

〈論文〉

(受理：平成5年1月5日)

接着接合体の熱応力に及ぼす樹脂物性の影響

春名 一志^{*}，西川 哲也^{**}，原賀 康介^{*}

要 旨

一般に熱硬化性樹脂を用いた接着接合を行う際の冷却過程においては、拘束された状態での収縮が生じ、それが原因で熱応力 (Thermal Stress) が発生する。この熱応力は、内部応力 (Internal Stress) となって接合体に蓄積され、冷却後の割れや接合部の剝離の原因となり、接合体の信頼性に大きな影響を与える。このため、接着剤選定の際には、接着剤の物性が熱応力に及ぼす影響を明らかにしておく必要があると考えられる。

そこで本研究では3次元境界要素法 (Boundary Element Method : BEM) による熱応力解析によって、接着剤の弾性率、線膨張率が接合体の熱変形や応力に及ぼす影響を検討した。その結果、接着剤の弾性率は接合体の変形や応力に影響を及ぼすのに対し、線膨張率は接着層の応力にのみ影響を及ぼす事が明らかとなった。また、材料力学に基づいて求めた軸力によって、熱応力発生の主要因は、収縮の最も大きな接着層の収縮ではなく、被着体間の熱ひずみの差である事が明らかとなった。

1. 緒 言

物体が冷却されると、物体内の微小要素はその点の温度によって、熱収縮が生じる。しかし、その収縮が何らかの要因で拘束されると物体内に応力が生じる。この応力を一般に熱応力という。

このような熱応力は、熱硬化性樹脂を用いた接着接合体においても同様に発生する。熱硬化性樹脂を用いて接着接合を行う場合、一旦、硬化温度まで昇温した後、室温まで冷却するという工程を経る。昇温、冷却過程において各被着体および接着剤には膨張、収縮が生じるが、昇温後、硬化温度で接着剤が硬化する事より、冷却過程における収縮は拘束され、熱応力が発生する。そして、この熱応力は、内部応力となって材料内部に残り、接着冷却後、割れや接合部の剝離の原因となる。また、使用中の接合部のトラブルにつながる事もあり、接着接合体の信頼性に大きな影響を与える。

このため、熱硬化性樹脂による接着接合の接着剤選定

の際には、接着剤の物性 (弾性率および線膨張率等) が熱応力に及ぼす影響を明らかにしておく必要があると考えられる。

そこで、本研究においては、ガラス/リン青銅の接着接合体において、3次元境界要素法による熱応力解析を行い、接着剤の弾性率および線膨張率が、サンプルの熱変形や熱応力に及ぼす影響を検討した。本研究では、最初に、冷却後の接着サンプルの変形量の実測値と解析結果との比較により、解析精度の検証を行った後、本解析モデルによって接着剤の弾性率、線膨張率の熱応力に及ぼす影響を検討した。

2. 実験方法および解析方法

2.1 実験方法

実測用として図1に示すようなサンプルを用いた。本サンプルは、被着体としてガラス (マイクロカバーガラス マツナミガラス[®]) およびリン青銅 (C5210-H) を用い、接着剤は熱硬化型エポキシ樹脂を用いた。硬化条件およびガラス転移温度は、それぞれ130°C/2時間、126°Cであり、硬化温度からT_gまでの冷却過程において発生する応力の影響が少なく、ガラス状態での冷却収縮により発生する熱応力が支配的である事を理由に選出した。

* 三菱電機(株)材料デバイス研究所
尼崎市塚口本町8-1-1 〒661

** 三菱電機(株)生産技術研究所
尼崎市塚口本町8-1-1 〒661
(原稿受付日:平成4年11月10日)

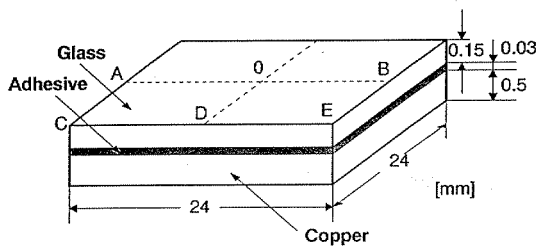


Fig. 1 Specimen configuration.

