

(受理：昭和55年1月19日)

# 接着接合物の耐湿性に及ぼす 接着部形状・寸法の影響

原賀康介\*・児玉峯一\*

## Effect of Shape and Dimension of Adhesive Bonded Part on Bond Durability

Kousuke HARAGA and Minekazu KODAMA

Manufacturing Development Laboratory,  
Mitsubishi Electric Corp.  
(80 Nakano, Minamishimizu, Amagasaki, Hyogo, Japan)

### Abstract

The effects of the shape and dimension of adhesive bonded part on the bond durability in humidity exposure were investigated for the purpose of obtaining the information on the most reliable design of bonded part. The tensile butt joints that had three kinds of shape of bonded part and several different dimensions of bonded part for each shape were used as test specimens. The bond durability was evaluated by humidity exposure for 5 days in 90% relative humidity at 80°C.

The results obtained are as follows:

- (1) The bond durability depends on the shape and dimension of adhesive bonded part.
- (2) The bond durability depends on both bonded area  $S$  and contour line length  $L$  of adhesive bonded part. When the values of  $\epsilon (=S/L)$  are identical, the bond durability is not concerned with the shape and dimension of adhesive bonded part.
- (3) The smaller the value of  $\epsilon$  is, the more inferior the bond durability is. This seems to be concerned with the decrease of cohesive failure mode after humidity exposure.
- (4) The larger the value of  $S/L^2$  (characteristic constant for bonded part shape) is, the more superior the bond durability is. The circular adhesive bonded part is the most reliable shape on bonded durability.

(Received January 19, 1980)

### 要 旨

金属接着において接着部の形状・寸法が耐湿性に及ぼす影響を明らかにすると共に最適接着部形状について検討した。実験は接着部が円形、正方形、正三角形の3種の形状で、各々3~7種の寸法の突合せ引張り試験片で行ない、80℃、90% RH雰囲気にて5日間暴露して耐湿性を評価した。その結果、次のことがわかった。

- (1) 耐湿性は接着部の形状・寸法により大きく異なる。
- (2) 耐湿性は接着部の接着面積  $S$  と接着部外周の長さ  $L$  の双方に関係しており、 $\epsilon (=S/L)$  が一定ならば接着部の形状・寸法に関係なくほぼ同一の耐湿性を示す。
- (3)  $\epsilon$  が大きくなるほど耐湿性は向上する。
- (4)  $S/L^2$  が大きい形状ほど耐湿性に優れ、平面同志の接着の場合は円形接着部が最も耐湿性に優れた形状である。

### 1. 緒 言

接着接合物の特性試験は一般に JIS 規格や ASTM 規

\*三菱電機(株)生産技術研究所

兵庫県尼崎市南清水字中野 80 番地 〒661

格等に規定された形状・寸法の引張り剪断試験片や、引張り試験片、はく離試験片などを用いて行なわれる場合が多い。このような試験片による試験は接着剤や表面処理方法の違いによる接着特性の比較などを行なうためには有効である。しかし、各種の環境における接着耐久性を調べるような場合に、一定形状・寸法の試験片と実際の製品の接着部とでは得られたデータが一致しない場合が往々にしてみられる。特に水分が作用する雰囲気では両者の劣化のしかたが大きく異なる場合が多くみられる。

この原因は次のように考えられる。金属同志の接着の場合、水分の影響によって接着強度が低下するのは水分子が接着部の周辺の端面から接着剤の中を通過して接着界面に達し界面での結合が切断されるか、接着界面に沿って水分子が侵入し界面での結合が切断されるか<sup>1~6)</sup>、あるいは接着剤自体の吸水膨潤によるため<sup>6)</sup>である。いずれにしてもこのように水分は接着部の周辺の端面から接着部の内部へ侵入するため、接着部の水分による劣化のしかたは接着部の寸法や形状に大きく影響されると考えられる。ところが、接着部の形状・寸法と耐環境性との関連についての詳細な報告はほとんどみられず、わずかに数例のデータ<sup>7~9)</sup>が報告されている程度である。

