樹脂材料の強度低下予測
(温度と湿度による加速評価)澤田 祐子^{*1}, 越前谷 大介^{*1}Estimation of strength degradation for engineering plastic
(Under elevated temperature and humidity stress test)Yuko SAWADA^{*1} and Daisuke ECHIZENYA^{*1}^{*1} Advanced Technology R&D Center, Mitsubishi Electric Corporation
8-1-1 Tsukaguchi-Honmachi, Amagasaki-shi, Hyogo 661-8661, Japan

Received: 24 August 2018; Revised: 29 November 2018; Accepted: 12 February 2019

Abstract

A large quantity of engineering plastics are used in electric industrial products. It is necessary to estimate the life of the product made of engineering plastics because of its shorter life and lower strength than some of ceramics or metals. New test device was developed for accelerated stress test. It can make the unsaturated environment above 100 °C under atmospheric pressure using superheated water vapor. Then it becomes possible to set wide range condition of temperature and humidity. Polybutylene terephthalate (PBT) is one of the hydrolyzed engineering plastics. Test pieces of PBT were submitted to accelerated stress test under some conditions of elevated temperature and humidity. Then they were provided to three point bending test. The time required for strength degradation has a good relation with water vapor pressure at each temperature. Then it became clear that the time required for strength degradation on each water vapor pressure was accelerated with temperature using the Arrhenius type equation.

Keywords : Engineering plastic, Estimate, Strength degradation, Accelerated stress test, Temperature, Humidity, Life, Superheated water vapor, Water vapor pressure, Arrhenius

1. 緒 言

樹脂材料は低コストで軽く、成型加工しやすいため、電気製品に多く適用されている。樹脂材料には接着剤、半導体の封止剤、プリント基板、モータの巻き線の含浸等に用いられる熱硬化性樹脂と、冷蔵庫やエアコン、ファン、液晶パネルなどの筐体や構造部材等に用いられる熱可塑性樹脂がある。またガラス繊維やフィラなどの強化材との複合材料も多く用いられている。樹脂材料は、金属やセラミックス等と比較して材料自体の剛性や強度が低い。また可逆・不可逆に機械特性が大きく変化するガラス転移温度や融点が、製品の使用温度域（およそ -50 °C ~ +200 °C）に存在することが多い。さらに化学構造上、温度や湿度、紫外線、溶剤等によって分解や溶融を起こす。電気製品は、温度、湿度、紫外線、振動、電気スパーク、放射線など様々な過酷な環境に暴露されるため、使用されている樹脂材料の強度特性が低下すると、製品の寿命や信頼性に大きくかかわってくる（本間, 2009）。一方で技術進歩が加速し、コスト競争が激しくなると、製品の設計・製造・品質検査等にかかる時間の短縮が求められるため、安全性や信頼をどのように確保するかが大きな課題となっている。このように、材料自体の剛性や強度が低く、熱変形や強度低下を起こしやすい樹脂材料を構造体や強度を必要とする部材として適用するには、製品の設計・開発の早い段階でその強度特性を把握しておく必要がある。

樹脂材料の寿命やその予測手法については、早川が寿命の考え方、劣化要因、特性の測定方法、データの統計的处理方法等について概要を提示している（早川, 1989）。しかし材料の進化は速く、多種多様な添加剤や処理

剤も開発されてきており、適用される製品も多岐にわたることから、個々の材料、適用製品に応じた試験をして確認することが必要である（竹島他，1983）（岩瀬他，2015）（隅田，福嶋，2003）．また CFRP のような複合材料については、ガラス繊維とマトリクス樹脂の界面の劣化による機械特性の低下に着目した研究が多く行われている（Foulc et al. , 2005）（武田他，2015）．一方樹脂材料自体の特性低下に言及したものは少なく、加水分解による可塑化の速度を相対湿度で整理している報告（Pickett and Coyle, 2013）や、表層の分子量から熱による材料強度の低下を予測する手法（小郷他，2015）の報告等があるが、いずれも要因は単独であり、複数の要因での材料強度予測手法には至らない．

そこで本報では、樹脂材料を用いた製品の温度と湿度の2要因による強度低下を短時間に予測することを目的として、広い範囲の温度・湿度条件を調整できる加速試験装置を開発し、従来からの加速試験装置と組み合わせて市場環境をより加速した種々の温度・湿度条件を準備した．そしてエンジニアリングプラスチックの1種であるポリブチレンテレフタレート（Polybutylene terephthalate : PBT）を対象に、温度と湿度の2つのパラメータによる強度低下の加速試験を実施し、市場環境での強度低下を短時間で予測する方法を検討した．

