

論文内容要旨 (和文)

平成 15 年度入学 大学院博士後期課程

物質生産工学専攻 材料物理工学講座

学生番号 03422201

氏 名 角 田 正 樹 

(英文の場合は、その和訳を () を付して併記すること。)

論文題目 高分子熔融体界面での絡み合いとホットタック強度に関する研究

自動製袋充填包装機などの連続的に内容品の充填から製袋までを行う高分子フィルムの熱融着成形で、成形性の評価指標の一つにホットタック特性がある。自動製袋充填包装の主要な技術課題は包装速度(ヒートシール時間)であり、熱融着が不完全な(ホットタック強度が低い)場合にはシール部の欠損による内容物の漏れにより高速化が妨げられる。包装フィルムのホットタック強度と熔融状態におけるレオロジー特性との関係性を評価することで、最適な成形条件とホットタック強度を引き出すための分子構造(分子量・分子量分布・分岐など)の両面について予測することができると考えられる。

本研究では、レプテーションモデルを用いた新しい解析法を提案し、ホットタック試験での各ヒートシール時間における高分子界面での絡み合い個数を評価し、ホットタック強度との関係について検討を行った。新しく提案した解析法の妥当性を評価するために、非晶性のポリスチレンを用い(I)ホットタック試験の条件、(II)分子量・分子量分布を変え検討を行った。また実際の成形では添加剤を含む材料がほとんどであるため、(III)添加剤を含んだ材料についても新しく提案した解析法で評価を行った。その結果は以下の通りである。

- (I) ホットタック強度の界面で新しく組み替えた絡み合い個数 N の依存性を評価した場合、 N が 1 の時(それぞれの分子鎖 1 本あたり 1 つの絡み合いを組み替える)に界面の破壊様式が界面破壊から凝集破壊へと変化する。界面破壊の領域では、ホットタック強度が N のおよそ 1 乗(0.8~1.3)に比例し増加する。凝集破壊の領域ではほぼ一定の値を示す。ヒートシール温度を変化させてもホットタック強度の N 依存性は変わらなかった。同ヒートシール時間で温度が高い場合には分子鎖の運動性が上がり N が増加し、低温のデータをと比べると N が高い領域の値となる。
- (II) 分子量を変化させた場合、短い分子鎖は温度を変えた場合と同様に同ヒートシール時間で N が高い領域の値となる。これは短い分子鎖が長い分子鎖と比べ運動性がよいためである。分子量分布が広い場合には、高い分子量から低い分子量の分子鎖を含んでいるため、各分子量ごとに考える必要がある。緩和スペクトルを求め、各成分ごとの界面での絡み合いを考えることにより、界面破壊の領域でホットタック強度が分子量分布に依存せず、界面の絡み合い個数 N に依存した。
- (III) 添加剤を含んだ系として、低分子を添加した系、シリカナノ粒子を添加した系について同様に新しく提案した解析により評価を行った。低分子を添加した系は、分子量分布を変えた場合と

同様に緩和成分を分離することで、評価することができた。シリカナノ粒子を添加した系は、ホモポリマーと比べ高いホットタック強度を示した。

本研究で新しく提案した解析法により、ホットタック強度の界面で新しく組み替えた絡み合い個数の依存性が明らかとなり、必要となるホットタック強度を得るためのヒートシール温度・時間を予測することが可能となった。本研究の成果は、材料設計をするための重要な指針となる。

(10pt 2,000 字程度 2 頁以内)

論文内容要旨 (英文)

平成 15 年度入学 大学院博士後期課程

物質生産工学専攻 材料物理工学講座

学生番号 03422201

氏 名 角 田 正 樹 (印)

論文題目 Study of Hot Tack Strength and Entanglements at Polymer Melt Interface

Hot tack property is an important indicator for evaluating processability when we use auto filling packaging process. There have been a problem to be solved in auto filling packaging process that inferior sealed products when sealing time is shorter (because hot tack strength is too weak when the sealing time is shorter). For that reason, we can not speed up the processing speed. It becomes possible to predict an optimal condition of heat sealing and optimal structure of material by clarifying relationships of hot tack strength of packaging film and rheological properties of polymer melts.

In this study, we propose a new analytical method by using the reptation model for newly generated polymer entanglements at polymer interface. The relationships between hot tack strength and polymer entanglements were investigated. Suitability of this new analysis was examined from (I) effect of measurement conditions for relationships between hot tack strength and newly generate entangle number, and (II) effect of molecular weight and molecular weight distribution. Because additives are used in industrial products, we examined hot tack properties of (III) polymer containing oligomer and polymer containing silica particles system. The following is summarized findings:

(I) about evaluating hot tack strength dependence by using newly generated entanglements at polymer interface (N), interface failure modes were changed adhesive failure to cohesive failure at $N = 1$ that means one polymer chain renewed own one entanglement. In adhesive failure region, hot tack strength proportions to $0.8 \sim 1.3$ power of N . In cohesive failure region, hot tack strength was almost constant value. The hot tack strength dependence of N was not changed by changing temperature. The data at high temperature exhibited higher N value than that at low temperature, because polymer chain can move easily at high temperature.

