

# プラスチックフィルムの変形挙動に関する基礎的研究

著者	野々村 千里
著者別名	Nonomura, Chisato
雑誌名	博士学位論文要旨 論文内容の要旨および論文審査結果の要旨 / 金沢大学大学院自然科学研究科
巻	平成14年9月
ページ	34-44
発行年	2002-09-01
URL	<a href="http://hdl.handle.net/2297/16412">http://hdl.handle.net/2297/16412</a>

氏名	野々村 千里
生年月日	
本籍	京都府
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	博甲第433号
学位授与の日付	平成13年9月28日
学位授与の要件	課程博士(学位規則第4条第1項)
学位授与の題目	プラスチックフィルムの変形挙動に関する基礎的研究
論文審査委員(主査)	山田 敏郎(工学部・教授)
論文審査委員(副査)	中本 義章(自然科学研究科・教授)
	宮岸 重好(自然科学研究科・教授) 元井 正敏(工学部・教授)
	内山 吉隆(工学部・教授)

## 学位論文要旨

### SUMMARY

The analysis of stretching behaviors for plastic films is regarded as one of the most important subjects in the fields of film processing. In this paper, the bowing phenomenon throughout a tenter was experimentally observed with a pilot plant of successive biaxial stretching. By the detailed experimental analysis, mechanism for the expression of bowing phenomenon was clarified. In order to solve the problem of a bowing phenomenon in a tentering process of plastic films, the stretching and thermosetting conditions were examined with Polyethylene Terephthalate (PET) and Nylon 6 (NY6) films. By establishing the first cooling process between transverse stretching and thermosetting processes, it became clear that the bowing phenomenon was greatly reduced.

The neck formation and neck propagation as unique characteristics in large deformation of polymers was investigated by use of finite element method (FEM). In this paper, detailed numerical analysis of the relationship between criteria of the occurrence of neck propagation and unique constitutive law for polymers was carried out. And also, mechanism for the expression of neck propagation behavior was clarified. The deformation behavior in tensile test of a PET film was verified from FEM and experiment.

In addition, the numerical model for Polybutylene Terephthalate (PBT) molding has been developed, and the unique neck propagation behavior under

tensile load has been analyzed by FEM. By comparing numerical results with experimental ones, it could be confirmed that the necking initiates and propagates after the specimen undergoes uniform plastic deformation. Furthermore, the apparent constitutive law, which can estimate the actual load - displacement behavior, could be obtained by FEM.

## 要旨

現在、プラスチックフィルムは種々の用途に使用されており、用途の多様化によりその要求品質は年々厳しくなっている。それにともない、プラスチックフィルムの高度な製膜技術が要求され、特にプラスチックフィルムの優れた特性を発揮させるための延伸技術の開発が要求されている。この延伸技術に代表されるプラスチックフィルムの製膜技術の研究は、大規模な研究設備を必要とするため、基礎的な研究に留まり、生産プロセスに適用できる研究がほとんど行われておらず、フィルムの製膜はこれまで経験と勘に頼っているのが現状である。プラスチックフィルムには、その用途により数多くの樹脂が用いられている。その中でも、耐熱性、寸法安定性、強度、コスト等の面で優れ、広範囲に使用されているポリエチレンテレフタレート（以下、PETと略す）フィルムは二軸延伸されたプラスチックフィルムの代表的なものである。

本論文では、PETフィルム、および、包装用途に主に用いられているナイロン6（以下、NY6と略す）フィルムを対象とし、横延伸・熱固定工程で発生するボーイング現象に着目し、ボーイング現象の発生メカニズムと、ボーイングひずみの低減策に関して、詳細な実験解析と数値解析を実施した。

また、高分子材料を対象とした数値解析は、大変形挙動を考慮する必要があるが、従来の解析手法では十分な精度が得られない。高分子材料に特有の構成則に関する検討は、プラスチックフィルムの延伸・熱固定工程等における変形解析には必要不可欠な課題の一つである。本論文では、高分子材料に特有の変形挙動を再現できる構成則の検討を試み、ネッキングやネック伝ば現象をとともなう引張試験時のPETフィルムへの適用可能性を詳細に検討した。さらに、フィルム成形以外の分野における水平展開として、ポリブチレンテレフタレート（以下、PBTと略す）射出成形品を対象とした数値解析も試みた。

