

一般論文

ナイロン/ポリエチレンフィルムの熱接合部及び非熱接合部における境界部の力学的特性の評価

小西 礼一*, 山田 和志**, 橋本 静生***, 辻井 哲也****,
Yew.W. LEONG**, 宮田 剣*****, 濱田 泰以**

The Mechanical Properties of Boundary of Heat-sealed and Un-sealed Part in Nylon/PE Film

Reiichi KONISHI,* Kazushi YAMADA, ** Yasuo HASHIMOTO, *** Tetsuya TSUJII, ****
Yew.W.Leong, ** Ken MIYATA, ***** Hiroyuki HAMADA**

包装材料は中身を守るために破損してはならない。その目的のためにナイロンフィルムを使用する場合があるが、ナイロン同士では熱接合性が悪い、そのほとんどがポリエチレンフィルムとのドライラミネート方式で複合して使用されている。しかしこれら従来の複合フィルムにおいては、熱接合部や熱接合部と非熱接合部との境界部で破損する事例が多く報告されており、より安全な設計および評価方法が必要とされている。そこで、本研究では溶剤を用いるドライラミネート方式ではなく、溶剤を一切使用しないサーマルラミネート方式で作製した複合フィルムを用いて、熱接合部及び非熱接合部との境界部に円孔切欠きを有する試験を用いて評価した。その結果、熱接合部の円孔引張強度より境界部の円孔引張強度が23%低下していることがわかり、熱接合境界部の円孔切欠き試験法が、境界部を力学的特性評価する有力な手法の一つとなり得ることが示唆された。

Plastic packaging is a very important application that significantly contributes to our daily life. Nylon films are widely used as packaging materials due to their high strength and good puncture or scratch resistance even at sub-zero temperatures. The nylon films would usually be laminated with polyethylene in order to improve the heat-seal properties. However, it is still common to find damaged packaging especially at the boundary between the heat-sealed and non-heat-sealed parts even though these plastic films are made from multi-layers. Therefore it is important to characterize the mechanical properties of the boundary part, especially the effect of heat-seal temperature. In this study, mechanical properties at the boundary part of nylon films were evaluated by using semi-circular tensile test method. It was found that the tensile strength at the boundary part decreased about 23 % as compared to the heat-sealed region.

キーワード: サーマルラミネート、ヒートシール、境界部、円孔引張試験

Keywords : thermal lamination, heat seal, boundary, semi-circular tensile test

*連絡者(Corresponding author), 中本パックス株式会社(〒543-0012 大阪市天王寺区空堀町2-8), Nakamoto Packs Co.,Ltd. 2-8 karahori,

Tennoujiku, Osaka 543-0012, JAPAN,

Tel: 06-6762-2502, Fax: 06-6762-2582, E-mail: konishi@npacks.co.jp

** 京都工芸繊維大学, Kyoto Institute of Technology

*** 富士インパルス株式会社, Fuji-Impulse Co.,Ltd

**** 株式会社パーキンエルマー・ジャパン, PerkinElmer Japan Co.,Ltd

***** 山形大学, Yamagata University

1. 緒言

包装の目的は、中身の輸送、取引、使用に当たって、中身の品質劣化や汚染を防ぎ、中身の価値を高め、売れる商品にするという事と流通工程でのハンドリング性をよくするという重要な役割がある。その役割を達成するためには、環境保全、安全、衛生性の確保、高齢化社会への対応などの社会的要請が高まる中、中身の品質劣化を踏まえて新たな素材や機能が要求されている。しかし、二酸化炭素排出による地球温暖化などの環境問題がクローズアップされてきた。環境への配慮を優先して、包装材料の削減、回収、再利用などが進んでいる。原料以外にも加工技術としては、複合化、多層化、極薄化、印刷、コーティング、熱接合、製袋なども環境を配慮するための取り組みも進んでおり、包装材料としてのプラスチックは、その使用形態、機能に応じて高分子材料が選択され、単体フィルムもしくは複合フィルムに加工されている。特に、複合フィルムであるラミネートフィルムは、熱接合性、ガス透過性、ガス遮断性、耐熱性、高強度性など、用途に応じた様々な機能性を持たせることができる。複合する方法として、広く普及しているドライラミネート方式は積層する基材へ溶剤に溶かした接着剤をコートして乾燥させた後、もう一方の基材を合わせて積層する方式である。しかし、ドライラミネート加工では、溶剤を使用しているため、揮発性有機化合物(Volatile Organic Compounds: VOC)排出規制対策が必要である。

それゆえに、本論文では、溶剤を一切使用しないので環境を汚染することなく、包装材料からの食品への残留有機溶剤の移行の心配もない環境に配慮されたサーマルラミネート方式¹⁾を使用した。

