

一般論文

ポリ乳酸フィルム熱接合部の 力学的特性に及ぼす接合温度保持時間の影響

橋本 静生*, 橋本 由美*, 辻井 哲也**,
Yew. W. LEONG***, 山田 和志***, 濱田 泰以***

Effect of Hold Times at Heat Sealing Temperature on Mechanical Properties of Heat-sealed Parts of Polylactic Acid Film

Yasuo HASHIMOTO*, Yumi HASHIMOTO*, Tetsuya TSUJII**,
Yew. W. LEONG***, Kazushi YAMADA*** and Hiroyuki HAMADA ***

はく離試験, 円孔引張試験, き裂試験, DSC 測定を行い, 接合温度保持時間が, ポリ乳酸フィルム接合部の力学的特性に及ぼす影響について検討した. はく離試験の結果, 接合温度保持時間が長いほど, はく離強度が向上することが明らかとなった. また, 円孔引張試験の荷重変位線図において, 変位は, 接合温度保持時間 0.1sec よりも, 1.0sec の方が長かった. き裂試験において, 応力拡大係数は, 接合温度保持時間 0.1sec よりも, 1.0sec の方が高かった. しかしながら, DSC 測定の結果, 結晶化度は, 接合温度保持時間 0.1sec に比べ, 1.0sec の方が著しく低下しているということとはなかった.

In this study, the effect of hold times at heat sealing temperature on mechanical properties of heat-sealed parts of polylactic acid film was investigated using peel test, tensile test with circular notch, crack test and DSC. The peel strength increased with increasing the hold time at heat sealing temperature. In the load displacement curve of circular notch test, the displacement at the fracture in the case of 1.0sec hold time was longer than that of 0.1sec. In the crack test, the stress intensity factor of 1.0sec was higher than that of 0.1sec. However in DSC measurement, the remarkable difference between 1.0sec and 0.1sec was not observed in the heat of fusion.

キーワード: 接合温度保持時間, ポリ乳酸フィルム, はく離試験, 円孔引張試験, き裂試験

Keywords: hold time at heat sealing temperature, polylactic acid film, peel test, tensile test with circular notch, crack test

*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-impulse Co., Ltd. 4-23-18, Syounaisakaemachi, Toyonaka-shi, Osaka 561-0834, Japan
TEL: 06-6335-1850, E-mail: yasuo.hashimoto@fujimpulse.co.jp

** 株式会社パーキンエルマージャパン

*** 京都工芸繊維大学

1. 緒言

市場に登場した 90 年代前半期における生分解性プラスチックの認識は「使用中は通常のプラスチックと同様に使えて、使用後は自然界において微生物が関与して低分子化合物、最終的には水と二酸化炭素に分解するプラスチック」¹⁾であった。しかし、国際的な合意を得たプラスチック製品の“生分解性”の用語としての定義は「特定の標準試験法の下で所定時間内にバクテリア、菌や藻類等微生物の作用によって指定された程度に分解を受けた場合、その材料は“生分解性”があり」となっており、標準化試験法の下での所定量以上の生分解速度の確保を前提としている²⁾。これらのプラスチックは、現在の高分子材料システムが直面する地球環境問題を解決できるキーマテリアルとして注目を集めている。さらに最近では、生分解性という機能だけではなく、植物由来の原料すなわち、石油などの化石資源の節約と地球温暖化ガスの削減を目的としたバイオマス（または植物由来）プラスチックとして注目をあつめるようになってきた³⁾。現在、容器包装、食品、家電、自動車など各種のリサイクル法が定められ具体的な対応が進められている。消費者も環境に対する意識が向上しており、環境に配慮した製品の必要性が高まっている。生分解性フィルムはコンポスト袋、農水土木資材分野で農業用フィルムとして比較的普及しているが、今後はコスト、品質、社会構造などが整備され次第、より身近な包材として扱われると考

えられる。

一般に袋を作製する際には、強度、生産性、安全性および環境、リサイクル⁴⁾などの観点から熱接合法が多く用いられている。熱接合は、流通における取り扱い、特に液体包装においては、使用されるときまで破損しない、安定した状態であることが重要な特性と考えられる⁵⁾⁶⁾。袋の破損、破袋の多くは加工された接合部および接合部を含む部分で生じている⁷⁾。この問題を検討するために、プラスチックフィルムの熱接合に関する一連の研究が報告されている⁸⁾。