そこで我々は、接着部の形状・寸法が金属接着における耐湿性にどのように影響するかを明らかにすると共に、最適接着部形状について検討した。

2. 実 験

2.1 被着材の形状・寸法

円形、正方形、正三角形の3種の接合部形状の突合せ試験片を用いた。図1、表1に円形被着材、正方形被着材、正三角形被着材の形状・寸法を示した。円形被着材は接着部の直径が12.0mmから30.0mmまでの7種類(A1~A7)、正方形被着材は接着部の一辺の長さが8.0mmから30.0mmまでの6種類(B1~B6)、正三角形被着材は接着部の一辺の長さが20.8mmから43.3mmまでの3種類(C1~C3)を用いた。材質はSUS304である。同形状の被着材同志を接着して接着試験片とした。

2.2 接着方法

被着材の前処理はアセトン中で5分間超音波洗浄した。接着剤は2液室温速硬化型変性アクリレート系接着剤ハードロックC-334(電気化学工業K. K製<sup>9)</sup>)を用いた。接着剤は2液を被着材上で同量混合し直ちに貼合せ室温に3日間放置後80℃で4日間後硬化させた。接着剤層の厚さは0.1~0.2mmである。

2.3 耐湿性の評価方法

接合物の耐湿性の評価は80℃, 90% RH雰囲気

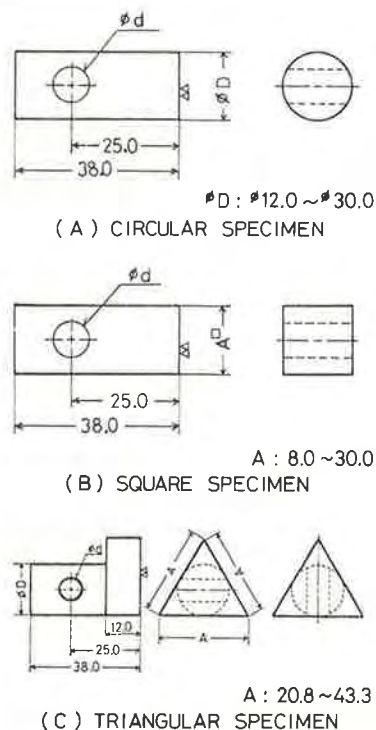


Fig. 1 Shapes of test specimens.

Table 1 Dimensions of test specimens. S: Bonded area, L: Contour line length,  $\epsilon = S/L$ .

(A) Circular specimen					
Specimen No.	$\phi D$ (mm)	$\phi d$ (mm)	S (mm <sup>2</sup> )	L (mm)	$\epsilon$
A1	$\phi 12.0$	$\phi 6.0$	113	38	3.0
A2	$\phi 16.0$	$\phi 9.0$	201	50	4.0
A3	$\phi 18.1$	$\phi 9.0$	256	57	4.5
A4	$\phi 20.4$	$\phi 11.0$	327	64	5.1
A5	$\phi 22.0$	$\phi 11.0$	380	69	5.5
A6	$\phi 25.0$	$\phi 11.0$	491	79	6.25
A7	$\phi 30.0$	$\phi 11.0$	707	94	7.5
(B) Square specimen					
Specimen No.	A (mm)	$\phi d$ (mm)	S (mm <sup>2</sup> )	L (mm)	$\epsilon$
B1	8.0	$\phi 5.5$	64	32	2.0
B2	12.0	$\phi 6.0$	144	48	3.0
B3	16.0	$\phi 9.0$	256	64	4.0
B4	20.0	$\phi 11.0$	400	80	5.0
B5	25.0	$\phi 11.0$	625	100	6.25
B6	30.0	$\phi 11.0$	900	120	7.5
(C) Regular triangular specimen					
Specimen No.	A (mm)	$\phi D$ (mm)	S (mm <sup>2</sup> )	L (mm)	$\epsilon$
C1	20.8	$\phi 12.0$	187	62	3.0
C2	27.7	$\phi 16.0$	333	83	4.0
C3	43.3	$\phi 25.0$	812	130	6.25

