技術資料

ビーズ法ポリスチレンフォームにおける圧縮弾性率の評価

足立 廣正*, 長谷川照夫*

(2001年1月26日受付)

Evaluation of Compression Moduli of Expanded Polystyrene Foams

Hiromasa ADACHI* and Teruo HASEGAWA*

(Received January 26, 2001)

1. 緒 言

一般には発泡スチロールと呼ばれ、衝撃に強い、水を通さない、保温・保冷性が良い、成型しやすい、軽いといった特性があるポリスチレンフォームには、主として緩衝包装材、農水産容器、断熱用建材に使われるビーズ法ポリスチレンフォーム、主として断熱用建材に使われる押出し法ポリスチレンフォームがある^{1,2)}。狭義にはポリスチレンフォームとはビーズ法ポリスチレンフォーム (EPS, expanded polystyrene foam) を指す。ビーズ法ポリスチレンフォームのようなプラスチックフォームを構造部材として使用する上で力学特性を明らかにすることは重要であるが、十分検討されていないのが現状である。

著者ら³⁾は軟質ポリウレタンフォームのセル径の二次元分布、三次元分布を導き出し、平均セル径と力学特性との関係について検討して、変形25%の圧縮応力である硬さと平均セル径とは直線関係にあることを明らかにした。また、軟質ポリウレタンフォームの動的粘弾性測定によって求められた動的圧縮弾性率が硬さと正相関の関係に、反発弾性と逆相関の関係に、硬質ポリウレタンフォームの動的粘弾性測定によって求められた動的圧縮弾性率がかさ密度、圧縮強度と正の相関関係にあることが明らかになった^{4,5)}。さらに、独立気泡、連続気泡ポリエチレンフォームの動的圧縮弾性率において、独立気

泡ポリエチレンフォームの動的圧縮弾性率は連続気泡ポリエチレンフォームに比べて大きく、初期ひずみに対する動的圧縮弾性率の変化が大きい連続気泡ポリエチレンフォームと違い、動的圧縮弾性率が大きく変化しないことがわかった^{6,7)}。

独立気泡発泡体の動的粘弾性測定に関する研究として、三平ら^{8,9)}は、弾力性を有するポリ塩化ビニルフォームやポリエチレンフォームの圧縮変形における動的粘弾性について実験的研究を行い、圧縮弾性率を空隙率、平均セル径の含んだ予測式で表した。Matonis¹⁰⁾、Chanら¹¹⁾は独立気泡フォームをそれぞれ正六面体、正十二面体の集合と考え、理論的に弾性率と圧縮時降伏点応力を求め、押出し法ポリスチレンフォームの実験値と比較した。飯塚ら¹²⁾は、加硫ゴム粒子がポリプロピレン中に分散したプラスチックゴム複合材料の引張り変形挙動について検討し、ゴム相が複合材料のヤング率への影響が小さいことを有限要素法解析により確認して、プラスチックフォームと同様なモデルから材料力学によりヤング率の評価式を導き出した。最近では自動車の補強材^{13,14)}や内装衝撃吸収材¹⁵⁾、宇宙構造物の構造部材¹⁶⁾への発泡プラスチックの適用に関する研究がみられ、今後弾性率に関する研究は重要になると考えられる。

本研究においては、ビーズ法ポリスチレンフォームの動的弾性率、損失正接の周波数、振動振幅、温度特性を明らかにして、動的弾性率と静的力学特性値との比較、弾性率の推定方法に関する検討を行った。

2. 実 験

ビーズ法ポリスチレンフォームは、ボタンなどの炭化水素系の発泡剤を混入した直径1 mm程度のビーズと呼

* 名古屋市工業研究所 (456-0058 名古屋市熱田区六番3-4-41)

Nagoya Municipal Industrial Research Institute,
3-4-41, Rokuban, Atsuta-ku, Nagoya 456-0058,
Japan

Fig. 1 Dependence of the dynamic moduli or the loss tangents on frequency.

