インフレーション成形の粘弾性解析

篠原 正之^{*1}・梶原 稔尚^{*2}・船津 和守^{*3}

Viscoelastic Analysis of Tubular Film Blowing

SHINOHARA, Masayuki^{*1}/KAJIWARA, Toshihisa^{*2}/FUNATSU, Kazumori^{*3}

In this research, we investigated the dependence of stress anisotropy and bubble shape on Weissenberg number and degree of non-linearity at a fixed bubble radius and thickness in tubular film blowing. The process was analysed by the Maxwell model and Larson model. Conclusions were as follows. ① As the Weissenberg number increases at a fixed blow-up ratio and draw down ratio, the stress ratio at the freezeline increases and a neck in the bubble vanishes for the Maxwell model. ② Stress could be calculated to realistic draw down ratio by introducing non-linear constitutive equations into the film blowing analysis. ③ As the non-linear parameter increases at a fixed blow-up ratio and draw down ratio, stress anisotropy increases and the length of neck increases.

Key words : Tubular film blowing/Viscoelasticity/Larson model

1. 緒 言

インフレーション成形はTダイキャストやシート成形とならんで高分子フィルムの代表的成形法である。高密度ポリエチレン (HDPE) の場合、全用途の40%

程度がインフレーション成形によって製品化されている。

インフレーション成形の概要をFig.1に示した。二重円筒状のダイから出た熔融樹脂に内圧を掛けて膨張させ、同時にローラーで連続的に引き取り、円筒状のフィルムを製造する成形法である。膨張した熔融樹脂をバブルと呼ぶ。バブルはエアリング (air-ring) からの冷却風によって冷却され、フロストラインと呼ばれる固化領域を経て、ローラーで巻き取られる。フロストラインまでの膨張比とローラーの巻取速度を調節することにより、様々な幅と厚さのフィルムが製造できる点がインフレーション成形法の特徴である。

また、インフレーション成形は典型的な一軸ないし二軸の伸長プロセスであり、膨張比や延伸比、フロストライン高さにより、フィルムの特性を変化させることができる。特に力学的諸物性は重要な要求特性であり、衝撃強さ、引張強さ、引裂強さ、弾性率などがある。

これらフィルムの性質は前述の成形操作因子と材料のレオロジー的性質に依存するため、インフレーション成形をモデル化し、理論的に解析する研究が行われてきた。インフレーション成形のモデル化を最初に

^{*1} 出光石油化学(株) 樹脂研究所
市原市姉崎海岸 1-1 (〒299-01)
Polymer Research Laboratory,
Idemitsu Petrochemical Co., Ltd.
1-1 Anesakikaigan, Ichihara, Chiba 299-01 Japan

^{*2} 九州大学 工学部 化学機械工学科
現・九州工業大学 工学部 物質工学科
北九州市戸畑区仙水町 1-1 (〒804)
Department of Chemical Engineering,
Kyushu University
Present affiliation
Department of Applied Chemistry,
Kyushu Institute of Technology
1-1 Sensui-cho, Tobata-ku, Kitakyushu, Fukuoka
804 Japan

^{*3} 九州大学 工学部 化学機械工学科
福岡市箱崎 6-10-1 (〒812)
Department of Chemical Engineering,
Kyushu University
6-10-1 Hakozaki, Higashi-ku, Fukuoka 812 Japan
1996.10.8 受理

行ったのは Pearson と Petrie^{1)~3)} である。彼らは薄膜を仮定した支配方程式を導き、等温 Newton 流体による解析を行った。Han⁴⁾ は、power-law モデルで解析した。金井^{5)~7)} と White は、結晶化過程を取り入れた非等温 Newton 流体による解析を行った。

粘弾性解析の研究は、Maxwell モデルを用いた解析が Petrie⁸⁾ や Wagner⁹⁾, Tanner¹⁰⁾ らによって行われている。最近 Denn ら¹¹⁾ は、Maxwell モデルなどを用い、数値計算の詳細な結果を報告している。Campbell¹²⁾ らは、フロスト付近に二相モデルを導入し、解析している。

