

一般論文

# リサイクルPETフィルムの未延伸と延伸フィルムの熱接合及び熱接合部の評価

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

## Influence of Draw Ratio on Adhesion of Heat-sealed Recycled-PET Films

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

現在、様々な分野で環境配慮型の取り組みが行われている。その中でも最終的にゴミとなる包装資材分野では環境に配慮された材料の選定が行われている。PETに結合剤と触媒を添加し、反応させることで熔融粘度をコントロールすることフィルムにリサイクルすることが可能になった。包装資材としての可能性について検討を行った。但し、包装資材は、排出されるゴミを減らすことを目的に軽量化する取組も重要なため、未延伸のフィルム及び延伸したフィルムについて検討を行った。包装資材として検討する上ではヒートシール性について評価する必要がある。本報告ではヒートシール性に及ぼす未延伸と延伸の影響について検討した。その結果、PETを包装資材から包装資材へとマテリアルリサイクルし、循環型社会構築に貢献できる可能性を明らかにした。

Recent technology developments require some form of consideration for the environment. For example, poly(ethylene terephthalate) (PET) bottles have been recycled to form new commercial products such as trays and kitchen utensils. However, recycled PET is still not widely adopted for commercial packaging film applications. We developed a novel recycling system involving the use of recycled PET to produce films for labelling purposes. In general, the PET film has to be drawn to control its thickness. During the drawing process, however, molecular orientation would induce crystallization, which tend to affect the mechanical properties and heat sealability of the films. In this study, the effects of draw ratio on heat seal strength as well as the mechanical properties of the heat seal region were investigated. The results reveal that heat seal strength of undrawn film was ca. 32 N/15 mm at 160 °C. In addition, heat seal temperature increased with increasing draw ratio.

キーワード: リサイクルPET、延伸倍率、ヒートシール

Keywords : Recycle PET, draw ratio, heat seal

---

\*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

\*\*山形大学, Yamagata University

\*\*\*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

## 1. 緒言

現在、様々な分野で環境配慮型の取り組みが行われている。その中でも最終的にゴミとなる包装資材分野では環境に配慮した材料の選定が行われており、バイオマス資源やリサイクル原料を使用した包装資材の開発が進められている。特に飲料用のポリエチレンテレフタレート(PET)ボトルは 2007 年度販売量 573,198t に対して回収量 396,529t で回収率 69.2%、2008 年度販売量 571,363t と販売量が減少しているにもかかわらず回収量は 445,457t で回収率 77.9%と増加傾向にある。2008 年度の回収率は欧州で 46%、米国で 27%<sup>1)</sup>と日本に比べ低い、年々増加傾向にあり、世界的に PET ボトルリサイクルの取組みが行われている。その用途としては繊維やシートなどに概ね限定されており<sup>2)</sup>、包装資材用フィルムにはほとんど使用されていない。PET は、バージン材料でも熔融粘度が低いため、未延伸の状態で薄膜フィルムを製造することは困難である。そのため、リサイクル材も同様に単層で包装用フィルムに成形することは不可能であった。しかし、PET にカップリング剤と触媒を添加し、反応させることで熔融粘度を制御することが可能になった。<sup>3)</sup>この技術を利用し未延伸の薄膜 PET フィルムを製造した。本研究では廃棄 PET ボトルをフィルムにリサイクルすることにより、包装資材としての展開可能性について検討を行った。包装資材の目的は、運送などの作業性を良くするほかに被包装物を保護することにある。被包装物

の違いにより、包装資材に対する要求性能は様々である。要求性能を満足するためには、フィルムの材質も重要であるが、フィルムの成形加工方法も重要である。例えば、基材フィルムの場合、一般的に延伸ナイロンフィルムや延伸 PET フィルムが使用される。<sup>4)</sup>延伸により引張強度が高くなることに加え、薄膜化されるため、使用資材の低減につながる。近年、廃棄物となる包装資材は減らす方向にあり、薄く強靱なフィルムが要求される傾向にある。しかしこれらの延伸フィルムは熱接合性に劣る。包装資材として使用する場合、製袋し使用するため、熱接合可能であり、かつ強靱であることが重要である。<sup>5)6)</sup>

本研究では、リサイクル PET フィルムを 3 倍及び 4 倍に延伸したフィルムと未延伸フィルムについて、シール強度及び接合部の強度を熱分析により延伸及びヒートシールにおける高次構造形成と比較することで包装資材への展開可能性について検討した。