2. 温度と湿度による強度低下試験方法

2・1 試験サンプル

対象とする樹脂材料は、化学構造内にカルボニル基を有して加水分解されやすい（図1）ポリブチレンテレフタレート（PBT）を用いた．樹脂材料自体の強度低下を評価するために、繊維やフィラによる強化のない SABIC 社の型番 310-1001 を用いた．試験片は ASTM 1/8 bar（幅 12.5 mm、長さ 60 mm、厚さ 3 mm）の短冊とした（図2）．

Fig. 1 Chemical formula of PBT indicated by hydrolysis.

Fig. 2 Test piece for bending test.

2・2 温度と湿度による加速試験装置

温度と湿度による加速試験を行う装置には従来から、恒温恒湿装置、HAST（Highly Accelerated Temperature and Humidity Stress Test）等がある．これらは、1960 年代ごろから電子部品や半導体部品の加速劣化試験として開発されてきた装置であり、温度や圧力によって試験品に水分を浸透させることにより配線の腐食や漏れ電流による不具合を加速して評価することができる．これらの装置は、JIS, MIL-STD, EIAJ, IEC など、国内および国際的に

も規格化されている（エレクトロケミカルマイグレーション（ECM）研究会，2013）（徳光，2015）．図3に各装置が制御可能な温度と相対湿度（以下，湿度と略す）の範囲を示す．黄色枠で示した従来からの恒温恒湿装置は100℃未満の大気圧下で温度と湿度を調整できる，湿度が不飽和の試験装置である．青色枠で示したHASTは，温度105℃以上で湿度75%以上の環境を，空気を排除して水蒸気のみで実現する加圧装置（圧力容器）である．特に湿度100%の飽和試験はPCT（Pressure Cocker Test）と呼ばれることもある．近年，黄緑枠で示したワイドレンジHASTが開発され，100℃以上の温度域において20%以上という低い湿度範囲を実現することが可能となり，従来からの装置と合わせて温度と湿度の条件が広がった．

樹脂材料の温度と湿度による加速試験を行うには，低い温度や湿度では試験時間が長くなるが，樹脂が溶融する温度以上で加速をすることもできない．また樹脂の種類によっては空気中の酸素により分解するものもあるため，HASTのように空気を排除した環境では，市場の条件の加速にならない場合も考えられる．そこで図3の赤枠で示すような，150℃までの温度範囲で，大気圧下で空気と水蒸気を混合した環境を実現できる装置を新しく開発した（図4，図5，図6）（澤田，2017）．

Fig. 3 The range of temperature and humidity for each testing device. Temperature and humidity area of constant temperature and humidity chamber is shown by yellow line. Blue line shows the area of highly accelerated temperature and humidity stress test (HAST) chamber. Light green line shows the area of wide range HAST. Violet line shows the area of 100% saturated humidity test (PCT). Red line shows the area of new developed test device. Especially above 100℃ area is implemented by unsaturated superheated water vapor.

新しく開発した装置の機構について説明する．図4に示すように大きく2つの部分で構成されている．ひとつは水蒸気を発生させ，その量を調整する部分，もうひとつは温度と湿度を保つステンレス製のチャンバーを内蔵する恒温槽の部分である（図5）．試験片はこの内蔵チャンバーの中央に設置される（図6）．まず水蒸気発生および調整する装置について説明する．外部から純水を供給した水タンクを，チラーで加熱した温水で安定的に温調して，タンク内に水蒸気を発生させる．あらかじめ流量を調整した乾燥空気によりこの水蒸気を加熱した流路に押し出し，さらに別の流量を調整した乾燥空気と混合して水蒸気量を調整して，恒温槽内に内蔵しているチャンバーに流し込む．チャンバーは耐熱性シリコンパッキンと金属蓋で密閉されている．水蒸気の流路の入口と出口の2カ所には電磁弁を取り付けている．恒温槽内で温度調整されたチャンバーに，量を調整された水蒸気を流し込み続けることにより，チャンバー内の湿度を一定に保持することができる．所定の湿度に達したら電磁弁を閉めて湿度を保持し続けることができる．また電磁弁を開けて再度水蒸気を流し込むことにより，湿度の再調整も可能である．乾燥空気のみを流すこともできるため，湿度0%も実現できる．チャンバーは3個設置されているので，チャンバー毎に異なる水蒸気量を流すことにより，同じ温度で3条件の湿度を一度に実現できる．恒温槽は150℃まで可変であるので，100℃以上のチャンバーに流れこんだ水蒸気は過熱蒸気となる．各チャンバー内部の温度と湿度はセンサーで常時モニターする．この装置の開発により，図

