

特集：マルチマテリアルの接合技術

## マルチマテリアルにおける接着とその強度評価

国立研究開発法人 物質・材料研究機構  
内藤 公喜

### 1. はじめに

輸送機等の軽量化技術として、材料を適材適所に使うマルチマテリアル化が進められている。マルチマテリアル化では、接合がキーテクノロジーとなる。一方、材質が大きく異なる材料間の接合手法や接合構造物の安全性を保証する上で欠かせない接合部の性能評価など、克服すべき数多くの技術課題が残されている。金属系のマルチマテリアルでは、従来から用いられてきた信頼性の高い溶接を適用することが可能である。一方、繊維強化プラスチック（FRP：fiber reinforced plastic）等の樹脂材料が1つの材料側として用いられた場合、従来の溶接ではマルチマテリアル化は困難である。樹脂材料には熱硬化性と熱可塑性樹脂が用いられる。熱可塑性樹脂では、樹脂がある温度で溶けて元に戻る特徴を生かしたマルチマテリアル化として溶接に近い溶着の活用も考えられるが、熱硬化性樹脂では、マルチマテリアル化として溶着を用いることができず、接着剤を用いた接合（接着接合）が有効であると考えられる<sup>2)3)</sup>。また、接着接合は、上記の金属系のマルチマテリアルおよび熱可塑性樹脂が1つの材料側として用いられた場合でも適用可能である。多くの材料メーカーが様々な接着剤を開発・市販しているが、強度に関する知見が少ないことから、どの接合部にどの接着剤を用いれば良いのか？という課題がユーザを悩ませている（図1参照）。