## 2. 実験方法

### 2.1 使用フィルム

リサイクルPETボトルフレーク 95wt%にカップリング剤としてエポキシ基を有する化合物と触媒として有機酸の金属塩の複合体マスターバッチを 5wt%添加し、1軸押出機を用い、厚さ 60 $\mu\text{m}$ の未延伸フィルム(以下 C-RPET と略す)を得た。<sup>3)</sup>さらに、中本パックス(株)オリジナル縦1軸延伸装置を用い、延伸温度 100 $^{\circ}\text{C}$ 、アニール温度 120 $^{\circ}\text{C}$ で延伸倍率 3 倍及び 4 倍の延伸フィルムを製造した。

## 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.1 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。

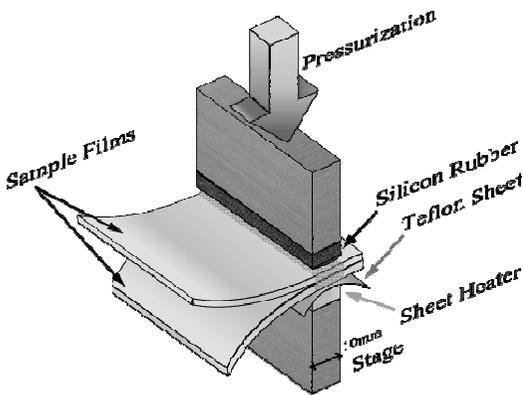


Fig.1 Schematic diagram of heat sealing

## 2.3 ヒートシール強度試験

ヒートシール強度試験には、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.2(a) 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 100mm に切り出した。これを 2 枚重ね、中央部を幅 10mm で熱接合した試験片を 6 片準備した。試験は, 180°開き, つかみ具間距離 50 mm, 試験速度 300 mm/min で行った。

## 2.4 円孔引張強度試験

実際の破損事例は, 必ずしも界面での破壊だけではなく, 接合部での破壊も含まれる。そのため円孔引張試験にて, 熱接合部自体の強度, 破断形態について検討した。Fig.2(b) に示すように, 幅 15 mm, 長さ 100 mm の試験片を MD, TD にそれぞれ切り出し, 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 の円孔切り欠きを両側に施した試験片を 6 片準備した。試験条件は, つかみ具間距離 50 mm, 試験速度 20 mm/min とした。

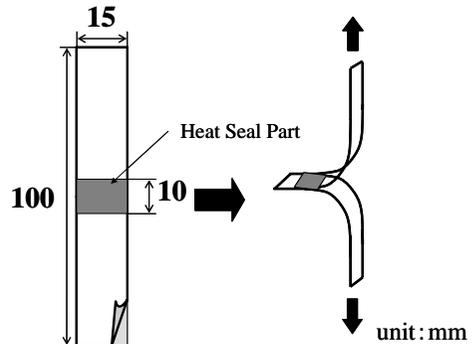


Fig.2 (a) Specimen of peel test

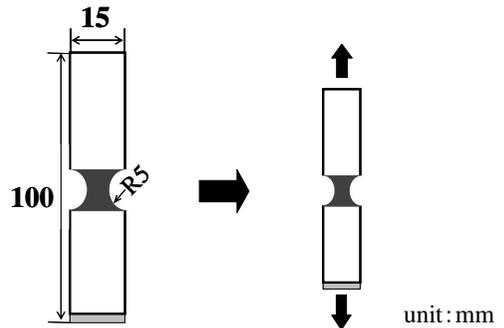


Fig.2(b) Specimen of semi-circular tensile test

## 2.5 示差走査熱量測定(DSC)

測定には DSC2920(TA Instruments 社製)を用いた。試料は、約 5 mg のフィルムを精密電子天秤 (XS105, メトラー・トレド社製) にて精密に質量測定し、アルミパンにクリンプした。測定は、窒素雰囲気下、50~300°Cの間を、10°C/min の昇温速度で行った。

## 3. 結果と考察

### 3.1 ヒートシール強度

Fig.3, Fig.4, Fig.5 に、未延伸、3 倍延伸及び 4 倍延伸した MD 及び TD 方向の C-RPET フィルムについて 100~240°Cの接合温度範囲でヒートシールし、その後ヒートシール強度試験を行った結果を示す。破壊形態はヒートシール温度により異なり、グラフ上にその違いを領域で示した。破壊時の最大荷重をヒートシール強度とし、その平均値をプロットした。

