高分子レオロジーと成形加工 CAE の基礎

—その中身と周辺問題—

(4) 高分子成形加工用 CAE の基礎：粒子法

山 本 智*

1. はじめに

前回までの講座では高分子成形加工における溶融体の流れ解析を目的とした計算法が中心であったが、今回は樹脂中に充填されたフィラーの運動を計算する粒子法について紹介する。はじめに粒子法という言葉について触れておきたい。これは有限要素法や有限差分法がある特定の計算手法を指すのに対して、粒子法は粒子の運動を計算する方法という意味で分類されているにすぎず、特定の計算手法を指すものではない。様々な分野で粒子法に関する計算法が提案されており、その呼び方も多様である。例えば、粉体の分野における DEM (Discrete/Distinct Element Method) やコロイド分散系の分野におけるストークス動力学法 (Stokesian Dynamics) と呼ばれる方法がある。あるいは分子の運動を扱う分子動力学法 (MD; Molecular Dynamics) やブラウン動力学法 (BD; Brownian Dynamics) も粒子法である^{1),2)}。これらは何れも実際の粒子あるいは原子分子に相当する粒子の運動を計算する方法である。一方、格子を用いずに流体の計算を行う方法として、流体を複数の粒子の集まりとして表し、それら粒子の運動を計算する方法 (SPH; Smoothed Particle Hydrodynamics や MPS; Moving Particle Semi-implicit method) があり、打ち寄せる波の動きなど、有限要素法など格子を使った計算法では扱い難い問題に適用されている³⁾。さらに、この中間に位置付けられるメゾスコピックな方法として、散逸粒子動力学法 (DPD; Dissipative Particle Dynamics) と呼ばれるものがある。この方法では原子分子を直接扱うのではなく、数～数十個の原子をまとめて一つの大きな粒子で表し (この手続きは粗視化と呼ばれる)、その運動を解析する。本講座シリーズの中でもメゾスコピック系の CAE の話題が後半に控えているので、DPD については最後に少し触れてみたい。

さて、これらの粒子法に共通しているのは、粒子を大きな球体 (あるいは質点) と見なしその運動方程式を解くということである。粒子に働く力が流体力学的な

ものなのか、あるいは静電的なものなのか、またブラウン運動を考えなければならない程度の粒子サイズなのかなどによって粒子に働く力の記述が異なり、これにより運動方程式の解法が異なる。このため各分野の問題に合わせた計算法が幾つも提案されていることを知っていただいた上で、高分子成形加工で問題となる溶融樹脂中に浮遊するフィラーの運動解析に焦点を当てて解説していくことにする。

2. なぜフィラーの運動が重要なのか?

樹脂にガラス繊維やタルクを充填すると、その機械強度などの材料物性がフィラーの形状、サイズ、剛性、充填率、分散状態などに強く依存して変化する。材料中のフィラーが凝集したり、配向することにより内部にミクロな構造を形成するためである。このようなミクロ構造は、ほとんどが材料を成形加工する時の流動に起因するものである。例えば、繊維強化樹脂を射出成形するときには、流動中に繊維が破断して所望の機械強度が得られなかったり、繊維が配向することによって機械的性質に異方性を生じることがよく問題となる。フィラーを充填した材料の物性が内部構造に依存することを考えれば、材料中にフィラーのミクロな構造が形成される機構を解明すれば材料物性を推定する手がかりとなり、さらに流動条件を制御することにより所望の物性をもった材料を創製することも可能となる。したがって、流体中のフィラーの運動を理解し、その結果としてどのようなミクロ構造が形成されるかを予測することが重要となるのである。

多くの場合、樹脂に充填されるフィラーのサイズは1～数10 μm 程度であり、固体状態であれば光学顕微鏡を使って観察することが可能である。しかし、流体中の粒子の運動は、サスペンションが希薄であれば直接観察することができるが、多くの実用材料では粒子の含有率が高いために直接に観察することは困難である。また、濃厚な系では粒子どうしが互いに影響し合うため、希薄な系で観察された運動がそのまま適用できることはほとんどない。さらに、繊維やタルクなど形状に異方性を持つ粒子が分散した材料では、複雑な運動挙動を示すため、どのようなミクロ構造ができるかを推測することは非常に難しい。

このような背景から、粒子分散系を対象とした計算機シミュレーションが行われるようになってきており、実験で

* Yamamoto, Satoru
(株)豊田中央研究所 材料分野計算物理研究室
愛知県長久手町 (〒480-1192)
2005. 2. 2 受理

は容易に知ることのできないサスペンション内部の構造を考察する上で、計算機シミュレーションが有効な方法であることが示されている。従来の計算法では剛体球粒子のみを扱っていたが、一般に使用されている多くのフィラーに見られるような繊維や板状粒子を扱うこともできるようになってきた。

