

ポリエチレンインフレーションフィルムの成形条件と製品特性

金井俊孝*

はじめに

高分子化学工業に占めるプラスチックフィルムの位置は高く、包装資材分野においては最も大きな需要分野を占有している。このプラスチックフィルムの成形法として、インフレーション成形は、Tダイキャスト成形と並んで非常に重要な役割を果たしており、安価な設備で各種幅の異なるフィルムが得られるという特長を有している。しかし、樹脂や成形条件によりフィルム物性は大きく変化するので、良好な物性を得るためには適切な成形条件を選定する必要がある。そのため、樹脂、成形条件と製品物性の関係を知るとは非常に重要である。

また、インフレーション成形は、Tダイキャスト成形に比較し、偏肉が一般に大きくなりやすいことのほかに、生産速度が抑えられるという欠点がある。近年、インフレーション成形用押出機は、各機械メーカーのスクリュ形

状の検討、駆動動力のアップ、押出機本体の構造、耐圧力向上などの改良により、ここ10年間で急速に改良され、小口径高押出タイプに改良されている。しかしながら、押出量及び引取速度の増加に対して、冷却装置の開発は十分であると言いがたく、高速化による生産向上を考える場合の問題点は、冷却不足による生産量の制限であるのが現状である。

こういった状況を踏まえ、本稿ではまず、基本となるポリエチレンの樹脂特性について述べ、次に樹脂や成形条件とフィルム物性の関係について説明し、その相関性について、成形中の熔融樹脂の変形挙動つまりヒズミ速度、引張り応力の点から考えてみる。更に、冷却の問題では、バブル表面と冷却空気との間の熱伝達について触れ、冷却

条件と成形安定性、フィルム物性の関係、更に高生産性を得るための冷却効果を上げる方法とその実施例について述べてみたい。

1. ポリエチレンの種類と樹脂特性

1.1 ポリエチレンの分類

ポリエチレンは、密度により表1のように分類されている。

MDPE, HDPE は、中低圧法により製造されている。

また、LDPE は、従来高圧法により生産されてきたが、近年 MDPE, HDPE と同様に中低圧法による製造技術が開発され、市販されている。

高圧法 LDPE (以下、単に LDPE と記す) は長鎖分岐の多い分子構造を

表2 ポリエチレンの分類


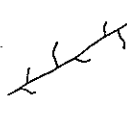

	LDPE	L-LDPE	HDPE
重合圧力 (kg/cm ²)	1,500~3,500	20~250 800~1,000	8~10 30~100
密度 (g/cm ³)	0.91~0.93	0.91~0.93	0.94~0.97
分岐数 (個/1,000c)	11~15	12~20	0~6
分子構造			

表1 ポリエチレンの種類と密度

ポリエチレンの種類	密度(g/cm ³)
低密度ポリエチレン (LDPE)	0.910~0.929
中密度ポリエチレン (MDPE)	0.930~0.941
高密度ポリエチレン (HDPE)	0.942~

* Toshitaka Kanai
出光石油化学(株)商品開発研究所

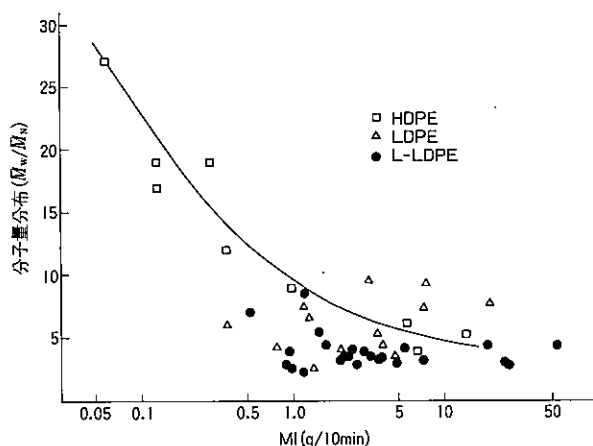


図1 MIと分子量分布の関係

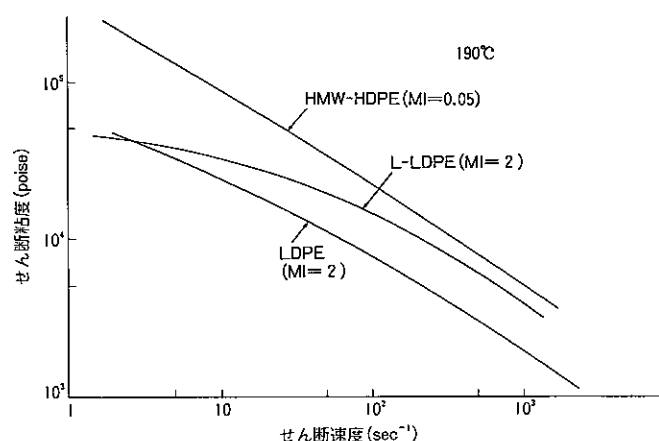


図2 せん断速度とせん断粘度の関係

持っているが、中低圧法によるLDPE（以下、L-LDPEと記す）は、MDPE、HDPEと同様に直鎖状の分子構造を持ち、高圧法LDPEとは異なった構造を有する（表2参照）。また、一般にL-LDPEのコモノマーとしての α -オレフィンの種類によって物性が異なり、例えば4メチルペンテン-1やオクテン-1などを使用したほうが、ブテン-1を使用するより得られるL-LDPEフィルムの機械物性は、1.2~1.3倍高い値が得られる。

1.2 分子量と分子量分布

これらのポリエチレンは、分子量が大きくなると衝撃強度、引裂き強度、耐ストレスクラック性、伸びなどの機械的性質は向上するが、その反面熔融粘度は増大し、加工性は次第に低下する。分子量分布に関しては、分布が狭いほど繊維としての特性や流動特性、加工性が良くなり、引張り強度、耐衝撃性などの機械的性質が向上する。しかし、押出機内で負荷がかかり樹脂圧力も高くなる。分布を広げるとポリマーの成形機内での流れ特性が向上するが、押出機より出たポリマーのドロウダウン性が低下する。

図1に市販ポリエチレンについて、分子量のパラメーターであるMIに対するLDPE、L-LDPE、HDPEの分

子量分布 (\bar{M}_w/\bar{M}_n) の測定例を示す。L-LDPEは、高活性の触媒で製造されることから、 \bar{M}_w/\bar{M}_n 値が小さい、つまり分子量分布が狭い。それに対して、LDPEは分布がL-LDPEに比較して広く、低分子量側、高分子量側へ尾をひいた形になる。

HDPEの射出グレードは、MIは大きく分子量分布が狭いが、押出グレード、特にインフレーション及びブローグレードは、高せん断側での流れ特性が良く、ドロウダウン性の小さな樹脂が要望されることから、分布を広くしている。

1.3 せん断粘度

次に、典型的なインフレーション成形用グレードについて、HMW-HDPE（高分子量高密度ポリエチレン）、L-LDPE、LDPEのせん断粘度とせん断速度の関係を図2に示す。ともに、せん断速度が増加するにつれて粘度が低下するが、そのせん断速度依存性は、HMW-HDPE、LDPE、L-LDPEの順に小さくなる。

HMW-HDPEは、一般に $\bar{M}_w/\bar{M}_n=20\sim40$ と分子量分布が広いので、分子量が大きい ($\bar{M}_w=2\times 10^5\sim5\times 10^5$) にもかかわらず、実際の成形に関係するせん断速度 ($10^2\sim10^3\text{ sec}^{-1}$) において粘度がそれほど大きくない。なお、

一般に市販されているL-LDPEは、 $\bar{M}_w/\bar{M}_n=3\sim5$ 、 $\bar{M}_w=5\times 10^4\sim10^5$ であり、LDPEは $\bar{M}_w/\bar{M}_n=3\sim10$ 、 $\bar{M}_w=5\times 10^4\sim1.5\times 10^5$ である。通常ダイ内で押出されるせん断速度領域 $10^2\sim10^3\text{ sec}^{-1}$ において、一般にL-LDPEはLDPEよりも高い粘度を持つ。L-LDPEは高せん断側で熔融粘度が大きいので、押出成形において発熱しやすく、押出機モータの負荷が大きく、メルトフラクチャーを起こしやすい。HMW-HDPEは、分子量が大きいので、高せん断側でも熔融粘度は大きいのでL-LDPEと同じことが言える。

1.4 メルトフラクチャー

透明性を要求されるL-LDPEでは、メルトフラクチャーが問題となる。分子量分布が狭く、せん断速度依存性の小さいL-LDPEでは、LDPEよりも低いせん断速度においてメルトフラクチャーが発生しやすい。そこで、L-LDPEのインフレーション成形用のダイキャップは、LDPEに比べて広くなる必要がある。

