

# 鋼板塗膜の密着性に関する研究—鋼板塗膜の密着性に及ぼす表面処理方法と塗膜厚さの影響

宮入 裕夫\*・木嶋 芳雄\*<sup>2</sup>・永井 正洋\*<sup>3</sup>

Studies on Adhesive Properties of Steel Coating—Examinations of Influenced Factor between Steel Treatment Methods and Coating Thickness—

Hiroo MIYAIRI, Yoshio KISHIMA and Masahiro NAGAI

**Synopsis :** This paper examined adhesive properties of steel coating alkid-melamine film (silica content 30 wt%) that has the relations between surface treatments of steel coating and thickness of steel coats. Especially we experimentally studied the influenced factors of adhesive properties between steel surface treatments and strength of coating film by using the interfacial cutting system (Saicas method).

**Key words :** alkid melamine coating film; steel coating film; peeling strength of interfacial layer; fracture strength of coating film; surface treatment of coating film.

## 1. 緒言

鋼板の用途拡大は表面の加飾技術の進歩により支えられているといっても過言ではない。そのため鋼板塗膜の密着性に関する研究は塗装鋼板の特性に関する基礎的な研究として古くから多くの研究が行われており、最近の研究報告を見ただけでもさまざまな視点より塗膜の密着性に関する研究が広く行われている<sup>1-6)</sup>。一般に鋼板塗膜の密着性能に関する研究では、塗膜密着性に関わる要因は塗膜の物性と鋼板の表面処理方法とに依存する。しかし、鋼板塗膜の密着特性に関し、鋼板表面の処理方法と塗膜の厚さが塗膜の密着性に対しどのような効果もたらし、鋼板塗膜の密着性能にまたどのような影響を及ぼすのかといった報告は見当たらない。

そこで、本研究では鋼板塗膜に汎用のアルキド・メラミン樹脂（シリカ含有量：30 wt%）を用い、鋼板の表面処理に「還元クロム酸+シリカあり」と「還元クロム酸+シリカなし」との処理方法を適用し、塗膜厚さとの関連について検討した。また、鋼板塗膜密着性能の評価方法には塗膜界面を切削し、そのときの切削抵抗と塗膜の破壊強さを求めることのできるサイカス法(SAICAS)によって測定した<sup>7-11)</sup>。この測定法は鋼板塗膜の界面を切削することにより、塗膜界面の切削過程における界面の剥離強さと塗膜の破壊強さとの関連を経時的に測定し、これに併せて塗膜界面および塗膜の破壊状況を観察し、鋼板塗膜の密着性に及ぼすそれぞれの因子の影響について検討した。

## 2. 鋼板塗膜と表面処理法（試験片の種類と記号）

鋼板塗膜には汎用のアルキド・メラミン樹脂（シリカ含有量：30 wt%）を用い、鋼板塗膜の界面密着性に関する塗膜の剥離強さと鋼板塗膜の破壊強さとに及ぼす塗膜厚さの影響について検討した。

また、実験に用いた試験片は鋼板表面の処理方法として「還元クロム酸+シリカあり」（A実験群）と「還元クロム酸+シリカなし」（B実験群）の処理方法とを採用し、それぞれの実験群につき塗膜の厚さを10 μm, 20 μm, 30 μmとし、各試験片の記号を1A(10), 1A(20), 1A(30)および2B(10), 2B(20), 2B(30)と定め、6種類の試験体について実験を行った。

また、試験体および鋼板塗膜の表面処理、塗装条件等は次の通りである。

- (1) 鋼板の種類：還元クロム酸処理（シリカあり、なし）、塗膜はアルキド・メラミン樹脂（シリカ含有量：30 wt%）、鋼板厚さ：1 mm
- (2) 塗装方法：バーコーター
- (3) 塗膜の形成：塗料塗付後、レベリングすることなく通常の方法に従い塗膜を形成
- (4) 焼付け条件：130°C, 10分

なお、試験体は日本ファインコーティング（株）に依頼し、作製したものである。

平成18年10月17日受付 平成18年11月27日受理 (Received Oct. 17, 2006; Accepted Nov. 27, 2006)

\* 東京電機大学工学部 (Faculty of Engineering, Tokyo Denki University, 2-2 Kanda-Nishiki-cho Chiyoda-ku Tokyo 101-8457)

\* 2 ダイプラ・ウインタス（株）(Daipra Wintes Co.)

