

# 16. 接着耐久性評価法 — 耐湿性評価法について —

## はじめに

接着接合を製品に適用する際、「何年もつか」ということが常に議論される。現在のところ接着接合の長期耐久性を正確に予測する方法は確立されておらず、「実際に使ってみなければわからない」というのが現実である。しかし、それほどあまいな状態で接着接合を採用するわけにはいかない。精度があまり高くなくてもデータの「裏付け」が必要である。筆者はまさに接着接合を製品に適用するための「裏付け屋」的立場で、これまでに各種の環境や応力に対する耐久性評価や、耐久性を向上させるための方法について検討してきた。以下に、耐久性、特に問題となる耐湿性について筆者がこれまでに行ってきた評価の一例を紹介する。耐久性評価や耐久性向上のヒントになれば幸いである。なお、以下のデータは全て金属同士を変性アクリル系接着剤で接着したものである。

## 16.1 耐湿性に優れた接着部の形状・寸法の簡易判定法

接着部の形状・寸法によって耐湿性は大きく変化する。このため、製品の開発に当たっては、あらかじめ接着部の形状・寸法について検討し、耐湿性に優れた形状・寸法となるように構造設計を行うこと

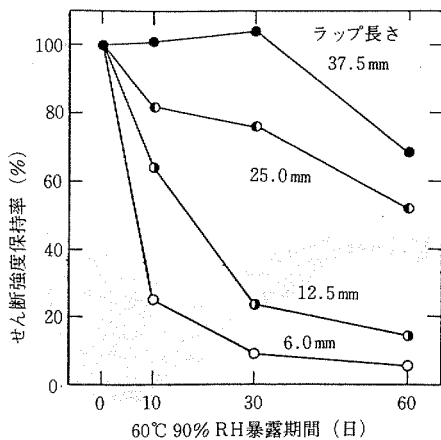


図16.1 耐湿性に及ぼす引張りせん断試験片のラップ長さの影響

が重要である。

図16.1は、幅25mmでラップ長さが異なる4種類の引張りせん断試験片の、60°C 90% RH 雰囲気におけるせん断強度保持率の経時変化である<sup>1)</sup>。図16.2は、幅Wが異なる4種類のはく離試験片の、70°C 90% RH 雰囲気におけるはく離強度保持率の経時変化である<sup>2)</sup>。ラップ長さや試験片の幅が変化するだけで耐湿性が大きく変化していることがわかる。図16.3は、接着部が円形、正方形、正三角形の種々の寸法の突き合わせ引張り試験片を、80°C 90% RH

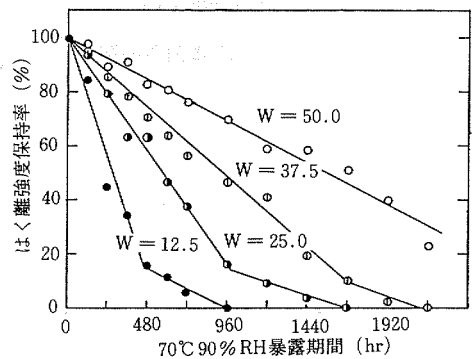


図16.2 耐湿性に及ぼすはく離試験片の幅Wの影響

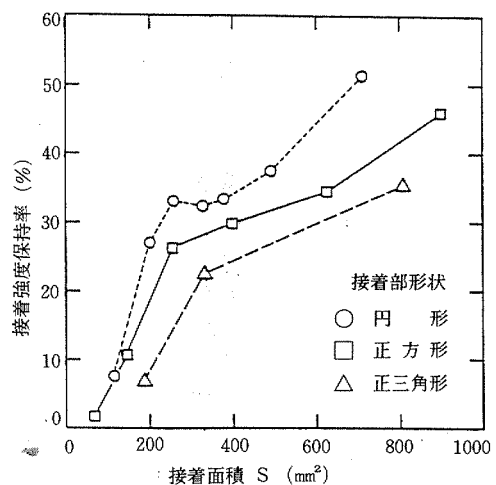


図16.3 突き合わせ引張り試験片の形状、面積と接着強度保持率の関係

雰囲気中に5日間暴露した後の接着面積Sと引張り強度保持率の関係である<sup>3)</sup>。同一形状であれば接着面積が大きいほど耐湿性に優れていることがわかる。一方、接着面積が同じでも形状により耐湿性に差が見られる。これは、接着面積が同じでも形状により接着部の外周の長さが異なるためである。被着材自体が水分を通さない場合は、水分は接着部の外周のみから侵入してくるため、外周の長さが短い形状ほど耐湿性に優れている。