シーラーによって得られるシール強度とは、シール時の温度、圧力、時間の条件によって決まる機械的強度である。

そこで本研究では、ポリ乳酸フィルムの、熱接合部の力学的特性に及ぼす、接合温度保持時間の影響について検討したので報告する。

2. 実験方法

2.1 使用フィルム

試料は、二軸延伸ポリ乳酸フィルム(PLA)を用いた。PLAは、一般的には乳酸の環状2量体であるラクチドを開環重合させて得られるポリエステルである。ラクチドにはL体、D体、メソ体の光学異性体が存在する。本研究ではL体のPLAフィルム(テラマック-TF-25, ユニチカ社製)を用いた。なお、主な物性値は $T_g: 57$, 融解温度: $165 \sim 170$, 厚さ $25\mu\text{m}$ であった。

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 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 0.1sec ,および 0.5sec , 1.0sec 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 に示すように、本研究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、0.1sec においては、約 15℃ , 0.5sec では約 10℃ , 1.0sec では約 5℃ となっており、接合温度保持時間を設定することによって、表面温度と内部温度差は少なくなっていた。本論文では以後、外側の温度を接合温度と定義する。実験は、接合温度 115~155℃ まで 10℃ 毎に各温度で行った。

2.3 はく離試験

はく離試験⁹⁾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 に示すように, PLA 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 15mm, 長さ 100mm の大きさに切り出し, 2 枚重ね, 中央部を幅 10mm で熱接合を行なった。試験片は接合温度 115~155℃ 間で 10℃ 毎に作製した。熱接合時、接合部に厚さ 12 μm の PET フィルムを 5mm 挟

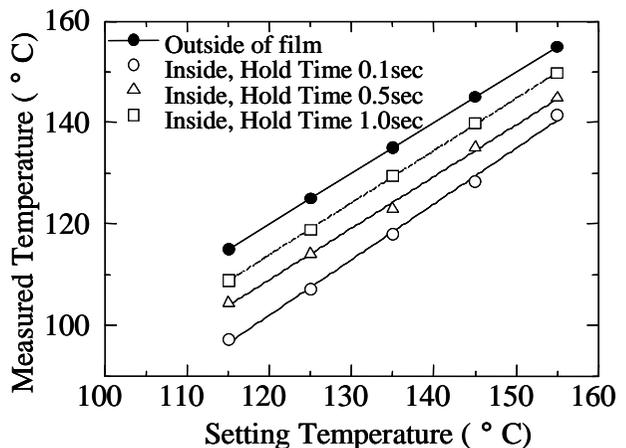
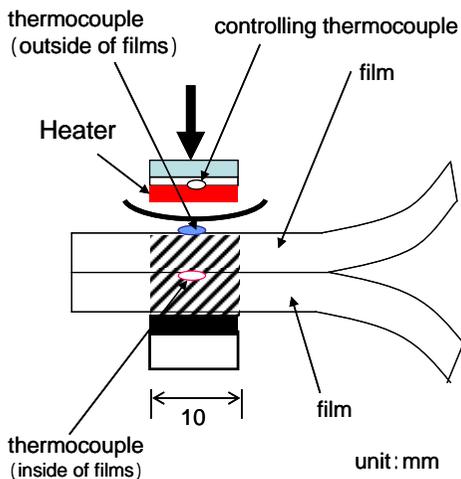


