法政大学学術機関リポジトリ

HOSEI UNIVERSITY REPOSITORY

PDF issue: 2025-07-04

異なる繊維長分布・成形方法のリサイクル CFRPにおける破断面観察による破壊モードの 理解

小島, 拓巳 / KOJIMA, Takumi

(出版者 / Publisher) 法政大学大学院理工学研究科

(雑誌名 / Journal or Publication Title) 法政大学大学院紀要.理工学研究科編

(巻 / Volume) 65 (開始ページ / Start Page) 1 (終了ページ / End Page) 7 (発行年 / Year) 2024-03-24

(URL) https://doi.org/10.15002/00030630

異なる繊維長分布・成形方法のリサイクル CFRP における 破断面観察による破壊モードの理解

FRACTURE MODE INVESTIGATION BY OBSERVING THE FRACTURE SURFACE OF RECYCLED CFRP WITH DIFFERENT FIBER LENGTH DISTRIBUTIONS AND MOLDING METHODS

小島拓巳 Takumi KOJIMA 指導教員 東出真澄

法政大学大学院理工学研究科機械工学専攻修士課程

Carbon fiber reinforced plastic (CFRP) is generated in large quantities when aircraft structural materials are discarded. many methods have been proposed to separate CFRP resin and fiber, but how to reuse recycled carbon fiber has not yet been fully investigated. a JAXA study is investigating a method to produce dry non-woven fabric from recycled carbon fiber (rCF) and then formed into recycled CFRP (rCFRP) for reuse. However, there are two problems: the fiber length of the recycled carbon fiber is fixed at 80 mm, but in reality, short fibers are mixed in, and the wet lay-up method is time-consuming and labor intensive when forming rCFRP by impregnating the nonwoven fabric with resin. The objective of this study is to clarify the differences in rCFRP failure modes due to different fiber length distributions and molding methods. Tensile tests were performed on rCFRPs molded under different conditions (wet lay-up, press molding, prepreg molding) to investigate how the tensile fracture mode varies with different fiber lengths, thermoset or thermoplastic resins, and different molding methods. The results are discussed from the observation of fracture surface by optical microscopy and SEM. *Key Words : Recycled CFRP, Recycled Carbon Fiber, Fracture Surface Observation, Tensile Properties*

1. 緒論

近年、炭素繊維強化プラスチック(CFRP)は製造コスト が低下してきており様々な分野で利用されている. それ に伴い、廃材も多く出てきているが、現状では9 割近く が埋め立て処理されている¹⁾. CFRP の廃材はリサイクル 方法が確立されていない. JAXA の研究ではリサイクル炭 素繊維(rCF)から乾式不織布を製造して、リサイクル CFRP (rCFRP) に成形してリユースする方法を研究して いる²⁾. CFRP 廃材を用意して、常圧溶解法により炭素繊 維をリサイクルする.得られた rCF を湿式法によりカー ド機に投入して、一方向に引き揃えられた乾式不織布を 中間基材として制作した.この不織布に樹脂を含浸させ, rCFRP を成形する. JAXA と日本毛織㈱の共同研究では乾 式法で繊維配向度の高い不織布の製作をし、この不織布 を用いて高強度の rCFRP の成形に成功している.しかし ながら、リサイクルした炭素繊維の繊維長が80mm一定 になっているが、実際は短い繊維が混ざってしまってい る点,また不織布に樹脂を含浸させrCFRPを成形する際, ウェットレイアップ法で実施すると手間と時間がかかっ てしまうという点の2つの問題が発生してしまう.

そこで本研究の目的は,異なった繊維長分布・成形方 法による,rCFRP 破壊モードの違いを明らかにすること である.異なる繊維長の影響,熱硬化性樹脂または熱可 塑性樹脂の影響,成形方法の違いの影響(ウェットレイ アップ法,プレス成形,プリプレグ成形)による条件で 成形されたrCFRP の引張試験を行い,引張破壊モードが どのように異なるか,光学顕微鏡や SEM による破断面観 察から考察した.