\* 3 東京医科歯科大学生体材料工学研究所 (Institute of Bio-medical Materials and Engineering, Tokyo Medical and Dental University)

### 3. 試験方法

試験方法にはサイカス(SAICAS)法を採用し、塗膜の密着性について鋼板塗膜界面の剥離挙動と塗膜の破壊強さを調べ、鋼板塗膜の密着性及び塗膜厚さの影響について検討した。なお、塗膜の界面の測定には、サイカスDN-20S型(ダイプラ・ウィンテス社製)の測定機器を使用した。また、具体的な試験条件は次に示す通りである。

- (1) 測定モード：定荷重モード  
押し圧荷重：3N設定、バランス荷重：2N設定
- (2) 切刃移動速度：水平速度 2.0 μm/s  
垂直速度 0.5 μm/s
- (3) 切刃材料と刃幅：材料：焼結合金(CBN：略称ボラゾン)  
刃幅：4mm
- (4) 切刃形状：すくい角：20°、逃げ角：10°  
刃先先端半径：約2 μm

また、破面の表面観察にはデジタル顕微鏡(キーエンス社製、デジタルマイクロスコープ：VHX-200)を使用した。

### 4. 塗膜界面の剥離強さと塗膜のせん断破壊強さの測定方法

#### 4.1 鋼板塗膜界面の剥離強さ

鋼板塗膜の密着性に関する塗膜と鋼板との分離には、鋼板表面から切刃を斜めに塗膜内部に切り込み、界面近傍で界面に沿って平行に移動させることで、塗膜を鋼板から剥離させる。したがって、水平力は切り込み段階では増大するが、界面近傍では刃先先端の微小亀裂や最弱層の剥離により低下する。そこで、刃先がある深さ(水平力( $F_H$ )の低下した時点)で、垂直力 $F_V$ を一定( $F_V=2N$ )に保つように制御し、刃先を水平方向に移動させながら、水平力( $F_H$ )の変化を計測する。そして、ここで得られた水平力-時間線図の面積平均より水平力の平均値( $F_H$ )を求め、塗膜界面の剥離強さ $P$ を単位幅当たり水平力の平均値( $F_H$ )として式(1)より求める。

$$P = F_H / w \text{ (kN/m)} \dots \dots \dots (1)$$

ここで、 $w$ ：刃先の幅(mm)

$F_H$ ：水平力

#### 4.2 塗膜のせん断破壊強さ

塗膜のせん断破壊強さ(見なしせん断強さ)は最小エネルギー法に基づくマーチャント<sup>13)</sup>の提唱した切削理論による式(2)を用い求めた。

$$\tau \text{ (MPa)} = \frac{F_H}{2wd \cot \phi} \dots \dots \dots (2)$$

ここで、 $F_H$ ：水平力

$wd$ ：断面積

$w$ ：刃幅、 $d$ ：深さ

$\phi$ ：せん断角を45°とみなす

Fig. 1(a)は表面処理A群、膜厚30 μmの試験体1A(30)の切削試験によって得られた切削線図( $F_H$ ,  $F_V$ および $d$ -時間線図)の1例を示したものである。まず、Fig. 1(a)を用い定常な切削過程での刃先の降下過程と定常な切削過程での直線部を見つけ、界面の剥離強さおよび塗膜の破壊強さを求めるために定常な切削範囲を設定する(Fig. 1(a)のshear strength部)。界面の剥離強さは一定値であるからそのまま水平力の平均値を求めることができる。なお、このとき $F_H$ が最大値に達し、その後 $F_H$ が低下するのは押し圧荷重 $F_V$ を3Nとし、刃先を界面に到達させた後、切削時のバランス荷重を2Nと低下させたために生ずるものである。一方、塗膜の破壊強さを求めるためにFig. 1(a)の設定範囲を用い、その間の $F_H$ と $d$ との関係に直線則を仮定し最小2乗法を適用して $F_H$ - $d$ 線図を作成し、直線の勾配 $F_H/d$ を求め(Fig. 1(b)参照)、得られた勾配 $F_H/d$ を式(2)に適用し( $F_H/d$ ) $\times(1/2w \cot \phi)$ を計算することにより、塗膜のせん断破壊強さ(みなしせん断強さ) $\tau$ を求める。

