

[別紙 2]

論文審査の結果の要旨

申請者氏名 坂口陽一郎

粘着剤は身の回りの日用品から工業用途まで幅広く利用され今や欠かせないものとなっている。その粘着剤が加工された粘着テープや粘着ラベルなどの粘着製品は、特に瞬間接着性、応力緩和性、再剥離性といった粘着剤の特出した機能によって、今や半導体、光学ディスプレイなどの最先端産業へ応用範囲を広げ、ますます産業資材として確固たる地位を築いてきている。これに伴い、粘着剤に対する要求も厳しさを増し、耐久性や耐熱性、高透明性など機能は細分化し、求められる水準は高くなってきている。今日、これらの要求を充たすために、信頼性を重視し、数多くの材料評価を行い、製品化を目指すことができる粘着技術が求められている。

タッキファイヤー（粘着付与剤）含有粘着剤の実用特性は、相構造、粘弾性的挙動、界面化学に大きく影響を与えることが明らかとなっている。また、ポリマー及びポリマーブレンドにおいては、バルクと表面では組成及び物性が異なるといったことが報告されている。しかし、従来の接着評価方法で得られているのはバルクに関する評価のみで、表面に注目した研究は近年になるまであまり重要視されておらず、粘着や接着の分野で現在求められているテーマの一つでもある。さらに、粘着剤は被着体から剥がすとき、跡の残りなくキレイに剥がせること、つまり被着剤-粘着剤の界面で破壊が起こることが求められる。特にエレクトロニクス分野で使用される粘着剤においては、分子レベルでの非汚染性が要求される。このような高度な要求を満たすためには、粘着剤-被着体界面の非常に微視的なスケールにおける、接着破壊メカニズムの基本的な理解も必要である。

以上を踏まえて、本研究では AFM システムによる微視的なスケールにおける接着-破壊メカニズムの理解と解析方法の確立、さらに既存の試験方法との比較・検討を行っている。

対象とされた粘着剤系はスチレン・イソプレン・スチレン (SIS) ブロック共重合体/石油系タッキファイヤー系ブレンド、アクリルポリマー/ロジン系タッキファイヤーブレンド系、アクリルポリマー/テルペン系タッキファイヤーブレンド系の三種である。この全ての系において走査速度-摩擦力曲線はマスターカーブを作成することが可能であった。また、走査速度-摩擦力曲線のピークの前で破壊形態が異なり、マクロな接着破壊現象である界面破壊、凝集破壊と同様な形態を示すことが分かった。またマスターカーブを作成する際に計算された見かけの活性化エネルギーを検討することで、このナノ接着破壊挙動がマクロなローリングシリンダータックの破壊挙動に類似していると結論つけることが出来た。ここでは紙面の関係からアクリルポリマー/ロジン系タッキファイヤーブレンド系を例として以下に詳述する。

図 1 に相溶系の 110TU40 系の走査速度-摩擦力曲線を示す。温度の上昇と共に摩擦力が高速度側にシフトしていることが分かる。これはマクロな接着破壊挙動と同様な傾向を示し、マスターカーブを作成することが出来ると考えられる。

