

# ポリエチレン押出ラミネート加工の技術開発とシミュレーション

住友化学(株) 石油化学品研究所  
森川 誠  
榭谷 泰士  
樹脂開発センター  
城本 征治

## Development and Simulation of Extrusion Lamination Process with Polyethylene

Sumitomo Chemical Co., Ltd.  
Petrochemicals Research Laboratory  
Makoto MORIKAWA  
Yasushi MASUTANI  
Plastics Technical Center  
Seiji SHIROMOTO

Extrusion lamination is one of the techniques used for laminating different materials, and is widely used as the manufacturing process for packaging films for products such as foods, cosmetics and pharmaceutical products in order to obtain improved film properties such as gas barrier, heat sealing and film strength.

Autoclave-type high-pressure low-density polyethylene (PE-HPLD) is generally used in extrusion lamination applications because of its good neck-in property. Recently, however, the packaging industry has desired reductions in the volume of materials and high-speed processing. Therefore, plastic resins with good draw down properties are needed. Sumitomo Chemical Co., Ltd. has developed a tubular-type PE-HPLD which exhibits a good balance of neck-in and draw down properties, although neck-in and draw down properties have a trade-off relation.

In this article we investigated the effects of shapes of deckles, and setting positions of deckles and rods on extrusion processing properties. As a result, we made their relations clear.

Furthermore, we also carried out a viscoelastic simulation of the extrusion lamination process using computer aided engineering developed by Sumitomo Chemical Co., Ltd. The simulation could predict the neck-in phenomenon and thickness distribution for extruded PE-HPLD.

## はじめに

世の中に流通している包装・容器は、ガラスビン、アルミ缶、洗剤容器、ギフト用包装紙、食品包装用フィルム等、非常に広範囲に渡る。'07年の統計では、包装・容器トータルで6.2兆円に達する<sup>1)</sup>。本稿のテーマである押出ラミネートによる加工法は、紙製品およびプラスチック製品の一翼を担うものである。紙にポリエチレン(PE)を押出ラミネートすることで牛乳パックのような耐水性の紙製品となり、延伸ナイロンフィルム(ONy)およびバリアフィルムなどにPEを押出ラミネートすることで種々の食品包装フィルムのようなプラスチック製品となる。

## ポリエチレン(PE)について

### 1. PEの分類

PE ( $-(CH_2-CH_2)_n-$ ) は、エチレン ( $CH_2=CH_2$ ) を重合することで生産され、半透明もしくは乳白色のプラスチックである。JIS K6922-1では、PEは密度( $d$ )の違いによって分類され、高密度PE(PE-HD) ( $d > 942\text{kg/m}^3$ )、中密度PE(PE-MD) ( $942 > d > 930$ )、低密度PE(PE-LD) ( $930 > d > 910$ )と定められている。

また、PE-LDは、製造方法の違いによって、(i)高温高圧下(200~300、100~300MPa)でラジカル重合を行う高圧法PE-LD(PE-HPLD)および、(ii)

Ziegler 触媒や Metallocene 触媒を用いエチレンと  $\alpha$ -オレフィンを共重合させる直鎖状 PE-LD (PE-LLD) に分類できる。PE-HPLD は成形加工性に優れるが、製品の機械強度等の物性が弱く、PE-LLD は逆に物性に優れるものの加工性が悪い傾向にある。

最近では、当社より PE-HPLD の易加工性と PE-LLD の強度を併せ持つ易加工性 PE (EPPE) (商標名: SUMIKATHENE®EP および EXCELLEN®GMH®) が、上市されている<sup>2)</sup>。

なお、本稿におけるプラスチックの略号については JIS K6899-1:2006 に準じた (例: 従来、低密度ポリエチレンの略号は、LDPE が一般的であったが、JIS で定めるところの PE-LD とした)。

## 2. PE の市場

石油化学工業協会の統計<sup>3)</sup>によれば、PE は日本国内の出荷量が年間 2,547 千 t ('07 年度) である最も汎用的なプラスチックである。そのうち PE-LD は 1,580 千 t であり、用途としてはフィルム、押出ラミネート (加工紙) 射出成形、電線被覆、中空成形、パイプなど多岐にわたる (Fig. 1)。押出ラミネートのようにネックインなどの加工性を重視する用途においては、PE-HPLD が主として使用されている。

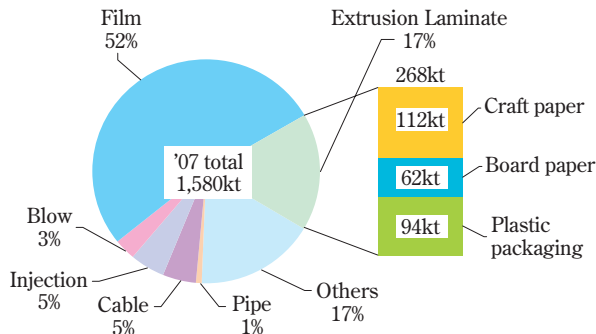


Fig. 1 Shipment according to application (HPLD and LLD) [Data from reference 3)]

## 3. PE-HPLD の製造プロセスと分子構造<sup>4)-10)</sup>

PE-HPLD は、高温高圧下でラジカル重合させることで生産されるが、反応器の形状によって、オートクレーブ (AC) 型 (槽型もしくはベッセル型とも呼ばれる) およびチューブラー (TB) 型 (管型とも呼ばれる) に大別できる。

AC 型は反応槽内で重合を行うもので、槽内の攪拌翼で溶融 PE を攪拌することで、槽内を均一に保つことが可能である。しかし、TB 型と比較して、反応器内部の表面積が小さいため、除熱しにくい。

