

〈論文〉

(受理：昭和58年1月18日)

鋼板接着接合物の耐久性に及ぼす
外部応力と湿度の影響

原賀康介*, 山田 祥*, 児玉峯一*

要 旨

接着接合物の耐久性に及ぼす外部応力と相対湿度の影響を、軟鋼板-変性アクリル系接着剤の系について、実験的に検討した。得られた結果は次のとおりである。

- (1) 相対湿度が高く、外部応力が大きいほど、接着耐久性は低下した。
- (2) 外部応力 σ と破壊時間 t の関係は、屈曲点を有する曲線となり、屈曲点における応力 σ_L 以上の σ と t の関係及び σ_L は、相対湿度 h に依存する次式で示された。

$$\sigma = \sigma_0 - (m_0 + \alpha h) \log t$$

$$\sigma_L = \sigma_{L0} - \beta h$$

σ_0 : 1時間で破壊する応力, m_0, σ_{L0} : それぞれ0% RHにおける直線の傾きと σ_L , α, β : 湿度依存係数

- (3) 相対湿度に関係なく、 σ_L より σ が一定応力以上低くなると、無負荷の場合と同等の接着耐久性を示すことがわかった。
- (4) 応力負荷により、lap長さ方向の端部から水分が侵入しやすくなり、水分の侵入は、外部応力が大きいほどおこりやすいことがわかった。

1. 緒 言

接着接合物の耐久性は、環境暴露試験、クリープ試験、疲労試験などを個別に行ない評価されることが多い。ところが、実際の接着接合物は、各種の環境と応力が複合された状態で使用されることが多く、環境・応力複合条件下での耐久性を明らかにすることが構造接着の重要な問題となっている。

すでに、金属の接着接合物に一定応力を負荷した状態での屋外暴露、高湿度中暴露、水中暴露、耐塩水性、乾湿繰り返しなどの試験については、L.H. Sharpe¹⁾, G. F. Carter^{2,3)}, J. D. Minford^{4~6)}, D. A. Wangsness⁷⁾, 石井ら⁸⁾, 天野・山口ら^{9~12)}によって報告されている。また、木材接着接合物の外部荷重下における屋外暴露試験については、長沢ら¹³⁾の報告がある。これらの報告では、応力と環境の複合条件では、接着耐久性が非常に低下することが示されており、とくに、応力と水分の複合作用が重要であるとされている。ところが、応力を負荷

した状態で、相対湿度の異なる環境に暴露し、応力及び相対湿度が接着耐久性に及ぼす影響について、十分に整理、検討された報告はあまり見当たらない。

本報告は、軟鋼板を変性アクリル系接着剤で接着した単純ラップせん断試験片に、応力を負荷し、相対湿度の異なる環境に暴露し、外部応力と破壊時間の関係、せん断接着強さの経時変化及び破壊状態を調べ、接着耐久性に及ぼす外部応力と相対湿度の影響について、実験的に検討したものである。

2. 実 験

2.1 接着試験片と被着材

接着試験片は、図1に示した単純ラップせん断試験片を用いた。被着材は、厚さ1.6 mmの軟鋼板を用い、接着前処理として、アセトンによる脱脂を行なった。

2.2 接着剤

二液型変性アクリル系接着剤ハードロック(電気化学工業製)¹⁴⁾を用いた。被着材上に二液を同量滴下し、混合後すぐに貼り合わせ、室温で3~4日硬化させた後、150°Cで24時間の後硬化を行なった。後硬化は、環境

*三菱電機(株)材料研究所

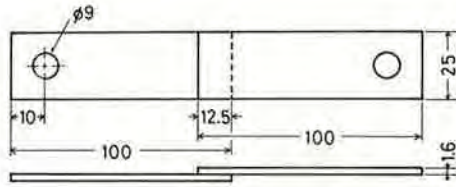


Fig. 1 Dimension and shape of lap shear specimen. (mm)

暴露中の熱による硬化の進行を防ぐために行った。

2.3 応力負荷装置

試験片に、任意の引張りせん断応力を負荷するために、図2に示した応力負荷装置を用いた。この装置は、ばねにより、最大 300 kg の引張り定荷重を負荷することができ、装置ごと各種の環境に暴露することができる。

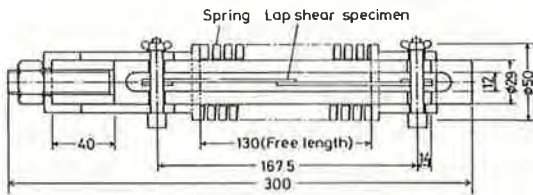


Fig. 2 Fixture for applying sustained stress to lap shear specimens.