Fig.1 Schematic diagram of heat sealing

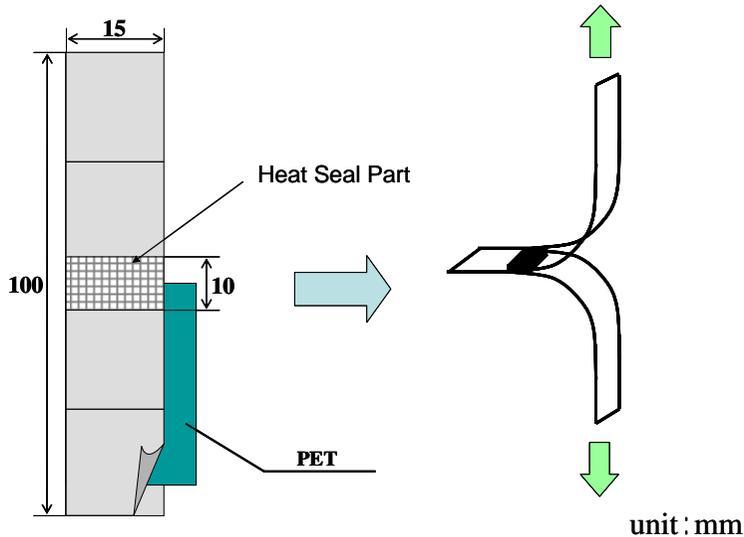


Fig.2 Specimen of peel test

んだ．PET フィルムを挟む理由として，PET フィルムは 155 °C では融解しないため，試験片は幅 5mm 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 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.3 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．試験条件は，つかみ具

間距離 50 mm，試験速度 20 mm/min とした．

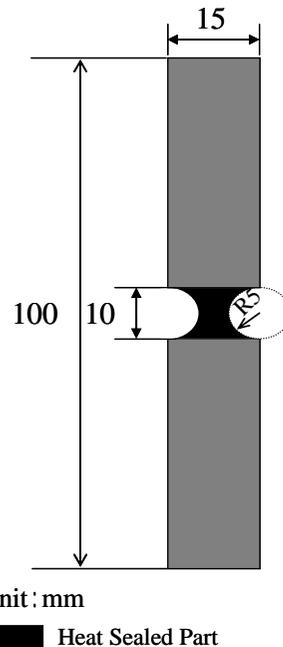
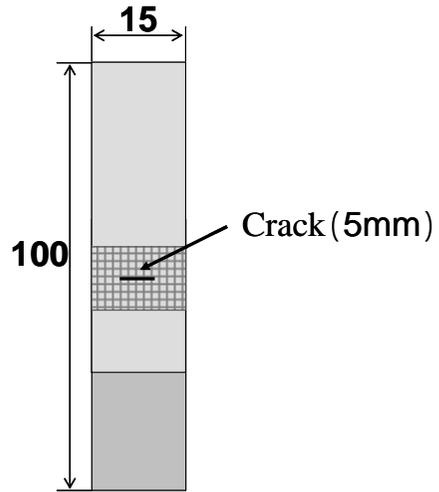


Fig.3 Specimen of circular notch test

2.5 き裂試験

実際の破袋事故は、フィルムに「き裂」がはいて起こることも多く、き裂を有するフィルムに外力が作用すると、き裂先端に高い応力集中が生じ、その結果「フィルム自体の強度」よりもかなり低い応力で破壊することがあるため「き裂試験」にて「熱接合部」の応力拡大係数 $K_{I,max}$ について検討した。Fig.4 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, TD に切り出し、10 mm 幅で接合したのち、接合部中央に、5mm 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。応力拡大係数 $K_{I,max}$ は次式(1)によって算出した¹⁰⁾。



(UNIT: mm)

Fig.4 Specimen of crack test

応力拡大係数：

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

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

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

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

なお、

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

(1)

2.6 示差走査熱量測定(DSC)

PerkinElmer 社製入力補償 DSC 装置、DiamondDSC を用い、窒素雰囲気下、-25 ~ 200 を 40 /min で昇温した。試料は 2mg 程度とし、ウルトラマイクロ電子天秤を用いて正確に 0.01mg まで秤量した。

3. 結果

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 3 種類に大別できた。

- A) 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。(完全はく離型)
- B) 熱接合界面ではく離した後、熱接合部が破断する形態(はく離・接合部破断混合型)

