展 望

多層フィルムの2軸延伸技術

久我睦男

1. はじめに

現在、高分子材料の延伸加工品としては、図 1 に示すような各種形状の製品が市販されている。

また、高分子材料の2軸延伸加工品は、延伸に供され

図1 延伸加工品の形状別の製品分布

る成形品の形状により、図2に示すような各種のプロセスで生産が行なわれている。

ここでいう延伸とは、分子軸を1方向(1軸延伸),あるいは2方向(2軸延伸)に配向させるための、もっとも普遍的な加工方法であるが、高分子材料、とくに結晶性高分子の改質法としてはきわめて有効な手段である。

近年、高分子フィルムの２軸延伸技術のめざましい発展によって、たとえば、ポリスチレン、架橋ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル、塩化ビニリデン共重合体、ポリエステル、ポリアミド、ポリビニルアルコールなど、数多くの特性をもった各種の２軸延伸フィルムが、あいついで製品化されている。

一方、工業生産の場においても、2軸延伸装置をはじめ、各工程装置の高速広幅化、あるいは厚み精度をはじめ、各種品質の均整化など、生産性、および品質向上の見地から各種の技術開発が活発に進められている。

高分子フィルムの２軸延伸技術とは、溶融押出法（インフレーション法，Ｔダイ法）や溶液流延法などの成形方法で製膜された無延伸フィルムを，溶融点以下，ガラス転移点以上の温度範囲で，まず，たて横の両軸方向に十分に引き伸ばし，分子鎖，あるいは特定の結晶面をフィルム面に平行に配向させ，さらに緊張下の熱処理によ

り熱固定を行なう技術であるが、この技術は、ほとんどの熱可塑性樹脂に適用できる可能性をもっている。

また、2軸延伸フィルムの面配向度、配向、および物性の異方性、微細構造、あるいは表面形態などの諸性質は、無延伸、延伸、および熱処理などの諸条件によって、ある程度自由に変わることもできる。

かくして2軸延伸フィルムは、その材料面、および製造面の多様性によっ

て、量的、質的にめざましい発展をとげてきた。

さらに、2軸延伸フィルムの新しい展開として、生産性、市場性、経済性などの見地から、複数延伸(単純に重ね合わせた複数枚のフィルムを同時に延伸する場合)、

図2 2軸延伸技術の各種プロセス

Biaxial Orientation of Multi Layered Films
MUTSUO KUGA

UNITIKA LTD, Plastics Division.

Higashi-ku, Osaka, Japan

ユニチカ(株)プラスチック事業本部長(農博)

図3 フラット方式2軸延伸法における複数延伸
および積層延伸の各種プロセス

および積層延伸（コーティング、ラミネート、または共押出などによる多層構造のフィルムを延伸する場合）が注目され、たとえば、ガスバリアー性、防湿性、ヒートシール性、耐スクラッチ性、耐熱性、耐熱水性、耐熱収縮性、スリップ性、制電性、透明性、表面光沢などの特性をもった各種の複合フィルム、あるいは極薄フィルム、多孔質フィルムなど、その開発内容もきわめて多岐にわたっている。

高分子フィルムの2軸延伸法には、チューブラ方式とフラット方式（同時2軸延伸法、逐次2軸延伸法）とがあるが、本稿では“多層フィルムの2軸延伸技術”と題し、フラット方式2軸延伸法における複数延伸、および積層延伸について、国内特許を中心に、その概要を紹介したいと思う。

フラット方式2軸延伸法における複数延伸、および積層延伸については各種のプロセスが考えられるが、その全体図を図3に示す。

ここに示した図3は、いままでに公告、または公開されている複数延伸、および積層延伸に関する国内特許を参考にして、無延伸、および延伸フィルムの各形状とフラット方式2軸延伸法との関連を系統的に整理集約して作成したものである。

なお、多層フィルムのロール圧延法^{1)~6)}、1軸延伸法^{7)~22)}、およびチューブラ方式2軸延伸法^{12), 18), 16), 23)~32)}などについても数多くの提案が行なわれている。

2. 複数枚の2軸延伸フィルムの製造技術

複数延伸、または積層延伸を行ない、延伸後に剥離して複数枚の2軸延伸フィルムを同時に製造することは、生産能力の増強^{7), 16), 25), 34)}をはじめ、極薄フィルム^{21), 25), 35), 34)}、多孔質フィルム¹⁶⁾など、高付加製品の製造方法として有効であり、たとえば、ポリスチレン²²⁾、ポリエチレン^{7), 22)}、ポリプロピレン^{7), 15), 16), 22), 34), 38)}、ポリ塩化ビニル²²⁾、塩化ビニリデン共重合体、ポリエステル^{7), 16), 22), 34)~37)}、ポリアミド^{7), 22), 34), 37), 38)}、ポリカーボネー