一方、TB 型は、直径 25 ~ 50mm、全長 1 ~ 数 km のチューブ状の反応器中で重合を行うもので、チューブ

内で重合された PE は、入口と出口の圧力差で排出される。AC 型と比較して、反応器内部の表面積が大きいため、除熱しやすい。

PE-HPLD の分子構造は、複雑な長鎖分岐構造にその特徴がある。長鎖分岐度は、重合条件によって異なり、高圧・低温ほど少ない。また、反応器の形状によって、生成される PE の分子構造が異なる。AC 型では、反応槽内で強く攪拌されるので、ポリマー、ラジカル開始剤、成長ラジカル末端の接触する確率が高いため、連鎖移動が起きやすく、TB 型と比較して長鎖分岐が多くなる。両方法により製造された PE の分子量分布の比較を Fig. 2 に示す。

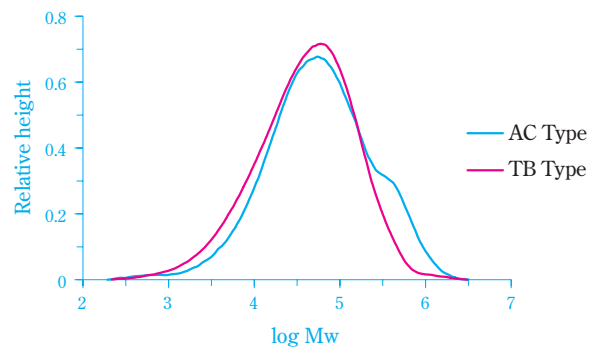


Fig. 2 Molecular weight distribution of PE-LD (AC and TB type)

## 4. PE-LD の代表特性値

### (1) 密度 ( $d$ ) (単位: $\text{kg}/\text{m}^3$ )

$d$  は、樹脂の結晶化度の尺度であり、この値が大きい程、結晶化度が高く、主として製品物性に影響する。例えば、 $d$  が高いと剛性が高くなりフィルムに加工した場合“腰”が出て、耐熱性が向上する。一方、 $d$  が低いと伸びやすく、弾力性に富み衝撃に強くなる。

### (2) メルトフローレート ( $MFR$ ) (単位: $\text{g}/10\text{min}$ )

PE の  $MFR$  は、190 に加熱したシリンダー内に、サンプルを入れ、ピストンの上に 21.18N のおもりを載せ、10min 間にキャピラリーダイから出る樹脂の重さを測定することで得られる。

$MFR$  は、分子量の尺度であり、この値が大きいほど分子量が小さく、加工性および製品物性に影響する。例えば、 $MFR$  が大きいと熔融粘度が低くなり高速加工に適するが、分子量が低いとためフィルムの衝撃強度が悪くなる。

### (3) スウェルレシオ ( $SR$ ) (単位: 無次元)

$SR$  は、 $MFR$  測定時、キャピラリーダイから出てきたストランド状の PE の最大直径をダイ径で除した値である。

SRは、溶融弾性（分岐度）の尺度であり、この値が大きいく程、弾性が大きく（分岐度が高い）加工性および製品物性に影響する。例えば、SRが大きいく程、Tダイキャストフィルム製膜時ネックインが小さく良好になるが、フィルムは不透明になる。

### 5. 押出ラミネート用PEグレード

押出ラミネート法による積層体が生産され始めた1960年代は、加工速度はあまり速くなく（80m/min）、ネックインが小さいことが押出ラミネート用グレードへの要求物性であった。

ネックインを小さくするには、溶融弾性が高い方が有利であり、TB型よりもAC型PE-HPLDが用いられている。これは、AC型の方が長鎖分岐が多く、高分子量成分が多いことで、樹脂の溶融弾性が大きくなるためである。

また、同じAC型PE-HPLDでも、(i)MFRを小さくする、(ii)SRを大きくすることでネックインを小さくできる。

その後、加工速度が速い押出ラミネーターが開発され、徐々に高速化に対応した樹脂が望まれるようになった。そこで、分子量分布等を調整することで、高速化に対応したグレード開発を行ってきた。

さらに近年になって、原料のコスト高等と相まって、ダウンゲージ化や生産性の向上が求められてきている。ダウンゲージ化や生産性の向上（さらなる高速化）には、ドロダウン性に優れた樹脂を使用する必要がある。そこで当社では、これまでのAC型よりもドロダウン性に優れたTB型PE-LDを押出ラミネート用にグレード化した。しかし、ドロダウン性が向上するとネックインは大きくなることから、加工条件的にエッジビードを抑える必要がある。

そこで、次章において、押出ラミネート加工について簡単に説明したのち、各種PEを用いて、加工条件を変更したときのネックインやエッジビード等に与える影響についてまとめる。

## 押出ラミネートについて

### 1. ラミネートとは

ラミネートとは、プラスチックフィルム、紙、アルミ箔（AL）などを何層か積み重ねることを意味する。異種の材料を積層することによって、各々の材料の長所を生かし、短所を補うことができる。

お茶包装用材料（構成：紙/AL/ONy/PEシーラントの4種の材料が積層）を例にとるとそれぞれの材料は、次のような特徴がある。

- ・紙：意匠性に優れるが、バリア性なし、強度不足
- ・AL：水分・ガスバリア性が優れるが、皺が寄りや

すく、簡単に破れる

- ・ONy：強度に優れる
  - ・PEシーラント：ヒートシール性付与
- これらを積層することで、意匠性、防湿性、強度に優れ、ヒートシール性を備えた包装用材料を作ることができる。

ラミネートを行う方法には種々あるが、代表的なものは、押出ラミネート法とドライラミネート法である。その他には、ウェットラミネート法、サーマルラミネート法、ホットメルトラミネート法などが挙げられる。

