

一般論文

# 溶着層の厚さのヒートシール強さへの 関与の定量的検証

菱沼一夫\*

## The quantitative verification of the involvement of the melting layer of the thickness to the heat sealing strength.

Kazuo HISHINUMA\*

熱溶着層（ヒートシーラント）が軟化・半溶融の状態では圧着されると、溶着面にミクロの“食い込み”が起こる。

この状態で冷却すると“食い込み”部分に摩擦接着が発生し、剥れシール（Peel Seal）となる。

他方、溶融温度より高温域で加熱されたヒートシーラントは液状となり相対するヒートシーラントは“混合状態”となる。

冷却されるとヒートシーラントが一体化するので、引っ張り応力によってエッジが切れる破れシール（Tear Seal）となる。

3 $\mu$ m程度のヒートシーラントでヒートシール強さが完全に完成しているので、ヒートシールはマイクロメートル以下のレベルで発現していることが予測される。

本研究はヒートシーラントとしてPP系のco-polymerを共押し出して形成した包装材料を使って Peel Seal領域でのヒートシーラントの厚さとヒートシール強さの発現の関係を溶着面温度をパラメータとして探求したものである。

キーワード：溶着面温度測定法、ヒートシール、剥れシール、破れシール、ヒートシーラント、ラミネーション強さ、コ・ポリマー

Micro “interlocking” is created at the welding plane, when the heat sealant is united firmly at the condition of half-melting.

The friction adhesion arises at “interlocking” part, when the heat sealant cools down in this condition, and Peel Seal is formed.

On the other hand, when the heat sealant is heated in high temperature range above its melting temperature, it becomes liquid state and the opposite sealant become “mixed state”.

In this condition, Tear Seal is appeared in which the edge breaks by the tension stress, because it is united by cooling.

It is estimated that the heat sealing has appeared by the level under the micro meter, because the heat sealing intensity has perfectly been completed in heat sealant of about 3 $\mu$ m.

This paper investigates the relationship between thickness of the heat sealant in the Peel Seal region and the heat sealing intensity at different melting surface temperature using packaging material of which the heat sealant is PP co-polymer base.

Keywords : “MTMS”, Heat Seal, Melting Surface Temperature, Peel Seal, Tear Seal, Heatsealant, Lamination Strength, Co-polymer

\*菱沼技術士事務所（〒212-0054 川崎市幸区小倉1232）:

HISHINUMA CONSULTING ENGINEER OFFICE 1232 Ogura Saiwai-Ward Kawasaki 212-0054, Japan

E-mail : RXP10620@nifty.ne.jp

## 1. 緒言

熱溶着（ヒートシール）は熱溶融する材料を接着面に相対させて加熱することによって成立する。

熱溶着はヒートシール線に引き裂き応力をかけたときに発生する剥がれ又は破れシールの2種に大別できる。熱溶着層（ヒートシーラント）が軟化／半溶融の状態では相対する溶着面が圧着されると、双方の溶着面にミクロの“食い込み”が起り、この状態で冷却すると“食い込み”部分に摩擦接着の剥がれシール（Peel Seal）が発生する。他方、溶融温度より高温域で加熱されたヒートシーラントは液状となり相対するヒートシーラントは“混合状態”となる。そして、冷却されるとヒートシーラントが一体化するので、引き裂き応力によって、ヒートシール線のエッジが

切れる破れシール（Tear Seal）となる。

熱溶着を適用して包装袋のヒートシールを行う場合には、一定応力で破断する Tear Seal ではピンホールや破袋が起りやすいので、ヒートシール線の微細部分に付加される集中応力を「剥がれ」による分散／消費できる Peel Seal の適用が好ましい。<sup>1)</sup>

Peel Seal の加熱／軟化状態では高分子の結晶構造間に食い込みが起っていると推定されるので接着性の発現はマイクロメートル以下のレベルが予測される。

本研究はヒートシーラントにPP系のco-polymerを共押し出しで形成した包装材料を使って Peel Seal 領域でのヒートシーラントの厚さとヒートシール強さの発現との関係を溶着面温度<sup>2)</sup> ベースで探求した結果を報告する。

