

## 二軸延伸 PET フィルムの横延伸工程における厚み挙動

山田 敏郎\*・那須 礼学\*・岩崎 貴之\*・杉原 元樹\*

### Thickness Behavior of Biaxially Stretched PET Film in the Transverse Stretching Zone of a Tenter

Yamada, Toshiro\*/Nasu, Yukinori\*/Iwasaki, Takayuki\*/Sugihara, Genki\*

An uneven thickness distribution can cause serious problems in practical applications. In this report the deformation and thickness behavior of poly(ethylene terephthalate) (PET) film during transverse stretching in a tenter is discussed. The experiments were performed in a pilot plant with extrusion, casting, machine direction (MD) stretching, transverse direction (TD) stretching and thermosetting and winding processes. The thickness distribution of the PET film was measured after uniaxial orientation (MD stretched) and again after biaxial orientation (TD stretched in the tenter). The thickness behavior during the transverse stretching in the tenter was calculated by a finite element method (FEM), assuming a rigid-plastic or elastic-plastic constitutive law with parameters determined from the tensile stress-strain measurements. The tensile stress-strain tests were performed on MD stretched film in the transverse stretching direction. The FEM analysis was carried out using the measured initial thickness distribution of the uniaxially oriented film (MD stretched). It was estimated from this analysis that the (TD) stretching of the film in the tenter initiated near the tenter clip (edge of film), spread to the center of the film and then finally moved from the center to the edge of the film under the experimental conditions of this study. Good agreement was obtained between the experimental and predicted FEM results for the final film thickness distribution after transverse stretching.

**Key words** : Tentering process/Film thickness/FEM/PET

#### 1. 緒 言

近年、身の回りに溢れるようになった高分子フィルムはその優れた特性のため用途が多様化してきており、品質に対する要求も年々厳しくなっている。特に面内等方性、厚みムラに対する要求は強く、これらを満足させるためにもフィルムの優れた特性を發揮させることに寄与する延伸技術の発展は必須である。

しかし、フィルムの製造技術に関する研究は非常に少なく、特にフィルムの延伸技術に関する研究は、大規模な設備が必要なため莫大な研究費用を必要とし、その対象が複雑で取り扱いが困難なため基礎的な研究にとどまり、生産

プロセスに適用できる実用レベルの研究は極めて少ないのが現状である。

結晶性フィルムは延伸することにより分子鎖配向、結晶化が促進し、各物性が変化する。それにより機械的、熱的、光学的特性が向上する。用途が広い面内等方性フィルムの製造には高分子鎖を配向させるため、フィルムを縦・横の両方向から引張を行う直交二軸延伸が必要である。その製造には工学的に有効なテンター法が用いられ、中でも生産性に優れ、広幅な延伸が可能である逐次二軸延伸法が代表される。図1に逐次二軸延伸工程の概略図を示す。図中のテンターと呼ばれる横方向の延伸が行われる場所(四角で囲んである部分)において、フィルムはテンタークリップで両端を把持されながら延伸される。この際、ポーイングと呼ばれる不均一な変形や厚みムラが生じ、品質に影響を及ぼし問題となっている。

フィルムの厚みが進行方向(MD)、幅方向(TD)で均一であることは極めて重要な問題である。例えばTD方向

\* 金沢大学大学院 自然科学研究科 物質科学専攻  
金沢市角間町(〒920-1192)  
Division of Material Sciences, Graduate School of Natural  
Science & Technology, Kanazawa University  
Kakuma-machi, Kanazawa 920-1192, Japan