1.5 伸張粘度¹⁾

ダイを出た後の変形は、ダイまでのせん断変形と異なり伸張変形となるため、伸張粘度を評価することは重要である。

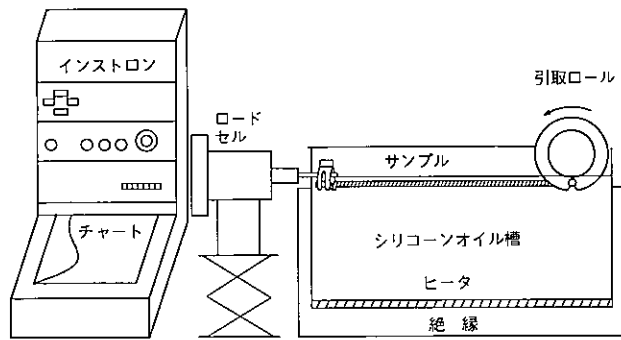


図3 伸張粘度測定装置

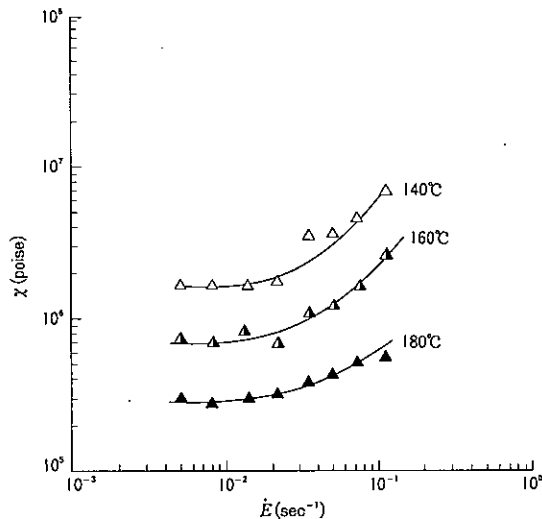


図5 LDPEに関する定常伸張粘度の温度依存性

伸張粘度は一般に図3に示すような装置で測定が行われ、一定のヒズミ速度下における伸張変形時の粘度は次の手順で算出される。伸張速度 \dot{E} 、伸張応力 σ_{11} 、一軸伸張粘度 χ は、それぞれ次式より得られる。

$$\dot{E} = \frac{1}{l} \frac{dl}{dt} = \frac{V_L}{l}$$

$$\sigma_{11}(t) = \frac{F(t)}{A(t)} = \frac{F(t)}{A_0} \exp\left(\frac{V_L}{l} t\right)$$

$$\chi(t) = \sigma_{11}(t) / \dot{E}$$

ただし、 l ：変形される試料長さ
(一定)

V_L ：モータ回転におけるサンプルの引取速度

$F(t)$ ：時間 t における引張り力
 A_0 ：引張り開始前の初期サ

ンプルの溶融断面積

伸張粘度の値が大きいほど、伸張変形に要する抵抗は大きい。代表的なインフレーション成形用ポリエチレンの3種類について伸張粘度を測定した結果、LDPE及びL-LDPEは定常状態を示すが、インフレーション用HDPEは、一般に高強度高流動性を得るうえで分子量分布の広いものが使用されており、弾性効果が強く、伸張粘度の定常値は示さず、低伸張領域で延性的なネッキング現象が発生する。そこで、最大伸張粘度 χ_{max} を代表値とすると、ヒズミ速度 \dot{E} が増加するに従い χ_{max} は低下している。LDPE、L-LDPEは伸張粘度の定常値を示すため、これらの値をヒズミ速度 \dot{E} で

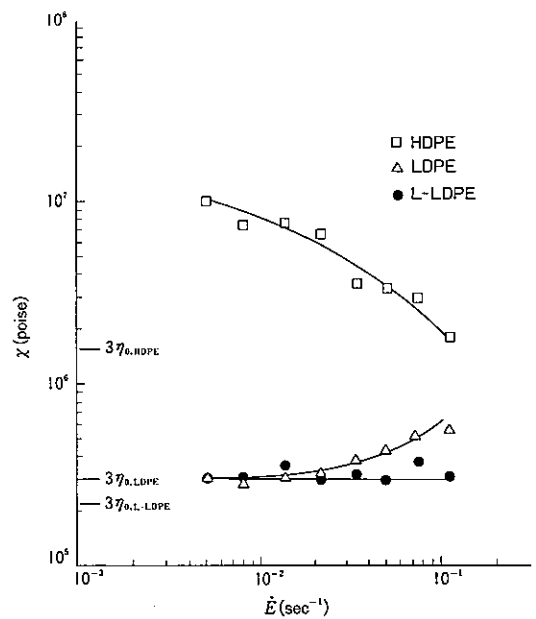


図4 定常伸張粘度のヒズミ速度依存性

ロットすると、LDPEは低伸張ヒズミ速度領域では $3\eta_0$ に近い値を示し、伸張速度の増加とともに粘度は上昇する(図4)。これは長鎖分岐の影響と考えられる。L-LDPEは、線状ポリマーと考えてよく、分子量分布が狭いため、低ヒズミ速度で $3\eta_0$ に近い値を示しており、一般的にニュートン流体に近い特性を示している。分子量分布が広い一般インフレーション用HDPEの χ_{max} は、ヒズミ速度 \dot{E} の増加に伴い減少する。また、伸張粘度の温度依存性の一例として、LDPEについての測定例を図5に示したが、LDPEは他のL-LDPE、HDPEに比較し、粘度の温度依存性は大きい。

1.6 溶融張力

インフレーション成形のように、溶融樹脂が延伸されながら成形される工程の加工性に関する評価パラメータとして溶融張力²⁾がある。溶融張力は、一定速度でメルトインデクサから押出されたストランドを一定の糸径まで延伸するために必要な張力であるが、一般にこの溶融張力が高いとバブルの安定性が良いと言われている。図6に、

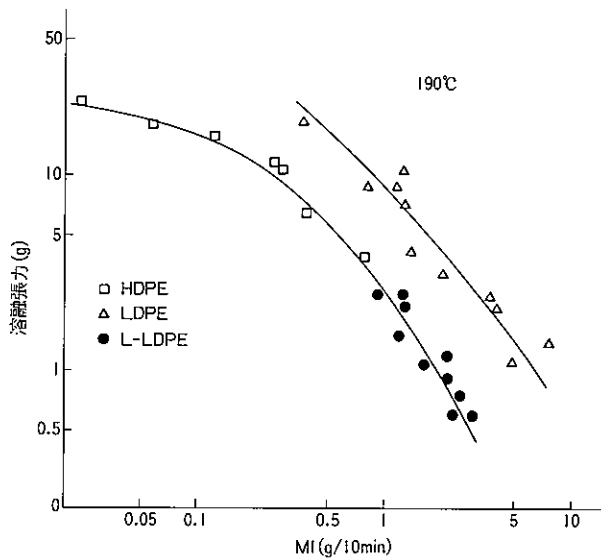


図6 MIと溶融張力の関係

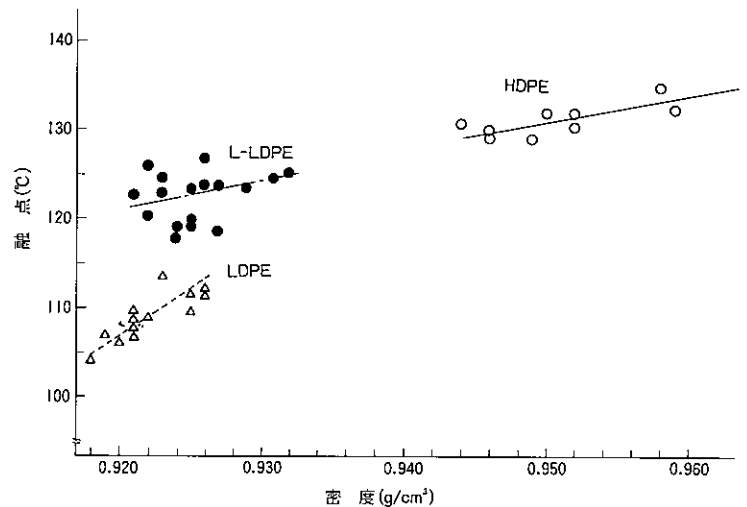


図7 密度と融点の関係

市販ポリエチレンのMIと溶融張力の関係を示す。同一MIでは、LDPEに比較してL-LDPEの溶融張力は小さく、バブルの安定性が良くない。このため、L-LDPEの成形安定性の向上を図る目的で、各種のエアリングが開発されている。

溶融張力の異なる理由として、MIはダイ出口の樹脂温度に近い190°Cの温度で測定されるが、溶融張力はインフレーション成形同様非等温系で測定が行われ、ダイを出てから固化するまでの間の引張り変形に要する張力であることから、結晶化温度に近いL-LDPEとLDPEを比較した場合、長鎖分岐を持ち活性化エネルギーが大きく、ヒズミ速度の増加に従い粘度上昇しやすいLDPEのほうが、変形領域における粘度硬化度合は大きくなり、溶融張力は大きくなる。また、HMW-HDPEはMIが小さいため、溶融張力は比較的大きいが、同一MIで溶融張力を比較すると小さいと言える。

多くの実験とレオロジーの性質を比較すると、インフレーション成形、Tダイキャスト成形、溶融紡糸といったダイを出た以降での伸張変形時の成形安定性に関して、ヒズミ速度の上昇につれて伸張粘度が上昇し、また粘度の

温度依存性の大きいポリマー（粘度硬化しやすいポリマー）は一般に安定である。これに相当する条件は、樹脂性状では長鎖分岐を持つポリマーであり、また粘度硬化を促進する成形条件は冷却の効率化がこれにあたり、ともに同一MIで比較すると成形中の引張り応力を高め、また溶融張力も高くなる。