## 2. 理論

ヒートシール強さの発現に関係する要素を材料特性と加熱操作から抽出すると表1のようになる。本研究ではこれらの要素の中から Peel Seal に着目して論ずる。

### 2.1 Co-polymer の Peel Seal の発現メカニズム

ポリプロピレンの重合過程でのエチレン等の添加による co-polymer の生成を利用した Peel Seal 温度帯の拡大の努力は古くから行われている。<sup>3)</sup> メタロセン触媒による co-polymer の改質はヒートシール性の改善に寄与している。<sup>4)</sup> PP 系の co-polymer のヒートシールの発現では、先ず低温域で PE 部位の溶融が始まる。加熱温度が上昇すると基材の溶融が発現するように設計されている。溶着面温度を±

Table 1 The element related to heat-sealing strength for excellent heat sealing management

<p><b>Kind of Common Elements:</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>- Heating (Melting Surface Temperature)</li> <li>- Heat Capacity (Heating Time)</li> </ul> <p><b>Material Characteristic:</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>-Kind of material, [Reactivity, Non-reactivity, Co-polymer, Mixed Material]</li> <li>- Polymerization [Non-polymerization Rate]</li> <li>- Heat Denaturizing [Radical Characteristic]</li> <li>- Peel Seal Temperature</li> <li>- Tear Seal Temperature</li> <li>- Rigidity [Pace of Expansion, Thickness]</li> </ul> <p><b>Material Composition:</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>- Thickness</li> <li>- Lamination Strength [The Difference of The Growth of Surface Material and Heat-sealant]</li> </ul> <p><b>Heating Operation:</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>- Heat-sealing Method</li> <li>- Overheat</li> <li>- The poly "Ball"</li> <li>- Tuck</li> <li>- Unsuitable Pressurization [Fault Pressurization, Insufficient Pressurization]</li> <li>- Uneven Heating [Pressurization Spots, Temperature Spots]</li> </ul>
--

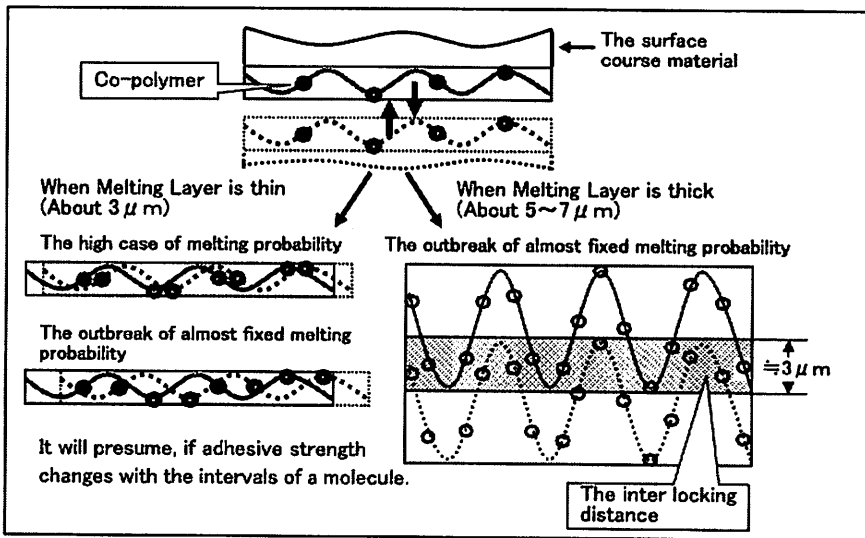


Fig.1 The presumed figure of the heat sealing by the co-polymer in the peel seal condition

1℃程度の精度でヒートシールしたサンプルを引張試験して山／谷の出る引張パターンから最大値、最小値を溶着面温度ベースでプロットすると2種のヒートシーラントのヒートシール特性の発現<sup>3)</sup>を見出すことができる。

