

# 接着接合における長期信頼性の定量化法

## Quantification method of long term reliability of adhesive joints.

原賀 康介\*

\*三菱電機 株 先端技術総合研究所

Kosuke HARAGA\*

\*Mitsubishi Electric Corp. Advanced Technology R&D Center

### Abstract

Method to calculate safety factor of adhesive strength after service life quantitatively was developed. Safety factor after service life  $S_y$  is calculated by the next formula from effective adhesive strength  $F_y$  and maximum load stress  $P_{max}$ .

$$S_y = F_y / P_{max}$$

$$F_y = F_{\mu R0} \times D_y \times T0 \times y$$

$F_{\mu R0}$ : Initial average adhesive strength in room temperature

$D_y$ : Dispersion coefficient of adhesive strength determined as percent defective allowable  $[1-R]$  with coefficient of variation CV.

$T0$ : Temperature coefficient

$y$ : Deterioration coefficient after service life.  $y = y_1 \times y_2 \times y_3 \times \dots \times y_n$

$y_1, y_2, y_3, \dots, y_n$ : Deterioration coefficient in individual environment or stress factor.

Key words : Adhesive strength, Deterioration, Dispersion, Service life, Safety factor, Quantification,

### 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安全率を定量化し、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部の安全率

を定量的に求める方法を開発した。即ち、接着部の使用温度範囲における温度係数、個々の使用環境・応力における劣化係数、接着強度のばらつきと接着部に要求される要求信頼度から求めるばらつき係数から実効接着強度を算出し、接着部に加わる応力の最大値との比から耐用年数経過後の安全率を求めるものである。

### 2. 要求信頼度（許容不良率）、実効接着強度、最大発生応力、安全率の関係

接着強度にはばらつきがあり、図1に示すように常に分布している。接着強度は使用中の環境・応力により経年変化を生じて低強度側にシフトする。

製品に接着接合を採用する場合には、接着部の機能や生産台数、耐用年数、不良が起こった場合の対策費用などの点から要求信頼度が設定される。即ち、接着強度に対する要求信頼度  $R$  とは、耐用年数経過後までに残存する良品率であり、例えば、要求信頼度  $R$  が 0.9999 (99.999%) の場合は、10万個に1個までの不良が許容されるということであり、許容不良率  $[1-R]$  は 0.0001 (0.001%) となる。

実効接着強度  $F_y$  とは、図1に示すように、製品の耐用年数経過後の接着強度分布において、許容不良率  $[1-R]$  に至る接着強度の下限值である。接着部に加わる応力の最大値を最大発生応力  $P_{max}$  と呼ぶ。

耐用年数経過後の安全率  $S_y$  は、実効接着強度  $F_y$  と最大発生応力  $P_{max}$  との比  $[F_y / P_{max}]$  で表され、安全率  $S_y$  が 1.0 倍以下の場合には許容不良率  $[1-R]$  以上の不良品が発生することになる。

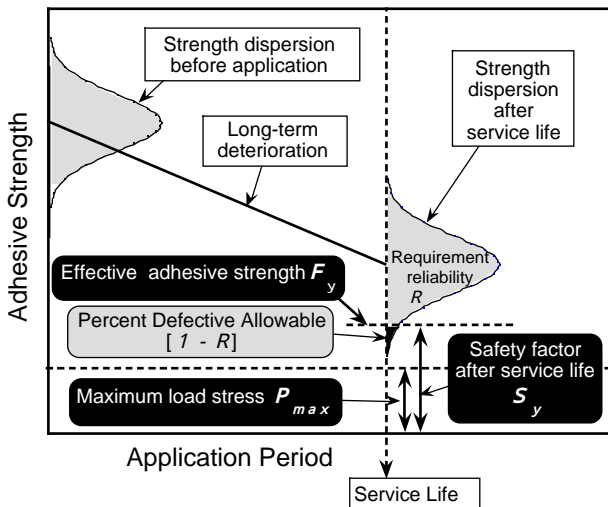


Fig.1 Conception diagram of long-term deterioration of adhesive strength, percent defective allowable  $[1-R]$ , effective adhesive strength  $F_y$ , maximum load stress  $P_{max}$  and safety factor after service life  $S_y$ .

