

ポリプロピレン/プロピレン系共重合体の共押出多層化による  
層厚薄膜化が引張特性に及ぼす影響

Effect of layer thickness on the tensile properties of polypropylene/  
(propylene-based copolymer) co-extruded multilayer films

(山形大) ○ (学) 山本雅史, (正) 北浦快人 (正) Sathish K. Sukumaran, (正) 杉本昌隆,

Co-extrusion enables the assembly of different polymers into multilayer films that possess the desired combination of properties. To improve the extensibility of polypropylene, we prepared co-extruded multilayer thin films of polypropylene and a propylene-based copolymer. To investigate the effect of reducing the layer thickness, we used layer multiplication technology to increase the number of layers at constant total film thickness. To further reduce the individual layer thickness, the multilayer films were subject to planar elongation. Under tensile deformation in the transverse direction, the elongated films exhibited an increase in both the fracture strain and the fracture toughness corresponding to a decrease in the layer thickness.

Keywords : Multilayer films, Co-extrusion, Mechanical Properties, Tensile test, Polypropylene

## 1. 緒言

ポリプロピレン(PP)フィルムは、食品などの包装分野で多く使用されており、強度や気体バリア性などの観点から、異なる材料を用いて機能の補完を行う多層化技術が用いられている。通常が多層フィルムの層数は3層から10層であるが、さらに積層数を増やすことで数百から数千の層を有する超多層フィルムを作製できる。超多層フィルムでは層数増加による各層厚がナノオーダー化につれて層内で成形される特徴的な結晶構造によりガスバリア性<sup>[1]</sup>や機械特性の改善が報告されている。

多層フィルムは、前記のメリットから広く使用されているが、異なる樹脂を用いた積層フィルムは、使用後に分離することが難しいため材料の組合せによってはリサイクルが困難となる。そこで本研究では、共押出多層化

(流路分割金型)を用いて、ホモポリプロピレンとランダム共重合体ポリプロピレンを用いて、ナノスケール層厚の超多層化フィルムを作製し、特性と高次構造の関係について検討した。

## 2. 実験方法

本研究ではホモポリプロピレン(H-PP)とランダム共重合体ポリプロピレン(R-PP)を共押出法を用いて成形した。フィードブロック内にて両者を積層させ、その後金型内のマルチプライヤーと呼ばれる分割と積層を行うユニット(図1)に供給することで積層数を増加させた。このユニットの数を変えることにより、3, 9, 33, 129, 513層、厚さ約100 μm、体積比1:1のH-PP/R-PP多層フィルムを成形した。513層は各フィルムの断面を四酸化ルテニウムにより染色し、透過型電子顕微鏡(TEM)により確認した。また、成形されたフィルムを幅固定延伸(MD × TD=5 × 1)し、延伸フィルムを得た。延伸条件は温度120°C、延伸速度60mm/minであった。

フィルムの引張試験は室温24~25°C、速

Masashi Yamamoto, Hayato Kitaura,  
Sathish K. Sukumaran,  
Masataka Sugimoto  
Graduate School of Organic Materials Science,  
Yamagata University  
\*4-3-16 Jonan, Yonezawa, Yamagata, 992-8510,  
Japan  
Tel: 0238-26-3058, Fax: 0238-26-3411  
Email: [sugimoto@yz.yamagata-u.ac.jp](mailto:sugimoto@yz.yamagata-u.ac.jp)

度 10mm/min で行った。また、小角 X 線散乱(SAXS)を行い、層数の増加と延伸による結晶構造への影響を調査した。

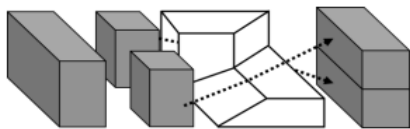


Fig.1 Schematic of the device used for layer multiplication.

### 3.実験結果および考察

#### 3.1 引張試験

無延伸フィルムでは積層数によって引張特性の変化を見ることは出来なかった。

幅固定延伸において H-PP 単体フィルムは MD 約 2.5 倍で空隙が生じ延伸フィルムを得ることは困難であった。R-PP 単体 (MD × TD=5 × 1 フィルム)、3~513 層 H-PP/R-PP MD × TD=5 × 1 フィルムにおいて MD と TD の二方向での引張試験を行った。図 2 に R-PP 延伸フィルム、3~513 層延伸フィルムの TD 方向への引張試験

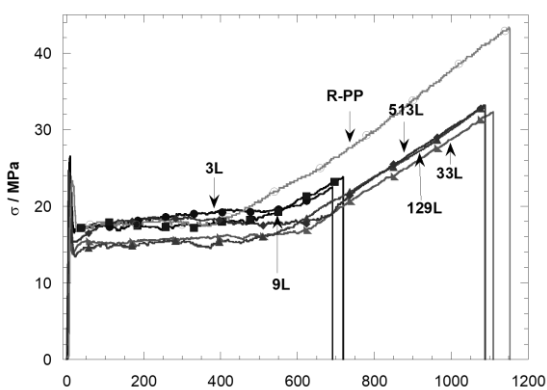


Fig.2 Stress-strain curves of the multilayer films subject to planar elongation (MD × TD = 5 × 1) obtained by tensile testing at ~25 °C using a crosshead speed of 10 mm/min.

の結果を示す。延伸フィルムの TD 方向において層数が 33 層以上になると破断ひず

みに大きな増加が見られ、R-PP 単体延伸フィルムに迫る値が得られた。

#### 3.2 SAXS

層数の増加によって物性変化の仕組みを解明するために SAXS 測定を行った。図 3 に単体と H-PP/R-PP の無延伸フィルム(上段)と延伸フィルム(MD × TD=5 × 1, 下段)における SAXS 像を示す。無延伸のフィルムではやや子午線方向の散乱が強い。これは成形時にロールによる巻取で生じたものだと考えられる。また延伸系で子午線方向への層線状散乱と、赤道方向への弱いストリークが見られる。これは結晶ラメラの法線ベクトルが延伸方向に配向した

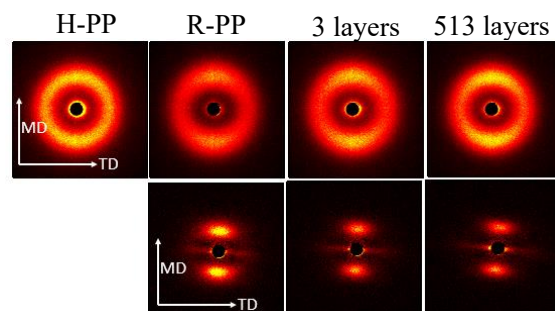


Fig.3 Two dimensional SAXS patterns of H-PP, R-PP and PP/R-PP multilayer films. Top row: as cast films. Bottom row: films subject to planar elongation (MD × TD = 5 × 1) のものだと考えられる。物性と構造の関係については当日議論を行う。

#### 4.緒言

H-PP/R-PP フィルムの超多層化は延伸と併用することにより、TD 方向の引張試験において破断ひずみの向上をもたらした。しかし、延伸多層フィルムにおいてラメラの長周期、ラメラの配向ともに積層数による変化は見られなかった。

#### 参考文献

- 1) H. Wang et al., *Macromolecules*, **42**, 7055 (2009)