技術的には数種を混合して適用することもできるから co-polymer の Peel Seal への適用性は広まっている。co-polymer をヒートシーラントに使った Peel seal と Tear seal の状態の発現推定モデルを図1に示した。

シーラントの co-polymer のエチレンのブレンド割合は8~10数% (モル%) である。

Co-polymer の溶融が始まる低温域でのヒートシールの発現距離は高分子の1ユニットの大きさ<sup>6)</sup> から 1/10~1/100μm と推定される。

加熱によって co-polymer の軟化と圧着力による食い込みによる接近確率が Peel Seal の発現の大小になると推定した。製造工程の実力を考慮して、Peel Seal の完成にはヒートシーラントは数 μm もあれば十分であると考えられる。

### 3. 実験

#### 3.1 実験用資材の選択

本研究では主にヒートシーラントの厚さに注目して実験材料の選択を行った。

サンプルはヒートシーラントと基材のラミネーション強さの影響を受けにくい共押し出しフィルムを採用することにした。

実質的には表層に接着層を持った一体フィルムでラミネーション強さは材料の固有の結合強さとみなすことができる。ヒートシール強さのみの測定に着目したいのでヒートシール強さより数倍大きい応力でも変形しにくい基材にヒートシーラントの厚さを変えたサン

Table 2 The specification for the material used for the test

Sample Code	Sealant thickness	Whole thickness
A: 20T	3.5 μm	20 μm
B: 30T	4.2	30
C: 50T	6.4	50
D: 60T	7.5	60

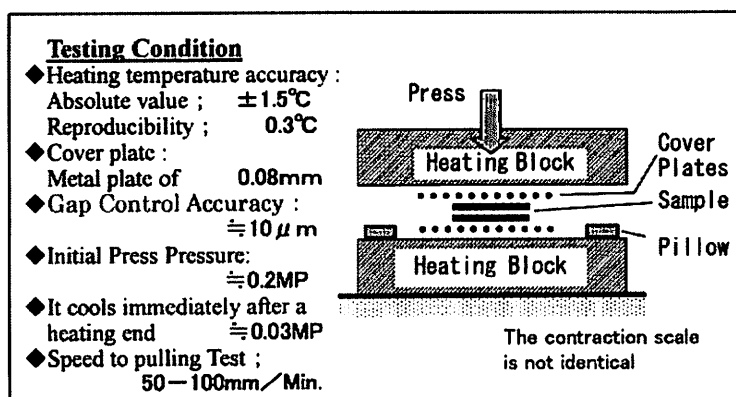


Fig.2 The specification for the material used for the test

ブルを実験に供したかったが、市販材料では得にくかった。

本実験では PP と co-polymer のヒートシーラントを共押し出しで製造した日本ポリエース（株）製の“ニホンポリエース”（型名：NT）を使用した。

試験材料の仕様の概要を表 2 に示した。

### 3.2 ヒートシールサンプルの作成方法

ヒートシールは“MTMS”キット<sup>7)</sup>を用いて図 2 の方法で行った。

サンプルを  $1\ \mu\text{m}$  程度の平面性の保証された  $0.08\text{mm}$  の金属プレートで挟んで加熱した。溶融（又は軟化）したヒートシーラントが大きな圧着圧の影響を受けないように各サンプルの 1 枚分の厚さのプレス代ができるようにピロー（スペーサー）を設置してプレスギャップを設けた。加熱ジョーを Peel Seal と Tear Seal の境界温度を中心に数種類の温度に制御して、初期プレス圧を約  $0.2\text{MP}$  で所定時間<sup>8)</sup> 圧着した後、直ちに約  $0.03\text{MP}$  のプレス圧で冷却した。