一方、プラスチックフィルムは、取り扱いを簡便にするために熱接合で製袋することが多く、要求される最も重要な項目は、その「袋」が破損しないことである²⁾³⁾⁴⁾。しかし、熱接合部での破壊のみならず、境界部およびその周辺部で生じる破壊、いわゆる“エッジ切れ”が発生することが多い⁵⁾⁶⁾。例えば、食品包装で中身の重量が十分に耐えられるヒートシール強度から袋の設計を行っても、袋がエッジ切れにより破壊されている場合がある。この場合、食品包装の目的である中身の品質劣化や汚染を防ぐという重要な役割が満たされない。エッジ切れの対策方法としては、熱接合条件の変更で解決しない場合、フィルムの厚みを厚くすることで対応している場合もある。厚さを増すことで最終的に二酸化炭素排出量も増える結果となるため、最低限度の厚さにする必要がある。しかし、エッジ部分の強度を評価する指標がなく、最適な厚みを検討する指標がない。

そこで本研究では、サーマルラミネート方式は、熱により複合化しているため、単体フィルムと複合化フィルムの力学的強度を評価することでサーマルラミネート方式による影響を確認した。その後、複合化フィルムの熱接合部に円孔切欠きを入れることにより、円孔引張試験を行い、熱接合部の力学的特性の

評価をした。

2. 実験方法

2.1 使用フィルム

サーマルラミネート用試料は、ダブルバブル方式による二軸延伸ナイロンフィルム（ユニチャイナ社製、以下 ONY フィルムと略す）厚さ 15 μm と直鎖状低密度ポリエチレン 45 μm 厚に接着性樹脂 5 μm 厚が共押しされたフィルム（中本パックス社製、以下 LLDPE と略す）総厚さ 50 μm である。

本研究では、Fig.1 に模式図を示すサーマルラミネート方式で約 140 $^{\circ}\text{C}$ 熱ロールで ONY フィルムに接着性樹脂面が貼り合わせ面として LLDPE フィルムを圧着した ONY/LLDPE フィルムを用いた。ラミネート強度は 4.8 N/15mm 以上である。

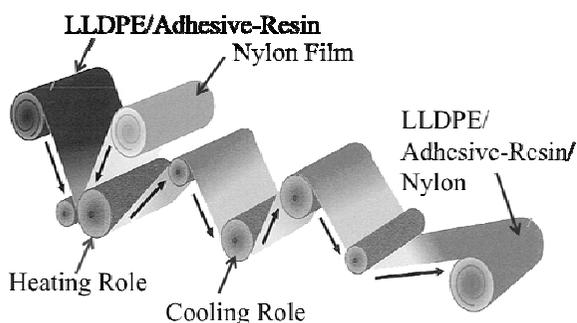


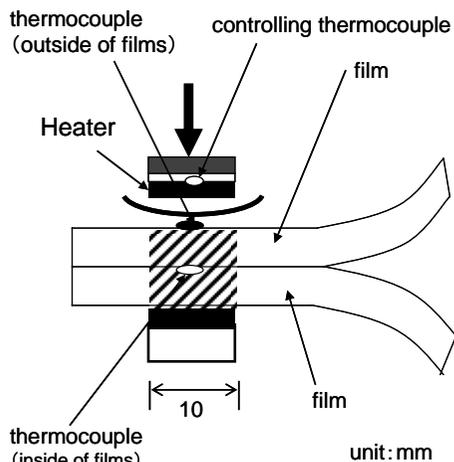
Fig. 1 Schematic of Thermal Laminate Method

2.2 熱接合装置と接合方法

熱接合装置には、温度センサーをヒーターの裏側に内蔵し、クローズドループで温度制御の可能な、インパルス式オートシーラー（加熱出力 1.5 kW、富士インパルス社製）を用い

た。熱接合部分の模式図を Fig.2(a)に示す。各加熱温度の試験片作成においては、プラスチックフィルムを圧着板と受け板の間に挟み込み、設定圧力まで加圧した後に各設定温度まで加熱、設定温度到達後、実験装置の最も短い接合温度保持時間である 0.1 sec、保持し、加圧下で自然冷却した後、フィルムを開放した。自然冷却時間は 5.0 sec とした。熱接合時の加圧力は、本装置の固有の値である 0.42 MPa であった。Fig.2(b)に示すように、本研究

(a)



(b)

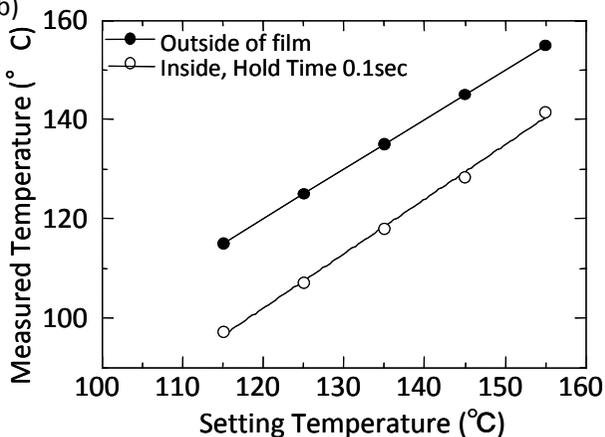


Fig.2 Schematic diagram of heat sealing

で用いたヒートシール方法は、上方からの片側加熱であるため、接合時、フィルムの接合面（内側）とヒーターに接した面（外側）では温度差が生じている。温度差は、0.1 sec においては、約 15°C となった。