以上、インフレーション成形の解析は着実に進歩してきた。しかしながら、金井らの解析を除いて、同一の成形条件で材料のレオロジー的性質と成形挙動の関係を検討した例はほとんどない。

本報では、非線形粘弾性モデルをインフレーション成形モデル^{1)~3)} に取り入れることにより、同一成形条件下における応力とバブル形状の粘弾性的性質依存性について検討した結果を述べる。製膜時の応力は平均的な分子の配向と関係し、最終製品の力学的性質に大きく影響すると考えられる。

2. インフレーション成形のモデル化

2.1 座標および変形速度テンソル

解析のための座標系を Fig.2 に示した。座標の設定は従来の方法に従った。

ダイの中心から押出方向に z 軸をとり、バブルは z 軸に対して対称であるとした。いっぽう、バブル表面に局所座標系 (s, t, n) を取り、 s をバブルの縦方向、 t を横方向、 n を厚み方向とした。 t は座標を右手系とした場合、図の紙面に垂直下向きの方向とした。

Fig.1
Schematic of
film blowing
process

位置 z におけるバブルの半径を R 、厚みを H とした。バブルが z 軸に対称であることを仮定したので、 $R(z)$ および $H(z)$ である。フロストラインの位置 $z=z_f$ における半径および厚みを R_f , H_f とした。

v_s を縦方向の速度とすると、バブル表面の各位置において、

$$2\pi RHv_s = q \tag{1}$$

が成立する。ここで、 q は単位時間当たりの流量であり、定常状態では一定である。(1)式は、連続の式(質量保存則)を表している。(1)式を s で微分することにより、

$$\frac{dv_s}{ds} = -\frac{1}{H} v_s - \frac{dH}{ds} - \frac{1}{R} v_s \frac{dR}{ds} \tag{2}$$

が得られる。左辺は s 方向のひずみ速度であり、右辺第1項は厚み方向のひずみ速度に負号をつけたもの、第2項は半径方向のひずみ速度に負号を付けたものである。(2)式を用いて、変形速度テンソル D は次式で表される。

$$D = \frac{q \cos \theta}{2 \pi R H} \begin{bmatrix} -\left(\frac{H'}{H} + \frac{R'}{R}\right) & 0 & 0 \\ 0 & \frac{H'}{H} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{R'}{R} \end{bmatrix} \tag{3}$$

2.2 運動量およびエネルギー保存式

力のバランス式は薄膜を仮定した以下の2式を用いた。

$$\frac{\Delta P}{H} = \frac{\sigma_s}{\rho_t} + \frac{\sigma_t}{\rho_s} \tag{4}$$

$$-\pi R^2 \Delta P + 2 \pi R H \sigma_s \cos \theta = F_z - \pi R^2 \Delta P \tag{5}$$

(4)式はバブルの厚み方向の力のバランス式であり、 ΔP はバブル内圧、 σ_s , σ_t は s 方向および t 方向の応力、 ρ_s と ρ_t は s 方向および t 方向の曲率半径であ

Fig.2 Coordinate systems of film blowing

る。

$$\rho_s = - \frac{\left\{ 1 + \left(\frac{dR}{dz} \right)^2 \right\}^{3/2}}{\frac{d^2 R}{dz^2}} \quad (6)$$

$$\rho_t = R \left\{ 1 + \left(\frac{dR}{dz} \right)^2 \right\}^{1/2} \quad (7)$$

(5)式は z 方向の力のバランス式である。 F_z はピンチローラーから与えられる z 方向の張力であり、 $\cos\theta$ はFig.2に示したように、

$$\cos\theta = R \left\{ 1 + \left(\frac{dR}{dz} \right)^2 \right\}^{-(1/2)} \quad (8)$$

で与えられ、局所座標系の諸量を z の関数に変換するために用いる。

エネルギー保存則として、

$$\rho C_p q \cos\theta \frac{dT}{dz} = -2\pi R U (T - T_a) \quad (9)$$

を仮定した。 ρ は溶融密度、 C_p はポリマーの熱容量、 U は総括伝熱係数、 T はバブル温度、 T_a は冷却空気温度である。(9)式は熱伝達の主要な因子として対流伝熱のみを取り入れたモデルである。