ここで、高分子成形加工 CAE においてよく行われている繊維配向予測について、粒子法による計算との違いを説明しておく。従来の CAE では Jeffery の繊維運動理論に基づいた繊維配向予測が行われてきた。Jeffery 理論とはニュートン流体中のストークス流れにおける回転楕円体粒子の運動の解析解であり、希薄系について成立する理論である。実際の繊維強化樹脂では 10~45 wt% 程度の繊維が含有されており、繊維間相互作用が無視できない濃厚系である。そのため、Jeffery 理論に加えて繊維間相互作用を擬似的に取り入れた繊維配向モデルを用いて、樹脂成形時の繊維配向予測がなされている。すなわち、樹脂成形時の熔融樹脂の流れ解析を行い、その流れ場の中で繊維配向の変化を予測するものである。しかし、この擬似的な繊維間相互作用を取り入れた繊維配向モデルでは、繊維間相互作用の強さを表す経験的なパラメータを含んでおり、その意味については明確ではない。また、実際の成形では繊維の変形と破断、あるいは偏析が見られることがあるが、この繊維配向モデルからはこれらの現象を予測することはできない。繊維間相互作用を正確に考慮した繊維の運動解析を行うことができれば、繊維強化樹脂成形時の繊維配向予測にも応用可能であり、材料中の繊維のミクロ構造予測、さらには材料の機械的性質の異方性予測へと展開することが可能である。このような意味においてもこれから解説する粒子法が有効な計算法であることを理解していただけるものと考えている。

3. 流体中の粒子に働く力

3.1 孤立した 1 個の球体粒子

フィラーの形状は繊維状や板状など様々であるが、はじめに球体の粒子を考えて流体中でどのような力を受けるかを説明し、その後他の形状への展開の仕方を説明する。

流体が非圧縮性でニュートン流体と見なせる時、密度 ρ 、粘度 η の遅い流れの中に置かれた半径 a の球体粒子が速度 $\mathbf{v}$ および角速度 $\boldsymbol{\omega}$ で動いているとすると、流体の速度 $\mathbf{V}$ との差に比例する力 $\mathbf{F}$ および流体の角速度 $\boldsymbol{\Omega}$ との差に比例するトルク $\mathbf{T}$ が球体に働く。

$$\mathbf{F} = 6 \pi \eta a (\mathbf{v} - \mathbf{V}) \quad (1)$$

$$\mathbf{T} = 8 \pi \eta a^3 (\boldsymbol{\omega} - \boldsymbol{\Omega}) \quad (2)$$

ここで遅い流れとは、厳密に言えば流れ場のレイノルズ数 $Re = \rho UL / \eta$ (U : 流れ場の代表的な速度, L : 代表的な長さ) が 1 より十分小さいことを指し、流体の運動がストークス方程式で完全に記述される場合である。高分子成形加工で見られる熔融樹脂の流れはほぼこの条件にあると言える。ただし、周知の通り熔融樹脂は非ニュートン性を示すので、上の記述は厳密には正しくないが、それを考慮に入れた解析は非常に複雑になるためほとんど行われていない。

ここでもニュートン流体を仮定して後の説明を行う。

3.2 多数の球体粒子が分散した場合

2 個以上の粒子が流体中にある場合には、互いの粒子は離れていてもその間にある流体を介して影響を及ぼし合う。これを流体力学的相互作用と言う。厳密には遠く離れていても影響するため、一つの粒子の運動が全ての粒子の運動に影響を及ぼすことになる。したがって、全粒子間の多体問題として扱われる。なお、粒子間に働く力としてはこれ以外に、粒子表面が電荷を帯びているときに働く静電力や粒子どうしが接触したときに働く摩擦力などがあるが、熔融樹脂中のフィラーを考えると流体力学的相互作用が支配的であるケースが多いことから、ここでは他の力は考えないこととする。

前節と同じように粒子 i についてその場所における流体の速度 $\mathbf{V}_i$ と角速度 $\boldsymbol{\Omega}_i$ との差を用いて、各粒子に働く力とトルクを次式のように表すことができる。

$$\begin{pmatrix} \mathbf{F}_1 \\ \mathbf{F}_2 \\ \vdots \\ \mathbf{F}_N \\ \mathbf{T}_1 \\ \mathbf{T}_2 \\ \vdots \\ \mathbf{T}_N \end{pmatrix} = -\mathbf{M}^{-1} \begin{pmatrix} \mathbf{v}_1 - \mathbf{V}_1 \\ \mathbf{v}_2 - \mathbf{V}_2 \\ \vdots \\ \mathbf{v}_N - \mathbf{V}_N \\ \boldsymbol{\omega}_1 - \boldsymbol{\Omega}_1 \\ \boldsymbol{\omega}_2 - \boldsymbol{\Omega}_2 \\ \vdots \\ \boldsymbol{\omega}_N - \boldsymbol{\Omega}_N \end{pmatrix} \quad (3)$$

ここで $\mathbf{M}$ は移動度行列 (mobility matrix) と呼ばれ、粒子の位置だけによって決められる。なお、力とトルクだけでなく応力極 (stresslet) と呼ばれる 2 階のテンソル量も考えるケースもあるが¹⁾、ここでは割愛する。

ここで既にお気づきかもしれないが、移動度行列は全粒子数を N として $6N \times 6N$ (3 次元) の行列であり、粒子に働く力とトルクを求めるためにはその逆行列計算が必要となり、粒子数が増えると非常に計算時間を要することになる。粒子間に働く力は粒子間距離が小さくなるほど強くなり、粒子どうしがほぼ接触状態に近くなると潤滑効果 (Lubrication effect) により大きな力が作用する。そこで、この潤滑効果を 2 粒子間の二体相互作用として近似することが実用上効果的であるので次に紹介する。

