

粘着テープの剥離過程で観られる時空パターン形成

早稲田大学理工学部 山崎義弘 (Yoshihiro Yamazaki)

広島大学総合科学部 戸田昭彦 (Akihiko Toda)

Faculty of Science and Engineering, Waseda University

Faculty of Integrated Arts and Sciences, Hiroshima University

1 はじめに

粘着物質によって互いにくっついている2つの物体を引き離すと、粘着物質は引き伸ばされ変形し、最終的に2つの物体は分離する。このような粘着現象は、粘着物質と物体との接着（濡れ）、変形、物体からの分離、そして破壊といった動力的挙動としてとらえることができる。粘着テープを引き剥がすときの動力的挙動（剥離挙動）を理解するにはまず、粘着物質の力学的物性である粘弾性を知ることが重要である。粘弾性を有する粘着物質は、変形を加えた時間や環境の温度に応じて多様な力学的性質を示す。実際、粘着物質は、長時間の変形（高温）に対しては粘性液体のように、短時間の変形（低温）では弾性固体のように振舞うことができ、その弾性率は、変形時間が長く（高温に）なるにつれて単調に減少することが知られている [1]。それゆえ、もし粘着物質の粘弾性のみを考慮して、2つの物体が一定の距離だけ離れたときに剥離が起こると考えれば、剥離力は剥離速度に対して単調に増加していくことが期待できる。

ところが現実には、剥離挙動は単調ではなく、それにはいくつかの原因が考えられる [2]。一つは剥離の様式である。剥離によって2つの物体が分離する際、粘着物質の内部で破壊が起こる（凝集剥離）場合と、粘着物質が物体の表面から分離する（界面剥離）場合の2つの様式が存在する。凝集剥離の場合は、分離後、粘着物質は2つの物体の表面にくっついたまま残るが、界面剥離の場合は、一方の物体には粘着物質がくっついたままであるが、他方の物体の表面には粘着物質が残らない。このように、異なる剥離様式の存在が剥離挙動の非単調性を引き起こす要因となり得る。剥離挙動が非単調になる原因として他にも、たとえ剥離様式が同一であったとしても、剥離中に変形した粘着物質によって様々な形態が形成される場合、形態形成の安定性が剥離挙動の単調性を破り得るのである [3]。変形した粘着物質による形態形成が起こる理由は、剥離現象が粘着物質の粘弾性だけでなく粘着物質と物体との表面相互作用および、剥離の方法に強く依存しているからである。従って、粘着運動を物理として取り扱う際には、粘着物質の力学物性（粘弾性）だけでなく、環境条件（温度、物体との表面相互作用など）、剥離の方法を含めたシステム全体の動的挙動として問題を構成すべきである。

2 実験事実のまとめ

剥離における粘着物質の変形と力学的挙動との関連性については、粘着物質が変形に伴い特徴的な形態を形成することによって界面剥離時の剥離力と速度との間に現れる非単調性が実験的に調べられている [3]。ここでの非単調性とは、剥離力 F を一定値に保ったまま界面剥離を実行しているときの剥離速度 V を測定すると、図1のようなヒステリシスが現れることを意味している。図1に示されているように、剥離力に関して速度 V に依存した定常剥離状態 A、B が存在し、剥離力 F が、 $F_B^{\min} \leq F \leq F_A^{\max}$ を満たす範囲で状態 A と B が双安定となり、かつ、 V に関しては、 $V_A^{\max} < V_B^{\min}$ となることが実験的に明らかにされており、さらに、 V を $V_A^{\max} < V < V_B^{\min}$ の範囲で一定の値に保って剥離を行うと、剥離力 F が自励振動することも示されている。以上の知見を踏まえて、我々は、粘着テープの剥離を一つの力学系として考え、粘着物質の形態形成が、系の力学的振る舞いにどのような影響を及ぼすかを調べた [4]。

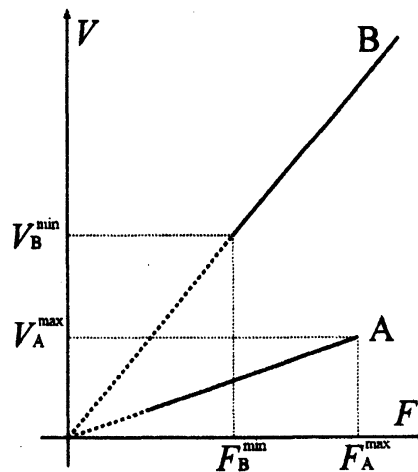


図 1: 剥離力を一定にして界面剥離を行ったときの剥離力と剥離速度の関係を表す模式図。剥離時に変形した粘着物質による形態形成を伴う場合、形態の安定性によって、剥離速度が双安定となる剥離力領域が存在しうる。

2.1 実験の概要

我々の実験では、まず、2枚組みになった粘着テープを水平な板の表面に貼り付けた。そして、2枚組のテープのうち、上側のテープの一端とバネ（バネ定数は k ）の一端を連結し、バネのもう一方の端を、鉛直上方に一定の速度 V で引き上げた（図2参照）。従って、テープはほぼ90度の角度をなして剥離される。ここでの注意点として、我々の実験では、上側のテープのみを下側のテープの背面から剥離していることである。（つまり、

板からの剥離ではない。) 実験で用いた粘着テープ (No. 31D, Nitto Denko Corporation) には、粘着剤として架橋された天然ゴム系物質、テープのフィルムとしてPETフィルムが使用されていた。粘着テープの幅は25mmであり、PETフィルムの厚さは $25\mu\text{m}$ であった。実験時の温度は $24\pm 0.5^\circ\text{C}$ であった。我々は一定の速度で剥離しているときの剥離力を測定し、粘着物質が変形する様子を実体顕微鏡により観察した。また、粘着テープ上には剥離に伴って変形した粘着物質によるパターンが形成され、剥離後もそのパターンが保持されるので、上側のテープを完全に剥離した後テープに残っているパターンを観察した。

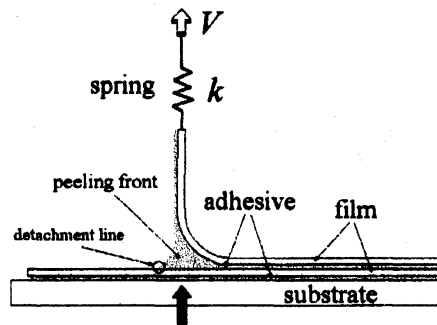


図2: 実験の模式図。黒矢印は、剥離中に剥離先端内での粘着物質の変形を観察した方向を指し示している。

2.2 速度-荷重曲線

バネ定数 k を固定したとき、各剥離速度 V に対する剥離力 F の変動範囲は、図3のような速度-剥離力曲線として一つのグラフに表すことができる。図3には、バネ定数を異なる3つの値にした場合の速度-剥離力曲線が表されており、(a) から (c) へとバネ定数が大きくなっている。図3にある白丸は、剥離が一定の力で行われる定常剥離のときの F を表している。また、垂直線は F の変動幅を表している。図3(a)の結果から、剥離力の時間的挙動は、 V によって次の3つの領域 A, B, C に分けられることがわかる。領域 A: 剥離速度が低速での定常剥離領域 ($V \lesssim V_L \approx 0.6 \text{ mm/min}$)。領域 B: 剥離速度が高速での定常剥離領域 ($V \gtrsim V_H \approx 2.0 \text{ mm/min}$)。領域 C: 2つの定常剥離領域 A, B に挟まれた、 F が時間変動する領域 ($V_L \lesssim V \lesssim V_H$)。実際、領域 C における F の時系列は、図4のような自励振動をしている。そこで、領域 C を振動剥離領域と名付けることにする。

