

## 11. 接着耐久性の評価方法

原 賀 康 介\*

### 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、それほどあい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。なお、以下のデータは全て金属同志を変性アクリル系接着剤で接着したものである。

### 11.1 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が重要である。

図11.1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℃90%RH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>1)</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

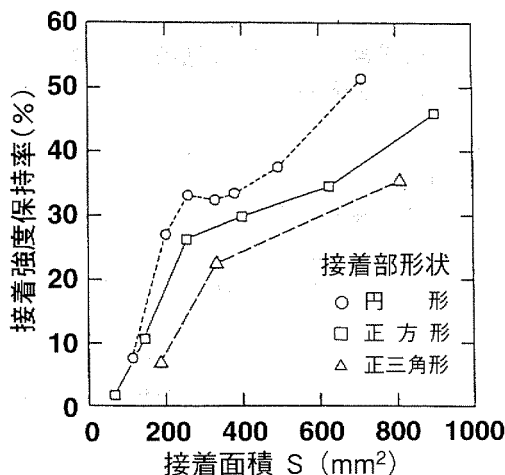


図11.1 突き合わせ引張り試験片の形状、面積と高湿度中暴露後の接着強度保持率の関係

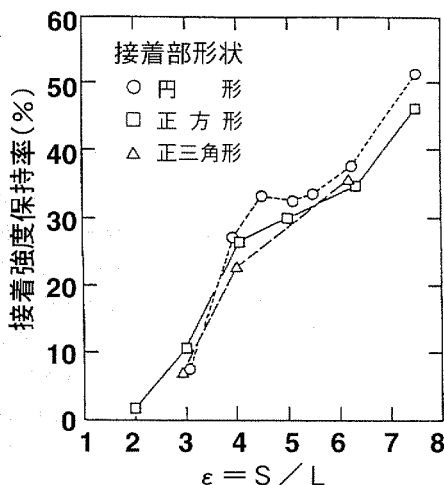


図11.2  $\epsilon$ と接着強度保持率の関係

\* 三菱電機㈱先端技術総合研究所環境・分析評価技術部  
 尼崎市塚口本町8-1-1 〒661

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  $\epsilon$  で図11.1の横軸を整理しなおすと、図11.2に示すようにほぼ1本の線に一致する<sup>1)</sup>。 $\epsilon$  が大きいほど耐湿性に優れている。 $\epsilon$  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  $\epsilon$  より製品の接着部の  $\epsilon$  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、 $\epsilon$  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。

### 11.2 接着部への水分の拡散を考慮した耐湿性評価法

幅が  $W$  で長さが非常に長い接着部の側端面から水分が侵入する場合、側端面からの距離  $x$  における  $t$  時間後の吸水率  $M_x$  は(1)式で表わされる。

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

$M_x$  : 時間  $t$ 、端部からの距離  $x$  における吸水率

$M_m$  : 飽和吸水率

$W$  : 接着部の幅

$D$  : 拡散係数

$$D = \frac{\Delta M^2 \pi}{16 M_m^2 \Delta t} \cdot \frac{1}{(1/W + 1/b)^2}$$

$M$  : 時間  $t$  における吸水率

$b$  : 試料長さ

図11.3は、幅  $W$  が50mm のはく離試験片を70℃ 90%RH 雰囲気にて  $t$  時間暴露した後の接着部の吸水率分布であり、上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11.4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11.4の結果と図11.3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11.5に、幅50mm のはく離試験片を70℃ 90%RH に240hr、1200hr、1920hr 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した<sup>2)</sup>。

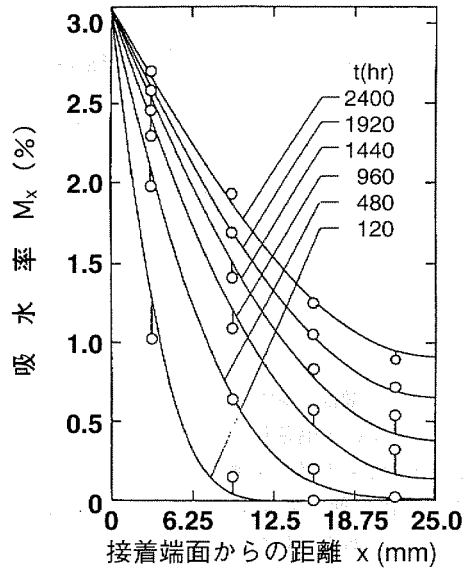


図11.3 接着部の吸水率分布の計算結果と実測値の比較

(○: 実測値, — 計算結果) (幅  $W=25\text{mm}$ )