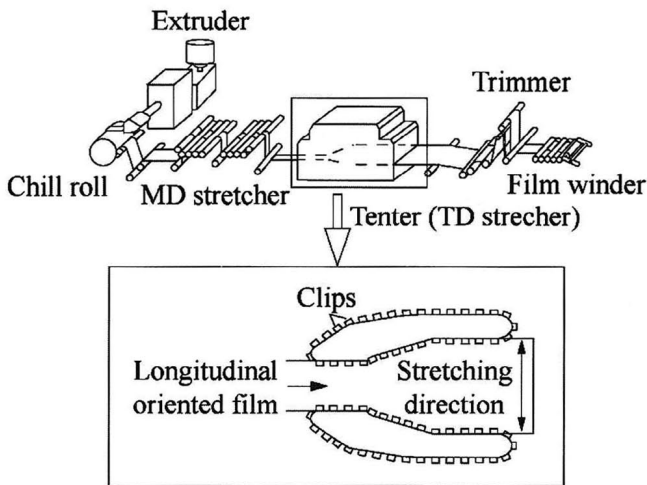


Fig.1 Schematic diagram of successive biaxial process

に厚さが均一でない場合には、巻き取ったロールに硬い部分と軟らかい部分ができ、凹凸が生じてしまう。それによってロールの巻き形状が悪くなり、商品価値が無くなる場合さえ出てくる。また、凹凸の激しいロールでは、しわが発生したり、たるみが生じ、製造、スリット、ラミネート、コーティング、印刷、接着、蒸着などの加工時に支障をきたすことになる。このように厚みムラの低減化は、広幅化・高速化・長尺化が進むにつれて、これまで以上に要求されるようになってきている。そこで、本研究では代表的な結晶性ポリマーフィルムのポリエチレンテレフタレート (PET) フィルムのテンターによる横 (TD) 延伸工程での厚み挙動について解析を試みている。

これまで我々はフィルムの延伸工程中に発生するボーイング現象や厚みムらを低減させるため、横延伸の行われるテンター内でのフィルムの変形挙動の理論解析を行ってきた<sup>1)~5)</sup>。実際のフィルムは解の導出が非常に複雑な粘弾塑性構成則に従う。しかし、ポリエチレンテレフタレート (PET) フィルムは緩和時間が非常に短いので固体状態では粘性体というより、むしろ弾性体、あるいは塑性体としてふるまうことが多い。特に、通常3倍以上も TD 方向に延伸し続ける横延伸工程の中では、フィルム厚みやボーイング挙動等のフィルムのマクロ的な変形挙動の解析には粘性の影響を無視しても大きな問題とならないと考えることができる。そこで、横延伸工程中での延伸によるフィルム変形挙動を予測するために、フィルムを弾塑性体または剛塑性体と仮定し、有限要素法による解析を行った。フィルムを弾塑性体と仮定した時の解析は応力-ひずみ (S-S) データの近似が難しいことや解が不安定になるなどの欠点がある。そこで本報告では、フィルムを弾塑性体と仮定したときと解の収束が比較的良好な剛塑性体と仮定したときの二種類の構成方程式について解析を行った。

さらに、これまででは TD 延伸前のフィルム厚みが均一なものとして解析を行っていた<sup>6),7)</sup>。そこで本報告では延伸前の初期フィルムが実験データとほぼ同等の厚み分布を有するモデルで有限要素法解析を行い、横延伸工程中での厚み分布挙動を予測し、延伸後のフィルム厚み分布の実験データと比較した。

## 2. 実験

### 2.1 材料 (PET フィルム)

フィルムに使われる樹脂の中で最も代表的なもののひとつである PET 樹脂 (極限粘度が 0.6 程度のフィルム用樹脂) を解析の対象とした。

PET フィルムは価格と性能のバランスがとれた多機能フィルムとして、用途を拡大してきた。その特徴として機械的性質が優れていることなどがあげられる。PET フィルムの用途は広範囲で、磁気テープ、絶縁テープ、レトルト食品、写真、レントゲン写真、ラベルなどの多岐にわたっている。また長年の技術蓄積により、各種フィルムの中で厚みムラ、表面特性が最も高度に制御されたフィルムである。

### 2.2 引張試験

試験片は 368.15 K、3.3 倍で MD 延伸後の PET フィルムにおける幅方向の中央部から 1.5 (幅) × 15 (試験長) cm を切り出してサンプルとした。

引張試験機はオリエンテック社製テンシロン UCT-100 を用いた。これを 358.15 K の炉の中に入れクロスヘッドスピード 200 mm/min で TD、MD 各方向にそれぞれ引張試験を 3 回行った。