2. 繊維長の影響

T800S の一方向プリプレグから,ケミカルリサイクル で rCF を抽出した.幅 240 mm の一方向プリプレグを, 長さ 80 mm 一定になるように切断した.このプリプレグ を幅 80 mm,長さ 80 mm に切断し,80 mm 角の正方形の プリプレグ端材を作製した.プリプレグ端材を三角形に 切断した.80 mm 角の正方形のプリプレグ端材と三角形 に切断したプリプレグ端材を 1:2 の割合で混ぜ合わせて, リサイクル処理を行った.リサイクル処理前のプリプレ レグと処理後 rCF を図1に示す.不織布基材は2種類用 意した.



Fig. 1 Chemical recycling of cut prepreg tapes²⁾, (Left) Cut prepregs before recycling, (Right) Extracted rCF.

一方は繊維長が 80 mm で一定の rCF を原料に成形した. もう一方は原料となる rCF の 1/3 が繊維長に 0~80 mm の 分布を持つ rCF を原料に成形した.カード機から紡出さ れた不織布を主配向方向にそろえた状態で、目付が 30~ 40 g/m²になるように積層をした.この積層物を基材と呼 ぶ.繊維長に分布を持つ基材には全体的に繊維塊が点在 していた. 比較的短い繊維はカーディングする工程で絡 まってしまい、繊維塊を発生させることが過去の研究で わかっている³⁾. 引張試験機は Instron の 5982 型を使用し た. 引張試験は ASTM D 3039 を参考に実施した. 試験速 度は1 mm/min で行った. 試験片は WIRE 13, WIRE ER02 それぞれ 13 本である. 試験片の大きさは, 長さ 230 mm, 幅 25 mm である. WIRE 13 は板厚の平均は 1.556 mm で ある. WIRE ER02 は板厚の平均は 1.347 mm である. ま たこの試験片は引張試験における画像相関法(DIC)を行 った. DIC は、試験片の表面にスプレーなどで塗料を塗 布したランダムパターンと呼ばれる模様の変化をとらえ 表面のひずみ分布の時間的変化を解析する手法である. ランダムパターンを塗布した試験片を図2に示す. Instron の AVE2 ビデオ伸び計を用いて DIC を実施した.繊維長 一定である基材と繊維長に分布を持つ基材、それぞれを サイジングし、主配向方向にそろえて10枚積層し、エポ キシ樹脂(ナガセケムテックス, XNR/H6809)でウェット レイアップした. これに 0.5 MPa の圧力を加えて 350 mm 角の rCFRP をオートクレーブ成形した.繊維長が一定の rCFRP を WIRE 13, 繊維長に分布を持つ rCFRP を WIRE ER02 とする.また,各試験片の繊維体積含有率(Vf)とボ イド率(Vv)を表1に示す. WIRE 13, WIRE ER02の引 張強さの平均と弾性率を表2に示す. 繊維長一定である 試験片の引張強度が大きいことがわかった. 引張試験後 の繊維長一定である試験片を図3に、繊維長に分布があ る試験片を図4に示す.



Fig.2 DIC specimen.

Table1 Fiber content and void rate Effect of fiber length.

試験片	繊維体積含有率	ボイド率
	(Vf)	(Vv)
WIRE13	16.2 %	9.2 %
WIRE ER02	14.2 %	1.5 %

Table2 Average tensile and elastic modulus

Effect of fiber length.		
試験片	引張強さの平均	弾性率
	(MPa)	(GPa)
WIRE13	332	18.1
WIRE ER02	271	17.5



Fig. 3 WIRE13 after tensile test.



Fig. 4 WIRE ER02 after tensile test.

引張試験後の繊維長一定である試験片を図3に,繊維 長に分布がある試験片を図4に示す.壊れ方を比較する と,繊維長が一定のほうは10mm程度の破片が生じた. 繊維長は80mmであるため繊維破断が起こっていると考 えられる.一方繊維長に分布を持つほうは幅方向に平行 に破断していた.