### 3.3 引張試験の方法

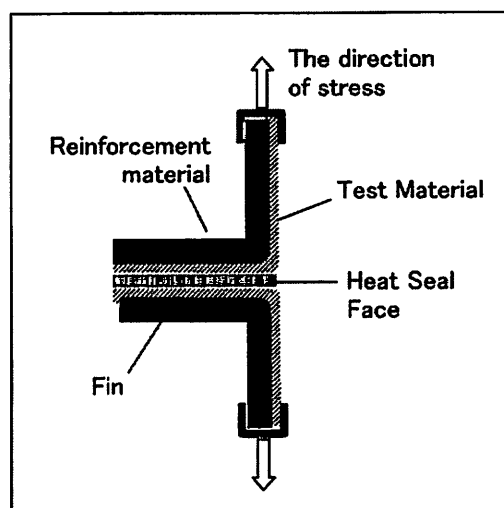


Fig.3 The attachment method of the reinforcement

加熱サンプルを JIS 法に準じて引張試験機で引張強さを測定した。Tear Seal 状態になると溶着強さが基材の伸び応力より大きくなるので、基材の伸びが大幅に発生する。引張試験にかける前にヒートシール面の反対側に薄手の粘着テープを貼り付け補強を施した。引張試験のジョー間の距離を約  $30\text{mm}$  とし、基材の伸び応力がヒートシール強さの測定値になるべく影響しないように考慮した。補強材の貼り付け状況を図 3 に示した。

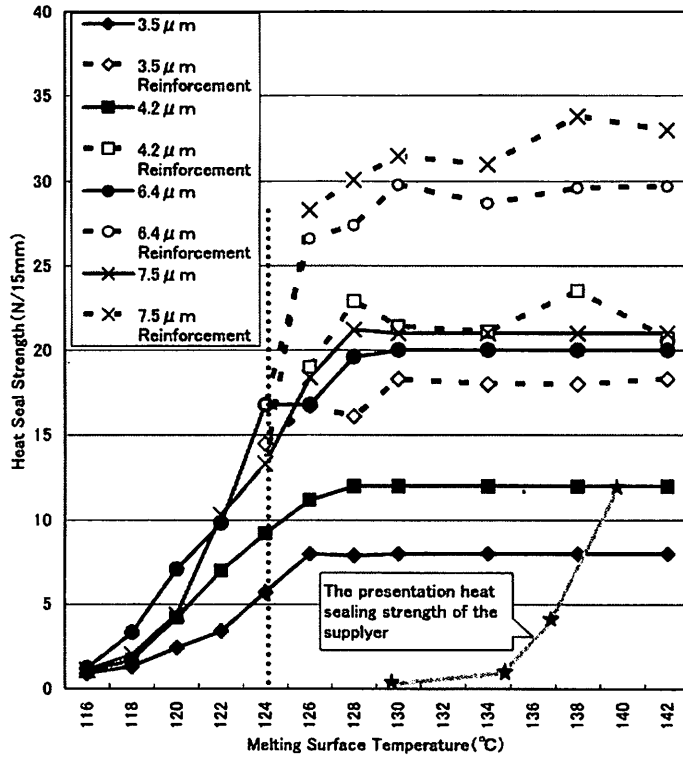


Fig.4 The tensile test result

## 4. 結果と考察

### 4.1 ヒートシーラントの厚さをパラメータとした溶着面温度ベースの引張強さの測定結果と考察

各加熱サンプルの引張試験結果を図4に示した。このサンプルは125℃より高温の加熱でヒートシーラントは溶融状態のTear Sealになる。JIS法の引張試験では3.5, 4.2 μmの材料に有意さがあるように見える。

ヒートシーラントが3.5 μmの基材の厚さは20 μmと薄いので125℃以下のPeel Seal状態でも基材の伸びが顕著に現れ、ヒートシール強さが伸び応力の中に埋まりこんでしまった。基材の伸びの影響を排除するために、粘

着テープ補強（ラミネーション）して引張試験を行った。粘着テープの貼り付け処理の結果、ヒートシール強さの表示は格段に向上し、ヒートシーラントの厚さが3.5~7.5 μmのPeel seal領域での引張強さは15N/15mm付近で同等の値を示した。

ヒートシーラントが6.4 μmのサンプルのメーカーが提示しているヒートシール強さを図中に併記したが、発現温度や発現パターンに、材料の基本機能の評価に影響がある程の大きな相違があり、従来の試験法に課題があることを示している。

