短繊維含有高分子溶液の スリット内流れにおける繊維配向

大阪大学 工学部 堀 川 明* (会員)
大阪大学 歯学部 寺 岡 文 雄** (〃)
〃 木 村 博** (〃)

Orientation of Short Fibers Contained in the Polymer Solution during the Flow through Slits.

Akira Horikawa*, Fumio Teraoka** and Hiroshi Kimura**

*Department of Mechanical Engineering, Osaka University, Osaka.

**Department of Dental Technology, Osaka University Dental School, Osaka.

Abstract

The fiber orientation in molded plastics is caused by the flow in the manufacturing process. An investigation has been made of the influence of parameters such as fiber length, volume fraction and viscosity of carrier medium on the degree of fiber orientation.

The object of this work is to determine the degree of the orientation of short fibers contained in the polymer solution during the flow through parallel slits. Furthermore, the fiber orientation in converging and diverging flows is investigated. The distributions of fiber orientation at various parts of parallel slits are found to be the normal distribution, whose standard deviation is obtained as a function of shear rate. The convergent flow results in high fiber alignment along streamline. On the other hand, the divergent flow caused some fibers parallel to the streamline and perpendicular to the streamline.

(Received October 16, 1981)

摘 要

目的 高分子溶液内に分散した短繊維のスリット内流れでの繊維配向を定量的に求める。また、急激な拡大および縮少流れにおける繊維挙動を検討し、金型内での繊維の流れ挙動の基礎的研究を行う。

成果 1) 間隙が小さいスリット (0.5~1.0 mm) 内での繊維配向は、繊維含有率が低い場合にはスリット幅には影響されず、繊維配向角分布は正規分布となる。標準偏差 σ は高分子溶液の濃度が低い場合には壁面での剪断速度 ($\dot{\gamma}_w$) だけの関数となり、次式で表わされる。

$$\sigma = -14 \log (\dot{\gamma}_w) + 48$$

2) 剪断速度が 400 s^{-1} 以上になると、すべての繊維は流れ方向に沿う繊維配向角分布内に存在する。

3) 拡大流れでは繊維は、拡大部で放射状に流出し、その後流線に沿った繊維とそれに直角に配向した繊維に分かれて流れる。下流域ではそれぞれの壁面での剪断速度に対応した繊維配向を保ち安定に流れる。

4) 縮少流れでは絞り効果のため繊維は、縮少部付近でワイン グラス状に流れ、繊維配向の乱れは拡大流れに比べて少ない。

(昭和56年10月16日受理)

1. 緒 言

熱可塑性樹脂や BMC のように熱硬化性樹脂に繊維を分散させて成形する場合、樹脂混合物が金型内を流れるとき速度勾配が生じるため、繊維は種々の角度で配向する。金型内での繊維配向は樹脂混合物の粘度、繊維長、繊維含有量および成形時の壁面剪断速度の影響を受け

る。金型内での繊維配向は成形品中の繊維配向角を決定する重要な要因で、成形品の諸性質に影響を与える。そのため、金型内での樹脂挙動や繊維挙動に関する研究は重要である。

溶解高分子の射出成形における金型キャビティ内での樹脂圧力挙動や成形品の成形収縮率に関する研究は、Paulson¹⁾, Staub²⁾ および天野ら³⁾⁻⁶⁾ はか多くの研究者⁷⁾

によって行われている。また、熔融高分子の細管入口部での循環流れの有無や流れの様子などについては、Tordella⁸⁾、Giesekus⁹⁾、Schummer¹⁰⁾、Bagley¹¹⁾、Ballenger¹²⁾らにより研究されている。スリット内流れについては、流動複屈折法などを用いて、Han¹³⁾やDrexler¹⁴⁾、荒井^{15)~17)}、堀川や中村ら^{18)~22)}により詳細に研究され解析されている。