ばれるポリスチレンの粒を蒸気で加熱し30～90倍程度に膨らませた後、その予備発泡粒子を金型に入れて蒸気で加熱し成型したものである。使用したポリスチレンフォーム試料はキッコーナ（株）製の“キッコーフォーム”で、発泡倍率はSample 1が30倍、Sample 2が40倍、Sample 3が50倍、Sample 4が60倍、Sample 5が90倍である。ビーズは三菱化学BASF（株）製の“スチロボール”である。試料の空孔率は次式より求めた。

$$V_f = 1 - 1/\nu$$

ここで V_f は空孔率、 ν は発泡倍率を表す。

動的弾性率は、縦13 mm、横13 mm、厚さ10 mmの四角柱のフォーム試料に対して圧縮用の治具を使用し、下の円盤状の治具上にフォーム試料を置いてから上の円盤状の治具を下げ、フォーム試料に初期ひずみを与えて求めた。以後圧縮モードと表現する。使用した粘弾性測定器は（株）レオロジ製DVE-V4で、測定条件は温度26°C、周波数1 Hzあるいは10 Hz、振動振幅50 μm 、

初期ひずみ3%以内である。静的弾性率、圧縮比例限、変形10%の圧縮応力は（株）島津製作所製小型卓上試験機EZ Testを使用して、試験速度1 mm/minで試験片を圧縮し、応力-ひずみ線図より求めた。ここで圧縮比例限とは荷重と変形の関係が直線関係から離れ始めるときの圧縮応力である。フォーム試料のサイズは動的粘弾性測定に用いたフォーム試料と同じである。

3. 結果と考察

3.1 動的粘弾性測定

Fig. 1はフォーム試料の圧縮モードにおける動的弾性率、損失正接の周波数特性である。温度は26°C、振動振幅は10 μm であり、初期ひずみは3%以内である。1～100 Hzの周波数によって動的弾性率、損失正接はほとんど変化しない。Sample 1のフォーム試料の動的弾性率が他のフォーム試料より特に大きく、Sample 2からSample 5までのフォーム試料における動的弾性率の差は小さい。損失正接のフォーム試料間による差はほと

Fig. 2 Dependence of the dynamic moduli or the loss tangents on vibration amplitude.

んどない。

Fig. 2 はフォーム試料の圧縮モードにおける動的弾性率，損失正接の振動振幅特性である。温度は 26°C，周波数は 1 Hz であり，初期ひずみは 3% 以内である。すべてのフォーム試料において振動振幅が大きくなるほど動的弾性率がわずかながら小さくなる傾向がみられる。Sample 2 から Sample 5 までのフォーム試料において振動振幅が大きくなるほど損失正接が大きくなる傾向がみられる。

Fig. 3 はフォーム試料の圧縮モードにおける動的弾性率，損失正接の温度特性である。周波数は 10 Hz，振動振幅は 10 μm ，サンプリング温度間隔は 2°C である。Sample 1 のフォーム試料はガラス転移温度前の 116°C までしか測定できないのに比べ，Sample 2 から Sample 5 までのフォーム試料はガラス転移温度後の 130°C 以上まで測定できる。温度がガラス転移温度近くに上昇するとフォーム試料が収縮するが，空孔率の小さい Sample 1 のフォーム試料は他のフォーム試料に比べ収

