

令和元年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：2016～2018

課題番号：16K06755

研究課題名(和文) 繊維強化プラスチック成形時の浸透性におよぼす影響因子としてのぬれ性の独立性検証

研究課題名(英文) Verification of independency of wettability as a key-factor on permeability in the process of molding of fiber reinforced plastics

研究代表者

斉藤 博嗣 (Saito, Hiroshi)

金沢工業大学・工学部・准教授

研究者番号：70367457

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：繊維強化プラスチック(=FRP)の繊維に対する樹脂の充填(=含浸)予測において最も重要なパラメータである、繊維に対する樹脂の染み込みやすさ(=浸透性)はDarcyの法則に基づき評価されるが、ミクロスケールの繊維と樹脂のぬれなど、FRP固有の因子が考慮されていない。本研究では、ぬれ性を表わすパラメータとして、樹脂の表面張力と接触角から導かれる付着エネルギーが浸透性において独立した影響因子である可能性、およびその他のパラメータとして樹脂粘性と表面張力および樹脂流速により定義される毛管数と浸透性の相関性について、実験的手法により検証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の成果より、理論的に毛管数が同一となる条件下において浸透性実験をおこなった結果、異なる樹脂系において浸透性がほぼ同一となることを実験的に確認できた。そのため、浸透性に対し、毛管数によるミクロスケールの樹脂含浸挙動は支配因子の一つとなりうると考えられる。浸透性の支配因子が明らかとなれば、界面特性の異なる繊維および樹脂を用いたFRPの成形予測シミュレーションにおいても、従来のように個別に浸透性を測定することなく、構成材料のぬれ性または毛管圧のサンプリング評価に基づき、浸透性を予測できる。さらには、繊維界面特性を制御することにより、浸透性を考慮した新たな繊維基材の開発を行なうことができる。

研究成果の概要(英文)：Permeability of resin against reinforcement fiber fabrics, which is one of the most important parameters for estimating the resin impregnation status in fiber reinforced plastics (FRP), is experimentally evaluated based on Darcy's Law. However, parameters thought to be characteristic for FRP, such as microscale wettability between fiber and resin, is not considered. In this study, we experimentally evaluated the following topics; (i) the possibility of independency of the adhesive energy calculated by surface tension of resin and contact angle between fiber and resin on permeability, and (ii) the correlation between permeability and the capillary number defined by resin viscosity, surface tension and resin velocity.

研究分野：材料力学, 複合材料工学

キーワード：浸透性 ぬれ性 毛管数 微視的浸透挙動

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

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。研究代表者は、2011~2014 年度経済産業省 戦略的基盤技術高度化支援事業「車両用部材の多品種中小ロット生産に対応した連続炭素繊維強化熱可塑性樹脂シートの開発」に研究分担者として参加した。同事業では、熱可塑性樹脂を含浸させた連続炭素繊維を積層し、プレス機により後加工が可能なスタンパブルシートの作製を目標としている。中でも、繊維に対する熱可塑性樹脂の充填 (= 含浸) は連続繊維であるが故に最も大きな技術的課題である。2013~2022 年度 (予定) には、研究代表者の所属機関が、文部科学省「革新的イノベーション創出プログラム (COI stream)」で採択された「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~」に参画し、研究者およびコーディネーターの招聘により、炭素繊維複合材料の研究開発が強力に推進されている。同事業においても、連続繊維への樹脂含浸は大きな研究課題としてクローズアップされている。

これらの事業で共通の検討課題である繊維への樹脂含浸は、樹脂に対する繊維および繊維織布 (= 基材) の通しやすさ (= 浸透性) により定量的に評価される。樹脂に対する繊維基材の浸透性は、Darcy の法則に基づき、流体の粘度、樹脂が流動可能な空隙率、圧力差、浸透距離、浸透するのに要した時間によって評価される材料パラメータである。浸透性を用いることにより、成形時の繊維基材に対する樹脂含浸過程を数値シミュレーションにより予測することが可能となる。従って、成形対象が複雑化、大型化する傾向にある中で、浸透性は重要な材料設計パラメータである。このため、大学や研究機関、繊維材料メーカーでは、種々の繊維基材と樹脂に関する浸透性のラウンドロビン試験を行ない、膨大なデータベース構築の取り組みも行われている。

