

## 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

## —High-frequency welding of polypropylene—

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

## 抄録

誘電セラミックスを添加した接着層組成物を40MHzの高周波印加により熔融させてポリプロピレンを接合する方法を検討した。ポリプロピレンに対し種々の誘電セラミックスを一定体積比にて添加混練した接着層組成物の誘電特性を測定した結果、SiCを40vol%添加した時の損失係数が最も大きかった。各接着層組成物を2枚のポリプロピレンに挟み高周波を印加した結果、20vol%のアナターゼ型TiO<sub>2</sub>、20、40vol%のZnO及びSiCを添加した場合に40～70秒で接着層組成物が熔融して被着材のポリプロピレン板と強固に接合し、引張せん断試験において母材破壊を起こした。また、本接着試験における高周波による接着層組成物の加熱のされやすさはtanδ/ε'と相関が認められた。

キーワード：高周波誘電加熱、ポリプロピレン、誘電セラミックス、接着層組成物

## 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、中でも熱可塑性繊維強化プラスチック(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、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

により熔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る発熱を起こさないため、そのままでは誘電加熱を接合に利用できない<sup>8)</sup>。

そこで本研究では、誘電セラミックスを添加し誘電特性を改良したポリプロピレンを接着層組成物として用い、高周波誘電加熱を用いて接着層組成物を熔融させることによりポリプロピレンを接合する方法について検討した。

## 2 実験方法

## 2.1 供試材料

被着材にはポリプロピレン板(PP-8000、積水成型工業)を用いた。接着層組成物の基材は、

\*<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

被着材との親和性を考慮してポリプロピレン（ノバテックMH4、日本ポリプロ）を用いた。誘電セラミックスには比誘電率が比較的大きく、入手しやすいBaTiO<sub>3</sub>(関東化学)、アナターゼ型TiO<sub>2</sub>(関東化学)、ルチル型TiO<sub>2</sub>(関東化学)、ZrO<sub>2</sub>（関東化学）、ZnO（和光純薬工業）、SiC（大平洋ランダム）を用いた。また、各誘電セラミックスの粒度分布はレーザー回折式粒度分布測定装置（SALD-3100、島津製作所）を用いて測定した。各誘電セラミックスの比誘電率の文献値及びメジアン径を表1に示す。

表1 各誘電セラミックスの比誘電率(文献値)及びメジアン径

	比誘電率	メジアン径(μm)
BaTiO <sub>3</sub>	1700 <sup>9)</sup>	1.4
ZrO <sub>2</sub>	12.5 <sup>10)</sup>	14
TiO <sub>2</sub> (rutile)	85.8 <sup>10)</sup>	0.55
TiO <sub>2</sub> (anatase)	48 <sup>11)</sup>	0.64
ZnO	10~36 <sup>11)</sup>	0.96
SiC	10~20 <sup>9)</sup>	0.54

## 2.2 接着層組成物の作成

基材のポリプロピレンに対し、各誘電セラミックスを20及び40vol%の割合で配合し、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1mm及び2mmのシート状の接着層組成物を作成した。

## 2.3 誘電特性の測定

30℃に保持した恒温槽（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（I6453A、横河HP）に20×20×2mmの接着層組成物を設置し、インピーダンス/マテリアルアナライザ（HP4291A RF、横河HP）を用いて、10～

300MHzの範囲での比誘電率( $\epsilon'$ )、誘電正接( $\tan\delta$ )から損失係数( $\epsilon'\tan\delta$ )を測定した。損失係数は熱となって消費される損失電力の尺度であり<sup>12)</sup>、高周波による接着層組成物の加熱されやすさと考えられたため、誘電特性の評価は損失係数を用いて行った。

## 2.4 高周波印加による接合試験

図1に示したように、23×11×1mmの接着層組成物を2枚のポリプロピレン板(25×100×1.5mm)の間に挟み0.13MPaの圧力で高周波誘電加熱装置(FDA-102PJ-01、富士電機)の電極間に固定した状態で40MHz、3.5KVの高周波を印加し、シングルラップ接合試験片を作成した。

