

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2018年1月18日(18.01.2018)



(10) 国際公開番号

WO 2018/012543 A1

- (51) 国際特許分類:
B29C 65/14 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/025428
- (22) 国際出願日: 2017年7月12日(12.07.2017)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2016-138523 2016年7月13日(13.07.2016) JP
- (71) 出願人: ポリプラスチックス株式会社 (POLYPLASTICS CO., LTD.) [JP/JP];
〒1088280 東京都港区港南二丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 権田 光宏 (GONDA Mitsuhiro);
〒4168533 静岡県富士市宮島973番地 ポリプラスチックス株式会社内 Shizuoka (JP).
廣田 晋一 (HIROTA Shinichi); 〒4168533 静岡県富士市宮島973番地 ポリプラスチックス株式会社内 Shizuoka (JP).
- (74) 代理人: 三好 秀和, 外 (MIYOSHI Hidekazu et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門一丁目2番8号 虎ノ門琴平タワー Tokyo (JP).

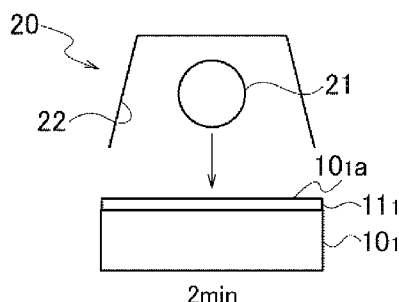
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: JOINING METHOD FOR RESIN MOLDED ARTICLES

(54) 発明の名称: 樹脂成型品の接合方法



(57) Abstract: The present invention connects resin molded articles formed from a thermoplastic, crystalline resin composition in a manner whereby the deformation of the resin molded articles and the deformation of hollow portions are minimized and sufficient joining strength is obtained. Provided is a joining method for joining resin molded articles comprising a resin composition which includes a thermoplastic, crystalline resin and a compound and/or elastomer having a polar functional group, wherein a first molded article 10₁ and a second molded article 10₂ are prepared, prescribed irradiation surfaces 10_{1a}, 10_{2a} on the respective surfaces of the first molded article 10₁ and the second molded article 10₂ are each irradiated with ultraviolet light, the first molded article 10₁ and the second molded article 10₂ are positioned such that the irradiation surfaces 10_{1a}, 10_{2a} are mutually facing and touching, and the first molded article 10₁ and the second molded article 10₂ are heated and pressed such that the first molded article 10₁ and the second molded article 10₂ are joined at the respective irradiation surfaces 10_{1a}, 10_{2a}.

(57) 要約：熱可塑性結晶性樹脂組成物でなる樹脂成型品について、樹脂成型品の変形や中空部の変形を小さく抑え、十分な接合強度が得られるように接続する。熱可塑性結晶性樹脂と、極性官能基を有する化合物及び／又はエラストマーを含む樹脂組成物からなる樹脂成型品を接合する接合方法であって、第1成型品10₁及び第2成型品10₂を提供し、第1成型品10₁及び第2成型品10₂の表面の所定の照射面10_{1a}、10_{2a}に紫外光をそれぞれ照射し、照射面10_{1a}、10_{2a}が対向して接触するように、第1成型品10₁及び第2成型品10₂を位置決めし、第1成型品10₁及び第2成型品10₂がそれぞれの照射面10_{1a}、10_{2a}で接合するように、第1成型品10₁及び第2成型品10₂を加熱及び加圧する。

明 細 書

発明の名称：樹脂成型品の接合方法

技術分野

[0001] 本発明は、光線を照射して樹脂成型品を接合する樹脂成型品の接合方法に関する。

背景技術

[0002] 従来、分析機器の流路、配管部品、エンジンコントロールユニット（ＥＣＵ）のケースカバー等に、樹脂組成物によって作製され、内部に中空部が形成された三次元中空体が利用されている。三次元中空体の多くは、樹脂組成物でなる樹脂成型品の複数の構成部材が、互いに接合されて構成されている。

[0003] 樹脂成型品の構成部材を接合するためには、接着剤や熱溶着など、各種の接合技術が提供されている。ただし、樹脂成型品を接着剤で接合する技術は、樹脂成型品を変形させることなく接合することができるが、一般的に接着剤の硬化には数時間かかるため生産性に劣る上、接着剤が中空部に漏出して溝が埋没するといった問題から微細な流路部品の接合には適さないものであった。そして、樹脂成型品を熱溶着する技術は、数分で接合することが可能であるが、接合した樹脂成型品にバリが発生したり、中空部が熱変形したりすることがあった。

[0004] また、真空紫外光（ＶＵＶ）により樹脂成型品を処理して接合する技術が提供されている（特許文献１－４、非特許文献１を参照）。この技術によると、樹脂成型品の接合に数分から数十分程度の時間を要するが、接合した樹脂成型品の変形は小さく、中空部の変形も小さい。特許文献１、２、非特許文献１は、樹脂成型品にポリメタクリル酸メチル（ＰＭＭＡ）樹脂や環状オレフィン樹脂等の非晶性樹脂でなるものを想定し、接合強度は１ＭＰａ以下である。特許文献３、４は、シリコーン接着を想定している。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開 2 0 0 6 － 1 8 7 7 3 0 号公報

特許文献2：特開 2 0 0 9 － 1 7 3 8 9 4 号公報

特許文献3：特開 2 0 1 1 － 1 4 8 1 0 4 号公報

特許文献4：特開 2 0 1 3 － 1 4 7 0 1 8 号公報

非特許文献

[0006] 非特許文献1：谷口義尚、他 4 名、「光表面活性化によるシクロオレフィンポリマーの接合：接合強度評価とマイクロ流路への応用」、表面技術、表面技術協会、2 0 1 4、第 6 5 巻、第 5 号、p. 3 6 － 4 1

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 一方、ウォーターポンプ部品等の長期間にわたり大きな機械的応力が加わる成型品（特に三次元中空体）には、堅牢で安定した性質を有するポリブチレンテレフタレート（PBT）樹脂やポリフェニレンサルファイド（PPS）樹脂のような熱可塑性結晶性樹脂を利用することができる。また、熱可塑性結晶性樹脂でなる樹脂成型品を接合することにより三次元中空体を作製する際には、接合による樹脂成型品の変形が小さく、中空部の変形も小さくすることが求められる。

[0008] 前述の真空紫外光で樹脂成型品を処理して接合する技術は、樹脂成型品の変形や中空部の変形を小さく抑えることができたが、非晶性樹脂でなる樹脂成型品の接合やシリコーン接着剤の硬化を想定したものであり、十分な接合強度を確保することもできなかった。

