

技術論文

長ガラス繊維強化熱可塑性樹脂の ドライブレンド法による繊維含有率の調節

Controlling Fiber Content of Long Glass Fiber Reinforced Thermoplastics by Dry-Blending Method

吉川 忠作* 久賀 章市**
Chyusaku Yoshikawa Syoichi Kuga

Long glass fiber reinforced thermoplastics (LGFRTTP) is commercially supplied as only high glass fiber content grade. LGFRTTP with low glass fiber content was prepared by dry-blending commercial LGFRTTP with the matrix resin. It was expectedly found that mechanical properties of the prepared LGFRTTP were superior to those of short glass fiber reinforced thermoplastics, especially in flexural properties and impact strength. The glass fiber dispersion, which determines the degree of weight variation of injection-molded specimens, was found to be dependent on the uniformity of the blended material before supplying to the hopper.

1. 緒言

近年上市された射出成形加工が可能な長ガラス繊維強化熱可塑性樹脂（繊維長約13mm，以下LGFRTTP）^{1) 4)}は，従来の短ガラス繊維強化熱可塑性樹脂（繊維長3mm以下）に比べ，優れた機械的特性を有している。このLGFRTTPはプルルージョン法により製造されるため，ペレット製造時のガラス繊維の破損がほとんどなく，ガラス繊維含有率の高い材料を比較的容易に作るができる。現在はガラス繊維含有率40wt%以上の高含有率グレードのみが製造販売されている。ガラス繊維含有率の増加は，剛性，強度の増加をもたらすが，ガラス繊維強化樹脂の比重を大きくし，製品の軽量化の妨げとなる。LGFRTTPは優れた材料であるが，軽量化の求められる製品への使用には問題となる場合がある。

本研究は，このLGFRTTPのガラス繊維の低含有率化を試みた。通常の押出機を用いたLGFRTTPとマトリックス樹脂の材料混練によるLGFRTTPの低含有率化は，混練中にガラス繊維の破損を伴い，長繊維強化の特長が損なわれるため，ドライブレンドによるLGFRTTPのガラス繊維含有率の調節について検討した。すなわち，LGFRTTPと

マトリックス樹脂をドライブレンドすることにより低含有率のLGFRTTPを作製し，射出成形による試料作製の後，機械的特性（引張強度，曲げ強度，曲げ弾性率，アイゾット衝撃値）を調べた。また，ドライブレンドによる問題として考えられるガラス繊維の分散性の低下について，射出成形品重量のばらつきによって評価した。

2. 実験方法

市販のマトリックス樹脂 [ポリブタ ナイロン66, 1000-2, ポリプラスチック (株)] (以下PA0) とガラス繊維含有率40wt%および60wt%の長ガラス繊維強化ナイロン66 [セルストランPA, G40-4, G60-4, ポリプラスチック (株)] (以下PA40, PA60) を使用材料とし，ドライブレンドにより，長ガラス繊維含有率10, 20, 30 wt%材料 (以下GF10%材料, GF20%材料, GF30%材料) を作製した。材料作製に用いたマトリックス樹脂のペレット長が約3mmに対し，長繊維強化材料のペレット長は約13mmであり，ペレット長の差が大きいため，ドライブレンドによる混合材料ではガラス繊維の分散が不完全になる可能性が考えられる。このガラス繊維分散性を検討するため，表1に示す配合比により，成形機ホッパーへの材料供給方法の異なる材料A (A10, A20, A30)，材料B (B10, B20, B30)，材料C (C10, C20, C30) を作製した。材料AはPA0とPA40をVプレッターを用いて5kg単位で