いっぽう繊維を分散させた複合材料に関して、長谷川ら^{23),24)}はBMCの射出成形における金型キャビティ内での樹脂挙動に関する研究を行っている。Leeら²⁵⁾は円錐形縮少管内での繊維挙動を観察し、流体の速度分布と繊維の回転など繊維の動きとの関係について報告している。スリット形管内での繊維挙動に関しては、Murty²⁶⁾や中村ら²⁷⁾の報告はあるが、繊維の配向角を定量的に扱った研究は少ない。繊維を高分子溶液や融液のような粘弾性流体に分散させた系の流れでは、繊維表面で剪断速度が異なると粘度も変化するなど複雑な現象が多いため、繊維の流れ挙動を理論的に解析するのは非常に困難である。

本報では、金型内での繊維の流れ挙動の基礎的研究として、実際の金型内での流れは非定常で、金型の形も種々雑多であるが、間隙の小さいスリット内での定常流れ中の繊維配向を実験により定量的に求め、さらに急激な拡大および縮少流れにおける繊維の挙動についても検討した。

2. 繊維挙動観察装置および実験方法

スリット内での繊維挙動を観察する装置の略図を図1に示す。4のマイクロチューブ定量ポンプから送り出

図1 繊維挙動観察装置の略図

された流体は、5のトラップで脈流をなくし、1のスリットへ送られる。スリットは透明塩ビを使用し、3の光源からの光はスリットの間隙方向に平行に照射し、2のカメラで流量を種々変えたときの繊維挙動を等倍で撮影する。6はスターラでトラップ中の繊維を均一に分散させ

ている。流体は平均分子量100万の水溶性熱可塑性樹脂のポリエチレンオキサイドを水に溶かしたもので、濃度が2 wt % と4 wt % の2種類を使用した。繊維は太さが10 μm でカット長が1 mm の炭素繊維を使用し、樹脂と繊維は体積比で100:0.1の割合で混合した。

使用したスリットの形状と種類を図2と表1に示す。

(a) 平行平板スリット (b) 拡大・縮少スリット
図2 スリット

表1 スリットの種類と形状

形状	種類	平行平板スリット	拡大・縮少スリット
厚さ (H) (mm)		0.5, 1	0.5
幅 (D) (mm)		5, 10, 20, 30	5, 10, 20

平行平板流れ用スリットは間隙と幅を変えて8種類作製した。拡大・縮少流れ用スリットは間隙の幅の広い方を一定にして、スリット比が5:30, 10:30, 20:30 (以下5/30, 10/30, 20/30スリットとする)の3種類を作製した。拡大流れと縮少流れは同一のスリットを用いて、図1で示した定量ポンプを逆回転することにより簡単に得られる。流量は拡大および縮少流れによりわずかに異なる場合もあるが、0.05 cc/s から0.45 cc/s の範囲内で実験を行った。

3. 繊維配向角分布測定法および評価法

スリット各部での繊維配向角分布の測定は、図1の装置で撮影したネガフィルムのフラウンホーファ回折像の強度分布曲線から行うが、フラウンホーファ回折装置、強度分布測定装置およびそれらの測定方法に関しては、既報²⁸⁾で詳細に報告しているため省略する。ここでは、得られた繊維配向角分布曲線からスリット各部での繊維配向を評価する方法についてのみ記す。

スリット各部でのフラウンホーファ回折像から得られる繊維配向分布は正規分布曲線と良く一致していたため、それら曲線の標準偏差 σ を求めて、スリット各部で

の繊維配向を評価した。しかし、場所によっては繊維配向角分布曲線は1つとは限らず、2つ以上存在する場合や繊維配向角分布曲線以外のところで繊維がちらばって分布している場合もある。そのため繊維本数がより多く存在している分布の主軸方向とし、それ以外の分布の軸方向を副方向として、各分布曲線の面積は繊維本数と比例関係にあるため、全繊維本数に対する主方向の分布内に存在する繊維本数を繊維本数割合 W_f として分布曲線の面積比から求め、これも繊維配向角評価の1つとした。