ト⁷⁾、エチレン-ビニルアルコール共重合体^{38), 39)}、ポリビニルアルコール⁴⁰⁾、アクリロニトリル共重合体^{39), 40)}などの各材料について技術開発が進められている。

この複数延伸、または積層延伸に供される無延伸フィルムとしては、単純に重ね合わせた無延伸の複数フィルム^{7), 15), 22), 34), 38)}、コーティング、ラミネート、または共押出による各種の積層フィルム^{21), 25), 35), 39)}などが

ある。また、特別な例として複数枚の1軸延伸フィルム（たて方向）を単純に重ね合わせて、さらに横方向の複数延伸を行なうこともある。

この場合、同種フィルムの組み合わせだけではなく、たとえば、ポリプロピレンとポリエチレン⁷⁾、ポリアミド^{21), 38)}、エチレン-ビニルアルコール共重合体³⁸⁾などとの組み合わせ、ポリエステルとポリエチレン²⁵⁾、ポリアミド⁷⁾、ポリカーボネート⁷⁾などとの組み合わせ、あるいはポリアミドとポリカーボネート⁷⁾との組み合わせなど、異種フィルムの組み合わせについても各種の提案が行なわれている。

複数枚の無延伸フィルムを単純に重ね合わせて2軸延伸を行なった場合、一般に異種フィルムの組み合わせでは延伸後の剥離は容易であるが、同種フィルムの組み合わせではフィルム相互に強固な密着をきたし、延伸後の剥離を困難にする傾向のあることはよく知られている。

その1例としてポリエステルの例を表1³⁵⁾および表2³⁶⁾にかかげる。

すなわち、ポリエステルの場合、延伸後の剥離の難易は無延伸フィルムの諸物性によって左右され、したがって、無延伸フィルムの製膜条件の変更も剥離性の改善に有効である。

さらに、積極的に延伸後の剥離を容易ならしめるため

表1 無延伸フィルムの物性と延伸後の粘着の有無³⁵⁾（ポリエステル）

	急冷フィルムの溶液ヘーズ(%)	縦延伸倍率(倍)	縦延伸フィルムの Δn ($\times 10^{-8}$)	縦延伸フィルムの ΔH (%)	横延伸後の粘着
実施例1	15	2.5	34	2.4	無
“ 2	50	1.8	10	4.5	無
“ 3	20	3.2	42	3.5	無
比較例1	10	2.5	33	1.5	有
“ 2	55	1.5	5	4.0	有

注. Δn 複屈折率

ΔH 表面ヘーズ

表2 無延伸フィルムの物性と延伸後の粘着の有無³⁶⁾(ポリエステル)

	熔融急冷フィルムの結晶化度(%)	横延伸後のフィルム相互の粘着	横延伸後のフィルムの延伸ムラ
実施例1	3.5	無	無
" 2	8.0	無	無
比較例1	1.5	有	無
" 2	15	有	有

の手段として、各種媒体の利用^{22), 39), 37)}についても各種の提案が行なわれている。

3. 2軸延伸複合フィルムの製造技術

前述したように、複数枚の無延伸フィルムを単純に重ね合わせて2軸延伸を行なっても、フィルム相互が強固に密着する場合がある^{7), 8), 36), 38), 32)}。

このフィルム相互の密着性を利用して延伸時のフィルム切断の防止、穴の発生防止⁷⁾、さらには2軸延伸複合フィルムを製造⁸⁾することもできるが、現在、2軸延伸複合フィルムの製造は、積層延伸を中心に開発が進められている。すなわち、コーティング、ラミネート、または共押出などによる多層構造の無延伸フィルムが延伸に供され、積層化による2軸延伸性の改善をはじめ、複合化による各種性能の付与、高付加製品の開発などの諸点から各種の提案が行なわれている。

フラット方式2軸延伸法には同時2軸延伸法と逐次2軸延伸法とがあり、それぞれに特徴を有しているが、生産性、条件変更の自由度、製品フィルムの厚みに対する適応性などの諸要因により、フラット方式の2軸延伸フィルムの大多数は逐次2軸延伸法によって生産が行なわれている。なお、フィルム面内の分子鎖の配向性、あるいは力学的性質のバランスの点では同時2軸延伸法がすぐれている。