2.3 はく離試験

はく離試験には、インストロン型万能試験機（4466 型、インストロン社製）を用いた。JIS Z 0238 に基づき、Fig.3 に示すように、フィルムを MD（フィルム成形時の巻取り方向）及び TD（巻取り方向に対して垂直方向）に、それぞれ幅 15 mm、長さ 100 mm が 2 枚重なっており、中央部を幅 10 mm で熱接合が行われている試験片を 6 本準備した。熱接合時、接合部に厚さ 12 μm の PET フィルムを 5 mm 挟んだ。PET フィルムを挟む理由として、PET フィルムは 210°C では融解しないため、試験片は幅 5 mm で熱接合され、それによって、はく離が、熱接合境界部ではなく、熱接合部内で開始されることになるからである。試験は、PET を挟んだ側の熱接合部を中心に 180° 開き、つかみ具間距離 50 mm、試験速度 300 mm/min にて行った。

2.4 示差走査熱量測定(DSC)

PerkinElmer 社製入力補償 DSC 装置, Pyris1 を用い、窒素雰囲気下、50~300°C を 10°C/min で昇温した。試料は約 7 mg 程度とし、電子天秤を用いて正確に 0.1 mg まで秤量した。

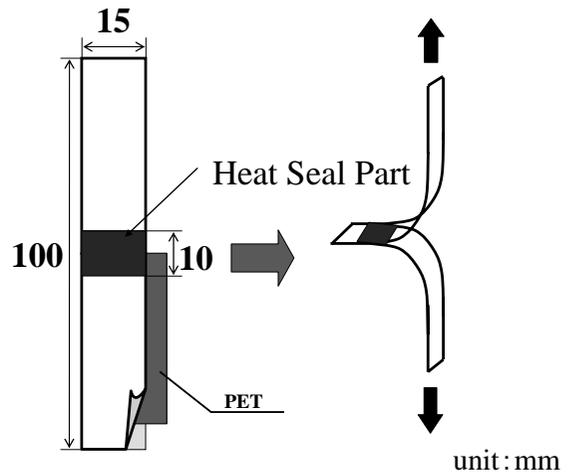


Fig.3 Specimen of peel test

2.5 円孔引張試験

実際の破損事例は、必ずしも「界面はく離」だけではなく、接合部での破壊も含まれる為、円孔引張試験にて、「熱接合部自体」の強度、破断形態について検討した。Fig.4(a)に示すように、幅 15 mm、長さ 100 mm の試験片を MD、TD に切り出し、10 mm 幅で熱接合したのち、熱接合部で破断するように半径 5 mm の切り欠きを両側に施した試験片を 6 本準備した。試験条件は、つかみ具間距離 50 mm、試験速度 20 mm/min とした。本研究では、ONY フィルムと LLDPE フィルムを熱ロールで圧着した ONY/LLDPE フィルムを使用するが、サーマルラミネート前の ONY フィルムと LLDPE フィルムのみを加熱し、円孔引張試験を行なう事でサーマルラミネート加工の影響を検討した。

また熱接合部での破壊のみならず、境界部およびその周辺部で生じるフィルム破壊、いわゆる“エッジ切れ”が発生することが多い。

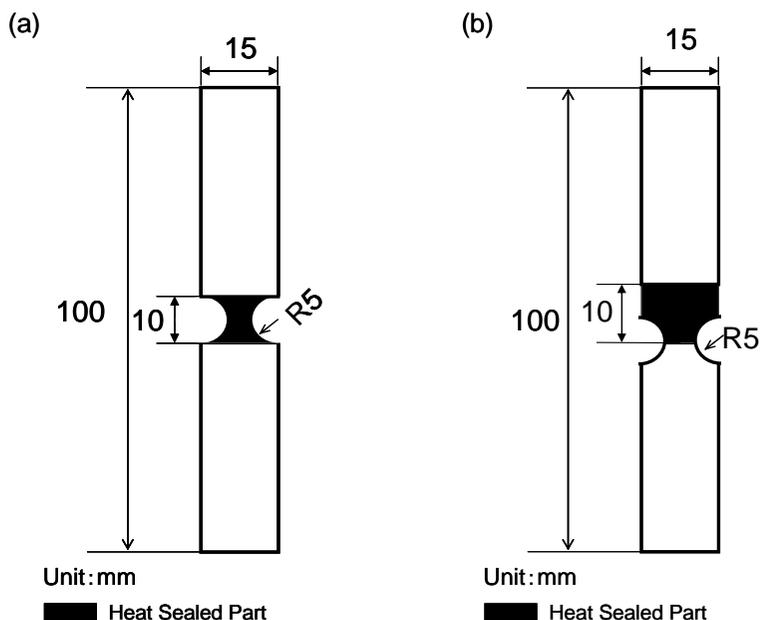


Fig.4 Specimen of semi-circular tensile test for heat sealed part(a) and boundary(b)