引張試験で得られた TD 方向の真応力-対数ひずみデータを図 2 に示す。なお、これは 3 回の試験における平均値をプロットした。

図 2 からわかることはまず、弾性の領域が非常に少ないことである。そして、対数ひずみ 1.2 以降で配向結晶化による急激な剛性の立ち上がりがあり、結晶性ポリマーである PET の特徴をよく表している。

### 2.3 フィルム厚み測定

サンプル作製は図 1 に示すモデル試験機を使っておこなった。まず、PET 樹脂が溶融され、チルロール上に押出され、非晶質のフィルムシートを作る。それから、シートをロールの速度差を利用して、倍率 3.3 倍、延伸温度 368.15 K、の条件下で縦方向に延伸し、一軸延伸 PET フィルムを、クリップで把持しながら、倍率 3.46 倍、延伸温度 368.95 K の条件下で、横方向に延伸して巻き取り速度 10 m/min で巻き取り、最終的に二軸延伸 PET フィルムを作製した。このサンプルフィルムの厚みを幅方向に測

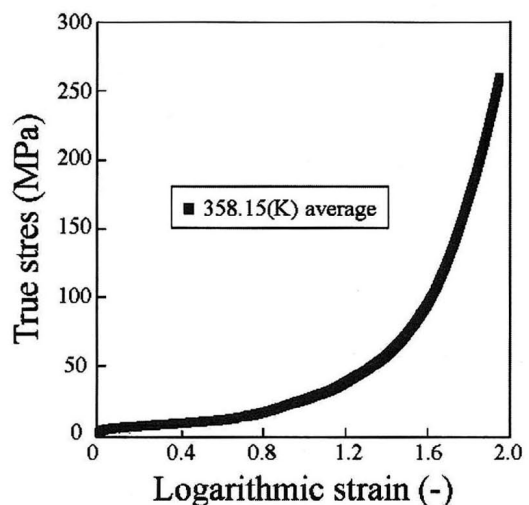


Fig.2 True stress-logarithmic strain curves for TD

定した。図3はフィルム中心Aからフィルム端部Fまでの横延伸前後のフィルム厚み分布を示している。

### 3. 解 析

#### 3.1 有限要素法解析

本報告では解析対象を横延伸の行われるテンター内のうち、予熱区間から冷却区間までとし、テンター内で約3.46倍に延伸されるものとした。解析には厚み方向が薄いため四節点四辺形平面応力要素を用い、一要素あたりの数値積分点数を4として完全積分を行った。また、テンター内の対称性を考慮して、フィルムを1/2モデルとして解析を行った。節点数1806節点、要素数1500要素とした。Update Lagrange法を用いて増分解析を行っているため、要素の厚みは増分毎に更新するものとした。有限要素法解析のプログラムとしては非線形汎用有限要素法ソフト Marc 2000を用いた。

有限要素法の流れはまず、各要素での応力とひずみの関係を表すDマトリックスから要素剛性マトリックスを導出する。次に各要素の剛性マトリックスを重ね合わせて全体剛性マトリックスを導出し、境界条件を代入して変位を求める。これを繰り返すことで変形を表している。

#### 3.2 弾塑性体構成則における材料定数

弾塑性解析に必要なPETフィルムの材料定数を図2より求めた。まず、グラフを直線で近似することにより弾性領域の材料定数であるヤング率Eを決定した(図4-a参照)。

塑性領域に関しては真応力-対数ひずみ曲線を真応力-塑性ひずみ曲線に直し(図4-b参照)、さらに塑性の領域を二つの領域に分けて、塑性領域の材料定数である降伏応力 $\sigma_1$ 、加工硬化係数 $h_1$ 、 $h_2$ を決定した。このようにして得られた材料定数を表1に示す。

#### 3.3 弾塑性体構成則における支配方程式

フィルムを弾塑性体構成則に従うとする時の関係式について説明する。本解析は静的陰解法であるので、静的釣り合い式を解いている。弾塑性体の変形挙動は、線形の挙動を示す「弾性」と、非線形の挙動を示す「塑性」と、二つの性質をもっている。そのため材料の変形挙動を示す応力-