さらに、我々はバネ定数 k の値を変えることによって、速度-剥離力曲線がどのように変化するかを調べた。その結果が図3の (b), (c) であり、次のことが明らかになった。(i) k が大きくなるに従って、振動剥離領域 C は狭まり、白丸で表された剥離力がほぼ一定となる剥離領域が広がる。図5は、 k の値が小さいときに剥離力が振動していた剥離速度に

において、 k を大きくした場合の剥離力の時系列を表しており、確かに自励振動しなくなることを示している。(ii)領域Cが現れる上限の k が存在する。(iii)領域AとBの間において剥離力が振動しなくなった領域(以後、領域Dとする)では、 F は V の増加に対して単調減少する。(iv)領域Aの上限剥離速度 V_L と領域Bの下限剥離速度 V_H は k の大きさに依存せず、一定である。(v)図3(a)の結果から、振動剥離における剥離力の振幅についての上限と下限は、領域AとBの定常剥離における剥離力の値を外挿した値に近い。

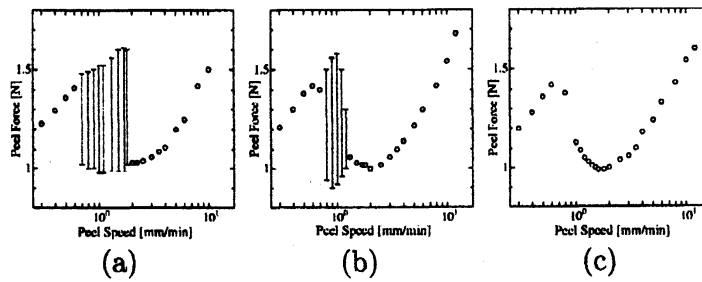


図3: 異なる3種類のバネ定数に対する速度-剥離力曲線。 $k = (a) 2.9 \times 10^2 \text{ N/m}$ 、 $(b) 1.7 \times 10^3 \text{ N/m}$ 、 $(c) 2.4 \times 10^4 \text{ N/m}$ 。垂直線は、図4のように剥離力が振動するときの振幅を表している。

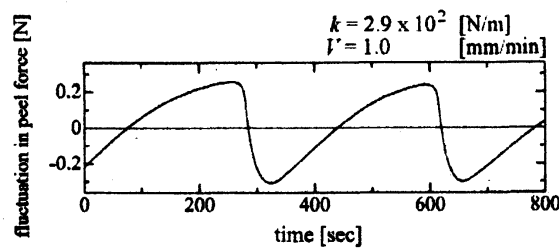


図4: 振動剥離状態における剥離力の時系列。剥離力の値は、 $t = 0 \text{ s}$ から 800 s までの時間平均からのずれとして表されている。

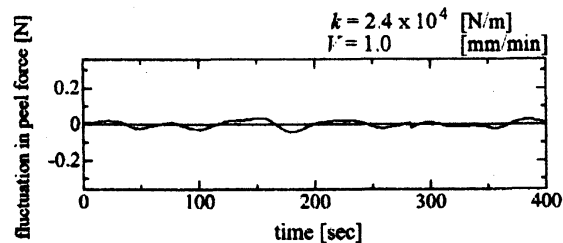


図5: 領域Dにおける剥離力の時系列。剥離力の値は、 $t = 0 \text{ s}$ から 400 s までの時間平均からのずれとして表されている。

2.3 変形した粘着物質の形態

第2.2節で説明したAからDの各領域で、剥離先端において変形した粘着物質がどのような形態を形成しているかを図2の黒い矢印の方向から観察した。その結果、本文で発表している実験の速度域、バネ定数の範囲内では、常に界面剥離となり、剥離先端の近傍における変形した粘着物質の状態は、図6に示された2種類の状態のどちらかであることを確認した。図6の白矢印で指し示した部分が剥離先端を表している。これらの図は共に、上から下に向かって剥離が進行している。ここで注目すべき点は、図6(a)に示されているような楕円状の形態が剥離先端の進行方向に対して前方に形成される速度域が存在することである。我々の実験では、図6(a)の形態は $V \lesssim V_H$ で観察することができた。一方、図6(b)のような剥離状態は、剥離速度が速い場合 ($V \gtrsim V_L$) に観察できた。ここで、 $V_L < V_H$ であることから、 $V_L \lesssim V \lesssim V_H$ では、図6で示された2種類のどちらの形態も存在しうる。図6(a)に示された剥離先端前方の楕円状の形態は、粘着物質内部に進入した空気によって粘着物質が変形し、空洞ができることで形成されたトンネル状の構造の断面を表している。このようなトンネル構造が形成される原因は、直線的で平坦な剥離先端に対する空間変動が引き起こす不安定性（フィンガリング不安定性）のためであると考えられる。我々の実験から、トンネル構造の安定性は剥離速度に依存しており、 $V \lesssim V_H$ で安定であり、高速になると不安定になるということが分かった。そこで我々は、図6(a)で示されるような、トンネル構造を形成しながら剥離が進む状態をトンネル構造を伴う剥離と呼び、図6(b)のようなトンネル構造が不安定となる剥離状態をトンネル構造を伴わない剥離と呼ぶことによって2つの剥離状態を区別することにする。

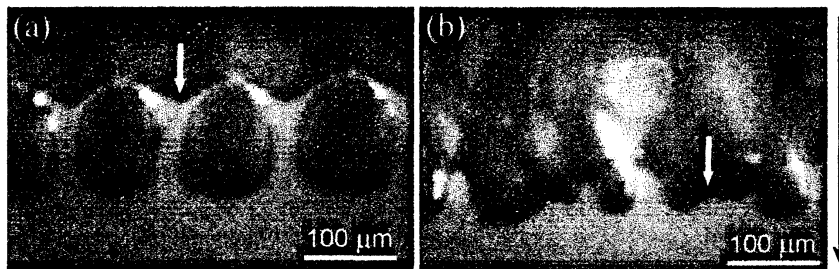


図6: 剥離中の剥離先端近傍における変形した粘着物質の状態。右側の黒い矢印は剥離の方向を表している。(a)と(b)の白矢印は剥離先端を指し示している。バネ定数は共に、 $k = 8.4 \times 10^3 \text{ N/m}$ 。剥離速度は $V =$ (a)0.4 mm/min、(b)3.0 mm/min。

2.4 動的相図

第2.3節で述べたように、剥離先端近傍での粘着物質の状態は、図6で示される2種類のうちのどちらかになる。界面剥離においてこのような2種類の剥離状態が出現する理由は、トンネル構造の安定性が V の増加に伴って、安定状態から不安定状態に変化するためである。ここで、同時刻での剥離はテープ幅の方向に平行で1次元的な剥離先端で行われ、剥離先端が時間とともに進展することに着目すると、剥離後の粘着テープは、各時刻・各場所でのどのような剥離状態であったかを、粘着物質の変形状態によって構成される1次元時空間パターンとして記憶していることになるのである。そして、2種類の剥離状態はトンネル構造の有無で区別できることから、剥離後の粘着テープに残された、変形した粘着物質によるトンネル構造の時空間分布を見ることによって、剥離状態を特定することができるのである。

