

令和 2 年 5 月 20 日現在

機関番号：10101

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2019

課題番号：18K13652

研究課題名（和文）固体表面へのぬれ性に着目した粘着界面におけるはく離進展クライテリアの確立

研究課題名（英文）Criteria of Peeling Process on Soft Adhesion Interface Based on Wettability of Solid Surface

研究代表者

高橋 航圭（Takahshi, Kosuke）

北海道大学・工学研究院・准教授

研究者番号：60619815

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、粘着テープのはく離強度を表す新しい評価指標を提案した。粘着テープを被着体に貼り付けて端から剥がすピール試験と、粘着面に押し付けたプローブを剥がすプローブタック試験をそれぞれ実施し、両者の共通点に着目して実験結果を整理した。結果、粘着テープをはがすのに要するはく離エネルギーは、試験方法に関わらず粘着剤層のひずみ速度で表せることが明らかとなった。さらに、粘着剤を構成する材料の重合度によって粘性を変えた粘着テープでも両試験の結果は一致し、材料固有の指標となりうることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまで、粘着テープのはく離強度が粘着剤層・基材の厚さやはく離速度に依存するために、材料が定まっても製品個別にはく離試験をして強度を保証する必要があった。本研究は、粘着剤を構成する材料の粘弾性と粘着剤層の変形速度からはく離エネルギーを推定できることを明らかにした。これにより、シミュレーション等で粘着剤のはく離速度を算出すれば、実際にはく離試験をしなくとも粘着テープのはく離強度が推定可能になり、粘着製品の設計を大幅に効率化できる。

研究成果の概要（英文）：In this study, we suggested the failure criteria of adhesive tapes. Peel test and probe tack test were individually conducted to extract a common property between these tests, which represent essential adhesion strength of PSA (Pressure-Sensitive Adhesive) tape. The separation energies obtained from these tests were compared in terms of strain rates of PSA layers during separation process. PSA tapes of different visco-elastic properties were prepared by changing the amount of the curing agent in order to also investigate the influence of visco-elasticity of the PSA material. As a result, it was found that the separation energy is an identical property of PSA tape, which is logarithmically proportional to strain rate of PSA layer

研究分野：材料強度、接着接合、複合材料

キーワード：接着 粘着 ひずみ速度 はく離エネルギー

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

セロハンテープに代表される粘着テープは、用途に応じてあらゆる表面に接着できる上に、不要になれば痕跡を残さず綺麗にはく離でき、工学的に非常に優れた材料である。このような性質から、エレクトロニクス産業を中心に用途が急増しており、機能性フィルムの貼り合わせによるディスプレイの薄型化、ウェーハの粘着固定による IC チップ積層工程の簡略化等、競争力の向上には必要不可欠な要素技術になっている。また、医療分野では縫合手術の代替として体内器官に直接貼付できる粘着テープの開発も進められており、新しい用途への応用も期待されている^{1,2}。しかし、粘着テープの性能は経験的な知見に基づく化学的、材料科学的なアプローチから向上してきた側面が強く、用途個別に試行錯誤を繰り返す地道な研究開発に頼っているのが現状である。これは、粘着現象のメカニズムが十分に解明されていないことが原因であり、材料や界面に生じる力とそれに伴う変形に基づく効率的で汎用的な粘着テープの性能評価指標が求められている。

2. 研究の目的

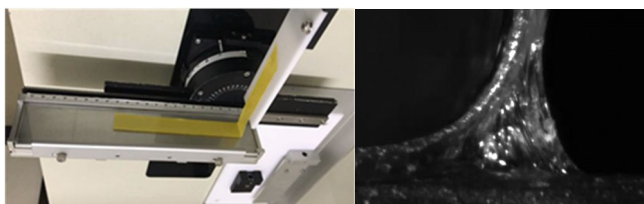
本研究課題では、粘着テープを構成する材料と被着剤との界面に生じる力と変形量を評価する材料力学的なアプローチから粘着現象のメカニズムを解明し、粘着界面におけるはく離進展クライテリアを確立する。粘着現象が、定性的には「固体表面へのぬれ性」と「粘着剤の変形抵抗」で解釈されていることから、はく離におけるこれらの効果に着目する。粘性とぬれ性の異なるサンプルを用い、はく離様式の異なる二種類のはく離試験から得られるはく離エネルギーを比較することで、材料の力学特性と寸法で定まる汎用的な評価手法の確立を目的とする。

