

UDC 629.733.33.023.2
678.742.2.018.29

科学観測気球の信頼性の向上

An Improvement on the Reliability
of Scientific Balloons.岡本 智*
Satoshi OKAMOTO

高圧ポリエチレン・フィルムで作った大型気球は、科学観測の有力な一手段であるが、風速の早いジェット気流層を上昇中、往々突然破壊落下する。その原因は、激しく、衝撃的に気球が叩がれたり、揉まれたりするが、他方、初期の球皮フィルムは、力学的直交異方性が強く、低温での二軸延伸性が不足しているためと考えられる。筆者はロックーン以来のこの課題について、昭和41年以降年間数十台の科学観測気球が、製作放球されるのを機会に、フィルムの成形に、従来、全くその概念の用ひられていなかった縦横加工比を導入、フィルムの強い異方性を年々改良した。その結果、気球の上空破壊率は、極めて良い対応を示し、遂に零に低下した。また生研に、新しい極点図形測定装置が設けられたの機に、念願のフィルムの結晶配向を測定し、予測通りの結果を得た。

はじめに

科学観測用ポリエチレン気球は、所定高度を長時間浮遊し得るため、その利用価値は大きいものである。しかし、ジェット気流層を上昇中に、突然破壊落下することがある。このことは、単に観測計画に齟齬を来すばかりでなく、人口密度の高い本邦では、放球実験自体が大きな制約を受ける重要な問題である。筆者は気球の自重を増すような補強を避けて、球皮の強い力学的直交異方性を矯正し、低温二軸延伸性に改良して、気球の上空破壊を防止、その信頼性を向上することを試みた。球皮用ポリエチレン・フィルムの力学的異方性の改良には、既報のインフレーション成形時に、従来全く用いられなかった縦横加工比を指標として導入した。毎年成形する球皮フィルムの縦横加工比を次第に1に近づけたところ、その実気球の上空破壊率の変化は、極めて良い対応を示し、縦横加工比1.4で上空破壊率は零に低下し、気球の信頼性は向上した。

また、ポリエチレン・フィルム中には、分子鎖の折りたたまれた板状結晶が全質量の約60%存在し、その力学的異方性が強いので、配向によって、フィルムの性質が大きく変化する。そこで、結晶配向について極点図形を求め、別に多くの文献から低温延伸可能な配向として帰納した“b軸則”をもとに、極点図形を検討した。

I ポリエチレン・フィルムの低温二軸延伸性と縦横加工比
高圧ポリエチレンは、よく知られているように、最も単純で規則的な分子鎖が、所々に長い分枝鎖を持ち、立体的にかさばった構造である。長い分枝のために結

晶化度は約60%に過ぎず、残部は非晶領域である。後者のセグメントの熱運動は低温まで保たれ、硝子転移点は -125°C ¹⁾と高分子中で最も低い部類に属する。

分子鎖が、成形条件によって決まる一定長さに規則的に折りたたまれて出来る板状結晶は、斜方晶系になるが、分子鎖方向であるc軸方向のヤング率は軟鋼のそれに匹敵するにも拘わらず、これに直角方向のa、b軸方向は約2桁小さいヤング率で、異方性が強い。また板状結晶の配向も成形条件によって異なるため、高圧ポリエチレン・フィルムの力学的性質は、例えば同一の樹脂を使用しても、成形条件で変化し得る一種の複合材料と見なせる。

フィルムの低温二軸延伸性に関与する因子としては、次の4つが考えられる。① 分子鎖の縦横配向比、② 結晶配向、③ 結晶サイズ、④ 分子量の高低とその分布である。①と②は直交異方性に、②と③は延伸性の難易に、④は破断伸びと破断応力の大小に関係するものである。フィルムのインフレーション成形法では、従来経験的な種々の試みはなされたが、その定量的解析はまだほとんど行われていないブラック・ボックスの状態である。

そこで筆者は既に報告²⁾した通り、インフレーション成形の条件と、製品フィルムの直交異方性との相関を近似的に求めるため、①に関して縦横加工比(forming ratio)を初めて導入した。

これは、ダイ出口での融液を無配向とすれば、フロスト・ラインで結晶の急成長により、フィルムに固化する過程の粘弾性的流動による変形は、まだ結晶、非晶の区別が存在せず、力学的にはほぼ均等一様と見なせる。故に均等歪假説(homogeneous strain hypothesis)が成立することになり、温度低下による収縮は補正係数として乗ずることにすれば、流動融液の立体

