薄肉鋼板を被着体とする突合せ接着継手接着層の 繰返し荷重下におけるその場観察†

今 中 誠* 日 高 幸 一** 鶴 井 孝 文***
秋 月 陽二郎** 又 吉 昭****

In-Situ Observation in Adhesive Layer of Adhesively Bonded Butt Joints with a Thin Adherend under Cyclic Loading

by

Makoto IMANAKA*, Koichi HIDAHA**, Takafumi TURUI***

Yojirou AKIZUKI** and Akira MATAYOSHI****

Recently, damage to the adhesive layer has been investigated by in-situ observation under several load conditions. However, these observation have been limited to the surface of the adhesive layer. If an adhesively bonded butt joint with a very thin adhesive layer could be tested, damage to the interior of the adhesive layer could be observed under transmitted light, which would facilitate clarification of the fracture mechanism of adhesively bonded joints. In this study, to observe the damage interior to the adhesive layer, adhesively bonded butt joint specimens were made using 0.3 mm-thick steel plates with plasticizer and rubber modified epoxy adhesives. Then, cyclic tensile fatigue tests were conducted using these joints, where damage to the adhesive layer was observed by a microscopic video-camera under transmitted light. The main results were as follows: In the case of a butt joint with plasticizer-modified adhesive, an initial crack appeared at the end of the adhesive/adherend interface. On the other hand, in the case of a butt joint with rubber-modified adhesive, the damage zone appeared in the middle of the adhesive layer. These observations were discussed from the viewpoint of stress and strain distributions of the adhesive layer.

Key words: Key words: Adhesive joint, In-situ observation, Rubber-modified adhesive, Fatigue

1 緒 言

異種材料の接合や大幅な軽量化を可能にすることから、接着接合の応用範囲が構造部材の接合にまで拡大しており、接着継手の強度特性や応力解析についての関心が高まっている。¹⁾ 中でも、強度推定法が注目を集め、最近、接着層端部の応力特異性パラメーターに基づいた強度予測の研究が活発に行われている。^{2)~5)} しかし、現在、構造用接着剤として使用されつつあるゴム変成等により強じん化されたエポキシ樹脂ではき裂発生前にゴム粒子のボイド化等による損傷が生じることが観察されている。^{6)~10)} したがって、強度推定に際しては、応力特異性のみならずき裂発生前における損傷領域の発生・進展挙動を考慮する必要があるものと考えられる。樹脂自体については損傷域の力学的な生成条件を明確化するため透過光によるその場観察も行われている。^{11)~13)} このような損傷域のその場観察は、接着継手においても破壊機構を明確化する上で必要であると考えられるが、一般に、接着継手の接着層は被着体厚さに比べて極めて薄いため透過光による接着層の観察は極めて困難である。そのため、通常、反射光による接着層表面の損傷域の観察に限られている。¹⁴⁾

しかし、比較的透明度の高い接着剤を用いて被着体厚さの極めて薄い鋼板を被着体とする突合せ接着継手の強度試験を実施すると透過光による接着層内部の損傷を含む観察が可能となり、接着層の破壊機構をより明確化できるものとする。

筆者らは、これまでに可塑剤ならびにゴム変成により延性を高めた2種類のエポキシ系接着剤を用いて板厚0.3mmの鋼板を被着体とする突合せ接着継手を作製し、静的引張過程における接着層を透過光により顕微鏡ビデオカメラを用いて観察した。¹⁵⁾ ここでは疲労過程における接着層のき裂や損傷を透過光により顕微鏡ビデオカメラを用いて観察し、これら接着継手の疲労破壊挙動の特徴を示した。さらに、継手の有限要素法解析を行い、応力およびひずみ分布と破壊機構の関連についても検討した。

2 接着継手試験片および実験方法

本実験で使用した突合せ接着継手試験片は Fig. 1 に示すように前報の引張試験で使用した試験片と同じである。¹⁵⁾ 図に示すように試験片は軸芯に対して非対称な形状になっているが、これは破壊の起点となる端部を特定するためである。被着体と接着剤には前報と同じく板厚

† 原稿受理 平成 11 年 6 月 29 日 Received June 29, 1999

* 正 会 員 大阪教育大学技術教育講座 〒582-8582 柏原市旭が丘, Dept. of Tech. Education, Osaka Univ. of Education, Asahigaika, Kashiwara, 582-8582

** (株)神戸工業試験場 〒675-1055 兵庫県加古郡播磨町新島, Kobe Material Technology Laboratory, Kakogun, Hyogo, 675-1055

*** 正 会 員 (株)神戸工業試験場 〒675-1055 兵庫県加古郡播磨町新島, Kobe Material Technology Laboratory, Kako-gun, Hyogo, 675-1055

**** 油研工業(株) 〒530-0012 大阪市北区芝田, Yuken Kogyo Co. Ltd., Kita-ku, Osaka, 530-0012

Fig. 1. Shape and sizes of the adhesively bonded butt joint with thin adherend.

