

フジシール財団 研究助成事業
成果報告書

公益財団法人フジシール財団
理事長 岡 崎 裕 夫 殿

報告日 2026 年 5 月 27 日

研究課題	ラマン分光測定を用いた高分子フィルムの突き刺し変形メカニズムの解明	助成金額
		300 万円
助成名	研究助成	
ふりがな	きだ たくみつ	研究助成申請年度
研究者氏名	木田 拓充	2024 年度（追加募集）
所属機関	滋賀県立大学 工学部	研究期間
		2024 年 10 月-2026 年 3 月
役 職	講師	

下記の通り、研究成果を報告いたします。

記

1. 研究成果の概要

高分子フィルムの突き刺し変形挙動を評価するために、突き刺し変形過程におけるフィルム形状変化を観察可能な突き刺し試験機を作成して突き刺し変形挙動の基礎的な物性データの収集を行った。また、突き刺し変形過程の *in situ* ラマン分光測定を実施することで突き刺し変形メカニズムを分子論的に解明することを目的に研究を行った。

① 突き刺し試験機の作成・突き刺し挙動の評価

一般的な突き刺し試験はフィルムを円筒状の治具で固定し、フィルム上部から圧子を押し当てることで鉛直方向の荷重のみ測定する。本研究では突き刺し試験器を自作することにより、図 1 に示すように、荷重だけでなく突き刺し過程における試験片の形状変化をリアルタイムで観察できるシステムを構築した。

典型的な結晶性高分子である高密度ポリエチレン(HDPE)を用いて突き刺し試験を行った際の試験片形状の変化および荷重(P)-変位(δ)曲線を図 2 に示す。変形初期ではフィルム全体がほぼ均一にたわみ変形している。一方、荷重-変位曲線における降伏点($\delta = 5.0$ mm)を超えると、圧子近傍でフィルムが伸長しており、降伏後($\delta = 5.8$ mm)では局所的な塑性変形が急激に進行した。また、圧子から十分に離れた領域において、フィルムのたわみ形状はほとんど変化が生じておらず、局所的な変形挙動であることを明らかにした。

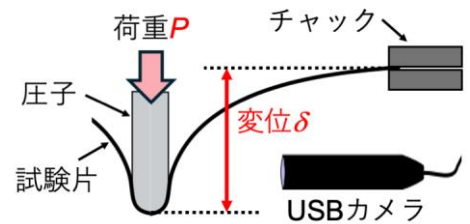


図 1. 自作した突き刺し試験機を用いた観察システムの概略図。

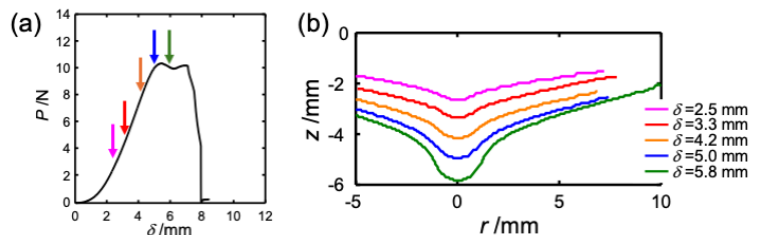


図 2. 高密度ポリエチレンの突き刺し試験過程における(a)荷重-変位曲線および(b)試験片形状の変化。

押し込み量が小さく、圧子半径が十分に小さいことを仮定したとき、弾性膜の変形形状は以下の Schwerin の解で表現できることが知られている。(Zeit. Tech. Physik, 12, 651 (1929))

$$z(r) = \delta \left[\left(\frac{r}{R} \right)^{2/3} - 1 \right] \quad (1)$$

ここで、 R がフィルム半径、 r が圧子半径である。変位 $\delta = 5.8$ mm におけるフィルム形状に対して Schwerin の解を用いてフィッティングした結果を図 3 に示す。このとき、フィッティングパラメーターとして $\tilde{\delta}$ を弾性変位と定義した。変位 δ と弾性変位 $\tilde{\delta}$ が一致した場合、塑性変形の寄与がないことを意味する。 $\delta = 5.8$ mm において、 $R = 2.6$ mm 以上の領域ではフィルム形状が Schwerin の解と一致しており弾性的であるが、 $R < 2.6$ mm ではフィルム形状がフィッティング結果から明らかに外れており、塑性変形が進行していることがわかった。これらの結果より、突き刺し変形挙動を理解するうえで、圧子近傍の局所的な変形挙動の観察が重要であると考えられる。