間暴露する耐湿性試験と、80℃、90% RH 雰囲気にて5日間暴露した後80℃の乾燥雰囲気にて5日間乾燥させ接着強度の回復を調べる可逆性試験とにより行なった。

引張り接着強さの測定は島津オートグラフ IS-5000 型引張り試験機を用い1mm/minの引張り速度で25℃で測定した。

3. 実験結果と考察

3.1 初期接着強度

各接着試験片の初期状態における破断荷重と単位面積当りの引張り接着強さを図2に示した。図2にみられるように破断荷重は接着面積に比例して直線的に変化しており、試験片の形状・寸法に関係なく一つの直線上に位置している。この結果より引張り時に接着部に作用する応力は試験片の形状・寸法に関係なく接着部全体に均一な分布をしているといえる。

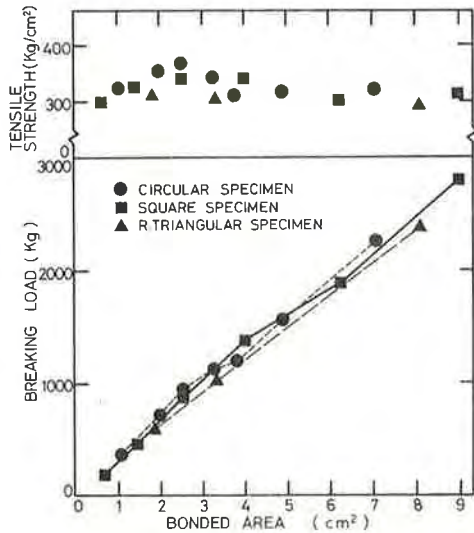


Fig. 2 Bonded area vs. breaking load (kg) and tensile strength (kg/cm<sup>2</sup>) before humidity exposure.

3.2 耐湿性試験結果

各接着試験片を80℃、90% RH 雰囲気に5日間暴露した後の引張り接着強さの保持率P(%)を表2に示した。表2より円形、正方形、正三角形等接着部の形状が同一であれば接着部の寸法が大きくなるほど保持率は高くなっており耐湿性に優れていることがわかる。

3.3 接着部の形状・寸法の影響

各接着試験片の耐湿性試験後の保持率Pと接着面積Sとの関係を図3に、保持率Pと接着部外周の長さLとの関係を図4に示した。図3、図4より接着部形状が同一

Table 2 Tensile strength retention P (%) after humidity exposure for 5 days in 90%RH at 80℃.

Specimen No.		Tensile strength retention P (%)
Circular specimen	A1	7.6
	A2	27.1
	A3	33.2
	A4	32.5
	A5	33.5
	A6	37.6
	A7	51.3
Square specimen	B1	1.8
	B2	10.7
	B3	26.5
	B4	30.0
	B5	34.6
	B6	46.1
Triangular specimen	C1	6.9
	C2	22.7
	C3	35.6

の場合には接着面積S、接着部外周の長さLが大きくなるほど保持率Pは高くなっており耐湿性が良くなることがわかる。また図3、図4について形状の違いによる影響をみると円形試験片が最も耐湿性に優れており、正三角形試験片が最も耐湿性に劣っていることがわかる。

次に接着面積Sが一定で接着部形状が異なる場合の接着部外周の長さLと保持率Pとの関係をとると図5のようになり、接着面積Sが一定の場合、保持率Pは円形試験片が最も高く正三角形試験片が最も低くなっており、また、接着部外周の長さLは円形試験片が最も短く正三角形試験片が最も長いことがわかる。逆に接着部外周の

