

粒子法による FRP ミクロ構造の 3 次元樹脂流動評価

大阪大学大学院工学研究科
ビジネスエンジニアリング専攻
倉敷研究室

納 富 翔 太

1 緒言

近年、繊維強化複合材料（Fiber Reinforced Plastic, FRP）は航空機や車体の厚板・大型構造材料としての需要が増加しており、高効率な生産方式が求められている。RTM（Resin Transfer Molding）成形は、プリプレグ積層後に加熱する成形法に比べて、工程が簡便で自動化に適している点から注目されている。しかし、適切な樹脂の注入・含浸時間を選定しなければ、局所的な強度低下を招く未含浸部を発生するなどの課題が報告されている¹⁾。その課題に対して、含浸前に事前に成形時間等を評価し得る樹脂流動解析は重要であり、精度の向上を目指す研究が数多く行われている。

樹脂流動解析に関する既往の研究としては、対象とするスケールから 2 種類に分類できる。1 つは、数十 mm ～数十 m の構造体を対象としたマクロ流動解析である。Darcy 則中の一様な透水係数を基に、多孔質媒体と仮定した繊維基材内の樹脂流速を評価する。この解析では計算時間面では効率的だが、各部における繊維基材の不均一性や樹脂粘度や温度のばらつきを考慮できないという精度面の課題がある。

これらの課題に対して行われているのが 2 つ目に挙げるミクロ流動解析である^{2)～6)}。数 μm ～数 mm の範囲の流動状況を捉えることにより、マクロスケールでは解明できない局所的な未含浸部の生成状況や含浸速度を明らかにすることを目的にしている。Lee らは数百 μm の範囲で複数の繊維束に対する樹脂流動メカニズムを調査し、繊維束周辺と内部の樹脂含浸速度の差が未含浸部の生成箇所に影響を及ぼすと報告している³⁾。石田らは繊維束内部のみでの樹脂流動評価を行い、単一繊維周辺での未含浸部の生成状況を明らかにしている⁴⁾。岡部らは粒子法を用いて繊維束内部の樹脂流動状況の評価している⁵⁾。また、ミクロスケールでは流体の分子間引力に伴う表面張力と固体との濡れ性の影響についての研究も多くなされている^{4)～6)}。

マクロスケールでは影響の出にくい分子間引力の影響がミクロスケールでは支配的になるからであるが、各樹脂や繊維の種類に応じた分子間引力を決定する手法を報告された事例はない。

本研究では、数値解析手法である粒子法を基にミクロスケールの繊維間樹脂流動を明らかにすることを目的とし、2 点の解決を目的とし研究を行った。1 つ目は、繊維と樹脂の種類に応じた粒子間引力を考慮し、さらに、濡れ性に関するパラメータの決定手法を提案する。この手法によって繊維、樹脂種類に応じた関係性を実験と数値解析によって定量化することを図った。さらに、2 点目としてその提案手法に基づき、FRP 一方向性材（UD 材）のミクロスケールでの 3 次元繊維束内部流動を対象とし、繊維配置が樹脂流動に及ぼす影響を評価したので、その結果について記載する。

2 粒子法

まず提案手法の元となった粒子法の 1 つである MPS（Moving Particle Semi-implicit）法について説明する。MPS 法とは、流体を粒子の群れとして表現することによって流体の動きを表現する手法である。利点としては、流体などの大変形を伴う対象物に対して、格子の代わりに空間に配置した粒子をラグランジュ的に移動するため、格子を作り直す必要もなく、数値拡散の影響を心配する必要がないことがあげられる。

非圧縮性流体の支配方程式は以下に示すナビエ・ストークスと質量保存則で表される。

$$\frac{D\mathbf{u}}{Dt} = -\frac{\nabla P}{\rho} + \nu \nabla^2 \mathbf{u} + \mathbf{g} - \frac{1}{\rho V} \mathbf{F} \quad (1)$$

$$D\rho / Dt = 0 \quad (2)$$

ここで、 ρ は密度、 u は速度、 P は圧力、 t は時間、 ν は動粘度、 g は重力加速度、第 4 項が提案手法により追加した表面張力と濡れ性に起因する分子間引力項であり、外力 F が濡れ性の影響を考慮する上で高度化している。