以下に、本論文における結論を統括する。

### （１）二軸延伸PETフィルムのテンター内での変形挙動

二軸延伸フィルムの延伸時における大きな問題点として、フィルム幅方向の物性差（異方性）の原因であるボーイング現象、最終製品のフィルム取り幅が減少するネックイン現象、フィルムの巻き工程時に発生するしわや平面性の原因となる厚み斑等が挙げられる。この中でボーイング現象によって、プラステ

ックフィルムの力学的特性（例えば，熱収縮率，熱膨張率，湿潤膨張率等）の異方性が原因で，工業用途の一例として，フロッピーディスク等のベースフィルムにおける磁気記録特性の低下等，また，包装用途の一例として，印刷ラミネート加工，製袋工程等における印刷ピッチずれ，斑の発生，カーリング，蛇行等が顕在化している。

プラスチックフィルムの製膜工程は，Fig.1 に示すように，樹脂の溶融・押し出し工程（図中のEXT），キャスト工程（CA），縦延伸工程（MD），横延伸工程（TD），熱固定工程（TS），トリミング工程（TM），巻き工程（FW）に区別できる。

縦延伸工程ではロール延伸機を，横延伸・熱固定工程ではテンターと呼ばれる延伸機（Fig.2）を用いるのが一般的な逐次二軸延伸方式である。ボーイング現象（Fig.2）は，横延伸・熱固定工程で発生するため，テンター内におけるフィルムの変形挙動を観察した。

ボーイングひずみの評価としては，テンターに入る前のフィルムの面上に横方向の標線（直線）を記し，テンターを出たフィルム上での標線の変化量を観

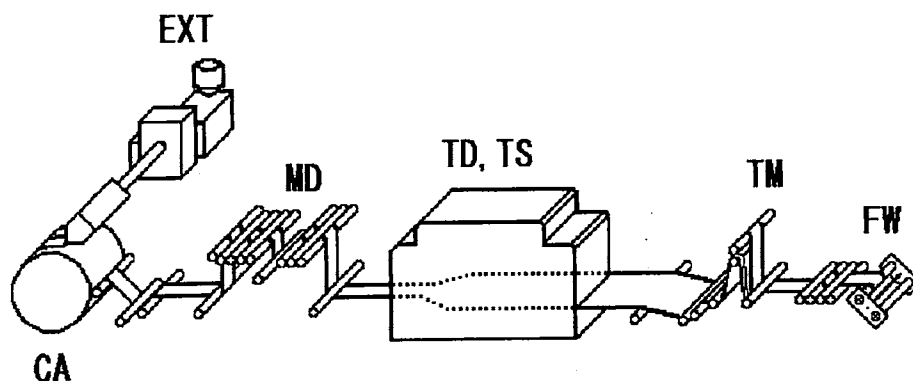


Fig. 1 Schematic diagram of film testing machine.

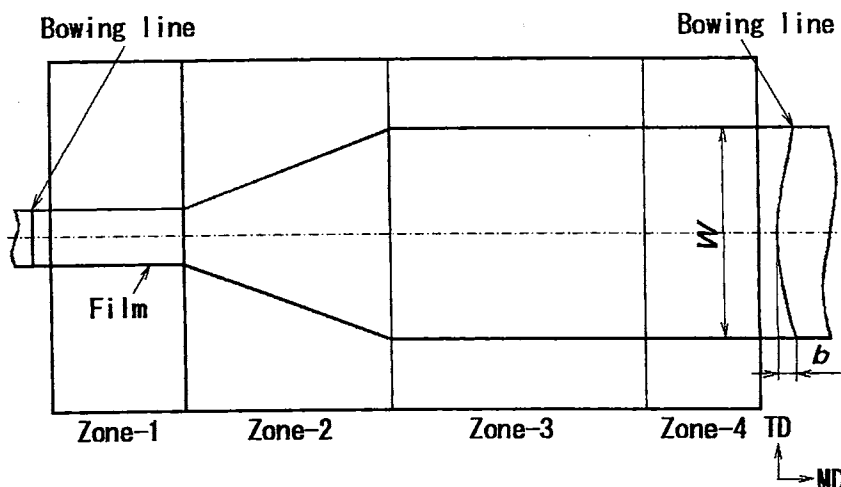


Fig. 2 Schematic diagram of tenter.

