低圧トランスファ成形用エポキシ樹脂の円管内流動解析*

佐伯 準一^{*1}, 金田 愛三^{*2}Flow Analysis of an Epoxy Compound for Low Pressure Transfer Molding
in a Circular Cross-Sectional Channel

Junichi SAEKI and Aizou KANEDA

A method for analyzing mold filling dynamics of thermosets in a circular channel has been developed. A constitutive equation model to describe isothermal viscosity changes of commercial molding compounds was derived as a function of time and temperature. This model was used for predicting actual nonisothermal viscosity changes. The simultaneous equations, including the conservation equations of total mass, momentum and energy, and the constitutive equation model were solved numerically to obtain rheological changes of an epoxy compound during mold filling in a circular channel. The calculated profiles of apparent mean viscosity with time of the epoxy compound corresponded well with the experimental data.

Key Words: Epoxy Compound, Transfer Molding, Flow Channel, Viscosity Change

1. 緒 言

エポキシ樹脂は、その硬化物が接着性、機械的強度、電気絶縁性、耐薬品性などに優れた性質を有しているため、電気機器の構造絶縁材料や電子、機構部品の封止材料としても広く用いられている。これらの成形品の特性は、エポキシ主剤と、これに組合せる硬化剤、充てん剤などの種類、量によって決まるため、要求仕様に応じて材料の形態や成形法も異なっている。

製品の寸法精度やインサート材の損傷、変形防止が要求される場合は、低圧トランスファ成形法⁽¹⁾を用いふのが一般的である。これは製品の大量生産にも適し、成形材料中には硬化剤、充てん剤のほかに各種添加剤なども含まれている。この樹脂の組成は、各材料メーカーのノウハウになっており、ポリウレタン成形やエポキシ注形などの分野で行われている母材の分子量と粘度との関連の基礎検討⁽²⁾はできがたい。さらに、硬化反応が速く、材料が等温状態に至る間に粘度変化が急激に起きるため、反応のきわめて遅い系で行う基

本的な流動特性値の把握^{(2)~(4)}ができていない。このため、材料の流動性や硬化性については、簡便な市販装置、手法を用いて見掛けの特性値を求め、材料間の相対比較を行うにとどまっている^{(1)~(5)}。

著者らは、製造工程における金型の流路諸元や成形条件を合理的に求めるための基礎検討に着手し、まず、粘度のずり速度依存性は小さく、温度の影響が支配的であることなどを明らかにした⁽⁶⁾。また、成形性評価に標準的に用いられているEMMIスパイラルフロー金型での最終流動距離読取り法の問題点を明らかにした⁽⁷⁾。これに代わり、流路内を流動中の樹脂の見掛け粘度の変化などを迅速、高精度に求める自動測定装置を開発し、成形条件と特性値との関連を詳細に把握した⁽⁸⁾。本報では、これまでの知見を基礎にして、円管内での樹脂の流動現象を予測する手法を検討し、実測値との比較ならびに解析結果の考察を行った。

2. 解 析 方 法

2・1 等温粘度式 高分子材料の流動解析において基本となるのは、溶融粘度の表示法である。反応を伴わない熱可塑性樹脂の場合、次の関数の形で表すのが一般的である⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾。

$$\eta = f(\dot{\gamma}, T) \cdots \cdots (1)$$

* 平成元年4月3日 第66期通常総会講演会において講演、原稿受付 昭和63年12月5日。

^{*1} 正員、(株)日立製作所生産技術研究所 (〒244 横浜市戸塚区吉田町292)。

^{*2} (株)日立製作所生産技術研究所。

ここで η は粘度, $\dot{\gamma}$ はずり速度, T は温度である。一方, 熱硬化性樹脂の場合は時間の経過とともに反応が進み, 分子量の増加による非可逆的な粘度上昇が起きる⁽²⁾。緒言で述べたように, 組成が樹脂メーカーのノウハウになっている場合は, 反応状態や分子量分布などに関連づけて粘度を記述することは難しいので, ここでは次のように時間 t をパラメータに加えることにする。