MPS (Moving Particle Semi-implicit) 法では、重み関数モデルを用いて支配方程式を離散化する⁷⁾。

重み関数は以下の式で表される。

$$w(r) = \begin{cases} \frac{r_e}{r} - 1 & (0 < r < r_e) \\ 0 & (r \leq r_e) \end{cases} \quad (3)$$

$w(r)$ は重み関数、 r はある粒子に対する近傍粒子の相互間距離を示す。また、近傍粒子とは初期粒子配置間隔 r_0 から算出した影響半径内 r_e ($2.2 r_0 \sim 4.0 r_0$) に存在する粒子である (Fig. 1)。粒子 i の密度は粒子数密度 n_i であり、式 (3) で表される近傍粒子 j に対する重み関数の総和で与えられる。

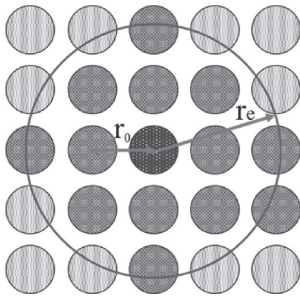


Fig. 1 Effective distance

非圧縮性流体の場合は粒子数密度 n_i が一定値となる。式 (1)、(2) に示した支配方程式について、粒子数密度を用いて離散化を行う必要がある。支配方程式の各項の離散化に用いる勾配モデル、発散モデル、ラプラシアンモデルが存在する。これらのモデルによって毎ステップ離散化することで流体の流れを表現する。なお、詳細な離散化の手順は越塚らによる手法⁷⁾を適用する。

3. 粒子間引力のポテンシャル係数の提案

3.1 目的

流体と固体間では濡れ性による分子間引力が作用する。さらに、繊維束内部などのミクロ空間ではその影響が大きく、流体、固体種類に応じて分子間引力が変化することが報告されている。流体、固体種類による

分子間引力の変更手法は既に多くなされているが、繊維強化複合材の成形に寄与する手法は未だない。既存手法が繊維強化材の樹脂流動評価に適用できない理由は 2 つある。

1 つ目は、固体モデルが板状の物体でしか評価できないことである。濡れ性の検証手法は板状の固体に液体を落滴することで、その接触角を評価していた。しかし、線状の直径数マイクロメートル程度の繊維では、落滴することは不可能である。このことから、固体が繊維の場合、評価手法ならびに接触角の評価手法以外の適切な評価手法を構築することが求められる。

2 つ目は、樹脂種類に応じた濡れ性を定量的に評価し、適切な数式で表現できる手法はない点である。既存手法では、多種多様な樹脂種類に対応できる評価式は確立されていない。本手法では数値解析に合わせた当該樹脂、繊維での実験を行うことで、樹脂と繊維間での濡れ性を定量化することを可能とし、利用範囲の拡大を図る。

本章では 2 つの問題を解決する濡れ性の計算手法とその評価手法の提案を行う。濡れ性の計算手法では、ポテンシャルエネルギーの計算式を応用することで計算可能とする。評価対象は、成形現場で利用されるエポキシ樹脂を対象として、三次元解析モデルでの提案手法による数値解析を行う。数値解析結果を液位滴輪郭線図に集約することで、線状の固体に対応した新たな濡れ性の評価手法を構築する。さらに、エポキシ樹脂に対する 2 種類の繊維束に対する実験を行うことで、本手法の有用性を示す。

3.2 提案手法

ある粒子 i の位置における表面張力と濡れ性による外力 F を F_i とすると、 F_i は次のように表される。

$$\mathbf{F}_i = \sum_j^N C_1 \frac{\partial p_1}{\partial r_{ij}} + \sum_j^N C_2 \frac{\partial p_2}{\partial r_{ij}}$$

$$p(r_{ij}) = \begin{cases} -\frac{1}{3} \left(r_{ij} - \frac{3}{2} r_0 + \frac{1}{2} r_1 \right) (r_{ij} - r_1)^2 & (r_{ij} < r_1) \\ 0 & (r_{ij} \geq r_1) \end{cases}$$