察した。この標線の変化量は、フィルム幅に依存して変化する。そこで、Fig. 2に示すようにテンターを出た最終のフィルム中央部における最大遅れ量  $b$  とテンターを出た最終のフィルム幅  $W$  より、 $B = b / W \times 100$  のようにボーイングひずみ  $B$  を百分率化した。また、テンターの各ゾーンに必要な長さもフィルム幅に依存する。そこで、テンター入口からの距離  $l$  と、テンター全体の長さ  $l_T$  より、 $L = l / l_T$  のようにテンターの無次元長さ  $L$  を無次元化した。Fig. 3 に詳細な実験解析から得られたボーイングひずみとテンターの無次元長さとの関係を示す。

ボーイング現象が発生する原因として、テンター内においてフィルムの両端部は、クリップに把持されているので拘束されているが、フィルムの中央部に近づくほど、把持手段であるクリップの影響が低くなり拘束力が弱くなる。そのため、横延伸ゾーンによって発生する縦方向の延伸応力や、熱固定ゾーンによって発生する縦方向の収縮応力によって、フィルムの中央部に近づくほど縦方向の変形が大きくなると推定される。

テンター全領域のサンプルにおける実験結果 (Fig. 3) より、横延伸ゾーンでのボーイング線の変化は、横延伸ゾーンの始めでは凸型に変形し、横延伸ゾーンの途中で凸型の変形が最大値をとり、また、横延伸ゾーンの終了直前の領域で直線に戻り、横延伸ゾーンの終わりでは凹型に変形している。これは、横延伸時にフィルムの中央部が変形することによるものと推定される。また、横延伸後の熱固定ゾーンが  $200^\circ\text{C}$  の高温であるため熱固定ゾーンのフィルムの剛性が非常に低い状態となっている。そのため、横延伸時に発生する縦方向の延伸応力によってフィルムの中央部が容易に変形し、横延伸終了後で既にボーイングひずみが発生するものと推定される。熱固定ゾーンでのボーイングひずみ

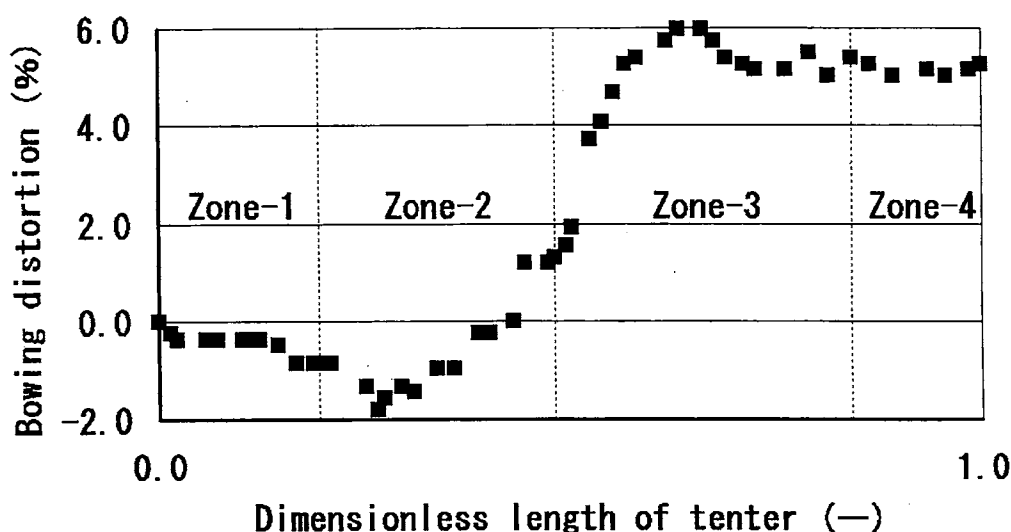


Fig. 3 Relationship between bowing distortion and dimensionless length of tenter.

