

観測気球用ポリエチレン・フィルムの開発

Development of Polyethylen Film for Scientific Balloon

岡 木 智*

Satoshi OKAMOTO

今やロケット時代にもかかわらず、一見はなほだ間伸びのするプラスチック気球が、実は現在世界各地で年間数百台も科学観測等に放球活用され、欧米では運用、開発の組織も確立されている概況をはじめに述べる。この気球に多用される従来のポリエチレン・フィルムは意外なほど直交異方性が強く、高空の低温下で脆化して破壊しやすい。そこで新しく筆者の着想したフィルム製造時の縦横加工比を考へることにより、等方性に近くまで異方性を改良し得ることを確かめた。ついで低温に必要な二軸延伸性能を向上させるために、低 M. I. ポリエチレンに急変形急冷加工を施すと、普通加工のものよりすぐれたフィルムが出来るはずとの予測をたて、それを実現し、定評ある輸入フィルムのそれを凌駕し得たことの解説である。

ま え が き

観測ロケットや人工衛星、さらには宇宙基地による科学観測が盛んになるにつれ、気球による観測もまた必要度を増し、第二次大戦後開発されたプラスチック気球は現在世界各地で年間数百台も放球されている。大気圏外に上昇出来ない本質的制約があるにもかかわらず、今や観測ロケット等に対する相補的不可欠の観測手段となった。

本報は、現用プラスチック製観測気球の世界的概況に簡単に触れた後、ポリエチレン球皮の改良開発研究の解説である。

そもそも気球の上昇性能は球皮の性能に依存する。従来わが国で使用されてきた高圧ポリエチレン・フィルムは直交異方性がはなはだしく、上昇中に縦方向に破裂しやすかった。そこでフィルム製造時の縦横加工比を改め、フィルムの直交異方性を改善し、さらに高分子量樹脂を用いて急変形急冷加工を施し、低温時の強度と二軸延伸性能を共に向上させ、定評ある輸入品を凌駕するフィルムを試作し得た。

本論に入る前に気球観測の世界的概況に簡単に触れると、まずアメリカでは、第二次大戦後、軍の要請で開発されたプラスチック気球は年々盛んになり、現在では 23 の大学が参加する組織 NCAR (National Center of Atmospheric Research) が観測活動の中心で、100 万 m³ を含む各種容積、膜厚の気球が年間約 300 台も放球観測されている。気球技術と機材の基礎研究と開発も行ない、レポートや定期刊行物(季刊)をも刊行している。アメリカではこの他に ONR (Office of Naval Research) がスポンサーとなって磁北極近くの基地から年間数十台の放球観測も行なわれている。特異事項としてヘリユー

ムの使用が上げられる。

ヨーロッパでは戦後、湯川中間子の発見者としてわが国にもその名を知られた英国のパウエル博士等が宇宙線観測のゴム気球に替えて、プラスチック気球を開発、放球した。各国の科学者達はその効用を認め、各国協力して地中海のサルジニア島を基地に大々的なサルジニア・エクスペディションを展開した。現在はソ連をのぞく各国が SPARMO (Solar Partcles and Radiations Monitoring Organizations) を組織し、フランスがテトラ型気球の量産を担当し、南フランス基地から年間約 200 台の放球観測を実施している。ヨーロッパ各地にも小規模な放球、追跡基地がある。これらはたがいに密接な連絡を保っているので気球追跡に便利であると思われる。

ソ連では、先年 7 トンのストラトスコープの気球観測に成功したと新聞に報じられた。これが事実ならばアメリカに匹敵する技術レベルと思われるが詳細は不明である。

この他気球観測の行なわれている国としては、日本、インド、オーストラリア、アルゼンチン、ブラジル、チリ等がある。インドでは最近 2 年間、日本から出かけて共同観測が行なわれた。

わが国では昭和 41 年宇宙航空研究所に気球工学部門が新設された。観測対象も宇宙線関係だけでなく、太陽その他の天体、銀河 X 線等の天文関係から地球物理関係等の各分野に広がった。観測と技術開発関係を合わせて 5 年間に約 140 台が放球された。

わが国の最高到達高度は 10 万 m³ の気球で 42.6 km に達した (昭和 45 年 9 月福島県原町市郊外の仮基地より放球) ものである。気球技術も着々と進歩しているが、観測プロジェクトの拡大につれて、気球の性能向上の要求もまた強まっている。図 1 に現在わが国で使用している自然型気球を標準大気に浮遊させるときの性能を

* 東京大学生産技術研究所 第 2 部

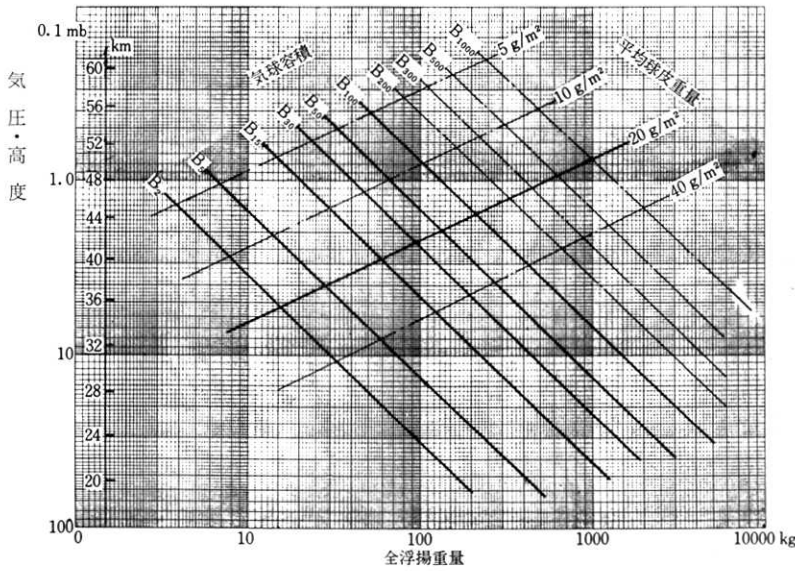


図1 現在本邦で使用中的の自然型気球を各種皮膜で作った場合、各容積の上昇性能を示す。二直線の交点が気球自重で、これに荷重を加えて縦軸の到達高度を推定出来る。皮膜重量 20 g/m² はポリエチレンでは大体 20 μ で、現在最も多く使用されるものに該当する。10 g/m² は現在 1/2 ミル(13 μ) に相当し高性能用皮膜として開発されんとしているものに相当する。5 g/m² はアメリカでも余り成功率のよくない 1/4 ミル相当の推定用である。

鎖線は開発予定が決まっているわけではないが、実線で示した気球は、すでに我が国で開発済で規格化されている。なお気球容積は suffix × 1000 m³ で例えば B₅ は 5000 m³ の容積である。

示す。

図からもわかるとおり、比強度の大きい、うすく均一な(水素透過率の小さい)フィルムを作ることが、気球の性能向上の決め手であり、これがこの解説をする所以である。

1. 気球フィルムの条件と問題点

軽い大容積の気球が上昇到達高度が高いことはいうまでもない。そのためには水素に対する気密材と、強度を受けもつ強度メンバーを兼用することが望ましい。

現在はペイロードが数十 kg まではこの方法が可能で、それ以上では母線方向に所要本数の強度材(グラス・ファイバーが多く使用される)を取り付ける。さらにペイロードが約 1 t より大きい場合には、頭部のみ二重皮膜にしたり、気密用の薄フィルムに補強用の網を貼り合わせた皮膜が用いられる。これらのフィルムはいずれの場合にも、形状的には厚さむらが少なく、ピンホール、未溶融樹脂のフィッシュ・アイその他異物等のない均質一様なことが必要条件である。