② 突き刺し変形後のフィルム内部における配向分布評価

突き刺し変形後のフィルム変形挙動を評価するために、顕微ラマンマッピング測定を用いて配向状態の空間分布を評価した。偏光ラマン分光測定を実施することで、平均の配向状態を表す配向関数 $\langle P_2 \rangle$ および二軸配向性の度合いを表す $\langle P_4 \rangle - \langle P_4 \rangle_{\text{mp}}$ を算出した。結果を図 4 に示す。偏光は図中左右方向(突き刺し方向)に印加しており、 $\langle P_2 \rangle$ が正の値に大きくなるほど偏光方向に配向、負の値の場合は垂直方向に配向していることを意味する。また、 $\langle P_4 \rangle - \langle P_4 \rangle_{\text{mp}}$ がゼロの場合は一軸配向、正の値に大きくなると二軸配向性であることを意味する。ここで、図中左の領域は弾性変形に留まっているフィルム領域、右に長く伸びている部分が突き刺し変形で塑性変形が進行した領域である。

弾性変形の領域ではほぼ無配向 ($\langle P_2 \rangle \cong 0$, $\langle P_4 \rangle - \langle P_4 \rangle_{\text{mp}} \cong 0$) もしくは弱い垂直配向 ($\langle P_2 \rangle < 0$) を示す。これらの結果は、Schwerin 式でフィッティングできたこととよく合致している。一方、塑性変形領域では $\langle P_4 \rangle - \langle P_4 \rangle_{\text{mp}}$ が非常に高い値を示しており、全体的に二軸配向性を示していることがわかった。また、塑性変形域では配向状態が不均一に分布しており、配向が非常に弱い(変形があまり進行していない)領域と、強いに軸は移行を示す領域が混在していた。

これらの結果より、突き刺し耐性に優れたフィルムを開発するためには、①二軸変形に対して高い強度・延性を示すこと、②できるだけ均一な変形挙動が進行する、すなわち、ひずみ硬化性が高いこと、が条件であると考えられる。PE やポリプロピレン(PP)など、フィルムとして用いられる材料は二軸変形に対して強度・延性が低い場合が多いため、二軸配向性に優れることが既知の材料を用いることで、突き刺し変形のメカニズム評価がより進み、耐突き刺し性に優れたフィルムの材料設計指針を確立することが期待できる。今後は、 β 結晶 PP など二軸延伸性に優れたフィルムを用いて突き刺し変形挙動の評価を進める予定である。

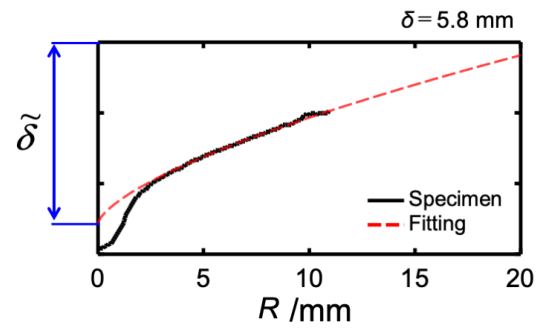


図 3. 降伏後のフィルム形状に対する Schwerin 型を用いたフィッティング結果.