このような観点から我々は、剥離によって形成されたトンネル構造の時空間分布および、第2.2節で説明した速度-剥離力曲線で表される剥離の動力学挙動に基づいて、 V と k をコントロール・パラメーターとして動的相図(図7)を作成した。図7に示されているように、動的相図は大きく4つの領域に分類することができ、図中の○、●、◎、△で占められたそれぞれの領域は、第2.2節で説明した、領域A(低速での定常剥離状態)、B(高速での定常剥離状態)、C(振動剥離状態)、そしてD(k が大きくなったため剥離力が振動しなくなった状態)を表している。図7から直ちに分かるように、 k が大きくなるに従って、振動剥離が起こる速度域は狭まり、領域Cが存在しうる上限の k が存在することも示されている。以下では各領域において、トンネル構造の時空間分布パターンがどのような特徴を持っているかを説明する。

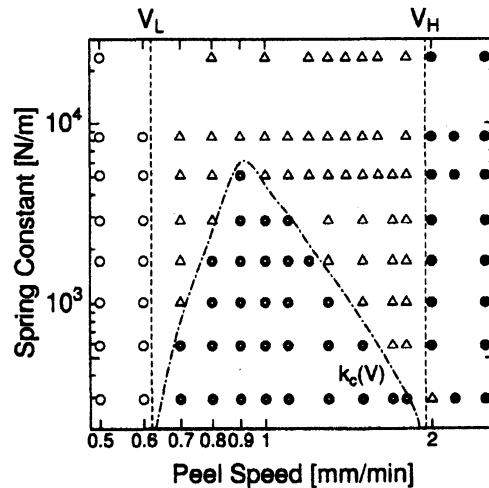


図7: 形態を考慮した剥離挙動の動的相図。○: トンネル構造を伴った定常剥離状態(領域A)、●: 荒い先端による定常剥離状態(領域B)、◎: 振動剥離状態(領域C)、△: 時空間共存剥離状態(領域D)。

2.4.1 定常剥離

動的相図の領域 A と B では、 V を固定すると F が一定となる定常剥離になるが、剥離先端内において形成された粘着物質の形態を反映して、粘着テープ上のパターンは図 8 に示されるように領域 A と B では大きく異なっている。図 8(a) は領域 A で剥離を行ったときに得られるパターンである。白く縞状になっている部分は空気が粘着物質内部に進入してできたトンネル構造を表しており、粘着テープ全体にトンネル構造が列をなして形成されていることが分かる。つまり、図 8(a) は各時刻における剥離先端全体でトンネル構造を伴う剥離が行われたことを表している。また、興味深い点として、粘着物質の不均一性のため、トンネル構造が剥離中に 2 つに分裂したり、途中で終わったりしている個所が確認できる。トンネル幅やトンネル構造どうしの間隔がどのように決定されるかは今のところ明らかにはなっていないが、我々の実験結果から、トンネル幅は粘着物質の厚さに依存し、剥離速度には敏感ではないことが分かっている。図 8(b) は領域 B での剥離を行ったときに得られるパターンであり、(a) の場合とは対照的に、特徴的なパターンは観察できない。図中には、ところどころ白く点在した領域が見られるが、この白く点在した領域は、剥離の際に粘着物質が大きく変形し、糸引き状に伸ばされた部分を表している。

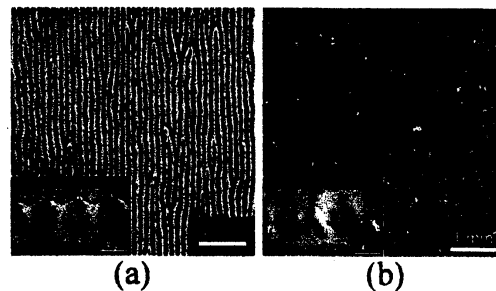


図 8: (a) 領域 A、(b) 領域 B で観察されるパターンのスナップショット。剥離は上から下に向かって行われている。

2.4.2 振動剥離

第 2.4.1 節で示したように、剥離先端における 2 状態に対応して、粘着テープ上に形成される時空間パターンも異なることがわかった。領域 C では、 F が時間的に（自励）振動しながら剥離が進んでいくが、そのとき得られる特徴的なパターンが図 9 に示されている。この図における剥離は上から下に向かって進んでおり、粘着テープの幅全体を表した図 9(a) から分かるように、パターンは白い帯状領域と黒い帯状領域が上から下に向かって交互に繰り返されることによりできた縞状パターンとしてとらえることができる。また、図 9(b) は、図 9(a) の一部を 5 倍に拡大したものであるが、この拡大図から分かるように、白い帯状領域は、 $100\mu\text{m}$ 程度の幅をもった白いすじが横方向（つまり、テープの

幅方向) に一列に並んで構成されている。図 9(b) 中の白いすじが剥離方向と平行になっていることから分かるように、この白いすじは、図 8(a) で示されたトンネル構造を表したものである。つまり、白い帯状領域では、トンネル構造を伴う剥離が行われているのである。一方、黒い帯状領域はトンネル構造が存在しないことから、図 8(b) に対応した剥離状態となっていることが分かる。従って、図 9(a) に示された、剥離の進行方向に繰り返してできた縞状パターンは、トンネル構造を伴う剥離と伴わない剥離が各時刻における剥離先端内ではほぼ一様に行われる一方、時間的にはこの 2 つの剥離状態が交互に繰り返されてきた事を意味しており、剥離状態がこのような時間に関して周期的な変動をすることによって、剥離力の自励振動が引き起こされるのである。

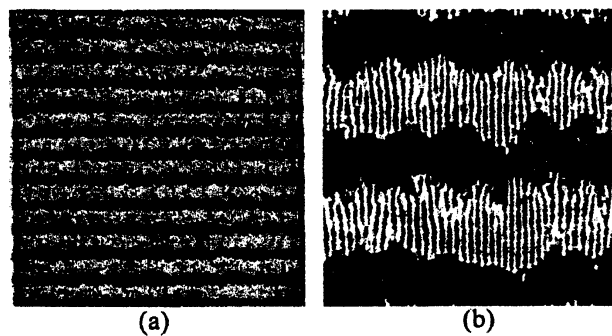


図 9: (a) 領域 C ($V = 0.8 \text{ mm/min}$, $k = 2.9 \times 10^2 \text{ N/m}$) で観察される振動剥離中の縞状パターン。剥離は上から下に向かって行われている。図のサイズは $25 \text{ mm} \times 25 \text{ mm}$ 。(b) (a) の一部を 5 倍に拡大したもの。

2.4.3 時空間共存剥離

領域 D では、領域 C で観られたような F に対する自励振動は起こらなくなり、図 5 に示されるように、 F は時間に対しほぼ一定の値となる。従って、第 2.4.1 節および第 2.4.2 節における議論を延長すれば、領域 D において F が一定となったことから、時空間的に一様な剥離状態が実現されていると期待することができる。しかしながら、 F がほぼ一定な値になるにも関わらず、領域 D におけるパターンは図 10 が示すように、時空間で乱れたものとなった。この図においても剥離は上から下に向かって行われており、図中の白い部分と黒い部分ではこれまでと同じくそれぞれ、トンネル構造を伴う剥離と伴わない剥離が行われたことを示している。ここで、図 10 のようなトンネル構造の時空間分布パターンを我々は時空間共存パターンと呼ぶことにする。時空間共存パターンを表す図 10 の (a) と (b) では、パターン中の白と黒の部分の存在比が異なっていることを確認できるが、この違いは剥離速度 V によって生じており、 V が大きくなるに従って、トンネル構造を伴った剥離状態を表す白い部分が減少している。また、(a) は白い領域を背景にして黒い領域

