

令和 4 年 6 月 17 日現在

機関番号：33302

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K05038

研究課題名(和文)毛管数によるミクロスケール樹脂浸透挙動を考慮した繊維織布浸透性マルチスケール評価

研究課題名(英文) Multi-scale evaluation of permeability considering micro-scale resin impregnation behavior controlled by capillary number

研究代表者

斉藤 博嗣 (Saito, Hiroshi)

金沢工業大学・工学部・教授

研究者番号：70367457

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：同一の繊維基材に対し、種々の樹脂を浸透させる際の毛管数が一致する条件を導くため、毛管数のパラメータを温度依存項と圧力依存項に分けて検討した。種々の樹脂間で温度依存項が一致する温度条件を求め、それらの条件下で浸透性評価試験をおこない、圧力依存項である樹脂流速が一致する圧力条件を各樹脂について実験的に求めた。その結果、それぞれの樹脂を用いた際に毛管数を0.006から0.017まで変化させることに成功した。一方、毛管数の変化に関わらず浸透性はほぼ同一を取り、今回変化させた毛管数の範囲内では、浸透性と毛管数の相関性はないと結論づけることができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

軽量化が要求される自動車等の移動体において、繊維強化プラスチックは大いに注目を集めており、それに伴って成形技術に関する研究も進められている。中でも成形時の気泡形成は従来より大きな課題として、その形成メカニズムに関する実験的、理論的考察がおこなわれてきた。毛管数に関しては、これまでも気泡形成メカニズムを説明する上で取り上げられてきたが、毛管数であらわされるミクロスケールの樹脂浸透挙動とマクロスケールで評価される浸透性の相関性を、マルチスケールの観点から実験的に評価、検証した例は申請者の知る限りなく、ここに本研究の学術的および社会的意義があると考えられる。

研究成果の概要(英文)：In order to derive the conditions under which the capillary numbers become identical for various resins impregnating the same fabric, the parameters of capillary number were divided into a temperature-dependent term and a pressure-dependent term. The temperature conditions to be temperature-dependent term identical were determined among various resins. Permeabilities were evaluated under these temperature conditions to determine the pressure conditions to be resin flow rate identical for various resins. As a result, we succeeded changing the capillary number from 0.006 to 0.017 for each resin. On the other hand, the permeability remained almost the same regardless of the capillary number. Therefore, it was concluded that there was no correlation between the permeability and the capillary number within the range of the capillary number varied in this study.

研究分野：複合材料工学

キーワード：浸透性 繊維強化プラスチック 毛管数 マルチスケール評価

1. 研究開始当初の背景

近年、ガラス繊維や炭素繊維に代表される高強度繊維と樹脂とを組み合わせた繊維強化プラスチック (FRP) は、航空機をはじめとする、軽量かつ高剛性、高強度が要求される構造への積極的な適用が報告されている。中でも、環境負荷を抑制するために高燃費化の要求が年々厳しくなっている自動車産業では、車体軽量化に対する切り札として、我が国や欧州をはじめとする各国が自動車用 FRP 構造材料の研究開発を進めている。研究代表者の所属機関においても、2013～2021 年度の文部科学省「革新的イノベーション創出プログラム (COI stream)」にて「革新材料による次世代インフラシステムの構築～安全・安心で地球と共存できる数世紀社会の実現～」が採択され、研究代表者を含む研究者が自動車やインフラをアウトプットと想定した炭素繊維強化プラスチックの研究開発をおこなっている。同事業では、連続炭素繊維に熱可塑性樹脂を含浸させた中間素材の開発が大きな課題の一つであり、その中で樹脂の含浸は重要な研究課題としてクローズアップされている。

このような背景に基づき、平成 28～30 年度科学研究費助成事業 (基盤研究(C)) として採択された研究代表者による繊維に対する樹脂の浸透挙動に関する実験的検討により、樹脂と繊維の付着エネルギーと浸透性の間に、付着エネルギーの増加、すなわち繊維 / 樹脂間のぬれ性が向上するに伴い、浸透性が増加する相関性が確認された。