このように、耐湿性は接着部の面積と外周の長さに影響されるので、接着面積Sを外周の長さLで割った値εで図16.3の横軸を整理しなおすと、図16.4に示すようにはほぼ1本の線に一致する<sup>3)</sup>。εが大きいほど耐湿性に優れている。εができるだけ大きくなる形状・寸法の接着部となるように構造設計を行えば良い。

試験片のεより製品の接着部のεが小さい場合は、試験片で得られた耐湿試験の結果より製品の耐湿性は劣るので注意が必要である。

なお、εの小さな試験片を使用すると短時間で耐湿性の評価が可能である。

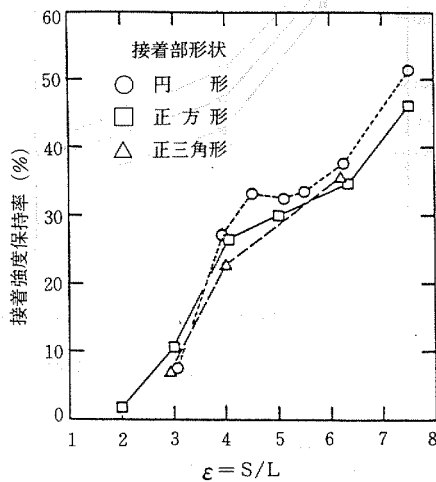


図16.4 εと接着強度保持率の関係  
ε = (接着面積S / 接着部外周の長さL)

### 16.2 接着部への水分の拡散を考慮した耐湿性評価法

幅Wで長さが非常に長い接着部の端面から水分が侵入する場合、端面からの距離Xにおけるt時

間後の吸水率Mxは次式で表される。

$$\frac{M_x}{M_m} = 1 - \frac{4}{\pi} \sum_{j=0}^{\infty} \frac{1}{(2j+1)} \sin \frac{(2j+1)\pi x}{W} \cdot \exp \frac{-(2j+1)^2 \pi^2 D t}{W^2} \dots\dots (1)$$

Mx : 時間t, 端面からの距離xにおける吸水率  
Mm : 飽和吸水率, W : 試料幅

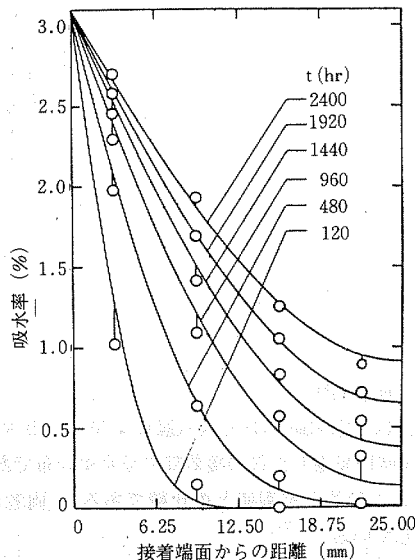


図16.5 幅50mmの接着部を70℃ 90%RH 雰囲気にてt時間暴露した時の接着部の吸水率分布の計算結果と実測値の比較 (○: 実測値、—計算結果)