が孤立したパターンである一方、(b)では逆に黒い領域が背景となり白い領域が孤立してできたパターンであるとみなすことができるので、 V が大きくなると、白と黒の領域の連結性が逆転していることも分かる。

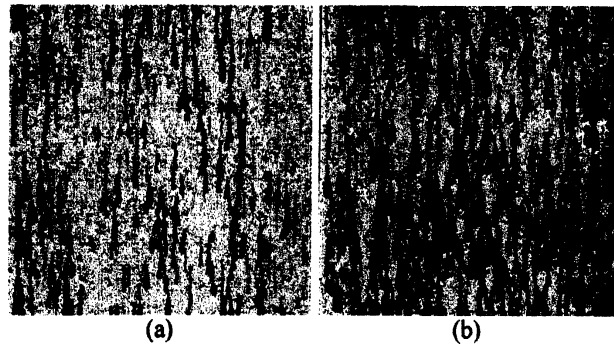


図 10: 領域 D における時空間共存剥離パターン。剥離速度は、 $V =$ (a)0.8 mm/min、(b)1.0 mm/min。バネ定数の値は共通で $k = 2.4 \times 10^4$ N/m。各図のサイズは 25mm × 25mm。

2.5 時空間共存剥離の特徴

領域 D においては、剥離力 F がほぼ一定値になるにも関わらず、剥離先端では 2 種類の剥離状態が共存し、かつ時間と共に変動するため、トンネル構造の時空間分布パターンが乱れたものとなっている。ここでは領域 D におけるパターン形成と動学的挙動に注目して、時空間共存剥離の特徴をまとめる。なお、ここで示す実験結果は、バネの代わりにアルミニウム棒を使用して剥離を行った場合のものであることを断っておく。アルミニウム棒を使用することによって、バネ定数が非常に大きいときの極限 ($k \rightarrow \infty$) を実行することができると考えられる。

まず、時空間共存パターンの剥離速度依存性を調べるために、次のような実験を行った。動的相図の領域 D 内で剥離を行っているときに V を突然変化させ、そのときのパターンおよび剥離力の変化を調べた。その結果得られたパターンが図 11 である。図 11 は、 V を (a)1.0mm/min \rightarrow (b)1.2mm/min \rightarrow (c)1.0mm/min と変化させた時の時空間パターンである。この図では剥離が左から右に進行している。ここで、パターンの剥離速度依存性を示す量として、各時刻の剥離先端内で、トンネル構造を伴った剥離状態を表す白い部分が剥離先端全体に対して占める割合 (以後、 R で表す) に注目した。図 11 に基づいて R は、粘着テープの幅方向に平行な直線上を占める白い部分の割合として求める事ができる。ただし、各時刻における R を得るためには、剥離の開始位置と測定位置の間での剥離速度を考慮する必要があることに注意すべきである。以上のようにして図 11 から求めた R の時系列は図 12(a) のようになる。また、図 11 の実験を行ったときに測定した剥離力の時

系列を図 12(b) に示す。図 12 の (a) と (b) を比較すると、 R と剥離力とが同調して時間変化していることが分かる。このことから、領域 D において剥離力の大きさを決定付けている要因は、剥離先端内において 2 種類ある剥離状態の存在比であると結論づけることができる。

図 10 と図 11 に示されているように、領域 D では V が大きくなるにつれて、 R は減少する。そこで、領域 D 内で剥離速度を変化させた時の剥離力 F および R の変化を調べた。その結果、 F および R に対する V 依存性を表す図 13 を得た。この図は、 V の増大に伴って、 R の減少と F の低下が同調して起こっていることを明確に表している。従って、領域 D において剥離力が剥離速度の増加に対して単調に減少する理由は、剥離速度の増大に伴って R が減少したためであると結論づけることができる。

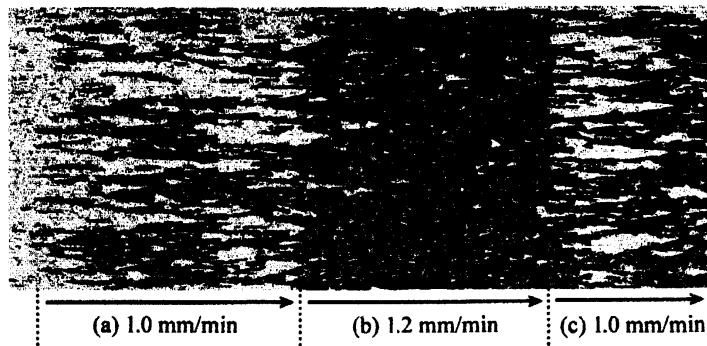


図 11: 領域 D 内で、バネの硬い極限のときに観られる時空間共存パターンの剥離速度依存性。剥離の途中で剥離速度を (a)1.0mm/min → (b)1.2mm/min → (c)1.0mm/min のように変化した。

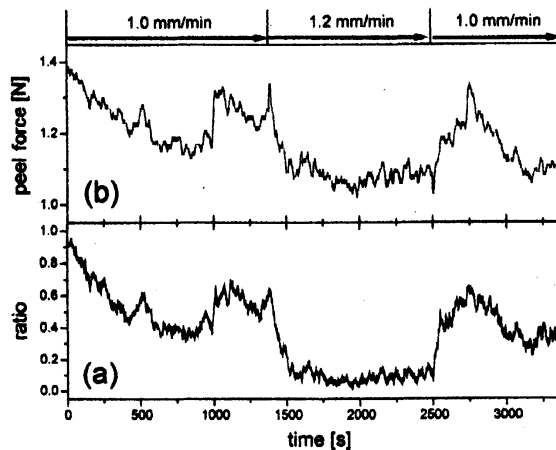


図 12: (a) 図 11 に基づいて得られた剥離先端における白領域の割合 R の時系列。(b) 図 11 の剥離を行ったときに測定した剥離力の時系列。

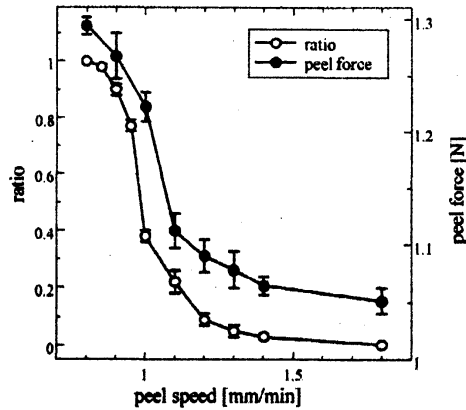


図 13: 剥離力 (●) および白領域の占める割合 R (○) に対する剥離速度依存性。

3 実験結果を再現するモデル

この章では、第2章にまとめた粘着テープの剥離における動力的挙動とパターン形成に関する実験結果を再現するための単純で実験事実に基づくモデルを構築する [4]。

3.1 状態変数の導入

第2.3節で述べたように、剥離中に変形した粘着物質によって形成されるトンネル構造の安定性のために、界面剥離において2つの剥離状態が存在することを我々は明らかにした。そして、剥離によって粘着テープ上に形成されたパターンは、これら2つの剥離状態で構成される時空間分布としてみることを提案した。そこで、2つの剥離状態の違いを表す量として、状態変数 Φ を導入する。そして、図1のような単純な場合を想定し、 Φ を剥離速度 V と剥離力 F との間の比例係数として定義する。この定義に従うと、剥離先端内で剥離状態が一様な場合、剥離先端の位置を s で表すと、剥離先端の移動速度は \dot{s} であること、および、定常剥離では $\dot{s} = V$ が成り立つことから、

$$F = \Phi \dot{s} = \Phi V = \begin{cases} \Phi_t V & (V < V_A^{\max}) \\ \Phi_u V & (V > V_B^{\min}) \end{cases} \quad (1)$$

