

令和 4 年 6 月 6 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K04092

研究課題名（和文）繊維強化複合材料の樹脂含浸成形におけるマルチスケール成形最適化手法の開発

研究課題名（英文）Development of a multi-scale optimization method for resin infusion molding of fiber-reinforced composite materials

研究代表者

矢代 茂樹 (Yashiro, Shigeki)

九州大学・工学研究院・教授

研究者番号：00452681

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、繊維強化プラスチックの樹脂含浸成形における欠陥の最小化技術として、樹脂流動とボイド形成を予測する数値解析を構築した。具体的には、粒子法（SPH）を使用して繊維、樹脂、空気の運動を予測するミクロスケール混相流解析を開発した。樹脂流入速度と表面張力、接触角条件を考慮し、繊維束内への樹脂の含浸とボイドの形成を予測した。ボイド含有率は実験結果と一致し、この結果からボイドを最小化する成形条件を予測する解析の有効性が確認された。さらに、繊維基材の一部をモデル化して真空RTMを模した粒子法解析を開発した。この解析により繊維基材の浸透率を解析的に予測できる可能性が示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

従来のRTM成形のプロセス最適化では、繊維基材の浸透率の実測データが必要であるとともに、大雑把なボイド含有率予測モデルに立脚しているため、成形実験を繰り返して試行錯誤的に成形条件を決定する必要があった。本研究では、粒子法によるボイド形成解析（成形条件の探索）と浸透率の解析的予測手法を構築しており、今後の研究開発でこれらの知見を深化することによって、手間とコストのかかる成形実験や成形試行回数の削減できる点で、工学的な意義を有する。

研究成果の概要（英文）：In this study, a numerical analysis was developed to predict resin flow and void formation in order as a technique for minimizing defects in the resin transfer molding (RTM) of fiber-reinforced plastics. More specifically, a micro-scale multiphase flow analysis was developed to predict the motion of fibers, resin, and air using the smoothed particle hydrodynamics. Resin impregnation into a fiber bundle and void formation were analyzed under some conditions of the resin inlet velocity as well as the surface tension and contact angle of the resin. The void content agreed with the experimental results, and this result confirmed the validity of the analysis to predict the molding conditions that minimize voids. Furthermore, a particle simulation was developed to analyze the process of vacuum assisted RTM by modeling a part of a fabric. This analysis showed the possibility of predicting fabric permeability.

研究分野：複合材料工学

キーワード：繊維強化複合材料 樹脂含浸成形 ボイド 樹脂流動解析 粒子法

### 1. 研究開始当初の背景

自動車や汎用製品への繊維強化プラスチック (FRP) の適用には、生産性向上が不可欠である。成形の面では、設備コストや成形時間、成形物の機械的特性などの点で、繊維基材に樹脂を含浸させる樹脂含浸 (RTM) 成形が有望で、これによる自動車構造や風力発電用ブレードなどの大型一次構造部材の製造も行われている。しかし、繊維基材に樹脂を含浸させる際、樹脂流速や毛管効果など広い意味の成形条件に依存して繊維束内外にサイズの異なるポイドが形成される (図 1)。ポイドは機械的特性を低下させるため、ポイド最小化に向けて成形プロセスを最適化することが工学的な課題である。

ポイド含有率の最小化のため、キャピラリ数 (粘性力と表面張力の比) の最適値の探索が行われてきた。このためには、繊維基材 / 注入樹脂の組み合わせごとに多数の成形実験とポイドの観察を繰り返す必要があり、手間とコストがかかる。ポイド含有率とキャピラリ数の関係を予測する数値解析も行われているが、すべて、同定の困難な繊維束単位の局所浸透率が入力データとして必要である。すなわち、従来方法による RTM 成形のプロセス最適化には、手間のかかる実験を避けて通れない。