3. 研究の方法

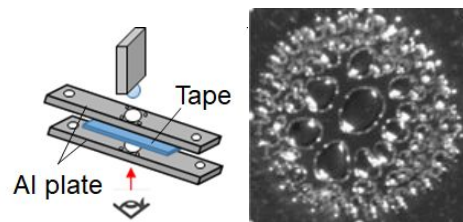
(1) 試験機ならびにサンプルの準備

試料として同種のモノマーを異なる重合度で合成したゴム系の粘着テープを用意した。日本ゼオン(株)製の Quintac®SL-188 および SL-189 を主材とするゴム系粘着剤を厚さ 50 μm の PET 基材に塗工したものである(以下、それぞれ SL-188 テープ、SL-189 テープと略す)。SL-188 テープは、SL-189 テープに比べて重合度が低く、粘着剤を構成する弾性体のスチレンとイソプレンからなる SIS トリブロック構造が短い構造になっている。SL-188 テープの方がスチレン含有量は高いため、硬度の高い粘着剤である。これらは、同種のモノマーであることから被着材へのぬれ性は同等で、異なる重合度によって粘性の違いを狙ったサンプルである。

粘着テープのはく離強度試験としては、被着体に貼付して一端から引き剥がすピール試験と、粘着面にプローブを押し付けて剥がすプローブタック試験が一般的に行われる。そこで、粘着剤のはく離試験を高精度化を行うために、まずは試験機の整備に注力した。ピール試験には図 1(a) に示す粘着被膜のはく離解析装置 VPA-2 (協和界面科学株式会社) を導入し、試験中に HAS-L1 ハイスピードカメラマイクロスコープ MH130EX-K (松電舎) を用い、図 1(b) のようにはく離部を側面から撮影できるようにした。25 mm 幅の粘着テープの一部を PMMA 板に貼り付けて 20 分間放置した後、はく離角度 90° で試験速度 0.05, 0.5, 5 mm/s で引きはがした際のはく離力を測定した。また、万能試験機を応用したプローブタック試験用の治具を作製し、図 2(a) のようにアルミニウム板で挟んだ粘着テープに球状のプローブを押し付けた際のはく離面の様子を、図 2(b) のように観察できるようにした。粘着テープに直径 3/8 インチの PMMA 球プローブを速度 0.1 mm/s で押し付け、圧縮力 0.1 N で 20 分間保持した後、試験速度 0.03 から 3 mm/s の速度で引きはがした際のはく離力を測定した。



(a) 試験機の外観 (b) はく離部側面の拡大図
図 1 ピール試験機によるはく離試験



(a) 試験機の概観 (b) はく離裏面の拡大図
図 2 タック試験機によるはく離試験

(2) はく離様式に着目したはく離強度の導出

粘着テープのはく離強度が、試験条件に依らない材料固有の指標となるように評価する手法を提案した。一般的に、ピール試験とプローブタック試験で得られる結果は、それぞれはく離強度、タック強度という個別の評価指標とされている。しかし、ピール試験のはく離過程における粘着剤層の荷重分布は、粘着剤を一様に引きはがすプローブタック試験で得られる荷重の推移に類似しており、両者は同一の特性を単に別の視点で見ているに過ぎないことが示唆されている^{3,4}。そこで、同じ粘着テープに対してピール試験とプローブタック試験を個別に行うことで、両試験で得られるはく離エネルギーに着目し、はく離過程における粘着剤のひずみ速度と関連付けて比較した。

4. 研究成果

(1) ピール試験ならびにプローブタック試験の計測結果

SL188 テープで行ったピール試験の結果を図 3 に示す。変位が 5 mm までにははく離が開始し、以降は定常的なはく離となることが確認できた。SL189 テープでも同様に計測したところ、全てのはく離速度において粘性の高い SL188 の方が 1 割程度大きいはく離力を示した。次に、SL188 テープで行ったプローブタック試験の結果を図 4 に示す。はく離速度に関わらずはく離力が増加していく傾きは同等であるが、速度が大きいほど最大荷重が大きくなる結果となった。また、接着界面近傍におけるキャビティが膨張によるわずかな荷重低下と、フィブリル伸長によるその後の緩やかな荷重増加も確認することができた。SL189 でも同様に計測したところ、ピール試験と同じく最大荷重は SL188 の方がわずかに大きな値となった。