未延伸の C-RPET フィルムは MD 及び TD 方向とも 120°Cからヒートシールが可能ながわかった。接合温度の上昇とともにはく離強度は増加し、130°C程度から破壊形態が界面でのではなく離からシール部の破壊に変化し、より強固な接合となっていることがわかった。160°Cにおいて MD 方向フィルムで、32N/15mm の最大値を示した。180°C以上から破壊形態も接合部と非熱接合部の境界部での破壊に変化した。200°C以上になると強度は低下傾向を示し、さらに 220°C以上では、やや増加傾向を示した。

3 倍延伸の C-RPET フィルムについては TD 方向で 200°C、MD 方向で 210°Cから接合が開始された。はく離強度の最大値は接合温度 240°Cの MD 方向で 14.6N/15mm であった。4

倍延伸の C-RPET については TD 方向で 220°C、MD 方向で 210°Cから接合が開始されることがわかった。

フィルムの延伸に伴い分子配向度が増加する。ヒートシールにおいては分子鎖の緩和時間がヒートシール温度と密接に関連する。分子配向度の増加に伴い、緩和時間は長くなるため、フィルムの延伸によりヒートシール開始温度は高温へシフトしていると考察される。ヒートシール強度の最大値は延伸倍率の増加に伴い低下傾向を示すことがわかった。

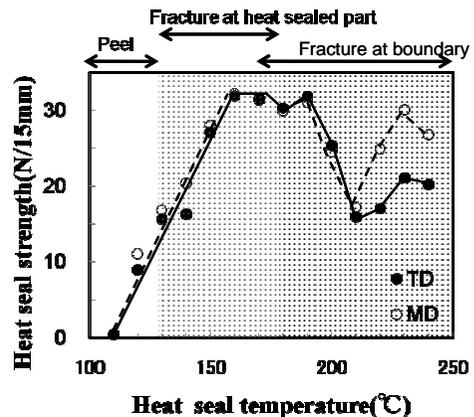


Fig. 3 Effect of heat seal temperature on heat seal strength for as-cast C-R PET Films

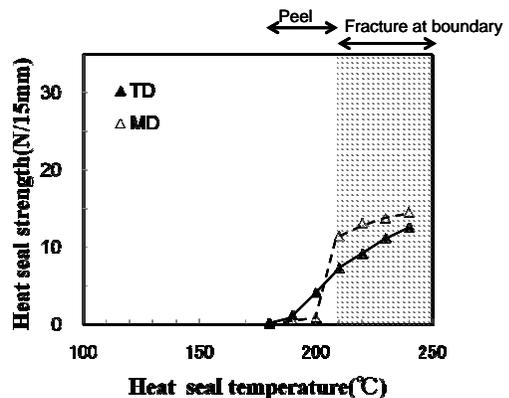


Fig. 4 Effect of heat seal temperature on heat seal strength for drawn C-R PET Films (Draw ratio=3)

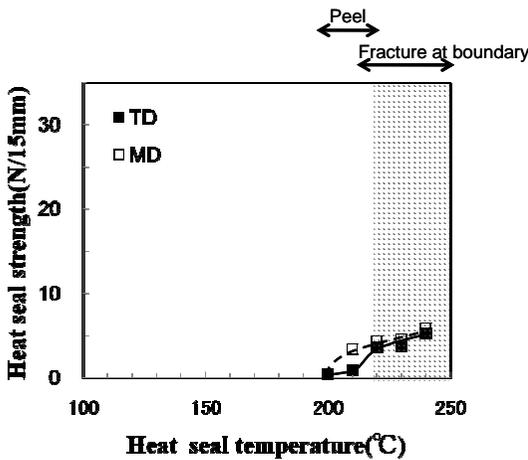


Fig. 5 Effect of heat seal temperature on heat seal strength for drawn C-R PET Films (Draw ratio=4)

### 3.2 円孔引張強度

Fig.6に未延伸C-R PETの円孔引張強度と熱接合温度の関係を示す。シール前フィルムの強度は、TD方向で56MPa、MD方向で52MPaであった。熱接合部の円孔引張強度は、TD方向で55MPa、MD方向で53MPaとほぼ一定であり、ヒートシール温度に依存せず、またヒートシールによる影響を受けないことがわかった。

