

熱可塑性FRPの高性能化と高度利用に関する研究  
 —高周波誘電加熱によるガラス繊維強化ポリプロピレンの接合—

佐野 勝\*<sup>1</sup> 小熊 広之\*<sup>2</sup> 関根 正裕\*<sup>3</sup>

Study on the use of high-performance and advanced thermoplastic FRP  
 —Welding of glass fiber reinforced polypropylene using high-frequency technology—

SANO Masaru\*<sup>1</sup>, OGUMA Hiroyuki\*<sup>2</sup>, SEKINE Masahiro\*<sup>3</sup>

抄録

炭化ケイ素 (SiC) を含有した熱可塑性接着層を高周波により加熱溶融し、ガラス繊維強化ポリプロピレン (GF/PP) を接合する方法を検討した。熱可塑性接着層の誘電特性に対するSiCの粒径及び含有率等の影響を調べた結果、粒径が小さく含有率が高い程 $\tan\delta/\varepsilon'$ 値は大きかった。また、これらの接着層を用いたGF/PPの高周波接合において、接合時間や接合強度に対するSiCの粒径及び含有率の影響を検討した結果、粒径が小さく含有率が高い場合に短時間で接合する傾向が見られ、最大で10 MPaの引張せん断強度が得られた。

キーワード：誘電加熱，ガラス繊維強化ポリプロピレン，接合，熱可塑性接着層

1 はじめに

昨今の地球温暖化問題や石油燃料価格の高騰を背景に、航空機や自動車分野において構造部材の軽量化による燃費向上が求められている<sup>1)~3)</sup>。その軽量化技術の1つに繊維強化プラスチック (FRP) の適用が挙げられ、中でも成形性の観点等から熱可塑性繊維強化樹脂 (FRTP) の産業利用へ向けた期待が大きくなってきている。

FRTPのマトリックス樹脂としては、現在ポリプロピレンが多く使用されている<sup>4), 5)</sup>。その部材同士の接合には従来の機械的締結や接着剤による方法があるが、重量軽減や加工時間短縮、接合強度の観点で優れる接合方法が望まれており、融着による方法も注目されている<sup>6), 7)</sup>。融着は加熱により溶融する特徴を

利用した接合法であり、誘電加熱による接合も融着法の一つである。この方法は塩化ビニルの接合には広く実用化されているが、ポリプロピレン自身は高周波により発熱しないため、そのままでは誘電加熱を接合に利用できない<sup>8)</sup>。

我々は前報<sup>9)</sup>にて、誘電セラミックスを添加して誘電特性を改良した熱可塑性接着層を用い、高周波誘電加熱によるポリプロピレンの接合技術について検討した。その結果、SiC、ZnO、アナターゼ型TiO<sub>2</sub>を20 vol%以上添加した熱可塑性接着層を用いることにより、高周波誘電加熱によるポリプロピレンの接合が可能となり、得られた接合試験片の引張せん断試験では母材破壊が起こった。また、熱可塑性接着層の高周波による加熱のされやすさは、 $\tan\delta/\varepsilon'$ の値と良好な相関があることが明らかとなった。

そこで本研究では、この方法による接合の対象を高強度のガラス繊維強化ポリプロピレン

\*<sup>1</sup> 技術支援室 化学技術担当

\*<sup>2</sup> 技術支援室 機械技術担当

\*<sup>3</sup> 技術支援室 戦略プロジェクト推進担当

(GF/PP) に広げ、接着層に添加するセラミックスの粒径、含有率等による誘電特性への影響を検討し、それらの熱可塑性接着層を用いてGF/PPの接合試験を行い、短時間で高い接着強度を得るための条件検討を行った。

## 2 実験方法

### 2.1 供試材料

被着材には GF/PP(TEPEX dynalite104、Bond-Laminates GmbH)を用いた。熱可塑性接着層の基材は、被着材との親和性を考慮してポリプロピレンペレット (ノバテック MH4、日本ポリプロ) を用いた。熱可塑性接着層に添加するフィラーとしては、ZnO やアナターゼ型 TiO<sub>2</sub> より軽量で種々の粒径が容易に得られる SiC を選択した。接着層に添加する粒度が異なる 4 種類の SiC(大平洋ランダム)を表 1 に示した。SiC の粒度はレーザー回折式粒度分布測定装置 (SALD-3100、島津製作所) を用いて測定し、メジアン径により表示した。