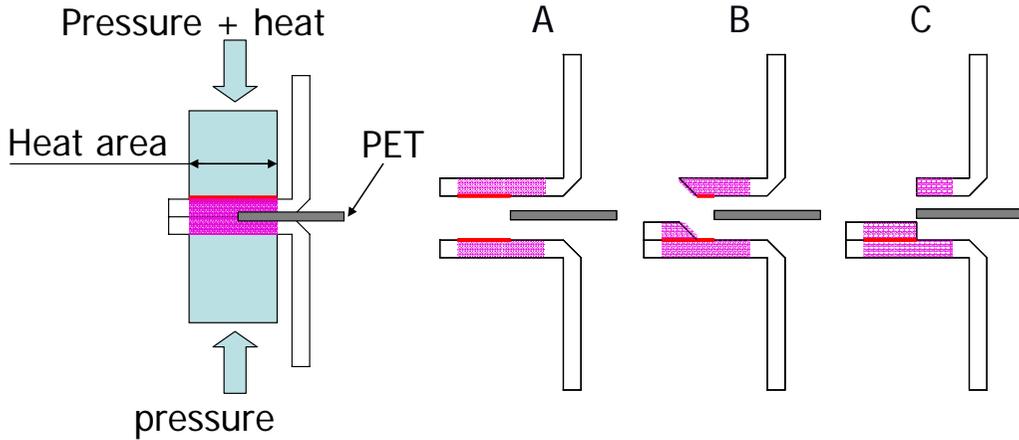


Fig.5 Schematic Fracture patterns of specime

C) はく離が生じず、熱接合部で破断する形態。(熱接合部破断型)

Table1 に、はく離後試験片の観察結果¹¹⁾を示す。全ての試験片が JIS Z 0238 に規定される「はく離強度」3N/15mm を上回る 125 において、0.1sec、0.5sec では T D に形態 A の試験片が見られるのに対し、1.0sec では、全ての試験片が形態 B を示していた。

3.2 円孔引張試験

Fig.6 に円孔引張試験における荷重 - 変位曲線 (MD) を示す。125、0.1sec においては、変位 0.5mm で荷重が約 20N に達し、その後その荷重を変位 1.3mm まで保持して破断していた。それに比べ、125、1.0sec では、荷重約 20N を変位 1.6mm まで保持しており、接合温度保持時間を設けることによって、破断しにくくなっていることが分かった。

Table1 Fracture patterns of specimen

| | 0.1sec | | | | | | 0.5sec | | | | | | 1.0sec | | | | | |
|----|--------|---|---|---|---|---|--------|---|---|---|---|---|--------|---|---|---|---|---|
| TD | 115 | A | A | A | A | A | 115 | A | A | A | A | A | 115 | A | A | A | A | A |
| | 125 | A | A | A | A | B | 125 | A | A | B | B | B | 125 | B | B | B | B | B |
| | 135 | B | B | C | C | C | 135 | B | B | B | B | C | 135 | B | B | B | B | C |
| | 145 | C | C | C | C | C | 145 | C | C | C | C | C | 145 | C | C | C | C | C |
| | 155 | C | C | C | C | C | 155 | C | C | C | C | C | 155 | C | C | C | C | C |
| MD | 115 | A | A | A | A | A | 115 | A | A | A | A | A | 115 | A | A | A | A | A |
| | 125 | B | B | B | B | B | 125 | B | B | B | B | B | 125 | B | B | B | B | B |
| | 135 | B | B | B | B | B | 135 | B | B | B | B | C | 135 | C | C | C | C | C |
| | 145 | C | C | C | C | C | 145 | B | B | C | C | C | 145 | C | C | C | C | C |
| | 155 | C | C | C | C | C | 155 | B | B | C | C | C | 155 | B | B | C | C | C |

145 においては、0.1sec, 1.0sec とともに変位約 0.5mm で荷重が約 15N となるが、1.0sec のほうが、破断しにくい傾向にあった。TD についても同様の傾向がみられた。

Fig.7 に、MD における、引張強度と接合温度の関係を示す。引張強度は接合温度 115 で最も高く、約 78MPa であった。引張強度は

接合温度が高くなるにしたがって低下し、接合温度 145 で 50MPa を示した後、一定となっていた。非加熱フィルムの引張強度が 78MPa であることより、MD において、本試験に用いた PLA フィルムは、熱接合によって、引張強度が低下していることがわかった。接合温度保持時間の影響は、ほとんど見られな