押出ラミネート法は、Tダイより溶融樹脂をフィルム状に押し出し、基材と貼合する方法である（Fig. 3）。溶融樹脂がPEの場合、加工温度は300～330程度である。基材との接着は、Tダイより押し出され基材と貼合されるまでの間（エアギャップ）に空气中に曝されることによってPEが酸化されることで発現する。基材がポリエチレンテレフタレート（PET）やONy等のプラスチックフィルムの場合、基材とPE間の接着強度を高めるためAnchor Coat（AC）剤が塗布される。また、基材が紙の場合は、AC剤の塗布工程はなく、溶融PEが紙の繊維中に喰い込むこと（アンカー効果）で接着強度が高くなる。

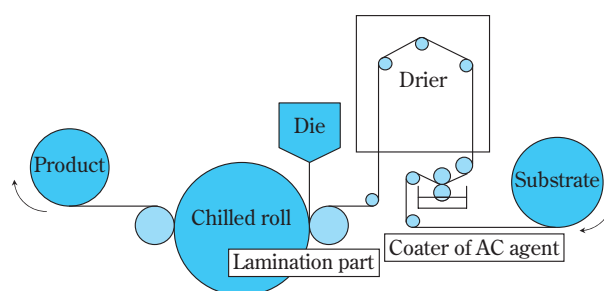


Fig. 3 Diagram of Extrusion lamination

一方、ドライラミネート法は、一方の材料に接着剤を塗布し、接着剤中の溶剤を乾燥後、他方の材料と貼合する方法である。

### 2. 押出ラミネート加工における要求特性<sup>11)</sup>

#### (1) ネックイン

ネックインとは、Tダイより押し出されたフィルム状の溶融PEが、Tダイ出口の幅よりも狭くなる現象である。溶融PEの弾性の大きさによりネックインの大きさは変化する。また、フィルムの両端部は、狭くなった分のPEが集中することから、中央部分と比較して厚くなり、この部分はエッジビードと呼ばれる。ネックインが大きいく程、エッジビードは大きくなる（Fig. 4）。

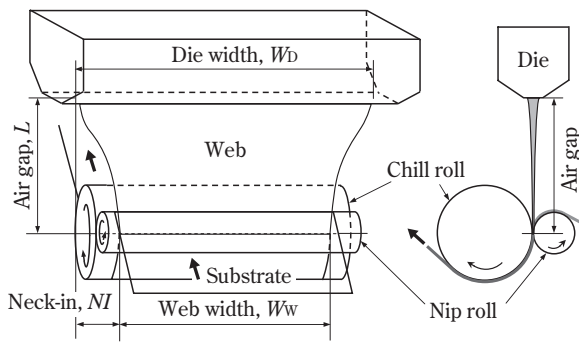


Fig. 4 Diagram of flat die laminate process

有効となる製品幅が広くなり、ロスが小さくなることから、ネックインは小さいことが望ましい。ネックインは、(i)樹脂の選択の他、加工条件的には(ii)加工温度を下げる、(iii)加工速度を上げる、(iv)エアギャップ(Tダイ下端からラミネート部までの距離)を小さくする、ことでも小さくできる。また、エッジビードに対しては、その部分をトリミングして取り除くか、エッジビードの高さをフラットにする対策が取られる。トリミングは、トリミングされる部分がロスとなるため、大きくなることは好ましくない。エッジビードの高さは、Tダイ内に設置したディッケルの形状や位置、ロッドの位置を調整することで、両端の樹脂厚みをフラットにすることができる(後述)。

### (2) ドローダウン性

押出ラミネート加工において、基材がプラスチックフィルムの場合、AC剤を塗布する必要があり、この工程が律速となるので、加工速度は最高200m/min程度であるが、基材が紙の場合は、AC剤塗布工程が必要ないので、加工速度は500m/minを超えることもある。

ドローダウン性は、加工が可能な最高速度で評価する。加工速度を徐々に上げていくと溶融PEの端部が切れて加工できなくなる。ドローダウン性は、(i)樹脂の選択の他、(ii)加工温度を上げることで改善できる。また、ドローダウン性が良好な程、溶融樹脂の厚みを薄くすることができる。

なお、ネックインとドローダウン性は、トレードオフの関係にある。

### (3) その他

その他に要求される特性としては、ラミネート強度、ヒートシール性・ホットタック性、低臭気・味覚性、機械物性、樹脂交換適性などが挙げられる。

### 3. 最近の取組み

コストダウンの要求から、薄膜(ダウンゲージ)

化および加工速度アップによる生産性の向上が要望されてきた。

加工機メーカーでは、製膜精度の向上や加工速度アップ時の加工安定性等の改良が行われている。

当社においても、ダウンゲージ化や加工速度アップが可能となる樹脂の開発を進めてきている。また、合わせて開発した樹脂を適切に使用していただけるよう加工条件の検討も進めている。

次に、実際に加工条件を種々変更し、加工したときの影響について述べる。

### 押出ラミネート加工性に及ぼす加工条件の影響

#### 1. テスト用押出ラミネーター

押出ラミネート加工性の評価は、住友重機械モダン(株)製の共押出ラミネーター(スクルー径: 65mm × 2基)を用いた。このTダイは、両端部にインナーディッケルを2枚ずつそなえ、かつこれらインナーディッケルの下流側にロッドが設置されている(Fig. 5)。他のタイプ(三角ロッドタイプ、全幅埋込ディッケルタイプなど)と比べて、インナーディッケルを二段に設けていることで、押出された樹脂端部の厚み調整の範囲が広いことが最大の特徴である<sup>12)</sup>。

