

研究論文

Phase-Field Navier-Stokes モデルによる繊維間隙スケール樹脂
流れにおける気液界面ダイナミクスの検討井上 康博^{*1}, 松本 迪斉^{*2}, 北條 正樹^{*1}, 高田 尚樹^{*3}
安達 泰治^{*1}, 石田 和希^{*1}

(2009 年 11 月 16 日受付)

Simulation Study on Dynamics of Resin-Air Interface during Resin-Air
Flows between Filaments Using Phase-Field Navier-Stokes ModelYasuhiro INOUE,^{*1} Michito MATSUMOTO,^{*2} Masaki HOJO,^{*1} Naoki TAKADA,^{*3}
Taiji ADACHI^{*1} and Kazuki ISHIDA^{*1}

(Received November 16, 2009)

Abstract: To investigate void formation during resin transfer molding (RTM) processes, we developed a numerical code of a multiphase fluid model that employs Navier-Stokes equation including the interfacial tension term and Cahn-Hilliard equation for capturing the resin-air interface. We performed preliminary numerical simulations of microscale resin-air flow around a regular-lattice array of four single filaments. From the analysis, we found that (1) Laplace pressure arisen from the finite curvature of the resin-air interface could drive a capillary-driven flow penetrating into the gap between the two filaments located in longitudinal direction; (2) there was another dual time scale even at the microscale on the determination of flow patters: one was caused by the main flow, and the other by capillary driven transverse flow; (3) voids could be formed when the time scale of the main flow was shorter than that of capillary flow; (4) two modes of void formations were revealed numerically: longitudinal gaps fully capped by the resin-air interface leading to the void formation under a high interfacial tension coefficient; and a small bubble left at the back-step of the filament under a relatively weak interfacial tension coefficient.

Key words: Microvoid formation, Single filament scale, Multiphase microfluidics, Capillary effect, Phase-Field Navier-Stokes model

1. 緒 言

運輸部門において、環境負荷や運用コストを減らすことは大きな課題である。航空機、自動車などに限らず、それらに大きく関わっているものは機体重量である。そのため航空機産業では、構造部材を金属材料から高い比強度、比弾性度、耐腐食性を持つ CFRP (炭素繊維強化プラスチック: carbon fiber reinforced plastics) 製の部材へ転換することが一般的になっている。例えば、現在

わが国で開発中の MRJ (Mitsubishi Regional Jet) には構造重量の 30% 程度、2010 年就航予定のボーイング 787 では 50% 以上に CFRP が使用され、主翼や尾翼などの大型部材にも用いられている。

航空機用部材として用いられる CFRP の成形方法は、ドライ成形の一つであるプリプレグを用いるオートクレーブ成形 (autoclave molding) が主流である。しかしながら、プリプレグはそれ自身が高価であることに加え、硬化剤を含む熱硬化性樹脂が用いられるために、有効期限と室温暴露期限が設定され、保管コストや使用期限の点から生産性が低くコストが高い。

一方、安価に製造する手法として、ウェット成形法の 1 つである RTM 法 (resin transfer molding) に期待が集まっている。RTM 法は、プリプレグを用いないために

^{*1} 京都大学大学院工学研究科機械理工学専攻 (606-8501 京都府京都市左京区吉田本町)

^{*2} 三菱電機株式会社先端技術総合研究所

^{*3} 独立行政法人産業技術総合研究所集積マイクロシステム研究センター

部品製造コストを抑えることができ、さらに、オートクレーブ成形と同様に幅広い形状、大きさに対応することができる。しかし、RTM 法では、特に大型部材製造時の樹脂含浸過程において、温度、圧力等の条件が部材内で一定になりにくい、十分な樹脂充填を得られずに未含浸領域（ボイド）が残る可能性がある。対して、オートクレーブ成形では、プリプレグ製造工程での温度、圧力等の条件のばらつきが少ないため、プリプレグ間の気泡をうまく取り除きさえすれば成形品のボイド率は低いものとなる。つまり、RTM 法の大型部材製造への展開には、RTM 法におけるボイド発生抑制方法の検討が重要課題といえる¹⁾。

ボイド発生を防ぐ手法の開発には、ボイド発生メカニズムに基づき行われることが有効であると考えられる。これまでの研究の多くは、部材を均質な多孔質体として近似し、Darcy 則および質量保存則に基づく樹脂浸透速度や樹脂充填率の評価を行ってきた²⁻⁴⁾。しかし、繊維束内部の樹脂含浸状態は、単にマイクロスケールの局所で影響が閉じているわけではなく、繊維束間の樹脂含浸に対しても繊維束表面の流量条件として影響を与えると考えられ、逆に繊維束周りの含浸状態は繊維束内部の含浸圧力勾配に影響するため、ボイド発生はマルチスケールの力学現象と考えられる。このようなマルチスケール問題に対応するため、Advani らは、繊維束間と繊維束内のそれぞれに多孔質体近似を適用することにより、織物材などの内部構造を考慮し、さらに樹脂流量の保存に着目することにより、繊維束内および繊維束間のそれぞれにおける樹脂流量の時間発展方程式を連成したデュアルスケールモデルを提案した⁵⁻⁸⁾。その解析結果によると、繊維束内の樹脂充填に必要な時間は、繊維束間のそれよりもはるかに長くなることが示唆された。つまり、繊維束内部の樹脂充填が不十分でも、その繊維束周りは樹脂で囲まれてしまう可能性がある。これにより、繊維束内部における樹脂含浸の圧力勾配は大気開放で見積もられるそれよりも小さくなると考えられる。したがって、これまで大域的な含浸圧力と比べて無視できるとされた樹脂-空気界面によるラプラス圧⁹⁾（毛管圧）は、繊維束内部の含浸においては支配的な駆動力の1つとして無視できないと考えられる。実際、実験により、気泡が繊維束内に残留することで、さらに樹脂浸透が遅くなることが指摘されており、ラプラス圧の影響が示唆される¹⁰⁾。また、樹脂の繊維への濡れ性（接触角）は、樹脂-空気界面の形状（空気相に対して凸か凹か）を通してラプラス圧力勾配の方向に影響するため¹¹⁾、樹脂-空気界面挙