ひずみの関係も応力増分-ひずみ増分の関係で表わされる。von Misesの降伏条件、増分塑性理論、等方硬化則を用いて導出した応力増分-ひずみ増分の関係式を以下に示す<sup>8),9)</sup>。

$$d\sigma = D^{\epsilon} d\epsilon \quad (1)$$

ここで $D^{\epsilon}$ は弾塑性の微小ひずみ接線剛性であり以下で表される。

$$D^{\epsilon} = D^{\epsilon} - \frac{\left( D^{\epsilon} \frac{\delta \bar{\sigma}}{\delta \sigma} \right) \left( D^{\epsilon} \frac{\delta \bar{\sigma}}{\delta \sigma} \right)}{h + \left( \frac{\delta \bar{\sigma}}{\delta \sigma} \right) D^{\epsilon} \left( \frac{\delta \bar{\sigma}}{\delta \sigma} \right)} \quad (2)$$

$\sigma$ : 応力,  $\epsilon$ : ひずみ,  $\bar{\sigma}$ : Misesの応力,  $D^{\epsilon}$ : 弾性の剛性マトリックス,  $h$ : 加工硬化係数

#### 3.4 剛塑性体構成則における材料定数

弾塑性の時と同様にPETフィルムの材料定数を図2より求めた。剛塑性の場合は塑性の領域しか表現しない。しかし、加工硬化係数がヤング率を大きくするのはならないという制限がないため、より実験データに近い近似を行った。具体的には塑性の領域を3つの領域にわけて塑性領域

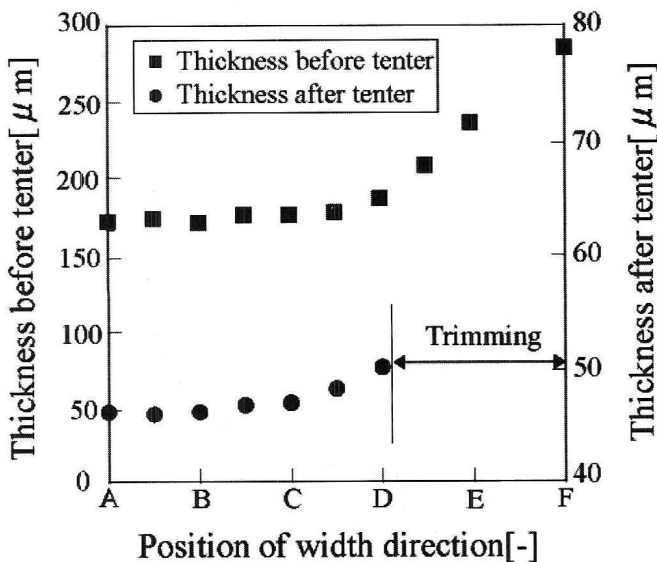
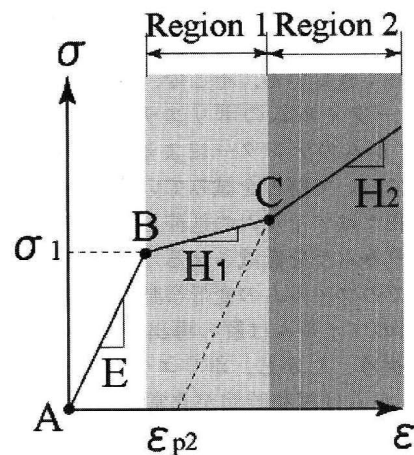
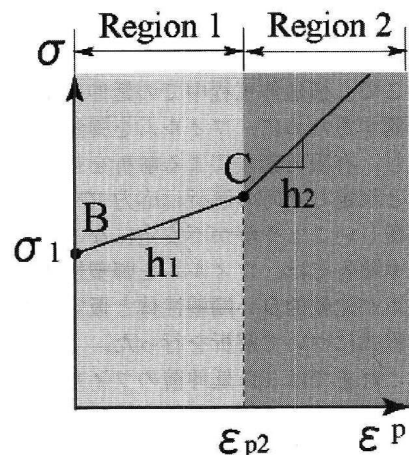


