

## OPP/ CPP フィルムの熱接合部および境界部の 力学的特性に及ぼす接合温度の影響

橋本 静生\*、橋本 由美\*、山田 和志\*\*、濱田 泰以\*\*

### Effect of Heat Sealing Temperature on Mechanical Properties of Heat-sealed Parts and the Edge of OPP/ CPP Film

Yasuo HASHIMOTO\*, Yumi HASHIMOTO\*,  
Kazushi YAMADA\*\* and Hiroyuki HAMADA\*\*

OPP/ CPP フィルムの熱接合部および境界部について、き裂試験および引裂試験を行い、力学的特性を評価した。また熱接合部の DSC 測定を行い、結晶化度の変化について検討した。き裂試験の結果から、 $K_{I\max}$  は、接合温度の上昇に伴って減少したが、接合境界部においては減少しなかった。引裂試験の結果から、接合温度 140°C における荷重-変位線図は、熱接合部においては TD および MD 共に約 1.8 N の荷重で推移しているのに対し、熱接合境界部においては、MD は約 2.1 N の荷重で推移、TD では 8 N まで増加した。さらに、DSC の結果から、ヒーター面から近い OPP フィルムは、接合温度の影響を大きく受け、結晶化度が低下することが明らかとなったのに対し、ヒーター面から遠い OPP フィルムでは、接合温度の影響をほとんど受けず結晶化度の低下がみられなかった。そのため、本試験における OPP/ CPP フィルムにおいては、ヒーター面から最も遠い OPP フィルムの力学的特性が力学試験の結果に反映されたと考えられる。

In this study, the effect of heat sealing temperature on mechanical properties of heat-sealed parts and the edge of OPP/ CPP film was investigated by using cracking tensile test, tear test, and DSC measurement. From the results of cracking tensile test,  $K_{I\max}$  was decreased with increasing the heat sealing temperature, whereas,  $K_{I\max}$  was not decreased at the heat sealed edge part of films. Load-displacement curves of tear test at 140 °C heat sealing temperature indicated that the load of TD and MD for the heat sealed part specimen was ca. 1.8 N, however, the load of TD and MD at heat sealed edge part were ca. 8 and 2.1 N, respectively. In addition, from the results of DSC measurement, it was found that crystallinity of heater-side film was decreased, whereas, that of opposite-side film was not decreased because of small influence of heat sealing temperature. Therefore, it is considered that the mechanical property of OPP/ CPP films was reflected by the property of film at a point distant from heater.

キーワード : 熱接合部、境界部、OPP/ CPP フィルム、き裂試験、引裂試験、DSC

Keywords : Heat Sealing Part, Heat Sealing Edge Part, OPP/ CPP Film, Fracture Mechanics Test , Tear Test, DSC

\* 連絡者 (Corresponding author), 富士インパルス株式会社 (〒561-0934 大阪府豊中市庄内栄町 4-23-18),  
Fuji-Inpulse Co., Ltd. 4-23-18, Syounaisakaemachi, Toyonaka City, Osaka 561-0834, Japan  
TEL: 06-6335-1850, FAX: 06-6335-1852, E-mail: yasuo.hashimoto@fujimpulse.co.jp,

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

## 1. 緒言

包装用フィルムとして、ポリエチレンフィルムやポリプロピレンフィルムをはじめとしてナイロンフィルムやポリエステルフィルムなど様々なポリマーフィルムが用いられている。中でもポリプロピレンフィルムは、透明性や防湿性、力学特性、耐寒性等に優れているため適用用途も多くある。一方、2 軸延伸ポリプロピレン(OPP)フィルムは、フィルム強度や耐熱性に優れるがヒートシール性が乏しく、無延伸ポリプロピレン(CPP)フィルムは、シール特性には優れる一方で耐寒性等が乏しくなるといった点がある。しかしながら、OPP/CPP ラミネートフィルムは、ヒートシール性の良い CPP と、耐湿性のある OPP をラミネートすることによって、双方の特性を兼ね備えたフィルムで、一般的な包装材として広く使われている。また、これら OPP/CPP フィルムのヒートシール特性およびシール強度に関する研究も数多く行われてきた<sup>1-9)</sup>。

しかしながら、実際のフィルムもしくは包装パッケージの事故事例において、フィルムの破損は「熱接合部」のみならず、「熱接合部と非加熱部の境界部」で生じることも多いが、それらに関する研究事例は他には見られない。

そこで本研究では、OPP/CPP 熱接合フィルムの熱接合境界部(エッジ)に着眼し、き裂試験、引裂試験、示差走査熱量測定(DSC)を用いて、これら熱接合フィルムの機械特性について検討したので報告する。