2.4 評価項目と条件

試験片に、5~80 kg/cm²の引張りせん断応力を負荷し、60℃の一定温度で、相対湿度が90%、60%、30%、5%に調整された恒温恒湿槽中に暴露した。各湿度について、外部応力と破壊時間の関係、外部応力とせん断接着強さの経時変化及び破壊状態の関係を調べた。せん断接着強さは、各暴露環境より取り出し、外部応力を解除してすぐに、25℃雰囲気、引張り速度1 mm/分で測定し、5ヶの平均値を求めた。

3. 結果と考察

3.1 外部応力と破壊時間の関係

図3に、各湿度における、外部応力と破壊時間の関係を示した。図3より次のことがわかる。

(1) 同一外部応力における破壊時間は、相対湿度が高いほど短くなる。

(2) 各湿度における、外部応力と破壊時間の関係は、屈曲点を有する曲線となり、屈曲点における応力以上の外部応力の範囲では外部応力と破壊時間の関係は直線となり、次式で示される。

$$\sigma = \sigma_0 - m \log t \tag{1}$$

ここで、 σ は外部応力、 t は破壊時間、 σ_0 は1時間で破壊する応力、 m は直線の傾きを示す。 σ_0 は相対湿度に関

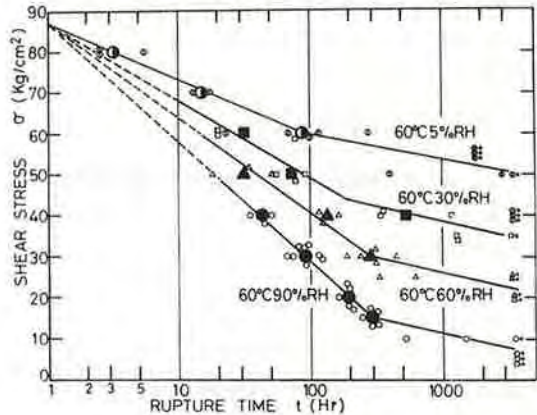


Fig. 3 Relation between shear stress and rupture time in each relative humidity at 60°C. (○□△◇; measured value, ●■▲●; average)

係なく 87 kg/cm²(外挿値)であった。この値は、60℃における静的せん断強さ(182 kg/cm²)の48%に相当する。なお、 σ_0 が相対湿度に関係なく一定値となったのは、1時間程度の暴露では、接着部が水分の影響を受けないためと考えられる。

(3) 外部応力が屈曲点以下になると破壊がおこりにくくなり、破壊時間は(1)式で得られる値より長くなった。

図4には、(1)式の傾き m と相対湿度 h の関係、及び屈曲点における応力 σ_L と h の関係を示した。相対湿度が高いほど、 m は大きく、 σ_L は小さくなり、いずれも直線関係にあり、次式で示される。

$$m = m_0 + \alpha h \tag{2}$$

$$\sigma_L = \sigma_{L0} - \beta h \tag{3}$$

m_0 , σ_{L0} は、それぞれ相対湿度0%における m , σ_L の値であり、図4より、 $m_0 = 13$, $\sigma_{L0} = 62$ kg/cm²となる。

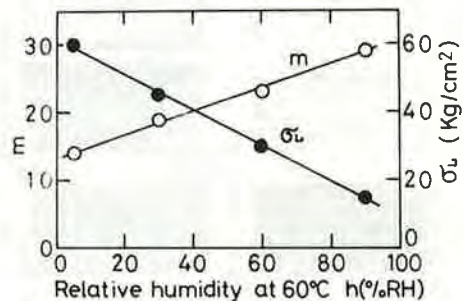


Fig. 4 m and σ_L vs. relative humidity h at 60°C. (m is the gradient of the straight line in the range of stresses over the bent point in Fig. 3. σ_L is the stress at the bent point in Fig. 3.)