### 4.2 溶着面温度をパラメータにした引張強さの評価結果の考察

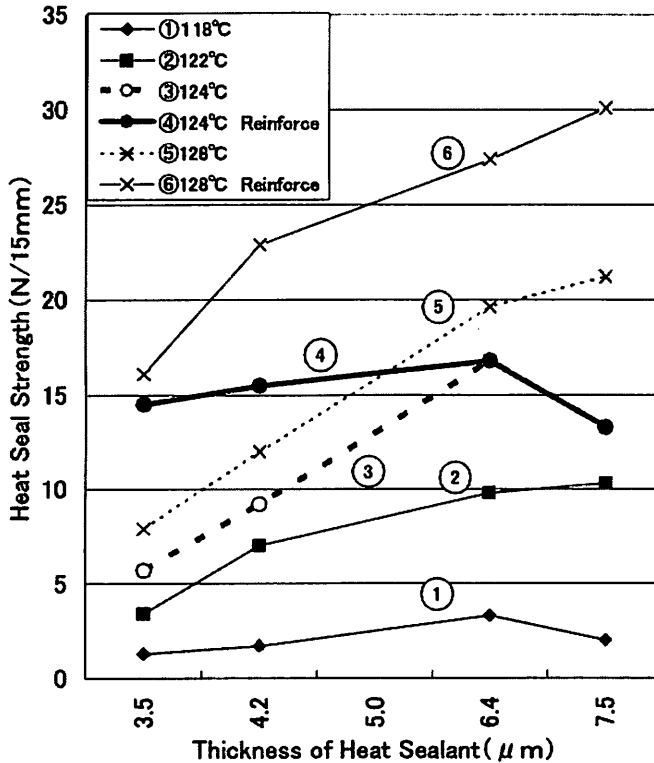


Fig.5 The measurement result of the relation between heat sealant thickness and tensile strength

図4のデータを使って、横軸をヒートシーラントの厚さとして、加熱温度をパラメータとしてヒートシーラントの厚さとヒートシール強さの関係を作成したものを図5に示した。Peel Sealの最高温度の124°Cの補強処理データに着目すると、3~6.4μmのヒートシーラントで、ほぼ同等のヒートシール強さを示しているが7.5μmでは少し下がっている。

金属イオンを含まない非反応系のプラスチックでは、熔融結合は線状高分子の“絡み合い”結合（分子間摩擦力）によると言われている。Peel Seal状態では相対するヒートシーラントの“食い込み”が3~6μmに制限されて、7μm以上の深さのco-polymerが分子間摩擦に関与しにくいと推定する。実験結果か

ら3~6μ程度にco-polymerの結合確率の好条件領域が存在していることが伺われる。(図1参照)

128°Cではヒートシーラントは熔融状態となりヒートシール線の剥離は殆ど起こらず、引張試験では基材を含めた伸びが発生する。4.2μm以上サンプルの補強データの引張強さは、ヒートシール線の破壊強さではなく、サンプルの伸び応力であり、破断強さはもっと大きいところにあるが、Tear Seal領域なのでピンホールの発生領域となるからヒートシール強さのみでの評価は好ましくない<sup>9)</sup>