熱接合と非熱接合の境界部（エッジ）に円孔切欠きを入れることにより、エッジ部分に応力を集中させるように工夫し、エッジ部分の円孔引張試験を行った。Fig.4(b)に熱接合と非熱接合の境界部の円孔引張試験の試験片形状を示す。ONY/LLDPE フィルムを、2枚重ね、前述の熱接合装置を用いて中央部に熱接合を行なった。幅 15 mm、長さ 100 mm の試験片を MD 方向及び TD 方向に切り出し、熱接合と非熱接合の境界部で破断するように半径 5 mm の切り欠きを両側に施した試験片を 6 本準備した。

3. 結果と考察

3.1 はく離試験

Fig.5 に、はく離試験後の試験片で観察され

た代表的な破断形態の模式図を示す。破断形態は、以下の 4 種類に大別できた。

- A) (完全はく離型)
熱接合された 2 枚のフィルムの接合界面で、はく離する形態
- B) (非接合部破断型)
つかみ具で破断した形態
- C) (熱接合部脆性破断型)
はく離が生じず、熱接合境界部で脆性破断する形態
- D) (熱接合部延性破断型)
はく離が生じず、熱接合境界部で ONY フィルムが破断後、LLDPE フィルムが延性破断する形態

Fig.6,7 に強度と破断観察を示す。

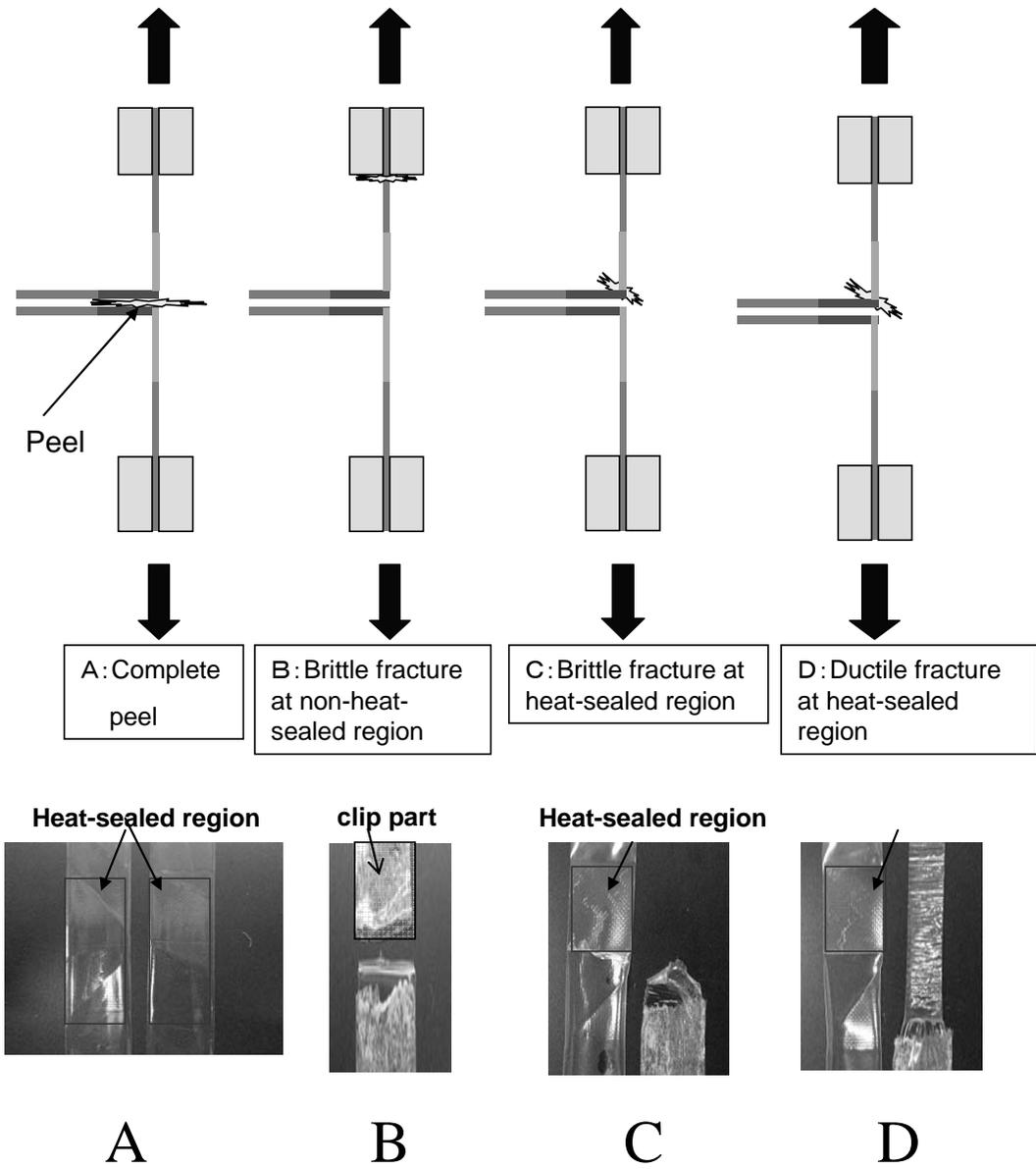
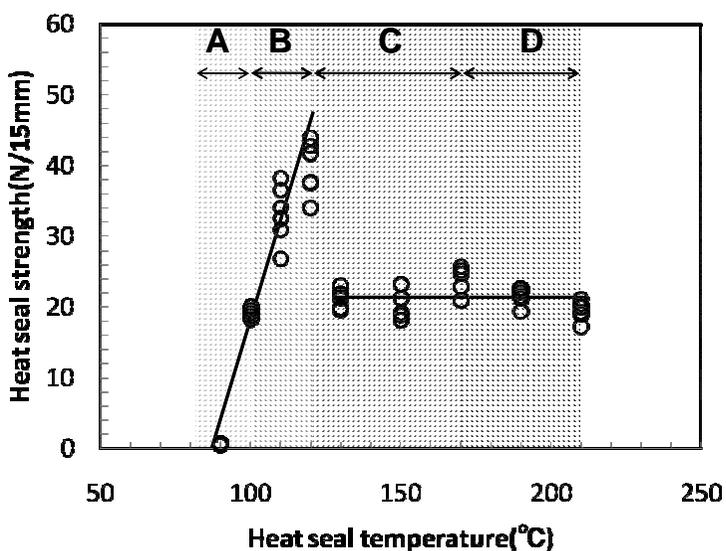
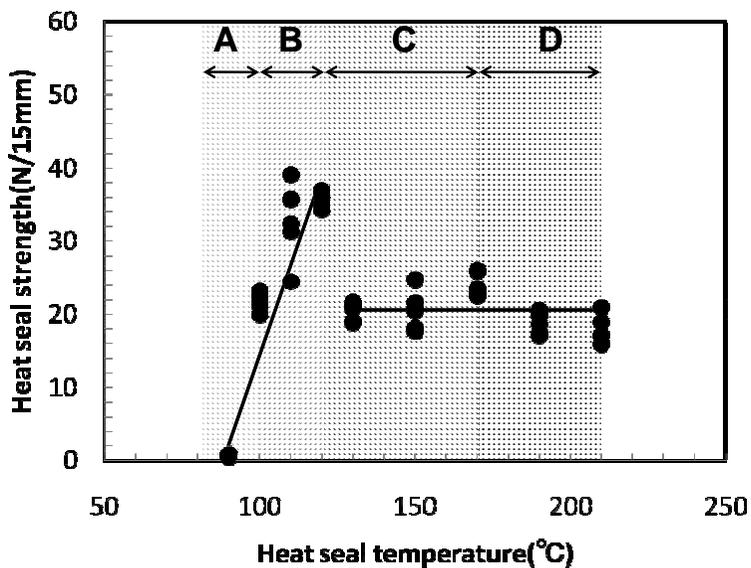