なお、塗膜のせん断破壊強さの測定には同一試験体に関して、繰返し試験を $N=3$ として、それらの平均値として求めた。

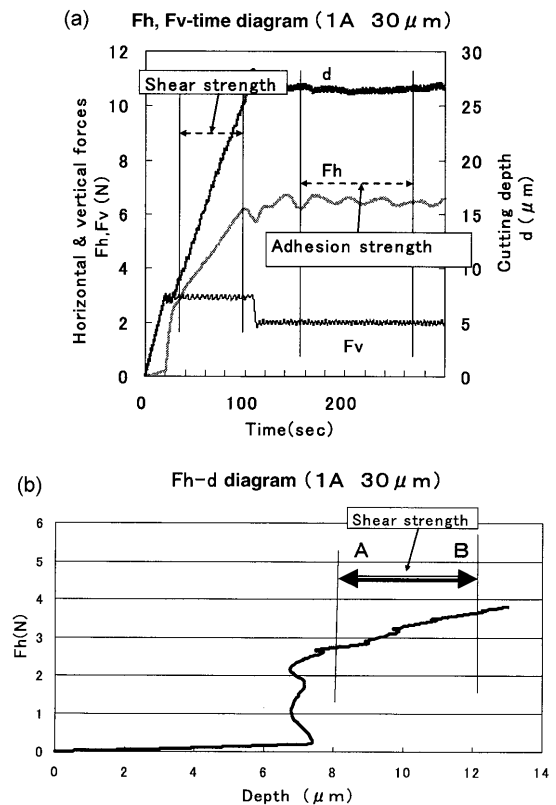


Fig. 1. Diagram to explain shear strength of coating film. (a) Diagram of cutting process. (b) Horizontal force-cutting depth diagram.

## 5. 実験結果と考察

### 5.1 界面の剥離強さと塗膜の破壊強さ

#### (1) 水平力-時間線図

Fig. 2は還元クロム酸+シリカあり (A群) と還元クロム酸+シリカなし (B群) の塗膜厚さ  $30\mu\text{m}$  の試験体, 1A(30), 2B(30)について, 鋼板塗膜界面の切削過程における, 刃先に生ずる水平力  $F_H$ , 垂直力  $F_V$  および塗膜厚さ  $d$  の時間的変化の1例を示したものである。この線図には垂直力  $F_V$  および塗膜厚さ  $d$  の変化も同時に示されているが, 塗膜界面の密着特性は水平力  $F_H$ -時間線図に示される水平力  $F_H$  の変化によって求められる。また, この試験では設定した垂直力  $F_V$  は, ほぼ  $F_V=2\text{N}$  と, また板厚  $d$  は試験体の塗膜厚さのほぼ  $30\mu\text{m}$  となっていることが確認できる。また, この図に示されるように水平力-時間 ( $F_H$ -時間) 線図は同じ膜厚の試験体でも, 鋼板塗膜の界面処理によってその力学挙動の異なることが確認できる。

そこで, 両試験体の水平力-時間線図を調べると, まず, 刃先に垂直力を加え, 塗膜界面まで斜めに低下させると, 刃先の水平力はA群の試験体は大きな低下もなく定常な切削状態になるが (Fig. 2(a)参照), B群の試験体の水平力は急激な低下を繰り返し定常な切削状態となる (Fig. 2(b)参

