<総説>

(受理:平成23年8月15日)

光学フィルム用強粘着表面保護フィルム

Protective Film of High Adhesion Type for Optical Sheet

豊嶋 克典*・家田 泰享**・野世溪 元*・多田 博士**

Katsunori TOYOSHIMA, Yasuyuki IEDA, Hajime NOSETANI and Hiroshi TADA

1. 緒言

液晶ディスプレイ（以下 LCD）は、1970 年代初頭に表示デバイスとして初めて製品化されて以来、電卓、時計を出発点として、携帯電話・デジタルカメラ・カーナビゲーション用のような中小型用途から、ノートパソコンやデスクトップパソコン用のモニター、さらには TV 市場へ大きく用途が拡大している。図 1 のパネル断面図が示すように、LCD は非常に多くのフィルムの積層体から構成されている。LCD の画質向上に、光学フィルムは欠かせないものとなっており、輝度を向上させる目的で、輝度上昇フィルムや拡散フィルム等の光学フィルムが使用されている¹⁾。これらのフィルムの製造には、工程中や出荷時における汚れ、傷防止のための表面保護や、裁断工程における保持搬送などに、表面保護フィルムを使用する場合が多い。図 2 に示すように、輝度上昇フィルムの表面には数十 μm の凹凸があり、また拡散フィルムの表面には数 μm の凹凸がある。通常の表面が平滑な被着体と比較すると接触面積が非常に小さく、表面保護フィルムを貼り付けにくい被着体の代表例である²⁾。したがって光学フィルムには、強粘着タイプの表面保護フィルムが使用される³⁾。

本稿においては、表面保護フィルムの性能および、粘着層の樹脂設計について報告する。

豊嶋 克典

略歴：2000年 東北大学大学院 工学研究科 化学工学専攻課程 修了
工業テープ製造部 プロテクト技術課 主任技術員
趣味：読書，旅行

家田 泰享

略歴：2004年 名古屋工業大学大学院 工学研究科 物質工学専攻課程 修了
開発研究所 基盤技術センター 副主任技術員
趣味：旅行，映画鑑賞

野世溪 元

略歴：1990年 金沢大学 物質化学工学科専攻課程 修了
工業テープ製造部 プロテクト技術課 主任技術員
趣味：ネットサーフィン

多田 博士

略歴：1990年 東京理科大学 理工学部 工業化学科専攻課程 修了
開発研究所 ES材料開発センター 副主任技術員
趣味：軽登山，園芸

* 積水化学工業(株) 高機能プラスチックカンパニー 武蔵工場 工業テープ製造部
埼玉県蓮田市大字黒浜 3535 〒349-0198
SEKISUI CHEMICAL CO., LTD
3535 Kurohama Hashuda-shi Saitama 349-0198 Japan

** 積水化学工業(株) 高機能プラスチックカンパニー 開発研究所
大阪府三島郡島本町百山 2-1 〒618-0021
SEKISUI CHEMICAL CO., LTD
2-1 Hyakuyama Shimamoto-cho Mishima-gun Osaka 618-8589 Japan
(平成 23 年日本接着学会技術賞受賞)

図1 LCD パネルの断面図

図2 光学フィルムの表面粗さと SUS 板粘着力

2. 表面保護フィルムの機能

図3に示すように表面保護フィルムは、われわれのお客様である光学フィルムメーカーで受入検査後に光学フィルムに貼合されて任意の形状に裁断される。そして検品後、液晶ディスプレイメーカーに出荷される。最終的に、液晶ディスプレイメーカーが表面保護フィルムを除去する。従って、表面保護フィルムはお客様の工程毎に以下のような機能が要求される。

光学シートメーカーの貼合工程では、表面保護フィルムをロールから弱い力で繰り出すことができ、また光学フィルム表面の形状を破壊することなく貼り合わせることが求められる。裁断工程では、表面保護フィルムの粘着剤が裁断刃に付着しないように易切断性を必要とする。検品工程では、光学フィルムの不良を検品し易くするために、表面保護フィルム内外の異物を少なくする必要がある。さらに貼合、裁断工程後に表面保護フィルムが光学フィルムから浮き、剥がれがないようにする必要がある。一方、LCDメーカーの工程では、表面保護フィルムが剥がし易く、糊残りが少ないようにする必要がある。