2.3 構成方程式の選定

構成方程式は別報¹³⁾で検討した緩和モード以外の一つのフィッティングパラメーターをもつ微分型の中から、Larsonの式を選定して用いた。別報の結果より、一軸伸長流動下における定常伸長粘度の予測性能は各粘弾性モデルにより大きく異なっている。本報の目的の一つである製膜時の応力予測のためには、高延伸倍率時すなわち定常状態に近いひずみ領域における伸長粘度の予測性能が重要であり、この点でLarsonモデルが最適と考えられた。

Larsonモデルは次式で表される。

$$\tau + \lambda \frac{\delta \tau}{\delta t} + \frac{2a\lambda}{3G} D : \tau (\tau + G1) = 2G\lambda D \quad (10)$$

ここで、 τ は余剰応力テンソル、 λ は緩和時間、 G は弾性率、 a は非線形パラメーター、 1 は単位テンソルである。また、 $\delta/\delta t$ は対流微分であり、 $D : \tau$ は $\text{tr}(D \cdot \tau)$ を表す。(10)式は非線形性の影響を検討するために用いた。緩和時間の影響を検討する場合には、(10)式で $a=0$ と置いたMaxwellモデルを用いた。

$$\tau + \lambda \frac{\delta \tau}{\delta t} = 2G\lambda D \quad (11)$$

余剰応力テンソルと応力テンソルの関係は、

$$\sigma = -p1 + \tau \quad (12)$$

である。ここで、 p は内部圧力である。

緩和時間の温度依存性はArrhenius型を仮定した。

$$\lambda = \lambda_0 \exp \left\{ \frac{E}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right) \right\} \quad (13)$$

ここで、 λ_0 は基準温度における緩和時間であり、 E は流動の活性化エネルギーである。

2.4 無次元化

変形速度テンソルの式(3)式を構成方程式(10)または(11)式に代入し、(4)式、(5)式、(9)式と組み合わせることによって支配方程式が得られる。独立変数 z に対し、従属変数は σ_s 、 σ_t 、 p 、 R 、 H 、 T である。

これらの量を代表長さ R_0 、代表速度 v_0 、代表温度 T_a 、ゼロせん断粘度 η_0 で無次元化した。 R_0 はダイの半径、 v_0 は押出線速度である。応力、緩和時間については通常と同様である。ただし、Weissenberg数は $\bar{\lambda}$ で表した。Weissenberg数の定義式は、

$$\bar{\lambda} = \frac{\lambda v_0}{R_0} \quad (14)$$

である。

成形操作に関係したパラメーターは、

$$\begin{aligned} B &= \frac{\pi R_0^3 \Delta P}{\eta_0 q} \\ T_z &= \frac{R_0 F_z}{\eta_0 q} \\ C_h &= \frac{2\pi R_0^2 U}{\rho C_p} \end{aligned} \quad (15)$$

フィルムのサイズに関係したパラメーターは、

$$\begin{aligned} \bar{R}_t &= R_t / R_0 \\ \bar{H}_t &= H_t / H_0 \end{aligned} \quad (16)$$

である。ここで、 H_0 はダイクリアランスである。

R_t を通常、ブロー比と呼ぶ。また、バブルの引き取り速度を v_t とした時、 v_t/v_0 をドロー比と呼ぶ。ドロー比は、 $\bar{R}_t$ および $\bar{H}_t$ と

$$\frac{v_t}{v_0} = \frac{1}{\bar{R}_t \bar{H}_t} \quad (17)$$

の関係にある。

また、温度 T は、

$$\bar{T} = \frac{T - T_a}{T_a} \quad (18)$$

とした。なお、位置 z は $X = z/R_0$ とした。

3. 計算方法

5個の連立常微分方程式を以下の境界条件で解いた。

$$\left. \begin{aligned} \bar{R} &= 1 \\ \bar{H} &= 1 \\ p &= 0 \\ \sigma_t &= 0 \\ R' &= R'_0 \\ \bar{T} &= T_0 \end{aligned} \right\} \text{ at } X=0 \quad \left. \begin{aligned} \bar{R} &= \bar{R}_t \\ \bar{H} &= \bar{H}_t \\ R' &= 0 \\ \bar{T} &= \bar{T}_t \end{aligned} \right\} \text{ at } X=X_t \quad (19)$$