という関係が得られる。ただし、 Φ_t と Φ_u はそれぞれ、領域 A と B での状態変数 Φ の値を表しており、実験結果から、 $\Phi_t > \Phi_u$ が成り立つとする。つまり、 Φ_t はトンネル構造を伴う剥離状態での値、 Φ_u は伴わない剥離状態での値である。

3.2 空間的に一様な場合のモデル化

3.2.1 つりあいの式

この節では、剥離先端での粘着物質の状態が空間的に一様な場合のモデル化について考える。まず、システムにはバネが存在するために、剥離先端の速度 \dot{s} とコントロール・パラメータである速度 V は、一般に異なる値をとりうる。いま、時刻 $t=0$ で、剥離先端の位置 s が、 $s=0$ で静止していたとすると、時刻 t でのバネの伸びは $Vt-s$ であり、バネの弾性力が常に剥離力とつりあいながら剥離は進行しているものと考えられることから、つりあいの式

$$k(Vt-s) = \Phi \dot{s} \quad (2)$$

が成り立つ。ただし、ここでは簡単のために、既に剥離された粘着テープの部分は固い (rigid) と仮定している。

3.2.2 状態の時間発展式

振動剥離の場合を考慮すると、各時刻における剥離先端での粘着物質の状態は空間的にほぼ一様であるが、時間とともに変化 (振動) している。従って、状態変数 Φ の時間変化を記述しなければならない。剥離時の外力によって、基板とテープフィルムの間隔が広がり、粘着物質の存在する境界条件が変化することに対し、粘着物質は粘弾性を利用して自らを変形させながら安定な状態へと緩和していると考えられる。つまり、状態変数 Φ の時間変化は、外力に対する粘着物質の緩和的応答として記述でき、一般的には次のような形式で表されるであろう。

$$\dot{\Phi} = -(f_{\text{int}}(\Phi) + f_{\text{ext}}) \quad (3)$$

ここで、 $f_{\text{int}}(\Phi)$ は、剥離状態の安定性を決定する関数であり、実験事実から、 Φ_t と Φ_u が剥離力 F_B^{min} と F_A^{max} の範囲内で双安定となるように決めればよい (図1参照)。 f_{ext} は剥離状態に対する外力の影響を表している。外力としては、粘着物質と基板との相互作用が考えられる。この相互作用に剥離先端の速度 \dot{s} は依存していることから、 f_{ext} は \dot{s} の関数になるであろう。そこで、 f_{ext} に対して次式を仮定する。

$$f_{\text{ext}} = \Phi(\dot{s} - v^*) \quad (4)$$

ここで、 v^* は速度に次元を持った定数である。

3.2.3 粘着物質の不均一性の寄与

図 8(a) に示されたトンネル構造を伴う剥離状態のパターンには、トンネル構造が分裂したり、途中でトンネル構造が途切れたりしている部分が観られる。このことから、粘着テープ内では粘着物質が不均一になっていると考えられる。従って、粘着物質の不均一性を剥離状態の時間変化に対するノイズとして考慮する。不均一性を表すノイズの項を ξ で表すと、式 (2)、(3) および (4) より、空間的に一様な剥離における力学的挙動を記述する時間発展式は、次のようにまとめられる。

$$\begin{cases} k(Vt - s) = \Phi \dot{s} \\ \dot{\Phi} = -f_{\text{int}}(\Phi) - \Phi(\dot{s} - v^*) + \xi \end{cases} \quad (5)$$

3.3 剥離先端内での空間変動を考慮したモデル

時空間共存剥離では、粘着物質の変形状態が時間的に変動するだけでなく、同じ時刻の剥離先端の中でも非一様になっている。従って、第 3.2 節で行った考察に加えて、状態変数の空間的変動も考慮しなければならない。そこで、粘着テープに形成されるパターンがトンネル構造の有無によって区別できることから、トンネル構造の幅（この実験ではおよそ $100\mu\text{m}$ ）を単位とするサイズに剥離先端を分割して、それぞれの単位領域で異なる変形状態を取りうると考えることにする。この考え方は、状態変数が剥離先端中で 1 次元的に並んでいるような系として剥離先端をみなす事を意味している。状態変数の数 N はテープ幅を L 、トンネル構造の幅を a で表せば、 $N \approx L/a$ で与えられる。従って、各時刻での剥離先端の状態は N 個の状態変数 $\{\phi_j\}$ ($j = 1, \dots, N$) によって記述することができ、剥離先端内の各単位領域における状態の時間変化が粘着テープ上にパターンとして現れるのである。

以下では、剥離先端での粘着物質の状態が一様な場合の状態変数 Φ に対する時間発展式 (5) を元にして、状態変数の空間変動を考慮したモデルを構築する。まず、粘着テープ全体の剥離力は、剥離先端中では状態が非一様であるため、剥離先端におけるそれぞれの単位領域での剥離力の和として決まると考えられる。そこで、空間的に非一様な場合のつりあいの式は、式 (2) に対応して、

$$k(Vt - s) = \sum_{j=1}^N \phi_j \dot{s} \quad (6)$$

と書ける。同様に、一様な場合の外力 f_{ext} も、各状態変数 ϕ_j に働く外力は一般に異なるであろうから、 ϕ_j に働く外力を $[f_{\text{ext}}]_j$ と表すことにする。 ϕ_j に働く外力としては、剥離先端内の単位領域は粘着物質およびテープによって他の単位領域全体とつながっているの

で、 ϕ_j だけでなく、 ϕ_j の周りからの影響を受けると考えられる。そこで周りからの影響として全ての ϕ_j の平均値による相互作用を仮定し、 $[f_{\text{ext}}]_j$ を式 (4) に対応して次のように表す。

$$[f_{\text{ext}}]_j = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N \phi_k (\dot{s} - v^*) = \bar{\phi} (\dot{s} - v^*) \quad (7)$$

以上より、状態変数 ϕ_j の時間発展式は、

$$\dot{\phi}_j = -f_{\text{int}}(\phi_j) - \bar{\phi} (\dot{s} - v^*) + \xi_j \quad (8)$$

で与えられる。ここで、 $f_{\text{int}}(\phi_j)$ は式 (3) と同様に、状態変数 ϕ_j の安定性を決定する関数である。また、粘着物質の不均一性に起因するノイズのスケールは、トンネル構造より小さいと考えられることから、式 (8) において、それぞれの単位領域で異なる空間ノイズ ξ_j を加えることは妥当であろう。

