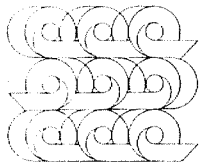


(II) 接着評価

② 耐久性評価

— 耐湿性評価法について —



三菱電機(株) 原 賀 康 介*

接着接合物の耐久性に対する不安は非常に大きく、接着接合を採用するか否かを判定する時点で常に議論されるところである。しかし、接着接合物の耐久性は、必ずしも根本的に悪いものではなく、適切な評価のもとに適切な継手設計を行えば、長時間にわたり十分に安定した性能を維持できるものである。現在の問題点は、適切な耐久性評価方法と判定基準が明確化されていない点にあると思われる。これは、接着接合物の劣化に影響する因子が非常に多く、個々の因子についての劣化機構も十分に解明されておらず、複数の因子が組み合わさった場合にはさらに複雑になるためである。接着接合物の劣化に影響する因子としては、次に示すようなものがある。

①環境：水、熱、薬品、光など

②応力：継続応力（クリープ）、変動応力（疲労）、内部応力（硬化収縮応力、熱応力）、接着部に加わる応力の方向など

③被着材料：材質、表面状態、表面処理方法、線膨張係数、ヤング率、厚さなど

④接着剤：成分、接着剤作業方法・条件、硬さ、硬化収縮率、線膨張係数、ガラス転移温度など

⑤その他：継手の形状・寸法など

ここでは、接着接合物の劣化に非常に大きな影響を及ぼす水分（耐湿性）に関する評価の例を紹介する。なお、以下のデータはすべて金属同士を変性アクリル系接着剤で接着したものである。

*（はらが こうすけ）：材料研究所 材料分析・評価センター 主幹
〒661 兵庫県尼崎市塚口本町8-1-1 TEL(06)497-7541

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なうことが重要である。

図1¹⁾は、幅25mmでラップ長さが異なる4種類の引張りせん断試験片の、60℃90%RH雰囲気におけるせん断強度保持率の経時変化である。図2²⁾は、幅Wが異なる4種類のはく離試験片の、70℃90%RH雰囲気におけるはく離強度保持率の経時変化である。ラップ長さや試験片の幅が変化するだけで耐湿性が大きく変化していることが分かる。