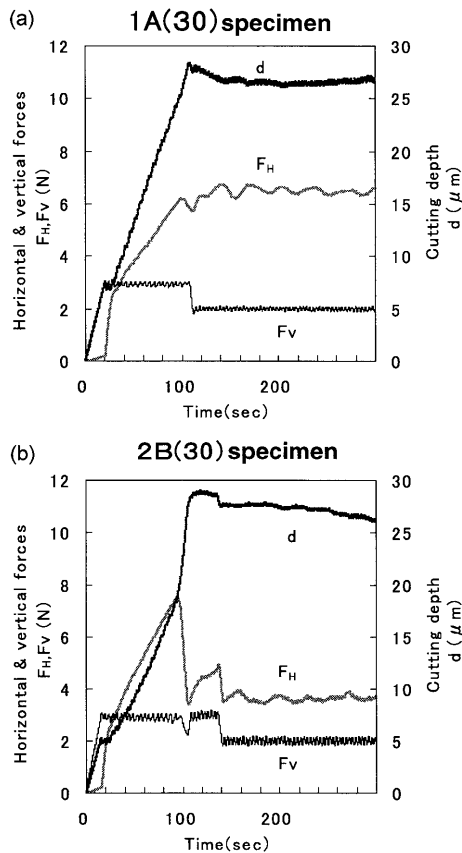


Fig. 2. Diagram of cutting process (1A(30), 2B(30) test specimen). (a)  $F_H$ -time,  $F_V$ -time and  $d$ -time diagram of 1A(30) test specimen. (b)  $F_H$ -time,  $F_V$ -time and  $d$ -time diagram of 2B(30) test specimen.

照)。このことは塗膜厚さの厚いことが初期の界面剥離強さの増大をもたらすが, 定常な切削状態ではその値も急激に低下し, 塗膜の表面処理の影響が現れる。

#### (2) 剥離強さと塗膜厚さ

そこで, 界面剥離強さを示す水平力  $F_H$  と塗膜厚さとの関係を調べるため, A群の試験体について, 塗膜厚さをパラメータとして, 水平力  $F_H$ -時間線図を示すと Fig. 3(a) のようになる。切削過程での水平力-時間線図は, 刃先を鋼板塗膜界面まで垂直力を加え斜めに低下させ, 定常な切削状態になるまで, 水平力は徐々に増大し続ける。このとき, 定常な切削過程での水平力  $F_H$  は, 塗膜厚さの薄い  $10\mu\text{m}$  では  $4.4\text{N}$ ,  $20\mu\text{m}$  では  $5.8\text{N}$  と大きな抵抗力を示し,  $30\mu\text{m}$  のものではこのような水平力の局所的な増大は見られないが, その抵抗力は  $6.8\text{N}$  と大きな値を示している。このように塗膜の剥離抵抗力は膜厚の増加と共に増大していることが示される。したがって, 塗膜厚さの薄い  $10\mu\text{m}$  では  $20\mu\text{m}$  のものに比べ界面の剥離抵抗は大きく, 塗膜厚さの厚い  $30\mu\text{m}$  では塗膜の剛性が高くなることもあって, 塗膜の水平力の変化は大きく変動し, 剥離抵抗は増大していることが示される。

また, 同様に Fig. 3(b)は還元クロム酸+シリカなし (B群) の鋼板塗膜について, 塗膜厚さをパラメータとして切削界面の水平力  $F_H$ -時間線図を示したものである。B実験群の切削過程における水平力  $F_H$  の変化は, 塗膜厚さには

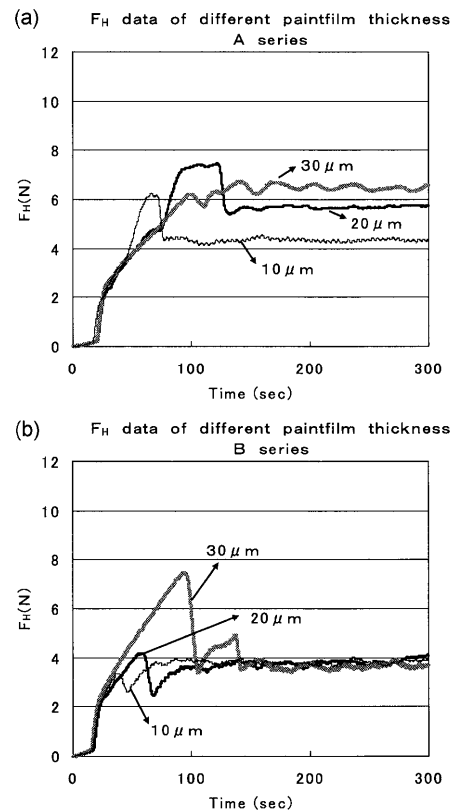


Fig. 3. Horizontal force-time diagrams which have various thickness of coating film. (a) A type test specimen. (b) B type test specimen.