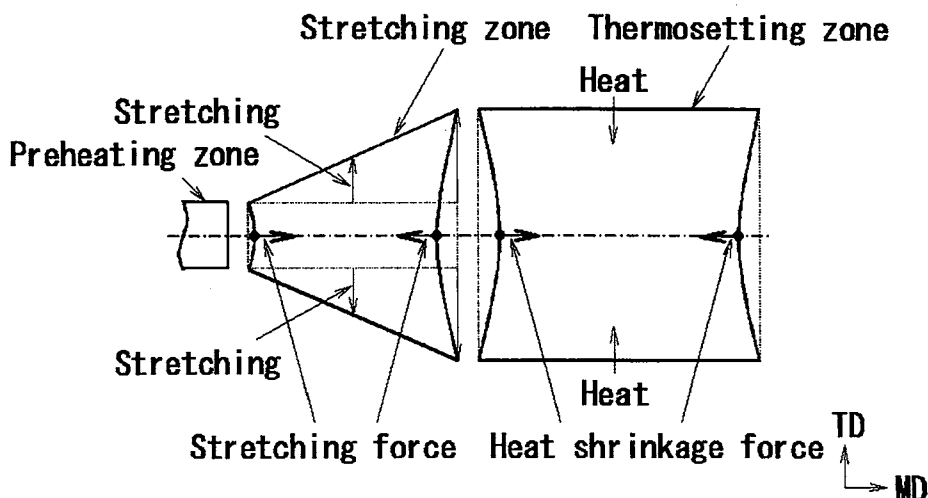


Fig. 4 Schematic diagram on mechanism for expression of bowing phenomenon.

の変化は、熱固定ゾーンの最初の領域でボーイングひずみが最大値をとり、その後はほとんど変化していない。熱固定ゾーンでボーイングひずみが拡大するのは、二軸延伸フィルムは、二軸方向に延伸されているので高温域において熱収縮が発生する。また、熱固定ゾーンでも横延伸ゾーンと同様にフィルムの両端部はクリップに把持されており、フィルムの中央部は拘束されておらず、延伸ゾーンで発生したボーイングひずみに加えてボーイングひずみが拡大すると推定される。また、フィルムは熱固定ゾーンに入り徐々に昇温されて熱固定ゾーンの始めの領域で最高温度に達して熱処理を受ける。そこで、最高温度に達した領域で熱収縮が最大となり、ボーイングひずみが最大値をとると推定される。その後の領域では、最高温度以下で熱処理を受けても熱収縮が起こらず、ボーイングひずみは変化しないと推定される。このようにボーイングひずみの発生メカニズムを明らかにし、その発生メカニズムの概略図を Fig. 4 に示す。

### (2) 二軸延伸PETフィルムのボーイング現象の低減策

ボーイング現象の低減策に関する詳細な実験解析を行い、横延伸直後に第一冷却ゾーンを設けると、ボーイングひずみはその冷却温度と冷却ゾーンの長さによって顕著に変化し、冷却ゾーンの温度がガラス転移温度以下の時、ボーイングひずみの低減の効果が大きく、その冷却ゾーンの無次元長さが大きいほどボーイングひずみの低減の効果が大きい。また、その後の熱固定ゾーンの温度が変化してもボーイングひずみはほとんど変化しないことを明らかにした。

### (3) 横延伸・熱固定工程におけるフィルムの変形挙動に関する数値解析

ボーイング現象の発生メカニズムについて、簡易なモデルによる数値解析を

実施した。二次元弾性体モデルにおいては、温度変化による不均質と、延伸配向による異方性、塑性変形を擬似的に考慮したモデルを用いた場合が、テナター内における変形挙動の実験結果と数値解析結果とが定性的に一致することを確認した。また、第一冷却工程の設置効果である横延伸時に発生する縦方向の延伸応力の伝ばが熱固定工程に到達しないということも再現した。

(4) PETフィルムおよびNY6フィルムの熱収縮挙動

ボーイング現象の低減策とPETフィルムの熱収縮率との関係を詳細な実験解析を行い、物性値が低下しないボーイングひずみの低減策を検証した。また、NY6フィルムでは、テナターを二台用い、横延伸と熱固定を別々のテナターで実施し、物性値が低下しないボーイングひずみの低減策を検証した。

