

# 二軸延伸ポリエチレンの原反押出成形条件と延伸性の関係

## Relationship between process conditions and biaxial stretchability for polyethylene

(金沢大院) ○ (学) 中村宣夫、(正) 山田敏郎  
(出光興産(株)) (正) 金井俊孝、 武部智明

In recent years, plastic films are essential in our daily life. Among them, linear low density polyethylene (LLDPE) has good physical properties, such as high impact strength, high tear strength and high tensile strength. However its stretchable temperature range and film thickness uniformity are not good, compared with polypropylene which is widely used as an oriented film. So LLDPE film is difficult to be produced by a biaxially oriented process. Though it is possible to improve the stretchability by optimizing the resin design, problem still remains that process conditions affect stretchable temperature range and thickness uniformity. Therefore, the purpose of our study is to investigate the effects of process conditions such as cooling temperature and out-put rate on the stretchable temperature range and the thickness uniformity.

**Keywords:** process conditions, stretchable temperature width, thickness uniformity

### 1. 緒言

ポリエチレンフィルムは安価であり、強度に優れ日常生活に不可欠である。しかし、二軸延伸フィルムの成形では延伸可能温度幅が狭く偏肉精度が悪い為、実機での製膜は難しく、まだフィルム分野で広く普及していない。現在、樹脂性状変更により改善は行われているが成形条件によっても延伸可能温度幅や偏肉精度が変わることが分かっている。そこで、本研究では冷却温度や押出量等の成形条件を変更した際に形成される球晶構造や結晶化度が延伸挙動に与える影響を検討し、偏肉精度や延伸可能温度幅が向上する最適成形条件の解明を目的としている。

### 2. 実験

#### 2.1 使用樹脂

本研究では樹脂性状MFR 1.9g/10min、密度925kg/m<sup>3</sup>、Mw/Mn 7.26のLLDPEを用いて、押出成形機を用いて原反を製膜した。成形条件として、押出量、冷却温度を変更し、4つのサンプルを成形した。これらサンプルの成形条件をTable 1に示す。急冷100は低押出量の急冷条件、徐冷100は低押出量の徐冷条件、急冷300は高押出量の急冷条件、徐冷300は高押出量の徐冷条件で製膜した。

Table 1 Process conditions of each sample

Sample	Out-put Rate [kg/h]	Chill Roll Temperature [°C]
急冷100	100	30
徐冷100	100	60
急冷300	300	30
徐冷300	300	60

#### 2.2 成形条件が高次構造に与える影響

成形条件変更による原反シートの球晶構造、結晶化度の変化を調べた。球晶構造は冷却温度と押出量起因のせん断応力がどう影響を与えるのかを調べるために、各原反の断面厚み方向観察を行った。その際位相差顕微鏡を用い、球晶数、球晶径を測定し、断面の厚み方向の球晶分布を調べた。結晶化度の測定は原反サンプルのDSC測定をすることで行った。

#### 2.3 延伸実験

本研究では金沢大学とエト一株式会社が共同開発した新規二軸延伸機を用いて、延伸可能温度幅と延伸挙動を測定した。実験条件は延伸速度 10mm/sec、延伸倍率縦5倍×横7倍、予熱時間は7minで行なった。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 球晶構造

球晶は冷却温度、押出量起因のせん断応力両方の影響を受けるが、特に押出量変更による影響が大きい。Fig.1 に成形条件の違いによる原反シートの球晶分布を示す。高押出量サンプルは低押出量サンプルに比べ球晶径は小さくなるが大幅に球晶数が増えることがわかった。これはせん断応力の影響で球晶はシート表面近傍に多く、また球晶核生成数が増え、それらが成長し互いに接触、成長が阻害される為と考えられる。

Yoshio NAKAMURA, Toshiro YAMADA\*:  
Graduate School of Natural Science & Technology  
Kanazawa Univ.,  
Toshitaka KANAI, Tomoaki TAKEBE: Idemitsu Kosan  
\*Kakuma-machi, Kanazawa, Ishikawa, 920-1192, Japan,  
Tel. 076-234-4802, Fax. 076-234-4829  
E-mail tyamada@t.kanazawa-u.ac.jp

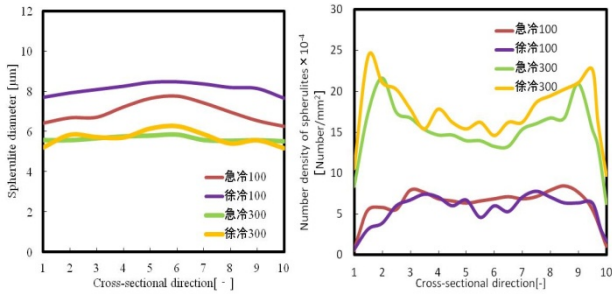


Fig.1 Distribution of spherulites

### 3.2 DSC 測定

Fig.2 に各サンプルの DSC 曲線を示す。成形条件で結晶化度が変わり、高押出量、徐冷条件で結晶化度が大きくなるのがわかる。これは高押出量、徐冷条件では冷却が効きにくく結晶化時間が長くなり、結晶が成長する為と考えられる。

