

マルチスケール FEM による熱硬化 FRP の成型誘起変形シミュレーション

Simulation of process-induced deformation of thermosetting FRP by Multiscale FEM

航空宇宙工学コース

先端機械・航空材料工学研究室 1265037 若松 宗真

1. 緒言

繊維強化プラスチック (Fiber Reinforced Plastics : FRP) とはエポキシ樹脂などの高分子材料を母材として炭素繊維 (Carbon) やガラス繊維 (Glass) を強化材として加えた複合材料である。FRP は軽量で高い強度、錆びない特性を持っていることから幅広い分野で用いられている。FRP を成形する際、脱型後に spring-in や spring-back といった意図しない変形が生じることがある。このような FRP の変形が予測できれば成形後品質向上が期待できると考える。

複合材料の成型誘起変形解析にはその物性値が必要となるが、繊維の強化形態や体積分率によって特性が大きく異なるため、材料試験に大きなコストがかかる。

本研究では、硬化中の樹脂の粘弾性モデルを元に、周期境界条件を与えた代表体積要素に生じる平均応力から、複合材料の粘弾性剛性を求める手法を検討した。硬化度と温度を変えて応力緩和挙動を調べ、そこから硬化中の複合材料の粘弾性特性、硬化収縮ひずみおよび熱ひずみモデルを求めた。

2. 解析方法

2.1 構成方程式

FRP を構成する樹脂の硬化させることによって物性の変化する線形等方性粘弾性体として扱い、FEM 解析を行う。その構成方程式⁽¹⁾を以下のように表す。

$$\sigma(t) = \int_0^t 2G(t-s)\dot{\epsilon} ds + I \int_0^t K(t-s)\dot{\phi} ds \quad (1)$$

ここで σ は応力テンソル、 ϵ は偏差ひずみテンソル、 G はせん断弾性率、 K は体積弾性率、 I は単位テンソル、 ϕ は体積ひずみ、 τ は疑似時間である。またここで硬化中の粘弾性特性の式をプロニー級数で以下のように表す。

$$G(\tilde{t}, \lambda) = G_0(\lambda) \left(1 - \sum_{i=1}^n g_i \left(1 - e^{-\frac{\tilde{t}}{\tau_i}} \right) \right) \quad (2)$$

ここで g_i はプロニー級数の係数、 τ_i は緩和時間、 $\tilde{t}$ は任意温度での換算時間であり、DMA を用いた実験により求めた。また λ は正規化長期弾性特性率の硬化度依存を表す係数であり、本研究では剛性シフトファクタと呼ぶ。このパラメータをレオメータによって測定した。また硬化中の先行研究⁽²⁾より 3 点曲げクリープ試験の結果より得られたコンプライアンスのマスターカーブを式(3)で表し、9 次プロニー級数で近似した。

$$G(\tilde{t}) = G_0 \left(1 - \sum_{i=1}^n g_i \left(1 - e^{-\frac{\tilde{t}}{\tau_i}} \right) \right) \quad (3)$$

その結果、求められたプロニー級数の係数 g_i と緩和時間 τ_i 、その他解析で用いた材料定数を表 1 に示す。温度が粘弾性特性に与える影響については、時間-温度換算則で表す。温度シフトファクタは完全硬化後のクリープ試験から求めた。以下の式を用いて表した。

$$\log A_T = \frac{E}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_g} \right) \quad (4)$$

ここで A_T は反応速度定数、 E_T は活性化エネルギー、 R は気体定数、 T は絶対温度、 T_g はガラス転移点である。温度シフトファクタを用いると、任意温度における換算時間は

$$\tilde{t} = \frac{t}{A_T} \quad (5)$$

となる。

2.2 FEM モデルと物性値

本研究では、一方向 GFRP の横方向断面について三次元モデルのユニットセルを用いてマクロ剛性の計算を行った。汎用有限要素法ソフトウェア ABAQUS を用いて図 1 のようなユニットセルを作成した。図 1 はガラス繊維を四角形に配置したユニットセルである。ガラス繊維の直径は $8[\mu\text{m}]$ とし、繊維体積分含有率を 50% とした。周期境界として接点間の相対変位は、周期境界上ではすべて同じ変位となるため、構造に含まれないダミー制御接点を用意して、制御接点の強制変位を与える方法を用いた。樹脂の構成方程式には FORTRAN を用いてユーザーサブルーチンの UMAT を作成した。なお図 1 に示すように本研究では z 方向が繊維方向で、 $x-y$ 方向が面内等方方向である。

