技術報文

(昭和 54 年 11 月 21 日受理)

ポリプロピレンーポリエチレン複合繊維の
潜在捲縮抑制に関する研究*チッソポリプロ繊維株式会社 富岡 享
チッソ株式会社 小島 盛男CONTROL OF THE LATENT CRIMPABILITY IN
POLYPROPYLENE/POLYETHYLENE BICOMPONENT FIBERS*¹By Susumu Tomioka*² and Morio Kojima*³*² (Chisso Polypro-Fiber Co. Ltd., 230 Kawada-cho, Moriyama,
Shiga, Japan)*³ (Chisso Corporation, 2-7-3 Marunouchi, Chiyodaku, Tokyo, Japan)

A study of controlling the latent crimpability in the bicomponent polyethylene/polypropylene fibers has been made according to the information on the elastic and thermal shrinkages for each component of the fiber.

The low latent crimpability can be obtained by drawing at 100 °C or higher and a drawing ratio of 3 or larger of the bicomponent fiber of which the flow rate ratio of the component polymers is larger than 3.

The results are explained in terms of the temperature effect which gives the different shrinkage to each of the two components, depending on the shape of the interface between them.

(Received November 21, 1979)

1. 緒 言

一般に異成分から成る複合繊維は、潜在捲縮性能を有し^{1~3)}、低融点成分を熱によって活性化させる際に、3次元のスパイラル状捲縮を発現し、大きな熱収縮をとまなう。このような複合繊維を不織布素材として利用する場合には、潜在捲縮性能が繊維集合体に大きな収縮をあたえ好ましくない。

複合繊維の潜在捲縮性能に関して、羊毛様の風合、ストレッチ性、高粘性等を得る目的のために、良好な潜在捲縮性能付与の観点からの研究は数多くあるが^{4~6)}抑制という観点からの研究は比較的少ない^{7~8)}。

前報⁹⁾では、ポリプロピレン(以下PPと略記)とポリ

エチレン(以下PEと略記)を複合成分とする複合繊維の可紡性、剥離性について考察したが、本報告では、PP、PEの分子量ならびに延伸条件の潜在捲縮性能に及ぼす影響について検討し、その効果について考察した。

2. 実験方法

2.1 試 料

前報⁹⁾と同様、次のPPおよびPEを用いた。

PP; チッソポリプロ S-5016, S-5046, S-5056
HDPE; チッソポリエチ M-850, M-880, M-690,
M-691, M-692

2.2 紡 糸

前報⁹⁾と同じ複合紡糸装置に紡糸口径: 0.6 mm, 口長: 6 mm, ホール数: 60 の並列型複合紡糸用口金を用いて次の条件で紡糸した。

紡糸温度; 押出機先端部 PP側 300°C

*¹ この報文を「複合ポリオレフィン繊維の開発に関する研究(第2報), Studies on Bicomponent Polyolefin Fibers (Part 2)」とする。

PE側 200℃
紡 口 265℃

複合成分比; 1:1

吐 出 量; 72 g/min × 2

捲 取 速 度; 300 m/min

前報⁹⁾に報告の可紡性に問題のあるものも検討試料とした関係上、未延伸デニールは 72 d/fil とした。

単独成分繊維は上記紡糸条件で片側成分の吐出を停止した後、他方のギヤーポンプのみを回転させて得た。したがって未延伸デニールは 36 d/fil となる。

2.3 延 伸

電気加熱方式の熱ロールを有する小型延伸機を用いて、各所定の温度および延伸比にて延伸した。

2.4 紡糸後フローレートおよびフローレート比前報⁹⁾と同様にして測定した。

以下本文中においてもFRと記述した場合は、紡糸後フローレートを意味し、FR比は、PEのPPに対するFRの比を意味する。

2.5 単独成分繊維の弾性収縮ならびに熱収縮の測定

2.5.1 弾性収縮

島津オートグラフ(IM-100形)を用い試長 10 cm (室温延伸の場合)および 5 cm (100℃延伸の場合)、引張り速度 100%/min で、延伸比 2, 3, 4, 5 倍に延伸し、1 分間所定の延伸比に保持した後応力を除去して得られる図 1 に示したような応力-ひずみ曲線およびその回復曲線より $\overline{BA}/\overline{OA} \times 100 (\%)$ を求め、これを弾性収縮率とした。

