

# PS-13 ゴム粒子で分散強化された構造用接着剤の超音波計測

構造基盤技術系 \*菅澤 忍、秋山 繁、構造安全評価系 安藤 孝弘

## 1. はじめに

接着剤は材料同士を接合する技術の一つであるが、溶接と比較すると、高温で使用しないので材料に歪みが発生しない、素人でも容易に作業できる、また異種材料間の接合も可能、高分子のため振動吸収性を持つといった特徴を持つ。このような特徴を生かして接着剤は、航空・宇宙、自動車、建設といった産業で広く用いられており、使用量も年々増加している。これらの産業で使用される接着剤は、通常使われる樹脂ベースのものだけではなく、構造用接着剤<sup>1)</sup>と呼ばれる、強靱性、耐久性および接着性を高めるために樹脂にゴム粒子を添加するなどの変性をおこなったものも使われている。

このように優れた性質を持つ接着剤ではあるが、船舶の建造工程での使用が限られているのが現状である。しかし、他の産業分野の実績を考えると、接着剤を船舶の建造に取り入れることによって、工程の効率化やコストの削減、また船舶自体の付加価値の向上といった効果が期待できる。例えば、溶接の代わりに用いることによって、多様な材料の使用、非熟練者の採用、後工程の歪み取りの省略といった利点が考えられる。そこで、海上技術安全研究所では、接着剤を造船技術に取り入れるために、船舶に適した接着剤の要件を明らかにするとともに<sup>2)</sup>、接着剤の開発および開発した接着剤に対して各種試験を行い評価を行ってきている。

本発表では、構造用接着剤の一つであるアクリル樹脂を母材としてゴム粒子を分散させることによって変性した接着剤に対して、基礎的物性値を把握する目的で行った超音波計測の結果について報告する。

## 2. 試料および測定方法

測定に用いた試料は、接着剤メーカーに造船への応用を目的として試作を依頼した構造用接着剤の一種であり、被着材に塗布するときは主剤と硬化剤を混ぜて使用する二液混合型である。この接着剤の具体的な組成は不明であるが、図-1のようにアクリル樹脂にゴム粒子が分散した組織を持つ。図で粒子状の白い部分がゴムである。ゴム粒子は熱分解 GC/MS により分析したところスチレン-ブタジエン型であることを示唆していた。ゴム粒子は体積で半分程度を占めており、形状は数 $\mu\text{m}$ 程度の不定形のもの、サブミクロンオーダーの微粒子状ものと2種類から構成されていた。ただし、図では微少な領域での画像が鮮明でないため、ゴム粒子の含有率の正確な値はわからない。

測定用試料は以下のように作製した。厚さ 10mm のアルミ合金の板の上に型を用いて接着剤を厚さ 5mm 程度の平板状に塗布し固化させた。接着面に平行になるように接着剤側を研

磨し、図-2のようなパルスエコー法に基づく超音波測定を行った。使用したセンサーの中心周波数は 5MHz である。最初は、接着剤中の波動の減衰が大きくオシロスコープに波形が現れなかったが、研磨を行い接着剤の厚さを小さくしていき、厚さ 0.520mm になったところで縦波・横波ともはっきり現れるようになった(図-3)。接着剤の弾性率は、エコーの時間差と接着剤の厚さから縦波と横波の音速を求め、これらとは別に求めた接着剤の密度から決定した<sup>3)</sup>。また、弾性率の比較用として接着剤にゴム粒子がない場合の厚さ 3.990mm のアクリル樹脂の板を用意し同様な超音波計測を行った。さらに、超音波から求めた弾性率と静的な弾性率を比較するために、JIS K7162 1B に基づき、接着剤およびアクリル樹脂の引張試験用の試験片を別途用意した。接着剤に関しては、短冊状の型に接着剤を流し込み一定の厚さで固化させた後、JIS の規格に従った形状に打ち抜くことで試験片を作製した。