### 3. 実効接着強度の求め方

#### 3.1 実効接着強度の計算式

実効接着強度  $F_y$  は、(1) 式により求める。

$$F_y = F_{\mu R0} \times D_y \times T0 \times y \dots (1)$$

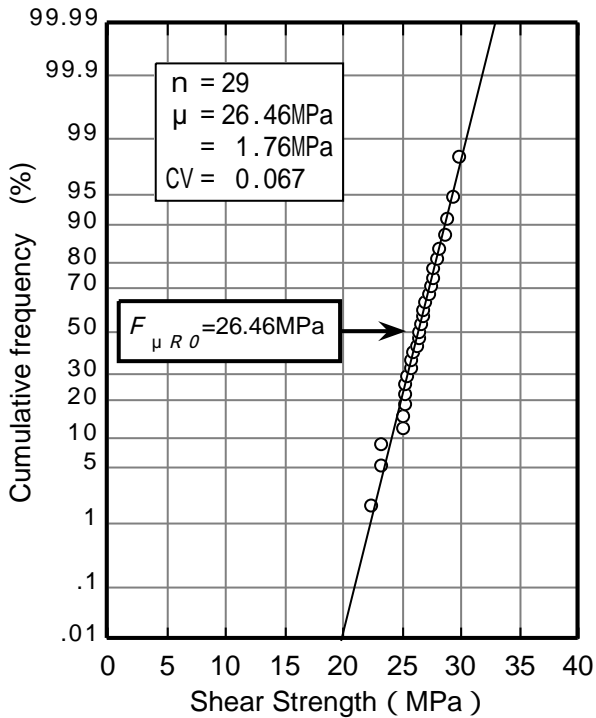


Fig.2 Plot of normal distribution of initial static adhesive strength in room temperature and average strength  $F_{\mu R0}$ .

$F_{\mu R0}$ : 初期の室温における静的な平均接着強度  
 $D_y$ : 耐用年数経過後の接着強度のばらつき係数  
 $T_0$ : 温度係数  
 $y$ : 耐用年数経過後の劣化係数

### 3.2 初期の室温における静的平均接着強度 $F_{\mu R0}$

実測により容易に求められるが、接着強度の変動係数の精度向上と強度分布の形態確認のために試験体の数量を増やして測定する。通常15個以上、好ましくは25個程度で行っている。図2に、試験体数29個で測定し、正規確率プロットした例を示した。

### 3.3 耐用年数経過後の接着強度のばらつき係数 $D_y$

接着強度のばらつき係数  $D$ は、図3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  $[1-R]$  の強度の割合である。接着強度の分布は正規分布と仮定している。図3に示すように、平均接着強度  $F_{\mu}$  が同じでも接着強度のばらつきが大きい場合には、ばらつき係数  $D$  は小さくなる。図4に示すように、ばらつき係数  $D$  は、接着強度の変動係数  $CV = \text{標準偏差} / \text{平均値 } F_{\mu}$  と許容不良率  $[1-R]$  で決まる。

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>5)</sup>。そこで、耐用年数経過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。