次に、異なる 2 種類の剥離状態が、剥離先端の中で共存している場合を考える。図 14 は領域 D における剥離先端のスナップショットである。この図に示されているように、トンネル構造のあるところと無いところの剥離先端を比較すると、無い部分の剥離先端の方が少し前に進んでいて、ずれが生じていることがわかる。このずれは剥離中ほぼ一定であるが、このずれのためにトンネル構造のある部分と無い部分の境界では、トンネル構造の破壊が引き起こされる。ここで注意すべき点は、逆の現象、つまり境界でトンネル構造が形成されることは困難であるということである。なぜならば、トンネル構造のない部分の方が剥離先端は前に進行しているので、境界で粘着物質が再度基板にくっつき、トンネル構造を伴う剥離先端の位置に後退することはできないからである。従って、境界では状態 A から B への遷移のみが起こることを、剥離先端内の局所的な空間変動の寄与として状態変数の時間発展式に導入する必要がある。そこで、次の式 (9) で与えられる項を式 (8) に追加する。

$$f_{\text{sp}}(\phi_{j-1}, \phi_j, \phi_{j+1}) = -d \{ \theta(\phi_j - \phi_{j+1}) + \theta(\phi_j - \phi_{j-1}) \} \quad (9)$$

ここで関数 $\theta(x)$ は、

$$\theta(x) = \begin{cases} 0 & (x < 0) \\ x & (x \geq 0) \end{cases} \quad (10)$$

で定義される。もし、 $\theta(x) = x$ とすれば、 f_{sp} は拡散を差分化したものになるので、式 (9)、(10) は、非対称な拡散を表しているとも言える。

以上より、空間変動を考慮したモデルは次のようになる。

$$\left\{ \begin{array}{l} k(Vt - s) = \sum_{j=1}^N \phi_j \dot{s} = N \bar{\phi} \dot{s} \\ \dot{\phi}_j = -f_{\text{int}}(\phi_j) + f_{\text{sp}}(\phi_{j-1}, \phi_j, \phi_{j+1}) - \bar{\phi}(\dot{s} - v^*) + \xi_j, \quad (j = 1, \dots, N) \end{array} \right. \quad (11)$$

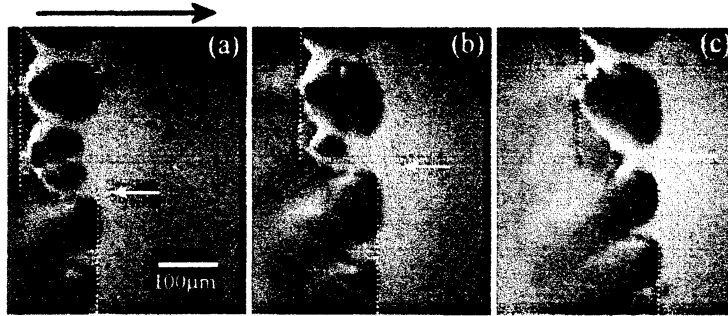


図 14: 剥離先端での局所的な空間変動。図 (a) 上の黒矢印は剥離の方向を表している。また、図中の白点線は、各状態での剥離先端の位置を表し、白矢印は 2 状態の境界を指している。

変数 s から u への変数変換

$$\frac{k}{N} (Vt - s) = u \quad (12)$$

を行うと、式 (11) は、

$$\left\{ \begin{array}{l} \tau \dot{u} = V - \frac{u}{\bar{\phi}} \\ \dot{\phi}_j = -f_{\text{int}}(\phi_j) + f_{\text{sp}}(\phi_{j-1}, \phi_j, \phi_{j+1}) + \bar{\phi} v^* - u + \xi_j, \quad (j = 1, \dots, N) \end{array} \right. \quad (13)$$

となる。ここで、 $\tau \equiv N/k$ である。式 (13) におけるコントロール・パラメータは V と τ であり、実験でコントロールできる剥離速度とバネ定数に対応している。我々は、式 (13) を粘着テープの剥離における動的挙動およびパターン形成のモデルとして提案し、次の章で数値シミュレーションを行った結果を紹介する。

4 シミュレーション結果

ここでは、剥離の動的挙動に対するモデル (式 (13)) を数値的に解いて得られた結果を紹介し、実験結果と比較する [4]。

4.1 f_{int} の形

式 (13) を解くため、実験事実から、 $f_{\text{int}}(\phi)$ の形を ϕ_i と ϕ_u が剥離力 F_A^{min} と F_B^{max} の範囲内で双安定となるように決める。ここでは単純に、式 (14) で与えられるような、N字型をした線形区分な関数を採用する。(図 15 参照)。

$$f_{\text{int}}(\phi) = \begin{cases} \frac{b}{a}(\phi - \phi_u^0) + f_0, & (\phi \leq \phi_u^0 + a) \\ -\frac{2b}{(\phi_i^0 - \phi_u^0) - 2a} \left(\phi - \frac{\phi_i^0 + \phi_u^0}{2} \right) + f_0, & (\phi_u^0 + a < \phi \leq \phi_i^0 - a) \\ \frac{b}{a}(\phi - \phi_i^0) + f_0, & (\phi_i^0 - a < \phi) \end{cases} \quad (14)$$

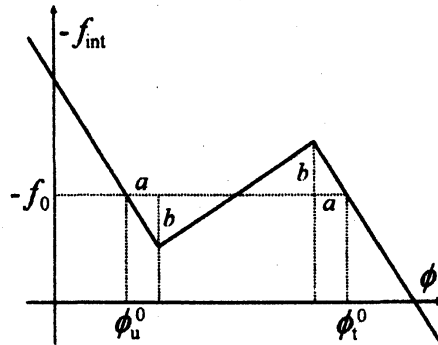


図 15: f_{int} の概形

4.2 モデルの計算方法

我々が行った数値シミュレーションにおいて用いた各係数の値は以下のとおりである。関数 $f_{\text{int}}(\phi)$ については、 $f_0 = -3$ 、 $\phi_u^0 = 2$ 、 $\phi_i^0 = 1$ 、 $a = 0.1$ 、 $b = 0.3$ とした。 f_{sp} にある d は、 $d = 0.5$ を用いた。また、 $v^* = 0.5$ 、 $N = 256$ とした。式 (13) の時間発展を求めるには、オイラー法を用い、時間ステップ Δt は $\Delta t = 0.001$ とした。 j に関する境界条件は周期境界条件を用い、初期条件は $u(t=0) = 0$ および $\phi_j(t=0) = 2 (= \phi_i^0)$ とした。 ξ_j は、 -12.5 から 12.5 までの間の一様乱数を採用した。そして、 V と τ の値を変化させたときの動力的挙動を調べた。

4.3 得られるパターン

図16は、剥離速度 V を (a)1.7 と (b)3.4 にしたときの状態変数 $\{\phi_j\}$ の時空パターンを表している。 τ は、共に 10.0 であるとした。図16(a)に示されているように、横方向には各時刻における $\{\phi_j\}$ の値が並んでおり、上から下に向かって剥離が進行、つまり時間が経過している。図のグレイスケールは ϕ_j の大きさに対応しており、 ϕ_j が大きくなるに従って明るくなるように設定してある。各図のサイズは 256×256 であり、縦方向には 5000 時間ステップごとの $\{\phi_j\}$ を描画している。図16から分かるように、 $V = 1.7$ と 3.4 では、時空間的に一様なパターンが共に得られた。 ϕ の値から、(a) はトンネル構造を伴う定常剥離状態（動的相図の領域A）、(b) はトンネルを伴わない定常剥離状態（領域B）に対応していることが分かる。