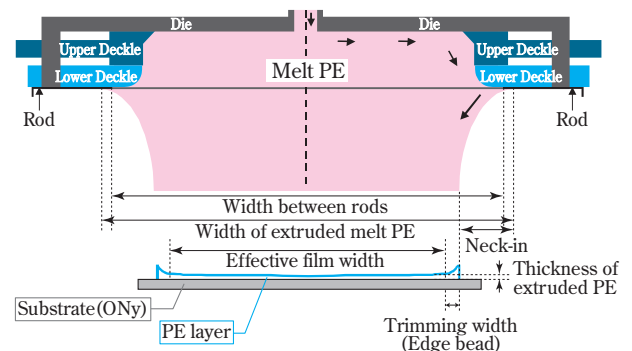


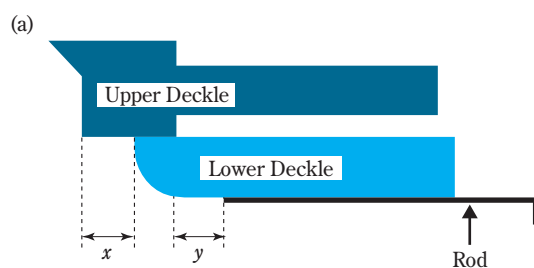
Fig. 5 Schematic diagram of flat die used in this article

#### 2. 加工条件

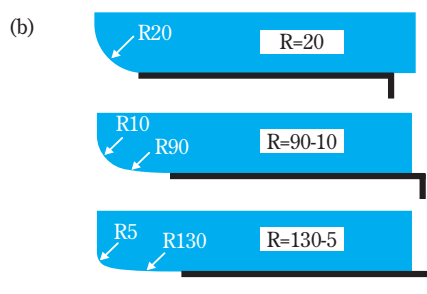
溶融押出しする樹脂には、押出ラミネート用AC型PE-HPLD (AC-1) および比較のため一般的なフィルム用TB型PE-HPLD (TB-1) を用いた。

Fig. 6 (a) に示すように、Tダイにおける上部ディッケルと下部ディッケルとの距離 $x$ が0 ~ 50mmの範囲で、かつ下部ディッケルとロッドとの距離 $y$ が0 ~ 60mmの範囲で検討を行った。

また、ディッケル先端部の形状の異なる3種類のディッケル(R=20、R=90-10、R=130-5の3種)を使用し、ディッケル形状の影響を検討した(Fig. 6 (b))。

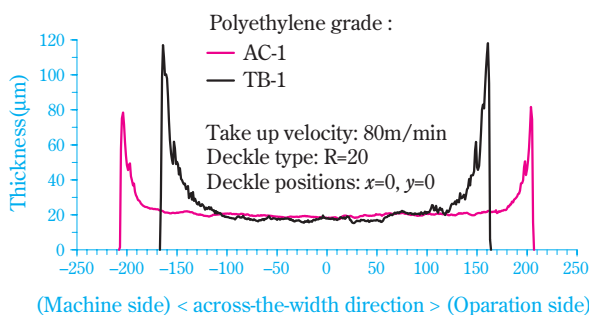


**Fig. 6** (a) Deckle positions in flat die  
(b) Schematic illustration of deckles



### 3. 樹脂種の影響 (Fig. 7)

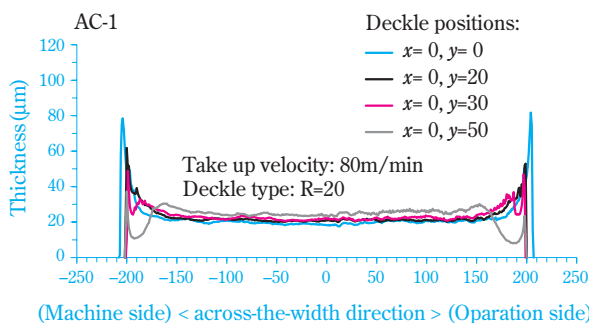
AC型PE-HPLDは、TB型PE-HPLDと比較してネックインが小さくなった。また、エッジビードは低く、幅が狭くなった。一方、TB型PE-HPLDは、ネックインが大きいことから端部の樹脂が集中し、エッジビードは高く、幅が広くなり、有効フィルム幅は狭くなった。これは、樹脂の製造方法の違いによる分子構造の違いに由来していると考えられる。



**Fig. 7** Thickness distribution of extruded AC-type and TB-type PE-HPLD resins

### 4. ディッケル位置の影響 (Fig. 8)

ロッド間幅 (Fig. 5のWidth between rods) を一定にして、ディッケルの位置を内側に押込み、Fig. 6 (a)

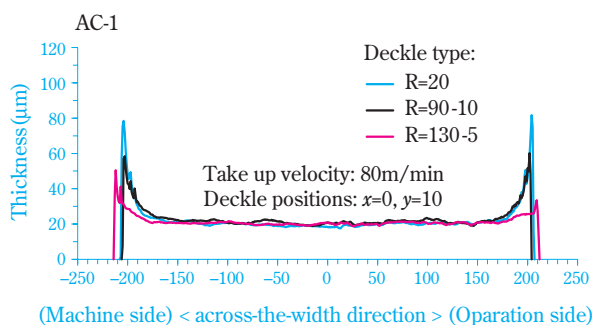


**Fig. 8** Effects of deckle positions ( $x, y$ ) on thickness distribution of extruded AC-type PE-HPLD

の $y$ の値を大きくする程、エッジビードの高さが低く、幅が狭くなった。ディッケルをある一定量以上押込むと (この例では50mm)、フィルムの外側が引っ張られ過ぎて、非常に薄くなる。したがって、Fig. 8においては、 $y = 30\text{mm}$ 程度が最適条件であると考えられる。

### 5. ディッケル形状の影響 (Fig. 9)

ディッケル形状によって、熔融樹脂のウェブ形状が変化し、より幅方向外側までRがつく形状の方が、ネックインが小さく、またエッジビードの高さが低く幅が狭い傾向にある。樹脂にAC-1を用い、320、80m/minで加工した場合は、R130-5ディッケルが最適であった。