3.3 潤滑近似による 2 体力としての表し方

いま、粘度 η の流体中において半径 a の 2 つの球 (1 および 2) を考え、それぞれ速度 $\mathbf{v}_1, \mathbf{v}_2$, 角速度 $\boldsymbol{\omega}_1, \boldsymbol{\omega}_2$ で運動しているものとする。ただし、流体および粒子のレイノルズ数は何れも十分に小さく、慣性項は無視できるものとする。粒子の中心の座標を $\mathbf{r}_1$ および $\mathbf{r}_2$ とし、粒子 1 の中心から粒子 2 の中心へ向かう単位ベクトルを $\mathbf{n}_{12}$ とする。潤滑近似によれば、粒子 1 と粒子 2 が非常に接近している (a で無次元化した粒子表面の間隙 $\xi = (|\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1| - 2a)/a < 1$) とし、ストークスの抵抗係数を考慮すると、流体の粘度を η として、粒子 1 は次式で表される $\mathbf{n}_{12}$ の方向の力 $\mathbf{F}_{ij}^p$ を粒子 2 から受ける^{4), 5)}。

$$\mathbf{F}_{ij}^p = \frac{3}{2} a^2 \pi \eta \frac{(\mathbf{v}_j - \mathbf{v}_i) \cdot \mathbf{n}_{ij}}{|\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i| - 2a} \mathbf{n}_{ij} \quad (4)$$

ただし、力が正のとき粒子 1 は $\mathbf{n}_{12}$ の向きに引かれるよう

に力が働くものとする。式(4)によれば、粒子2が粒子1へ近づこうとするときには斥力が働き、逆に粒子2が粒子1から遠ざかろうとするときには引力が働くことになる。この点が単なる剛体反発力とは異なる点である。

厳密には $\mathbf{n}_{12}$ 方向以外の力も粒子1には働いているが、それらは $\log \xi^{-1}$ のオーダーで表されるため^{4),5)}、粒子どうしが接近 ($\xi \rightarrow 0$) したときの発散の程度が式(4)に比べると十分に小さいので無視できる。さらに、粒子1にはトルクも作用するが、同様に小さな効果であるためここでは無視する。

以上が潤滑近似と呼ばれる2球間の流体力学的相互作用であり、粒子間の距離と相対速度の関数として力を表すことができる。

3.4 球体以外の形状への拡張

これまで粒子は球体であると考えていたが、これ以外の形状の粒子を扱う場合について説明する。粒子が回転楕円体である場合には球体と同様に粒子に働く力が解析的に求められており、これに基づく計算も行われている⁶⁾。繊維の運動を回転楕円体の運動に置き換えて、繊維が分散した系の計算機シミュレーションも行われているが、球体に比べると粒子間の相互作用も複雑になるため取り扱いが難しくなる。ここでは、そのような方法に比べると比較的簡単な扱いで繊維や板状粒子を扱える方法として、球体を組み合わせて任意の形状を作り、その運動を計算する方法(粒子シミュレーション法)を紹介する^{7)~19)}。

繊維や板状粒子の場合には、球を結合して複雑な形状を表しておいて、その上で球体の運動計算に帰着するのが便利である。言い換えれば、有限要素法では物体を有限要素を用いて分割するのに対して、この方法では球体を用いて物体を分割する。ただし、形状そのものを忠実に表すというよりは、物体の各場所に作用する力とトルクを球体に置き換えて近似するという意味である。例えば、アスペクト比 N の繊維を半径 a の球 N 個を結合して図1に示すようにモデル化する。すなわち、図1(a)はアスペクト比8の繊維を表す。隣り合う球どうしは、引張り・曲げ・ねじりの3種類のパネで結合されており、各変形が可能である。粒子の引張り・曲げ・ねじりの各変形に対して、変形量に比例した復元力 $\mathbf{F}^s$ あるいは復元トルク $\mathbf{T}^b$ 、 $\mathbf{T}^t$ が各球に働

図1 粒子シミュレーション法における繊維モデルと変形 (a)アスペクト比 N の繊維を N 個の球を用いてモデル化する。(b)引張り・曲げ・ねじりの各変形が可能となるように3種類のパネを設定する。

くように設定する。ただし、曲げとねじりの変形については隣接した2球の平衡位置からの回転に対する復元トルクとして考える。したがって、これらの力とトルクが前節で示した流体から受ける力とトルク(上付き h で表す)以外に各球体に働くことになる。

$$\mathbf{F} = \sum_j \mathbf{F}_i^s + \sum_j \mathbf{f}_{ij} + \mathbf{F}_i^h \quad (5)$$

$$\mathbf{T} = \sum_j \mathbf{T}_i^b + \sum_j \mathbf{T}_i^t + \sum_j (\mathbf{f}_{ij} \times \mathbf{a} \mathbf{n}_{ij}) + \mathbf{T}_i^h \quad (6)$$

ここで、 $\mathbf{f}_{ij}$ はパネによって結合した球体間に働く摩擦力であり、実際の繊維の連続性により考慮するものである。さらに、結合した球体間で滑りが無い条件として次式を考える。

$$\mathbf{v}_i + \mathbf{a} \boldsymbol{\omega}_i \times \mathbf{n}_{ij} = \mathbf{v}_j + \mathbf{a} \boldsymbol{\omega}_j \times \mathbf{n}_{ij} \quad (7)$$

ただし、 $\mathbf{n}_{ij}$ は隣り合う球の中心を結ぶ方向の単位ベクトルである。流体から受ける粘性力 $\mathbf{F}_i^h$ と粘性トルク $\mathbf{T}_i^h$ については、粒子を構成する N 個の球についての多体問題として3.2節で示したように移動度行列 $\mathbf{M}$ の逆行列を用いて計算する。

さらに、多数の粒子が分散している場合には潤滑近似による2体力を式(5)に加える。

$$\mathbf{F} = \sum_j \mathbf{F}_{ij}^s + \sum_j \mathbf{f}_{ij} + \mathbf{F}_i^h + \sum_j \mathbf{F}_{ij}^b \quad (8)$$