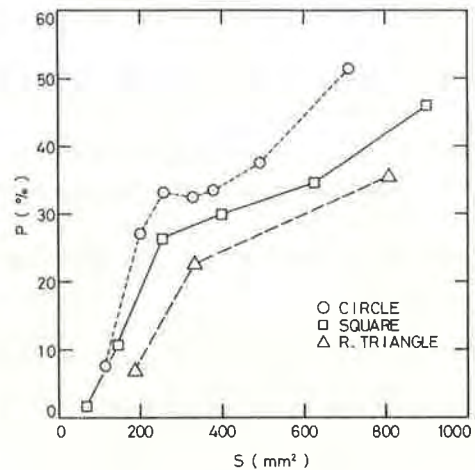


Fig. 3 Bonded area S vs. tensile strength retention P (%).

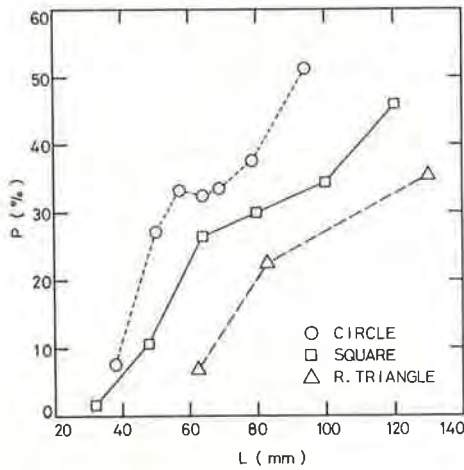


Fig. 4 Contour line length  $L$  vs. tensile strength retention  $P$  (%).

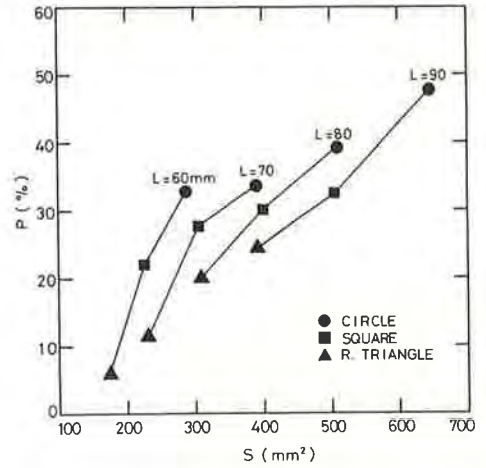


Fig. 6 Bonded area  $S$  vs. tensile strength retention  $P$  (%) at constant contour line length  $L$ .

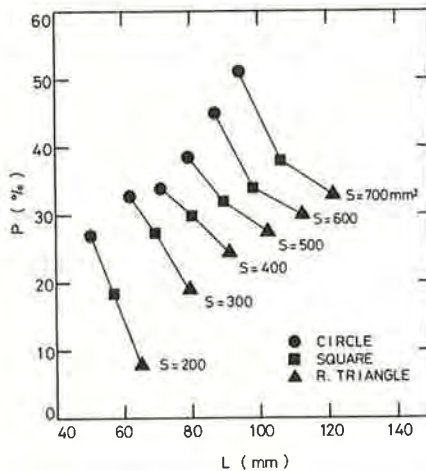


Fig. 5 Contour line length  $L$  vs. tensile strength retention  $P$  (%) at constant bonded area  $S$ .

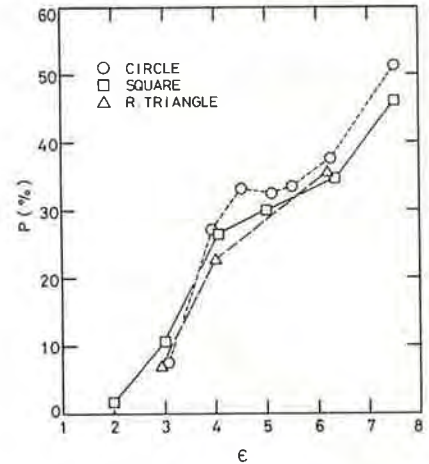


Fig. 7  $\epsilon$  vs. tensile strength retention  $P$  (%). ( $\epsilon$  is the ratio of bonded area to contour line length.)