* 材料技術部 プラスチック材料研究室

** 大阪グリップ化工 (株)

ドライブレンドすることにより作製し、射出成形加工の際、射出成形機ホッパに2~3kgずつ材料供給を行った。材料BはPA0とPA40を1ℓポリエチレン瓶の中で600g単位でドライブレンドすることにより作製し、射出成形機ホッパに瓶単位で材料供給を行った。材料Bは材料Aに比べ、ホッパへの材料供給を少量ずつ行うことにより、ホッパ内の材料分散性を安定させた材料である。材料CはPA0とPA60をVブレンダーを用いて5kg単位でドライブレンドすることにより作製し、射出成形機ホッパに2~3kgずつ材料供給を行った。材料Cは、材料A、材料Bとは異なるガラス繊維含有率のLGF RTPを使用することにより、表1のように材料配合比が異なり、ホッパに供給する際の長ベレット材料と短ベレット材料の比率を変化させた材料である。

射出成形加工による試料作製は、各材料を70℃で5hr真空乾燥した後、射出成形機（型締力100ton、スクリュウ径φ40mm）を用い、表2に示す成形条件で行った。また、材料A、B、Cによるガラス繊維分散性の比較を行うために、ショットごとの成形品の重量測定を成形直後に行った。

作製試料の、引張試験（JIS K7113、1号試験片、厚さ3mm）、曲げ試験（JIS K7203、厚さ4mm、幅10mm、支点間距離64mm）、アイゾット衝撃試験（JIS K7110、2号A試験片、厚さ3mm）を、インストロン材料試験機および衝撃試験機を用いて、1ヵ月間状態調節（温度23±2℃、湿度50±10%）した後、試験温度23℃、試験湿度50±10%で行った。

3. 結果と考察

(1) 機械的特性

材料A、B、Cの機械的特性の試験結果はほぼ等しかった。各機械的特性とガラス繊維含有率の関係を、材料Aの値を用いて図1~図4に示す。ここで、短ガラス繊維強化プラスチック材料の値はカタログ値を用いている。引張強度は、GF10%材料では大きな増加は見られないが、GF10~40%において直線的に増加している。しかし、短繊維強化材料との差は顕著ではない。曲げ強度、曲げ弾性率は、GF10、20、30%材料における増加が大きく、短繊維強化材料との差が顕著である。アイゾット衝撃値は、GF0~40%材料の間において直線的に増加しており、短

表1 材料配合比
Blending ratio of materials.

材 料 名	A 10 B 10	A 20 B 20	A 30 B 30	C 10	C 20	C 30
マトリックス樹脂 (PA0)	75 %	50 %	25 %	83.3 %	66.7 %	50 %
長繊維40wt% (PA40)	25 %	50 %	75 %	—	—	—
長繊維60wt% (PA60)	—	—	—	16.7 %	33.3 %	50 %
ガラス繊維含有率 (wt%)	10	20	30	10	20	30

ただし、B材料は、1ℓポリエチレン瓶に600gずつ配合

表2 成形条件
Injection molding condition.

ガラス繊維含有率	wt%	0	10	20	30	40
スクリュウ回転数	rpm	100	40	40	40	40
金 型 温 度	℃	80	80	80	80	80
スクリュウ背圧	MPa	3.9	4.9	4.9	4.9	4.9
射 出 圧 力	MPa	59	64	74	88	98
射 出 速 度	目盛	5.0	6.0	6.0	5.3	5.3
保 持 圧 力	MPa	69	69	69	74	74
射 出 時 間	sec	20	20	20	20	20
冷 却 時 間	sec	25	30	30	35	30
シリンダ温度	℃	250~280	250~290	250~290	250~295	265~290

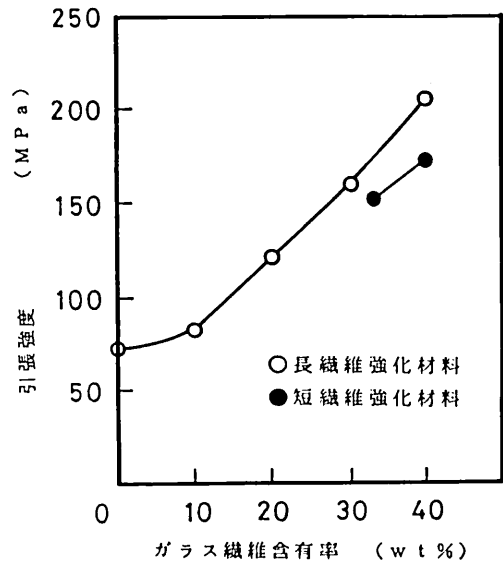


図1 ガラス繊維含有率と引張強度の関係

Relationship between glass fiber content and tensile strength.

