

# 接着耐久性の評価方法

## — 耐用年数経過後の接着強度の安全率の定量化法 —

原 賀 康 介

〔三菱電機㈱先端技術総合研究所〕

### 1. 緒言

最適設計、限界設計が要求されている昨今、耐用年数到達時点における接着強度の安全率の裕度を定量化し、安全率の裕度分を信頼度の向上やコストダウンに再配分していくことが要求されている。

しかし、接着接合の耐久性評価に関する現状を見ると、個々の環境や応力に対する長期間の接着強度の予測に関する報告はいくつかなされているが<sup>1,2)</sup>、複数の環境・応力の組合せ条件下での長期接着強度の予測に関する報告は見あたらない状況である。また、接着強度のばらつきに関する報告もいくつかなされている程度であり<sup>3,4)</sup>、長期劣化との関係の報告は皆無である。

そこで、製品の耐用年数経過後における接着強度の安全率の裕度を定量的に求める方法を開発した<sup>5,6)</sup>ので以下に紹介する。

### 2. 接着強度の経年変化の概念

図1に、接着強度の経年変化の概念図を示した。接着強度は使用中の環境・応力により経年変化を生じ、低強度側にシフトする。接着強度は常にばらつきがあり、劣化に伴いばらつきは増加する。製品・部品ごとに設計時点で要求信頼度 $R$ が設定されている。接着部に加わる応力の最大値を最大発生応力 $P_{max}$ とすると、耐用年数経過時点での接着強度分布において、許容不良率 $[1-R]$ での接着強度(この強度を実効接着強度 $F_y$ と呼ぶ)が最大発生応力 $P_{max}$ 以上であれば不良率は許容不良率 $[1-R]$ 以内となる。

### 3. 耐用年数経過後の安全率の裕度の算出法

#### 3.1 基本的算出法

図1より、耐用年数経過後の安全率の裕度 $S_y$ は、式(1)で表される。

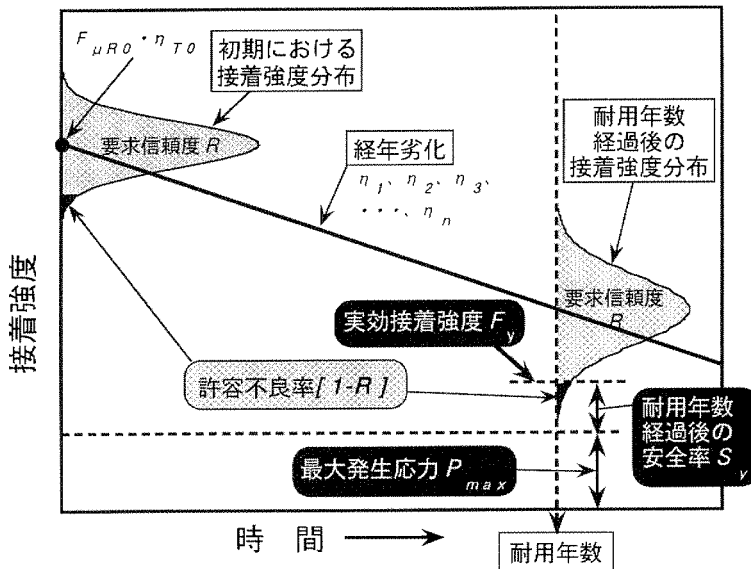


図1 接着強度の経年変化の概念図

$$S_y = F_y / P_{\max} \quad \dots(1)$$

$F_y$  : 実効接着強度

$P_{\max}$  : 最大発生応力

実効接着強度 $F_y$ は、式(2)で表される。

$$F_y = F_{\mu R0} \cdot \eta_{T0} \cdot D_y \cdot \eta_y \quad \dots(2)$$

$F_{\mu R0}$  : 初期の室温における静的な平均接着強度

$\eta_{T0}$  : 温度係数

$D_y$  : 耐用年数経過後の接着強度のばらつき係数

$\eta_y$  : 耐用年数経過後の劣化係数

$$\eta_y = \eta_1 \times \eta_2 \times \eta_3 \times \dots \times \eta_n \quad \dots(3)$$