長さ  $L$  が一定の場合について接着面積  $S$  と保持率  $P$  との関係をとると図 6 のように保持率  $P$  は円形試験片が最も高く正三角形試験片が最も低くなっており、また、接着面積  $S$  は円形試験片が最も大きく正三角形試験片が最も小さいことがわかる。

これらの結果より、接着部形状の違いにより耐湿性に差があるのは接着部の面積  $S$  と外周の長さ  $L$  の双方に関係していると考えられる。そこで接着面積  $S$  と接着部外周の長さ  $L$  の比  $\epsilon (=S/L^2)$  と、耐湿性試験後の引張り強さ保持率  $P$  との関係を各形状・寸法の試験片についてとると、図 7 に示したように円形試験片、正方形試験片、正三角形試験片の 3 本の曲線はほぼ同一位置を占め、 $\epsilon$

が同一ならば近似した保持率を示すことがわかった。また保持率  $P$  は  $\epsilon$  が大きくなるほど高くなっている。即ち接着面積  $S$  が大きいほど、あるいは接着部外周の長さ  $L$  が小さいほど耐湿性に優れているといえる。図 3, 図 4 にみられるように接着部が同一形状の場合に接着部の寸法 ( $S, L$ ) が大きいほど保持率  $P$  が高くなるのは寸法が大きいほど  $\epsilon$  も大きくなるためである。

### 3.4 最適接着部形状の検討

次にどのような接着部形状が耐湿性の点で最も優れているかを検討した。接着部形状の違いを表わすパラメータとして  $S/L^2$  を用いた。 $S/L^2$  は形状のみで定まる定数であり同一形状なら寸法の大小により変化しない値で

ある。図8に  $S/L^2$  と引張り強さの保持率  $P$  との関係を示した。図中に示したように  $S/L^2$  は正三角形では  $4.8 \times 10^{-2}$ 、正方形では  $6.25 \times 10^{-2}$ 、円形では  $7.96 \times 10^{-2}$  であり、接着面積  $S$  が一定の場合は  $S/L^2$  が大きいほど耐湿性に優れた形状であることがわかり、円形、正方形、正三角形の中では円形が最適形状であるといえる。なお接着部が平面同志であれば幾何学的にみても  $S/L^2$  が円形の  $7.96 \times 10^{-2}$  より大きい形状はない。そこで平面同志の接着では円形接合部が最も優れた形状といえる。ところが、立体的な軸と穴との嵌合のような接着部形状では接着部外周の長さ  $L$  を一定としたまま接着面積  $S$  を大きくできるため  $S/L^2$  を  $7.96 \times 10^{-2}$  より大きくすることができ耐湿性の点で非常に有利な接合部形状が得られることになる。

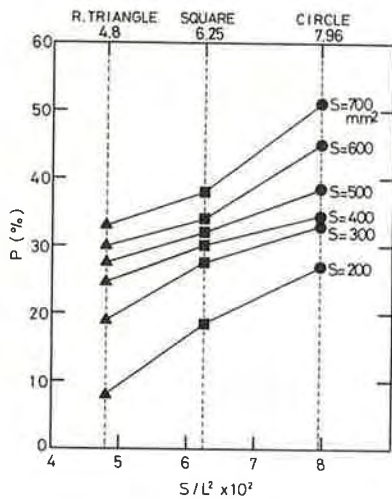


Fig. 8 Characteristic constant for bonded part shape  $(S/L^2) \times 10^2$  vs. tensile strength retention  $P$  (%).