逐次2軸延伸法においては、各種ロール群からなる、たて延伸装置とテンター様式の横延伸装置とから構成され、通常、たて延伸は前段で、横延伸は後段で行なわれる。

この逐次2軸延伸法において積層延伸を実施する場合、共押出、またはコーティング、あるいはラミネートなどの積層工程を前段延伸前に設ける場合と、前段延伸と後段延伸の中間に積層工程を設ける場合とがある。また、この両者を同時に採用する場合もある。

逐次2軸延伸法における被延伸フィルムとして共押出フィルム、あるいは積層工程を前段延伸前に設けた場合の複合効果については、すでに各種の提案が行なわれている。

すなわち、積層延伸により付与される各種性能として、

ガスバリアー性^{42), 46)~48), 52), 63)}、防湿性^{42), 46), 47)}、ヒートシール性^{41), 44)~46), 51), 56), 68), 71)}、耐スクラッチ性^{44), 68)}、耐熱性⁵²⁾、耐熱水性⁶⁸⁾、スリップ性^{45), 46), 61), 62)}、制電性^{59), 71)}、透明性^{50), 61), 62), 67)}、接着性⁴⁹⁾、印刷適性^{45), 46)}、その他^{28), 49), 50), 52), 56), 67), 64), 66)}などがあり、さらに高付加製品として、写真用フィルム⁶⁵⁾、半透明フィルム⁶⁸⁾、多孔質フィルム^{66), 70)}、合成紙⁷⁰⁾、潜在的にカール能力を有するフィルム⁶⁹⁾、平滑性と易滑性とを共有する透明フィルム⁶⁷⁾、その他^{18), 49), 60), 68)}などがあげられる。

また、積層工程を前段延伸と後段延伸の中間に設けた場合の複合効果についても、すでに各種の提案が行なわれている。

この場合の複合フィルムは、2軸延伸フィルムと横軸方向にのみ引き伸ばされた1軸延伸フィルムとから構成されており、付与される各種性能としては、ガスバリアー性⁷⁴⁾、ヒートシール性^{44), 51), 58), 74), 76), 77), 80), 85)~87)}、耐スクラッチ性^{44), 68), 77), 80)}、耐ピンホール性⁸¹⁾、耐屈曲性⁹¹⁾、耐熱収縮性⁷⁹⁾、スリップ性^{85), 87)}、制電性⁵⁹⁾、接着性^{67), 89)}、印刷適性⁸⁸⁾、引裂伝播方向性⁷⁸⁾、カール防止⁸³⁾、その他^{66), 81)}などがあげられる。さらに高付加製品として、半透明フィルム⁶³⁾、合成紙^{78), 82), 84), 90)}などがある。

現在、逐次2軸延伸法による積層延伸において、もっとも開発が進んでいる製品例として、ヒートシール性を付与したポリプロピレンの2軸延伸複合フィルムがある。

一般に、2軸延伸フィルムは、生のままではヒートシール性に乏しく、ヒートシール材を積層して、はじめて強固なヒートシール性が期待できる。

通常、ヒートシール材は無延伸の状態で使用されるが、積層延伸ではベースフィルムと同一条件での延伸が行なわれ、かつ、ヒートシール性能の保持が要求される。

この積層延伸用のヒートシール材についても、共押出用、積層用ともに各種の提案が^{44), 51), 58), 74), 76), 77), 80), 85)~87)}行なわれている。

前述したように、フラット方式の2軸延伸フィルムの大多数は逐次2軸延伸法によって生産が行なわれているが、ポリアミド、ポリビニルアルコールなどでは、分子鎖間の強固な水素結合、前段延伸にともなう分子間力の強化などにより、逐次2軸延伸法では均一延伸を行なうことが困難であるとされ、したがって、これらのポリマーの2軸延伸フィルムは同時2軸延伸法によって生産が行なわれている。

現在、常用されている同時2軸延伸装置のクリップ走行機構としては、クリップの間隔を開いて、たて延伸を行なうと同時に、ガイドレールの広がりによって横延伸が行なわれる。この場合、クリップの間隔を開く方法として漸増ピッチスクリュシステム、パンダグラフシステムなど