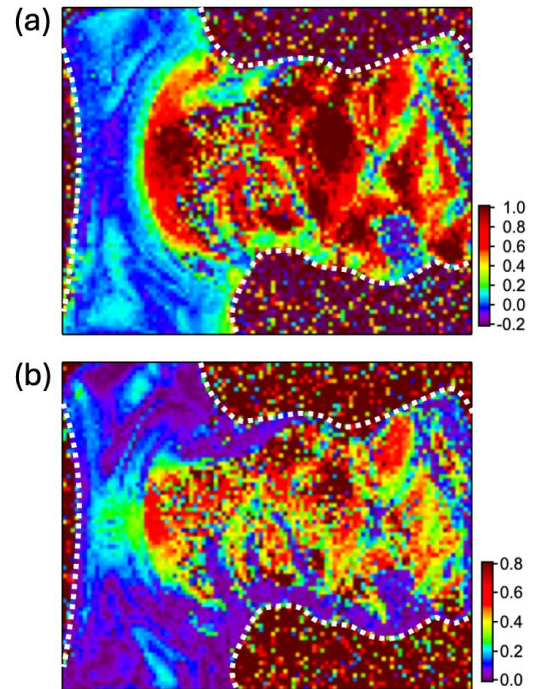


図 4. 突き刺し試験後のフィルム内における配向分布. (a)配向関数 $\langle P_2 \rangle$ および (b) 二軸配向係数 $\langle P_4 \rangle - \langle P_4 \rangle_{\text{mp}}$.

2. 研究成果のパッケージ産業への貢献の可能性

本研究により、突き刺し変形は弾性変形のみが進行する領域と、圧子近傍で塑性変形が局所的に進行する領域の二つに分かれることを明らかにした。弾性領域、すなわちフィルムに対してそれほど大きな変形が印加しない用途においては、フィルムとしての弾性率を上げることが重要であり、結晶度やタイ分子の増大、もしくは配向制御が変形抑制に効果的であると考えられる。一方、塑性変形が開始した領域では、塑性変形部において二軸変形が進行するため、二軸変形下で強度・延性に優れた材料が適する。二軸変形については結晶性高分子の分野で以前から研究が行われており、結晶核剤の添加や急冷結晶化による球晶サイズの微細化、タイ分子の増加による応力伝達性の向上、エラストマーなどの柔軟性成分ブレンドによる変形の均一化などが挙げられる。これらの材料設計手法をパッケージに用いられるフィルムへ適用することにより、破損・破壊に強いフィルム設計が期待できる。さらには、モノマテリアル化への貢献も期待でき、パッケージフィルム由来の廃棄物減少やリサイクル効率の改善まで発展できる。さらに、本評価手法を促進耐候性試験と組み合わせることで、紫外線照射や温湿度サイクルによる局所的な構造変化（結晶化度の変化や分子鎖の切断など）が弾性・塑性変形挙動にどう影響するかを追跡できる。これにより、長期保管時にも突き刺し耐性が低下しにくい、信頼性の高いパッケージング材料の開発への貢献も期待される。

3. 学会発表、学会誌等への論文掲載、産業財産権出願などの実績（現時点で未発表・未掲載・未出願のため、上記「1. 研究成果の概要」、「2. 研究成果のパッケージ産業への貢献の可能性」の当財団ホームページ上の公開の延期を希望される場合、その旨 記載してください。）

1. Takumitsu Kida, Hiroki Takeshita, Katsuhisa Tokumitsu, “Localized Crystallization as a Universal Mechanism for the Deterioration of Semi-Crystalline Polymers”, *Nature Communications*, under Review.
2. Takumitsu Kida, Ryo Tanaka, Yusuke Hiejima, Hiroki Takeshita, Katsuhisa Tokumitsu, Takeshi Shiono, Koh-hei Nitta “Molecular-Weight Dependence of Tensile Properties of Nearly Monodisperse Linear Polyethylene Solids Synthesized Using Phenoxyimine Catalyst”, *ACS Applied Polymer Materials*, under Review.
3. 木田拓充, 「高分子の結晶構造と力学物性」, 顕微鏡学会ソフトマテリアル分科会 2025 年度第 2 回講演会, 招待講演
4. 木田拓充, 「ラマン分光法を用いた高分子材料の高次構造評価」, 滋賀材料技術フォーラム第 105 回例会, 招待講演