動そのものが含浸を決める重要な因子と言える。

そのため、近年、既存のデュアルスケールモデルに対して、ラプラス圧パラメータおよび繊維束内の気泡残留パラメータを導入し、繊維束内の樹脂充填率に関する網羅的解析が行われ、樹脂流動先端にはラプラス圧が、樹脂充填率には気泡残留が大きな影響を与えることが示唆された¹²⁾。

ここで、これらパラメータは、繊維束内流量計算における圧力境界条件の補正項に含まれる形として導入された。したがって、Darcy 則に基づく線形方程式を用いる限り、パラメータと含浸挙動との関連は見通しの良いものとなるため、実用的なシミュレーターとしての可能性に期待することができる反面、これら補正項には、気泡残留による圧力上昇の仮定の存在や繊維束スケールのラプラス圧と単繊維スケールのそれとの関係が不明確なため、繊維束内におけるボイド発生メカニズム（いつ、どこで、どのように）の検討には適さないアプローチと考えられる。

したがって、ボイド発生メカニズムの検討は、最も小さなスケールである繊維束内部の単繊維スケールから評価を行う必要がある。また、評価手法として、繊維束内部の樹脂含浸過程の直接観察は現段階では困難であるため、数値モデルを用いたシミュレーションによる検討が有効であると考えられる。本研究では、高密度比気液混相流体の数値モデルである Takada ら¹³⁾ のモデルを採用し、単繊維スケールにおける樹脂-空気混相問題へ適用し、樹脂-空気界面挙動の検討を行う。

2. 数 理 モ デ ル

樹脂含浸によって、繊維間には樹脂および空気の流動が生じる。繊維径や繊維間隙のスケールは μm オーダーであるため、樹脂-空気界面の存在は、流れ場を決める支配的因子の1つである。さらに、この界面挙動は繊維界面上の物理化学的性質によって、大きく影響を受けると考えられる。特に、樹脂と空気に対する繊維の親和性の違いは、樹脂-空気-繊維界面間の接触角（濡れ角）として、樹脂-空気界面挙動の境界条件となる。そのため、樹脂-空気-繊維間における物理化学的な相互作用は微視的・局所的であるにも関わらず、その影響は樹脂-空気界面挙動を通じて大域的に伝ばし、複雑な流れ場が形成されると予想される。

したがって、繊維界面の濡れ性を考慮し、単繊維スケールの樹脂-空気界面の挙動から大域的な流れ場を予測できるモデルが必要とされる。また、数値解析の立場か

らは、繊維1本1本が見える解像度で多数の繊維にわたる流れのダイナミクスを実用的な計算時間内で解析できることが望ましい。そのため、本研究では、樹脂および空気を連続体近似した基礎方程式を用いる。繊維スケールといえども、連続体近似はnmスケールにならない限り、適用可能と考えられるので¹⁴⁾、妥当なモデル化である。また、物理化学的相互作用を含む界面挙動を扱うため、自由エネルギー理論に基づく多相流体モデルを導入する。

2.1 多相流体モデル¹³⁾

樹脂と空気の混在した流体は、空間的に非均質であるため、それぞれの空間座標において、どの相が占めているのかを数理的に記述する必要がある。そこで、位置座標 $\mathbf{x}$ における相を表す変数 $\phi(\mathbf{x})$ を導入する。この変数 $\phi(\mathbf{x})$ は、オーダーパラメータと呼ばれる。

オーダーパラメータは相を特徴付ける量であれば何でもかまわない。例えば、気泡挙動のように体積力（浮力）が支配的となるダイナミクスの解析では、体積分率をオーダーパラメータにとる手法（volume of fluid: VOF 法¹⁵⁾）が多く採用されている。本研究においても、気泡挙動は繊維スケール流れにおいて主役の役割を果たすと考えられる。しかしながら、将来的に樹脂の硬化過程をも含めた解析を視野に入れると、相変態する成分をオーダーパラメータにとることが望ましい。その場合、VOF 法は手法的にミスマッチである。一方で、VOF 法のように流体力学方程式と組み合わせやすいことも望まれる。近年、このような要求を満たす多相流体モデルが、まず Inamuro らによりボルツマン方程式を基礎とするメゾモデルとして提案され¹⁶⁾、Takada らによって連続体レベルの流体力学モデルに展開された¹³⁾。本研究では、連続体モデルである Takada らのモデルを採用し、以下に我々の行った樹脂-空気系への適用について詳細を述べる。

Takada らのモデルでは、相を指定する現象論的な指標変数をオーダーパラメータ $\phi(\mathbf{x})$ として導入し、そのダイナミクスを材料科学分野で発展してきた Phase-Field 法¹⁷⁾の枠組みで扱う。そのため、オーダーパラメータに関し、ギンツブルグ-ランダウ型の自由エネルギー Ψ を定義する。

$$\Psi = \int d^3\mathbf{x} \left[\psi(\phi(\mathbf{x}), T) + \frac{\kappa_f}{2} (\nabla \phi(\mathbf{x}))^2 \right] \quad (1)$$

積分の中の第1項は、空間のそれぞれの位置における流体の自由エネルギー ψ であり、第2項は相の空間変化によって生じる自由エネルギーである。ここで、界面エ

ネルギー係数 κ_f は、界面厚さを決める定数である。Phase-Field モデルと同様に、自由エネルギーを用いるため、複雑な相変態を再現でき、将来、樹脂硬化過程の解析への適用可能性を有していると考えられる。その際、樹脂-空気系を表す自由エネルギーモデル $\psi(\phi(\mathbf{x}), T)$ の構築も課題となるが、それは現段階の目的を遙かに超えており、今後の課題とする。本研究においては、まず、繊維スケールの界面挙動の流体力学的な検討を第一とするため、既に理論的に良く調べられているファンデルワールスモデル¹⁸⁾を採用した。ファンデルワールスモデルは、ファンデルワールスの状態方程式に従う物質の自由エネルギーを表す。

$$\psi(\phi, T) = \phi \left[T \ln \left(\frac{\phi}{1 - B\phi} \right) - A\phi \right] \quad (2)$$