### 3.4 温度係数 $T_0$

製品の保管、輸送、使用中に接着部がさらされる低温

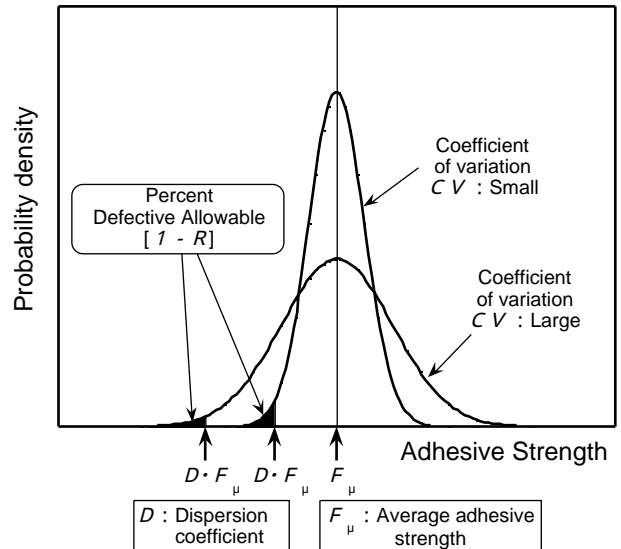


Fig.3 Conception diagram of average adhesive strength  $F_{\mu}$ , percent defective allowable  $[1-R]$  and dispersion coefficient  $D$ .

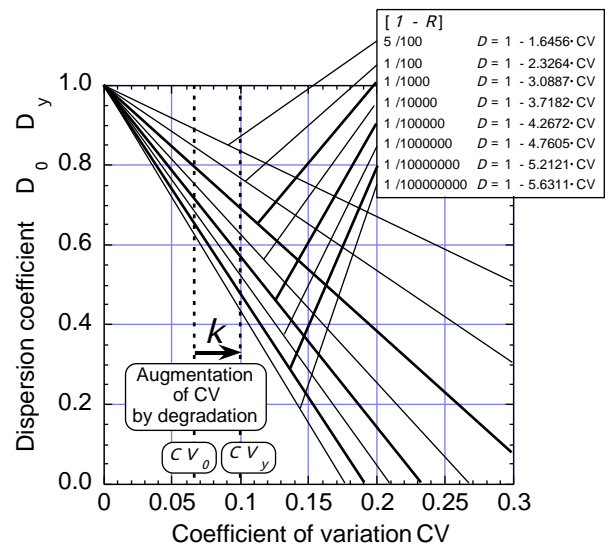


Fig.4 Relation of coefficient of variation  $CV$  of adhesive strength, percent defective allowable  $[1-R]$  and dispersion coefficient  $D$ .

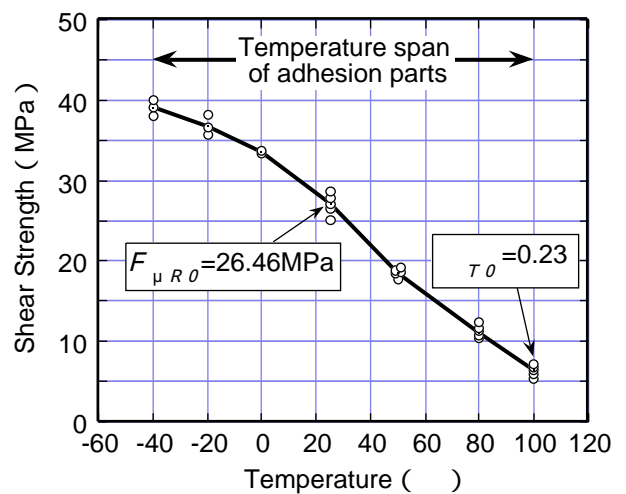


Fig.5 Relation of test temperature and adhesive strength, and average strength in room temperature  $F_{\mu R0}$  and temperature coefficient  $T_0$ .