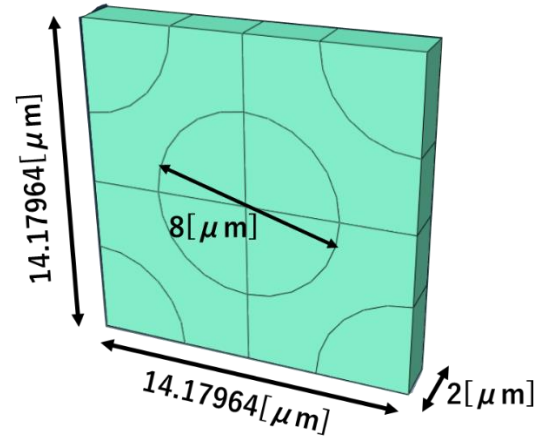


Fig.1 Unit cell model

表 1 に、繊維と樹脂の特性を示す。本研究では繊維はガラス繊維を用いて計算を行った。樹脂のプロニー級数は先行研究より 3 点曲げのクリープ試験より得られたコンプライアンスに 9 次プロニー級数を非線形最小二乗法で当てはめて、得られた級数をラプラス変換を行って無次元剛性のプロニー級数に変換することで求めている。

Table.1 Parameters for FEM calculation

Parameter		Value	
Glass			
$E_0[{\it GPa}]$		70	
ν		0.3	
α_T		5×10^{-6}	
Epoxy Resin			
Mechanical			
$G_0[{\it GPa}]$		0.978	
ν_0		0.38	
$\alpha_T(T < 52^{\circ}{\rm C})$		83×10^{-6}	
$\alpha_T(T \geq 52^{\circ}{\rm C})$		180×10^{-6}	
$T_g[^{\circ}{\rm C}]$		52	
$E_T[{\rm kJ/mol}]$		56.845	
$\varepsilon\lambda$		-0.01769 λ +0.01203	
Prony Parameters			
g_1	0.034070	τ_1	0.00096635[sec]
g_2	0.077824	τ_2	0.0092200[sec]
g_3	0.21788	τ_3	0.075995[sec]
g_4	0.13987	τ_4	0.81482 [sec]
g_5	0.32592	τ_5	4.2646 [sec]
g_6	0.13783	τ_6	37.524 [sec]
g_7	0.046842	τ_7	247.22[sec]
g_8	0.0094683	τ_8	4775.9[sec]
g_9	0.0016538	τ_9	82826 [sec]

2.3 成形中の FRP の構成方程式と熱・硬化ひずみの計算

成形中の FRP の剛性は、過去の研究を参考に以下の Maxwell モデルの式³⁾で表されるものとした。

$$Q(\tilde{t}, \lambda) = Q(\lambda)_\infty - \sum_{k=1}^{N_p} Q(\lambda)_k \exp\left[-\frac{\tilde{t}}{\tau_{ijk}}\right] \quad (6)$$

ここで Q は剛性行列、 Q_∞ は完全緩和時の剛性、 Q_k はプロニー級数項の剛性、 τ_{ijk} はプロニー級数項の緩和時間である。なお、 i, j は剛性の指数を示す。各項の緩和時間には樹脂と同じものを用いた。

一定ひずみを瞬時に与えて保持したユニットセルの数値実験により、応力緩和曲線を得ることが出来る。

$$\Sigma(\tilde{t}) = Q(\tilde{t}, \lambda)\{\varepsilon_0\} \quad (7)$$

ここで Σ は平均応力テンソル、 $\{\varepsilon_0\}$ は定ひずみテンソルであり単軸ひずみを与えれば各剛性係数の緩和曲線が得られる。

機械ひずみから熱ひずみを引くことで熱ひずみの影響が得られることになるが、本研究では寺田ら⁴⁾の成果を参考に、各プロニー級数項の要素のひずみから均等ではない熱ひずみが引かれるものとした。すなわち、一定ひずみを与えたユニットセルにおいては

$$\Sigma(\tilde{t}) = Q(\tilde{t}, \lambda)\{\varepsilon_0\} - \left\{ Q(\lambda)_\infty \alpha - \sum_{i=1}^{N_p} Q(\lambda)_i \exp\left[-\frac{\tilde{t}}{\tau_{ijk}}\right] \alpha_j \right\} \Delta T \quad (8)$$