(5) ネック伝ば現象に関する数値解析

プラスチックフィルムの引張試験時に発生するネック伝ば現象について、弾塑性構成則を用いた数値解析を行い、この現象が発生するメカニズムの解明を試みた。本論文で仮定した構成則(真応力-対数ひずみ関係)をFig.5に示す。

Fig.5に示した構成則を用いた詳細な数値解析を行うことにより、ネック伝ば現象は、降伏後の接線係数の増加により発生し、降伏直後の接線係数と降伏応力が密接に関係していることを明らかにした。ネック伝ば現象を起こす場合の典型的な荷重-変位線図をFig.6に示す。

ネッキングの発生と同時にネッキングの起こっていない箇所を除荷が起こり、この除荷が降伏直後の荷重減少の原因となって局所的な塑性変形の進行と除荷が同時に発生するというメカニズムの概略図をFig.7に示す。

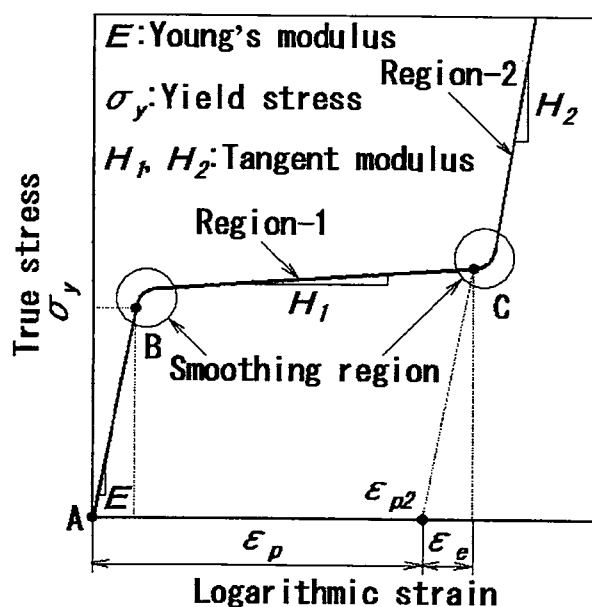


Fig. 5 Uniaxial true stress - logarithmic strain diagram.

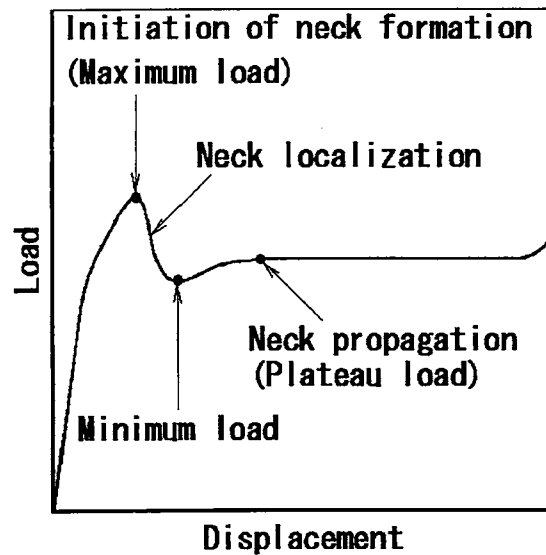


Fig. 6 Generalized load - displacement diagram.