*東京大学生産技術研究所第2部

要素は、体積一定のアフィン変形をするものと考えたのである。したがって、分子鎖の縦横の配向比は、立体要素の縦横の延伸倍率の比すなわち縦横加工比 β に等しく、近似的に

$$\beta = \rho_0 / \rho \cdot e / t / \alpha^2 \quad \text{と表わせる。}$$

ただし、 ρ_0 、 ρ はそれぞれ融液とフィルムの密度、 e はダイ間隙、 t は膜厚、 α はインフレーション・レシオである。

単に $\beta \approx 1$ の等軸性に成形するには、 α の各値についてそれぞれ可能であるが、 -30°C 前後の硝子転移転以下の低温でも延伸可能にするには②の結晶配向上の制約がある。それは球晶の引張変形に関する多くの研究³⁾、高密度ポリエチレン・フィルムの単軸引張試験⁴⁾等から、結晶の b 軸と主引張応力の一一致する場合には、低温延伸は不可能で、 45° では容易、直交する場合は可能な“ b 軸則”(筆者命名)が帰納出来る。

低温二軸延伸性フィルムを作るには、“ b 軸則”によって、 b 軸の大多数が、膜面に垂直に配向することが必要かつ十分条件である。この様な配向はLindenmeyerの研究⁵⁾によれば、 $\alpha \approx (5 \sim 6)$ によって得られるものと推定される。ただし $\alpha \approx 6$ で等軸性にすると、フィルムの組織構造が層状化し、二軸延伸の破断伸びは減少することが考えられる。じん性の増大と、成形の難易を考慮すると、 α の適値は約5前後にあるものと推定される。

③の結晶サイズの問題は、軟質な非晶域中に介在分布する硬い板状結晶が微細になるほど、延伸変形を容易にすることは自明である。高密度ポリエチレンに関して行われた理論的実験的研究⁶⁾によれば、融液の変形速度を高め急冷すると結晶が微細化している。分子論の見地から、この現象は当然高压ポリエチレン(低密度)にも拡張し得る現象である。

④の分子量の高低に関しても、他の樹脂を用いた研究がある。⁹⁾分子量分布については、低分子量分子の結晶折出速度が遅くなる傾向があるため、結晶粒界に折出して、結晶と非晶の結合を弱め、延伸を中断させ易いから注意する必要がある。

以上の4点に留意しながら、折径2mの気球製作用フィルムの成形で、ダイ直径と間隙を小さく、原料樹脂も切替えて、年々縦横加工比を1に近づけた。この国産フィルムによる気球の上空破壊率の変化を次に述べる。

II 球皮フィルムの縦横加工比と気球の信頼性の向上

図-1は東大宇宙研に気球工学部門が新設され、昭和41年から年々、大小20数台の放球実験が行われるようになり、その球皮フィルムを1~2tonづつインフレーション成形したときの、縦横加工比の年度順の変化を左半分の実線で示し、右半分に、そのフィルムで

作った気球で、離陸上昇はしたが、目的を達せず落下した気球の比率を示す。

気球の上空破壊はほとんどジェット気流層中を上昇中に発生するから、その破壊に関係する要因としては、まずジェット気流の状態、気球の上昇速度、気球の大小、荷重の軽重、気球の設計構造の適否、気球製作各工程での管理程度、放球時のガス充填中の地上風の状況、ランチャーに締め付けた条件など実に多くの事項が考えられる。図-1の右半分の上空破壊率は、これら各項について全く類別分離することなく、包括的に算出した比率であるにもかかわらず、使用した球皮フィルムの成形時の縦横加工比との対応が極めてよい。