この結果からPeel Sealは、5μm程度のヒートシーラントで充分完成していると推定される。

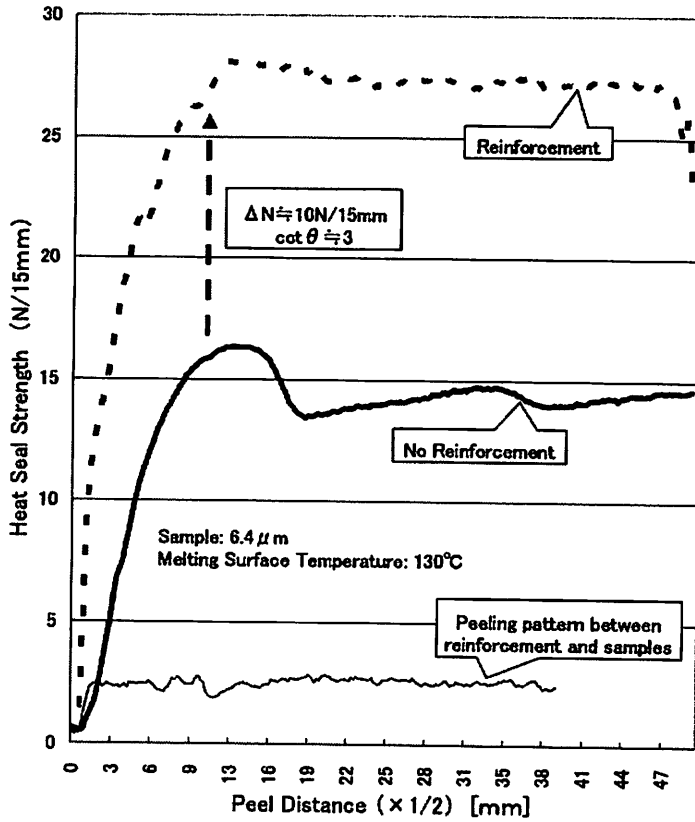


Fig.6 The effect of heat sealing strength of the lamination strength on the reinforcement

#### 4.3 実際に測定しているヒートシール強さの複合要素の解析と考察

補強に使用した粘着テープの剥離強さ（デラミ強さ）は3~4N/15mmと計測された。

表面が加工処理をしてないプラスチック材の粘着/剥離強さは粘着テープのメーカーに関係なくほぼ同等であり、真空接着が主体によるものである。

ヒートシラントが6.4μm、130℃のヒートシールサンプルの引張パターンを図6に示した。この図に補強材として使った粘着テープとサンプルとの剥離強さ併記した。補強材の剥離力は、ほぼ3N/15mmであった。補強なしの引張パターンは約17Nまで上昇した後

に基材が伸び、ヒートシール線の破れは発生していない。

従来の評価法<sup>10), 11)</sup>ではこの17N/15mmをヒートシール強さと評価している。補強材を表層材、試験材を内層材のラミネーション材としてラミネーション強さの考察を行う。

補強によるヒートシール強さは28N/15mmまで増強する。見かけ上のヒートシール強さは約10N/15mmも向上する。この場合でもヒートシール線の破れは発生していない。

補強材とサンプルとの粘着力の3N/15mmに対して引張強さ制御の向上は10N/15mmあり、補強材の粘着力の3倍程度になっている。引張試験の観察から、剥離（デラミ）の

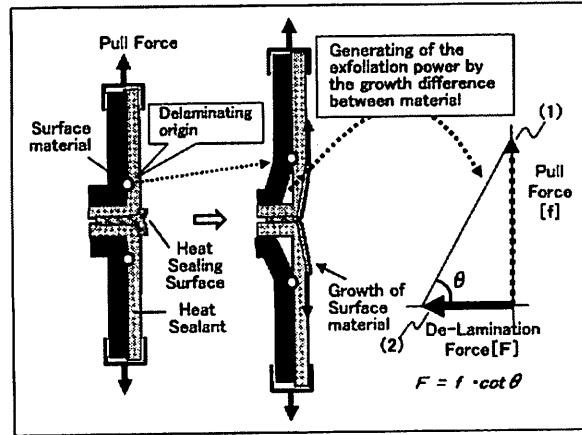


Fig.7 The mechanism of the de-lamination which is generated at the heat seal part

メカニズムを図7に示したように解析した。引張試験によって、ヒートシール線のマークした点から発生するデラミネーションは、表層材の伸びとヒートシーラントのシール線から発生する伸びの相違によって生じる。“三角形”のフィン部と本体面に相当する二辺が“デラミ力”に関与している。図7にはサンプルと補強材のデラミ力(1), (2)に注目した解析を行っている。