ここで、 A および B は理想気体からのビリアル補正項であり、それぞれ分子間の引力相互作用、斥力相互作用の大きさを表す。ファンデルワールスモデルでは、温度 T が臨界温度 $T_c = 8A/27B$ より下がると、 ϕ に関して、相分離を示す非一様な空間分布が形成される。そのときの最大値 $\phi_{\max}$ および最小値 $\phi_{\min}$ の各領域を液相および気相とみなす。

相のダイナミクスは、局所的な流れ場速度 $\mathbf{u}$ による移流と、非平衡緩和による拡散流 $\mathbf{J}$ を考慮した Cahn-Hilliard 方程式によって記述される。

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} + \nabla \cdot (\phi \mathbf{u} + \mathbf{J}) = 0 \quad (3)$$

拡散流 $\mathbf{J}$ は、非平衡性の強くない場合では、化学ポテンシャル μ の勾配に線形比例し、拡散係数 Γ を用いて以下のように表される。

$$\mathbf{J} = -\Gamma \phi \nabla \mu \quad (4)$$

$$\mu = \frac{\delta \Psi}{\delta \phi} \quad (5)$$

Cahn-Hilliard 方程式を解くためには、拡散流と流れ場速度を知る必要がある。拡散流は、局所的な化学ポテンシャル勾配であるため、自由エネルギーの空間分布から求めることができる。一方、流れ場速度は、運動量の輸送方程式である Navier-Stokes 方程式を解かななくてはならないが、その輸送係数は相（オーダーパラメータ）に依存するため、Cahn-Hilliard 方程式と連成する必要がある。

2.2 繊維表面モデル

繊維1本1本が見えるマイクロスケールにおいては、樹脂に対する繊維界面の濡れ性が界面挙動に大きな影響を与える。本研究においては、自由エネルギーに基づき、

多相流体モデルを構築したので、繊維界面の濡れ性も樹脂-空気-繊維間の物理化学相互作用を反映した自由エネルギー Ψ_w に基づき考慮することができる。

$$\Psi_w = - \int \gamma_s \phi dA \quad (6)$$

ここで、流体に対する繊維の接触エネルギーを単位面積当たり $-\gamma_s \phi$ とした。このように自由エネルギー Ψ_w を導入することにより、オーダーパラメータの繊維界面における境界条件は、繊維界面の法線ベクトル $\mathbf{n}$ を用い、次式で表される¹⁹⁾。

$$\mathbf{n} \cdot (\kappa_i \nabla \phi) = -\gamma_s \quad (7)$$

また、樹脂および空気は繊維界面から漏れだすことも入ることもないことを考えると、繊維界面上の拡散流 $\mathbf{J}$ に関して次の境界条件が必要となる。

$$\mathbf{n} \cdot \mathbf{J} = 0 \quad (8)$$

2.3 流れの数値モデル

本研究では、まず、繊維スケールの界面ダイナミクスに大きな影響を与えると考えられる流れ場について考察するため、樹脂硬化や空気の溶存・発泡などの成分や濃度変化に関連する現象については今後の課題とする。これにより、樹脂および空気の流れは、質量保存則および運動量保存則を表す連続の式および Navier-Stokes 方程式によって記述される。

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot \rho \mathbf{u} = 0 \quad (9)$$

$$\rho \frac{D\mathbf{u}}{Dt} = -\nabla \cdot \mathbf{P} + \nabla [\eta \{ \nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T \}] + \mathbf{f}^{(k)} \quad (10)$$

ここで、流体密度を ρ 、力学粘性を η とした。圧力テンソル $\mathbf{P}$ は、流体圧 p のほかに、気液界面からの寄与を含む。

$$\mathbf{P} = [p + \kappa_i (\nabla \rho)^2] \mathbf{I} + \kappa_i \nabla \rho \otimes \nabla \rho \quad (11)$$

ここで、界面張力の大きさを表す現象論的変数 κ_i と界面張力 σ は、平界面における法線方向 ξ に沿った密度勾配を用いて、以下の関係となる。

$$\sigma = \kappa_i \int_{-\infty}^{\infty} \left(\frac{\partial \rho}{\partial \xi} \right)^2 d\xi \quad (12)$$

流体密度や力学粘性に関しては、流体相が何であるかに依存するため、オーダーパラメータを用いる以下の換算式を採用する。

$$\rho = \begin{cases} \rho_R & \text{for } \phi \geq \phi_R \\ \frac{\rho_R + \rho_A}{2} + \frac{\rho_R - \rho_A}{2} \sin\left(\frac{\phi - (\phi_R + \phi_A)}{\phi_R - \phi_A}\right) & \text{for } \phi_A < \phi < \phi_R \\ \rho_A & \text{for } \phi \leq \phi_A \end{cases} \quad (13)$$

$$\eta = \eta_A + \frac{\eta_R - \eta_A}{\rho_R - \rho_A} (\rho - \rho_A) \quad (14)$$

ここで、樹脂および空気を識別する閾値 ϕ_R および ϕ_A を導入した。添字 A および R は、空気 (air) および樹脂 (resin) を指す。

3. 数値シミュレーション

第2節で樹脂-空気系に展開した数値モデルを用い、繊維間に樹脂が流れ込む際の樹脂-空気界面挙動を解析する。差分法により時間・空間の離散化を行い、式(3)および式(10)の逐次時間積分を行うことで、樹脂および空気の流れのダイナミクスを解析する。なお本研究においては、Takada ら¹³⁾と同様の差分スキームを採用したので、スキームの詳細説明を割愛する。

3.1 シミュレーション条件

本研究は、繊維スケールの樹脂および空気の流れのダイナミクスを解析する初めての試みである。そのため、研究初期においては問題を簡略化し、樹脂-空気界面挙動に影響を与える因子の検討を段階的に進め、最終的に実際の条件における解析を行う方針を採用する。まず、繊維スケールの流れ場を支配する含浸圧力勾配と樹脂-空気界面張力との釣り合いに着目し、シミュレーションを行う。