[0009] 本発明は、上述の実情に鑑みて提案されるものであって、熱可塑性結晶性樹脂組成物でなる樹脂成型品についても、樹脂成型品の変形や中空部の変形を小さく抑えることができ、高い接合強度（1 MPa 以上）が得られるような樹脂成型品の接合方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0010] 上述の課題を解決するために、本発明に係る樹脂成型品の接合方法は、熱可塑性結晶性樹脂と、極性官能基を有する化合物及び／又はエラストマーを含む樹脂組成物からなる樹脂成型品を加工する加工方法であって、第1成型品及び第2成型品を提供し、前記第1成型品及び前記第2成型品の表面の所定の照射領域に紫外光をそれぞれ照射し、前記照射領域が対向して接触するように、前記第1成型品及び前記第2成型品を位置決めし、前記第1成型品及び前記第2成型品がそれぞれの照射領域で接合するように、前記第1成型品及び前記第2成型品を加圧することを含む。

[0011] 前記紫外光は、前記第1成型品及び前記第2成型品に10分以下の時間にわたり照射してもよい。前記第1成型品及び前記第2成型品はそれぞれ表面に対向面を含み、前記照射領域は前記対向面の少なくとも一部を含んでもよい。前記熱可塑性結晶性樹脂は、ポリオキシメチレン、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンテレフタレート、ポリフェニレンサルファイド、液晶ポリマーを含んでもよい。ここで対向面とは、例えば平坦面同士のように対向して接触することができる面を指し、凹凸を有する面であっても第1成型品の凹部と第2成型品の凸部（または第1成型品の凸部と第2成型品の凹部）が対応して密着可能な面であれば特に限定されない。

発明の効果

[0012] 本発明によると、樹脂成型品の変形、特に三次元中空体を構成する樹脂成型品における中空部の変形を小さく抑えて樹脂成型品を接合することができる。また、接合した樹脂成型品は、高い接合強度を有する。

図面の簡単な説明

[0013] [図1A]樹脂成型品の接合方法の工程を概略的に示す図である。

[図1B]樹脂成型品の接合方法の工程を概略的に示す図である。

[図1C]樹脂成型品の接合方法の工程を概略的に示す図である。

[図2]紫外光照射装置の写真である。

[図3]接合試験片の写真である。

[図4]照射時間と接合強度の関係を示すグラフである。

[図5] P P S樹脂組成物の種類による接合強度を示すグラフである。

[図6] P O M樹脂組成物の種類による接合強度を示すグラフである。

[図7] 紫外光の波長による接合強度を示すグラフである。

[図8] 紫外光の照射から一定時間経過後の水との接触角を示すグラフである。

[図9] 棒線Aの接合試験片の接合部周辺の断面の電子顕微鏡写真である。

[図10] エポキシ系接着剤で接合した接合試験片の接合部周辺の断面の電子顕微鏡写真である。

[図11] 振動溶着で接合した接合試験片の接合部周辺の断面の電子顕微鏡写真である。

発明を実施するための形態

[0014] 以下、本発明に係る樹脂成型品の接合方法の実施の形態について、図面を参照して詳細に説明する。本実施の形態では、樹脂組成物として、熱可塑性結晶性樹脂と、極性官能基を有する化合物及び／又はエラストマーとを含むものを使用する。

[0015] 熱可塑性結晶性樹脂には、例えば、ポリオキシメチレン（P O M）やポリブチレンテレフタレート（P B T）、ポリエチレンテレフタレート（P E T）、ポリフェニレンサルファイド（P P S）、液晶ポリマーを使用してもよい。熱可塑性結晶性樹脂は、一般的に不透明であるが、結晶化度が低い樹脂では半透明ないしは透明であってもよい。極性官能基を有する化合物には、ビスフェノールAエポキシ化合物、ビスフェノールF型エポキシ化合物、ノボラック型エポキシ化合物、脂肪族型エポキシ化合物、グリシジルアミン型エポキシ化合物などのエポキシ系化合物の他、オキサゾリン化合物、オキサジン化合物、カルボジイミド化合物、アジリジン化合物を使用してもよい。エラストマーには、エチレンエチルアクリレート共重合体やエチレングリシジルメタクリレート共重合体等のオレフィン系エラストマー、アクリル系コアシエルポリマーなどのアクリル系エラストマーの他、ウレタン系エラストマー、スチレン系エラストマー、ポリエステル系エラストマー、ジエン系エラストマー等を使用してもよい。また、熱可塑性結晶性樹脂にはガラス繊維

などの充填剤、酸化防止剤や安定剤、核剤、滑剤、可塑剤、離型剤、着色剤といった、一般的に樹脂組成物に添加される各種添加剤を添加してもよい。

[0016] 本実施の形態では、樹脂組成物によって作製された第1成型品及び第2成型品を用い、これらを互いに接合する。第1成型品及び第2成型品には、表面に互いに接合される対向面が含まれ、これらの対向面は対応するような形状に形成されている。例えば、第1成型品及び第2成型品の対向面は、それぞれ略平坦に形成されていてもよい。また、対向面は、凹凸を有する面であっても第1成型品の凹部と第2成型品の凸部（または第1成型品の凸部と第2成型品の凹部）が対応して密着可能な面であればよい。

[0017] 図1Aから図1Cは、本実施の形態の一連の工程を概略的に説明する図である。図1Aに示すように、第1成型品10₁を用意し、紫外光照射装置20を用いて第1成型品10₁の照射面10₁aに紫外（UV）光を照射する。第1成型品10₁は、照射面10₁aを第2成型品10₂と接合される対向面としている。

[0018] ここで、紫外光とは、波長が380nm以下のものを指す。特に紫外光の中で波長が200nm以下のものは真空紫外光（VUV）という。なお、真空紫外光は、必ずしも真空中で照射しなければならないものではないが、当該波長域の紫外光は空気による吸収が大きいため、空气中で照射する場合は、真空紫外光が伝播する距離を短くする必要がある。

[0019] 図1Aにおいて、紫外光照射装置20は、Xeエキシマランプなどの光源21と、光源21から放出された光を照射物に向けて反射する反射板22とを有している。図2は、紫外光照射装置の一例を示す写真である。この写真に示す紫外光照射装置は、筐体上面に形成された開口から上部に向けて紫外光を照射することができる。

[0020] 図1Aに示すように、第1成型品10₁は略平坦な照射面10₁aを有している。本実施の形態では、紫外光照射装置20から第1成型品10₁の照射面10₁aに向けて2分間にわたって紫外光を照射する。このような照射処理によって、第1成型品10₁の照射面10₁aには、照射面10₁aから所定深さ