一方、元来は土木工学分野において液体と被浸透物である土砂との浸透性を対象に実験的に導かれた Darcy の法則は、FRP 固有のパラメータを考慮できていない。例えば、樹脂特性は粘度、繊維特性は空隙率に代表されるのみで、繊維と樹脂との馴染みややすさであるぬれや毛管現象による効果などは考慮外である。そのため、FRP の浸透性はわずかな条件の相違により大きく異なる値を取り、先に述べたラウンドロビン試験のように、個々の材料について実験的に確認せざるを得ないのが現状である。このため、毛管圧が浸透性におよぼす影響の評価や、毛管圧を考慮した浸透モデルの提案などが行なわれている。一方、ぬれと浸透性の相関性については、一般論として影響が言及されているが、報告例は毛管圧に関するものほど多くない。

そこで研究代表者は、平成 25~26 年度科学研究費助成事業 (若手研究(B)) において、繊維基材と樹脂との馴染みややすさであるぬれ性に着目し、樹脂に対する繊維基材の浸透性の間に存在する数理的相関性を求め、ぬれ性を考慮した新たな浸透性評価理論を構築することを目的とした実験的検討を行なった。接触角と表面張力で構成される付着エネルギーを、ぬれ性を示すパラメータとして設定し、樹脂に対するガラス繊維の表面処理条件を変化させ、接触角が 60° から 90° を超える条件下で浸透性を評価した。その結果、付着エネルギーが小さくなる (= 接触角が大きくなる) に従い、浸透性は向上した。付着エネルギーと浸透性が逆相関性を示した原因は、繊維束周り と 繊維束内の 2 つのスケールにおける浸透挙動において、繊維束内の浸透が行なわれなかったことによると考えられる。そのため、接触角すなわち付着エネルギーの選定はぬれ性と浸透性の相関性評価において重要な因子であると考えられる。さらに、浸透性に対して、付着エネルギーに代表されるぬれ性が、他の因子から独立したパラメータであることは未だ証明されていないことも、大きな課題として残っている。

2. 研究の目的

繊維強化プラスチック (= FRP) の繊維に対する樹脂の充填 (= 含浸) 予測において最も重要なパラメータである、繊維に対する樹脂の染み込みやすさ (= 浸透性) は Darcy の法則に基づき評価されるが、ミクロスケールの繊維と樹脂のぬれなど、FRP 固有の因子が考慮されていない。本研究では、ぬれ性を表わすパラメータとして、樹脂の表面張力と接触角から導かれる付着エネルギーが浸透性において独立した影響因子である可能性を、実験的手法により検証する。これが真である場合、相関係数を導出し、浸透性の新たなモデルを構築、提案する。一方、偽である場合も同様の手法を用いて接触角および表面張力など、付着エネルギー以外のぬれに関連する因子の独立性を評価する。いずれの場合も、浸透性の支配因子解明に寄与する結果を得られることが期待される。

3. 研究の方法

本研究では、3 年間で 4 つの実施すべき課題を設定した。平成 28 年度には、(課題 1) 使用する樹脂の選定および表面張力の測定、(課題 2) 繊維に対する表面処理条件の選定と種々の樹脂との接触角測定を実施した。これらにより、繊維表面処理条件と接触角の相関性をそれぞれの樹脂について取得しながら、平成 29 年度にかけて (課題 3) 異なる樹脂間で付着エネルギーが同一となる繊維表面処理条件の探索を行なった。平成 30 年度にかけて (課題 4) 異なる樹

脂間で付着エネルギー同一条件下の浸透性評価を行ない、浸透性に対する付着エネルギーの独立性を実験的に評価、検証した。

<平成28年度>

評価対象はガラス繊維と種々の樹脂とし、表面処理条件を除き、繊維種類は当初固定した。また、表面処理には原則としてシランカップリング剤を用いた。課題1および課題2を実施した。2つの課題は互いに連動し、課題1および2で、随時接触角を測定しながら、シランカップリング処理を行なったガラス繊維と親和性を有する樹脂を3種類選定した。課題2により、各樹脂について繊維表面処理条件と接触角の関係を求めた。樹脂の表面張力と課題2で求めた接触角から、Young-Dupréの式より付着エネルギーを導出し、繊維表面処理条件（表面処理濃度）との相関性をそれぞれの樹脂について求めた。

