繊維および機械の技術はいかにして 創出されたか（第3回）

紡糸理論（1960～1970年代）

松尾達樹 MATSUO Tatsuki

SCI-TEX（コンサルタント）

1. はじめに

本稿の記述の対象は、1960年、1970年代に発表された紡糸過程の現象論的理論について、溶融紡糸を中心とするが、乾式紡糸をも含めることにする。また理論そのもののみでなく、その技術的応用展開についても述べることにする。

本稿に特に関係の深い文献としては、文献1)と2)が挙げられる。文献1)では、理論の総説的な詳しい内容の記載があり、文献2)では、筆者らによる理論創出の経緯などがかなり詳細に述べられている。したがって、これらと重複するところは、比較的簡単な記述にとどめることにする。

1962年当時、すでに東洋レーヨン（現東レ）と日本レイヨン（現ユニチカ）からナイロン6繊維が、また東洋レーヨンと帝国人造絹糸（現帝人）からPET繊維が工業化されていた。また夢の繊維といわれていたPP繊維が、東洋紡、東洋レーヨン、三菱レイヨンによってその年に工業化されていた。

私は当時入社後4年目で、東洋紡繊維技術研究所に勤務していた。東洋紡はレーヨンやアクリル繊維の湿式紡糸には十分な経験を持っていたが、溶融紡糸の技術については未熟であり、そのPPフィラメントの織度斑は、東洋レーヨンのレベルに比べてかなり大きく劣っていた。少しでもそこに近づこうとして社内では種々の試みがなされたが、その進歩は遅々としていた。私は当時試験室にいて直接この試みに携わる立場になかったが、「溶融紡糸は比較的シンプルな物理的手段によるものなので、理論的解明ができるかもしれない、もしそうとなると、織度斑問題の解決も可能になるかもしれない」と考え、「その理論的解明の研究をやらせてほしい。ただし数学ができる人を共同研究者にしてほしい」旨を申し出た。その結果村上（当時技術課長）の支援を受けて、先輩筋に当たる加瀬がパートナーとなり、新しいプロジェクトが発足した。

2. 溶融紡糸の基礎理論の創出とその展開

早速それまで行われていた理論的研究の文献を集めて

検討した結果、A. ZiabickiとE. H. Andrewsの論文が注目された。しかし前者は紡糸過程の質量保存式と力学的な関係式のみを取り扱い、後者はエネルギー収支式のみでの取り扱いであった。私は、溶融紡糸過程はこれら両者を同時に取り入れる連立的な方程式にすべきであり、紡糸張力は紡糸条件という境界条件を満たす固有値に対応するに違いないと直感した。種々の討論の結果、加瀬は①質量保存式、②力の釣り合い式（実はレオロジー式）、③エネルギー収支式からなる連立偏微分方程式にまとめ上げた。この解が、紡糸過程の単糸の細化状態曲線、冷却状態曲線ならびに紡糸張力を与えることになる。

しかし解を得るには、冷却風にかかわる熱伝達係数と、ポリマー特性を代表する伸長粘度の温度依存性と、を具体的な形で与える必要がある。そのため、円柱に見立てた細い熱電対を作成して、それに種々の角度から種々の風速の風を当ててその冷却曲線を測定し、それから熱伝達係数を求め、それをRe数ならびに円柱への垂直方向の流速と並行方向の流速の比による関数として定式化した。またPPの伸長粘度の温度依存性については、①紡糸過程のノズルからの距離の異なる各点の糸温度の測定と②各点での太さの測定を行い、その両者の結果を組み合わせることによって求めようとした。①については、予熱可能な細い熱電対を工夫し、糸に接触すると直ちに予熱していた温度より高いか低いか針の振れの方からわかるようにして、振れない予熱温度がその点のポリマー温度ということにした。また、②については、紡糸中の糸を瞬時に挟み取る道具を作成し、挟み取られた糸の各点の単位長さ当たりの重量を測定した。こうして得られたPPの伸長粘度の温度依存性の式と前記の熱伝達係数の関数を連立方程式の中に導入した。