## 2. 実験

### 2.1 使用フィルム

試料は、二軸延伸ポリプロピレンフィルム(OPP) (パイレンフィルム-OT、P-2161、厚さ25 $\mu\text{m}$ 、東洋紡績(株)製) と、無延伸ポリプロピレンフィルム(CPP) (パイレンフィルム-CT、P-1128、厚さ20 $\mu\text{m}$ 、東洋紡績(株)製) をウレタン系接着剤でラミネートしたフィルム(OPP/CPP)を用いた。

### 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1.5kW、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(a)に示す。各加熱温度の試験片作製においては、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、加圧した後に設定温度(120 $^{\circ}\text{C}$ –180 $^{\circ}\text{C}$ まで10 $^{\circ}\text{C}$ 毎)まで加熱、設定温度到達後、0.1sec(この装置の最短保持時間)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。温度測定にはK型熱電対、厚み0.1mm(八洲測器社製、型番YC510)を用いた。

本研究において、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)では温度差が生じる。そこで Fig.1(b)に接合温度120 $^{\circ}\text{C}$ における内外温度差の履歴を示し、各接合温度における内外温度差をまとめたものを Fig.1(c)に示す。図に示す様に、フィルム表面および接合面間においては約20 $^{\circ}\text{C}$ の温度差が生じている。以後、接合温度とは「ヒーターを覆っているガラステープに接した面の温度」とし、接合

温度 120°Cとは「ガラステープに接した面」の温度を 120°Cにして熱接合したことを示す。接合面は CPP 面とした。熱接合時の圧力は装置固有の値 0.42MPa とした。

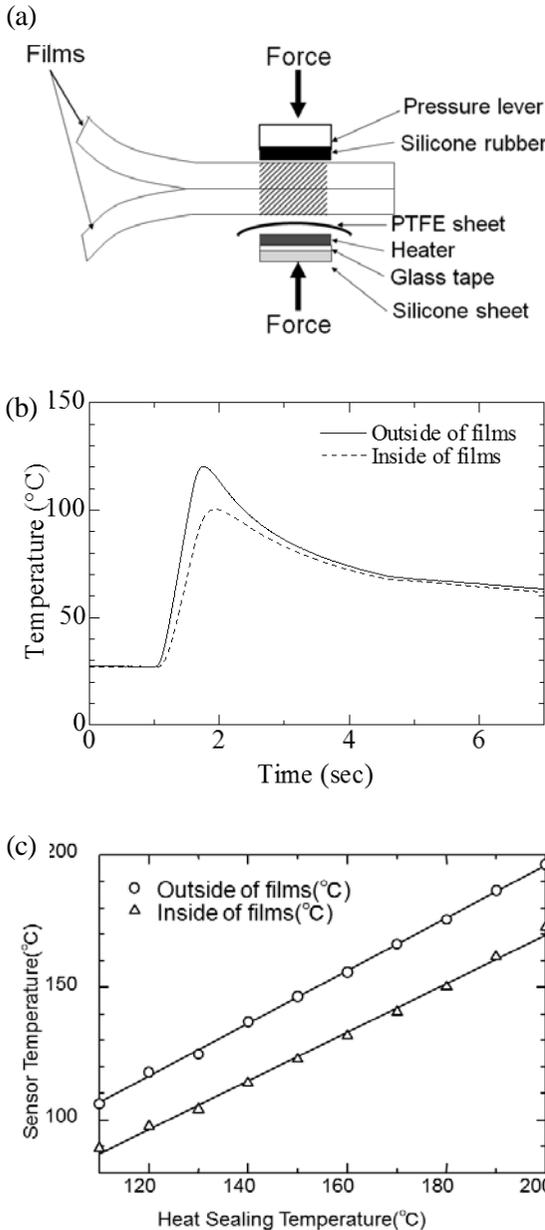


Fig.1 Schematic illustrations of heat-sealing (a) and temperature gap profile (b) (c) for each temperature.

### 2.3 き裂試験

Fig2 に、き裂試験片の形状を示す。幅 15 mm、長さ 100 mm の試験片を MD (フィルム作製時の巻取り方向)、TD (巻取り方向に対して垂直方向) に切り出し、30 mm 幅で接合したのち、接合部中央、境界部中央に、それぞれ 5 mm 幅のき裂をいれ、つかみ具間距離 50 mm、試験速度 20 mm/min で引張試験を行った。引張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。

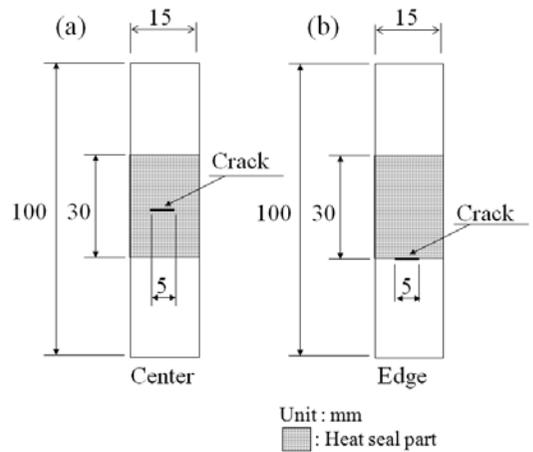


Fig.2 Schematic illustrations of specimens for cracking tensile test, (a) center position and (b) edge position for heat sealed part.