繊維強化材料との差が顕著である。

これらの機械的特性の結果から、ドライブレンドにより作製したGF10、20、30%材料は、市販されているGF0、40%材料の中間的な物性値を示しており、長繊維強化の特性を有した材料であるということがわかる。また、長繊維強化材料は短繊維強化材料に比べ、曲げ特性と衝

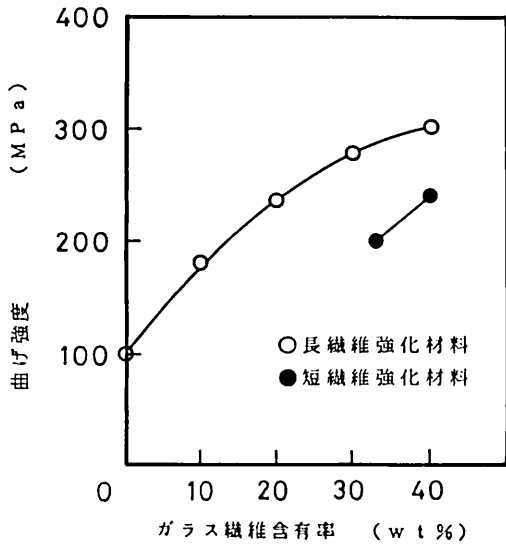


図2 ガラス繊維含有率と曲げ強度の関係

Relationship between glass fiber content and flexural strength.

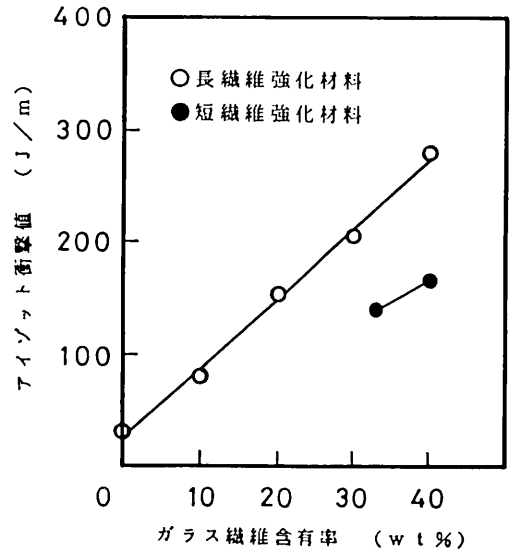


図4 ガラス繊維含有率とアイゾット衝撃強さの関係

Relationship between glass fiber content and Izot impact strength.

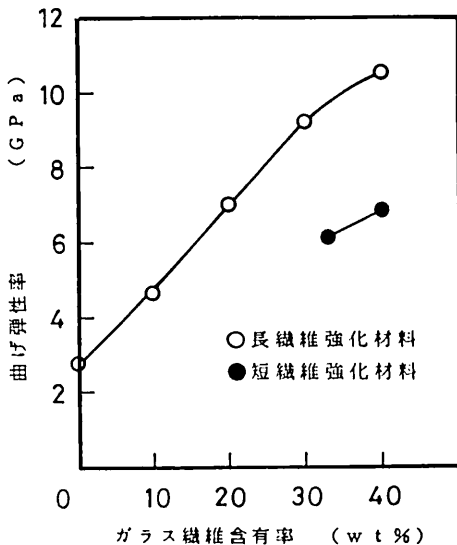


図3 ガラス繊維含有率と曲げ強度の関係

Relationship between glass fiber content and flexural modulus.