これらの工程毎の要求性能に対して、図4に要求される

図3 表面保護フィルムの各工程における要求性能

図4 要求される代表的な性能

代表的な性能を示す。展開力とは、表面保護フィルムをロールから繰り出す時の力を意味する。重い展開力では、表面保護フィルムを強い力でロールから繰り出さなければならず、そのために表面保護フィルムが引き延ばされてしまうことや、表面保護フィルム中に残留応力があり、光学フィルムに表面保護フィルムを貼り付けた後、浮き・剥がれが起る恐れがある。このような理由から基材からの軽展開性が必要となる。一方、粘着性では光学フィルムへしっかり貼り付いて表面を保護することや、光学フィルムからの表面保護フィルムの浮き・剥がれが起らないように強い粘着力が必要である。したがって、軽展開性と強粘着性はトレードオフの関係になる。

本稿では、この二つの相反する性能のうち、軽展開性の樹脂設計に焦点を絞って紹介する。

3. 表面保護フィルムの性能

3.1 製造方法

図5に示すように表面保護フィルムを大別すると基材層と粘着層から構成される。図6に表面保護フィルムの溶剤塗工法及び、共押出製法の製造方法を示す。一般的に溶剤

溶剤塗工品	共押出品

図5 表面保護フィルムの構成

塗工法は、予め基材を製膜した後に、粘着剤を溶剤塗工・乾燥することで製造している。この方法は、溶剤による粘度調節によって塗工することができるため、粘着剤厚みの制御に優れているなどの利点がある⁴⁾。さらに展開力を容易にするために基材背面に離型剤層、粘着剤と基材の接着性を高めるために基材と粘着層の間にアンカー層を形成できる⁵⁾。一方、共押出製法で製造した表面保護フィルムは、基材と粘着剤を溶融状態で多層化して製造している。そのため、溶剤塗工法よりも基材と粘着剤が強固に密着し、表面保護フィルムを除去する時に糊残りが起らない。さらに、溶剤を使用しないだけでなく基材層と粘着層を同時に製膜できるため、環境に易しい上、低コスト化が可能である。これらの特徴から、共押出製法が近年注目されている⁶⁾。

しかし、共押出製法で製造した表面保護フィルムの基材背面には、溶剤塗工法のように離型剤層を形成することが困難なため、展開力が溶剤塗工法で製造した表面保護フィルムよりも重くなるという課題がある。

3.2 粘着剤の構成

3.2.1 熱可塑性エラストマー

光学フィルムに使う強粘着表面保護フィルムの粘着層は、熱可塑性エラストマーをベース樹脂として用いている。

図7は、代表的なスチレン系ブロックポリマーであるスチレン-ブタジエンスチレンブロック共重合体 (SBS) の分子構造である。末端のポリスチレンは、約 100℃のガラス転移温度 (T_g) を持つ熱可塑性プラスチックであるのに対し、中間ブロックには室温よりかなり低い約 -95℃

図6 表面保護フィルムの製造方法

図7 SBS および, SEBS の分子構造

表1 粘着付与剤の種類

天然樹脂系	ロジン系	ロジン、ロジン誘導体（水素化、不均化、重合、エステル化）
	テルペン系	テルペン樹脂（α、β－ピネン）、テルペンフェノール樹脂、芳香族変性テルペン樹脂、水素化テルペン樹脂
合成樹脂系	石油樹脂系	脂肪族系、芳香族系、共重合系、水添系（脂環系）
	その他	アルキルフェノール樹脂、キシレン樹脂、クマロンインデン樹脂

のTgを持つポリブタジエンを用いている。この2種類のブロックは、熱力学的に相溶しないため、ポリスチレンの末端ブロックは、互いに凝集してドメインを形成し、均一に分散している^{7,8,9)}。