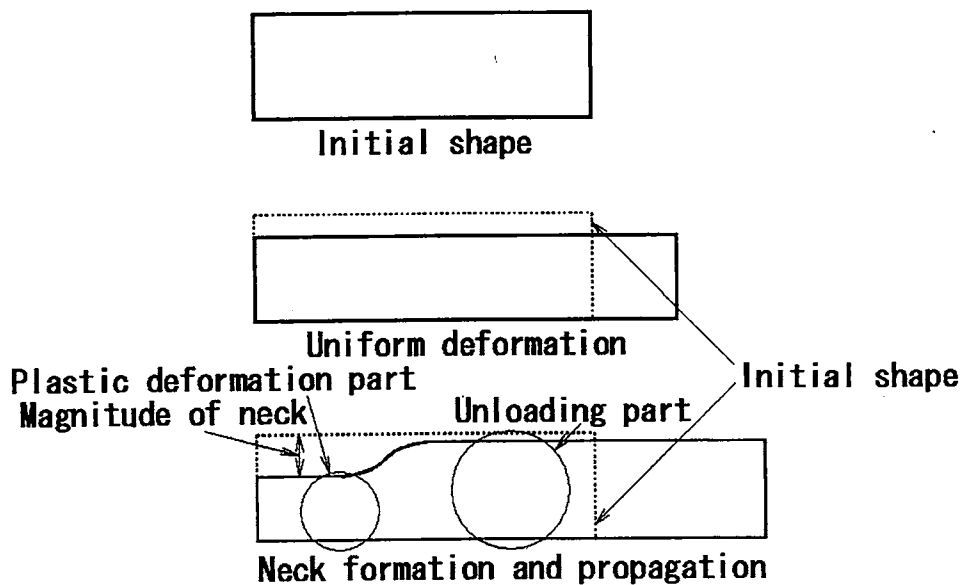


Fig. 7 Schematic diagrams of the deformation during neck propagation.

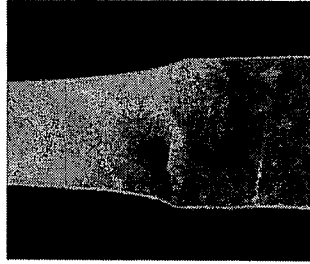
(6) 引張試験時のPETフィルムに関する数値解析

PETフィルムのネッキングやネック伝ば現象をともなった変形挙動について数値解析結果と実験結果を比較したものをFig. 8に示す。変形挙動の定性的な一致を確認し、実測の荷重-変位関係を再現するPETフィルムの見掛け上の構成則が得られた。

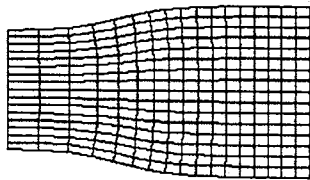
(7) 引張試験時のPBT成形品に関する数値解析

PBT成形品において、実験結果から得られる荷重-変位関係（ネック伝ば現象が安定して進行する変形中期段階まで）について模式的に表わしたものを





Photograph of necked PET film



Deformation diagram by FEM

Fig. 8 Comparison of deformation diagrams at necked region between experiment and FEM.

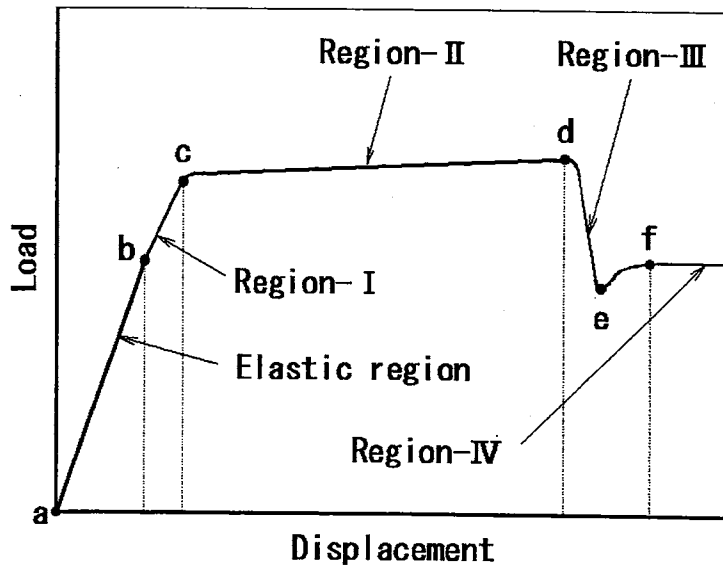


Fig. 9 Generalized load - displacement diagram.