1.7 融点

HDPEでは130～135°C、L-LDPEでは110～125°C、LDPEでは105～115°Cである。図7に密度と融点の関係を示した。

1.8 フィルム物性の比較

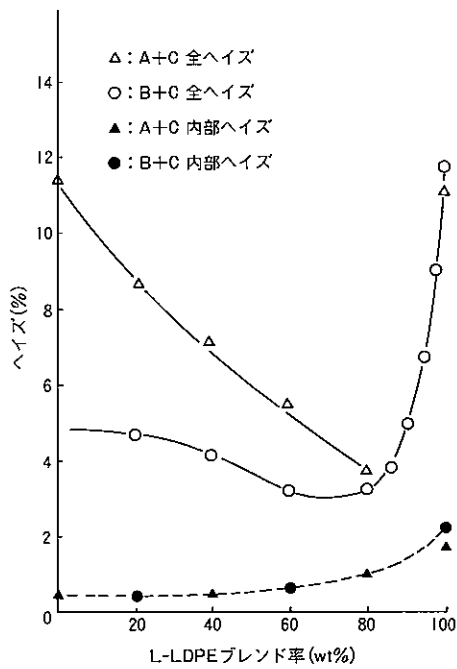
LDPE、L-LDPE、HDPEのインフレーションフィルムの物性を表3に示す。

LDPEフィルムは透明性が良く、柔軟性がある。L-LDPEフィルムは伸びが大きく、引裂きに強いのが特長である。HDPEフィルムはマット性があり、剛性が高く、フィルムに腰がある。

L-LDPEはLDPEと性質が似ていることからよく比較されるが、L-LDPEはLDPEに比べ、次のような性質の違いがある。

- 1) 耐熱性がLDPEに比べ、同一密度で約10°Cほど高い。
- 2) フィルムの透明性は多少劣るが、急冷によってLDPEとほぼ同等になる。
- 3) 光沢が良好。
- 4) 同一MIで比較した場合、高せん断側でのせん断粘度が大きく、モータ負荷がかかり、メルトフラクチャーを起こしやすい。
- 5) 溶融張力が小さく、成形安定性が低下し、ドロウダウン、ネックインが大きい。
- 6) LDPEより耐油性が良い。
- 7) フィルムのヒートシール条件幅は多少狭いが、シール強度が強く、特にヒートシール加熱後すぐに強度が出る（ホットタック性に優れている）。

透明性は、冷却条件変更により大きく変化するが、L-LDPEにLDPEをブレンドすることによっても向上する。透明性の評価法の一つである霞度（ヘイズ）について、LDPEブレンド時の比較を図8³⁾に示した。興味あることは、L-LDPEにLDPEを30%程度ブレンドすると、ヘイズが非常に小さくなる結果が得られており、LDPEやL-LDPE単体よりフィルムのヘイズ



グレード	MFR	密度	備考
A : <ペトロセン>170	1.0	0.919	} 高压法LDPE
B : <ペトロセン>180	2.0	0.921	
C : <ロートレックス> FW 1294	0.9	0.919	L-LDPE

図8 L-LDPEのブレンド率とヘイズの関係

が低下し、透明性が向上する場合は報告されている³⁾。

透明性は、一般に押出ヘイズと内部ヘイズで論じられるが、押出ヘイズはポリマーの溶融弾性に、内部ヘイズは

結晶化速度や結晶の大きさに支配されると言われている。六代ら³⁾は、ブレンド物のヘイズが低下する原因を次のように述べている。すなわち、長鎖分岐を持つ高分子であるLDPEは、溶

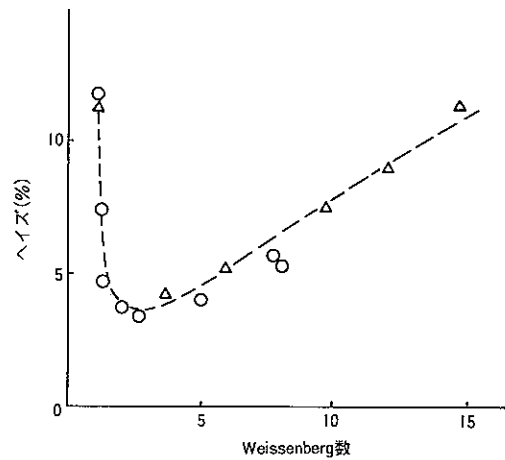


図9 Weissenberg数とヘイズの関係 (△, ○は図8と同じ)

融弾性が強く、押出ヘイズが大きくなりやすいが、線状高分子で分子量分布の狭いL-LDPEをブレンドすると溶融弾性が低下するため、押出ヘイズが低下し、ブレンド物の光学的性質はLDPE単体に比べて良好になる、と説明している。そして、ヘイズと溶融弾性のパラメーターであるWeissenberg数^{4)~8)} ($\Delta P/\sigma_w$: ΔP 管入口における圧力損失, σ_w : せん断応力) との関係プロットしている (図9)。一方、L-LDPEの比率が非常に高いと、溶融弾性は非常に低下し押出

表3 インフレーションフィルムの特性

項目	単位	LDPE	L-LDPE	HDPE		
強度	引張り強度	kg/cm ²	250~300	300~500	500~700	
	引張り伸び	%	150~500	500~800	150~600	
	引張り弾性率	kg/cm ²	2,000~3,000	3,000~5,000	14,000~16,000	
	フィルムインパクト	kg-cm/cm	1,500~2,100	2,000~3,000	2,500~3,500	
	ピーチパンクチャー	kg-cm/cm	4,000~13,000	5,000~17,000	6,000~9,000	
	引裂き強度	MD	kg/cm	30~80	20~100	4~15
		TD	kg/cm	40~90	130~200	80~150
光学特性	光沢度	%	80~100	80~120	15~30	
	霞度	%	5~20	5~20	70~85	
特長		透明性が良い	ホットタック性に優れる 突刺し強度が高い	フィルムに腰がある 成形法によりバランスフィルムとなる		

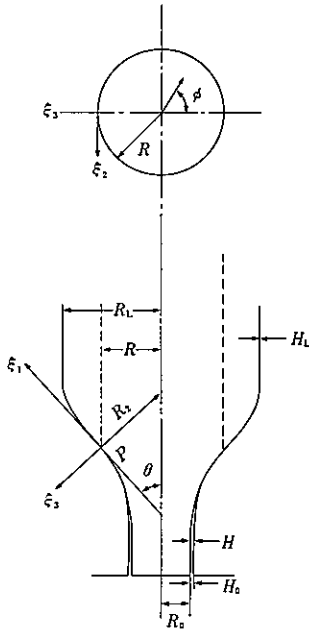


図10 インフレーション成形の座標系
 添字1: 流れ方向 (MD)
 2: 流れと垂直方向 (TD)
 3: 厚み方向
 L: 引取位置
 0: ダイ出口
 R: 任意な位置でのバブル半径
 θ : バブルと軸とのなす角
 R_L/R_0 : ブローアップ比
 H: フィルムの厚み
 R, θ, z は円筒座標系で, ξ_1, ξ_2, ξ_3 は直交座標系を表わし, ξ_1 は流れ方向 (MD), ξ_2 は流れと垂直方向 (TD), ξ_3 は厚み方向を示す。

図10 インフレーション成形の座標系

ヘイズは小さくなるが、系の緩和時間が短くなり分子運動が容易になるため、結晶化による微結晶サイズが大きくなり、表面のラフネスにも影響を与え、ヘイズを高める、と報告している³⁾。

2. インフレーション成形の 融樹脂の変形挙動

インフレーション成形の成形性や物性を知るうえで、成形中の融樹脂の変形挙動を検討することは非常に重要であり、ここでインフレーション成形の理論について簡単に述べる。

2.1 力のバランス及びエネルギー収支⁹⁾⁻¹²⁾

膜の理論よりインフレーションバブ

ルの力のバランスは、

$$F_L = 2\pi RH\sigma_{11} \cos \theta + \pi (R_L^2 - R^2) \Delta P \quad (1)$$

σ_{11} と σ_{22} はバブル内部圧力と次の関係が成立する。

$$\frac{H\sigma_{11}}{R_1} + \frac{H\sigma_{22}}{R_2} = \Delta P \quad (2)$$

なお、流れ方向の応力 σ_{11} 及び流れと直角方向の応力 σ_{22} は

$$\sigma_{11} = \frac{\eta_0 Q \cos \theta}{\pi RH} \times \left(-\frac{1}{R} \frac{dR}{dz} - \frac{2}{H} \frac{dH}{dz} \right) \quad (3)$$

$$\sigma_{22} = 2\eta_0 (d_{22} - d_{33}) = \frac{\eta_0 Q \cos \theta}{\pi RH} \times \left(\frac{1}{R} \frac{dR}{dz} - \frac{1}{H} \frac{dH}{dz} \right) \quad (4)$$

ただし、自重の影響は無視した。ここで、 F_L : バブル張力、 H : バブルの厚さ、 R_L : バブルの最終半径、 R : バブルの半径、 ΔP : バブルの内部圧力である。バブルの冷却がバブルの表面で冷却風による強制対流と放射により行われると仮定すると、次式が成立する。

$$\rho C_p Q \cos \theta \left(\frac{dT}{dz} \right) = -2\pi R [U(T - T_{air}) + \varepsilon \lambda (T^4 - T_{room}^4)] + \rho Q \cos \theta \Delta H \left(\frac{dX}{dz} \right) \quad (5)$$

ここで、 ρ : 密度、 C_p : 比熱、 T : バブル温度、 U : 熱伝達係数、 ε : 放射率、 T_{air} : 冷却風温度、 λ : Stefan-Boltzmann 定数、 T_{room} : 室温、 ΔH : 結晶化潜熱、 X : 結晶化度である。

式(5)の左辺は、融樹脂バブルの熱が奪われる速度であり、右辺の第一項は対流により冷却される速度である。ここで、 U には次の近似式を用いた¹⁾。

$$U = C_1 v_0^{1.1} = U_0 \quad (z \leq K) \quad (6)$$

$$U = \frac{C_1 v_0^{1.1} K^a}{z^2} = U_0 \left(\frac{K}{z} \right)^a \quad (z > K) \quad (7)$$