4. 運動方程式の数値積分法

粒子間に働く力を多体の相互作用として考えるかあるいは潤滑近似による2体の相互作用で扱うかによって、また球体を結合して粒子を組立てるか否かによって導出法は異なるが、各粒子に働く力とトルクが分かると粒子の並進および回転の運動方程式

$$m \frac{d\mathbf{v}_i}{dt} = \mathbf{F}_i, \quad \frac{2}{5} m a^2 \frac{d\boldsymbol{\omega}_i}{dt} = \mathbf{T}_i \quad (9)$$

を適当な時間刻み Δt で数値積分することにより、粒子の位置を追跡することができる。

相互作用の取り扱いについて触れておくと、コロイド分散系のレオロジーや詳細なミクロ構造を議論する場合にはストークス動力学法のように多体の相互作用として粒子間に働く力を考えるべきであるが、本講座で扱うような多数の粒子が集団となってどのような運動をするかが興味の対象であるような場合には、潤滑近似による2体力で十分であると考えられる。

運動方程式の数値積分法には、Euler法、Verlet法、予測子-修正子法など幾つかの方法が提案されている²⁰⁾。Euler法(第2講参照)では時間 Δt 後の位置と速度は以下のように与えられる。

$$\mathbf{r}_i^{n+1} = \mathbf{r}_i^n + \Delta t \mathbf{v}_i^n, \quad \mathbf{v}_i^{n+1} = \mathbf{v}_i^n + \Delta t \mathbf{F}_i^n \quad (10)$$

角運動方程式の積分方法としては4元数を用いる方法もあるが、ここではオイラー角を用いた解法を説明する。いま、球の位置 $\mathbf{r}_i$ を直交座標系で表し、配向角 θ_i をオイラー角 (θ, ϕ, ψ) を用いて表す。このとき、オイラー角と直交座標系で表した角速度との間には次の関係があり²¹⁾、

$$\omega_z = \frac{d\theta}{dt} \cos\phi + \frac{d\psi}{dt} \sin\psi \sin\theta \quad (11)$$

$$\omega_y = \frac{d\theta}{dt} \sin\phi - \frac{d\psi}{dt} \cos\psi \sin\theta \quad (12)$$

$$\omega_x = \frac{d\phi}{dt} + \frac{d\psi}{dt} \cos\theta \quad (13)$$

これらをオイラー角について解くと次のようになる。

$$\frac{d\theta}{dt} = \omega_x \cos\phi + \omega_y \sin\phi \quad (14)$$

$$\frac{d\phi}{dt} = \omega_x - \frac{(\omega_y \sin\phi - \omega_z \cos\phi) \cos\theta}{\sin\theta} \quad (15)$$

$$\frac{d\psi}{dt} = \frac{(\omega_y \sin\phi - \omega_z \cos\phi)}{\sin\theta} \quad (16)$$

これらを式(10)と同様に数値積分することにより、時間 Δt 後の配向角と角速度が求まる。ただし、 $\sin\theta$ が 0 または 2π のときに特異となるため、 θ が 0 または 2π に近づいたときにオイラー角の θ を y 軸から定義するように変更して（それまでは z 軸から定義）、誤差が大きくなることを回避する。

球 i が球 j から受ける力 F_{ij}^f の計算は式(4)を用いれば、2 球が接触するとき無限大となるため理論的に 2 球が重なり合うことは無い。しかし、実際の計算では 2 球が非常に接近すると計算が不安定になってしまう。そこで、かなり接近した状態になったときには剛体反発力を作用させ、計算が不安定になるのを防ぐとよい。まず、球 i と球 j との中心間距離が $3a$ より大きいときには相互作用を考えず、力は働かないものとする。中心間距離が $3a$ 以下になったときに流体力学的相互作用を考え、潤滑近似を使って 2 球の間に働く力を計算する。さらに、2 球の中心間距離が $2a$ に近づくと、この力が非常に大きくなり計算が不安定になるので、中心間距離が $2.001a$ のところで流体力学的相互作用を打ち切り、中心間距離がそれ以下になったときには剛体反発力によって 2 球が重なり合うのを避けることとする（式(17)）。ただし、 D_0 および G_0 は定数であり、経験的にそれぞれ $30 a^2 \pi \eta \dot{\gamma}$ および 100 とする（ $\dot{\gamma}$ はせん断速度）。

$$F_{ij}^f = \begin{cases} 0 & \dots\dots |\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i| > 3a \\ \frac{3}{2} a^2 \pi \eta \frac{(\mathbf{v}_j - \mathbf{v}_i) \cdot \mathbf{n}_{ij}}{|\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i| - 2a} \mathbf{n}_{ij} & \dots\dots 2.001a < |\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i| \leq 3a \\ -D_0 \exp\left(G_0 \left(1 - \frac{|\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i|}{2a}\right)\right) \mathbf{n}_{ij} & \dots\dots |\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i| \leq 2.001a \end{cases} \quad (17)$$

このような反発力を与えても、ミクロ構造およびレオロジー特性にはほとんど影響しないことが確認されている¹¹⁾。

計算では、粒子間の相互作用 F_{ij}^f を求めるところが最も時間のかかる部分である。各タイムステップ毎に全ての粒子について相互作用を計算していたのでは効率が悪いので、粒子登録法を用いて計算時間を短縮するのがよい²⁰⁾。すな