Fig.5 Schematic fracture patterns of specimen



- A: Complete peel
- B: Brittle fracture at grip (non-heat-sealed region)
- C: Brittle fracture at edge of heat-sealed region
- D: Ductile fracture at edge of heat-sealed region

Fig.6 Effect of heat seal temperature on heat seal strength (TD)



- A: Complete peel
- B: Brittle fracture at grip (non-heat-sealed region)
- C: Brittle fracture at edge of heat-sealed region
- D: Ductile fracture at edge of heat-sealed region

Fig.7 Effect of heat seal temperature on heat seal strength (MD)

熱接合温度 90°Cにおいては、接合界面ではなく離をした。接合強度は平均 0.53 N/15 mm で JIS によると熱接合開始強度は 3 N/15 mm 以上と規定されている数値を下回っているので 90°Cでは接合が不十分であったと考えられる。

TD、MD も同様に 100°Cより熱接合においては接合界面ではなく離した。破壊形態としては A であった。110°C、120°Cではつかみ具で破断した。破壊形態としては B であった。130°C、150°Cでは、熱接合境界部で破断した。破壊形態としては C であった。170°C、190°C、210°Cでは 130°C、150°C同様に熱接合境界部で破断しているが、ONY フィルムが破断後、LLDPE フィルムが伸びて破断した。破壊形態としては D であった。TD、MD も同様に 100°Cより熱接合においては接合界面ではなく離することがわかった。110°C、120°Cではつかみ具近傍で破断が生じ、130°C以上では、熱接合境界部で破断した。はく離試験により得られた

結果は、熱接合部でない、つかみ具での破断があり、熱接合の可否を評価できるに過ぎない。境界部 (エッジ) の強度も含めて、90°C、100°C、110°C、120°C、130°Cに絞り込み、接合温度と熱接合部の高次構造評価と力学的特性について検討する。

3.2 示差走査熱量測定(DSC)

Fig.8 に ONY/LLDPE フィルムの DSC 測定より得られた LLDPE の融解ピーク温度と結晶化度のグラフを示す。接合温度が高くなるにつれ、LLDPE 部分の融解熱量、結晶化度が高くなり、吸熱ピークの約 120°Cを超えた 130°Cでは、吸熱ピークが低下した。LLDPE の融点 (120°C付近) 以上で熱接合した場合には、結晶が一旦融解するため、吸熱ピークおよび結晶化度が低下したと考えられる。さらに、はく離試験結果において融点以上の実験条件で作製した試験片フィルムは、界面から