### 2.4 引裂試験

Fig.3 に、引裂試験片の形状を示す。日本工業規格、JIS K7128-1998 プラスチックフィルムおよびシート の引裂強さ試験方法—第 1 部：トラウザー引裂法<sup>10)</sup>に基づき、150 mm×50 mm に MD、TD にそれぞれ切り出し、2 枚重ねて 50 mm 幅のうち中央を 30 mm 幅接合した試験片と、50 mm 幅のうち端から 25 mm 接合した試験片を作製し、それぞれに、中央から 75 mm のスリットを入れた。前者の試験片により

熱接合部の特性が、後者の試験片より熱接合境界部の特性が得られることになる。

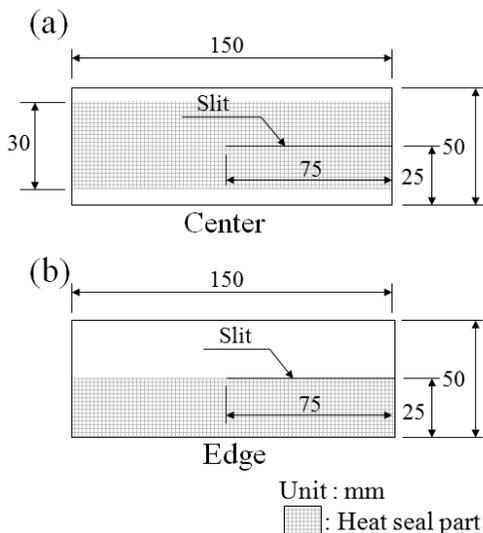


Fig.3 Schematic illustrations of specimens for tear test, (a) center position and (b) edge position for heat sealed part.

Fig.4 に示すように、試験機に固定し、つかみ具間距離：75 mm 引張速度：200 mm/min で試験を行った。

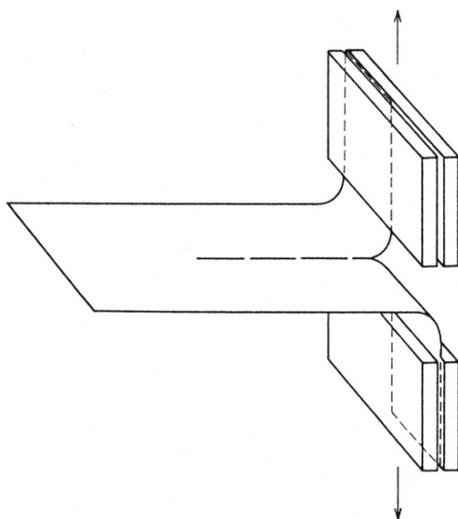


Fig.4 Schematic illustration of tear test.

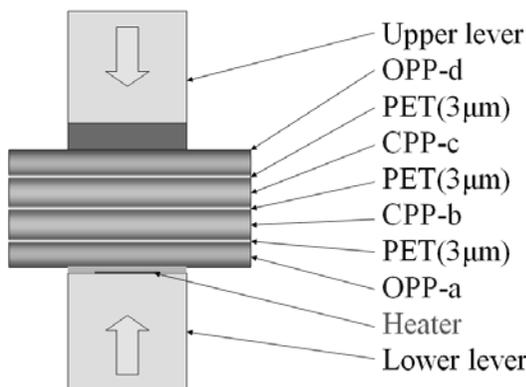


Fig.5 Schematic illustration of specimen for DSC measurement, PET films can block an adhesion of each films.

## 2.5 示差走査熱量測定 (DSC)

Fig.5 に示すように、OPP 単体フィルムと CPP 単体フィルムを用意し、4 枚が熱接合後、分離できるように、フィルム間に厚さ 3 μm の PET を間に挟み、OPP-a CPP-b CPP-c OPP-d の順に重ねて接合を行った。接合という表現を用いたが、実際には PET が溶融しないため接合されず、熱履歴のみが、通常の接合同様の状態になるように試験片を作製し、それぞれを分離して DSC を測定した。

測定には DSC7 (PerkinElmer 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(20 ml/min.)にて、50~200°Cの間を、40°C/min の昇温速度で加熱した。

## 2.6 実験結果

### 2.6.1 き裂試験

Fig.6 に、き裂試験における荷重-変位線図を示す。TD において、接合部では、接合温度 120°C で荷重は

37 N と最も高く、接合温度が高くなるにつれて最大荷重は低下している。破断形態は、150°C以下では脆性破断しているのに対し、160°C以上では降伏を伴う延性破断を生じていた。境界部でも同様に、接合温度が高くなるにつれて最大荷重は低くなっていたが、全ての温度で脆性破断を生じていた。MD