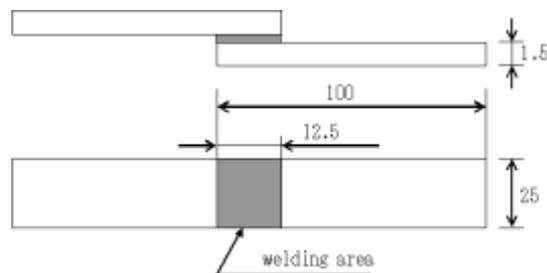


図1 シングルラップ接合試験片

## 2.5 接合試験片の評価

シングルラップ接合試験片の接着強さは万能材料試験器（島津製作所、AG-100KNI）を用い、JIS K6850に準じた引張せん断試験（つかみ具間距離112.5mm、試験速度100mm/min.）により評価した。

## 3 結果及び考察

### 3.1 接着層組成物の誘電特性

誘電セラミックスを20vol%添加した接着層組成物の損失係数を図2に示す

20vol%添加した接着層組成物の損失係数はアナターゼ型TiO<sub>2</sub>を添加したときに最も増大し、ZnO、SiCの添加によりそれに次ぐ変化がみられた。またアナターゼ型TiO<sub>2</sub>添加の場合、低周波数域で損失係数が顕著に大きくなった。

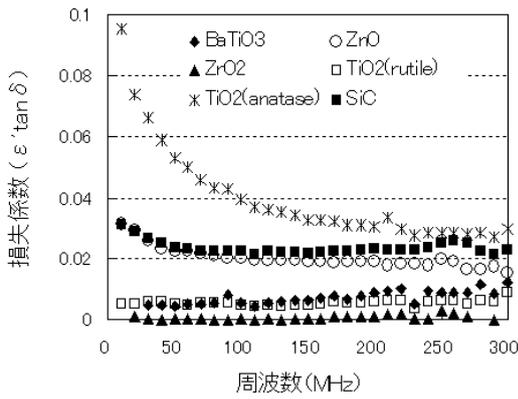


図2 誘電セラミックスを20vol%添加した接着層組成物の損失係数

次に誘電セラミックスを40vol%添加した接着層組成物の損失係数を図3に示す。

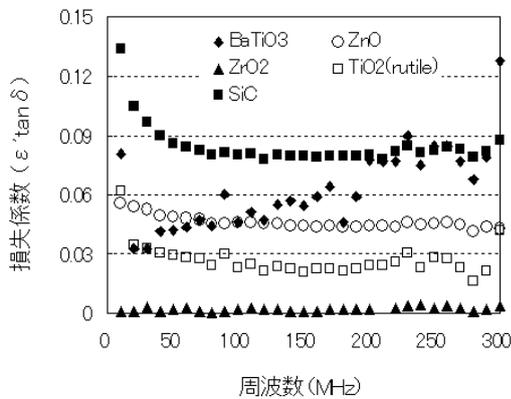


図3 誘電セラミックスを40vol%添加した接着層組成物の損失係数

アナターゼ型TiO<sub>2</sub>を40vol%添加した場合、混練中に混合物が粒塊状となりシート状に成形できなかったため、以後の試験は実施しなかった。

誘電セラミックスを40vol%添加した場合は、損失係数はSiCが最も大きく、ZnO、BaTiO<sub>3</sub>がそれに次いだ。これらの結果について、今回の接合試験に用いる高周波誘電加熱装置の高周波発振周波数である40MHzにおける損失係数を添加量に対してプロットした。結果を図4に示す。