単純な統計でこれ程よい対応を示すのは偶然ではないかとの疑問も生ずるが、S.42には、前年S.41にフィルムを成形した工場の押出機が折悪しく故障して、不本意ながら、別の工場で、縦横加工比が約倍増する悪条件の成形を余儀なくされた結果、上空破壊率もまた倍増した。またS.43にはS.41の工場の同じ機械で成形して貰ったが、修理によりダイ間隙が広くなり、縦横加工比は若干悪くなったが、この年、異方性の強い球皮フィルムを用いた場合には、不適當と思われる気球構造上の問題点として、排風口の位置は頂部近くから底部近くに設計変更が行われ、その影響と見られる破壊率低下が認められること。さらに、米国での気球関係の中心組織であるNCARの担当者と言としての報告⁷⁾によれば、気球の上空破壊を防止するには、フィルムでの -80°C での単軸引張破断伸びの横方向(普通TDと異す)の値が20%(人により40%)が望ましいとされている。図-1の左半分に、このTDの低温引張破断値を点線で示したが、右方の上空破壊率が急減または零になる部分との対応値が、上記米国の経験値と丁度合致している。

これらの諸点から見て、図-1の対応のよさは、全くの偶然ではなく、ことの性質上、測定点こそ少ないが、可成り信頼し得る結果と考えられる。

そこで、縦横加工比と気球の上空破壊率の相関図を求めると図-2になる。多くの要因を含む破壊率に対し、縦横加工比のみの相関係数を求めるのは、適当でないが、両者の間に密接な相関のあることは明瞭である。縦横加工比1.4で、企図した通り、上空破壊率はいよいよ零に低下し、観測用ポリエチレン気球の信頼性は格段に向上、気球材料懇談会を設けて、対策を検討した気球の上空破壊問題は一応の解決を見たことになる。