において、接合部では、接合温度 120°C で 32 N と最も高く、130~170°C では約 27~28 N で一定となっている。破断形態は全て延性破断であった。境界部では、120~170°C では、26~27 N と一定の値を示した。破断形態は接合部と同様に延性破断であった。

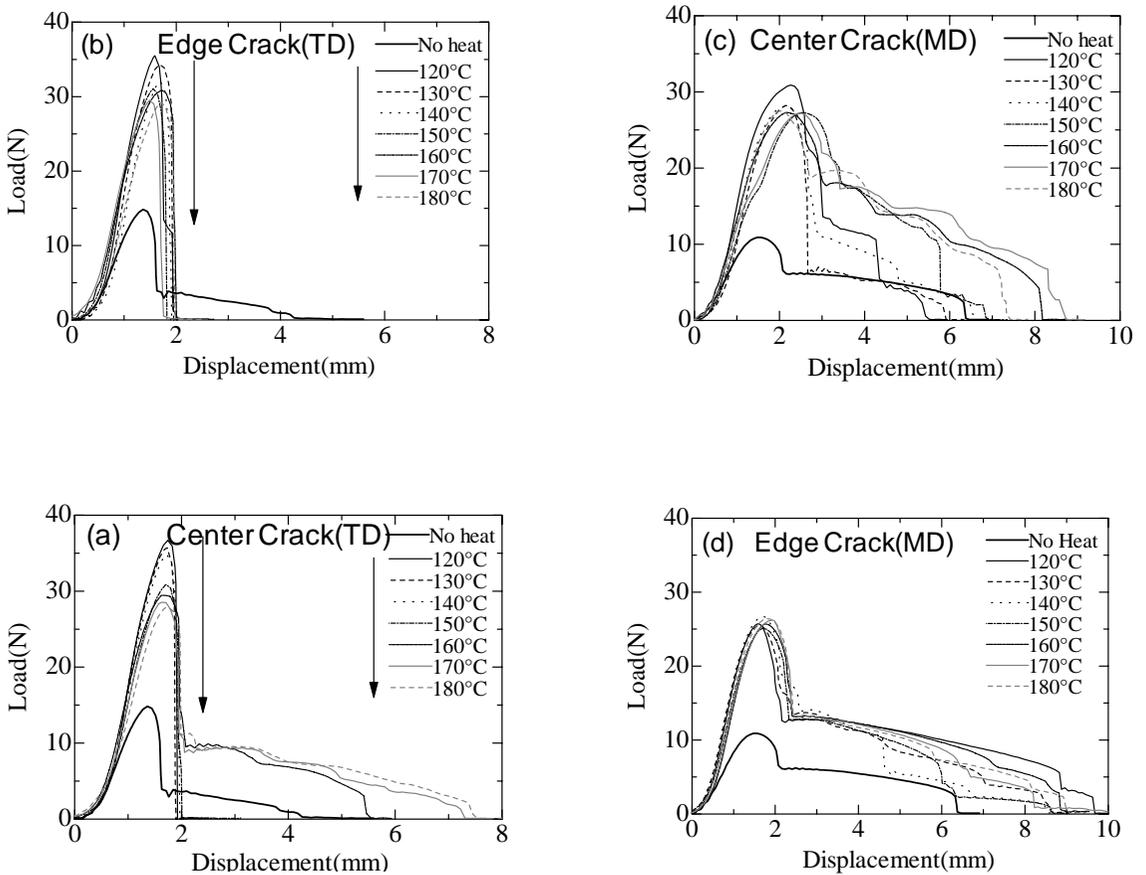


Fig.6 Load-displacement curves of cracking tensile test for various type of specimens.

Fig.7 に、き裂試験後の、き裂試験片の写真と試験片破断状態の分類を示す。き裂後の試験片状態は下記の5つに分類できた。

- A) 接合境界部、OPP と CPP の分離が少なく、伸びが少ない
- B) 接合境界部、OPP と CPP の分離が多く、伸びが多い
- C) 熱接合部、OPP と CPP の分離が少なく、伸びが少ない
- D) 熱接合部、OPP と CPP の分離が多く、伸びが多い
- E) 熱接合部、OPP と CPP が溶融し一体化、伸びが多い

境界部では、全ての TD 試験片は形態 A を示し、全ての MD 試験片は形態 B を示した。熱接合部では、160°C以上で、TD、MD ともに形態 E を示した。

Fig.8 に、き裂試験の応力拡大係数 ( $K_{I,max}$ ) を示す。応力拡大係数は、き裂先端付近の応力の大きさを決める唯一のパラメーターであり、次式によって算出した。