接着後のサンプルの実測としては、変形量を対象とし、表面あらさ計を用いて図1中のA-O-B線上、C-D-E線上の変形量を測定した。

2.2 解析方法

熱応力解析にも図1と同じモデルを用い、当社開発品である境界要素法ソフト^{1,2)}により、図2に示す要素分割、拘束条件で行った。要素は、4角形2次要素(8節点)を用いた。サンプルの対称性を利用し、要素分割は1/4に対して行った。また、モデルは3層構造であり、1層目はガラス層、2層目は接着層、3層目は銅層を表わし、表1に示す材料定数をそれぞれ有している。また、材料は等方性材としている。温度変化は、T_g以下の温度領域で、-110℃とした。

また、本解析モデルによって、接着剤の物性値の影響

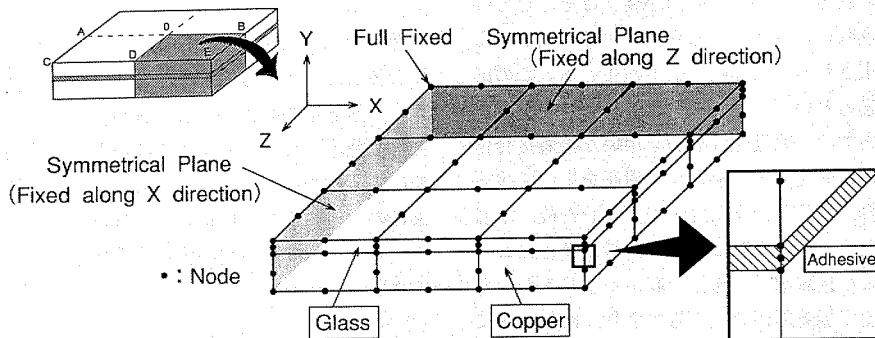


Fig. 2 BEM division.

Table 1 Material properties.

	E [Kgf/mm ²]	α [$^{\circ}$ C $\times 10^{-6}$]	ν
Glass	7500.0	8.0	0.24
Adhesive (-55~126 $^{\circ}$ C)	157.2	63.0	0.30
Copper	12000.0	17.8	0.38

E : Elastic Modulus α : Coefficient of Thermal Expansion ν : Poisson's Ratio

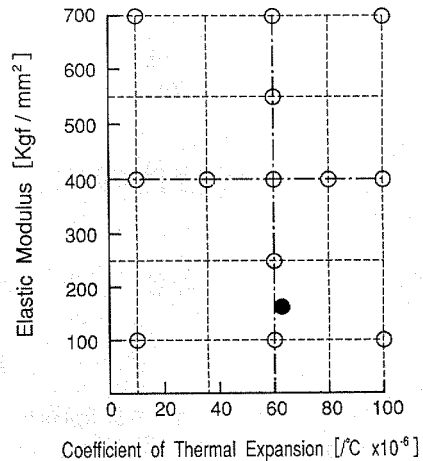


Fig. 3 Elastic modulus and coefficient of thermal expansion of adhesive element.

を検討するため、図3に示すように物性値を変化させた。図中●印が実測に用いたエポキシ樹脂の物性値で、○印が解析により検討した接着層の物性値である。なお、図3に示した物性値は通常のエポキシ樹脂の物性値をほぼカバーしているものと考えられる。

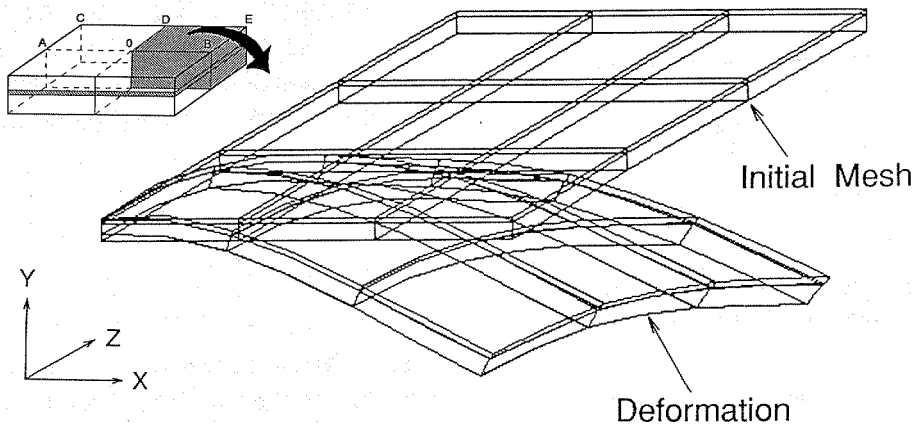


Fig. 4 Deformation state by BEM.