ほとんど関係なく、塗膜厚さの増大に関らずほぼ $F_H=4N$ と一定値を示している。しかし、刃先を鋼板塗膜の界面まで下ろして行く切削過程の初期段階で、水平力の最大値は膜厚 $10\mu\text{m}$ で、 $3.2N$ 、膜厚 $20\mu\text{m}$ で $4.2N$ 、膜厚 $30\mu\text{m}$ で $7.5N$ と膜厚の増加と共に増大する。しかし、切削の定常状態では膜厚には関係なく一定値となっている。

そこで、密着界面の切削過程で得られた水平力-時間線図を塗膜厚さの違いについてA群とB群の試験体を調べると、両試験体の大きな違いは定常状態での水平力の大きさと、刃先を垂直方向に鋼板塗膜界面まで低下した後、水平力が定常状態になる前段階で、水平力が増大する状況が異なっていることである。まず、定常な切削過程での塗膜の密着性を示す切削時の水平力は、A群の試験体では塗膜厚さが増加するのに伴い、塗膜の密着強さは増大するが、B群の試験体では膜厚の増加には関係なくA群の剥離抵抗の最も小さい膜厚 $10\mu\text{m}$ の試験体と同じ $F_H=4N$ となっている。このことは鋼板処理（還元クロム酸）にシリカを添加することで、界面の剥離強さは増大し、塗膜厚さの増加の効果が現れることを示している。すなわち、塗膜厚さが増大してもB群（還元クロム酸+シリカなし）の表面処理では塗膜密着性の効果は現れないことが示される。また、定常な切削状態に入る前段階で生ずる水平力の局所的な増大は、A群の試験体には膜厚 $10\mu\text{m}$ 、 $20\mu\text{m}$ には見られたが、B群の試験体では膜厚の大きさには関係なく全ての試験体に現れ、その値は膜厚の増加に伴い増大する。

Fig. 4は水平力-時間線図の切削時の定常状態より鋼板塗膜の剥離強さを求め、界面の剥離強さと膜厚との関係を示したものである。界面の剥離強さは界面の処理方法に大きく依存し、還元クロム酸+シリカあり（A群）の処理法による試験体は還元クロム酸+シリカなし（B群）の試験体に比べて大きく、膜厚の増加に伴い剥離強さの増大する傾向が示される。このことは還元クロム酸+シリカあり（A群）の処理法が塗膜厚さの増大に寄与していることを示すもので、シリカの表面処理効果が塗膜内部にも影響を及ぼし、剥離強さの増加をもたらしているのである。したがって、鋼板塗膜の表面処理に還元クロム酸にシリカを添加することにより、塗膜厚さの効果は鋼板と塗膜との密着特性の向上に良い結果をもたらすことが確認できた。

## 5.2 塗膜のせん断強さと界面の剥離強さ

鋼板塗膜の破壊強さは切削過程で生ずるせん断応力により破壊する。そこで、塗膜の破壊強さについてはマーチャントの理論に基づく見かけのせん断強さを求め塗膜の破壊強さとし、塗膜厚さが界面の剥離強さと塗膜強さとに及ぼす影響について検討する。

Fig. 5は鋼板塗膜のせん断破壊強さと塗膜界面の剥離強さに及ぼす鋼板の表面処理法と塗膜厚さとの関係について調べたものである。還元クロム酸+シリカありの試験体では膜厚の増加に伴い塗膜の破壊強さは低下する。しかし、

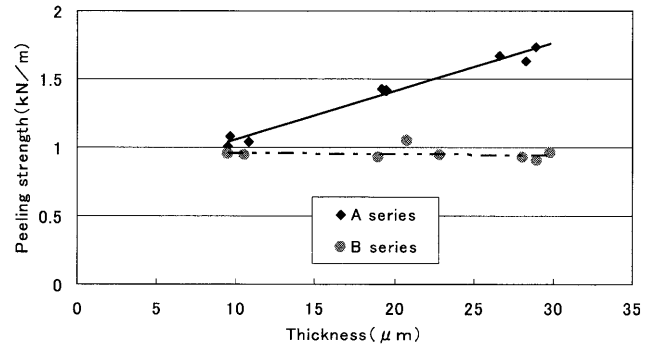


Fig. 4. Peeling strength-thickness of coating film diagram (various thickness of coating film).