から高温の状態において接着強度は変化し、一般に最高温度または最低温度で最低の強度を示す。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  $T_0$  である。図5 に一例を示した。

### 3.5 耐用年数経過後の劣化係数 $y$

耐用年数経過後の劣化係数  $y$  は、(2) 式により求める。

$$y = y_1 \times y_2 \times y_3 \times \dots \times y_n \dots (2)$$

$y_1, y_2, y_3, \dots, y_n$  : 個別の環境・応力因子における劣化係数

個別の環境・応力因子における劣化係数  $y_1, y_2, y_3, \dots, y_n$  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 で20年間使用される製品で、100 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  $y_1$  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<sup>6</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、などを用いる。

## 4. 耐用年数経過後の安全率 $S_y$

### 4.1 安全率 $S_y$ の求め方

耐用年数経過後の安全率  $S_y$  は、(3) 式により求める。

$$S_y = F_y / P_{max} \dots (3)$$

$F_y$  : 実効接着強度  
 $P_{max}$  : 最大発生応力

耐用年数経過後の安全率  $S_y$  は1.0倍以上であれば良い。安全率  $S_y$  が1.0倍以下の場合には許容不良率  $[1 - R]$  以上の不良品が発生することになる。

### 4.2 安全率の裕度の再配分

安全率  $S_y$  が1.0倍以上の場合は、過剰品質と言える。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年の製品の接着部への要求条件を表1に示した。接着剤は2液型室温硬化性のアク

Tab.1 Requirement items and specifications for adhesion parts.

Requirement item	Specification	
Service life	25years	
Requirement reliability $R$	0.99999	
Maximum load stress $P_{max}$	Shear stress 0.10MPa	
Type of load stress	Repeated stress (fatigue) $10^8$ cycles	
Temperature	During transportation	-40 (Winter) ~ +40 (Summer) Only once
	During shutdown of equipment	-20 (Winter) ~ +40 (Summer) Winter : -20 ~ 0 Summer : +20 ~ +40
	During running of equipment	-20 (Winter) ~ +100 (Summer) Winter : -20 ~ +60 Summer : +20 ~ +100 1cycle/day

Tab.2 Evaluation test items and conditions.

Test item	Condition
Temperature dependence of shear strength	-40 ~ +100
Fatigue test	25, 100 ~ $10^7$ cycles Strength at $10^8$ cycles is estimated
Heat cycle test for temperature change of the year	RT -40 RT 1 cycle -20 +100 25 cycles
Heat cycle test for temperature change of the day	-20 +60 ~ 300 cycles Strength at 4500cycles is estimated
Heat deterioration test	130, 150, 180, 200 ~ 120 days Strength after 3000 days at 90 ~ 100 is estimated

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  $\times$  365日  $\times$  1回/日 = 9125回より少ない。これは、バimetal法により、接着剤の室温硬化で発生する収縮による撓み量及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6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増加するのは室温以下の温度であることがわかる。図7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

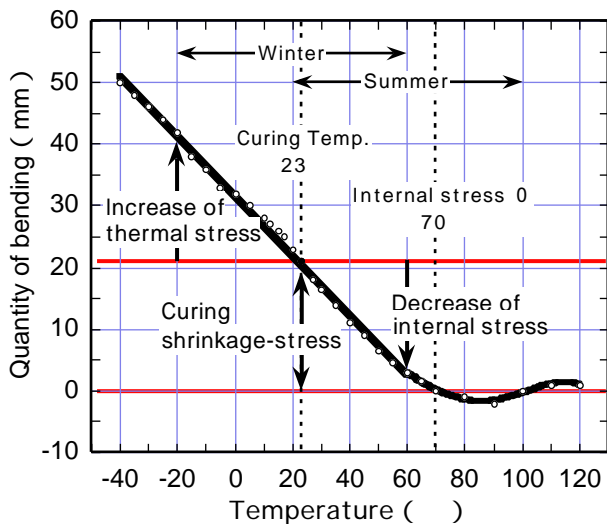


Fig.6 Relation of temperature and quantity of bending of bimetal.