<平成29年度>

課題3として、得られた付着エネルギーと繊維表面処理条件の相関性に基づき、それぞれの樹脂を用いた際に付着エネルギーの値が同一となる繊維表面処理条件を探索した。すなわち、課題2で求めた繊維表面処理条件と接触角の関係に基づき、式(2)において表面張力の異なる樹脂間で、付着エネルギー W_a が同一になる接触角を求めた。また、得られた条件に基づき、随時課題4の浸透性評価試験を実施した。

<平成30年度>

平成29年度に引き続き、課題3および課題4に取り組んだ。特に課題3では、課題1および課題2へのフィードバックを繰り返しながら、それぞれの樹脂に対して付着エネルギーの値が同一となる繊維表面処理条件を模索し、その結果を課題4に適応して、浸透性を評価した。樹脂粘度により正規化した浸透性と、付着エネルギーの関係より、浸透性における付着エネルギーの独立性を検証した。また、新たなパラメータとして粘性力と表面張力の比で定義される毛管数に着目し、毛管数と浸透性の相関性について実験的に検証をおこなった。

4. 研究成果

<平成28年度>

本研究では、異なる界面制御を施した繊維と、異なる表面張力を持つ樹脂を用いて、接触角測定と浸透性試験をおこなった。試験により得られた浸透性と、接触角より求めた付着エネルギーから、ぬれ性と浸透性の相関性を検討した。

ガラスクロスに離型処理を施すと、接触角は大きくなり、より樹脂をはじきやすくなることが分かった。一方離型処理を施すと浸透性は向上した。浸透性は目視で確認しているため、はじきやすい状態の場合見かけの浸透性が向上することが考えられた。

接触角測定の結果、エンジンオイルはシランカップリング処理濃度が高まるとぬれやすくなることがわかった。一方エポキシ樹脂においては傾向が見られなかった。ガラス繊維に含浸する樹脂のぬれを板状のガラスで観察することは非常に難しいことがわかった。実際の繊維に近い状態で観察するには、表面性状や材質などの影響因子を考慮する必要があると考えられる。

浸透性試験からシランカップリング処理濃度を高めるほど浸透性が高くなることがわかった。この傾向は粘度の異なる液体を用いても同じ傾向であった。付着エネルギーと浸透性の関係から、図1に示す近似曲線を導出した。近似曲線から、本材料系において付着エネルギーが70.0~80.0[mN/m]付近のとき、樹脂が浸透しなくなる可能性が示唆された。また、近似曲線から浸透性と付着エネルギーの関係式を導出した。

離型剤を用いた浸透性と、シランカップリング剤を用いた浸透性との比較から、樹脂が繊維束内に含浸するモードと、繊維束外を流れるモードの境界となる付着エネルギーが存在すると考えられた。このため、関係式には適用範囲があると考えられた。この付着エネルギーを用いることにより、成形の設計が可能となると考えた。付着エネルギーは浸透性に影響を与えており、浸透性のパラメータとなりうる可能性が示唆された。

<平成29年度>

粘性力と表面張力の比を表す毛管数に着目し、繊維束内および繊維束間における樹脂含浸を表す毛管数と浸透性の関係性を検討することを目的とした。ガラス/樹脂間のぬれ性の評価には、接触角測定装置により接触角を測定した。接触角測定では加熱処理によって表面状態をそろえたスライドガラスおよび加熱処理後にシランカップリング剤により表面改質を施したスライドガラスを用いた。浸透性の評価には同様に加熱処理・表面改質を施したガラスクロスを用いた。真空状態でガラスクロスに樹脂を含浸させ、浸透性を評価した。接触角、表面張力、粘度から毛管数を導出し、浸透性と比較することで両者の相関性を評価した。実験の結果、表面改質を施すことによってぬれ性の向上による浸透性および毛管数の変化が見られたが、シランカップリング剤濃度の上昇により繊維束が詰まることで繊維束間に含浸しやすくなり、見かけの浸透性が向上したと考えられる。加えて、毛管数を統一した条件における樹脂含浸を浸透性によって整理すると、およそ同一の値に収束した。