まで樹脂組成物の性状が変化した処理層 11₁ が形成される。

[0021] 同様に、第2成型品 10₂ を用意し、紫外光照射装置 20 から第2成型品 10₂ の照射面 10₂ a に向けて2分間にわたって紫外光を照射する。第2成型品 10₂ は、照射面 10₂ a を第1成型品 10₁ と接合される対向面としている。このような照射処理によって、第2成型品 10₂ の照射面 10₂ a にも、照射面 10₂ a から所定深さまで樹脂組成物の性状が変化した処理層 11₂ が形成される。

[0022] 本実施の形態では、第1成型品 10₁ 及び第2成型品 10₂ への紫外光の照射は、2分に限られることはなく、0分を超え15分以下の時間であってもよい。また、30秒以上10分以下（例えば1分以上7分以下）の時間であってもよい。紫外光の照射により、第1成型品 10₁ の照射面 10₁ a と第2成型品 10₂ の照射面 10₂ a の劣化が進むことで、かえって接合強度が低下する場合があるため、第1成型品 10₁ 及び第2成型品 10₂ への紫外光の照射は所定の時間内であることが好ましい。

[0023] なお、第1成型品 10₁ と第2成型品 10₂ に対する紫外光の照射は、同一の紫外光照射装置を用いて同時に行ってもよい。また、上記の順番とは逆に、第2成型品 10₂ への紫外光の照射を先に行い、その後で第1成型品 10₁ へ紫外光を照射してもよい。

[0024] 図1Bに示すように、第1成型品 10₁ の照射面 10₁ a と第2成型品 10₂ の照射面 10₂ a が対向して接触するように、第1成型品 10₁ 及び第2成型品 10₂ とを位置決めする。すなわち、第1成型品 10₁ の対向面と第2成型品 10₂ の対向面とが対応して密着するようにする。位置決めされた状態では、第1成型品 10₁ の略平坦な照射面 10₁ a と第2成型品 10₂ の略平坦な照射面 10₂ a とは、互いにその略全体で接触している。

[0025] ここで、より高い接合強度を確保するためには、第1成型品 10₁ 及び第2成型品 10₂ を位置決めする操作は、第1成型品 10₁ 及び第2成型品 10₂ に紫外光を照射する工程（図1Aを参照）を終えてから、できるだけ短時間（好ましくは5分以内、例えば1分以内）で行うことが望ましい。なお、紫外

光として真空紫外光を照射する場合は、照射を終えてから位置決めする操作を行う時間を比較的長くした場合（例えば1ヶ月、好ましくは1週間以内、より好ましくは3時間以内、さらに好ましくは1時間以内、特に好ましくは30分以内）でも、高い接合強度を得やすいため有利である。

[0026] 図1Cに示すように、位置決めされた第1成型品10₁及び第2成型品10₂を第1プレス部材31及び第2プレス部材32により挟持する。そして、第1プレス部材31及び第2プレス部材32によって、第1成型品10₁及び第2成型品10₂を加圧する。

[0027] 例えば、第1プレス部材31及び第2プレス部材32により、第1成型品10₁の照射面10₁aと第2成型品10₂の照射面10₂aとを互いに押圧する方向に圧力を加えても良い。押圧する圧力は10から50MPaの範囲で適宜調整すれば良く、例えば30MPaで加圧してもよい。加圧時間も2分から100分の範囲で適宜調整すれば良く、例えば60分にわたって加圧しても良い。同時に、第1プレス部材31及び第2プレス部材32は加熱装置を備えていても良く、当該加熱装置により、第1成型品10₁の照射面10₁aと第2成型品10₂の照射面10₂aとを加熱しても良い。第1成型品10₁の照射面10₁aと第2成型品10₂の照射面10₂aにおける温度は使用する熱可塑性結晶性樹脂に応じ50℃から200℃の範囲で適宜調整すればよく、例えば120℃で維持されるように加熱してもよい。

[0028] このような加熱及び加圧によって、第1成型品10₁の処理層11₁と第2成型品10₂の処理層11₂とは融合し、単一の接合層12を形成するようになる。すなわち、第1成型品10₁と第2成型品10₂とは、それぞれの対向面において互いに融合されて連結される。これによって、第1成型品10₁及び第2成型品10₂は、接合層12を通じて一体として接続され、単一の成型品（例えば三次元中空体）を構成するようになる。

[0029] 接合層12は、紫外光により活性化された第1成型品10₁の処理層11₁と第2成型品10₂の処理層11₂とが、所定時間にわたる加熱及び加圧の工程によって融合したものである。したがって、接合層12による第1成型品

10₁及び第2成型品10₂の接続は、機械的に堅牢であり、化学的にも安定である。

[0030] 本実施の形態では、紫外光により形成した第1成型品10₁の処理層11₁と第2成型品10₂の処理層11₂とを互いに融合させる接合層12とすることにより接続するものである。したがって、接合層12における変形は小さく、バリが発生することもない。また、接合層12に溝など微細な構造の中空部が存在する場合も、そのような中空部が変形によりつぶれることはない。

[0031] 本実施の形態は、堅牢で安定した性質を有するポリオキシメチレン（POM）やポリブチレンテレフタレート（PBT）樹脂、ポリエチレンテレフタレート（PET）樹脂、ポリフェニレンサルファイド（PPS）樹脂、液晶ポリマーのような熱可塑性結晶性樹脂を利用することができる。このような熱可塑性結晶性樹脂は、ウォーターポンプ部品等の長期間にわたり大きな機械的応力が加わる三次元中空体の作製に利用することができる。

実施例

[0032] 上述の本実施の形態を適用した実施例について説明する。図3は、接合試験片を示す写真である。本実施例では、第1成型品及び第2成型品として、図3の写真に示すような接合試験片を用いる。接合試験片は、各種の樹脂組成物によってISO3167に準拠した引張試験片Type1Aを作成した後、それを長手方向の中央で2等分に切断し、それぞれ切断端部から10mmを接合領域として重ねている。写真では、2つの接合試験片が接合領域で互いに接合されて載置されている。

[0033] 図4は、照射時間と接合強度との関係を示すグラフである。このグラフは、図1で説明した一連の工程に従い接合した接合試験片を用い、ISO527-1, 2に準拠して引っ張り試験機によって接合強度を測定した結果を示している。ここで、紫外光としては波長172nm、照度6mW/cm²の真空紫外光を用い、図1Bに示した接合試験片の位置決めの工程は、真空紫外光の照射終了から5分以内に行った。また、図1Cに示した加熱及び加圧の

工程は、温度 120℃及び圧力 30 MPa であり、1 時間にわたり維持した。

[0034] 図 4 中の測定値 a は、第 1 成型品及び第 2 成型品ともに、ガラス繊維 30 質量%で強化したポリブチレンテレフタレート (PBT) 樹脂 (ウィンテックポリマー株式会社製 ジュラネックス (登録商標) 3300) 樹脂にビスフェノール A 型エポキシ樹脂 (三菱化学株式会社製 エピコート (登録商標) JER1004K) を 1.5 質量%添加し、照射時間 2 分における接合試験片の接合強度を示している。