$\eta_1$  : 個別の環境・応力因子における劣化係数

初期の室温における静的な平均接着強度 $F_{\mu R0}$ は実測により容易に求められる。

接着強度は接着部がさらされる低温から高温の状態において変化し、一般に温度域の最高温度で接着強度は最低強度となる。室温における静的な平均接着強度 $F_{\mu R0}$ に対する上記最低強度の割合が温度係数 $\eta_{T0}$ である。温度係数も実測は容易である。

図2に示すように、接着強度の分布において、平均接着強度 $F_{\mu}$ に対する許容不良率 $[1-R]$ での強度の割合を接着強度のばらつき係数 $D$ と呼ぶ。初期におけるばらつき係数を $D_0$ 、耐用年数経過後のばらつき係数を $D_y$ と示す。図3に一例を示すように、接着強度の分布は一般に正規分布するため、以後、接着強度の分布は正規分布と仮定している。ばらつき係数 $D$ は、正規分布の確率密度関数から求めることができ、接着強度の変動係数 $CV (= \text{標準偏差} \sigma / \text{平均値} F_{\mu})$ とばらつき係数 $D$ は図4に示すように、直線関係にある。接着強度のばらつきは、長期間にわたる接着特性の劣化により増加することが考えられる<sup>2)</sup>。そこで、耐用年数経過

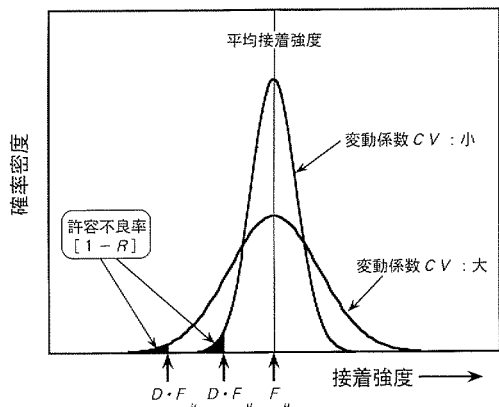


図2 平均接着強度 $F_{\mu}$ 、許容不良率 $[1-R]$ とばらつき係数 $D$ の関係

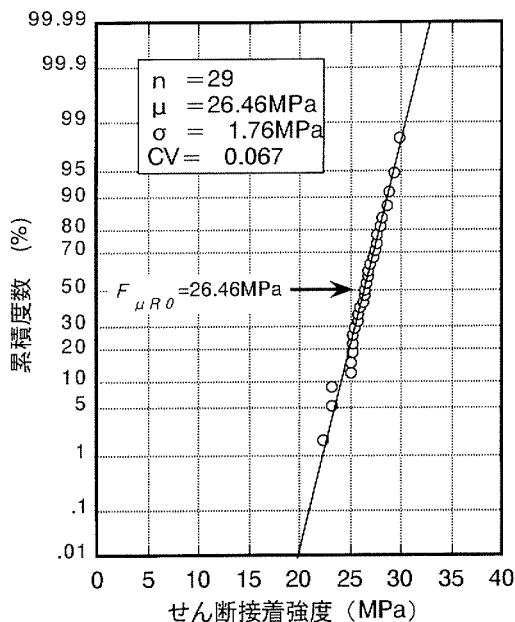


図3 初期の室温における静的なせん断接着強度の正規確率プロットと、平均せん断接着強度 $F_{\mu R0}$

後の接着強度のばらつき係数 $D_y$ は、初期の接着強度の変動係数 $CV_0$ が耐用年数経過後に $k$ 倍に増加するとして、 $k \cdot CV_0$ に対する $D_y$ を図4から求める。 $k$ の値は、材料、環境・応力条件、耐用年数により変化するため正確に求めることが現時点では困難であるので、ここでは $k=1.5$ としている。