III 代表的ポリエチレン・フィルム等の極点図形

金属材料の研究に盛んに使用される極点図形は、高压ポリエチレンが結晶化度約60%であるため、その結晶配向の測定に勿論利用することが出来、力学的異方

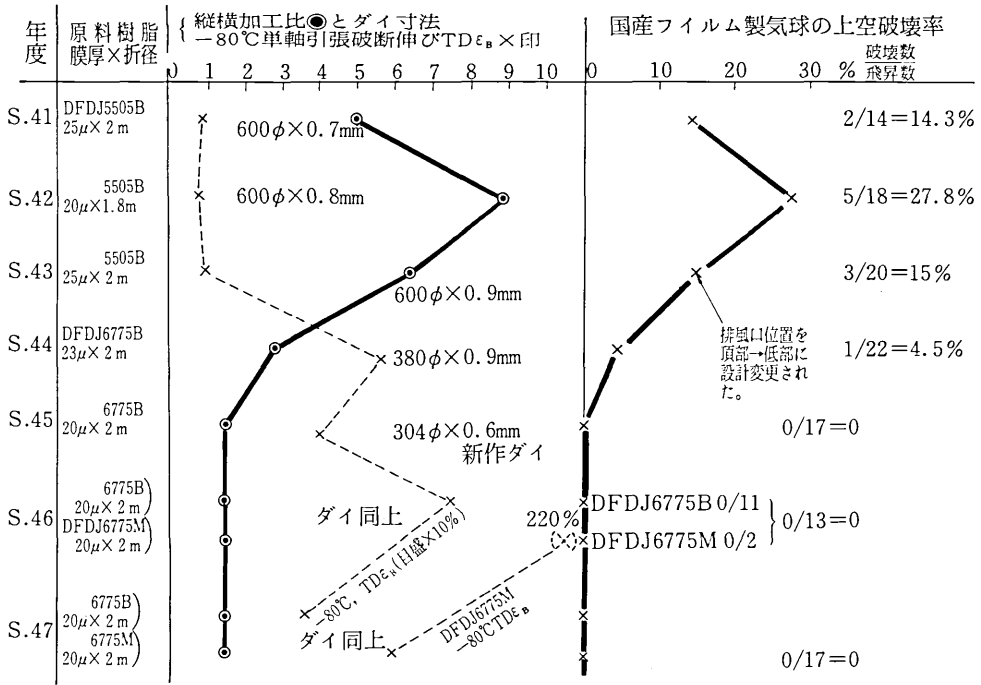


図1 国産球皮フィルムの縦横加工比とその気球の上空破壊率の年度変化との対応

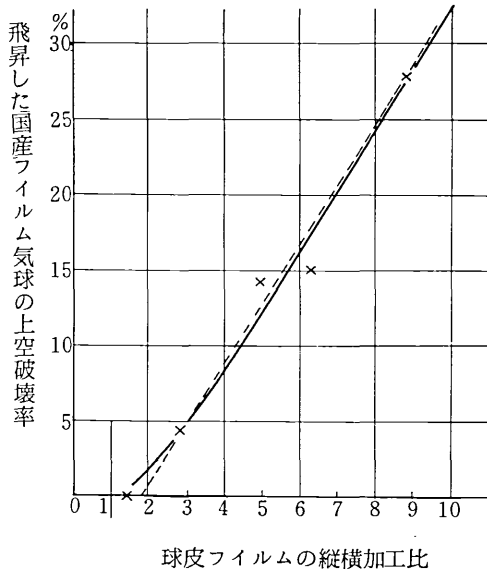


図2 皮膜フィルムの縦横加工比と気球の上空破壊率の相関

性の直接的な考察に有力な資料が得られる。極点図形の測定装置の改良と自動化が進み、以前の煩瑣な操作が簡易になり、当生産技術研究所にも新鋭装置が設備されたのを機会に、筆者かねてからの希望を満して戴いた。

測定試料は4種類で、その30φ打抜フィルムの加熱収縮試験片を図-3に示す。DFDJ 5505BはS.43年の

実験に使用した気球用のフィルムで、縦横加工比が6以上もある異方性の強い方の代表的試料である。その実気球の上空破壊率は図-1に示す通りである。他の3試料は、S.44年、縦横加工比の改良が気球の上空破壊防止に有効なことが理解された結果、一層の改良を旨として、新しく小径のダイを製作することになり、フィルム・メーカーに、その技術的限界を徹したところ、図-1の様に縦横加工比は1.4止りになった。そこでS.45年6月、筆者独自に、Iの4因子に関して、可能な限り理想的条件を満す一連の試作成形を行ったM.I.=0.15のDFDJ 6775Mによる代表的試料である。押出無変形材は、縦横加工比の導入の際、ダイ出口融液の無配向を假定したので、その確認を目的とするものである。(45-6-5)の加熱収縮片の形状と収缩量とともに、S.45年以降の実用フィルムに類似している。(45-6-3)は近似的等軸で急冷条件を加えたもので、上空破壊しない優秀な気球用フィルムとして定評のある米国ウィンゼン社製のStrato Filmと比較しても、低温二軸延伸性が秀れているフィルムである。その具体的な例として、-80℃での100φバルジ試験の破裂直前の形状を写真-1と2に示す。Strato Filmは中央の約1/3のみが塑性延伸するが、(45-6-3)はより広範囲に、一様な塑性延伸を示している。この破裂後の状況は生産研究23巻11号の表紙写真を参照され度い。

なお、押出無変形材以外の試料フィルムは厚さ20μ前後で、一枚だけの試料ではバック・グラウンドに比

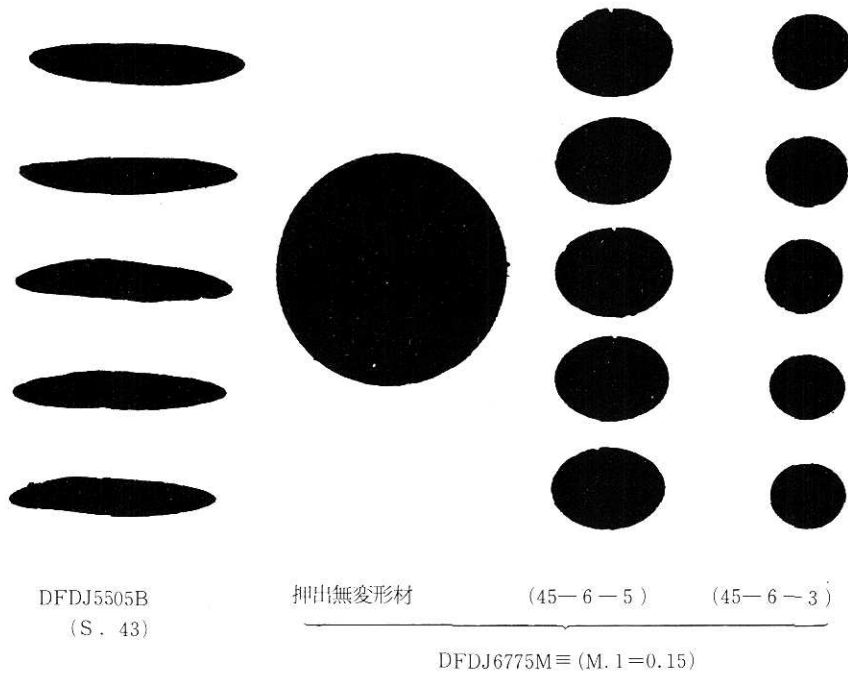


図3 極点図形測定試料の加熱収縮試験片 (30φ, 125~120℃, 20秒)