$$\eta = f(\dot{\gamma}, T, t) \quad \dots\dots\dots (2)$$

さらに, 本報で取扱う樹脂系では粘度のずり速度依存性は非常に小さいため⁽⁶⁾, これを無視すると次式のようになる。

$$\eta = f(T, t) \quad \dots\dots\dots (3)$$

したがって, 式(3)の関数の形で等温粘度式を導くことにする。

図1に T をパラメータとしたときの熱硬化性樹脂の η - t 特性を示す。ここで η_0 は $t=0$ における初期粘度, t_0 はゲル化時間である。各 T において, η は η_0 から上昇を続け, t_0 で ∞ となる。また, T が高いほど η_0 , t_0 は小さくなり, η の立上りは早くなる。図1の特性を表現するために, ここでは次のモデルを用いることにした。

$$\eta = \eta_0(T) \{ [1 + t/t_0(T)] / [1 - t/t_0(T)] \}^{c(T)} \quad \dots\dots\dots (4)$$

式(4)は次の境界条件を満足する。

$$t=0 \text{ で } \eta = \eta_0(T) \quad \dots\dots\dots (5)$$

$$t=t_0(T) \text{ で } \eta = \infty \quad \dots\dots\dots (6)$$

また, η_0 と T , t_0 と T の関係はいずれもアンドレードの式⁽¹¹⁾の形で表せる見通しを得ており⁽⁸⁾, 次のようにした。

$$\eta_0(T) = a \exp(b/T) \quad \dots\dots\dots (7)$$

$$t_0(T) = d \exp(e/T) \quad \dots\dots\dots (8)$$

図1 等温状態における熱硬化性樹脂の η - t 特性

C は図1の粘度上昇曲線のふくらみ方を表す係数であり, ここでは次の形にした。

$$C(T) = f/T - g \quad \dots\dots\dots (9)$$

式(7)~(9)において, a, b, d, e, f, g は, 測定条件に左右されない, 樹脂固有の流動・硬化特性を表す係数である。

2.2 非等温粘度変化の予測 熱硬化性樹脂のトランスファ成形工程では, 金型温度は通常 180°C 程度

の高温に保たれており, 樹脂は流路壁から熱を吸収しながら流動する。したがって, 樹脂は温度の上昇による溶融と時間の経過による硬化反応の進行が同時に起き, その粘度変化は複雑になる。これを予測するためにここでは次の取扱いをした。式(4)で

$$\mu = [\eta/\eta_0(T)]^{1/C(T)} \quad \dots\dots\dots (10)$$

$$\tau = t/t_0(T) \quad \dots\dots\dots (11)$$

と置くと次式が得られる。

$$\mu = (1 + \tau)/(1 - \tau) \quad \dots\dots\dots (12)$$

ここで μ は無次元粘度, τ は無次元時間である。 μ - τ 特性を図2(a)に示す。いま, 図2(a)中に示したように, 状態1で時間 t_1 , 温度 T_1 とし, ここからそれぞれ微少量 Δt , ΔT 変化し, 状態2で t_2 , T_2 になったとする。これにより, μ - τ 特性曲線上では τ_1 から $\Delta \tau$ 変化し μ_1 が μ_2 になる。すなわち, t , T が同時に変化する現象を, 1本の曲線上の変化として取扱うことができる。 $\Delta \tau$ を微小量とすれば近似的に次式が成立する。

$$\mu_2 \approx \mu_1 + \left(\frac{d\mu}{d\tau} \right)_{\mu_1} \Delta \tau$$

(a) 無次元粘度変化

(b) 実際の粘度変化

図2 非等温状態における粘度変化の予測法

$$= \mu_1 + 2\Delta\tau/(1-\tau_1)^2 \quad \dots\dots\dots(13)$$

また, $\Delta\tau$ は近似的に次式で求まる.

$$\Delta\tau = \left(\frac{\partial\tau}{\partial t} \right)_{\tau_1} \Delta t + \left(\frac{\partial\tau}{\partial T} \right)_{\tau_1} \Delta T \\ = \Delta t [d \exp(e/T_1)] + \Delta T e \tau_1 / T_1^2 \quad \dots\dots\dots(14)$$