2.5.2 熱収縮

弾性収縮測定後の試料を熱収縮測定試料とした。試料にデニールの 1/30 グラムの初荷重をかけ、試料長(l_0)をはかった後、120±1℃の恒温乾燥器中で 30 分間無荷重、無緊張状態で熱処理して、室温冷却後再び初荷重を

Fig. 1. Stress-Strain and Recovery Curve for the PP (S-5016).

Fiber denier; 2.160—

Drawing temperature; Room temperature

Drawing ratio; 4

かけ、熱処理後の試料長(l)をはかり、次式により熱収縮率を求めた。

$$\text{熱収縮率}(\%) = l_0 - l / l_0 \times 100$$

2.6 不織布熱収縮

18 d × 64 mm の複合繊維をフラットカードに供給しカードウェーブをドラムに積層した後、25 cm × 25 cm (目付 12~13 g) に切断し、これを両面クラフト紙にてはさみ、145±1℃の恒温乾燥器中で 30 分間無荷重、無緊張状態で加熱して $l_0 - l / l_0 \times 100 (\%)$ を求め、これを不織布熱収縮率とした。

但し、 l_0 は熱処理前の試料長 (25 cm)

l は熱処理後の繊維配列方向の試料長

3. 実験結果と考察

3.1 複合成分の分子量ならびに延伸条件の潜在捲縮性能におよぼす効果

表 1 に分子量の異なる PP および PE の組合せによって得られた複合繊維の不織布熱収縮率を示す。

図 2 に PP 成分 S-5016 と分子量の異なる PE を組合せた場合、図 3 に PE 成分 M-691 と分子量の異なる PP を組合せた場合の FR 比と不織布熱収縮率の関係を示す。FR 比 1 付近での不織布熱収縮率は、複合繊維の潜在捲縮の発現に基因して極めて高く、FR 比の上昇と共に急激に低下し FR 比 3.5 以上では殆ど 0 に近づく。このことは PP の FR が低く、PE の FR の高い複合成分の組合せによって低潜在捲縮性能を有する複合繊維が得られることを示している。

一方、表 1 に示す試料 A-1, A-2, A-3, A-4 については、延伸温度を変え、また A-3 については延伸比を変えて延伸を行った場合には、それぞれ図 4 および図 5 に示すような不織布熱収縮率との関係が得られる。この結果延伸条件として延伸温度 100℃ 以上、延伸比 3 以上とした場合に、低潜在捲縮性能の複合繊維の得られることがわかる。

複合繊維の捲縮に関しては、延伸後弛緩された際の複合成分間の収縮差に基づく歪に基因して発生する捲縮(以下顕在捲縮と称する)と弛緩状態で熱処理を受けた際の両成分の熱収縮差によって生じる歪のために発生する捲縮(潜在捲縮)とがある。

これ等の捲縮挙動は、複合繊維成分の単独成分繊維についての応力-ひずみ曲線およびその回復曲線から弾性収縮を求め¹²⁾、さらに熱収縮を求めて取り扱う事が出来る。

3.1.1 単独成分繊維の収縮挙動

PP: S-5016 と PE: M-691 さらに比較のために、PP: S-5048 について室温および 100℃ で延伸した場

Table 1. Description of polymers and characteristics of PE/PP bicomponent fibers.