3の赤枠で示したように、従来の恒温恒湿装置やワイドレンジHASTの範囲の一部も網羅した広い範囲の、大気圧下での温度と湿度を調整することができるようになった。

本報では、これらの装置類を用いて種々の条件を作り出し、温度と湿度による加速試験を実施した。

Fig. 4 New device using unsaturated superheated steam. It is composed of two elements. One is humidity controller and the other is temperature controlled chamber. Pure water is evaporated by recycling hot water and humidity is controlled by mixing water vapor and dry air. Adjusted water vapor is driven into temperature controlled inner chamber. Temperature and humidity of inner chamber are controlled under atmosphere pressure.

Fig. 5 Three inner chambers were in the constant temperature chamber. These were sealed by silicone packing and stainless lid.

Fig. 6 Plastic test samples were in the inner chamber.

2・3 温度と湿度による加速試験

試験条件は温度と湿度で設定し、水蒸気圧に換算して表記したものを表1に示す。まず各温度 T_c (°C) における飽和水蒸気圧 P_s (hPa) を次に示すBuckの式 (Buck, 1981) を用いて算出した。

$$P_s = 6.1121e^{(18.678 - T_c / 234.5)T_c / (257.14 + T_c)} \quad (1)$$

式 (1) で求めた飽和水蒸気圧 P_s と湿度 hr (%) から次式により水蒸気圧 P (hPa) を算出した.

$$P = P_s \times hr / 100 \quad (2)$$

試験サンプルは数時間から数十時間区切りで取り出し, 変色や収縮, 膨張などの変形の有無を目視と寸法測定で確認した後に強度試験を行った. そして強度と破壊の状態を確認しながら, 次の取り出し時間を見積もり, 強度が低下するまで同様の試験を行った. 各条件におけるサンプル数は 2 本である.

Table 1 Accelerated stress test condition and test chamber.

Temperature (°C)	Relative humidity (%)	Water vapor pressure (hPa)	Test chamber
85	33	191	Constant temperature and humidity chamber
	85	492	Constant temperature and humidity chamber
120	3	59	New developed chamber
	9.6	190	New developed chamber
	12	238	New developed chamber
	22	435	New developed chamber
	24	475	New developed chamber
	39	772	Wide range HAST
	100	1979	HAST
140	28	1003	Wide range HAST
	51	1828	Wide range HAST
150	2	94	New developed chamber
	5	235	New developed chamber
	10	470	New developed chamber

2・4 強度試験

強度試験には島津製作所製 1 トン引張試験機 (EZ-Graph) を用い, 3 点曲げ試験を実施した. 試験条件はクロスヘッド速度 1.5 mm/min, 下部支点間距離 24 mm, 室温で大気中とした.

2・5 樹脂の分子量確認試験

PBT 樹脂が温度と湿度により加水分解していることを確認するため, MFR (Melt Flow Rate) を測定した. MFR は, 一定の温度に保持したシリンダ内で樹脂を熔融させ, シリンダ底部に設置された規定口径のダイスから一定の荷重条件で 10 分間に押し出した量を測定するもので, 熱可塑性樹脂の熔融時の流動性を示し, 分子量と良い相関を示す. MFR 値が高いと分子量が小さく, MFR 値が低いと分子量が大きい. 加水分解が進行して分子量が低下すると MFR 値は高くなっていく. 測定装置は Tester corporation 社製の Device Meltindexer, 測定温度は 240 °C, 荷重は 2.16 kg, ピストンの移動距離は 25.4 mm で行った.