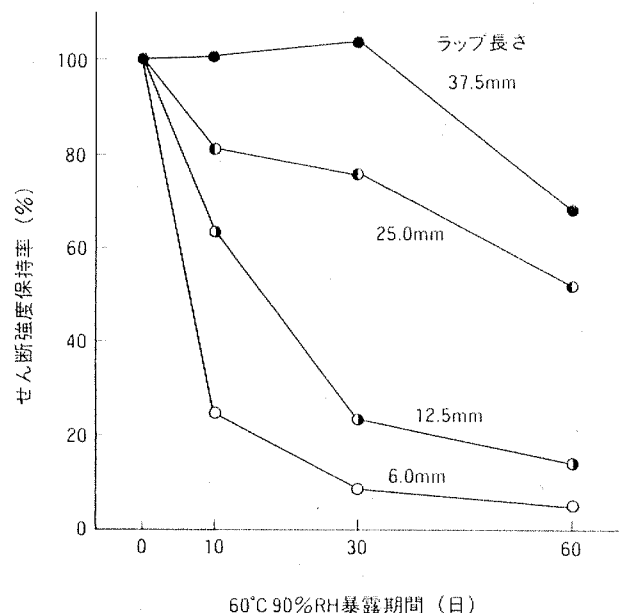


図1 耐湿性に及ぼす引張りせん断試験片のラップ長さの影響¹⁾

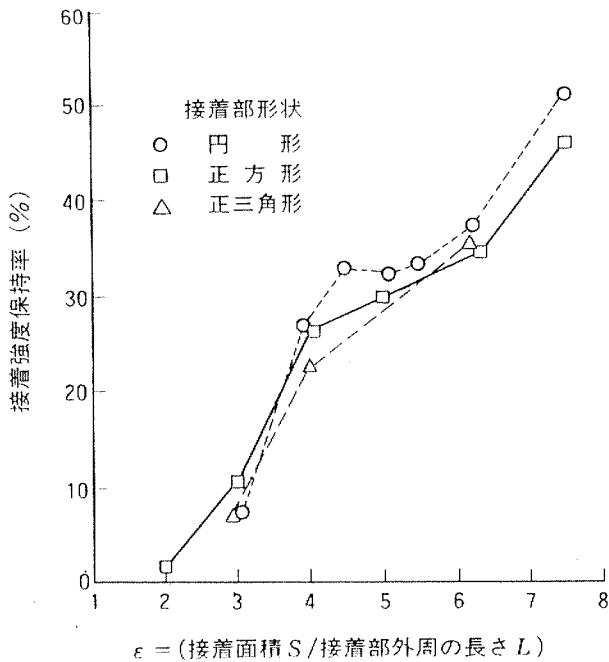


図4 ϵ と接着強度保持率の関係³⁾

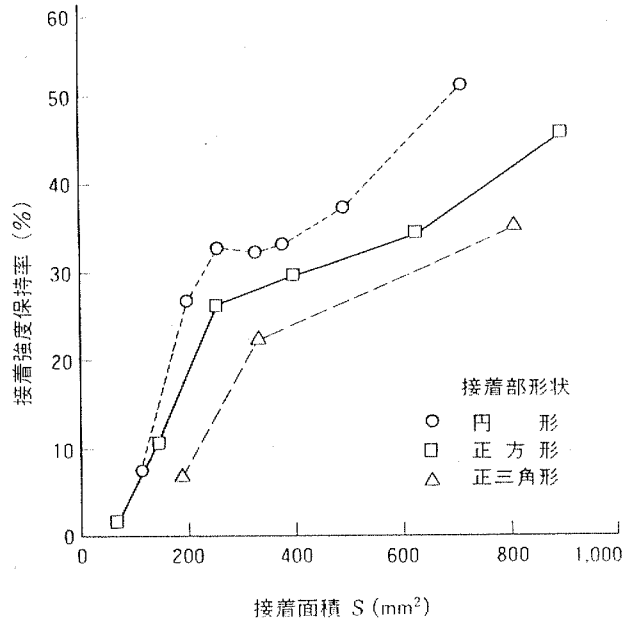


図3 突き合わせ引張り試験片の形状、面積と接着強度保持率の関係³⁾

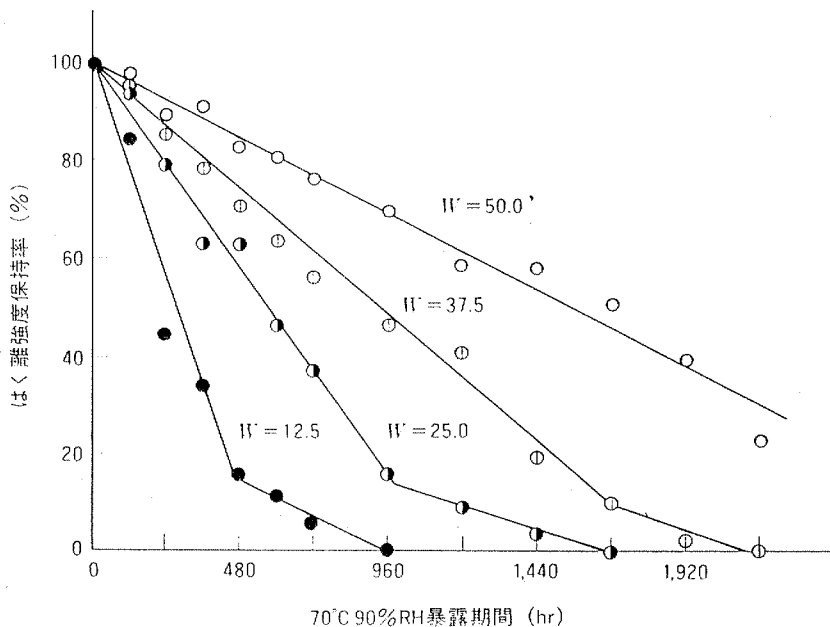


図2 耐湿性に及ぼすはく離試験片の幅Wの影響²⁾

また、図3³⁾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°C90% RH 霧囲気中に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。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分かる。