ここで、 F_i はポテンシャルエネルギー、式 (4.2) 内第 1 項は流体粒子間の分子間引力による表面張力を模擬したポテンシャルエネルギー、 C_i は流体粒子間ポテンシャル係数、 $p_i(r)$ は単一粒子の影響半径 r_i 内に存在する粒子との流体粒子間ポテンシャル関数であ

る。また、式 (4.2) 内第2項は濡れ性を模擬したポテンシャルエネルギー、 C_2 は流体と固体それぞれの種類による濡れ性の違いを適切に表現することを目的とした流体-固体粒子間ポテンシャル、 $p_2(r)$ は単一粒子の影響半径 r_l 内に存在する粒子との流体-固体粒子間ポテンシャル関数である。なお、 N は総粒子数、 $p_l(r)$ はある粒子 i の影響半径内に存在する流体粒子との流体粒子間ポテンシャル関数である。なお、 r_0 は初期粒子配置距離、 r_l は粒子間相互作用の影響半径である。 r_{ij} はある粒子 i の影響半径内流体粒子 j との粒子間距離である。

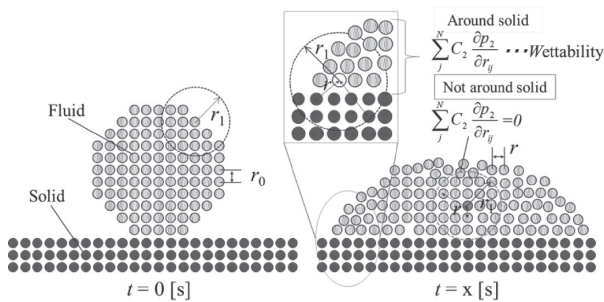


Fig. 2 Scheme of wettability

濡れ性の評価指標として本解析では、繊維に対する樹脂の付着挙動を数値解析上で調査するために三次元評価手法を構築した。濡れ性を明らかにしたい特定の樹脂と同じポテンシャル係数 C_1 を用い、繊維の種類により異なる濡れ性ポテンシャル係数 C_2 のみを変数として付着形状を調査する。また、解析モデルの樹脂滴径、繊維径は実験での表現可能な最少量 $1.0\mu\text{m}$ 、 $60\mu\text{m}$ とした。

検証モデルを Fig. 3 に示す。図中 Resin は流体（樹脂）、図中 Fiber は繊維形状を模擬しており、Fiber 中心粒子は繊維内部の圧力計算を行わない粒子を示す。各粒子間隔 Δx 、 Δy 、 Δz は 0.02mm 、液滴半径 R は 0.61mm ($1.0\mu\text{l}$)、繊維束径 D は 0.06mm 、速度は重力加速度 $9.8 \text{ (m/s}^2\text{)}$ による影響のみを与える。