**Fig. 9** Effects of deckle types on thickness distribution of extruded AC-type PE-HPLD

最適な形状のディッケルを用い、加工速度、樹脂温度等を組み合わせ、使用する樹脂の最適な加工条件を見いだすことで、全幅フラットな製品を得ることが可能となる。

### 6. 押出ラミネート用TB型PEの開発

#### (1) 開発経緯

近年のダウンゲージ化および生産性の向上といった市場ニーズに対しては、従来のAC型PE-LDPEよりもドロダウニング性に優れたTB型PE-HPLDが適してい

ると考えられる。そこで、ドロダウニング性を確保しつつ、ネックインを抑えた押出ラミネート用TB型PE-HPLDグレード(TB-New)を開発した。ドロダウニング性を確保することで、ダウンゲージ化および高速加工性が可能となる。

(2) ネックインの改良効果 (Table 1)

TB-Newは、従来のTB型PE-HPLD (TB-1) と比べて大幅にネックインが改良されていることがわかる。しかしながらAC型PE-HPLD (AC-1) と比較するとややネックインが大きい。ネックインはTable 1に示すようにエアギャップを縮めると小さくなり、一般的に用いられているシングルダイスのエアギャップが100mm前後であることから、特に問題ないレベルであると考えられる。なお、本件については、次章にてCAE (Computer Aided Engineering) 技術による押出ラミネート加工のシミュレーションを行い、実証していく。

**Table 1** Extrusion processing properties of PE-HPLD

Type	Grade	Air gap <sup>(*)</sup> (mm)	Neck-in <sup>(*)</sup> (mm)	Draw down (m/min)
AC	AC-1	160	35	300
		160	45	> 400
TB	TB-New	190	56	> 400
		220	68	> 400
	TB-1	160	63	> 400

(\*) Take up velocity: 190m/min

(3) ダウンゲージ化と高速加工性

ダウンゲージ化の検討においては、Tダイから押出された溶融ウェブ端部の耳揺れ現象(Edge oscillation)および耳切れ現象 (Edge breaking) が問題となることが知られている<sup>13)</sup>。耳揺れ現象とは加工時、溶融ウェブ端部の位置が不規則に変化する現象である。変化の幅で評価し、この値が大きい程加工が不安定である。これらの現象が問題とならない条件で、ダウンゲージ化を検討することとなる。Table 2は、平

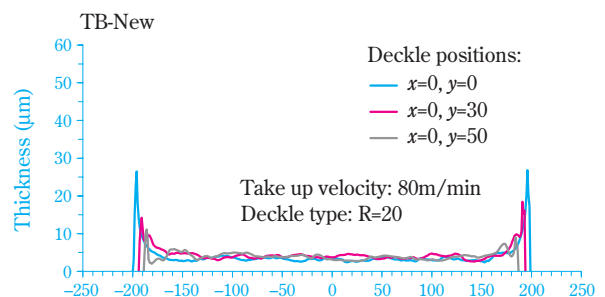
**Table 2** Effects of deckle positions (x, y) on edge oscillation and edge breaking of TB-New

		Deckle positions								
		0	0	0	30	30	30	50	50	
x	mm	0	0	0	30	30	30	50	50	
y	mm	0	30	50	0	30	50	30	50	
Edge oscillation	mm	3	4	25	10	7	27	41	38	
Edge breaking <sup>(*)</sup>	(—)	N	N	N	N	N	N	Y	Y	

(\*) Y: edge break, N: not edge break

均樹脂厚み3.3 $\mu$ mとしてTB-Newを押出ラミネートした場合の耳揺れおよび耳切れの結果をまとめたものである。ディッケル位置を変更することにより、耳揺れおよび耳切れは大きく影響を受ける。これらの位置を最適化することにより、問題を解消することができる。また、エッジビードの影響について検討した結果をFig. 10に示す。平均樹脂厚み3.3 $\mu$ mとしてTB-Newを押出ラミネートした場合の厚み分布測定の一例であるが、エッジビードについても、ディッケル位置を最適化することで、実用上問題のないレベルまで調整可能であることがわかる。

一方、Table 1に示すように高速加工性については、実用上問題なく、400m/min以上で加工可能である。



(Machine side) < across-the-width direction > (Operation side)

**Fig. 10** Effects of deckle position (x, y) on thickness distribution of extruded TB-New

加工シミュレーション

1. シミュレーションの技術動向

押出ラミネート加工やキャストフィルム加工では、加工機内だけでなくエアギャップにおける熱流動が、加工性、製品物性に対して重要となる。エアギャップにおける流動状態を調べるために、これまで多くの実験やシミュレーションが行われてきた。ここではいくつかの代表的な研究例を紹介する。

エアギャップにおけるウェブの厚さは幅に対して十分小さく無視できるため、厚さ方向への物理量を平均化した、擬三次元計算が行われてきた<sup>14)-17)</sup>。Sakakiら<sup>18)</sup>はNewton流体を用いて、はじめて三次元

計算を行った。計算結果は高密度ポリエチレンを用いたキャストフィルム加工の実験値と良好に一致することが確認された。その後、Satohら<sup>19)</sup>は従来の擬三次元計算を行い、三次元計算結果<sup>18)</sup>と良好に一致することを確認した。

本章では当社の押出ラミネート加工用PE-HPLDを用いたシミュレーションについて報告する。実験値との比較を行い、樹脂と加工条件のネックインおよびエッジビードへの影響を調べた。また、ネックインの発生機構についても検討した。

