<研究論文>

(受理:平成22年7月16日)

プローブタック試験によるタックの接触時間依存性と温度依存性
から評価したアクリル系ブロックコポリマーの接着特性中村 吉伸*・今村 圭吾**・伊東 慶子**・茄子由香利**
大田 和栄**・藤井 秀司**・佐々木眞利子***・浦濱 圭彬****

要 旨

接着強さは被着体との界面の密着性と接着剤自身の凝集力の2つの因子に依存する。アクリル系ブロックコポリマーの接着特性をプローブタック試験で評価した結果から、界面の密着性と凝集力の相対的な寄与の割合について考察した。ポリメタクリル酸メチル-*block*-ポリアクリル酸ブチル-*block*-ポリメタクリル酸メチルトリブロックコポリマー単独(A)、これにポリメタクリル酸メチル-*block*-ポリアクリル酸ブチルジブロックコポリマーを加えた系(B)、およびポリアクリル酸ブチルオリゴマーを加えた系(C)を試料とした。タックの接触時間依存性では、タックは $B \approx C > A$ で接触時間とともにゆるやかに上昇した。タックの温度依存性では、室温以上にタックのピークが出現し、ピーク温度は $A > B > C$ の順に高かった。引張試験、動的粘弾性による凝集力を反映する強度や弾性率は $A > B \approx C$ 、 ^1H パルス核磁気共鳴法によるポリアクリル酸ブチルセグメントの分子運動性は、 $C > B > A$ であった。以上の結果から、検討した系では接着強さに対する相対的な界面の密着性の寄与が $C > B > A$ の順に大きいと推定した。

1. 緒 言

著者らは、タッキファイヤによる粘着剤の粘着性発現メカニズムの解明を目的とした一連の研究を行っている^{1~9)}。既報⁶⁾では、ポリメタクリル酸メチル(PMMA)-*block*-ポリアクリル酸ブチル(PBA)-*block*-PMMAトリブロックコポリマー(MAM)をベースポリマーとし、タッキファイヤあるいはポリアクリル酸ブチルオリゴマーを添加したモデル粘着剤を作製した。ローリングタック試験機によるタックの速度依存性を測定し、これと粘着剤自身の貯蔵弾率の周波数依存性を比較することから粘着性発現メカニズムを考察した。その結果、いずれの系もタックは速度とともに上昇し、粘着剤自身の粘弾性の周波数依存性と傾向が

よく一致していた。粘着強さは被着体との界面の密着性と接着剤自身の凝集力の2つの因子に依存する。上述の結果から検討した系のタックには、凝集力の方が界面の密着性より相対的に寄与が大きいと推定した。しかしながら、両者の寄与の程度を明らかにする手法は確立されていない。

本研究では、MAMをベースポリマーとして易動性を向上させるためにPMMA-*block*-PBAジブロックコポリマー(MA)やPBAオリゴマーを添加した系のタックを、プローブタック試験機を用いて接触時間や測定温度を変化させて測定した。この結果より、粘着強さへの凝集力と界面の密着性の相対的な寄与の程度について考察した。

2. 実験方法

2.1 試 料

MAM(M_w : 80,000, PMMAセグメント含有量: 23 wt%, LA2140e, (株)クラレ), MA(M_w : 86,000, PMMAセグメント含有量: 6.3 wt%, LA1114, (株)クラレ)およびPBAオリゴマー(M_w : 3,000, Arufon UP-1000, 東亜合成(株))は、それぞれ提供されたものをそのまま用いた。溶媒として試薬級の市販のトルエンを使用した。

* 大阪工業大学工学部応用化学科

大阪工業大学ナノ材料マイクロデバイス研究センター
大阪市旭区大宮 5-16-1 ☎ 535-8585

** 大阪工業大学工学部応用化学科

大阪市旭区大宮 5-16-1 ☎ 535-8585

*** 日東分析センター

埼玉県深谷市幡羅町 1-8-5 ☎ 366-8521

**** 日本粘着テープ工業会

東京都千代田区内神田 1 丁目 9-12 ☎ 101-0047

(原稿受付日:平成22年5月31日)