3. 実測結果および解析結果

3.1 解析精度の検証

図4に解析結果である冷却後の変形図の1例を示す。図のようにリン青銅が最も収縮しており、サンプルは凸型に変形している。本研究では、図4に示したような解析結果である変形量を実測による変形量と比較する事により解析結果の妥当性を評価した。

図5に解析結果と実測値を比較した結果を示す。図は図1中のO-B線上ならびにD-E線上のY方向の変形量を示している。解析結果は実測値より若干大きくなっているが、樹脂の応力緩和などを無視して解析を行っている事を考慮に入れるとほぼ妥当な解析結果が得られていると考えられる。そのため本研究では、本解析モデルによって樹脂物性の熱変形・応力に及ぼす影響を検討した。

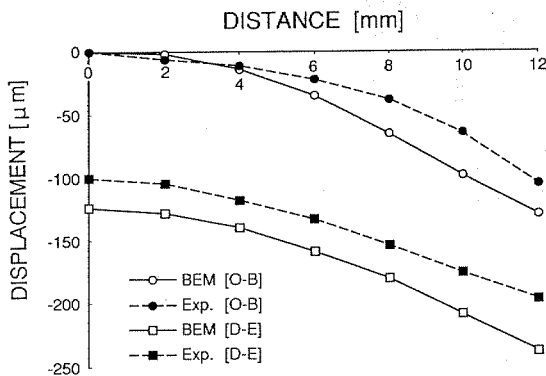


Fig. 5 Comparison between calculated and experimental displacement.

3.2 接着剤物性の影響

3.2.1 変形量に及ぼす影響

最初に冷却後の熱変形に及ぼす接着剤の物性値の影響を検討した。線膨張率を一定にして弾性率の影響を検討した場合、およびその逆について検討するため、図3中の1点鎖線上において、最大変形量を弾性率、線膨張率に対してプロットした図を、図6、図7にそれぞれ示す。図4に示した変形図のように、最も変形量の大きい部分はコーナー部(図1中E点)であり、最大変形量はコーナー部のY方向の変位を示している。

図6より変形量には、接着層の弾性率の影響が表れており、接着層の弾性率が増加すると最大変形量は大きくなり、次第に飽和している。

図7より線膨張率が増加すると、最大変形量は若干減少しているが、ほぼ一定の値を示している。したがって、樹脂の物性において、弾性率はサンプルの変形に影響を

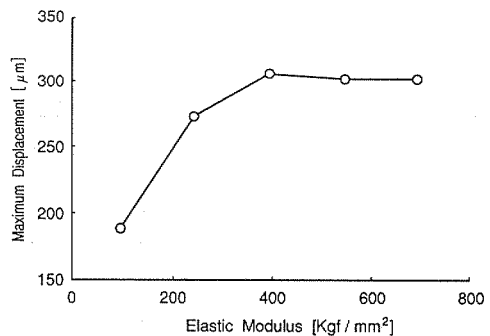


Fig. 6 Maximum displacement as a function of elastic modulus.

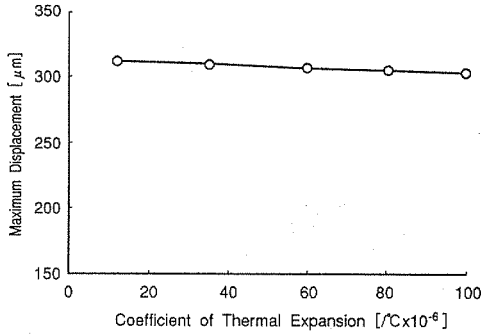


Fig. 7 Maximum displacement as a function of coefficient of thermal expansion.

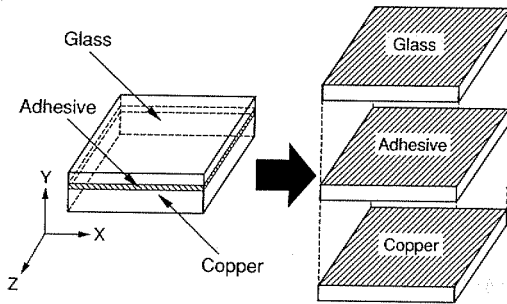


Fig. 8 Schematic diagram of BEM model.