[0035] 比較例として、折線 b に、ガラス繊維 30 質量%で強化した PBT 樹脂の場合の接合強度を示す。ガラス繊維 30 質量%強化の PBT 樹脂は、照射時間が 0 分を超え 7 分以下の領域において、照射時間によって接合強度が変化するが、照射時間 2 分で最大の接合強度 9.3 MPa に達した。

[0036] 測定値 a のエポキシ樹脂を添加したガラス繊維 30 質量%強化の PBT 樹脂の接合強度は 10.0 MPa となり、エポキシ樹脂を添加していないガラス繊維 30 質量%強化の PBT 樹脂 (折線 b に示したガラス繊維 30 質量%強化の PBT 樹脂) において、最大の接合強度である 9.3 MPa よりもさらに接合強度が増加した。

[0037] 図 5 は、PPS 樹脂組成物の種類による接合強度を示すグラフである。第 1 成型品及び第 2 成型品として、以下に記載する PPS 樹脂組成物からなる接合試験片を用い、図 1 A から図 1 C で説明した一連の工程に従い、接合試験片の接合領域に波長 172 nm、照度 6 mW/cm² の真空紫外光を棒線 A、B 及び C は 2 分、棒線 D は 10 分にわたって照射し、照射終了から 5 分以内に接合試験片の位置決めを行い、棒線 A、B、C 及び D いずれも温度 160℃及び圧力 30 MPa で、それぞれ 1 時間にわたり加熱及び加圧することで互いに接合した。その後、接合した接合試験片の接合強度を引っ張り試験機によって測定した。

[0038] 棒線 A は、第 1 成型品及び第 2 成型品ともに、PPS 樹脂 (ポリプラスチックス株式会社製 ジュラファイド (登録商標) 0220A9) にガラス繊維

維を30質量%及びグリシジル基を含むエラストマー（住友化学株式会社製 ボンドファースト7L）を4質量%添加した組成物からなるものであり、接合強度は8.5MPaであった。棒線Bは、第1成型品及び第2成型品ともに、PPS樹脂（ポリプラスチックス株式会社製 ジュラファイド（登録商標）0220A9）にガラス繊維を30質量%及びエポキシ樹脂（三菱化学株式会社製 エピコート（登録商標）JER1004K）2質量%とエチレンエチルアクリレート共重合体（株式会社NUC製 NUC-6570）を10質量%添加した組成物からなるものであり、接合強度は11.2MPaであった。

[0039] 比較例として示す、棒線C及びDは、いずれも、第1成型品及び第2成型品ともに、PPS樹脂（ポリプラスチックス株式会社製 ジュラファイド（登録商標）0220A9）にガラス繊維を30質量%添加した組成物からなるものであり、接合強度は棒線C及びDがともに0.0MPaであった。

[0040] 棒線A及びBのようにPPS樹脂に極性官能基を有する化合物（上記の例ではエポキシ樹脂）やエラストマーを添加した組成物からなる成型品であれば、高い接合強度を得ることができた。これに対して、比較例の棒線C及びDのように極性官能基を有する化合物やエラストマーを添加していないPPS樹脂組成物からなる成型品では、十分な接合強度を得ることが困難であった。

[0041] 図6は、POM樹脂組成物の種類による接合強度を示すグラフである。第1成型品及び第2成型品として、以下に記載するPOM樹脂組成物からなる接合試験片を用い、図1Aから図1Cで説明した一連の工程に従い、接合試験片の接合領域に波長172nm、照度6mW/cm²の真空紫外光を棒線Eは7分、棒線F及びGは5分、にわたって照射し、照射終了から5分以内に接合試験片の位置決めを行い、温度140℃及び圧力15MPaで、それぞれ1時間にわたり加熱及び加圧することで互いに接合した。その後、接合した接合試験片の接合強度を引っ張り試験機によって測定した。

[0042] 棒線Eは、第1成型品及び第2成型品ともに、POM樹脂（ポリプラスチ

ックス株式会社製 ジュラコン（登録商標）M90-44）にアクリル系コアシェルポリマー（ガンツ化成株式会社製 スタフィロイド（登録商標）P0-0198）15質量%とエチレンエチルアクリレート共重合体（株式会社NUC製 NUC-6570）を3質量%添加した組成物からなるものであり、接合強度は3.8MPaであった。棒線Fは、第1成型品及び第2成型品ともに、POM樹脂（ポリプラスチックス株式会社製 ジュラコン（登録商標）M90-44）にポリウレタン樹脂（大日精化工業株式会社製 レザミンP-4088）を13質量%添加した組成物からなるものであり、接合強度は4.3MPaであった。

[0043] 比較例として示す棒線Gは、第1成型品及び第2成型品ともに、非強化のPOM樹脂（ポリプラスチックス株式会社製 ジュラコン（登録商標）M90-44）からなるものであり、接合強度は0.0MPaであった。

[0044] POM樹脂についても、棒線EとFに示すエラストマーを添加したものは、高い接合強度を示した。比較例として示したエラストマーを添加していない棒線Gでは、高い接合強度を得ることができなかった。

[0045] なお、異種材料の組み合わせにおける接合として、第1成型品及び第2成型品に以下に記載する樹脂材料からなる接合試験片を用い、図1Aから図1Cで説明した一連の工程に従い、接合試験片の接合領域に波長172nm、照度6mW/cm²の真空紫外光を2分照射し、照射終了から5分以内に接合試験片の位置決めを行い、以下に記載する条件で加熱及び加圧することで互いに接合した。その後、接合した接合試験片の接合強度を引っ張り試験機によって測定した。

[0046] 異種材料の組み合わせとしては、第1成型品に折線aで使用したのと同じ、ガラス繊維30質量%で強化したPBT樹脂（ウィンテックポリマー株式会社製 ジュラネックス（登録商標）3300）からなるもの、第2成型品に棒線Cで使用したのと同じ、PPS樹脂（ポリプラスチックス株式会社製 ジュラファイド（登録商標）0220A9）にガラス繊維を30質量%及びグリシジル基を含むエラストマー（住友化学株式会社製 ボンドファース