よって、ゼロひずみを与えたときの応力緩和曲線から

$$\Sigma(\infty) = -Q(\lambda)_\infty \alpha_\infty \Delta T \quad (9)$$

また、平均応力に同じ緩和時間のプロニー級数を当てはめることで、以下の級数を定めることができる。

$$\Sigma(\tilde{t}) = \Sigma(\infty) - \sum_{i=1}^{N_p} Q(\lambda)_i \exp\left[-\frac{\tilde{t}}{\tau_{ijk}}\right] \quad (10)$$

よって、各プロニー級数項に対応する熱膨張係数 α_j は、以下の式から得られる。

$$\Sigma(\lambda)_k = -Q(\lambda)_i \alpha_j \Delta T \quad (11)$$

硬化収縮ひずみ $\beta \Delta \lambda$ についても、同様のプロセスで各プロニー級数項に対応したひずみ β_∞ 、 β_k を得ることが出来る。

熱膨張係数、硬化収縮係数はともに独立な剛性行列の要素数 $\times (N_p + 1)$ となり、非常に多くの係数を必要とする。マクロ物性が式(7)の構成方程式を用いている場合は、RVE から得た物性値をそのまま用いるので問題は無いが、各プロニー級数項で共通の熱ひずみ、硬化収縮ひずみを要求するソフトウェアを用いてマクロ計算をする場合は、最も適切な値を求めるプロセスが必要となるだろう。

3. 解析結果

3.1 剛性行列

本研究では単軸ひずみを与えた場合の応力緩和曲線から、剛性緩和曲線を求めた。表 2 に瞬時および長期剛性を示す。図 2 に瞬時剛性で正規化した $T=52^\circ\text{C}$ の時の各剛性要素を対数時間に対してプロットしたものを示す。図より Q11, Q13, Q33, Q44, Q66 は時間と共に剛性は減少するが、Q12 は時間と共にやや増加していることが分かる。表よりそれぞれの大きさを比較してみると、Q33 が一番大きい、これは 3 が z 軸方向で繊維方向であるためである。特に Q13 と Q33 は変化しないことが分かる。これは樹脂の変形が繊維に拘束されていることを示している。よって一方向材料の場合は、繊維方向の剛性については緩和を無視することができる。一方で Q44 と Q66 は大きく減少している。およそ 1/100 まで低下している。これは樹脂の残留せん断剛性が瞬時値の 0.8% 程度まで大きく下がるためである。せん断剛性以外がこの影響を大きく受けない理由は、樹脂の体積弾性率を温度に依存しない一定のモデルを用いているためである。

図 3 に硬化度と完全緩和の残留剛性の関係を示す。図より、残留剛性のせん断成分 Q44, Q66 は硬化度に比例して剛性が増加することが分かった。これは、硬化度の樹脂のせん断剛性への影響として硬化度に比例するモデルを用いたためである。一方で Q11, Q12, Q13, Q33 の残留剛性は硬化度に依存しないことが分かった。この硬化度に対する依存性が各プロニー級数項でも同じであれば、一方向 FRP の硬化度の温度依存性は 2 種類の関係式で表すことが出来る。

Table.2 Instantaneous and long-term stiffness
($T=52^\circ\text{C}$, $\lambda=1.0$)

Element	Instantaneous [GPa]	Long term [GPa]
Q11	10.56	7.138
Q12	6.445	7.098
Q13	5.707	5.684
Q33	40.19	39.55
Q44	2.735	0.02748
Q66	3.491	0.06717

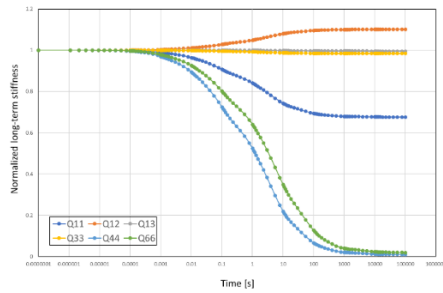


Fig.2 Normalized stiffness components of FRP ($\lambda = 1.0$)

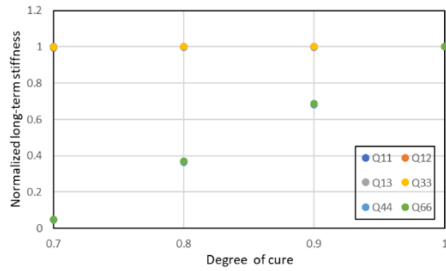


Fig.3 Normalized long-term stiffness components of FRP (Q_{∞} , $T=52^{\circ}\text{C}$)