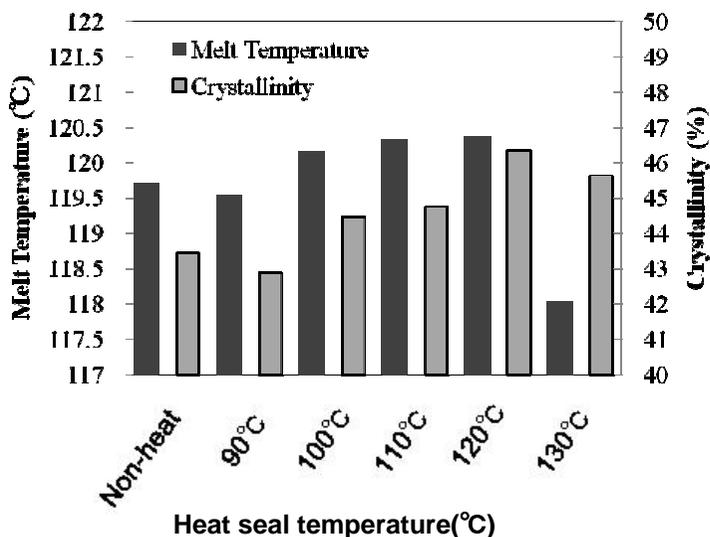


Fig.8 Melt temperature and Crystallinity of LLDPE on various heat seal temperature

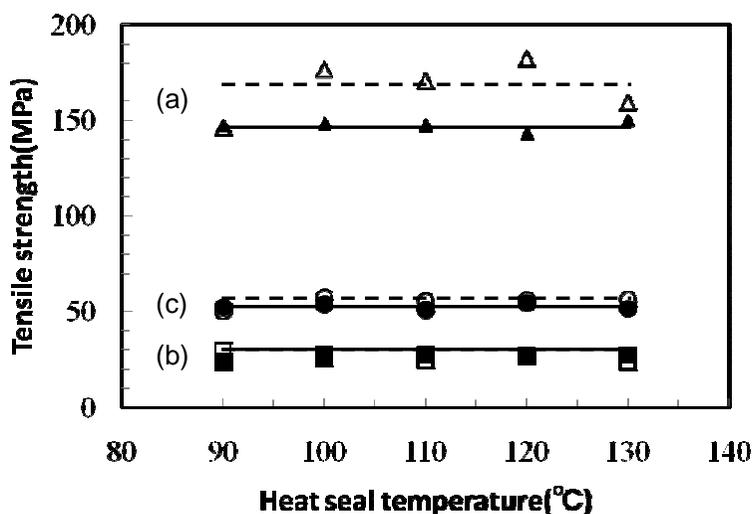
のはく離をしなくなっており、これは DSC 測定実験において 130℃以上熱接合温度では、試験片フィルム界面の LLDPE が熔融したために界面はく離が生じなくなったと考えられる。

3.3 円孔引張試験

Fig.9 に各熱接合温度と円孔引張強度の試験結果を示す。Fig.9(a)に ONY フィルムの結果を示す。MD 方向の円孔引張強度は、各熱接合温度でも約 150 MPa となっていた。TD 方向では 175 MPa となり、約 17%高くなっていた。これは、ONY フィルムがダブルバブル方式による二軸延伸法で作製時に TD 方向に引張強度が高くなっているためである。

Fig.9(b)に LLDPE フィルムの結果を示す。円孔引張強度は各接合温度及び MD 方向、TD 方向でも 27MPa と一定となっていた。Fig.9(c)に ONY/LLDPE フィルムの結果を示す。MD 方向では約 54 MPa で一定となっていた。TD 方向では約 58 MPa と 7%高くなっていた。これは、ONY フィルムが TD 方向で高くなっているのが影響していると考えられる。

一方、本研究論文で使用した ONY/LLDPE フィルムは、フィルム作製時におけるサーマルラミネート加工により熱履歴を受けている。その後、それら 2 枚のフィルムを熱接合し、4 枚のフィルムが積層された状態となっている。また、熱接合時の設定温度は、加熱ヒーターの表面温度であるため、フィルムの表面と内



(a)▲:ONY film (MD) △:ONY film (TD)
 (b)■:LLDPE film (MD) □:LLDPE film (TD)
 (c)●:ONY/LLDPE film (MD) ○:ONY/LLDPE film (TD)

Fig.9 Semi-circular tensile test for heat sealed part fig.4(a)

部に約 15°C の温度差が生じる (Fig.2(b)参照). 単体フィルムを加熱した場合には、フィルムを熱接合した場合に比べて、厚みが半分となるため、フィルム単体体積あたりに受けるエネルギー量が多くなることが見積もられる。したがって、加熱した接合前フィルムと熱接合したフィルムを比較する場合、その温度差を考慮する必要がある。

そこで Fig.10 熱接合断面図に示す仮説を立て、実測値と計算値とを確認した。

$$\sigma_{heat-sealed\ at\ T^{\circ}C} = \frac{1}{2} \left(\sigma_{heat-sealed\ at\ T^{\circ}C} + \sigma_{heat-sealed\ at\ (T-15)^{\circ}C} \right) \quad (1)$$

