

「技術は人が育てる—高分子フィルム開発を通じた技術者の軌跡」(全4回)

第2回 実験と理論で挑んだ2年間の留学

金井俊孝*

(12月号からのつづき)

2. 米国の留学時代(成形加工解析)

2.1 渡米

留学先はアメリカのテネシー州立大学(図6)だった。場所はテネシー州のノックスビル市にあり、ニューディール政策の一環として設立されたテネシー川流域開発公社(TVA)の本部がある街で、市の人口は18万人だった。その内、テネシー大学関係者は学生が約3万人、教職員を含めると4万人以上が在籍していた。

大学では、担当教官のWhite教授と相談の末、最終的には当初予定していたテーマである“インフレーションフィルム成形の動的挙動解析”にしてもらった。

当時、アメリカでは、高分子量HDPEを用いたレジ袋は出回っていなかった。大学に来てから半年ほどが過ぎ、研究に必要な文献調査も終え、必要な設備も揃い本格的な実験を始めることになった。内容は、レジ袋やゴミ袋、各種包装用のフィルムなどを製造するインフレーション成形のプロセス解析だった。前半の1年間は実験による動的解析を行い、後半の1年間は理論解析を行った。

薄くて高強度なフィルム、縦と横の強度バランスのあるフィルム、高生産性等を得る条件の予測、小さな試験機から大きな実用機へのスケールアップの予測、成形中の破断



図6 テネシー大学キャンパスの風景

Technology is Developed by People—The Trajectory of an Engineer through the Development of Polymer Films
2. Two Years Studying Abroad, Challenging with Experimental and Theoretical Analyses

* Kanai, Toshitaka
KT POLYMER 代表
toshitaka.kanai@ktpolymer.com
2025.7.31 受理
<https://doi.org/10.4325/seikeikakou.38.18>

等の不良現象のメカニズムなどが解明できる解析技術を作る研究だった。

2.2 実験解析

理論式を作る前に、実験で製造過程の様子を十分に把握しておく必要があった。フィルム成形中の過程で、熔融樹脂がエアリングからの冷却風によって冷やされる状況を把握するため、ダイス出口からフロストライン高さまで、1 cm 間隔で風速分布を風速計で細かく測定し(図7)⁵⁾、同時にバブルの薄膜の表面温度を赤外線温度計で細かく読む必要があった。この実験には、一人が測定器を測定位置に正確に当て、もう一人がそれを読んで、記録することが必要だった。そこで、家内の出番となった。2人でないとしてもできない実験で、2人で大学の実験室に通い、何日もかけて実験を進めた。この実験をやったお陰で、世界中の多くの研究者が後に参考文献として活用することになった。

フィルムの変形過程を超高速8 mm カメラ、成形中のバブル温度を赤外線温度計で、またバブル周囲の冷却風を風速計で、成形中にバブルに加えられた引張力は張力計、バブル内圧はマノメーターを用い、使用可能な計測器をすべて使用して、いろいろな角度から成形過程の現象を計測し、インフレーション成形の動的な挙動を詳細に解析した(図8)⁵⁾。

その成形中の挙動を数々の測定機器を組み合わせさせて観測し、変形する過程を解析することを繰り返した。成形する工程でのバブルへの力のかかり方、応力変化、温度の変化と変形挙動などが、種々な実験を通じて明らかになり、フィルムの生産性、品質で重要な物性との関係を把握することが可能になった。この実験およびその解析には多大な労力がかかり、今思ってもかなりすごい実験量だったと思う。