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。

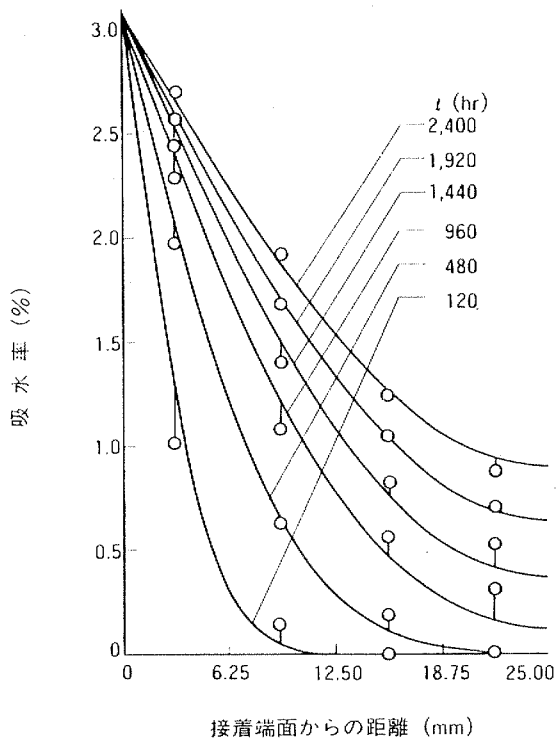
このように、耐湿性は接着部の面積と外周の長さに影響されるので、接着面積Sを外周の長さLで割った値 ϵ で図3の横軸を整理しなおすと、図4³⁾に示すようにほぼ1本の線に一致する。 ϵ が大きいほど耐湿性に優れている。 ϵ ができるだけ大きくなる形状・寸法の接着部となるように構造設計を行えばよい。

試験片の ϵ より製品の接着部の ϵ が小さい場合は、試験片でえ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、 ϵ 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。

接着部への水分の拡散を考慮した耐湿性評価法

幅Wで長さが非常に長い接着部の端面から水分が侵入する場合、端面からの距離xにおけるt時間後の吸水率Mxは次式で表わされる。



(○: 実測値, — 計算結果)

図5 幅50mmの接着部を70°C90%RH霧囲気にてt時間暴露したときの接着部の吸水率分布の計算結果と実測値の比較²⁾

$$\frac{Mx}{Mm} = 1 - \frac{4}{\pi} \sum_{j=0}^{\infty} \frac{1}{(2j+1)} \sin \frac{(2j+1)\pi x}{W} \cdot \exp \frac{-(2j+1)^2 \pi^2 D t}{W^2} \dots (1)$$

Mx : 時間 t , 端部からの距離 x における吸水率
 Mm : 飽和吸水率, W : 試料幅, D : 拡散係数

図5²⁾は、幅50mmのはく離試験片を70°C90%RH霧囲気にてt時間暴露した後の接着部の吸水率分布であり、(1)式による計算と実測値との比較である。両者はよく一致している。

図6²⁾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。図6の結果と図5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7²⁾に、幅50mmのはく離試験片を70°C90%RHに240hr, 1,200hr, 1,920hr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す。

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

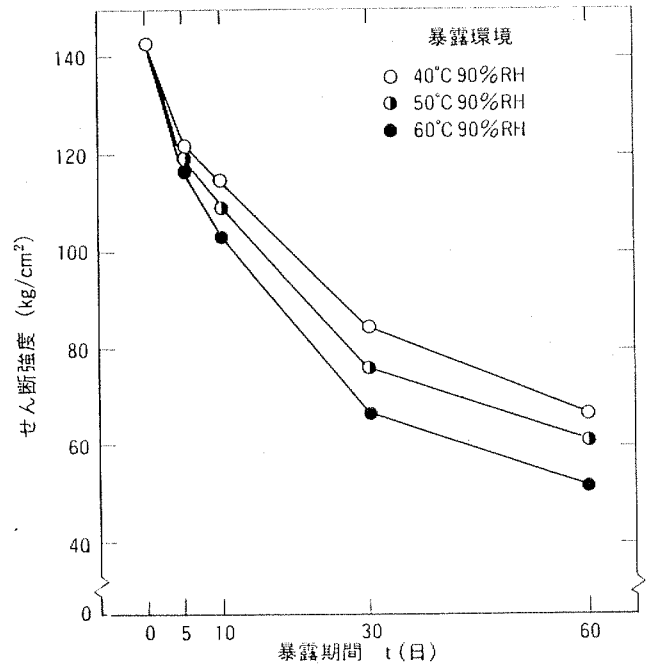


図8 高温高湿暴露による加速試験結果¹⁾

きる。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。

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°C90%RH霧囲気における長期間の強度変化を求める。

まず、図8¹⁾に示すように、40°C, 50°C, 60°Cの各々90%RH霧囲気における加速試験を行なう。次に、図8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9¹⁾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9よりえられた25°Cにおける時間の関係をプロットすると、図10¹⁾に示すように、25°C90%RHに連続暴露した場合の経時変化曲線がえられる。この方法で求めた推定曲線の精度はかなり高い。