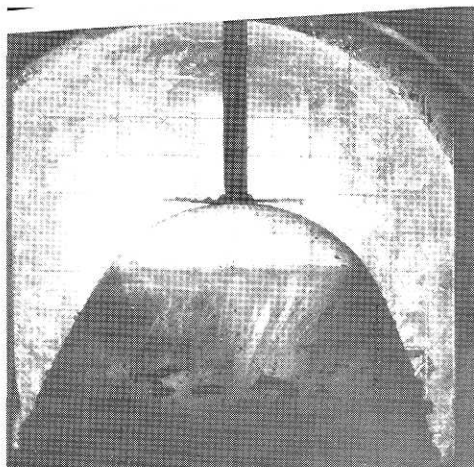


写真1 破裂直前のStrato Filmの100φバルジ試験片 (-80℃)

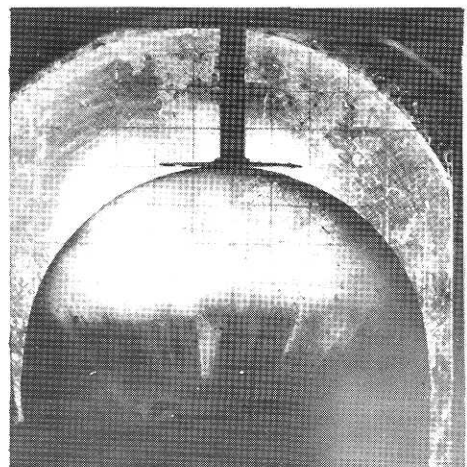


写真2 破裂直前の(45-6-3)の100φバルジ試験片 (-80℃)

較して、結晶による回折X線が過小なため、20数枚を正確に加工方向を重ねて軽く圧着し、全厚を約0.4mm強にして測定試料とした。

測定装置は最新型の理学電機KK製極点図形測定装置B5型である。使用したX線はCuk α (20KV, 20mA)でニッケル・フィルターを用いた。図形の中心、すなわち膜面に垂直(90°)から試料面に対する傾角30°までは、Schulzの反射法で、5°間隔のステップ・スキヤ

ニング、円周方向の1回転は15分間で、5°毎にアングル・マークを入れた。傾角35°~0°の測定はSchulzの透過法で、回転速度、アングル・マークは反射法と同じである。記録紙の送り速度は何れも20mm/minで行った。

測定結果は図-4に示す。DFDJ 5505 Bは普通 a 軸配向フィルムと呼ばれ、a 軸(200)が、成形時の縦方向(MD)に約45°傾いて配向している。特徴的なこ