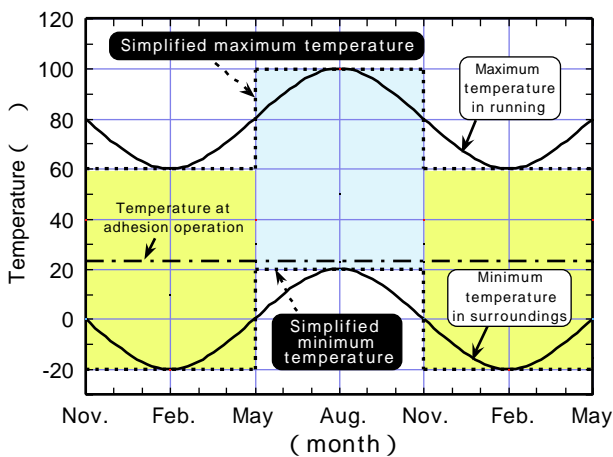


Fig.7 Simplification of temperature change for one year.

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、冬期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 平均接着強度 $F_{\mu R0}$ 、ばらつき係数 $D_y$ 、温度係数 $T_0$

初期の室温における静的な平均接着強度  $F_{\mu R0}$  は、図2より、26.46MPaとなる。

ばらつき係数  $D_y$  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2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。次に、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

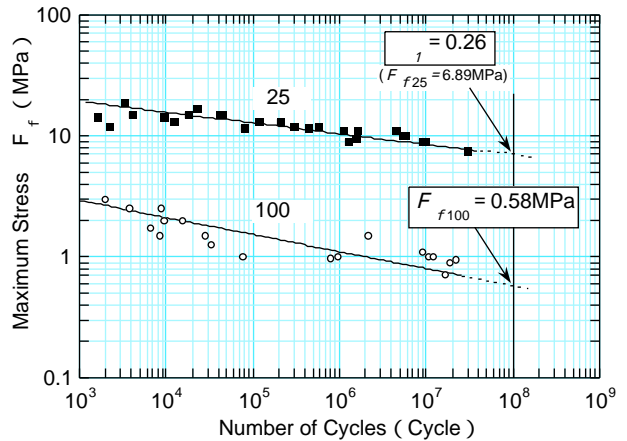


Fig.8 Results of fatigue test at 25 and 100.

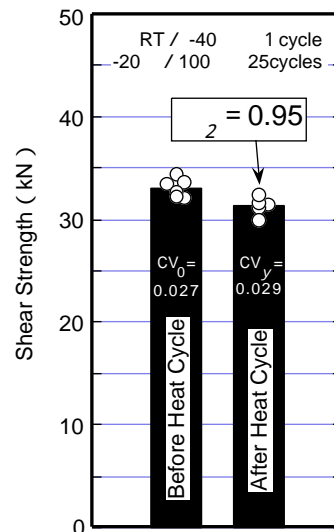


Fig.9 Result of heat cycle test for temperature change of the year and deterioration coefficient  $D_y$ .

めると、 $D_y = 0.569$ となる。

温度係数  $T_0$  は、強度が最も低くなる100での強度(6.09MPa)の室温強度( $F_{\mu R0} = 26.46$ MPa)に対する比で図5から0.23となる。

### 5.3 耐用年数経過後の劣化係数 $D_y$

まず、疲労における劣化係数  $D_1$  を求める。図8に、25、100雰囲気における疲労試験結果を示した。10<sup>7</sup>サイクルまでの試験結果を直線外挿して10<sup>8</sup>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  $F_{\mu R0}$  の26.46MPaの26%であるので、 $D_1$  は0.26となる。

次に、最大温度変化(年サイクル)に対する劣化係数  $D_2$  は、図9の結果から、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  $D_3$  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  $D_4$  は1.00とした。

以上の結果より、耐用年数2.5年経過後の劣化係数  $D_y$  は次式により求められ、

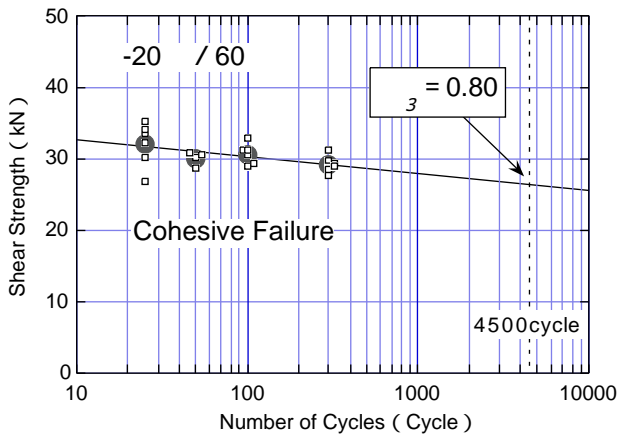


Fig.10 Result of heat cycle test for temperature change of the day and deterioration coefficient  $\gamma_3$ .

