

2024(令和6)年度 修士学位論文

エポキシ樹脂接着剤による単純重ね合わせ継手
のクリープ特性

Creep characteristics of single-lap joints
with epoxy resin adhesive

2025年2月6日

高知工科大学大学院 工学研究科基盤工学専攻
知能機械工学コース

1275029 牧野 優人

指導教員 楠川 量啓

目次

1. 緒言	2
1.1 研究背景	2
1.2 クリープ変形	2
1.3 接着剤継手のクリープ研究の現状	3
1.4 クリープひずみシミュレーション	3
1.5 研究目的	4
2. クリープ試験機	5
2.1 試験機の作製	5
2.2 荷重計測	6
3. 材料および試験片	6
3.1 材料	6
3.2 試験片	7
4. 実験方法	9
5. 実験結果および考察	9
5.1 実験室環境下でのクリープ試験	9
5.1.1 平均せん断応力-破断時間の関係	9
5.1.2 接着厚さ-破断時間の関係	10
5.1.3 クリープ変形	10
5.1.4 実験室環境の影響	12
5.2 環境温度を制御したクリープ試験	12
5.2.1 負荷応力と破断時間の関係	13
6. クリープ変形シミュレーション	14
6.1 パラメータの決定	14
6.2 シミュレーション結果	15
7. ガラス転移温度	19
7.1 サンプル作製および実験方法	19
7.2 測定結果	21
8. 結言	23
文献目録	24
謝辞	25

1. 緒言

1.1 研究背景

2015 年 9 月 25 日に国連サミットで採択された「持続可能な開発のための 2030 アジェンダ」は貧困や飢餓、保健など幅広い課題に対応するための 17 の目標を設定しており、その中でも気候変動は最大の課題の一つと位置付けられている [1]. 近年の気候変動は、主に人間の活動に伴う温室効果ガスの排出が原因とされており、現在の大気中の二酸化炭素 (CO₂) の平均濃度は 385 ppm で、産業革命以前の水準と比べて 38%増加していると報告されている [2]. このような背景のもと、二酸化炭素排出量を低減するための取り組みが各分野で進められている.

輸送機器の分野では、構造体の軽量化による燃費の向上が二酸化炭素排出量削減のための有効な手段として着目されている. 軽量化を実現する方法のひとつに、異なる特性を持つ材料を適材適所で組み合わせるマルチマテリアル化がある. 図 1 は、航空機におけるマルチマテリアル化の進展による構成比率の変遷を示している [3]. この手法では異種材料の接合時に特に優れた特性を発揮する接着接合が多く採用されている.

接着接合は、金属間のイオン化傾向の違いによって発生するガルバニック腐食を電氣的絶縁によって防止できるほか、複合材料のような加工が難しい材料でも穴開け加工などを必要とせずに接合可能である. また、部品数の削減による軽量化や、接着面全体で荷重を分担することで応力集中を抑えられる点も利点として挙げられる [4].

このような背景から、近年では接着剤の利用が拡大している.

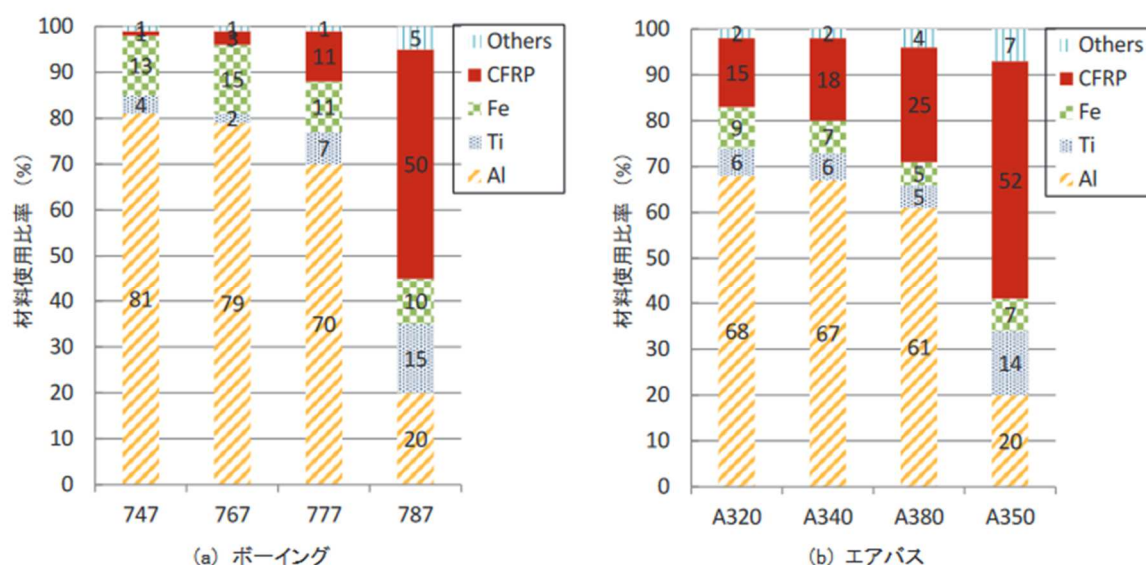


図 1 マルチマテリアル化による航空機の構成材料比率の変遷 [3]

1.2 クリープ変形

クリープ変形とは、材料に一定の荷重が長時間加わった際に、時間とともに進展する変形のことである. この現象は特に高温や高湿度環境下で顕著に現れ、接着剤を含む高分子材料においても重要な設計上の因子となる. 材料に一定荷重が加わると、まず弾性変形として瞬間ひずみが発生する. その後、時間経過と

ともにひずみが進行する挙動がクリープ曲線として観察される。図 2 に一般的なクリープ曲線を示す。この曲線は、材料に一定荷重が付加された際のひずみと時間の関係を示したものであり、クリープ挙動の特徴を表す重要な指標である。

クリープ曲線は一般に、遷移クリープ、定常クリープ、加速クリープの逆 S 字を描く 3 段階に大別される。遷移クリープでは、ひずみ速度が高く、時間の経過とともに徐々に減少する。次に、ひずみ速度が一定となる定常クリープに移行する。この段階では、材料の変形が安定して進行するため、クリープ特性を評価する際に重要である。最後に、ひずみ速度が再び増加し、破壊に至る加速クリープの段階がある。このように、クリープ挙動は高分子材料の粘弾性特性に大きく左右され、温度や湿度、加わる応力の大きさといった周囲の環境条件によって進行が顕著に変化する。

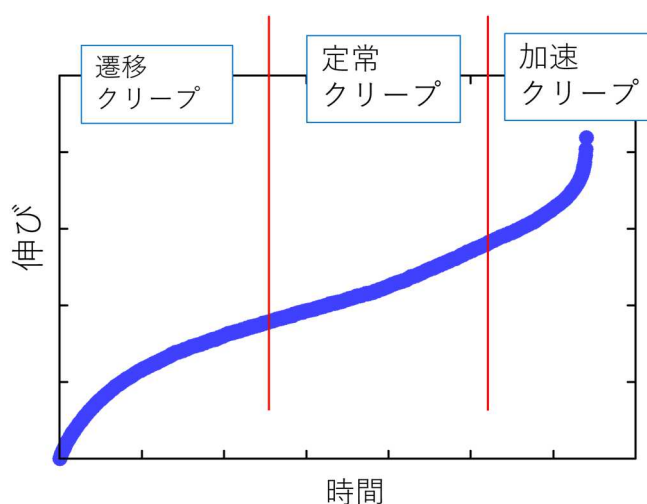


図 2 一般的なクリープ曲線

1.3 接着剤継手のクリープ研究の現状

接着剤は粘弾性体の高分子材料であり、長時間にわたる荷重の影響で変形が進行することもある。このため、接着接合の設計においては静的強度の評価だけでなく、繰り返し荷重による疲労 [5]や長時間負荷に対する耐久性も考慮する必要がある。特に高温や高湿度環境においては、高分子材料の分子間結合力が低下し、クリープ変形が急激に進行することで突然の破壊に至る可能性がある。

現状では、異なる環境や温度条件下でのクリープ応答を調査する研究が数多く行われているが、水中浸漬による試験 [6]や荷重負荷前に高温や水中に曝す条件での研究 [7]が中心であり、高温の空気中での試験を対象とした研究は限定的である。このような背景から、接着接合の強度信頼性を向上させる観点で、高温環境下におけるエポキシ樹脂接着剤のクリープ特性についてのさらなる研究が必要とされている。