Fig. 3 Experimental distribution of film thickness



(a) True stress-logarithmic strain curve



(b) True stress-plastic strain curve

Fig. 4 Schematic diagram of stress-strain curves for elastic-plastic analysis

**Table 1 Conditions of elastic-plastic analysis**

Young's modulus for MD	$E_x$ (MPa)	573.0
Young's modulus for TD	$E_y$ (MPa)	445.8
Poisson's ratio	$\nu$ (-)	0.4
Yield stress	$\sigma_1$ (MPa)	275.4
Tangent modulus in Region 1	$h_1$ (MPa)	45.5
Tangent modulus in Region 2	$h_2$ (MPa)	1800.0
Equivalent plastic strain at the beginning of Region 2	$\epsilon_{p2}$	1.3
Yield criteria		Von Mises
Hardening rule		Isotropic hardening

**Table 2 Conditions of rigid-plastic analysis**

Yield stress	$\sigma_1$ (MPa)	0.2
Tangent modulus in Region 1	$h_1$ (MPa)	15.0
Tangent modulus in Region 2	$h_2$ (MPa)	51.7
Tangent modulus in Region 2	$h_3$ (MPa)	333.9
Equivalent plastic strain at the beginning of Region 2	$\epsilon_{p2}$	0.6
Equivalent plastic strain at the beginning of Region 3	$\epsilon_{p3}$	1.5
Yield criteria		Von Mises
Hardening rule		Isotropic hardening

の材料定数を決定した (図5 参照). このようにして得られた材料定数を表2に示す.

**3.5 剛塑性体構成則における支配方程式**

フィルムを剛塑性体構成則に従うとする時の式について説明する. 剛塑性体変形解析は本報告のような弾性の領域が塑性の領域に較べて非常に小さい場合には十分な精度が得られると考えられている. 剛塑性体の変形挙動は非線形の挙動を示す「塑性」の性質のみを示す. 材料の変形挙動は応力-ひずみ速度の関係式で表される<sup>8),9)</sup>.

$$\sigma = D' \dot{\epsilon} \quad (3)$$

ここで  $D'$  は剛塑性の微小ひずみ接線剛性であり以下で表される

$$D' = \frac{1}{3} \times \frac{\bar{\sigma}}{\bar{\dot{\epsilon}}} \begin{bmatrix} 4 & 2 & 0 \\ 2 & 4 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (4)$$

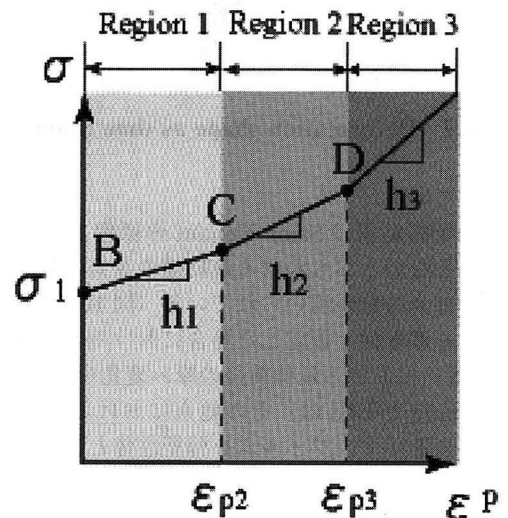
$\sigma$ : 応力,  $\bar{\sigma}$ : Mises の応力,  $\bar{\dot{\epsilon}}$ : 相当ひずみ速度,  $D'$ : 塑性の剛性マトリックス

**3.6 境界条件**

境界条件を図6に示す. フィルムの中央部においては, テンター形状の対称性から  $y$  方向には動かないという条件を設定した. また, 延伸工程に入るまでのフィルムの端部では, テンターのクリップにより固定されている状態にあるため  $x, y$  両方向に動かないものとした. テンター出口では拘束条件を与えず,  $x, y$  両方向に自由に動くことができるようにした.

**3.7 延伸条件**

実際のテンター内での延伸を表現するためにフィルムが進行方向に進みながら延伸されるという条件を設定した. これによりチャックによるフィルム横延伸工程の基本的な



**Fig.5 Schematic diagram of stress-strain curves for rigid-plastic analysis**

連続延伸を再現した. その変形状態を図7に示す.