## 2. 押出ラミネート加工のシミュレーション

### (1) シミュレーション方法

有限要素法に基づいたソフトウェア“Polyflow”(ANSYS Inc.)を用いて、非等温粘弾性流動シミュレーションを行った。流体モデルには粘弾性流体である指数型のPhan-Thien/Tannerモデル<sup>20)</sup>を用いた。粘弾性の温度依存性にはArrhenius則を用いた。試料としてAC-1、TB-New、およびTB-1を用いた。TB-Newの130における粘弾性をFig. 11に示す。

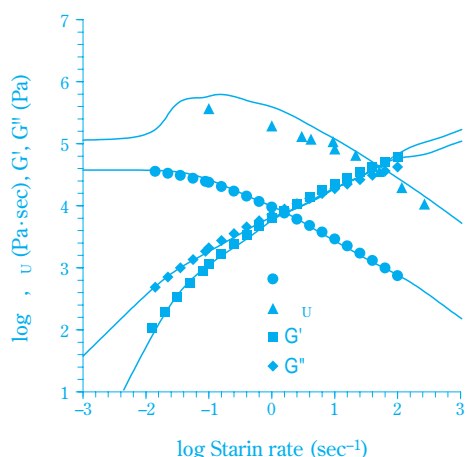


Fig. 11 Viscoelasticity of TB-New at 130°C

### (2) シミュレーションの検証

シミュレーションにより得られたウェブ形状を実験値と比較した。引取速度が120m/min、エアギャップが160mmにおけるウェブ形状をFig. 12(a)に示す。実験におけるウェブ形状は観察写真から定量化した。エアギャップ下側のウェブはニップロールに隠れて観察できなかった。ウェブ下端の幅は製品のコート幅から測定した。シミュレーションによるウェブ形状の予測はどの樹脂とも実験値と概ね一致した。樹脂がTB-Newでエアギャップが異なる場合のウェブ形状をFig. 12(b)に示す。この場合もシミュレーションと実験値は良好に一致した。このように、本シミュレーションの妥当性が定量的に確認された。

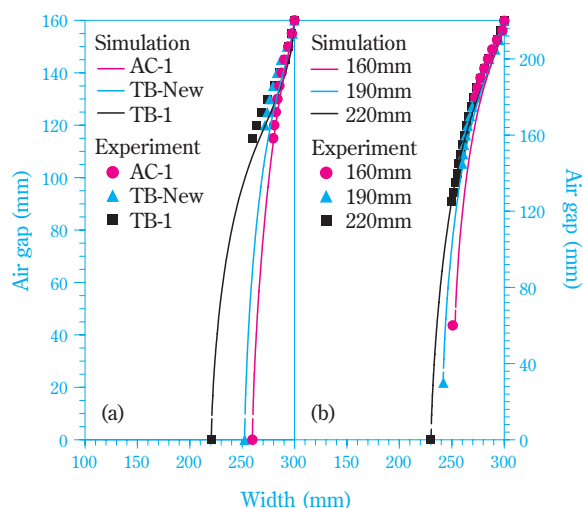


Fig. 12 (a) Comparison of the web shapes at different materials  
(b) Web shapes for TB-New at different take up velocity

### (3) 樹脂、加工条件の影響

樹脂、加工条件がネックインおよびエッジビードに及ぼす影響を調べた。各樹脂のネックインと引取速度の関係をFig. 13に示す。調べた範囲内では、ネックインはAC-1が最も小さく、TB-1が最も大きかった。AC-1のMFRは最も高いことより、MFRがネックインに関する本質的な因子ではないことが分かる。ネックインの小さな樹脂は加工速度依存性が弱く、ネックインが同等な引取速度範囲が広いことが分かる。

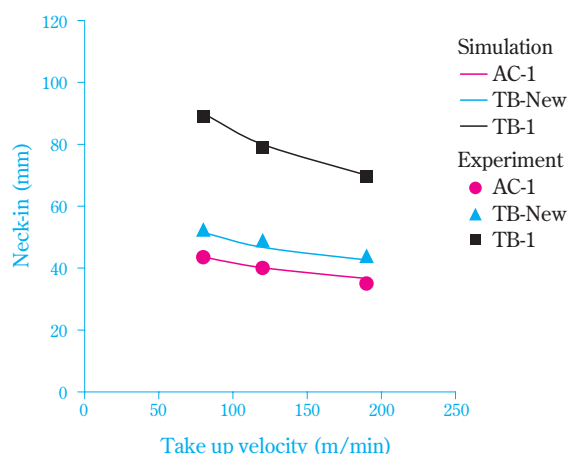


Fig. 13 Relationship between neck-in and take up velocity

引取速度が120m/minにおけるネックインとエアギャップの関係をFig. 14に示す。各樹脂のネックインはエアギャップに対してほぼ線形の関係であった。エアギャップが0mmの場合、ネックインも0mmになると予想される。

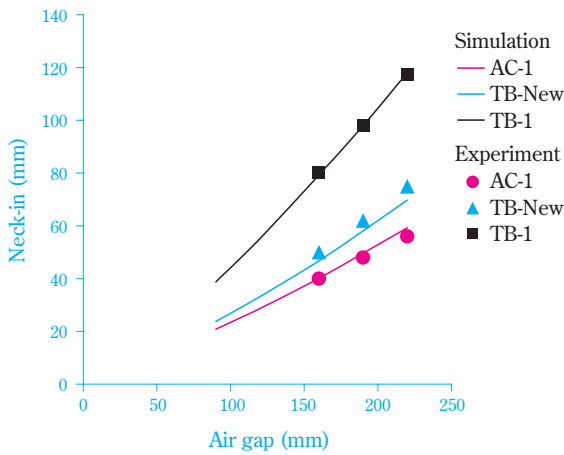


Fig. 14 Relationship between neck-in and air gap

前章で紹介したディッケル位置によるエッジビードの低減技術のシミュレーションを行った。最初にディッケル位置を変更したダイ内の三次元流動シミュレーションを行った。次にダイ出口における速度分布をウェブの入口境界条件として用いた。基準条件およびディッケル位置を変更した場合のコート厚さ分布をFig. 15に示す。ディッケル間隔を狭めることにより、ネックインが増加し、エッジビードが低下した。ロット間隔を80mm広げることにより、コート幅を変えることなくエッジビードを低減することができた ( $x = 50, y = 50-2$ )。