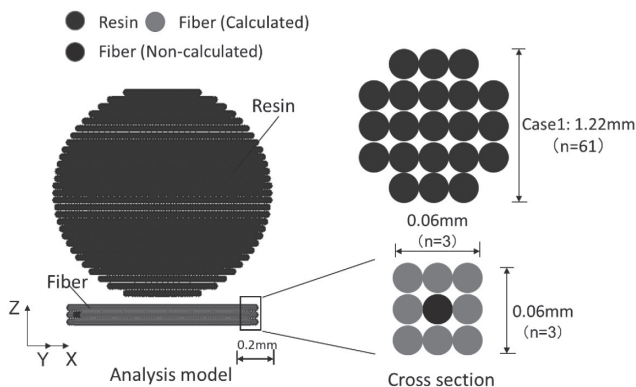


Fig. 3 Fiber and resin model based on MPS

本検証では濡れ性を明らかにする特定の流体を樹脂をエポキシ樹脂（三菱化学(株)製、エピコート 802 ®）としている。

3.3 検証結果

3次元モデルによる単繊維と液滴の挙動の検証として、繊維との濡れ性 C_2 を変化させて樹脂流動解析を行った。 C_2 の大きさにより樹脂滴形状の変化の傾向を明らかにすることで、実現象との適合時の C_2 の設定手法を明確にする。各流体の検証結果の樹脂滴形状の輪郭線をまとめた結果を Fig. 4 に示す。液滴形状の輪郭線から、濡れ性を調整する流体固体間ポテンシャル係数 C_2 の違いに応じて、繊維下部の樹脂の残留状況に違いがあることが両図から確認できる。特に、濡れ性の低い繊維 ($C_2=1C_1, 2C_1$) では樹脂滴が繊維下部に流れていく傾向が見られた。これは繊維方向に対して樹脂が含浸することなく、重力加速度の影響によって樹脂が流れ込み、樹脂下部の表面張力によって形状を維持した挙動を意味する。一方、濡れ性が高い繊維 ($C_2=10C_1, 8C_1$) では繊維上部で樹脂が多く残留している。この理由は上部から落滴させた際に最初に接触する繊維上面のみで樹脂が留まるのに十分な濡れによる力が作用したことが考えられる。

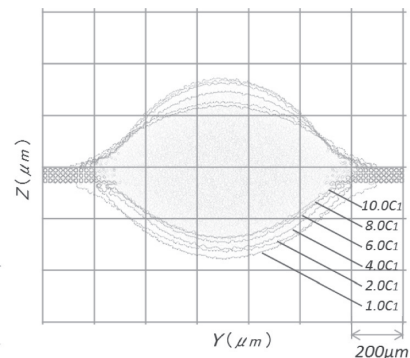


Fig. 4 Numerical results of shape of resin

3.4 検証実験

前項では繊維に対する濡れ性を、3次元流動解析を用いた繊維上部と下部の液滴高さ比率によって差異が現れ、評価可能とした。ここでは実験を行い、その結果と前項で明らかにした流体種類による水滴高さ比率を利用して特定樹脂の特定繊維に対する濡れ性の評価を行う。これによって特定の樹脂、繊維間での濡れ性ポテンシャル係数 C_2 を決定することが可能になると考える。

3.5 実験内容

実験は特定樹脂での異繊維に対する濡れ性を評価する。評価する部分としては、繊維上部と下部の樹脂の付着高さを計測する。実験設備外観を Fig. 5 に示す。付着挙動をカメラで撮影することで静止時の付着形状を X-Y、X-Z 方向から評価する。

本実験は液滴容量 $1.0\mu\text{l}$ 、エポキシ樹脂を使用する。室温 22°C 、撮影倍率はカメラ 1（株キーエンス製、VH-Z50、撮影倍率 $\times 50 \sim \times 500$ ）が 50 倍、カメラ 2（株キーエンス製、Zoom Lenz、撮影倍率 $\times 150 \sim \times 800$ ）が 150 倍とする。繊維束内部への含浸を最小限にするために、繊維束が緩まないのに十分な引張荷重 0.70N を両端部に与えた。

繊維束はポリ乳酸（PLA）繊維束（東レ(株)製、26-LA65、 $n=26$ ）と炭素繊維束（東レ(株)製、T-3k、 $n=3000$ ）（炭素繊維径 $8.0\mu\text{m}$ ）の 2 種類を利用した。