紡糸条件である単位時間当たりのポリマー押出し量、ノズル温度、冷却風条件、雰囲気温度、引取速度を与え、上記の連立方程式の定常解を卓上計算機で数値計算すると、比較的容易に細化曲線、冷却曲線、紡糸張力が求まるようになった。なお、当時引取速度は500m/分程度の低速であったので、紡糸張力は一定と仮定（すなわち運動量収支式を無視）しても大きな誤差を生むことはなかった。こうなると興奮を覚えて、しばらくは種々の仮想的な紡糸条件を与えては、紡糸状態を予測計算すること

に没頭した。

まもなく加瀬が、上記の偏微分方程式を定常解周りの摂動差分方程式に変換し、当時実用化され始めたばかりの電子計算機を用い、フォートランを使って数値計算した。その結果は、織度斑が冷却風速の変動に最も敏感であることを示していた。図1は、時間0にて風速をステップ状に1%上昇したときの、引取点での糸の断面積の変化と紡糸張力の変化を示すシミュレーション計算結果である。

これらの成果については、上司の理解と村上からの勧めもあり、1965年のJ. Polymer Sci.の論文³⁾、1966年の繊維機械学会誌の論文⁴⁾などに、続けて発表した。また、大沢らによって上記の理論は運動量収支式をも取り入れ、微視的収支式を含む形で、数学的に大いに洗練された形にまとめられた¹⁾。これらの研究を対象として、a 日本繊維機械学会論文賞、b 高分子学会技術賞、c アクロン大学 Polymer Processing 殿堂入り、それぞれの賞をいただくことになった。特にcによって、我々の研究が世界での先駆け研究として認められたことになった。

上記の連立偏微分方程式から、ドローレゾナンスという糸の太さの規則的な変動現象が発生することが加瀬らによって予測・実証された。1970年代に石原・加瀬らは、本現象の発生機構、ニュートン粘性ならびに非ニュートン流体の変動発生範囲や変動度合いの解析を詳細に行い^{5, 6)}、日本繊維機械学会賞を受賞している。

以上の取り扱いは単糸に関するものであるが、しばしば単糸間の斑が問題になる。この場合は、冷却風の当たり方が単糸によって異なることがキーポイントになる。大沢、安田らは、冷却風が風上側の糸との熱交換によって暖められること、ならびに糸の随伴流として吸い込ま

れることの計算式を導いた。そうしてその列の糸によって生じる温度の上昇と風速の垂直成分が低下した冷却風が、次ぎの列の単糸に当たるものとし、風上側に位置する単糸から順次風下側に位置する単糸について、上記の紡糸挙動の計算を行い、得られる糸の分子配向度の差の推定などを行っている⁷⁾。

一方、佐野らは、1966年から68年にかけて、熱伝達係数の検討⁸⁾、空気抵抗の抗力係数の検討⁹⁾、PPの伸長粘度の測定結果¹⁰⁾を発表している。

また、浜名はPETについて紡糸過程の張力、温度、直径、複屈折のノズル点からの距離依存性を計測し、紡糸過程の現象理論を使って詳細な検討を行っている。その結果、引取速度が大になると張力では、特に空気抵抗の効果が無視できないとして、糸と空気間の抗力係数を検討している。また紡糸過程各点の紡糸応力と各点での複屈折とが比例関係にあることを実験的に示している¹¹⁾。

3. 溶融紡糸技術への応用例

ここでは、私が実体験した二つの応用の具体例を記すことにする。

4.1 紡糸冷却装置の開発

上記のように、織度むらの主原因は冷却風速の変動によるものだろうという計算予測が出てきたので、早速テスト紡糸機の冷却風の風速をステップ状に上下させつつ紡糸した。するとまさに予測通りの織度斑を持つ糸が得られた。そこで高感度の白金抵抗風速計を試作し、風速分布が均一で、渦がほとんど検出されない冷却装置を試作した。それを用いた紡糸テストを行った結果、それまで手本としていた競合品よりさらに一段織度斑の少ない