縮度が大きいので，低い温度で動的粘弾性パラメータが測定不能となると考えられる。

3.2 動的圧縮弾性率と静的力学特性値との関係

Fig. 4 はフォーム試料におけるひずみ速度 1 mm/min での静的な圧縮試験による応力とひずみとの関係である。図において応力とひずみとが直線関係にあるひずみ 0.04 までの領域の傾きから静的弾性率を求めた。この図からひずみの大きい領域においてフォーム試料間の圧縮応力の差がはっきりとしている。飯塚ら¹²⁾は引張り変形挙動においてセル構造体の斜めセルの曲げ変形がヤング率を支配していると述べている。圧縮変形挙動においてはひずみが 0.04 近傍までにおいて斜めセルの曲げ変形がヤング率を支配しているがひずみが 0.04 以上において縦セルの曲げ変形が斜めセルの曲げ変形に加わると考えられる。ここでフォーム試料の表面をオリンパス光学工業（株）製実体顕微鏡 SZH10 で写真撮影したものを Fig. 5 に示すが，フォーム試料の固体部であるスケルトンが圧縮荷重方向に向いているものを縦セル，向

Fig. 3 Dependence of the dynamic moduli or the loss tangents on temperature.

Fig. 4 Dependence of the stress on strain.

いていないものを斜めセルと称している。

Fig. 6 はフォーム試料における動的弾性率と静的弾性率との関係である。動的弾性率と静的弾性率とは正の相関関係にあり、Sample 1 を除くと直線関係にあるが、動的弾性率は静的弾性率より大きい。静的な圧縮の場合

Fig. 5 A surface of the expanded polystyrene foam made by Kikkona Corporation.

Fig. 6 Dependence of the dynamic modulus on static modulus.

Fig. 8 Dependence of the dynamic modulus on compression stress at 10% relative deformation.

Fig. 7 Dependence of the dynamic modulus on compression proportional limit.

にはスケルトンが大きく曲がるが、動的な圧縮の場合には振動振幅が $10\ \mu\text{m}$ と極めて小さくスケルトンの曲げが小さいため動的弾性率と静的弾性率との差が大きいと考えられる。

Fig. 7 はフォーム試料における動的弾性率と圧縮比例限との関係である。両者は直線関係にあるが、Sample 2 の圧縮比例限におけるひずみが他より大きい、Fig. 8 はフォーム試料における動的弾性率と変形 10% の圧縮

応力との関係である。両者は動的弾性率と圧縮比例限との関係と同様に直線関係にある。JIS K7220-1999 には圧縮強さにおいて最大荷重の代わりに降伏変形、規定変形における荷重を用いてもよいと規定されている。Fig. 4 より当フォーム試料においては最大荷重、降伏荷重がみあたらないので、変形 10% の圧縮応力が圧縮強さに相当する物性値である。弾力性の大きいポリエチレンフォームにおいては圧縮強さという物性値はなく、変形 50% の圧縮応力である圧縮かたさという物性値を用い、独立気泡ポリエチレンフォームにおいて動的圧縮弾性率と圧縮かたさとは正の相関関係にある⁶⁾。したがって、圧縮強さ、圧縮かたさといった物性値より動的圧縮弾性率の方が他のプラスチックフォームと比較するのに適していると予測される。

3.3 弾性率の推定式

三平ら⁸⁾ は独立気泡フォームが圧縮荷重を受けるときの抵抗を、固体部が受ける座屈および曲げによる変形抵抗とセル部の圧縮に対する抵抗に分け、前者を固体部の割合の自乗に比例する項と、後者を断面におけるセル部の割合とセルを取り囲む固体部厚さの割合との相乗積に比例する項とした次式を導いた。ここで、 β は変形抵抗に対するセル寄与の程度を示す定数である。

$$E = E_0 \{ V_m^2 + \beta (V_m - V_m^2) \} \quad (1)$$

E : フォーム試料の圧縮弾性率

E_0 : プラスチックの圧縮弾性率

Fig. 9 Dependence of the E/E_0 on porosity.