ト 7 L) を 4 質 量 % 添 加 し た 組 成 物 か ら な る も の の 組 み 合 わ せ で あ り 、 温 度 1 6 0 ° C 及 び 圧 力 3 0 M P a で 、 1 時 間 に わ た り 加 熱 及 び 加 圧 し た 際 の 接 合 強 度 は 1 1 . 0 M P a で あ っ た 。 ま た 、 第 2 成 型 品 を 非 強 化 の A B S 樹 脂 (旭 化 成 株 式 会 社 製 ス タ イ ラ ッ ク 2 2 0) か ら な る も の に し て 、 温 度 8 0 ° C 及 び 圧 力 1 5 M P a で 、 1 0 分 間 に わ た り 加 熱 及 び 加 圧 し た と こ ろ 、 接 合 強 度 は 2 . 3 M P a で あ っ た 。 さ ら に 第 2 成 型 品 を 非 強 化 の P C 樹 脂 (帝 人 株 式 会 社 製 パ ン ラ イ ト L - 1 2 2 5 L) か ら な る も の に し て 、 温 度 1 4 0 ° C 及 び 圧 力 1 5 M P a で 、 1 0 分 間 に わ た り 加 熱 及 び 加 圧 し た と こ ろ 、 接 合 強 度 は 3 . 9 M P a で あ っ た 。

[0047] この結果から、本発明の接合方法を用いれば、接着剤等を用いずとも異種材料の接合が可能となることが確認された。また、第 1 成型品と第 2 成型品の両方に極性官能基を有する化合物やエラストマーを添加した樹脂組成物を用いることがより好ましいが、いずれか一方にそのような樹脂組成物を用いることでも高い接合強度が得られた。なお、第 2 成型品を A B S 樹脂や P C 樹脂のような非晶性樹脂にした場合も、1 M P a 以上の接合強度を得ることもできた。すなわち、本発明の接合方法においては、熱可塑性結晶性樹脂に極性官能基を有する化合物やエラストマーを添加した樹脂組成物を、第 1 成型品と第 2 成型品のいずれか一方に用いることで、非晶性樹脂との接合においても高い接合強度を得ることができる。

[0048] さらに図 7 には、第 1 成型品及び第 2 成型品ともに測定値 a で使用したのと同じ、ガラス繊維 3 0 質 量 % で 強 化 し た P B T 樹 脂 (ウ ィ ン テ ッ ク ポ リ マ ー 株 式 会 社 製 ジ ュ ラ ネ ッ ク ス (登 録 商 標) 3 3 0 0) に ビ ス フ ェ ノ ール A 型 エ ポ キ シ 樹 脂 (三 菱 化 学 株 式 会 社 製 エ ピ コ ー ト (登 録 商 標) J E R 1 0 0 4 K) を 1 . 5 質 量 % 添 加 し た 組 成 物 を 用 い 、 棒 線 H は 波 長 1 7 2 n m 、 照 度 6 m W / c m ² の 真 空 紫 外 光 、 棒 線 I は 波 長 2 5 4 n m 、 照 度 6 m W / c m ² の 紫 外 光 を 、 そ れ ぞ れ 2 分 に わ た っ て 照 射 し 、 照 射 終 了 か ら 5 分 経 過 後 に 接 合 試 験 片 の 位 置 決 め を 行 い 、 温 度 1 2 0 ° C 及 び 圧 力 3 0 M P a で 、 1 時 間 に わ た り 加 熱 及 び 加 圧 す る こ と で 互 い に 接 合 し た 。 そ の 後 、 接 合 し た 接 合

試験片の接合強度を引っ張り試験機によって測定した。それぞれの接合強度は、棒線Hが10.0 MPa、棒線Iが3.8 MPaであった。この結果から、紫外光として真空紫外光を用いることで、より高い接合強度が得られることが確認された。

[0049] なお図8には、測定値aで使用したのと同じ、ガラス繊維30質量%で強化したPBT樹脂（ウィンテックポリマー株式会社製 ジュラネックス（登録商標）3300）にビスフェノールA型エポキシ樹脂（三菱化学株式会社製 エピコート（登録商標）JER1004K）を1.5質量%添加した組成物からなる接合試験片に対し、波長172 nm、照度6 mW/cm²の真空紫外光又は波長254 nm、照度6 mW/cm²の紫外光を、それぞれ照射した後、一定時間経過後の蒸留水の接触角を示した。棒線Jは照射前、棒線Kは真空紫外光の照射後5分間経過、棒線Lは真空紫外光の照射後3時間経過の接触角を示している。比較例として、棒線Mは紫外光の照射後5分間経過、棒線Nは紫外光の照射後3時間経過の接触角を示している。

[0050] この結果から、波長172 nmの真空紫外光及び波長254 nmの紫外光ともに、5分経過時点では照射前の接触角が約70度（棒線J）であったのと比較して、接触角が40度前後（棒線K、M）まで小さくなっているが、3時間経過時点では、波長172 nmの真空紫外光では接触角が約40度で照射直後と同等（棒線L）であるのに対し、波長254 nmの紫外光では1時間経過時点で既に接触角が約50度（棒線N）にまで大きくなっていることが確認された。

[0051] したがって、紫外光よりも真空紫外光を用いる場合、表面が活性化された状態をより長く維持できると考えられ、照射後の位置決め工程の時間が長がかかった場合でも高い接合強度を得ることができる。また、接触角の絶対値としても、波長172 nmの真空紫外光は照射後5分経過時点のみならず照射後3時間経過時点であっても、波長254 nmの紫外光の照射後5分経過時点（棒線M）より接触角が小さく、表面がより活性化された状態となっていることが確認された（棒線L）。ここで、上記の水の接触角は、接合試験

片表面をエタノールで洗浄した後、波長 172 nm の真空紫外光又は波長 254 nm の紫外光をそれぞれ 2 分間照射し、一定時間経過後に、水平に保持した照射面に蒸留水を滴下し、その接触角を協和界面科学社製 F A C E 接触角計 C A - D T を用いて測定した。

[0052] なお、棒線 A の測定に用いた接合試験片を、接合面に対し垂直方向に切断し、電子顕微鏡にて接合部周辺の断面観察を行った結果を図 9 に示す。同様に、棒線 A で使用した P P S 樹脂（ポリプラスチックス株式会社製 ジュラファイド（登録商標） 0220A9）にガラス繊維を 30 質量%添加した組成物からなる第 1 成型品及び第 2 成型品を、エポキシ系接着剤で接合したものと、振動溶着で接合したものについて接合部周辺の断面観察を行った結果を、図 10 および図 11 にそれぞれ示す。

[0053] 図 10 からエポキシ系接着剤で接合したものでは、接合部の界面に当該接着剤の層が存在することが確認された。また、図 11 から振動溶着で接合したものでは、接合部の界面にボイドの発生（写真では界面部両端に見える白化部）が確認された。これに対し、図 9 の紫外光照射による接合では第 1 成型品と第 2 成型品の表面同士が密着し、またボイドも発生していないことが確認された。