1.4 クリープひずみシミュレーション

実験で長時間のクリープ試験を複数回行い、寿命を直接確認することは現実的ではない。そこで、数値シミュレーションは、クリープ挙動を予測するだけでなく、時間およびコストの削減に大きく貢献する手法として有効である。シミュレーションにはダッシュポットやばねの要素を用いたレオロジーモデ

ルが用いられる。ダッシュポットは粘弾性要素を、ばねは弾性要素を表現する。レオロジーモデルには、Maxwell モデル、Voight モデル、Zener モデルなどがある。その中でも本研究で使用した Burgers モデル（図 3:右）は、粘弾性解析に用いられる一般的なモデルであり、複数の研究者によって複合材料やポリマーの粘弾性応答をモデル化するために広く使用されている [7]。

Burgers モデルは並列で配列されたばねとダッシュポットからなる Voight モデルと直列に配列されたばねとダッシュポットからなる Maxwell 要素を直列に接続した構造を持つ。本研究では、単純重ね合わせ継手のクリープ挙動を対象に、Burgers モデルを使用した数値シミュレーションを実施した。これにより、クリープ曲線の再現および破断時間の予測を試みた。

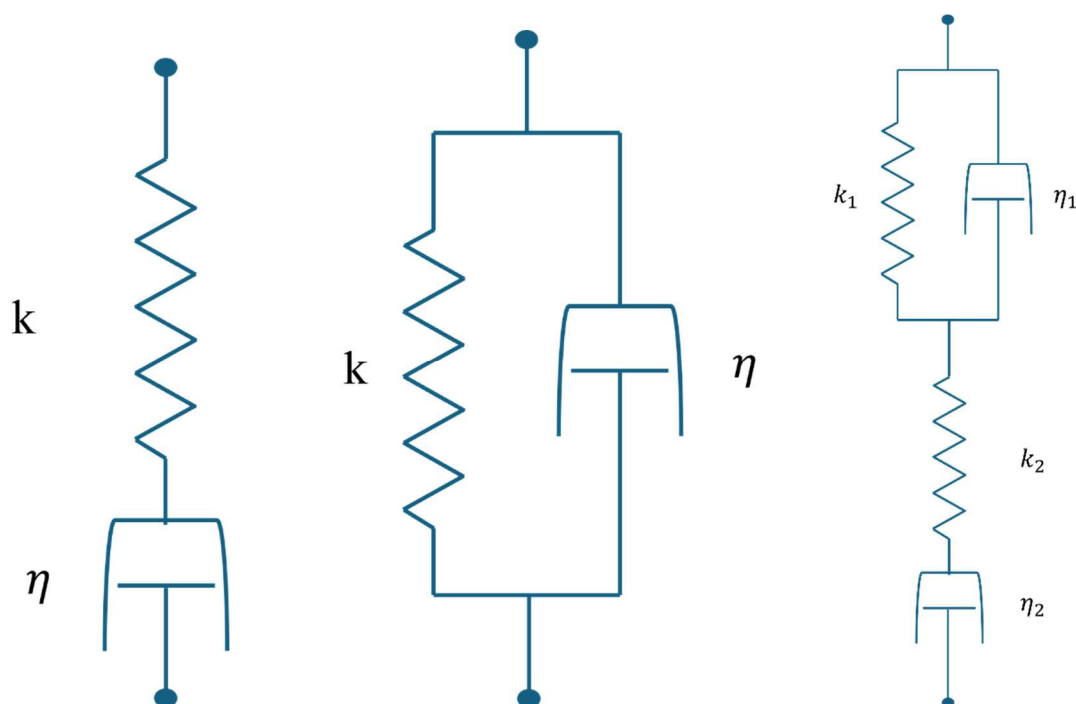


図 3 左:Maxwell モデル 中:Voight モデル 右:Burgers モデル

1.5 研究目的

材料のクリープに関する研究は、古くから進められており、その基本的な挙動や特性は広く知られている [8]。しかし、接着継手におけるクリープ挙動は異種材料間の界面で生じる応力集中や硬化時の残留応力、さらには吸水による材料の劣化など、複雑な要因が絡み合うため、十分に解明されていないのが現状である。また、高温環境下における接着継手のクリープ特性に関する知見も限定的であり、接着接合の安全性や耐久性を向上させるためにはさらなる研究が必要である [9]。

本研究では、エポキシ樹脂接着剤を用いた単純重ね合わせ継手（SLJ）を対象に、高温環境下でのクリープ特性を調査することを目的とする。小型の接着継手試験片を用いたクリープ試験を行い、温度や平均せん断応力条件が接着継手のクリープ挙動に与える影響を明らかにする。また、破断時間や変位の測定、巨視的破面の観察を通じて破壊メカニズムの解析を行う。さらに、Burgers モデルを用いて SLJ 試験片のクリープ挙動をシミュレーションし、クリープ特性の評価を行う。

2. クリープ試験機

2.1 試験機の作製

研究にあたって、図 4 に示すクリープ試験機を作製した。この試験機は、1:5 のてこを介して試験片に軸方向引張荷重を負荷する機構を有する。試験片はピン固定とした。荷重測定には、試験片固定位置の下部の荷重軸上にロードセル LC1122-K250（株式会社エー・アンド・デイ、容量 250kN）を取り付けた。また、試験中の試験片の伸びを測定するため、静電容量型変位計 DL1-203BE-SP（新光電機株式会社）を使用し、3D プリンターを用いて作製した専用治具（図 5）で試験片の隣に配置した。また、クリープ試験は長時間に及ぶため、実験室環境の温度変化が試験片の変位に影響を及ぼす可能性がある。これを防ぐため、マントルヒーターと温度指示調節計（DSM5-020P013-631I1-0060）を設置し、試験中の試験片周辺温度を一定に保つようにした。

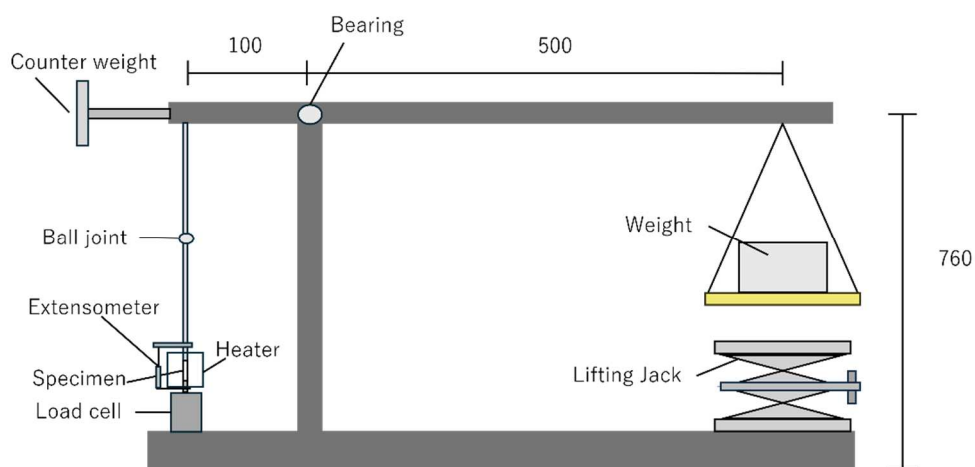


図 4 クリープ試験機 模式図 (mm)

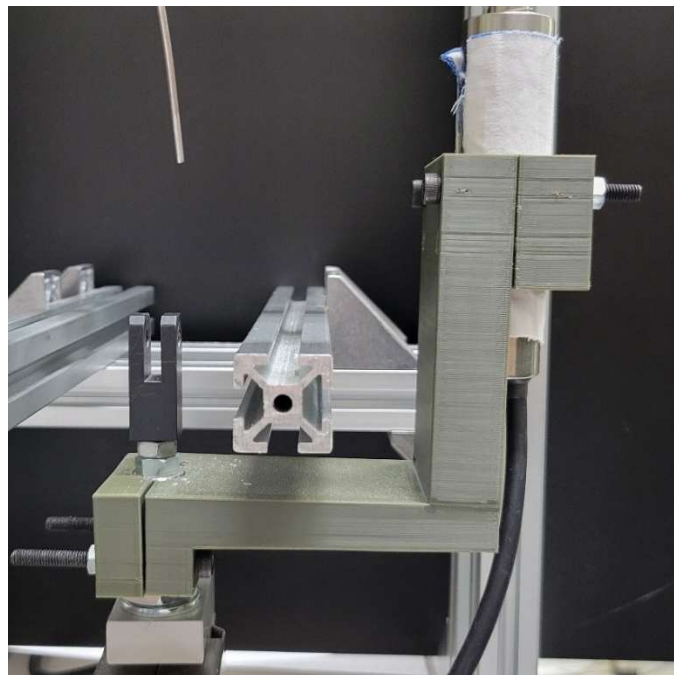


図 5 専用治具

2.2 荷重計測

使用したロードセルの定格容量は 2.5 kN. 定格出力電圧（印加電圧 1V で定格容量の荷重をかけた時の出力電圧）は 1 mV/V である. ブリッジ電圧が 2 V の場合, 出力電圧は $2 \text{ mV/V} \times 2 \text{ V} = 2 \text{ mV}$ となる. ゲージ率は一般に 2 であり, 1 ゲージ法でひずみと出力電圧の関係を考えると, 式 (1) よりブリッジ電圧 2 V の場合 $2 \text{ mV}/2000 \mu\epsilon$ となる.

