

オゾン酸化処理による CFRTP の接着性向上に関する研究

日大生産工(院) ○小倉 慎ノ介 日大生産工 平山 紀夫 染宮 聖人
日東紡績(株) 中井 康英 原島 俊介 中村 幸一

1. 緒言

熱可塑性樹脂でありスーパーエンジニアリングプラスチックであるポリエーテルエーテルケトン（以下、PEEK）は優れた機械的特性、耐熱性・難燃性、耐摩耗性及寸法安定性を有していることから歯科材料や航空宇宙分野などで利用されている。その一方で、PEEKは主鎖中に複数の芳香族間を含み、それらをエーテル結合およびケトン結合で連結した高分子骨格である。この構造は化学的に非常に安定しており、極性官能基を持たないため、表面エネルギーが低く濡れ性が悪い。そのため、PEEKは接着剤や樹脂材料などの他材料との界面において化学結合しにくいと、接着強度が著しく低下しやすい。

そこで本研究では、PEEKをマトリックスとする炭素繊維強化熱可塑性樹脂（以下、PEEK-CFRTP）に対して表面改質処理を実施し、接着性の向上を試みた。本報告では、PEEK-CFRTPは2種類の接着試験からPEEK-CFRTPに表面改質処理を施した場合の接着強度と剥離形態を観察し、表面改質処理が接着性に及ぼす影響について明らかにした。

2. 表面改質処理

本研究では、表面改質処理として、紙ヤスリでPEEK-CFRTPの表面を研磨するサンドペーパー処理とPEEKの表面をオゾンにより酸化させるオゾン酸化処理の2種類を採用した。

2.1 サンドペーパー処理

サンドペーパー処理は、PEEKの表面に微細な凹凸ができ、接着面積が増加するため、接着強度の向上が期待される²⁾。本研究では、＃400の耐水研磨紙でPEEK-CFRTPの表面をやすり、その後、エタノールで表面を拭き上げた。

2.2 オゾン酸化処理

先行研究において、熱可塑性フィルムをオゾン酸化処理すると、表面に酸素含有官能基が付与され、界面接着性が向上することが確認されている。本研究では、無声放電式オゾン発生器によりオゾン酸素混合ガスを発生させ、

PEEK-CFRTPの表面を酸化させた。オゾン濃度は 142g/m^3 とし、処理時間は1時間とした。

以上の表面改質処理をTable1に示す3種類の条件で実施した。

Table1 Treatment of PEEK-CFRTP

	Process		
	Untreated	Sandpaper Treatment	Ozone Treatment
No.1	○	-	-
No.2	-	-	○
No.3	-	○	○

○ : Treatment - : Untreatment

3. 成形方法および試験方法

3.1 成形条件と供試体

PEEK-CFRTPのマトリックス樹脂にはフィルム状のPEEK（ACTIV Film 1000-100G, VICTREX社製）を12枚使用した。一方で、強化繊維には平織炭素繊維（W3101, 帝人(株)）を10枚用いた。

成形方法はプレス成形法を採用した。プレス条件は、圧力をかけない状態で $415^{\circ}\text{C}\times 45\text{min}$ の条件でPEEKを熔融させた後、 $5.0\text{MPa}\times 25\text{min}$ の条件で成形した。また、PEEK-CFRTPの接着には速硬化タイプの常温硬化型二液性エポキシ樹脂（2086M, (株)スリーボンド）を使用した。

3.2 十字剥離接着試験

本研究で表面改質処理を施したPEEK-CFRTPの接着性の向上度合いを評価するために十字剥離接着試験を実施した。試験片寸法は厚さ2mm、幅25mm、長さ100mmとし、試験片を十字に重ね合わせて接着させた。試験片は、接着剤を十分に自然乾燥させたものを使用した。ここで、十字剥離接着試験片の概略図をFig.1に示す。試験機には万能試験機（AG-1, (株)島津製作所）を使用した。引張速度は 1mm/min とし、剥離したときの最大荷重を測定し、接着長さで除して、接着強度を算出した。

3.3 引張せん断接着強さ試験

本研究で表面改質処理を施したPEEK-CFRTPの接着性の向上度合いを評価するためにJIS K 6850に準拠した引張せん断接着強さ試験を実施した。試験片寸法は厚さ2mm、幅

Study on Improving the Adhesion of
CFRTP by Ozone Oxidation Treatment

Shinnosuke OGURA, Norio HIRAYAMA, Masato SOMEMIYA
Yasuhide NAKAI, Shunsuke HARASHIMA and Koichi NAKAMURA

25mm, 長さ100mmとし, 試験片の先端部を重ね合わせて, 両端部に当て板を接着させた. 接着後, 十分に自然乾燥させたものを接着試験片とした. ここで, 引張せん断接着強さ試験片の概略図をFig.2に示す. 試験機は万能試験機 (AG-1, 株式会社島津製作所) を使用し, 引張速度は0.2mm/minで実施し剥離したときの最大荷重を測定し, 接着面積で除して, 接着強度を算出した.