材料力学的な条件としては、気球皮膜についての荷重条件が未だ十分明らかにされていないから確定的に示し得ないのが現状である。しかしながら、気球の使用状態すなわち最初地上で気球頂部約 10% の部分に全浮力に相当する水素ガスを充填するので、この部分には強い二軸応力が作用する。縦横の応力比は場所により異なる。放球後に気球が上昇する段階では、未だ水素ガスが入らない部分の皮膜は縦方向に引張応力を受ける。気球が上昇して漸次水素ガスが膨張するにつれて、この部分も水素ガスで膨らみ、種々の応力比で二軸応力を受けることが静力学的に考えられる。

気球の最大径に当たる部分等は、気球が上昇中は深く

巻き込まれた状態になる場合が多い。上昇中に前述のごとく展開して行くが、この場合突風を受けたりすると、その巻込球皮の展開時の応力に加えて、動力学的な応力がかかると考えられるが、これは現在推定不能に近い。

気球破壊の大部分は上半部分で、気球頂部近く縦方向の裂口を生ずる。これはこの部分の応力が最も大きく、二軸応力比に対し、球皮の二軸強度比の横方向のそれが不足していることを示している(気球の構造については生産研究 vol. 12 No. 3 参照)。

重荷重用の補強網を貼り合わせない場合、高圧ポリエチレンのインフレーションフィルムが多く使用される。

インフレーションとは、円形の隙間を持つダイスから溶融ポリエチレンを押し出し、膨張用の空気を内封しながら円筒状に吹き上げ、フィルムが十分固化したところで再び空気が入らないよう、二本のローラーの間で平らに押し潰しながら連続的に巻き取る方法である。この製造法では、溶融樹脂の変形流動固化する状態と温度勾配から考えて、何程かの直交異方性の生ずることは当然予想されることである。

筆者が生研のロックン開発に関係した際、昭和 34 年 5 月、当時千葉の生研グラウンドで気球の加圧破壊実験が行なわれた。その時驚いたことは予想以上にポリエチレン皮膜の異方性のはなはだしいことであった。参考のために破損部分を切り取ったものを写真 1 に示す。普通市販のポリエチレン・フィルムとほとんど差がないので異方性について特別な考慮なしに製造されたフィルムのように思われた。何等の対策なしに実物のロケットを吊り下げるにはいささか問題が起こりそうであった。

フィルムの製造工程にまで立入って検討する人手も、時間的余裕もなかったのも、当時専ら所要膜厚にまで厚くすること、特に気球上半分を厚くし、縦方向を溶接し

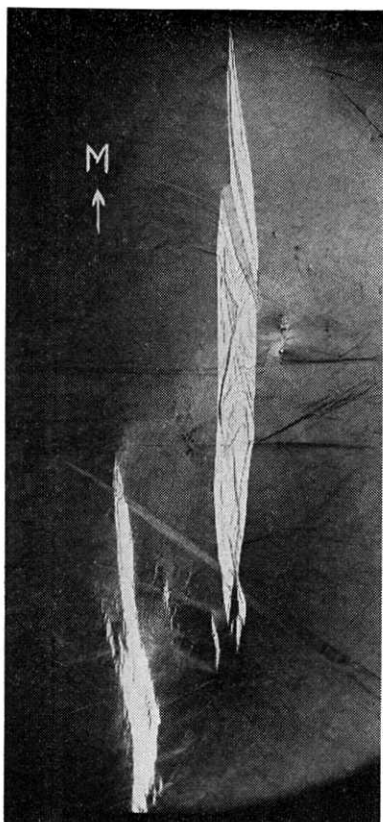


写真 1 昭和 34 年 5 月、生研グランド(千葉)で行なわれた 450m³ 気球加压破壊実験で、破損した球皮部分の偏光写真。一般用ポリエチレンと同程度の強い異方性を示し、気球々皮として特に二軸応力に留意し製造されたとは見えない。加熱収縮試験(後述)を行なえば図 16(昭 43 年)よりはなほだしい変形を示す。

た二番にも補強テープを貼付し、その上最も破壊しやすい頂部に鉢巻状に補強バンドを幾段にも取り付けて円周応力を支えた。

ロケットの場合、日本上空の西風が東風に変る高度が約 20km で、これより気球が高く上がると太平洋岸では再び陸地に舞戻って、ロケット発射は不能になる。この高度の空気密度はまだ 89g/m³ もあるので、上記の応急の気球補強策も気球の容積増への影響は小さく、改善の方法として許容し得た。

ところが観測気球では、出来る限り高々度を望む場合が多く、図 1 からもわかるとおりこの方法は最早採用出来ない。そこで材料力学的に最も問題になるポリエチレン・フィルムの直交異方性について検討を始めた。

2. ポリエチレン・フィルムの直交異方性の改善

まずポリエチレン・フィルムのインフレーション条件を調べ、ダイス出口の熔融ポリエチレンがフィルムに固化するまでに縦、横、厚さ方向にいかなる変形を受けるかを考察するため、図 2 の概念図を考えた[1]。

直交異方性に関与すると考えられるものに温度条件も

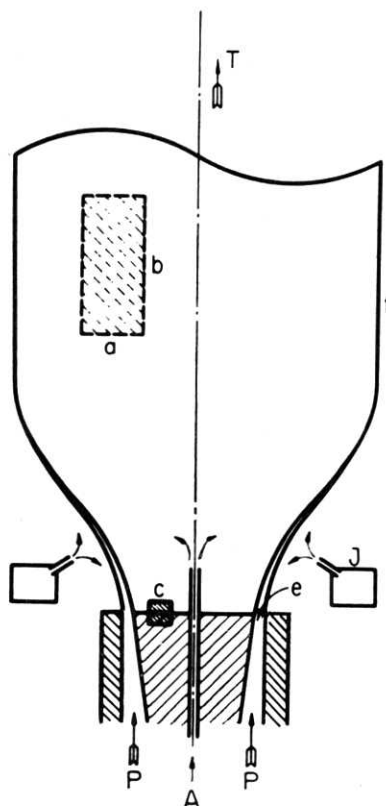


図 2 ポリエチレン・フィルムの強い力学的直交異方性の発生原因を解析するため、筆者の考えたインフレーション加工の概念図。b/a を縦横加工比 β と呼ぶことにし、 β が 10 前後にもなっていたので、出来る限り 1 に近づけて等方性に近いフィルムが得られた。

あるが、まず実際の製造条件を調べて見た。縦方向の変形比と横方向変形比(後者は現場でインフレーション・レシオまたはブローアップレシオと呼び作業難易の目安とする)を比較すると、前者は後者の 10 倍以上にも達していることが判明した。このあまりにもかけ離れた両変形比が顕著な異方性の生成原因と推定、取りあえずこれを縦横変形比 [1] として、出来る限り 1 に近づけた後温度条件の問題に入るべきであると考えた。

図 2 において

$$c^2 t_0 \rho_0 = a b t \rho \tag{1}$$

ここに、 t_0, t はダイス出口間隙および膜厚で $t_0 \approx e$ である。 ρ_0, ρ はダイス出口とフィルムのポリエチレンの密度である。(1)から

$$b/a = (c/a)^2 \cdot e/t \cdot \rho_0/\rho \tag{2}$$

右辺第 1 項は前記インフレーション・レシオ (α とする) の逆数の自乗、第 2 項は厚さ方向の加工度の逆比で $e/t = \gamma$ とおけば(2)式は

$$b/a = \gamma/\alpha^2 \cdot \rho_0/\rho \tag{3}$$

ρ_0 はダイス出口の樹脂温度によって異なるが、高压ポリエチレンについて普通行なわれる温度 180~200°C について当て見ると、大略 $\rho_0/\rho \approx 0.8$ 位になる。

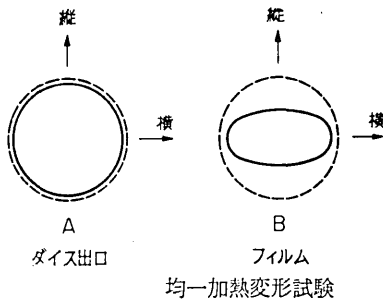


図3 フィルムの縦横加工比 β が直交異方性に支配的に効くと仮定する場合、ダイス出口では等方性であることを確認する必要があった。ダイス出口の未延伸フィルムと製品フィルムから直径3cmの円形試片を打抜き、熱風加熱して収縮変形させて調べた。