シミュレーション系として、断面形状が正方形の繊維を主流方向に2本ずつ配置した2次元問題とした (Fig. 1)。図に示すように、便宜上、繊維にはF1からF4までの名前を付けている。繊維配置の影響を検討するため、繊維の間隔 (流路幅) が主流の流路幅 d_x と主流と直交する流路の幅 d_y で等しい場合 ($d_y/d_x=1$) および半分にした場合 ($d_y/d_x=0.5$) の2通りを設定した。これらの流路に対し、大小2種類の樹脂-空気界面張力係数 σ を設定し、樹脂-空気混相流れのシミュレーションを行った。

ここで、繊維断面を正方形近似した理由は、曲線を差分法の矩形格子で近似した際の流れ場への影響を排除するためである。また、界面を含む3次元の流れ場構造は複雑になると考えられるため、まずは初等的に2次元問題について検討を行う。また、流れ場の駆動力である含浸圧力勾配に関しては、マイクロスケールの局所では一定

であると考えられ、体積力 g として考慮した。

繊維界面における樹脂-空気界面の境界条件として、静的および動的接触角が 90° となる濡れ性条件 $\gamma_s=0$ を設定した。本来、繊維界面にはサイジング剤等の修飾分子により、樹脂との親和性が高められている。そのような場合、繊維、樹脂および空気のそれぞれの相間で形成される3つの界面間のダイナミックな釣り合い問題となり、興味ある現象に対する因果関係等の考察が複雑になると考えられる。そこで、まず含浸圧力勾配および樹脂-空気界面張力と流れ場構造との関連について見通しが良

くなるように、繊維界面の濡れ性を中立にした。

良く知られているように Navier-Stokes 方程式は無次元化することができるため、流れのダイナミクスは無次元数により支配される。本研究において、無次元化によって得られる無次元数は、レイノルズ数 $Re=\rho U d_x/\eta$ およびキャピラリ数 $Ca=\eta U/\sigma$ であり、それぞれ、慣性力と粘性力の比、粘性力と表面張力の比である。

マイクロスケール流れは層流であるため、主流のレイノルズ数 $Re \approx O(1)$ となるよう $U=\sqrt{gL}$ をもとに体積力を設定した。また表面張力係数については、表面張力が卓越するよう $Ca \approx O(10^{-1})$ と設定した。なお、本シミュレーションに用いた変数値を Table 1 にまとめた。

3.2 数値シミュレーション結果および考察

3.2.1 数値シミュレーション結果

樹脂-空気界面張力係数 $\sigma=0.3$ の流体で、繊維間隔が等しい場合のシミュレーション結果 ($d_y/d_x=1$) を Fig. 2, 繊維間隔が異なる場合 ($d_y/d_x=0.5$) を Fig. 3, 繊維間隔が等しく、樹脂-空気界面張力係数 $\sigma=0.15$ に下げた場合を Fig. 4 に示す。樹脂相および空気相の可視化は、樹脂-空気界面厚さ内の中間密度 $\rho=0.5$ による2値化表示 (赤: 樹脂, 青: 空気) とした。また、圧力分布は等圧領域毎に色分けし、赤, 黄色, 緑, 青の順で圧力が低い。ここで、本研究では含浸圧力勾配を体積力として考

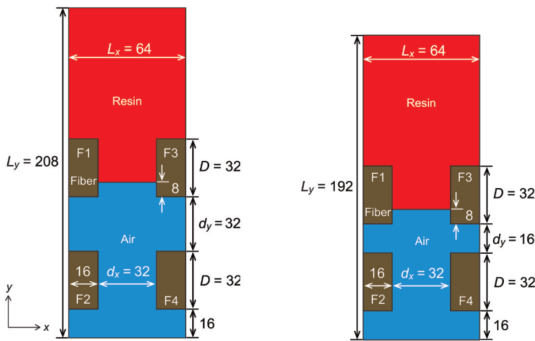


Fig. 1 Schematic representation of simulation setup.

Table 1 Parameters.

	Parameter						
	ρ_R	ρ_A	η_R	η_A	κ_f	Γ	g
Value	1.0	1.247×10^{-3}	0.5	1.71×10^{-3}	0.1	12.0	-1.0×10^{-4}

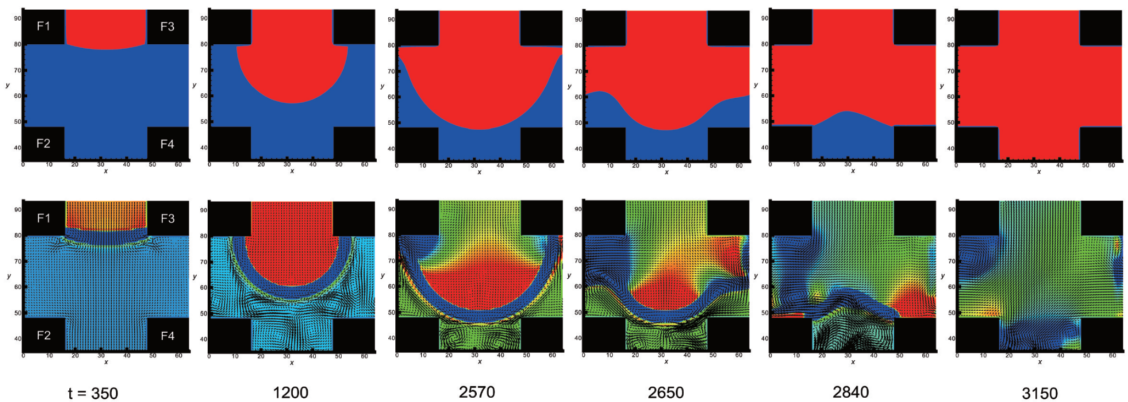


Fig. 2 Snapshots of simulation results at time step t , $\sigma=0.3$, $d_y/d_x=1$. (upper) Red and blue indicate resin and air respectively. The visualization is based on $\rho=0.5$. (lower) The velocity vectors (arrow) and pressure contour (red is high, green is intermediate, and blue is low).