### 3.5 破壊状態の検討

次に接着部の破壊状態について調べた。図9に円形、正方形、正三角形試験片の暴露前と耐湿性試験後の破壊状態を示した。暴露前は全て凝集破壊を示しているが、耐湿性試験後は全ての試験片とも接着部の周辺付近は界面破壊に変化し接着部の中央部は凝集破壊であった。これは接着部外周より侵入した水分の影響により界面での結合が切断されたり、あるいは結合が弱められたためであると考えられる。なお、接着部外周より中心部へ向って界面破壊を起こした距離は図9から明らかなように接着部の形状・寸法に関係なく全ての試験片においてほとんど同一である。即ち、残存凝集破壊率(耐湿性試験後の凝集破壊部の面積が接着面積全体に占める割合)は接

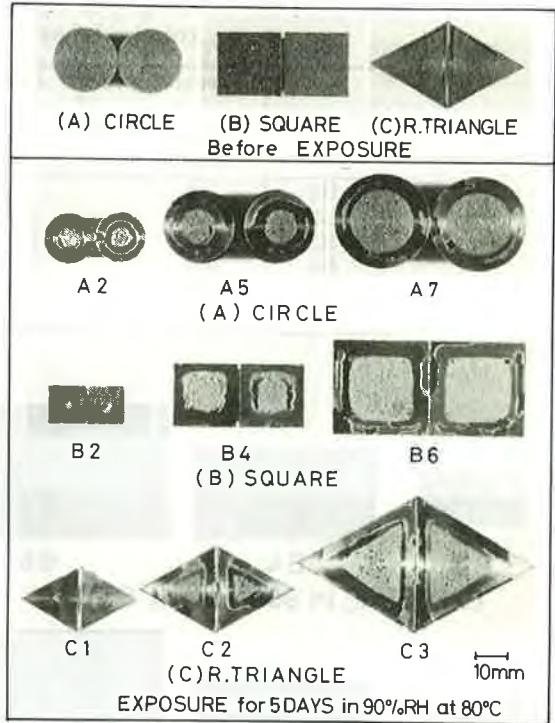


Fig. 9 The fracture surfaces before and after humidity exposure for 5 days in 90%RH at 80°C.

着面積が小さいほど、また接着部外周の長さが大きくなるほど小さくなっている。よって  $\epsilon$  が小さいほど耐湿性が劣るのは  $\epsilon$  が小さいほど残存凝集破壊率が小さくなるためといえる。しかし、耐湿性試験後の凝集破壊率と引張り強さの保持率とはあまり一致していない。表3に一例として正方形試験片について行なった両者の比較を示した。これは凝集破壊部においても接着剤自身が吸湿し凝集力が低下しており、また界面破壊部でも全てが界面での接着強度がゼロとはなっていないためと考えられる。そこで、耐湿性試験後さらに80°Cで5日乾燥させた場合の破壊状態の変化を正方形試験片について調べた。その結果を図10に示した。図10にみられるように耐湿性試験後乾燥すると接着部周辺の界面破壊域は減少し凝集破壊域が増加した。なお、乾燥後においても接着部外周から中心部へ向って界面破壊を示している距離は図10から明らかなように接着部の寸法によらずほとんど同一であった。乾燥後における接着剤自体の凝集力は耐湿性試験前の凝集力と同程度まで回復していると考えられる。また、耐湿性試験後に界面破壊を示した部分のうち乾燥により凝集破壊に変化した部分があるが、これは凝集力が回復しているにもかかわらず界面破壊を示さ

Table 3 Comparison between tensile strength retention and cohesive failure ratio.