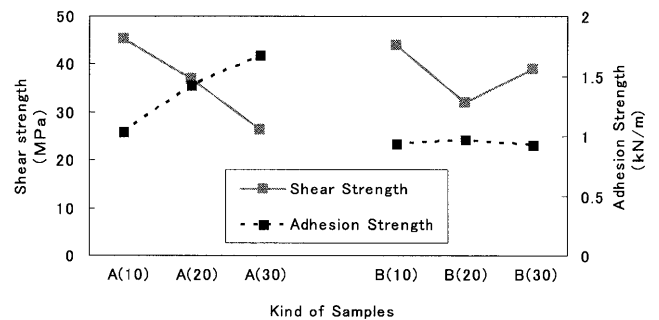


Fig. 5. Diagrams of strength of coating film and peeling strength (various test specimen A, B of surface finishing).

還元クロム酸+シリカなしのB試験体の塗膜強さは塗膜厚さ $20\mu\text{m}$ で大きく低下するが、 $30\mu\text{m}$ でまた多少増大し、塗膜厚さには大きな依存性は現れない。塗膜はアルキド・メラミンにシリカ30wt%を含有したもので、組成には何ら変わりはないが、鋼板の表面処理方法よりの影響塗膜のせん断破壊強さに及ぼす膜厚は大きく変化することがわかる。すなわち塗膜のせん断破壊強さは塗膜厚さの変化に依存するばかりではなく、ここに示されるように塗膜の表面処理法にも依存することである。しかも、A群の試験体では膜厚の増加に伴い界面の剥離強さは増大し、鋼板との密着性は増大したが、ここに示されるように塗膜の破壊強さは低下する。一方、B群の試験体では塗膜厚さの増加に伴い塗膜の密着性には変化が見られなかったが、塗膜の破壊強さは塗膜厚さには余り関係なく塗膜厚さ $20\mu\text{m}$ で最低値となっている。このようなことより鋼板の表面処理についてはシリカの添加による効果は、塗膜厚さの増加に伴い、剥離強さは増大するが、塗膜の破壊強さは低下するといった現象が確認された。すなわち、鋼板の表面処理にシリカを添加することで、塗膜の剥離強さは塗膜厚さの増加と共に増大するが、塗膜の破壊強さは低下し、両者の特性に及ぼす膜厚の効果は相反する関係にある。したがって、表面処理にシリカを添加することで、塗膜の破壊強さとは関係なく、界面の剥離強さは増大することが明らかになった。しかし、表面処理にシリカを添加していないB群の試験体では膜厚の効果は界面の剥離強さにはその影響は現れな

い。したがって、このことから銅板の表面処理にシリカを添加することは界面の密着性に影響するばかりでなく、塗膜の破壊強さにも大きな影響を及ぼすことが示唆された。

### 5.3 塗膜の破壊状況と界面の剥離破壊

Fig. 6は定常な切削状態における銅板塗膜と密着界面との剥離破面（切削時間100秒，切削長さ200 $\mu\text{m}$ ）を連続的にデジタル顕微鏡で撮影し，この間の切削部をほぼ等間隔に3段階に分けて，塗膜厚さ別にその剥離過程を示したものである。なお，Fig. 6は，塗膜の剥離過程で刃先がStage 1, 2, 3と進む状況を示しており，上部の水平線（白黒の境界線）は塗膜表面と切削剥離部との境界を示しており，下部の白い面は塗膜が隔離し銅板の下地部が表れている状況である。したがって，剥離面の上に見える黒い部分は塗膜の剥離残存部を示している。また，この切削状況から分かるように，剥離面は一定の垂直力(3N)に対し剥離面がほぼ200 $\mu\text{m}$ の範囲にわたり均一に切削されていることから，刃先は精度良く界面を進んでいることが分かる。