本研究論文で用いたフィルムは ONY フィルムと LLDPE フィルムの 4 層構造である。したがって、式 (1) は

$$\sigma_{heat-sealed\ at\ T^{\circ}C} = \frac{1}{2} \left((\sigma_{ONY\ at\ T^{\circ}C} \times 15 + \sigma_{LLDPE\ at\ T^{\circ}C} \times 50) / 65 + (\sigma_{ONY\ at\ (T-15)^{\circ}C} \times 15 + \sigma_{LLDPE\ at\ (T-15)^{\circ}C} \times 50) / 65 \right) \quad (2)$$

となる。ここで、 T : 熱接合温度、 $\sigma_{heat-sealed}$: ONY/LLDPE フィルムの予測熱接合強度、 σ_{ONY} : ONY フィルム単体の各温度での強度、 σ_{LLDPE} : LLDPE フィルム単体の各温度での強度をそれぞれ示す。式 (2) より単体フィルムの円孔引張強度を用い、計算値を算出した。このとき、単体フィルムの各温度での強度は、Fig.9(a)および Fig.9(b)の強度と加熱温度のプロットにおいて、最小二乗法を用いて近似曲線を描き、近似曲線上の各温度の値とした。それらの結果を Fig.11 にプロットした。図を見てわかるように、TD および MD 両方向ともに実測値と計算値が一致した。熱接合加熱

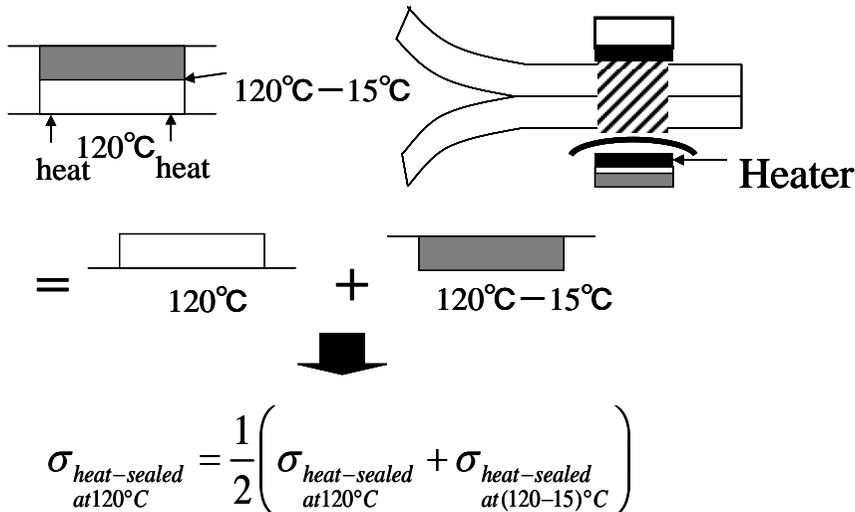


Fig.10 Distribution of stress in heat sealed films

時の表面温度と内部の温度差を考慮し、計算した計算値と実測値はほぼ同等の強度を示したことから、本試験で用いた ONY フィルム、LLDPE フィルムをサーマルラミネート加工により複合化した際に生じる熱履歴の影響はないことがわかった。

Fig.12 に熱接合と非熱接合の境界部の円孔引張試験の試験片で観察された代表的な破断形態の模式図を示す。破断形態は、以下の 3 種類に大別できた。

- A) 熱接合部で破断する形態.
- B) 1箇所破断する形態.

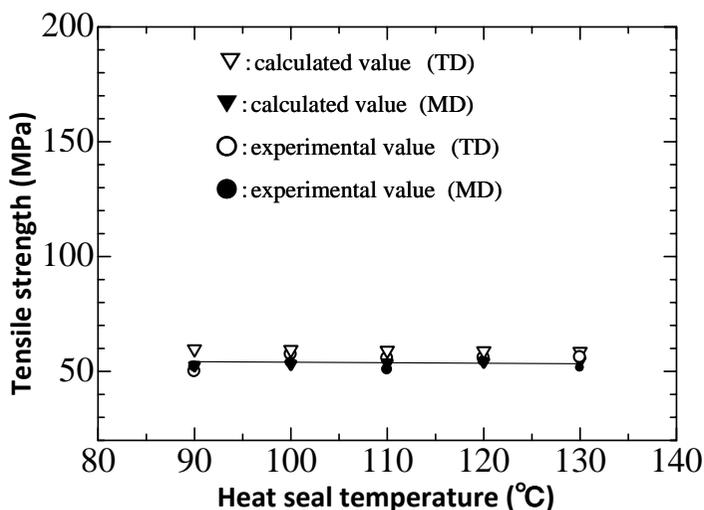


Fig.11 Semi-circular tensile test (ONY/LLDPE/LLDPE/ONY)