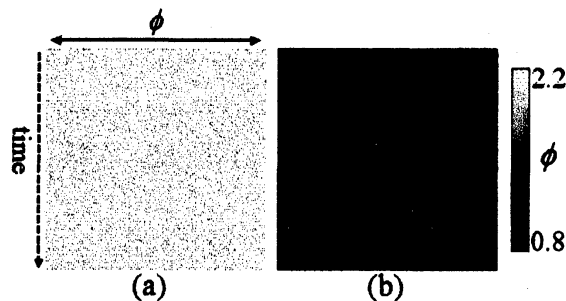


図 16: 定常剥離の時空パターン。 $V = (a)1.7, (b)3.4$

図17は V と τ を変えたときに得られる特徴的な6つの時空パターンを示している。上の3枚の図 (a~c) が $\tau = 100$ の時の図で、下の3枚 (d~f) が $\tau = 1.0$ の時に得られたパターンである。 τ の定義から、(a)~(c) は k が小さいときのパターンに対応し、領域Cで起こる振動剥離が再現され、(d)~(f) は k が大きいときのパターンであり、領域Dでおこる時空間共存剥離が再現されており、第2.4節で示した実験事実と一致する結果が得られた。さらに、図17では、左から右へ向かって V が大きくなっており、 $V = (a, d) 1.95, (b, e) 2.4, (c, f) 2.9$ の結果を示している。これら6枚の図には、時空パターンの V 依存性について、次のような性質が認められる。(i) 振動剥離に対応した上の列 ($\tau = 100$) では、 V が速くなるに従って、振動の周期が短くなっている。この傾向は実験においても確かめられている。(ii) 時空間共存剥離に対応した下の列 ($\tau = 1.0$) に着目すると、 V が速くなるに従って、各時刻における白領域の割合が少なくなっている。(iii) V の変化により領域の連結性が逆転する。(iv) 剥離先端内での白領域と黒領域の境界では、白い領域が収縮し、黒い領域が広がる傾向にある。これらの性質は、実験と定性的に一致している。

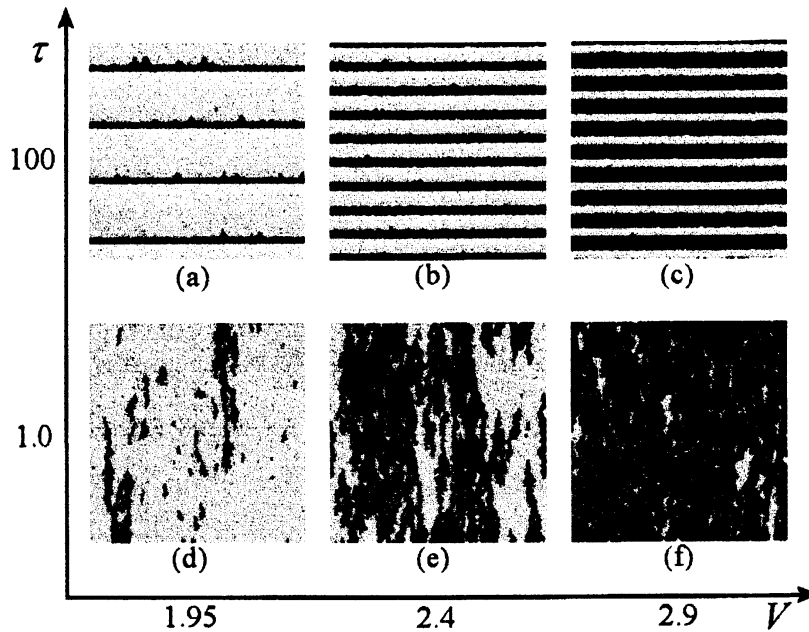


図 17: シミュレーションで得られるパターン

4.4 速度－剥離力曲線

図 18 は、モデルから得られた u の時系列をあらわしている。式 (12) から分かるように、 u は単位領域当りに働く外力（バネの復元力）を表している。コントロールパラメータの値は、 $V = 1.95$ 、 $\tau = 100$ であり、この時系列は、図 17(a) のパターンが形成される時のもので、パターンに対応して剥離力も（自励）振動している。ここで、 τ を固定して、剥離速度 V を変化させたときの V に対する u の変動幅をグラフにプロットすると、図 19 のような $V-u$ （速度－剥離力）曲線が得られる。図は、 τ を異なる 3 つの値にした場合の結果を表しており、(a) から (c) へと τ が小さくなっている。図中の白丸は、剥離が一定の力で行われた定常剥離を示しており、垂直線は剥離中に力が自励振動したことを表し、その振動幅を表している。図 3 と図 19 を比較すると、シミュレーションで得られた $V-u$ 曲線が実験結果とよく一致していることが分かる。また、 τ が小さくなるに従って、振動剥離領域 C は狭まり、時間に対して u がほぼ一定となる剥離領域が広がることも分かった。さらに、領域 C において u が振動しなくなった領域では、 u は V の増加に対して単調減少することも再現されており、実験結果の領域 D で観られる結果と一致している。また、図 19(a) の結果から、振動剥離における u の変動幅の上限と下限は、領域 A と B の定常剥離における u の値を外挿した値に近くなることも再現されている。

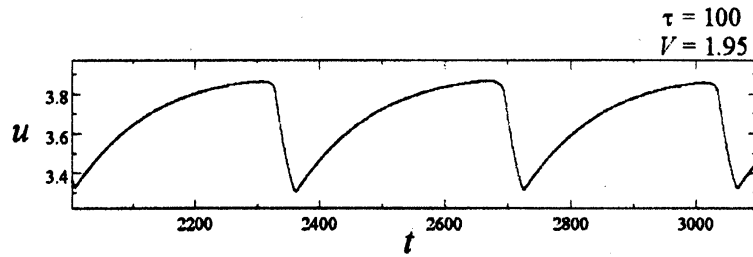


図 18: 領域 C における u の時系列

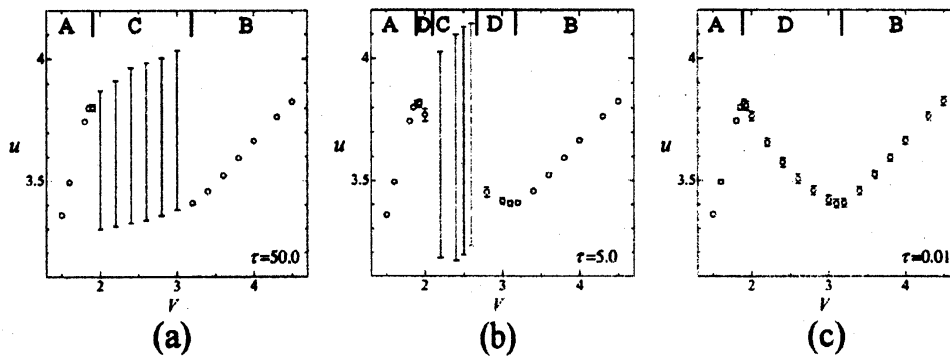


図 19: シミュレーションによって得られる速度-剥離力曲線。 $\tau =$ (a)50.0, (b)5.0, (c)0.01。

4.5 動的相図

以上の結果を踏まえて、実験の場合と同様、状態変数の時空間パターンを考慮した動的相図が図 20 である。実験結果から得られた図 7 と比較するために、図 20 では縦軸が τ^{-1} になっていることに注意。式 (13) から得られたこの動的相図は、実験から得られた相図の場合と同様、大きく 4 つの領域に分類できる。図 20 の \circ は白い領域が時間・空間ともに一様に現れる場合、 \bullet は黒い領域が時間・空間ともに一様に現れる場合を表しており、それぞれ実験の動的相図における領域 A と B に対応している。 \odot は、空間的には一様に白い領域と黒い領域が交互に繰り返して現れる場合を意味し、領域 C に対応している。さらに、 \triangle の領域では、実験の動的相図における領域 D で観られる時空間パターンと似たパターンが得られた。モデルによって得られた動的相図 (図 20) は、実験から得られた動的相図 (図 7) を極めてよく再現していることが分かる。