撃特性において非常に優れた値を示している。曲げ強度、曲げ弾性率、アイゾット衝撃値については、長繊維強化材料GF20%（比重1.28）と短繊維強化材料GF40%（比重1.47）が、ほぼ等しい値を示しており、材料の比重を10%以上低下できることがわかった。

(2) ガラス繊維の分散性

ドライブレンド材料のガラス繊維分散性を射出成形品の重量を測定することによって検討した。ショットごとの成形品重量の変化を、材料Aの値を例として図5に示す。

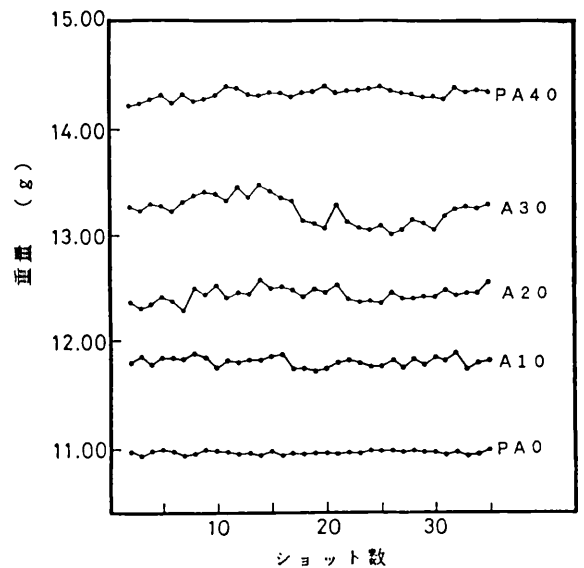


図5 ショットごとの成形品重量の変化(材料A)

Variation of injection molded specimens weight with continuous injection shots (material A).

特にGF30%の重量変化が大きかった。この傾向は、材料B、材料Cにおいても同様であった。GF30%材料における成形品重量分布のようすをヒストグラムとして図6に示す。材料B、材料A、材料Cの順で安定した重量の成形品が得られている。成形品重量のばらつきを定量的に評価するため、正規分布による標準偏差を求めた結果を図7に示す。ここで、各材料のサンプル数は35である。標準偏差値は、GF30%材料では材料Bが極端に良い値を示して

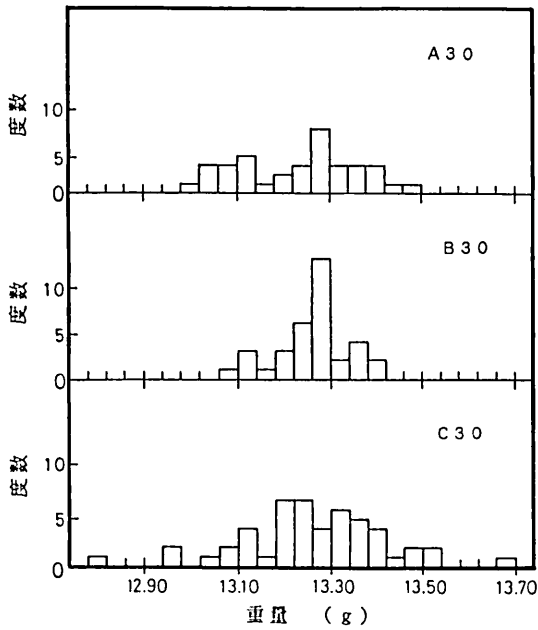


図6 成形品重量のヒストグラム

Histogram of injection-molded specimens weight.