Sample No.	PP		PE		FR after Spinning (P.E/P.P)	FR Ratio	Heat shrinkage of the non-woven (%)
	Grade	M. W.*after Spinning	Grade	M. W.*after Spinning			
A-1	S-5016	2.5×10^5	M-680	3.8×10^4	12.1/11.3	1.1	37
A-2			M-690	3.3×10^4	231/ 9.8	24	15
A-3			M-691	3.0×10^4	33.6/10.6	3.2	2
A-4			M-692	2.7×10^4	50.2/10.0	5.0	0
B-1	S-5048	2.1×10^5	M-680	3.8×10^4	14.5/18.5	0.8	45
B-3			M-691	3.0×10^4	33.9/17.4	2.0	18
C-1	S-5056	1.8×10^5	M-680	3.8×10^4	14.4/30.0	0.5	—
C-3			M-691	3.0×10^4	31.3/32.3	1.0	46
D	S-5016	2.5×10^5	—	—	—/10.7	—	5

Drawing condition; Drawing temperature 100°C

Drawing ratio 4.0

Fiber denier ; 18 denier

M.W.*; molecular weights calculated from following equation.

$$[\eta] = 0.80 \times 10^{-4} \bar{M}^{0.80} \text{ (Tetralin } 135^\circ\text{C for PP)}^{10}$$

$$[\eta] = 3.78 \times 10^{-4} \bar{M}^{0.72} \text{ (Tetralin } 130^\circ\text{C for PE)}^{11}$$

Fig. 2. Heat shrinkage of nonwoven vs. flow rate ratio for HDPE/PP (S-5016) bicomponent fibers.

Drawing temperature; 100°C

Drawing ratio; 4

合の延伸比と弾性収縮率，熱収縮率との関係を図6～図9に，また100°Cで延伸した際の延伸比と総収縮率*との関係を図10に示した。

弾性収縮ならびに熱収縮は，図6～7および図8～9に示されるように，試料の分子量，延伸条件によって変る。延伸温度は高い程弾性収縮率ならびに熱収縮率は低下する。又，延伸比との関係においては，弾性収縮は延伸比との関係においては，弾性収縮は延伸比の増大と共に低下するが熱収縮は延伸比3付近に最大値を有する。

3.1.2 複合繊維の捲縮挙動

*総収縮率(%)=(E+H-EH)×100

E: 弾性収縮率(%)/100, H: 熱収縮率(%)/100

Fig. 3. Heat shrinkage of nonwoven vs. flow rate ratio for PE (M-691)/PP bicomponent fibers.

Drawing temperature; 100°C

Drawing ratio; 4

図6～9には，S-5016，S-5048，M-691の収縮挙動を示すにとどまっているが，延伸温度(100°C)延伸比(4.0倍)の高い所で分子量と単糸の収縮率において，

PP S-5016>S-5048>S-5016

PE M-680>M-690>M-691>M-692

の関係にあり，分子量の低い程(FRの高い程)弾性収縮，熱収縮共に低下する。

低潜在捲縮性能のPE/PP複合繊維は，PP，PE成分間の熱収縮差を小さくすることによって得られる。2成分間の熱収縮差は(3.1.1)に述べたように単独成分繊維の収縮挙動の検討から，分子量の小さいPEと分子量の大きいPPを組合せて得られる複合繊維を高温，高倍率

Fig. 4. Heat shrinkage of nonwoven vs. drawing temperature for PE/PP (S-5016) bicomponent fibers.

— × — PE (M-680)/PP (S-5016)
 — ■ — PE (M-690)/PP (S-5016)
 — ● — PE (M-691)/PP (S-5016)
 — ▲ — PE (M-692)/PP (S-5016)
 Drawing ratio; 4

Fig. 5. Heat shrinkage of nonwoven vs. drawing ratio for the PE (M-691)/PP (S-5016) bicomponent fiber.

Drawing temperature; 100°C

で延伸を行うことによって、小さくなる傾向にあることがわかった。

しかしながら複合繊維のすべての捲縮挙動は、単独成分繊維に関して検討した結果で説明することは出来ない。例えば図7に示した延伸比と弾性収縮との関係において延伸比5の場合のPP (S-5016)とPE (M-691)との弾性収縮差は、ほとんどないことが観測されていることから、これらの組合せによる複合繊維の顕在捲縮は小さいと考えられるし、また図9にみられるように延伸比を5とした場合のPE (M-691)の熱収縮はPP (S-5016)の

Fig. 6. Elastic recovery vs. drawing ratio for PP and PE fibers.