壊れ方の違いを考察するために光学顕微鏡で破断面観 察を行った.光学顕微鏡の写真を図5~7に示す.図5,6 より繊維長一定である rCFRP の破断面には繊維がむき出 しになっていない部分と繊維がむき出しになっている部 分があった.また、図6,7を比較すると,繊維長に分布 を持つ rCFRP の破断面は,繊維長一定の rCFRP よりもむ き出しになっている繊維の長さが短いことがわかった. 代表的な3つの破断面を考察するために SEM 観察を行っ た.それぞれの写真を図8~11に示す.図8より繊維長 一定の rCFRP 破断面では,繊維がむき出しなっていない 部分は繊維が引き抜けた穴がほとんど見られなかった. 図9より長い繊維がむき出しになっている部分は繊維が 引き抜けた穴が存在することがわかった.繊維長一定の rCFRP では繊維の引き抜けが発生したことがわかる.繊 維長一定の rCFRP の破断面を拡大した結果(図10),繊 維の破断が発生していることがわかった.このことから 繊維長一定のrCFRPでは繊維の引き抜けと繊維破断が発 生していると考えられる.繊維長に分布を持つrCFRPは 図11より繊維の引き抜けが発生したことがわかる.次に, 平均引張応力100 MPaにおける DIC 解析の結果を示す. 繊維長一定の DIC 画像を図12に示す.破断が発生した箇 所を赤線で囲む.破断した部分のひずみが特別大きくな かった.つまり,大きなボイドはなかったと考察できる. SEM の結果より,むき出しになった繊維は引き抜けでは なく,繊維破断が発生していた.



Fig. 5 Optical micrograph, WIRE13, filled fiber part.



Fig. 6 Optical micrograph, WIRE13, exposed fiber part.



Fig. 7 Optical micrograph, WIRE ER02.



Fig. 8 SEM image, WIRE 13, filled fiber part.



Fig. 9 SEM image, WIRE 13, exposed fiber part.



Fig. 10 SEM image, WIRE13, fiber fracture.



Fig. 11 SEM image, WIRE ER02.



Fig. 12 DIC WIRE 13.

SEM の結果より, むき出しになった繊維は引き抜けでは なく, 繊維破断が発生していた. DIC の結果で大きいひ ずみが確認できなかったことから樹脂は含浸していた. 繊維長一定の繊維がむき出しになっている部分は①繊維 と樹脂の界面破壊が発生, ②繊維間の距離が狭い部分の 樹脂が破壊, ③樹脂が破砕し繊維がむき出しになったと 考察できる.次に繊維長に分布を持つrCFRPのDIC 画像 を図13に示す.破断が発生した箇所を赤線で囲む. 繊維 長に分布を持つrCFRPの破断箇所では,大きいひずみが 見られた. SEM 観察で引き抜けた穴が観察されたこと, また繊維長一定のrCFRPと比較して破断面に短い繊維が 観察されたことから, 繊維の端部が集中して存在してい たと考察する. このことが,破断箇所では大きいひずみ が発生した要因であると考えられる.