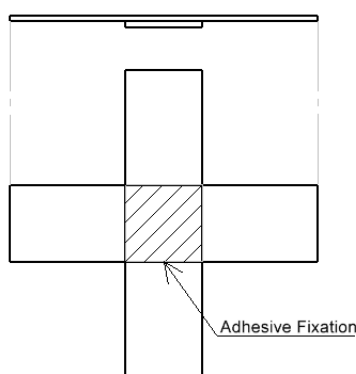


Fig.1 Schematic diagram of cross-peel adhesion test sample.

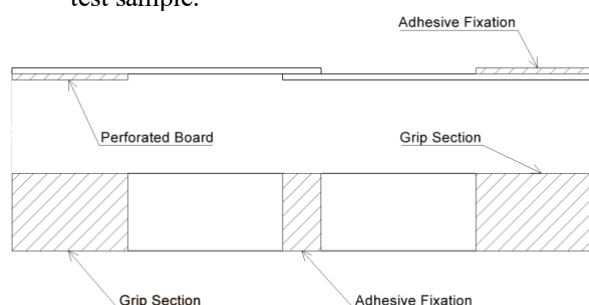


Fig.2 Schematic diagram of tensile shear bond strength test sample.

4. 実験結果

4.1 十字剥離接着試験

十字剥離接着試験によって得られた各 PEEK-CFRTP の接着強度を Fig.3 に示す. Fig.3 に示すように, 表面改質処理を施していない PEEK-CFRTP の接着強度は約 2.37N/mm, オゾン酸化処理を施した PEEK-CFRTP の接着強度は約 5.60N/mm, サンドペーパー処理とオゾン酸化処理を施した PEEK-CFRTP の接着強度は約 6.53N/mm であった.

4.2 引張せん断接着強さ試験

引張せん断接着強さ試験によって得られた結果を Fig.4 に示す. Fig.4 に示すように, 表面改質処理を施していない PEEK-CFRTP の接着強度は約 2.70N/mm², オゾン酸化処理を施した PEEK-CFRTP の接着強度は約 3.02 N/mm², サンドペーパー処理とオゾン酸化処理を施した

PEEK-CFRTP の接着強度は約 3.63N/mm² であった.

以上の結果より, サンドペーパー処理およびオゾン酸化処理により界面接着性が向上し, 接着強度が増加することが確認できた.

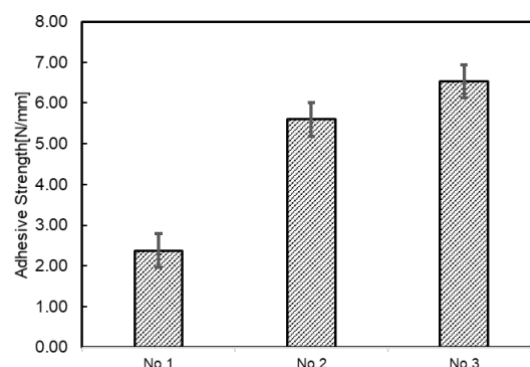


Fig.3 Bond strength of cross peel adhesion test in different condition.

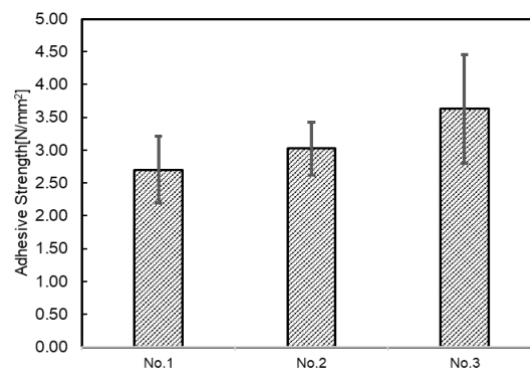


Fig.4 Bond strength of tensile shear adhesion strength test in different condition.

5. 結言

本研究では, PEEK-CFRTP に対して表面改質処理を施し, 接着性の向上を試みた. その結果, 未処理の PEEK-CFRTP と比較して, サンドペーパー処理とオゾン酸化処理を実施することで PEEK-CFRTP の引張接着強度は約 2.7 倍, せん断接着強度は約 1.3 倍向上することが分かった.

参考文献

- 1) 高木清嘉, 加茂宗太, 長谷川剛一, 松本拓也, 西野孝, 高原淳, スーパーエンブラ PEEK 樹脂の革新的接着技術の開発, 三菱重工技報, Vol.58 No.4 (2021) pp.1-7
- 2) 村上 高宏, 田中 譲治, 菅野 岳志, 笹谷 和伸, 水口 稔之, 岩野 義弘, 三輪 武人, 表面処理法および各種接着システムの種類がポリエーテルケトンケトンの接着に及ぼす影響, 日本口腔インプラント学会, Vol.32 No.4 pp.332-338