Fig. 9 に示す。PBT 成形品の変形挙動、他の樹脂（例えば、前述のPET フィルムの変形挙動等）で観察される荷重-変位関係とは大きく異なる。変形初期段階は、荷重と変位の関係が比例的に変化する弾性領域が観察される。そして、降伏を起こした直後（b 点）ではネッキングを起こさず、荷重増加の傾きはわずかに減少し、全体がほぼ均一に塑性変形を起こす領域 I が観察される。その後、荷重増加の傾きは大きく減少（c 点）して、荷重は緩やかに増加する

領域Ⅱが観察される。この領域Ⅱは、領域Ⅰと同様に全体がほぼ均一に塑性変形を起こす領域である。そして、d点に変位量が到達すると荷重は急激に減少してネッキング現象（領域Ⅲ）が進行する。その後、荷重は極小値（e点）をとり、わずかに荷重が増加する領域が観察され、荷重がほぼ一定値（f点）になると、ネック伝ば現象（領域Ⅳ）が開始し、その後、荷重はほぼ一定値でネック伝ば現象が安定に進行する。

降伏直後には全体がほぼ均一に塑性変形が進行し、その後、ネッキングおよびネック伝ば現象が起こることが再現できる構成則について検討した。その構成則（真応力-対数ひずみ関係）を Fig. 10 に示す。

Fig. 10 より、降伏直後に接線係数が急激に低下しない領域 1 の存在により、前述のPETフィルムの変形挙動とは異なった結果を示すことが明らかとなった。数値解析から得られた変形中期段階までの変形状態図を Fig. 11 に、ネック領域の変形状態図を実験結果と比較したものを Fig. 12 にそれぞれ示す。

PBT成形品を対象に変形挙動の定性的な一致を確認し、実測の荷重-変位関係を再現するPBT成形品の見掛け上の構成則が得られた。

プラスチックフィルムの高機能化においては、延伸技術のさらなる向上が必要不可欠で、本論文で示したPET、NY6フィルムに関するボーイング現象の発生メカニズムの解明と、物性値を維持しつつボーイングひずみを低減させる製膜技術は、工業的にも十分に価値がある。しかし、テンターにより横延伸、熱固定する場合には、フィルムの両端部はクリップによって把持されてため、本論文で示したようなボーイング現象の低減策は有効であるが、根本的にボーイング現象を回避することは困難であると推定される。

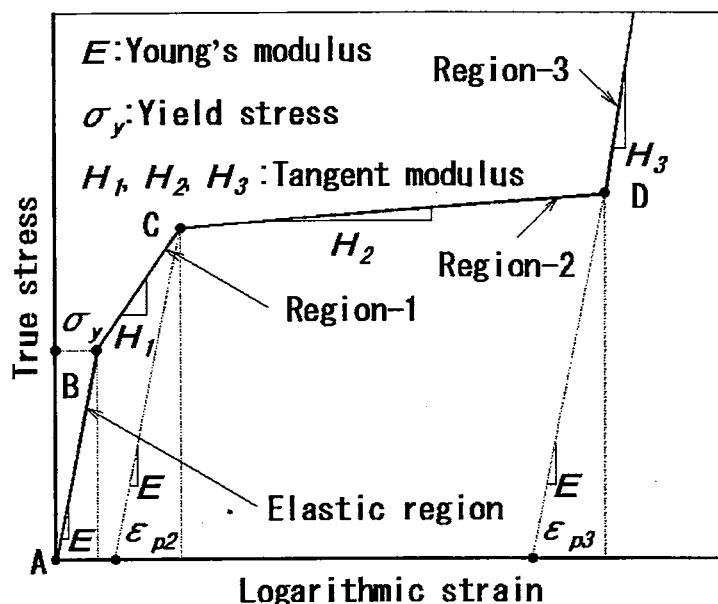


Fig. 10 Uniaxial true stress - logarithmic strain diagram.