式(14)を式(13)に代入すれば, 既知の値を用いて μ_2 が求まる. 式(12)より

$$\tau_2 = (\mu_2 - 1)/(\mu_2 + 1) \quad \dots\dots\dots(15)$$

となる. 式(10)から状態2の粘度は次式で求められる.

$$\eta_2 = \eta_0(T_2) \mu_2^{(T_2)} \quad \dots\dots\dots(16)$$

以上の手順を $\tau=0$ から1とみなせる無次元時刻まで繰返せば, 図2(b)に示す初期状態からゲル化に至るまでの実際の粘度変化が計算できる.

2.3 円管内流動解析

円管内での流動解析にあたり次の仮定を設けた. (1)溶融樹脂は非圧縮性であり, 管軸方向にクリープ流動する^{(7),(12)}. (2)管壁でのすべりはない. (3)流動先端部の噴水効果の現象は無視する. (4)管壁は金型温度に保たれており, 樹脂と完全接触する. (5)熱物性値は温度によらず一定とする. (6)硬化反応による発熱は無視する. (7)流路に入る樹脂は常に初期状態が保たれている. 以上の仮定のもとに質量, 運動量, エネルギーの保存方程式はそれぞれ次のようになる.

$$Q = 2\pi \int v_z r dr \quad \dots\dots\dots(17)$$

$$\frac{\partial P}{\partial z} = -\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \eta \frac{\partial v_z}{\partial r} \right) \quad \dots\dots\dots(18)$$

$$\rho C_p \left(\frac{\partial T}{\partial t} + v_z \frac{\partial T}{\partial z} \right) = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \lambda \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \eta \left(\frac{\partial v_z}{\partial r} \right)^2 \quad \dots\dots\dots(19)$$

ここで Q は流量, v_z は管軸方向速度, r は半径方向座標, P は圧力, z は管軸方向座標, η は粘度, ρ は密度, C_p は定圧比熱, T は温度, t は時間, λ は熱伝導率である. これらの式を先に述べた粘度式, 非等温粘度変化の予測法と組合せて, 任意時刻, 場所における温度, 粘度, 速度などの物理量を算出することが必要となるが, 理論解は求まらないので, ここでは図3に示す取扱いを行った. すなわち, r と t 方向をそれぞれ Δr と Δt の間隔に分割し, 格子点を設けた. ここで, i, j はそれぞれ r と t 方向の格子点位置である. また, (i, j) は格子点が受け持つゾーンを示し, 格子点で求めた T, η はそのゾーン内も同じ値になっているものとして取扱った. いま, 時刻 j までの物理量がすべて求まっているとして, ここから Δt 経過後の時刻 $j+1$ の状態を求める手法について述べる.

式(19)を陽解法を用いて差分近似⁽¹³⁾すると格子点 $i, j+1$ における T は次式で求まる.

$$T_{i,j+1} = (T_c + T_f)/(1 + v_{zi,j}/\bar{v}_{zi}) + T_{i,j} \quad \dots\dots(20)$$

ここで T_c, T_f はそれぞれ熱伝導, セン断発熱項を示し, $\bar{v}_{zi}$ は時刻 j の管内平均流速である. また,

$$T_c = \frac{\lambda}{\rho C_p} \frac{\Delta t}{\Delta r^2} \left(\frac{T_{i+1,j} - T_{i,j}}{i} + T_{i+1,j} - 2T_{i,j} + T_{i-1,j} \right) \quad \dots\dots\dots(21)$$

$$T_f = \frac{\eta}{\rho C_p} \frac{\Delta t}{\Delta r^2} (v_{zi,j} - v_{zi-1,j})^2 \quad \dots\dots\dots(22)$$

である. 式(20)~(22)を用いて新しい時刻における r 方向各格子点, ゾーンの T が求まる. なお, 管中心では軸対称性を考慮した差分式を用いたが, ここでは省略する. T が求まったので, 式(4), (7)~(16)を用いて新しい時刻における η が, 対応する格子点, ゾーンに割り当てられる.