4. 平行平板スリット内流れにおける
繊維配向

使用した高分子溶液の流動特性を図3に示す。剪断速度 ($\dot{\gamma}$) が小さいところを除けば、各濃度の流体とも指数則流体とみなすことができる。図3から求めた粘度 (η) と剪断速度 ($\dot{\gamma}$) の関係式と n の値を次に示す。
(1)式は濃度が2 wt % で(2)式は4 wt % のときの指数則流体の実験式である。高分子溶液が指数則流体で近似できることから、各スリットの壁面での剪断速度 ($\dot{\gamma}_w$) は(3)式で表わされる。

$$\eta = 3.60 \dot{\gamma}^{-0.2773}$$
$$n = 0.7226 \dots \dots \dots (1)$$

$$\eta = 10.35 \dot{\gamma}^{-0.2867}$$
$$n = 0.7133 \dots \dots \dots (2)$$

$$\dot{\gamma}_w = \left(\frac{3n+1}{4n} \right) \frac{6Q}{D \cdot H^2} \dots \dots \dots (3)$$

ここで、 Q は単位時間当たりの流量、 D はスリット幅、 H はスリット間隙である。

平行平板スリットを図4に示すように流れ方向を x 、幅方向を y 、間隙方向を z とした。スリット幅 D が20および30 mm のスリットでは、幅方向 (y 軸方向) にも測定点を取り、スリットの幅方向での繊維配向も測定し

図4 スリット内での繊維配向測定位置

た。図中の円は直径が9 mm で、測定部の位置と範囲を示す。図5にスリット内流れの一例を示す。

流量を一定にした場合、 x が0から20 mm 付近までは繊維配向の変動が見られたが、それより下流域では繊維

図5 スリット内流れの一例

図3 高分子溶液の流動特性

維配向はほとんど一定であった。また、スリットの幅方向の繊維配向の違いは各スリットとも観察されず、エッジの影響がほとんどないことがわかった。そのため、各スリットの繊維配向の評価は、スリットの中央部 $(x, y) = (100, 0)$ の点での繊維配向角分布曲線を用いて行った。

濃度が 2 wt % の高分子溶液を使用した場合の壁面での剪断速度と繊維配向角分布の標準偏差との関係を図 6

○; スリット間隙 0.5 mm, ○; スリット間隙 1 mm
図 6 剪断速度と標準偏差との関係

に示す。白丸(○)はスリット間隙が 0.5 mm で、黒丸(○)は 1 mm のスリットを使用したときの値である。標準偏差は壁面での剪断速度の増加とともに小さくなり、多少のばらつきはあるがスリット間隙が 0.5 mm のスリットの場合も 1 mm の場合もほぼ同一の直線上に乗り、スリット間隙が小さい場合 (0.5~1.0 mm) には、標準偏差 σ はつぎに示す実験式で表わされる。

$$\sigma = -14 \log(\dot{\gamma}_w) + 48 \dots \dots \dots (4)$$

濃度が 4 wt % の場合も標準偏差は(4)式で表わされた。使用した溶液は指数則流体と近似でき、 n の値がごく近いことから濃度による影響が現われなかったものと考えられる。溶液が指数則流体と近似できない場合や n の値が大きく異なる場合には、標準偏差 σ は実験式(4)と一致しなくなることも考えられる。

繊維本数割合 W_f と剪断速度との関係を図 7 に示す。繊維本数割合は主方向の繊維配向角分布の標準偏差が大きくなると測定しにくくなるが、剪断速度が 40 から 400 s^{-1} までは次に示す実験式と良く一致し、400 s^{-1} 以上ではほぼすべての繊維が主方向の繊維配向角分布の範囲内に存在する。

$$W_f = 27 \log(\dot{\gamma}_w) + 30 \dots \dots \dots (5)$$

これらのことから、短繊維を分散させた流体のスリット間隙の小さい (0.5~1.0 mm) 平行平板スリット内流れでは、標準偏差 σ などの繊維配向は壁面での剪断速度で定量的に表わされることがわかる。

○; スリット間隙 0.5 mm, ○; スリット間隙 1 mm
図 7 剪断速度と繊維本数割合との関係

5. 拡大・縮小スリット内流れにおける繊維配向

繊維は拡大および縮少部付近で急激に姿勢を変えて流れる。間隙の小さいスリットの拡大または縮少部が繊維配向に及ぼす影響をスリットの拡大比 (または縮少比) を変えて検討した。拡大および縮少流れにおいて、上流域から下流域までの繊維配向角分布の変化と拡大および縮少部での繊維挙動を分けて検討した。なお、スリット間隙と高分子溶液の濃度を変えて実験を行ったが、スリット間隙や濃度による影響はみられなかったため、間隙が 0.5 mm のスリットと濃度が 2 wt % の高分子溶液を用いて行った実験について報告する。