表3 エチレン-酢酸ビニル系共重合体けん化物単体、および積層体における延伸状態比較⁸⁹⁾

No	積 層 体		積 層 方 法	延伸方法	延伸状況
	EVA系樹脂	積 層 物			
1	EVA系樹脂 100 μ			同時二軸 逐次二軸	} 不均一延伸
2	EVA系三元共 重合体 100 μ			同時二軸 逐次二軸	
3	EVA系樹脂 100 μ	ポリ塩化ビニル 100 μ	加熱、加圧 80℃, 20 kg/cm ²	同時二軸 逐次二軸	} 均一延伸
4	EVA系樹脂 100 μ	ポリエステル 200 μ	加熱、加圧 80℃, 20 kg/cm ²	同時二軸	
5	EVA系三元共 重合体 100 μ	ポリエステル 200 μ	加熱、加圧 80℃, 20 kg/cm ²	同時二軸	} 均一延伸
6	EVA系樹脂 50 μ	低密度ポリエチレ ン 200 μ	ドライラミネート	同時二軸	
7	EVA系三元共 重合体 50 μ	アクリロニトリル 共重合体 200 μ	共押し出し法	同時二軸 逐次二軸	} 均一延伸
8	EVA系三元共 重合体 25 μ	低密度ポリエチレ ン 200 μ	押し出しラミネート	同次二軸	
9	EVA系三元共 重合体 100 μ	ポリエステル 200 μ	ドライラミネート	同時二軸 逐次二軸	} 均一延伸

表4 ポリビニルアルコールフィルム単体、および積層体における延伸状態比較⁴⁰⁾

No	積 層 体		積 層 方 法	延伸方法	延伸状態
	PVA	積 層 物			
1	PVA 100 μ			同時二軸 逐次二軸	} 不均一
2	PVA 50 μ	ポリ塩化ビニル 100 μ	加熱、加圧 80℃, 20 kg/cm ²	同時二軸 逐次二軸	
3	PVA 50 μ	ポリエステル 200 μ	加熱、加圧 80℃, 20 kg/cm ²	同時二軸 逐次二軸	} 均一
4	PVA 40 μ	低密度ポリエチレ ン 200 μ	押し出しラミネート	同時二軸	
5	PVA 50 μ	アクリロニトリル 共重合体 200 μ	ドライラミネート	同時二軸 逐次二軸	} 均一

がある。

筆者らは、同時2軸延伸装置の新しい応用展開として、積層延伸における同時2軸延伸法の有利性に着目し、各種のポリマーについて2軸延伸複合フィルムの開発を進めているが、その一部はすでに実用に供されている。

また、積層延伸による2軸延伸性の改善についても、各種の興味ある提案^{88)~40), 83), 72), 73)}が行なわれている。その一例として、ポリビニルアルコール、およびエチレン-酢酸ビニル系共重合体けん化物における2軸延伸性の改善効果を表3⁸⁹⁾および表4⁴⁰⁾にかかげる。

以上、フラット方式2軸延伸法における複数延伸、および積層延伸の各種プロセスについて、その概要を紹介したが、これら各種プロセスにおける複数化、または積

層化技術、機械装置、およびその配置についても各種の提案^{16), 22), 37), 45), 93)~96)}が行なわれている。

4. おわりに

近年、高分子材料の成形加工技術の進歩はめざましく、その技術内容も、最近ますます多様化し、その高度化、大型化も進んでいる。

高分子フィルムの2軸延伸技術においても、その材料面、製造面、および製品面の多様性によって、量的、質的にめざましい発展をとげてきた。

さらに今後の展開として、生産性、高品質化、高付加製品などについても一層の発展が期待されている。

本稿では“多層フィルムの2軸延伸技術”と題し、フラット方式2軸延伸法における複数延伸、および積層延伸の各種プロセスについて、国内特許を中心に、その概要を紹介したが、本稿がこの方面の研究開発に、なんらかのご参考になれば幸いである。

文 献

- 1) 特公昭41-4341
- 2) 特公昭49-20066
- 3) 特公昭49-27438
- 4) 特開昭52-98065
- 5) 特開昭52-105972
- 6) 特開昭53-45377
- 7) 特公昭43-15715
- 8) 特公昭46-9958
- 9) 特公昭48-8750
- 10) 特公昭48-12067
- 11) 特公昭50-27072
- 12) 特公昭51-39678
- 13) 特公昭52-6313
- 14) 特開昭49-23275
- 15) 特開昭50-22069
- 16) 特開昭51-24678
- 17) 特開昭51-42785
- 18) 特開昭51-73077
- 19) 特開昭51-132282
- 20) 特開昭52-4575
- 21) 特開昭52-37982
- 22) 特開昭53-85866
- 23) 特公昭48-4189
- 24) 特公昭48-11831
- 25) 特公昭51-1747
- 26) 特公昭51-44020
- 27) 特開昭46-3241
- 28) 特開昭49-66770
- 29) 特開昭50-12167
- 30) 特開昭51-93976
- 31) 特開昭52-54771