次に, ゾーンの境界面ではせん断応力と速度 v_z が等しく, 管壁で $v_z=0$, 管中心で $\partial v_z/\partial r=0$ という条件式を用いて, 式(18)を各ゾーンごとに r について2階積分すれば $\partial P/\partial z$ のみを未知数としてゾーン内の速度分布 $v_z(r)_{(i,j+1)}$ を求める式が導かれる. これを式(17)に代入し r 方向のゾーンの座標間で積分すれば $\partial P/\partial z$ のみを未知数として各ゾーンの流量 $Q_{(i,j+1)}$ を求める式が導かれる. これを異積したものが円管内の総流量 Q_T と一致する. このようにして導いた Q_T の算出式と, ニュートン流体が円管内を等温定常層流するときの理論解から求めた Q_T の算出式から次の関係が得られる.

$$\frac{1}{\eta_{aj+1}} = \sum_{i=1}^{n-1} \left[2A_{j+1} - \frac{\alpha_{i+1} + \alpha_i}{\eta_{(i,j+1)}} \right] (\alpha_{i+1} - \alpha_i) + \frac{(1 - \alpha_n)^2}{\eta_{(n,j+1)}} \quad \dots\dots\dots(23)$$

また,

$$A_{j+1} = \frac{\alpha_{i+1}}{\eta_{(i,j+1)}} + \sum_{k=i+1}^{n-1} \frac{\alpha_{k+1} - \alpha_k}{\eta_{(k,j+1)}} + \frac{1 - \alpha_n}{\eta_{(n,j+1)}} \quad \dots\dots\dots(24)$$

$$\alpha_i = (r_i/R)^2 \quad \dots\dots\dots(25)$$

である. ここで, η_a はニュートン流動とみなしたとき

図3 格子点とゾーンの定義

の断面方向の等価粘度, n は管壁から一つの内側の格子点, (n) は管壁と接するゾーン, R は管半径である。ゾーン平均流速は次式のようになる。

$$\bar{v}_{z(i,j+1)} = \bar{v}_{zj+1} \eta_{aj+1} \left[2A_{j+1} - \frac{\alpha_{i+1} + \alpha_i}{\eta_{(i,j+1)}} \right] \dots (26)$$

金型内を樹脂が充てんする過程では, 粘度が変化しながら流動距離が伸び, 圧力損失の値が変化する。この圧力損失が成形機の設定最大圧力よりもかなり小さい場合には流量一定流動となり, 近い場合には圧力一定流動となる⁽⁸⁾。まず, 流量一定流動の場合, 次式が成立する。

$$\bar{v}_{zj+1} = Q_T / \pi R^2 \dots (27)$$

$$\Delta \ell_{j+1} = \bar{v}_{zj+1} \Delta t \dots (28)$$

$$\Delta p_{j+1} = (8 \eta_{aj+1} Q_T \Delta \ell_{j+1}) / \pi R^4 \dots (29)$$

ここで, $\Delta \ell$, Δp はそれぞれ流動距離 ℓ , 圧力損失 ΔP の増分である。これらを時刻 j までに求まった累積値に加えれば, 新しい時刻における ℓ , ΔP が計算できる。また, 流路内に存在する樹脂全体をニュートン流動とみなしたときの等価粘度である平均見掛け粘度 $\bar{\eta}_{ar}$ は次式で求まる。

$$\bar{\eta}_{arj+1} = (\bar{\eta}_{arj} + \eta_{aj+1}) / (j+1) \dots (30)$$

ここで, $\bar{\eta}_{arj}$ は時刻 j までに求まった平均見掛け粘度である。一方, 圧力一定の場合, 時間の経過とともに Q_T , $\bar{v}_z$ が変化する。したがって, 同じ Δt を与えても管内に流入する樹脂の $\Delta \ell$ の長さは時刻により異なっている。この解析は非常に複雑になるので, ここでは, Δt が同じならば $\Delta \ell$ が異なってもその時間内に起きる粘度変化は同じとみなして $\bar{v}_z$ を求める式を導いた。この結果を次式に示す。

$$\bar{v}_{zj+1} = [(B_{j+1}^2 + P_s R^2 / 2 \eta_{a1} \Delta t)^{1/2} - B_{j+1}] / 2 \quad (31)$$