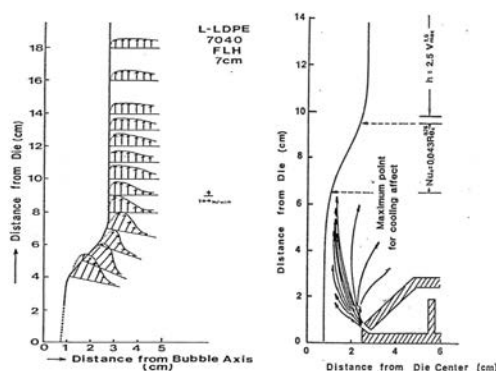


図7 バブル周辺の冷却風の実験速度分布

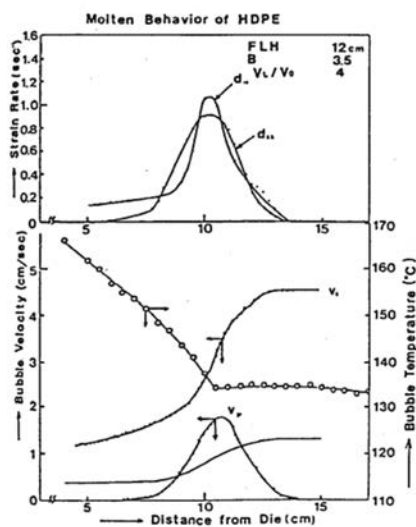


Fig. 16. Local velocities v_1 , v_2 , deformation rates d_{11} , d_{22} , and temperature along the length of the bubble for HDPE with $v_1/v_2 = 4$, $B = 3.5$, $z = 12$ cm.

図8 HDPEのインフレーション成形の動的解析結果⁵⁾

2.3 理論解析

2年目はその現象を理論的解析により予測し、物性、品質、連続生産性を決めている主因子を定量的に把握し、各種樹脂や成形条件にも適用可能な技術に作り上げることであった。

そのためには理論解析するための理論式、コンピューターソフトを作る言語の知識、プログラム化の知識とコンピューターを動かす知識が不可欠であった。数値解析概論の英語の専門書や大学の関係する授業の受講、またコンピューター会社に勤務していた兄に頼んで日本からプログラム言語の本を数冊送ってもらった。

その頃は、ちょうど入力形式がキーパンチしたカード式からCRT画面上から入力できる方式に変更されてきた時期であった。テネシー大学のメインコンピューターDEC 10のCRT入力方式に関する授業に参加し、理解を深めた。テネシー大学には、たくさんの端末が配置されたコンピューターセンターがあり、自由にプログラムを作成、変更できる環境にあった。ただし、実際に動かすにはかなりわからないことが多く、当時ドクターコースの台湾から留学していた学生にコンピューターの操作方法をいろいろ教えてもらった。

実用的なプログラムが完成するまでには、プログラミングや微分・積分を用いた連立微分方程式の構築、ベクトルやテンソル表示など、試行錯誤の日々が続き、自分のオフィスだけでなく、大学構内を歩きながら解決策を考えることも多くなった。

後半の1年間は実験から理論解析に主流が移り、一日16時間以上、理論式、実験結果の理論的解釈、新しい理論式の構築、結晶化式の導入、ソフトの構築との戦いで、頭を使って考える研究に移っていった。

理論解析開始から初めの2ヶ月はいろいろな内容を習得する時期、その次の3-4ヶ月はプログラムなどの作成で少しずつ見える形で進んでいったが、その後、なかなか研究進捗は上らず、この研究の難しさを実感した。

この分野の理論解析は世界的にも、まだ充分に実際の系

に適用可能な応用技術にはなっておらず、かなり困難な理論解析技術でもあった。バブルの形はどうして決まる、破断はどのような因子、MDとTDの強度バランスはどのような因子で決まるのか、バブル安定性はどう決まるのか、バブル安定体が異なるとなぜ物性が変わり、薄膜の破断頻度が変わるのかなどなどを理論解析で説明できる技術を構築していった。

ただし、当時は大型コンピューターと言ってもまだまだ計算速度も遅く、今では家庭用PCでもすぐに解いてしまう計算でも、当時は大型コンピューターでも2-3時間くらいかかる計算であり、計算条件を入力し、しばらくたってから結果をまたチェックしていく方法をとっていた。