耐用年数経過後の劣化係数 $\eta_y$ は、各種の環境・応力複合条件下での劣化係数であり、式(3)に示すように、個別の環境・応力因子における劣化係数 $\eta_i$ の積とした。個別の環境・応力因子における劣化係数 $\eta_i$ は、耐熱性、耐湿性、耐ヒートサイクル性、耐疲労性、耐クリープ性など製品の接着部に加わる個別の環境的、応力的劣化因子に対する強度低下係数である。例えば、 $100^{\circ}\text{C}$ で20年間使用される製品で、 $100^{\circ}\text{C}$ 20年後の接着強度が初期強度の80%まで低下する場合は、耐熱性の強度低下係数 $\eta_i$ は0.8となる。個別の劣化因子における耐用年数経過後の劣化係数は、加速試験により求める。例えば、長期間の耐熱性は、温度加速試験からのアレニウスプロットによる方法、耐湿性は、水分の拡散による接着部内の水分の濃度分布を求めて強度分布を予測する方法<sup>1,2)</sup>やアレニウスプロットによる方法<sup>1)</sup>、耐ヒートサイクル性は、接着剤が凝集破壊する系の場合はサイクル数と残存強度の関係を外挿する方法、耐クリープ性は、温度-時間換算によるマスターカーブ

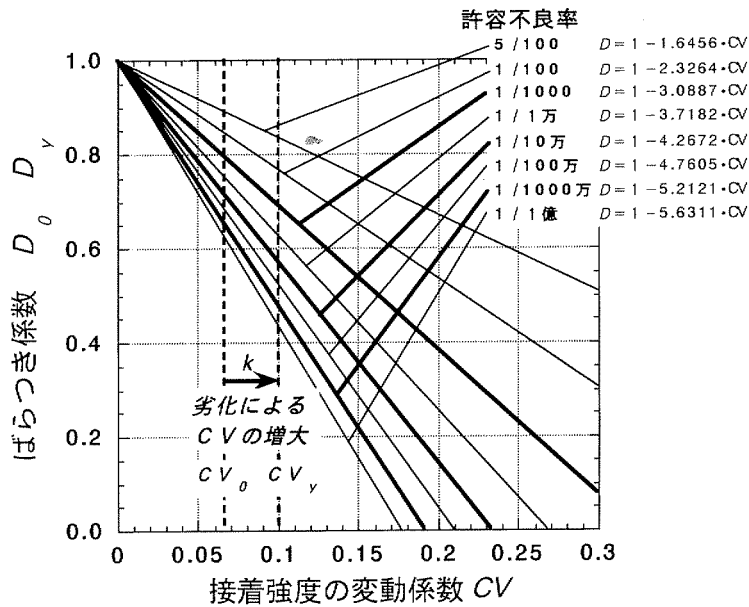


図4 接着強度の変動係数CV, 許容不良率[1-R]とばらつき係数Dの関係

<sup>8)</sup> やLarson-Millerのマスターカーブから求める方法, 耐疲労性はS-N線図から外挿して求める方法, などをを用いる。

### 3.2 応力負荷試験を高温下で実施する場合の算出法

接着部がさらされる最高温度下で疲労試験やクリープ試験などの応力負荷試験を実施して耐用年数経過後のクリープ強度や疲労強度を推定する場合は, 式(4)により, 3.1より直接的に実効接着強度 $F_y$ を求めることができる。

$$F_y = F_{T0} \cdot D_y \cdot \eta_y \quad \dots(4)$$

$F_{T0}$ は使用温度範囲の最高温度でのクリープ試験や疲労試験から推定した耐用年数経過時点でのクリープ強度や疲労強度である。 $F_{T0}$ を用いる場合は, 初期の室温における静的な平均接着強度 $F_{a,0}$ と温度係数 $\eta_{T0}$ は不要である。耐用年数経過後の劣化係数 $\eta_y$ は, 式(3)により求めるが, クリープや疲労などの係数は含める必要はない。