しかし一方で、付着エネルギーがほぼ同一となる異なる材料間では浸透性が一定とならず、浸透性に対し付着エネルギーが独立した影響因子であるとは言えない結果を得た。このことから、付着エネルギーに代表される物質間のぬれ性のみでは、浸透性を説明できない可能性が示唆される。ここで、申請者らは改めて浸透性および繊維に対する樹脂浸透挙動についての文献調査をおこなった。その結果、繊維織布に対する樹脂浸透過程における気泡形成メカニズムの検討によると、繊維束内への樹脂浸透と、繊維束間への樹脂浸透のいずれが先行して生じるかにより、繊維束間もしくは繊維束内に気泡が形成され、それぞれへの樹脂浸透の駆動力は固液間の表面張力 (あるいは毛管力) および樹脂の粘性力であると考えられる。表面張力に対する樹脂の粘性力、すなわち樹脂粘度と浸透時の樹脂流速の積の比は毛管数 (capillary number) と呼ばれ、強制的ぬれに関する古典的な Landau-Levich-Derjaguin モデルにおいて定義されるが、ここで重要なことは、毛管数を繊維織布中へのミクロスケールにおける樹脂浸透挙動をあらゆるパラメータと考えることができる点である。すなわち、表面張力あるいは粘性力が異なる樹脂を同じ繊維織布に浸透させた場合、毛管数が異なれば繊維束レベルのミクロスケールの樹脂浸透挙動が異なることとなり、マクロスケールで観察される樹脂浸透挙動に対してもその影響が生じることが容易に想像できる。ひるがえって言えば、異なる樹脂系であっても、毛管数を同一にした条件下で同じ繊維織布に浸透させた場合、ミクロスケールの樹脂浸透挙動が同一になることを意味する。これにより、ミクロスケールの樹脂浸透挙動が同一条件下において、マクロスケールの観察に基づく樹脂浸透性を評価できる可能性があると考えた。

2. 研究の目的

毛管数を構成する樹脂粘度、樹脂流速、表面張力および接触角を、温度依存項と圧力依存項に分けて考えることにより、それぞれが種々の樹脂に対して同一となる条件を実験的に導出し、これによって同一の値をとる毛管数の下で浸透性を測定して、浸透性におよぼす毛管数の影響を定量的に評価することを目的とした。

3. 研究の方法

はじめに毛管数の定義式を次式(1)に示す。

$$C' = \frac{\rho v}{\gamma \cos \theta} \quad (1)$$

ここで、 ρ : 樹脂粘度、 v : 樹脂流速、 γ : 表面張力、 θ : 接触角 である。毛管数は上式の通り、分子である樹脂の粘性力項と分母である表面張力項の比としてあらわされ、ミクロスケールにおける樹脂の流動挙動をあらゆるパラメータとなる。例えば表面張力項が大きい場合、毛管現象により樹脂は繊維束内を先行するように含浸し、逆に粘性力項が大きい場合は、樹脂は繊維束間の空隙を先行して流れる。したがって、毛管数を制御するように各パラメータを調整することができれば、例えば高粘度の樹脂を含浸させる場合と低粘度の樹脂を含浸させる場合で、ミクロスケールの樹脂流動挙動を同一にすることも理論的には可能となる。しかし、実際に異なる樹脂系において毛管数を同一にすることは技術的に困難であり、これまでにこのような取り組みは研究代表者の知る限り存在しない。

そこで本研究では、次のアプローチを用いて毛管数を同一にする実験的方法を提案した。まず、毛管数を構成するパラメータを、温度に依存する物性である樹脂粘度および表面張力、接触角と、与える圧力に依存する浸透時の樹脂流速に分けて考えた。まず温度依存項について、温度変化に伴うそれぞれの物性を樹脂別に実験的に求めた。これらのパラメータが種々の樹脂において一

致する温度をそれぞれ求め、少なくとも毛管数を構成するパラメータのうち、温度依存項が一致する樹脂別の温度条件が求められることになる。次に、求めた温度条件下で各樹脂を用いた浸透性評価試験をおこない、その際に樹脂に対する圧力条件を変化させ、樹脂圧力と樹脂流速の相関性を実験的に求めた。これにより、樹脂流速が一致する圧力条件を各樹脂についてそれぞれ求め、種々の樹脂において温度依存項が一致し、かつ圧力依存項が一致した条件、すなわち毛管数が一致する条件下で浸透性評価試験をおこなえることになる。

本研究では、3年間で次の4つの実施すべき課題を設定した。

- (1) 毛管数を構成するパラメータのうち、温度変化に伴う樹脂粘度および表面張力、接触角を、樹脂別に実験的に求める。
- (2) 温度依存物性を樹脂別に求め、その値が一致する温度を各樹脂についてそれぞれ求めることにより、温度依存項が一致する樹脂別の温度条件を求める。
- (3) 温度依存項が一致する樹脂別の温度条件下で、各樹脂の樹脂圧力と樹脂流速の相関性を実験的に求める。
- (4) 樹脂流速が一致する圧力を各樹脂について求め、異なる樹脂間において、温度依存項および樹脂流速が一致した同一毛管数での浸透性評価試験をおこない、浸透性と毛管数の相関性を評価、検証する。