$$e = \frac{1}{4} \times K \times \epsilon \times BV = \frac{1}{4} \times 2 \times 2 \times \epsilon = \epsilon \quad (1)$$

e : 出力電圧 K : ゲージ率 ϵ : ひずみ BV : ブリッジ電圧

試験で使用した動ひずみ測定器（以下 アンプ）AS1202（NEC 三栄）の仕様に基づき, 感度微調整ツマミ（VAR）の最大設定で減衰器ツマミ（ATT）=1 の場合, 出力電圧は $10 \text{ V}/250 \times 10^{-6} \epsilon$ となる. ATT=1/10 の場合, 出力電圧は $10 \text{ V}/2500 \mu\epsilon = 8 \text{ V}/2000 \mu\epsilon$ となる. つまり, 定格容量である 2.5 kN の荷重がロードセルにかかった時, アンプの出力は 8 V となる. これを整理すると荷重は 312.5 N/V で換算できる. 以下の計算では, この換算値を基にして荷重の計算を行った. 校正値（CAL）は, $800 \mu\epsilon$ の入力で出力電圧が 3.2 V となるように設定した. また, ローパスフィルタ切替スイッチ（FILTER）は 30 Hz に設定した. 参考として図 6 にアンプの画像を添付する.

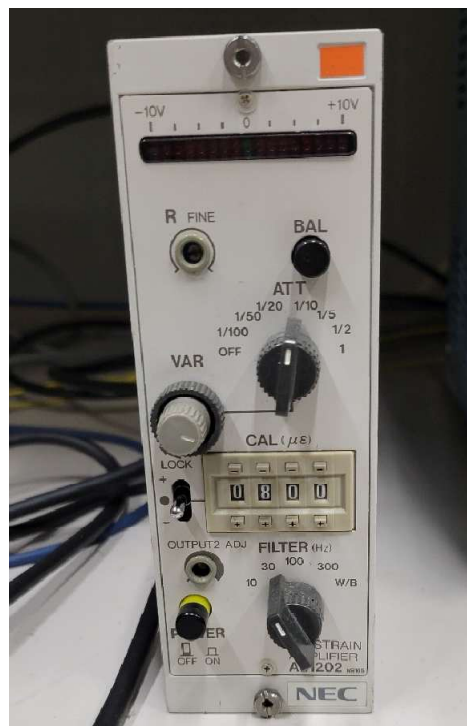


図 6 アンプの設定 参考画像

3. 材料および試験片

3.1 材料

SLJ 試験片の被着体として板厚 1.5 mm のアルミニウム合金 A2017-T3 を用いた. 砂田ら [10]の先行研

究を参照し，その機械的特性を表 1 に示す．

接着剤には熱硬化性を持つ 2 液型エポキシ樹脂接着剤の Araldite2015 を使用した．使用した Araldite2015 は図 7 に示した主剤と硬化剤の 2 液を混合して用いる．

表 1 A2017 の機械的特性

ヤング率	68.9[GPa]
ポアソン比	0.35
耐力	298[MPa]
引張強さ	396[MPa]
伸び	19.5[%]



図 7 Araldite2015 の主剤(2015/A)と硬化剤(2015/B)

3.2 試験片

SLJ 試験片の模式図を図 8 に示す．

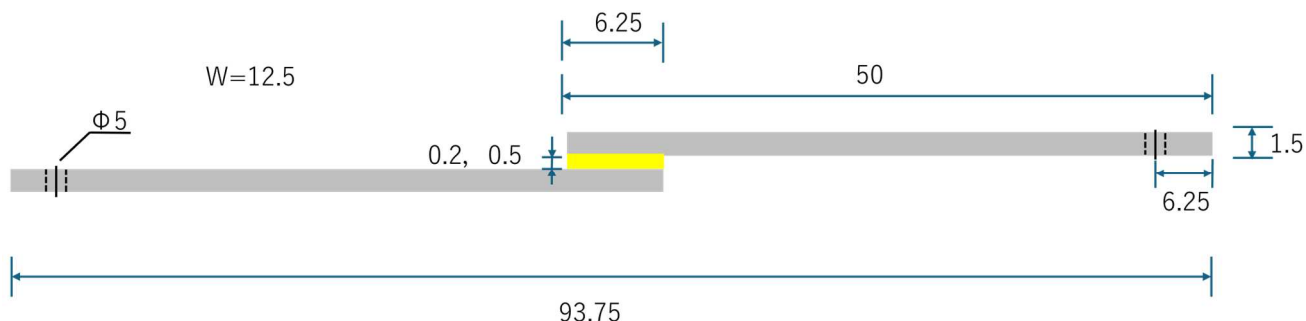


図 8 SLJ 試験片の寸法 (mm)

SLJ 試験片の作成方法を以下に示す．

(1) 材料の切り出し

アルミニウム合金 A2017-T3 板を，新ダイワ工業株式会社製ハンドソーRB100Y を用いて，所定の寸法に切り代を加えた大きさに切り出した．

(2) 被着体の加工

切り出した材料に対し，コスモキカイ製フライス盤 FK-800 を用いて切削加工を施し， 50×12.5 mm の被着体を作製した．

(3) 固定用穴の加工

被着体はクリープ試験機にピンで固定するため、穴開け治具を用い、偏心に注意しつつ、芝浦製作所製ボール盤 DPN-13 で直径 5 mm の穴を開けた。

(4) 接着面の準備

作製した試験片の接着面（端部 6.25×12.5 mm）を#1000 の耐水ペーパーで研磨し、アセトンを用いて研磨部を十分に脱脂した。

(5) 接着剤の準備

Araldite2015 の主剤と硬化剤を重量比 1:1 で混合し、攪拌機 TORNADO SM-103（アズワン株式会社）を用いて 5 分間、300 rpm の条件で攪拌した。その後、脱泡用デシケーターRVD-250(アズワン株式会社)と真空ポンプ G-50SA（ULVAC 機工株式会社）を用いて、15 分間真空脱泡を行った。

(6) 接着準備

接着治具の表面にシリコーン系金型離型材（スリーボンド）を振りかけた。その後、接着治具に試験片をセットした。接着層厚さを制御するためにテフロンシートを使用した（図 9）。

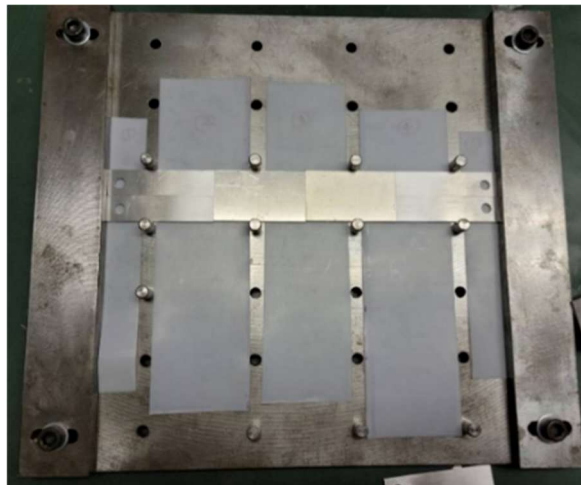


図 9 接着治具セット状態

(7) 硬化

接着治具と鉄板で試験片を挟み、その上部におもりを置いた。乾燥炉 Hot Air Rapid Drying Oven（ISUZU 製）を用い、硬化条件は 70℃で 1 時間保持した。

(8) 仕上げ

硬化後、乾燥炉から試験片を取り出し、接着時の治具やテフロンシートを取り外した。さらに、試験片の被着体からはみ出た余分な接着剤をスクレーパーやカッターナイフを用いて取り除いた。

