

## ポリプロピレン／CNF複合材料を用いた自動車部品の試作

化学材料科 小泉雄輔 稲葉彩乃\* 菅野尚子 真野 毅  
静岡大学農学部 青木憲治  
芝浦機械株式会社 安倍賢次 岡本暢彦  
日本プラスト株式会社 遠藤和幸

## Injection molding for automotive parts using PP/CNF composites

KOIZUMI Yusuke, INABA Ayano, KANNO Naoko, MANO Tsuyoshi, AOKI Kenji, ANBAI Kenji,  
OKAMOTO Nobuhiro and ENDO Kazuyuki

Plastic/Cellulose nanofiber (CNF) composites are gaining considerable attention due to their excellent mechanical properties. We developed a masterbatch (MB) containing a high-concentration of CNF. In this study, we made two composites, normal-grade (MB and polypropylene) and high-impact-grade (MB, polypropylene and resin modifier) for injection molding of automotive parts (A-pillars). The tensile strength, flexural strength and flexural modulus of these composites are higher than polypropylene. The impact resistance of the high-impact grade is higher than the others. In addition to these mechanical tests, A-pillars consisting of these composites have been successfully obtained by the injection molding without any molding defects.

Keywords : Cellulose nanofiber (CNF), composite materials, resin modifiers, injection molding, automotive parts

新成長戦略研究事業の成果として、高濃度のCNFを含むマスターバッチ(MB)を開発した。このMBを用いてポリプロピレン／CNF複合材を作製し、自動車部品を成形した。比較のため、耐衝撃性を向上させた複合材も作製し、自動車部品の成形に使用した。成形テストの結果、ショートショットやガスの発生などがなく、通常の成形条件で成形できた。耐衝撃性を向上させた複合材の衝撃強さは上昇したが、引張強さや曲げ強さなどは低下した。総合的な物性評価の結果、自動車部品に要求される物性値と比較しても遜色ないものが得られた。今後、MBの低価格化が進むことで、本研究成果の普及が見込まれる。

キーワード：CNF、複合材、樹脂改質剤、射出成形、自動車部品

## 1 はじめに

セルロースナノファイバー(CNF)は、植物由来の繊維状物質であり、様々な分野で研究が進められている\*。すでに塗料や化粧品など製品化されているが、近年では樹脂製品の強度上昇を目的とした、樹脂強化材としての利活用を期待されている<sup>1)</sup>。現在、様々な企業から高濃度のCNFを含むマスターバッチ(MB)が提供されているが、CNFが良好に分散しない<sup>2)</sup>ことや、耐衝撃性の低下\*といった課題がある。新成長戦略研究「次世代自動車軽量化のためのCNF複合材の開発」(令和元年度～令和3年度)の結果、良好な分散性を示すMBを得たが、令和2年度までに耐衝撃性の

改善は見られなかった。さらに、令和2年度までの成形体は物性評価用の試験片のみであり、実製品の成形は未実施であった。また、低下した耐衝撃性の改善を目的とした配合材(樹脂改質剤)が様々な企業から提供されているが、本MBへの適用の可否が明らかになっていない。

本研究では、新成長戦略研究の令和3年度の取り組みとして、ポリプロピレン(PP)、MB及び樹脂改質剤を用いて各種複合材を作製し、自動車フロント部の窓枠部品で耐衝撃性が重要視されるAピラーの成形を試みたので報告する。

\* 現 沼津工業技術支援センター 機械電子科

## 2 方法

### 2.1 複合材料の作製

本研究は、新成長戦略研究(令和元年～令和3年)に基づき、自動車部品に多く使用されている樹脂であるPPを対象とした。開発したMB(CNF濃度30%、マレイン酸変性PP含有)をPP((株)プライムポリマー製)に希釈し、CNF濃度10%のPP/CNF複合材(以降、

表1 混練条件

スクリュ直径	12mm
スクリュ回転数	200rpm
バレル温度	130～160℃
L/D	45

表2 MFR値測定条件

試験方法	JIS K 7210:2014 A法(重量測定法)
試験荷重	2.16kg
試験温度	190℃
計量時間	5min
測定数	10

表3 引張試験条件

試験方法	JIS K 7161-1:2014
試験速度	5mm/min
つかみ具間距離	115mm
測定数	5

表4 曲げ試験条件

試験方法	JIS K 7171:2016
試験速度	5mm/min
圧子の先端半径	5mm
支持台コーナーの半径	5mm
支点間距離	64mm
測定数	5

表5 シャルピー衝撃強さ

試験方法	JJIS K 7111-1:2012 エッジワイズ (ノッチあり)
ハンマー容量	2J
支点間距離	62mm
測定数	10

標準タイプと表記)を作製した。また、このMBとPPに樹脂改質剤(三井化学(株)製  $\alpha$  オレフィンコポリマー、密度0.885g/cm<sup>3</sup>)を加え、CNF濃度10%、樹脂改質剤濃度10%の複合材(以降、耐衝撃タイプと表記)を作製した。両試料の作製には、二軸混練機(芝浦機械(株)製TEM-26SX-12/2V)を使用し、表1の条件で混練した。いずれの試料も混練前に原料同士を混合し、ホッパに投入した。得られたペレットを用いて、成形性評価の指標の一つである熔融流動性(MFR値)を表2の条件で測定した。