ただし、 v_0 : エアリングから吹き出される冷却風速、 K : バブルの径の変曲点の位置、 C_1, a : 定数である。式

(5)の右辺の第2項は放射による項であり、第3項は結晶化による項である。図10のバブルの形状において次の幾何学式が成立する。

$$\frac{dR}{dz} = \tan \theta \quad (8)$$

ポリエチレンの熔融変形時の引張り粘度は、アレニウス式に従うとし、また Power law 流体を適用すると次のように表わされる。

$$\eta(\Pi_d, T) = A \exp(E/R_g T) \cdot \Pi_d^{(n-1)/2} \quad (9)$$

ここで、 E : 活性化エネルギー、 R_g : 気体定数、 $\Pi_d = d_{11}^2 + d_{22}^2 + d_{33}^2$ (ヒズミ速度) である。 η_0 を基準温度 T_0 における粘度の値とすると、定数 A は次式で与えられる。

$$A = \eta_0 \exp(-E/RT_0) \quad (10)$$

一方、結晶化が起こる場合、粘度が上昇するが、この場合の粘度は次式で表わされると仮定した。

$$\eta(T, X) = A \exp(E/RT + GX) \cdot \Pi_d^{(n-1)/2} \quad (11)$$

ここで、 X : 結晶化分率、 G : 実験から得られる粘度指数定数である。

2.2 理論と実際^{1), 9), 13)}

樹脂性状の一例として、粘度の温度依存性のパラメーターである活性化エネルギーを変化させた場合の変形挙動についての理論結果を示した。

図11にMD及びTDの最大引張り応力 σ_{11max} 及び σ_{22max} を示す。一定粘度 η_0 の下では、 σ_{11max} と σ_{22max} は直線関係を示しており、活性化エネルギーとともに引張り応力は増大している。

一例としてブロー比、ドローダウン比、フロストライン高さ一定の条件で、活性化エネルギーを変えてバブルの形状を計算した結果を図12に示す。LDPEは最も膨らみが大きく、HDPEは膨らみが小さい。L-LDPEは両者の中間の形状を示す。この形状は、実験でよく観察される傾向と同じであり、この結果よりバブルの形状は樹脂の活性化エネルギーに大きく影響

されることが分かる。移動速度パターンでは、活性化エネルギーの大きいポリマーほど初期に変形が起こりやすいことを示している (図13)。次にヒズミ速度のパターンを見ると (図14),

活性化エネルギーの小さい樹脂においては、MDのヒズミ速度 d_{11} が結晶化開始前でシャープなピークでかつ大きな最大値を持つことから、効果的な延伸が起こっていることが分かる。

LDPE はなだらかな d_{11} のパターンを示しており、ゆっくりした延伸が行われているものと思われる。TDのヒズミ速度 d_{22} は d_{11} に比較してシャープな曲線を示さず、活性化エネルギーの値を変化させても大きな差は見られない [図14 (b)参照]。これらの結果から HDPE は延伸領域で大きな d_{11} を示すが、LDPE は d_{11} と d_{22} ともにバランスした値を示した。結晶化寸前における HDPE の延伸挙動は、成形条件の影響を受けやすく、特に高速成形時におけるインフレーション成形では、結晶化寸前において急激なヒズミ速度上昇に伴い、その後結晶核の急激な発生と生長が起こるものと考えられ、得られるフィルムの異方性にも大きな影響を与えるものと思われる。

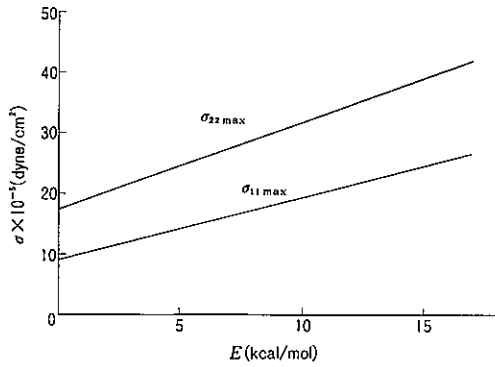


図11 MD及びTDの最大応力 σ_{\max} 及び $\sigma_{22\max}$ と活性化エネルギー E の関係

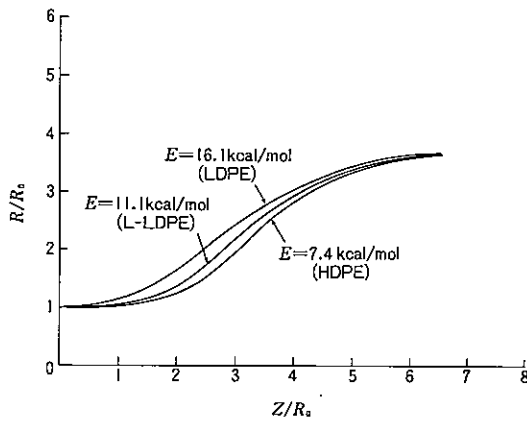


図12 バブル形状と活性化エネルギーの関係
($R_L/R_0=3.7$, $V_L/V_0=3.4$, $Z_L/R_0=6.5$)

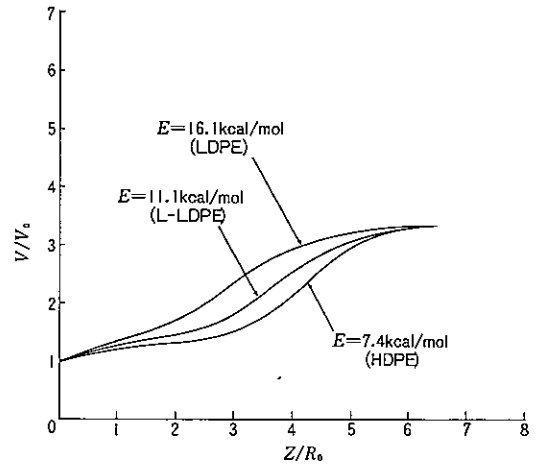


図13 バブル移動速度と活性化エネルギーの関係
($R_L/R_0=3.7$, $V_L/V_0=3.4$, $Z_L/R_0=6.5$)

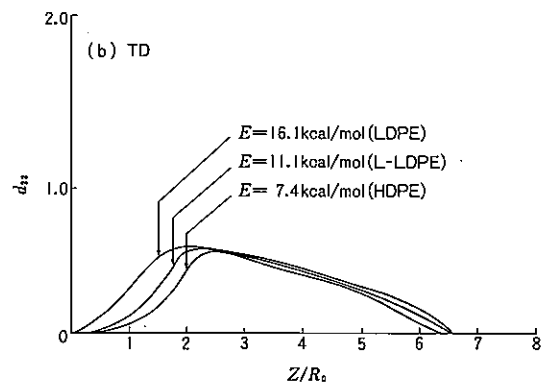
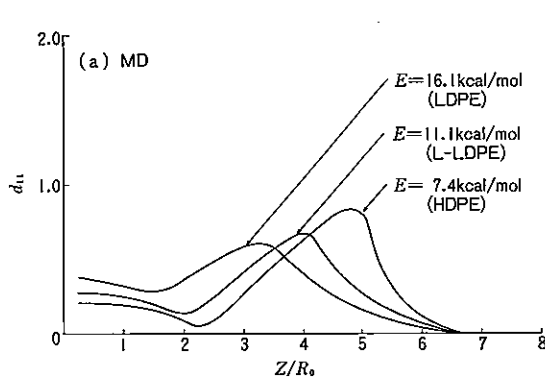
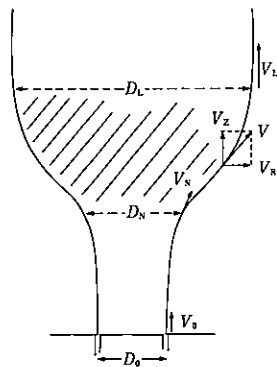


図14 ヒズミ速度 d_{11} と活性化エネルギーの関係
($R_L/R_0=3.7$, $V_L/V_0=3.4$, $Z_L/R_0=6.5$)



横延伸倍率=バブルの最終径/バブルのネック径
 $= D_L / D_N$
 縦延伸倍率=引取り速度/ネック部の速度
 $= V_L / V_N$
 延伸比=横延伸倍率/縦延伸倍率
 $= (D_L / D_N) / (V_L / V_N)$

図15 HDPE バブルの概略図

更に、興味あることは、粘度のヒズミ速度依存性を表わす n 値〔式(9)参照〕を変化させると、バブルの形状、変形パターンに大きく影響を与える。長鎖分岐を持つ LDPE のように $n > 1$ の場合、バブル形状は図12の $E = 16.1$ kcal/mol の曲線より更に広がった風船形状となり、典型的な LDPE のパターンを示し、またバブルの変形は更にダイ出口付近で起こりやすくなる。

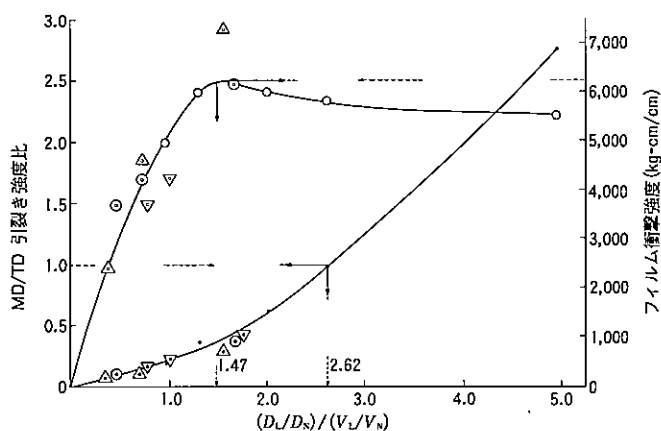


図16 フィルム衝撃強度及びMD/TD引裂き強度比と延伸比 $(D_L/D_N)/(V_L/V_N)$ の関係

一方、HMW-HDPE の場合、図4に示したような伸張粘度パターン ($n < 1$) をとると仮定するとバブル形状のネッキング現象は更に顕著となり、移動速度は初期にあまり速くならずバブルが膨張開始後、シャープなヒズミ速度のピークを示す。