表 1 熱可塑性接着層に添加した各 SiC のメジアン径

製品名	GMF15H	GMF6S	NGF220	NGF80
メジアン径 (μm)	0.54	2.0	77	270

### 2.2 接着層組成物の作製

基材のポリプロピレンペレットに対し、表 1 に示した SiC 粒子を所定量配合し、ラボプラストミル (10C100 R60、東洋精機製作所) を用いて 200℃で 6 分間混練した。その後、この混練物を 200℃にて熱プレスし、厚さ 1 mm 及び 2 mm のシート状の熱可塑性接着層を作製した。

### 2.3 誘電特性の測定

所定の温度に設定した恒温槽 (ST-120、タバイエスペック) 内に設置した誘電材料テス

トフィクスチャ (16453A、横河 HP) に 20×20×2mm の熱可塑性接着層を設置し、インピーダンス/マテリアルアナライザー (HP4291A RF、横河 HP) を用いて、40 MHz における比誘電率 ( $\epsilon'$ )、誘電正接 ( $\tan\delta$ ) を測定した。

### 2.4 高周波による接合試験

図 1 に示したように、23×11×1 mm の熱可塑性接着層を 2 枚の GF/PP 板 (25×100×1.5 mm) の間に挟み、高周波誘電加熱装置 (FDA-102PJ-01、富士電波工機) の電極間に固定した。この状態で 40 MHz の高周波を Anode 電圧 3.5 kV、所定の電流値にて印加し、熱可塑性接着層を加熱熔融して、シングルラップ接合試験片を作製した。

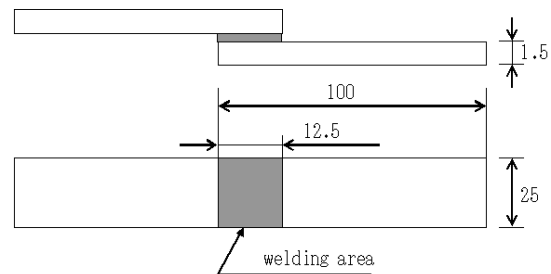


図 1 シングルラップ接合試験片

### 2.5 接合試験片の接着強度の評価

シングルラップ接合試験片の接着強度は万能材料試験器 (AG-100KNI、島津製作所) を用い、引張せん断試験により、つかみ具間距離 90 mm、試験速度 2 mm/min の条件下で評価した。

## 3 結果及び考察

### 3.1 熱可塑性接着層の誘電特性

粒径が異なる SiC 粒子を 10、20、30 及び 40 vol% 含有した熱可塑性接着層の  $\tan\delta/\epsilon'$  の温度依存性を図 2 (a) から (d) に示した。

SiC を添加していない基材のポリプロピレンの  $\tan\delta/\epsilon'$  は非常に小さく温度依存性は認められなかった (図 2 (a))。一方、粒径 0.54 μm の SiC を含有した熱可塑性接着層は温度上昇とともに  $\tan\delta/\epsilon'$

も大きくなり、いずれの SiC 含有率においても 150 °C における値は常温時の約 2 倍に上昇した。また、SiC 含有率が高いほどより大きな  $\tan\delta/\varepsilon'$  値となった。これまでに我々は、高周波による熱可塑性接着層の加熱のされやすさは  $\tan\delta/\varepsilon'$  と相関があり、この値が大きいほど加熱されやすいことを明らかにしてきた<sup>9),10)</sup>。このことから、粒径 0.54  $\mu\text{m}$  の SiC を含有した熱可塑性接着層では温度上昇により加熱が加速するため、融着には有利であると考えられる。一方、粒径が 2.0  $\mu\text{m}$  の場合は 100 °C までは  $\tan\delta/\varepsilon'$  の温度依存性がほとんど無く、100 °C を超えると含有率が 20 vol% 以上では  $\tan\delta/\varepsilon'$  が僅かに増加した。また、SiC 含有率が高いほど  $\tan\delta/\varepsilon'$  が大きくなる傾向だが、30 vol% 以上ではいずれの温度においても  $\tan\delta/\varepsilon'$  の値はほぼ同じであった。粒径が 77、270

$\mu\text{m}$  では温度上昇とともに  $\tan\delta/\varepsilon'$  の値が若干小さくなる傾向があった。

このように添加する SiC の粒径によって、熱可塑性接着層の  $\tan\delta/\varepsilon'$  値の温度依存性が大きく異なり、粒径が小さく、含有率が高いほど大きい  $\tan\delta/\varepsilon'$  値が得られた。SiC の粒径によって  $\tan\delta/\varepsilon'$  の温度依存性が異なる理由については、現在検討中である。