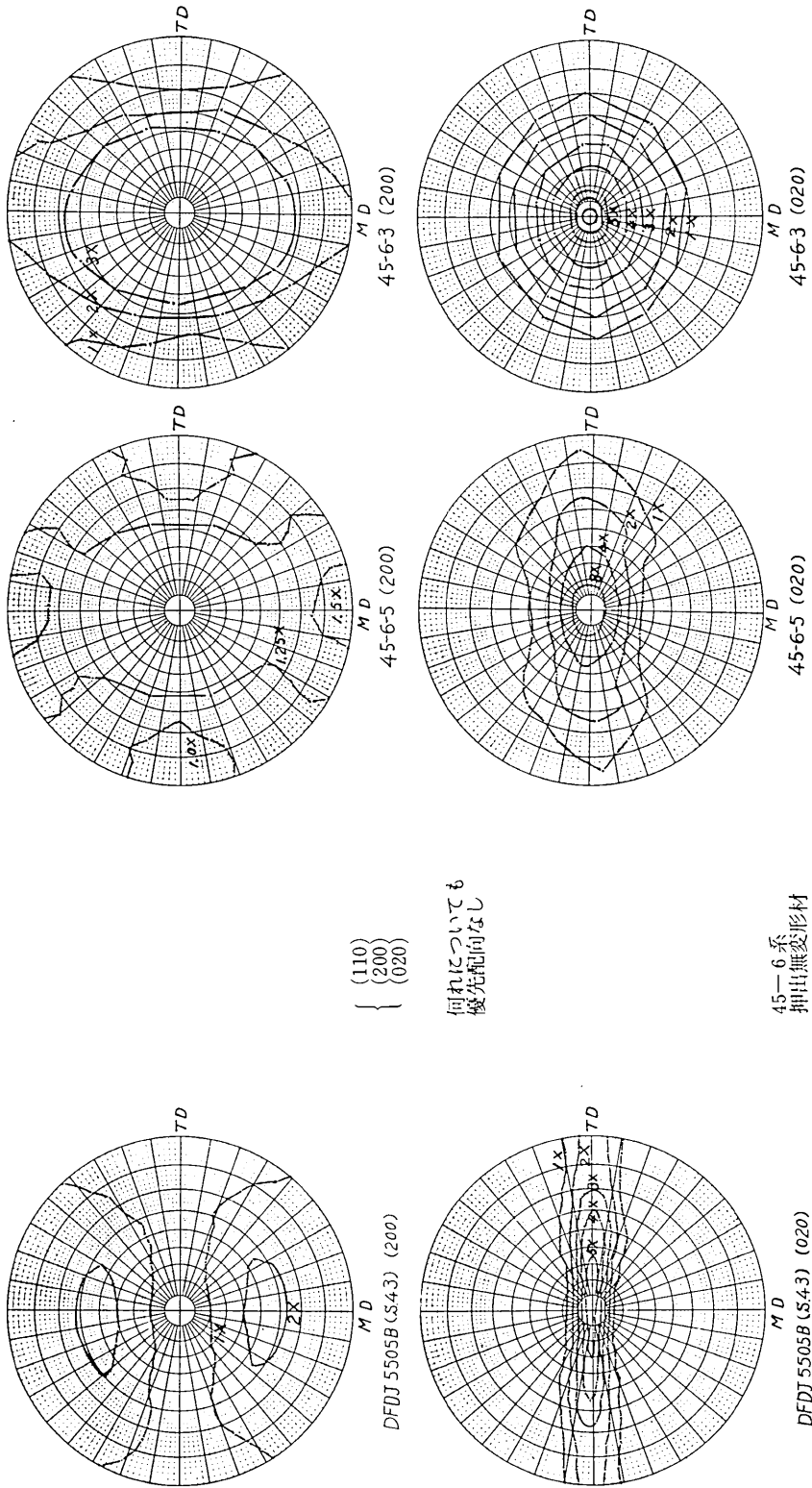


図4 代表的フィルム等の極点図形 (200) は a 軸を, (020) は b 軸の配向を示す。

とはb軸(020)がTDに強く配向していることである。このフィルムの一80℃での単軸引張試験では、MDの場合降伏点を越えて塑性延伸するが、TDでは降伏点近くと見られる点で破断し、常温で大きな破断伸びを示すのと全く異なる。また、常温でも、バルジ試験などの二軸応力下では、TDの延伸は不均一で、MDに裂け目状の局部延伸が発生し、低温下ではこの傾向が顕著になり、写真一1, 2に示すような塑性二軸延伸を全く示さずに破断する。低温下で、二軸応力あるいは不特定方向に衝撃的な引張応力を受ける気球フィルムとしては適当でない。特に、複雑な残留歪のある溶接線が幾本も走る球皮としては甚しく不都合な結晶配向であり、この図形によって、測定前に推定していたb軸の極端なTD配向が確かめられた。

低温下で二軸延伸性が可能なポリエチレン・フィルムの結晶配向は、“b軸則”から考えて、b軸が膜面に垂直な配向であり、それは $\alpha \approx 5$ で実現すると推定されることをIに述べた。(45-6-3)は、低温二軸延伸性に関係する4つの因子を出来る限り満足するように、 $\alpha \approx 5$ で $\beta \approx 1$ の近似的等軸性に成形した試作フィルムである。予想通りb軸したがって α 軸もほぼ等軸に近い配向を示している。(45-6-5)は同一樹脂を普通に成形したもので、等軸性には程遠い配向で、バルジ試験でも写真一2のような全体的に滑らかな二軸延伸を示さず、MDに縞模様の末延伸部分が発生し、球皮用としては十分ではない。これに反して、(45-6-3)は、単に気球の上空破壊を防止して、その信頼性を向上させるだけでなく、気球の重量を軽減して性能の向上をも期待し得るものである⁸⁾。