#### (1) A群（シリカの添加あり）の破壊

A群の銅板塗膜界面の剥離状況（Fig. 6(a) 参照）は，銅板塗膜の厚さの増加に伴い多少銅板面の露出部は少なく塗膜残存部は広がっているが，塗膜残存部の破片の大きさには余り変化は見られない。特に，密着性の優れた銅板塗膜30 $\mu\text{m}$ のものでは，塗膜残存部の面積は比較的大きくなっているが，剥離破片の大きさには顕著な変化は見られない。また，塗膜破面の大きさは切削線図の水平力-時間線図に生ずる凹凸と関係するかと考えていたが，密着性の高い銅板塗膜厚さ30 $\mu\text{m}$ のものでも，剥離塗膜の破片の大きさにはほとんど変化は見られない。したがって，塗膜厚さ30 $\mu\text{m}$ の試験体の水平力-時間線図に生ずる凹凸は塗膜破片の大きさに影響されるのではなく，界面の剥離強さの増大に伴う剥離抵抗の増大に伴うものと考えられる。したがって，銅板塗膜の界面の破壊状況より，A群の界面処理では，銅板塗膜の厚さが薄いと塗膜強さは増大するが，このような効果は界面の剥離強さには影響なく，密着性の増大には寄与しないことが明らかになった。したがって，塗膜厚さと塗膜破片の大きさとの間には余り顕著な関係が見られないことから，塗膜厚さと界面剥離の破壊状況との明確な関連が把握出来なかったが，このようなことは表面処理の効果が塗膜の密着性に何らかの影響を与え，剥離強さの増大となったと考えている。

#### (2) B群（シリカの添加なし）の破壊

B群の銅板塗膜界面（Fig. 6(b) 参照）の剥離面積はA群のものに比べ広く，塗膜残存部の面積は20~30%程度少ない。すなわち，界面の破壊状況からもB群の表面処理では，塗膜厚さの増加は銅板塗膜の密着性に関してはほとんど効果のないことが界面破壊の状況からも明確となった。したがって，B群の表面処理では銅板塗膜の厚さには界面の密着性にほとんど効果がなく，銅板塗膜の厚さの増加と

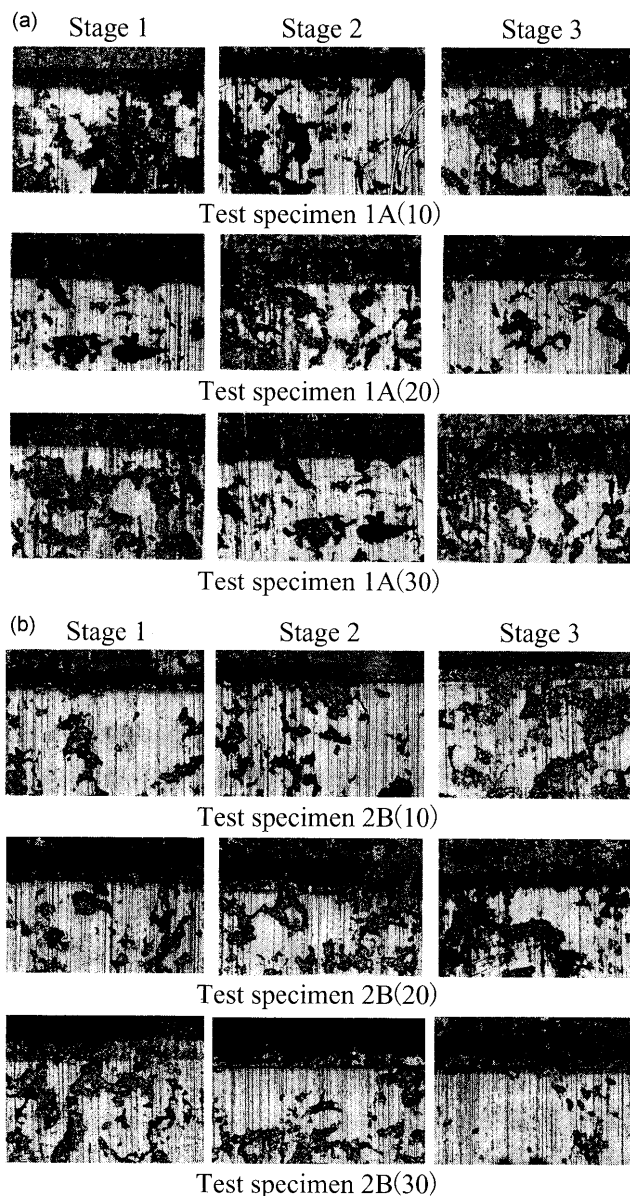


Fig. 6. Fracture surface of interfacial coating film. (a) Fracture surface of 1A test specimen. (b) Fracture surface of 2B test specimen.