(9) 寸法測定

接着厚さはマイクロメーターで接着部の左、中央、右で測定し、各測定値からアルミニウム板の厚さを引いた値の平均を算出した。

(10) 保管

試験に使用する試験片はデシケーター内で 48 時間以上保管した後に使用した。
完成した試験片を図 10 に示す。



図 10 完成した試験片

4. 実験方法

- (1) アンプの電源を入れ、2.2 項で示した方法で設定を行った。次に、パソコンの電源を入れ、データロガーソフトを起動した。
- (2) ロードセルに荷重がかかっていない状態でアンプのオートバランス押しボタンスイッチ (BAL) を押した。初期状態の電圧を記録した。
- (3) クリープ試験で所定の荷重に相当するおもりの重さを決定するため、クリープ試験機の試験片設置部に試験片の形状に加工したアルミニウム版を仮に設置した。おもりを大まかに乗せた後、データロガーが出力する電圧を確認し、所定の電圧になるようにおもりの重さを調整した。
- (4) マントルヒーターを使用する場合、温度指示調節計の電源を入れ、所定の温度になるまで待機した。
- (5) ジャッキを 200 N/min の速度でゆっくり下げた。
- (6) ジャッキからおもりが完全に浮いたタイミングで計測を開始した。
- (7) 48 時間経過後も破断しなかった場合は、そこで試験を打ち切った。試験はそれぞれの条件で少なくとも 3 本行った。

5. 実験結果および考察

5.1 実験室環境下でのクリープ試験

5.1.1 平均せん断応力-破断時間の関係

実験室環境下でのクリープ試験の結果として図 11 に平均せん断応力 τ_{ave} と破断時間 T_f の関係を示す。破断時間が短い領域 (10^3 s 以下の領域) では、材料が高い応力に耐え切れず、接着厚さに依存せず、破壊が生じている。48 時間を経過しても未破断であった試験データは実験した全ての応力範囲に存在した。

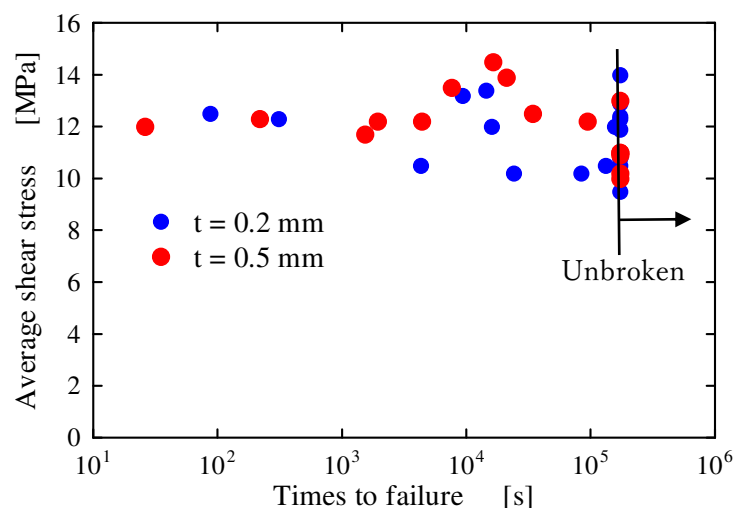


図 11 実験室環境下での平均せん断応力-破断時間の関係

5.1.2 接着厚さ-破断時間の関係

接着厚さをテフロンシートで制御したが実際には多少のばらつきがみられた。そこで、マイクロメーターを用いて測定した接着厚さと破断時間との関係を調べた。 $\tau_{ave}=12$ MPa における接着厚さと同一応力で試験を行った時の破断時間の関係を図 12 に示す。接着厚さと破断時間の関係には相関が見られないが、接着厚さが 0.2 mm 以下になると $\tau_{ave}=12$ MPa の応力条件下では 48 時間以内に破断は生じない。

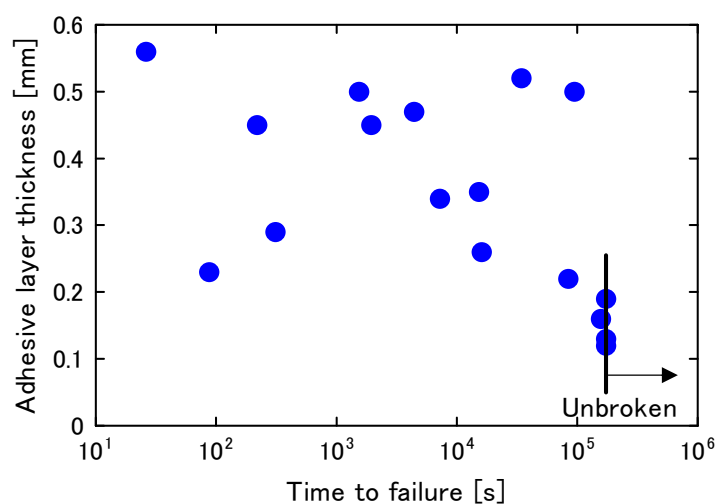


図 12 接着厚さ-破断時間の関係

5.1.3 クリープ変形

$\tau_{ave}=12$ MPa, $t=0.2$ mm における試験中の試験片伸びと正規化した時間の関係を図 13 に示す。横軸は、試験開始からの時間を破断した時間 T_f で正規化したものであり、縦軸は試験片の伸びを表す。破断時間が比較的長い $T_f = 14.4 \times 10^3$ s の場合は典型的なクリープひずみの挙動，すなわち遷移領域，定常領域，加

速領域が認められる。一方、破断時間が短い $T_f=310\text{ s}$ の場合これらの領域が不明瞭となり、クリープ変形は単調増加している。これは短寿命の場合、高応力により、遷移領域や定常領域を経ずに変形が進行し、破断に至っているためと考えられる。破断時の変形量は、 T_f の長さに関わらずおおむね一定であり、約 0.06 mm であった。

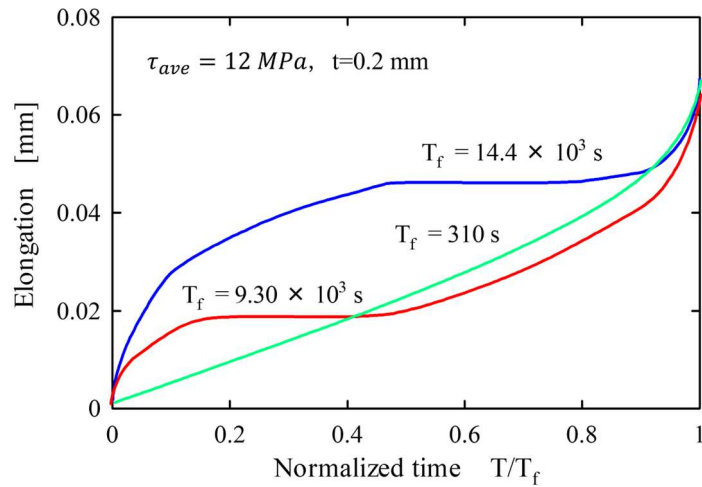


図 13 $\tau_{ave} = 12\text{ MPa}$, $t=0.2\text{ mm}$ における試験中の試験片伸びと標準化した時間の関係

$\tau_{ave}=12\text{ MPa}$, $t=0.5\text{ mm}$ における試験中の試験片伸びと標準化した時間の関係を図 14 に示す。 $t=0.5\text{ mm}$ の場合は、 T_f の長短に関わらず 3つの領域に分けることが可能であった。 $t=0.2\text{ mm}$ の場合と比較して $t=0.5\text{ mm}$ は、短寿命の条件においてもクリープ変形の逆 S 字挙動が明確に認識できる結果となった。また T_f の長い場合、破断時の変形量も大きくなることが分かった。変形量の最大値は $t=0.2\text{ mm}$ の場合の約 2 倍となった。

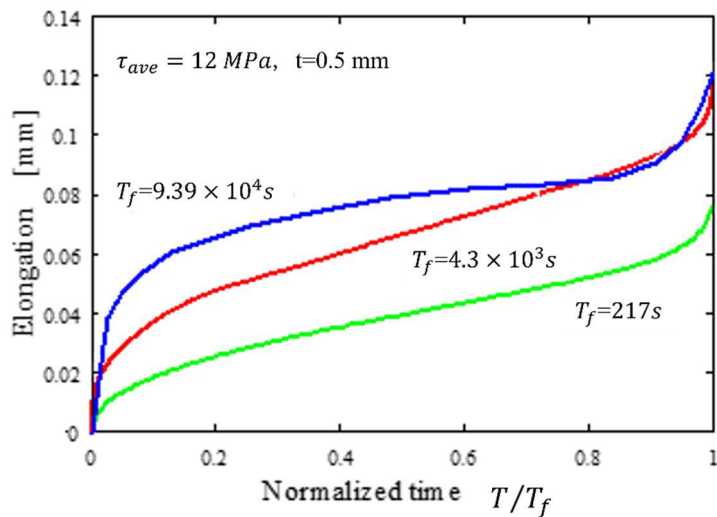


図 14 $\tau_{ave} = 12\text{ MPa}$, $t=0.5\text{ mm}$ における試験中の試験片伸びと標準化した時間の関係

5.1.4 実験室環境の影響

クリープ試験は長時間にわたるため、実験室環境における昼夜の気温変化が試験結果に影響を与える可能性がある。特に初期のクリープ試験機では変位計をこの腕の先端部に設置していたため、試験機全体の変形を含んでいた。そのため図 15 に示すように環境温度と変位の間に強い相関が生じた。改良型の試験機では図 5 に示す専用治具を用いることにより、試験片のみの変位を測定できるようにした。実験室温度は、温度計 RX-350TH（アズワン株式会社）を用いて測定した。

