

## き裂を有する積層プラスチックフィルムの強度

小泉 堯\* 頗羅墮弘\*

### Strength of the Cracked Laminated Plastic Film

Takashi KOIZUMI\*, Hiroshi HARADA\*

In this paper, we have studied the mechanical characteristics of laminated films with crack under the tensile loads. This film consists of the low density polyethylene film which is sandwiched the polyethylene terephthalate film. The various characteristics of each film are evaluated. The nonlinear fracture mechanics is applied to evaluate the strength of films. It is shown that the tensile strength of the laminated film with crack becomes higher than that of LDPE and PET films under simultaneous tension, which depends on shearing stresses induced on the interface of the films.

Keywords : Plastic film, Strength, Laminate, Crack

包装材料として近年広く利用されている積層フィルムにき裂を生じたときの強度評価について論じている。すなわち、高圧法低密度ポリエチレン (LDPE) を内皮とし、ポリエチレンテレフタレート (PET) を外皮とする積層フィルムについて、それぞれのフィルムの特性を色々の観点から評価している。とくに大規模降伏条件下におけるき裂付き工業用材料の強度評価手法をフィルム材に適用し、その有用性を確認している。つぎに、あらかじめLDPEとPETを瞬間接着剤で接合した試験片を用いて接着部のせん断強さを評価した。この後、接着剤で接合したき裂付き積層フィルム材の強度を測定し、併せて進展き裂のモニターテレビによる観察から、き裂先端領域に生ずるせん断応力により、積層フィルムの強度低下は緩和されることを示した。

キーワード：プラスチックフィルム、強度、積層、き裂

\*中央大学理工学部 (〒112 東京都文京区春日1-13-27) : Faculty of Science and Engineering, Chuo University, 13-27, 1-Chome, Kasuga, Bunkyo-ku, Tokyo, 112

## 1. 緒言

プラスチックフィルムは包装用、農業用、民生用、工業用、医療用などの広い分野で利用されている。特に包装用フィルムでは高度な利用法も考案されている。機能性内皮と強度維持用外皮からなる積層構造のものでは、内皮に対しては衛生性やバリアー性などの品質保持性が、そして外皮に対しては化学的安定性と共に良好な機械的特性が要望されている。

本論文では、積層フィルムにき裂が生じたとして、これの機械的強さを評価するために、き裂を有する積層フィルムに引張荷重が作用するときの力学的挙動を、金属材料の強度解析に適用される非線形破壊力学に基づいて検討している。なお、プラスチックの製造・用途・経済性・環境適用性などを記載した著書<sup>1)</sup>や単層フィルムの強度を研究したもの<sup>2)</sup>などはあるが、この分野の強度解析に関する研究は殆ど見当たらない。

## 2. 供試材

積層フィルムの内皮には、厚さ 100  $\mu\text{m}$  の高圧法低密度ポリエチレン（三菱化学（株）製、LDPE）を、外皮には厚さ 50  $\mu\text{m}$  のポリエチレンテレフタレート（帝人（株）製、PET）を使用した。PETは押し出し方向、延伸

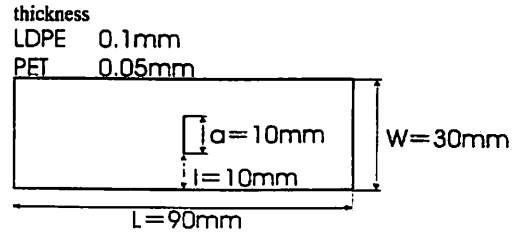


Fig. 1 Geometry of tensile specimen

方向によって異方性を生ずる。この異方性を考慮し、分子鎖セグメント、結晶主軸の配列方向を (M) で指示し、これらに垂直な方向を (T) で指示することとした。なお用いた材料はメーカー力受け入れ状態のまま使用し、ともに結晶性高分子材料である。