つまり、HMW-HDPE のように分子量が大きく分子量分布も広いポリマーほど一般に伸張粘度の n 値は小さくなると考えられるため、バブルが膨張してから変形と冷却が急速に行われることになり、図15に示す斜線領域における変形パターンとフィルム物性による相関性が得られるのが一般的である。

例えば、ダイ径や吐出量が大きく変化しない系でダイ出口での樹脂温度を一定に保った場合では、バブル安定体の形状やフロストライン高さなどの成形条件によらず、図15及び図16中に定義される延伸比とフィルム衝撃強度やMD/TDの引裂き強度比は比較的良好な相関性が見られており、斜線部の領域を評価することは重要である。

吐出量やダイ径の変化も含めて、多

くの成形条件でフィルム物性を正確に評価するには成形中のヒズミ速度パターン及びバブルの温度パターンを含めて評価する必要がある。

例えば、温度の影響を示す一例として、同一成形条件で温度だけ40°C 変化させて成形した場合においては、変形速度に大きな差はないが、変形領域の温度に大きな影響を与え(図17)、その結果、得られたフィルム物性は温度が高くなるほど延伸が効いていないことが表4の結果から分かる¹⁴⁾。

同一の製品サイズを成形する場合に、ヒズミ速度を高めるため、吐出量を増加させ、引取り速度も吐出量に合わせて速くすると、樹脂温度の発熱をコントロールした条件においてはフィルムの衝撃強度は上昇しているが、高吐出量に伴いせん断発熱の影響を大きく受けた場合には、変形速度が速くなる反面、変形温度も高くなり、フィルム物性の向上は見られない(図18)。

つまり、PEのインフレーション成形において、特にフィルム物性が延伸効果の影響を受けやすいHDPE で高

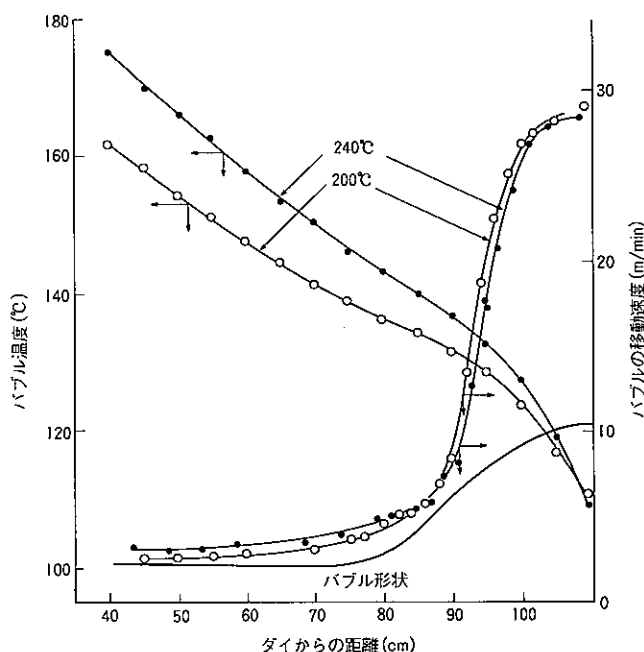


図17 成形温度と移動速度、バブル形状及び温度パターンの関係

表4 温度と物理的特性の関係 (MD/TD)

温度(°C)	フィルム衝撃強度 (kg-cm/cm)	引裂き強度		引張り弾性率 (kg/cm ²)	降伏強度 (kg/cm ²)	引張り破壊強度 (kg/cm ²)	破壊点伸び (%)
		(kg/cm)	MD/TD				
200	2,690	5.8/92.7	0.063	12,800/14,100	-/326	665/558	270/500
240	1,840	6.0/58.8	0.102	11,400/12,700	-/307	565/509	290/460

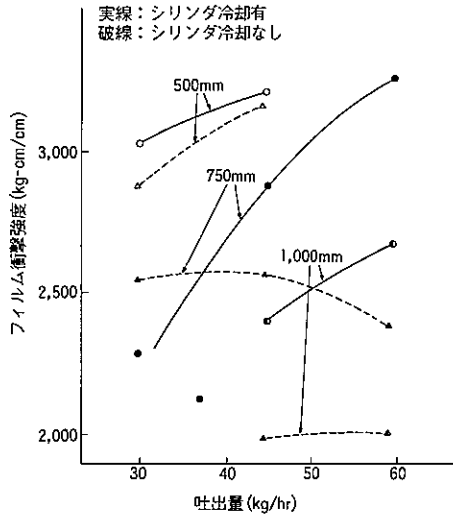


図18 シリンダ冷却条件変化に対するフィルム衝撃強度と吐出量の関係

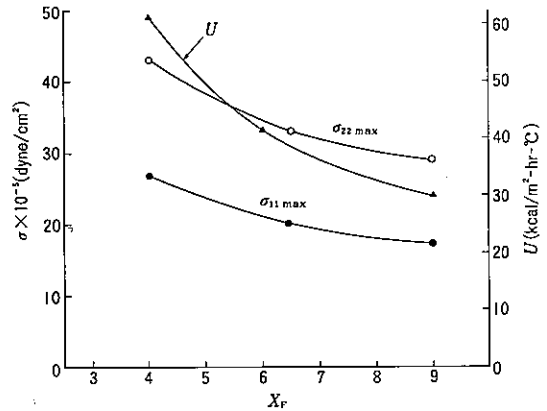


図19 MD及びTDの最大応力 $\sigma_{11 \max}$ 及び $\sigma_{22 \max}$ 、熱伝達係数 U とフロストライン高さの関係 ($R_L/R_0=3.5, V_L/V_0=3.8$)

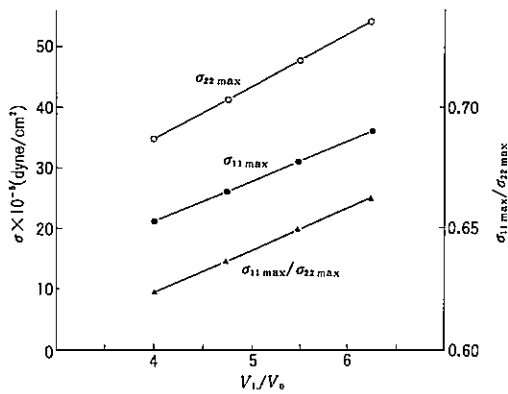


図20 MD及びTDの最大応力 $\sigma_{11 \max}$ 及び $\sigma_{22 \max}$ とドロウダウン比の関係 ($R_L/R_0=3.5, Z_L/R_0=6.0$)

強度フィルムを得るには、MD、TDの引張り応力 σ_{11} 、 σ_{22} の値がともに大きく、またバランスした条件、つまり吐出量、引取速度を高めるようにしてヒズミ速度を速め、かつせん断発熱をできるだけ抑えて、低温で変形させることが望ましい^{(14), (15)}。

インフレーション成形で最も重要な三つの成形条件において、フィルム物性に大きな影響を与えるフロストライン付近の最大引張り応力を理論予測すると、図19に示すように、フロストライン高さの高いほどMDの最大応力 $\sigma_{11 \max}$ 、TDの最大応力 $\sigma_{22 \max}$ は低

下するが、 $\sigma_{11 \max}/\sigma_{22 \max}$ の比は小さくなるため、高速成形時にはMD、TDの引張り応力バランスは良くなる。また、熱伝達係数もフロストライン高さ $X_F (=Z_L/R_0)$ が4から9になることにより減少し、値は約半に低下している。

ブロー比、フロストライン高さ、吐出量が一定条件下でドロウダウン比を大きくすると、図20に示すようにMD及びTDの最大応力 $\sigma_{11 \max}$ 及び $\sigma_{22 \max}$ はともに増加し、 $\sigma_{11 \max}/\sigma_{22 \max}$ も増大する。つまり、MD及びTDの延伸効果は増大するが、特にMDの延伸効果の増大が大きい。

ブロー比を大きくすることは、一般にTDの延伸効果を強くすることが知られているが、図21を見ても分かるように、 $\sigma_{22 \max}$ の増加が大きく、また $\sigma_{11 \max}$ の値も多少大きくなっている。 $\sigma_{11 \max}/\sigma_{22 \max}$ の値はブロー比の増加

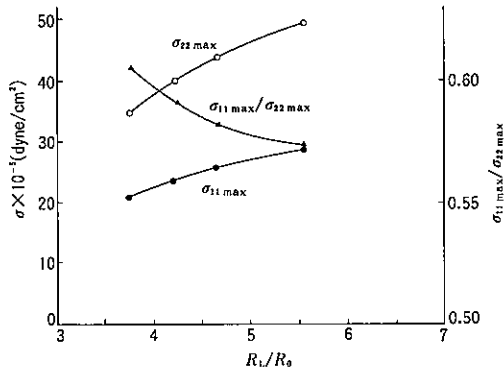


図21 MD及びTDの最大応力 σ_{11max} 及び σ_{22max} とブロー比の関係

とともに小さくなり、TDの延伸効果の増大がより大きいことを示唆している。

次に、実際の3種のポリエチレンのインフレーション成形の変形挙動を測定した結果を図22~24に示したが、3種のポリエチレンの溶融樹脂の変形挙動はバブル形状^{1), 12)}が異なるだけでなく、バブル温度パターンや移動速度、ヒズミ速度に大きな差があることが分かる。