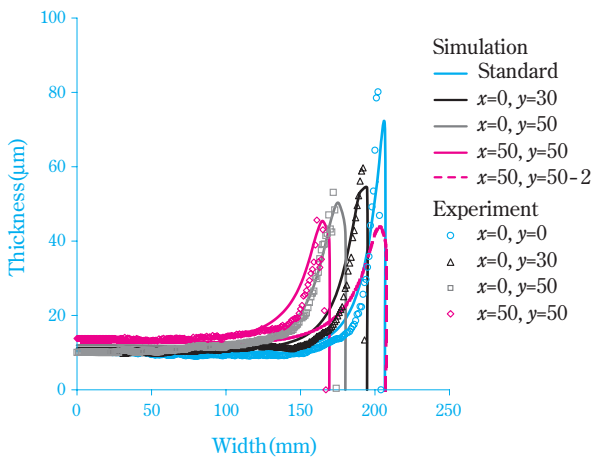


Fig. 15 Thickness distribution at various deckle positions

#### (4) ネックインの発生機構

ネックイン現象の発生機構を明らかにするために、エアギャップにおける流動状態を調べた。最初にウェブの変形様式について調べた。ウェブの流線をFig. 16に示す。ウェブの中央側は流線が平行であるため、幅が一定で厚さのみ変化することがわかる。一方、

端部はロールに向かって流線間隔が狭くなった。ウェブの最終厚さとドロー比の関係を調べた結果、中央側は平面伸長変形し、端部は一軸伸長変形することが分かった。これを支持する報告も多い<sup>(21)–(24)</sup>。次に力学バランスについて調べた。ウェブの幅方向に働く力はバランスしていた。Canningら<sup>(22)</sup>もウェブの張力は幅方向に釣り合っていることを実験で確認した。

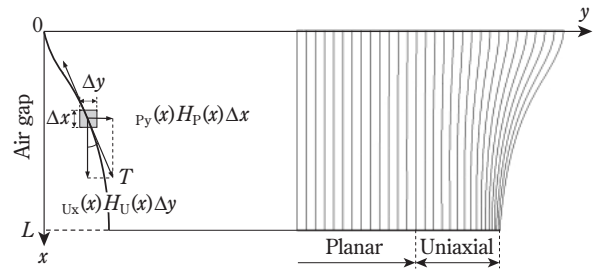


Fig. 16 Streamline of the web for TB-New at 120m/min,  $L=160\text{mm}$  (right side) and the neck-in model (left side)

ウェブの変形様式と力学バランスに基づいたネックインモデル<sup>(25)–(27)</sup>をFig. 16に示す。ウェブ端部における微小体積要素に働く力のバランスを考える。ウェブの接線と $x$ 軸とのなす角を $\theta$ 、張力を $T$ とすると、幅方向への力のバランスよりEq. 1を得る。

$$T \sin[\theta(x)] = P_y(x)H_P(x)\Delta x \quad (\text{Eq. 1})$$

引取方向へ張力が一定のためEq. 2が成立する。

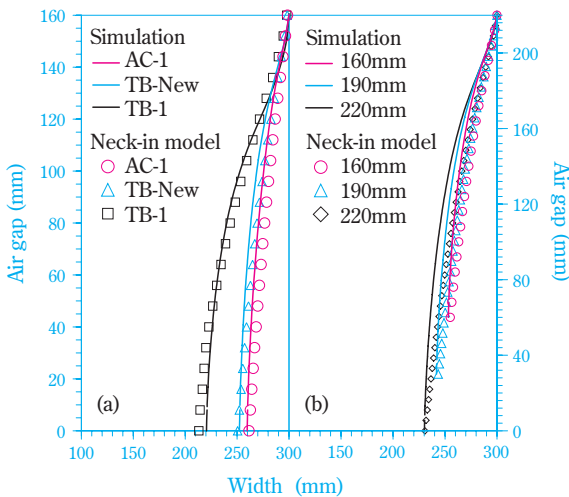
$$T \cos[\theta(x)] = U_x(x)H_U(x)\Delta y \quad (\text{Eq. 2})$$

ここで、 $P_y$ は中央部の幅方向への平面伸長応力を、 $H_P$ は中央部の厚さを、 $U_x$ は端部の引取方向への一軸伸長応力を、 $H_U$ は端部の厚さをそれぞれ表す。Eq. 1、Eq. 2を連立し、積分することによりウェブ形状 $y(x)$ が得られる。

$$y(x) = \left[ \int_0^L dx' \int_{x'}^L \frac{P_y(x'')H_P(x'')}{U_x(x'')H_U(x'')} dx'' \right]^{1/2} \quad (\text{Eq. 3})$$