0.3mm の工具鋼 (JIS. SK-5) と可塑剤 (チオコール) ならびに架橋ゴム粒子により変成したエポキシ樹脂をビペリジンにより硬化した 2 種類の接着剤を使用した。以後、前者の接着剤をチオコール変成接着剤、後者をゴム変成接着剤と呼ぶ。Table I に 2 種類の接着剤の配合ならびに硬化条件を示している。なお、チオコール変成接着剤の接着層は均一相であるが、ゴム変成接着剤の接着層は粒径約 70nm のゴム粒子が分散している不均一系である。また、ゴム変成接着剤においてゴム粒子の配合量を前報¹⁵⁾ の 2 倍に増加させている。接着に際しては接着部を #180 番のエミリー紙で研磨した後、アセトン中で超音波洗浄を行った。加熱硬化後は、透過光による観察を行うため、接着層の側面を #1000 番までのエミリー紙で研磨した後、粒径 0.3 μ m のアルミナを用いてパフ研磨を行った。

Fig. 1 に示した突合せ継手の疲労試験を行なうために、Fig. 2 に示すような電磁力を駆動源とする低荷重用の疲労試験機を試作した。⑥に示すアクチュエーターは変動荷重ならびにバイアス荷重を与える 2 つのコイルより構成されており、コイルの鉄心には電流と電磁力の間の線形性を向上させるためテーパーがほどこされており、電流と電磁力の間の直線性がほぼ 0 ~ 100N の範囲において維持されている。

連続観察は、荷重繰返し速度 1.4Hz、荷重比 $R = 0.2$ の条件で、温度 $295 \pm 1K$ 、湿度 50% 以下に調整された室内で行った。接着層内部の損傷状況をより鮮明にするため Fig. 3 に示すように試験片の前方に偏光板を配置し、200 倍の顕微鏡ビデオカメラにより、接着層の端部近傍の損傷状況を連続的に録画した。

3 実験結果ならびに考察

3.1 ダンベル試験片の静的強度

本実験で使用した接着剤のバルク試験片の引張荷重下における応力-ひずみ曲線を Fig. 4 に示す。なお、試験片は JIS K-7113 に規定されたダンベル型 1 号試験片を使用した。また、図中には比較のためエポキシ樹脂をビペ

Table I. Mix proportion and curing conditions of the adhesives.

Name	System	Mix proportion	Curing condition
Thiokol modified adhesive	Homogeneous	Epoxy resin (Asahidenka Kogyo : EP4100) 20gr Thiokol(Torey:LP3) 10gr Piperidine 1gr	20hr 373K
Rubber modified adhesive	Heterogeneous	Rubber modified epoxy (JSR : XER91) 25gr Piperidine 0.8gr	5hr 433K

① Hande ② Universal joint ③ Load cell ④ U-link
⑤ Test specimen ⑥ Actuator ⑦ Frame

Fig. 2. Fatigue testing machine with an electromagnetic actuator.

Fig. 3. In-situ observation system.

Fig. 4. Stress-strain curves of the bulk specimens.

リジンのみで硬化させた未変成接着剤の応力-ひずみ曲線も示している。図に示すように未変成接着剤の降伏はわずかであるが、チオコール変成接着剤では明確な降伏挙動を示すとともにネッキングを起こして破断に至っている。また、静的強度も未変成接着剤の 1/2 程度に低下している。一方、ゴム変成接着剤では、未変成接着剤と比較して強度をさほど低下させることなく、延性的に破断していることが認められる。これらダンベルの応力-ひずみ関係は一般のチオコールならびにゴム変成エポキシ樹脂の強度特性と一致している。^{6), 16)}

3・2 繰返し荷重下における連続観察

Fig. 5 はチオコールならびにゴム変成接着剤により接着された突合せ接着継手試験片の連続観察時の荷重範囲と破断繰返し数の関係を示したものである。今回、荷重範囲は、チオコールとゴム変成接着剤について、それぞれ 15.7N ならびに 62.7N 一定とした。図より、破断回数の範囲は両接着継手ともほぼ等しくゴム変成接着剤の荷重範囲はチオコール変成接着剤の荷重範囲の約 3 倍に達していることから、両者の疲労強度の差はダンベルの静的強度より拡大していることが認められる。

Fig. 6, 7 はチオコールならびにゴム変成接着剤によって接着された継手の接着層端部付近の疲労過程における

Fig. 5. Load range vs. number of stress cycles to failure.