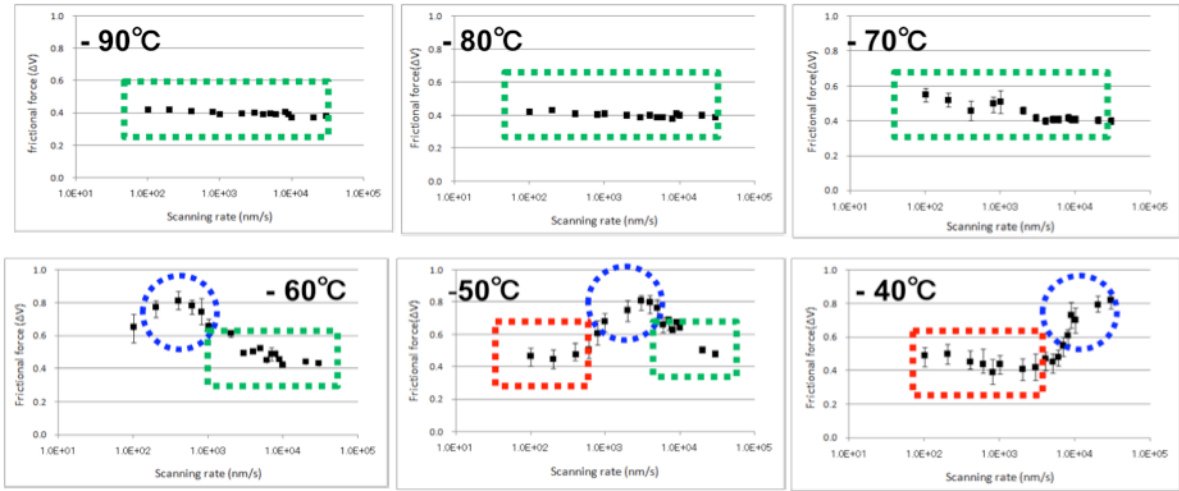


図1 110TU40 ブレンドの走査速度- 摩擦力曲線 (-40～-90℃)

図2に110TU系のマスターカーブを示す。これらのマスターカーブのシフトファクターはアレニウス型であった。タッキファイヤーの含有量が増加すると走査速度—摩擦力曲線は低速度側にシフトすることが分かった。これはタッキファイヤーの含有量に伴いブレンドのガラス転移点が上昇することに起因しており、粘着剤バルクのレオロジーが粘着性能に大きく支配されているのと同様に、ナノ表面の破壊においても表面レオロジーの影響を大きく受けていることを示している。

摩擦力測定後の表面を観察し、表面にチップの痕跡がある場合を表面の界面破壊、無い場合を凝集破壊、不連続な痕跡をスリップスティックとして、それをマスターカーブ上に示したのが図3である。このように摩擦力のピークを境に界面破壊と凝集破壊が分かれ、ピーク前後ではスリップスティック破壊が生じることが確認できた。この傾向もバルクの接着破壊の傾向に類似したものであると分かった。

以上のように本論文は、粘着剤の表面のナノ破壊挙動について原子間力顕微鏡の摩擦力と通じて評価したものであり、手法、結果共に粘着剤の科学研究において大きな成果を残したといえる。よって、審査委員一同は、本論文が博士（農学）の学位論文として価値あるものと認めた。

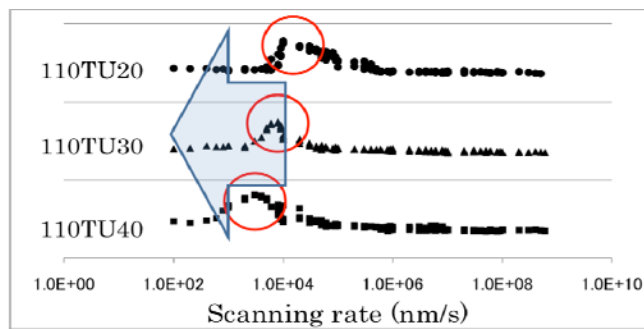


図2 110TU系ブレンドの走査速度—摩擦力曲線のマスターカーブ

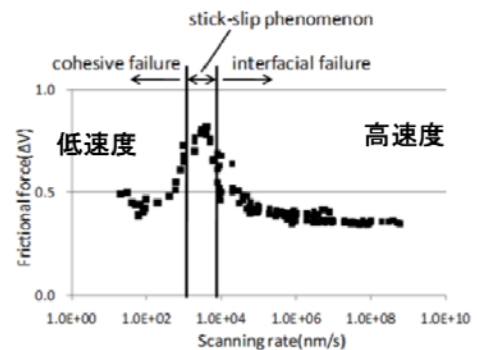


図3 マスターカーブと破壊形態