2.2 評価用試験片の作製

MAM 単独を S-A, MAM/MA (7/3, w/w) 混合系を S-B, MAM/PBA オリゴマー (8/2, w/w) 混合系を S-C とし, 50 wt% トルエン溶液を作製した。これらの溶液を厚さ 38 μm の PET フィルムおよびシリコン離型剤を塗布した PET フィルム上に, 最終的な粘着剤層が約 50 μm になるようにアプリケーションを用いて塗工し, 乾燥機で 100°C, 10 分間加熱してトルエンを蒸発させた。

より厚い試験片の作製は, トルエン溶液をセパレータで作った底面が約 100×100 mm の箱へ流延して約 1 週間室温で放置してトルエンを蒸発させ, 厚さ約 2 mm のシートを作製した。

2.3 力学特性

シリコン離型剤を塗布した PET フィルム上に塗工した厚さ約 50 μm の試料フィルムを 50×50 mm に切断してこれを円筒状に丸め, 引張試験機 (AG-5kNIS, (株) 島津製作所) で引張速度 300 mm/min, チャック間距離 10 mm で引張試験を行い, 応力-歪曲線を測定した。

2.4 動的粘弾性

2.2 で作製した厚さ約 2 mm のシートを, 9×40 mm に切断して試験片とした。動的粘弾性測定装置 (DMS-6000, エスアイアイナノテクノロジー (株)) を用い, 引張モード, 測定温度範囲 -80~200°C, 周波数 10Hz, 昇温速度 2°C/min, 歪 8 μm の条件で測定した。

2.5 分子の運動性

既報^{1~8)}と同様に分子の運動性を ¹H パルス核磁気共鳴分析装置 (パルス NMR, JEOL-JNM-MU25, 共鳴周波数 25 MHz, 日本電子 (株)) を用いてソリッドエコー法で測定した。測定条件は, 積算回数 128 回, ラジオ波のパルス幅 2.2 μs , パルス間隔 8.0 μs , パルス繰り返し時間 4.0 s, サンプリング時間 2 ms で 35°C を基準に温度を変化させた。得られた結果は, Tanaka ら^{10,11)} や既報^{8,12,13)} の手法にしたがってスピンスピン緩和時間 (T_2) を 2 つに分割するとともに, それぞれの成分に帰属するプロトンの相対的な比率をもとめた。

2.6 タック

タックは, プローブグタック試験機 (TE-6002, テスター産業 (株)) を用いて測定した。プローブは直径 5 mm で, ステンレス (SUS304) 製のものが基準である。この装置でタックは以下のように測定する。① 2.2 で作製した PET フィルム上に塗工した試験片をボビン状の重りに貼り付け, その重りを支持板上に置く。試験開始で支持板が一定速度 (本実験では 10 mm・s⁻¹ に設定) で下降する。

② 固定されているプローブが重りを突き上げると, 一定荷重での接触が開始する。接触時間は, 30 s を基準に 1 から 3000 s の範囲で変化させた。③ 一定接触時間後に支持板が 10 mm・s⁻¹ で上昇し, シートからのプローブの引き剥がしが起こる。このときの応力-変位曲線を記録し, 最大荷重からタックを算出した。また, その面積からタックのエネルギーを算出した。本実験では, 試験片を貼り付けた重りの質量は 10 g であり, 重りによる圧着力は 0.10 N になる。測定の模式図は既報⁸⁾ に示した。

本装置の測定部分は温度を変化させることが可能であるので, 0 から 80°C の範囲で測定を行った。①~③のすべての過程が設定した温度で行われる。

プローブは SUS 以外に, ポリテトラフルオロエチレン (PTFE), ポリプロピレン (PP), ポリエチレン (PE), PMMA, ポリ塩化ビニル (PVC), ポリカーボネート (PC) およびポリオキシメチレン (POM) で作製したものを, 合計 8 種類の被着体に対するタックを評価した。