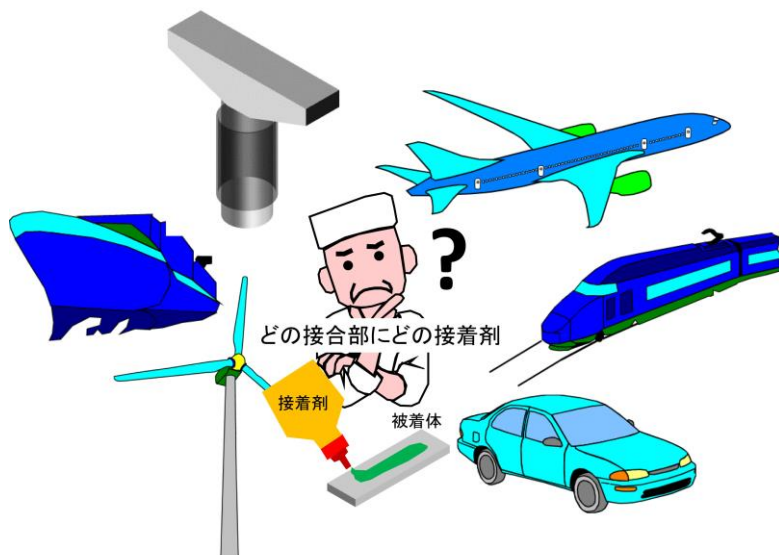


図1 接着剤の選定の難しさ、どの接合部にどの接着剤？

また、接着接合では、強度に関する知見が少ないことから、信頼性に課題があると言われている。接着接合では、強度評価が重要である。

本稿では、市販接着剤を用いた接着接合において、接着接合部の材料力学的な強度評価と破壊力学的な強度評価について述べる。

## 2. 単純重ね合わせ継手

接着接合部の材料力学的な強度評価の基礎的な検討で、よく用いられる接着接合継手に単純重ね合わせ継手<sup>4) -7)</sup> (SLJ: single lap joints) がある。接着接合継手に対してどれくらいの力を加えると、どのくらいの応力が発生し、接着接合継手が破壊するかを計測する。接着接合継手が持つ強さを定量化する方法である。本継手のメリットは接着接合部が1つであり試験片の作製が容易なこと、同種および異種材料の被着体を用いた接着接合検討ができること等がある。デメリットは接合端部に応力集中を伴うはく離およびせん断応力が作用すること、被着体や接着剤の種類に応じて応力集中の程度も異なること等がある。メリット/デメリットはあるが多くのデータが存在する接着接合部の材料力学的な強度評価であり、被着体や接着剤の相対比較をするのにも有効な強度評価指標の1つである。そこで、本研究でも市販エポキシ、アクリル、ウレタンおよびシリコン接着剤を用いた SLJ での引張せん断試験を実施した。被着体に板厚 3 mm の一般構造用炭素鋼 SS400 を用いた試験結果を示す。また、被着体の表面状態を統一することを目的に、接着接合を行う領域にサンドブラスト処理を施し、その後アセトン脱脂を行った。図 2 に SLJ の試験片形状と荷重負荷方向を示す。

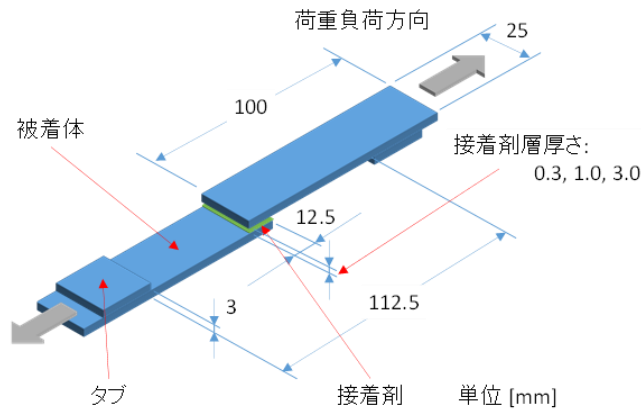


図 2 SLJ 試験片形状と荷重負荷方向<sup>1)</sup>

2 枚の被着体端部 12.5 mm を重ね合わせ、その間を接着した SLJ を用いた。せん断強度に及ぼす接着剤層厚さの影響を検討するため、0.3、1.0、3.0 mm 目標の層厚さを有する 3 種類の接着剤 SLJ 試験片を作製した。

静的引張せん断試験には島津製作所製オートグラフ AG-X/R (50 kN) を用い、変位制御で変位速度 1 mm/min にて実施した。図 3 にエポキシ、アクリル、ウレタンおよびシリコン接着剤の公称せん断強度 (最大荷重を接着面積で除した値) と接着剤層厚さ (接着剤層厚さはマイクロメータやマイクロスコップ等を用いて測定している) の関係の一例を示す。

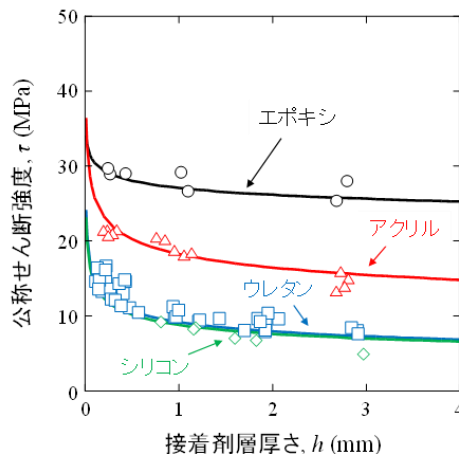


図 3 接着剤の公称せん断強度と接着剤層厚さの関係<sup>1)</sup>

接着剤の種類によらず、接着剤層厚さが薄いほど、SLJでの静的せん断強度は高くなる傾向を示した。接着剤の種類に見れば、SLJでの静的せん断強度はエポキシ>アクリル>ウレタン>シリコンの順になっていた。接着剤層厚さが薄いほど、せん断強度が高くなる結果は、一般的な接着剤での実験結果と同じであり<sup>8)</sup>、接着端部に生じる特異応力場の強さが関連しているものと考えられる<sup>9)</sup>。