Fig.7に3倍延伸C-R PETフィルムの円孔引張強度とヒートシール温度の関係を示す。シール前フィルムの強度は、TD方向で51MPa、MD方向で81MPaである。MD方向は延伸により、未延伸フィルムより強度が増加し、異方性が生じていることがわかる。熱接合温度が210°Cで円孔引張強度は50MPaまで低下し、未延伸フィルムと同等の強度となった。この温度はFig.4においてヒートシール強度が増加する温度に一致し、分子配向の緩和に伴う円孔引張強度の低下であるといえる。

Fig.8に4倍延伸C-R PETの円孔引張強度とヒートシール温度の関係を示す。シール前フィルムの強度は、TD方向で60MPa、MD方向で240MPaになっていた。MD方向は3倍延伸よりもさらに延伸倍率の増加により、高強度になっている。MD方向の円孔引張強度は、ヒートシール温度210°Cから低下傾向を示し、240°C以上で未延伸フィルムと同程度の円孔引張強度を示した。この未延伸フィルムと同程度の円孔引張強度を示す240°C以上の温度範囲はFig.5でシール部の破壊領域に一致している。このように延伸倍率の増加に伴い円孔引張強度はMD方向とTD方向で異方性が大きくなる。さらにヒートシールにより分子配向が緩和し、MD方向の円孔引張強度は低下する。240°C以上のヒートシール温度では、未延伸フィルムと同程度まで分子配向が緩和し、円孔引張強度も同程度の強度になると考察される。

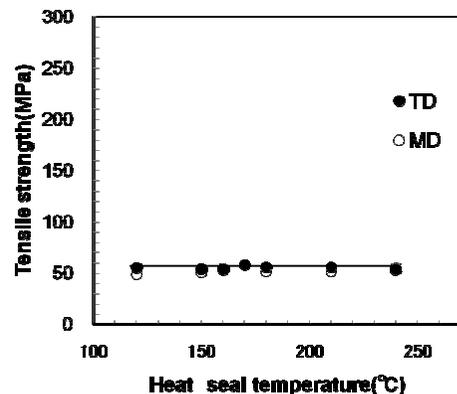


Fig.6 Tensile strength of semi-circular tensile test for as-cast C-R PET Films

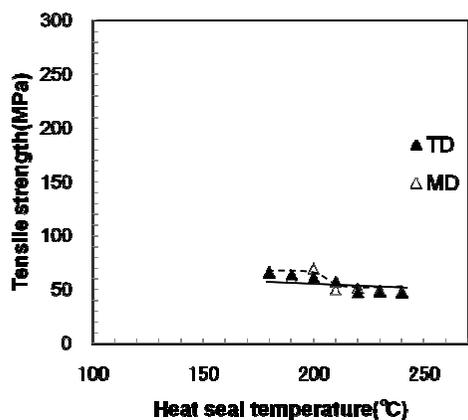


Fig.7 Tensile strength of semi-circular tensile test for drawn C-R PET Films(Draw ratio=3)

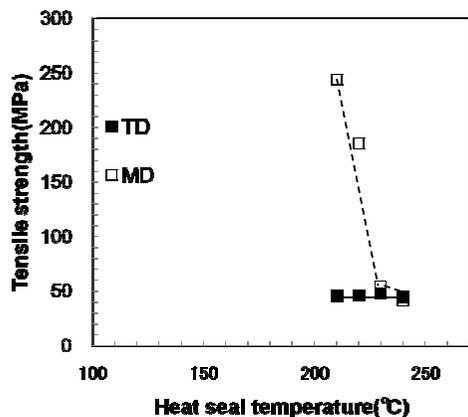


Fig.8 Tensile strength of semi-circular tensile test for drawn C-R PET Films(Draw ratio=4)

### 3.3 熱分析による高次構造形成

Fig.9 に未延伸、3 倍延伸、4 倍延伸したヒートシール前の C-R PET フィルムについて DSC 測定結果を示す。縦軸は単位質量当たりの熱量 ([W/g]) に換算した。下方向に吸熱を示す。ヒートシール前の未延伸 C-R PET フィルムは 130°C 付近で冷結晶化に伴う発熱ピークを示し、250°C 付近で融解の吸熱ピークを示した。3 倍延伸では未延伸に比べ、冷結晶化

に伴う発熱ピークが低温側にシフトし、より分子配向が促進していることが確認できた。4 倍延伸になると結晶化に伴う発熱ピークがほとんどなくなり、さらに分子配向等の高次構造形成が示唆された。