**4. 実験結果と考察**

TD 延伸前のフィルムにはそれまでの工程で発生する厚み分布がある. しかし, 今までの研究ではその厚み分布を考慮していなかった. そこで本報告では解析モデルに図8に示すような厚み分布をつけた. なお, 図中のフィルムは1/2モデルのものであり, A点はフィルム中央部, F点はフィルム端部を示す. 図のようにチャックで把持される部分が厚く, そしてフィルムの中央部分で薄くなっている. 図9に横延伸前の実験で得られたフィルムの厚み分布と, 解析でフィルム初期厚みとして用いた値を示す. 有限要素法解析を行うに当たり, 図9のようにTD延伸前のフィルム初期厚み分布が実験値とほぼ同じ厚み分布を有する解析モ

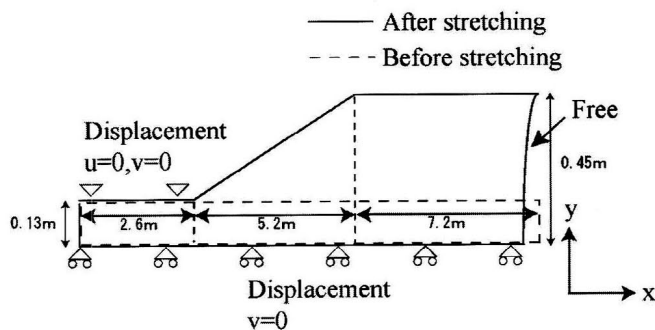


Fig. 6 Boundary conditions in successive stretching analysis

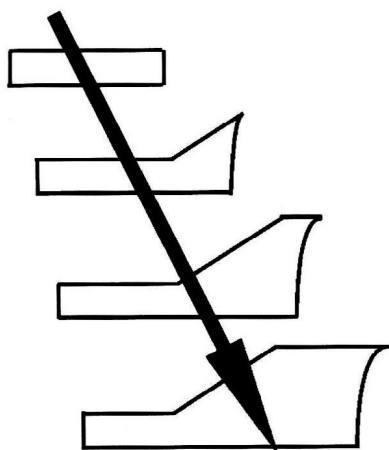


Fig. 7 Deformation shape as time change

デルを用いている。

本報告の解析結果は Saint-Venant の原理より右端の影響がほとんどないとおもわれる最終幅の 3 倍の地点における幅方向の節点の値が用いられている (図 10 参照)。

フィルムを剛塑性と仮定した場合における幅方向の中央部 A と端部 F における延伸前後の厚み変化を図 11 に示す。なお Beginning と End は、その地点における延伸開始点と延伸終了点を示す。フィルムを弾塑性体と仮定した時もほぼ同様の結果となった。この結果から分かるとおり、中央部とチャック付近では違った傾向を示している。中央部とチャック付近で延伸が交互に推移しているのがわかる。実際のテンター内ではフィルム厚み分布の推移を知ることはできないので、非常に貴重な解析結果といえる。

図 11 と同じ条件で相当塑性ひずみの解析結果を図 12 に示す。相当塑性ひずみを見ることでフィルムのどの部分が延伸しているかを見ることができる。大きな流れとしてフィルムの延伸は中央部、チャック部、中央部、チャック部の順に推移しているのがわかる。ごく初期においてはチャック部分が延伸されているが、本報告の解析対象の PET では剛性が高いためすぐに中央部に延伸が移っている。延伸されている部分の剛性が高くなると剛性が低い部分に延伸が移ることを繰り返しているのがわかった。図 13 に解析における最終フィルム厚みと実験におけるものの比較を行った。なお、実験データはトリミングが行われたため、端のデータはない。フィルムを弾塑性、剛塑性と仮定したそれぞれの場合においても実際のフィルム厚みムラとほぼ同様の傾向をしているのがわかる。弾塑性と剛塑性の