基本的な解析プログラムはその年の11月頃に出来てはいたが、新規な研究分野である実践で使える技術に仕上げ、さらにプラスチックの性質である溶融のレオロジー的な性質や結晶化を組みこむことに、悩み始めた。日本帰国まで、あと3ヶ月に迫った頃の12月は最も苦勞していた時期でもあった。

ただし、当時の理論解析ではあらかじめ成形時のバブル張力やバブル内圧を入れて計算する必要がある、一方、成形する立場の人間にとって、樹脂の性状、押出量、フロストライン高さ、折径、フィルム厚み、樹脂温度やダイスリップ開度などの成形条件を入力するだけで、インフレーションの成形挙動を予測できないと本当に活用できる解析技術ではなく、使用する側にとって、意味がないと思っていた。

そのため、バブルが一定の径になる位置をフロストライン高さとして、その位置において、バブルの最終径が決まり、バブルの軸方向に対する角度0度で、引取速度に達し、結晶化温度に達しているため、これら条件を境界条件として、バブル張力、バブル内圧、冷却の熱伝達係数、ダイスからバブルが離れる時のバブル初期角度を入力する必要があるシミュレーション技術を構築できないかを悩んでいた。

そんな折、キャンパスにある書店で数値解析の本を見ていた時に、ニュートンラプソン法の数値解析法が目に残り、この考え方が応用できるのではないかと思った。

つまり、バブルの引張張力の式、バブル内圧の式、エネルギー方程式やバブル形状の式である4つの微分方程式と、フロストライン高さにおけるバブルの最終径、バブルの軸方向に対する角度(0度)、引取速度、結晶化温度の4つの境界条件を用いることにより、10回程度、微分方程式を数値解析で繰り返し計算し、4つの境界条件を満足するまでニュートンラプソン法で最適化することで、バブル張力、バブル内圧、冷却の熱伝達係数、ダイスからバブルが離れる時の初期角度が求められ、そこからインフレーション成形の動的挙動を理論的に予測することが可能になった⁶⁾⁻⁸⁾。

次に樹脂の性状や成形条件を変えたらどうなるだろうか。今までの実験でやって得られた現象の疑問が解けていくことの面白さを感じ、いろいろなアイデアが次々と出てきた。ここでのインフレーション成形の解析成果を研究報告書としてまとめた^{6), 8)}。

多くの条件変化(樹脂性状、成形条件)によりインフレーション成形の動的挙動がどう変化するかを検討した解析

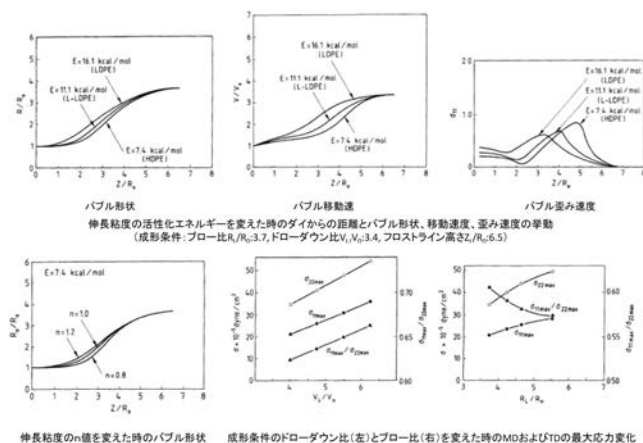


図9 理論解析で得られた結果の一例⁸⁾

結果から次のようなことがわかった (図9)。

- ① 分子量分布が広がる (非ニュートン性が顕著になる) とバブルのネック径が狭くなり、バブル安定体の形状を先細りにする必要がある。各社のHDPEの分子量分布は異なるため、バブル安定体の形状を少し変える必要がある。同じグレードでもロットによる非ニュートン性の変化でも同様である。
- ② 分子量 (溶融粘度) が大きくなるとバブルテンションとバブル内圧が上がる、つまり、MDとTDの応力が共に高くなり、バブル張力も上がる。配向が効きやすい。
- ③ 長鎖分岐がある (活性化エネルギーが大きくなる、伸長粘度が歪み速度の上昇に伴い大きくなる) とバブルのネック径は広がる、また溶融張力が大きくなる。