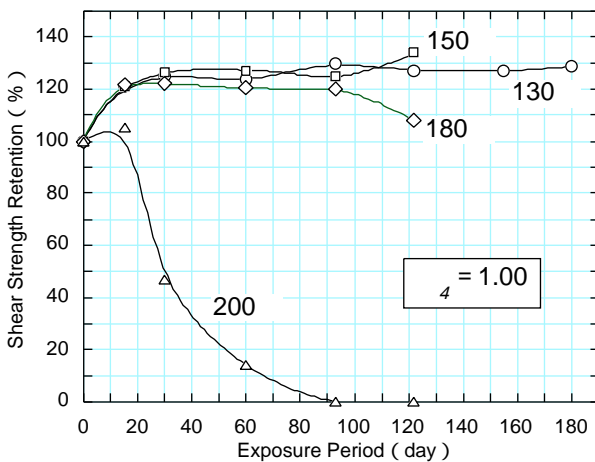


Fig.11 Result of heat deterioration test and deterioration coefficient  $\gamma_4$ .

$$\begin{aligned} \gamma &= \gamma_1 \times \gamma_2 \times \gamma_3 \times \gamma_4 \\ &= 0.26 \times 0.95 \times 0.80 \times 1.00 \\ &= 0.198 \end{aligned}$$

となる。(表3 参照)

#### 5.4 実効接着強度 $F_y$ と耐用年数経過後の安全率 $S_y$

実効接着強度  $F_y$  は次式により求められ、

$$\begin{aligned} F_y &= F_{\mu R0} \times D_y \times T_0 \times \gamma \\ &= 26.46\text{MPa} \times 0.569 \times 0.23 \times 0.198 \\ &= 0.686\text{MPa} \end{aligned}$$

となる。(表3 参照)

耐用年数経過後の安全率  $S_y$  は次式により求められ、

$$\begin{aligned} S_y &= F_y / \text{最大発生応力 } P_{max} \\ &= 0.686\text{MPa} / 0.10\text{MPa} \\ &= 6.86 \end{aligned}$$

となる。(表3 参照)

#### 5.5 100 における疲労強度を基準強度とした場合の耐用年数経過後の安全率 $S_y$

5.4 では、疲労の係数として、静的平均接着強度  $F_{\mu R0}$  に対する25 での疲労強度 (図8 の  $F_{f25}$ ) の比率を用いたが、接着接合においては引張り/引張りの繰返しのような片振り疲労の場合は、クリープ変形も伴っているため高温での疲労特性は温度係数  $T_0$  分よりも低下す

Tab.3 Effective strength of adhesion  $F_y$  and safety factor after 25 years  $S_y$ . (In case of nominal with average shear strength at 25  $F_{\mu R0}$ .)

Results of evaluation test	Average shear strength at 25	$F_{\mu R0}$	26.46MPa
	Dispersion coefficient after 25 years	$D_y$	0.569
	Temperature coefficient at 100	$T_0$	0.23
	Deterioration coefficients after 25 years ( $\gamma = \gamma_1 \times \gamma_2 \times \gamma_3 \times \gamma_4$ )	$\gamma$	0.198
	Fatigue(25)	1	0.26
	Heat cycle( for year)	2	0.95
	Heat cycle( for day)	3	0.80
	Heat deterioration	4	1.00
Effective strength of adhesion ( $F_y = F_{\mu R0} \cdot D_y \cdot T_0 \cdot \gamma$ )		$F_y$	0.686MPa
Maximum load stress		$P_{max}$	0.10MPa
Safety factor after 25years ( $S_y = F_y / P_{max}$ )		$S_y$	6.86

Tab.4 Effective strength of adhesion  $F_y$  and safety factor after 25 years  $S_y$ . (In case of nominal with fatigue strength at 100  $F_{f100}$ .)