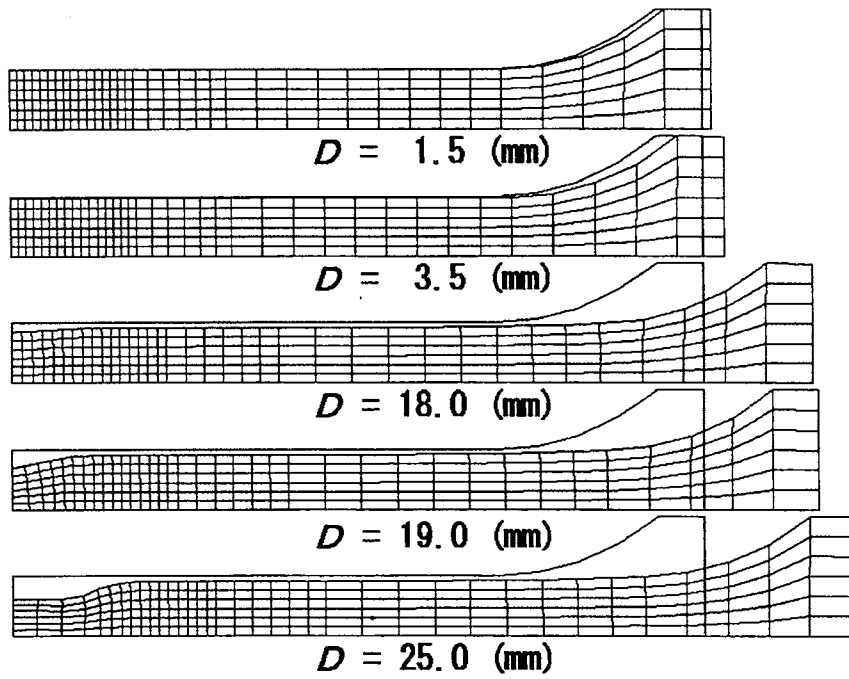
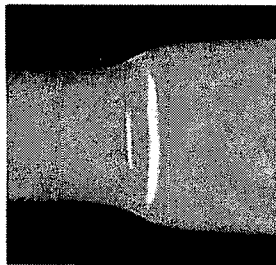
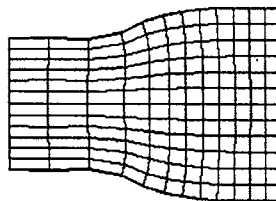


Fig. 11 Deformation diagrams by FEM with varying displacement.



Photograph of necked PBT molding



Deformation diagram by FEM

Fig. 12 Comparison of deformation diagrams at necked region between experiment and FEM.

さらに、本論文で示した、高分子材料に特有の変形挙動を再現する構成則に関しては、まだまだ検討の余地は残されている。プラスチックフィルムの変形挙動を再現する数値解析における変形挙動を議論する際には、本論文で示したような構成則は必要最低限の考慮すべき内容であり、高分子材料のマクロな変形挙動についてCAEで議論するには、工業的にも十分に価値があると考えられる。

今後のCAEに関する研究課題を統括すると、材料定数の異方性、温度依存性、ひずみ速度依存性、塑性変形による発熱を考慮できる構成則の検討、さらに、高分子材料に特有の結晶構造や層構造との関係を詳細に検討できる構成則の検討が今後の大きな研究課題であると考えられる。

## 学位論文審査結果の要旨

各審査委員によって提出学位論文に関して個別に審査を行なうと共に、平成13年8月1日に第1回論文審査委員会、平成13年8月10日に開催した口頭発表の結果を踏まえて、同日に第2回論文審査委員会を開催して協議を行なった。その結果、以下のように判定した。

プラスチックフィルムの製膜工程においては、様々な問題点がある。その中で、横延伸時に発生するボーイング現象により、フィルムの横方向における中央部と端部とで分子配向状態が異なり、フィルムの力学的特性の異方性が生じて品質が低下することが大きな問題点となっている。本論文では、ポリエチレンテレフタレート (PET)、ナイロン6 (NY6) フィルムのボーイング現象の発生メカニズムを解明し、詳細な実験解析と数値解析を実施して、横延伸工程と熱固定工程間に冷却工程を設置するという具体的なボーイングひずみの低減策を提案して、その低減策の効果も確認している。

さらに、数値解析技術の精度向上を目的とし、高分子材料に特有のネック伝ば現象をともなう変形挙動を再現できる構成則について考察し、PET フィルムへの適用可能性を検討している。さらに、フィルム成形以外の分野への水平展開として、ポリブチレンテレフタレート (PBT) 射出成形品も対象とし、その結果、高分子材料の変形挙動を定量的に再現できる構成則を見出している。

以上の成果は、学術面のみならず、フィルム成形の工業化に対する重要な指針を与え、当該研究分野の発展に大きく寄与するものである。従って、本論文は博士(工学)の学位に値するものと判断する。