Fig. 6. VTR image in the adhesive layer of the butt joint bonded by the thiokol-modified adhesive ($N_f = 3.07 \times 10^4$).

(1) $N/N_f = 0$

(2) $N/N_f = 0.13$

(3) $N/N_f = 0.99$

Fig. 7. VTR image in the adhesive layer of the butt joint bonded by the rubber-modified adhesive ($N_f = 1.70 \times 10^4$).

その場観察結果の一例を示している。Fig. 6 に示されるようチオコール変成接着剤では疲労過程の中期において応力特異点である接着層／被着体界面端部からき裂が発生し、界面に沿って進展している。なお、他のチオコール変成接着剤により接着されたすべての継手においてもき裂は界面端部から発生し界面に沿って進展することが確認されている。一方、Fig. 7 よりゴム変成接着剤では疲労過程のごく初期において界面ではなく端部からやや離れた接着層中央部においてすじ状の暗い領域が現れ、その後、その領域の幅が増加するとともに荷重軸と垂直方向に進展することが認められる。なお、他のゴム変成接着剤においても、このような暗い領域は特異点である界面端部ではなく、接着層内部より発生した。さて、ゴム変成エポキシ樹脂ではポイド化した粒子を連結するようにせん断帯が形成され、その密度の高い領域では、偏光により光の吸収が大きい暗い領域として観察されることが確認されている。^{6), 10)} このことから、本実験で観察される暗い領域はせん断帯の集まった損傷領域であると推測される。

Fig. 8 は、より広範囲におけるゴム変成接着剤の損傷領域を示している。この場合、損傷領域は破断直前において端部から約 2mm にまで達し、損傷領域の幅も接着層厚さの約 1/3 にまで達している。

前報の静的引張試験においてもチオコール変成接着剤では界面端部がき裂発生の起点となり、ゴム変成接着剤では接着層内部が損傷発生の起点となることを確認して

Fig. 8. VTR image in the adhesive layer of the butt joint bonded by the rubber-modified adhesive ($N_f=1.03 \times 10^4$).

おり,¹⁵⁾ き裂もしくは損傷発生箇所が静的な引張試験においても疲労試験においても同じであることが確認された。静的引張試験ではゴム変成接着剤において損傷領域の発生から破断までの変化過程が捕らえられなかったが、今回の疲労試験において、ゴム変成接着剤では繰返し数の増加とともに損傷領域が厚さならびに幅方向に拡大することが確認され、損傷領域の進展挙動がより明確化された。

3・3 接着部の応力ならびにひずみ解析

き裂ならびに損傷の発生箇所と継手の応力およびひずみとの関連を調べるため、汎用有限要素法プログラムMARCを用いて突合せ接着継手の3次元応力解析を行った。Fig. 9は境界条件ならびに負荷条件を示している。ここではxy平面ならびにzx平面に対する対称性を利用して継手全体の1/4について解析した。Table IIに解析に用いた接着剤ならびに被着体の材料常数を示している。被着体は弾性体として、接着層はFig. 4に示したダンベルの応力-ひずみ曲線より加工硬化係数を決定し弾塑性体として解析した。また、応力ならびにひずみ分布はき裂もしくは損傷の生じる接着層の端部付近についてコンタ図として示した。

Fig. 10はチオコール変成接着剤により接合された突合せ継手に繰返し荷重の最大値19.6Nを負荷した際の相当塑性ひずみの分布を示している。図に示されるよう

Fig. 9. Boundary conditions.

Table II. Mechanical properties of the adherend and adhesives.

	0.2% Proof Stress (MPa)	Young's Modulus (GPa)	Poisson's ratio	Work-hardening Parameter (MPa)	
Plasticizer modified adhesive	20.4	1.59	0.38	2200($0 < \epsilon_p < 0.05$) 600($0.05 < \epsilon_p < 0.01$) 400($0.01 < \epsilon_p < 0.0175$) 0($\epsilon_p > 0.0175$)	Elastic-plastic analysis
Rubber modified adhesive	37.3	21.1	0.38	600($0 < \epsilon_p < 0.005$) 200($0.005 < \epsilon_p < 0.015$) 67($0.015 < \epsilon_p < 0.03$) 0($\epsilon_p > 0.03$)	Elastic-plastic analysis
Adherend		191.1	0.3		Elastic analysis

(ϵ_p : Plastic strain)

Fig. 10. Equivalent plastic strain contour of the butt joint bonded by the thiokol-modified adhesive (Applied load 19.6N).