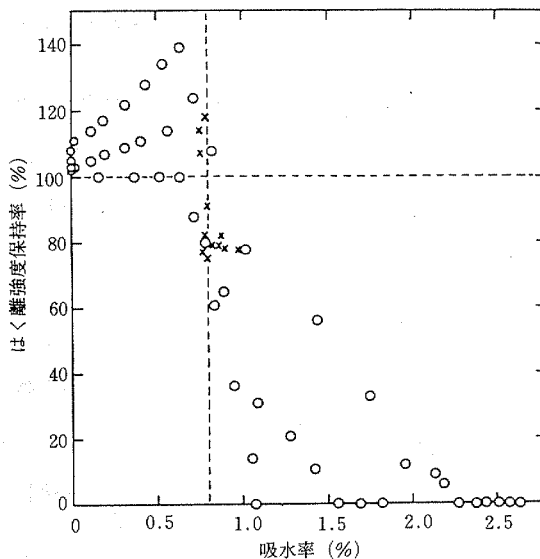


図16.6 接着層の吸水率とはく離強度保持率の関係

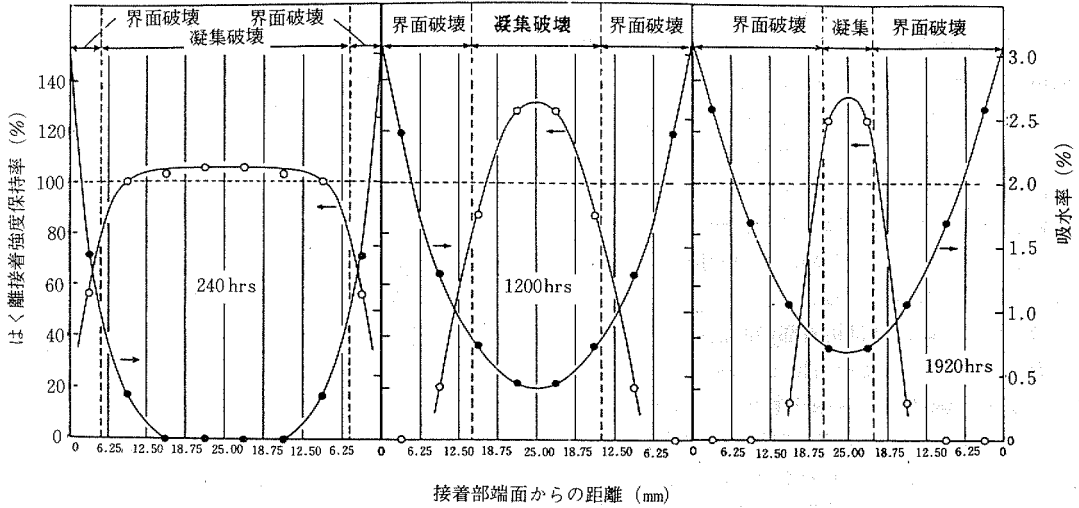


図16.7 70℃ 90% RH 雰囲気暴露における接着部の吸水率分布とはく離強度保持率の分布

D : 拡散係数

図16.5は、幅50mmのはく離試験片を70℃ 90% RH 雰囲気中にt時間暴露した後の接着部の吸水率分布であり、(1)式による計算と実測値との比較である<sup>2)</sup>。両者は良く一致している。

図16.6は、実験により求めた接着部の吸水率と接着強度保持率の関係である<sup>2)</sup>。図16.6の結果と図16.5で求めた吸水率の分布より、t時間後の接着部の接着強度保持率の分布を求めることができる。図16.7に、幅50mmのはく離試験片を70℃ 90% RH に240 hr、1200 hr、1920 hr 暴露した時の接着部の吸水率と接着強度保持率の分布を示す<sup>2)</sup>。

以上のように、この方法では吸水率と接着強度の関係および飽和吸水率、拡散係数を求めておけば、種々の寸法の接着部について簡単に計算ができるので、最適接着部寸法の検討や長期耐久性の予測などに有効である。

16.3 長期耐湿劣化の推定法

接着強度の長期的な変化を加速試験とアレニウスプロットから求める方法の一例を示す。次に示す例では、25℃ 90% RH 雰囲気における長期間の強度変化を求める。まず、図16.8<sup>1)</sup>に示すように、40℃、50℃、60℃、の各々90% RH 雰囲気における加速試験を行う。次に、図16.8において、せん断強度の保持率が80%、70%、60%、50%、40%まで低下する時間をそれぞれ求め、図16.9<sup>1)</sup>に示すように、それぞれの保持率Pまで低下する時間の対数と暴露