3. 樹脂の影響

2章では熱硬化性の樹脂を用いた rCFRP について考察 したが、3章では熱可塑性樹脂を用いた rCFRP について 考察する. 燃成法により樹脂生成物からリサイクルされ た繊維長 50 mmの T800S と東レ㈱の繊維長 51 mmのポリ アミド 6 繊維とを質量で炭素繊維が質量の 40 %、ポリア ミド 6 繊維が質量の 60 % となるよう事前に混合したもの を炭素繊維不織布シートに作成した. この不織布シート を幅 100 mm、長さ 100 mmの寸法に切り出したものは目 付が 241 g/m²であった. また 12 枚積層をした, 圧力 3.5 MPa, 温度 240 °Cで 10 分間熱プレスした. 厚さ 2.2 mm, 密度 1.28 g/cm³、繊維体積含有率 34.8 %の rCFRP を成形 した. こちらの rCFRP を ID2610 とする. また, 試験片の 繊維体積含有率 (Vf) とボイド率(Vv)を表 3 に示す. 引張 試験の条件は熱硬化性樹脂の試験片と同様の条件で行っ た. また熱可塑性樹脂の試験片は DIC を実施しなかった. ID2610の試験片の引張強さの平均と弾性率を表4に示す. 熱硬化の樹脂を使用した WIRE 13, WIRE ER02 の試験片 と比べ、熱可塑性の樹脂を使用した試験片のほうは平均 引張強さが大きいことがわかった. 引張試験後の試験片 を図 14 に示す. ID2610 の試験片は引張方向に垂直に破 断が発生した.より詳細な破断面を考察するために, SEM 観察を行った. それぞれの写真を図 15~18 に示す 図 15 より熱可塑性樹脂の試験片の破断面は大きく分 けて,赤色の範囲の繊維の引き抜きを伴って破断してい る面,青色の範囲の樹脂の破壊が支配的になって破断し ている面、黄色の範囲の表面に大きな繊維の束が発生し ている面が観察された. 代表的な 3 つの破断面を考察す るため、さらに倍率を上げて SEM 観察を行った.繊維の 引き抜きを伴って破断している面を図16に示す. 観察し た結果破面に多くの引き抜け穴と繊維が観察された.こ のことから、繊維の破断および繊維の引き抜けが発生し ていたことがわかる. 次に、樹脂の破壊が支配的になっ て破断している面を図17に示す. 観察した結果表面に繊 維があまりみられず、樹脂のみとなっている面と繊維の 引き抜きを伴って破断している面の繊維と比較し、短い 繊維が観察された.さらに詳しく観察した結果、繊維は 何本か束になって樹脂が付着していることが観察された. このことから破面のこの部分は樹脂破壊が支配的な破壊 であったことがわかる.最後に繊維束が存在していた破 面を図 18 に示す.



Fig. 14 ID2610 after tensile test.



Fig. 13 DIC WIRE ER02.

Table3 Fiber content and	void rate Effect of resin.
--------------------------	----------------------------

試験片	繊維体積含有率	ボイド率
	(Vf)	(Vv)
ID2610	34.8 %	7.2 %

Table4 Average tensile and elastic modulus Effect of resin.

試験片	引張強さの平均	弾性率	
	(MPa)	(GPa)	
ID2610	435	39.6	



Fig. 15 SEM image, ID2610.



Fig. 16 SEM image, ID2610, exposed fiber part.

対応する破断面の両側に図18に示すような繊維束が観察 された.代表的な3箇所の破断面を観察した結果,1か所 は繊維の引き抜きを伴った破断面があったが,破壊の起 点になったのは,繊維束が存在していた破断面だと考え る.成形する工程で,繊維束が荷重方向に対して垂直に 向かないよう成形する方法を考える必要がある.また繊 維が引き抜けたと考えられている破面と樹脂破壊が起き ている破面を比較した SEM 画像を図19に示す.引き抜 けが支配的となっている破面の繊維は樹脂を伴っておら ず,繊維のみとなっているのに対し,樹脂破壊の破面は 繊維周り



Fig. 17 SEM image, ID2610, filled fiber part.



Fig. 18 SEM image, ID2610, exposed fiber bundle part.



Fig. 19 SEM image, ID2610, exposed fiber part,(a) fiber breakage, (b) Resin destruction.

に樹脂が付着されていることがわかった.引き抜けた後 ではなく樹脂が付着した繊維と母材の界面破壊が起きた と考えられる.

4. 成形法の影響 5)

2章の試験片はオートクレーブ成形,3章の試験片はプレス成形で製作された.4章では、プリプレグ成形の rCFRPを加え、成形方法の影響について考察する.