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11¹⁾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、

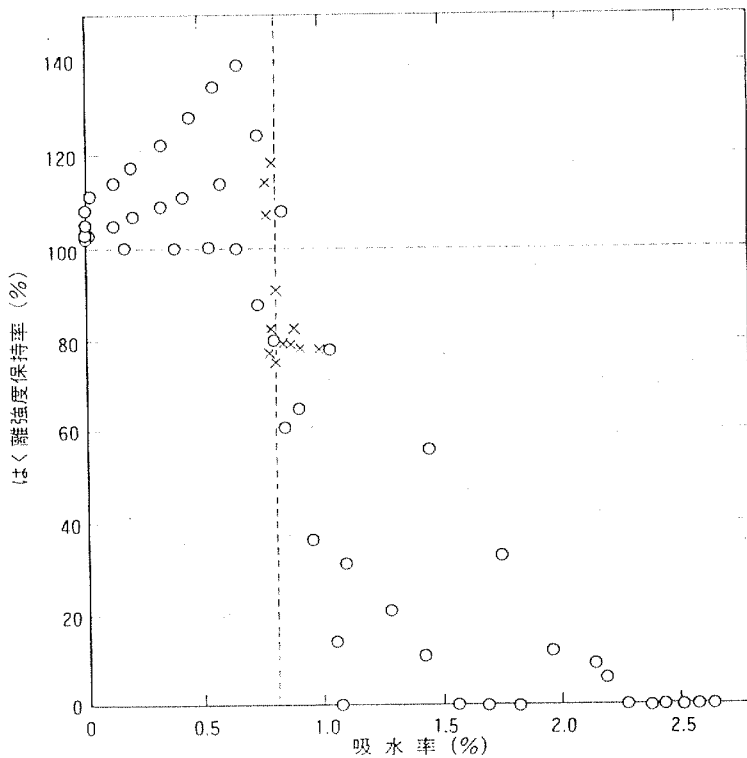


図6 接着層の吸水率とはく離強度保持率の関係²⁾

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なう場合に、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り強度回復率の関係を求めておく。

次に、図12¹⁾に示すように、図10でえられた25℃90% RH 霧囲気連続暴露における長期間の強度低下予測カーブ①を、図11からえ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②がえられる。