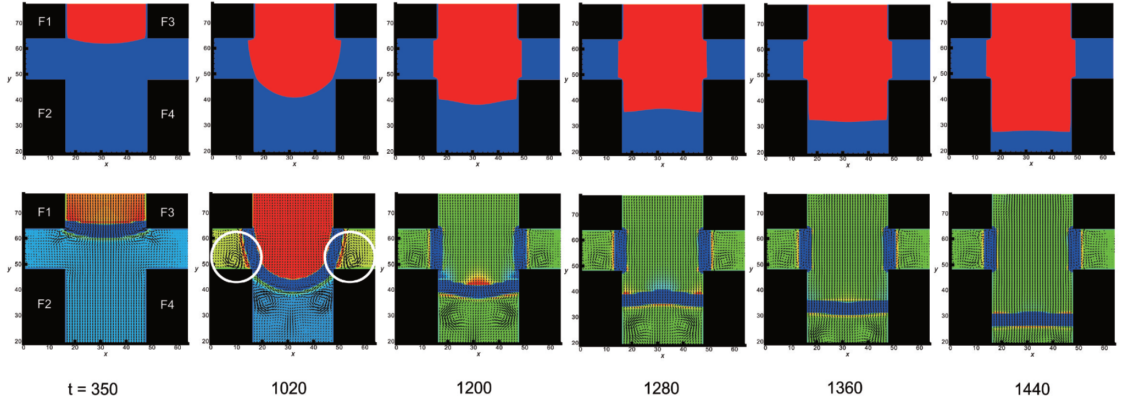


Fig. 3 Snapshots of simulation results at time step t , $\sigma=0.3$, $d_y/d_x=0.5$. (upper) The visualization is based on $\rho=0.5$. (lower) The velocity vectors (arrow) and pressure contour (red is high, green is intermediate, and blue is low).

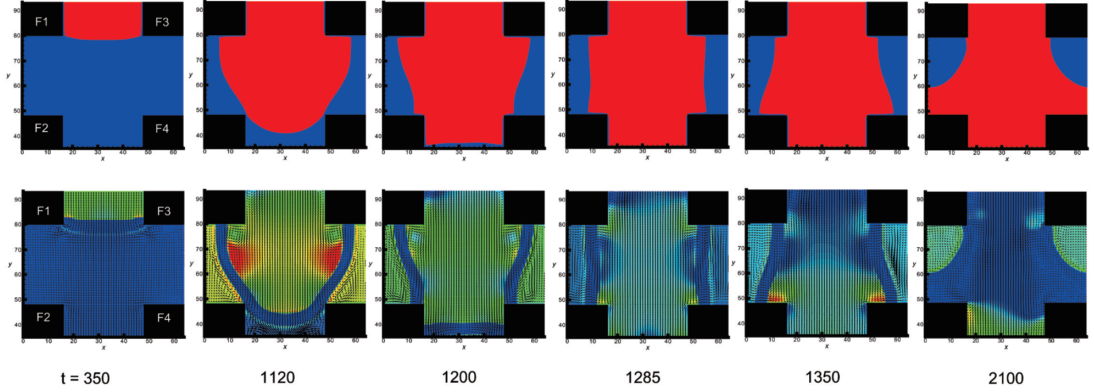
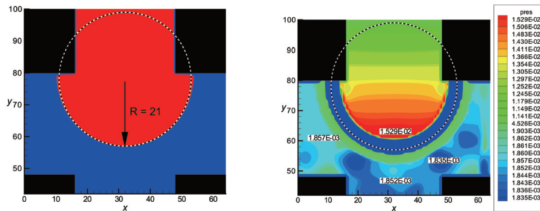


Fig. 4 Snapshots of simulation results at time step t , $\sigma=0.15$, $d_y/d_x=1$. (upper) The visualization is based on $\rho=0.5$. (lower) The velocity vectors (arrow) and pressure contour (red is high, green is intermediate, and blue is low).



(A) Configuration of three phases at $t=350$

(B) Pressure at $t=350$

Fig. 5 (A) The dotted line indicates the circle of the curvature radius, $R=21$. (B) Pressure contour map is shown at its detail to measure Laplace pressure.

慮しているため、圧力分布図は含浸圧力を除いた表示となっていることに注意が必要である。例えば、圧力分布図で一樣に見える場合でも、 $-y$ 方向には含浸圧力勾配による流体駆動力が作用している。

3.2.2 繊維配置と界面挙動との関連

繊維配置の違いによる樹脂-空気界面挙動について検討するため、界面張力係数 $\sigma=0.3$ における $d_y/d_x=1$ (Fig. 2) および $d_y/d_x=0.5$ (Fig. 3) の場合を比較する。図より明らかなように、 $d_y/d_x=1$ においては、最終的にすべての繊維間隙が樹脂によって満たされているのに対し、 $d_y/d_x=0.5$ においては、繊維間隙 F1-F2 および F3-F4 間に空気相が残留している。条件の違いは、繊維間距離 d_y のみであるため、含浸結果の違いは繊維間距離によ

るものと考えられる。

では、繊維間距離の違いが流れ場および樹脂-空気界面挙動にどのような影響を及ぼしているのだろうか。樹脂が繊維間隙 F1-F2 および F3-F4 に進入する $t=350$ においては、Fig. 2 および Fig. 3 で樹脂-空気界面形状に違いはみられず、また流れ場もほぼ同じである。 $d_y/d_x=1$ の条件において、樹脂はその後、 $-y$ 方向に流れながら $\pm x$ 方向にも流れている。 $t=1200$ の圧力分布によると、樹脂相は空気相よりも圧力値が高いため、 $\pm x$ 方向への駆動力は、樹脂-空気間の圧力勾配によるものと考えられる。この圧力勾配は樹脂-空気界面形状に関連している。