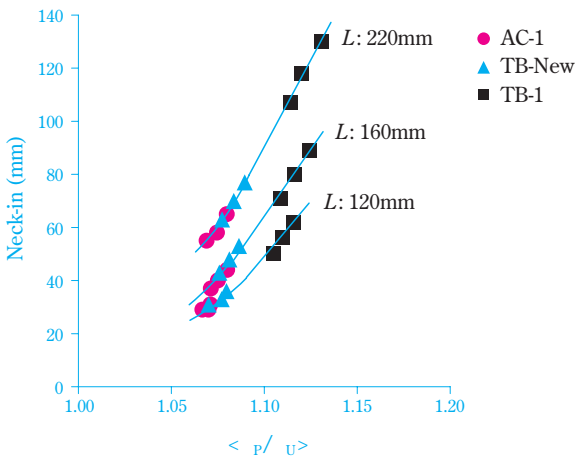
しかしながら、ウェブの応力、厚さは非線形で変化するため、Eq. 3の解析解が得られない。そこでシミュレーションにより得られたウェブの中央および端における応力と厚さをEq. 3に代入し、数値積分することによりウェブ形状 $y(x)$ を求めた。Fig. 17に示すように、ネックインモデルの予測は、シミュレーションと良好に一致、つまり実験値とも一致し、その妥当性が確認された。





**Fig. 17** (a) Comparison of the web shapes at various material  
(b) Web shapes for TB-New at different air gap

ウェブの中央と端部における歪み速度と厚さを考慮すると、Eq. 3よりネックインは一軸伸長粘度  $U$  と平面伸長粘度  $P$  の比に従うと導かれる。各PE-HPLDのネックインと  $\langle P/U \rangle$  の関係をFig. 18に示す。 $\langle P/U \rangle$  は  $10^{-3} \text{ sec}^{-1}$  から各条件における最高伸長速度の範囲で平均化した値である。これより、ネックインは一軸伸長と平面伸長粘度の比およびエアギャップに従うことが明らかとなった。



**Fig. 18** Relationship between neck-in and viscosity ratio  $\langle P/U \rangle$

おわりに

- ・高速加工性およびダウンゲージ化に対応した新規TB型PE-LDグレードを開発した
- ・加工条件を最適化することによってエッジビードをフラットに調整できることがわかった

・CAE技術を駆使してネックインモデルの予測を行い、実験値とよく一致することを確認した

引用文献

- 1) (社)日本包装技術協会, 包装技術, 46 (6), 3 (2008) .
- 2) 近成 謙三, 永松 龍弘, 住友化学, 2006-II, 12 (2006) .
- 3) 石油化学工業協会ホームページ, <http://www.jpca.or.jp/>
- 4) 白山 健三, 高分子化学, 28, 156 (1971) .
- 5) 白山 健三, 喜多 晋一郎, 高分子化学, 28, 161 (1971) .
- 6) 白山 健三, 岡田 隆行, 喜多 晋一郎, 高分子化学, 28, 167 (1971) .
- 7) 白山 健三, 喜多 晋一郎, 高分子化学, 28, 307 (1971) .
- 8) 白山 健三, 住友化学, 1968-I, 1 (1968) .
- 9) 石油化学工業協会編, “高圧法ポリエチレン技術史”, 石油化学工業協会 (1998), p.52など .
- 10) 細田 覚, “プラスチック・機能性高分子材料事典”, プラスチック・機能性高分子材料事典編集委員会編, 産業調査会 (2004), p.2 .
- 11) 松本 宏一, “誰でもわかるラミネーティング”, 加工技術研究会 (1998), p.100 .
- 12) 深野 勝則, コンバーテック, 22 (12), 30 (1994) .
- 13) 金井 俊孝, 船木 章, 繊維学会誌. 42, 31 (1986) .
- 14) S. D’Halewyn, J. F. Agassant, and Y. Demay, *Polym. Eng. Sci.*, **30**, 335 (1990) .
- 15) P. Barq, J. M. Haudin, and J. F. Agassant, *Intern. Polym. Processing*, **12**, 334(1992) .
- 16) S. Smith, and D. Stolle, *Polym. Eng. Sci.*, **40**, 1870(2000) .
- 17) C. Sollogoub, Y. Demay, and J. F. Agassant, *Intern. Polym. Processing*, **18**, 80 (2003) .
- 18) K. Sakaki, R. Katsumoto, T. Kajiwara, and K. Funatsu, *Polym. Eng. Sci.*, **36**, 1821 (1996) .
- 19) N. Satoh, H. Tomiyama, and T. Kajiwara, *Polym. Eng. Sci.*, **41**, 1564 (2001) .
- 20) N. Phan-Thien, *J. Rheol.* **22**, 259 (1978) .
- 21) T. Dobroth, and L. Erwin, *Polym. Eng. Sci.*, **26**, 462 (1986) .
- 22) K. Canning, and Co. A., *J. Plast. Film and Sheeting*, **16**, 188 (2000) .
- 23) H. Ito, M. Doi, T. Isaki, and M. Takeo, *Nihon Reoroji Gakkaishi*, **31**, 1573 (2003) .
- 24) T. Kajiwara, M. Yamamura, and T. Asahina, *Nihon Reoroji Gakkaishi*, **34**, 97 (2006) .
- 25) S. Shiromoto, Y. Masutani, M. Tsutsubuchi, Y.

Togawa, and T. Kajiwara, "Proceedings of The XVth International Congress on Rheology" (2008), p.212 .

26) 城本 征治, 榎谷 泰士, 筒淵 雅明, 東川 芳晃, 梶原

稔尚, 第20回高分子加工技術討論会要旨集, (2008), p.57 .

27) 城本 征治, 榎谷 泰士, 筒淵 雅明, 東川 芳晃, 梶原 稔尚, 成形加工シンポジア'08要旨集, (2008), p.73 .

PROFILE



森川 誠  
*Makoto MORIKAWA*  
住友化学株式会社  
石油化学品研究所  
主席研究員



城本 征治  
*Seiji SHIROMOTO*  
住友化学株式会社  
樹脂開発センター  
主席研究員  
博士(工学)



榎谷 泰士  
*Yasushi MASUTANI*  
住友化学株式会社  
石油化学品研究所  
研究員