— ● — PP (S-5016)
 — ▲ — PP (S-5048)
 --- ■ --- PE (M-691)
 Drawing temperature; 20°C

Fig. 7. Elastic recovery vs. drawing ratio for PP and PE fibers.

— ● — PP (S-5016)
 — ▲ — PP (S-5048)
 --- ■ --- PE (M-691)
 Drawing temperature; 100°C

Fig. 8. Heat shrinkage vs. drawing ratio for PP and PE fibers.

— ● — PP (S-5016)
 — ▲ — PP (S-5048)
 --- ■ --- PE (M-691)
 Drawing temperature; 20°C

Fig. 9. Heat shrinkage vs. drawing ratio for PP and PE fibers.

—●— PP (S-5016)
—▲— PP (S-5048)
---■--- PE (M-691)
Drawing temperature; 100 °C

Fig. 10. Total shrinkage vs. drawing ratio for PP and PE fibers.

—●— PP (S-5016)
—▲— PP (S-5048)
---■--- PE (M-691)
Drawing temperature; 100 °C

それより大きく、熱処理後は、PE成分を内側とする潜在捲縮の発現が予想される。しかし実際には、この場合図 11(a)に示したように 13 山/10 cm の大きな顕在捲縮がみられる。この際の捲縮は図 12 に示した通り PP 成分が内側に配位し、弾性収縮率が PE 成分のそれよりも

Fig. 12. Longitudinal view of the PE (M-691)/PP (S-5016) bicomponent fiber showing PP side taking the inside track of the crimp bend.

大きいことを示している。一方熱処理後では図 11(b)にみられるように捲縮は減少し 9 山/10 cm となる。

このように単独成分繊維の収縮挙動から推察した複合繊維の捲縮挙動は、各成分の流動特性に由来して発現する繊維の断面形状に関係するために、かならずしも実際の場合と一致しない。図 13 に試料 A-3 [PE (M-691)/PP (S-5016)] の断面形状を示す。この場合、内心を形成する PP 成分の熱延伸による収縮低下の効果は PP 単独成分の場合に比べて小さいが、PP 成分を取り巻く PE 成分に対する同様の効果は、その単独成分の場合とほぼ同じであると考えられる。したがって図 7 および図 9 に示される PE 成分の収縮曲線は変わらないが、PP

Fig. 13. Interface shape of the PE (M-691)/PP (S-5016) bicomponent fiber.

Fig. 11. Numbers of apparent (after drawing) and latent (after heat treatment) crimp of the PE (M-691)/PP (S-5016) bicomponent fiber.

Drawing temperature; 100 °C

Drawing ratio; 5

(a); Apparent crimp

(b); Latent crimp

成分のそれは収縮の高いほうに移行することになる。その結果、PP、PE両成分間の弾性収縮差は大、すなわち顕在捲縮が発現することになり、複合繊維(試料A-3)が図11(a)に示したような13山/10cmの大きな捲縮を示すことが理解出来る。また同様にして両成分間の熱収縮差は小、すなわち潜在捲縮は抑制され、熱処理後はPE成分の収縮はPP成分のそれより大きくなるために今までPP成分を内側としていた捲縮は反転し、捲縮数は、図11(b)にみられるように9山/10cmに減少する。

3.2 複合繊維の断面形状が潜在捲縮性能に及ぼす効果

3.2.1 捲縮繊維の曲率

複合繊維の捲縮性は、繊維断面の形状にも関係することが知られており¹²⁾捲縮性に関して一般的理論式も導出されている^{5,18,14)}。ここではPE/PP複合繊維がモデル的に図14(a)および図14(b)の断面形状をもった場合の捲縮繊維の曲率 K_a および K_b をJimoshenkoの理論に基づいて導かれた⁵⁾次式を用いて求めた。

$$K_0 = 1/\rho_0$$

$$= \frac{\Delta L/L}{(d_1 + d_2) + \frac{1}{d_1 + d_2} \left[I_1 \left(\frac{1}{A_1} + \frac{n}{A_2} \right) + I_2 \left(\frac{1}{A_2} + \frac{1}{nA_1} \right) \right]} \quad (1)$$