したがって(3)式は

$$b/a = (b/c)/(a/c) = 0.8\gamma/\alpha^2 \quad (4)$$

となる。左辺は縦方向の加工変形比とインフレーション・レシオの比であり、筆者はこれを縦横加工比と呼ぶことにし、 β とおくことにした。

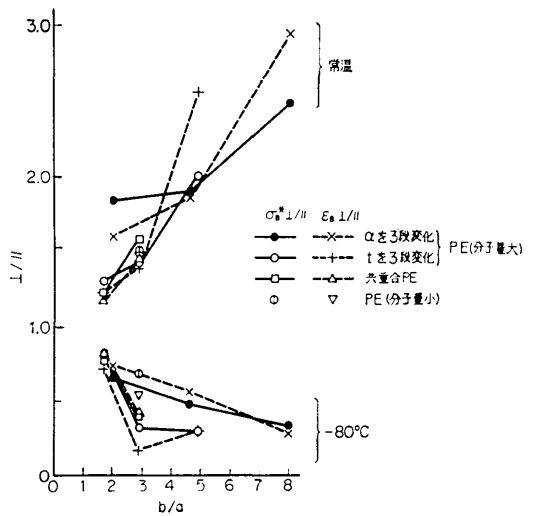
この β がフィルムの直交異方性に大きく影響すると考える前提には、ダイス出口での異方性がほとんど零である必要がある。念のために作業中断時に押出された未延伸で冷却された材料とフィルムから各々直径3cmの資料を打抜き、熱風で加熱しながら自由収縮させると、図3に示すごとく変形する。これでダイス出口では無配向と仮定することは一応無理のない前提と考え得る。

昭和41年秋大気球シンポジウムで、ポリエチレン球皮の力学的直交異方性に対する縦横加工比 β の関係について発表した。その後気球工学小委員会での問題が採り上げられ、ダイス直径100 ϕ 、間隙0.75mmの同一ダイスで、4種の樹脂で試作フィルムを吹いた。比較的分子量の大きいもの2種の内の1つでは、 α のみを3段に変化したシリーズ、他の1つで膜厚のみを3段に変化させたシリーズ、残り2種の内の1つは共重合ポリエチレンで、 α を2段に変化させ、最後の比較的分子量の小さいポリエチレンでは1種類、合計9種類の試作フィルムを吹いた。

これら9種類のフィルムの力学的直交異方性の判別法として、縦横両方向の単軸引張試験を行ない、破断伸びと破断真応力の横/縦の比を縦横加工比を横軸にとって整理すると図4になる。

常温と -80°C 低温引張試験の結果が、破断値のばらつきを考慮すると、縦横加工比 β すなわち b/a の値が1に近づくにしたがって、破断伸びと真破断応力の横/縦の比の値もまた1に近づくことが歴然としている。

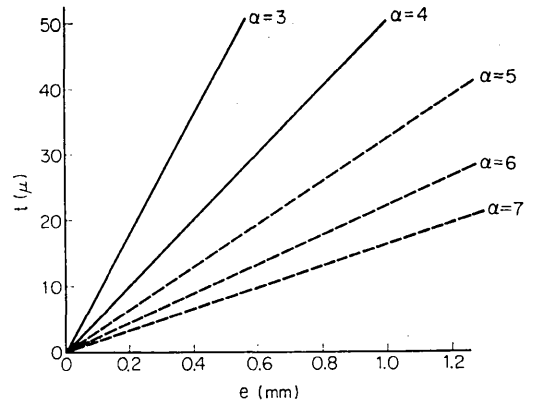
このときの β の最小値は1.73、インフレーション・レシオ α は3で膜厚は 37μ であった。 β を極力1に近づけた試料を希望したが実現出来なかった。これは普通のインフレーション用の押出機が、出来る限り平易にまた単位時間当たりのフィルム製造量を出る限り増加させ



縦横加工比と強度異方性 (test inflation film)

図4 縦横加工比 β が1に近づくほど、フィルムの力学的直交異方性も小さくなることを、各々異なったポリエチレン4種で9種類のフィルムを吹いて調べた。常温と -80°C の単軸引張試験の真破断応力と破断伸びの横/縦の比が縦軸にとってある。

破断現象のパラツキを考えると b/a が1になると等方性フィルムになることを示している。



等方性フィルムを作る条件

図5 縦横加工比が1に近いインフレーション加工は実際には実現困難である。 $\beta=1$ ならば等方性フィルムを作れるとすれば、ダイス間隙 e と膜厚 t とインフレーション・レシオ α との間に必要な関係も示す。

α が5以上は殆んど実用されないで点線で示した。10 μ 以下の等方性フィルムをインフレーションで作ることは難事であることがわかる。

るために、ダイス直径も間隙も比較的大きくし、 α を2~3位の条件で運転されるためと考えられる。

今仮に $\beta=1$ にすれば等方性に近いフィルムが得られるものとして、ダイス間隙 e と膜厚 t との関係をインフレーション・レシオ α をパラメーターとして求めれば図5のごとくになる。

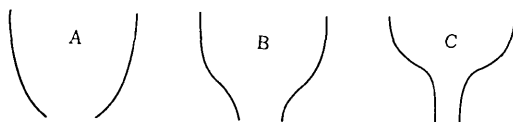
現在球皮として使用されるフィルムの厚さは大体20 μ 前後が多い、ダイス間隙は0.5~1.0が時々々の掃除の便利等の理由もあって多用され、0.4以下のものはほとんど

表 1 ポリエチレンフィルム諸元一覧表

		M. I.	比重	膜厚 (μ)	折径 (m)	ダイス径 (ϕ)	ダイス間隙 (mm)	α	β	加熱収縮比	ダイス温度 ($^{\circ}\text{C}$)	巻速 (m/s)	風速	バブル概形	
(1)	DFD5505 (S. 43)	0.75	0.920	25	2.0	600	0.9	2.1	5.8 _s	5.6 _s	160	22	中	B	
	" 6775 (S. 44試)	0.3	"	20	2.5	380	"	4.2	2.0 _s	1.6 _s	180	21.5	"	"	
	" " (S. 44)	"	"	23	2.0	"	"	3.3	2.7 _r	1.7 _s	175~195	20	弱	"	
	" " (S. 45)	"	"	20	2.0	304	0.6	4.2	1.3 _s	1.4 _s	200	19	強	A	
(2)	ZE40 (45-3-2)	0.5	0.922	26	0.4	75	0.5	3.4	1.3 _z	2.1 _s	145	12	中	B	
	DFD5505 (45-3-3)	0.75	0.920	27	"	"	"	"	1.2 _s	1.8 _s	160	"	"	"	
	スミカセン101-3 (45-3-5)	0.29	0.923	29	"	"	"	"	1.1 _s	1.9 _r	200	"	"	"	
	DFD6775 (45-3-6)	0.3	0.920	"	"	"	"	"	"	1.5 _s	"	"	"	"	
	" " (45-3-7)	"	"	25	0.47	"	"	4.0	1.0	1.4 _s	"	"	"	"	
	" " (45-3-8)	"	"	"	"	"	"	"	"	1.4 _s	"	"	強	A	
(3)	M. I. = 0.1	45-6-1	0.15	0.916 _s	25	0.42	75	0.5	3.5 _s	1.1 _r	1.0 _s	200~230	12.5	中	C
		45-6-2	"	"	22	0.49	"	"	4.1 _s	1.0 _s	1.0 _s	"	"	"	"
		45-6-3	"	"	20	0.59	"	"	4.7 _s	0.8 _s	1.0 _s	"	18.0	"	"
		45-6-4	"	"	18	0.62	"	"	5.2 _r	0.8 _s	0.9 _r	"	16.0	"	"
		45-6-5	"	0.917 _s	22	0.52	"	"	4.4	0.9 _s	1.3 _s	180	8.0	強	A
(4)	DFD6775 (S. 46)	0.29	"	20	2.0	304	0.6	4.2	1.3 _s	1.2 _s	200	20.5	弱	C	
	DFD6775M (S. 46試)	0.17	"	"	"	"	"	"	"	1.2 _s	"	"	"	"	
(5)	Strato Film (S. 43)	0.23	0.918 _s	19	1.4	—	—	—	—	1.4 _z	—	—	—	—	
	" (S. 45)	"	0.916 _z	"	"	—	—	—	—	1.3 _s	—	—	—	—	
	" (S. 45)	"	"	13	"	—	—	—	—	1.5 _s	—	—	—	—	