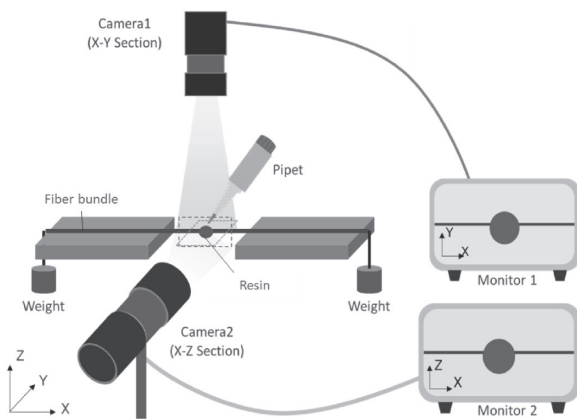


Fig. 5 Experimental overview

エポキシ樹脂の各繊維に対する付着形状を X-Z 方向（Monitor2）から撮影した画像を Fig. 6,7 に示す。付着形状の水滴高さ比率（繊維上面高さ / 繊維下面高さ）がそれぞれ 0.64（Carbon）、0.72（PLA）と計測された。これはエポキシ樹脂と各繊維との濡れ性が異なることによる樹脂の微細挙動の違いが原因として考えられる。また、このことから有機物である PLA のほうが濡れ性に優れると考えられ、解析結果の推定高さ比率結果（Fig. 4）の比較から PLA では $C_2=2.0C_1$ 、炭素繊維束では $C_2=1.0C_1$ 程度であると決定することができた。

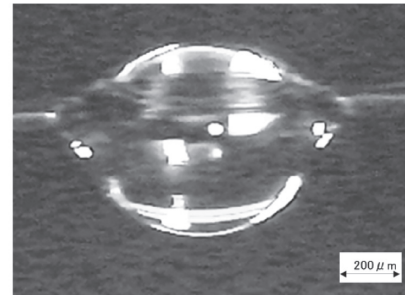


Fig. 6 Epikote802—Carbon

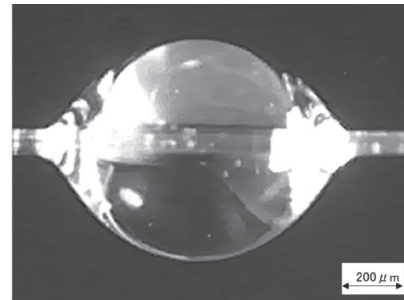


Fig. 7 Epikote802—PLA

4. 繊維配置を考慮した UD 材の樹脂流動評価

繊維強化材の繊維束内部での樹脂流動は、樹脂の濡れ性と表面張力による影響が支配的となる。そこで、濡れ性のパラメータ C_2 の値を変えて、繊維束内部を模擬した複数繊維モデル内の流動状況を評価する。3 次元流動解析により、2 次元解析では十分に検証できなかった繊維方向の含浸影響についても調査する。

検証に利用した複数繊維モデルと三次元粒子モデルを Fig. 8 に示す。既往の研究⁷⁾でも多く用いられている繊維配置である六方配列で繊維間距離 a が $5\mu\text{m}$ で規則的に配列されたモデルを用いる。繊維物性による樹脂親和性の差異による流動状況の変化を調査するために、濡れ性の低い $C_2 = 2C_1$ （Case1）と濡れ性の高い $C_2 = 8C_1$ （Case2）の 2 種類を用いる。なお樹脂の物性はエポキシ樹脂（三菱化学(株)製、エピコート 802®）を模擬した物性である密度 $\rho_{\text{resin}} = 11600\text{kg}/\text{m}^3$ 、動粘度 $4\text{mm}^2/\text{s}$ 、表面張力係数 $\sigma = 47.1\text{mN}/\text{m}$ 、流体粒子間ポテンシャル係数 $C_1 = 314\text{N}/\text{mm}^2$ とした。さらに外力として重力による影響を図中 X 方向に与え、大気中の含浸を模擬した。なお、濡れ性が異なる場合の樹脂単体の挙動を考察するため、繊維の移動は考慮しない。