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③と予測カーブ②とはよく一致している。

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、

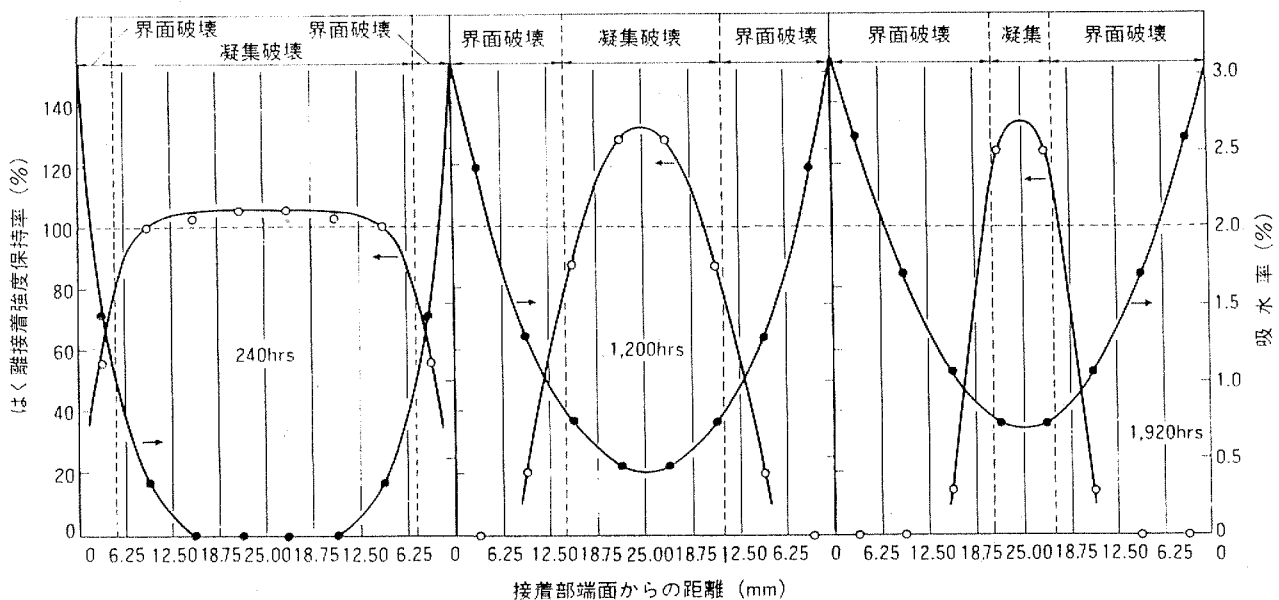


図7 70℃90%RH霧囲気暴露における接着部の吸水率分布とはく離強度保持率の分布²⁾

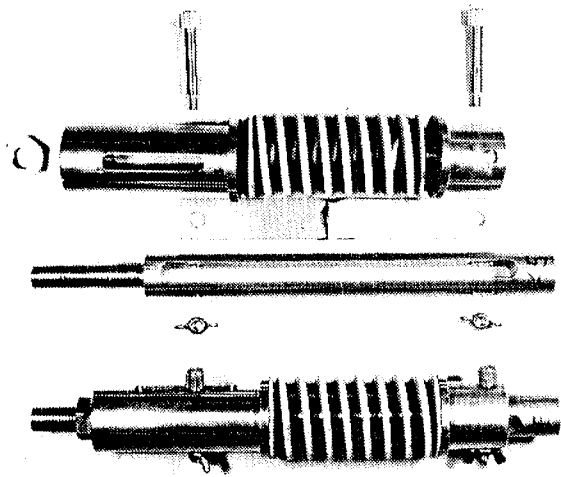


写真1 応力負荷装置

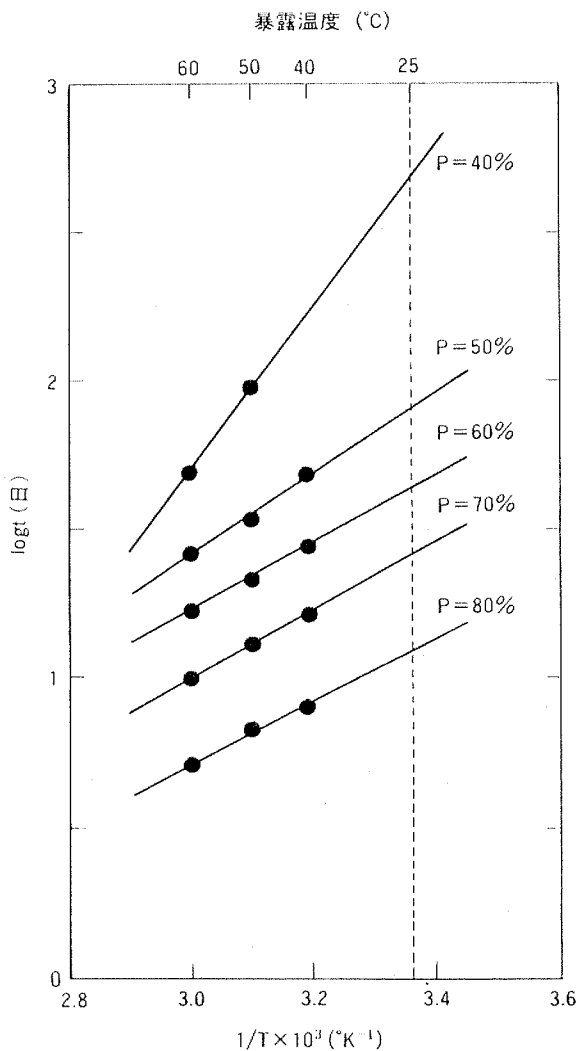


図9 接着強度保持率Pにおけるアレニウスプロット¹⁾

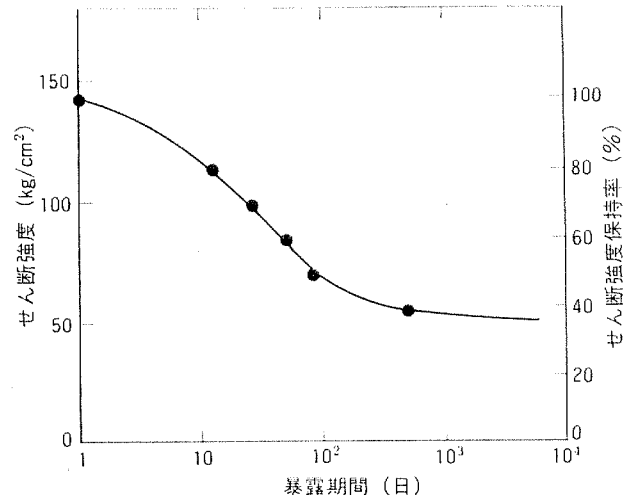