Results of evaluation test	Fatigue strength at 100	$F_{f100}$	0.58MPa
	Dispersion coefficient after 25 years	$D_y$	0.569
	Deterioration coefficients after 25 years ( $\gamma = \gamma_2 \times \gamma_3 \times \gamma_4$ )	$\gamma$	0.76
		Heat cycle( for year)	2
	Heat cycle( for day)	3	0.80
	Heat deterioration	4	1.00
Effective strength of adhesion ( $F_y = F_{f100} \cdot D_y \cdot \gamma$ )		$F_y$	0.251MPa
Maximum load stress		$P_{max}$	0.10MPa
Safety factor after 25years ( $S_y = F_y / P_{max}$ )		$S_y$	2.51

る。このため、高温で疲労がかかる場合は、基準強度として高温での疲労強度を用いる必要がある。図8 の疲労試験の結果から、100 での疲労強度  $F_{f100}$  は0.58MPaであり、これを基準強度とすると、表4 に示すように、耐用年数経過後の安全率  $S_y$  は次式により求められ、

$$\begin{aligned} F_y &= F_{f100} \times D_y \times \gamma \\ &= F_{f100} \times D_y \times \gamma_2 \times \gamma_3 \times \gamma_4 \\ &= 0.58\text{MPa} \times 0.569 \times 0.95 \times 0.80 \times 1.00 \\ &= 0.251\text{MPa} \end{aligned}$$

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

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

$$= 2.51$$

となる。

室温における静的な平均接着強度  $F_{\mu R0}$  を基準とした場合の6.86倍より低下している。この安全率の比(2.51 / 6.86 = 0.37)は100 でのクリープによる劣化係数と考えることができる。

## 6. 安全率の裕度の再配分

個々の評価試験において安全サイドの推定が行われていれば、耐用年数経過後の安全率  $S_y$  が1.0倍以上であれば許容不良率以上の不良品は発生しない。表4 で得られた25年後の安全率は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5 に示した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は1.94倍あることがわかる。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、発生応力を上昇させることができ、表6 に示すように、接着剤の塗布面積を減少させることができる。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。

## 7. まとめ

接着部の使用温度範囲における温度係数、使用環境・応力における劣化係数、接着強度のばらつきと接着部に要求される要求信頼度から求めるばらつき係数から実効接着強度を算出し、接着部に加わる応力の最大値との比から耐用年数経過後の安全率を求める方法を開発した。この方法は、すでに多くの製品開発において適用しており、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。

## 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).

Tab.5 Percent defective allowable [1-R], dispersion coefficient  $D_y$  and safety factor after 25 years  $S_y$ .

Percent Defective Allowable [1-R]	Dispersion coefficient $D_y$	Safety factor after 25years $S_y$
1 / 100000	0.57	2.51
1 / 1000000	0.52	2.29
1 / 10000000	0.48	2.11
1 / 100000000	0.44	1.94

Tab.6 Percent defective allowable [1-R], ratio of adhesion area and safety factor after 25 years  $S_y$ .

		Percent Defective Allowable [1-R]		
		1/100000	1/10000000	1/100000000
Ratio of adhesion area	1.0	2.51	2.11	1.94
	0.7	1.75	1.47	1.35
	0.5	1.25	1.05	< 1.00

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：「耐久性」、日本接着学会誌、Vol.30, No.10, 13-15 (1994).

6)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 (1992), P.56 .

E-mail : Haraga.Kohsuke@wrc.melco.co.jp