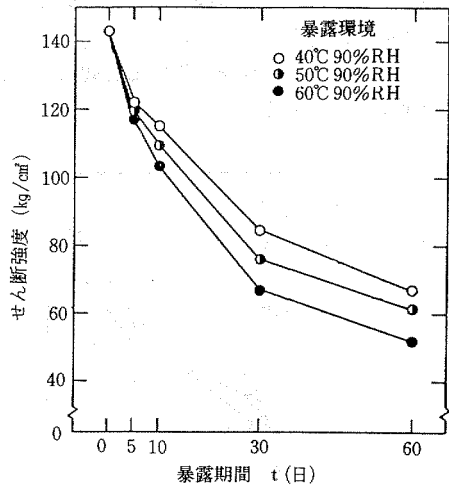


図16.8 高温高湿暴露による加速試験結果

温度T (°K) の逆数との関係としてプロットする。それぞれの保持率について直線を25℃まで外挿する。保持率と図16.9より得られた25℃における時間の関係をプロットすると、図16.10<sup>1)</sup>に示すように、25℃ 90% RH に連続暴露した場合の経時変化曲線が得られる。この方法で求めた推定曲線の精度はかなり高い。

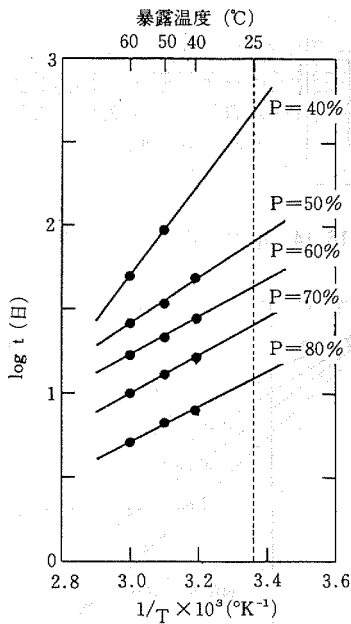


図16.9 保持率Pにおけるアレニウスプロット

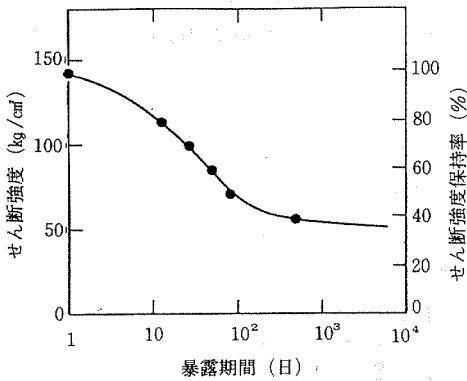


図16.10 25°C 90% RH 連続暴露における接着強度の経時変化の推定結果

### 16.4 耐湿劣化後の乾燥による接着強度の回復と屋外暴露劣化の推定法

図16.11<sup>1)</sup>に示すように、高温高湿中に暴露すると接着部に水分が侵入し接着強度は低下する。しかし、乾燥して水分を追い出すと接着強度はある程度回復する。接着強度の回復の程度は接着剤、被着材により異なる。接着強度が回復するという事は、水分の侵入により被着材と接着剤の界面での結合が破壊されていないことを意味している。接着剤や被着

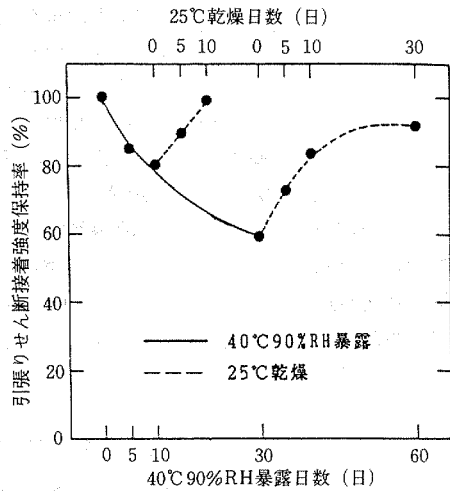


図16.11 40°C 90% RH 雰囲気暴露による接着強度の低下と乾燥による接着強度の回復

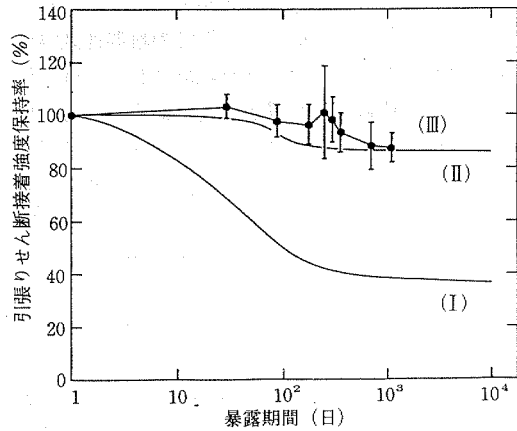


図16.12 乾燥による強度回復を考慮した屋外暴露劣化の推定結果 (II) と実測値 (III) の比較 (I) は加速試験から推定した25°C 90% RH 雰囲気における劣化曲線