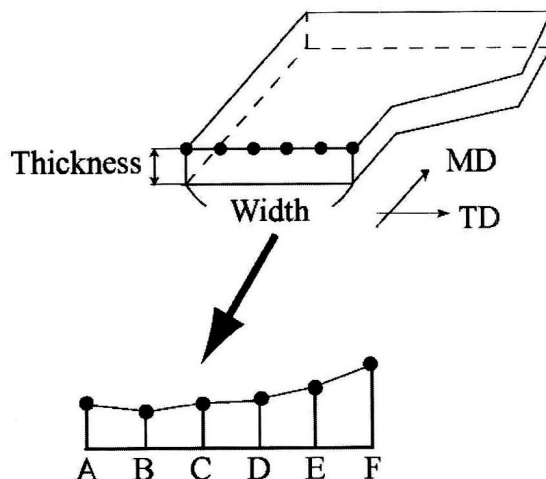


Fig. 8 Expression of initial thickness distribution for FEA

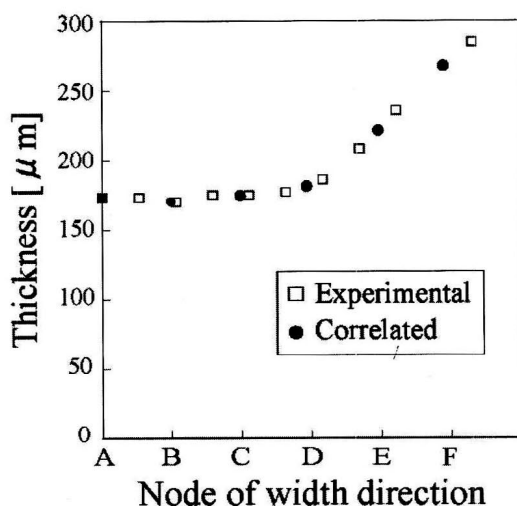


Fig. 9 Comparison between experiment and calculation before TD stretching

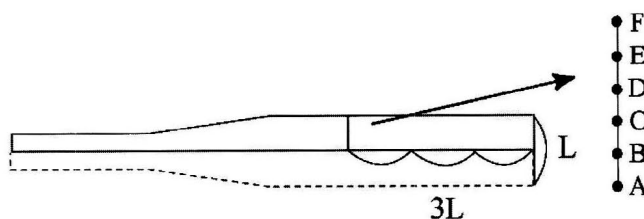


Fig. 10 Points of having extracted data

比較としてはフィルムの端部 (F 点) で少しの差があるものの、ほとんど差がない結果となった。これは弾塑性の近似において弾性の領域が少なかったことによると思われる。すなわち、高分子フィルムの多くは本研究で用いられた PET フィルムと同様に弾性領域が極めて狭く、本研究のような大変形を伴う延伸工程でのフィルム厚み解析には、解の収束性等に問題のある弾塑性解析を用いなくても、比較的安定して解の得られやすい剛塑性解析で、十分な精度の予測が可能であるということを示唆している。ここで、トリミングされない部分である図 13 の A~D の部分に注目してみる。この部分が製品として巻き取られるわけであり、最も重要な部分である。この部分からわかることは厚