損失係数はSiCを40vol%添加したときに最も大きく、20vol%のアナターゼ型TiO<sub>2</sub>、

40vol%のZnO、BaTiO<sub>3</sub>、ルチル型TiO<sub>2</sub>を添加した場合がそれに次いだ。

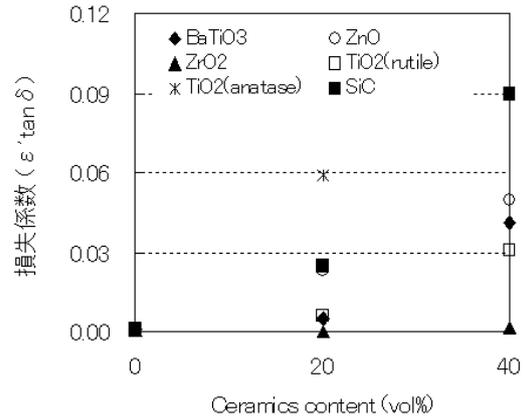


図4 40MHzにおける各接着層組成物の損失係数

また、BaTiO<sub>3</sub>、ZnO、ルチル型TiO<sub>2</sub>、SiCは添加量が増加すると損失係数も増大する傾向であったが、ZrO<sub>2</sub>は40vol%添加してもポリプロピレンの値（セラミックス配合率0%）とほとんど変わらなかった。

### 3.2 高周波印加による接合試験および引張せん断試験

各接着層組成物を用いてポリプロピレン板の接合試験を行った結果を表2に示す。

20vol%のアナターゼ型TiO<sub>2</sub>、20、40vol%のZnO及びSiCを添加した接着層組成物を用いた場合に40~70secで高周波により接着層組成物が熔融し、被着材のポリプロピレン板と強固に接合し、引張せん断試験において母材破壊を起こした。

一方、被着材破壊した20vol%のアナターゼ型TiO<sub>2</sub>やZnOより大きい損失係数を有する40vol%のBaTiO<sub>3</sub>やルチル型TiO<sub>2</sub>を添加した接着層組成物では、高周波誘電加熱による熔融は起こらず、被着材と接合しなかった。このことから、損失係数が大きい接着層組成物が必ずしも高周波により熔融されやすい訳ではないことが示唆されたため、次のように考えた。

図5に今回行った高周波誘電加熱による接合試験の系を簡略化して示した。

表2 接着層組成物を用いた高周波接合試験及び引張せん断試験

セラミックス	添加量 (vol%)	高周波接合及び引張せん断試験			
		印加電流 (mA)	印加時間 (sec)	引張せん断強度 (MPa)	破壊形態
BaTiO <sub>3</sub>	20	150	120	0	-
BaTiO <sub>3</sub>	40	150	120	0	-
TiO <sub>2</sub> (anatase)	20	130	60	3.9	母材破壊
TiO <sub>2</sub> (rutile)	20	150	120	0	-
TiO <sub>2</sub> (rutile)	40	150	120	0	-
ZrO <sub>2</sub>	20	150	120	0	-
ZrO <sub>2</sub>	40	150	120	0	-
ZnO	20	130	40	3.8	母材破壊
ZnO	40	125	40	3.8	母材破壊
SiC	20	140	70	3.9	母材破壊
SiC	40	130	60	3.8	母材破壊

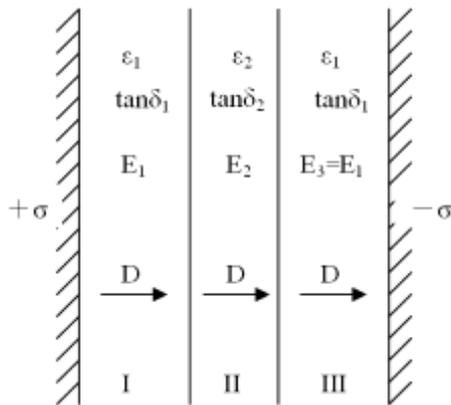


図5 接合試験系の概略図

このような積層誘電体の系においては電極に存在する電荷密度σは均一で、各誘電体層を通過する電束密度Dは一定となる<sup>13)</sup>。ここで、 $D = \epsilon E$ の関係から、各誘電体層の電界の強さ $E_1$ 、 $E_2$ 、 $E_3(=E_1)$ は

$$E_1 = E_3 = D / \epsilon_1 \quad E_2 = D / \epsilon_2$$

となり、これを誘電体の単位体積あたりの電力損失の関係式

$$p = 2\pi f \cdot E^2 \cdot \epsilon \cdot \tan\delta \quad (\epsilon: \text{誘電率})$$