本報に述べるおもなフィルムの樹脂、加工諸元である。M. I. = Melt Index, α = Inflation ratio, β = 縦横加工比 (1), 比較参考とした S. F. の加工諸元は不明である。(1)と(4)は各年度の实用フィルム,(2)は樹脂比較と加工法実験,(3)は低 M. I. 樹脂の加工法実験に関するものである。

バブル概形略号



ど見当たらない。また α は4より大きくなるにしたがって図2に示すいわゆるバブルの形状が不安定になりやすいのでほとんど用いられない。そこで仮りに20 μ の等方性フィルムに吹くとすれば $e=0.5$, $\alpha=4.5$ 前後の条件が当面の目標となる。

表1に昭和43年以降、毎年気球製作用に吹いた实用フィルムおよび実験的な試作フィルムについての加工諸元をまとめて示す。

また表2にこれらのフィルムの直交異方性を調べるために、常温と -80°C における縦横両方向の単軸引張試験結果の降伏応力、破断応力、それらに対応する伸び歪を棒グラフにして表示する。

(1)と(4)のグループは気球製作用の広幅フィルムで(2)は樹脂選定と加工法の実験,(3)は次章に述べる低温二軸延伸性能向上をも目的とした試作,(4)は昭和46年用に(3)の結果を不十分ながら適用した实用と試用の

フィルム,(5)は比較のため、現在気球用フィルムとして最も定評ある米国のウインゼン社製の各膜厚のストラト・フィルムである。表1の加熱収縮比については後述する。

広い幅の实用フィルムで縦横加工比 β を1の前後にする実験はダイスの都合で仲々困難な状態であったが、次第に1に近づけつつある。その予備的な先行実験として(2)のグループで、 β をほとんど1にすることを試みた。表2-1で -80°C の破断伸びを見ると、实用フィルムと同一の樹脂でありながら縦横共に約2倍に増大するとともに、それらのバランスも改善されることが判明した。以上でフィルム製造時の縦横加工比を考慮することによって、フィルムの力学的直交異方性の大略を制御し得るとの予測が誤りでないことを確かめ得た。

表 2-1 -80°C Tension 500 mm/min.

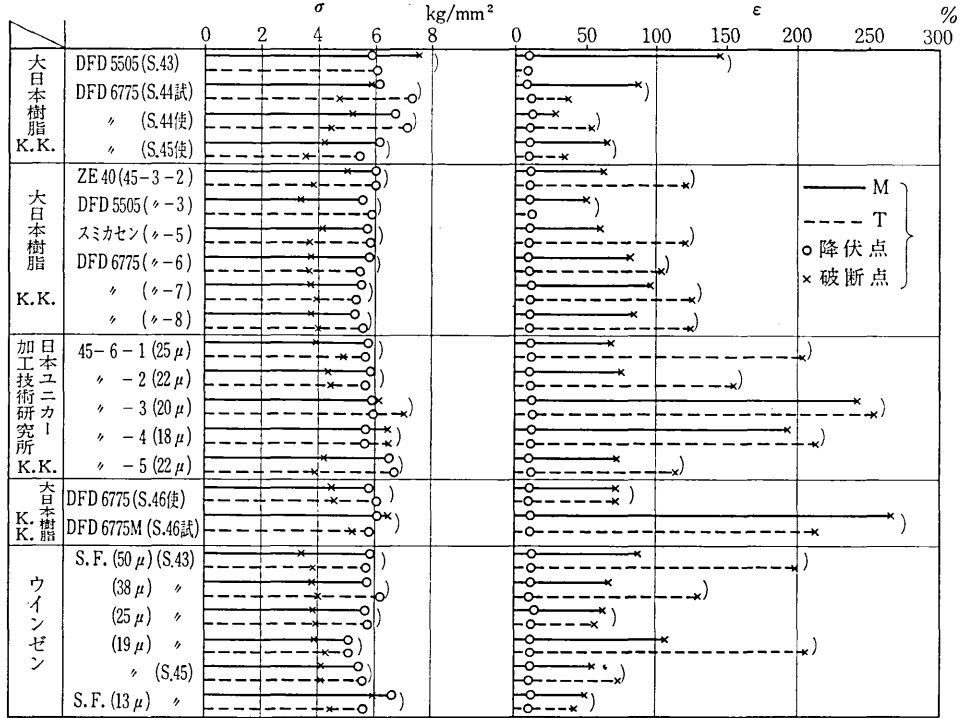


表 1 に対応させて -80°C の単軸引張試験の破断応力と伸びを示した。数年前のものは -80°C にもなると降伏点で切断し、T 方向の伸びは特に小さかった。昭和 43 年の DFD 5505 にそれが認められる。45-6-3,4 の実験試作フィルムとこれと同一樹脂 DFD 6775 M (S.46 試) は最も定評ある S.F. の 19 μ をしのいでいる。

表 2-2 (21°C~24°C) Tension 500 mm/min.

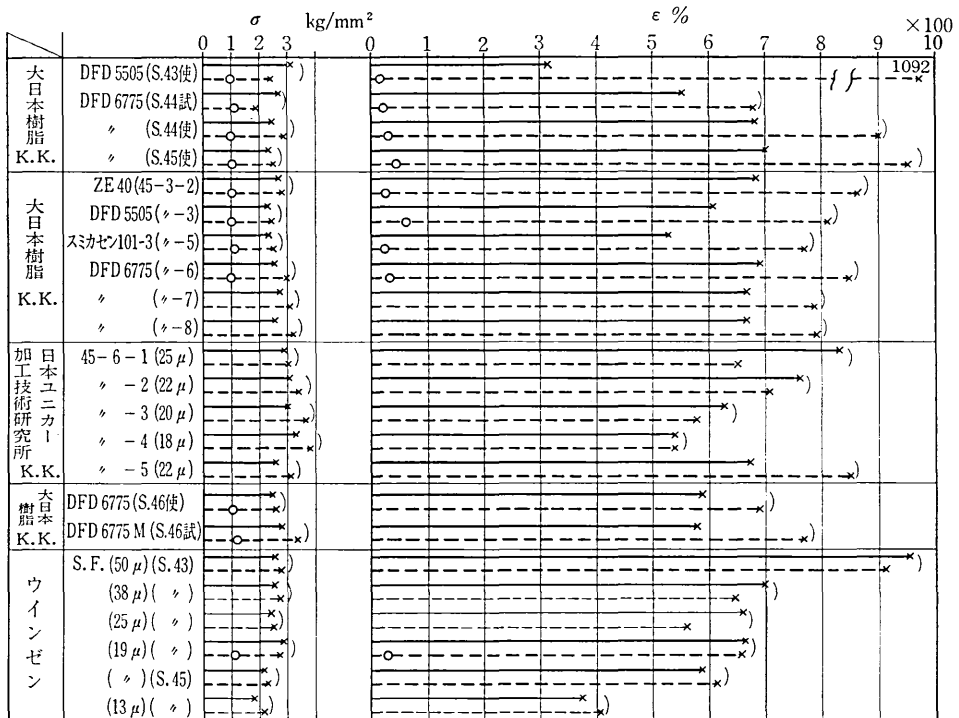


表 1 に対応させて常温での単軸引張試験の破断応力と伸びを示す。細目の線で示したのは、試片形状が規格のダンベル型でなくリボン状で藤倉航装の試験である。

3. 低温二軸延伸性能の向上

異方性の少ないほとんど等方性のフィルムを吹き得る見通しが立ったので、応力比に合わせてフィルムの力学的性能を有効に配向させることが可能になった。

次に気球々皮として基本的に重要な低温における二軸延伸性能を向上させる問題である。

まず伸びと変形応力を共に大きくして、破断に至るまでの吸収エネルギーを増大させる見地から、分子量は出来る限り大きく、分子量分布が狭い樹脂を選ぶことが、モノ・ポリマーの範囲では有効と考えられる。また組織構造については別報〔1〕にも述べたとおり、結晶部は出来る限り分子鎖が繰り出しやすい不完全な小結晶に、非結晶部は低温でも変形しやすいようにポテンシャル・バリアーの低いゴーシュ形を多く分布させ、安定なトランス形を避けることが合理的と推定される。