α, β は湿度依存係数で、 $\alpha=0.18, \beta=0.53$ となる。

(1), (2), (3)式より、相対湿度-外部応力-破壊時間の関係を次式で表わすことができる。

$$\sigma = \sigma_0 - (m_0 + \alpha h) \log t$$

($\sigma \geq \sigma_L = \sigma_0 - \beta h$ の場合)

3.2 セン断接着強さの経時変化と破壊状態

図5に、0~30 kg/cm²の応力を負荷した状態で、60℃, 90% RH 雰囲気中に暴露した後の、25℃におけるせん断接着強さの保持率の経時変化を示した。25℃における初期のせん断接着強さは237 kg/cm²である。図5より、外部応力が大きいほど、経時変化が大きいことがわかる。

図6には、60℃, 90% RH 雰囲気暴露における、無負荷と外部応力10 kg/cm²の試験片の破壊状態の経時変化

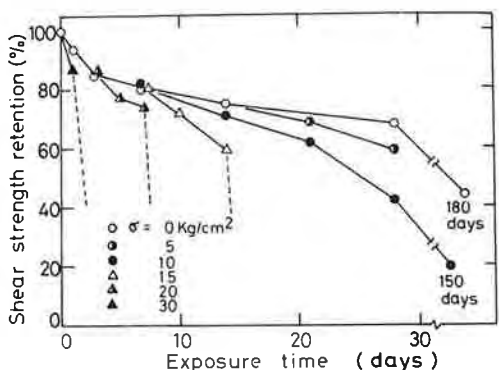


Fig. 5 Relation between shear strength retention and exposure time in 90% relative humidity at 60℃ under various stresses.

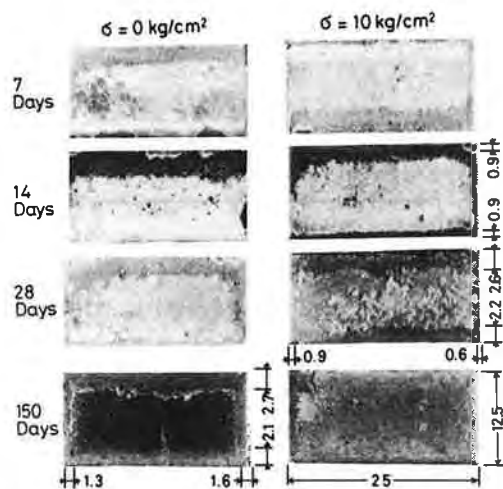


Fig. 6 Failure surfaces of specimens exposed in 90% relative humidity at 60℃ and the area of rust. (A lap length is 12.5mm and a sample width is 25mm.)

を示した。無負荷の場合は、28日目では接着面に錆の発生はほとんどなく、150日目では接着部の周辺に約2mmの錆が発生した。一方、外部応力10 kg/cm²の場合は、14日目にはすでに錆の発生がみられ、暴露期間が長くなるにつれて錆は多くなり、150日目にはほぼ全面に錆が発生した。錆の発生は、接着部に水分が侵入したことを示すもので、図6の結果より、応力が負荷されることにより、接着部へ水分が侵入しやすくなるということができる。なお、無負荷の場合は、接着部の周辺全体に、ほぼ均一に錆が発生しているが、応力を負荷した場合は、試片の幅方向の周辺より、lap長方向の周辺の方が錆の発生が多い。これは、応力が負荷された場合、lap端部に応力が集中するため、lap端部では、接着力が応力の方だけ弱められており、周囲の水分によってlap端部での接着破壊が起こりやすくなるためと考えられる。

図7には、60℃, 90% RH 暴露における外部応力と錆の発生状態を示した。外部応力10 kg/cm²の21日目と比較すると、5 kg/cm²では28日目でも錆は少なく、15 kg/cm²では14日目、20 kg/cm²では7日目ではほぼ同量の錆が発生しており、外部応力が大きいほど錆が発生しやすいことがわかる。これは、外部応力が大きいほどlap端に集中する応力が大きくなるため、lap端部での接着力の低下も大きくなり、周囲の水分によってlap端部での接着破壊が起こりやすくなるためと考えられる。

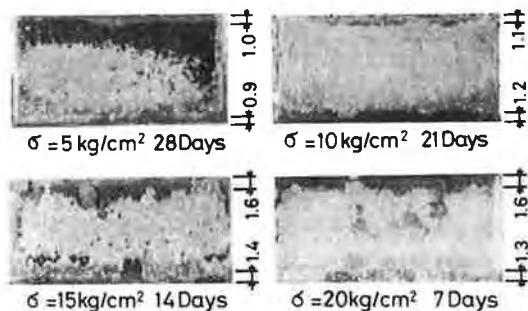


Fig. 7 Failure surfaces of specimens exposed in 90% relative humidity at 60℃ and the area of rust. (A lap length is 12.5mm and a sample width is 25mm.)