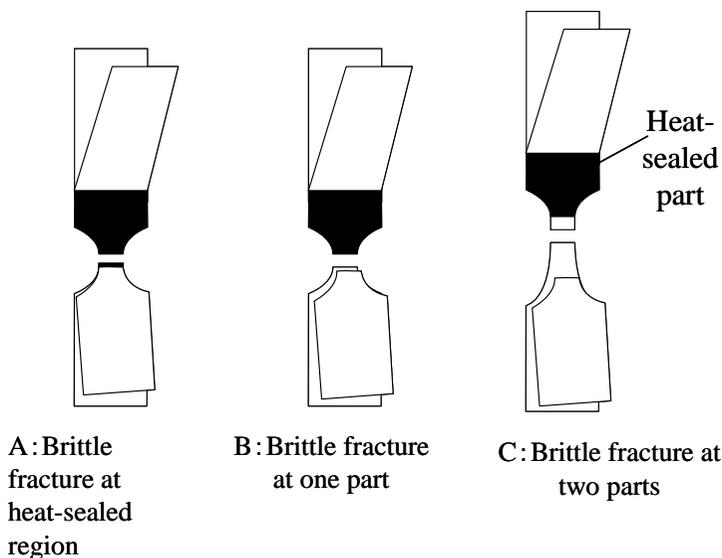


Fig.12 Schematic Fracture patterns of specimen

C) 片方のフィルムが破断後、残り片方のフィルムが破断する形態。

Table.1 に、試験片 6 サンプルの破断形態観察結果をまとめた。

Table.1 からわかるように、TD の多くの試験片はタイプ C の破断形態を示すことがわかった。また、MD 方向の試験片においては A および B の破壊形態がほぼ同じくらいの割合で示すことがわかった。これらの引張強度の結果を Fig.13 にプロットした。熱接合と非熱接合の境界部の場合、TD 方向では約 42 MPa で一定となっていた。MD 方向でも約 42 MPa で一定となっていた。また、熱接合部の引張強度は TD 方向で約 58 MPa、MD 方向で約 54 MPa であり、境界部の円孔引張強度よりも約

20~30%高いことがわかった。要因として、境界部（エッジ）部分の熱接合部側においては結晶化度が増加し、非熱接合部側との 2 次構造の差が生じることにより、応力集中が発生し、破断強度が低下していると考えられる⁷⁾。また、Fig.12 の破断形態に統一性がないことから境界部（エッジ）におけるフィルムの結晶化度が部分的に変化し、破壊形態に差異が生じたことが考えられる。

4. 結言

熱接合部の円孔引張強度より熱接合部と非熱接合部の境界部の円孔引張強度が 23%低下していることがわかった。熱接合と非熱接合の境界部に円孔切欠きを有する試験を用いる

Table 1: Specimen fracture behavior after Semi-circular tensile test

Temperature (°C)		Fracture behavior					
		N1	N2	N3	N4	N5	N6
TD	90	C	C	C	C	A	B
	100	C	C	C	C	B	B
	110	C	C	C	C	C	C
	120	B	C	C	C	C	C
	130	A	C	C	C	C	A
MD	90	C	C	B	B	C	C
	100	C	C	B	C	B	B
	110	C	B	A	A	C	C
	120	B	C	B	B	C	C
	130	C	C	B	B	A	B

A: Brittle fracture at heat-sealed

B: Brittle fracture at one part

C: Brittle fracture at two parts

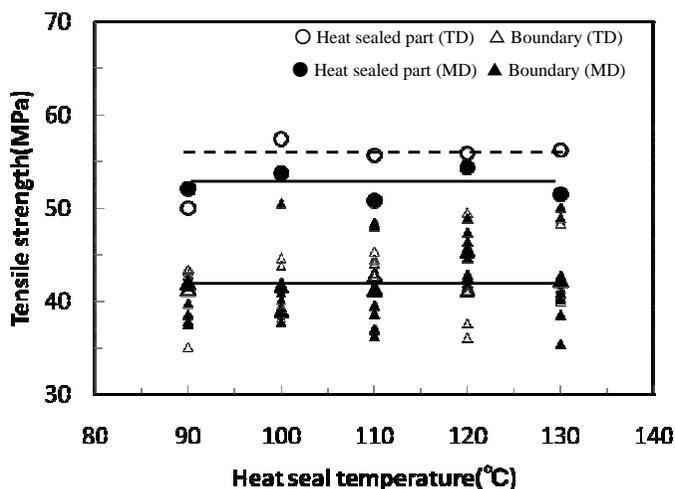


Fig.13 Semi-circular tensile test for heat sealed part Fig.4(a) and boundary Fig.4(b)

ことで、境界部を評価する有力な手法の一つとなり得ることが示唆された。様々なフィルムの熱接合した袋を使用する場合、境界部の引張強度が熱接合部よりも低下することを考慮し、包装材料設計をする必要があることがわかった。

- 6) 橋本静生：成形加工，18(8)，600(2006).
- 7) 橋本由美他：成形加工，19(4)，236(2007)

(原稿受付 2010年5月6日)

(審査受理 2010年10月14日)

<参考文献>

- 1) 柴野 博：コンバーティック 35(10)，82(2007)
- 2) 橋本 静生他：成形加工，21(1),26 (2009)
- 3) 橋本 静生：プラスチックフィルム熱接合部の接合強度の評価に関する研究、50,(2006)
- 4) 菱沼 一夫：日本包装学会誌，18(2)，75(2009)
- 5) 辻井哲也：成形加工，15(2)，155(2003)