V_m : プラスチックの体積分率 (=1-空孔率)

三平ら⁸⁾はラバーフォーム、ポリ塩化ビニルフォームの動的粘弾性測定による動的圧縮弾性率が(1)式において $\beta=0.29$ なる式と $V_m=0.5$ 以上においてよく一致することを示し、 β は材質に依存しなくセルの大きさや形状などのフォーム試料の構造因子によって変化する値であると考えた。また、三平ら⁸⁾は(1)式において $\beta=0.0056$ とするとTalalayの式¹⁷⁾に一致し、 $V_m=0.2$ 以下のTalalayによるラバーフォームの実験値ともよく適合し、(1)式において $\beta=0.017$ とすると $V_m=0.25$ 以下のFerrigno¹⁸⁾による硬質ポリウレタンフォームの実験式とほぼ完全に一致することを示した。ここで、Talalay, Ferrignoの実験値は静的試験による値である。さらに、三平ら⁹⁾はポリエチレンおよびラバーの市販フォームの等球、一様、増加型、減少型および三角型の5種類のセルサイズ分布型についてそれぞれ異なっ

た β の値を得て、構造定数 β の値がセルの平均半径に比例するという関係を見つけた。

$$\beta = k \cdot r \quad (2)$$

k : プラスチックの種類や気泡の大きさ、分布形に依存しない定数=0.0561 (1/mm)

r : セルの平均半径 (mm)

Fig. 9にフォーム試料における E/E_0 と空孔率 V_f との関係を示す。ここで、 E/E_0 はFig. 6における動的圧縮弾性率、静的圧縮弾性率を、ポリスチレンの弾性率で割ったものである。ここでポリスチレンの弾性率は文献19)より2.75~4.12 GPaを用いた。この図において動的圧縮弾性率、静的圧縮弾性率の実験値と β の値の異なる(1)式による予測値とを比較した。 $\beta=0.0056$ の場合における予測値は静的弾性率の実験値に近いが、動的弾性率の実験値より小さい。また、 $\beta=0.017$ の場合における予測値は動的弾性率の実験値より小さく、 $\beta=0.29$ の場合における予測値は動的弾性率の実験値より大きい。(1)式において、 β の値が小さいほどすなわち気泡径の平均半径が小さいほどセル部の圧縮に対する抵抗が小さいことを示す。しかしながら、ビーズ法ポリスチレンフォームの静的弾性率においてはセル径の平均半径の大小に関わらずセル部の圧縮に対する抵抗の影響が非常に小さいと判断した方が妥当であると考える。 $\beta=0.29$ の場合における予測値は、六角空孔モデルで平面応力要素を使い有限要素解析した値にほぼ一致し、独立気泡ポリエチレンフォーム、硬質ポリウレタンフォームの動的引張弾性率の実験値に近い^{6,7)}。

著者ら³⁾はエーテル系軟質ポリウレタンフォームにおいて平均セル径とフォーム試料の固体部分の体積分率は次式の関係にあることを確認している。

$$r = 0.826 - 8.68 \cdot V_m \quad (3)$$

この関係がビーズ法ポリスチレンフォームにおいても成り立つと仮定し、(3)式を(2)式へ代入後、(1)式へ代入する。

$$E/E_0 = 0.046 V_m + 0.467 V_m^2 + 0.487 V_m^3 \quad (4)$$

したがって、測定が困難であるセルの平均半径を求めることなく、(4)式からプラスチックの体積分率のみで圧縮弾性率が把握できる。

また、(1)式においてセル部の圧縮に対する抵抗がないとした関係式はつぎのようである。

$$E/E_0 = V_m^2 \quad (5)$$

(4)、(5)式を圧縮弾性率比と空孔率 V_f との関係式に直すと次のようになる。

$$E/E_0 = 1 - 2.441 V_f + 1.928 V_f^2 - 0.487 V_f^3 \quad (6)$$

Fig. 10 Dependence of the E/E_0 on porosity.