応力拡大係数：

$$K_I = \sigma \sqrt{\pi a} F(2a/W); 2a/W = \xi \text{ とおくと}$$

$$F(\xi) = \sqrt{\sec(\pi\xi/2)} \quad (\xi \leq 0.7 \text{ で } 0.3\%, \xi = 0.8 \text{ で } 1\%)$$

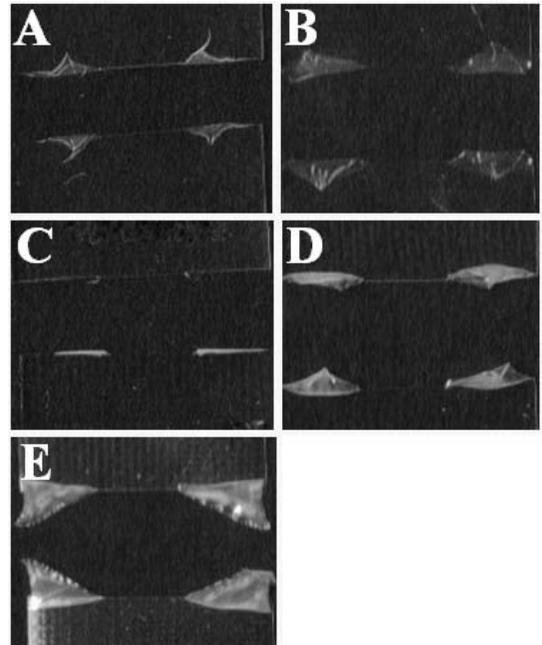
$$F(\xi) = (1 - 0.025\xi^2 + 0.06\xi^4) \sqrt{\sec(\pi\xi/2)} \quad (0.1\%)$$

$$F(\xi) = (1 - 0.5\xi + 0.370\xi^2 - 0.044\xi^3) / \sqrt{1-\xi} \quad (0.3\% \text{ 以下})$$

$$\text{なお, } \begin{cases} F(0) = 1 \\ \lim_{\xi \rightarrow 1} F(\xi) = \frac{2}{\sqrt{\pi^2 - 4}} \cdot \frac{1}{\sqrt{1-\xi}} = \frac{0.826}{\sqrt{1-\xi}} \end{cases}$$

( $\sigma$ : 引張応力、 $a$ : き裂幅  $\times 1/2$ 、 $W$ : 試験片幅)

TD、MD ともに、熱接合部において、 $K_{I,max}$  は、接合温度が上がるほど減少していたが、接合境界部においては減少していなかった。そして、150~160°C付近で、定常状態になった。



Center Crack (TD)						Edge Crack (TD)					
No.	1	2	3	4	5	No.	1	2	3	4	5
0	A	A	A	A	A	0	A	A	A	A	A
120	C	C	C	C	C	120	A	A	A	A	A
130	C	C	C	C	C	130	A	A	A	A	A
140	C	C	C	C	C	140	A	A	A	A	A
150	C	C	C	C	C	150	A	A	A	A	A
160	E	E	E	E	C	160	A	A	A	A	A
170	E	E	E	E	E	170	A	A	A	A	A
180	E	E	E	E	E	180	A	A	A	A	A

Center Crack (MD)						Edge Crack (MD)					
No.	1	2	3	4	5	No.	1	2	3	4	5
0	B	B	B	B	B	0	B	B	B	B	B
120	D	D	D	D	D	120	B	B	B	B	B
130	D	D	D	D	D	130	B	B	B	B	B
140	D	D	D	D	D	140	B	B	B	B	B
150	D	D	D	D	D	150	B	B	B	B	B
160	E	E	E	E	E	160	B	B	B	B	B
170	E	E	E	E	E	170	B	B	B	B	B
180	E	E	E	E	E	180	B	B	B	B	B

Fig.7 Classification of cracking tensile test results for various types of specimens.

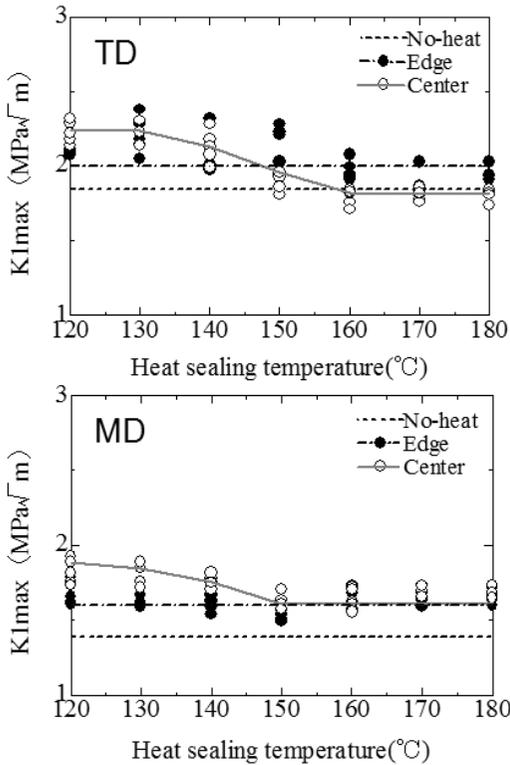


Fig.8 Maximum stress intensity factor ( $K_{I,max}$ ) for different heat sealing temperature for each specimens.