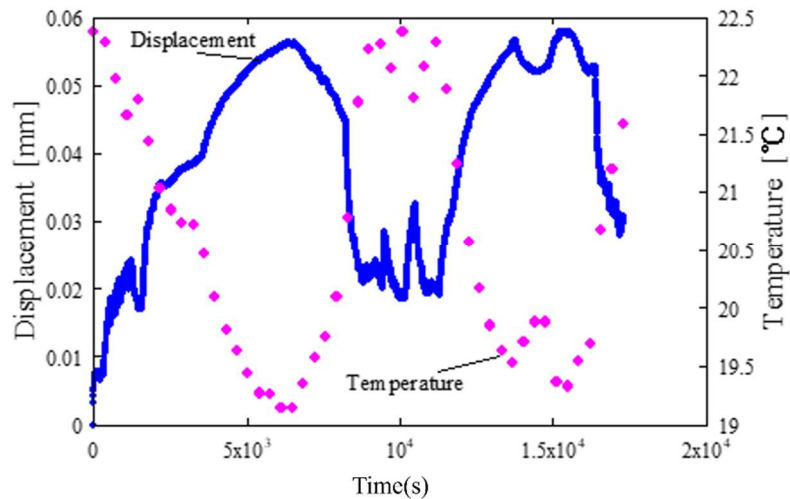


図 15 環境温度-変位の関係

5.2 環境温度を制御したクリープ試験

5.1.3 項より、環境温度が接着剤のクリープ挙動に影響を与えることが確認された。このため、環境温度を一定に保つ目的で、試験片の周囲にマントルヒーター（図 16）を設置し、温度指示調節計（DSM5-020P013-631I1-0060）を用いて試験片周辺の温度を制御した。試験温度は、一般的な室温環境に相当する 25°C、Araldite2015 のガラス転位温度（87°C） [11]の半分にあたる 44°C、3/4 にあたる 66°C、および 25°C と 44°C の中間値である 35°C の 4 条件で設定した。



図 16 マントルヒーター



図 17 温度指示調節計(DSM5-020P013-63111-0060)

5.2.1 負荷応力と破断時間の関係

図 18 に荷重を接着面積で除した接着部平均せん断応力 τ_a と破断時間 T_f の関係を示す。同一温度条件下では、平均せん断応力が増加するにつれて破断時間が短くなる傾向が確認された。66℃においては、2 MPa 以下というわずかな応力でも、全ての試験片が 48 時間未満で破断した。また、各温度帯における即破断が生じる下限応力値と、48 時間以内に破断が生じない上限応力値の幅を見ると、25℃及び 35℃では約 4 MPa であるのに対し、44℃では約 6 MPa と広がっている。この結果は、44℃では接着剤の剛性が低下し、接着端部での弾性的な応力集中が緩和されたため、高応力下でも破断までの時間が伸びたと考えられる。

さらに、破壊形態については界面破壊が支配的であった。図 19 に破面観察の例を示す。ほとんどの試験片において、温度条件や破断時間の長短に関わらず、破壊形態は界面破壊であった。接着剤自体のクリープ変形は進行するが破壊は界面で生じていることが分かった。

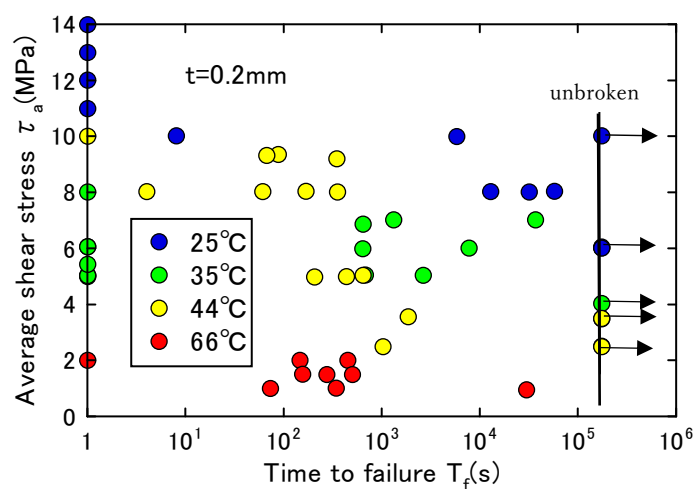
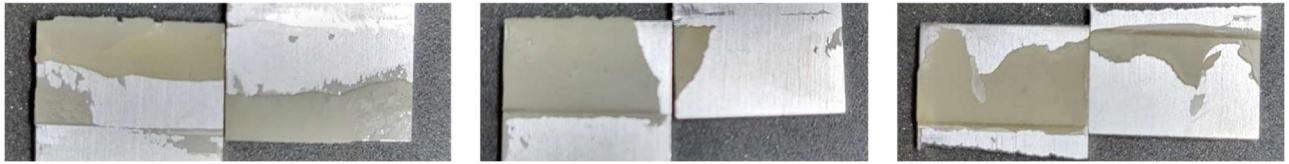


図 18 平均せん断応力-破断時間の関係



(a)25°C, $T_f=31768$ s

(b)44°C, $T_f=348$ s

(c)66°C, $T_f=259$ s

図 19 破面写真

6. クリープ変形シミュレーション

本研究ではクリープシミュレーションに Burgers モデル（図 3）を使用した。Burgers モデルの構成方程式は以下の式（2）で表される。

$$\gamma(t) = \frac{\tau_0}{E_1} + \frac{\tau_0}{c_1} t + \frac{\tau_0}{E_2} \left[1 - \exp\left(-\frac{E_2}{c_2} t\right) \right] \quad (2)$$

ここで $\gamma(t)$ はせん断ひずみ、 E_1 および E_2 はばね要素の弾性率、 c_1 および c_2 はダッシュポット要素の粘性率、 τ_0 は平均せん断応力、 t は時間である。

式（2）の第一項は弾性変形を表し、応力を受けた瞬間に発生する弾性的な変形を表す。ただし本実験においては弾性変形の領域を捉えることができないため第一項は除外している。第 2 項は粘性変形を表し、時間 t に比例して変形が増大する特性を表現する。第 3 項では遅延弾性変形を表し、変形が徐々に進行し、最終的に一定になる挙動を表現する。

6.1 パラメータの決定

Burgers 方程式（式（2））のパラメータは、実験データから算出した。パラメータの算出手順を以下に示す。

1. 実験データの整理

実験データ（変位と時間）を Excel シートに整理した（図 20）。

2. 残差平方和の算出

実験データの実測値を y_i 、シミュレーションで計算された予測値 $\tilde{y}_i$ （初期値）、その残差を e_i とする。

$$e_i = y_i - \tilde{y}_i \quad (3)$$

データの総数を n とすると残差平方和は

$$RSS = \sum_{i=1}^n e_i^2 = \sum_{i=1}^n (y_i - \tilde{y}_i)^2 \quad (4)$$

3. 最適パラメータの探索

Excel のソルバー機能を使用し、一般化簡約勾配法を用いて残差平方和が最小となるようにシミュレーションパラメータを最適化した。

4. 初期値の選定と試行

シミュレーションパラメータの初期値は最適化結果に影響を与えるため、複数の初期値を試行し、その中から、実験値にもっともよく追従する結果が得られた初期値を選択した。

σ	8000000				
E1	2.82E+09				
E2	6.81E+13				
η_1	1.09E+13				
η_2	500				
	時間	元	simu	残差^2	和
	0	0	0.002837	8.05E-06	0.277929
	1	4E-05	0.002838	7.83E-06	
	2	0.000154	0.002838	7.2E-06	
	3	0.000246	0.002839	6.73E-06	
	4	0.000669	0.00284	4.71E-06	
	5	0.000823	0.002841	4.07E-06	
	6	0.00084	0.002841	4.01E-06	
	7	0.000857	0.002842	3.94E-06	
	8	0.000903	0.002843	3.76E-06	
	9	0.000931	0.002844	3.66E-06	
	10	0.000989	0.002844	3.44E-06	
	11	0.000994	0.002845	3.43E-06	
	12	0.001023	0.002846	3.32E-06	
	...	...	...	...	...