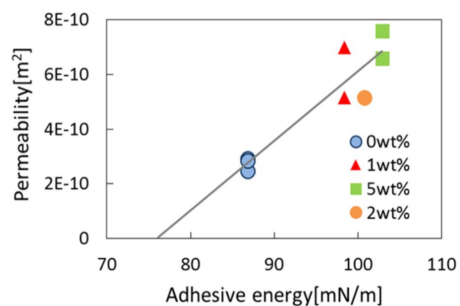


図1 浸透性と付着エネルギーの相関性

このことから微視的含浸挙動を表す毛管数は樹脂含浸におけるパラメータの一つになり得ると考えられるが、本実験で評価した領域外の毛管数における浸透性についてのさらなる検討が必要である。

<平成30年度>

繊維束内および繊維束間での微視的な樹脂流れをあらわすパラメータとして、粘性力と表面張力の比によりあらわされる毛管数に注目し、繊維束内および繊維束間における樹脂含浸を表す毛管数と浸透性の関係性を、異なる樹脂系を用いて比較検討した。同一の繊維織布に対し、異なる樹脂系を浸透させる際の毛管数を統一する条件の導出を試み、ミクロスケールの樹脂浸透挙動が同一となる条件下で、浸透性がどのように整理されるかを実験的に明らかにした。

粘度のみの調整、または圧力のみの調整では、互いに連動するパラメータのため、毛管数を統一することはできず、これらのパラメータをいかに調整するかの工夫を要した。その結果、毛管数の定義式に着目し、温度に依存すると考えられる物理量、すなわち粘度および表面張力と、圧力と粘度に依存すると考えられる物理量、すなわち流速にパラメータを分けることを考えた。前者から各樹脂の粘度と表面張力の比が同一になる試験温度を算出し、同温度条件下で浸透時の樹脂流速が一定となる条件、すなわち理論的に毛管数が同一となる条件下において浸透性実験をおこなった。その結果、図2に示すように、異なる樹脂系において浸透性がほぼ同一となることを実験的に確認できた。そのため、浸透性に対し、毛管数によるミクロスケールの樹脂含浸挙動は支配因子の一つとなりうると考えられる。

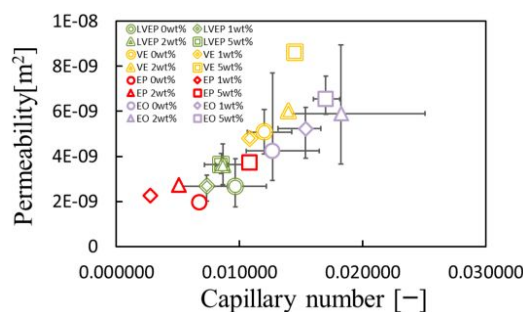


図2 浸透性と毛管数の相関性

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 2 件)

熊野 睦, 藤田敏明, 村上竜一, 湯川 輝, 齊藤博嗣, 金原 勲, 毛管数調整下における繊維/樹脂間における浸透性の実験的評価, 第43回複合材料シンポジウム, 富山国際会議場, 2018.9.13-14, A2-3-1.

M. Kumano, T. Fujita, R. Murakami, H. Yukawa, H. Saito, I. Kimpara, Experimental Verification of Effect of Microscopic Impregnation Behavior between Fibers and Resin on Permeability, the 13th International Symposium on Advanced Science and Technology in Experimental Mechanics (ISEM'13), Kaohsiung, Taiwan, Oct 2018, F06105.

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年:
国内外の別:

取得状況 (計 0 件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
取得年:
国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

金沢工業大学 研究室ガイド 工学部 機械工学科 斉藤博嗣 研究室
https://kitnet.jp/laboratories/lab0016/index.html?_ga=2.2887088.1639402719.1555321213-2055977762.1555321213
金原・田中・斉藤研究室ホームページ
<http://www2.kanazawa-it.ac.jp/compos/>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：斉藤博嗣

ローマ字氏名：Hiroshi Saito

所属研究機関名：金沢工業大学

部局名：工学部

職名：准教授

研究者番号（8桁）：70367457

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：該当なし

ローマ字氏名：該当なし

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。