樹脂-空気界面には界面張力が働くため、界面が有限の曲率を持つ場合、法線方向に力が生じる。特に主流方向には含浸圧力勾配が存在するため、これと釣り合うような界面曲率となる。このときの2相間には、以下のラプラス式に従う圧力差が生じると考えられる。

$$\Delta P = \frac{\sigma}{R} \quad (15)$$

$t=1200$ における樹脂-空気界面について、曲率半径 R を計測したところ、 $R=21$ となった。これをラプラス式に代入して推定される圧力差は $\Delta P=0.0143$ となった。一方、 $t=1200$ の圧力分布について、詳細に調べると、圧力差 $\Delta P=0.0134$ であった (Fig. 5)。数%のずれは、有限の界面厚さによる曲率の誤差によってほぼ説明できるため、樹脂-空気間の圧力差は界面張力により生じるラプラス圧と考えられる。

ラプラス圧により $\pm x$ 方向に圧力勾配が生じ、それに駆動された樹脂-空気界面は、やがて反対方向から同様に侵入してきた樹脂-空気界面と合体する ($t=2570$)。Fig. 2 の場合、合体した界面では表面張力により曲率が小さくなるため、ラプラス圧は減少する。一方、 $-y$ 方向に流れる界面先端では曲率が大きいためラプラス圧が高いままである。このことにより、主流方向から $\pm x$ 方向にさらに大きな圧力勾配が生じる。つまり、ひとたび界面が合一すると、圧力勾配により、その領域に向かう樹脂流れが生じるため、次第に繊維間隙は樹脂で満たされる ($t=2650, 2840$)。このとき、界面張力が界面を平坦にする作用により、主流における界面形状が下に凸 ($t=2650$) から上に凸 ($t=2840$) へと変化する様子も観察される。このような非定常な界面運動を伴いながら、ついには完全に樹脂で満たされる ($t=3150$)。

一方、 $d_y/d_x=0.5$ の条件においても、ラプラス圧が生じ、樹脂-空気界面を $\pm x$ 方向に駆動する圧力勾配が生じる。しかしながら、樹脂-空気界面は、 $\pm x$ 方向に進

む過程の $t=1020$ において、繊維 F2 および F4 に接触する。これにより、繊維間隙の空気相は樹脂-空気界面によって蓋をされた状態となる。樹脂-空気界面は、 $-y$ 方向の移流速度を持つため、繊維間隙の空気相にはせん断力が作用し、繊維 F2 および F4 上に微小な渦が生じる (Fig. 3 中の白丸内)。しかしながら、この渦によって界面形状に微小擾乱が生じ、不安定化するようなことはみられない。これは、界面張力が大きく、微小擾乱はすぐに平滑化されてしまうためと考えられる。さらに、仮に変形をするにしても、 $d_y=16$ と狭い間隙に形成された界面のため、大きな曲率を持たなければ、反対方向から侵入する樹脂-空気界面と合一できない。ラプラス式から分かるように、曲率ゼロの平坦な界面を曲率の大きな界面に変形させるには相応の圧力勾配が新たに必要となる。例えば、 $t=1440$ において、主流方向の最大速度は中心付近の $u_y=-0.065$ であったが、仮にこの流れを繊維 F2 および F4 上に衝突させ、運動エネルギーのすべてを圧力として変換しても、ラプラス式から見積もられる曲率半径は $R=71$ である。つまり間隙 $d_y=16$ に対して見積もられた界面はほぼ直線状であるため、空気と樹脂の入れ替わるような流動は起こり得ない。したがって、繊維間隙 F1-F2 および F3-F4 に形成された界面は流れ場中でも安定して存在することになる。

以上から、繊維配置は単に流れ場の流線を決める境界条件として働くだけでなく、樹脂-空気界面挙動を決定付ける役割を果たしていることが分かる。繊維間隙に気相が残留するか否かは、含浸圧力勾配による流動で繊維間隙を塞ぐまでの時間スケールと、ラプラス圧による流動で隣の樹脂-空気界面と合一するまでの時間スケールのうち、どちらが早いかで決まる。特に、本シミュレーション結果を樹脂含浸のシナリオにおいて解釈すると、繊維スケールのボイド形成を避けるためには、ラプラス圧による助けを借りられるよう樹脂含浸をゆっくりと行うほうが良いことになる。つまり、樹脂含浸圧力勾配に対してラプラス圧の効果が優位であることが望ましい。

一方、ラプラス圧は樹脂-空気界面張力と樹脂-繊維間の濡れ性によって決定される¹¹⁾。したがって、ラプラス圧の効果を優位にする観点からは、樹脂含浸速度を抑えることに加え、樹脂-空気界面張力と樹脂-繊維間の濡れ性の向上が重要であると考えられる。

3.2.3 界面張力と界面挙動の関連

界面張力の大きさと界面挙動との関連を検討するため、繊維間隙 $d_y/d_x=1$ における界面張力係数 $\sigma=0.3$ (Fig. 2) および $\sigma=0.15$ (Fig. 4) の場合を比較した。

界面張力係数を Fig. 4 で $\sigma=0.15$ と Fig. 2 の $\sigma=0.3$ の半分を設定した場合、樹脂-空気界面の変形に必要な仕事は半分で済む。含浸圧力勾配は $\sigma=0.3$ の場合と同じであるから、Fig. 4 上から分かるように、 $\sigma=0.3$ のときより短い時間で樹脂-空気界面が繊維 F2 および F4 に到達する。このとき、界面張力が低いため、 $\pm x$ 方向の樹脂流動の駆動力となるラプラス圧による圧力勾配も小さく、繊維間隙 F1-F2 および F3-F4 の空気が完全に樹脂と入れ替わる前に、間隙は樹脂-空気界面により蓋がされてしまう。その後、繊維間隙に形成された界面は界面張力により直線状になる ($t=1285$)。その界面位置は、入れ替わった樹脂-空気量を反映して繊維間隙 F1-F2 および F3-F4 の少し内側 (主流から離れる方向) となる ($t=1285$)。これにより、繊維 F2 および F4 の角部には、主流が直接衝突するため、その運動エネルギーの一部が圧力に変換されて、圧力上昇が生じる ($t=1350$)。この圧力上昇により、 $\pm x$ 方向への樹脂流動が生まれ、反対方向から侵入してきた樹脂-空気界面と合一する ($t=2100$)。しかしながら、繊維間隙 F1-F2 および F3-F4 の空気相は、それぞれ F1, F3 上に気泡として残留した。この気泡は、F1 および F3 のバックステップ部に存在するため、主流の衝突による圧力上昇を期待できない。さらに、ラプラス圧による流体駆動力は気泡から樹脂へと向かうため、樹脂相が F1 および F3 の繊維界面に沿って、そのまま空気相に侵入する流れは起きえない。また、本シミュレーション条件では、気泡変形を起こすに十分な流れ ($Ca \gg 1$) ではないため、気泡はそのままの形状で間隙内に存在した。