図 20 Excel シート

6.2 シミュレーション結果

行ったすべてのシミュレーションパターンを表 2 に示す。シミュレーションは、環境温度、応力条件を変化させた複数のパターンで実施した。それぞれのパターンについて結果を比較することで挙動の特徴を評価した。

表 2 シミュレーションパターン

T(試験温度)	τ (平均せん断応力)	E_2 (Pa)	η_1 (Pa · s)	η_2 (Pa · s)
35°C	5MPa	1.14×10^7	1.89×10^{10}	3.99×10^9
	7MPa	1.53×10^9	6.74×10^{10}	1.56×10^{10}
44°C	2.5MPa	1.98×10^7	5.93×10^{10}	5.75×10^9
	9MPa	1.07×10^9	8.97×10^9	1.46×10^{10}
66°C	1MPa	2.05×10^7	5.13×10^9	4.68×10^9
	2MPa	9.20×10^7	3.89×10^9	1.56×10^9

環境温度 35°Cで行った 5 MPa の実験データを基にして Burgers モデルのパラメータを計算した。得られたパラメータ (E_1 , E_2 , c_1 , c_2) により、せん断応力を 6 MPa と 7 MPa に変更してひずみ変化を計算した。

(図 21)。その結果、7 MPa ではせん断応力を変更しても実験データと良好な相関を示した。一方、6 MPa の場合には、シミュレーション結果が実験データと若干のずれを示す結果となった。

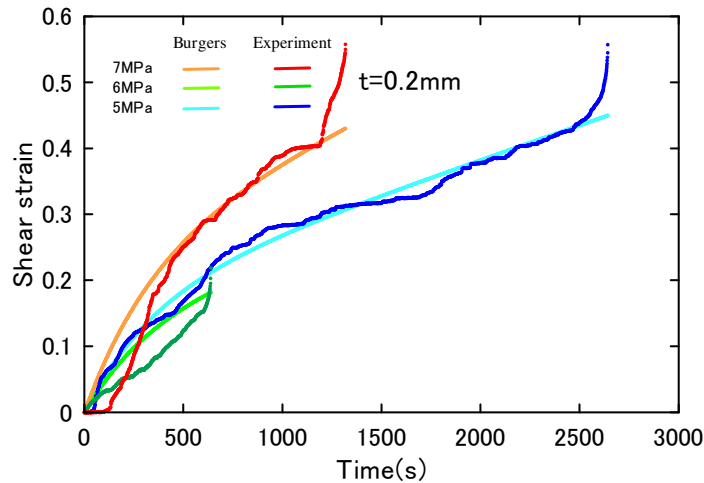


図 21 35℃条件下における 5 MPa 実験データを基にした 6 MPa・7 MPa シミュレーションとの比較

環境温度 35℃で行った 7 MPa の実験データを基にして Burgers モデルのパラメータを計算した。得られたパラメータ (E_1 , E_2 , c_1 , c_2) により、せん断応力を 6MPa と 5MPa に変更してシミュレーションを実施した (図 22)。比較的良好な相関を示したものの 5 MPa のデータにおいては 10^3 s以降でシミュレーション結果が実験値から徐々に乖離し、追従性が低下した。これは、35℃という比較的低温の環境では、材料の粘性が高いことに加え、低応力条件 (5 MPa) であるため、シミュレーション結果よりも実験値の変形が小さくなったと考えられる。

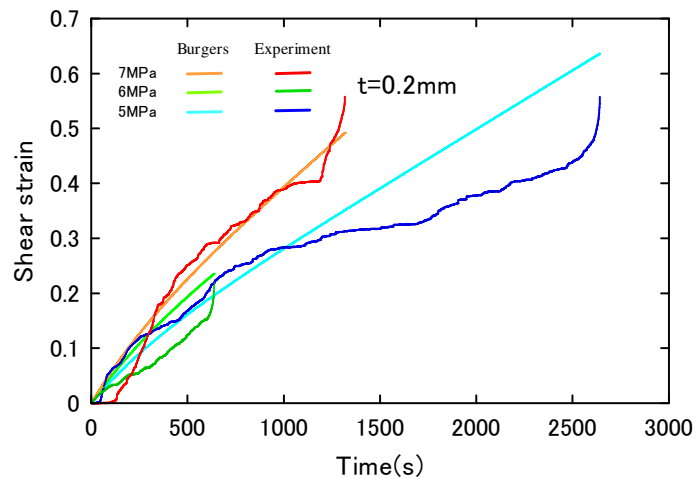


図 22 35℃条件下における 7 MPa 実験データを基にした 6 MPa・5 MPa シミュレーションとの比較

環境温度 44℃で行った 2.5 MPa の実験データを基にして Burgers モデルのパラメータを計算した。得られたパラメータ (E_1 , E_2 , c_1 , c_2) により、せん断応力を 5 MPa と 9 MPa に変更してシミュレーションを実施した (図 23)。Burgers モデルはややひずみを過大評価したが、35℃のシミュレーションと比較して応力差が大きいにもかかわらず、おおむね良好な相関を示した。

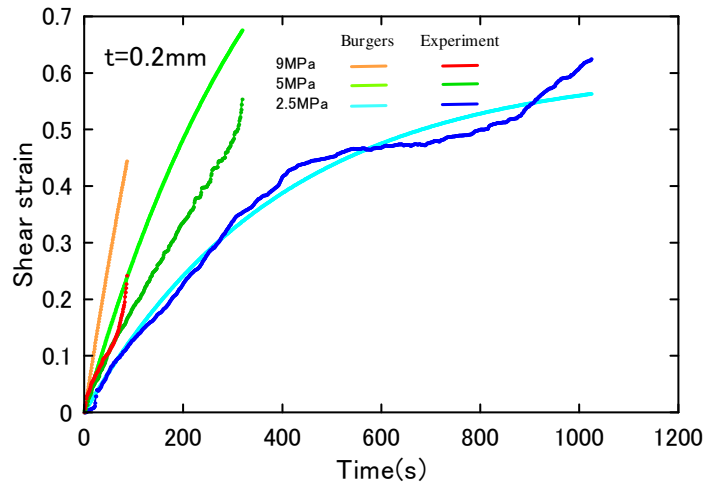


図 23 44°C条件下における 2.5 MPa 実験データを基にした 5 MPa・9 MPa シミュレーションとの比較

環境温度 44°Cで行った 9 MPa の実験データを基にして Burgers モデルのパラメータを計算した。得られたパラメータ (E_1 , E_2 , c_1 , c_2) により、せん断応力のパラメータのみを 5 MPa と 2.5 MPa に変更してシミュレーションを実施した (図 24)。2.5 MPa のデータで実験値とシミュレーション値の乖離が顕著となった。図 22 でも低応力条件で乖離が起こる同様の傾向がみられた。高応力のデータは破断時間が短く、遅延弾性変形の挙動がパラメータに反映されにくいいため、クリープ変形の定常状態以降で実験データとシミュレーションの乖離が起こると考えられる。

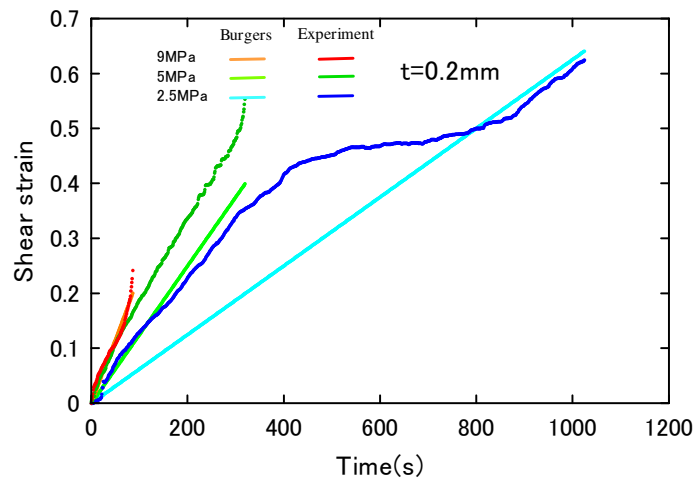


図 24 44°C条件下における 9 MPa 実験データを基にした 5 MPa・2.5 MPa シミュレーションとの比較

環境温度 66°Cで行った 1 MPa の実験データを基にして Burgers モデルのパラメータを計算した。得られたパラメータ (E_1 , E_2 , c_1 , c_2) により、せん断応力を 1.5 MPa と 2 MPa に変更してシミュレーションを実施した (図 25)。全応力条件において高温でも良好な相関を示した。