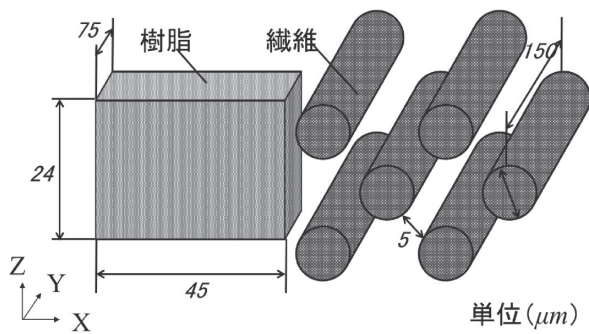


Fig. 8 Numerical model of filaments and resin

規則配列での樹脂流動挙動を Fig.10 に示す。樹脂の含浸過程から、濡れ性が低い樹脂 ($C_2 = 2$, Case 1) では繊維周辺部に未含浸部が生成されることが確認できる。なお、未含浸部が確認された Fig.10 (b) の樹脂先端部の拡大図を Fig.9 に示す。

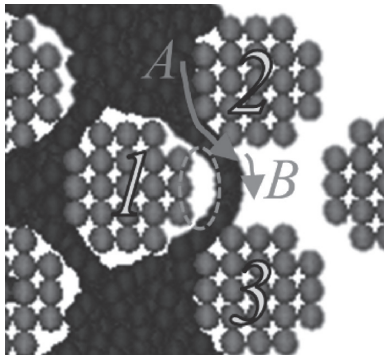


Fig. 9 Resin flow in case of 1 ($C_2=2$)

図中の繊維 (No.1) の右側部で未含浸部が生成されていることが確認できる。これは未含浸部周辺での粒子間引力による流体の進路方向が起因していると考えられる。No.1-2 間の流路から流れ込んだ樹脂は繊維 (No.2) に沿うように流れる (矢印 A)。その後、流体間ポテ

ンシャルの影響により No.1-3 間流路から同様に流れ込んだ樹脂と結合している (矢印 B)。この挙動により繊維 (No.1) の右側部で未含浸部が生成される。一方、Case 2 ($C_2=8 C_1$) では繊維との濡れ性が高いため、繊維 (No.1) の右側部でも含浸することが確認された。両者の結果の含浸状況の差異から、濡れ性の影響により未含浸部が生成される挙動が本解析手法により明らかとなる。

また、3次元評価の利点として繊維方向の樹脂の含浸過程の評価も可能な点が挙げられる。含浸過程を X-Y 面から評価した結果を Fig.11 に示す。濡れ性が低い樹脂 (Case 1) では、樹脂の Y 軸中央部付近のみが進行しているのに対して、濡れ性が高い樹脂 (Case 2) では広い含浸幅を維持したまま進行している。繊維束左端部と右端部での含浸幅の差異は、Case 1 では $76.9\mu\text{m}$ 、Case 2 では $36.9\mu\text{m}$ であり 2 倍以上の差異が確認された。さらに、Fig.11 の A ラインおよび B ラインを樹脂先端が初通過した時間を Fig. 12 に示す。この結果からも濡れ性が高い樹脂 (Case 2) では、少ない樹脂注入点で含浸領域を向上させ、含浸時間を短縮させると考える。

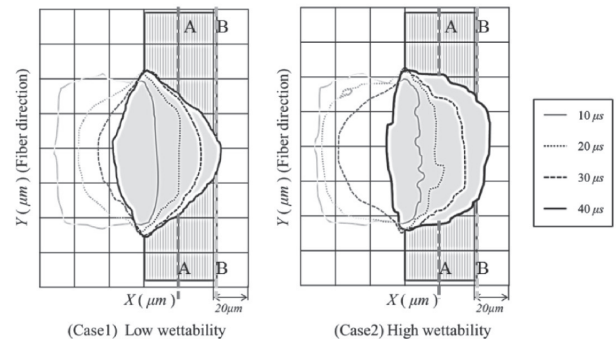


Fig.11 Flow line in periodic model (X-Y cross section)