5.1 拡大および縮少スリット内での繊維配向

拡大および縮少流れでは、図 8 に示すように繊維配向

○; 標準偏差 σ , ○; 繊維本数割合 W_f
図 8 繊維配向測定場所と標準偏差および繊維本数割合との関係

の測定場所と標準偏差 σ および繊維本数割合 W_f との関係を表わし、繊維配向の変化を検討した。スリットの拡大部もしくは縮少部の中心を原点 0 とし、流れ方向に関係なくスリットの幅の広い方向を $+x$ 、狭い方向を $-x$

とした。グラフの横軸はスリットの原点からの距離 x とし、円で示したスリット内の測定部の中心を測定点とした。破線で示した円の位置でも測定を行ったが、 x が 5, 15 mm の位置を除いては平行平板スリットの場合と同様にスリットの中央部 (x 軸上) とエッジ付近での

繊維配向の違いはなかった。 x 軸上の各測定点での標準偏差 σ はグラフ上で白丸 (○), 繊維本数割合 W_f は黒丸 (●) で示した。

図 9, 図10, 図11におのおの5/30, 10/30, 20/30スリットでの、拡大および縮小流れにおける標準偏差 σ と繊維

図 9 5/30スリット内での繊維配向 (○; σ , ●; W_f)

図10 10/30スリット内での繊維配向 (○; σ , ●; W_f)

本数割合 W_f を示す。各スリットとも流量を5種類変えて実験を行ったが、ここではそのうちの3種類を示す。剪断速度の差が最も大きい5/30スリットの拡大流れでは、安定状態にある繊維配向は拡大部を過ぎた $x = 5$ mm で乱れが最大になり、その後徐々に回復し、ふたたび安定状態になる。縮少流れでは、縮少部の手前からエッジ付近の繊維が中心部に集まってくるため、標準偏差 σ の値は急激に大きくなるが、幅の狭いスリット内での回復は早い。10/30スリットの拡大流れでは、5/30スリットと同様に $x = 5$ mm で乱れは最も大きくなり標準偏差 σ は大きくなるが、 $x = 10 \sim 40$ mm 付近で急激に繊維配向は良くなり、その後少し悪くなった状態で安定になる特異現象が見られた。剪断速度の差が最も小さい20/30スリットの拡大流れでは、標準偏差 σ の変化は少ないが、繊維本数割合 W_f は $x = 5 \sim 40$ mm 付近で極端に悪くなり、約4割もの繊維が主方向以外に向く。しかもこれらの繊維は流れ方向と直角方向に分布していることが図12に示すフラウンホーファ回折像からわかる。すなわち、流れ方向に沿って流れていた幅20 mmのスリット内での繊維は拡大部付近から流れ方向に沿った繊維とそれに直角に配向した繊維とに分かれて流れ、幅30 mmのスリットの下流部でまた繊維はほぼ全部が流れ方向に向くことになる。繊維が流線方向に垂直方向に向くのは、拡大部での面積の増加により、流体が流れ方向と横方向に拡大し、繊維に流れ方向と横方向の力が作用するため、

図12 20/30スリットの拡大流れのフラウンホーファ回折像
 回折像回折像
 →は繊維配向角分布の主軸方向

繊維が xy 平面で回転するためだと考えられる。繊維含有率が大きくなり、繊維間の相互作用が増すと繊維の回転が妨げられ、繊維の配向状態も変わると考えられる。

繊維配向は拡大および縮少流れにおいて安定状態から乱れ、ふたたび安定状態にもどるが、この乱れの区間は実際の金型設計上重要な因子となる。安定域での標準偏差は、実験式(1)上によく乗っており、同一のスリットで流量が同じなら拡大および縮少流れによる差は見られなかった。狭い方のスリット内での安定域の標準偏差を σ_- 、広い方での標準偏差を σ_+ とし、それらの比 (σ_+/σ_-) を各流量に対してプロットしたものを図13に示す。スリット比が大きい場合には、両スリット幅内での剪断