ここに、 A_1 と A_2 は2成分の断面積、 I_1 と I_2 はこれに対応する断面の慣性モーメント、 n は両成分のヤング率の比 E_1/E_2 、 d_1 と d_2 は、各成分の断面の中心から曲げ中立線迄の距離、 $\Delta L/L$ は両成分の長さ変化の差、 K_0 は捲縮繊維の曲率、 ρ_0 は、その曲率半径をあらわす。

(1) 捲縮繊維の曲率(K_a)

PE成分およびPP成分の断面積を A_1 、 A_2 、断面の慣性モーメント I_1 、 I_2 、断面の重心から曲げ中立線迄の距離 d_1 、 d_2 、複合繊維断面の半径 a とすると、

$$A_1 = A_2 = \pi a^2/2 \quad (2)$$

図14のような質点(m)の連続的な集合体では重心 y_G は、

Fig. 14. Schematic representation for interface shapes of PE/PP bicomponent fibers.

(a); Side-by-side type

(b); Eccentric sheath-core type.

$y_G = \int x dm / \int dm$ で求められるから、

$$d_1 = d_2 = \frac{\int_{-a}^a y \sqrt{a^2 - y^2} dy}{\pi a^2/2} = 4a/3\pi \quad (3)$$

PE成分およびPP成分の x 軸方向の慣性モーメント、 I_{1x} 、 I_{2x} 、 y 軸方向の慣性モーメント、 I_{1y} 、 I_{2y} とすると

$$I_x = I_{1x} = I_{2x} = \int_{-a}^a x^2 dm = \int_{-a}^a x^2 \sqrt{a^2 - y^2} dy = \frac{a^4 \pi}{8}$$

$$I_y = I_{1y} = I_{2y} = 2 \int_0^a y^2 \sqrt{a^2 - y^2} dy = \frac{a^4 \pi}{8}$$

$$I_1 = I_2 = I_x + I_y = \frac{a^4 \pi}{4} \quad (4)$$

両成分のヤング率比、 n は捲縮曲率に対して無視出来る程度の効果であることが知られており¹⁴⁾、 $n = E_1/E_2 \approx 1$ と見ることができる。

$\Delta L/L = C$ (const)として(2)、(3)、(4)を(1)式に代入して捲縮曲率 K_a を求める。

$$K_a = \frac{12 \cdot \pi \cdot C}{(32 + 9\pi^2)a} \quad (5)$$

(2) 捲縮繊維の曲率(K_b)

図14(b)において、内接するPP成分の断面半径 b とし A 、 I 、 d 、 $\Delta L/L$ に関して(3.2.1(1))と同様の記号を用いる。

$$A_1 = A_2 = \frac{\pi a^2}{2} = \pi b^2 \quad (6)$$

$$d_1 = d_2 = (\sqrt{2} - 1)b \quad (7)$$

$$I_{1x} = 2 \int_{-a}^a x^2 (\sqrt{a^2 - x^2} - \sqrt{b^2 - \{x + (\sqrt{2} - 1)b\}^2}) dx = \frac{8\sqrt{2} - 9}{4} b^4 \pi$$

$$I_{1y} = 2 \int_{-a}^a y^2 \sqrt{a^2 - y^2} dy - 2 \int_{-b}^b y^2 \{\sqrt{a^2 - y^2} - (\sqrt{2} - 1)b\} dy = \frac{3b^4 \pi}{4} + \frac{4(\sqrt{2} - 1)}{3} b^4$$

$$I_1 = I_{1x} + I_{1y} = \frac{4\sqrt{2} - 3}{2} b^4 \pi + \frac{4}{3} (\sqrt{2} - 1) b^4 \quad (8)$$