わち、各球について一定の距離以内にある球を記録しておき、その球についてのみ各タイムステップ毎に力の計算を行い、そして一定時間毎に登録されている球のリストを更新する。

また、溶融樹脂中のガラス繊維の運動など多くの場合には粒子のレイノルズ数 (Re) は $Re \ll 1$ であり、この場合には式(9)左辺の慣性項が無視できるほど小さくなるため、左辺を 0 とすることもできる。ストークス動力学法ではこのような慣性項を無視した解き方がなされている。しかし、応用の範囲を限定しないという意味において、慣性項を無視せずに運動方程式を積分する解法をこの後で紹介する計算例では採用している。なお、粒子のレイノルズ数が 0.1 以下においては粒子の運動が同じであることが確認されているため、慣性項が無視できるような条件の計算には $Re = 0.1$ を用いるとよい。これは、低いレイノルズ数を使って数値積分するとタイムステップをより小さくしなければ計算が不安定になることから、計算効率を考慮するためである。すなわち、 Re が小さくなると右辺の力が見かけ上大きくなるために、第 2 講で触れた Courant 数と同様に、 $力 \times \Delta t$ を一定に保つための制約である。

5. 樹脂の流れ解析とのリンク

粒子法では与えられた流動場の中で粒子の運動を計算する。流動場としては、これまでの講座で解説のあった有限差分法や有限要素法、あるいは有限体積法を用いて計算したものを用いる。粒子の存在によって溶融樹脂の流れも変化するものと考えられるが、余りにも問題が複雑になるため考慮されないことがほとんどである。粒子の運動と流れ場を同時に解くことも試みられているが、高分子成形加工 CAE への適用を考えると、プロセス中での分散剤の分散状態を一次的に把握するために使われることが多いことから、そのような目的には両者を同時に解くことは計算効率が悪い。勿論、問題によっては両者を同時に解かなければ理解できない現象も考えられ、例えば濃厚系における分散剤の詳細な運動を解析する場合などがそうである。ここでは、樹脂の流れを先に解き、その中でフィラーの運動を解析するケースについて説明する（図 2）。

流れ解析の出力として、各要素における流動場の時系列

図 2 流動解析で得られた流れ場の中における粒子の運動解析

有限差分法や有限要素法による樹脂流動解析で得られた流れ場の時系列データを作成し、その中で粒子の運動を計算する。

データが得られるので、充填開始から完了までの間を一定の時間間隔で n 等分し、 $n+1$ 個の時系列データを作成する。次に、粒子法により、与えられた流動場中で粒子を構成する各球の運動方程式を解くことにより粒子の運動を計算する。この場合、さらに細かい時間刻みで流動場データが必要となるため、例えば時刻 t ($t_i < t < t_{i+1}$) における速度場は、連続する2つの時刻 t_i および t_{i+1} の速度データを使って、線形補間して求める。そして、その時刻で各粒子を構成する球の位置の流動場を求める。

また、樹脂流動解析では要素内の速度が一定であることが多いが、粒子の運動解析の精度を高めるために要素内の速度分布を考慮するとよい。すなわち、粒子を構成する球がどの要素に所属するかを探し、その要素の周囲にある要素の速度データも使って、球の位置における速度を補間する。この操作を各時刻で全ての球について行う。

6. 計算例

以上の方法により、樹脂流動解析の結果を使って粒子の置かれた流動場を時々刻々と変えて行くことにより、射出成形時のフィラーの運動を解析することが可能である。本章では、筆者らがこれまでに行った応用計算の中から幾つか紹介することにする。樹脂流動解析プログラム（例えば、3次元樹脂流動解析プログラム Remylop²²⁾）を用いて求めた射出成形時の樹脂流動場において繊維の運動を計算することにより、射出成形中の繊維の運動を解析することができる。Remylop では、多面体要素分割モデルを用いて、有限体積法により射出成形時の樹脂流動を解析する。樹脂は、非等温非圧縮性の非ニュートン流体を仮定し、疑似濃度法により自由表面を計算する。解析結果として、各要素中心の流動場の時系列データが得られる。そこで、得られた流動場データの中で繊維の運動を計算すれば、射出成形中の繊維の運動予測が可能となる。

射出成形中の繊維の運動解析例として、自動車用ステアリングホイールについて、樹脂成形時の繊維の運動を計算した。直径 $10\ \mu\text{m}$ 、長さ $500\ \mu\text{m}$ の繊維 10000 本をゲートから順次充填したときの運動の様子を図3に示す。ただし、図中の繊維は5倍のサイズで表示してある。(a)～(d)はそれぞれ、充填開始後0.6 s, (b)1.2 s, (c)1.8 s, および(d)2.4 sである。メルトフロントに平行に繊維が配向することなど成形品全体について繊維配向の特徴を見ることができる。この計算では多数の剛直な繊維を表すために両端の2球のみからなる粗視化繊維モデルを提案して用いている¹⁷⁾。粗視化モデルを用いた計算では、剛直な繊維と等価な運動をするように移動度行列に補正を加えた上で、そのままでは繊維どうしが通り抜けてしまうため、接触の相互作用を計算するときには接触する位置を判断し、その場所において2球間に働く相互作用を求めて作用させることにより、通り抜けを防いでいる。この粗視化モデルにより、図に示したような多数の繊維の計算が一般の計算機で数時間以内に達成できるようになった。