プリプレグ成形では1項で使用した不織布を使用し, 250 × 150 mm の不織布シートを切り出した. 樹脂は, コバヤシ社で rCF 不織布用に開発したエポキシ樹脂シー ト (180℃硬化)を使用した. 不織布に対して (Vf) が 15 % 程度になるよう、樹脂シートの厚みを設定した. 積層し た rCF 不織布の両面に離型フィルムが付いたままの樹脂 シートを貼り付けた.これを離型フィルムとブリーザー マットで挟み,熱プレスで10分間,約0.3 MPaで加圧し てプリプレグを成形した. 温度は 100°C で行った. 2 ply のプリプレグを120 分間, 180°C, 0.5 MPa でオートクレ ーブ成形した.本サンプルを KOBA1 とする. 平均板厚は 1.77 mm であった. 更に, プリプレグの含浸性を上げるた め、真空熱プレスを用いて不織布内部の空気を抜きなが らプリプレグ化を行った.真空熱プレスで製作された高 含浸プリプレグから成形された rCFRP を KOBA2 とする. 平均板厚は1.19 mm であった. 各試験片の繊維体積含有 率(Vf)とボイド率(Vv)を表5に示す. KOBA1, KOBA2 の試験片の引張強さの平均と弾性率を表 6 に示す.引張 試験の条件は前章と同様の条件で行った. 同様の成形方 法のKOBA1とKOBA2を比較し引張強さの平均が異なっ たのは、ボイド率が高くなってしまっていることが原因 だと考察する. また, KOBA1, KOBA2 は DIC も実施し た. 引張試験後の KOBA1 の試験片を図 20 に, KOBA2 の試験片を図 21 に示す. プリプレグ成形で作られた KOBA1, KOBA2 共に複数箇所で破壊を伴っていた. ま た,幅方向ではなく,引張方向に沿って破断している箇 所もあり,他の成形法と異なり複雑に破壊している. KOBA1, KOBA2 ともに破断箇所が複数に分かれていた め, DIC 結

Table5 Fiber content and void rate Effect of Molding method.		
試験片	繊維体積含有率	ボイド率
	(Vf)	(V_V)
Koba1	18.7 %	3.4 %
Koba2	19.4 %	10.2 %

Table6 Average tensile and elastic modulus

Effect of Molding method.

試験片	引張強さの平均	弾性率
	(MPa)	(GPa)
Koba1	406	20.8

Koba2	338	21.6

果から初期破断が発生した箇所を推測した. DIC におけ る破断直前の画像をそれぞれ図 23,24 に示す.破断が発 生した箇所を赤線で DIC 画像に囲む.赤枠内で最もひず みが高い部分(白丸)について,SEM で断面観察を行っ た.

KOBA1の SEM 画像を図 25, 26 に示す.①の高ひずみ の部分を観察した結果破面に繊維はみられず樹脂の破壊 が支配的な破壊の仕方になっていた.②の高ひずみの部 分を観察した結果,樹脂破壊が発生している面と繊維の 引き抜けが同時に発生している破面が観察された.どち らも DIC の結果より高いひずみが確認されたことからど ちらが先に破壊した部分になるかはわからなかった.し かし,同じ成形をした WIRE13 のように繊維の引き抜け を伴っていない①の部分が先に破断したと予想する.

次に KOBA2 の SEM 画像を図 27~29 に示す. ③の破 断面は⑥と同様であったため,本論文では省略する.





11/10	en la serence	CREEK CONTRACTOR
224	an alexiste a second and and	and the second second
¢	1	@↩

Fig. 23 DIC KOBA1.



Fig. 24 DIC KOBA2



Fig. 25 SEM image,KOBA1,exposed resin destruction part.



Fig. 26 SEM image, KOBA1, exposed fiber part.



Fig. 27 SEM image, KOBA2, exposed resin destruction part.