温度パターンでは、HDPEが結晶化による影響を最も受け、温度のプラトー領域が最も長く、かつこの温度が高い。更に、理論結果と同様に、HDPEは結晶化前で粘度上昇が最も小さいため、速度変化は結晶化開始直前で最も大きく、かつヒズミ速度のカーブはシャープである。一般的にHDPEは成形条件により変形パターンは大きく変化する。逆にLDPEは速度がゆっくり上昇し、また、温度のプラトー領域も短く、成形条件が変化しても変形パターンはHDPEほど変化しない。また、L-LDPEはHDPEとLDPEの中間の挙動を示す。

同じポリエチレンでも、分子構造でインフレーション成形中の変形パターンに非常に大きな差が生じていることが分かる。

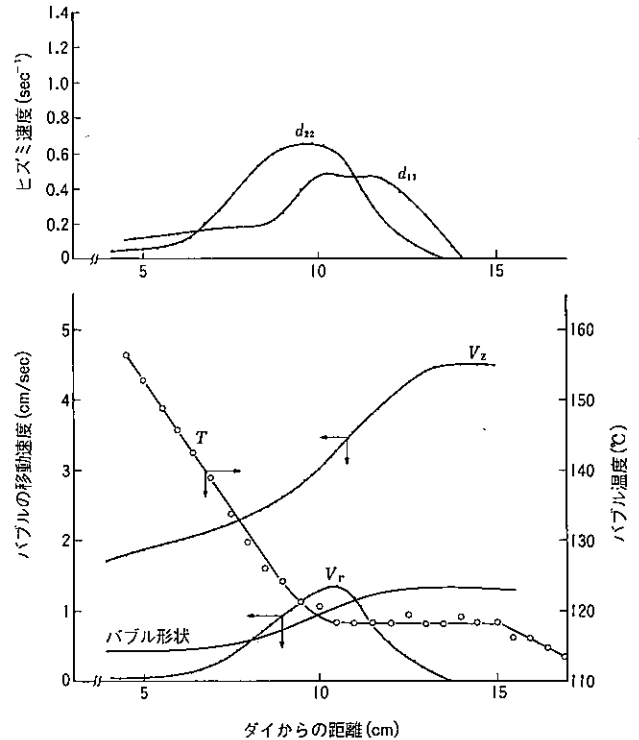


図22 LDPEに関するバブルの移動速度 V_z , V_r 、ヒズミ速度 d_{11} , d_{22} 、温度分布 T ($V_L/V_0=4.0$, $R_L/R_0=3.5$, $Z_L=12$ cm)

3. 成形条件と物性

3.1 成形条件

LDPE, L-LDPE, HDPEの一般的なインフレーション成形条件を表5に示す。

ここでは、L-LDPEとHMW-HDPEについて成形条件とフィルム物性についての関係を比較しながら述

べてみたい。

3.2 成形因子と物性、光学特性

インフレーションフィルム、特にHDPEフィルムの特性は、成形条件に大きな影響を受ける。以下に、成形温度、ブロー比、押出量、フロストライン高さの成形因子に対する物性及び光学特性の関係を示す。

(1) 成形温度 (図25, 図26)

表5 インフレーション成形条件

	LDPE	L-LDPE	HDPE
成形温度(°C)	160~180	160~200	190~200
ブロー比	1~3		3~5
バブル形状			

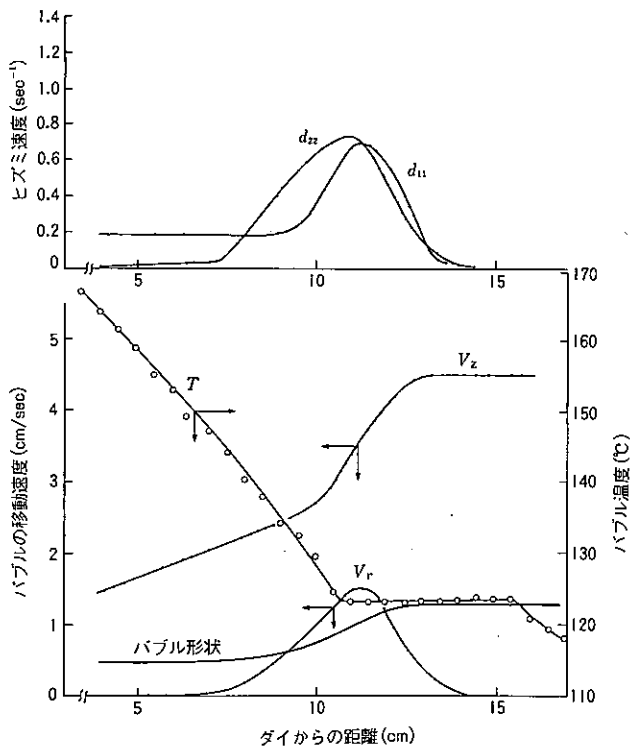


図23 L-LDPE に関するバブルの移動速度 V_z , V_r , ヒズミ速度 d_{11} , d_{22} , 温度分布 T ($V_L/V_0=4.0$, $R_L/R_0=3.5$, $Z_L=12$ cm)

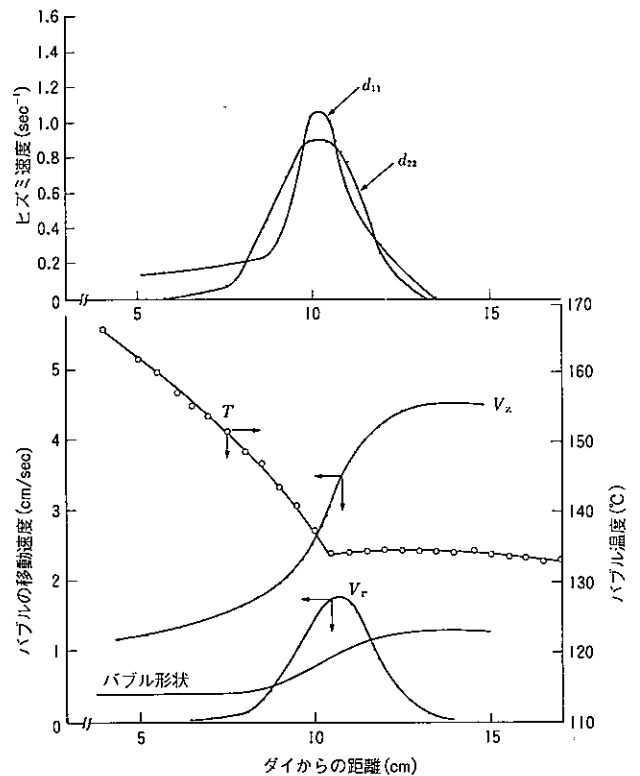


図24 HDPE に関するバブルの移動速度 V_z , V_r , ヒズミ速度 d_{11} , d_{22} , 温度分布 T ($V_L/V_0=4.0$, $R_L/R_0=3.5$, $Z_L=12$ cm)

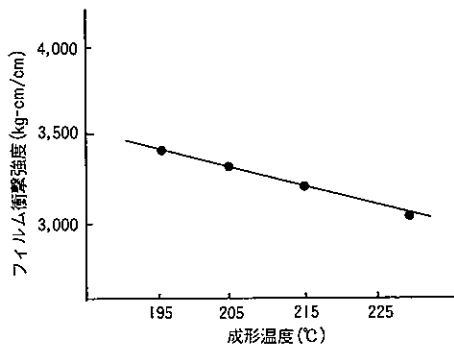


図25 HMW-HDPE の成形温度とフィルム物性の関係

HMW-HDPE では、成形温度の上昇に伴いフィルム衝撃強度、MDの弾性率、MD、TDの破断強度の低下とMDの伸び率の増加が見られる。前述したように、成形温度が高くなると延伸効果が十分きかない傾向にあり、成形温度の上昇に伴い弾性率や破断強度、フィルム衝撃強度は低下し、伸び率は高くなる。

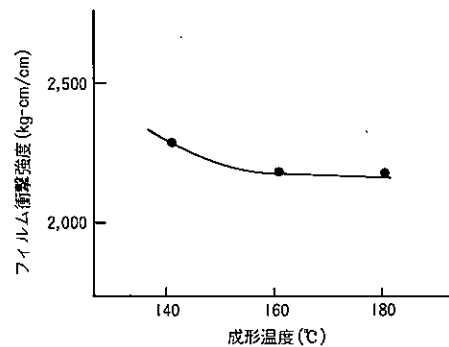
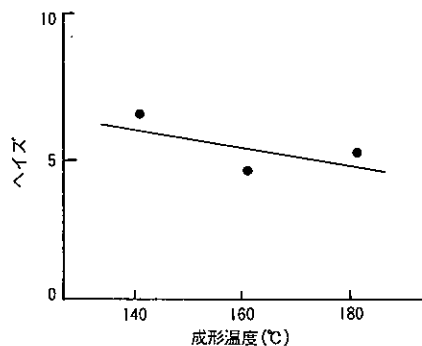