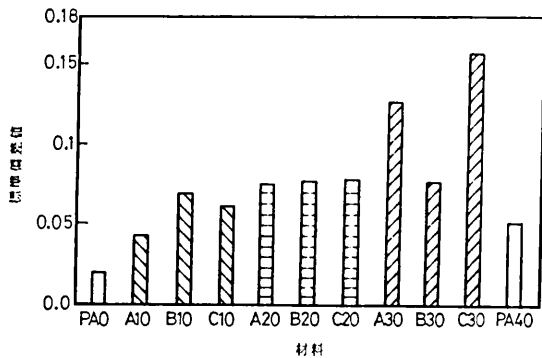


図7 成形品重量の標準偏差

Standard deviation of injection-molded specimens weight.

いるものの、GF20%材料では材料A、B、Cがほぼ同じ値、GF10%材料では材料Aがやや良い値という結果が得られた。また、今回ドライブレンドにより作製したGF10、20、30%材料は、単一材料であるPA40よりも成形品重量ばらつきが大きいことがわかった。

重量変化の大きかったGF30%材料においては、長繊維含有ペレットの比率が高いため、ブレンドを行った後にマトリックス樹脂ペレットが長繊維含有ペレットの間のすきまを通して下方にかたより、射出成形機のホッパーへ供給する際の2種類のペレットの分散が不完全になりやすいものと考えられる。そのため、ホッパー供給時の材料の分散性を安定させたB30材料が最も良い値を示している。

GF20%材料においては、材料A、B、Cがほぼ同じ値になっていることから、ホッパー供給時の材料の分散性はほぼ等しいものと考えられる。GF10%材料においては、材料Aが良い値を示しているが、その原因としてGF30%材料のようなホッパー供給時の材料分散性の違いであるとは考え難い。GF10%材料は、マトリックス樹脂の比率が高いため、射出成形機のシリンダ内における材料混練時にガラス繊維の分散が低下しやすい材料である。従って、成形加工時の材料混練条件のわずかな変化によって差が生じたものと考えられる。

また、ドライブレンドにより作製したGF10%材料、GF20%材料、GF30%材料は、単一材料であるPA40と比較すると成形品重量のばらつきが大きくなっており、ホッパーへの材料供給方法による対応では、ある程度までしかばらつきを低下できないことがわかった。これは、シリンダ内の材料混練においてガラス繊維が充分均一に分散されなかったためと考えられる。シリンダ内の混練効果を高める方法としては、スクリュウ背圧を上げる、スクリュウ回転数を上げる、L/D(スクリュウ長L、スクリュウ直径D)の大きいスクリュウを用いる等が考えられる。これらの方法によるガラス繊維分散性の向上が期待されるが、同時にガラス繊維の破損の増加が予想される。

4. 結論

ガラス繊維含有率の高い長ガラス繊維強化材料とそのマトリックス樹脂をドライブレンドすることにより低含有率の長ガラス繊維強化材料を作製し、従来の短ガラス繊維強化材料と比較検討を行った。その結果、同じガラス繊維含有率で比較すると、前者の方がいずれの機械的特性についても後者よりかなり優れた値を示した。特に、曲げ強度、曲げ弾性率、アイゾット衝撃値では、長繊維強化材料GF20%(比重1.28)と短繊維強化材料GF40%(比重1.47)が、ほぼ等しい値を示し、材料の比重を10%以上低下でき、軽量化が促進できることがわかった。長ペレット材料と短ペレット材料のドライブレンド材料であることによるガラス繊維の分散性低下の問題について、ホッパーへの材料供給方法を変化して成形を行い、ガラス繊維の分散性を成形品重量の変化から検討した結果、ホッパー供給時の材料の分散性を高めることにより、改善が認められた。

参考文献

- 1) M. Zettler, E. Döring, Kunststoffe, 79, [9], 797, (1989)
- 2) 高野菊雄, プラスチックスエージ, 34, [10], 156, (1988)
- 3) 石塚正明ら, プラスチックスエージ, 36, [5], 206, (1990)
- 4) B. Schmid, Kunststoffe, 79, [7], 624, (1989)