### 3.2 高周波誘電加熱によるGF/PPの接合試験および引張せん断試験

粒径が異なる SiC を含有した 4 種類の熱可塑性接着層を用いて GF/PP の高周波接合を行った。設定電流値は 130 mA とし、高周波印加中は放電防止のために低い圧力の 0.03 MPa で試料を保持した後、圧力を解除し接合試験を終了した。

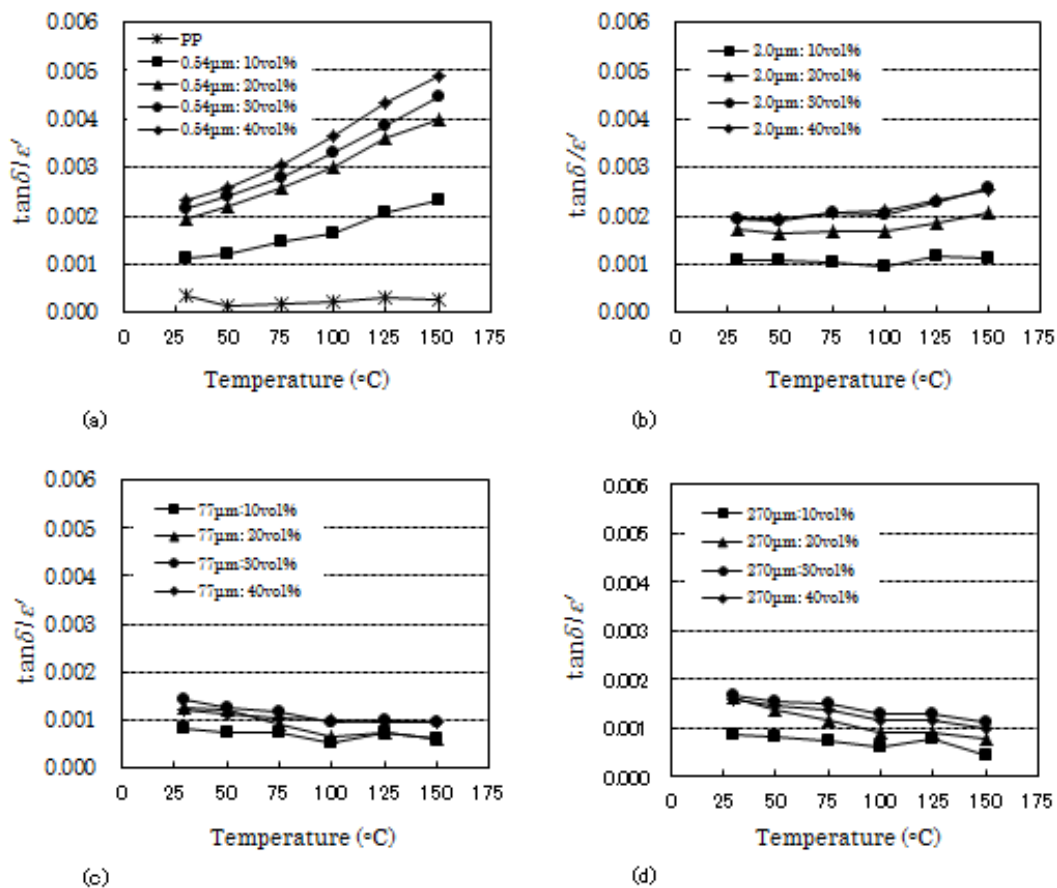


図2 種々の粒径のSiCを含有した熱可塑性接着層の $\tan\delta/\varepsilon'$ 値の温度依存性：  
(a) 0.54  $\mu\text{m}$  (b) 2.0  $\mu\text{m}$  (c) 77  $\mu\text{m}$  (d) 270  $\mu\text{m}$

GF/PP の接合条件および引張せん断試験結果を表2に示した。

SiCの粒径が0.54 μmでは、含有率が10 vol%では120 sの高周波印加でも接合せず、20 vol%以上ではSiCの含有率が高いほど短時間でGF/PPが接合し、接合試験片の引張せん断強度はいずれも約10 MPaに達した。図2(a)で示したように、SiC粒径が0.54 μmでは含有率が高いとtanδ/ε'が大きくなり、高周波による加熱が起りやすくなったと考えられた。

