

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 山口 哲生

粘着とは、乾燥や化学反応なしに被着物どうしをはり合わせることである。粘着の現象は、粘着テープなどの日用品から、保護フィルム、医療品、LCD パネルにいたる広範な分野で重要である。しかし、多くの応用にも関わらず、粘着の研究は比較的新しく、粘着特性を高分子の物性と結びつけて理解しようという研究は少なかった。山口哲生君提出の論文、**Debonding dynamics of soft adhesive**(粘着剤の剥離過程のダイナミクス)は、粘着剤の特性試験の一つであるプローブタック試験に関して、物理的な観点から研究をおこなったものである。

プローブタック試験とは、硬い基板に塗った粘着剤に、円柱状のプローブを押し付け一定時間保持したのちにプローブを引き離し、そのときの引き離し距離と応力を測るものである。プローブタック試験の引き離し過程において、粘着剤中にキャビティと呼ばれる空孔が発生することが観察されているが、キャビテーションのメカニズム、粘着特性に与える影響、表面エネルギー・粘弾性などの物性との関連についてはほとんどわかっていなかった。本論文は、この現象に対して、実験と理論・シミュレーションの両面からの研究をまとめたものであり、3つの研究からなる。

(1) プローブタック試験の応力とキャビティ生成の実験

山口君は、プローブタック試験において、粘着剤を引張りつつ、その内部構造を直接観察する手法を開発し、キャビテーションと生成、成長過程と応力の関連を詳細に調べた。粘着剤中のキャビテーションの可視化実験は多数報告されているが、これまでの実験はガラス基板を通して下から観察されたものであった。このような観察法では、粘着剤の剥離特性に重要なキャビティの立体形状に関する情報が得られていなかった。そこで山口君は、ガラス基板の横側から見ることにより、ほとんど水平に近い角度でキャビテーション挙動を観察する方法を開発した。

架橋密度の異なる3種類のアクリル系粘着剤試料を作成し、引張試験機を用いて引離しを行ないながら可視化実験を行なったところ、架橋密度を増すにつれ、引離し応力はピーク後に急激に減少することを見出した。この現象は、架橋密度を増すにつれキャビティ端での応力集中や沿面方向のキャビティ成長が促進されてキャビティ同士が早く合一しやすくなるということによって説明した。

(2) プローブタック試験の数学的モデルの提出

次に山口君は、粘着剤引離し挙動を理解するためのモデルを提案した。プローブタック試験に関しては、これまでは粘着剤を線形弾性体やニュートン粘性流体とみなす簡単な解析しか行われていなかった。実際の粘着剤は、粘弾性体であり、引き離し過程は多数のキャビティが成長する複雑な過程である。山口君は、引離しに伴う負圧の生成とキャビテーションの競合こそが現象の本質であるとの立場に立ち、粘着剤の内部の負圧分布とキャビティの成長を記述する2つのモデル(2次元ブロックモデル及び3次元ブロックモデル)を提案した。

2次元モデルでは、粘着剤を2次元の非圧縮性をもったブロックの集まりだとみなし、各ブロックに(i)1軸伸張(ii)ポアズイユ形のずり変形(iii)界面での滑り、という単純な変形や運動モードを仮定した。また、ブロック間の隙間をキャビティだとして、キャビティ体積と内部圧力との関係式を導入した。更に粘弾性流体の構成方程式であるUpper-convected Maxwell modelを用い、粘着剤中の変形や応力の時間発展を計算した。このモデルには、粘着剤の粘弾性、キャビテーション、界面でのすべりの効果が考慮されている。このモデルによる計算の結果、示すような応力-歪み曲線や粘着剤中の変形、キャビ

ーションを表現することができ、実験で見られるふるまいを定性的に再現することができた。

しかし、2次元のブロックモデルには、二つの問題があった。(i)実際の粘着剤の変形は2次元モデルで仮定されているような平面歪ではない、(ii)モデルでは粘弾性流体の構成方程式が用いられているが、実際の粘着剤は架橋されているため粘弾性固体として取り扱うべきである。そこで山口君は、これらの点を改める改良したブロックモデルを考案した。まず、連続体力学から出発しモデルの3次元化を行った。さらに、粘着剤のバルクの変形とキャビティー周辺の変形速度の違いに着目し、バルクの変形はフック超弾性体で扱い、キャビティーの成長則に粘弾性を考慮することにより、粘着剤のレオロジー特性を考慮した。このモデルにより、円柱状のプローブの引き離しの計算を行い、実験において見られる引き離し速度依存性や多数のキャビティが不均一に成長する様子を再現できることを示した。

(3)フック超弾性体に対する解析

粘着剤引き離しの単純なモデルとして、山口君は、超弾性構成方程式に従う2枚の平板に挟まれたゴムの引き離しに関する定式化を行ない、応力-歪み曲線や変形挙動を表現する解析解を得た。これまで、非線形弾性を示す弾性体の大変形時の挙動については、単純なずり変形や1軸伸張変形を除き、解析解は求められていなかった。山口君は、ゴムを2枚の剛直な平板に挟み、平板を引き離したときの応力-歪み曲線を解析的に求めた。得られた応力歪曲線には応力の極大があり、線形弾性体の応力歪曲線と大きく異なっている。この結果は有限要素法を用いた数値計算と良好な一致を見せることも示された。また、ゴムの厚み依存性など実用上重要な情報についても、解析的な表現を得ることができた。

以上のように本研究は、粘着という重要であるが基礎研究の少ない分野に取り組み、新規な観察法とモデル化により、粘着研究に新展開をもたらしたものである。よって本論文は博士(工学)の学位請求論文として合格と認められる。