3. 試験結果

3・1 強度試験結果

図7にPBT樹脂試験片の85℃33%の条件に保持した時間毎の荷重-変位関係を示す。保持時間0時間の初期のサンプルは変位が約4mmで最大荷重339Nとなり延性破壊を示した。138時間後では最大荷重を示す変位はほぼ変わらず、最大荷重は増加した。214時間後では最大荷重を示す変位はほぼ変わらず、最大荷重が390Nとさらに増加し、途中き裂が発生して荷重が低下したが、延性破壊を示した。398時間後は、最大荷重がさらに増加して416Nとなり破断した。その後は時間経過とともに最大荷重と最大変位が低下し、ぜい性破断となった。時間経過と破壊の形態は、他の温度・湿度条件でも同様の傾向であった。初期には延性破壊を示し、最大荷重を示す変位よりも最大変位の方が大きい間、最大荷重が増加していくのは、加熱により少しずつ結晶化が進むため（廣恵，本吉，1996）、高い温度の方がより結晶化が進むと考えられる。時間とともに最大変位が低下して、最大荷重を示す変位に近づくとも最大荷重の増加が止まってくるのは、結晶化と同時に分解が進むためと考えられる。そこで本研究では、最大変位が最大荷重を示す変位まで低下した温度と湿度の保持時間を強度低下時間と定義し、条件毎に強度低下時間を見積った。強度低下時間における最大荷重はおおよそ400～430N、最大変位は3.5～4.5mmであった。なお、120℃100%に保持した試験片は、2時間の保持で変色し、短冊が収縮して短く太くなる変形が確認された。

Fig. 7 Relation between load and deflection of 3 points bending test after accelerated stress test of 85 °C and 33 %. The initial specimen showed ductile fracture. After 214 hours, maximum load was increased and a crack was initiated. After 398 hours, the test specimens were broken down. Maximum load and maximum deflection were decreased and the brittle fracture was observed afterwards.

3・2 MFR 試験結果

図8に、150℃10%の条件に保持した時間とMFRの関係を対数軸で示す。初期のMFR値を0.1時間にプロットすると保持時間とMFR値は良い相関を示した。この結果から、温度と湿度により樹脂が分解して分子量が低下したことがわかる。PBT樹脂は図1の化学式で示したように加水分解しやすい化学構造であるため、分子量の低下は加水分解によるものであり、強度低下の原因と考えられる。また温度と湿度が高くなるほど加水分解は加速されるため、強度低下は早くなると考えられる。

Fig. 8 Relation between retention time under 150 °C 10 % and MFR. Retention time and MFR showed a good linear relation. This showed that molecular weight of PBT decreased by hydrolysis.

4. 温度と湿度による強度低下予測

図9は、2・3節で求めた水蒸気圧と3・1節で求めた強度低下時間との関係を、85 °C、120 °C、140 °C、150 °Cそれぞれの温度毎に対数表示でグラフに示したものである。温度毎の試験データはそれぞれほぼ直線となった。同じ温度でも水蒸気圧が高くなる、すなわち水分子が多くなると加水分解が加速されることがわかる。一方、120 °C 100 %の飽和条件に保持した試験片の強度低下時間は2時間となり、120 °Cの不飽和条件のデータの直線から大きくはずれた。この試験片は変形と変色も見られたことから、湿度が100 %の飽和状態では、水蒸気ではなく液体の水により、不飽和による加水分解よりもさらに過剰な分子の分解が進んだと推察された。

Fig. 9 Relation between strength degradation time and water vapor pressure. Linear relation was shown between strength degradation time and water vapor pressure under unsaturated conditions. Different phenomenon occurred under saturated condition.

そこで湿度が不飽和のデータのみを用いて、次に示すアレニウス型の式を用いて、強度低下時間を温度で加速した時間に整理し直した。

$$L_{T_2} = L_{T_1} \times \exp \left\{ A \times \left(\frac{1}{(T_2 + 273.15)} - \frac{1}{(T_1 + 273.15)} \right) \right\} \quad (3)$$

ここで、 T_1 は試験温度、 T_2 は整理し直す温度、 L_{T_1} は試験から求めた強度低下時間、 L_{T_2} は整理し直した時間である。定数 A は、累乗式にてフィッティングすると、 $A=6986$ となった。図 10 に、この A 値と式 (3) から、各データを 120°C で整理し直した結果を示す。白抜きのマークは実験データ、塗りつぶしたマークは式 (3) で整理し直したデータである。 120°C の実験データと式 (3) を用いて 120°C で整理し直したデータはほぼ同一直線に乗ることがわかる。この結果から、各温度での強度低下時間は水蒸気圧で整理することにより、アレニウス型の式を用いて温度で加速できることがわかった。すなわち同じ水蒸気圧でも温度が高いと加水分解は速くなり、温度が低いと加水分解は遅くなる。