また,

$$B_{j+1} = \left(\sum_{m=2}^{j+1} \eta_{am} \bar{v}_{zj-m+2} \right) / \eta_{a1} \dots (32)$$

である。ここで, P_s は定数として与えられる圧力である。これらを式(28)に代入して $\Delta \ell_{j+1}$ が求まる。この場合の $\bar{\eta}_{ar}$ は次式のようになる。

$$\bar{\eta}_{arj+1} = \left(\sum_{m=1}^{j+1} \eta_{am} \bar{v}_{zj-m+2} \right) / \sum_{m=1}^{j+1} \bar{v}_{zm} \dots (33)$$

流量一定流動の場合は式(27)を, 圧力一定流動の場合は式(31), (32)を用いて $\bar{v}_{zj+1}$ を求め, 式(26)に代入すれば各ゾーンの平均流速 $\bar{v}_{z(i,j+1)}$ が求まる。そしてこの値を, 対応する格子点の速度 $v_{zi,j}$ と近似的にみなして, 時刻 $j+2$ の熱収支の計算に必要な速度項の配列を行った。解析プログラムでは Δt 進めるごとに ΔP の値を P_s と比較し, P_s に達したところで流量一定流動から圧力一定流動の計算に切換えるようにした。また, 圧力一定流動の管内平均流速算出式(31)に

において $\bar{v}_{zj+1} = 0$ とみなせる状態になった場合には, 流路端まで樹脂が達していなくても流動停止とした。本報では, $\phi 2$ mm の円管を対象流路とし, $\Delta r = 0.1$ mm, $\Delta t = 1/1000$ s を与えて計算を行った。

3. 実験方法

3.1 試料 用いた試料は, 市販の低圧トランスファ成形用エポキシ樹脂 [日立化成工業(株)製 CEL 757 PH] とした。EMMI スパイラルフロー金型での 180°C における流動距離は 30 inch, JIS K 6910 の熱板法による 160°C におけるゲル化時間は 44 s となっている。

3.2 金型 用いた金型⁽⁸⁾の概略を図4に示す。ポットに投入された樹脂は断面積の大きいランナを通り, スパイラル状の円管流路内を流動する。ランナ壁に取付けた圧力検出器 (Dynisco 社製 PT-435 A) で円管内を流動中の樹脂の圧力損失を測定した。円管の諸元は $\phi 2$ mm, 全長 4.85 m である。なお, 本報で用いた成形条件の範囲では終端まで樹脂が流れることはなく, 流路の途中で硬化反応により流動を停止する。

3.3 装置 図5に自作した自動測定装置⁽⁸⁾の構成を示す。トランスファ成形機 [藤和精機(株)製 TEP 75-30] のプランジャを降下させ, 樹脂を金型内に移送する。プランジャの変位は変位変換器 [(株)東洋ボールドウィン製 DB-100] で検出し, 金型内に取付けられた圧力検出器の信号とともに増幅器をへてデータ処理装置に入る。これらのデータは次に演算部に入

(a) 断面図

(b) 下型平面図

図4 金型の概略

り、ここで信号の物理量変換や特性値算出のための計算を行う。最後に、結果の出力、作図が行われる。この装置により樹脂が円管内を流動中の $\bar{\eta}_{ar}$ 、 t の時間変化を求め、解析値との比較を行った。装置の詳細については報告済⁽⁸⁾なのでここでは省略する。

3・4 成形条件 1回の成形に用いる樹脂量は $7.5 \times 10^{-2} \text{kg}$ とした。樹脂は室温下で 135 MPa の加圧力を用いてあらかじめタブレット化しておき、成形時には高周波予熱機で $75 \pm 3^\circ\text{C}$ に予備加熱してポット内に投入した。プランジャ駆動用設定油圧はプランジャ底部の圧力換算値で 6.86 MPa とした。なお、この条件で圧力一定流動を開始する P_s は 5.88 MPa である。金型温度は 145, 165, 185 $^\circ\text{C}$ の 3 水準とし、それぞれ $\pm 3^\circ\text{C}$ の精度に保持した。