材の選定試験を行う場合に、高湿度暴露試験のみでは数種類の試料が同一保持率を示した場合には優劣がつけられないが、乾燥による強度回復試験を実施すると回復性に差がみられることが多く適切な判定が可能である。乾燥による強度回復の評価は接着剤、被着材の選定にあたって非常に有効であり、また、重要な評価項目である。

屋外環境においては湿潤状態と乾燥状態が繰り返

される。そこで、乾燥による接着強度の回復を考慮することにより、屋外暴露における長期間の経時変化を予測することができる。その方法を次に示す。まず図16.11に示した加速試験により、湿潤状態における強度低下率と乾燥による強度回復率の関係を求めておく。次に、図16.12<sup>1)</sup>に示すように、図16.10で得られた25℃90%RH雰囲気連続暴露における長期間の強度低下予測カーブ（Ⅰ）を、図16.11から得られた湿潤状態における強度低下率と乾燥による強度回復率の関係で補正すると曲線（Ⅱ）が得られる。この曲線が、屋外環境における長期間の強度低下の予測カーブである。実際の屋外暴露試験結果（Ⅲ）と予測カーブ（Ⅱ）とは良く一致している。

16.5 応力負荷状態での耐湿劣化の評価法

接着部に応力が負荷された状態で使用されると無負荷の状態に較べて劣化を起しやすい。また、湿度が高い状態では負荷応力の影響が大きくなる。そこで、接着部に応力を負荷した状態での耐湿性試験は非常に重要である。このような試験においては、試験片に応力を負荷する装置が必要である。応力を負荷した状態で種々の環境暴露試験を行うためには、応力負荷装置は数多く使用できるように小型で安価でなければならない。JIS規格の引張りせん断試験片に応力を負荷する装置の一例を図16.13、図16.14<sup>4)</sup>に示す。この装置は全長30cm、最大外径50mmと同種の装置のなかでは非常に小型である。300kgまでの荷重が負荷できる。この装置による評価試験の結果を図16.15<sup>4)</sup>、図16.16<sup>4)</sup>に示す。図16.15は、60℃において相対湿度を変化させた場合のクリーブ破断特性である。相対湿度が高くなると