図10 25°C90%RH連続暴露における接着強度の経時変化の推定結果¹⁾

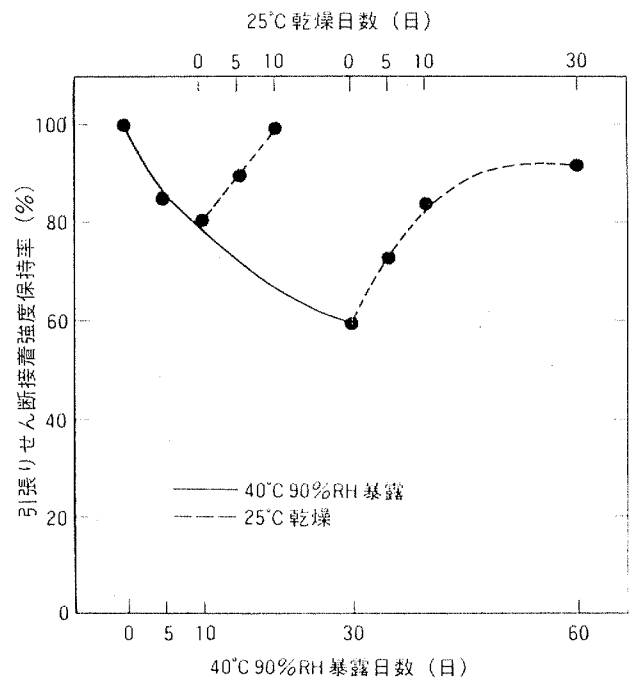


図11 40°C90%RH雰囲気暴露による接着強度の低下と乾燥による接着強度の回復¹⁾

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なうためには、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片に応力を負荷する装置の一例を写真1、図13⁴⁾に示す。この装置は全長30cm、最大外径50mmと同種の装置の中では非

図12 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②と実測値③の比
較。(①は加速試験から推定した25°C90
%RH雰囲気における劣化曲線)¹⁾