また、成形機スクリー内的樹脂とフィラーの混合についての計算例を紹介する。単軸スクリー押出機の分散混合性能を高めるためにピン混合セクションを設ける場合、合理的なスクリー設計のためにはピンの配置と混合効率

図3 ステアリングホイール成形時の繊維の運動

10000本の繊維をゲート位置から順次充填したときの運動の様子を計算した結果である。メルトフロントに平行に繊維が配向することなど成形品全体について繊維配向の特徴を見ることができる。(a)充填開始後0.6 s, (b)1.2 s, (c)1.8 s, および(d)2.4 sである。

図4 単軸スクリー押出機内の繊維の運動

ピン混合セクションの手前に配置した5000本の繊維 ($\phi 0.01 \times 0.5\ \text{mm}$) の運動を計算した結果である。ピンに衝突した繊維が進行方向を大きく曲げられることなど、繊維が分散されて行く様子が分かる(樹脂の流れは左から右)。

の関係を明らかにすることが重要である。従来は技術者の感と経験に依るところが多かったが、最近ではスクリー押出機内の樹脂流動解析ができるようになってきており、押出機内における成形現象の理論的解明が期待されている。ここでは、繊維を充填した樹脂を成形する場合を想定し、押出機内で繊維が分散混合される過程について、粒子シミュレーション法を用いて繊維の運動を解析し、ピンの配置と混合効率との関係を調べた¹⁸⁾。はじめに、ピン混合セクションを有する単軸スクリー押出機モデルについて樹脂流動解析を行った。樹脂流動解析にはプラメディア開発のSCREWFLOWを用いた。次に、ピン混合セクションの手前に配置した5000本の繊維 ($\phi 0.01 \times 0.5\ \text{mm}$) の運動を計算した。図4はピン列間距離30 mmのモデルについて、繊維の運動の様子である(樹脂の流れは左から右)。ピンに衝突した繊維が進行方向を大きく曲げられることなど、繊維が分散されて行く様子が分かる。ピン列間距離の異なるスクリーについて、繊維がピン混合セクションを

通過する時間の分布を調べた結果、ピン列間距離の増大とともに通過する時間の分布が広くなり、繊維が幅広く分布するようになり混合効率が向上することが分かった。

以上、フィラーの運動解析例を示したが、現実の現象と比較すると粒子数は数桁以上少ない。計算機の進歩とともに粒子数が増えていくことを期待できるにしても、やはりさらに効率の良い計算モデルとアルゴリズムが期待される。また、少し触れたが流れ場と粒子の運動を同時に解く方法も今後は考えなければならない課題である。

7. 散逸粒子動力学法 (DPD)

DPD は, Hoogerbrugge と Koelman によって 1992 年に発表された比較的新しい計算法である²³⁾。コロイド分散系などミクロな内部構造を持つ複雑流れの数値シミュレーションに対しては、流体を連続媒体として捉えて Navier-Stokes 方程式を差分法で解くという従来からのアプローチは利用することができない。ミクロな視点に基づいた計算法である分子動力学法 (MD) を用いたアプローチも試みられていたが、渦の生成や熱対流などの限られた現象を 2 次元で計算することはできたが、一般の現象に対しては計算資源の制約から適用することはできなかった。そのような中で、空間に配置した格子点上を仮想粒子が衝突と移動を繰り返すことにより流体のシミュレーションを行うという全く新しい計算方法 LGA (Lattice Gas Automaton) が提案された²⁴⁾。LGA は整数演算だけで流体の運動を計算できる点で注目されたが、一方で空間対称性とガリレイ不変性が成り立たないという欠点を持っていた。そこで、MD に対する計算効率の高さという利点を生かしたまま、これら LGA の欠点を克服しようと格子を使わない計算法として提案されたのが DPD である。DPD では原子分子の集合体に相当する大きな粒子を用いて計算を行う。粒子間に働く力は粒子ペアについて作用反作用の関係を満たし、運動量を保存する形になっている。DPD の研究は主にヨーロッパを中心に行われており、理論的研究の他に、混相流・コロイド分散系・ポリマーブレンド・界面活性剤などへの適用が進められてきている。ここでは DPD の方法を概説した後、高分子フィルム成形で重要となる溶媒蒸発現象の解析に適用した例²⁵⁾を紹介する。

7.1 方法

粒子の運動はニュートンの運動方程式を解くことにより求める。粒子 i と粒子 j の間には、粒子間距離を r_{ij} 、粒子 i から粒子 j へ向かう単位ベクトルを $\mathbf{n}_{ij}$ 、粒子の相対速度を $\mathbf{v}_{ij}$ として以下の力が働く。

$$\mathbf{F}_{ij} = w(r_{ij}) [a_{ij} + \sigma \theta_{ij} + \gamma w(r_{ij}) (\mathbf{n}_{ij} \cdot \mathbf{v}_{ij}) + C_{ij}] \mathbf{n}_{ij} \quad (18)$$

第 1 項は粒子間の凝集エネルギーに対応する保存力 (a_{ij} は斥力の強さ)、第 2 項は熱揺動に関するランダム力 (σ はノイズの強さを表す係数、 θ_{ij} はガウス分布のホワイトノイズ)、第 3 項は散逸力 (γ は摩擦係数)、第 4 項は粒子間の結合力 (C_{ij} は結合の強さ) である。粒子間力の及ぶ範囲は重み関数 $w(r_{ij})$ によってごく近距離に制限する。粒子間ポテンシャルは何れもソフトであり、万が一粒子どうしがオーバーラップしたとしても計算が発散することはない。レナードジョーンズポテンシャルを用いて長距離相