$$E/E_0 = (1 - V_f)^2 \quad (7)$$

Fig. 10 にビーズ法ポリスチレンフォームにおける E/E_0 と空孔率 V_f との関係を示す。動的弾性率の実験値は (6) 式の予測値に近い値であり、静的弾性率の実験値は (7) 式の予測値に近い値である。したがって、静的弾性率はセル部の圧縮に対する抵抗の影響はほとんどないと判断できる。発泡体の固体部の曲げのみが影響する静的圧縮の場合と異なり、動的圧縮の場合はひずみ速度が大きく変化し最大ひずみ速度も大きいので、セル部の抵抗の影響が大きくなると考えられる。

4. 結 論

ビーズ法ポリスチレンフォームについて、粘弾性測定器により圧縮モードで測定した動的弾性率、損失正接の周波数、振動振幅、温度特性について検討したところ、周波数、振動振幅に対する動的弾性率、損失正接の変化は小さく、動的弾性率、損失正接の温度特性はガラス転移温度近傍までしか測定できなかった。また、動的弾性率と静的圧縮試験から求める静的力学特性値との関係について検討したところ、正の相関関係がみられ、特に動的弾性率と変形 10% の圧縮応力とは直線関係にあった。ポリエチレンフォームとの比較から動的圧縮弾性率がプラスチックフォームの共通の力学特性指標として適していると予測される。さらに、三平らの独立気泡フォーム

の圧縮弾性率について導いた実験式と著者らが明らかにした平均セル径とフォーム試料の固体部分の体積分率との関係より求められた関係式 $E/E_0 = 1 - 2.441 V_f + 1.928 V_f^2 - 0.487 V_f^3$ の予測値は、動的弾性率の実験値に近い値であった。一方、三平らの式においてセル部の抵抗がないとして求められた関係式 $E/E_0 = (1 - V_f)^2$ の予測値は静的弾性率に近い値であった。

本研究を進めるに当たり、測定に関する助力をいただいた名古屋市工業研究所、川尻鉦二氏、農林水産省名古屋農林水産消費技術センター、村田和宏氏およびフォーム試料の提供をしていただいたキッコーナ株式会社に謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) 近藤連一：多孔材料，技報社，東京（1963）.
- 2) 牧 廣，小坂田篤：プラスチックフォームハンドブック，日刊工業新聞社，東京（1973）.
- 3) 足立廣正，長谷川照夫：高分子論文集，**53**（1996），548-554.
- 4) 足立廣正，長谷川照夫：日本レオロジー学会誌，**26**（1998），175-179.
- 5) 足立廣正，長谷川照夫，小谷暢慶：高分子論文集，**55**（1998），74-82.
- 6) 足立廣正，長谷川照夫，小谷暢慶：日本レオロジー学会誌，**28**（2000），13-19.
- 7) 足立廣正，長谷川照夫，榎本晃司：高分子論文集，**57**（2000），552-560.
- 8) 三平和雄，大沢直志，中山 晃：高分子化学，**25**（1968），80-86.
- 9) 三平和雄，中山 晃，大沢直志：高分子化学，**26**（1969），443-450.
- 10) V. A. Matonis：SPE J., [Sept.]（1964），1024-1030.
- 11) R. Chan & M. Nakamura：J. Cellular Plastics, [Mar./Apr.]（1969），112-118.
- 12) 飯塚 博，国井 剛，林 彰紀，加部和幸：日本ゴム協会誌，**73**（2000），152-158.
- 13) 中里和幸，福留秀汽，岩男明信：自動車技術，**49**（1995），39-44.
- 14) 河西純一，高橋哲也：自動車技術，**51**（1997），12-16.
- 15) 宮本睦久：日本接着学会誌，**35**（1999），280-285.
- 16) 八田博志，宇田川敦，樋口 建，横田力男，杉林俊雄：材料，**48**（1999），49-55.
- 17) J.A. Talalay：Ind. Eng. Chem., **46**（1954），1530-1535.
- 18) T.H. Ferrigno：Rigid Plastic Foams, Reinhold Publishing Co., New York（1963）.
- 19) 白松豊太郎：高分子工業の基礎と応用，丸善，東京（1968）.