### 3. 二重片持ち梁および端面切欠曲げ試験片

破壊力学的な強度評価とは、接着接合継手には欠陥（き裂）が存在し、き裂を伴う接着接合継手の破壊現象を「破壊力学」に基づいて図4に示す3つのモードに分類し、き裂先端での応力勾配やき裂進展用のエネルギー量を調べる方法である<sup>10)</sup>。

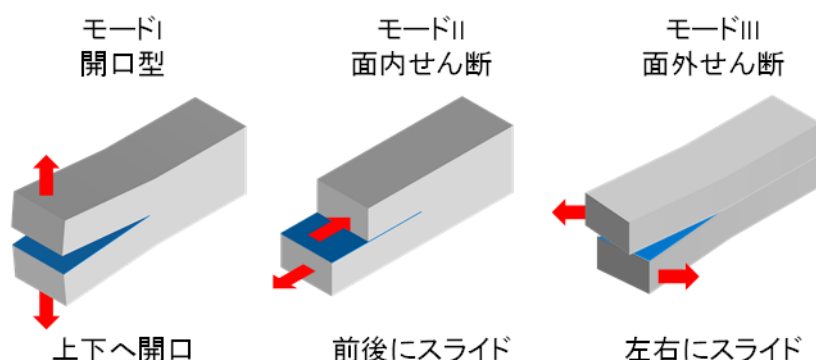


図4 破壊力学で扱う破壊現象の3つのモード

モード I およびモード II 荷重下での破壊じん性値 ( $G$ ) を求める接着継手として、二重片持ち梁 (DCB: double cantilever beam, ASTM D3433 準拠<sup>11)</sup>) および端面切欠曲げ (ENF: end notched flexure, JIS K 7086 準拠<sup>12)</sup>) 試験片を用いた。図5に DCB および ENF 試験片の試験片形状および試験状態を示す。