4. 樹脂物性値

用いた樹脂の物性値を表 1 に示す。熱硬化性樹脂の場合、熔融状態での熱物性値の測定は難しいので、これらについては硬化物の値を用いた。 ρ は室温、 C_p 、 λ は 120 $^\circ\text{C}$ での測定値である。また、 a 、 b 、 d 、 e 、 f 、 g は式(7)～(9)中の係数であり、図 5 の装置を用いて既報で述べた手法⁽⁸⁾により、まず近似値を推定した。そして、この近似値を用いて流動解析を行い、 $\bar{\eta}_{ar}$ の計算値と実測値を比較し、カーブフィッティングにより最終的に表 1 の値に固定した。詳細についてはここでは省略する。

5. 結果と考察

5・1 実測値と計算値の比較 図 6 に $\bar{\eta}_{ar}$ - t 特性の比較を示す。ここで T_M は金型温度である。各 T_M において、計算値は実測値とよく一致している。いずれの T_M でも流動途中に $\bar{\eta}_{ar}$ の最低値が存在し、 T_M が高いほどその値は小さくなる。また、各 T_M において

最後の実測値、計算値はいずれも流動停止直前の状態を示し、 T_M が高いほど流動時間は短くなる。

図 7 に ℓ - t 特性の比較を示す。各 T_M において計算値は実測値よりも ℓ がやや小さくなっているが、 T_M の違いによる ℓ の変化の状況をよく表している。図 7 のこの配は管内平均流速 $\bar{v}_z$ であり、実測値でも計算値でも時間の経過とともに $\bar{v}_z$ は小さくなっていく。すなわち、用いた円管内では流動時間のほとんどが圧力一定流動になっている。計算値と測定値のずれについては仮定や解析手法の見直しを含め、今後鋭意検討していく予定である。

5・2 物理量の分布 ここでは、計算結果のうち、流動先端部の温度、粘度、速度の時間変化について述べる。

図 8～10 に $T_M=145^\circ\text{C}$ における結果を示す。図 8 は t をパラメータとしたときの無次元温度と無次元半径方向距離の関係を示したものである。ここで T_P は流路に流入する樹脂の初期温度、すなわち樹脂の予熱温度である。流動開始直後には内部の温度は T_P に近

表 1 樹脂物性値

Density	ρ (kg/m ³)	1820
Specific heat at constant pressure	C_p (J/kg·K)	1047
Thermal conductivity	λ (W/m·K)	0.821
Coefficients of the constitutive equation model	a (Pa·s)	3.28×10^{-9}
	b (K)	9783
	d (s)	1.474×10^{-7}
	e (K)	8185
	f (K)	2004
	g (-)	3.5

図 5 装置の構成

図 6 $\bar{\eta}_{ar}$ - t 特性の比較

いが、時間とともに上昇し、5 s 程度でほぼ T_M に達している。図 9 に η の変化を示す。流動開始直後には中央部の η は非常に高く、管壁に向かって急激に低下する。これは図 8 の温度分布の状況とよく対応している。時間の経過とともに中央部の温度が上昇するため η は低下を続け、断面全体がほぼ管壁温度に達した 5 s では η も断面全体でほぼ同じ値となる。この時刻では管壁付近は η の上昇域に入っている。さらに時間が経過すると断面全体で η が同じように上昇し、流動停止直前の 45 s では熱履歴の大きい管壁付近の η が中央部に比べやや高くなる。図 10 に無次元速度分布の比較を示す。ここで v_{0z} は各時刻における管中心の速度である。流動開始直後には、中央部がつまった、栓流に近い分布の非ニュートン流動をしている。これは図 9 に示したように、流動開始直後では中央部の η が管壁付近に比べ非常に高く、中央部ほど速度こう配が付きにくくなるためである。時間の経過とともに中央部と管壁付近との粘度差が小さくなるため、中央部の速度こう配は大きくなる。そして、 η が断面全体でほぼ一様となる 5 s で、ニュートン流動の速度分布とほぼ一致する。その後、流動停止直前までこの分布を保つ。