T_0 は押出温度を(18)式に入れた値であり、 R'_0 はダイ出口における半径の増加率である。

Fig.3 Scheme of the calculation method

計算のフローを Fig.3 に示した。従来の報告では、 B と T_z を一定としてフロストラインにおける R_f , H_f を求めているものが大半であった。しかしながらこの方法ではフィルムサイズを同一とした時の材料の熔融粘弾性的性質と成形性の関係を検討することができない。また、実際のインフレーション成形の操作でも、所定のサイズのフィルムを得るためにバブル内圧と冷却風の量を調節する。そこで本検討では、計算方法についても実際の成形操作と同様となるようにした。この方法は金井⁷⁾の方法を、粘弾性流体に拡張したものである。

最初にパラメーター B , T_z , C_h , R_0' に適当な値を入れ、 $X=0$ から $X=X_f$ まで積分する。結果を所定の境界条件と比較し、境界条件を満たさない場合には、4種のパラメーターをわずかに増加させて偏微分係数 f'_{ij} を求める。ここで、 f'_{ij} は $X=X_f$ における境界条件を列ベクトル Y 、パラメーターを列ベクトル X としたとき、

$$dY = [f'] dX \quad (20)$$

で表される行列の要素である。改良されたパラメーターは、

$$dX = [f']^{-1} dY \quad (21)$$

より得られる。このステップを境界条件を完全に満たすまで繰り返し、同時に最適パラメーター値も求めた。

4. 結果と考察

4.1 Weissenberg 数依存性

Fig. 4 にブロー比とドロー比を一定とした場合のバブル形状の Weissenberg 数依存性を示した。Maxwell モデルを用いた。HDPE を想定した流動の活性化エネルギーと T_f の値を用いた。横軸に規格化した半径を、縦軸に規格化した位置を取り、実際の成形と同様に図示した。

Weissenberg 数を増加させるに従って、バブル形状

Fig.4 Dependence of the bubble shapes on Weissenberg number under constant draw ratio and blow-up ratio by using the Maxwell model

はウィングラス型から首の太い形状に変化した。従来の報告では流動の活性化エネルギーを大きくすることから知られている。典型的な例はポリエチレンであり、HDPE の場合にはウィングラス型、LDPE の場合には首の太い形状である。この結果は、Weissenberg 数の増加によっても同様の現象が起こることを予測している。流動の活性化エネルギーの増加と Weissenberg 数の増加はどちらも伸長応力の増加をもたらす。したがって、フロストラインに近くなるほど変形しにくい。同一のフィルムサイズで比較した場合、ダイを出てから比較的初期の段階で変形するためと考えられる。

Fig. 5 にブロー比とドロー比を一定とした場合のフロストラインにおける縦方向、横方向の応力とそれらの比を示した。フロスト付近における応力は固化時の応力と密接に関係し、したがって、製品となったフィルムの力学的性質に強く影響するものと考えられる。図中の MD は縦方向を意味し、TD は横方向を意味する。Weissenberg 数の増加とともに、縦方向の応力は増加し、横方向の応力は減少していく。結果的に応力の異方性は増加していくことが予測された。実際のインフレーション成形で製造されたフィルムの場合にも、分子量分布の広いものほど製品の力学的異方性が大きいことが知られている。分子量分布の拡大によって緩和時間分布も拡大するので、平均の Weissenberg 数も増加すると考えられる。この結果は定性的に実際の現象と一致している。

Fig.5 Dependence of stresses in the direction of MD and TD on Weissenberg number under constant draw ratio and blow-up ratio

Table 1 Effect of varying non-linear parameter α

α	0.0	0.01	0.05	0.20
$\bar{R}_f$	2.79	2.71	2.50	2.15
$\bar{H}_f$	0.023	0.021	0.020	0.008
v_f/v_0	15.6	17.6	20.0	58.0