したがって、実験試行回数を削減しうる、最適成形プロセスを求める解析技術の確立が、FRP の利用範囲を拡大することは明白である。従来の成形解析手法であるダルシー則に基づく樹脂含浸解析には 2 点の課題がある：(1) 繊維基材の浸透率の実測が入力データとして必要である；(2) 大雑把なポイド含有率予測モデルに立脚している。研究代表者は、繊維束への樹脂の流動とポイドの形成に関するミクロスケール粒子シミュレーションを行い、ポイド含有率が最小となるキャピラリ数を予測できることを示した。このミクロスケールの情報をマクロスケールの樹脂含浸解析に反映すれば、ポイド形成の詳細メカニズムを考慮しながら、実験を介さずに RTM 成形のプロセス最適化を行えると考えた。

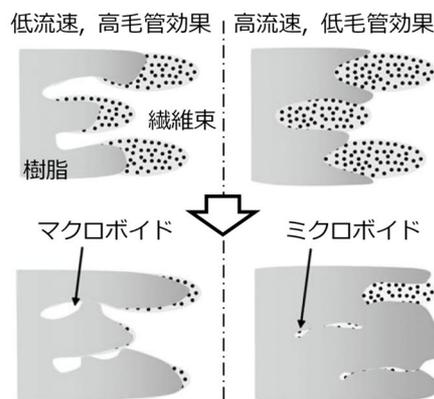


図 1 RTM におけるポイドの形成

### 2. 研究の目的

本研究は、マルチスケール RTM 成形最適化手法の構築を目的とする。その達成のために、従来アプローチでの実験を代替する解析手法を開発する。RTM 成形最適化の実現には、ミクロスケールである繊維束内への樹脂流動と、マクロスケールである繊維基材 (プリフォーム) への樹脂含浸の予測をどのように連成するかが学術的課題である。

研究目的の達成に向けて、具体的には次の項目を検討することとした。

- (i) ポイド圧縮を考慮できる樹脂流動解析を開発する。特に、解析の中で樹脂の表面張力と繊維 - 樹脂間の濡れ性を考慮する。
- (ii) 繊維束の微視構造への樹脂流動を予測し、最適キャピラリ数を解析的に求める。
- (iii) ミクロスケールの樹脂流動解析 (i) で開発) を援用し、繊維基材の浸透率を数値解析によって求める。
- (iv) (i) と (ii) の情報をマクロスケール樹脂含浸解析に反映する。

### 3. 研究の方法

#### 3.1 数値解析手法

本研究では粒子法の一つである SPH (Smoothed Particle Hydrodynamics) を用いる。粒子法は、連続体を粒子によって表し、連続体の挙動を粒子の運動によって計算する方法である。粒子法では格子を用いないため、ラグランジュ法における差分法や有限要素法での格子がゆがむ問題は生じない。この利点が生かされるのは自由表面を有する流れや混相流である。したがって、粒子法は RTM 成形で問題になっているポイド形成のプロセスを予測する解析の計算法として適している。加えて、SPH は圧縮性流れの解析手法であるため、ポイドの圧縮を表現できる。

また、繊維直径は数  $\mu\text{m}$  であり、繊維束内流れはミクロスケールの現象である。よって、樹脂の表面張力や繊維 - 樹脂間の濡れ性が樹脂の含浸とポイド形成に大きく影響する。そこで、本研究では樹脂に表面張力、樹脂 - 繊維間に濡れ性を作用させた成形流動解析手法を構築した。

本解析では、樹脂 - 繊維間の濡れ性を表現するため三次元の表面張力モデルを適用する。このモデルは液体粒子間だけに働く  $F^L$  と、固液を区別せずに働く  $F^{SL}$  に分けられ、次式で表される。

$$F_a^L = (1 - S)\gamma d \sum_b f_{ab}^{attract} |_{a,b \in \text{Liquid}} \quad (1)$$

$$F_a^{SL} = S\gamma d \sum_b \beta_{ab} f_{ab}^{attract} |_{a,b \in (\text{Solid} + \text{Liquid})} \quad (2)$$

ここで、 $f_{ab}^{attract}$  は粒子間の距離に応じた重み関数である。 $d$  は粒子の実効直径、 $\gamma$  は表面張力係数である。 $S$  はぬれ係数であり、接触角  $\theta$  に対し  $S = (1 + \cos \theta)/2$  の関係がある。 $F_a^L$  は張力を物