3.2.4 シミュレーション条件の影響

シミュレーション条件と実際の含浸条件の違いによる影響を考察する。本シミュレーション条件を有次元に戻すと、 $U=0.2[\text{m/s}]$, $d_x=100[\mu\text{m}]$, $\eta=10^{-2}[\text{Pa}\cdot\text{s}]$, $\sigma=20$ or $10[\text{mN/m}]$ である。これは、水の 10 倍の粘度、0.4 倍または 0.2 倍の表面張力を持つ流体のマイクロスケール流れに相当する。実際の樹脂に関して、粘度は本シミュレーション条件の数倍から数百倍程度、表面張力に関しては同じオーダーであると考えられる。含浸速度については、繊維充填率や繊維束周りの樹脂の充足率にも依存し、現段階では評価できない。しかし、実際の含浸条件においては、繊維間距離がさらに短く、樹脂粘度がさらに大きいため、レイノルズ数は $Re \leq 10^{-1}$ 、キャピラリ数は $Ca \geq 10^{-1}$ になると考えられる。

$Re \leq 1$ であれば、常に粘性力が支配的であるため、流れ場の構造 (渦の有無) は変わらないが、流れの時定数

$\tau = d_x/U$ が変わることには注意が要る。例えば、異なる分岐流路 (繊維間距離) を持つ系を実際と異なるレイノルズ数で解析する場合には、それぞれの分岐流路内における界面移動の時定数の比を合わせておく必要がある。その意味で、本シミュレーション結果から、繊維間隙サイズに大小の差がある場合、狭い側に気相が閉じ込められ易くなる可能性がある、またそれを防ぐためにはゆっくりと樹脂含浸したほうが良い、ということは断定でき、ボイド形成に関わる繊維間距離の比の閾値が少なくとも $d_y/d_x=0.5$ 以上であるということまでは断定できない。

キャピラリ数が大きい場合 ($Ca \gg 1$) には、気泡挙動に関して質的に異なる可能性がある。なぜなら、 $Ca \gg 1$ では、気泡付近の流れ場による粘性力が卓越するため、ダイナミックな気泡変形が生じると考えられるからである。

これまでに平板間の気泡挙動に関してはキャピラリ数の幅広い範囲で調べられている^{20,21)}。しかし、繊維からの気泡離脱に関しては、キャピラリ数以外にも下記の幾何的因子が重要となり単純ではない。気泡離脱には、気泡-繊維界面のどこかに主流の衝突による圧力上昇が起き、そこを起点とした樹脂の侵入 (繊維への濡れ) が起きなければならないと考えられる。圧力上昇には、主流がどのような角度で気泡-繊維界面に衝突するかが影響し、その侵入角度には主流の様相を決める繊維形状や気泡-繊維界面の接触角を決める濡れ性が影響する。このように気泡離脱は、濡れ性や繊維形状のような界面の幾何的境界条件と気泡自身の動的な幾何的变化を含む非常に複雑な現象となることが考えられる。本シミュレーション結果は、残留した気泡が流れ場中でも安定して間隙内部に存在することを示しているが、実際の樹脂含浸過程においても同様の現象が起きるかは注意が必要であり、気泡離脱条件の検討は、今後の課題である。

3.2.5 マルチスケール解析への展開

最後に、今後の樹脂含浸のマルチスケール解析の方向性を検討する上で、単繊維スケールの数理モデルと上位階層である繊維束スケールの数理モデルとのスケール接続の議論を行う。著者らが知る限り、現在、繊維束スケールの解析で最も成功している数理モデルは Advani らの提案するデュアルスケールモデル¹²⁾と考えられる。デュアルスケールモデルでは、繊維束内の樹脂含浸を 1 次元の樹脂浸透問題に置き換えるため、単繊維スケールのあらゆる諸量は、繊維束内構造に基づいて粗視化されていることになる。

当初、デュアルスケールモデルは、樹脂のみの単相流

体に対して構築されたモデルであったため、浸透係数については繊維束内構造に基づいた合理的な粗視化手法が提案されている一方^{7,8,22)}で、繊維束内の樹脂-空気界面の考慮については緒言で述べた圧力補正項のアドホックな導入によって対処されているのが現状である。さらに、その圧力補正項の検討についても、ラプラス圧に関して単純化した理論的な検討はあるものの²³⁻²⁵⁾、パラメータの種類や数、それら関数の形も含めて、一般的条件下でなされているわけではない。

スケール接続を行うためには、繊維束スケールの境界条件となる圧力補正項に対応する単繊維スケールの物理的な実体を明らかにし、その実体と整合する繊維束スケールの境界モデルを構築することが望ましい。そのためには、本研究で遂行した数値解析を網羅的にを行い、その結果を粗視化することが有効なアプローチの1つと考えられる。例えば、まず、繊維束内の単繊維配置に関する周期構造に着目し、その周期構造の最小単位を均質化法におけるユニットセルのように定義する。次に、想定される樹脂流量範囲においてユニットセルの流入ベクトル条件を様々に与え、ユニットセル内における樹脂-空気混相流解析を行うことにより、繊維間隙にトラップされる気泡体積および単繊維間に形成される樹脂-空気界面の形状と圧力の統計的關係を得る。これにより、Advaniらがアドホックに与えた補正項に代わる、単繊維スケールの流体運動に基づいた繊維束境界モデルの構築が可能と期待される。