なお, タック値の単位は直径 5 mm のプローブでの測定値という意味で “N・(5 mm ϕ)⁻¹” で示した。タック測定時のプローブの接触面積を実測していないので, 単位面積当りの値として算出していない。

3. 結果と考察

本研究で用いた S-A, S-B および S-C の組成は, MAM 単独, MAM/MA (7/3, w/w), MAM/PBA オリゴマー (8/2, w/w) である。MA と PBA オリゴマーで添加割合が異なるのは, S-B と S-C の PMMA ブロック含有量がほぼ揃えるためである。本研究で用いた MAM と MA の PMMA ブロック含有量は, 23 および 6.3 wt% であるので, S-A, S-B および S-C の PMMA ブロック含有量は 23.0, 18.0 および 18.4 wt% である。MAM と MA で PMMA ブロック含有量が異なるので, 3 種の試料を揃えることはできない。

本研究で用いた MAM は, PBA 連続相中に約 20 nm の PMMA の球状ドメインが分散する海-島構造を形成することを既報⁴⁾ で確認している。

Fig. 1 には, 応力-歪曲線を示した。MAM 単独の S-A は, 歪の増加にともなって応力が上昇し, 最終的に破断した。これに対して S-B および S-C は, 破断応力, 破断伸びともに低かったが, 両者に明確な差は見られなかった。破断応力と破断伸びは S-A > S-C $\approx$ S-B であり, これは凝集力が反映していると考えられる。

Fig. 2 には, 貯蔵弾性率 (E') の温度依存性を示した。MAM 単独の S-A は, -50°C 付近で E' の急激な低下が見られた。これは PBA のガラス転移温度 (T_g) に基づくものである。これ以上の温度では, E' が温度にともなってゆるやかに低下し (ゴム状平坦領域), 140°C 付近で急激に

Fig. 1 Stress-strain curves of MAM (S-A), MAM/MA (S-B, 7/3, w/w) and MAM/PBA oligomer (S-C, 8/2, w/w).

Fig. 2 Temperature dependency of storage modulus (E') for MAM (S-A, ○), MAM/MA (S-B, 7/3, w/w, △) and MAM/PBA oligomer (S-C, 8/2, w/w, □) measured by a dynamic mechanical analysis at a frequency of 10 Hz.

Fig. 3 Contact time dependency of tack for MAM (S-A, ○), MAM/MA (S-B, 7/3, w/w, △) and MAM/PBA oligomer (S-C, 8/2, w/w, □) measured by a probe tack tester at 23–25°C.

低下した。これに対してS-BおよびS-Cは、PBAの T_g に基づいて E' が低下する温度がS-Aに比べてわずかに低温側であった。また、ゴム状平坦領域での E' はより低かったが、両者に明確な差は見られなかった。

以上の力学特性と動的粘弾性の結果から、MAMに対してMAやPBAオリゴマーを添加することによって凝集力が低下することは明らかであったが、2種類の添加剤の効果は同程度であった。

Fig. 3には、プローブタック試験によるタックの接触時間依存性を示した。被着体はSUSである。試験後、目視でプローブ表面の試料の付着はなく、すべて界面はく離であった。MAM単独のS-Aは、接触時間とともにタックがゆるやかに上昇した。界面の密着性が接触時間とともに向上するためである。S-BおよびS-Cも、接触時間とともにタックがゆるやかに上昇したが、これらのタック値はS-Aより高かった。S-BとS-Cは、わずかに差があるが、ほぼ同レベルと判断した。なお、タック測定時の応力-歪曲線の面積からタックのエネルギーも算出したが、Fig. 3のタック値と傾向はまったく同じであった。

Fig. 1および2の結果より、凝集力はS-Aがもっとも高いはずであるが、タックはS-BおよびS-Cが高かったのは、これらの界面の密着性がより高いためである。接着強さであるタックは、被着体との界面の密着性と接着剤自身の凝集力の2つの因子に依存する。S-BおよびS-Cは、MAやPBAオリゴマーの添加による易動性の向上とともに界面の密着性が向上した。このような、タックに対する界面の密着性の効果を明らかにするために被着体を変化させてタックの測定を行った。本研究で用いたタック試験機は、プローブを交換することが可能であるので、標準のSUSと同じ形状のプローブを各種ポリマーで作製し、タックへの被着体の影響を検討した。