性に合わせる係数であり、 $\beta$  は固液界面での引力を調整する係数である。式(1),(2)をナビエ-ストークス方程式に外力として加えることで、表面張力および濡れ性を表現する。

### 3.2 繊維束内二相流の二次元マイクロポイド形成解析

成形条件に対するマイクロポイドの形成とその含有率を検討するため、繊維束の繊維・樹脂・空気をすべて粒子でモデル化し、繊維束内二相流の二次元ポイド形成解析を行う。解析モデルを図2に示す。粒子サイズは  $2.5 \times 10^{-6}$  m である。繊維を1本12個の粒子で構成し、直径  $1.0 \times 10^{-5}$  m の円形状になるように配置する。繊維粒子が密集して挿入されている部分を1つの繊維束とする。初期の全粒子数は7072個である。左端の壁粒子を一定速度（樹脂流入速度）で移動させることで、繊維束への樹脂の流入を表現する。また、上端および下端に周期境界条件を設定し、右端には空気粒子にのみ流出境界を設定する。

本解析では、樹脂粒子の密度を  $1130 \text{ kg/m}^3$ 、粘性係数を  $1.0 \times 10^{-2} \text{ Pa}\cdot\text{s}$  とする。また、計算安定化のため、空気粒子の密度を  $1.2 \text{ kg/m}^3$ 、粘性係数を  $1.515 \times 10^{-2} \text{ m}^2/\text{s}$  とする。種々の成形条件で解析するべく、樹脂流入速度、樹脂の表面張力、繊維-樹脂接触角の条件を種々に変化させる。ポイド含有率は、図2の四角で囲まれた範囲において、空気粒子の面積を、空気粒子と液体粒子の面積の合計で除することで算出する。空気粒子の圧縮の限界により計算が不安定化するまで解析を行い、計算が不安定化する直前の時刻でポイド含有率を算出する。

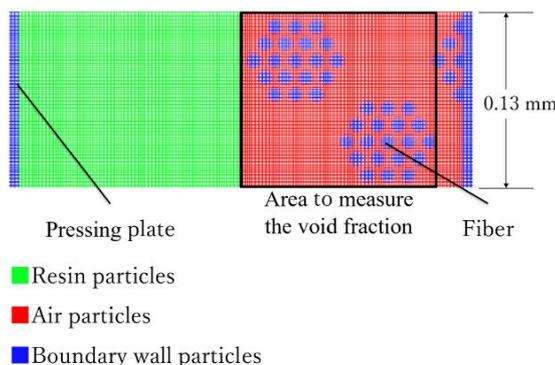


図2 繊維束内二相流の二次元解析モデル

### 3.3 繊維プリフォームの浸透率の予測

ガラスクロスの浸透率を予測するために、繊維基材の一部をモデル化したものを解析範囲とし、真空アシストRTM (VaRTM) の実験を模した解析モデルの開発を行った。解析モデルを図3に示す。粒子サイズは  $0.1 \text{ mm}$  であり、縦横の繊維束の直径が  $0.4 \text{ mm}$  および  $0.7 \text{ mm}$  となるように、格子状に配置する。モデル上下端には、周期境界条件を設定している。モデル左端および右端には壁粒子を配置し、モデル左端の壁粒子を移動させることで樹脂の流入を表現する。

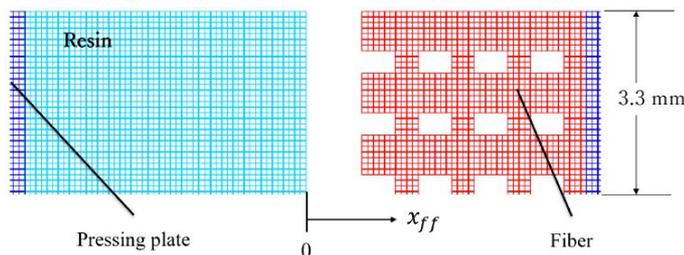


図3 VaRTMを模擬する二次元解析モデル

本解析では左端の壁粒子の速度  $v_{wall}$  を、ダルシー則を参考に次のように設定する。

$$v_{wall} = \begin{cases} C \frac{P_{inj}}{x_{ff}} & (x_{ff} \geq 0.001) \\ C \frac{P_{inj}}{0.001} & (x_{ff} < 0.001) \end{cases} \quad (3)$$