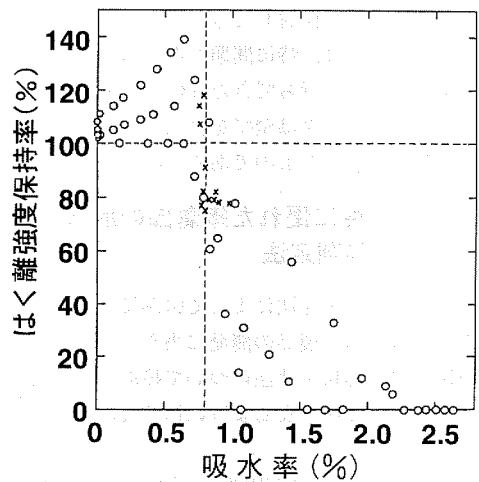


図11.4 接着層の吸水率とはく離強度保持率の関係

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。

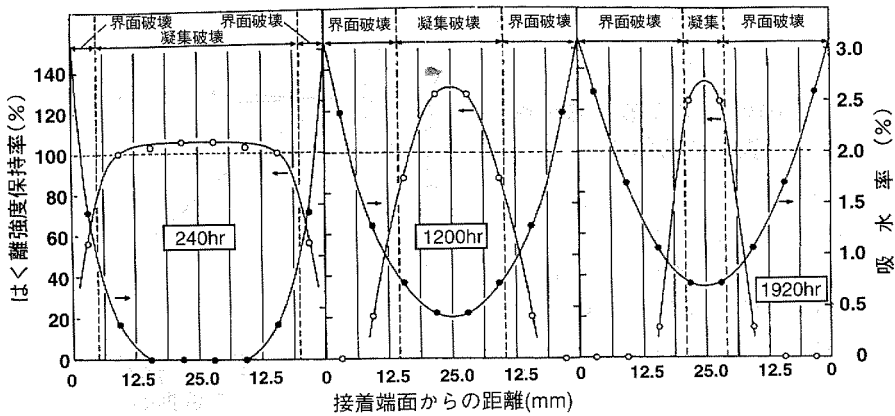


図11.5 240hr, 1200hr, 1920hr 後の吸水率分布とはく離強度保持率, 破壊状態の関係

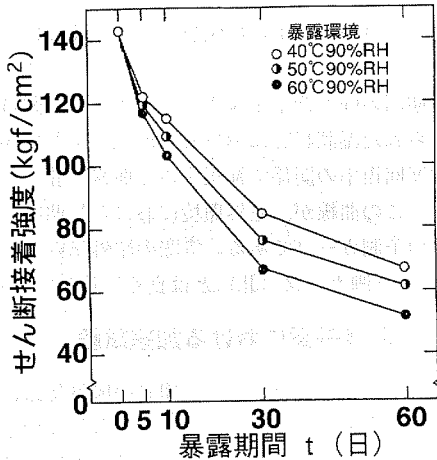


図11.6 高温高湿暴露による加速試験結果

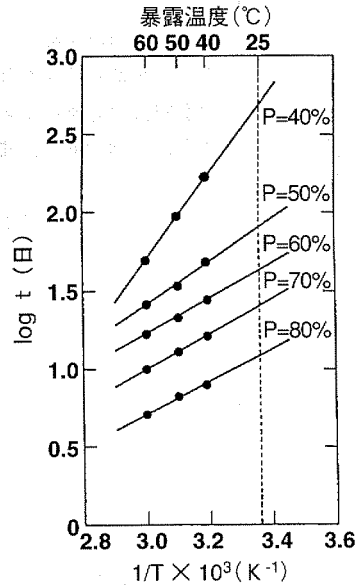


図11.7 保持率 P におけるアレニウスプロット

### 11.3 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°C 90%RH 雰囲気における長期間の強度変化を求める。まず、図11.6<sup>3)</sup>に示すように、40°C、50°C、60°Cの各々90%RH 雰囲気における加速試験を行う。次に、図11.6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11.7<sup>3)</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°Cまで外挿する。保持率と図11.7より得られた25°Cにおける時間の関係をプロットすると、図11.8<sup>3)</sup>に示すように、25°C

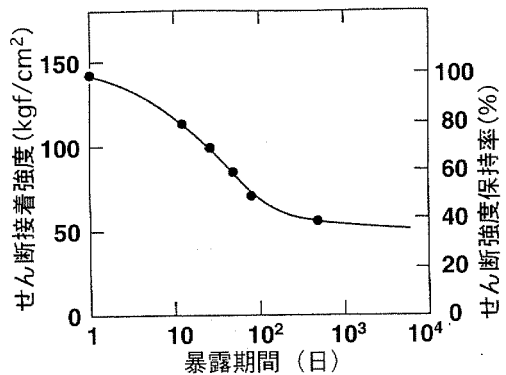


図11.8 25°C 90%RH 連続暴露における接着強度の経時変化の推定結果

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<sup>3)</sup>。

### 11.4 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11.9<sup>3)</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見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11.9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11.10<sup>3)</sup>に示すように、図11.8で得られた25℃90%RH 雰囲気連続暴露にお