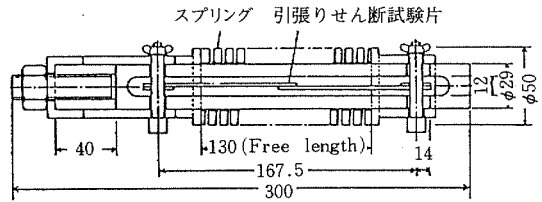


図16.14 応力負荷装置の形状・寸法

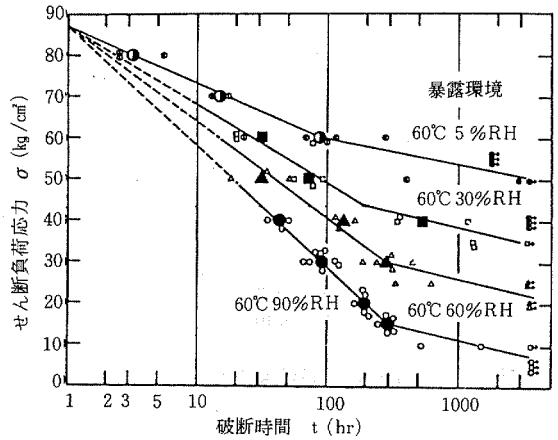


図16.15 60℃における相対湿度とクリーブ破断特性

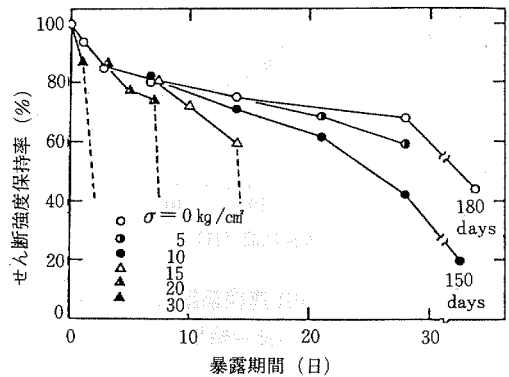


図16.16 応力負荷状態での60℃ 90% RH 雰囲気暴露における耐湿性試験（σはせん断負荷応力）

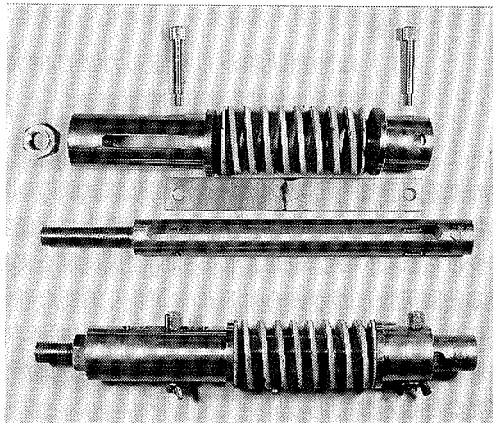


図16.13 応力負荷装置

破断をおこしやすくなるのがわかる。図16.16は、種々の大きさの応力を負荷した状態で60℃ 90% RH 雰囲気に暴露して、自然破断する前に経時的に取り出して、応力を解除して残存接着強度を測定したものである。負荷応力が高くなると劣化しやすくなるのがわかる。

16.6 応力負荷状態での耐湿劣化の改善法

接着部に大きな負荷応力が加わる場合の耐湿性の低下を防ぐためには、ウェルドボンドやリベットボンドが効果的である。図16.17<sup>3)</sup>に、60℃ 90% RH 雰囲気におけるウェルドボンド、リベットボンドによるクリープ破断特性の改善効果を示した。

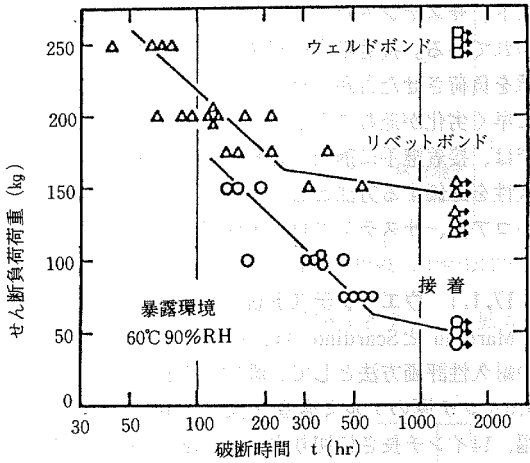


図16.17 60℃ 90% RH 雰囲気における接着、リベットボンド、ウェルドボンドのクリープ破断特性の比較

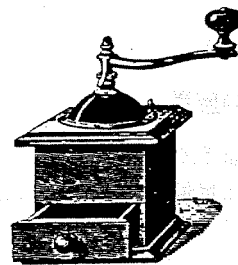
おわりに

長期劣化の予測や耐湿性向上について、筆者がこれまでに行ってきた方法の一例を紹介した。接着接合の適用は今後ますます高度化し、使用環境や負荷応力もますます厳しくなっていく。それゆえに長期耐久性の評価は今後ますます重要となる。今後の耐久性評価法の研究開発に大いに期待したい。

(原賀 康介)

文 献

- 1) 原賀康介; 日本接着協会誌, 15 (12) 568 (1979).
- 2) 原賀康介; 日本接着協会誌, 23 (5) 178 (1987).
- 3) 原賀康介, 児玉峯一; 日本接着協会誌, 16 (6) 224 (1980).
- 4) 原賀康介, 山田 祥, 児玉峯一; 日本接着協会誌, 19 (8) 333 (1983).
- 5) 原賀康介, 児玉峯一; 日本接着協会誌, 21 (1) 4 (1985).



# 接着の技術

## 特集：接着評価法の実際

Vol.9 No.1 1990



発行：日本接着学会