このようなフィルムを作るためには、出来る限り分子量の大きい樹脂を熔融状態から急変形急冷してフィルムに固化させることによって、常温あるいは低温では不安定な、熔融状態を留めた準安定な組織のフィルムが得られるであろう。この着想を前述の縦横加工比の考えと組合せて、低温において二軸延伸性能の大きい等方性フィルムを吹くことを試みたのが表 1 のグループ (3) に示す 45-6-1~4 である。45-6-5 は急変形急冷の効果を加えない普通の試料である。

これらの試作フィルムで縦、横の -80°C の単軸引張伸びの最も大きい 45-6-3 と、気球皮膜材として現在最も定評のあるウインゼン社製ストラト・フィルムの昭和 43 年に輸入した 19μ について、 -80°C の単軸引張の応力-伸び曲線の一例づつを図 6 と図 7 に示す。

両図を比較すると伸びについても、また降状および破断応力についてもすべて図 6 に示す試作フィルムが大きい。このほかに特に注目されるのは降状点を過ぎて曲線の下部分の形状が図 6 と図 7 で異なることと、さらに各々の縦 (M 方向) と横 (T 方向) の曲線が図 6 はたがいに似ているが図 7 ははなはだしく相違することの二点である。後の M, T 両方向の相違点はフィルムの力学的な異方性に起因するものであろうが、前の相違点、すなわち降状点後の曲線の下り方の違いは、予期したとおり、急変形急冷したために組織構造が準安定になっているためではないかと考えられる。

この検討のため、表 1 のグループ (2)~(5) について、 M, T 両方向の -80°C の引張曲線降状部を重ねて図 8~11 に示す。

図 8、45-3-2~6 は 4 種類の樹脂を出来る限り同一条件で加工して、樹脂の比較選別を行なったことは前に述べた。45-3-2 を除いて他の 3 者はよく似た曲線を示した。45-3-6~8 は同一樹脂 DFD 6775 について加工条件

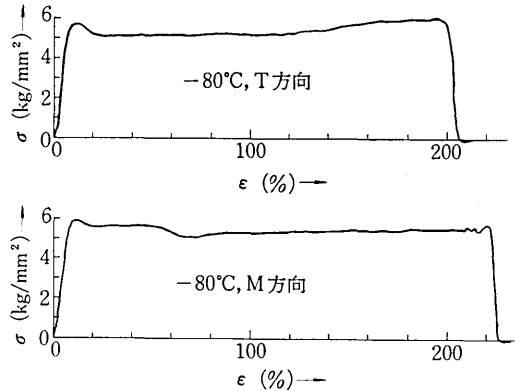


図 6 45-6-3 の film の $\sigma\sim\varepsilon$ 線図 (宇宙研河田研究室の始意により転載)

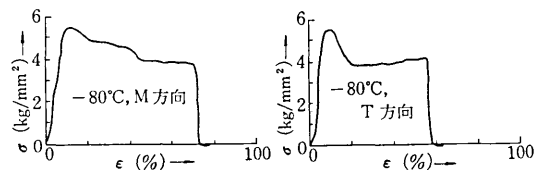


図 7 Winzen Stratofilm の $\sigma\sim\varepsilon$ 線図 (宇宙研河田研究室の好意により転載)

を変えたものである。45-3-8 はバブルが C 型 (表 1 の説明参照) で、これに図 9 の 45-6-1 の加工条件を近似させた。樹脂はもちろん、吹いた押出機も工場も異なるにもかかわらず、両者の曲線は非常によく似ている。

図 9 の 45-6-2 からインフレーション・レシオを上げ、縦横加工比を下げると同時にフィルムの巻取速度を約 50% 増したのが 45-6-3 である。この両者の間には、曲線の形状と低温伸び (表 2) に明瞭な差違が認められる。45-6-4 は 3 のインフレーション・レシオをさらに上げたもので、曲線の形状は似ているが、 -80°C の伸びと降状応力はむしろ下がっている。したがって低温二軸延伸性能向上の点では、この樹脂の最適加工条件は 45-6-3 近くにあるものと見られる。

45-6-5 はこの樹脂に従来どおりの加工した場合で、曲線の形状も従来のものに戻った。ただしこの加工中に熔融した樹脂が膜になりつつ結晶の出はじめるいわゆるフロストライン近辺を約 100°C の熱風で再加熱して、内封した空気の内圧により円周方向に急延伸をかけ、特に薄くなって急冷される部分を作った。この部分の T 方向の -80°C 単軸引張曲線を図中に細い鎖線で示した。この曲線は 45-6-3 および 4 の T 方向に酷似している。降状部曲線の特異な形状は急変形急冷されたフィルム特有のものであることが、この実験で証明されたと考え得る。

急変形急冷したフィルムを Quenched Film と名付けて少し検討を加えよう。

写真 2, 3 は 45-6-3 の -80°C 単軸引張試験の破断

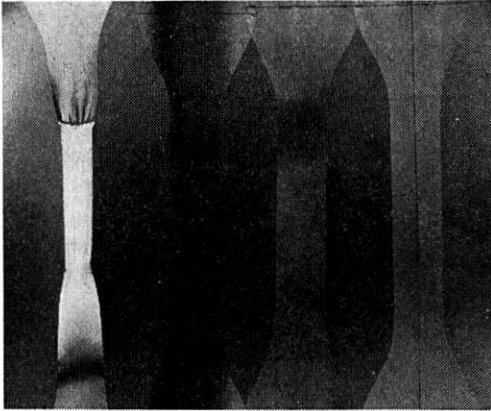


写真 2 低 M.I. 樹脂による Quenched Film 45-6-3 の -80°C M 方向引張試験で破断前除荷した試片の偏光写真。番号は左から 1, 2, 3 で右端は処女試片。(試験および撮影は宇宙研河田研究室の好意による。写真 5 まで同じ)

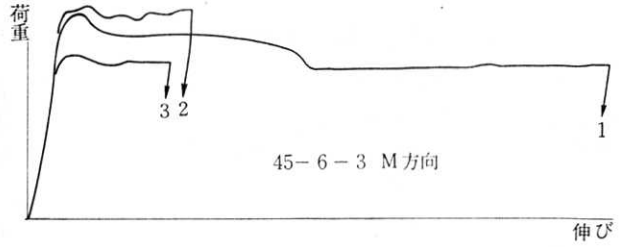


図 12 低 M.I. 樹脂に急変形急冷の加工を施した 45-6-3 試作フィルム の -80°C の方向試片の引張試験の破断前に除荷した荷重伸び曲線で、写真 2 と対応する。