### 4. 安全率の裕度の再配分

安全率の裕度Sが1.0倍以上の場合は, 過剰品質といえる。この安全率の裕度を再配分することにより限界設計が可能となる。再配分の一つは, 許容不良率をさらに低減することである。許容不良率の低減により修

理部品の在庫の削減, 修理費用の低減を図ることができる。再配分の二つ目は, 接着面積の減少である。接着面積を小さくできれば部品寸法の小型化や接着剤使用量の低減, 接着剤はみ出し量の減少による仕上げ作業の廃止などでコストダウンを図ることができる。

## 5. 耐用年数経過後の安全率の裕度の算出事例

### 5.1 接着部の要求条件と評価試験条件

一例として, 耐用年数25年の製品の接着部の要求条件を表1に示した。接着剤は2液型室温硬化性のアクリル系接着剤で, ガラス転移温度は110℃である。表1の要求条件に対する評価試験条件を表2に示した。与えられた環境, 応力に対する最適な評価条件を見積もることは重要である。評価条件は, 過大, 過小のいずれも不適であるが, あくまでも安全サイドの推定を行うことが基本である。

表2中, 最大温度変化に対するヒートサイクル試験(年サイクル試験)は, 年間の最高温度100℃と最低温度-20℃を1回/年, 耐用年数分繰り返すとして25サイクルとしている。運転時の温度変化に対するヒートサイクル試験(日サイクル試験)は, -20℃~60℃の繰返しで4500サイクル後の強度を求めており, 25年×365日×1回/日=9125回より少ない。これは, パイメタル法により, 接着剤の室温硬化で発生する収縮によ

表1 接着部に要求される条件

要求項目	条件
耐用年数	25年
要求信頼度R	0.99999(許容不良率0.00001)
最大発生応力 $P_{max}$	せん断0.10MPa
応力負荷状態	繰返し疲労 $10^8$ 回
温度	輸送時 冬季-40℃~夏季+40℃ 1回のみ
	停止時 冬季-20℃~夏季+40℃ 冬季-20℃~0℃ 夏季+20℃~+40℃
	運転時 夏季-20℃~夏季+100℃ 冬季-20℃~+60℃ 夏季+20℃~+100℃ 運転による温度サイクル1回/日

表2 評価試験の項目, 条件

評価項目	試験条件
せん断強度の温度依存性	-40℃~+100℃
繰返し疲労	25℃~ $10^7$ サイクル, $10^8$ 回を推定 100℃~ $10^7$ サイクル, $10^8$ 回を推定
最大温度変化に対するヒートサイクル(年サイクル)	室温→-40℃→室温1サイクル, -20℃↔+100℃~25サイクル
運転時の温度変化に対するヒートサイクル(日サイクル)	-20℃↔+60℃~300サイクル
熱劣化	130℃, 150℃, 180℃, 200℃~120日 90℃以上になる3000日分を推定

る撓み量および硬化後の温度変化で生じる伸縮による撓み量の変化を測定すると、図5に示すように、室温以上の温度では内部応力は減少しており、ヒートサイクルにより内部応力が增加するのは室温以下の温度域だけであるためである。図6に示すように、最低環境温度と運転時の最高温度は年間を通して変化しているが、安全サイドの推定を行うために、破線のように単純化して冬季間を半年間とした。これらの点より、ヒートサイクルによる劣化は、冬季の運転時のみに起こるとして表2の条件とした。