粒径が2.0 μmの場合は、含有率が10及び20 vol%では120 sの高周波印加でも接合せず、30及び40 vol%では50~60 sの高周波印加で接合したが、引張せん断強度は粒径が0.54 μmの場合よりも低く約7 MPaであった。また、同じ添加量で比較した場合、粒径0.54 μmよりも接合時間が長くなる傾向であった。

粒径が77及び270 μmの場合は、No.8を除く全てで130 mAよりも低い電流値で放電が起こった。このため、130 mAよりも低く、放電が起こる直前の電流値で高周波を印加したが、いずれの含有率においても120 sでの接合はできなかった。放電が起こった原因としては熱可塑性接着層内のボイド、被接着層と熱可塑性接着層間のエアギャップ、あるいは熱可塑性接着層表面の汚染

等様々な原因が考えられるが、粒径が77及び270 μmの場合にのみ放電が起こることの説明には不十分であり、さらなる検討が必要と考えられる。

#### 4 まとめ

SiCを含有した熱可塑性接着層を高周波により加熱熔融し、ガラス繊維強化ポリプロピレンを接合する方法を検討した。

熱可塑性接着層の誘電特性に対するSiCの粒径及び含有率等の影響を調べた結果、粒径が小さく含有率が高いほどtanδ/ε'値は大きかった。

これらの熱可塑性接着層を用いたGF/PPの高周波接合において、接合時間や接合強度に対するSiCの粒径及び含有率の影響を検討した結果、粒径が小さく含有率が高い場合に短時間で接合する傾向が見られ、最大で10 MPaの引張せん断強度が得られた。すなわち、tanδ/ε'の大きい熱可塑性接着層を用いることでGF/PPの短時間での接合が可能となり、高い接着強度が得られることが示された。

#### 謝 辞

本研究を進めるに当たりご指導いただきました東京工業大学精密工学研究所の佐藤千明准教授に感謝の意を表します。

表2 GF/PPの誘電加熱による接合試験条件及び引張せん断試験結果

No.	SiC粒径 (μm)	SiC含有率 (vol%)	電流値 (mA)	高周波印加時間 (s)	引張せん断強度 (MPa)
1	0.54	10	130	120	-
2		20		50	9.54
3		30		31	10.0
4		40		24	9.75
5	2.0	10, 20	130	120	-
6		30		60	7.33
7		40		54	6.92
8	77	10	130	120	-
9		20, 30, 40		120	-
10	270	10	130	120	-
11		20, 30, 40		115	120

参考文献

- 1) 中島正憲：航空機機体の製造技術，精密工学会誌, **75**, 8, (2009) 941
- 2) 和田原英輔，北野彰彦：炭素繊維強化プラスチックによる自動車の軽量化，繊維と工業, **64**, 9, (2008) 21
- 3) 北野彰彦：自動車軽量化に向けた炭素繊維複合材料(CFRP)－CFRP の特徴、現状、今後の課題，工業材料, **59**, 11, (2011) 37
- 4) 社団法人日本機械工業連合会，財団法人次世代金属・複合材料研究開発協会，平成 19 年度 熱可塑性樹脂複合材料の機械工業分野への適用に関する調査報告書, (2008) 49
- 5) 岩田輝彦，入口剛典，渡辺健二，鈴木繁生：自動車用樹脂バックドアモジュール，日立化成テクニカルレポート, **44** (2005) 21
- 6) 社団法人日本機械工業連合会，財団法人次世代金属・複合材料研究開発協会，平成 19 年度 熱可塑性樹脂複合材料の機械工業分野への適用に関する調査報告書, (2008) 42
- 7) 社団法人日本機械工業連合会，財団法人次世代金属・複合材料研究開発協会，平成 20 年度 熱可塑性樹脂複合材料の航空機分野への適用に関する調査報告書, (2009) 42
- 8) M.J. Troughton: Handbook of Plastics Joining, second ed., William Andrew, New York, (2009)59
- 9) 佐野勝，小熊広之，関根正裕：熱可塑性 FRP の高性能化と高度利用に関する研究－高周波誘電加熱によるガラス繊維強化ポリプロピレンの接合－，平成 24 年度埼玉県産業技術総合センター研究報告, **11**, (2013)
- 10) M. Sano, H. Oguma, M. Sekine, C. Sato: High-frequency welding of polypropylene using dielectric ceramic compounds in composite adhesive layers, Int. J. Adhes. Adhes. **47** (2013) 57–62.