図 11, 12 に $T_M=185^\circ\text{C}$ における結果を示す。無次元温度分布は図 8 とほぼ同様なので、ここでは省略する。図 11 に η の変化を示す。管壁温度が高いため、流動開始直後の管壁付近の η は図 9 に比べ大幅に低下している。時間の経過とともに中央部の η は低下し、5 s で断面全体がほぼ一様の値となる。この値は図 9 に比べかなり低い。中央部以外は η の上昇域に入っている。その後、断面全体で η が同じように上昇する。図

図 7 $l-t$ 特性の比較 図 8 $T_M=145^\circ\text{C}$ における流動先端部の無次元温度分布 図 9 $T_M=145^\circ\text{C}$ における流動先端部の粘度分布 図 10 $T_M=145^\circ\text{C}$ における流動先端部の無次元速度分布

図 11 $T_M=185^\circ\text{C}$ における流動先端部の粘度分布

12 に無次元速度分布の変化を示す。流動開始直後では図 10 に比べさらに中央部がつまった分布になっている。これは図 11 と図 9 との比較で明らかのように、中央部と管壁付近の粘度差が非常に大きくなったためである。時間の経過とともに非ニュートン性は弱まり、断面全体がほぼ一様の η となる 5s で、ニュートン流動の速度分布とほぼ一致する。

6. 結 言

低圧トランスファ成形用エポキシ樹脂の円管内流動解析手法を検討し、以下の結論を得た。

(1) 時間と温度の関数となる熱硬化性樹脂用の等温粘度式、ならびに、これを用いて非等温粘度変化を予測する手法を導いた。

(2) 上記手法と円管内流動を記述する各種保存方程式を組合せ、流動中の樹脂の温度、粘度、速度、ならびに平均見掛け粘度、流動距離の変化などを計算する手法を導いた。

(3) 平均見掛け粘度と流動距離については実測値

図 12 $T_M=185^\circ\text{C}$ における流動先端部の無次元速度分布

と比較し、各条件における時間変化をよく予測できることを確認した。

(4) 計算結果から管内の物理量の変化を検討し、温度、粘度、速度の関連を明らかにした。

最後に、本研究に対して、ご指導いただいた(株)日立製作所生産技術研究所 原田征喜博士、解析、実験にご協力いただいた、田中 貢、熊野順一、古川光浩、安原敏浩の各氏、その他ご指導、ご協力をいただいた多くの方々に深く感謝いたします。

文 献

- (1) 垣内, 新エポキシ樹脂, (1985), 406, 昭晃堂.
- (2) Lipshits, S. D. and Macosko, C. S., *Polym. Eng. Sci.*, 16-12 (1976), 803.
- (3) White, R. P., *Polym. Eng. Sci.*, 14-1 (1974), 50.
- (4) Roller, M. B., *Polym. Eng. Sci.*, 15-6 (1975), 406.
- (5) Sundstrom, D. W., Walters, L. A. and Goff, C. S., *Mod. Plast.* (1969), 104.
- (6) 佐伯・金田・篠田, 高分子論文集, 43-12 (1986), 873.
- (7) 佐伯・金田・篠田, 高分子論文集, 45-2 (1988), 97.
- (8) 佐伯・金田, 高分子論文集, 45-9 (1988), 691.
- (9) 伊藤, 高分子加工工学, (1964), 39, 丸善.
- (10) Williams, G. and Lord, H. A., *Polym. Eng. Sci.*, 15-8 (1975), 553.
- (11) 化学大辞典編集委員会編, 化学大辞典 1, (1963), 514, 共立出版.
- (12) 富田, レオロジー, (1975), 211, コロナ社.
- (13) 藤川, 電算機による偏微分方程式の解法, (1977), 211, サイエンス社.