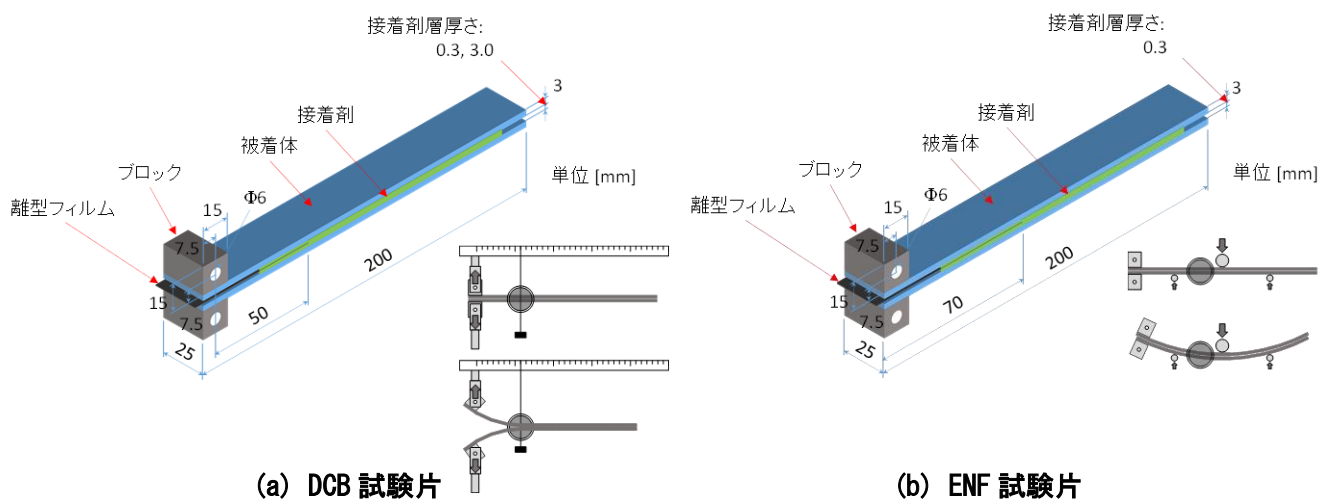


図5 DCB および ENF 試験片形状および試験状態<sup>1)</sup>

被着体には SLJ と同様に板厚 3 mm の一般構造用炭素鋼 SS400 を用いた。被着体の接着面にサンドブラスト処理を施し、その後アセトン脱脂を行った。接着剤層厚さは DCB 試験片では 0.3、3.0 mm、ENF 試験では 0.3 mm とした。接着時に 25  $\mu$ m の離型フィルムを接着部に挿入することで初期き裂を導入した。

DCB 試験<sup>13)-19)</sup>は ASTM D3433 に準拠し、島津製作所製小型卓上試験機 EZ-LX を用いた。き裂長さの測定にはキーエンス製デジタルマイクロSCOPE VHX-6000 (レンズ: VH-ZST) を用いた。試験は変位制御で行い、変位速度 1 mm/min での負荷、き裂が 10 mm 程度進展後 30 min の停止、変位速度 1 mm/min での除荷を繰り返す負荷-除荷試験で実施した。また、試験後の破断面はキーエンス製デジタルマイクロSCOPE VHX-6000 (レンズ: VH-ZST) を用いて観察した。

ENF 試験<sup>20)-23)</sup>は JIS K 7086 に準拠し、島津製作所製オートグラフ AG-X/R (5 kN) を用いた。試験は変位制御で行い、変位速度 0.5 mm/min で実施した。試験後の側面および破断面はキーエンス製デジタルマイクロSCOPE VHX-6000 (レンズ: VH-ZST) を用いて観察した。