Fig.9 に、接合温度 140°Cにおける荷重-変位線図を示す。熱接合部においてはTD、MD 共 1.8Nの荷重で推移している。一方、熱接合境界部において、

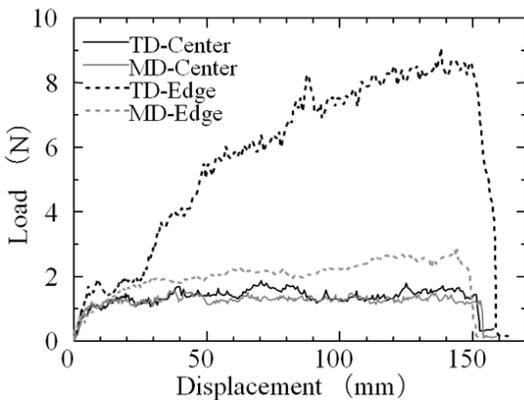
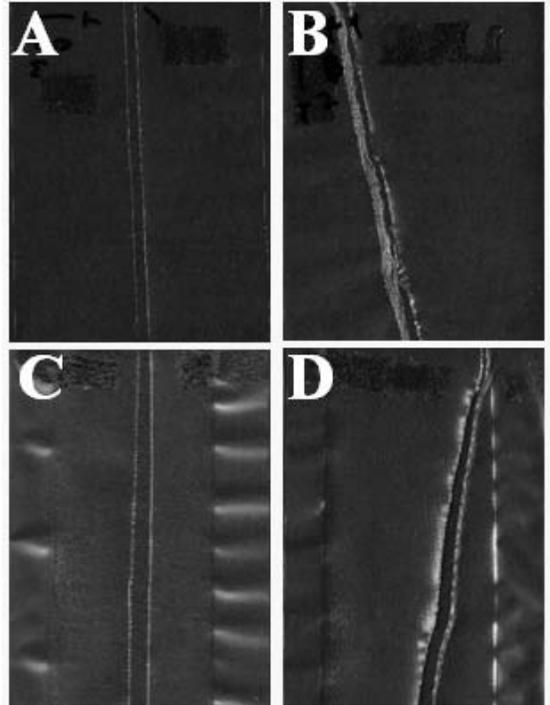


Fig.9 Load-displacement curves for tear test at 140°C.

MDは2.1 Nの荷重で推移しているが、TDでは8Nまで増加していた。



Center Crack (TD)						Edge Crack (TD)					
No.	1	2	3	4	5	No.	1	2	3	4	5
0	B	B	B	B	B	0	B	B	B	B	B
120	C	C	C	C	C	120	B	B	B	B	B
130	C	C	C	C	C	130	B	B	B	B	B
140	C	C	C	C	C	140	B	B	B	B	D
150	C	C	C	D	D	150	B	B	B	D	D
160	D	D	D	D	D	160	B	D	D	D	D
170	D	D	D	D	D	170	B	B	B	B	B
180	D	D	D	D	D	180	B	D	D	D	D

Center Crack (MD)						Edge Crack (MD)					
No.	1	2	3	4	5	No.	1	2	3	4	5
0	A	A	A	A	A	0	A	A	A	A	A
120	C	C	C	C	C	120	A	A	A	A	A
130	C	C	C	C	C	130	A	A	A	A	A
140	C	C	C	C	C	140	A	A	A	A	A
150	C	C	D	D	D	150	A	A	A	A	D
160	D	D	D	D	D	160	A	A	A	A	D
170	D	D	D	D	D	170	A	A	A	A	D
180	D	D	D	D	D	180	A	A	A	A	A

Fig.10 Classification of tear test results for various types of specimens.