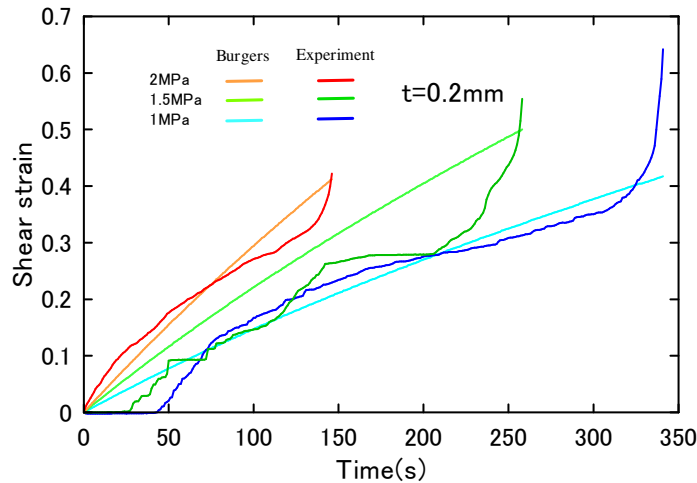


図 25 66°C条件下における 1 MPa 実験データを基にした 1.5 MPa・2 MPa シミュレーションとの比較

環境温度 66°Cで行った 2 MPa の実験データを基にして Burgers モデルのパラメータを計算した。得られたパラメータ (E_1 , E_2 , c_1 , c_2) により、せん断応力を 1.5 MPa と 1 MPa に変更してシミュレーションを実施した (図 26)。各応力条件で良好な相関を示した。低応力条件から高応力条件の再現(図 25) および高応力から低応力条件の再現 (図 26) の双方向のシミュレーションで良好な相関を示したことは Burgers モデルが高温条件下におけるクリープ応答を本質的に捉えていることを示している。

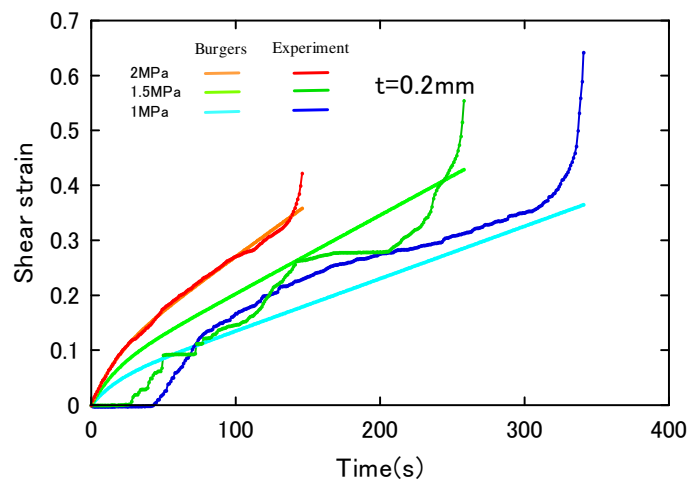


図 26 66°C条件下における 2 MPa 実験データを基にした 1.5 MPa・1 MPa シミュレーションとの比較

異なる温度においてもほぼ全てのデータでせん断ひずみが 0.3 付近で加速クリープが進行し始める傾向がみられた。また、図 13, 図 14 から接着厚さによって破断時の変形量が一定に収束することが示唆される。したがって、1 回のクリープ試験とクリープシミュレーションにより、変形挙動および破断時の変形量が把握できれば異なる応力条件下でも破断までの時間を概ね予測できると考えられる。これにより、コストや時間がかかる実験ではなく、シミュレーションによって必要な試験条件を絞り込み、効率的な評価を行うことができる。

7. ガラス転移温度

Araldite2015 のガラス転移温度 (T_g) を測定した。樹脂には弾性率が急激に変化する温度が存在し、これをガラス転移温度と呼ぶ。ガラス転移温度以下では樹脂は硬いガラス状態となり、ガラス転移温度以上では軟らかいゴム状態となる。接着強度も温度によって大きく影響を受け、せん断強度や引張強度は低温では高く、高温では低下する。熱硬化性の接着剤の場合は、ガラス転移温度を境にしてせん断強度が大きく変わることが知られている。剥離強度や衝撃強度は軟らかいほうが強くなるので、低温では低く、高温では強くなる [12]。

7.1 サンプル作製および実験方法

1. 接着剤の準備

Araldite2015 の主剤と硬化剤を重量比 1:1 で混合し、攪拌機 TORNADO SM-103 (アズワン株式会社) を用いて 5 分間、300 rpm の条件で攪拌した。その後、脱泡用デシケーター RVD-250 (アズワン株式会社) と真空ポンプ G-50SA (ULVAC 機工株式会社) を用いて、15 分間真空脱泡を行った。

2. 成形用型への注入

図 27 に示す型に Araldite2015 を気泡が入らないように丁寧に流し込み、テフロンシートで蓋をした上からおもりを置いた。

3. 硬化

乾燥炉 Hot Air Rapid Drying Oven (ISUZU 製) を用い、硬化条件を 70°C で 1 時間保持した。

4. 成形

硬化後、サンプルを型から丁寧に剥がし、カッターとサンドペーパーを用いて 20 mm×5 mm×1 mm の板状に成形した。

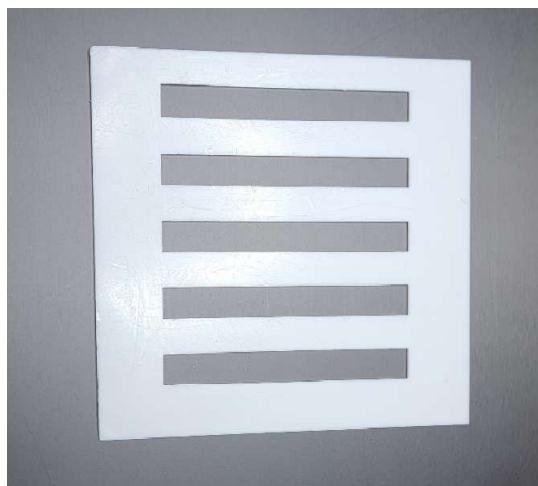


図 27 成形用型

作製したサンプルを図 28 に示す。測定の際にはマテリアルポケットを使用した。

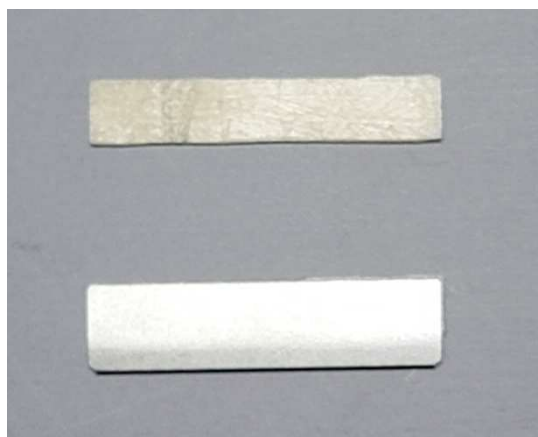


図 28 サンプルとマテリアルポケット

本研究におけるガラス転移温度の測定に際しては，高知県工業技術センター様にご協力を賜った．測定に使用した動的粘弾性測定装置（DMA）の外観を図 29 に示す．



図 29 動的粘弾性測定装置

動的粘弾性測定装置は試料に時間によって変化する（振動）する応力またはひずみを与えて，それによって発生するひずみまたは応力を測定することにより，試料の力学的な性質を測定する方法である [13]. ガラス転移温度の測定には，試料に与えた応力とそれに応じて発生するひずみの位相差(δ)を基にして計算される比率で，以下の式 (4) で表される $\tan \delta$ を測定し， $\tan \delta$ が最大となる温度を，材料のガラス転移温度とする．

$$\tan \delta = \frac{E'' \text{ (損失弾性率)}}{E' \text{ (貯蔵弾性率)}} \quad (4)$$

測定条件を図 30 に示す。

Figure 30 displays the measurement conditions across three tabs: Sample Information, Initial Conditions, and Program.