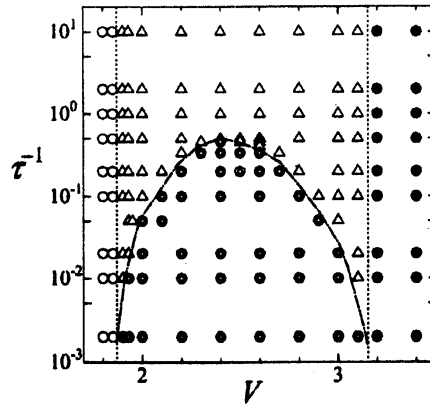


図 20: シミュレーションにより得られた動的相図。図中の記号 (○・●・⊙・△) の意味については図 7 参照。

4.6 時空間共存剥離の性質

図 17 から分かるように、時空間共存剥離が行われる領域 D においては、 V を大きくしていくと、トンネル構造が存在する状態を表す白い領域の割合が減少している。実験から得られる剥離先端内でのトンネル構造が占める領域の割合 R は、モデルにおける状態変数の空間平均 $\bar{\phi}$ と対応していることから、 $\bar{\phi}$ の V 依存性は、図 13 に示されている R の剥離速度依存性と対応している。実際、図 21 は $\tau = 0.01$ の時に得られた $\bar{\phi}$ の V 依存性を表している。図中の白丸は、式 (13) より得られた結果をプロットしたものである。 V_L と V_H の間では、 V の増加に対し $\bar{\phi}$ は単調減少しており、図 13 の実験結果と一致している。また、 ϕ は剥離速度と剥離力との比例係数であることから、 $V \leq V_L$ および $V \geq V_H$ の範囲における $\bar{\phi}$ の値は、2 状態のうち、安定した状態の比例係数の V 依存性を表しており、 f_{int} を N 字型の関数として定義したことを反映した振る舞いをしている。図中の実線で表された曲線は、以下で説明するような、バネの硬い極限における考察から得られる関数 $\bar{\phi}(V)$ を表している。

式 (13) において、バネ定数が大きい極限 (剛体極限、 $\tau \rightarrow 0$) を考える。このとき、バネの弾性力と剥離力のつりあいの式から、 $u = \bar{\phi}V$ が得られるので、粘着物質の変形状態の時間発展式は、

$$\dot{\phi}_j = -f_{\text{int}}(\phi_j) + f_{\text{sp}}(\phi_{j-1}, \phi_j, \phi_{j+1}) + (v^* - V)\bar{\phi} + \xi_j, \quad (j = 1, \dots, N) \quad (15)$$

となり、 $\{\phi_j\}$ について閉じた式が得られる。ここで、 j についての平均を考えると、式 (15) から次の式が得られる。

$$\frac{d}{dt}\bar{\phi} = -\overline{f_{\text{int}}} + \overline{f_{\text{sp}}} + (v^* - V)\bar{\phi} \quad (16)$$

ここで $\overline{f_{\text{int}}}$ と $\overline{f_{\text{sp}}}$ はそれぞれ、 $f_{\text{int}}(\phi_j)$ 、 $f_{\text{sp}}(\phi_{j-1}, \phi_j, \phi_{j+1})$ の j についての平均を表している。さらに時間平均 ($\langle \dots \rangle$ で表す) をすると、定常状態では $\frac{d}{dt} \bar{\phi} = 0$ より、

$$0 = -\langle \overline{f_{\text{int}}} \rangle + \langle \overline{f_{\text{sp}}} \rangle + (v^* - V) \langle \bar{\phi} \rangle \quad (17)$$

となる。従って、バネの硬い極限における定常状態では、 $\langle \bar{\phi} \rangle$ は

$$\langle \bar{\phi} \rangle = \frac{f^*}{(V - v^*)} \quad (18)$$

となる。ただし、 $f^* \equiv -\langle \overline{f_{\text{int}}} \rangle + \langle \overline{f_{\text{sp}}} \rangle$ であり、 V に依存しない値である。例えば本章のシミュレーションにおいては、 $\tau = 0.01$ 、 $V = 2.1$ のとき、 $f^* = 2.83 \pm 0.01$ を得た。この f^* の値および $v^* = 0.5$ を用いて式 (18) をプロットした結果が図 21 における実線であり、白と黒の領域が共存する V_L から V_H までの値で、シミュレーション結果とよく一致していることが分かる。

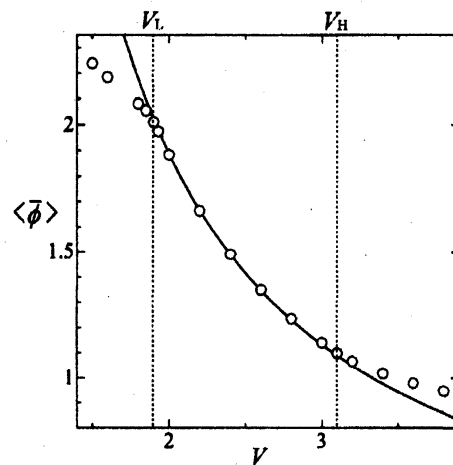


図 21: $\langle \bar{\phi} \rangle$ の V 依存性。実線は、 $f^* = 2.83$ 、 $v^* = 0.5$ の時の式 (18) を描画したものである。

5 まとめ

本文では、粘着テープを界面剥離が起こるように一定の速度で引き剥がしたときの剥離挙動およびパターン形成について調べた結果を報告した。そして、変形した粘着物質によって形成されるトンネル構造の安定性を表す状態変数を導入し、状態変数が剥離先端内に一次元的に並んでいると考えて、その集団運動として剥離挙動が理解できることを示してきた。我々が提案してきたモデルは、剥離挙動およびパターン形成に関する実験事実を良く再現しているといえる。この剥離挙動において本質的な要因は、(1) トンネル構造の安定性によって生じる2状態の双安定性、(2) 2状態の境界でトンネル構造が壊れやすいという局所的な相互作用と、テープ全体での粘着力を平均した値が各状態変数に外力として働いているという大域的な相互作用との競合である。局所的な相互作用によって、トンネル構造の存在している領域が減少すると、テープ全体の剥離力は低下する。そして、剥離力が低下すると、双安定状態の限界に近づくため、トンネルを伴わない剥離が行われている領域では、トンネル構造が形成されやすくなり、再びテープ全体の粘着力は強くなる。ところが、トンネル構造が形成された領域では、局所的な相互作用により、再びトンネル構造の領域は減少し、テープ全体の剥離力の低下をもたらす。このサイクルを繰り返すことによって領域Dにおけるパターンが形成され、2つの相互作用が釣り合うように領域比および剥離力が決定されるのである。

参考文献

- [1] G. R. Strobl: *The Physics of Polymers* (Springer-Verlag, Berlin, 1997).
- [2] D. Satas: *Handbook of Pressure Sensitive Adhesive Technology* (Van Nostrand Reinhold, New York, 1989) 2nd ed.
- [3] Y. Urahama: *J. Adhesion*, 31 (1989) 47.
- [4] Y. Yamazaki and A. Toda: *Physica D*, 214 (2006) 120.