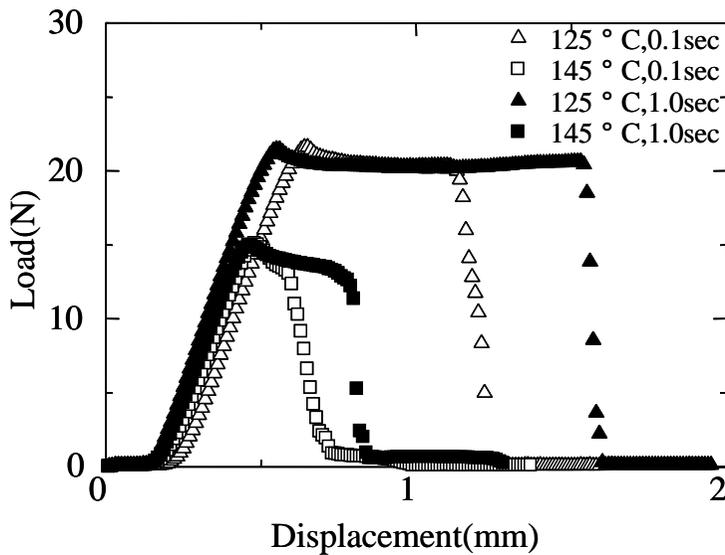


Fig.6 Load displacement curves of MD

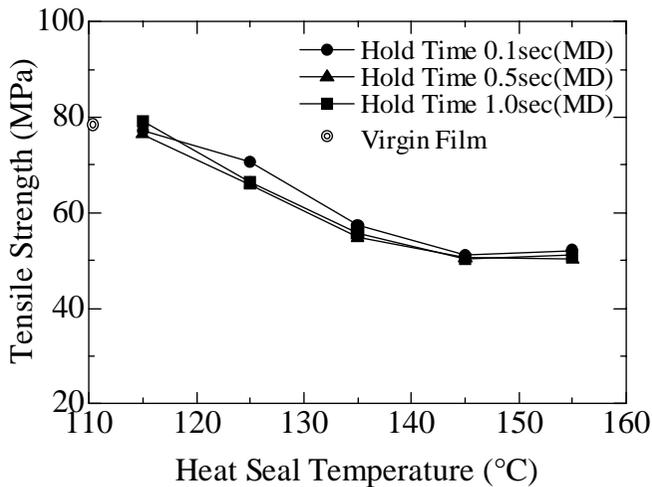


Fig.7 Tensile strength as a function of temperature (MD)

かった .TD についても同様の傾向であった .

では約 $2.5 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ であった .TD についても同様の傾向であった .

3.3 き裂試験

Fig.8 に、MD の、応力拡大係数 ($K_{I,max}$) と接合温度の関係を示した . 全ての接合温度保持時間において、115 で $K_{I,max}$ は最も高く約 $3 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ を示し、接合温度が高くなるにしたがって、低下する傾向にあり、155

3.4 示差走査熱量測定 (DSC)

Fig.9 に、接合温度と融解熱の関係を示す . 接合温度が高くなるに従い、融解熱は減少し結晶化度が小さくなっていった .

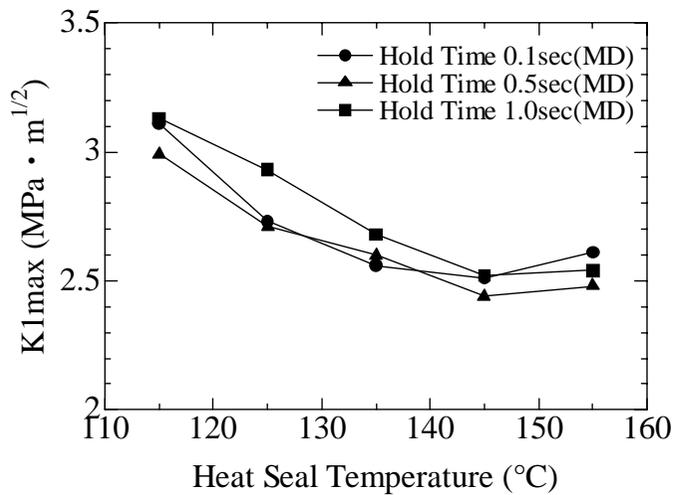


Fig.8 Stress intensity factor (MD)