図8には、60℃, 60% RH, 30% RH, 5% RH 雰囲気における、せん断接着強さ保持率の経時変化を示した。いずれも、負荷応力が大きいほど経時変化が大きい。ところが、60% RHでは20 kg/cm², 30% RHでは30 kg/cm², 5% RHでは40 kg/cm²の外部応力では、無負荷の場合と同様の経時変化を示しており、応力負荷による接着耐久性の低下はないことがわかる。外部応力を負荷

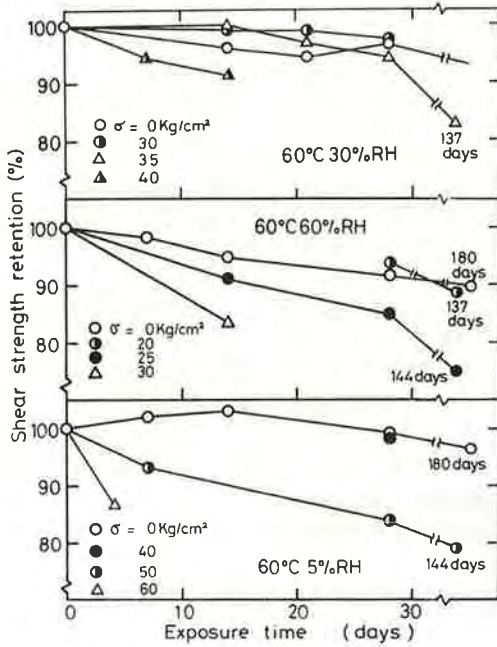


Fig. 8 Relation between shear strength retention and exposure time in 60%, 30% and 5% relative humidities under various stresses.

した状態で、それぞれの環境に暴露した場合に、無負荷の場合とほとんど同等の経時変化を示す外部応力の上限値を σ_p とすると、 σ_p は、図5、図8より60°C、90%RHでは5 kg/cm²以下、60%RHでは20 kg/cm²、30%RHでは30 kg/cm²、5%RHでは40 kg/cm²となる。 σ_p と相対湿度 h の関係をプロットすると、図9に示すように直線関係にあることがわかった。

なお、 σ_p-h 、 σ_L-h の関係を比較すると、両者の直線の傾きはほぼ等しく、相対湿度に関係なく σ_p は σ_L よ

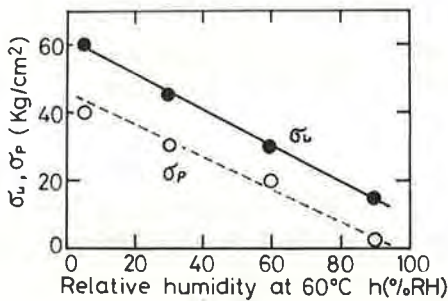


Fig. 9 σ_p and σ_L vs. relative humidity h at 60°C. (σ_p is the maximum stress at which the durability of the bonded joints shows the same deterioration of shear strength as at $\sigma = 0$. σ_L is the stress at the bent point in Fig. 3.)

りもほぼ一定応力 $\Delta\sigma$ だけ低い値となっている。図9の結果では、 $\Delta\sigma$ は約15 kg/cm²である。

相対湿度が高いほど σ_p が小さくなるのは、湿度が高いほど水分が接着力を破壊する力が大きくなるためと考えられる。また、 σ_p 以下の外部応力では、外部応力によりlap端部での接着力は弱められるものの、水分が接着力を破壊しようとする力より接着力の方が強いために、水分による接着破壊がおこらないものと考えられる。

4. 結 言

以上の結果を要約すると次の通りである。

(1) 相対湿度が高く、外部応力が大きいほど、接着耐久性は低下した。

(2) 外部応力 σ と破壊時間 t の関係は、屈曲点を有する曲線となった。屈曲点における応力 σ_L 以上の外部応力範囲では、 σ と t の関係は直線となり、相対湿度 h に依存する次式で示されることがわかった。

$$\sigma = \sigma_0 - (m_0 + \alpha h) \log t \quad (1)$$

ここで、 σ_0 は1時間で破壊する外部応力、 m_0 は0%RHにおける直線の傾き、 α は湿度依存係数で、本実験に用いた軟鋼板-変性アクリル系接着剤の系では、 $\sigma_0=87$ kg/cm²、 $m_0=13$ 、 $\alpha=0.18$ であった。

また、 σ_L も相対湿度 h に依存しており、次式で示されることがわかった。

$$\sigma_L = \sigma_{L0} - \beta h \quad (2)$$

ここで、 σ_{L0} は0%RHにおける σ_L の値、 β は湿度依存係数で、本実験では、 $\sigma_{L0}=62$ kg/cm²、 $\beta=0.53$ であった。