Specimen No.	Tensile strength retention (%)		Cohesive failure ratio (%)	
	Humidity exposure	Drying after humidity exposure	Humidity exposure	Drying after humidity exposure
B1	1.8	6.5	0	5
B2	10.7	51.0	0	48
B3	26.5	68.7	19	67
B4	30.0	71.7	23	67
B5	34.6	77.0	28	74
B6	46.1	86.3	44	83

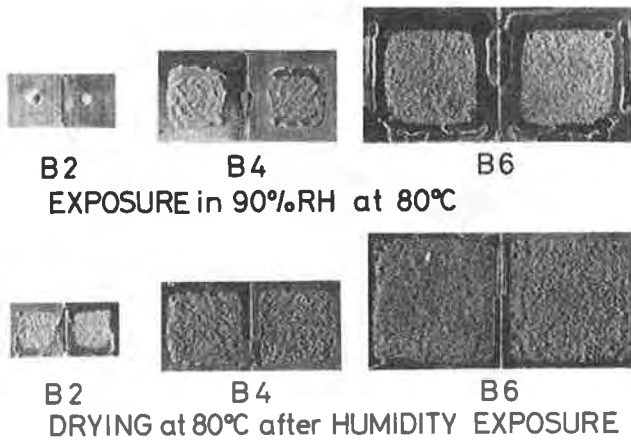


Fig. 10 The change in the fracture surfaces by drying after humidity exposure.

なくなっていることを考えると界面での接着強度の回復の方が凝集力の回復を上まわったためと思われる。逆に言うと耐湿性試験により侵入した水分は接着剤自体の凝集力を低下させる以上に界面での結合力を弱める方に大きく影響しているということもできよう。乾燥後の残存凝集破壊率と引張り強さの保持率とを比較すると表3に示したように良く一致していた。このことより乾燥後においても界面破壊を示している部分は界面での接着強度はほとんどゼロに近いと考えることができ、耐湿性試験による水分の侵入の影響により界面での結合が完全に切断され致命的損傷を受けた部分ということができよう。

#### 4. 結 言

以上の結果をまとめると次のようなことが言える。

- (1) 耐湿性は接着部の形状・寸法により大きく異なる。
- (2) 耐湿性は接着部の接着面積  $S$  と接着部外周の長さ  $L$  の双方に関係しており、 $\epsilon (= S/L)$  が一定ならば接着部の形状・寸法に関係なくほぼ同等の耐湿性を示す。

(3)  $\epsilon$  が大きくなるほど耐湿性は向上する。

(4)  $S/L^2$  が大きい形状ほど耐湿性に優れている。平面同志の接着の場合、 $S/L^2$  は円形において最大となるため円形接着部が最も耐湿性に優れた形状である。

(5) 破壊状態は全て凝集破壊であったものが耐湿性試験により接着部周辺付近は界面破壊に変化した。接着部外周より中心部へ向って界面破壊に変化した距離は接着部の形状・寸法に関係なくほとんど一定であった。

(6)  $\epsilon$  が小さいほど耐湿性に劣るのは残存凝集破壊率が低下するためと考えられる。

本研究は昭和54年6月20日 第17回接

着研究発表会において発表したものである。

#### 文 献

- 1) R. A. Gledhill and A. J. Kinloch: *J. Adhesion*, **6**, 315 (1974).
- 2) R. A. Gledhill and A. J. Kinloch: *Int. Symp. Weathering Plast Rubber, D12-1* ('nd) (1976).
- 3) W. Brockmann: *Natl. SAMPE Symp. Exhib.*, **19**, 198 (1974).
- 4) J. D. Minford: *Adhesives Age*, **17**, (7) 24 (1974).
- 5) J. D. Minford: *Adhesives Age*, **21**, (3) 17 (1978).
- 6) 元起 敏, 時光富士雄: *日本接着協会誌*, **4**, (4) 192 (1968).
- 7) 蒲生真郷: *金属材料*, **12**, (8) 50 (1972).
- 8) 岸 郁二, 堀 省三: *日本接着協会誌*, **13**, (5) 167 (1977).
- 9) 原賀康介: *日本接着協会誌*, **15**, (12) 568 (1979).