に、界面近傍の接着層断面では角部付近において比較的大きな塑性ひずみが生じているが、内部において塑性ひずみは認められない。これは被着体の拘束により内部では3軸引張の応力状態が生じ、接着層の降伏が生じにくくなったためと考えられる。また、接着層中央断面では、自由端付近よりも内部において比較的大範囲に塑性ひずみの高い領域が認められる。

Fig. 11はFig. 10と同じ条件下における最大主応力分布を示している。図に示されるように、塑性ひずみ分布と同様に、界面近傍の接着層断面では自由端付近の応力が高くなっており、接着層中央断面では、自由端付近よ

Fig. 11. Maximum principal stress contour of the butt joint bonded by the thiokol-modified adhesive (Applied load 19.6N).

りも内部において応力の高い領域が認められるが、その値は界面端部よりも低くなっている。また、図に示した範囲内での最大主応力のピーク値は界面近傍の角部に現れており、Fig. 6 に示した疲労き裂の発生個所と一致することから、疲労き裂は最大主応力のピーク値から発生するという一般的な傾向と一致している。

Fig. 12 は Fig. 10 と同様にゴム変成接着継手について繰返し荷重の最大値を負荷した際の相当塑性ひずみ分布を示したものである。図よりチョコレート変成接着剤の場合と同様に、界面近傍の接着層断面では角部付近において比較的大きな塑性ひずみが生じているが、内部において塑性ひずみは認められない。また、接着層中央断面においても同様に、自由端付近よりも内部において比較的広範囲に塑性ひずみの高い領域が認められる。

Fig. 13 は Fig. 12 と同じ条件下における最大主応力分布を示したものである。図よりチョコレート変成接着剤の分布と同様に、界面近傍の自由端付近でピーク応力を示し、最大応力値の出現する箇所と Fig. 7 に示した損傷の発生する箇所は一致しない。ミーゼスの相当応力についても同様にピーク値は界面端部に現れ、主応力同様に損傷の発生領域と最大応力を示す位置が一致しなかった。さて、ゴム変成エポキシ樹脂では、ゴム粒子周りの負の静水圧によりゴム粒子のボイド化が起これ、このことが

破壊じん性を向上させる要因となっていることが知られている。⁶⁾ さらにこのようにゴム粒子のボイド化したプロセスゾーンの生成には平均静水圧 ($\sigma_m = (\sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3)/3$) が関与していることがエポキシ樹脂のみならずゴム粒子により改質された塩化ビニル樹脂においても確認されている。^{11)~13)} そこで、最大主応力と同様に平均静水圧分布を求め、Fig. 14 に示した。図より、最大主応力分布と同様に界面近傍の自由端付近において応力が高まっており、ピーク応力を示す箇所と損傷の発生する箇所は一致していない。

次に、ひずみ分布との関連について検討を行う。ここでは最大主ひずみ分布と相当塑性ひずみ分布について調べた。Fig. 15 は最大主ひずみ分布を示している。なお、相当塑性ひずみ分布については、先に Fig. 12 に示している。両図に示されるように両ひずみの最大値はともに、界面近傍の接着層断面ではなく、接着層中央断面の内部において現れ、最大主ひずみならびに相当塑性ひずみの中央断面における高ひずみ領域は Fig. 7 に示した損傷の発生箇所と一致している。中央断面のひずみが界面近傍のひずみより高い原因は、界面近傍の接着層断面では被着体による拘束のため、応力は高いがひずみは抑制されているのに対して、接着層中央断面では、応力は界面近傍と比較すると低い、被着体の拘束がやや緩くなるた

Fig. 12. Equivalent plastic strain contour of the butt joint bonded by the rubber-modified adhesive (Applied load 72N).

Fig. 14. Mean hydrostatic stress contour of the butt joint bonded by the rubber-modified adhesive (Applied load 72N).

Fig. 13. Maximum principal stress contour the butt joint bonded by the rubber-modified adhesive (Applied load 72N).

Fig. 15. Maximum principal strain contour of the butt joint bonded by the rubber-modified adhesive (Applied load 72N).