○; 5/30スリット ●; 10/30スリット
○; 20/30スリット

図13 流量と標準偏差の比との関係

速度の差が大きいため、標準偏差の比は大きくなる。繊維配向の乱れの区間は、図7に示したように変動域として原点0からの距離 L_- と L_+ を求め、それらを各スリット

トの幅で除した無次元の値 L_- と L_+ を表2に示す。拡大流れでは、拡大部手前での繊維配向の変化はないが、拡大部以後の変動域 L_- はスリット比や流量による影響は見られず1.5と一定である。縮少流れでは、縮少手前から繊維配向は変動し始めるが、 L_+ はスリット比や流量の変化をあまり受けず0.5と一定である。しかし、 L_- はスリット比が小さくなると減少し、スリット比が同じなら流量が多くなるほど減少する傾向がある。

5.2 拡大および縮少部での繊維挙動

図14に各スリットの拡大部および縮少部での繊維の流状態を示す。各スリットとも流量は0.23 cc/sec と一定である。拡大流れでは流線に沿って繊維は放射状に流出するが、その後流量に沿って流れる繊維と、それに直角に扇状に流れる繊維とが観察される。スリット比が大

表2 拡大・縮少流れによる繊維配向の乱れ区間

スリット 流れ 位置 流量(cc/s)	5 / 30				10 / 30				20 / 30			
	拡大		縮少		拡大		縮少		拡大		縮少	
	L_-	L_+	L_-	L_+	L_-	L_+	L_-	L_+	L_-	L_+	L_-	L_+
0.05	0	1.5	3	0.7	0	1.5	2.5	0.7	0	1.5	1.3	0.5
0.14	0	1.5	2	0.7	0	1.5	2	0.7	0	1.5	1	0.5
0.23	0	1.5	1	0.5	0	1.5	1.5	0.5	0	1.5	0.7	0.5
0.31	0	1.5	1	0.5	0	1.5	1.5	0.5	0	1.5	0.7	0.5
0.43	0	1.5	1	0.5	0	1.3	1	0.5	0	1.5	0.5	0.5

a) 5/30スリット b) 10/30スリット
c) 20/30スリット

図14 拡大部および縮少部の繊維挙動(流量0.23cc/s)

きい場合には、放射状に流出した部分は長く、拡大部のエッジ付近では流れによりかきまぜられ繊維の乱れが大きくなり、ランダム配向に近くなると考えられる。しかし、スリット比が小さくなるとかきまぜの影響が少なくなるため、流線に沿った繊維とそれに直角の繊維がはっきり観察されるものと考えられる。図15に拡大流れの10/30スリットのエッジ付近のフラウンホーファ回折像を示すが、主軸方向とほぼ直角方向に副方向の分布があるのが観察される。流線と直角方向に配列している繊維は、スリットの拡大部を流体が最初に流れ出るときの、最先端部の形状の上にあると考えられる。

縮流れでは、繊維の流れはワイングラス状で、スリット比が大きいほどしぼり効果が大きいいためその形は顕著である。

図16に拡大および縮小流れでの繊維の流れを模式的に

図15 10/30スリットの拡大流れのエッジ付近のフラウンホーファ回折像
→は繊維配向角分布の主軸方向

図16 拡大(a)および縮小(b)流れでの繊維流れの模式図

示す。拡大流れでは繊維の乱れは大きく、スリットのコーナ部では繊維が存在しない樹脂だまりのところもあるが、縮小流れでは繊維の乱れは少なく繊維の分布もスリットの各部で均一であり、全体として縮小流れの方が繊維の流れは安定している。

ここには示していないが、低密度ポリエチレンに炭素繊維を分散させ、0.5 mmの厚のダンベル型射出成形品にも拡大部で流線方向と直角方向に配列した繊維がみられ、高粘度流体や射出成形など非定常流れにおいても、

低粘度で定常流れのときと同じような繊維配列をすることがわかる。そのため、金型の設計にあたり成形品各部で繊維配向を均一にするためには、拡大流れ部分を少なくし、縮小流れ部分を多くした方がよいことがわかる。