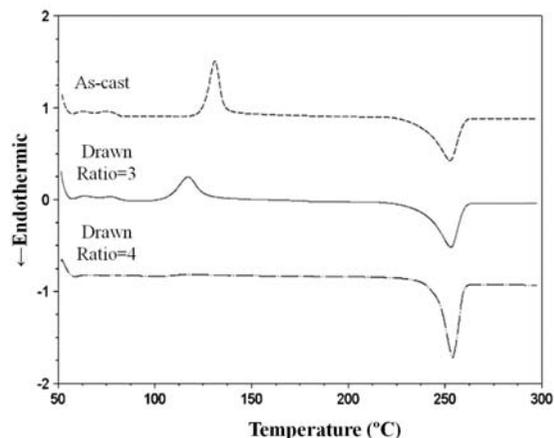


Fig.9 DSC thermograms for as-cast, drawn and heat sealed C-R PET films

Fig.10 に未延伸 C-R PET フィルムについてヒートシール前と 120~240°C でヒートシールした後の DSC 測定結果を示す。ヒートシールの有無及びヒートシール温度に関わらず、130°C 付近で冷結晶化発熱ピークを示し、250°C 付近で融解の吸熱ピークを示した。このことは Fig.6 に示した円孔引張強度がヒートシールの有無及びヒートシール温度に関わらず、一定であったことによく一致している。未延伸の C-R PET フィルムはヒートシールというごく短時間の熱履歴により高次構造変化を起こさないことが示唆された。

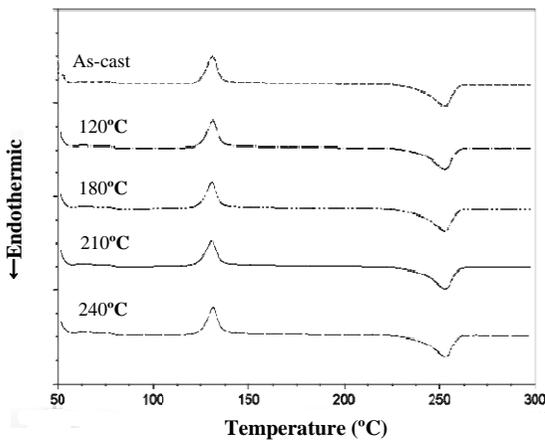


Fig.10 DSC thermograms for as-cast and heat sealed C-R PET films

Fig.11 に3倍延伸 C-R PET フィルムについてヒートシール前と 210 及び 240°C でヒートシールした後の DSC 測定結果を示す。210°C の DSC カーブでは、冷結晶化の発熱ピークがほぼ消失し、延伸により形成された高次構造がさらに成長したことが示唆された。

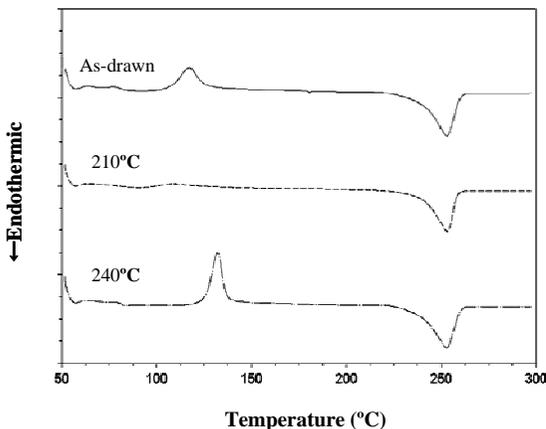


Fig.11 DSC thermograms for drawn and heat sealed C-R PET films(Draw Ratio=3)

240°C の DSC カーブは未延伸 C-RPET フィルムの結果とほぼ同様である。これは融点近

傍での熱接合により延伸により形成された高次構造が未延伸フィルムと同程度まで緩和したことが示唆された。これは Fig.5 の円孔引張強度が 240°C のヒートシールにおいて未延伸フィルムと同程度になっていることと一致している。

Fig.12 に4倍延伸 C-R PET フィルムについてシール前と 120~240°C でヒートシールした後の DSC 測定結果を示す。3倍延伸 C-R PET フィルム同様に 210°C の DSC カーブにおいては冷結晶化の発熱ピークが消失し、240°C においては未延伸 C-RPET とほぼ同様の結果となった。このことから、210°C のヒートシールにおいては、延伸による高次構造の成長、240°C においては高次構造の緩和による影響を確認できた。