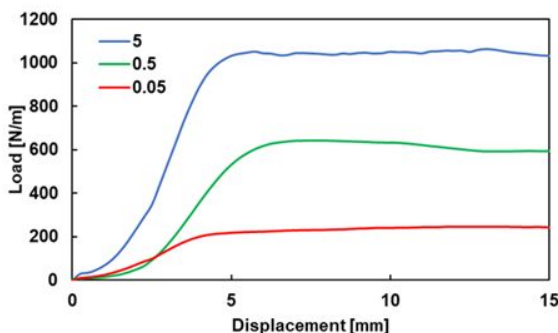


図 3 ピール試験結果の例

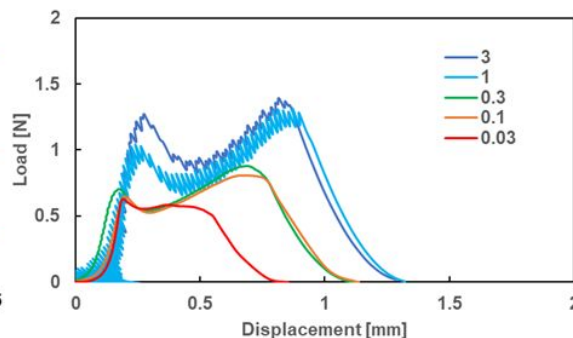


図 4 タック試験結果の例

(2) 粘着剤層のひずみ速度とはく離エネルギーの関係

ピール試験とプローブタック試験から得たひずみ速度とはく離エネルギーの関係を図 5 に示す。塗りつぶしたマーカーがピール試験、白抜きしたマーカーがプローブタック試験の結果である。SL188 テープの結果を赤、SL189 テープの結果を青で示している。はく離エネルギーとひずみ速度の関係は、両方の試験で同等であることが確認できた。したがって、ピール試験で得られるはく離荷重は、プローブタック試験におけるはく離過程の合力であることを示すことができた。重合度を変えることで粘性を変えた粘着テープでも、ピール試験とプローブタック試験で個別に求めたはく離仕事とひずみ速度の関係は同等であり、硬度の高い SL188 テープで得た結果は、SL189 テープよりも大きな傾きを示した。つまり、試験方法の違いによる測定結果の違いは、粘着剤層のひずみ速度とはく離エネルギーの関係として整理することで同一の結果に集約でき、図 5 の傾きを材料固有の指標として用いることができる。

一方で、同じ材質で粘着剤厚さを変えた粘着テープの場合には、ピール試験とプローブタック試験の結果は一致するものの、はく離仕事とひずみ速度の関係は異なる結果となってしまった。現状の評価方法によるはく離仕事は、はく離に伴って生成した表面エネルギーで消費されたことになっているが、実際には粘着剤の変形によってもエネルギーが消費されているために、粘着剤厚さによる結果の違いにつながったと考えられる。今後、はく離仕事における表面エネルギーと粘着剤層での散逸エネルギーの割合に着目していくことで、材料固有の指標として汎用的なはく離強度評価手法の確立が期待できる。

く離エネルギーの関係

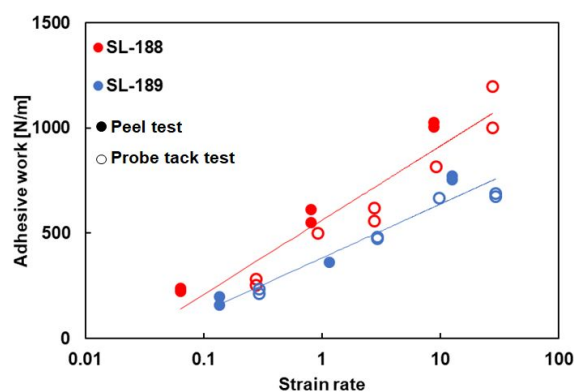


図 5 粘着剤層のひずみ速度とはく離エネルギーの関係

< 引用文献 >

1. Li, J. *et al.* Tough adhesives for diverse wet surfaces. *Science* **357**, 378-381 (2017).
2. Baik, S. *et al.* A wet-tolerant adhesive patch inspired by protuberances in suction cups of octopi. *Nature* **546**, 396-400 (2017).
3. Kaelble, D. H. & Aelble, D. H. Peel Adhesion: Micro-Fracture Mechanics of Interfacial Unbonding of Polymers. *Trans. Soc. Rheol.* **92**, 135-163 (1965).
4. Pandey, V., Fleury, A., Villey, R., Creton, C. & Ciccotti, M. Linking peel and tack performances of pressure sensitive adhesives. *Soft Matter* **16**, 3267-3275 (2020).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 高橋航圭, 中川源, 藤村奈央, 中村孝
2. 発表標題 粘着剤層を考慮したピール試験の有限要素解析
3. 学会等名 第56回日本接着学会年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kosuke Takahashi, Ryuto Oda, Kazuaki Inaba, Kikuo Kishimoto
2. 発表標題 Characterization of Fibrillation Process by Probe Tack Test in Various Scales
3. 学会等名 12th European Adhesion Conference (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 笹木達弥, 高橋航圭, 藤村奈央, 中村孝
2. 発表標題 粘着力発現における粘弾性の寄与に関する実験的検討
3. 学会等名 日本機械学会 M&M2019材料力学カンファレンス
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kosuke Takahashi, Tatsuya Sasaki, Nao Fujimura, Takashi Nakamura
2. 発表標題 A common feature between peel test and probe tack test based on strain rate of PSA layer
3. 学会等名 43rd Annual Meeting, The Adhesion Society (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----