熱劣化では、90℃以上の温度になる3000日分の劣化係数を求めている。接着剤の熱劣化は一般に接着剤の

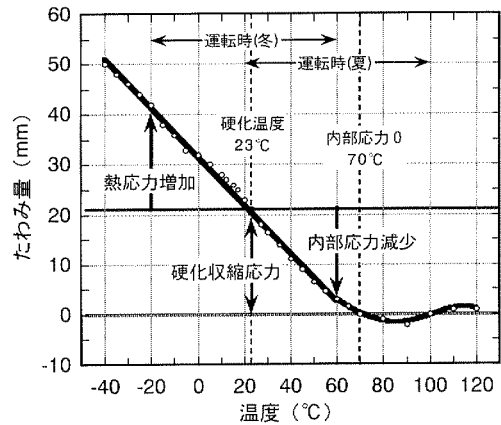


図5 温度とバイメタル撓み量の測定結果

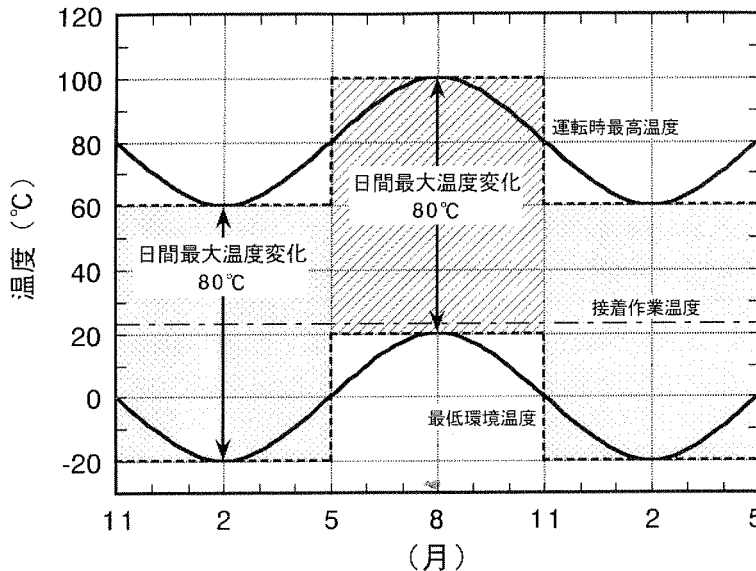


図6 年間の温度変化の単純化

ガラス転移温度 $T_g$ 以下ではほとんど生じないため熱劣化試験は不要であるが、安全サイドの推定を行うためにガラス転移温度 $T_g$ より20℃低い温度(ここでは90℃)以上になる期間(年間に4ヶ月間だけ)に対して試験を行っている。

### 5.2 評価試験結果

図3に、初期の室温における静的な平均接着強度の測定結果を示した。 $F_{\mu R0}$ は26.46MPaとなる。

図7に、接着強度の温度依存性の測定結果を示した。温度係数 $\eta_{T0}$ は、強度が最も低くなる100℃での強度(6.09MPa)の室温強度 $F_{\mu R0}$ に対する比で0.23となる。

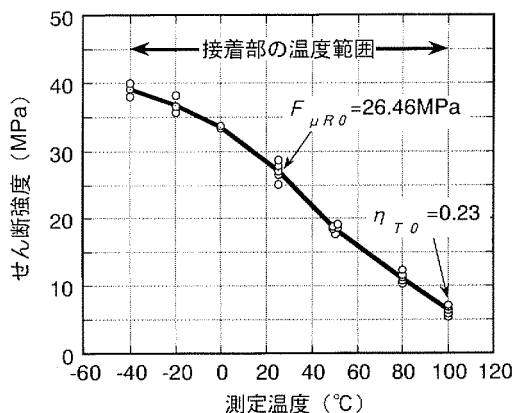


図7 せん断接着強度の温度依存性と、100℃における温度係数 $\eta_{T0}$

ばらつき係数 $D_s$ を求めるには、まず初期の接着強度の変動係数 $CV_0$ を求める。 $CV_0$ は、図3より0.067となる。耐用年数経過後の変動係数 $CV_y$ は $CV_0$ にばらつき増加係数 $k$ を掛け合わせて求める。ここでは $k=1.5$ と仮定すると、耐用年数経過後の変動係数 $CV_y$ は0.101となる。図4より、許容不良率1/10万、耐用年数経過後の変動係数 $CV_y=0.101$ におけるばらつき係数 $D_y$ を求めると、 $D_y=0.569$ となる。