押出無変形材については、縦横加工比の導入に際して、ダイ出口での融液の無配向を仮定したため、その確認のために測定した。(200),(020)は勿論、回折X線強度が強く測定し易い(110)についても、試料回転速度を1回転60分にして再測定を行ったが、何れにも優先配向は認められなかった。これによって、前記仮定の妥当性を確かめ得たと考えられる。

むすび

1932年(S.7)ピカールが最初に自由気球によって16.5kmの上空に達して以後、米・ソなどで、人間塔乗のゴム布製大型気球による高空飛昇が行われ、約20km前後で破裂落下する事故があった。第二次大戦後開発された大型プラスチック気球にも、ジェット気流層を上昇中に突然破壊落下する問題が継続し、その原因について多くの臆測が行われていた。筆者らはS.34年のロッケン予備実験で、ジェット気流中で満膨張になる気球の排風速度を観測し、その瞬間的脈動的に変化する高い排風速度から、気球が激しく叩かれ、皮膜に衝撃的に瞬間的高負荷がかかることを推定した。

これに対して、皮膜フィルムの低温時の脆化が甚しく、瞬間的高負荷に耐えられないことが原因であると判断した。

そこで筆者は、気球重量の増加なしに、上空破壊を防止するため、皮膜フィルムに十分な低温二軸延伸性を与えることを考え、これに適した現存モノ・ポリマーの基礎物性を検討して、高分子量の高压ポリエチレンを適正に成形すれば有望と推定していた。S.41年、宇宙研に気球工学部門が新設されるとともに、気球の上空破壊防止を主眼とする気球材料懇談会が組織され、全般的基本的検討が開始され、新しい樹脂なども検討された。この間、筆者は高压ポリエチレン・フィルムに低温二軸延伸性を与える成形条件を追求し、製品フィルムの力学的直交異方性を支配する成形条件の本質的パラメータとして、新しく縦横加工比を導入し、その低温性能を改良した。この結果、目標とした気球の上空破壊は零となり信頼性が向上すると同時に、考察推論の正妥性をも確かめ得た。

また、極点図形測定の追加実験によって、低温延伸可能な結晶配向について帰納した“b軸則”と、ダイ出口融液の無配向の仮定とに関してもその妥当性が確かめられた。

謝辞

本研究と実験には、生研および宇宙研の諸先生に種種御教示と御高配を賜わり、極点図形の測定には、生研第一部の片岡邦郎氏をはじめ本間研の方々にお世話になり、データ解説には宇宙研小原嗣朗教授に御教示を戴きました。また大日本樹脂KK東京工場にはフィルム成形で、気球製作には藤倉航装KKの御協力を戴きました。記して厚く御礼申し上げます。

(1975年1月27日受理)

参考文献

- 1) J.Brandrup, E.H.Immergut; Polymer Handbook, III-65 (1965/7) Interscience Publishers.
- 2) 岡本智; 東大宇宙研報告, 3-2 (1967/2) 402.
岡本智; 生産研究, 23-11 (1971/11) 464
- 3) 例えばPeterlin, A. and R. Corneliussen; J. polym. Sci. A-26 (1968) 1273
I. L. Hay, A. Keller; Kolloid-Z. und Z. Polym. Band 209 (1965) 43.
Keinosuke Kobayashi and Toshio Nagasawa; J. Polym. Sci., C-15 (1966) 163.
- 4) 小林恵之助; 日化第13年会 (1960) 東京
- 5) P.H.Lindenmeyer, S.Lustig; J. App. Polymer Sci., 9 (1965) 227
- 6) Keinosuke Kobayashi, Toshio Nagasawa; Macromol, SCI-Phys. B4 (2)(1970/6) 331
- 7) 河田幸三; 東大宇宙研報告, 2-1 (c)(1966/3) 409
- 8) 河田幸三, 岡本智, 橋本彰三, 本堂明; 東大宇宙研報告 10-1 (B)(1974/3) 100.
- 9) Poul J. Flory; J. Am. Chem. Soc. 67 (1945) 2048.