### 2.2 試験片及び自動車部品の成形・評価

得られた両試料を用いて、350t射出成形機により物性測定用試験片とAピラーを成形した。試験片成形時のバレル温度は200℃、Aピラー成形時は190℃とした。成形した試験片を用いて、万能材料試験機((株)エー・アンド・デイ RTC-2410)を使用し、引張強さを表3の条件で、曲げ強さ及び曲げ弾性率を表4の条件で求めた。曲げ弾性率の算出には、クロスヘッド移動量から求めた呼びひずみを使用した。また、シャルピー衝撃試験機((株)オリエンテック CIT-25J-CI)を用いて、表5の条件でシャルピー衝撃強さを求めた。試験片の一部を使用して、水中置換法により密度を測定した。CNFの分散性は、岡田らの方法<sup>3,4)</sup>を用いて評価した。成形したAピラーから、成形性と目視による外観を評価した。

## 3 結果及び考察

### 3.1 MFR値及び密度

MFR値の測定結果を表6に、密度の測定結果を表7に示す。

表6 MFR測定結果

試料名	MFR値(g/10min)
PP	30.4
標準タイプ	12.3
耐衝撃タイプ	9.76

表7 密度測定結果

試料名	密度(g/cm <sup>3</sup> )
PP	0.905
標準タイプ	0.952
耐衝撃タイプ	0.950

標準タイプのMFR値はPPより低下し、耐衝撃タイプは標準タイプより低下した。MFR値は熔融樹脂の流動性を数値的に示したものであり、MFR値が小さいものは流動長が短い傾向にある<sup>5)</sup>。MFR値のみでショートショット(金型内部に熔融樹脂が十分に充填されない成形不良)を評価することは難しいが、流動長が短いことを熔融樹脂の充填のされにくさと解釈すれば、MFR値の低い樹脂はショートショットが発生しやすいと考えられる。CNFの混練により密度は増加したが、標準タイプと耐衝撃タイプで大きな差がなかった。標

準タイプと耐衝撃タイプで密度がほぼ同じであったのは、樹脂改質剤の密度がPPに近いと考えられる。

### 3.2 物性測定及びCNF分散性

万能材料試験機を用いた試験結果を図1～図3に示す。いずれも、CNFの混練によって上昇したが、樹脂改質剤の混練により低下した。また、今回作製した両試料は、PPより高い値であった。シャルピー衝撃強さの測定結果を図4に示す。CNFの混練により衝撃強さはPPの約1.2倍に上昇し、樹脂改質剤の混練によりPPの約1.7倍に上昇した。標準タイプと耐衝