図26 L-LDPE の成形温度とフィルム物性の関係



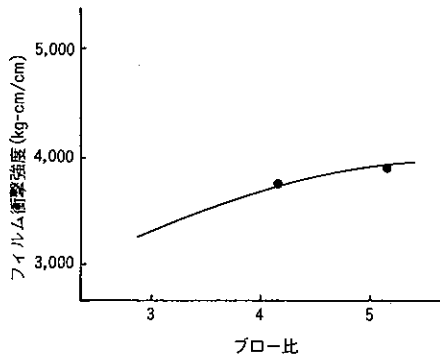
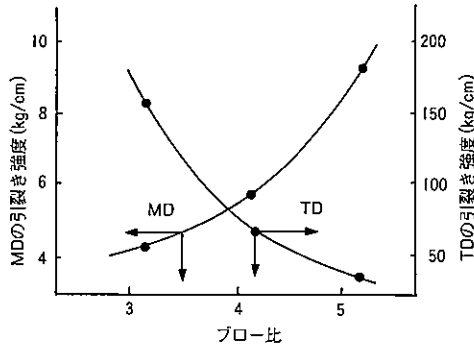


図27 HMW-HDPE のブロー比とフィルム物性の関係

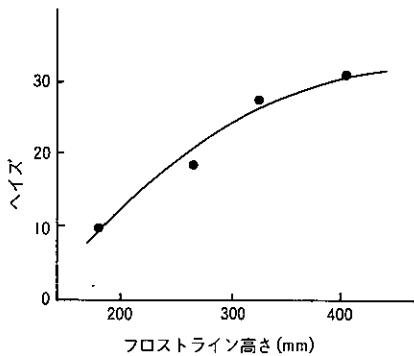


図30 L-LDPE のフロストライン高さ
とフィルム物性の関係

L-LDPE では、成形温度による影響が HDPE より小さい。ヘイズは成形温度が高くなると低くなり、光学特性は向上する。

(2) ブロー比 (図27, 28)

HMW-HDPE では、ブロー比の増加に伴って、TDの破断強度の増加が見られる。また、引裂き強度のバランスが良くなり、フィルム衝撃強度が向

上する。

L-LDPE では、ブロー比の影響がほとんどない。

(3) 押出量

同一寸法のフィルムを成形する場合、押出量を増加させると、HMW-HDPE ではフィルム衝撃強度の向上が見られる。

L-LDPE では、フィルム衝撃強度

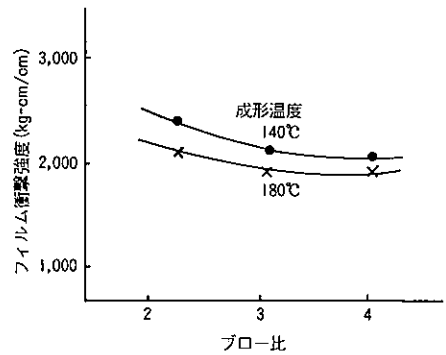


図28 L-LDPE のブロー比とフィルム物性の関係

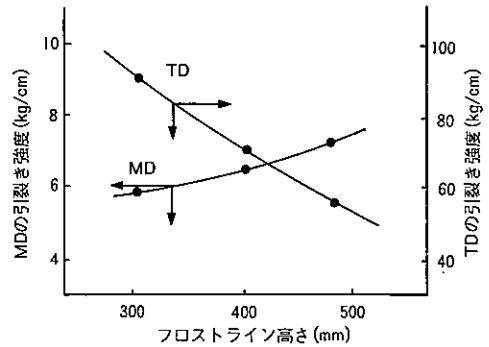


図29 HMW-HDPE のフロストライン高さ
とフィルム物性の関係

に多少向上が見られる。

(4) フロストライン高さ (図29, 30)

HMW-HDPE では、フロストライン高さが高くなるほど引裂き強度バランスが良くなり、フィルム衝撃強度が向上する。

L-LDPE では、フロストライン高さが高くなると透明性が急激に悪くなる (ヘイズが大きくなる)。これはフロストライン高さが高くなったことにより、冷却が遅くなり、結晶化による微結晶サイズが大きくなるためである。

一般に、フィルム物性は HMW-HDPE の場合、成形条件により大きく影響されるが、L-LDPE では透明性を除いて HDPE ほど成形条件に大きな影響は受けない。

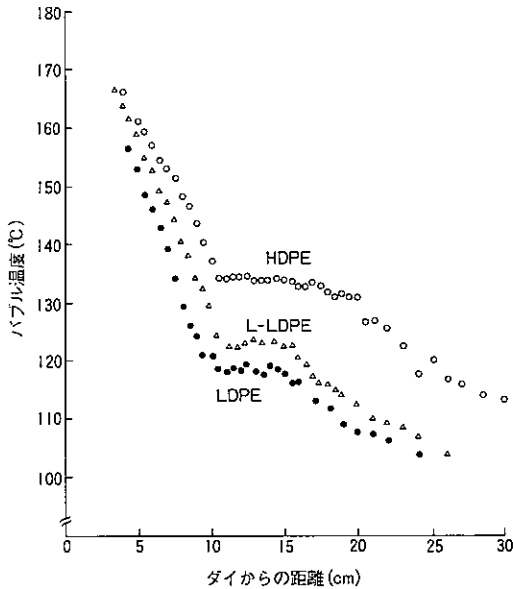


図31 LDPE, L-LDPE, 及び HDPE のバブル温度パターン ($V_L/V_0=4.0$, $R_L/R_0=3.5$, $Z_L=12\text{cm}$)

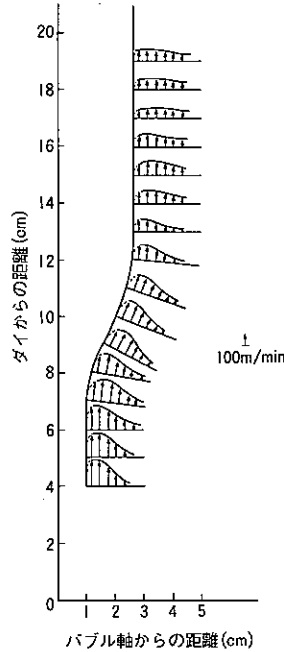


図32 バブル表面の冷却風パターン ($V_L/V_0=4.0$, $R_L/R_0=3.5$, $Z_L=12\text{cm}$)

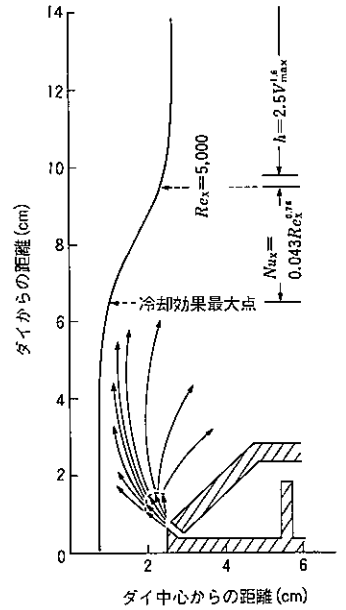


図33 インフレーション成形におけるバブルと冷却風の熱伝達

4. インフレーション成形の冷却

4.1 インフレーション成形の熱伝達¹⁾

インフレーション成形中のバブル温度は、対流、放射による冷却及び結晶化の発熱に依存する¹⁶⁾。

$$q_{\text{total}} = q_{\text{convection}} + q_{\text{radiation}} + q_{\text{crystallization}} \quad (12)$$

この熱量バランスに対応する式は、式(5)で述べた。

インフレーション成形における典型的な温度パターンを図31に示す。温度の平衡領域は結晶化による発熱の影響を受けている。こういった温度パターンと、図32に示すようなバブル付近での風速パターンのデータをとることにより、各位置での冷却効果を表わす熱伝達係数 U を算出することができる。一般に熱伝達係数は、よく無次元数を用いて表わされるが、インフレーション成形の場合、この関係を模式的に表わしたのが、図33である。

バブル表面の風速最大の位置 $L_a=0$ からバブルの膨張開始後のバブル形状の変曲点の位置まで式(13)が成り立ち、

$$\frac{UL_a}{K_{\text{air}}} = 0.043 \left(\frac{L_a V_{\text{air}} \rho_{\text{air}}^{0.76}}{\eta_{\text{air}}} \right) \quad (13)$$

ただし、 K_{air} : 空気の熱伝導率

V_{air} : 各位置での冷却空気
の最大風速

ρ_{air} : 空気密度

η_{air} : 空気の粘度

L_a : 代表長さ(バブルに沿った長さ)

フロストライン以降では風速パターンが均一となる傾向があり、境界層による冷却理論よりも、熱伝達と風速の最大値の関係式のほうがよい相関性が得られる。

$$U = 2.5 V_{\text{air}}^{1.6} \quad (14)$$

インフレーション成形で、成形性や物性に特に重要なのは式(13)が成り立っている領域であり、ここにおいて冷却効率を上げることは高生産性を得るうえで大きなポイントである。

4.2 冷却の効率化

インフレーション成形中のバブルの熱量を効果的に奪うには、式(5)より次の方法が考えられる。

- 1) バブルの冷却面積を大きくする。
- 2) 冷却空気の温度を低くする。
- 3) 熱伝達係数を大きくする。

まず、バブルの冷却面積を大きくするには、バブルの径を大きくすることであり、またバブルの外側だけでなく、内面からも冷却を効率良く行うことである。バブルの内冷は冷却面積を2倍に増やすことができるため、冷却が問題となる重袋用の成形によく利用されている。HMW-HDPEでは、バブル安定体同様、バブルに直接内部水冷マンドレルを接触させて内側から冷却する方式もある。ただし、急冷しすぎるとフィルムの偏肉につながる恐れがある。