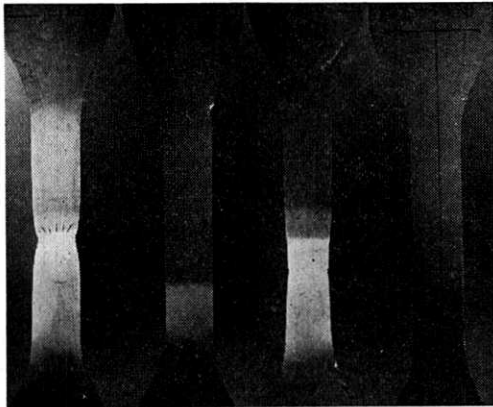


写真 3 同上の T 方向、試片番号は左から 7, 8, 9 で右端は処女試片。

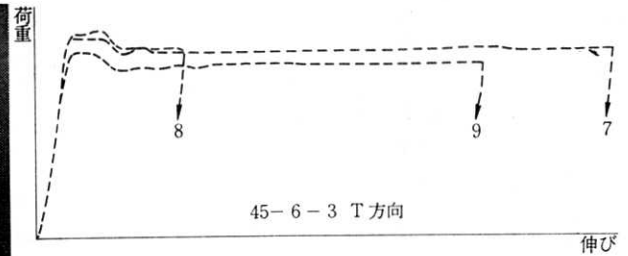


図 13 写真 3 に対応する。図 12 同様 T 方向のものである。

前に除荷した 3 本の試験片を処女片とともに偏光撮影したものである。対応する荷重-伸び曲線を図 12, 13 に示す。これと対比するために同一樹脂普通加工の 45-6-5 についてまったく同様に写真 4, 5 と図 14, 15 に示す。

繰り数の詳細は略すが、両者の著しい差違は、M, T 両方向ともに、降伏部の変形領域の広さに大きな差がある。

45-6-3 の M, T 両方向ともに変形領域の広いことは直径 100mm のダイヤフラムに低温二軸延伸をかけると一層その差違が明瞭になる。写真 6, 7 は液化炭酸ガスで -70°C のダイヤフラム試験 (宇航研, 西村研究室で実施) を行なった比較例である。同一樹脂にもかかわらず低温での性質が著しく異なることは、はなはだ興味のあることである。今までの気球が高空で縦裂けの破壊をしやすかったことが十分首肯出来る。

今一つ興味のあることは、定評あるストラトフィルムについてである。同じ仕様で昭和 43 年と 45 年に 19μ

のフィルムが輸入されたが、図 11 に示したように、 -80°C の降伏部の曲線、特に T 方向の曲線が異なっている。これらのダイヤフラム試験をすると写真 8, 9 に示すように明らかな差がある。昭和 43 年輸入のものも明確に意識して Quench されたか否か不明であるが、T 方向の降伏曲線はなだらかで、低温二軸延伸を示す。しかるに 2 年後に輸入された同一仕様のフィルムではこの性質が認められない。このことは Quench についての認識の有無に疑問を抱かせる。

次に -70°C で二軸延伸を示す 45-6-3 と昭和 43 年ストラトフィルム 19μ と比較のため 45-6-5 について、X線回析による結晶配向度を見ると写真 10 に示すように、左から順に、結晶配向は強まっている。配向の弱い 45-6-3 が低温二軸延伸性のよいことが、この X 線回析からも覗える。

組織構造分析で残るのは結晶の大きさと非晶部の問題である。これらについては目下検討中である。複雑な複合現象で明確な定量解析にまで至っていないが、筆者は

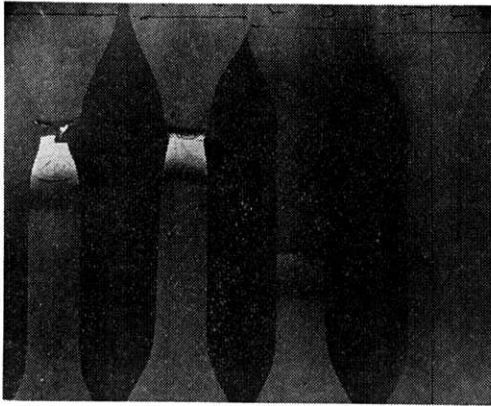


写真 4 低 M.I. 樹脂で普通加工した試作フィルム 45-6-5 の -80°C M 方向引張試片を偏光撮影。破断したものもあるが、途中除荷して降伏変形を調べた。試片番号左から 1, 2, 3. 右端は処女試片。

荷重

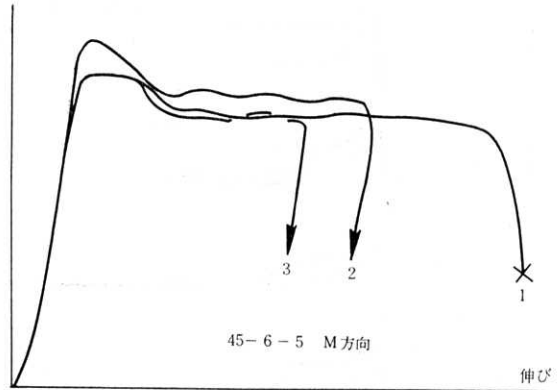


図 14 図 12, 13 に示したのと同一樹脂に普通加工したフィルムの -80°C 単軸引張試験で破断前に除荷した M 方向-荷重伸び曲線。写真 4 と対応する。

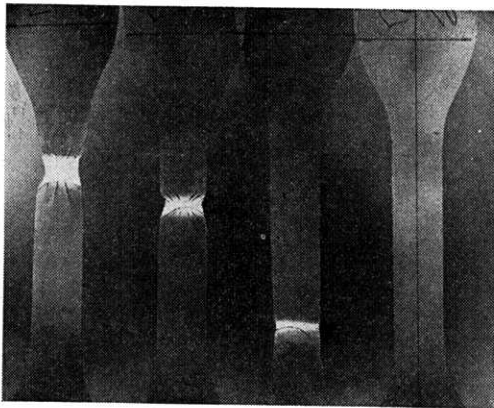


写真 5 同上 T 方向。試片番号は左から 7, 8, 9, 右端は比較のための処女試片。

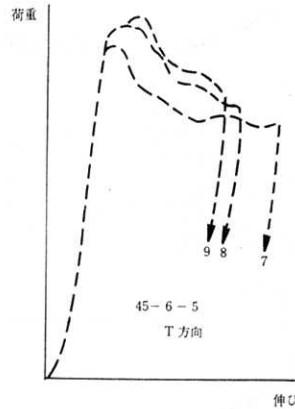


図 15 図 14 に対応する T 方向の荷重-伸び曲線写真 5 と対応する。

一つの目安として加熱収縮試験を行なって来た。これについて次に述べよう。

4. 加熱収縮試験

フィルムから丸形の試片を打抜いて、熱風で均一加熱する方法を考えついたことを前に述べた。その後収縮フィルムの製造に一辺 5cm の正方形試片を切り取って、熱いシリコン油に浸して判別する現場技術のあることを知った。

筆者はフィルムの場合によるむら、加熱収縮時の力関係、判別のためある程度の大きさと加熱むら、試片の作りやすさ等を勘案して、直径 3cm の丸形試片をランダムに打抜き、 $120\sim 125^{\circ}\text{C}$ のグリセリン中に約 20 秒間浸して収縮させる方法を行ってきた。

表 1 に示した主なフィルムの収縮後の形状を図 16 に示す。未加熱フィルムの結晶成長度と配向度、非晶部の配向と残留歪等が、結晶も融ける温度で外部から急加熱を受けたときの挙動ははなはだ複雑な現象である。

支配的に形状に効くのは異方性であり、収縮絶対量は結晶成長度と非晶部の残留歪の和のように考えられる。

ほぼ楕円形に収縮した試片の縦横比と縦横加工比との相関を調べると図 17 になる。相関は認められるが直線的ではない。特に縦横加工比の小さいところでは別の因子の影響が大きくなるようである。輸入品のストラトフィルムは膜厚が薄くなるにしたがって加熱収縮比が逆に増大している。加工法は秘密になっている由で部外者としては知る由もないが、薄くするためには単に縦方向に引伸ばしているのではないと思われる。縦横加工比がわかればおもしろいデータになるであろう。