図1 冷却風速の時間0での1%の突増に対する過渡解（数値計算）
（張力：細化過程の紡糸張力、断面積：引取り点での単糸の断面積）¹⁾

糸が得られた。その結果を工場の実物大のテスト装置に適用したところ、期待した結果には程遠いものであった。実物大装置では、ノズル下面からの放熱によって昇温した空気がノズル下部に滞留し、冷却風はその影響を受け、その風向きが下方に曲げられることが原因であることが判明した。それで、紡糸筒の前面に、上部に10cm程度の隙間を持つ位置にパンチングボードを取り付け、全体の冷却風の向きが水平に向かうようにすると共に、外乱の影響を受け難い構造にした。結果は上々で、当時のPP繊維生産機に全面的に採用された。面白いことにしばらく後に競合品の織度斑も、東洋紡改良糸のレベルに追いついてきたことである。

4.2 非対称冷却による立体巻縮中空繊維わたの開発

それより2, 3年前、東洋紡研究所でのPPの紡糸テストで、しばしば立体巻縮繊維が得られていた。しかしその再現性の確証が不十分であったため、生産に持って行く試みは放棄されていた。上記の織度斑対策が一段落した時期にあった当時、私は次のテーマを探し始めていた。一方向からの冷却風によって生じる単糸内の非対称構造に基づく熱収縮率の非対称性が、立体巻縮生成のキーポイントであると直感し、冷却技術が向上した今なら技術的に成功するのではないかと思った。また用途としてはふとん綿がよいと考えた。

そこで上記の開発された理論で、特に単糸内の温度分布を、微視的エネルギー収支式を用いて数値計算した。一方、①巻縮が発生する紡糸条件は、未延伸繊維の密度が0.905付近の中位の結晶度の領域にあること、②スパイラル状巻縮の内側が冷却風の風上側に対応し、未延伸繊維の結晶度が風下側より高いこと、を実験で確かめた。

図2 非対称冷却によって巻縮発現性を持つ未延伸繊維を室温延伸した単繊維を、分散染料で染色したもので、実線は理論式から数値計算した温度分布の等高線である¹²⁾

また、③未延伸繊維を室温で延伸した繊維を適当な条件で染めると、図2に示されるように結晶が破壊して生じる空孔部に染着されるが、その境界の形状が、断面内の温度分布に対応していることがわかった。これらを総合すると、非対称冷却によって、風上側はより早く冷却されるため、その部分の紡糸応力が高くなり、その応力で誘起されて結晶化が進み、延伸後の収縮率が大きくなる。そうして生じる収縮率の非対称性によって巻縮が発生する、ということである。また中空化することによって、巻縮発現性が強まることを確認した。これらの結果を、特許出願後、本学会誌に投稿し、学会技術賞の対象論文¹²⁾となった。

なお、こうした巻縮発現性を持つ未延伸繊維から、どのようにふとん綿に適した巻縮形状に、生産効率を落とすことなく持って行くかも大きな技術課題であったが、紡糸理論とは直接の関係はないので、ここでは触れないことにする。

4. 乾式紡糸の基礎理論

佐野らは、1996年乾式紡糸の定常状態に関する移動現象理論を提出し、PVAとアクリルの乾式紡糸について、計算結果と実験結果の予備的な比較している^{13, 14)}。また、1969年に詳細な総合的論文を提出している。特に物質伝達係数を含む移動係数について移動現象論の立場から精密な検討を行い、さらに紡糸条件の相似則に注目した解析も行っている¹⁵⁾。

大沢らは、熔融紡糸と同時に乾式紡糸についても、非定常状態に対する連立偏微分方程式を提出した^{1, 16)}。また、PAN-DMF系の乾式紡糸過程の計算例を示しているが、拡散律速段階では、拡散係数の正確さが重要なことを指摘している^{1, 17)}。

紡糸過程の基礎方程式において、熔融紡糸と比較して乾式紡糸の特徴をまとめると、①物質収支では、高分子成分と溶剤成分の両方を対象にすること、②エネルギー収支において、溶剤の蒸発潜熱による冷却効果を取り入れる必要があること、③微視的物質収支で、拡散現象を取り入れる必要があることである¹⁾。