冷却空気の温度を低下させることは、冷却効率を上げるのに役立つ。夏場のバブル表面付近の冷却風温は通常

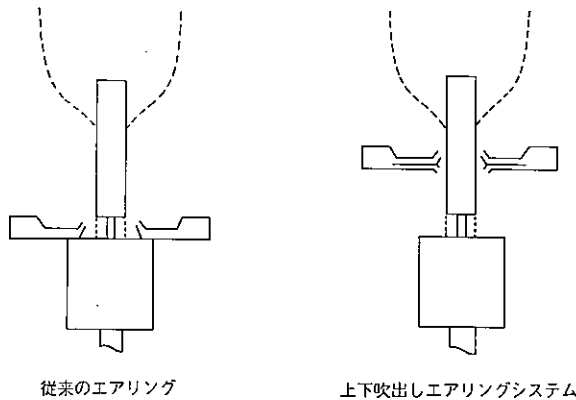


図34 エアリングの構造比較

40°C を越えることが多く、チラーを使用すると、この温度を15°C 以下に下げることができるので、ダイを出てから結晶化するまでの平均バブル温度 \bar{T} と冷却空気の温度 T_{air} の差 $\Delta T = \bar{T} - T_{air}$ は、ポリエチレンで夏場では110°C (通常) から135°C (チラー使用時) までになり、冷却効率は20%程度上げることが期待できる。

一方、熱伝達係数を大きくするには式(13)より、バブル表面の風速を大きくすることであり、エアリングの吹出し速度と熱伝達係数との間に式(15)のような関係式¹⁾が得られており、冷却はエアリングの吹出し速度に大きく影響される。

$$U = C' v_0^{1.1} \quad (15)$$

もう一つの方法は、式(13)の代表長さ L_a を小さくすることである。これ

は熱伝達が起こる境界層の厚みを小さくすることであり、エアリングから吹出されたエアがバブルに当たり、そのエアがバブルに沿って長い間流れると、境界層が厚くなり冷却効果が低下することを意味している。そこで、バブルの表面積が大きくなり効果的な冷却が起こる位置付近で、境界層の厚みを薄くし冷却効果を大きくする (L_a が小さい) ことは、高生産性を得るうえで重要である。更に、ダイ出口付近でも冷却効果を高め、 L_a を小さくすることは全体の熱伝達係数を大きくするうえで重要であり、このような考えに基づいて設計されたエアリングを図34に示す。この上下吹出しエアリング¹⁷⁾⁻¹⁹⁾を用いると、バブルが広がる位置で従来のエアリングに比較し、熱伝達係数がかなり大きくとれ、またダイ近くに

においても熱伝達係数の低下はない。表6には従来のエアリングと本エアリングの冷却効果の差を示したが、冷却効率を約20~30%アップできることが分かる。

おわりに

インフレーション成形において、樹脂のレオロジー特性や成形条件と成形中の溶融挙動、得られたフィルム物性の相関性について述べ、更にバブルと冷却風の熱伝達について説明を加えた。

HDPE は、変形挙動において、結晶化直前でヒズミ速度が大きく変化し、ある狭い領域で溶融挙動の変化が起こり、成形条件の変化を受けやすいが、LDPE は変形が徐々に起こる。

また、成形条件の変化により、引張り応力は大きく変化するが、HDPE で高強度フィルムを得るには、吐出量、引取速度を高めると同時にせん断発熱をできるだけ抑えて低温で変形させることが望ましい。

一方、インフレーションの冷却において効果的な熱伝達を生じるためには、冷却空気とバブルの間の境界層を薄くするような冷却方式が好ましいことを述べた。

インフレーション成形は、今後もフィルム物性の向上や高生産性を得るため、冷却の効率化を含めた成形機の開発が活発に行われ、更に厚み精度の良いフィルムが高速で成形できることが

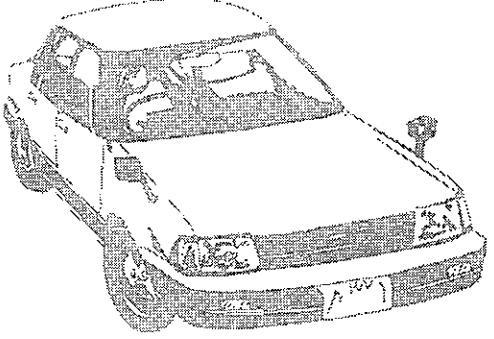
電 鋳

によるあくなき可能性の追求

- 車輛
- 医療器
- 宇宙開発
- 太陽エネルギー関係

製造 (有) エフテック

販売 (有) モールド・コンサルタント



〒125 東京都葛飾区東金町5-1-11
電話 03(609)0531(代表)

表6 エアリングの性能比較

項目	従来のエアリング	上下吹出しエアリングシステム
成形機仕様	HDPE 55 mm 押出機 80 mm ダイ	HDPE 55 mm 押出機 80 mm ダイ
フィルムサイズ	0.025×550 mm	0.025×550 mm
生産性	45 kg/hr 前後	65 kg/hr 前後
成形安定性	○	◎
成形機仕様	HDPE 55 mm 押出機 75 mm ダイ	HDPE 55 mm 押出機 75 mm ダイ
フィルムサイズ	0.015×550 mm	0.015×550 mm
生産性	32 kg/hr 前後	41 kg/hr 前後
成形安定性	○	◎
成形機仕様	HDPE 60 mm 押出機 100 mm ダイ	HDPE 60 mm 押出機 100 mm ダイ
フィルムサイズ	0.015×650 mm	0.015×650 mm
生産性	45 kg/hr 前後	56 kg/hr 前後
成形安定性	○	◎

期待される。今後更に各種包装材料の多様化、高付加価値化に伴い、要求される特性は複雑かつ多様化し、また寸法精度、要求物性、製品外観などの品質も厳しく追求されることが予想され、成形機の高精度化、成形法の改良、更に多層化技術の開発がより一層重要となるであろう。

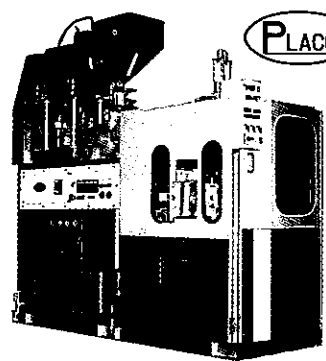
参考文献

1) T. Kanai, J.L. White, "Kinematics, Dynamics and Stability of the Tubular

Film Extrusion of Various Polyethylenes," *Polym. Eng. Sci.*, **24**, [15], 1185 (1984); T.Kanai, J.L. White, SPE ANTEC Technical Papers, **29**, 155 (1983).

- 岡 毅太郎, 山形 京編, ポリエチレン樹脂, 第6版, p. 57 (日刊工業新聞社, 1975).
- 六代 稔, 藤本省三, 安田陽一, 兼重洋石, "線状低密度ポリエチレン/低密度ポリエチレンブレンド体フィルムの光学的性質," 東洋曹達研究報告書, **28**, [2], 15 (1984).
- 三石信雄, 山中彰宏共訳, レオロジーの理論と応用 (工業調査会, 1972).

- J.L. White, *J. Appl. Polym. Sci.*, **8**, 2339 (1964).
- J.L. White, N. Tokita, *J. Appl. Polym. Sci.*, **11**, 321 (1967).
- A.B. Metzner, J.L. White, M.M. Denn, *AIChE J.*, **12**, 863 (1966).
- A.B. Metzner, J.L. White, M.M. Denn, *Chem. Eng. Proc.*, **62**, [12], 81 (1966).
- 金井俊孝, 富川昌美, J.L. White, 清水二郎, "インフレーション成形における動力学的研究(1)," 織学誌, **40**, [12], T-465 (1984).
- 鈴木俊一, 金井俊孝, "高分子の加工性予測における問題点," 日本レオロジー学会誌, **12**, [4], 207 (1984).
- T. Kanai, J.L. White, "Dynamics, Heat transfer and Structure Development in Tubular Film Extrusion of Model and Predictions," *J. Appl. Polym. Sci.* (in Press).
- C.D. Han, "Rheology in Polymer Processing," (Academic Press New York, 1976).
- 金井俊孝, 岩井昭之, 高重真男, 清水二郎, 織学誌, **41**, [7], T-272 (1985).
- 金井俊孝, 木村正克, 清水二郎, "インフレーション成形のスケールアップに関する研究(1)," 織学誌, **41**, [4], T-139 (1985).
- 金井俊孝, 清水二郎, "インフレーション成形のスケールに関する研究(2)," 織学誌, **41**, [5], T-179 (1985).
- G. Menges, W. Predöhl, *Plastverarbeiter*, **23**, 338 (1972).
- 特開昭58-92528, 出光石油化学.
- 特開昭58-222819, 出光石油化学.
- 特開昭58-222820, 出光石油化学.



PLACO ~~PLASTE-F~~ 全自動式中空成形機

Vシリーズ

〈特長〉

- 100~500cc汎用容器成形に最適
- ハイサイクル型締装置
- 製造ラインの完全無人化に対応
- コスト競争力が増大
- コンパクト設計・省スペース

〈用途〉

- 食品・化粧品・洗剤容器等の一般家庭容器。
- ミネラルウォーター・工業・薬品容器等の一般小型容器等。

〈主要製品〉

- 各種インフレーションフィルム製造装置 ■ 中空成形機
- Tダイフィルム製造装置 ■ 押出ラミネート装置
- パイプ製造装置 ■ ペレット製造装置
- 各種異形押出成形装置 ■ 各種押出機

PLACO 株式会社プラコー

本社・工場 〒333 埼玉県川口市上青木4-11-8
電話(0482)67-8111 FAX(0482)68-1253
東京支店(0482)68-1251 大阪支店(06)386-5901
名古屋支店(052)935-3671 浦和工場(0487)98-0231
福岡(092)472-0541 静岡(05466)7-0721

● 弊社製全機種は、省エネ対象機につき特別税制上の特典が受けられます。