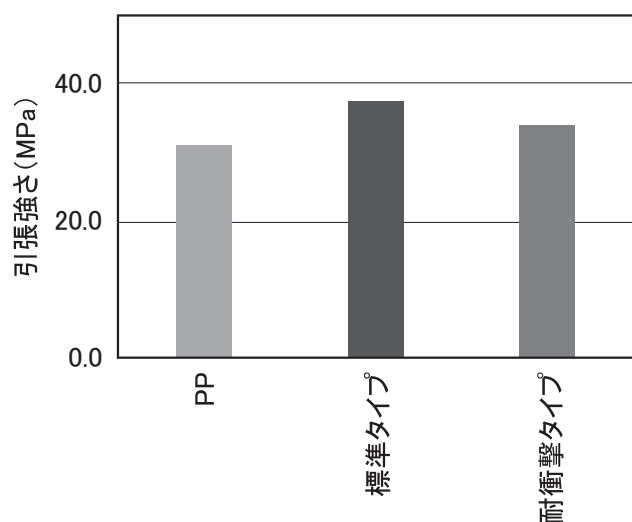


図1 引張強さ測定結果

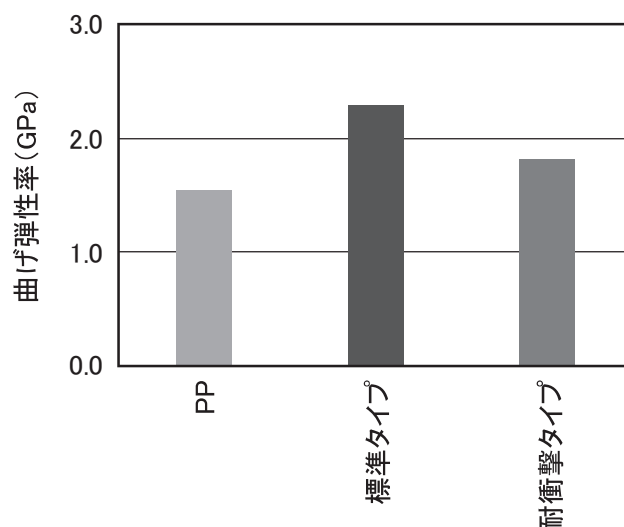


図3 曲げ弾性率測定結果

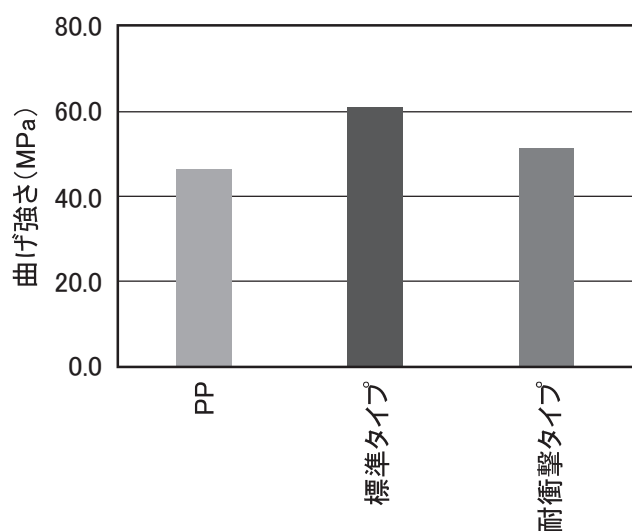


図2 曲げ強さ測定結果

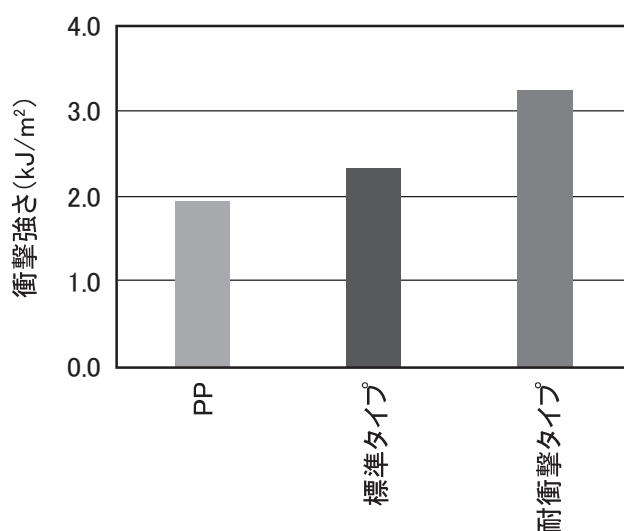


図4 シャルピー衝撃強さ測定結果

撃タイプを比較し、引張強さ、曲げ強さ、曲げ弾性率は低下し、衝撃強さは上昇した。これは、樹脂改質剤に含まれる軟質成分が配合されたためと考えられる<sup>6)</sup>。CNFの分散性を、岡田らの方法により数値的に評価した結果を図5、図6に示す。標準タイプ、耐衝撃タイプ共に良好な分散性であった。

### 3.3 成形性及び外観

成形したAピラーの外観を写真1に示す。いずれの成形体も、ショートショットや、成形体内部の空隙(ボイド)が発生することなく成形が可能であった。MFR値が低下してもショートショットが発生しなかったのは、使用した射出成形機がMFR値の低下を補うほどの性能を有していたためと考えられる。

令和2年度までの新成長戦略研究で得られた結果と同様に、CNFを添加した成形体の外観は全体が褐色であった。令和2年度までは、成形体全体に褐色の粒が点在していたのに対し、令和3年度の研究で得られた成形体は全体が褐色であり、粒状模様を確認できなかった。このことは、赤外分光分析による分散性評価結果と併せて、良好な分散性を示していると考えられる。本研究で得られたAピラー全体の褐色について、これまでの新成長戦略研究の知見から、①マレイン酸変性PPの未反応物、②マレイン酸変性PP同士の重合物、③CNFの未反応物のいずれかまたは全てを含む混合物によるものと考察される。