4.2 非線形パラメーター依存性

Fig.6 は、バブル形状の非線形パラメーター依存性を示したものである。この図のみ、Tanner らの結果と比較するために、 B , T_z を一定として等温状態を仮定して計算した。非線形パラメーター $\alpha=0.0$ の結果は Tanner らの結果と一致し、計算プログラムの有効性が確かめられた。非線形性を大きくするに従ってブロー比は小さくなった。しかしながら、非線形性を大きくした効果はドロー比に著しく現れた。Table 1 は非線形パラメーターを増加させた場合のブロー比とドロー比を示したものである。 T_z 一定でも非線形性が大きくなるに従ってドロー比が大きく増加した。実成形におけるドロー比は数十から 100 程度であり、非線形構成方程式をインフレーション成形の粘弾性解析に取り入れることにより、より実際に即した計算が可能となることが明らかとなった。

Fig.7 はブロー比、ドロー比を一定とした場合の無次元化したバブル引取力 T_z を Maxwell モデルおよび Larson モデルで比較した結果である。Maxwell モデルではドロー比が比較的小さいうちに無限大の力が必要となってしまう、計算不可能となる。これは、このモデルの伸長応力がひずみ速度が大きくなると無限大となるためである。いっぽう、Larson モデルは比較的实验結果に近いオーダーのバブル引取力を予測する。

Fig.6 Dependence of the bubble shapes on non-linear parameter under constant dimensionless bubble tension and internal pressure

Fig.7 Comparison of dimensionless bubble tension T_z on draw-down ratio between the Maxwell model and the Larson model

非線形モデルの導入により、高いドロー比まで計算可能となった理由は、非線形モデルの予測応力が無限大とならず、実際に近いためである。

Fig.8 はフロストラインにおける縦方向と横方向の応力と非線形パラメーターの関係を示したものである。非線形性が増加するに伴ってそれぞれの応力は減少する。

Fig.9 に応力の比と非線形パラメーターの関係を示した。非線形性が強くなるに従って製膜時の応力の異方性が強くなっていくことが予測された。一般にせん断粘度の非 Newton 性が強いほどフィルムの力学的性質の異方性も強くなることが知られている。この結果も定性的に実際の現象と一致した。

Fig.10 にバブル形状の非線形パラメーター依存性を示した。非線形性が大きいほどバブルの首は長くなり、いわゆるネックイン現象が激しくなることが予測された。4.1 節の Weissenberg 数とバブル形状の結果と併せて考察すると、ネックイン現象には緩和時間と

Fig. 8 Dependence of stresses in the direction of MD and TD on non-linear parameter under constant draw-down ratio and blow-up ratio

Fig. 9 Dependence of stress ratio at the freezeline height on non-linear parameter

Fig. 10 Dependence of the bubble shapes on non-linear parameter under constant draw-down ratio and blow-up ratio

Fig. 11 Calculated temperature profile under various conditions

非線形度の両方が影響することが予測された。

4.3 バブル温度の予測性能

以上、4.1節および4.2節でパラメーターと成形性の関係について検討してきたが、本解析が非等温で行われているため、同時に算出されるバブル温度の妥当性を確認する必要がある。Fig. 11 にバブル温度の計算値を示した。HDPE は結晶性高分子であり、温度はダイからの距離とともに直線的ないしはやや上に凸の曲線で減少したのち、フロストラインの直前で一定となって結晶化することが報告¹⁴⁾されている。本解析ではフロストラインで一定値になるようにしたが、得られた温度プロファイルはやや上に凸の曲線であり、現象と定性的に一致しており、妥当であると判断された。

4.4 実験との比較

2種のHDPEを用いて、予測結果を実験と比較した。試料Aは M_w 275000, M_w/M_n 27.2であり、試料Bは M_w 254000, M_w/M_n 28.7である。動的粘弾性はレオメトリックス社製システム4で測定した。結果を