Fig. 1 に引張試験片を示す。図中には参考のため、中央き裂形状が併記されている。試験片の長さ  $L$  は、JIS<sup>3)</sup> に規定される 3~4 号試験片を参照し、き裂材の引張試験に不都合を生じない  $L = 90\text{mm}$  に選んだ。一方、幅  $W$  については、中央き裂試験片の採用時に不都合を生じないため、き裂やりガメントの長さを試験条件<sup>4)</sup> が満たされるように、 $W = 30\text{mm}$  とした。また引張試験における引張速度は JIS 試験法<sup>3)</sup> における速度 B 対応値として  $2\text{mm}/\text{min}$  とした。なお試験は室温  $23^\circ\text{C}$  の下で行った。得られた機械的性質を Table 1 に示す。

Fig. 2 は LDPE の応力  $\sigma$ —ひずみ  $\varepsilon$  曲線を

Table 1 Mechanical properties of material used

Properties	PET (T)	PET (M)	LDPE
Young's modulus $E$ (MPa)	4840	4840	227
Poisson's ratio $\nu$	0.40	0.40	0.45
Yield point $\sigma_y$ (MPa)	99	82	8.3
Work hardening exponent $n$	0.133	0.136	0.122
Material constant $\sigma_0$ (MPa)	162	220	15.7
Fracture toughness $J_{IC}$ (kJ/m <sup>2</sup> )	1.57	6.50	15.0

示す。これより図中に示すように1.2MPaまでは線形性が保持されると見なして縦弾性係数  $E$  を求めた。また永久ひずみ0.2%のオフセットを生ずる応力として降伏応力を求めた。ポアソン比は顕微鏡下で測定した横ひずみと縦ひずみとの結果の比より求めた。そしてそれらの曲線より構成方程式のべき乗則近似式 (1) を決めた。

$$\frac{\sigma}{\sigma_0} = \left( \frac{\varepsilon}{\varepsilon_0} \right)^n \quad (1)$$

加工硬化指数  $n$  は  $\sigma - \varepsilon$  曲線を基に推定して求めた。

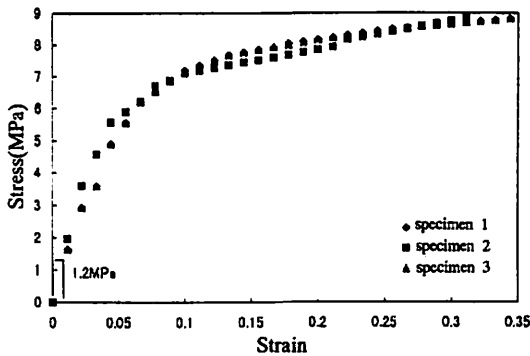


Fig. 2 Stress-strain curves for LDPE (Elastic range: 0~1.2MPa)

Fig. 3は延伸方向PET (M) について、また Fig. 4はこれと直交する方向のPET (T) について試験片を採取して、等しい引張速度で試験したものである。これらの結果からそれぞれの弾性係数、降伏応力、ポアソン比などを求めた。

### 3. 破壊靱性

初期き裂の進展中に、き裂先端に大きな塑性変形領域が形成されるようなき裂材の強度は、非線形破壊力学に基づいて論じられる。

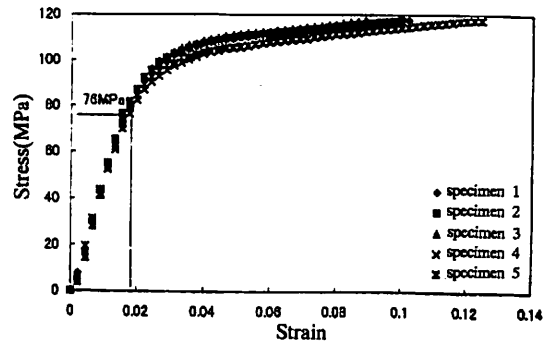


Fig. 3 Stress-strain curves for PET (Machine direction) (Elastic range: 0~76MPa)

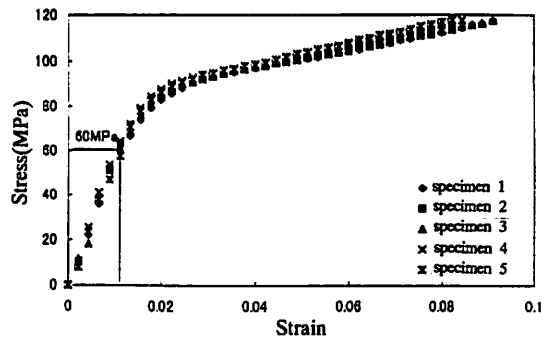


Fig. 4 Stress-strain curves for PET (Cross machine direction) (Elastic range: 0~60MPa)