めひずみが高くなるためと考えられる。これらのことから、損傷が応力の高い界面近傍の自由端ではなく接着層中央断面の内部に現れた原因については、次のように推測される。界面端部近傍では高い静水圧のためゴム粒子はボイド化するが、周囲のひずみが低いためボイドを連結するようなせん断帯の形成は抑制される。一方、接着層中央断面における静水圧は角部と比較してやや低いひずみが高いため、せん断帯形成が促進されるため損傷域が進展する。このため、Fig. 7 に示したように損傷域が接着層内部から発生し、内部を中心に拡大しているものと考えられる。

したがって、ゴム変成接着剤において破壊の起点となる損傷領域の生成ならびに進展には、平均静水圧のみならず最大主ひずみもしくは相当塑性ひずみも関与しているものと推測される。

4 結 言

可塑剤ならびにゴム変成接着剤により接合された薄肉銅板を被着体とする突合せ接着継手の接着部のき裂や損傷を透過光により、顕微鏡ビデオカメラを用いて観察した。さらに、有限要素法解析により、応力およびひずみ分布を求め、破壊機構との関連についても検討を行った。

(1) チオコール変成接着剤では応力特異点である接着層界面端部からき裂が発生し、界面に沿って進展した。一方、ゴム変成接着剤では界面端部ではなく端部からやや離れた接着層中央部において損傷が生じ、その後、損傷領域の幅が増加するとともに荷重軸と垂直方向に進展することが認められた。

(2) チオコール変成接着剤に繰返し荷重の最大値を負荷した際の最大主応力のピーク値は界面端部近傍において現れ、疲労き裂の発生個所と一致した。

(3) ゴム変成接着剤に繰返し荷重の最大値を負荷した際の最大主応力ならびに平均静水圧のピーク値はチオコール変成接着剤の場合と同じく界面端部近傍に現れ、損傷の発生する箇所と最大応力を示す箇所は一致しなかった。しかし、最大主ひずみならびに相当塑性ひずみの最大値はともに、界面端部近傍ではなく、接着層中央断面の内部において現れ、損傷の発生個所と一致した。この

ことから、ゴム変成接着剤において破壊の起点となる損傷領域の生成ならびに進展には、静水圧のみならず最大主ひずみも関与しているものと推察される。

本研究の遂行にあたり、平成7年度兵庫県技術向上奨励費補助金の援助を受けた。記して謝意を表す。

参 考 文 献

- 1) 例えば、宮入裕夫、池上皓三、中島常雄、永田宏二、柳沢栄一、編、“接着応用技術”(1991)日経技術図書
- 2) 結城良治編著、“界面の力学”(1993)培風館。
- 3) E. D. Reedy, JR, Int. J. Solid Structure, **30**, 767 (1993).
- 4) 服部敏男、坂田莊司、初田敏男、日本機械学会論文集, A-**54**, 597 (1988).
- 5) 岩佐正明、青山博、服部敏男、材料, **48**, 387 (1999).
- 6) A. F. Yee and R. A. Pearson, “Fractography and failure mechanism of polymers and composites”, Ed. by A. C. Roulin-Moloney, p.291 (1988) Elsevier Applied Science Publisher.
- 7) R. A. Pearson and A. F. Yee, J. of Mat. Sci., **24**, 2571 (1989).
- 8) R. A. Pearson and A. F. Yee, J. of Mat. Sci., **26**, 3828 (1991).
- 9) M. Rink, B. Guidetti, R. Frassine and L. Castellani, J. of Mat. Sci., **29**, 3071 (1994).
- 10) H. R. Azimi, R. A. Pearson and R. W. Hertzberg, J. of Mat. Sci., **31**, 3777 (1996).
- 11) A. Tse, E. Shin, A. Hilter and E. Baer, J. of Mater. Sci., **26**, 5374 (1991).
- 12) S. Bensason, A. Hilter and E. Bear, J. of Appl. Polym. Sci., **55**, 703 (1997).
- 13) S. Bensason, A. Hilter and E. Bear, J. of Appl. Polym. Sci., **55** 715 (1997).
- 14) M. Ochi, M. Yamaichi, O. Kiyohara and T. Tagami, J. of Adhesion Sci. Tech., **12**, 1559 (1995).
- 15) 今中 誠, 神田朋成, 日本機械学会論文集, A-**64**, 2620 (1998).
- 16) 例えば、橋本邦之編著, “エポキシ樹脂”, p.278 (1978) 日刊工業新聞。