この粗視化の結果、単繊維スケールのラプラス圧と繊維束スケールのラプラス圧の意味が異なることに注意が必要である。繊維束内においては、樹脂-空気界面が複数存在するため、繊維束スケールのラプラス圧は、それら樹脂-空気界面の総体として粗視化された効果である。そのため、デュアルスケールモデルにおける圧力補正項の1つであるラプラス圧項において、その符号の正負や値の大小によって、単繊維スケールの濡れ性について濡れやすい・濡れにくいと解釈することには議論の余地があり、今後、単繊維スケールの数値解析から検討しなければならない課題の1つである。

また、スケール接続の別のアプローチとして、何らかの物理量に関して単繊維スケールと繊維束スケールとを直接繋ぐ法則が発見された場合、その法則を利用した数理モデルの構築が考えられる。例えば、高分子における応力光学則²⁶⁾や乱流におけるコルモゴロフのスケリング則²⁷⁾は、小さなスケールの影響をより大きなスケールに取り入れる直接的で強力な数理モデルを与えてくれ

る。したがって、スケール間を結ぶ法則やマルチスケールに渡る普遍的な関係を探求することが有効なマルチスケールモデル構築に繋がると期待される。本研究で用いた数理モデルは、そのための手段の一部として、単繊維スケールの流れの物理を詳細に検討できるシミュレーターとしても有効であると考えられる。

4. 結 言

本研究では、ボイド発生メカニズムの解明を目指し、単繊維スケールの樹脂-空気混相流の数理モデルを構築した。構築した数理モデルを用い、繊維スケールの樹脂-空気界面挙動の解析を行った。以下に本シミュレーション範囲内における結論をまとめた。

(1) 繊維スケールの樹脂含浸においては、含浸圧力勾配による樹脂流動のほかに、ラプラス圧による流動が存在することが示唆された。

(2) 繊維間隙に空気相が残留するか否かは、含浸圧力勾配による樹脂流動の時間スケールとラプラス圧による時間スケールとで決まることが示唆された。

(3) 繊維間隙に樹脂を充填するためには、樹脂含浸圧力勾配に対してラプラス圧の効果が優位であることが望ましいことが示唆された。

(4) ラプラス圧の効果を優位にするためには、含浸速度を抑えること、加えて、樹脂-空気界面張力と樹脂-繊維間の濡れ性の向上が重要であることが示唆された。

(5) 樹脂-空気界面張力が小さい場合、空気相は繊維間隙全体には残留せず、繊維のバックステップ部に気泡として存在することが示唆された。

なお、本研究は文部科学省科学研究費補助金(21656032)の助成を受けたものである。記して謝意を表する。

参 考 文 献

- 1) 日本複合材料学会編：複合材料活用事典，産業調査会 (2001)，p. 457.
- 2) P. Simacek & S.G. Advani : *Polym. Compos.*, **17**, (1996), 887-899.
- 3) C. Binetruy, B. Hilaire & J. Pabiot : *Compos. Sci. Technol.*, **57** (1997), 587-596.
- 4) K.M. Piliai & S.G. Advani : *Polym. Compos.*, **19**, (1998), 71-80.
- 5) P. Simacek & S.G. Advani : *Compos. Sci. Technol.*, **63**, (2003), 1725-1736.
- 6) N. Kuentzer, P. Simacek, S.G. Advani & S. Walsh : *Composites Part A*, **37** (2006), 2057-2068.

- 7) F. Zhou, N. Kuentzer, P. Simacek, S.G. Advani & S. Walsh : *Compos. Sci. Technol.*, **66** (2006), 2795–2803.
- 8) F. Zhou, J. Alms & S.G. Advani : *Compos. Sci. Technol.*, **68** (2008), 699–708.
- 9) P.G. de Gennes, F. Brochard-Wyart & D. Quere : *Gouttes, Bulles, Perles et Ondes* (1st Ed.), Belin (2002) (奥村 剛訳：表面張力の物理学—しずく, あわ, みずたま, さぎなみの世界—, 吉岡書店 (2003), p. 8).
- 10) V. Neacsu, A.A. Obaid & S.G. Advani : *Int. J. Multiph. Flow*, **32** (2006), 677–691.
- 11) P.G. de Gennes : *Rev. Mod. Phys.*, **57** (1985), 827–863.
- 12) J.M. Lawrence, V. Neacsu & S.G. Advani : *Composites Part A*, **40** (2009), 1053–1064.
- 13) N. Takada, J. Matsumoto, S. Matsumoto & N. Ichikawa : *J. Comput. Sci. Technol.*, **2** (2008), 318–329.
- 14) D. Mattia & Y. Gogotsi : *Microfluid Nanofluid*, **5** (2008), 289–305.
- 15) C.W. Hirt & B.D. Nichols : *J. Comput. Phys.*, **39** (1981), 201–225.
- 16) T. Inamuro, T. Ogata, S. Tajima & N. Konishi : *J. Comput. Phys.*, **198** (2004), 628–644.
- 17) W.J. Boettinger, J.A. Warren, C. Beckermann & A. Karma : *Ann. Rev. Mater. Res.*, **32** (2002), 163–194.
- 18) F. Reif : *Fundamentals of Statistical and Thermal Physics*, McGraw-Hill, Inc. (1965), p. 173.
- 19) D. Jacqmin : *J. Comput. Phys.*, **155** (1999), 96–127.
- 20) R.G. Cox : *J. Fluid Mech.*, **37** (1969), 601–623.
- 21) J.M. Rallison : *Ann. Rev. Fluid Mech.*, **16** (1984), 45–66.
- 22) P.B. Nedanov & S.G. Advani : *Polym. Compos.*, **23** (2002), 758–770.
- 23) E. Bayramli & R.L. Powell : *J. Colloid Interface Sci.*, **138** (1990), 346–353.
- 24) V. Neacsu, A.A. Obaid & S.G. Advani : *Int. J. Multiphase Flow*, **32** (2006), 661–676.
- 25) K. Lappalainen, M. Manninen, V. Alopaeus, J. Aittamaa & J. Dodds : *Transp. Porous Med.*, **77**, (2009), 17–40.
- 26) M. Doi & S.F. Edwards : *The Theory of Polymer Dynamics*, Oxford University Press, New York (1986), p. 221.
- 27) 日野幹雄：流体力学, 朝倉書店, 東京 (1992), p. 377.