Sample Information Tab:

- メソッドファイル名: 241004_Hirose_PET_MaterialPocket.dm8m
- サンプルID: Araldite_005_materialpocketmm.dm8d
- 名前を付けて保存するデータ: Araldite_005_materialpocketmm.dm8d
- サンプルID(S):
- オペレータID(O):
- コメント(C): マテリアルポケット
- ディレクトリ: C:\Program Files\PerkinE
- ファイル名(L): 005_materialpocketmm.d
- 参照(R):
- サンプルの寸法を入力
- 測定システム/形状: シングルカンチレバー - 長方形
- クランプ質量: 5.659 g
- 長さ: 12.820 mm
- 幅: 7.390 mm
- 太さ: 1.600 mm
- 直径: 9.050 mm

Initial Conditions Tab:

- メソッドファイル名: 241004_Hirose_PET_MaterialPocket.dm8m
- サンプルID: Araldite_005_materialpocketmm.dm8d
- 名前を付けて保存するデータ: Araldite_005_materialpocketmm.dm8d
- 実行前操作 - オプションの右マウスボタンをクリック
- 測定開始
- アクションの即時発生
- ガスの切換え先: 窒素 20.0 ml/分
- アクションの即時発生
- 初期値の設定
- 温度: 25.00 °C
- 周波数: 1.000 Hz
- 耐力マルチプライアー: 1.5
- ドライブ制御モード: 自動長力
- 静的耐力: 1.45 N
- 動的耐力: 2.00 N
- ひずみ: 0.050 mm
- ゼロ
- 変位:

Program Tab:

- メソッドファイル名: 241004_Hirose_PET_MaterialPocket.dm8m
- サンプルID: Araldite_005_materialpocketmm.dm8d
- 名前を付けて保存するデータ: Araldite_005_materialpocketmm.dm8d
- メソッドステップ
- 初期温度(P): 25.00 °C
- ステップを追加(A):
- ステップを挿入(I):
- 項目を削除(D):
- 操作を追加
- イベントを追加
- 終了条件(C):
- 編集 ステップ 1) 温度スキャン
- 開始: 25.00 °C
- 終了(Q): 150.00 °C
- 速度(R): 5.00 °C/分
- 周波数(Hz): 1.000
- ひずみ(mm): 0.050
- 設定:
- ステップ1 詳細
- データサンプリングオプション: 取り込み間隔(秒)
- 値の選択: 1.0

図 30 測定条件

7.2 測定結果

測定結果を図 31 に示す。tan δ のピークは 91.2°C であり、ハンツマン社の公表値 ($T_g=87^\circ\text{C}$) [11] とは 4.2°C の差異が認められた。しかし、ハンツマン社の測定では硬化条件を 80°C、1 時間とし、せん断弾性率を用いて評価した結果であることを考慮すると、おおむね一致していると言える。

35°C での tan δ の値は 0.023、44°C では 0.024、66°C では 0.036 であった。35°C および 44°C では tan δ が 0.023~0.024 と比較的 low、この温度域では接着剤の剛性がまだ保たれている。一方、66°C では tan δ が増加しており、実際に 66°C では 2 MPa 以下でも 48 時間未満で破断していることから、接着剤の剛性が低下していることが分かる。しかし、tan δ の全体的な傾向を見ると、66°C はピークに達しているわけではなく、上昇の初期段階にある。このため接着接合を設計する際には、ガラス転移温度以下であっても環境温度の影響を十分に考慮する必要があると考える。

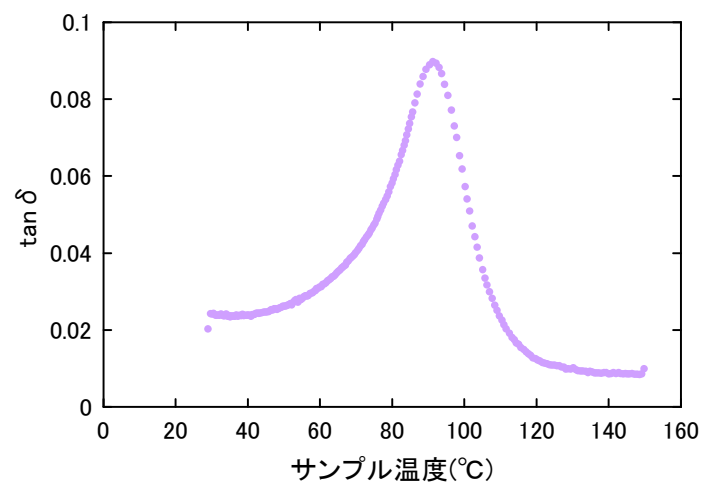


図 31 DMA で測定した $\tan \delta$

8. 結言

本研究では、エポキシ樹脂接着剤による単純重ね合わせ継手のクリープ特性を調査した。その結果、以下の結論が得られた。

- (1) 接着厚さ 0.2 mm および 0.5 mm を比較すると、接着厚さと破断時間との間に明瞭な依存性は見られなかった。
- (2) 高応力や高温といった接着剤にとって厳しい条件では、クリープ変形は逆 S 字挙動を示さず、単調増加する挙動が確認された。
- (3) 温度を制御したクリープ試験の結果、高温になるほど破断時間が短くなった。44°Cの試験はほかの温度帯の試験と比べて応力幅が広くなった。また、破壊形態はほとんどの場合、界面破壊であった。
- (4) Burgers モデルを用いて SLJ 試験片の各温度条件下におけるクリープ挙動のシミュレーションを行った。低応力条件から高応力条件へのシミュレーションは良好な相関を示した。高応力条件から低応力条件のシミュレーションでは定常クリープ領域を正確に再現することは難しかった。
- (5) 動的粘弾性測定装置 (DMA) を用いて Araldite2015 のガラス転移温度を測定した結果、91.2°Cであった。60°C付近から $\tan \delta$ が増加し、実際に 66°Cでは低応力でも短時間で破断していることから、剛性が低下していると考えられる。ただし、66°Cはガラス転移温度の立ち上がり段階であるため、接着接合の設計にはガラス転移温度以下であっても環境温度を考慮する必要があると考える。

文献目録

- [1] United Nations, “Transforming our world: the 2030 Agenda for Sustainable Development,” 著: *Seventieth session*, 2015.
- [2] SabineChristopher, “Ocean Uptake of Atmospheric CO₂ and its Impact on Marine Ecosystems”.
- [3] 高橋考幸, “航空機に適用されるマルチマテリアル化技術,” 軽金属 第 72 巻 第 4 号, 2022.
- [4] R. C. N. E. S. Assis, “Numerical and experimental analysis of bonded joints with combined,” International Journal of Adhesion and Adhesives, 2019.
- [5] A. M. A. M. M. R. M. G. A. Mariam M, “Tensile and fatigue properties of single lap joints of aluminum alloy/glass fiber reinforced composites fabricated with different joining methods,” Composite Structures 2018.
- [6] C. d. Zeeuwa, “Creep behaviour of steel bonded joints under hygrothermal conditions,” International Journal of Adhesion and Adhesives, 2019.
- [7] R. S. A. Khoramishad, “Creep behavior of polymeric adhesive joints exposed to different environmental conditions,” Society of Plastics Engineers, 2020.
- [8] 上野天, “エポキシ樹脂接着剤による単純重ね合わせ継手のクリープ特性,” 2023.
- [9] C.-W. K. Y.-P. H. Y.-Y. W. H.-J. S. C.-W. Feng, “Modeling of long-term creep behavior of structural epoxy adhesives,” International Journal of Adhesion and Adhesives Volume 25, 2005.
- [10] 砂田敬太, “CFRP/アルミニウム合金単純重ね合わせ継手の強度に及ぼす CFRP 積層構成の影響,” 2021.
- [11] “Araldite® 2015 Adhesive, ” [オ ン ラ イ ン]. Available: <https://docs.rs-online.com/47fc/A700000006492752.pdf>. [アクセス日: 24 1 2025].
- [12] 原賀康介, 高信頼性を引き出す接着設計技術, 日刊工業新聞社, 2013.
- [13] 西山佳利, “固体ポリマーの粘弾性評価,” 「ネットワークポリマー」 Vol.32 No.6, 2011.
- [14] 情報技術協会, 樹脂と金属の接着・接合技術, 日本印刷, 2012, p. p8.

謝辞

おわりに本研究の遂行にあたり多大なご指導とご助言を賜りました楠川量啓教授に深甚なる感謝の意を表します。また、日ごろより助言や協力を頂いた同期の朝倉氏，竹又氏，田中氏をはじめ，材料強度学研究室の皆さまにも心より感謝申し上げます。さらに，ガラス転移温度の測定にもご協力いただいた高知県工業技術センター様にも，深く感謝いたします。