5. 1960, 70年代の紡糸理論研究の意義

上記3. で記した技術応用例は、筆者自身が体験した具体例である。しかしこうした理論研究の成果は、世界における種々のファイバーメーカーやファイバー装置メーカーでの技術の改良や開発に応用され、紡糸技術の向上の基礎として貢献をしてきているものと推定される。東洋紡では、図3に模式的に示される紡糸シミュレーションの種々のソフトを開発している。それは、原則とし

図3 紡糸シミュレーションのシステム略図²⁾

で対話型になっており、紡糸条件を入力すれば、理論のキーとなる支配方程式に基づいて計算され、その結果として紡糸状態関係の諸曲線が求まり、さらに対応操作によって、配向度など構造上の知見にも繋げられるようになっている²⁾。そのため若干の専門的予備知識があれば、簡易に活用できるような形になっている。

上記のように1960、70年代特に日本において、ファイバーメーカーの技術・研究者による紡糸理論の研究が盛んに行われ、少なくとも現象的理論に関する限りでは、この両年代にほぼ出来上がったといっても過言ではないだろう。これは当時勃興ないし発展初期にあった日本の合成繊維技術において、先行する欧米に追いつき、追い抜こうとする業界の意欲の反映であるとも言えるだろう。

その後の紡糸の学術的研究は、上記の成果をベースにして、a紡糸過程の状態や構造成生の精密な測定技術の開発、bマルチフィラメント紡糸における空気抗力係数の解析、c高速紡糸における糸の構造・物性の解析、d複合紡糸の現象的ならびに物性的解析、eレオロジー式における種々の非ニュートン流体の取り入れ、f物性論の成果を利用したレオロジー式への組込み計算、g異形断面繊維の紡糸、h高強度PET繊維の開発、i乾式紡糸に対する拡散係数の精密測定などに向けられている。

参考文献

- 1) 松尾達樹，大沢義幸；繊維の形成と構造の発現 p75，化学増刊39，化学同人(1969)
- 2) 松尾達樹；繊維機械学会誌，49，P532(1996)
- 3) Susumu Kase and Tatsuki Matsuo；J. of Polymer Sci., Part A 3, p2541(1965)
- 4) 加瀬 晋，松尾達樹；繊維機械学会誌，18，T-188(1965)
- 5) 石原英明，加瀬 晋；繊維機械学会誌，28，T-43(1975)
- 6) 石原英明，加瀬 晋；繊維機械学会誌，29，T-16(1976)
- 7) 安田 浩，杉山博茂，梁川博生；繊維学会誌，35，T-370(1979)
- 8) 佐野雄二，山田信夫；化学工学，30，997(1966)
- 9) 佐野雄二，折居晃一；繊維学会誌，24，212(1968)
- 10) 佐野雄二，折居晃一，折居晃一；繊維学会誌，24，147(1968)
- 11) 浜名伊左夫；繊維の形成と構造の発現 p123，化学増刊39，化学同人(1969)
- 12) 松尾達樹，加瀬 晋；繊維機械学会誌，24，512(1971)
- 13) 佐野雄二，西川新三；化学工学，30，245(1966)
- 14) 佐野雄二，西川新三；化学工学，30，335(1966)
- 15) 佐野雄二；繊維の形成と構造の発現 p43，化学増刊39，化学同人(1969)
- 16) Yoshiyuki Ohzawa, Yutaka Nagano and Tatsuki Matsuo；J. of Applied Polymer Science, 13, p257(1969)
- 17) Yoshiyuki Ohzawa, Yutaka Nagano and Tatsuki Matsuo；Proceedings of the Fifth International Congress on Rheology, 4, 393(1970)

松尾達樹 (まつお たつき)

1958年，東京大学工学部応用物理学卒業，同年，東洋紡績(株)に入社し，同社総合研究所に勤務，1968年，東京工業大学から“繊維集合体の力学的性質”にて工学博士を授位，1992年から6年間京都工芸繊維大学繊維学部教授，1999年以降日本繊維技術士センターに所属。現在，繊維・複合材料などを専門とする技術コンサルタント。