[0054] 比較例として、紫外線を第 1 成型品と第 2 成型品の一方のみへ照射した場合についても検討した。ここでは、紫外光の照射を第 1 成型品のみに行い、第 2 成型品には照射しないこと以外は図 4 中の折線 b と同じく、第 1 成型品及び第 2 成型品ともに、ガラス繊維 30 質量%で強化したポリブチレンテレフタレート（P B T）樹脂（ウィンテックポリマー株式会社製 ジュラネックス（登録商標） 3300）樹脂を用い、波長 172 nm、照度 6 mW/cm² の真空紫外光を 2 分間照射してから 5 分以内に位置決めした後、温度 120℃及び圧力 30 MPa で加熱及び加圧し、1 時間にわたり維持したところ、接合強度は 0 MPa であった。すなわち、第 1 成型品と第 2 成型品の一方のみへの紫外光の照射では、十分な接合は得られないことが確認された。

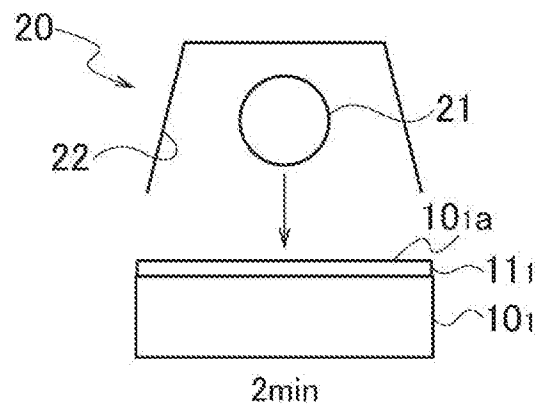
符号の説明

- [0055] 1 O₁ 第1 成型品
 1 O₂ 第2 成型品
 3 1 第1 プレス部材
 3 2 第2 プレス部材

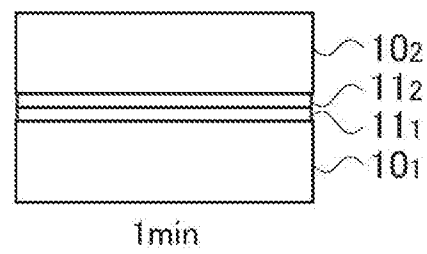
請求の範囲

- [請求項1] 熱可塑性結晶性樹脂と、極性官能基を有する化合物及び／又はエラストマーを含む樹脂組成物からなる樹脂成型品を接合する接合方法であって、
- 第1成型品及び第2成型品を提供し、
- 前記第1成型品及び前記第2成型品の表面の所定の照射領域に紫外光をそれぞれ照射し、
- 前記照射領域が対向して接触するように、前記第1成型品及び前記第2成型品を位置決めし、
- 前記第1成型品及び前記第2成型品がそれぞれの照射領域で接合するように、前記第1成型品及び前記第2成型品を加熱及び加圧することを含む接合方法。
- [請求項2] 前記紫外光は、前記第1成型品及び前記第2成型品に10分以下の時間にわたり照射することを特徴とする請求項1に記載の接合方法。
- [請求項3] 前記第1成型品及び前記第2成型品はそれぞれ表面に対向面を含み、前記照射領域は前記対向面の少なくとも一部を含む請求項1に記載の接合方法。
- [請求項4] 前記熱可塑性結晶性樹脂は、ポリオキシメチレン、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンテレフタレート、ポリフェニレンサルファイド、又は液晶ポリマーを含む請求項1から3のいずれか一項に記載の接合方法。

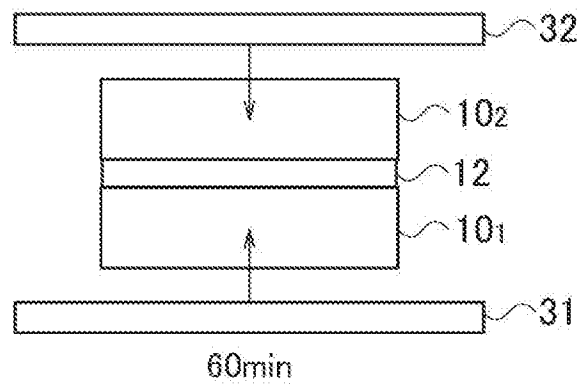
[図1A]



[図1B]



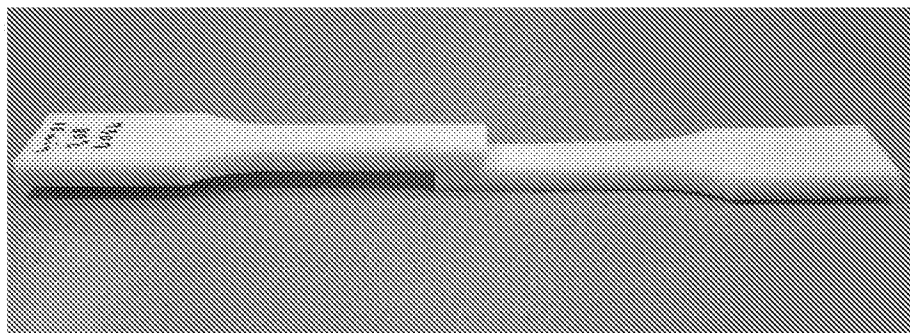
[図1C]



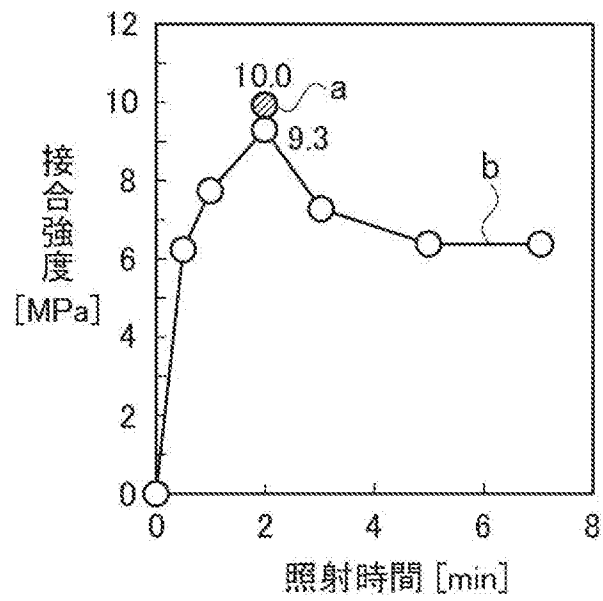
[図2]