ヒートシーラントの伸びが“ゼロ”の場合のデラミ力は二辺ともゼロである。引張応力はヒートシール線の数  $\mu\text{m}$  の巾にかかるので先ずヒートシーラントのヒートシール線側に応力が発生し、ここから伸びが発生する。

フィン側の補強材の粘着面にかかる初期引張応力は、ほぼ直角になるので、フィン側表層材にはデラミ力(1)が発生して実験サンプルの場合は3N以上で容易に剥離が始まる。

実際のこの部位のラミネーション強さはヒートシールの加熱を受けるので、熱処理前のラミネーション強さより小さくなることに留意が必要である。

この結果ヒートシールのコーナー三角形が

形成され本体側のヒートシーラントと表層材の間には [(引張強さ)  $\times \cot \theta$ ] のデラミ力(2)が発生する。この実験の場合、ヒートシール強さは、17N/15mm から 28N/15mm へと約 10N/15mm 向上している。補強材の粘着力(ラミネーション力)の約3倍のデラミ力(2)となっているので、この時の角度は71~72°と計算できる。形成された三角形はヒートシーラントが破断するまで拡大する。

この考察結果から Tear Seal の従来のヒートシール強さは①ヒートシーラントの「伸び力」、②「ラミネーション強さ」、③「ヒートシール強さ」そして引張試験の進行で 15mm中に引張力が均一にからなくなつて発生する④“タック”の「複合」結果を測定していたことが分かった。

すなわち引張力に対して上記に定義した三角形が形成されなければデラミは発生しないことになる。

関連要素を以下のように表現すると

ヒートシール強さ:  $F_H$  (N/15mm)

ヒートシーラントの初期伸び力

(応力がかかった直後の):  $F_s$  (N/15mm)



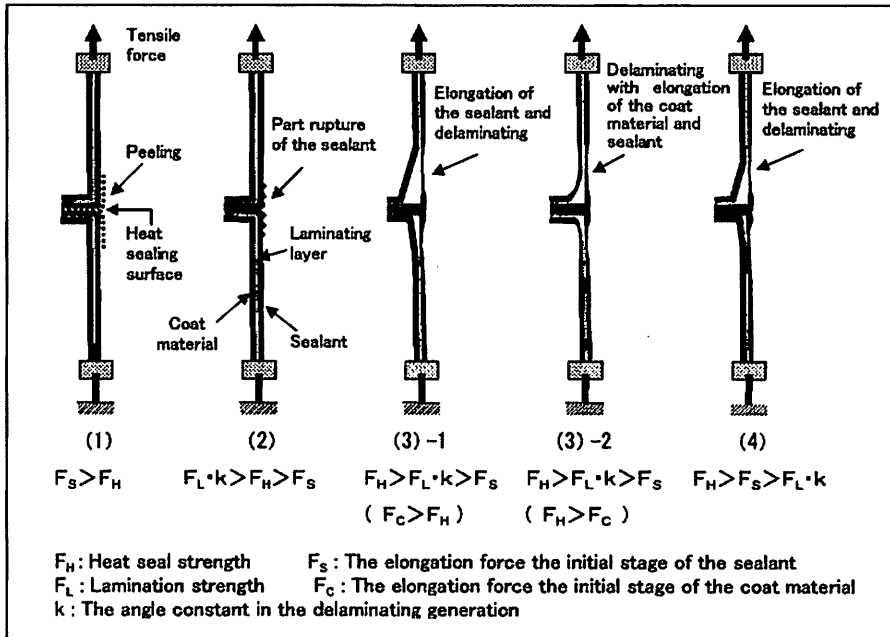


Fig.8 The explanation figure of mechanism of the generation of the delaminating

ラミネーション強さ： $F_L$  (N/15mm)  
 表層材の初期伸び力： $F_C$  (N/15mm)  
 デラミ発生の角度定数： $k$  (3～4程度)