しかしながらSBSは、中間ブロックにポリブタジエンの共役二重結合を含むため、熱、紫外線に弱いという欠点を持っている。そこで中間ブロックを水素添加処理したスチレンー（エチレン・ブチレン）ースチレンブロック共重合体（SEBS）がある。ポリ（エチレン・ブチレン）は、共役二重結合を有するポリブタジエンの1,4結合および1,2結合の水素添加処理によって得られたポリエチレンおよびポリブチレンのランダム共重合体である。この中間ブロックは、主に結晶化するポリエチレン量と、無定形化させるためのポリブチレン量が適切にコントロールされ、適度なゴム弾性を生みだしている。また、SEBSの中間ブロックは、共役二重結合を含まないオレフィンで形成しているため、SBSより優れた耐候性、熱安定性等の特性を持っている^{10,11)}。SEBSは、構造（直鎖型または分岐型）の違い、スチレン含有量の違い、分子量の違いなどからたくさんの品種が各社から上市されている。

3.2.2 粘着付与剤

粘着付与剤は、被着体に対する粘着力とタックを与え、粘弾性を調整する役割を果たすとともに、加工時に配合物の粘度を低下させ、作業性を良くする役割を担っている。使用する熱可塑性エラストマーとの相溶性、表面保護フィルムに求められる性能・品質を考慮して最適な粘着付与剤を選定している。代表的な粘着付与剤を表1に示す^{12,13)}。SEBSのポリ（エチレン・ブチレン）に相溶する粘着付与

剤は、ロジン系、テルペン樹脂、水添テルペン樹脂、C5系石油樹脂、水添脂環族系石油樹脂などである。末端のポリスチレンに相溶する粘着付与樹脂は、C9系石油樹脂、クマロン樹脂、スチレン系樹脂などである。

3.3 粘着剤の設計

3.3.1 設計指針

図8に表面保護フィルムの粘着剤が基材層背面から引き剥がれる様子および、粘着剤の応力－歪み曲線にしたがって応力が発生する様子を示す。粘着剤は、その応力が基材との界面接着力より大きくなると界面から剥離する。図8に示す界面接着力と応力－歪み曲線で囲まれた面積は、粘着剤が剥離するまでに要した仕事量になる。この仕事量が剥離に要するエネルギーになることから、展開力に相当すると考えることができる¹⁴⁾。表面保護フィルムの場合、囲まれた面積が小さいほど展開力が軽くなることから、弾性率が高くなるように粘着剤を硬くして、剥離に要するエネルギーを低減すればよいことになる。さらに、粘着テープの特性は粘着剤バルクの物性に依存することから、剥離

図8 剥離断面図と粘着剤の応力－歪み曲線

図9 新規 SEBS の分子構造イメージ

と速度依存性が研究されている¹⁶⁾。表面保護フィルムの繰り出し速度へも同様な研究理論が適用できることから、時間-温度換算則より、動的粘弾性挙動の高周波数の振動(高速剥離速度)は周期が短いので低温領域と、低周波数の振動(低速剥離速度)は周波数が長いので高温領域と等価であると考えられる¹⁵⁾。表面保護フィルムを数十 m/分の速度で繰り出すと想定すると、その速度は低温領域に相当する^{16, 17)}。

以上のことから、われわれは応力-歪み曲線および動的粘弾性から、低温領域の弾性率を高くして展開力低減を狙った。但し、粘着性に影響する室温付近の弾性率は維持する熱可塑性エラストマーの設計とする。