このとき、弾塑性破壊じん性値  $J$  積分が採用される。 $J$  積分を正確に測定することもできるが、構成方程式が式 (1) で示される材料に対して、き裂が深い場合に簡便式が提案され、 $J$  積分評価に用いられるようになった。すなわち、き裂が十分深い ( $a/W > 0.3$ ) ととき、引張荷重を受ける中央き裂試験片では、き裂がないときの引張応力を  $\sigma$  とすれば  $J$  積分は次のように表わされる。

$$J = \frac{1-n}{1+n} \sigma \cdot (\text{CTOD}) \quad (2)$$

ここでCTODは、Fig. 5に示すように、き裂が進展を開始し始める寸前のき裂先端開口変位の略称である。(1) はき裂の状態を示

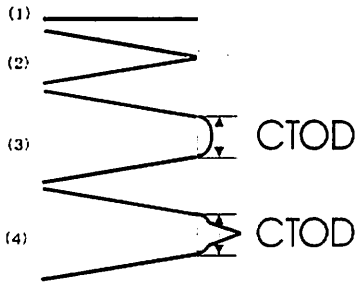


Fig. 5 Increase of crack tip opening displacement due to loads

し、(2) はき裂面に垂直な引張応力が作用して、僅かに開口した状態であり、(3) は先端部近傍で塑性変形が起こり、開口変位を生じた状態であり、(4) はその限界状態を僅かに超えて先端の一部に割れを生じてき裂が進展を始める状態を示している。Fig. 6 は、Fig. 1 に示す形状のき裂付き試験片 (PFT (M)) を用いて、ポテンシャル・エネルギーのき裂長さによる変化から  $J$  値を求める理論式に基づいて得られた実験結果 ( $R$  曲線) を実線で示し、式 (2) を用いて得られた  $J$  値の実験結果を黒丸印で示した。これより簡便式は実用上十分な精度で利用できることが分かる。

ASTM<sup>5), 6)</sup> に示される試験法では、き裂先端が進展を開始する寸前の開口変位 CTOD を測定し、 $J$  値を計算し、 $R$  曲線を描く。さらに

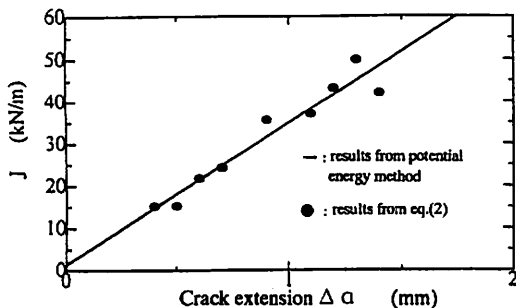


Fig. 6 J-integrals obtained by potential-energy method and approximate formula (2)

$J = (\sigma_y + \sigma_0) \Delta a$  で与えられる鈍化直線を引く。そして  $R$  曲線と鈍化直線との交点を求める。このとき

$$a/2, W > 200J/\sigma_y \quad (3)$$

上式が満たされるとき、交点の縦座標を  $J_{ic}$  としている。本邦では、現在までプラスチック材料の  $J$  値を求める規格は制定されていない。そこで上述の手法を参考とし、Fig. 1 に示す長さ  $a = 10\text{mm}$  の中央き裂を挿入した試験片の CTOD を、顕微鏡を用いて測定し、式 (2) より  $J$  値を計算し、鈍化直線との交点から  $J_{ic}$  を求めて、フィルムの強度データとして提供している。Table 1 に示される破壊靱性値はこのようにして決められたものである。

## 4. 実験結果

### 4.1 接着強さ

積層フィルム製品に負荷を生じたとき、品質の不均質性が存在する部分では一様な変形は保証されない。このようなとき、積層フィルム内に起こりうる可能性として、界面に生じるせん断応力、フィルム面の凹凸の発生が考えられる。このような現象に対する力学的知見を得る目的で、き裂付き積層フィルムの引張試験を行ってき裂近傍における変形挙動を調べた。この結果を理解するためには、予め界面がせん断応力および引張応力によって剥離を生ずる限界値を知っておく必要がある。そこで積層フィルム界面のせん断応力に対する強さと引張応力に対する強さを測定した。