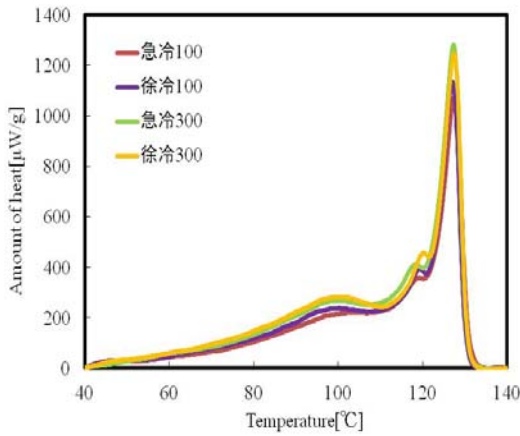


Fig.2 DSC pattern

### 3.3 偏肉精度

二軸延伸後のフィルムの厚みを膜厚計で 70 点測定することで、偏肉精度の標準偏差を求めた。求めた偏肉精度の標準偏差を Table2 に示す。値が小さい程度厚みムラが少ないことを表わしている。Table2 より 低押出量で、急冷条件にすることで、偏肉精度が向上することがわかる。

Table2 Standard deviation of thickness uniformity

	急冷100	徐冷100	急冷300	徐冷300
Standard deviation of thickness uniformity[μm]	3.55	4.07	6.23	6.99

### 3.4 結晶化時間

フィルムの延伸性を考察する上で結晶化時間は重要である為、冷却解析により各サンプルの結晶化時間を算出した。結果を Table3 に示す。徐冷条件で結晶化時間は長くなるが、高押出量にすることで、特に結晶化時間が長くなる。これは原反がより速い速度で巻取られ、主要冷却部である両面冷却部の滞在時間が短くなる為だと考えられる。

Table3 Crystallization time of each sample

	急冷100	徐冷100	急冷300	徐冷300
Crystallization time[sec]	1.6	2.3	2.7	2.75

### 3.5 延伸挙動

二軸延伸より得られた応力 - ひずみ曲線の内、差が見られたものを Fig.3 に示す。それぞれ降伏後の挙動に差が見られる。低押出量間では冷却温度による影響が見られ、徐冷条件で降伏応力値が大きく降伏後の応力の立ち上がりが小さくなった。応力 - ひずみ曲線の変化は押出量間で特に大きく変化し、低押出量では共に降伏応力値が小さく、降伏後の応力の立ち上がりが大きい、高押出量は低押出量と比べ降伏応力値が高くなっており、降伏後の立ち上がりが小さくなった。応力の立ち上がりが小さいことは結晶化により結晶構造や球晶構造が強固になっており、延伸による構造変化の応力値が大きくなることを示し、厚みが薄い箇所がより延伸しやすくなる為、偏肉精度は悪くなると考えられる。

そこで、応力の立ち上がり度(最終応力÷降伏応力)と偏肉精度の標準偏差をプロットした結果を Fig.4 に示す。応力の立ち上がり度と偏肉精度には相関関係があり、立ち上がり度が小さくなることで偏肉精度が悪化していることがわかる。各サンプルの最終応力値はほぼ同一の値である為、立ち上がり度は降伏応力値の増加で小さくなる。

降伏応力値が上昇した理由は冷却が高押出量で、徐冷の条件では十分に効かず結晶化時間が長くなり結晶化度が上昇したこと、押出量起因のせん断応力の影響が大きくなることで球晶数が大幅に増加、球晶を壊す為の大きな応力が必要となった為と考えられる。

また、この偏肉精度悪化が原因で破断や溶融し易くなった為、延伸可能温度幅は高押出量で低温域、高温域共狭くなった。

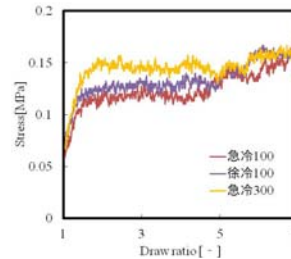


Fig.3 Stress-draw ratio under various process conditions

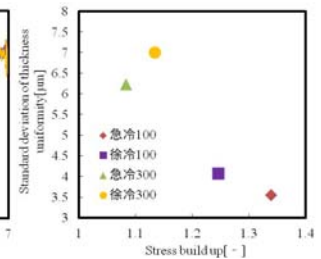


Fig.4 Standard deviation of thickness uniformity-stress build up ratio

### 4. 結言

フィルムの偏肉精度は結晶化度と球晶数に依存し、特に結晶化度の影響が大きい。偏肉精度向上には結晶化度を抑え、球晶数も少なくすることが重要である。冷却能力以上の押出量では結晶化に要する時間が増え、結晶化度が上昇し偏肉精度が悪化するので、原反シート成形条件は両面急冷条件で、かつ冷却を十分に行い、冷却能力に合った押出量に設定することが重要である。