及ぼすが線膨張率は影響を及ぼさないと考えられる。

3.2.2 熱応力に及ぼす影響

次に接着後 (冷却後) の熱応力に及ぼす接着剤の物性値の影響を検討した。また本解析モデルは図8に示すよ

うに3層構造をしており、応力の評価は図8中斜線で示した各層の表面において行った。応力はミーゼスの相当応力 (Mises Equivalent Stress: σ_{eq})³⁾を用い、解析モデルのガラス、樹脂、および銅層の表面における σ_{eq} に注目した。 σ_{eq} は(1)式により求めた。

$$\sigma_{eq} = \sqrt{\frac{1}{2}((\sigma_{yy} - \sigma_{zz})^2 + (\sigma_{zz} - \sigma_{xx})^2 + (\sigma_{xx} - \sigma_{yy})^2 + 6(\tau_{yz} - \tau_{zx} - \tau_{xy}))} \dots (1)$$

図9に各層表面における σ_{eq} 分布の1例をコンター図で示す。ガラス層表面、接着層表面およびリン青銅層表面においては、それぞれ、中央線端部、中央線端部もしくはコーナー部、および中心付近において、応力集中が生じている。本研究ではこれらの σ_{eq} の各層表面に生じる最大値によって、接着剤の物性の影響を検討した。また、線膨張率および弾性率を一定として、弾性率、線膨張率の影響をそれぞれ検討するため、図10に図3中の1点鎖線上における弾性率、線膨張率の変化に伴う各層表面の σ_{eq} の最大値の変化を示す。接着層の弾性率が增加すると各層表面に生じている σ_{eq} も増加し、次第に飽和している。それに対して σ_{eq} と線膨張率の関係においては、線膨張率増加に伴ってガラスおよび銅層の σ_{eq} はほとんど変化がみられないのに対し、接着層に生じている σ_{eq} のみが増加している。これらの結果より、接着層の弾性率は、サンプルの変形と同様に各層の応力に影響を及ぼすのに対し、線膨張率は変形や被着体に生じる応力には影響を及ぼさず、接着層に生じる応力にのみ影響する事が明らかとなった。

以上のように、弾性率と線膨張率の影響の仕方は異

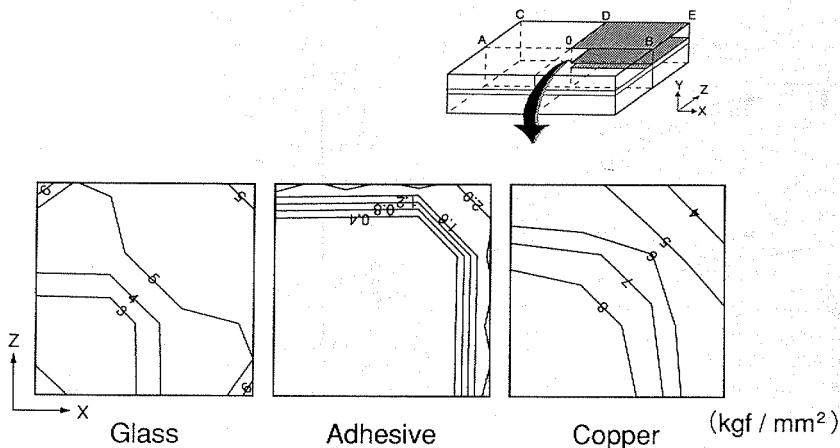


Fig. 9 Contour diagram of equivalent stress in each layer.

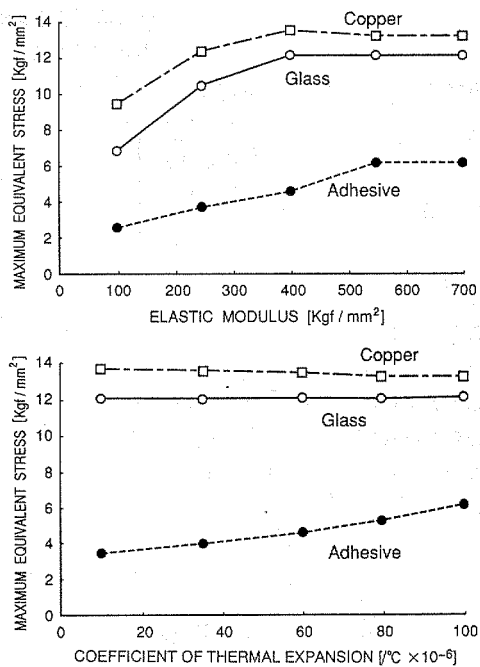


Fig. 10 Maximum equivalent stress in each layer vs. elastic modulus and coefficient of thermal expansion of adhesive.