3.2 熱膨張係数

図 4 は、ゼロひずみと温度変化 1°C を与えた時に生じる瞬時および長期の平均応力を示したものである。これより、熱膨張係数は時間変化の影響をほとんど受けないことが分かる。これは一方向材料では、熱膨張によってせん断変形が生じないので、繊維剛性が支配的であるためである。

図 5 に硬化度 70%~100%に変化させた時の熱膨張係数を示す。図より熱膨張係数は硬化度が上昇するにつれてほとんど変化していないことが分かる。

図 6 は硬化度と瞬時に 1°C の温度変化を与えた場合の完全緩和時の残留応力の関係を示す。図より残留応力は硬化度が変化してもほとんど変わらないことが分かる。このことから熱膨張係数は硬化度にほとんど依存しないことが分かる。

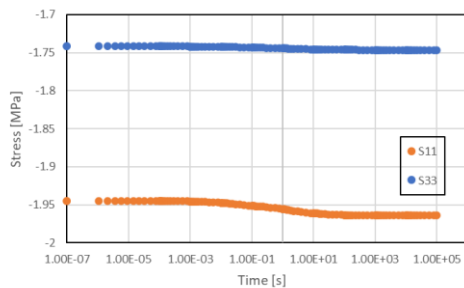


Fig.4 Stress components of FRP ($\lambda = 1.0$)

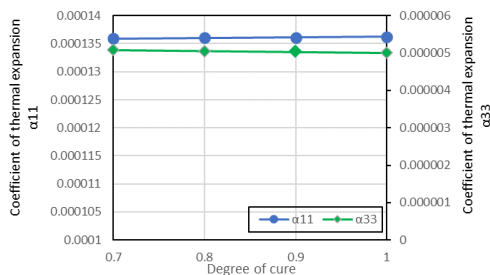


Fig.5 Coefficient of thermal expansion of degree of cure

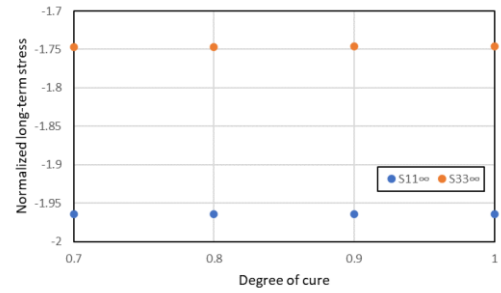


Fig.6 Relationship between long-term stress of FRP and degree of cure

3.3 硬化収縮ひずみ係数

図 7 は硬化度 100%, 硬化ひずみを求めるプロセスとして非機械的ひずみをゼロにし、温度変化を 1°C だけ与えたときの応力緩和曲線を示す。図より時間変化により応力はあまり変化していないことが分かる。これより硬化収縮ひずみ係数は時間変化の影響はほとんど受けないことが分かる。

図 8 に硬化度 70%~100%に変化させた時の硬化収縮ひずみ係数を示す。図より硬化収縮ひずみ係数は硬化度が上昇するにつれて繊維と垂直方向の硬化収縮ひずみ係数 β_{11} はほとんど変化していないことが分かる。しかし繊維方向の硬化収縮ひずみ係数 β_{33} は硬化度が上昇するにつれて、増加していることが分かる。そのため繊維方向の硬化収縮ひずみ係数は硬化度の影響を大きく受けることが分かった。この理由は繊維の収縮がゼロとなり、繊維によって変形が拘束されるので、ゼロひずみからの変化となるためである。しかしその大きさは横方向に比べて非常に小さく、繊維方向は硬化ひずみがほぼ現れないことが分かった。

図 9 は硬化度と瞬時に 1°C の温度変化を与えた場合の完全緩和時の残留応力の関係を示す。図より残留応力は硬化度が変化してもほとんど変わらないことが分かる。このことから硬化収縮ひずみ係数は硬化度にほとんど依存しないことが分かる。

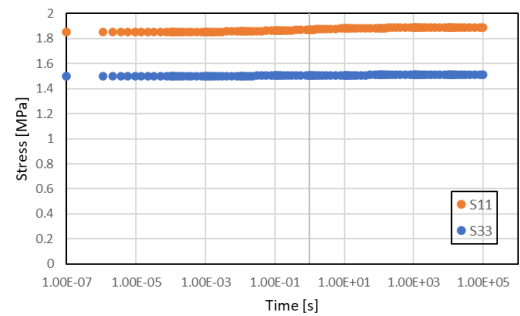


Fig.7 Stress components of FRP ($\lambda = 1.0$)