Fig. 7 に示すように、PET フィルムと LDPE フィルムの両端部 30mm が重ね合うよ

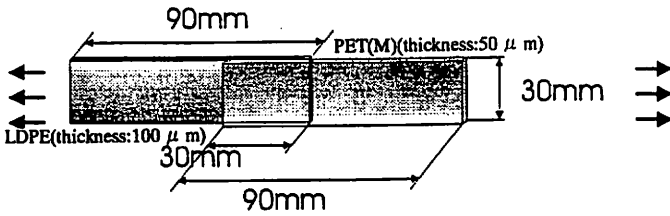


Fig. 7 Specimen geometry for shear strength measurement

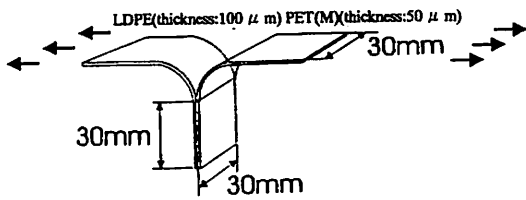


Fig. 8 Geometry of 180° peel testing specimen

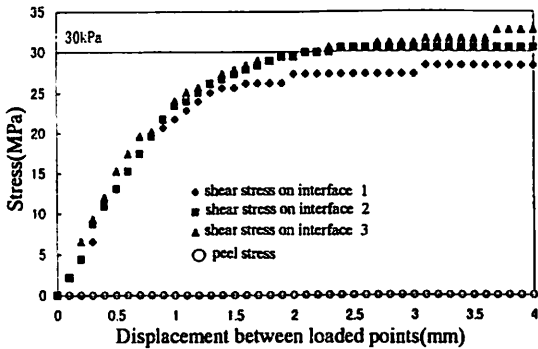


Fig. 9 Experimental result on both adhesive tests

うに瞬間接着剤で接合したフィルムの他端に長手方向に引張荷重を加えて、接着部にせん断荷重を負荷して破断し、接着界面のせん断強さ  $\tau_B = 27\text{kPa}$  を得た。また Fig. 8 は端部 30mm を瞬間接着剤で接合して作成した剥離強さ試験片を示す。図に示すように、これの非接合端に引張荷重を加えて接合部厚さ方向の剥離試験を行って、フィルムの 180 度剥離強さの評価結果も求めた。Fig. 9 はこれらの実験結果を示したものである。180 度剥離強さは殆ど零に等しい。なお両試験に用いたフィルムは受け入れ状態のままであり、表面の

前処理は施していない。

#### 4.2 単層材の破壊靱性 $J_{IC}$

Fig. 10 は圧延方向採取の PET (M) に対する破壊靱性試験結果を示す。鈍化直線と簡便式 (2) に従って求めた  $J$  値のプロット点を結ぶ

R 曲線の交点として  $J_{IC} = 6.05 \text{ (kJ/m)}$  を得た。同様にして圧延方向に垂直な方向から試験片を採取した PET (T) については、より低い値  $J_{IC} = 1.57 \text{ (kJ/m)}$  を得た。

一方 LDPE については  $J_{IC} = 15.0 \text{ (kJ/m)}$  と大きな値を得た。

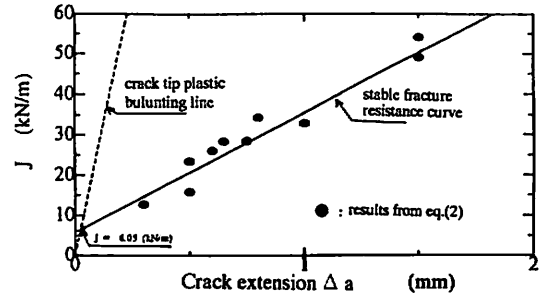


Fig. 10 Fracture toughness test of PET (Machine direction)