図 6 にモード I 荷重下でのき裂長さ  $a$  - 破壊じん性値  $G_{IC}$  の関係を示す。

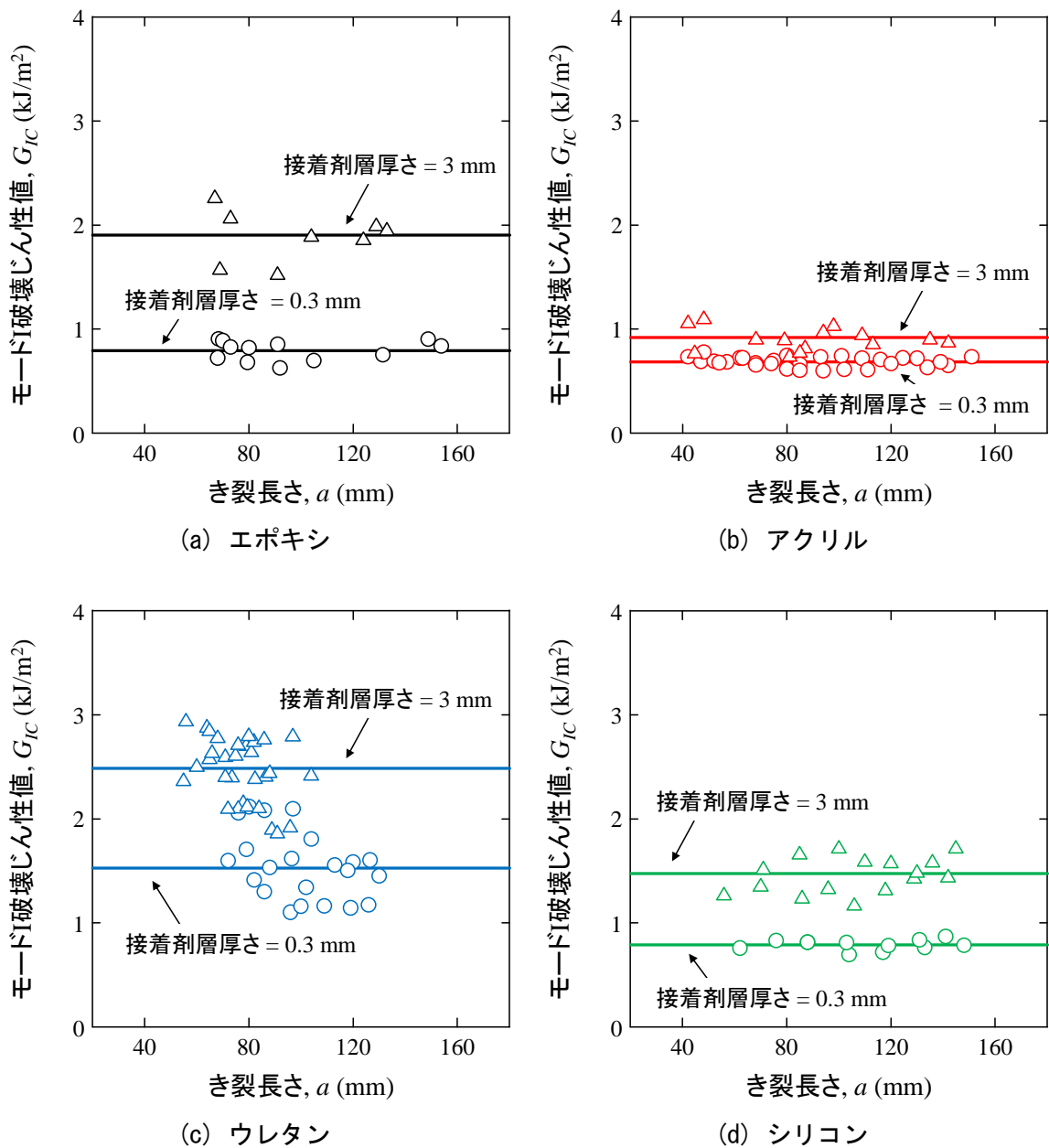


図 6 接着剤のモード I 荷重下でのき裂長さ-破壊じん性値の関係<sup>1)</sup>

接着剤層厚さが薄い場合 (0.3 mm)、エポキシ、アクリルおよびシリコン接着剤では 1 kJ/m<sup>2</sup> 以下の低いモード I 破壊じん性値を示した。一方、ウレタン接着剤では接着剤層厚さが薄い場合でも 1

$\text{kJ/m}^2$ 以上の高いモード I 破壊じん性値を示した。接着剤層厚さが厚い場合 (3 mm)、エポキシ、ウレタンおよびシリコン接着剤では  $1 \text{ kJ/m}^2$  以上の高いモード I 破壊じん性値を示した。一方、アクリル接着剤では、 $1 \text{ kJ/m}^2$  以下の低いモード I 破壊じん性値を示した。モード I 破壊じん性値に及ぼす接着剤層厚さの影響は、エポキシ、ウレタンおよびシリコン接着剤では大きく、アクリル接着剤は小さかった。

接着剤の種類および接着剤層厚さによってモード I 破壊じん性値に違いが出るのは、接着剤固有の特性 (引張特性での延性) と破壊形態が関連していると考えられる。特に、接着剤層厚さが厚い場合にモード I 破壊じん性値が高いのは接着剤の延性が大きく作用しているものと考えられる。

接着剤層厚さが薄い場合 (0.3 mm)、エポキシ、アクリルおよびシリコン接着剤では界面近傍の破壊と部分的な凝集破壊となっていた。一方、ウレタン接着剤では凝集破壊が主となり、一部、界面近傍の破壊が見られた。接着剤層厚さが厚い場合 (3 mm)、エポキシ、ウレタンおよびシリコン接着剤では凝集破壊となっていた。一方、アクリル接着剤では界面近傍の破壊と部分的な凝集破壊となっていた。破壊形態の違いがモード I 破壊じん性値に及ぼす接着剤層厚さの影響と関連していると考えられる。接着剤の種類および接着剤層厚さによって破壊形態に違いが出るのは、接着剤と被着体 (SS400) の相性および接着剤固有の特性 (特異応力場の強さ) が影響しているものと考えられる。