バブルのネック径 LDPE>LLDPE>HDPE

HDPE以外はネック径が大きくなり過ぎてバブル安定体は使用できない (溶融弾性の効果の違いもあり、粘着して成形できない)。

- ④ 結晶化速度の速い樹脂はネック径が小さい。PEの密度が小さいとネック径が広がる。LLDPEやHDPEでも、密度が大きいのほどネック径が小さくなる⁸⁾。
- ⑤ ブロー比を上げるとMDとTD延伸応力が共に大きくなるが、TDの延伸応力がより大きくなる⁸⁾。
- ⑥ ドローダウン比を上げるとMDとTD延伸応力が共に大きくなるが、MDの延伸応力がより大きくなる⁸⁾。
- ⑦ フロストライン高さを高くすると熱伝達係数は下がり (冷却風量が下がる)、かつMDとTD延伸応力が共に小さくなるが、MDの延伸応力がより小さくなる⁸⁾。
- ⑧ 極薄フィルムの破断は、成形中の最も歪み速度の速い位置で発生し、発生しやすいさは (最大歪み速度) × (その位置の伸長粘度) の大きさに依存する (図10)⁸⁾。

- ⑨ 無次元数解析すると実機の大型機と試験機の挙動が大きく変化し、フィルム物性も大きく変化するが多いが、MDとTDの最大延伸応力を系の大きさに寄らずに一定にするとフィルム物性は変化しない。この理論計算からインフレーション成形のスケールアップ則を確立した (試験機でのフィルム物性を実機でも再現できるように、試験機での延伸応力を実機でも一致するように大型機的设计に応用)。

等、留学前に疑問に思ってきた多くの課題が明らかに

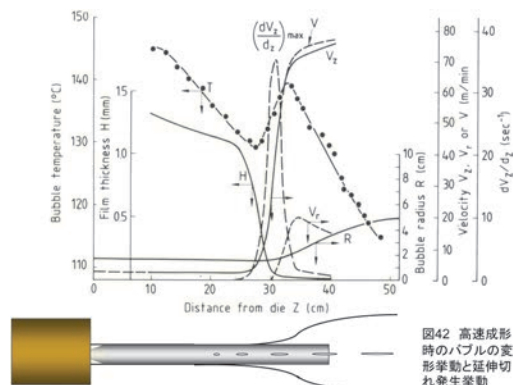


図10 HDPE フィルムの高速成形時のバブルの変形挙動⁸⁾

なった。

留学中、日本に帰国する前に、アメリカでの国際会議への参加や発表、プラスチックの展示会であるNPEやPACK EXPOなどへの参加も勉強になった。また、米国の化学企業や研究機関を訪問し、また有名な大学教授とのコミュニケーションも取れることができたが、これはWhite教授が同行し、まだ20代の私を著名な研究者に紹介してくれたおかげであり、人脈形成にはメリットになった。これらの経験から、研究成果を発表するには日本語ではなく、英語で発表することの重要性も痛感した。

テネシー大学での当初の研究テーマを無事終了し、1983年5月に日本に帰国した。2年に渡る留学だった。

2.4 スケールアップ解析

留学中に作り上げた理論解析をスケールアップの考え方に応用した。インフレーション成形では、同じ成形機で、ダイスを大きくして幅を広くするとブロー比やドローダウン比が同じでもフィルムインパクトが大幅に低下した。しかし、インフレーション解析技術により、フィルム物性はMDとTDに加わる延伸応力の大きさとその比に大きく支配され、この値を一致させた条件に設定すると系の大きさには依存しないことが判明し、この観点からスケールアップ則を見出した^{9)~11)}。