ここで、 $P_{inj}$  はパラメータとして設定する流入圧力である。 $C$  は速度のオーダーを調整するための係数であり、本研究では  $C = 2.5 \times 10^{-9}$  (一定) とする。 $x_{ff}$  はフローフロントの粒子の位置 (単位: m) であり、図3に示す初期状態のフローフロント位置を原点とする。

本解析では樹脂が繊維に含浸する様子を二次元で表現するため、繊維粒子を壁扱いせず、樹脂への濡れ性の引力のみ作用するものとする。また、数値積分により速度を計算する際、樹脂が繊維束内を含浸している間の繊維から受ける摩擦を表すため、繊維粒子から一定範囲内の樹脂粒子の速度を  $(1 + R)^{-1}$  倍する。ただし、 $R$  は繊維内の速度を調整する係数であり、 $R = 1.0 \times 10^{-3}$  (一定) とする。

本解析における樹脂の表面張力および接触角は、実験の材料の物性値に合わせ、それぞれ  $2.10 \times 10^{-2} \text{ N/m}$ 、 $21.0^\circ$  とした。また、粘度は  $1.0 \times 10^{-1} \text{ Pa}\cdot\text{s}$  とし、密度は  $1000 \text{ kg/m}^3$  とした。流入圧力は  $20 \sim 80 \text{ kPa}$  の範囲で、 $10 \text{ kPa}$  ごとに解析を行う。

## 4. 研究成果

### 4.1 SPH法における粒子間引力モデルの検証

粒子間引力モデル (式(1),(2)) の妥当性を検討するため、二次元 SPH を用いた液滴崩壊の解析を行い、流体-固体間の接触角を評価する。本研究では半円上の液滴を固体壁面上に置き、液滴崩壊解析を行った。図4に初期状態の粒子配置を示す。プレート上に半円形状の液滴を置いたものである。粒子径は  $0.2 \text{ mm}$  であり、液滴の総粒子数は257である。アクリル板に対する水とオイルの接触角の実測平均値は、それぞれ  $79.0^\circ$ 、 $24.0^\circ$  だった。実測データを解析に入力し、重力と粒子間引力により液滴が変形する様子を計算した。

図5に、アクリル板上におけるオイルと水の液滴崩壊の解析結果（時刻7.0 s）を示す。時間の経過とともに、液滴が重力と表面張力の影響を受けて接触角が変化する様子を確認した。また、水と比べて濡れ性の高いオイルの方が液滴の幅方向の広がりが大きくなったことを確認した。オイルおよび水の接触角はそれぞれ 27.3°, 74.4° となり、実測値とほぼ一致した。本解析の結果から、式(1), (2)で表される粒子間引力モデルを用い、適切な物性値を設定することで、液体 - 固体間の濡れ性を再現できることを示した。

