



## ZUSAMMENFASSUNG:

Im Alltag stößt man häufig auf die Aufgabe, zwei zusammengeklebte Gegenstände voneinander zu trennen. Dabei fallen grundsätzlich verschiedene Ablöseverhalten auf. Einerseits gibt es eine „saubere“ Trennung, wie beim Abziehen eines Klebestreifens, der sich komplett ablösen lässt, ohne Spuren zu hinterlassen. Auf der anderen Seite beobachtet man das „kaugummiartige“ Ablösen, bei dem das klebende Material stark gedehnt wird, so dass lange Fasern entstehen und Überreste bleiben. Eine besondere Klasse der Klebstoffe, die „pressure sensitive adhesives“, kleben nur anhand der van-der-Waals-Kräfte. Typische Anwendung sind Klebestreifen und Etiketten. Die Eigenschaften dieser Kleber liegen zwischen denen reiner Flüssigkeiten und reiner Festkörper, das Material ist viskoelastisch. Das Ablöseverhalten wird dabei stark von den Materialeigenschaften des Klebers bestimmt, der sowohl flüssige als auch feste Charakteristika besitzt. Anhand verschiedener Ablösemechanismen studierte ich in meiner experimentellen Doktorarbeit die grundlegende Fragestellung des Übergangs von Flüssigkeiten über viskoelastische Materialien hin zu Festkörpern.

Als Modellsystem verwendete ich in meiner Dissertation ein Produkt, das aus einem Silikonöl (Polydimethylsiloxan, PDMS) und einem Vernetzer besteht. Das reine Silikonöl besteht aus kurzen Polymerketten und verhält sich wie eine gewöhnliche Flüssigkeit. Unter Zugabe des Vernetzers bilden sich kovalente Bindungen zwischen den einzelnen Polymerketten und es entsteht ein Netzwerk. Je nach zugegebener Menge an Vernetzer erhält man eine viskoelastische Flüssigkeit, ein Material am Gelpunkt oder einen viskoelastischen Festkörper. Da das Ablöseverhalten entscheidend von den rheologischen Eigenschaften bestimmt wird, wurden die verschiedenen Materialsysteme – von flüssig bis fest – in einem Rheometer charakterisiert.

Die Ablöseexperimente führte ich in der „Probe-Tack“-Geometrie durch. Dabei wird ein zylindrischer Metallstempel mit einem Radius von 3mm und mit flacher Oberfläche einer 50  $\mu\text{m}$  bis 500  $\mu\text{m}$  dicken PDMS-Schicht angenähert. Nach Erreichen des Kontakts wird der Stempel mit konstanter Geschwindigkeit von der Schicht abgelöst. Dabei werden die Normalkraft auf den Stempel sowie seine Distanz von der PDMS-Schicht gemessen. Während des Ablösens entstehen durch in die Klebeschicht eindringende Luft verschiedene Strukturen. Diese Muster beobachtete ich von oben mit einer Kamera.

Beim Ablösen dringt Luft von der Seite entweder in das Volumen der viskoelastischen Schicht oder an der Grenzfläche zwischen Polymer und Metallstempel ein. Die Kontaktlinie zwischen Luft und PDMS ist anfänglich kreisförmig. Beim Ablösen wird sie jedoch instabil und beginnt sich zu wellen. Je weiter der Stempel abgezogen wird, desto stärker wächst die Amplitude der Wellen, und schließlich bilden sich „Luftfinger“, die sich zur Mitte des Stempels hinbewegen. Hierbei existieren zwei verschiedene Mechanismen. Der Fall des Entklebens an der Grenzfläche zeichnet sich durch schnelles Ausbreiten der Luftfinger an der Grenzfläche aus, ohne das Material selbst stark zu verformen. Im Fall des Entklebens im Volumen bilden sich PDMS-Fasern zwischen dem Stempel und der Polymerschicht. Hierbei wird das Material sehr stark verformt. Die Experimente quantifizierte ich anhand der Wellenlänge, das heißt, der Anzahl der Luftfinger pro Stempelumfang im Moment der ersten Destabilisierung der Kontaktlinie. Ich konnte zeigen, dass die Wellenlänge im Volumen-Regime durch die Saffman-Taylor-Theorie beschrieben wird, die auch für reine Flüssigkeiten gilt, und im Grenzflächen-Regime den Gleichungen gehorcht, die für eine elastische Oberflächeninstabilität aufgestellt wurden. Ich konnte einen empirischen Parameter definieren, der den Übergang zwischen Grenzflächen- und Volumenregime beschreibt und nur auf (leicht messbaren) Materialeigenschaften basiert. Dieser Parameter ist für die gesamte Materialfamilie gültig. Damit kann nun der Ablösemechanismus direkt aus den Materialeigenschaften vorhergesagt werden.

Um die Form der Luftfinger in drei Dimensionen zu bestimmen, entwickelten wir eine existierende Methode weiter, bei der die Kontaktlinie unter einem Winkel beobachtet wird. Dabei wird die Totalreflexion in einem Glasprisma genutzt und der Metallstempel durch einen Glasstempel ersetzt. In ersten Versuchen zeigte ich, dass sich verschiedene Materialien sowohl in der Dicke der Luftfinger als auch im Kontaktwinkel qualitativ unterscheiden. Damit ist es zum ersten Mal gelungen, die Kontaktlinie und ihre Destabilisierung beim Ablösen *in situ* in 3D abzubilden. Dies ermöglicht erstmals eine direkte Bestimmung der Randbedingungen zwischen viskoelastischem Material und festem Substrat und liefert damit die Grundlage für Modellierungen.

Im letzten Teil der Arbeit schließlich untersuchte ich detailliert das Ablösen einer einfachen Flüssigkeit. Während ich mich im ersten Teil der Arbeit auf das Eindringen der Luft in das PDMS zu Beginn des Ablösens konzentrierte, erlaubte es das einfachere flüssige Probensystem, die komplexen Mechanismen während des gesamten Prozesses als Funktion der Zeit zu betrachten. Es ist bekannt, dass in diesem System ein dimensionsloser Parameter, bestehend aus Viskosität, Oberflächenspannung, Schichtdicke, Stempelradius und Stempelgeschwindigkeit, die Fingerbildung zu Beginn des Prozesses bestimmt. Ich konnte zeigen, dass für den weiteren Verlauf des Ablösens nicht nur dieser bekannte Parameter wichtig ist, sondern dass ebenso das Verhältnis zwischen Dicke der Flüssigkeitsschicht und Stempelradius eine entscheidende Rolle für die Entwicklung der Luftfinger, aber auch für die zum Ablösen notwendige Kraft, spielt.

Die Ergebnisse, die in dieser Dissertation erzielt wurden, ermöglichen ein tieferes Verständnis der Strukturbildung in viskoelastischen Materialien. Speziell die Frage des Übergangs von flüssig zu fest ist einerseits für die Verbesserung und Entwicklung von Klebstoffen, andererseits für das grundlegende Verständnis von Strukturbildung in Materialien mit komplexen Eigenschaften von großer Bedeutung.