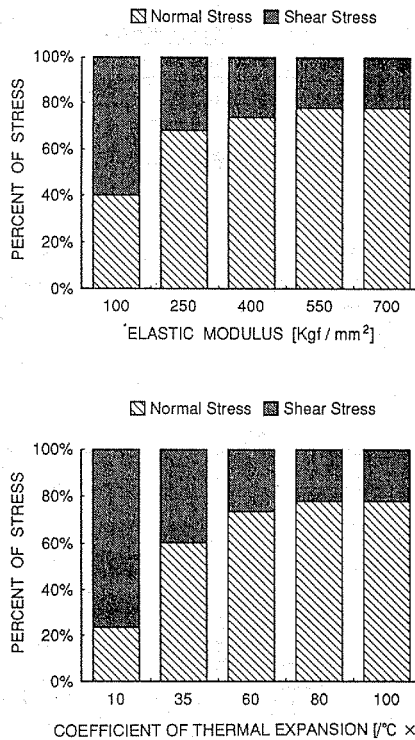


Fig. 11 Percent of normal and shear stress vs. elastic modulus and coefficient of thermal expansion of adhesive.

なっている事が明らかとなったが、接着層に生じる σ_{eq} に関しては類似しており、弾性率、線膨張率が増加すると接着層に生じる σ_{eq} は増加する。

また、亀裂進展等を検討する際には応力成分ならびにその方向を検討する必要がある。そこでさらに接着層に生じる σ_{eq} について、その応力成分について検討を加えた。 σ_{eq} は(1)式により求めているため、(1)式中の各応力成分が占めている割合について検討した。図11に、図10に示した接着層表面の σ_{eq} における各応力成分の割合と弾性率、線膨張率の関係を示す。また、応力成分は垂直応力((1)式における σ_{xx} , σ_{yy} , σ_{zz})とせん断応力成分(τ_{xy} , τ_{yz} , τ_{zx})に分類した。弾性率、線膨張率が増加していくと、支配的な応力成分がせん断応力から垂直応力に移行している。詳細な検討は行わ

なかったが、接着層において亀裂が発生し、進展する場合には、弾性率、線膨張率によってモードが異なる(例えば縦せん断形から開口形)と考えられる。

4. 考察

以上より得られた主な結果をまとめると表2のようになる。これら解析結果に対して考察を行う場合、熱応力の発生機構ならびに発生要因について考察する必要があると考えられる。熱応力の発生機構の説明図を、図12⁴⁾に示す。示した図は、異なる線膨張率を有した異材接合の場合であり、接着層が存在しない(モデル化されていない)場合である。発生機構としては、被着体が接着さ

Table 2 Results of BEM Analysis.

	When Elastic Modulus of Adhesive is increase.	When Coefficient of Thermal Expansion is increase.
Displacement of Adherend.	increase→saturate	constant
Thermal Stress of Adherend	increase→saturate	constant
Thermal Stress of Adhesive	increase(Normal Stress>Shear Stress)	

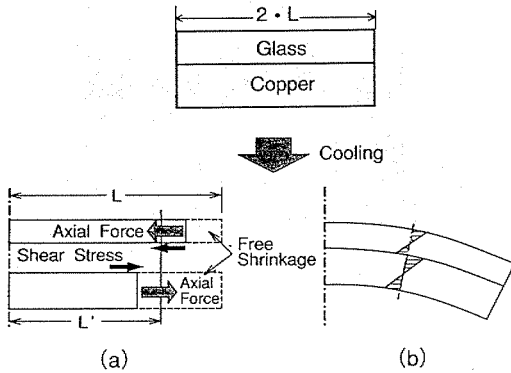


Fig. 12 Generative mechanism of thermal stress. (Ref.4)

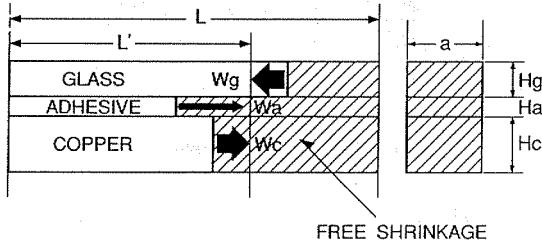


Fig. 13 Explanation diagram of axial force calculation.