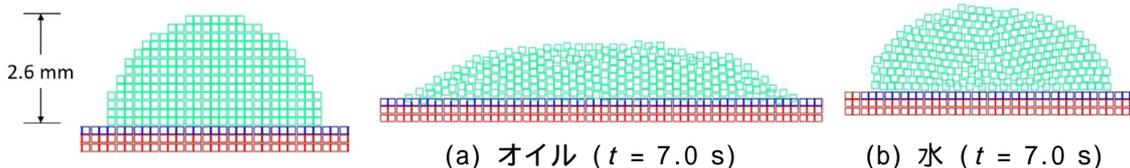


図5 アクリル板上への液滴崩壊の解析結果

図4 液滴崩壊の粒子モデル

#### 4.2 繊維束内のポイド形成に関する最適成形条件

図6に解析結果の一例を示す。時間の経過とともに、左端の壁粒子の移動とともに樹脂粒子が繊維束内部に含浸しつつ繊維束外でも流動し（図6a,b）、フローフロントが繊維束を通過した時点で空気粒子が繊維束内に閉じ込められた（図6c）。その後、フローフロントが右端に到達すると樹脂の圧力が上昇し、繊維束内に閉じ込められたポイドが圧縮される様子を観察した（図6d）。また、壁の移動速度（流入速度）が大きいほど、繊維束内に樹脂が含浸する速さと比べて繊維束外の樹脂の流れが速く、繊維束内に樹脂が完全に含浸する前に繊維束が樹脂で囲まれることによって、大きいポイド形成された。さらに、表面張力が大きく接触角が小さいほど、樹脂が繊維から受ける引力が大きくなり、繊維束内の含浸が速くなることで、繊維束内に閉じ込められる空気の割合は小さくなった。

繊維束内外に形成されるマイクロポイドおよびマクロポイドの含有率は、修正キャピラリ数と呼ばれる無次元数の関数であり、マイクロポイドとマクロポイドが最小となる最適な修正キャピラリ数があることが示されている（Rohatgi et al., Polymer Composites 1996; 17(2):161-170）。修正キャピラリ数  $Ca^*$  は粘性力と表面張力の比で表される。

$$Ca^* = \mu v / (\gamma \cos \theta) \quad (4)$$

ここで、 $\mu$  は樹脂の粘性係数、 $\gamma$  は表面張力、 $\theta$  は接触角である。 $v$  は空塔速度であるが、本研究では壁の移動速度とした。解析によって得られた修正キャピラリ数に対するポイド含有率を、ポイド形成実験の結果（Rohatgi et al., Polymer Composites 1996; Patel et al., Polymer Engineering and Science 1995）と比較して図7に示す。本解析では、修正キャピラリ数が小さいほど形成されるポイドの含有率が低くなる傾向が得られた。解析結果は Rohatgi らによる繊維束内のマイクロポイド形成に関する実験結果とよく一致した。本解析によりマイクロポイド含有率を最小化する修正キャピラリ数を得られることを示した。

本解析では、Patel らにより観察された繊維束間に形成されるマクロポイドを再現できなかった。これは、繊維基材の繊維構造を解析モデルで再現していないためである。マクロポイドの形成を再現するためには、3次元解析モデルにおいて縦および横の繊維の構造を表現する必要がある。

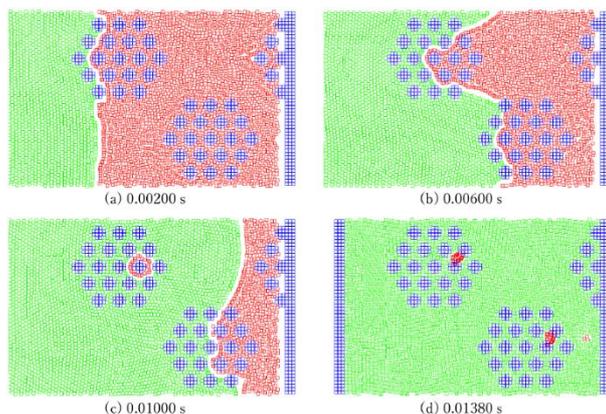


図6 繊維束への樹脂の含浸とポイドの形成の予測 ( $v = 1.0 \times 10^{-2} \text{ m/s}$ ,  $\gamma = 2.1 \times 10^{-2} \text{ N/m}$ ,  $\theta = 20.0^\circ$ )