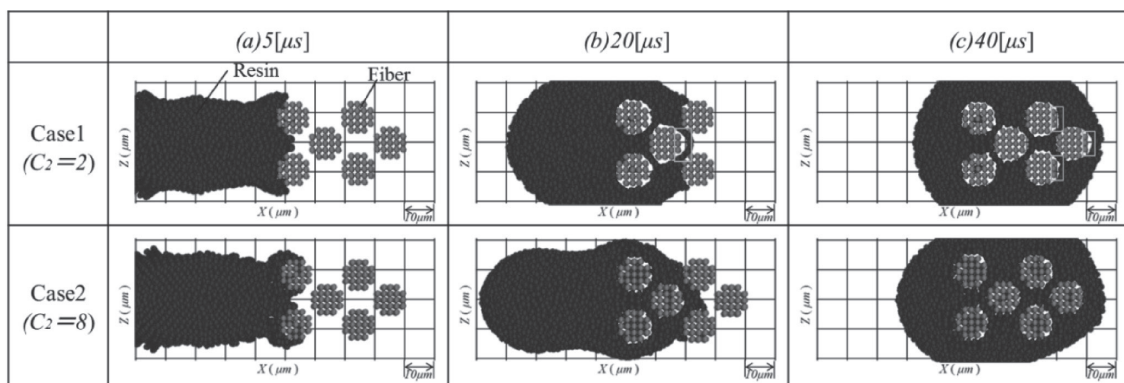


Fig.10 Numerical results of resin flow behavior with case 1 and 2

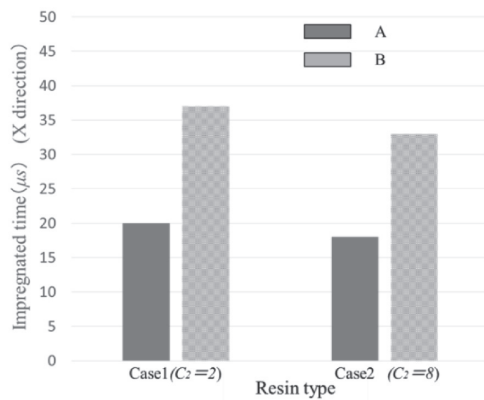


Fig.12 Impregnated time (X direction)

5. 結言

本研究では、粒子法を用いてミクروسケールの繊維間樹脂流動を明らかにすることを目的とし、繊維と樹脂の種類に応じた粒子間引力の評価方法を提案した。提案モデルにより、2次元解析では評価困難な繊維方向に対する樹脂流動について、3次元化により評価可能とした。また、3次元マイクロ構造モデルを用いて繊維の配置が樹脂流動に及ぼす影響を評価し、樹脂と繊維との濡れ性の違いによる樹脂流動の差異を評価した。本研究で得られた知見を以下にまとめる。

(1) 単繊維モデルを用いてポテンシャル係数決定手法の妥当性を確認した。

(2) 濡れ性が低い樹脂の未含浸部の生成のメカニズムを明らかにした。

(3) 樹脂の含浸幅、含浸時間の差異を明らかにすることで、濡れ性が高い樹脂の優位性を確認した。

これらの知見を基に、今後は本手法を用いて未含浸部の生成メカニズムの解明とメゾスケールの評価への拡大を図る予定である。

〈参考文献〉

- 1) D. Hull, T.W. Clyne: Cambridge Univ.Press., (1997) .
- 2) P. Simacek, S. G. Advani: Compos. Sci. Technol., 63 (2003) , pp.1725-1766.
- 3) D. H. Lee, W. I. Lee, M. K. Kang: Compos. Sci. Technol., 66 (2006) , pp.3281-3289.
- 4) 石田和希, 井上康博, 北条正樹, 安達泰治, 高田尚樹: JCCM-1 講演論文集, (2010) , pp.408-411.
- 5) T.Okabe, H. Matsunami, T.Honda, S.Yashiro: Composites Part A, 43 (2012) , pp.1765-1774.
- 6) 石井英二, 杉井泰介, 日本機械学会論文集 B 編, 78, 794 (2012) , pp.1710-1725.
- 7) 近藤誠一: 粒子法, 丸善, (2005) ,pp.9-20.



現在、株式会社ワークスアプリケーションズに在籍。

修士課程で培った幅広い知識を活かしてソフトウェア開発に挑戦し、日本のみならず世界に通じるイノベーションを起こすために奮闘している。

(ビジネスエンジニアリング 平成 26 年前期)