図 16 で 45-6-3, 4 の試片が特に小さく縮んだのは先に述べた溶融時の高温状態を留めながら急冷されて準安定状態に固化したためと見られる。

5. む す び

以上で気球用のポリエチレン・フィルムとして基本的に具備すべき力学物性である直交異方性を調節するには

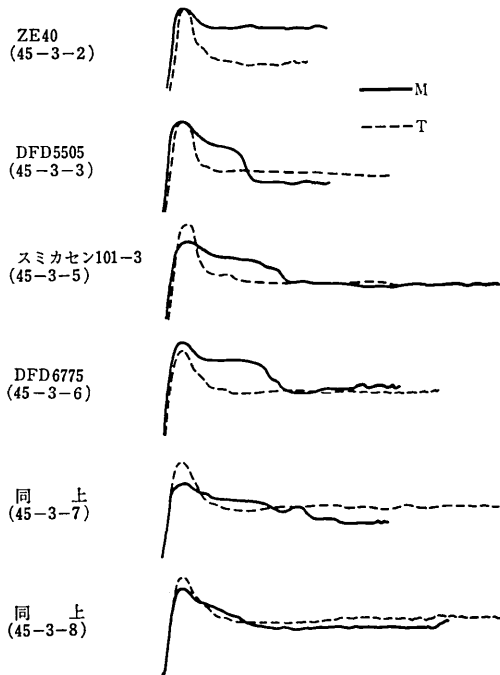


図8 表1(2)のグループの -80°C 単軸引張荷重伸び曲線降伏部のみをM, T 両方向の比較をした。上から4つはほとんど同一加工条件で樹脂選択のため、下の3者は同一樹脂による加工条件の比較のためである。いずれも点線で示したT方向の上降伏点後の降下は急である。M, T 両方向の一致の度合から異方性を推定できる。ただし、縦軸は荷重で応力ではない。応力にするには膜厚による補正が必要である。

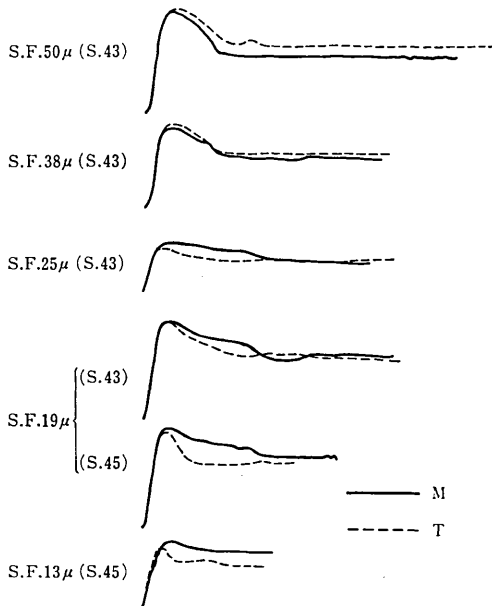


図11 参考のため定評あるストラト・フィルムの各膜厚について図8同様の処理をしたもの(下段3つは縦軸が上の倍になっている)。図16の加熱収縮試験と対比すると、曲線の一致具合と楕円の縦横比との間に相関傾向が認められる。曲線の形状から厚いものほど巻速の遅いことがうかがえる。

19 μ の(S.43)と(S.45)とはT方向の形状が異なり、(S.45)の方は脆化温度が高い。写真8,9を対比参照。

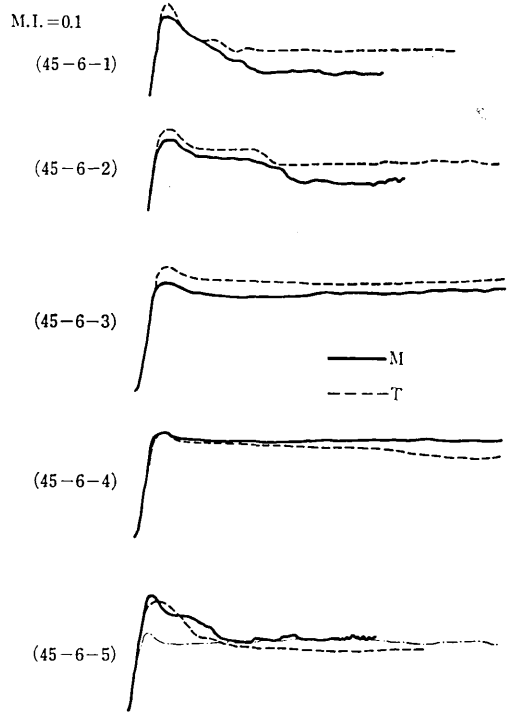


図9 図8と同様表1(3)のグループの低M.I.樹脂について、加工条件により低温二軸延伸性能の大きいフィルムを作れる領域を追求したもの。45-6-2と3の間はかなり明瞭な差が認められる。後者が単軸引張でも -70°C ダイヤフラム・テストでも最も伸びが大きい。45-6-5は従来の普通条件で加工したもの。細い鎖線はこの加工中にフロスト・ライン近を約 100°C 辺の熱風加熱して、再延伸で薄くなり急冷した部分のT方向のものである。45-6-3あるいは4のT方向と酷似した曲線を示す。

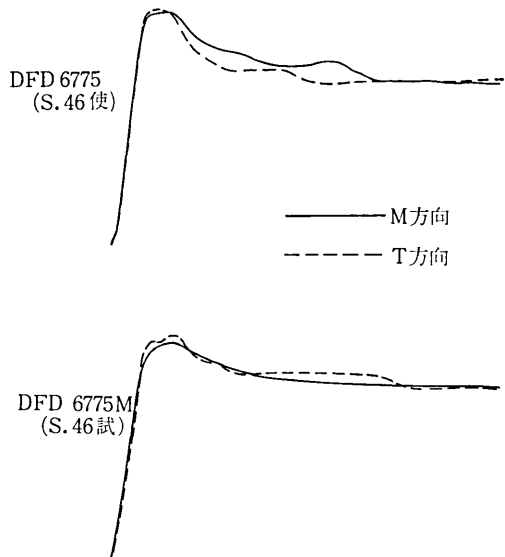


図10 表1(4)のグループについて図8同様の処理をしたもの。DFD 6775は昨年と同じ樹脂にバブル形状をC型(表1説明参照)にして吹いた。下側のDFD 6775Mは(3)で使用したのと同じ規格の樹脂を(3)の条件に準じて吹いたものである。表2-1に見るように低温伸びも良好、異方性も小さいが、C型バブルのため膜厚、折畳不同を生じた試作フィルムである。



写真 6 45-6-3

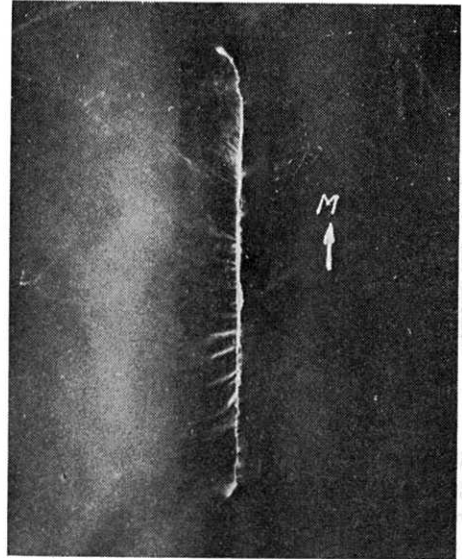


写真 7 45-6-5

低 M. I. の同一樹脂で加工条件が異なると -70°C で直径 100mm のダイヤフラムテストで明瞭な差が出る。等方で急変形急冷して準安定組織に加工されたと思われる、45-6-3 は -70°C でも良好な二軸延伸を示し、裂口も M 方向ではない。45-6-5 は -50°C 位で延伸らしいものがなくなり M 方向に裂ける。表 2, 図 9 参照。試験は宇宙航空研究所西村研による。