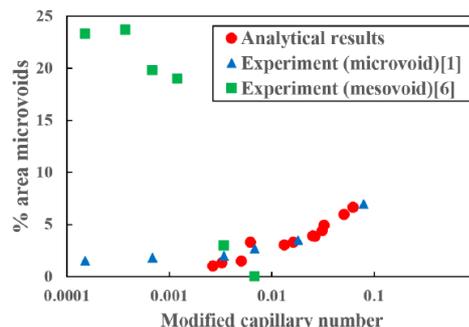


図7 修正キャピラリ数に対するポイド含有率の変化

#### 4.3 繊維プリフォームの浸透率の解析的予測

浸透率を解析的に予測するための解析モデルの開発に先立ち、ガラスクロスとシリコンオイルを用いた VaRTM 実験（図8）を行い、浸透率の計測を行った。1層のガラスクロスにシリコンオイル（粘度  $1.0 \times 10^{-1} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ ）を含浸させ、入口（大気圧）と出口の圧力差を 20~80 kPa の範囲で 10 kPa ずつ変化させた。出口圧力が低く入口との圧力差  $P$  が大きいほど含浸が速く進む傾向を確認した。どの条件においても、含浸開始直後では含浸が速いが、含浸が進みフローフロン

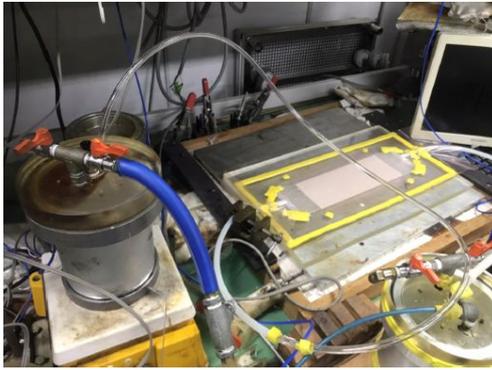


図8 ガラスクロス VaRTM 実験の様子

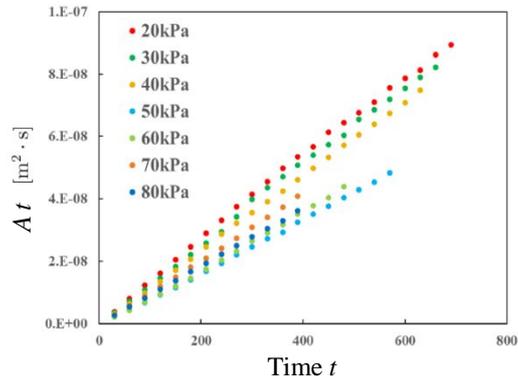


図9 圧力差による  $(At)$  の時間履歴 (実験)

トが出口に近づくほど含浸が遅くなった。

繊維の空孔率を算出することは困難であるため、本研究では、フローフロント位置の計測結果とダルシー則から求められる浸透率を空孔率で除した値  $A$  を用いて評価を行う。

$$A = K/\phi = x_{ff}^2 \mu / (2\Delta P t) \quad (5)$$

全実験条件での値  $(At)$  を図9示す。 $(At)$  の計測値は時間に対して線形に増加し、 $A$  が定数であり式(5)により浸透係数を求められる。しかし、同一のガラスクロスに対して条件により  $A$  はばらついた。本研究の  $A$  (すなわち  $K$ ) のばらつきは  $\pm 20\%$  程度であるが、これは、使用した繊維基材であるガラスクロスの繊維構造が様ではなく、入口から出口までの圧力勾配が一定でないためである。このばらつきは Vernet らの浸透率計測ベンチマーク研究 (Composites Part A 2014) と同じである。さらに、ガラスクロスの表面処理を熱処理により除去し、同様の含浸実験を行ったところ、図9のばらつきの範囲内になり、ミクロスケールの含浸に影響を及ぼす可能性のある繊維の表面処理は浸透率に影響を及ぼさないことを示唆している。本研究を開始するにあたり、ミクロスケールの樹脂流動・含浸に影響する条件である樹脂の表面張力や繊維に対する樹脂の濡れ性が、繊維プリフォームのマクロな浸透率に影響する可能性があると考えたが、浸透率は樹脂とは独立なパラメータであるという従来の知見の通りの結果だったことを付記する。