互作用を考慮する MD と大きく異なる点であり、このことにより DPD の計算スキームは簡単で効率よく行うことができる。また、ランダム力の形はブラウン動力学法におけるそれとは異なり、運動量を保存する形になっていることも特徴である。

平衡状態において適正な熱力学平衡が得られるようにするために、揺動散逸定理によって散逸力とランダム力は次のように関係付けられる。

$$\sigma^2 = 2 \gamma k_B T \quad (19)$$

ここで k_B はボルツマン定数、 T は温度である。 σ と γ の値は計算安定性から決められることが多い。

ポリマーブレンドや界面活性剤などで見られるミクロ構造を決定する上で最も重要なのが保存力である。保存力のパラメータは、水の圧縮率や Flory-Huggins の χ パラメータと関連付けられることが示されている²⁶⁾。

7.2 適用例

高分子フィルムの成形では溶媒の蒸発速度をコントロールすることが適正な製品を得る上で重要な因子の一つであり、ポリマー溶液の乾燥過程で起こるミクロな現象を計算により理解することができれば材料設計に役立つものと考ええる。ポリマー溶液からの溶媒蒸発を計算しようとする場合、分子動力学法などの分子シミュレーションでは系が大きすぎて扱えず、拡散方程式を解くようなマクロな計算では界面や膜中の溶媒分子が不均一になることなどのミクロな現象を知ることができない。これらのことから、ミクロとマクロの中間スケールを扱うメソスコピックな計算法が適しているものと考ええる。ここでは、DPD を用いて、ポリマー溶液からの溶媒蒸発過程 (図 5(a)) を計算する方法について検討した内容を紹介する²⁵⁾。

ポリマー溶液からの溶媒蒸発を図 5(b) のようなモデルを考えて DPD で計算する。このとき、ポリマー溶液界面から気相へ入った溶媒粒子に着目し、周囲が気相粒子ばかりになったらその溶媒粒子は蒸発したものとみなして気相粒子に変える操作を行う。また、ポリマーに対する有効質量 m を溶媒よりも大きくすることでポリマーの運動性を抑制する。これにより、実際のポリマー溶液で見られるよ

図 5 (a) フィルム成形における溶媒蒸発概念図と (b) 対応する DPD モデル

DPD の計算では溶媒粒子が気相へ自発的に流れ込むようなパラメータを設定して蒸発を表す。

図6 溶媒蒸発過程のスナップショット

溶媒濃度が低いときに溶媒の拡散係数が著しく小さくなる条件(a)では表面近傍にスキン層が形成されて蒸発が進みにくくなるが、低濃度でも拡散係数があまり小さくならない条件(b)では内部まで蒸発が進んでいる。

うな溶媒濃度の低い領域での急激な拡散係数の低下を有効質量を変えることによって表すことができるようになる。

有効質量 $m=100$ および 6.25 の場合のポリマー溶液からの溶媒蒸発過程の計算結果を図6(a)および(b)に示す。(a)では溶媒濃度の低下による溶媒の拡散係数の減少が(b)に比べて激しいため、ポリマー溶液の表面で溶媒濃度が低い領域(表層)が形成されて溶媒の蒸発が非常に緩やかなものとなる(skin formation)。これに対して(b)では表層が形成されるものの(a)の場合に比べると明瞭ではなく、基板近くの溶媒も徐々に表面へ向かって移動し蒸発している。

ここではDPDを溶媒蒸発の問題へ適用する試みを紹介した。DPDの歴史は浅く、実用的な計算のためにはDPD自体の方法論の確立に加えて、従来のCAEに見られるマクロな取り扱いとの融合、および材料の分子レベルのミクロな情報との連携が必要であると考え。

8. おわりに

本講座では、溶融樹脂中のフィラーの運動解析を目的とした粒子法について主に解説した。計算機の性能を考えると樹脂中に含まれる全てのフィラーを扱うことはできず、フィラーの数を減らして成形品全体のフィラーの運動の特徴を把握する方法、あるいは成形品の一部について現実のフィラーの数を代入して相互作用を正しく考慮して配向や偏析を調べる使い方が現実的であると考え。扱えるフィラーの数としては、現在の一般的なPCを想定すると数千

～数万個程度になる。

また、第7章で紹介したDPDはシンプルな計算スキームと計算効率の高さにおいてメゾスコピックな計算法として有望である。DPDを使った計算事例も増えているが、その多くはモデル系に限られている。現実の系へ明確に適用できるようにするためには、DPDで使われるパラメータがどのように決められるべきかについての検討が必要である。

記号表：

ρ	：密度	(kg/m^3)
η	：粘度	($\text{Pa} \cdot \text{s}$)
a	：球体半径	(m)
m	：質量	(kg)
$\mathbf{r}$	：位置	(m)
θ, ϕ, ψ	：オイラー角	(rad)
$\mathbf{v}$	：球体速度	(m/s)
ω	：球体角速度	(rad/s)
$\mathbf{V}$	：流体速度	(m/s)
Ω	：流体角速度	(rad/s)
$\mathbf{F}$	：力	(N)
$\mathbf{f}$	：摩擦力	(N)
$\mathbf{T}$	：トルク	($\text{N} \cdot \text{m}$)
σ	：熱ノイズ	($-$)
θ_{ij}	：ホワイトノイズ	($-$)
γ	：摩擦係数	($-$)
w_{ij}	：重み関数	($-$)
C_{ij}	：結合定数	($-$)
k_B	：ボルツマン定数	(J/K)
T	：温度	(K)