次に、耐用年数経過後の劣化係数 $\eta_y$ を求める。

図8に、25℃、100℃雰囲気における疲労試験の結果を示した。 $10^7$ サイクルまでの試験結果を直線外挿して $10^8$ サイクルの時間強度を求めると、25℃における最大応力 $F_{f25}$ は6.89MPaとなり、この強度は初期の室温における静的な平均接着強度 $F_{\mu R0}$ 26.46MPaの26%であるので、疲労における劣化係数 $\eta_1$ は0.26となる。3.2に示した応力負荷試験を高温下で実施して直接耐用年数経過時点での疲労強度を求めると、 $F_{f(T=100)}$ は0.58MPaとなる。

図9に、最大温度変化(年サイクル)に対する試験結果を示した。劣化係数 $\eta_2$ は0.95となる。

運転時の温度変化(日サイクル)に対する劣化係数 $\eta_3$ は、図10の結果から、0.80となる。

熱劣化に対しては、図11の結果から、180℃までの暴露では強度低下はほとんどないため、90℃~100℃での劣化係数 $\eta_4$ は1.00とした。

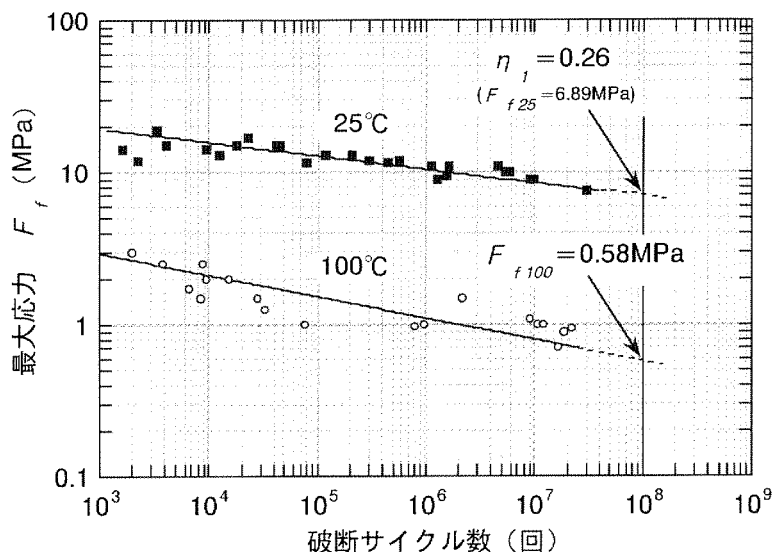


図8 25℃、100℃雰囲気における疲労試験結果

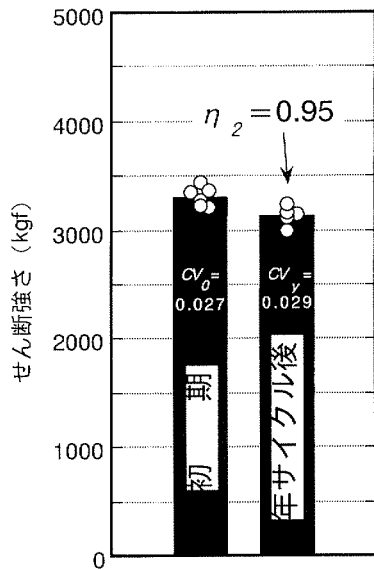


図9 最大温度変化(年サイクル)試験結果と劣化係数 $\eta_2$

### 5.3 耐用年数経過後の安全率の裕度 $S_y$

#### 5.3.1 式(2)より求める場合

耐用年数(25年)経過後の劣化係数 $\eta_y$ は、

$$\eta_y = \eta_1 \times \eta_2 \times \eta_3 \times \eta_4$$

$$= 0.26 \times 0.95 \times 0.80 \times 1.00 = 0.198$$

実効接着強度 $F_y$ は、

$$F_y = F_{aR0} \cdot \eta_{T0} \cdot D_y \cdot \eta_y$$