Fig. 28 SEM image,KOBA2,exposed fiber part

図 27 は⑤の観察結果で、樹脂破壊が発生している面が支 配的である破面が観察された. 図 28 は⑥観察結果で、繊 維の引き抜きが支配的である破面が観察された. DIC の 結果では、どちらも高ひずみが確認されたことからどち らが先に破壊した部分になるかはわからなかった.しか し,2章で述べた WIRE13 では繊維の引き抜けを伴ってい ない部分が先に破断していたので、KOBA2でも⑤が先に 破断したと予想する.また⑥について、図28で観察した 場所の近傍についても SEM 観察を実施した. 結果を図 29, 30 に示す. 図 29 では, Geier の論文を参考に, ボイドと 考えられる部分を赤丸で囲むの.燃焼法より測定したボイ ド率が高かったことが破面からも観察できた. またこち らの試験片にも,図30に示すように繊維束が観察された. 繊維束を赤丸で囲む. 高いボイド率と荷重方向に垂直に 配向された繊維束が引張強さの低下に起因していると考 察する.



Fig. 29 SEM image,KOBA2,exposed void part.



Fig. 30 SEM image,KOBA2,exposed fiber bundle part.

5. 結論

今回試験片を比較し、繊維長による影響が CFRP の破 壊モードに与える影響を調べるために、繊維長一定の rCF と繊維長分布を持つ rCF をそれぞれ不織布にし, rCFRP に成形して引張試験を実施した結果、繊維長一定で成形 した rCFRP が高い引張強度を持つということがわかった. 繊維長一定の rCFRP は DIC の結果からも均一性が高いこ とが考察される. 繊維長に分布を持つ rCFRP は成形した 際、繊維の端部が集中してしまう可能性がみられた. そ の部分に大きなひずみが発生し、引張強度が低下すると 考察する.

樹脂の違いによる影響が CFRP の破壊モードに与える 影響を調べた結果,熱可塑性樹脂のポリアミド 6 を使用 した試験片は熱硬化性の樹脂を使用した試験片よりも平 均引張強さが大きくなることがわかった.また,試験片 の破面に繊維束がある部分があったことから破壊の要因 となっていると考察する. 成形する工程で、繊維束が荷重方向に対して垂直に向 かないよう成形する方法を考える必要がある.

成形方法の違いによる CFRP の破壊モードに与える影響を調べた結果, プレス成形の KOBA1 とオートクレーブ 成形の WIRE13 を比べた際, 引張強さはほとんど変わら ない結果となった, 成形方法の影響はほとんどないと考 察する.しかしながら, KOBA2 のように成形の際ボイド が入ってしまうということが発生してしまったため成形 工程でボイドが混入しないよう注意が必要であると考察 する.また, 繊維束が荷重方向に対して垂直に向かない よう成形する方法を考える必要がある.

謝辞

本研究を進めるにあたり,多くの方々にご支援いただ きました.ご指導いただきました JAXA 杉本直様,佐藤 美桜様,日本毛織㈱ 伊勢智一様, 宮本弘毅, 福田泰弘 様,キグチテクニクス 市川雅章様にご協力いただきまし たことを深謝します.

参考文献

 柴田勝司,炭素繊維プラスチック(CFRP)ガラス繊維プ ラスチック(GFRP)のリサイクル技術とその応用,日本テ クノセンターセミナー,(2011).

 2) 森脇嵩大,他,連続生産能力を有するリサイクル CF 不織布の製造プロセスと高 Vf 成形プロセスの検討,第43 回複合材料シンポジウム,(2018).

3) 東出真澄,他,リサイクル炭素繊維の繊維長分布が CFRP 成形後の引張特性に与える影響,第11回 JCCM, (2021).

4) 戸梶恵郎,小川武史,堀智明,長炭素繊維強化プラ スチックの引張強さの分布とそのシミュレーション,

「材料」 (J. Soc. Mat. Sci., Japan), Vol.44, No.505, pp. 1267-1272, (1995)

5) 松岡幹人, 他, リサイクル炭素繊維不織布とエポキ シ樹脂シートによる プリプレグの試作, 第11回日本複 合材料会議, (2020).

6) Geier, N., Poór, D.I., Pereszlai, C. et al. Drilling of recycled carbon fibre–reinforced polymer (rCFRP) composites: analysis of burrs and microstructure. Int J Adv Manuf Technol 120, 1677–1693 (2022).