4. 研究成果

<平成31年度>

同一の繊維基材に対し、種々の樹脂を浸透させる際の毛管数が一致する条件を導くため、本取り組みでは毛管数のパラメータを温度依存項と圧力依存項に分けて検討することとした。3種類の種々の樹脂について、温度に対する粘度、表面張力の関係をそれぞれ求め、種々の樹脂間で温度依存項の値が一致する温度条件を各樹脂に対し求めた。続いて、温度依存項が一致する温度条件下において、各樹脂を用いた浸透性評価試験をおこない、圧力依存項である樹脂流速が一致する圧力条件を各樹脂についてそれぞれ実験的に求めた。その際に、多孔質体における樹脂流速をあらわす Kozeny-Carman 式を比較対象および樹脂流速の予測式として用いた。これらの取り組みにより、種々の樹脂間において、温度依存項と圧力依存項が一致し、すなわち毛管数が一意の値となる条件を1つ見つけることができた。同条件下において、種々の樹脂を同一の繊維基材に浸透させる浸透性評価試験をおこなった結果、毛管数が一意の値となった場合、浸透性もほぼ同一値を示すことが実験的に明らかとなった。これは当初計画した目的にかなり近づいた結果となる。本取り組みでは、これを第一段階の成果として日本複合材料学会誌に投稿し、厳重な審査を経て掲載された。

<令和2年度>

平成31年度の成果を踏まえ、一致させる毛管数の目標値を複数条件とし、種々の樹脂を用いて可能な範囲で毛管数を変化させた場合の、各毛管数と浸透性の相関性を実験的に評価した。図1に示すように、毛管数を0.006から0.017まで変化させた結果、毛管数の変化に関わらず浸透性の値はエポキシ樹脂、低粘度エポキシ樹脂、エンジンオイルにおいて全てほぼ同一を取ることが明らかとなった。したがって、今回変化させた毛管数の範囲内では、浸透性と毛管数の相関性はないと結論づけることができた。これは当初計画した研究目的である、浸透性と毛管数の相関性の確認において、ほぼ結論に近い結果と考えられる。

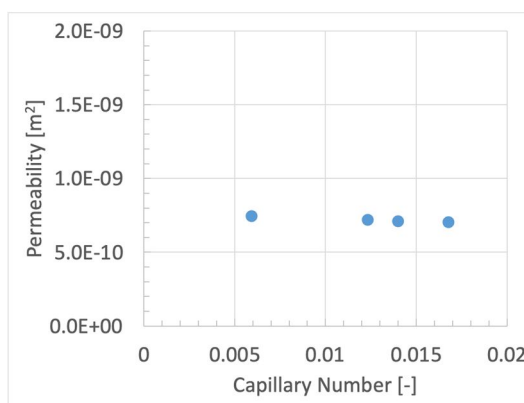


図1 毛管数と浸透性の関係

<令和3年度>

令和2年度の成果をさらに発展的させ、種々の樹脂が同一の毛管数となる温度および圧力条件下において、繊維織布に対する表面処理条件を変化させた場合の浸透性について実験的に評価をおこなった。その結果、毛管数は同一であるため、樹脂が異なる場合においてもマイクロスケールの樹脂浸透挙動は同一となるが、表面処理条件の相違により、浸透性は異なる値を示した。具体的には、表面処理濃度を増加させると浸透性は低下する傾向を示した。その原因として、繊維表面の表面処理剤分子と樹脂との相互作用が増加するに伴い、樹脂流動における抵抗(エネルギー損失)が増加するためと考えられる。したがって、表面処理条件は浸透性に対し相違を与えるパラメータであることが示唆された。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 KUMANO Mutsumi, MIZUTANI Kenji, SAITO Hiroshi, KIMPARA Isao	4. 巻 46
2. 論文標題 Experimental Evaluation of the Effects of Capillary Number on Permeability in Glass Cloth	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Japan Society for Composite Materials	6. 最初と最後の頁 98 ~ 103
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.6089/jscm.46.98	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 齋藤拓也, 水谷健志, 斉藤博嗣, 金原 勲	4. 巻 47(5)
2. 論文標題 表面処理を施したガラス繊維 / 樹脂の浸透性と接触角を考慮した毛管数の相関性評価	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 日本複合材料学会誌	6. 最初と最後の頁 180-185
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計15件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 水谷健志, 斉藤博嗣, 金原 勲
2. 発表標題 ガラス繊維織布 / 樹脂の浸透性におよぼす毛管数の相関性に関する実験的検討
3. 学会等名 日本材料学会第69期通常総会・学術講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 齋藤拓也, 水谷健志, 斉藤博嗣, 金原 勲
2. 発表標題 平織ガラス / 樹脂の浸透性と毛管数の相関性におよぼす表面処理の影響評価
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