$$= 26.46\text{MPa} \times 0.23 \times 0.569 \times 0.198 = 0.686\text{MPa}$$

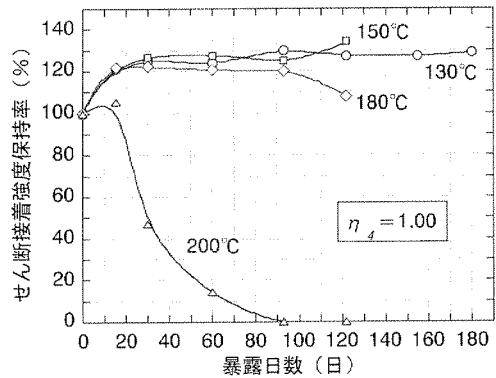


図11 熱劣化試験結果と、90℃~100℃3000日後の予測劣化係数 $\eta_4$

耐用年数経過後の安全率の裕度 $S_y$ は、

$$S_y = F_y / \text{最大発生応力 } P_{\max}$$

$$= 0.686\text{MPa} / 0.10\text{MPa} = 6.86$$

となる。

#### 5.3.2 式(4)より求める場合

100℃での耐用年数(25年)経過後の疲労強度 $F_{f100}$ が0.58MPaと直接求められているため、実効接着強度 $F_y$ は、

$$F_y = F_{f100} \times \eta_y \times D_y$$

$$= F_{f100} \times \eta_2 \times \eta_3 \times \eta_4 \times D_y$$

$$= 0.58\text{MPa} \times 0.95 \times 0.80 \times 1.00 \times 0.569$$

$$= 0.251\text{MPa}$$

耐用年数経過後の安全率の裕度 $S_y$ は、

$$S_y = F_y / \text{最大発生応力 } P_{\max}$$

$$= 0.251\text{MPa} / 0.10\text{MPa} = 2.51$$

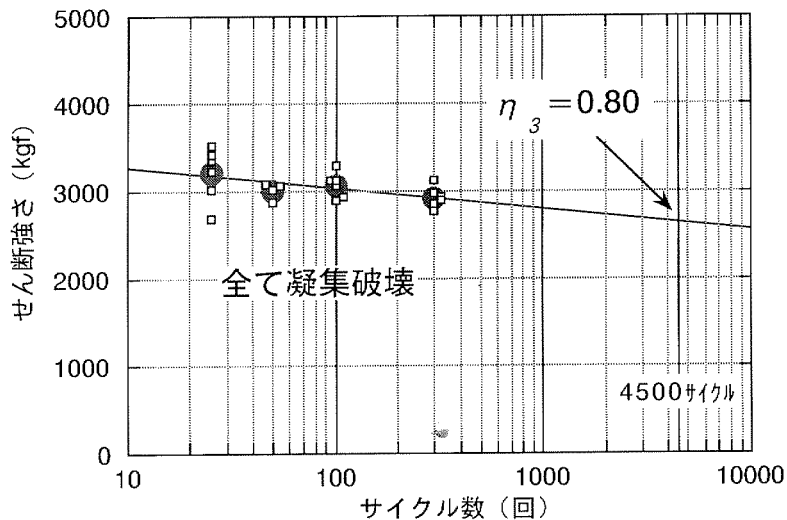


図10 運転時の温度変化(日サイクル)試験結果と、4500サイクル後の予測劣化係数 $\eta_3$

となる。

### 5.3.3 安全率の裕度の相違について

5.3.1と5.3.2の結果では、安全率の裕度に2.7倍程度の相違がある。これは、片振りの疲労試験においては平均応力分がクリープ応力として作用しており、高温試験ではクリープ現象が室温より大きくなるためと考えられる。