れていない場合は、冷却時には材料の線膨張率に伴った自由収縮が生じるが、接着されているために、自由収縮の差をうめるための軸力ならびに被着体間界面のせん断応力が生じる。さらに、曲げが拘束されていない場合には曲げ変形に伴う応力が生じる。以上のような軸力のバランスと巨視的曲げを組み合わせた応力が、冷却後の熱応力となる⁴⁾。

したがって、熱応力発生の基本的原因は、図12-aに示した軸力およびせん断応力であると考えられる。そこで本研究では材料力学に基づいて軸力の算出⁵⁾を行った。軸力算出の説明図を図13に示す。軸力の算出には接着層も考慮にいった。図中Lは冷却前の長さ、L'は冷却後の長さを表わしている。ここでガラス、接着剤、リン青銅の弾性率をそれぞれE_g、E_a、E_c (E_c>E_g>E_a)、線膨張率をα_g、α_a、α_c (α_a>α_c>α_g)とし、各構成材料に生じる軸力をW_g、W_a、W_cとし、収縮する方向を正とすると、つりあいの関係から

$$W_g + (W_a + W_c) = 0 \dots (2) \text{となる。}$$

また、温度差をTとすると、冷却による自由収縮は、L・α・Tで表わされるが、これに軸力が作用するため、各構成材料のひずみは、(3)式で表わされる。

$$\left. \begin{aligned} \text{ガラス} &: L \cdot \alpha_g \cdot T + \frac{W_g \cdot L}{a \cdot H_g \cdot E_g} \\ \text{接着剤} &: L \cdot \alpha_a \cdot T + \frac{W_a \cdot L}{a \cdot H_a \cdot E_a} \\ \text{銅} &: L \cdot \alpha_c \cdot T + \frac{W_c \cdot L}{a \cdot H_c \cdot E_c} \end{aligned} \right\} \dots (3)$$

ここで、H_g、H_a、H_cはそれぞれガラス、接着剤、銅の厚さ、aは幅を示す。

そして各材料は接着されているのでこれらひずみは等しくならなければならない。したがって、(2)式と(3)式の連立方程式より、W_g、W_a、W_cは(4)式のように与えられる。

$$\left. \begin{aligned} W_g &= \frac{a \cdot T \cdot H_g \cdot E_g \{ -(H_c \cdot E_c + H_a \cdot E_a) \alpha_g + H_a \cdot E_a \cdot \alpha_a + H_c \cdot E_c \cdot \alpha_c \}}{H_g \cdot E_g + H_a \cdot E_a + H_c \cdot E_c} \\ W_a &= \frac{a \cdot T \cdot H_a \cdot E_a \{ H_g \cdot E_g (\alpha_a - \alpha_g) - H_c \cdot E_c (\alpha_a - \alpha_c) \}}{H_g \cdot E_g + H_a \cdot E_a + H_c \cdot E_c} \\ W_c &= \frac{a \cdot T \cdot H_c \cdot E_c \{ H_g \cdot E_g \cdot \alpha_g + H_a \cdot E_a \cdot \alpha_a - (H_g \cdot E_g + H_a \cdot E_a) \alpha_c \}}{H_g \cdot E_g + H_a \cdot E_a + H_c \cdot E_c} \end{aligned} \right\} \dots (4)$$

(4)式に本試験片の接着層の厚さ (H_a) および接着剤の物性値 (弾性率 (E_a), 線膨張率 (α_a) 以外の値を代入すると(5)式ようになる。

$$\left. \begin{aligned} W_g &= \frac{2970000 \cdot H_a \cdot E_a (\alpha_a - 8 \times 10^{-6}) + 174636}{7125 + H_a \cdot E_a} \\ W_a &= \frac{H_a \cdot E_a (305.712 - 18810000 \cdot \alpha_a)}{7125 + H_a \cdot E_a} \\ W_c &= \frac{15840000 \cdot H_g \cdot E_g (\alpha_a - 17.8 \times 10^{-6}) - 174636}{7125 + H_a \cdot E_a} \end{aligned} \right\} \dots (5)$$