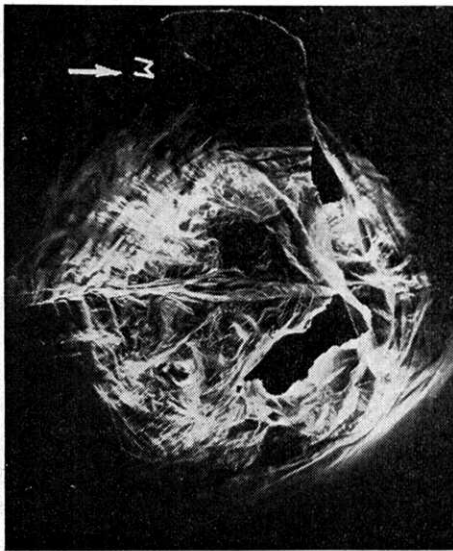


写真 8 S.F. 19 μ (S. 43)

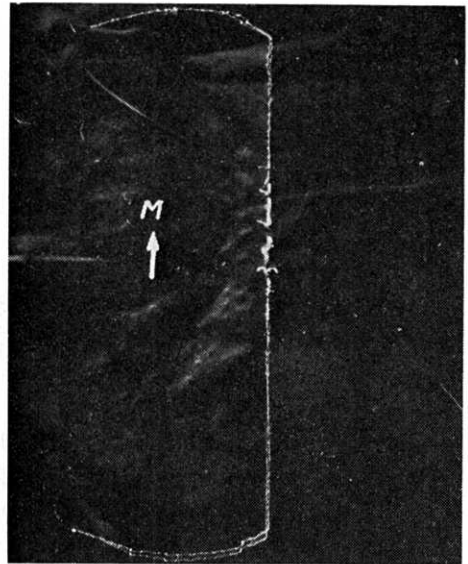


写真 9 S.F. 19 μ (S. 45)

同一仕様で輸入したストラト・フィルム 19 μ の S. 43 と S. 45 のものについて写真 6, 7 同様 100mm 直径のダイヤフラムを液化炭酸ガスを用いて -70°C で加圧破壊したもの。樹脂は多分同一であろうから、図 11 の曲線の相違からインフレーション加工に差があるように思われる。S. 45 年のものは -50°C 位で伸びなくなる。試験は宇宙航空研究所西村研究室によるものである。

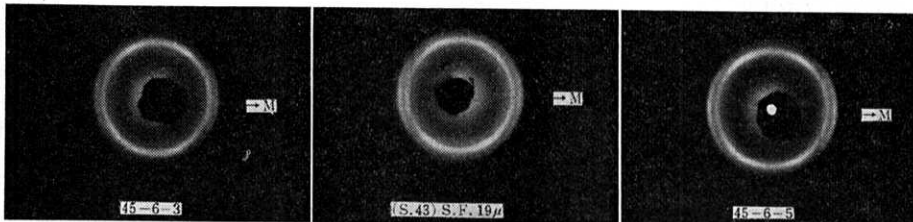


写真 10 -70°C でのダイヤフラム試験で二軸延伸を示した、45-6-3, S. 43 のストラト・フィルム 19 μ , と比較のため 45-6-5 について X 線回折により結晶配向を調べたもの。配向度は左から右に行く順に強まっていて、低温二軸延伸の大小と対応している。(宇宙航空研究所小原助教授による)

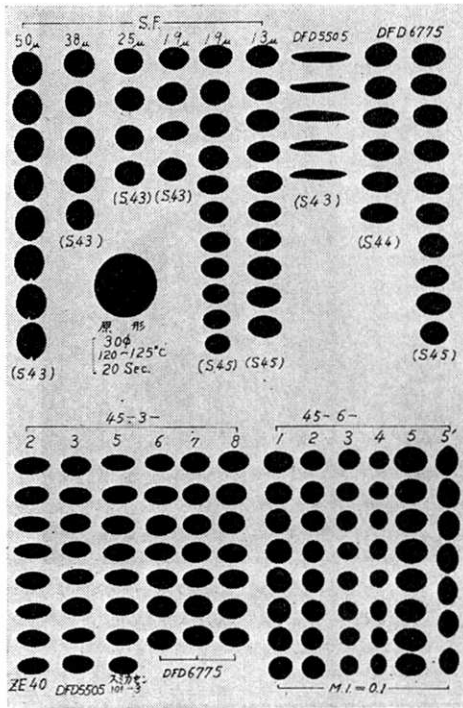


図 16 加熱収縮試験片。S. 45年までに扱った主なフィルムの円形試片を 120~125°C のグリセリン中に約 20 秒間浸して収縮させたもの。数年前のフィルムは(S.43)の DFD5505 より甚しい変形である。
主にフィルムの直交異方性と相関があるように思われるが、複雑な現象である。
下段は実験的な試作フィルムで 45-6-3 が最も低温二軸延伸性能がよい。5'は図9に細い鎖線で示したものである。

縦横加工比が有効な指標となること、また低温時に必要な二軸延伸性能は、出来る限り分子量の大きい樹脂に急変形急冷した Quenched Film に加工することによって達成出来ることを解説した。

今後の問題としては、未だ吟味不十分な Quenched Film の検討。気球皮膜材として他の必要な性質-衝撃強度、引裂強度、溶接強度、疲労強度、クリープ限度等についての試験を進めること。気球の性能向上のためにさらに薄いフィルムを作るとき異方性が強くなりやすいことの対策などがある。

これ等は今後の気球飛昇試験の結果を調べながら、最も適切な値に調和させる必要がある。

なおこのフィルムの開発に当たっては実に多方面の多

- DFD5505-25μ (M.I.=0.75)
- DFD6775-25μ (◇ 0.3)
- XE41 -21μ (◇ 0.5)
- ⊕ ZE40 (◇ 0.5)
- ▲ スミカセン 101-3 (◇ 0.29)
- DFD 6775 M (◇ 0.15)

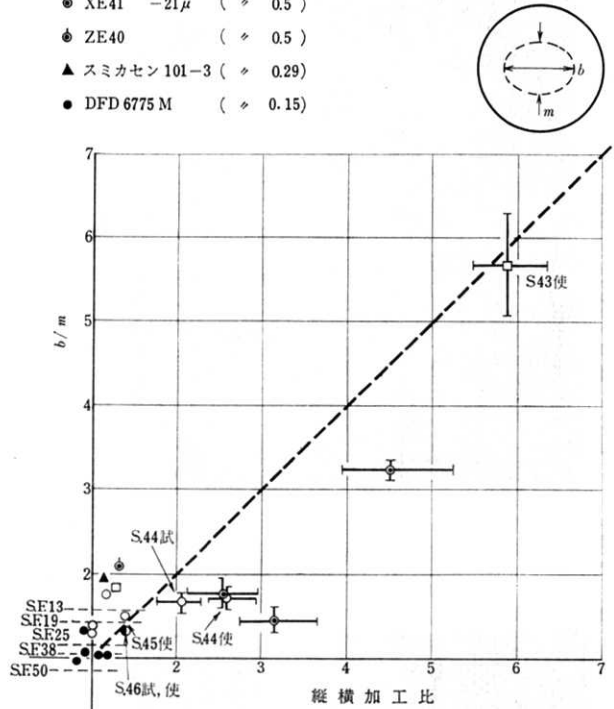


図 17 図 16 に示したものに若干付加して、フィルム製造時の縦横加工比と収縮片の縦横比の相関を示す。
S. F(ストラト・フィルム)は縦横加工比が不明なので点線で示す。最も低温二軸延伸の大きい 45-6-3 は S. F 38μ の点線上の左端にある黒丸である。

くの方々にご援助ご鞭達を戴いたことを記して厚く御礼申上げる次第である。

特に「フィルム用樹脂でないからフィルムにならないかも知れない」と申されながら、低 M.I. 樹脂を提供して下さい、面倒な筆者の注文に応じて加工まで引受けて下さった日本ユニカー加工技研の伊藤、近藤(治)両氏、低温試験をして下さった宇宙研の河田教授および研究室の方々にお礼申上げたい。(1971年8月25日受理)

参考文献

[1] 岡本智: 宇宙航空研究所報告 第3巻2号(B) 1967.6
 [2] 岡本智: 同上 第6巻1号(C) 1970.3
 [3] 岡本智: 同上 第7巻1号(C) 1971.3