この結果より、高温で応力が負荷される場合は、高温での応力試験から得られる強度を基準強度として式(4)により求める必要があるといえる。

### 5.4 安全率の裕度の再配分

5.3.2の結果より、25年後の安全率の裕度は2.51倍であり、まだ許容不良率を低減することができる。表3に示すように、許容不良率を1/1億まで低下させてもまだ安全率の裕度は1.94倍となり、実質的に不良品は発生しないと考えられ、修理部品の在庫の削減、修理費用の低減などを図ることができる。

さらに残りの安全率の裕度分については、発生応力の上昇に回すことができ、すなわち、接着剤の塗布面

表3 許容不良率、接着剤塗布面積比と安全率の裕度

許容不良率[1-R]	1/10万	1/1000万	1/1億	
接着剤	1.0	$S_y = 2.51$	$S_y = 2.11$	$S_y = 1.94$
塗布	0.7	$S_y = 1.75$	$S_y = 1.47$	$S_y = 1.35$
面積比	0.5	$S_y = 1.25$	$S_y = 1.05$	$S_y < 1.00$

積を減少させることができる。表3に示すように、許容不良率を1/1億とした場合は、接着剤塗布面積比を70%まで低減することができる。これにより、部品寸法の小型化や接着剤使用量の低減、接着剤はみ出し量の減少による仕上げ作業の廃止などでコストダウンを図ることができる。

## 6. まとめ

種々の環境・応力の複合条件下で使用される接着強

度の耐用年数経過後における安全率の裕度の定量化法を紹介した。

この方法では各係数を実験的に求める必要があり、製品により使用温度範囲、環境・応力、接着剤、被着材料が異なるため、評価項目・条件の設定には材料関係の知識が必要である。このため、機械や電気関係の設計者のみでは適用が困難という問題も有している。しかし、設計者と材料技術者の連携により、この方法はすでに多くの製品に適用されており、接着部の信頼性の定量化による最適設計や接着作業条件の簡素化などに効果が得られている。

この方法により求めた耐用年数経過後の安全率の裕度の妥当性については、製品の耐用年数にまだ至っていないため、現時点では明確になっていない。今後の時間経過とともに明確にされるであろう。

### 参考文献

- 1) 原賀康介：「接着耐久性の評価方法」, 接着の技術, Vol.16, No.2, 55-60(1996).
- 2) K. Haruna & K. Haraga: "Moisture Durability Prediction of Adhesively Bonded Joints Using Acrylic Adhesives.", 8th Int. Conf. on Composites Engineering (2001).
- 3) 橋本慶浩, 江口 伸, 原賀康介, 野中保雄:「破壊強度分布に関する研究」, 日本接着学会誌, Vol. 30, No. 2, 47-52(1994).
- 4) 今中 誠, 原賀康介, 西川哲也:「突合せおよび重ね合せ接着継手の強度分布特性」, 材料, Vol. 42, No. 480, 1096-1102(1993).
- 5) 原賀康介:「接着接合における長期信頼性の定量化法」, Mate2003(9th Symposium on "Microjoining and Assembly Technology in Electronics")P. 139-144(2003-2-6,7(社)溶接学会主催).
- 6) 原賀康介:「耐用年数経過後の安全率の定量化による接着接合の設計品質の創り込み」, 第33回信頼性・保全性シンポジウム発表報告文集P. 117-122(2003-7-7(財)日本科学技術連盟主催).
- 7) 原賀康介:「耐久性」, 日本接着学会誌, Vol. 30, No. 10, 13-15(1994).
- 8) 平沼 勉, 竹内豊和, 栢木浩之, 志村邦久:自動車構造接着技術特設委員会報告書((社)自動車技術会), P. 56(1992).