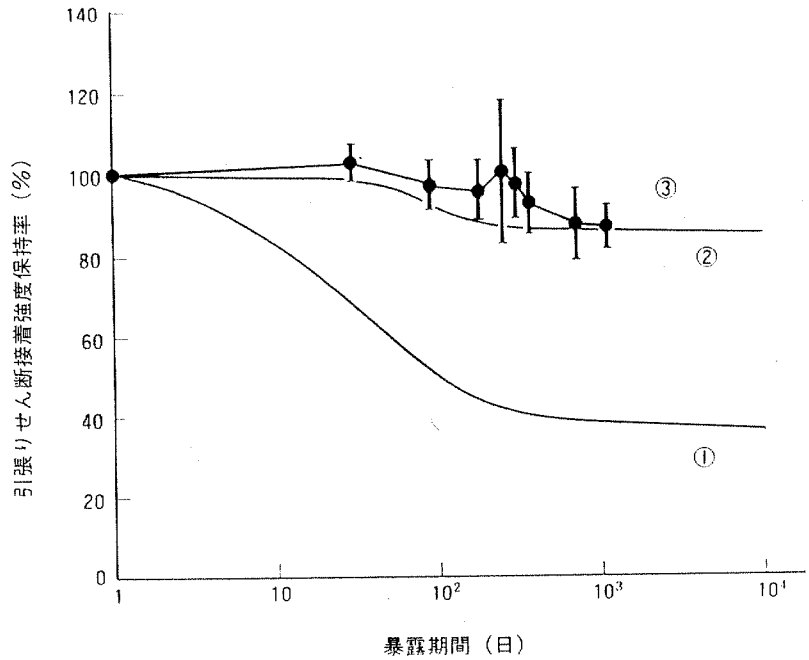


図13 応力負荷装置の形状・寸
法¹⁾

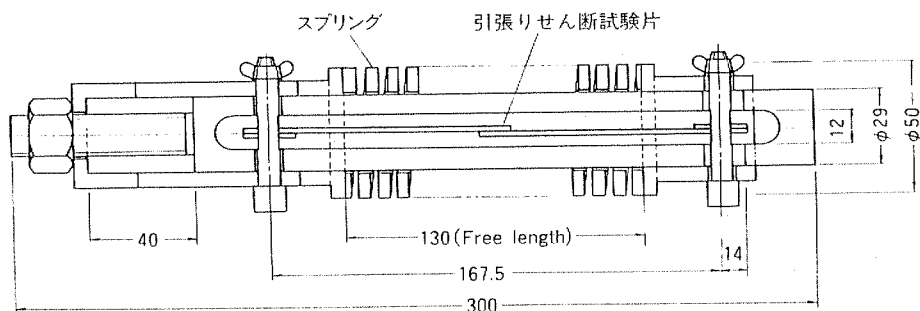
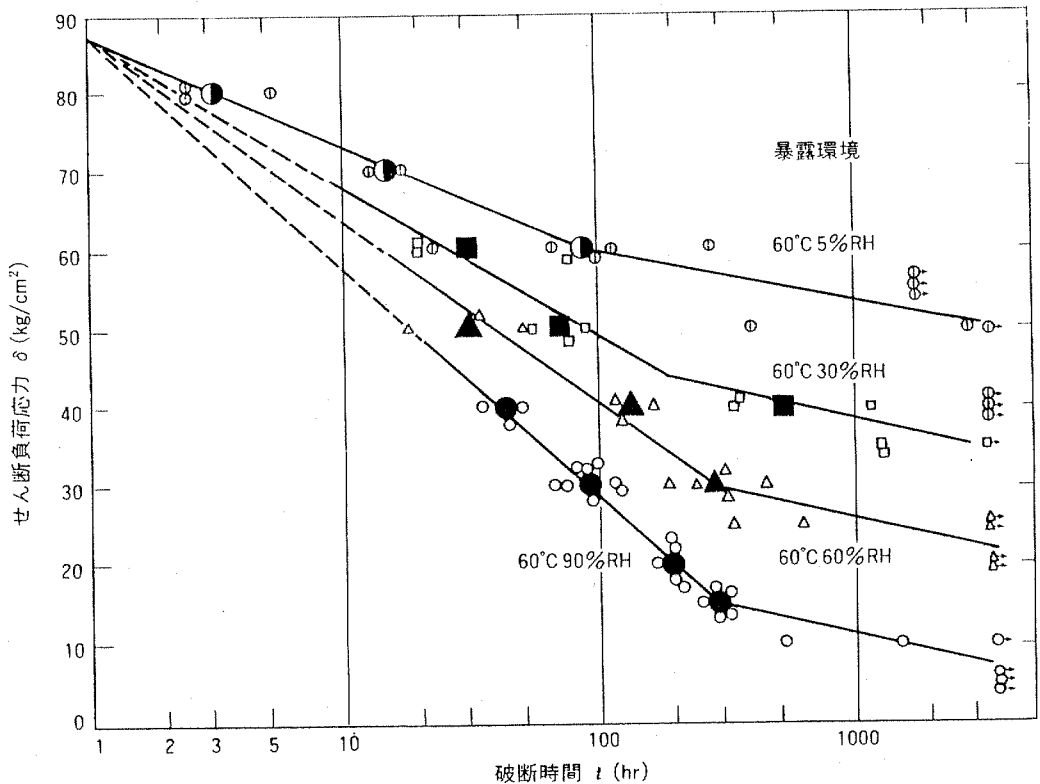


図14 60°Cにおける
相対湿度とクリ
ープ破断特性¹⁾



常に小型である。300kgf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14⁴⁾、図15⁴⁾に示す。図15は、60°C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。相対湿度が高くなると破断をおこしやすくなることが分かる。

図15は、種々の大きさの応力を負荷した状態で60°C90%RH雰囲気暴露して、自然破断する前に経時的に取り出して、応力を解除して残存接着強度を測定したものである。負荷応力が高くなると劣化しやすくなることが分かる。