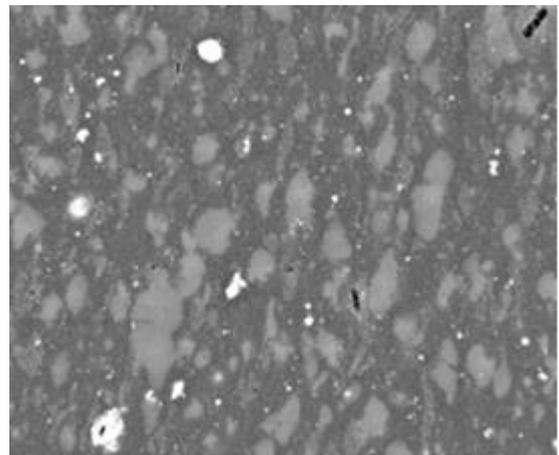


図-1 試作した接着剤の微細組織

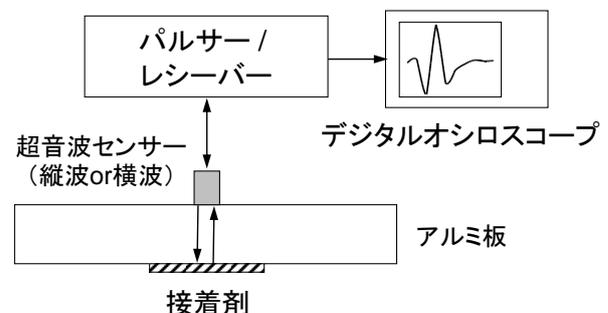
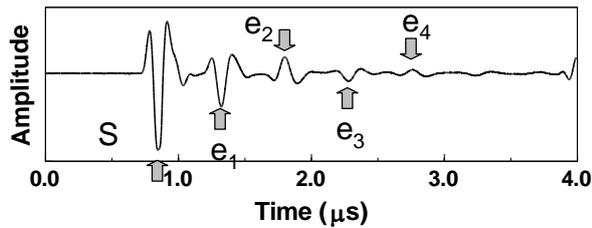
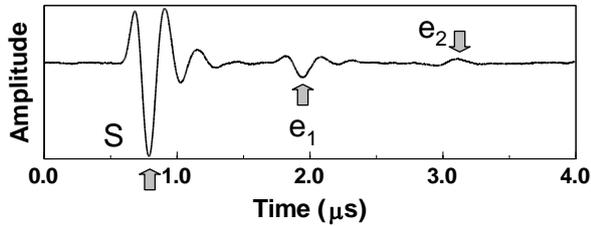


図-2 超音波計測システム



(a) 縦波



(b) 横波

図-3 超音波波形 (S:境界面での反射、e1, e2, e3: 接着層内の多重反射)

### 3. 実験および解析結果<sup>4)</sup>

表-1 に接着剤とアクリル樹脂の超音波計測結果を示す。接着剤はアクリル樹脂と比べてヤング率が小さくポアソン比が大きいという結果になった。一般にゴムのヤング率は1 MPa 程度でアクリル樹脂に較べて無視できる大きさである一方、ポアソン比は0.5に近い値を持つ。このようなゴムを接着剤が図-1 のように含んでいるため、ヤング率の低下とポアソン比の増大が生じたと考えられる。次に超音波の減衰率を較べると、接着剤の方がアクリル樹脂より大きく、特に周波数増大に伴う減衰率の増大が顕著であった。この結果もゴムが持つ高い振動吸収性から説明ができるであろう。

引張試験を行った試験では、引張強さは接着剤が 10MPa、アクリル樹脂が 70MPa となった一方、破断時の歪みに関しては接着剤が 0.75、アクリル樹脂が 0.1 のように接着剤の方が大きくなった。この性質も、ゴムは引張強さが小さい一方、ゴム弾性による伸び易さから説明ができるであろう。