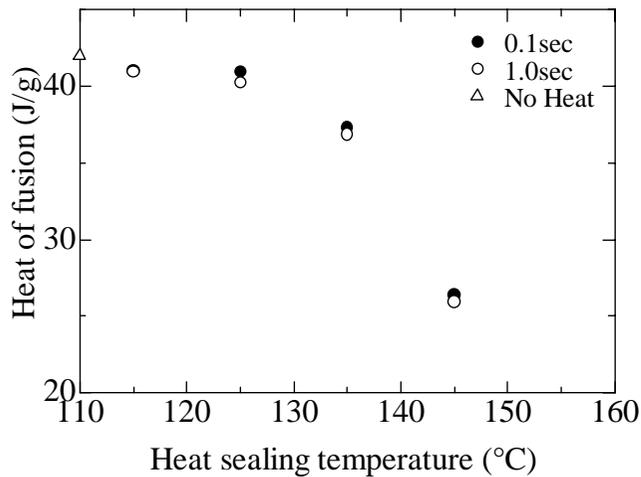


Fig.9 Heat of fusion of PLA after heat sealing

4. 考察

はく離試験結果より、試験片分類で、TD,125 において 0.1sec, 0.5sec では A)の試験片が混在するのに対し、1.0sec では全て B)の試験片であり接合温度保持時間を設けるほど、はく離しにくくなっていた。また、MD135 においても、0.1sec, 0.5sec では、B)の試験片が多くを占めるのに対し、1.0sec ではすべて C)であり接合温度保持時間をもうけることによりはく離を生じなくなっていた。

円孔引張試験より、引張強度に関しては接合温度保持時間の影響はみられなかったものの荷重変位線図に着目すると、接合温度保持時間の長いほうが破断しにくくなっていることがわかった。

き裂試験結果より、125 ~ 135 において、接合温度保持時間の長いほうが、 $K_{I,max}$ が高い傾向にあった。

DSC 測定結果より、接合温度保持時間 1.0sec のほうが 0.1sec に比べて、結晶化度が著しく低下することはなかった。

円孔引張強度、 $K_{I,max}$ 、結晶化度は、接合温度が上がるほど低下する傾向にあるため、接合可能な、より低い温度 125 で接合することが望ましいが、125 において、接合温度保持時間を長くするほど、はく離しにくくなっていた。これは、Fig.1 に示したように、本研究で用いたヒートシール方法が、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ためと考えられる。

温度差は、0.1sec においては、約 15、0.5sec では約 10、1.0sec では約 5 となっている。例えば、外側の温度が 125 のとき、0.1sec では内側は 110 となり、平均はく離強度は TD: 5.17N/15mm, MD: 5.92N/15mm であるが、1.0sec において内側は 120 となり、平均はく離強度は TD: 6.14N/15mm, MD: 6.17N/15mm と高くなっている。また、同じ内側温度が 120 であれば、1.0sec では外側温度が 125 であるため、フィルムの高温による強度低下が少なく、TD: 6.14N/15mm, MD: 6.17N/15mm であるが、0.1sec では外側が 135 となるため、TD: 4.86N/15mm, MD: 6.33N/15mm と強度低下しはじめる傾向がみられていた。これは、接合温度保持時間を長くすることによって、ヒーターに接した側のフィルムの外側温度を上げることなく、接合面の温度を上げることができたためと考えられる。

5. 結言

ポリ乳酸フィルムについて、接合温度のみならず、接合温度保持時間についても検討した。ポリ乳酸フィルムは加熱することによって、強度が低下し、熱接合可能な温度域が狭い上、その温度内で、強度が低下することがわかっていた⁹⁾。しかしながら、接合可能な低い温度での接合温度保持時間を設けることにより、より安定した接合が可能となることがあきらかになった。実際の作業現場においては、接合温度保持時間が短いほど作業効率

が良いために、産業界では検討がなされていなかったが、高付加価値商品を安定して包装するためには有効な方法と考えられる。

<参考文献>

- 1) 生分解性プラスチック実用化検討委員会
(:通商産業省基礎産業局長諮問委員会,
座長:土肥理化学研究所主任研究員(当時))「新プラスチック時代の幕開け」
(1995年3月).
- 2) 大島, 澤田, 福田:包装技術誌, 38(3),
266 (1999).
- 3) 北川和男:成形加工, 19(4), 208 (2007).
- 4) Tall, S., Albertsson, A-C. and Karlsson, S.:
Polymers for advanced Technologies, 12(5),
279(2001).
- 5) Schilperoord, T. :Packaging Technology and
Science, 12(6), 251 (1999).
- 6) 平田浩二:Packpia, 39(5), 30 (1995).
- 7) 玉井紀行,フードパッケージング, 34(4),
144 (1990).
- 8) 辻井哲也:成形加工, 15(2), 155, (2003).
- 9) 橋本静生:成形加工, 18(8), 600(2006).
- 10) 成澤郁夫, プラスチックの破壊靱性, 16
(1993)
- 11) 橋本由美:成形加工, 19(4), 236(2007).

(原稿受付 2009年12月2日)

(審査受理 2010年4月12日)