Fig. 4には、タックへの被着体の影響を示した。接触時間は30 sである。この図の横軸の臨界表面張力(γ_c)は、遠山ら^{14,15)}の値に基づいているが、彼らが検討していない被着体は他の文献¹⁶⁾から引用した。なお、遠山らはSUSの γ_c を明確に示していないので、この図も彼らの表示法と同様にした。いずれも界面はく離であった。タックは、被着体の影響を大きく受け、極性の低いPTFE, PP, PEでは低く、極性の高い被着体で高い値を示し、PVCの場合にもっとも高かった。既報^{17,18)}においてPVC/PMMAブレンドを検討した結果、相溶系であり¹⁷⁾、PMMAのカルボニル基とPVCの間に双極子-双極子相互作用が発現することを確認した¹⁸⁾。Fig. 4の結果もPMMAあるいはPBAセグメントのカルボニル基とPVCの間に同様の相互作用が発現したことによるものと考えられる。

また、いずれの被着体でもS-B, S-CのタックがS-Aのそれより高く、界面の密着性の向上に分子の易動性の影

Fig. 4 Effect of adherend on tack for MAM (S-A, ○), MAM/MA (S-B, 7/3, w/w, △) and MAM/PBA oligomer (S-C, 8/2, w/w, □) measured by a probe tack tester with a contact time of 30 s at 23–25°C.

Fig. 5 Temperature dependency of tack for MAM (S-A, ○), MAM/MA (S-B, 7/3, w/w, △) and MAM/PBA oligomer (S-C, 8/2, w/w, □) measured by a probe tack tester with a contact time of 30 s.

響が大きいことを示している。極性の高い被着体では、タックはS-Bの方がS-Cより高い場合が多かった。なお、プローブ表面はすべてサンドペーパー 2000 番で研磨した。SUS プローブ表面の凹凸を原子間力顕微鏡 (AFM) で測定した結果、幅と深さが約 1 μm 程度の溝状の傷が見られた。試料の粘着剤層の厚さ約 50 μm と比較して凹凸の影響は小さいと考えた。

以上のように被着体の種類によってはS-BとS-Cの違いが見られたので、これをより明確にするためにSUSに対するタックの温度依存性を検討した。

Fig. 5 には、0~80°Cの範囲でタックを測定した結果を示した。接触時間は30 sである。すべて界面はく離であった。S-Aは、温度とともにタックが上昇し、50°Cでピークを示してそれ以上で温度とともに低下した。S-Bもタックは温度とともに上昇したが、タック値や温度にともなう

上昇の程度はS-Aより大きく、30°Cでピークを示してそれ以上で温度とともに低下した。S-Cも低温側のタック値と上昇の程度がS-Bと同等であったが、20°Cでピークを示した。S-BとS-Cは、温度の上昇にともなって界面の密着性が向上していくが、S-Bの凝集力がS-Cそれより大きいためにピーク温度、ピークのタック値はS-Bがより高かった。

測定温度にともなって分子の易動性が上昇するので界面の密着性が向上するが、逆に凝集力は低下していく。低温側の温度にともなうタックの上昇は、界面の密着性が温度とともに向上していくためである。S-B、S-CがS-Aより高く、上昇の程度もより大きいのは、界面の密着性がより高く、温度上昇にともなうその向上の程度がより大きいことを示している。ピーク温度がS-A>S-B>S-Cの順に高かったことは、この3種で接着強さに対する界面の密着性の相対的な寄与の程度がS-C>S-B>S-Aの順に大きいこと、逆に凝集力の相対的な寄与の程度がS-A>S-B>S-Cの順であることを示している。つまり、タックの接触時間依存性だけでなく温度依存性も測定することにより、接着強さにおよぼす界面の密着性と凝集力の寄与の相対的な割合を推定できる可能性があることが分った。