(5)式において、H_aを30μmとしてE_a、α_aの値を同様に変化させた場合の各軸力の変化を図14に示す。この場合収縮方向を正としているため、正の場合は圧縮力、負の場合は引張力を表わしている。W_aの値は大変小さく、E_a、α_aの変化に伴う軸力の変化も小さい。また接着層を無視して被着体間の熱ひずみより求めた場合、W_g、W_cは24.51kgf、-24.51kgfとなり、図14に示したW_g、W_cはそれに近い値を示している。したがって、軸力に及ぼす接着剤の物性値の影響は小さいと考えられ、線膨張率が最も大きい接着剤の収縮が熱応力発生のも原因ではなく、被着体間の線膨張率の差による熱ひずみの差が主要因であると考えられる。また、(5)式における接着層の厚さH_aをH_gと同じ0.15mmにした場合のE_a、α_aの変化を図15に示す。この場合の軸力はE_a、α_aの変化に敏感になっているのがわかる。したがって、接着層の物性が軸力に対してほとんど影響を及ぼさない理由は、そ

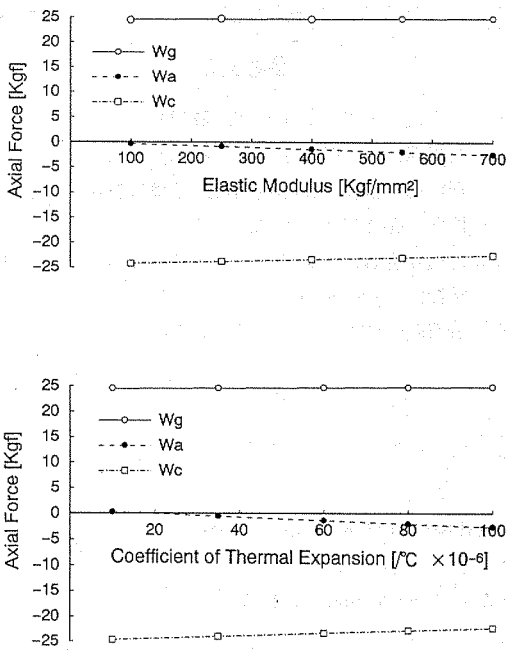


Fig. 14 Axial force in each layer vs. elastic modulus and coefficient of thermal expansion of adhesive ; Adhesive thickness : 0.03mm.

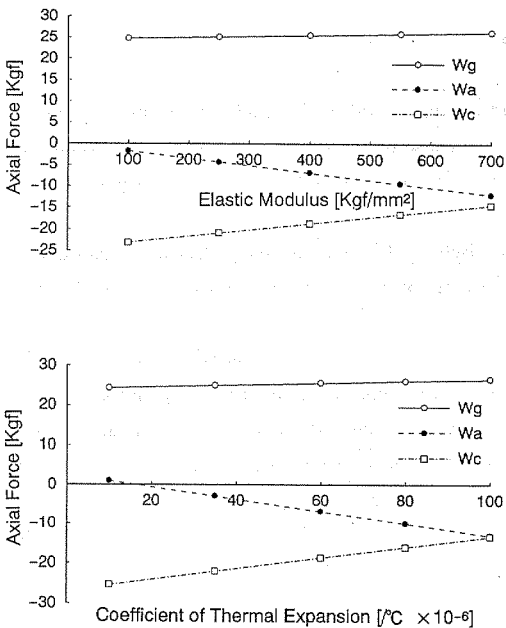


Fig. 15 Axial force in each layer vs. elastic modulus and coefficient of thermal expansion of adhesive ; Adhesive thickness : 0.15mm.

の厚みがたいへん薄い事ではと考えられる。

以上の結果から、図12-aに示した軸力の発生において接着層の物性値はその厚さが大変薄いために、ほとんど影響を及ぼさないと考えられ、接着層は被着体間に位置する事により、被着体間のせん断応力を伝達する役割を果たしていると考えられる。そしてせん断応力に対する変形の度合いはせん断弾性率 (G) に依存していると考えられる。等方性材の場合、ポアソン比を一定とすると G は縦弾性率 (E) に比例する。したがって E が大きいほどせん断応力に対して変形吸収しにくく、被着体間のせん断応力を伝達しやすいため、表2に示したように、サンプルの変形や応力が大きくなったと考えられる。また、せん断応力に対する変形には線膨張率は関与しないため、線膨張率がサンプルの変形や応力には影響を及ぼさなかったと考えられる。