参 考 文 献

- 1) 神山新一, 佐藤 明: 流体ミクロ・シミュレーション (1997), 朝倉書店
- 2) Bossis, G. and Brady, J.F.: *Journal of Chemical Physics*, **80**, 5141 (1984)
- 3) 越塚誠一: 数値流体力学 (1997), 培風館
- 4) Frankel, N.A. and Acrivos, A.: *Chemical Engineering and Science*, **22**, 847 (1967)
- 5) Batchelor, G.K. and Green, J.T.: *Journal of Fluid Mechanics*, **56**, 375 (1972)
- 6) Yamane, Y., Kaneda, Y. Doi, M.: *Journal Non-newtonian Fluid Mech.*, **54**, 405 (1994)
- 7) Yamamoto, S. and Matsuoka, T.: *Journal of Chemical Physics*, **98**, 644 (1993)
- 8) Yamamoto, S. and Matsuoka, T.: *Journal of Chemical Physics*, **100**, 3317 (1994)
- 9) Yamamoto, S. and Matsuoka, T.: *Polymer Engineering and Science*, **35**, 1022 (1995)
- 10) 松岡孝明, 山本 智: 日本レオロジー学会誌, **23**, 139 (1995)
- 11) Yamamoto, S. and Matsuoka, T.: *Journal of Chemical Physics*, **102**, 2254 (1995)
- 12) 山本 智, 松岡孝明: 日本レオロジー学会誌, **23**, 95 (1995)

- 13) Yamamoto, S. and Matsuoka, T.: *Polymer Engineering and Science*, **36**, 2396 (1996)
- 14) Yamamoto, S. and Matsuoka, T.: *Journal of Chemical Physics*, **107**, 3300 (1997)
- 15) 山本 智, 井上良徳, 東 智美, 松岡孝明: 日本機械学会論文集 (A 編), **65**, 506 (1999)
- 16) 山本 智, 松岡孝明: 成形加工, **11**, 510 (1999)
- 17) Nomura, T., Yamamoto, S., and Matsuoka, T.: *Proceedings of the 7th international conference on numerical methods in industrial forming processes (NUMIFORM 2001)*, 18 (2001)
- 18) 山本 智, 松岡孝明, 谷藤眞一郎, 姚維廣: プラスチック成形加工学会講演要旨集, 261 (2000)
- 19) 山本 智: 日本レオロジー学会誌, **29**, 185 (2001)
- 20) 上田 顯: コンピュータシミュレーション (1990), 朝倉書店
- 21) 鶴井 明: 工業力学 (1986), 培風館
- 22) 井上良徳, 松岡孝明: 日本レオロジー学会誌, **21**, 175 (1993)
- 23) Hoogerbrugge, P. J. and Koelman, J.M.V.A.: *Europhysics Letter*, **19**, 155 (1992)
- 24) Frisch, U., Hasslacher, B. and Pomeau, Y.: *Physical Review Letter*, **56**, 1505 (1986)
- 25) Yamamoto, S.: *Nihon Reorogi Gakkaishi (Journal of the Society of Rheology, Japan)*, **32**, 295 (2004)
- 26) Groot, R. D. and Warren, P. B.: *Journal of Chemical Physics*, **107**, 4423 (1997)

設計ツール (CAE) と教育

ペンネーム: 個育て

「金型出口の流速が均一でないために, 不良が発生していると考えられます」, 「金型形状をこのように変更すると, 流速分布が改善されます」。社内の技術検討会で入社2年目の社員が, 美しいコンター図を前に成果発表を行っている。

社内でCAEを使い始めて十数年, ここまでCAEが標準の設計ツールとして定着してきたことに技術・人の進歩の早さを実感した。私が入社した約20年前は, スーパーコンピュータ (今のパソコンより遅いが…) を何人もが共有し, 計算時間に数日, その合間に樹脂の物性を試行錯誤で測定し, 金型内の樹脂挙動を議論し, 可視化技術・計測技術を駆使して現象解明と, CAE解析というよりは樹脂と戯れ, 自分がプラスチックなり金型内を旅行してきたかのような議論に時間を費やしていたように思う。

それを思うと, この数年の進歩は飛躍的で, 解析は数分で完了。また解析の数値結果から不良を自動的に予測し, かつノウハウをもとに改善案までコンピュータが指示してくれる。なんと便利な世の中か。過去の試行錯誤が寂しくも感じる時代である。

「質問: なぜ流速が均一でないと, その不良が発生するのか?」,

「回答: ……」。「質問: 金型形状を提案のように変更すると, こんな不具合が新たに発生するのでは?」, 「回答: ……」。ベテラン社員が, ああでもないこうでもないという激しい議論。それならば, 金型をこう変えた方がよいのでは…。新人社員はあっけにとられ, 議論に参加できない。

標準化されてマニュアル通りにはスピーディに仕事はできるが, 樹脂の挙動がわからず自分が樹脂になりきれない, CAEがどんな仮定 (モデル化) の範囲で計算を行っているのか? どの樹脂物性が解析結果に影響を及ぼすのか? 応用できる人材に育てられていない自分にも反省させられた。

技術進歩が早いこの時代, 若者も学ぶことが多く大変だが, 教える側はもっと努力と工夫が必要では? この時代の人材育成とは? 悩める私に, 是非学会の賢者の方々の知恵をお借りしたい。学会誌は学会員の教育の場でもあると思う。プラスチック成形加工のフレッシュマンを教育するような企画にも期待したい。