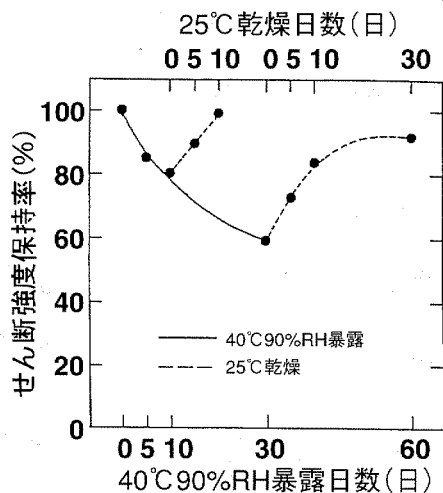


図11.9 高湿度中暴露による接着強度の低下と乾燥による接着強度の回復

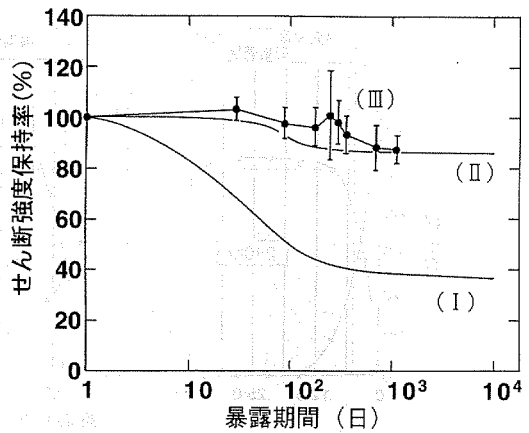


図11.10 乾燥による強度回復を考慮した屋外暴露劣化の推定結果 (Ⅱ) と実測値 (Ⅲ) の比較  
[曲線 (Ⅰ) は図11.8の劣化曲線]

る長期間の強度低下予測カーブ (Ⅰ) を、図11.9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。

### 11.5 屋外暴露における加速試験

短期間の屋外暴露試験で長期間の屋外暴露における接着強度の変化を求めることができれば効果的である。11.1項で述べたように、接着部の耐湿性は接着部の寸法によって変化する。そこで、11.2項に示した吸水率の式により、種々の幅  $W$  の接着部において一定の平均吸水率  $M_{ave}$  となるまでの時間  $t$  と、その時の吸水率の分布を求めてみると図11.11<sup>4)</sup>のような結果が得られる。図11.11の結果をながめると、接着部の幅  $W$  が2倍、3倍、4倍となると、時間  $t$  はそれぞれ4倍、9倍、16倍となっていることがわかる。この関係を用いれば、接着部の幅を半分にして屋外暴露試験を行えば1/4の期間で済むことになる。図11.12<sup>5)</sup>は、接着部の幅が12.5mm と25mm の場合の屋外暴露試験の比較である。●●が実測値、破線 (Ⅰ) は幅12.5mm の実測値の近似直線で、直線 (Ⅱ) は直線 (Ⅰ) の傾きを1/4にしたものである。その結果、直線 (Ⅰ) は幅25mm の実測値とよく一致している。つまり、半分の接着幅の試験片を用いると1/4の期間で試験ができるわけで

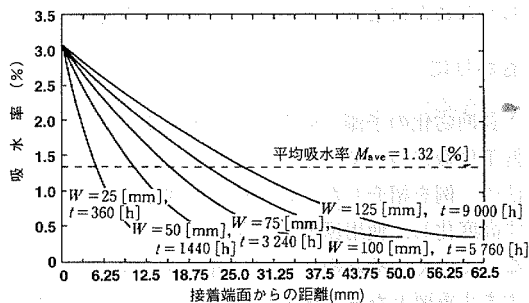


図11.11 平均吸水率が同一の場合の、種々の幅 W の接着部における吸水率の分布と暴露時間 t (70℃90%RH 暴露)