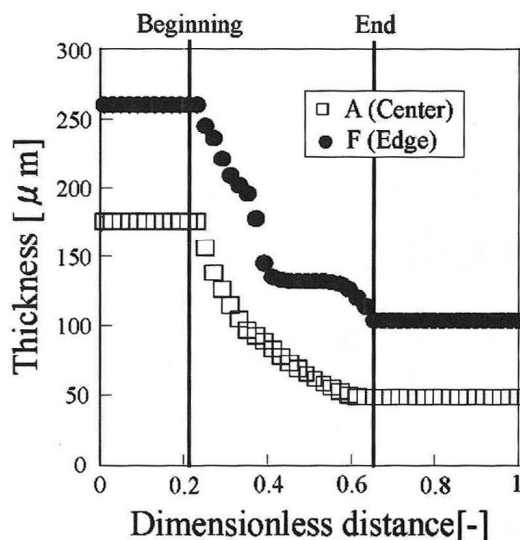


Fig. 11 Change of thickness in width direction

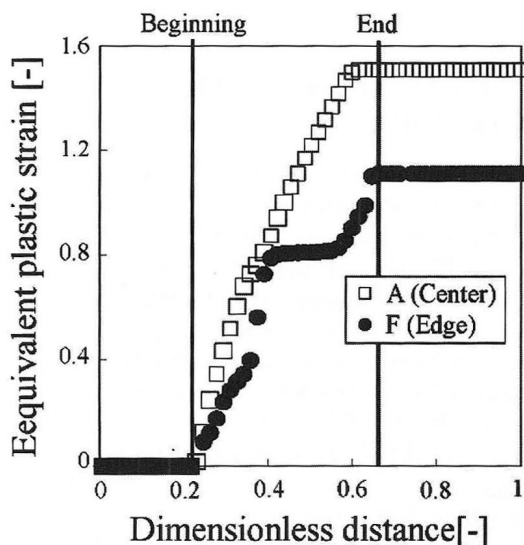


Fig. 12 Change of equivalent plastic strain in width direction

み約 50  $\mu\text{m}$  の付近においても傾向、値ともに非常に良い一致がみられることである。

## 5. 結 言

本報告では、実験に使用したフィルムの TD 延伸前の幅方向の初期厚み分布を考慮し、フィルムを弾塑性体または剛塑性体と仮定し解析を行って、以下の知見を得た。

TD 延伸終了後の幅方向のフィルム厚み分布の解析結果は弾塑性体または剛塑性体と仮定したいずれの場合においても、実験結果と非常に良い一致を示し、これらの構成則がフィルム厚み解析に使用できることを確認した。

また、ブラックボックスと呼ばれているテンター内でフィルムがどのような厚み推移をしているかはわからない。しかし、本報告の解析対象においてフィルムがどのような厚み変化をしているかを解析によって再現した。解析結果

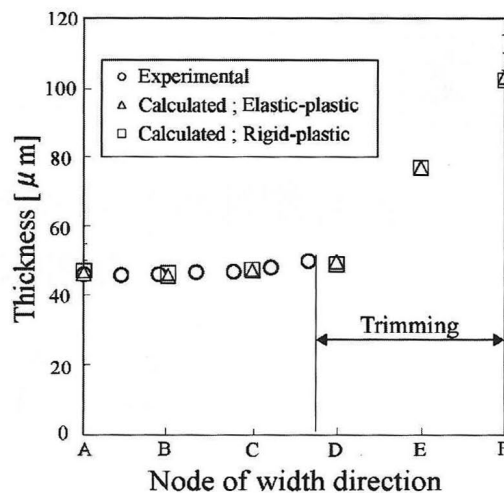


Fig. 13 Comparison between experiment and calculation after TD stretching

によると、延伸部分において中心部とチャック部に交互に延伸が推移していく様子が見られた。

これまで、フィルムを剛塑性体としてフィルムの厚み解析を行った例はなかったが、フィルムを弾塑性体としても厚み解析を行えることが明らかとなった。即ち、フィルムの厚み解析のような分子の方向性が重要でない解析には、剛塑性体として扱うことにより、延伸工程のような大変形を伴い弾塑性解析では解が不安定になり収束しにくくなる系に対しては、剛塑性体解析が有効であるといえる。

## 謝 辞

この研究を進めるにあたり、フィルムの引張試験データ提供に御協力いただきました(株)東レの合田亘氏に深く感謝致します。

## 参 考 文 献

- 1) 野々村千里, 山田敏郎, 松尾達樹: 成形加工, 4(5), 312 (1992)
- 2) 野々村千里, 山田敏郎: 成形加工, 5(10), 703(1993)
- 3) Yamada, T. and Nonomura, C.: *J. Appl. Polym. Sci.*, 48(8), 1399(1993)
- 4) Yamada, T. and Nonomura, C and Matsuo, T.: *J. Appl. Polym. Sci.*, 52(10), 1393(1994)
- 5) Yamada, T. and Nonomura, C and Matsuo, T.: *Intern. Polym. Process.*, X(4), 334(1995)
- 6) Yamada, T., Nasu, Y. and Iwasaki, T.: PPS-19, Melbourne, Paper Filed in CD-ROM, 1(2003.7)
- 7) 那須礼学: 学位論文 (修士論文; 金沢大学), 155, 168 (2003)
- 8) 日本塑性加工学会編: 非線形有限要素法—改訂版 (1994), コロナ社
- 9) 三好俊郎: 有限要素法入門—線形弾性解析から塑性加工解析まで (1994), 培風館