

# 論文審査の結果の要旨

申請者氏名 竹 本 基 嗣

ホットメルト型接着剤は冷却後固化する性質を利用して熔融状態で基材上に塗布するものであり、木材工業などにおいて広く用いられている。これは、鎖状高分子の主剤と粘着付与剤などから成るポリマーブレンドである。主剤の熱可塑性ポリマーとしてはエチレン酢酸ビニル共重合体（EVA）が工業的に最もよく用いられてきた。ポリマーブレンドであるホットメルト型接着剤は、多くの溶液型接着剤やゴム系高分子と粘着付与剤のブレンド系である粘着剤同様、成分間の相溶性が最終的な材料特性に最も大きな影響を与えていると推測される。例えば天然ゴム・粘着付与剤系粘着剤の場合、相溶系では粘着力が大きく、非相溶系では粘着力が小さいことがわかっている。しかし、EVAを主剤とするホットメルト型接着剤の特性については、粘弾性と接着特性に関する研究はあるものの、相溶性との関係を系統的に考察した研究はなされていない。本研究では、ホットメルト型接着剤の相溶性と接着特性の関係を明らかにし、粘着剤に関する結果と比較、考察することにより、ブレンド系接着剤の体型化を試みることを目的としている。本論文は六章より構成されている。

第一章において研究の背景と目的を述べた後、第二章においては、酢酸ビニル含有率の異なるEVAとロジン系を中心にテルペン系および石油樹脂系粘着付与剤とのブレンドの相溶性を相図により明らかにしている。この結果、EVAとロジン誘導体樹脂のブレンドは下限臨界共溶温度型の、EVAと石油系樹脂のブレンドは上限臨界共溶温度型の相図を示す傾向があること確認し、EVA中の酢ビ含有率の増加にともなう相図の系統的变化を、フローリー・ハギンズ理論の $\chi$ パラメータで説明している。そして、実際の相図にきわめて近い相溶・相分離曲線を $\chi$ パラメータから求めることができることで、古典的フローリー・ハギンズ理論によりEVA・粘着付与剤系ホットメルト型接着剤の相図を定性的に解釈できることを論じている。

第三章においては、第二章で扱った相図のうちの典型的なものを取り上げ、カバ材を用いて引張り接着試験を行い、相溶系ではブレンド中の粘着付与剤の割合が増加するに従ってブレンドのガラス転移温度が上昇し、同時に引張り強さの極大値もより高温側へ移動する傾向を見出している。また、非相溶系においてはブレンド中の粘着付与剤の割合が増加しても各ブレンド成分のガラス転移温度は変化せず、引張り強さの極大値はある程度相溶系と同様の傾向を示すことも明らかにした。接着強さの絶対値に関しては、相溶性依存性を認めていない。

第四章においては、第二章で扱った相図のうちいくつかを取上げ、ポリエチレンテレフタレートフィルムを用いたT型はく離試験を行い、第三章の引張り試験との対比を行っている。そして、引張り強さの極大値はある程度相溶系と同様の傾向を示すことを明らかにした。しかし、はく離強さにおいては引張

り強さには観察されなかった第二のはく離強さの極大値がどのブレンドについても存在し、ブレンドのガラス転移温度の変化に依存せず、100℃付近にとどまる傾向を認めている。はく離強さの絶対値に関しては、相溶性の違いによる傾向の違いは観察しておらず、第三章との関連性を指摘している。

第五章においては、はく離試験片をブレンドの相分離構造を示す温度から液体窒素温度まで急冷することでその相構造を保持し、相溶系である測定温度ではく離強さに対する相構造の違いの効果を考察している。そして、相分離構造である試験片が急冷処理によりはく離強さを一様に増加させる効果があることを観察し、相の構造および処理条件と接着特性の間に何らかの関係があることを微結晶生成の観点から明らかにしている。

以上本研究では、相図の系統的変化を古典的フローリー・ハギンズ理論から解釈することが可能であること、またブレンドの相溶性の違いはガラス転移温度の変化の違いとして現れるものの、引張り接着強さと引張り強さの絶対値に関わる主な要因ではなく、他の要因の影響を考察する必要があることを、EVAを主剤とするホットメルト型接着剤について明らかにした。

この成果はポリマーブレンド系接着剤の相溶性と実用特性に関して、接着剤設計などの観点から今後の進展に大きく寄与することか明らかである。よって、審査委員一同は、本論文が博士（農学）の学位論文として価値あるものと認めた。