ピーク温度におけるタック値はS-B>S-C>S-Aであった。接着強さは、界面の密着性と凝集力の2因子の和ではなく、積と比例関係にあると考えられる。なぜなら、凝集力が高すぎて界面の密着が得られない場合は接着強さが0となる。最大値がS-B>S-C>S-Aであったのは、ピーク温度で両因子の積がこの順になるように両因子が効果的に寄与したことを示している。

ところで、測定温度にともなって界面の密着性が向上し、凝集力は低下していくので、Fig. 5の同一サンプルにおけるピークの前後でタック値が同程度の場合でも、界面の密着性と凝集力の相対的な寄与の程度の違いから、タックの応力-変位曲線の形やその面積からのタックのエネルギーが異なる可能性がある。この点について比較したが、ピークの前後でのこれらの違いは見られなかった。本研究では、試験時の支持板の昇降速度 (=プローブの試験テープへの接触とはく離の速度) を 10 $\text{mm} \cdot \text{s}^{-1}$ に設定したが、この速度で応力-変位曲線の形は大きく異なる。今後、この速度を変化させてより詳細に検討を行う予定である。

つぎに、MAやPBAオリゴマーの添加が分子運動性におよぼす影響を比較するためにパルス NMR 測定をソリッドエコー法で温度を変化させて行った。得られた自由誘導減衰 (Free Induction Decay, FID) カーブを Tanaka ら^{10,11)}の方法にしたがい、既報^{8,12,13)}と同様に2成分に分割する回帰を行った。より長い T_2 緩和時間を示す成分を“長時間成分”，より短い T_2 緩和時間を示す成分を“短時間成分”とした。

Fig. 6 には、短時間成分の緩和時間の温度依存性を示した。短時間成分は PMMA ブロックに基づく。S-A, S-B, S-C の違いや温度の影響は見られなかった。

Fig. 7 には、長時間成分の緩和時間の温度依存性を示し

Fig. 6 Shorter relaxation time for MAM (S-A, ○) MAM/MA (S-B, 7/3, w/w, △) and MAM/PBA oligomer (S-C, 8/2, w/w, □) measured by a pulse NMR using solid echo method.

Fig. 7 Longer relaxation time for MAM (S-A, ○) MAM/MA (S-B, 7/3, w/w, △) and MAM/PBA oligomer (S-C, 8/2, w/w, □) measured by a pulse NMR using solid echo method.

た。長時間成分は PBA ブロックに基づく。緩和時間は低温側では短かったが、20°C以上では温度とともに上昇し、S-C>S-B>S-A の順に大きかった。

Fig. 8 には、短時間成分に帰属する試料中のプロトンの割合をパーセントで示した。20°C以上で短時間成分に帰属するプロトンの割合は20%前後を示している。上述のように試料中の PMMA ブロックの含有量は S-A で 23 wt%, S-B, S-C で約 18 wt%であり、モノマーユニット中のプロトン数を考慮すると PMMA ブロックに帰属するプロトンは S-A で 15%, S-B, S-C で 12%になるはずである。実測値の方が少し高いのは、PMMA ブロックに隣接する PBA ブロックの一部が分子運動を拘束されているためであると考えられる。低温側で短時間成分の割合が温度の低下とともに増加しているのは、PBA の T_g に近づくので分子運動性が低下するためである。

Fig. 9 には、パルス NMR の結果から明らかになった S-A, S-B, S-C の PBA ユニットの分子運動性の違いを模式的に示した。MAM 単独である S-A では、PBA ブロックは PMMA ドメイン間にまたがったブリッジ状か、

Fig. 8 Proton component percentage of component with shorter relaxation time for MAM (S-A, ○) MAM/MA (S-B, 7/3, w/w, △) and MAM/PBA oligomer (S-C, 8/2, w/w, □) measured by a pulse NMR using solid echo method.

Fig. 9 Schematic views of phase structure for (a) MAM (S-A), (b) MAM/MA (S-B, 7/3, w/w) and (c) MAM/PBA oligomer (S-C, 8/2, w/w).