Fig10 に、引裂試験後の、引裂試験片の写真と試験片破断状態の分類を示す。引裂き後の試験片状態は、次の4つの状態に分類できた。

- A) 非接合部で引裂かれ、OPP と CPP が、分離していない
- B) 非接合部で引裂かれ、OPP と CPP が、分離している
- C) 熱接合部で引裂かれ、OPP と CPP が、分離していない
- D) 熱接合部で引裂かれ、OPP と CPP が、分離している

熱接合部においては、接合温度 120~140°C では、TD、MD 共に OPP と CPP の分離がなく、破断面が鋭く裂けていた (形態 C)。接合温度 150°C 以上では、TD、MD 共に OPP と CPP の分離を伴いながら裂けていた (形態 D)。

接合境界部においては、非接合部で裂ける試験片については、全て、TD では形態 B、MD では形態 A を示したが、接合温度 150°C 以上では、形態 D が現れた。

## 2.6.2 引裂試験

## 2.6.3 示差走査熱量測定 (DSC)

Fig11 に、最もヒーター面に近い OPP フィルムの DSC 曲線を示す。接合温度 120~140°C では、吸熱ピークは、172°C であり 150~180°C では 158°C に低下していた。Fig12 に、ヒーター面から 2 番目に近い CPP フィルムの DSC 曲線を示す。吸熱ピークは、どの接合温度においても 146°C で一定であった。

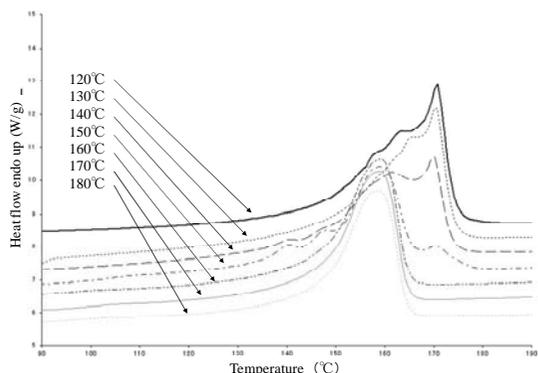


Fig.11 DSC curves of OPP-a film at various heat sealing temperature.

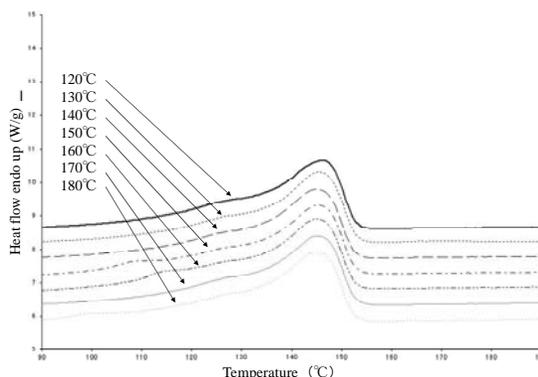


Fig.12 DSC curves of CPP-b film at various heat sealing temperature.

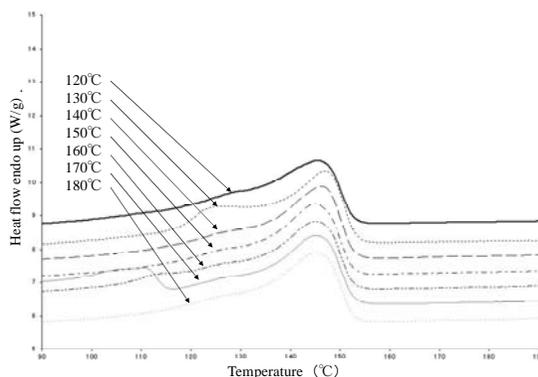


Fig.13 DSC curves of CPP-c film at various heat sealing temperature.

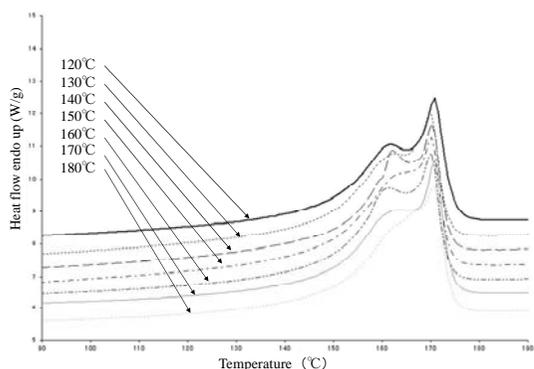


Fig.14 DSC curves of OPP-d film at various heat sealing temperature.

Fig.13に、ヒーター面から3番目に近いCPPフィルムのDSC曲線を示す。吸熱ピークは、どの接合温度においても146°Cで一定であった。Fig.14に、最もヒーター面から遠いOPPフィルムのDSC曲線を示す。全ての温度において、吸熱ピークは、172°Cで一定であり、結晶構造は、変化していないことがわかった。

Fig.15に、融解熱と接合温度との関係を示す。CPPにおいては、ヒーター面からの距離に関わらず、融解熱は約70 J/gと一定であった。一方OPPにおいては、ヒーター面から近いフィルムは、融解熱が低下するが、ヒーター面から遠いフィルムでは、融解熱は約100 J/gと一定であった。

### 3. 考察

き裂試験の結果から、 $K_{I,max}$ は、接合温度が上がるほど減少していたが、接合境界部においては、減少していなかった。そして、150~160°C付近で、定常状態になった。この結果は、過去の研究で述べられている適切な接合温度140°Cと一致していた<sup>8)</sup>。