モード I 破壊じん性値は、強度予測時のモード I 荷重下での結合力モデル<sup>24)-29)</sup> (CZM: cohesive zone model) に用いることができる。

図 7 にエポキシ、アクリル、ウレタンおよびシリコン接着剤のモード II 荷重下での破壊じん性値  $G_{IIc}$  を示す。

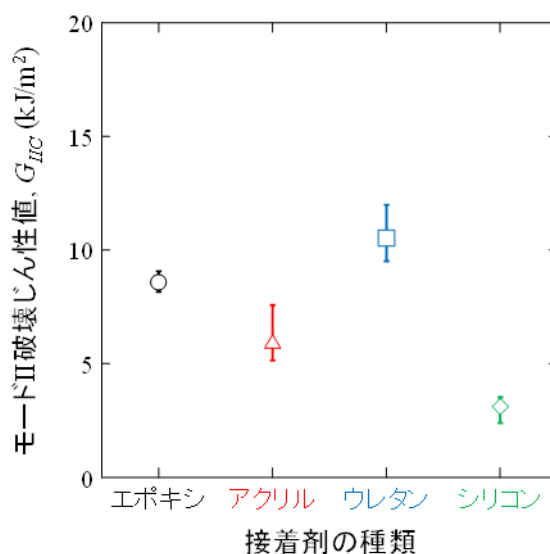


図 7 接着剤のモード II 荷重下での破壊じん性値<sup>1)</sup>

モード II 破壊じん性値はウレタン>エポキシ>アクリル>シリコンの順になっていた。

静的 ENF 試験後の試験片をはく離させ、破断面の観察を行っている。アクリルおよびウレタン接着剤では、凝集破壊となった。一方、エポキシおよびシリコンの破断面は界面近傍で破壊した様相であるが、上板と下板に接着剤が残っていた。

モード II 破壊じん性値は、強度予測時のモード II 荷重下での CZM に用いることができる。

図 8 にエポキシ、アクリル、ウレタンおよびシリコン接着剤の接着剤層厚さ 0.3 mm でのモード I およびモード II 破壊じん性値  $G_{Ic}$ 、 $G_{IIc}$  を示す。

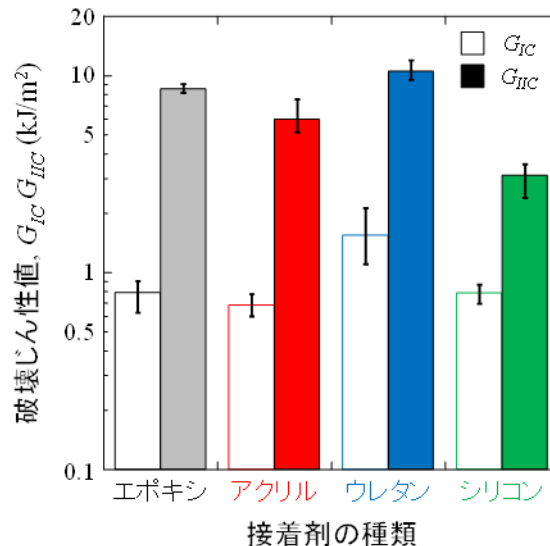


図 8 接着剤のモード I およびモード II 破壊じん性値（接着剤層厚さ 0.3 mm）<sup>1)</sup>

エポキシ、アクリル、ウレタンおよびシリコン接着剤においてモード I 破壊じん性値よりもモード II 破壊じん性値が高くなった。各接着剤でモード I 破壊じん性値に対するモード II 破壊じん性値の比率が異なることがわかる。接着剤層厚さが同じ場合、接着剤の種類により破壊じん性値に違いが生じる主な要因は接着剤固有の特性（引張特性あるいはせん断特性での延性）が関連していると考えられる。また、モード I とモード II で破壊じん性値の比率が異なる要因は接着剤固有の特性の違い（引張特性とせん断特性の違い）が関連していると考えられる。