32) 特開昭 53-82888	49) 特開昭 49-33972	66) 特開昭 50-56465	81) 特公昭 49-20388
33) 特公昭 37-15485	50) 特開昭 50-10371	67) 特開昭 50-133271	82) 特公昭 50-38665
34) 特開昭 51-31775	51) 特開昭 52-94381	68) 特開昭 51-119075	83) 特公昭 51-41154
35) 特開昭 53-79967	52) 特開昭 52-19784	69) 特開昭 51-131577	84) 特公昭 52-21545
36) 特開昭 53-79968	53) 特開昭 52-110781	70) 特開昭 52-3666	85) 特公昭 52-29786
37) 特開昭 53-115784	54) 特開昭 52-115880	71) 特開昭 52-63972	86) 特公昭 52-41310
38) 特開昭 49-99369	55) 特公昭 30-3437	72) 特開昭 52-146487	87) 特公昭 52-50068
39) 特開昭 51-6276	56) 特公昭 41-8957	73) 特開昭 52-65577	88) 特開昭 48-44362
40) 特開昭 51-83668	57) 特公昭 47-31428	74) 特公昭 41-8470	89) 特開昭 49-60370
41) 特公昭 41-11353	58) 特公昭 49-14343	75) 特公昭 46-31478	90) 特開昭 49-128071
42) 特公昭 45-279	59) 特公昭 49-20067	76) 特公昭 46-31479	91) 特開昭 53-26876
43) 特公昭 46-37431	60) 特公昭 51-33153	77) 特公昭 46-40793	92) 特開昭 49-45176
44) 特公昭 47-18439	61) 特公昭 52-29346	78) 特公昭 46-40794	93) 特開昭 52-32962
45) 特公昭 51-31276	62) 特公昭 52-29347	79) 特公昭 48-11832	94) 特公昭 48-23351
46) 特公昭 51-41155	63) 特開昭 48-22564	80) 特公昭 48-44667	95) 特開昭 50-142674
47) 特公昭 42-34665	64) 特開昭 49-53961		(昭和 54 年 5 月 7 日受理)
48) 特開昭 49-10973	65) 特開昭 50-39375		

「繊維と工業」編集委員 (昭和 54 年度)

委員長	小 口 登 (和洋女子大)				
委 員	相 原 英 勝 (神奈川県工試)	安 芸 元 幸 (旭化成工業)	新 井 幸 三 (群馬大)		
	井 口 正 俊 (織高研)	岩 城 正 守 (ダイーック)	臼 田 誠 人 (東大)		
	小 俣 文 彦 (日科技情報センター)	相 宅 省 吾 (京都工繊大)	片 山 健 一 (京大化研)		
	菊 地 哲 也 (東レ)	久 我 睦 男 (ユニチカ)	軍 司 敏 博 (大妻女子大)		
	坂 本 宗 仙 (東工大)	桜 井 雅 志 (国際羊毛事務局)	篠 原 昭 (信州大)		
	須 田 昌 男 (織高研)	高 瀬 福 巳 (岐阜大)	高 谷 達 雄 (四天王寺女短大)		
	滝 沢 章 (名工大)	辻 本 石 雄 (福井大)	中 村 孝 一 (巴川製絨)		
	成 瀬 信 子 (文化女子大)	西 田 健 三 (東農工大)	畠 山 兵 衛 (製科研)		
	林 雅 子 (お茶の水女子大)	福 井 章二郎 (クラレ)	福 原 節 雄 (横浜ゴム)		
	細 田 一 夫 (昭和女子大)	堀 慶 昭 (帝人)	松 尾 達 樹 (東洋紡績)		
	松 田 和 夫 (山形大)	湯 村 崇 男 (日本化繊協会)	乗 智 明 (富士紡績)		
	吉 村 元 一 (金沢大)	横 山 暢 宏 (白洋舎研)			
海外編集委員	村 山 隆 之 (Chemistrand, Research Center, U.S.A.)				
	外 林 秀 人 (Fritz Haber, Institute, FD Germany)				