MDの最大応力 σ_{MD} 、TDの最大応力 σ_{TD} と書き表すと $\sigma_{MD} = F_L / (2\pi R_L H_L)$ および $\sigma_{TD} = \Delta P R_L / H_L$ の関係から σ_{MD} および σ_{TD} を系の大きさに依存しない設定することで、同じ物性が得られることがわかった (図11, 図12)。

$$\sigma_{MD} = \frac{A + B(R_L/R_0)^2}{2} \frac{Q\eta_0}{R_L R_0 H_L} = G_1 \frac{Q\eta_0}{R_L R_0 H_L}$$

$$\sigma_{TD} = \frac{B}{\pi} \cdot \frac{Q\eta_0 R_L}{R_0^3 H_L} = G_2 \frac{Q\eta_0 R_L}{R_0^3 H_L}$$

F_L : バブル張力, R_0 : ダイ先端の半径,

R_L : バブルの最終半径, ΔP : バブル内部圧力,

Q : 押出量, R : バブル半径, H_L : バブルの最終厚み,

η_0 : 樹脂の溶融粘度

A, B, G_1, G_2 : 系の大きさに依存しない定数

これは、大型インフレーションフィルム成形での成形性、物性や品質予測、さらに高透明シートの成形技術に生かされ、大型のHDPEインフレーション成形機、PSやPA6のチューブ延伸装置の実機設計にも適用された。

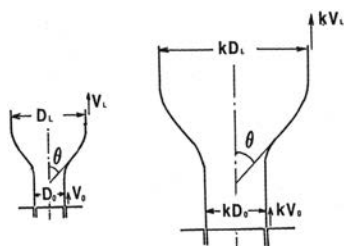


図 11 スケールアップ則による設定条件

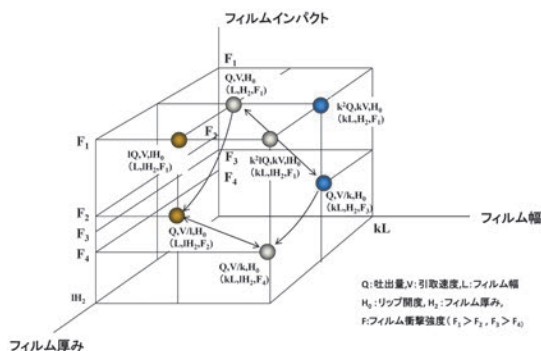


図 12 インフレーション成形のスケールアップの考え方¹⁰⁾

2.5 Spunbond 解析

当時、出光興産の石油化学部門は樹脂事業を展開していたが、製品事業にも積極的に展開することになり、成形機を導入して不織布事業を行うことが決定され、1985 年ドイツのライヘンホイザーの子会社である Reicofil 社から Spunbond 不織布製造装置を導入することになった。

当時、出光として不織布用グレードはなく、テネシー大学時代に友人が研究していた研究成果を参考にして、PP のシートグレードを押出機内で過氧化物カットして、Spunbond 用グレードを設計した。樹脂製造の用途はついたが、不織布の製造は初めての事だったため、評価機もなかった。繊維のノズルを製造している化繊ノズルの技術部長と設計担当者に相談し、私が Spunbond 装置の概略図を提出し、何度も両社で検討して、試験用の小型の Spunbond 成形機を低コストで作ることができた。幸いにも、この評価機で繊維グレードの評価を正確に行うことができた。多くの評価用サンプルをモデル的に少量サンプルとして製造し、評価した結果、Spunbond 用に適したグレードを設計することができた。また、同時に Spunbond 不織布製造プロセスの変形解析プログラムを開発した。単糸の糸径、成形中にかかる応力、温度、歪み速度分布、成形安定性解析などから不織布の品質や成形性を予測する技術を構築した¹²⁾。