に代入すると、被接着層における電力損失、 $p_1$ 、 $p_3$ 、接着層における電力損失、 $p_2$ は

$$p_1 = p_3 = k \cdot D^2 \cdot \tan\delta_1 / \epsilon_1'$$

$$p_2 = k \cdot D^2 \cdot \tan\delta_2 / \epsilon_2' \quad (k \text{は定数})$$

で表される。本実験系では接着層組成物の違いによるDの変化は少なかったことから、積層誘電体として考えられる本実験系における接着層の誘電加熱のされやすさは、接着層組成物の  $\tan\delta/\epsilon'$  を指標として評価する事ができると考えた。

そこで、各種誘電セラミックスを加えた接着層組成物の40MHzにおける  $\tan\delta/\epsilon'$  を図6に示した。

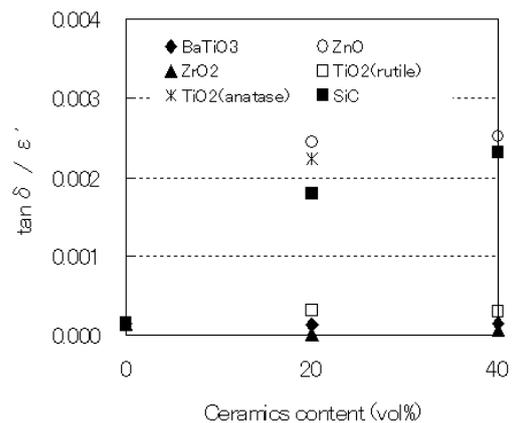


図6 40MHzにおける各接着層組成物の  $\tan\delta/\epsilon'$

20vol%のアナターゼ型TiO<sub>2</sub>、ZnO、SiCおよび40vol%のZnO、SiCを添加した接着層組成物ではtanδ/ε'が大きく、40vol%添加のルチル型TiO<sub>2</sub>及びBaTiO<sub>3</sub>ではtanδ/ε'が小さい結果となった。表2の結果と比較すると、tanδ/ε'の値が大きい場合に高周波による接着層組成物の溶融が起り、ポリプロピレンが接合する結果となっている。このことからtanδ/ε'を指標として接着層組成物の配合調整をすることにより、誘電加熱による接合が可能になるものと考えられた。

#### 4. まとめ

誘電セラミックスを添加して誘電特性を改良した接着層組成物を用い、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。

種々の誘電セラミックスを検討したところ、接着層組成物の損失係数の改善にはSiCを40vol%添加した場合で最も高い効果が認められた。

また、SiC、ZnO、アナターゼ型TiO<sub>2</sub>を20vol%以上添加した接着層組成物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った。得られた接合試験片の引張せん断試験では母材破壊を起こした。

接着層組成物の高周波による加熱のされやすさは、tanδ/ε'の値と良好な相関があった。

#### 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。

#### 5. 参考文献

- 1) 中島正憲：精密工学会誌, **75**, 8 (2009)941
- 2) 和田原英輔, 北野彰彦：繊維と工業, **64**, 9 (2008) 21
- 3) 北野彰彦：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：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) Michael J. Troughton : Handbook of Plastics Joining (Second Edition), (2009) 59
- 9) 日本化学会編：化学便覧 基礎編 I, 丸善, (1984) 553
- 10) 日本化学会編：化学便覧 基礎編 II, 丸善, (1984) 505
- 11) ファインセラミックス事典編集委員会編：ファインセラミックス事典, 技報堂出版, (1987) 70,317
- 12) 井上祥平, 宮田清蔵：高分子材料の化学, 丸善, (1993) 81
- 13) 高橋勘次郎, 深町成一, 渡辺哲哉, 久保田喜郎：高周波の工業への応用, 東京電機大学出版局, (1977) 164