#### 4.3 積層フィルム

長さ  $L = 90\text{mm}$ 、幅  $W = 30\text{mm}$  の PET (M) と LDPE フィルムを瞬間接着剤で貼り合わせて積層フィルムとした。これより、Fig. 1 に示すような長さ  $a = 10\text{mm}$  の中央き裂を挿入した試験片を作成する。これにテンシロン万能試験機により室温  $23^\circ\text{C}$  の下で、引張速度  $2\text{mm/min}$  で引張荷重を加えた。き裂の破壊挙動を、100 倍のレンズを装着した CCD カメラを通してモニター表示し、ビデオプリンターに撮影しながら  $\mu\text{m}$  単位で観測した。

積層材に対する  $J$  値の定義は現在まで見当たらない。このため、実験中のき裂形状変化

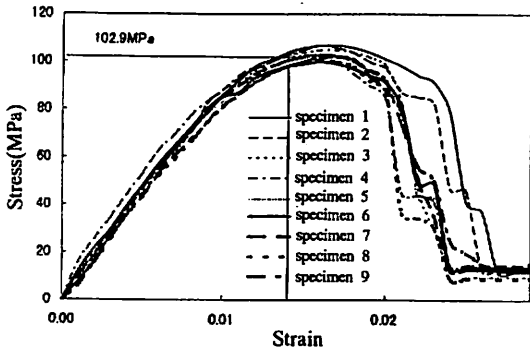


Fig. 11 Stress-strain curves for laminated films

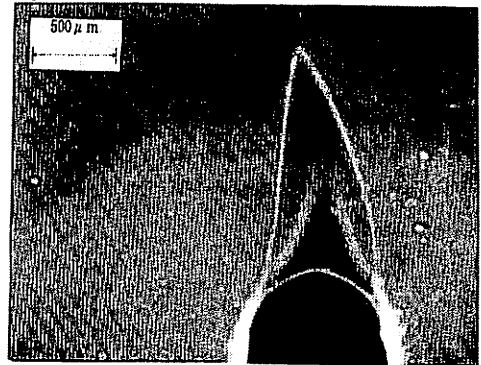


Fig. 12 Photomicrograph of crack growth in laminated film

の観測結果から、き裂先端が開口し、進展が開始するときの応力として102.9MPaをFig. 11に示す $\sigma$ - $\epsilon$ 曲線から読み取った。一方、二層のそれぞれについて独立に実験を行ったとき、CTODを生ずる応力はLDPEが6.1MPa、PET (M)が81.3MPaであり、その和は87.4MPaとなる。この値を積層フィルムに対する値と比較して積層フィルムの強度を推定することができれば、積層フィルムの破壊靱性値は大きくなると予想した。

またFig. 12には積層フィルムのき裂が進展を開始しはじめた直後の写真が示してある。

## 5. 結 言

高圧法低密度ポリエチレンを内皮とし、ポリエチレンテレフタレートを外皮とする積層フィルムが、微細なき裂を有するとき、これの強度評価について論じ、次の結論を得た。

- (1) 積層フィルムのき裂の進展は接着界面上に生ずるせん断応力によって抑制され、このせん断応力は積層フィルムのき裂による強度低下を抑制するように作用する。
- (2) 非線形破壊力学で導入されている $J$ 積分はポリエチレンテレフタレートフィルム

の強度評価には有用であるが、高圧法低密度ポリエチレンのように柔軟な材料の強度評価には有用ではない。

- (3)  $J$ 積分の評価に関する簡便式は、ポリエチレンテレフタレート材には適用可能であったが、高圧法低密度ポリエチレン材に対しては有効に適用できなかった。

## <引用文献>

- 1) K. R. Osborn & Jenkins W. A., Plastic Films Technomic Pub (Basel), (1992)
- 2) 小泉 堯、納富充雄、岸本久雄、プラスチックフィルムの破壊過程のその場観察、日本包装学会誌、3 (1), 16 (1994)
- 3) JIS K 7208
- 4) 大路清嗣、小倉敬二、久保司郎、全断面塑性における $J$ 積分の簡便式、日本機械学会誌、44 (382), 1832 (1978)
- 5) 日本機械学会、弾塑性破壊靱性 $J_{IC}$ 試験方法、日本機械学会、(1981)
- 6) ASTM : Standard Method for Determination of  $J_{IC}$  , A Measure of Fracture Toughness, Annual Book of ASTM Standards, E813 - 89

(原稿受付1997年9月10日)

(審査受理1997年12月4日)