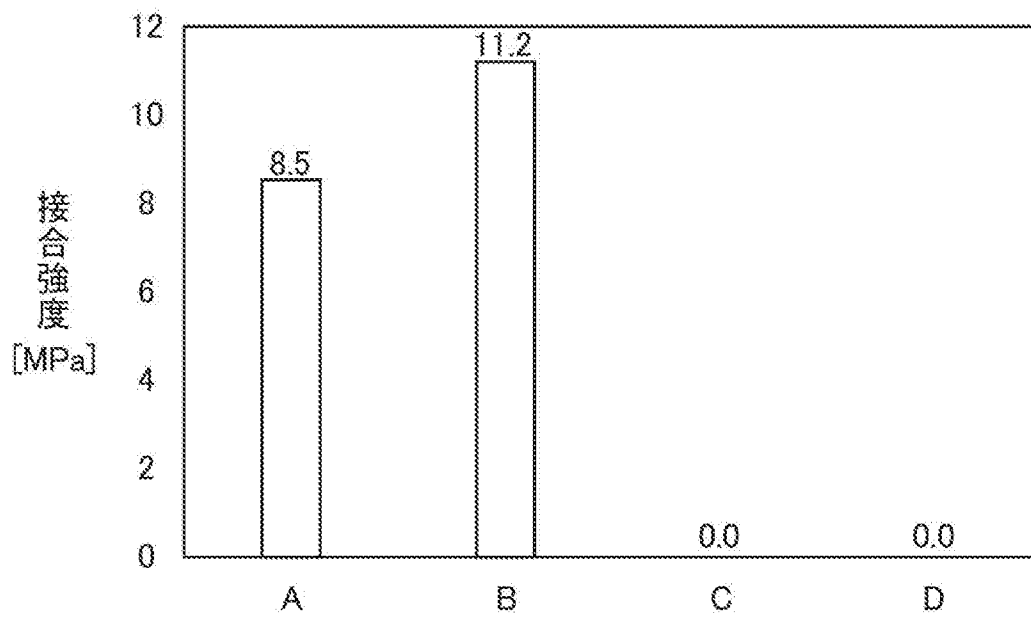
[図3]



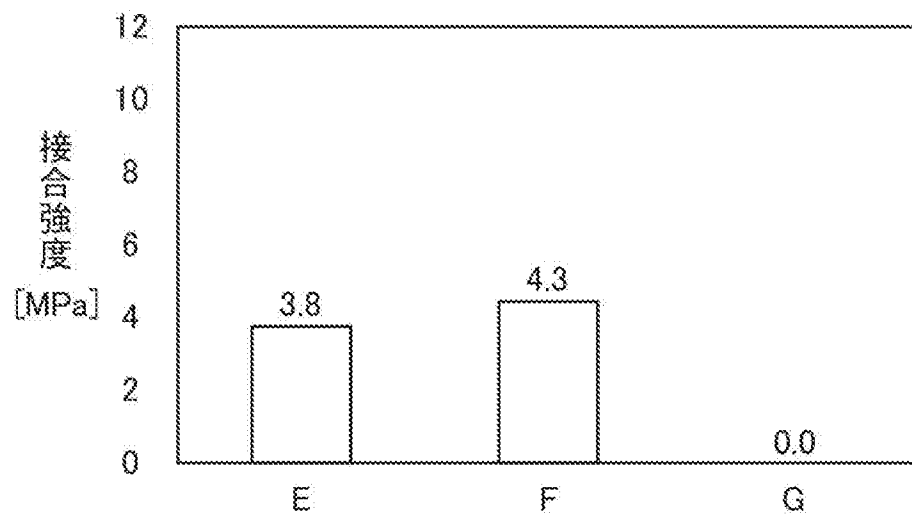
[図4]



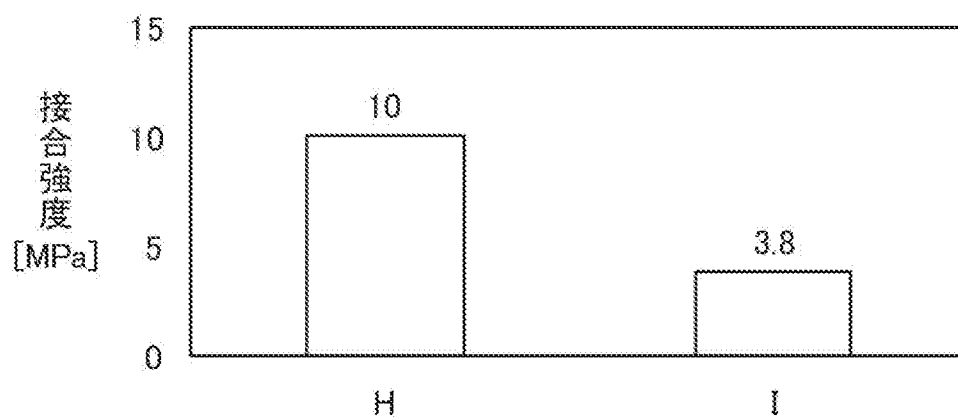
[図5]



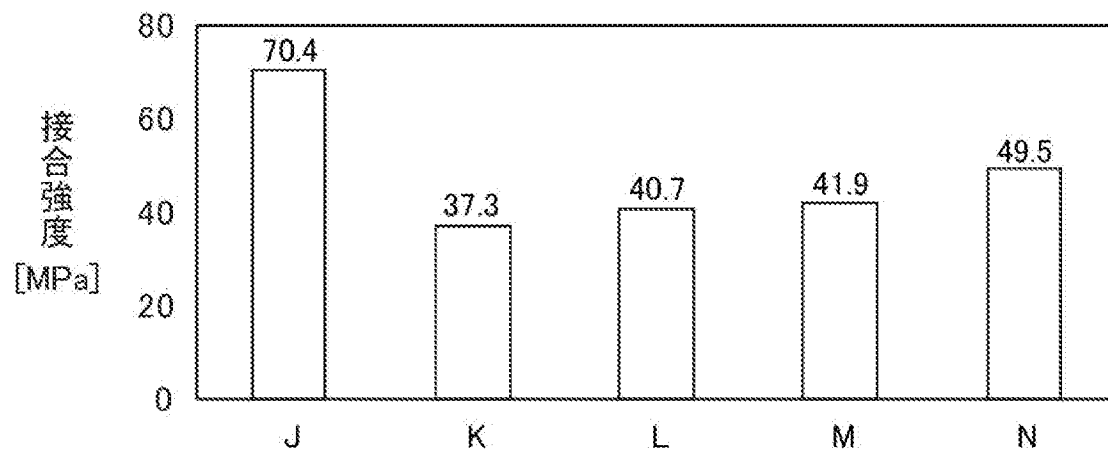
[図6]