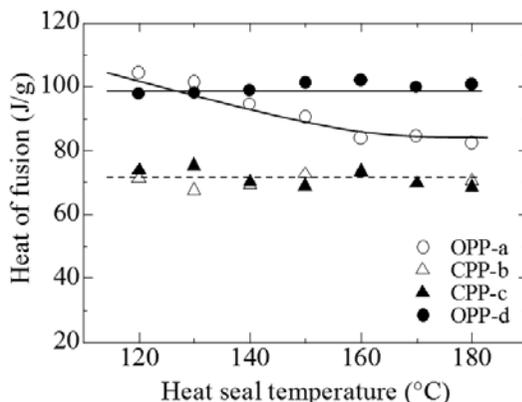


Fig.15 Heat of fusion ( $\Delta H$ ) of OPP and CPP films for each heat sealing temperature.

つまり120~130°Cでは、フィルムが溶融しないため、接合されない。そのため $K_{I,max}$ が高く、かつ接合される140°Cが適切であるといえる。接合温度が上がるほど $K_{I,max}$ が低下する理由としてはOPPの延伸緩和によるものだと考えられる。

本研究の引裂試験においては、引裂きが接合境界部を走らず非接合部または接合部のどちらかへ伸展しているため、接合境界部そのものの強度は確認できなかった。しかしながら、接合温度140°C以下と、150°C以上では、破断形態に違いが見られることがわかった。この結果は、き裂試験の結果と一致した。

DSC測定の結果から、OPPにおいては、ヒーター面から近いフィルム (OPP-a) は、接合温度の影響を大きく受け、結晶化度が低下してしまうのに対し、ヒーター面から遠いフィルム (OPP-d) では、接合温度の影響をあまり受けず、結晶化度の低下が殆どなかったと考えられる。そのため、このフィルムに関しては、ヒーター面から最も遠いOPPフィルムの力学的特性が力学試験の結果に反映されたと考え

られる。また、これらの結果は片側加熱方式で行った場合に見られる現象であると考えられ、両面加熱方式においては引張強度およびフィルムの高次構造変化は異なることが示唆される。

#### 4. 結論

OPP/CPP フィルムの熱接合部および境界部について、き裂試験、引裂試験を行い、力学的特性を評価、DSC を行い、結晶化度の変化について検討した。その結果、本研究における OPP/CPP フィルムにおいては、熱接合温度が高くなるにつれて、引裂試験における最大荷重が低下することがわかった。また、DSC 測定結果より、フィルム接合面における CPP-b および CPP-c、OPP-d のフィルムに対する融解ピーク温度シフトおよび熱量変化はごく僅かであるのに対し、ヒーター面から近いフィルム OPP-a は、熱接合温度の上昇とともに融解ピーク温度および熱量が大きく低下することが明らかとなった。従って、引裂試験における最大荷重の低下は、延伸された OPP-a フィルムが接合時の熱により溶融緩和したために生じていると考えられ、これらの現象は片側加熱方式の場合に特有であることが示唆された。

- 3) Tsujii Tetsuya, Yasuo Hashimoto, U. S. Ishiaku, M. Mizoguchi, Y. W. Leong, Hiroyuki Hamada, *Journal of Applied Polymer Science*, 99(2), 513-519 (2006)
- 4) Dinesh Aithani, Hugh Lockhart, Rafael Auras, Krittika Tanprasert, *Packaging Technology and Science*, 19(5), 245-257 (2006)
- 5) C. S. Yuan, A. Hassan, *eXPRESS Polymer Letters* 1(11), 773-779 (2007)
- 6) Rajarajan Aiyengar, Jyoti Divecha, *Journal of Plastic Film and Sheeting*, 28, 244-256 (2012)
- 7) S. Mihindukulasuriya, L.-T. Lim, *Packaging Technology and Science*, 25(5), 271-284 (2012)
- 8) Y.Hashimoto, U.S.Ishiaku, H.Hamada : *Polymer Engineering & Science*, 46(2), 205 (2005)
- 9) 橋本由美, 橋本静生, 辻井哲也, 森本光彦, 小滝雅也, 濱田泰以 : *成形加工*, 19(4), 236 (2007)
- 10) 日本工業規格, JIS K7128-1998 プラスチックフィルムおよびシートの引裂強さ試験方法—第1部 : トラウザー引裂法

(原稿受付 2012年11月13日)

(審査受理 2013年4月19日)

#### <参考文献>

- 1) Cengiz Caner, Ruben J. Hernandez, Bruce R. Harte, *Packaging Technology and Science*, 17(1), 23-29 (2004)
- 2) Tsujii Tetsuya, U.S. Ishiaku, Machiko Mizoguchi, Hiroyuki Hamada, *Journal of Applied Polymer Science*, 97(3), 753-760 (2005)