共に銅板塗膜の残存部は多少減少し。また，塗膜の破壊強さについては塗膜厚さの変化に影響が現れたが，塗膜の破片の大きさには顕著な変化は見られなかった。したがって，A群，B群の銅板塗膜の接着界面の破壊状況からも，A群の表面処理の効果は塗膜厚さが10~30 $\mu\text{m}$ の範囲では有効に機能していることが示される。しかし，B群については銅板塗膜の厚さの影響は余り明確には現れなかった。

## 6. 結言

銅板塗膜の密着性に関する因子として塗膜界面の処理方法と塗膜厚さの関係を明らかにするため，汎用のアルキド・メラミン樹脂を用いた銅板塗膜（シリカ含有量：30 wt%）について，サイカス法により塗膜/銅板の界面密着特性に

ついて検討した。試験は塗膜界面を切削し、鋼板塗膜の厚さが塗膜鋼板面での剥離強さと塗膜の破壊強さ等にどのような影響を与えるか検討した。

(1) 「還元クロム酸+シリカあり」の処理方法 (A実験群) では、鋼板塗膜の厚さの増加に伴い塗膜の密着特性は増大する。しかし、「還元クロム酸+シリカなし」の処理方法 (B実験群) では、鋼板塗膜の密着特性に塗膜厚さの影響は見られなかった。

このことは「還元クロム酸+シリカなし」の処理方法では、塗膜の厚さを増大させても鋼板の表面処理方法にシリカが介在しないため、塗膜との界面の密着特性に塗膜厚さの効果が現れないことが明らかとなった。

(2) 鋼板塗膜のせん断強さはA群、B群の試験体とも鋼板塗膜の薄い10 $\mu\text{m}$ のもが一番大きな値を示した。しかし、A群の試験体は塗膜厚さが増大するに伴い、塗膜のせん断強さは低下した。一方B群の試験体では塗膜のせん断強さは塗膜厚さ20 $\mu\text{m}$ で一旦低下するが、塗膜厚さ30 $\mu\text{m}$ で、また僅かばかり増大することが示される。

このことは鋼板塗膜のシリカ含有量が30 wt%と高いために、塗膜厚さが10 $\mu\text{m}$ 程度あれば塗膜の破壊強さは適度の変形に耐えることができ、塗膜の特性が発揮されるが、

膜厚の増加に伴い、塗膜の剛性が増大し破壊強さの低下を生じると考える。したがって、このことは塗膜の破壊強さは界面の密着性、塗膜のシリカ含有量などにより影響を受けるので、塗膜厚さは余り必要以上に厚くしても塗膜の破壊防止には効果の無いことが示唆される。

## 文 献

- 1) T.Handa, Nozi and Takazawa: *Coat. Technol.*, **31** (1996), 105.
- 2) 西山逸雄: 96/3 高分子可能性講座, 講演要旨集, (1996), 42.
- 3) T.Handa and Nozi: *Coat. Technol.*, **34** (1999), 4.
- 4) Ishihara, Iwata and Sasaoka: *Coat. Technol.*, **41** (2006), 238.
- 5) Iwata and M.Sato: *Seikei Kakou*, 特別セッション IV, **D203** (2001), 199.
- 6) Koga, Kanai, M.Nagase and Hashimoto: *Coat. Technol.*, **41** (2006), 310.
- 7) Nishiyama: *Tosou Gizyutu*, **34** (1995), 123.
- 8) Nishiyama: *Tosou Gizyutu*, **34** (1995), 129.
- 9) 中内秀雄, 滝澤俊樹, 齋藤伸二, 小野 正: 日本建築学会大会学術講演梗概集 (九州), (1998), 279.
- 10) 中内秀雄, 滝澤俊樹, 小野 正: 日本建築学会大会学術講演梗概集 (中国), (1999), 65.
- 11) M.Takeda, Matoba, Ohishi and Ishimine: 11th Symp. on Micro-joining and Assembly Technology in Electronics, Yokohama, (2005), 285.
- 12) Kizima and Nishiyama: *J. Adhes. Soc. Jpn.*, **41** (2005), 234.
- 13) M.E.Merchant: *J. Appl. Phys.*, **16** (1945), 267.