溶融紡糸と大きく異なる点は、単糸の最終速度は入力値ではなく、絞り板部での単糸にかかる張力は不明であるため、初期値は任意な値を入れておき、絞り板入口部で X 軸に沿って解いてきた糸張力と絞り板での空気抵抗力により生じる抵抗力が一致するように、ニュートンラプソン法により繰り返し計算して解き、糸張力と抵抗力がほぼ一致した時点 (0.1% 以内の誤差) で、計算を終了させる。その時に得られた張力 F および繊維の最終速度はこの手法により、自動推算される (図 13, 図 14)^{12), 13)}。このプログラムもインフレーション成形解析プログラムを構築した

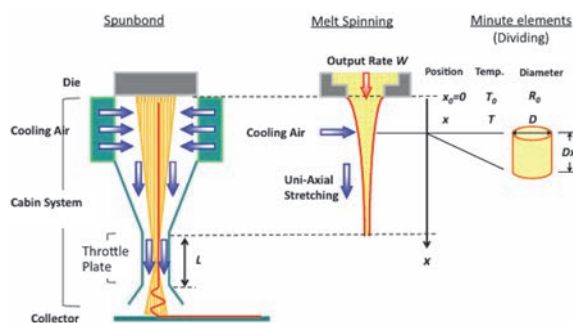


図 13 スパンボンドプロセスの概略図

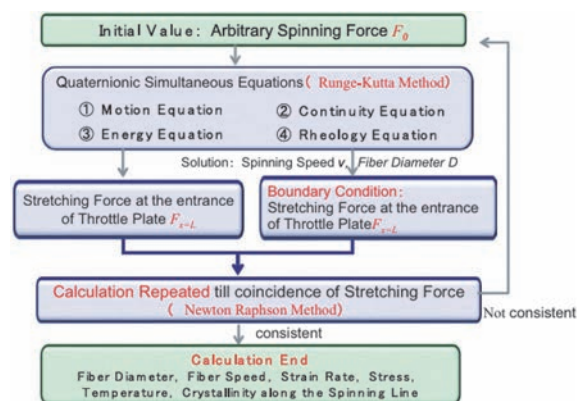


図 14 スパンボンドプロセス解析のフローチャート

経験があったからできたものである。

小型実験装置と理論解析プログラムの両方から実機での紡糸性や限界の繊維径を予測することに成功し、樹脂の分子量 (MFR 30~60)、分子量分布を狭くする (Mw/Mn 2.5) グレード設計を行った^{12), 13)}。その後、添加剤として PP の結晶化速度を遅くする低立体規則性 PP を少量 (10 wt% 程度) ブレンドすることで、今までにない通常 1.5 デニールから 0.76 デニールの Spunbond 不織布を実機で長時間破断することなく連続製造可能であることがシミュレーションで事前に予測可能になった¹³⁾。実際にその条件で実機成形すると今までにない細デニールで、ムラがなく、ソフト感のある不織布が製造可能になったが、逆に成形機メーカーや他社の樹脂メーカーから恐れられていたことを後に知ることになる。

参考文献

- 5) Kanai, T. and White, J. L. : *Polym. Eng. Sci.*, **24**, 1185 (1984)
- 6) 金井俊孝, 富川昌美, White, J. L., 清水二郎 : 繊維学会誌, **40**, T-465 (1984)
- 7) Kanai, T. and White, J. L. : *J. Polym. Eng.*, **5**(2), 135 (1985)
- 8) Kanai, T. : *Int. Polym. Process.*, **1**(3), 137 (1987)
- 9) 金井俊孝, 木村正克, 清水二郎 : 繊維学会誌, **41**, T-139 (1985)
- 10) 金井俊孝, 清水二郎 : 繊維学会誌, **41**, T-179 (1985)
- 11) Kanai, T., Kimura, M., and Asano, Y. : *J. Plast. Film Sheeting*, **2**, 224 (1986)
- 12) Kanai, T. : *Polymer Processing Society Annual Meeting*, **6**, 5/11 (1990)
- 13) Kanai, T., Kohri, Y., and Takebe, T. : *Adv. Polym. Technol.*, **37**, 2085 (2018)