1. 発表者名 水谷健志, 齋藤拓也, 斉藤博嗣, 金原 勲
2. 発表標題 繊維/樹脂の浸透性におよぼす毛管数の影響についての実験的評価と検討
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

1. 発表者名 齋藤拓也, 水谷健志, 斉藤博嗣, 金原 勲
2. 発表標題 表面処理を施したガラス繊維/樹脂の浸透性におよぼす毛管数の影響評価
3. 学会等名 プラスチック成形加工学会 第28回秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 水谷健志, 斉藤博嗣, 金原 勲
2. 発表標題 平織ガラス繊維織布/樹脂の浸透性と毛管数の相関性に関する実験的評価
3. 学会等名 第12回日本複合材料会議(JCCM-12)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 水谷健志, 斉藤博嗣, 金原 勲
2. 発表標題 繊維/樹脂の浸透性と毛管数の相関性に関する実験的評価
3. 学会等名 第44回複合材料シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 齋藤拓也, 水谷健志, 斉藤博嗣, 金原 勲
2. 発表標題 表面処理を施した繊維/樹脂の浸透性におよぼす毛管数の影響評価
3. 学会等名 日本機械学会北陸信越支部学生会第49回学生員卒業研究発表講演会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 水谷健志, 齋藤拓也, 斉藤博嗣, 金原 勲
2. 発表標題 ガラス繊維織布/樹脂の浸透性におよぼす毛管数の影響に関する実験的検討と評価
3. 学会等名 第11回日本複合材料会議(JCCM-11)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 T. Saito, K. Mizutani, H. Saito, I. Kimpara
2. 発表標題 Evaluation of effect of surface modification on correlation between permeability and capillary number of glass fiber / resin
3. 学会等名 ASC 36th Annual Technical Virtual Conference (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 M. Endo, H. Saito, I. Kimpara
2. 発表標題 In-situ measurement of permeability between carbon fiber / resin
3. 学会等名 ASC 36th Annual Technical Virtual Conference (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 水谷健志, 斉藤博嗣, 金原 勲
2. 発表標題 平織ガラス繊維織布/樹脂の浸透性と毛管数の相関性に関する実験的評価
3. 学会等名 第12回日本複合材料会議(JCCM-12)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 齋藤拓也, 水谷健志, 斉藤博嗣, 金原 勲
2. 発表標題 ガラスクロス/樹脂の浸透性と毛管数の相関性におよぼす表面改質の影響評価
3. 学会等名 日本材料学会第70期通常総会・学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 遠藤将輝, 齋藤拓也, 斉藤博嗣, 金原 勲
2. 発表標題 織り形態の違いが繊維/樹脂の浸透性におよぼす影響評価
3. 学会等名 日本複合材料学会 第46回複合材料シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 齋藤拓也, 斉藤博嗣, 金原 勲
2. 発表標題 種々の表面処理条件における平織ガラスクロス/樹脂の浸透性と毛管数の相関性評価
3. 学会等名 日本複合材料学会 第46回複合材料シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 遠藤将輝, 斉藤博嗣, 金原 勲
2. 発表標題 織形態の相違が繊維/樹脂の浸透性におよぼす影響評価
3. 学会等名 第13回日本複合材料会議(JCCM-13)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

金沢工業大学 工学部 機械工学科 斉藤博嗣 研究室 https://kitnet.jp/laboratories/lab0016/index.html KIMPARA - TANAKA - SAITO Laboratory http://www2.kanazawa-it.ac.jp/compos/?_ga=2.265236812.2110432641.1621469921-1036171522.1621469921 金沢工業大学 工学部 機械工学科 斉藤博嗣 研究室 https://kitnet.jp/laboratories/lab0016/index.html KIMPARA - TANAKA - SAITO Laboratory http://www2.kanazawa-it.ac.jp/compos/top.html
--

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
---------	---------