外部応力が σ_L 以下になると、破壊がおこりにくくなり、破壊時間は①式で得られる値より長くなった。

(3) 外部応力がかなり低くなると、接着強度の経時変化に及ぼす外部応力の影響はほとんど見られなくなり、無負荷の場合とほとんど同等の接着耐久性を示すことがわかった。

無負荷の場合とほとんど同等の接着耐久性を示す外部応力の上限値を σ_p とすると、 σ_p は、相対湿度に関係なく σ_L よりもほぼ一定応力 $\Delta\sigma$ だけ低い値であった。本実験では、 $\Delta\sigma$ は約15 kg/cm²であった。

(4) 破壊状態の錆の観察の結果、応力負荷により、lap長さ方向の端部から接着部へ水分が侵入しやすくなり、外部応力が大きいほど、水分の侵入がおこりやすことがわかった。

本研究は、昭和57年6月9日、第20回接着研究発表会において発表したものである。

文 献

- 1) L. H. Sharpe: Appl. Polym. Symp., (3) 353 (1966).
- 2) G. F. Carter: Adhes. Age, **10** (10) 32 (1967).
- 3) G. F. Carter: Adhes. Age, **12** (6) 21 (1969).
- 4) J. D. Minford; Metals Eng. Q., (9) 48 (1972).
- 5) J. D. Minford: Treatise on Adhesion and Adhesives, ed. R. L. Patrick, vol. 3, chap. 2. (1973) New York: Marcel Dekker.
- 6) J. D. Minford: Adhes. Age, **23** (10) 36 (1980).
- 7) D. A. Wangsness: Appl. Polym. Symp., (32) 291 (1977).
- 8) 石井博之, 山口章三郎: 日本接着協会誌, **15**(7), 257(1979).
- 9) 山口章三郎, 天野晋武, 石井博之, 松本輝一: 工学院大学研究報告(33), 34(1973).
- 10) 天野晋武, 山口章三郎: 第11回接着研究発表会要旨集, p.25(1973).
- 11) 天野晋武, 山口章三郎, 館山一郎, 小林信一: 第14回接着研究発表会要旨集, p.21(1976).
- 12) 天野晋武, 山口章三郎, 松井一宏, 大角中衛, 俵谷忠則: 第15回接着研究発表会要旨集, p.71(1977).
- 13) 長沢長八郎, 熊谷八百三, 小野昌孝: 木材学会誌, **27**(7), 548(1981).
- 14) 原賀康介, 山田 祥, 榊原邦夫, 服部勝利, 小林功: 三菱電機技報, **55**(3), 58(1981).

Effects of Applied Stress and Relative Humidity on Durability of Adhesive Bonded Steel Joints

Kousuke HARAGA*, Akira YAMADA* and Minekazu KODAMA*

* Materials Engineering Laboratory, Mitsubishi Electric Corp.
(1-1, Tsukaguchi Honmachi, 8 Chome, Amagasaki, Hyogo 661)

Abstract

Effects of applied stresses and relative humidity on the durability of adhesive bonded joints were studied. Mild steel sheets were bonded with modified acrylic adhesives. Lap-shear joints were exposed at 60°C in various relative humidities from 5 to 90% under stresses.

The results obtained are as follows:

- (1) The durability of the bonded joints decreases with increasing the applied stresses and the relative humidities.
- (2) The relation between the applied stress (σ) and the rupture time ($\log t$) shows a curve with a bent point (σ_L). In the range of stresses over the σ_L , the empirical equation between σ and t is deduced as follows:

$$\sigma = \sigma_0 - (m_0 + \alpha h) \log t$$

where h is the relative humidity at 60°C, σ_0 is the applied stress for the rupture time of 1 hr, m_0 is the gradient of the straight line in 0% relative humidity at 60°C and α is a constant.

σ_L is deduced as follows:

$$\sigma_L = \sigma_{L0} - \beta h$$

where β is a constant and σ_{L0} is the extrapolated value of σ_L at 0% relative humidity at 60°C.

- (3) In the range of the stresses less than σ_P , the effect of applied stresses on the durability of the bonded joints is not observed at any relative humidity. σ_P is the stress that is $\Delta\sigma$ less than σ_L , and $\Delta\sigma$ is a constant value at the whole range of the relative humidity studied.
- (4) It is found that the penetration of moisture into the tip of glue line is promoted by the stress loading.

(Received: January 18, 1983)