図 11 は、すべてのデータを 30°C 、 85°C 、 120°C 、 150°C に整理し直したデータとその近似線を示す。市場環境を 30°C 70%と仮定すると、水蒸気圧は 29.7 hPa 、近似式から強度低下時間は 118161 時間と算出され、月数で 159 ヶ月、年数で 13 年余りとなった。 85°C 85%の場合、水蒸気圧は 492 hPa 、強度低下時間は 273 時間で 30°C 70%の 432 倍の加速、 120°C 39%の水蒸気圧は 772 hPa で強度低下時間は 35 時間で 1.5 日、さらに 150°C 10%の水蒸気圧は 470 hPa 、強度低下時間は 15 時間で 1 日以内に評価でき、従来の試験よりさらに加速した強度低下の評価が可能となることがわかった。

温度 3 条件と、各温度について湿度を 3 条件、計 9 条件で試験を行えば図 9 を作成でき、式 (3) の A 値を求めて加速式を得られる。さらに試験の精度を上げるには、試験片数の増量、温度や湿度の振り幅を大きくする、温度と湿度の条件を増やす、保持時間を細かく区切って強度低下時間を正確に見積もる等を行えばよいと考える。

Fig. 10 All data recalculated using Arrhenius type equation were gathered on a straight line, except for one data under saturated condition.

Fig. 11 All data were recalculated at each temperature using Arrhenius type equation and gathered on each approximate straight line. Strength degradation time in the market environment at 30°C 70% was estimated about 13 years.

5. 結 言

本研究では、電気製品に用いられる樹脂材料の強度低下時間を予測することを目的として、従来の恒温恒湿装置よりも高い温度範囲で低い湿度を実現できる加速試験装置を新しく開発し、PBT樹脂を対象に強度低下の加速試験を実施した。得られた結果を以下に示す。

- (1) 過熱蒸気を用いて従来の恒温恒湿装置よりも高い温度で低い湿度を実現できる新しい加速試験装置の開発により、変形や変色など市場とは異なる劣化状態を起こすことのない加速試験条件が広がった。
- (2) PBT樹脂の温度と湿度の複合条件による強度低下時間は、その温度と湿度から算出される水蒸気圧で整理することにより、アレニウス型の式を用いて温度で加速して換算できることがわかった。
- (3) アレニウス型の式を用いて温度で加速することにより、樹脂製品が暴露された環境での強度低下時間を予測することが可能となった。

謝 辞

本論文を執筆するにあたり、摂南大学理工学部機械工学科の久保司郎教授、大阪大学大学院工学研究科機械工学専攻の箕島弘二教授に多大なご指導を賜りご助言をいただきました。ここに厚く御礼申し上げ、感謝の意を表します。

文 献

- Arden, L. B., New equations for computing vapor pressure and enhancement factor, *Journal of Applied Meteorology*, Vol.20, No.12 (1981), pp.1527–1532.
- エレクトロケミカルマイグレーション (ECM) 研究会, HAST・Air-HAST を使用した高加速温湿度試験の検討～プリント配線板の高加速温湿度試験の限界を探る～, *エレクトロニクス実装学会* (2013).
- Foulc, M. P., Bergeret, A., Ferry, L., Ienny, P. and Crespy, A., Study of hygrothermal ageing of glass fibre reinforced PET composites, *Polymer degradation and Stability*, Vol.89 (2005), pp.461–470.
- 早川 浄, 高分子材料の寿命とその予測, *アイピーシー* (1989).
- 廣恵章利, 本吉正信, 成型加工技術者のためのプラスチック物性入門, 第3版 (1996), pp.159–157.
- 本間精一, プラスチック製品の強度設計とトラブル対策, *株式会社エヌ・ディー・エス* (2009).
- 岩瀬由佳, 進藤徹, 大武義人, 河原成元, ゴム支承におけるワックスのブルーム挙動と低温環境下におけるオゾン劣化の関係, *成型加工シンポジウム'15 予稿集* (2015), pp.43–44.
- 小郷正勝, 古屋敷啓一郎, 藤井昌浩, 尾川忠, 長田義博, 樹脂成形品の熱劣化に伴う新規強度予測手法の開発, *成型加工シンポジウム'15 予稿集* (2015), pp.45–46.
- Pickett, J. E. and Coyle, D. J., Hydrolysis kinetics of condensation polymers under humidity aging conditions, *Polymer Degradation and Stability*, Vol.98 (2013), pp.1311–1320.
- 澤田祐子, 越前谷大介, 樹脂材料の加水分解による強度低下を予測する加速試験方法, *M&M2017* (2017), ID:GS0305.
- 隅田憲武, 福嶋容子, ポリプロピレンリサイクル材料の余寿命評価と品質管理, *マテリアルライフ学会誌*, Vol.15, No.3 (2003), pp.93–97.
- 武田篤, 山田和志, 西村寛之, 温水用ガラス繊維強化ポリプロピレンの長期耐久性評価, *成型加工シンポジウム'15 予稿集* (2015), pp.39–40.
- 竹島鋭機, 川野敏載, 高村久雄, 加藤繁道, 塗装鋼板の耐久寿命予測法に関する研究 (第Ⅷ報) (塗膜劣化に及ぼすサンシャインウェザーメータ試験温度の影響), *色材*, Vol.56, No.8 (1983), pp.525–534.
- 徳光芳隆, HAST の採用経緯と装置原理・湿度理論および課題, *エレクトロニクス実装学会誌*, Vol.18, No.4 (2015).