3.3.2 構造制御

図9に示すように一般的な SEBS は、A-B-A 型のブロック共重合体である。しかし、われわれは検討した結果、SEBS の一次構造を制御することに至り、試作①、②のように中間ブロックのポリ(エチレン・ブチレン)にポリスチレンを共重合した。試作②は、試作①の中間ブロックにそのポリスチレンの1.5倍量を共重合している。図10に SEBS の動的粘弾性挙動を示すように、中間ブロックのポリ(エチレン・ブチレン)にポリスチレンを共重合した試作①は、現行の SEBS と比べ、約-50℃付近に見られたポリ(エチレン・ブチレン)の T_g が約-40℃までシフトしている。さらに試作②は、中間ブロックにポリスチレンを増量しているため、 T_g が約-20℃までシフトしている。 T_g がシフトしたメカニズムは、中間ブロックに硬いポリスチレンを共重合したためポリ(エチレン・ブチレン)の運動性を拘束したためである。 T_g が高温にシフトしたことから、繰り出し速度に相当する低温領域の弾性率が高くなった。ポリスチレン量が増すとゴム状平坦領域の弾性率も高くなると予想されるが、現行の SEBS と同等な弾性率挙動を示している。これは、中間ブロックに共重合したポリスチレン量が極僅かな重合度であることと、ポリ(エチレン・ブチレン)の流動域の運動に影響を受けるので、ゴム状平坦領域の弾性率は現行の SEBS と同等である。

以上のことから、展開力に影響する低温領域の弾性率および、粘着性に影響する室温付近の弾性率を両立する分子

図10 SEBS の温度依存性

の構造制御が可能になる。

4. 新規 SEBS の性能

中間ブロックのポリ(エチレン・ブチレン)にポリスチレンを共重合した新規 SEBS を使い表面保護フィルムを共押出製法で製膜した。図11に展開力と低温側の弾性率の関係を示すように、試作①、②の展開力は、現行の SEBS より 1/2 以下に低下した。さらに3.3で述べたとおり、展開力は低温側の弾性率に依存して低温側の弾性率が高いほど、展開力が下がることを確認した。

われわれは、中間ブロックのポリ(エチレン・ブチレン)にポリスチレンを共重合した新規 SEBS を使い表2に示すように6800シリーズの表面保護フィルムを上市している。

図11 弾性率と展開力の関係

表2 当社の強粘着タイプ表面保護フィルム

品名		6842B	6845B	6847B	試験方法
色		透明			
標準厚み	μm	40			呼称値
粘着力 N/25mm (23℃、PMMA板)		0.6	1.0	1.5	剥離速度 300mm/min 剥離角度90°
クリーンルーム生産		○	○	○	—

5. 結 言

われわれは、溶剤を使わず、基材・粘着層を同時に製膜できる共押出製法にこだわって、新規 SEBS 系粘着剤を活用した表面保護フィルムを開発することができた。今後も、新たな粘着剤の開発に取り組むとともに、共押出製法のプロセス革新を推し進め、今後も環境にやさしい製品、お客様に安心して使用して頂ける製品を提供し続けてゆきたい。

謝辞

本製品を開発するにあたり、諸先輩方を始めとして、開発、製造、生産管理、品質保証、知財、営業に関わる多くの関係者の方々、また、製品を採用して頂くにあたりご評価頂きましたお客様より多くのご助言、ご協力を頂きました。ここに深く感謝の意を表します。

参 考 文 献

- 1) 前田紀一, “輝度上昇フィルムの複合化”, FPD International セミナー, E-3 (2003).
- 2) 月刊ディスプレイ, 3 月, 27 (2008).
- 3) 日立化成テクニカルレポート, 41, 23 (2003).
- 4) 日本粘着テープ工業会, “粘着ハンドブック第2”, 189 (1995).
- 5) 日立化成テクニカルレポート, 38, 7 (2002).
- 6) 村上健吉, “押出成形第7版”, 244 (1985).
- 7) コンバーテック 11, 46 (2000).
- 8) コンバーテック 5, 70 (2009).
- 9) 日本ゴム協会誌, 9, 57 (2002).
- 10) コンバーテック 3, 64 (2003).
- 11) 日本接着学会誌, 42, 425 (2006).
- 12) 日本粘着テープ工業会 “粘着ハンドブック第3版”, 49 (2005).
- 13) 岡崎巧, 接着の技術, 20, 2, 13 (2000).
- 14) 技術情報協会 “粘着剤・テープ設計のためのバルク・界面の解析と特性評価” 22 (2008).
- 15) 情報機構 “粘着・剥離のメカニズムと各種用途における性能コントロール” 27 (2009).
- 16) 日本ゴム協会誌, 77, 186 (2004).
- 17) 日本ゴム協会誌, 77, 250 (2004).