応力負荷状態での耐湿劣化の改善法

接着部に大きな負荷応力が加わる場合の耐湿性の低下を防ぐためには、ウェルドボンドやリベットボンドが効果的である。図16⁵⁾に、60°C90%RH雰囲気におけるウェルドボンド、リベットボンドによるクリープ破断特性の改善効果を示した。

☆

接着接合物の劣化に非常に大きな影響を及ぼす水分（耐湿性）に関する評価の例を紹介した。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, 日本接着協会誌, Vol. 15, No. 12, p. 568 (1979)
- 2) 原賀康介, 日本接着協会誌, Vol. 23, No. 5, p. 178 (1987)
- 3) 原賀康介, 児玉峯一, 日本接着協会誌, Vol. 16, No. 6, p. 224 (1980)
- 4) 原賀康介, 山田祥, 児玉峯一, 日本接着協会誌, Vol. 19, No. 8, p. 333 (1983)
- 5) 原賀康介, 児玉峯一, 日本接着協会誌, Vol. 21, No. 1, p. 4 (1985)

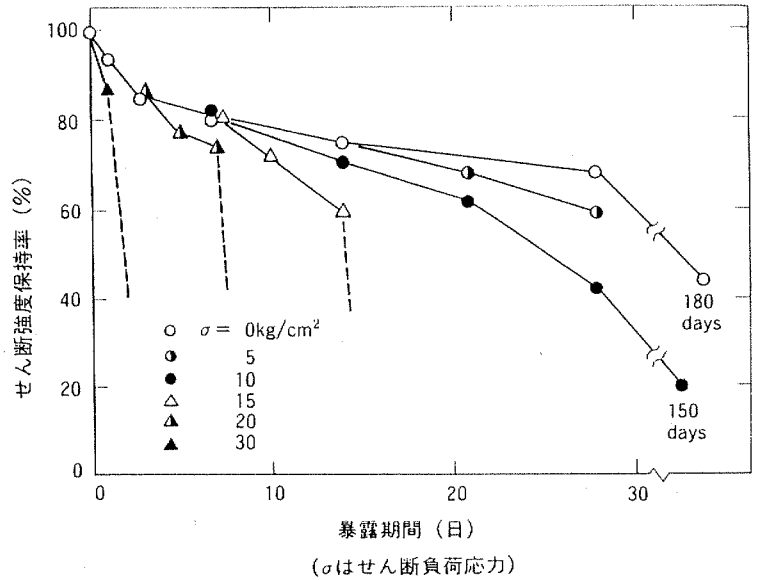


図15 応力負荷状態での60°C90%RH雰囲気暴露における耐湿性試験⁴⁾

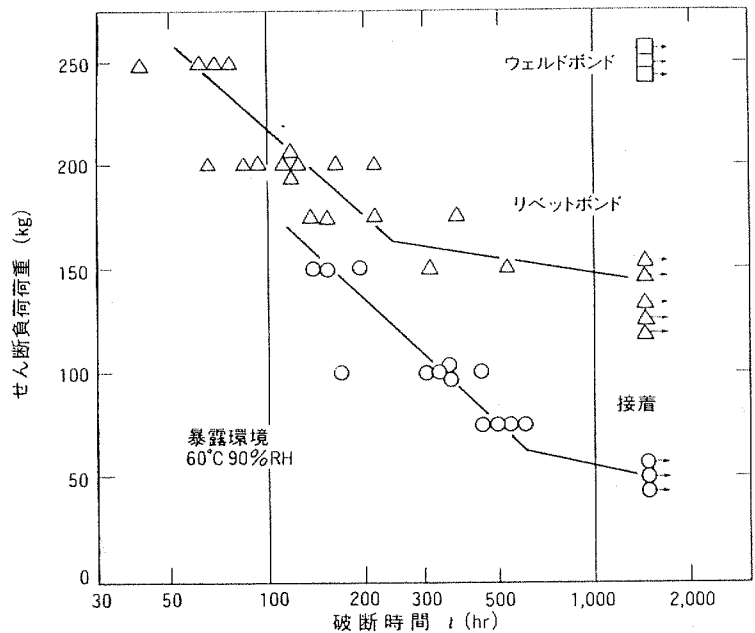


図16 60°C90%RH雰囲気における接着、リベットボンド、ウェルドボンドのクリープ破断特性の比較⁵⁾