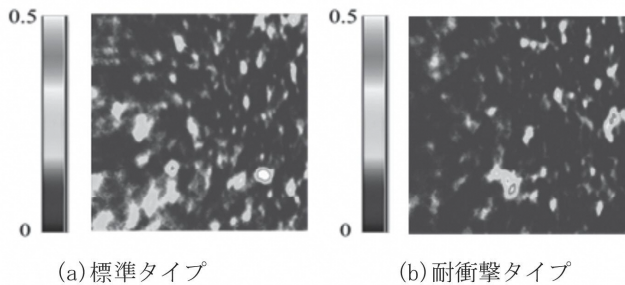


図5 赤外分光イメージング測定結果

セルロースに由来する赤外吸収ピークと、PPに由来する赤外吸収ピークの面積比を求め、可視化した画像

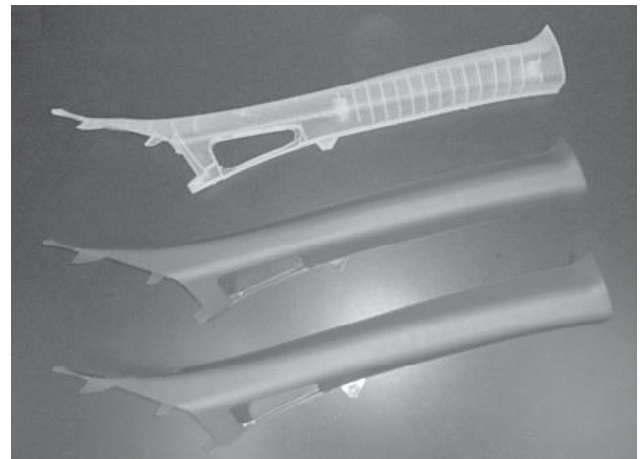


写真1 成形したAピラー  
(上:PP、中:標準タイプ、下:耐衝撃タイプ)

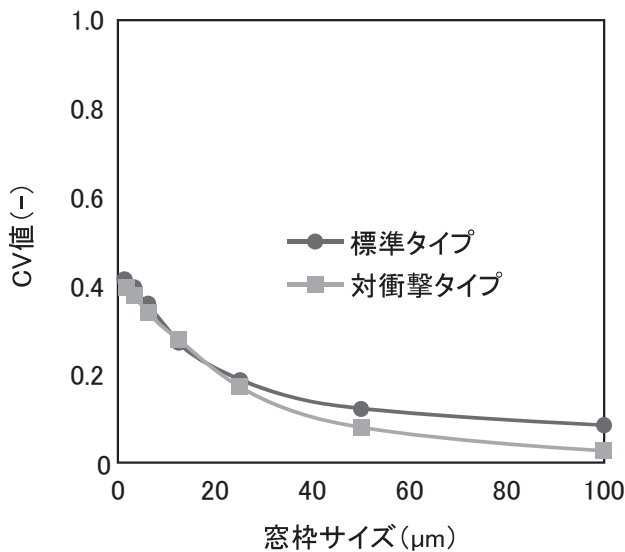


図6 相対標準偏差(CV値)と窓枠サイズのプロット

図5のイメージング測定結果から、岡田ら<sup>3), 4)</sup>の方法により、横軸に窓枠サイズ(μm)、縦軸にCV値(%)をプロットした

#### 4 まとめ

今回作製した標準タイプ及び耐衝撃タイプの両方で、自動車部品を成形できた。耐衝撃タイプは標準タイプより、引張強さ、曲げ強さ、曲げ弾性率は低下し、衝撃強さは上昇した。耐衝撃タイプの衝撃強さは、自動車部品に要求される水準に近い性能を得ることができた。今後は基準の物性値を達成できるよう、各原料の配合を検討していく予定である。

#### 参考文献

- 1) 秋山宏介 他：材料複合化, 「図解よくわかるナノセルロース」, 第2版 (日刊工業新聞社, 東京), ナノセルロースフォーラム 編集, pp. 152-155 (2015).
- 2) 吉田真人 他：セルロースナノファイバー分散材としてのポリグリセリン脂肪酸エステル機能の研究. 成形加工, 177-178 (2021).

- 3) 岡田きよみ 他：FT-IRイメージングを用いたポリマーコンポジット中の添加剤の分散評価法. 高分子論文集, 75(2), 212-220 (2018).
- 4) 岡田きよみ 他：FT-IRを用いたポリプロピレン中のセルロースナノファイバーの分散性解析. 成形加工, 251-252 (2017).
- 5) 本間精一：成形性, 「技術大全シリーズ プラスチック材料大全」, 初版(日刊工業新聞社, 東京), pp. 216-217 (2015).
- 6) 加藤 淳 他：耐衝撃性ポリマーアロイ. 日本ゴム協会誌, 82 (4), 167-174 (2009).

\* 環境省：平成30年度セルロースナノファイバーの性能評価事業委託. [https://www.env.go.jp/earth/ondanka/cnf/mat49\\_kyoto-univH30.pdf](https://www.env.go.jp/earth/ondanka/cnf/mat49_kyoto-univH30.pdf) (2022.3.16アクセス)