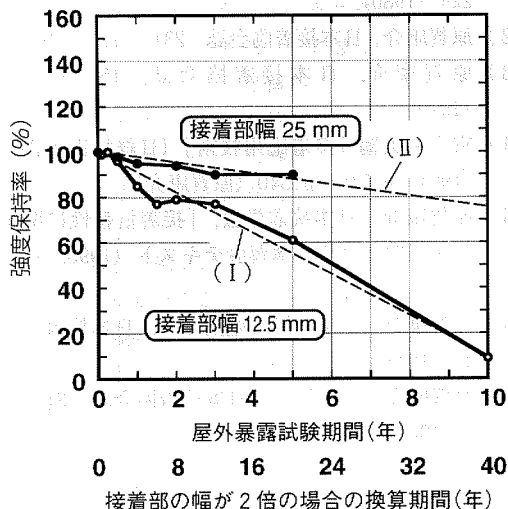


図11.12 屋外暴露試験における接着部の幅と劣化時間の関係

ある。逆に、既に屋外暴露試験の長期データがあれば、図11.12の横軸に示すように、接着部の幅を広げた場合、さらに長期間の推定ができることになる。

### 11.6 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

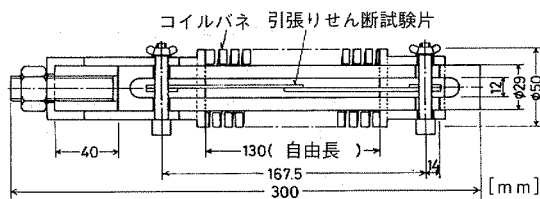


図11.13 三菱電機式スプリング式応力負荷装置の形状・寸法

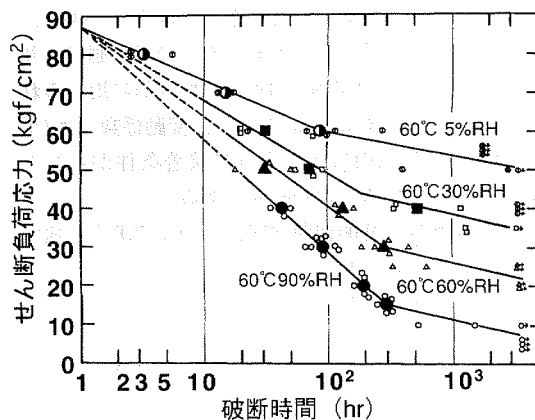


図11.14 60℃における相対湿度とクリープ破断特性

片に応力を負荷する装置の一例を図11.13<sup>6)</sup>に示す。この装置は三菱電機(株)が開発したもので非常に小型で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11.14<sup>6)</sup>に示す。図11.14は、60℃において相対湿度を変化させた場合のクリープ破断特性である。負荷応力及び相対湿度が高くなると破断をおこしやすくなるのがわかる。

### 11.7 接着強度低下係数

接着構造物を設計する場合、接着部の設計強度をどの程度に見積もるかは非常に重要である。設計強度は静的な初期強度に対して、一般に次のような強度低下係数を乗じて決定される。

- (1) 環境暴露による接着強度の低下率 (寸法も考慮)
- (2) 継続荷重の負荷 (クリープ) による接着強度の

## 低下

(3) 繰り返し荷重の負荷（疲労）による接着強度の低下

(4) 温度変化（高温や低温）による接着強度の低下

(5) 接着強度のばらつき、など。

(1)については、11.1～11.5項で示した長期の強度変化の予測と接着部の寸法による劣化率の変化より求める。図11.10の場合は0.86である。(2)については、クリープを起こさない応力値の上限を求めねばならないが、11.6項（図11.14）に示したクリープ破断試験では、屈曲点の応力値から約15kgf/cm<sup>2</sup>低い値である<sup>6)</sup>。なお、接着面積が大きくなると湿度の影響を受けにくくなるので、クリープ破断曲線は低湿度側にシフトする。(3)については、疲労限界は静的強度の20%～35%程度と考えればよい。(4)は、初期的特性で容易に測定可能であるので実測により求める。(5)は、[平均値-3σ]が便宜的に用いられている（σ：標準偏差）。ただし、変動係数（σ/平均値）が10%以内に入るように接着条件がコントロールされていることが必要である。

設計強度は、静的初期強度に(1)～(5)で求めた強度低下率を掛け合わせたものに、さらにそれぞれの不明確さやその他の因子の影響として0.5程度を掛けたものとなる。

なお、[設計強度/要求強度]が安全率となるが、設計強度は接着面積を大きくしたり、ウェルドボンドやリベットボンドのように他の接合方法と組み合

わせることにより大きくすることができる<sup>7)</sup>。

## おわりに

長期劣化の予測や耐湿性の向上および接着強度の低下係数について、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。

## 参考文献

- 1) 原賀康介, 児玉峯一, 日本接着協会誌, 16(6) 224 (1980).
- 2) 原賀康介, 日本接着協会誌, 23(5) 178 (1987).
- 3) 原賀康介, 日本接着協会誌, 15(12) 568 (1979).
- 4) 宮入裕夫編「接着応用技術」(日経技術図書) (1991) p.515～p.540 (原賀康介).
- 5) 原賀康介, 日本接着学会, 「接着信頼性に関する諸問題と対策」講習会テキスト (1995. 11. 22)
- 6) 原賀康介, 山田 祥, 児玉峯一, 日本接着協会誌, 19(8) 333 (1983).
- 7) 原賀康介, 児玉峯一, 日本接着協会誌, 21(1) 4 (1985).