(II) The effect of molecular weight for hot tack strength dependence of N was similar to that of temperature. Low molecular chain data showed higher N region than high molecular chain, because low molecular chain can move easily than

than high molecular chain, because low molecular chain can move easily than high molecular weight chain.

It is necessary to consider that broad molecular distribution type material containing from low molecular to high molecular weight polymer chain analyze the effect of molecular weight distribution. We can get same tendency with mono disperse material to separate some relaxation components, the hot tack strength proportions to 0.8~1.3 power of N.

(III) Polymer containing oligomer was analyzed by using same method to examine when effect of molecular weight distribution. This system showed same tendency with mono disperse material to separate some relaxation components. In the case of polymer including silica nano particles, the system showed higher hot tack strength than the homopolymer.

By using the newly proposed analysis method in this study, we can clarify dependence of newly generate entanglements at polymer surface on hot tack strength. As the results it becomes possible to estimate optimal heat seal condition, heat seal temperature and time.






(12pt シングルスペース 300 語程度)

学位論文の審査及び最終試験の結果の要旨

平成19年 2月 5日

理工学研究科長 殿

課程博士論文審査委員会

主査 小山 清人 
副査 米竹 孝一郎 
副査 高橋 幸司 
副査 谷口 貴志 
副査 高橋 辰宏 

学位論文の審査及び最終試験の結果を下記のとおり報告します。

記

1. 論文申請者

専攻名 物質生産工学 専攻
氏 名 角田 正樹

2. 論文題目 (外国語の場合は、その和訳を併記すること。)

..... 高分子溶液界面での絡み合いとホットタック強度に関する研究

3. 学位論文公聴会

開催日 平成19年 2月 5日
場 所 ベンチャー・ビジネス・ラボラトリー 3階 秦ホール

4. 審査年月日

論文審査 平成19年 1月23日 ~ 平成19年 2月 5日
最終試験 平成19年 2月 5日 ~ 平成19年 2月 5日

5. 学位論文の審査及び最終試験の結果 (「合格」・「不合格」で記入すること。)

(1) 学位論文審査 合格と判定した。.....
(2) 最終試験 合格と判定した。.....

6. 学位論文の審査結果の要旨 (1,200字程度)

別紙のとおり

7. 最終試験の結果の要旨

別紙のとおり

別紙

専攻名	物質生産工学	氏名	角田 正樹
学位論文の審査結果の要旨			
<p>本論文は、熱融着（ヒートシール）した高分子フィルムのホットタック強度（ヒートシールした直後の溶融状態ではく離強度）と、融着した界面において高分子鎖1本が新しく絡み合った個数との関係性について論じたものである。それぞれの関係性を検討するために、ヒートシール時間を変化させホットタック強度を測定し、ヒートシール時間経過後の1本の高分子鎖が新しく絡み合った個数をレプテーションモデル用い算出し、比較を行った新しい評価法の提案をしている。新しく提案した評価法を用い、ホットタック試験の条件、材料の特性を変え一般化の検討を行っている。以下に本論文の具体的な内容について述べる。</p> <p>第一章では、現在までに行われてきた接着強度の評価、接着の発現機構として考えられている因子、本研究の目的とその重要性、手法の独創性、期待される成果について述べている。</p> <p>第二章では、レプテーションモデルを用い、融着した界面において高分子鎖1本が新しく絡み合った個数(N)を計算し、N とホットタック強度の関係性を評価できる新しい手法の提案をしている。</p> <p>第三章では、添加剤を含まない材料に対して、二章で新しく提案した評価法を用い検討するとともに、新しく提案した評価法を一般化している。N が1以下の場合には、界面破壊が起こりホットタック強度は N の1乗に比例する関係があることを示している。はく離時の弾性率および分子量分布を考慮することで、N の1乗に比例する関係がヒートシール温度、分子量、分子量分布に依存しないことを見い出している。N が1以上の場合には、凝集破壊、伸長破壊が起きホットタック強度が N に依存せず一定値を示すことを示している。</p> <p>第四章では、添加剤を含む材料に対して、二章で新しく提案した評価法を用い検討するとともに、新しく提案した評価法を一般化している。N が1以下の領域で、ホットタック強度が N の1乗に比例する関係は、固体粒子を添加した場合にも変化しないことを示している。低分子量成分を添加した場合、N が1以上の領域で伸長破壊を起こし、ホットタック強度が増加することを示している。</p> <p>第五章では、本論文で得られた知見をもとに、ホットタック強度の改良手法とその発現機構について一般化している。</p> <p>本研究で得られた成果は、本人が成形加工学会、レオロジー学会をはじめとする国内の学会、国際学会(WCARP-III)において研究発表を行い、学術雑誌には2報掲載されており、成果の公表も十分行われていると判断される。以上を総合的に判断し、審査委員一同は本学の規定に従い、本論文が学位論文の価値を有するものと判断する。</p>			
最終試験の結果の要旨			
<p>本学の規定に従い、最終試験を本論文及びそれに関連する分野に対して口頭により行った。本学位申請者は基礎的学力を有し、さらに未解決の研究課題についても独自の視点から実験計画を立案し、考察する問題解決力、洞察力を有すると審査委員一同が認めた。これより博士(工学)の学位授与に関する最終試験に合格であると判定した。</p>			