6. 結 言

高分子溶液内に分散した短繊維の平行平板スリット内流れでの繊維配向を求め、さらに急激な拡大および縮小流れにおける繊維挙動を観察し、つぎの結果を得た。

1) 間隙の小さい平行平板スリット内での繊維配向は正規分布となり、その標準偏差は繊維含有率と高分子溶液の粘度が低い場合には剪断速度だけの関数として表わされる。

2) 拡大流れでは、拡大部より下流域で繊維は流線に沿って流れる繊維と流線と垂直に配向して流れる繊維に分かれるが、最終的には下流域の剪断速度に対応した繊維配向を保ちながら流れる。

3) 縮小流れでは、繊維は流線に沿って流れ縮小部付近では絞り効果のためワイングラス状に流れ、繊維配向の乱れは拡大流れに比べると少ない。そのため、金型の形状は拡大部分が少なく、拡大流れを少なくした場合の方が成形品の繊維配向は均一になると考えられる。

参考文献

- 1) D. C. Paulson; Mod. Plastics, **45**, 2, 119 (1967)
- 2) R. B. Staub; SPE Journal, **16**, 4, 429 (1960)
- 3) 天野修; 高分子化学, **28**, 314, 482 (1971)
- 4) 天野修; 高分子化学, **28**, 314, 493 (1971)
- 5) 天野修; 高分子化学, **28**, 319, 856 (1971)
- 6) 天野修; 高分子化学, **28**, 319, 860 (1971)
- 7) 山口章三郎; 工学院大学研究報告, **22**, 48 (1967)
- 8) J. Tordella; J. Appl. Phys., **27**, 454 (1956)
- 9) H. Giesekus; Rheol. Acta., **7**, 127 (1968)
- 10) P. Schummer; Rheol. Acta., **6**, 192 (1967)
- 11) E. B. Bagley and A. M. Birks; J. Appl. Phys., **31**, 556 (1960)
- 12) T. F. Ballenger and J. L. White; J. Appl. Poly. Sci., **15**, 1949 (1971)
- 13) C. D. Han; Rheol. Acta., **14**, 173 (1975)
- 14) L. H. Drexler and C. D. Han; J. Appl. Poly. Sci., **17**, 2355 (1973)
- 15) 荒井定吉, 浅野秀樹; 高分子化学, **29**, 327, 510 (1972)
- 16) 荒井定吉, 浅野秀樹, 石川広高, 水谷純, 村井真之; 高分子化学, **29**, 330, 743 (1972)
- 17) 荒井定吉, 石川広高; 高分子化学, **31**, 8, 500 (1974)
- 18) 堀川明, 中村喜代次, 梅垣静雄; 繊維機械学会論文集, **29**, 5, 63 (1976)
- 19) 中村喜代次, 堀川明; 繊維機械学会論文集, **29**, 7, 92 (1976)
- 20) 中村喜代次, 山本康博, 中村富士男, 堀川明; 繊維機械学会論文集, **29**, 11, 157 (1976)
- 21) 中村喜代次, 石崎光一, 山本康博, 雨堤武彦, 堀川明; 繊維機械学会論文集, **30**, 6, 104 (1977)
- 22) 中村喜代次, 東卓司, 堀川明; 繊維機械学会論文集, **31**, 2, 28 (1978)

- 23) 長谷川嘉雄, 花崎伸作, 藤原順介, 日本複合材料学会誌, **3**, 4, 133 (1977)
- 24) 長谷川嘉雄, 花崎伸作, 藤原順介; 日本複合材料学会誌, **6**, 1, 31 (1980)
- 25) W. K. Lee, H. H. George; Poly. Eng. Sci., **18**, 2, 146 (1978)
- 26) K. N. Murty, G. F. Modlen; Eng. Sci., **17**, 2, 848 (1977)
- 27) 中村克孝, 美馬源太郎; 日本複合材料学会誌, **2**, 2, 80 (1976)
- 28) 堀川明, 寺岡文雄; 繊維機械学会論文集, **33**, 7, 47 (1980)
-