両末端の PMMA ブロックが同一の PMMA ドメインに存在するループ状かのどちらかの状態で、いずれも両末端の PMMA ブロックによる拘束が大きく、分子運動性は低い。MA を添加した S-B では、片末端がフリーな PBA ブロックが存在しているため、S-A に比べて一部の PBA ブロックの分子運動性が高い。PBA オリゴマーを添加した S-C では、PMMA ブロックによる拘束がなく、低分子量の PBA が存在しているために 3 種類の中でもっとも分子運動性が高い。

以上のように、パルス NMR 測定からの PBA ブロックの分子運動性は $S-C > S-B > S-A$ であった。応力-歪曲線や E' の温度依存性から凝集力は $S-A > S-B \approx S-C$ と考え、S-B と S-C の違いは見られなかったが、タックの温度依存性から凝集力の相対的な寄与の程度は $S-A > S-B > S-C$ と推定した。はく離時の接着強さに寄与する凝集力を、粘着剤の物性から予測するのは困難である。粘着剤は、引き剥がし時に“糸曳き”と呼ばれる特有の変形挙動¹⁹⁾が見られる。引き剥がし時の凝集力について、この糸曳きも含めて今後検討していきたい。

4. 結 言

MAM 単独 (S-A) とこれに MA (S-B) または PBA オリゴマーを加えた系 (S-C) のタックをプローブタック試験で評価し、以下の結果を得た。

- i) タックは $S-B \approx S-C > S-A$ でいずれも接触時間とともにゆるやかに上昇した。
- ii) タックの温度変化では、室温以上にタックのピークが出現し、ピーク温度は $S-A > S-B > S-C$ の順に高かった。
- iii) 引張試験、動的粘弾性による凝集力を反映する強度や弾性率は $S-A > S-B \approx S-C$ であり、パルス NMR による PBA セグメントの運動性は $S-C > S-B > S-A$ であった。
- iv) 接着強さに対する相対的な界面の密着性の寄与が $S-C > S-B > S-A$ の順に大きいと推定した。
- v) タックの温度依存性から、接着強さにおよぼす界面の密着性と凝集力の寄与の相対的な割合を推定できる可能性があることが分った。