References

- Arden, L. B., New equations for computing vapor pressure and enhancement factor, *Journal of Applied Meteorology*, Vol.20, No.12 (1981), pp.1527–1532.
- Electrochemical migration (ECM) kenkyukai, HAST/air-HAST wo shiyoushita koukasoku onshitsudo shiken no kentou～Print haisenban no koukasoku onshitsudoshiken no genkai wo saguru～, *Electronics jisso gakkai* (2013) (in Japanese).

- Foulc, M. P., Bergeret, A., Ferry, L., Ienny, P. and Crespy, A., Study of hygrothermal ageing of glass fibre reinforced PET composites, *Polymer degradation and Stability*, Vol.89 (2005), pp.461–470.
- Hayakawa, K., *Koubunshizairyou no jyumyou to sono yosoku* (1989) (in Japanese).
- Hirose, A. and Motoyoshi, M., *Seikei kaku gijyutsusha no tame no plastic bussei nyumon*, Vol.3 (1996), pp.159-157.
- Honma, S., *Plastic seihin no kyoudosekkei to trouble taisaku*, *Kabushikikaisha enu-ti-esu* (2009) (in Japanese).
- Iwase, Y., Shindo, T., Otake, Y. and Kawahara, S., Relation between wax blooming behavior in vulcanized rubber and ozone degradation when exposed to low-temperatures for rubber bearing, *Preprints of Seikei-Kakou Autumnal Meeting 2015* (2015), pp.43–44 (in Japanese).
- Ogo, M., Koyashiki, K., Fujii, M., Ogawa, T. and Nagata, Y., Strength prediction method with thermal degradation of the resin molding, *Preprints of Seikei-Kakou Autumnal Meeting 2015* (2015), pp.45–46 (in Japanese).
- Pickett, J. E. and Coyle, D. J., Hydrolysis kinetics of condensation polymers under humidity aging conditions, *Polymer Degradation and Stability*, Vol.98 (2013), pp.1311–1320
- Sawada, Y. and Echizenya, D., Accelerated stress test for prediction of degraded resin material strength by hydrolysis, *M&M* 2017 (2017), ID:GS0305 (in Japanese).
- Sumida, Y. and Fukushima, Y., Polypropylene recycle zairyo no yojyumyou hyouka to hinshitsu klanri, *Materiaru Raifu Gakkaishi*, Vol.15, No.3 (2003), pp.93–97 (in Japanese).
- Takeda, A., Yamada, K. and Nishimura, H., Evaluation of long-term performance of glass fiber reinforced PP for hot water supply, *Preprints of Seikei-Kakou Autumnal Meeting 2015* (2015), pp.39–40 (in Japanese).
- Takeshima, E., Kawano, T., Takamura, H. and Kato, S., Study on the method of predicting service life of coated steel sheets (VIII) (Influence of sunshine weatherometer testing temperature on coating film deterioration), *Journal of the Japan Society of Colour Material*, Vol.56, No.8 (1983), pp.525–534 (in Japanese).
- Tokumitsu, Y., History, test unit structure, humidity theory and problem of HAST, *Journal of The Japan Institute of Electronics Packaging*, Vol.18, No.4 (2015) (in Japanese).