#### 4. まとめ

エポキシ、アクリル、ウレタンおよびシリコン接着剤について、接着継手の材料力学的な強度評価と破壊力学的な強度評価としての実験的な検討を示した。本研究結果が接着剤の選定の一助となることを期待する。

今後は、静的力学特性評価の成果から有限要素法（FEM: finite element analysis）解析モデルによる強度予測手法の構築を実施する。また、接着継手での温度環境下での静的力学特性の実験的な検討を実施し、時間-温度換算則を活用したクリープ特性や疲労力学特性の予測式の構築を行う。さらに、疲労力学特性やクリープ特性の実験的な検討から、上述の予測式の妥当性を検証する。実験的な検討では、各試験後の破断面観察も実施し、接着剤の選定、接着接合部の信頼性評価マップの作成および変形・破壊メカニズムの解明を進める。解析的な検討では、強度や耐久性予測を実施するとともに、接着継手を総合的に評価できる指標の確立を目指す。

#### 参考文献

- 1) 内藤公喜, Close Up: 鋼板と樹脂材料の接合技術開発（車体軽量化を目指したマルチマテリアル化）, 溶接技術, 9, 66-72, 2020.
- 2) 佐藤千明, 自動車用接着接合と材料の表面処理の動向, 表面技術, 67(12), 644-648, 2016.
- 3) Z. Kozuh, S. Jralj, and Z. Cvirn, Advantages and application possibilities of adhesive bonding, Promet-Traffic-Traffico, 9(1), 33-40, 1997.
- 4) K. Naito, M. Onta and Y. Kogo, The effect of adhesive thickness on tensile and shear

- strength of polyimide adhesive, *Int. J. Adhes. Adhes.*, 36, 77-85, 2012.
- 5) FM. da Lucassilva, JE. Ramos, MV. Figueiredo, and TR. Strohaecker, Influence of the adhesive, the adherend and the overlap on the single lap shear strength, *J. Adhes. Interface*, 7(4), 1-9, 2006.
  - 6) T. Hattori, A stress-singularity-parameter approach for evaluating adhesive strength of single-lap joints, *JSME int. J. Ser. 1*, 34(3), 326-331, 1991.
  - 7) 荒井雅嗣, 小林英男, 重ね合わせ接着継手の破壊機構と接着強度評価, 日本機械学会論文集 A 編, 64(619), 618-623, 1998.
  - 8) 芝崎一郎, 接着百科 (上), 高分子刊行会, 1988.
  - 9) 張玉, 高石謙太郎, 野田尚昭, 蘭欣, 接着接合板における接着層厚さが特異応力場の強さに与える影響 (面内曲げと引張りの比較), 日本機械学会論文集 A 編, 77(784), 2076-2085, 2011.
  - 10) 小林英男, 破壊力学, 共立出版, 1993.
  - 11) ASTM D3433-99, Standard test method for fracture strength in cleavage of adhesives in bonded metal joints, in annual book of ASTM standards, 15.06, 2005.
  - 12) JIS K 7086, Testing methods for interlaminar fracture toughness of carbon fibre reinforced plastics, 1993.
  - 13) 内藤公喜, 藤井透, 宮崎克雅, 静的および疲労荷重下での接着破面とフラクタル, 日本接着学会誌, 30(9), 299-306, 1994
  - 14) 内藤公喜, 藤井透, エポキシ系接着剤のモード I 荷重下における接着破面とフラクタル (第 1 報, 静的き裂進展特性とフラクタル次元), 日本機械学会論文集 (A 編), 62(603), 2594-2600, 1996.
  - 15) K. Naito, H. Hirakata, T. Fujii, Effect of Surface Treatment for Steel Adherends on Static and Fatigue Crack Growth of Epoxy Adhesives, *Compos. Interfaces*, 5(4), 345-361, 1998.
  - 16) HB. Kim, K. Naito, and H. Oguma, Fracture toughness of adherends bonded with two-part acrylic-based adhesive: double cantilever beam tests under static loading, *Appl. Adhes. Sci.*, 4(10), 1-11, 2016.
  - 17) DA. Khayer and EBF. Tan, Direct measurement of the cohesive law of adhesives using a rigid double cantilever beam technique, *Exp. Mech.*, 53(9), 1763-1772, 2013.
  - 18) S. Mahaphasukwat, K. Shimamoto, S. Hayashida, Y. Sekiguchi, and C. Sato, Mode I critical fracture energy of adhesively bonded joints between glass fiber reinforced thermoplastics, *Appl. Adhes. Sci.*, 3(4), 1-13, 2015.
  - 19) JC. del Real-Romero, Y. Ballesteros, R. Chamochín, J. Abenojar, and L. Molisani, Influence of surface preparation on the fracture behavior of acrylic adhesive/CFRP composite joints, *J. Adhes.*, 87(4), 366-381, 2011.
  - 20) HB. Kim, K. Naito, and H. Oguma, Mode II fracture toughness of two-part acrylic-based adhesive in an adhesively bonded joint: end-notched flexure tests under static loading, *Fatigue Fract. Eng. Mater. Struct.*, 40(11), 1795-1808, 2017.
  - 21) MFSF. de Moura, RDSG. Campilho, and JPM. Goncalves, Pure mode II fracture characterization of composite bonded joints, *Int. J. Solids Struct.*, 46(6), 1589-1595, 2009.
  - 22) Q. Pizhong, J. Wang, and JF. Davalos, Analysis of tapered ENF specimen and characterization of bonded interface fracture under Mode-II loading, *Int. J. Solids Struct.*, 40(8), 1865-1884, 2003.
  - 23) BRK. Blackman, AJ. Kinloch, and M. Paraschi, The determination of the Mode II adhesive fracture resistance, GIIC, of structural adhesive joints: an effective crack length approach,