謝辞

試料のアクリル系ブロックコポリマーおよび PBA オリゴマーを提供して頂きました (株) クラレおよび東亜合成 (株) に心から感謝の意を表します。

文 献

- 1) M. Sasaki, Y. Nakamura, K. Fujita, Y. Kinugawa, T. Iida and Y. Urahama, *J. Adhesion Sci. Technol.*, **19**, 1445 (2006).
- 2) 中村吉伸, 藤田和也, 足立 学, 衣川義人, 飯田健郎, 佐々木眞利子, 浦濱圭彬, 日本接着学会誌, **41**, 498 (2005).
- 3) M. Sasaki, K. Fujita, M. Adachi, S. Fujii, Y. Nakamura and Y. Urahama, *Int. J. Adhesion Adhesives*, **28**, 372 (2008).
- 4) Y. Nakamura, Y. Sakai, M. Adachi, S. Fujii, M. Sasaki and Y. Urahama, *J. Adhesion Sci. Technol.*, **22**, 1313 (2008).
- 5) Y. Nakamura, M. Adachi, Y. Tachibana, Y. Sakai, S. Nakano, S. Fujii, M. Sasaki and Y. Urahama, *Int. J. Adhesion Adhesives*, **29**, 806 (2009).
- 6) 中村吉伸, 足立 学, 橘 祐太, 酒井 悠, 仲野慎治, 藤井秀司, 佐々木眞利子, 浦濱圭彬, 日本接着学会誌, **45**, 130 (2009).
- 7) M. Sasaki, M. Adachi, Y. Kato, S. Fujii, Y. Nakamura, Y. Urahama and S. Sakurai, *J. Appl. Polym. Sci.*, **118**, 1766 (2010).
- 8) 中村吉伸, 加藤陽介, 今村圭吾, 足立 学, 藤井秀司, 佐々木眞利子, 浦濱圭彬, 日本接着学会誌, **46**, 359 (2010).
- 9) 中村吉伸, 伊東慶子, 仲野慎治, 藤井秀司, 佐々木眞利子, 浦濱圭彬, 第 59 回ネットワークポリマー講演討論会講演要旨集, P. 177 (2009).
- 10) H. Tanaka and T. Nishi, *J. Chem. Phys.*, **82**, 4326 (1985).
- 11) H. Tanaka and T. Nishi, *J. Chem. Phys.*, **85**, 6197 (1986).
- 12) 佐々木眞利子, 本田裕彰, 仲野慎治, 藤井秀司, 中村吉伸, 永田員也, 日本接着学会誌, **45**, 88 (2009).
- 13) 中村吉伸, 西田祐詞, 本田裕彰, 藤井秀司, 佐々木眞利子, 日本接着学会誌, **46**, 283 (2010).
- 14) M. Toyama, T. Ito and H. Moriguchi, *J. Appl. Polym. Sci.*, **14**, 2039 (1970).
- 15) 遠山三夫, 北崎寧昭, 渡辺 愛, 日本接着協会誌, **6**, 358 (1970).
- 16) J. Brandrup and H. Immergut (Ed.), "Polymer Handbook (Third Edition)", John Wiley & Sons, Inc. (1989).
- 17) Y. Nakamura, M. Kanbe, E. Takekuni, and T. Iida, *Colloid Polym. Sci.*, **279**, 368 (2001).
- 18) 中村吉伸, 竹内一眞, 鍋田宗明, 飯田健郎, 日本接着学会誌, **43**, 230 (2007).
- 19) Y. Urahama, *J. Adhesion*, **31**, 47, (1989).

<Original Paper>

**Contact Time and Temperature Dependencies of Tack for
Acrylic Block Copolymer Measured by a Probe Tack Test**

Yoshinobu NAKAMURA*, Keigo IMAMURA**, Keiko ITO**, Yukari NASU**,
Kazue OOTA**, Syuji FUJII**, Mariko SASAKI*** and Yoshiaki URAHAMA****

*Department of Applied Chemistry and Nanomaterials Microdevices Research Center,
Osaka Institute of Technology,

5-16-1, Ohmiya, Asahi-ku, Osaka, 535-8585 Japan

**Department of Applied Chemistry, Osaka Institute of Technology,

5-16-1, Ohmiya, Asahi-ku, Osaka, 535-8585 Japan

***Nitto Analytical Techno-Center Co., Ltd.,

1-8-5, Hatara, Fukaya, Saitama, 366-8521 Japan

****Japan Adhesive Tape Manufacturers Association,

1-9-12, Uchikanda, Chiyoda-ku, Tokyo, 101-0047 Japan

(Accepted for publication : July 16, 2010)

Abstract

Adhesion strength increases by the development of cohesive strength and interfacial adhesion. In order to evaluate the relative contribution ratio of these two factors, the tack of acrylic block copolymer was measured using a probe tack tester. For this purpose, three model adhesives were prepared: polymethylmethacrylate-*block*-polybutylacrylate-*block*-polymethylmethacrylate triblock (A), polymethylmethacrylate-*block*-polybutylacrylate diblock added triblock (B) and polybutylacrylate oligomer added triblock (C). The contact time dependency of tack measured at room temperature was higher in the order corresponding to $B \approx C > A$ and increased gradually with a contact time. The temperature dependency of tack showed the peak of tack above room temperature, and the peak temperature was higher in the order corresponding to $A > B > C$. The tensile strength was higher in the order corresponding to $A > B \approx C$. The molecular mobility of polybutylacrylate unit measured by a ^1H nuclear magnetic resonance was higher in the order corresponding to $C > B > A$. From the results above, it was evaluated that the relative contribution ratio of the interfacial adhesion on the tack was larger in the order corresponding to $C > B > A$.

Key words : Acrylic block copolymer/Tack/Interfacial wettability/Cohesive strength/Pulse NMR

(Received : May 31, 2010)