材の合計GF量は40%一定である。図9(a)はラドライ自体を戻した場合、図9(b)はPP製射出成形品のリサイクルで、塗装膜が付いたままの結果も含む。図9(c)にはSMC製品、PET不織布のリサイクル結果を示す。SMCの場合はPPとまったく溶け合わないので剛性にも寄与していないが、PPの入っている射出成形品などの場合、弾性率の低下は少ないので剛性が必要な用途には使える可能性がある。

図8、9では成形品の密度を変えないため合計GF量を一定にした検討であったが、特性劣化を防止するにはバージンのGF量をリサイクルするごとに一定量加えて行く方法もある。表4はバージン繊維を30%と40%の一定量だけ加え、3回リサイクルした時のシート物性を示す。この場合マトリックスのガラス含有量が増えて行くので重くなるが、リサイクル率が高いほど強度特性が向上する。

以上の結果から、シートを膨張させる軽量グレードのラドライにPP系の自動車内装部品のスクラップを混入することが可能である。不織布のついたままの粉碎品を30mass%程度まで混ぜても、曲げ強度、曲げ剛性の劣化は無視できる程度である。

又、自動車バンパービーム用途の高強度配向グレードでもリサイクルが可能である。ラドライのスクラップを30%混入し、バージン繊維を配向させる条件で抄造したシートについて、実物バンパービームの70%程度に縮小したモデル金型で成形してビーム曲げ強度を評価したところ、バージン材使用のビーム強度の80%以上の特性

表4 強度特性を確保する条件でのリサイクル
(バージンGFを補給しながら3回リサイクルした後のシート物性)

リサイクル率 (mass %)	GF量 (mass %)	バージン	スクラップ	総量	密度 (10^3kg/m^3)	引張強度 (MPa)	曲げ強度 (MPa)	圧力強度 (MPa)	曲げ弾性率 (MPa)	Izod衝撃 (強度 kJ/m^2)
0	30	—	30.0	1.11	75	116	90	4655	59	
20	30	7.4	37.4	1.17	75	126	96	6037	67	
30	30	12.5	41.2	1.20	80	128	100	6311	71	
40	30	18.7	47.1	1.28	87	138	117	6723	66	
0	40	—	40.0	1.21	103	151	102	6105	72	
20	40	9.9	47.6	1.29	102	172	120	8075	86	
30	40	16.7	54.7	1.37	113	172	128	8898	82	
40	40	24.9	62.0	1.50	141	213	140	12397	90	

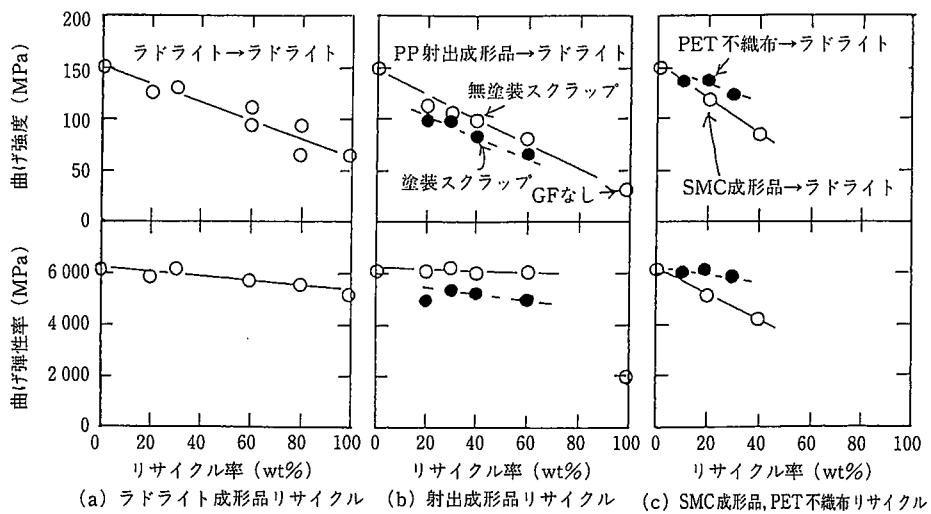


図 9 各種スクラップのラドライトへのリサイクル(合計GF40%一定)

が得られた。PP射出成形品のスクラップを混入して抄造したシートのモデル金型成形品強度でも、図9(b)に示したシート曲げ強度のデータと同様の結果が得られた。

これらのリサイクル実験での物性の再現性は良かったが、実際のリサイクルでは各種のスクラップが混入して劣化代のばらつきが多くなる。そのばらつきまで考慮して要求特性にあった部品設計を行い、又バージンの繊維を加えて物性低下をおぎなう方法と組み合わせれば、リサイクル材を元の用途に適用できる可能性が出てくる。

6. むすび

抄紙型スタンパブルシート(商品名:ラドライト)の現状技術を記述した。本法は、まず抄紙型の繊維分散法というシーズが先にあって、スタンパブルシートの製造に適用したとの経緯がある。製造技術に比べて加工技術、実商品への応用技術の点で立ち遅れていた

点も多かったが、本報で示したように製法の特長を活かした軽量化、リサイクル対応など加工、応用技術が育って来ており、今後の資源・環境問題などに十分適合できる可能性のある素材として発展を期待したい。

又、成形時の加熱、圧縮を利用してコンソリデーション工程を省略し、ウェブから直接成形品を得る、更に省エネルギーの成形加工法の可能性もある⁴⁾。

参考文献

- 1) 濑川淨一郎: プラスチックスエージ. 35(3), 168-173(1989)
- 2) 的場 哲: プラスチックスエージ. 36(9), 178-183(1990)
- 3) 的場 哲: 塑性加工連合講演会論文集, 42, 1991, p.111-114
- 4) Rockmann,K., Saris,P.: ATA MAT-89, 1, 1989, p.425