Fig. 12 に示した。動的弾性率、 G' の結果から緩和スペクトルの分布はAのほうがBよりも広く、平均のWeissenberg数は $A > B$ である。また複素粘性率にCox-Mertz則を仮定すると非Newton性もAのほうが大きい。

インフレーション成形は実験用の小型装置で行った。Fig. 13 に概要を示した。ダイの直径は1.7 cm、ダイクリアランスは0.067 cmである。バブル引取力は「てこ」の原理を用いて、張力計であるLVDTで測定した。バブル内圧はダイ中心にある空気吹込用のラインと連結させたマンオメーターで測定した。押出温度は190°Cとし、押出量は20 g/minとした。ブロー比は3.1、ドロー比は8.7とした。フロストライン高さは8.5 cmとした。

結果をTable 2 に示した。(4)と(5)式よりフロストラインにおける縦方向と横方向の応力の比は、

$$\frac{\sigma_s}{\sigma_t} \propto \frac{F_z}{\Delta P} \quad (22)$$

となることがわかる。試料AはBよりもWeissenberg

Fig.12 Dynamic viscoelastic properties of HDPE

Table 2 Bubble tension and internal pressure of HDPE

Sample	F_z (g)	ΔP (cm)	$F_z/\Delta P$	Tear strength ratio (TD/MD)
A (●)	280	9	31	11.0
B (○)	260	11	24	7.5

数が大きく、非線形性も大きい。どちらの効果により支配的な因子かは目下のところ判断できないが、 $F_z/\Delta P$ は A が B より大きく、予測結果と測定結果は定性的に一致した。また、フィルムの引裂強度の比も A が B より大きく、 $F_z/\Delta P$ の大小関係と一致した。

5. 結 言

インフレーション成形モデルに非線形粘弾性モデルを取り入れ、定常非等温解析を行い、以下の結論を得た。

- ① ブロー比とドロー比を一定とした場合、Weissenberg 数が増加するに従ってバブル形状はワイングラス型から首の太い形状へ変化した。またフロストラインの応力の異质性が急激に増加した。
- ② 非線形粘弾性モデルを取り入れた結果、より実用的なドロー比まで計算することができた。
- ③ ブロー比とドロー比を一定とした場合、非線形性が増加するに従って、バブル形状はより首の長い形状へ変化した。また、フロストラインにおける応力の異质性は大きくなった。
- ④ 小型成形機により、計算条件と同一の条件で成形した結果、予測結果と実験結果は定性的に一致し、本報のモデルの有効性が確認された。

Fig.13 Experimental apparatus for measuring bubble and internal pressure

参 考 文 献

- 1) Pearson, J.R.A. and Petrie, C. J. S.: *J. Fluid Mech.*, **40**, 1 (1970)
- 2) Pearson, J.R.A. and Petrie, C. J. S.: *J. Fluid Mech.*, **42**, 609 (1970)
- 3) Pearson, J.R.A. and Petrie, C. J. S.: *J. Fluid Mech.*, **42**, 609 (1970)
- 4) Han, C.D. and Park, J. Y.: *J. Appl. Polym. Sci.*, **19**, 3277 (1975)
- 5) Kanai, T. and White, J.L.: *Polym. Eng. Sci.*, **24** (11), 85 (1984)
- 6) Kanai, T.: *Int. Polym. Processing*, **1**, 137 (1987)
- 7) 金井俊孝: 繊維学会誌, **40**, 28 (1984)
- 8) Petrie, C.J.S.: *Rheol. Acta*, **12**, 92 (1973)
- 9) Wagner, M.H.: *Rheol. Acta*, **15**, 40 (1978)
- 10) Luo, X.L. and Tanner, R.I.: *Polym. Eng. Sci.*, **25**, 620 (1985)
- 11) Cain, J.J. and Denn, M.M.: *Polym. Eng. Sci.*, **28**, 1527 (1988)
- 12) Babel, K. and Campbell, G.A.: *Polym. Process. Soc. Annual Meeting Abstract*, 216 (1991)
- 13) 篠原正之, 梶原稔尚, 船津和守: 成形加工, 投稿中
- 14) Kanai, T. and White, J.L.: *J. Polym. Eng.*, **5**, 135 (1985)