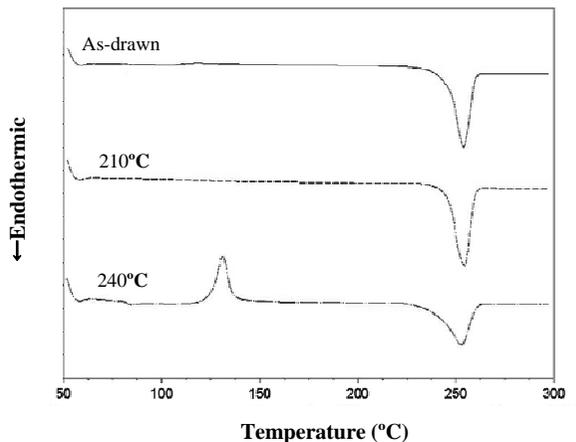


Fig.12 DSC thermograms for drawn and heat sealed C-R PET films(Draw Ratio=4)

### 3.4 ヒートシール性と高次構造形成

はく離試験結果から未延伸 C-RPET フィルムは 120°C 以上で熱接合が可能になるが、3

倍延伸、4倍延伸では、熱接合可能温度が高温側にシフトした。これらは、DSC測定結果から延伸に伴い、冷結晶化温度が低下し、冷結晶化量も低下する。このことから分子配向の促進など高次構造形成が延伸により進行していると考えられる。そのため3倍延伸、4倍延伸フィルムは熱接合温度200℃及び220℃からヒートシール強度が増加するに伴い、破壊形態もフィルム界面での破壊からシール部での破壊に転移した。240℃での接合においては、DSC測定結果から未延伸フィルムと同様のDSCカーブを示した。未延伸C-RPETフィルムのヒートシール前の結晶化度は、10.0%で各熱接合温度もほぼ同等であった。3倍延伸フィルムの熱接合温度240℃の結晶化度は、10.5%となり、4倍延伸フィルムの熱接合温度240℃の結晶化度は、10.3%であった。このことから、延伸及びヒートシール過程における高次構造形成が未延伸フィルムと同等まで緩和されることで熱接合が可能になっていると考察される。

円孔引張試験結果から、延伸倍率の増加に伴い、引張強度に異方性が生じ分子配向等異方性のもつ高次構造形成であることが明らかとなった。これらの構造はヒートシールにより緩和し、融点近傍の240℃以上で未延伸試料と同程度まで緩和することが明らかとなった。

## 5. 結言

ヒートシール強度試験結果から未延伸

C-RPETフィルムは160℃において32N/15mmのヒートシール強度を示した。延伸したC-RPETフィルムにおいては、ヒートシールは高温側にシフトするがヒートシールは可能であった。

DSC測定結果及び円孔引張強度試験結果より、本研究で用いたC-RPETフィルムは結晶化を大きく抑制されており、ヒートシール性に優れている一方、PETの持つ優れた機械特性を併せ持つことが明らかとなった。

本研究で用いたC-RPETフィルムは単層で袋として使用する場合、はく離試験結果から一般的なCPPフィルムと同程度の低温で熱接合が可能であることかつ、PETの優れた機械特性を有する包装用フィルムとして展開可能であることが明らかとなった。また、廃棄物の低減を考慮していく立場から、要求されるはく離強度と引張強度を延伸条件と接合温度を調整することでより薄膜化及び軽量化した包装資材設計を可能とすることが明らかとなった。

リサイクルPETボトルフレイクにカップリング剤と触媒を添加することで新規PETフィルムの製造が可能になり、PETを包装資材から包装資材へとマテリアルリサイクルし、循環型社会構築に貢献できる可能性を明らかにした。

## <参考文献>

- 1) PETボトルリサイクル推進協議会, 統計データ(2008年) 日米欧のPETボトルリサイクル状況比較

<http://www.petbottle-rec.gr.jp/data/index.html>

(2010年5月28日)

- 2) PET ボトルリサイクル推進協議会, 統計データ(2008年) 再生PET樹脂の用途

<http://www.petbottle-rec.gr.jp/data/index.html>

(2010年5月28日)

- 3) 中本パックス(株):コンバーティック 38(2), 2(2010)
- 4) 保坂範夫, ” はじめてのプラスチック成形”,工業調査会出版,P26(2003)
- 5) (株)東洋紡パッケージング・プラン・サービス, “包装用フィルム概論”,(株)東洋紡パッケージング・プラン・サービス発行 P230(1997)
- 6) 菱沼一夫, 日本包装学会誌, 18(2), 75(2009)

(原稿受付 2010年6月8日)

(審査受理 2011年3月9日)