- Eng. Fract. Mech., 72(6), 877-897, 2005.
- 24) M. Alfano, F. Furgiuele, A. Leonardi, C. Maletta, and GH. Paulino, Mode I fracture of adhesive joints using tailored cohesive zone models, Int. J. Fract., 157(1-2), 193-204, 2009.
  - 25) XP. Xu and A. Needleman, Numerical simulations of fast crack growth in brittle solids, J. Mech. Phys. Solids, 42(9), 1397-1434, 1994.
  - 26) V. Tvergaard and JW. Hutchinson, On the toughness of ductile adhesive joints, J. Mech. Phys. Solids, 44(5), 789-800, 1996.
  - 27) LFM. da Silva, RAM. aa Silva, JAG. Chousal, and AMG. Pinto, Alternative methods to measure the adhesive shear displacement in the thick adherend shear test, J. Adhes. Sci. Technol., 22(1), 15-29, 2008.
  - 28) C. Thomas and S. Ulf, Influence of layer thickness on cohesive properties of an epoxy-based adhesive-an experimental study, J. Adhes., 86(8), 814-833, 2010.
  - 29) RDSG. Campilho, MD. Banea, JABP. Neto, and LFM. da Silva, Modelling adhesive joints with cohesive zone model: effect of the cohesive law shape of the adhesive layer, Int. J. Adhes. Adhes., 44, 48-56, 2013.

<略歴>

**内 藤 公 喜 (ないとう きみよし)**

---

1998年 同志社大学 大学院 工学研究科 機械工学専攻 博士後期課程 修了 (博士 (工学) )  
1998年 三菱電機株式会社 入社 複合材料/接着製品の開発/構造/製造設計  
2005年 物質・材料研究機構 入社 複合材料グループ配属、複合材料/接着接合に関する研究  
2017年 同 高分子系ハイブリッド複合材料グループ/グループリーダー  
現在に至る