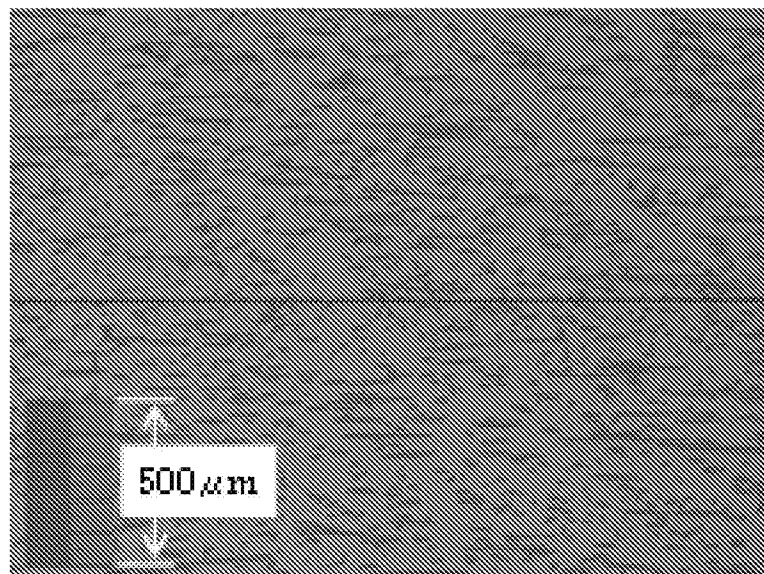
[図7]



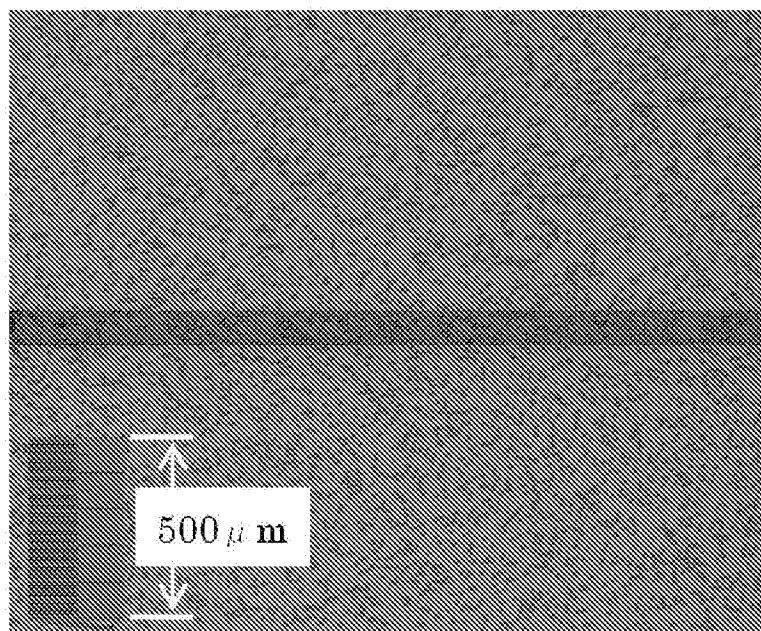
[図8]



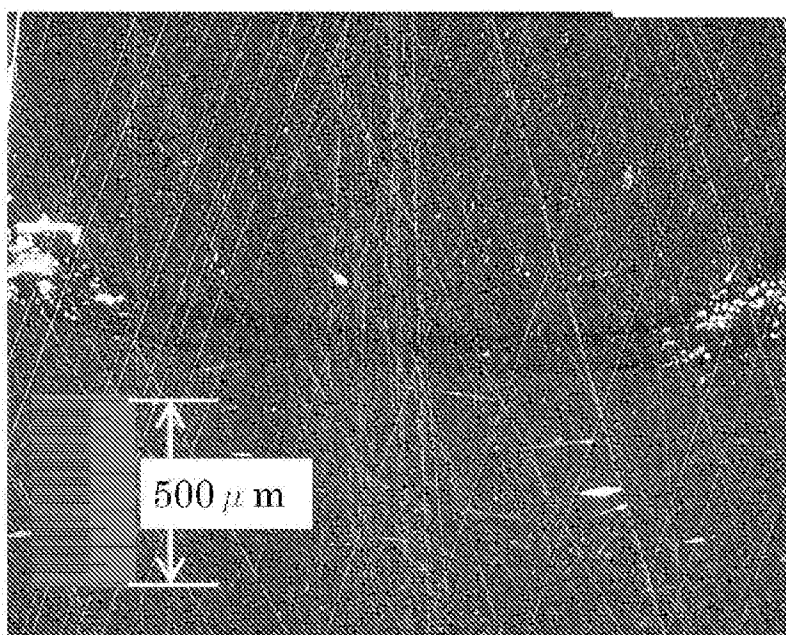
[図9]



[図10]



[図11]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/025428

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B29C65/14(2006.01) i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

B29C65/14

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X, Y	JP 2012-232446 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 29 November 2012 (29.11.2012), claims; paragraphs [0033], [0049]; fig. 5 (Family: none)	1-4
Y	JP 2003-191387 A (Mitsubishi Engineering-Plastics Corp.), 08 July 2003 (08.07.2003), claims; paragraphs [0007], [0024], [0025] (Family: none)	1-4
Y	JP 2003-220667 A (Mitsubishi Engineering-Plastics Corp.), 05 August 2003 (05.08.2003), claims; paragraphs [0007], [0038] to [0038] (Family: none)	1-4

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
 "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
 "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
29 August 2017 (29.08.17)

Date of mailing of the international search report
12 September 2017 (12.09.17)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/025428

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2009-23337 A (Seiko Epson Corp.), 05 February 2009 (05.02.2009), claims; paragraphs [0038], [0062], [0067], [0086]; fig. 5, 6 & US 2010/0193120 A1 claims; paragraphs [0113], [0175], [0188], [0236]; fig. 5A to 6B & CN 101678611 A & KR 10-2010-0011977 A	1-4

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. B29C65/14(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. B29C65/14

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X, Y	JP 2012-232446 A（大日本印刷株式会社） 2012.11.29, [特許請求の範囲], [0033], [0049], [図5] (ファミリーなし)	1-4
Y	JP 2003-191387 A（三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社） 2003.07.08, [特許請求の範囲], [0007], [0024], [0025] (ファミリーなし)	1-4

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

29.08.2017

国際調査報告の発送日

12.09.2017

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

今井 拓也

4 R

8376

電話番号 03-3581-1101 内線 3471

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2003-220667 A (三菱エンジニアリングプラスチックス株式会社) 2003.08.05, [特許請求の範囲], [0007], [0038] - [0038] (ファミリーなし)	1-4
A	JP 2009-23337 A (セイコーエプソン株式会社) 2009.02.05, [特許請求の範囲], [0038], [0062], [0067], [0086], [図 5], [図 6] & US 2010/0193120 A1 [特許請求の範囲], [0113], [0175], [0188], [0236], [図 5A] - [図 6B] & CN 101678611 A & KR 10-2010-0011977 A	1-4