また、図14に示したように接着層の軸力は E_a 、 α_a が増加すると若干ではあるが増加する傾向にある。このことより、 E_a 、 α_a が増加すると接着層に生じる引張応力 (垂直応力) は増加すると考えられる。そのため、図11に示したように E_a 、 α_a が増加すると、その支配的な応力成分がせん断応力から垂直応力へと移行すると考えられる。

さらに、図6や図10に示したように接着剤の E が増加すると変形量や各層の応力は増加し、最終的には飽和に達している。前述したように熱応力の発生要因である軸力は、ほとんど接着剤の物性の影響を受けず、被着体間の熱ひずみ差によって決定されると考えられる。そのため、接着層によってせん断応力が全て伝達されると変形量や応力は飽和に達するものと考えられる。

5. 結 言

3次元境界要素法を用いた熱応力解析により、接着剤の物性値 (弾性率、線膨張率) が、接着後の熱変形および熱応力に及ぼす影響を検討した結果、以下の知見が得られた。

- 1) 接合体の変形や各構成材料に生じる応力は、接着剤の弾性率増加にともなって増加するが、最終的には飽和に達する。また、線膨張率が増加しても接合体の変形や被着体の応力にはほとんど影響を及ぼさず、接着層に生じる応力のみ増加する。また、接着層の応力に注目すると、接着剤の弾性率、線膨張率増加にともなって増加し、その場合、せん断応力よりも垂直応力の方が増加が著しい。
- 2) 材料力学に基づいて求めた軸力より、熱応力発生の主要因は接着層の収縮ではなく、被着体間の線膨張率の相違による熱ひずみの差ではと考えられる。

そして、接着層は被着体間のせん断応力の伝達が支配的であり、接着層の弾性率が大きいほど変形吸収が少なく、多くのせん断応力を伝達し、接合体の変形や応力は大きくなると考えられる。また、せん断応力が全て伝達されると接着層の弾性率増加に伴う変形や応力の増加は飽和すると考えられる。

さらにせん断応力の伝達は、接着層の変形度合いによるため、線膨張率はほとんど寄与する事がなく、接合体の変形や被着体の応力には影響を及ぼさないと考えられる。

なお、本論文は、第30回日本接着学会年次大会（平成

4年6月24日）にて発表した内容な加筆したものである。

参考文献

- 1) 西川他, 日本接着学会誌, 21(4), 136(1985).
- 2) 西川他, 日本接着学会誌, 22(8), 409(1986).
- 3) 野口尚一監修, 工藤英明著, 基礎機械工学全著 塑性学, 森北出版, p.36.
- 4) 豊田政男著, インターフェイスメカニクス, 理工学社, p.130(1991).
- 5) 清家政一郎著, 材料力学, 共立出版, p.17.

Effect of Adhesive Properties on Thermal Stress of Adhesive Joints

Kazushi HARUNA*, Tetsuya NISHIKAWA** and Kosuke HARAGA*

* Materials and Electronic Devices Laboratory, Mitsubishi Electric Corp.
(1-1, Tsukaguchi-Honmachi 8 chome, Amagasaki, Hyogo 661, Japan)

** Manufacturing Development Laboratory, Mitsubishi Electric Corp.
(1-1, Tsukaguchi-Honmachi 8 chome, Amagasaki, Hyogo 661, Japan)

(Accepted for publication : January 5, 1993)

Abstract

Most adhesives need curing at an elevated temperature and binding shrinkage is generated during the cooling process. The thermal stress due to the binding shrinkage is the cause of cracks and delaminations of adhesive joints. Hence, it is thought that the effect of adhesive properties on thermal stress must be cleared prior to application of adhesives.

In this study, thermal stress analysis of adhesive joints was performed by the boundary element method to examine an effect of elastic modulus and the coefficient of the thermal expansion of adhesives on the thermal stress.

As a result, the analysis showed that the elastic modulus of adhesives has an effect on both deformation and thermal stress of adhesive joints while the coefficient of the thermal expansion has an effect only on the thermal stress of the adhesive layer. And it was cleared that the main cause of thermal stress is a gap of the thermal strain between the adherends by the calculation of the axial force based on the solid mechanics. It was thought that the adhesive layer may transmit the shear stress between the adherends.

(Received : September 10, 1992)