VaRTM を模擬する解析を行うにあたり、接触角計 (DMS-301, 協和界面科学) を用い、樹脂の表面張力と繊維-樹脂の濡れ性を計測した。実験で使用したシリコンオイルを、ガラスクロスに材質が近い石英板に滴下して観察した結果から、表面張力および接触角はそれぞれ  $2.10 \times 10^{-2}$  N/m,  $21.0^\circ$  とした。解析結果の例 ( $\Delta P = P_{inj} = 20$  kPa) を図10に示す。樹脂粒子が繊維の左端から含浸し、実験と同様に、圧力差が大きいほど含浸が速く進む傾向を確認した。また、含浸開始直後では含浸速度が速いが、フローフロントが進むほど、樹脂圧力の流動方向の勾配が小さくなるため含浸速度が遅くなる傾向を確認した。圧力差が小さい場合に樹脂は繊維束の中から含浸し、圧力差が大きい場合に繊維束間を優先的に流動していく様子を観察した。これは、圧力差が小さく平均的なフローフロント速度が遅いときには粘性力に比べて毛管力が相対的に強く、逆に圧力差が大きいときには粘性力が相対的に大きいためである。

解析で得られた  $(At)$  の時間変化を図11に示す。すべての条件で  $(At)$  は  $t$  に対して線形変化し、傾き  $A$  もおおむね一致した。本解析の結果により、提案した手法により繊維基材の浸透率を予測できる手法としての基礎を構築したことを示した。

現在のモデルでは、樹脂の速度に関して定めたパラメータが流動を支配しており、これらパラメータと繊維基材の微視構造や物性値の違いの特定には至っていない。そのため、より正確に浸透率を解析的に評価するためには、パラメータを材料の物性値による関数に改良することが必要だろう。または、解析コストの制約がなければ、繊維束を三次元モデルに拡張したうえで、より詳細な繊維束内での含浸過程を表現することが有用である。

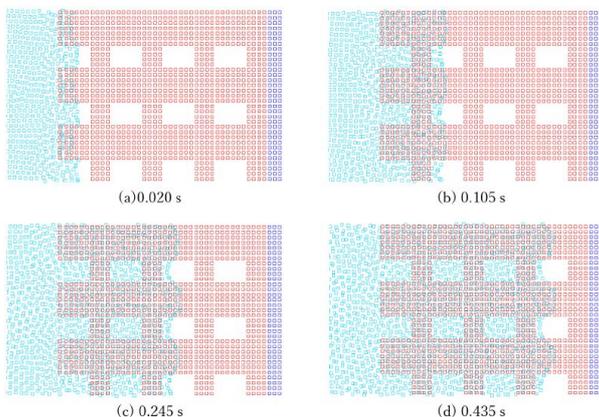


図10 VaRTM 模擬解析における樹脂含浸 ( $P_{inj} = 20$  kPa)

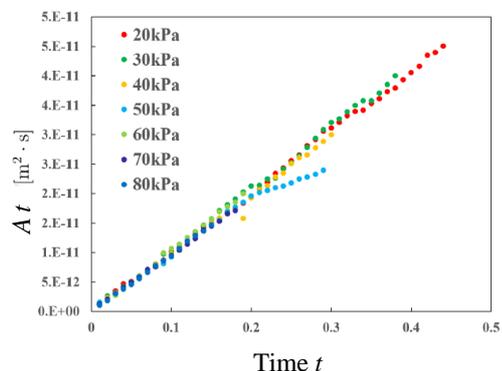


図11  $(At)$  の時間履歴 (解析)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 國崎勇磨, 矢代茂樹, 永井弘人
2. 発表標題 粒子法を用いた繊維強化プラスチックのプレス成形シミュレーション
3. 学会等名 第11回日本複合材料会議
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 原口一希, 小野寺壮太, 矢代茂樹
2. 発表標題 繊維の変形を考慮した繊維強化プラスチックの圧縮成形シミュレーション
3. 学会等名 日本航空宇宙学会西部支部講演会(2021)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 馬場清希, 矢代茂樹
2. 発表標題 SPH法を用いた繊維束内の樹脂流動およびマイクロポイド形成の予測に関する基礎検討
3. 学会等名 日本複合材料学会第45回複合材料シンポジウム
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------