次に超音波計測より求めたヤング率と引張試験で求めたヤング率を比較した結果を図-4 に示す。引張試験では測定精度上ポアソン比を求めることが難しいのでヤング率のみ比較を行った。接着剤、アクリル樹脂とも超音波計測から求めたヤング率の方が引張試験で求めたものより大きくなった。倍率で言えば、アクリル樹脂では 2.2 倍、接着剤では 3.4 倍である。このことは、超音波計測を用いれば弾性率とポアソン比が比較的容易に得られるものの、この数値は超音波よりはるかにゆっくり変化する日常の世界の材料強度の評価に

表-1 超音波計測より求めた弾性率の比較

	音速		密度 (kg/m <sup>3</sup> )	ヤング率 (GPa)	ポアソン 比
	縦波 (m/s)	横波 (m/s)			
接着剤	2,165	897	1,097	2.47	0.40
アクリル樹脂	2,717	1,362	1,180	5.83	0.33

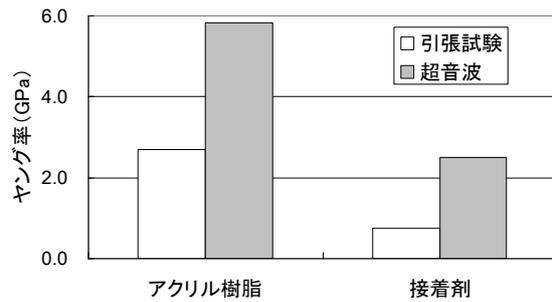


図-4 超音波および引張試験から求めたヤング率の比較

使用するには慎重を要することを意味する。例えば有限要素法を用いた解析で使用する物性値としては適当ではない。しかしながら、静的な試験方法では精度良くポアソン比を求めることが難しいのが現状ではある。なお、このような違いが生じた原因として高分子材料の持つ粘弾性が考えられる。というのも、粘弾性材料の弾性率は時間温度換算則を用いて温度変化から得られた結果を時間に換算すると、周波数とともに増大することが知られているからである。

### 4. 考察

粘弾性が存在する場合の材料の挙動を考えると、1次元の場合は、 $\gamma$ を粘弾性を表す係数、 $E$ をヤング率として、

$$\rho \ddot{e} + \gamma \dot{e} + Ee = \sigma$$

のように表すことができる。特に一定速度  $v$  で引っ張る引張試験の場合に適用すると、元の長さを  $L$ 、長さの変化を  $\Delta L$  とすると、 $\Delta L = vt$ 、歪みは  $\epsilon = \Delta L/L = vt/L$  となる。また、試料の断面積を  $S$  とすると引張荷重  $F$  は  $\sigma S$  となる。これらを上式に代入すると、

$$(\gamma + Et)vS/L = F$$

が得られる。すなわち、荷重と伸びは比例しなくなり粘弾性がないときと較べて、余計な荷重が発生することがわかる。この荷重は引張速度  $v$  が大きくなるとそれに比例して大きくなる。このモデルではヤング率  $E$  も  $v=0$  の時に較べて  $\gamma/t$  だけ大きくなるが時間が経過するに従い  $E$  に漸近する。

従来、接着剤の強度評価のために、有限要素法が盛んに用いられている。しかし、例えば重ね合わせ継手の引張試験の場合、接着層の中には多様な歪み速度が分布している。そのため、接着層内の正確な応力評価を行うためには、粘弾性に由来する歪み速度から生じる応力についても考慮する必要があると考えられる。

### 参考文献

- 1) 柳原榮一：被着材からみた接着技術 金属材料編 (日刊工業新聞社、2003年) p.28, p177.
- 2) 秋山繁他：海上技術安全研究所報告、第11巻、pp.17-39、(2012)
- 3) 超音波便覧編集委員会：「超音波便覧」(丸善、1999) p.299.
- 4) 菅澤忍：超音波テクノ 27、pp.73-78、(2015)