$$I_2 = I_{2x} + I_{2y} = \frac{b^4 \pi}{4} \quad (9)$$

(6)、(7)、(8)、(9)を(1)式に代入して捲縮曲率 K_b を

求める。

$$K_b = \frac{12\sqrt{2}\pi \cdot C}{a\{(33\sqrt{2}+9)\pi+16\}} \quad (10)$$

3.2.2 捲縮性能の比較

捲縮数 (C_t) は繊維実長 (L_0) 当りの捲縮ループ数 (C_n) として定義され捲縮曲率 (K_0) に直接関係している¹⁴⁾。

$$C_t = C_n / L_0 = 1/2\pi\rho_0 = K_0/2\pi$$

図14(a)および図14(b)の断面を有する複合繊維が $\Delta L/L$ の長さ変化した時に発現する捲縮数を C_{t1} および C_{t2} とすると

$$C_{t1} = K_a/2\pi = \frac{6C}{(32+9\pi^2)a} \doteq 0.049 C/a \quad (11)$$

$$C_{t2} = K_b/2\pi = \frac{6\sqrt{2}C}{\{(33\sqrt{2}+9)\pi+16\}a} \doteq 0.044 C/a \quad (12)$$

(11), (12) より $C_{t1} > C_{t2}$

$$\frac{C_{t1}-C_{t2}}{C_{t1}} \times 100 \doteq 10.2 (\%)$$

図14(b)のような断面形状(偏心 Sheath-Core 型)を有する複合繊維は、Side-by-side 型(図14(a))に比して捲縮しにくいことが、立証されたが、捲縮数の比でみると10%程度劣るにすぎない。

したがって PE/PP 複合繊維の試料 A-3 が図13の様な断面形状をとることによる材料力学面からの潜在捲縮能抑制効果は、捲縮数にして高々10%程度であり、支配的要因とはいえない。

4. 結 論

PE, PP を複合成分とする複合型接着用繊維の潜在捲縮能の抑制について検討を行った。

その結果、FR 比が3以上となるよう両成分を組合せ複合紡糸し、延伸温度100℃以上、延伸比3倍以上の条件下で熱延伸することによって、潜在捲縮能の抑制が可能となることを見出した。

このことは、複合繊維の断面形状に基づいて複合成分間に起る延伸時の温度効果から説明することができる。

文 献

- 1) Sisson (Avisco), U.S.P. 2,439,815-1948
- 2) H. F. Mark, S. M. Atlas, E. Cernia, "Man-made Fibers" Interscience Publishers, U.S.A., p 391 (1967)
- 3) S. Davis, C.R. Sissons (British Nylon Spinners), U.S.P. 3,595,731-1971
- 4) T. D. Brawn, W. J. Onion, *J. Text Inst.*, **52**, T101 (1961)
- 5) R. H. Brand, S. Baker, *Tex. Res. J.*, **32**, 39 (1962)
- 6) R. Jeffries, "Bicomponent Fibers" Merrow Publishing Co. Ltd., Great Britain p 29 (1971)
- 7) W. Kranz (E.I. du Pont), U.S.P. 3,589,956-1971
- 8) 松井雅男, 山辺正博(鐘紡); 特公昭 46-5247
- 9) 富岡 享, 小島盛男; 織学誌, **35**, 68 (1979)
- 10) P. Parrini, *Makromol. Chem.*, **38**, 27 (1960)
- 11) C. T. Stacy, R. L. Arnett, *J. Polym. Sci.*, **A-2**, 167 (1964)
- 12) 吉原敏雄; 「繊維の形成と構造の発現(Ⅲ)」(繊維学会編), 化学同人, p.75 (1971)
- 13) 安田 浩, 長野和義, 松尾達樹; 織学誌, **27**, 168 (1971)
- 14) E. M. Hicko, E. A. Tippetts, J. V. Hewett, R. H. Brand, "Man-made Fibers" (H. F. Mark, S. M. Atlas, E. Cernia) Interscience Publishers. U.S.A. p 399 (1967)