各要素とデラミの発生の関係は次のようになる。

- (1)  $F_s > F_H$  ならば  
 → ラミネーション強さに関係なくデラミの発生なし  
 → ヒートシール線の剥離
- (2)  $F_L \cdot k > F_H > F_s$  ならば  
 → デラミの発生なし、表層材によるヒートシール線の伸びの抑制/補強作用  
 → ヒートシール線の部分破断
- (3)  $F_H > F_L \cdot k > F_s$  ならば  
 ①  $F_c > F_H$  の場合  
 → 表層材による伸びの抑制/補強作用  
 デラミの発生は大

- ②  $F_H > F_c$  の場合  
 → 表層材とシーラントの伸びの差がデラミの発生応力となる。伸びは大、デラミの発生は小
- (4)  $F_H > F_s > F_L \cdot k$  ならば  
 → ヒートシール線の剥離と破断はなし  
 ヒートシール線を起点に伸びの発生  
 → デラミの発生は大

以上の関係の図解を図8に示した。

(2)が最強の接着状態となるが ( $F_L \cdot k > F_H$ ) の条件は作りにくいものと考えられる。

Peel Seal 領域では引張強さはヒートシール面の熱溶着状態に依存するので「複合」要素の影響を受け難く(1)のようになる。

(1)は Peel seal の条件下でのヒートシールによって容易に制御ができる。

( $F_H > F_s$ ) の発現条件は溶融接着の Tear

seal の場合が該当する。この時、デラミネーションは種々の条件で発現の仕方が異なる。

剛性の大きい厚手 (70~80 $\mu\text{m}$ ) の PP のヒートシーラントを適用したレトルトパウチの Tear seal を施したケースのような場合がこれに相当する。

材料の伸びエネルギーを「剥離エネルギー理論」<sup>1)</sup>と同様な論理を利用して、Tear Seal 状態でも破断力にマージン付与できる破袋制御への応用性を示唆している。

これらの知見はラミネーションフィルムの設計上の有効な指針となるであろう。

## 5. 結論

- (1)非反応系プラスチックのヒートシーラントの厚みとヒートシール強さの関係を定量化できた。
- (2)非反応系のプラスチックではヒートシールの Peel Seal は 5~6 $\mu\text{m}$  の厚さのヒートシーラントで完成すると推定できる。
- (3)従来の (Tear Seal における) ヒートシール強さは材料の「伸び応力」、「ラミネーション強さ」、伸びで発生するタックの「複合力」の測定であることが分かった。
- (4)ラミネーション強さ (直角剥離力) の JIS 法のヒートシール強さに及ぼす効果は 3~4 倍あることが分かった。
- (5)実際の破袋制御において、ヒートシール強さのみに依存することなくエッジ切れやピンホールの発生を留意して、Peel Seal、材料の伸び、デラミネーションエネルギーを総合的に利用するのが得策である。

## 6. 謝辞

本研究に当たり技術士/小山武夫氏のご指導・鞭撻、サンプルの提供を戴いた日本ポリエース (株) に紙面より謝意を表す。

### <参考文献>

- 1)角田光弘、菱沼一夫、第12回日本包装学会年次大会予稿集、p.86、6月2003年
- 2)菱沼一夫、日本包装学会誌 14 (2)、p.124 (2005)
- 3)G.L.Hoh、U.S.Patent 4346196 5-7 (1982)
- 4)大森浩、第33回日本包装学会シンポジウム要旨集、p.33 (2004)
- 5)菱沼一夫、第13回日本包装学会年次大会予稿集、p.90 (2004)
- 6)Osswald/Menges、武田邦彦訳監修、プラスチック材料工学、シグマ出版、p.74 (1997)
- 7)菱沼一夫、日本包装学会誌 14 (2)、p.129 (2005)
- 8)菱沼一夫、第14回日本包装学会年次大会予稿集、p.94 (2005)
- 9)菱沼一夫、第14回日本包装学会年次大会予稿集、p.18 (2005)
- 10)JIS Z 0238 : 7 項 (1998)
- 11)ASTM Designation : F88-00  
(原稿受付 2005 年 9 月 16 日)  
(審査受理 2005 年 12 月 19 日)