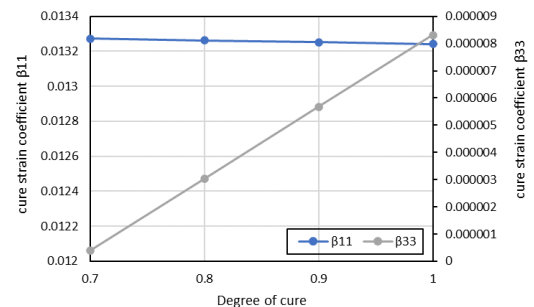


Fig.8 Cure strain coefficient of degree of cure

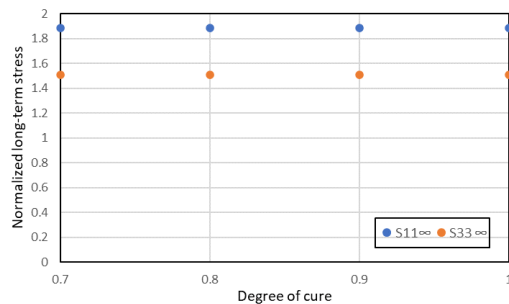


Fig.9 Relationship between long-term stress of FRP and degree of cure

4. 結言

本研究ではユニットセルモデルを用いて一方向 GFRP の成形中の均質化特性の計算を行った。エポキシ樹脂の特性は、先行研究の実験からモデル化された粘弾性モデルを用いた。その結果、以下の知見が得られた。

- (1) 繊維方向の剛性成分 Q13, Q33 は温度・硬化度の影響をほぼ受けず、時間が経過しても剛性はあまり変化しなかった。繊維と垂直方向の剛性 Q11, Q12 はせん断剛性に比べると小さいものの、温度と硬化度の影響を受けることが分かった。せん断剛性 Q44, Q66 は樹脂剛性の変化の影響を大きく受けて、温度・硬化度で著しく変化することが明らかになった。
- (2) FRP の剛性の温度-時間換算シフトファクターは、樹脂のものと完全に一致することが分かった。
- (3) FRP の粘弾性モデルのプロニー級数の緩和時間は、樹脂と同じものを用いてもよいことが分かった。
- (4) 剛性 Q11, Q12, Q13, Q33 のプロニー級数の硬化度依存性については、 Q_{∞} はほぼ硬化度に依存せず、 $Q_1 \sim Q_9$ は硬化度に比例することが分かった。また、 $Q_1 \sim Q_9$ の硬化度依存性はほぼ同等となったため、1つのモデルで表すことができることが示された。
- (5) 剛性 Q44, Q66 のプロニー級数の硬化度依存性は、全ての項が、他の剛性の $Q_1 \sim Q_9$ と同様に硬化度に比例することが分かった。
- (6) 一方向 GFRP の熱膨張係数は、 α_{11} , α_{33} ともに温度・硬化度の影響をほとんど受けないことが分かった。
- (7) 一方向 GFRP 硬化収縮係数は、 β_{11} については温度・硬化度の影響をほとんど受けないことが分かった。 β_{33} は影響を受けるが、その値は著しく小さいため、0 と考えてもよいことが分かった。

以上の結果から、一方向 GFRP の成形中の均質化特性に関して、以下のことが分かった。

- (1) Q13, Q33 は定数としてモデル化してよいが、他の剛性はプロニー級数を用いた粘弾性モデルが必要であ

る。

- (2) 硬化度依存性については、Q11, Q12, Q13, Q33 の Q_{∞} は一定で、他の項は硬化度に比例する 1 つのモデルで表すことができる。
- (3) 熱膨張および硬化収縮係数は、定数でよい。

文献

- (1) 高坂達郎, 逢坂勝彦, 澤田吉裕 “FBG センサを用いた樹脂ポストキュア過程のモニタリング”, 日本機械学会論文集 Vol60, No.5, pp648-653, 2011
- (2) 荒井政大, 角考平, 伏見祐介, 松田哲也, “均質化法を用いた CFRP 積層板の粘弾性構成式の評価”, 計算数理工学論文集, Vol. 8, No. 10-081128 (2008)
- (3) 山本晃司, 石橋慶輝, 染宮聖人, 平山紀夫, 寺田賢二郎, “繊維強化熱可塑性樹脂の異方性粘弾性構成則における緩和特性と弾性率の温度依存性に関する数値解析的検討”, 日本機械学会論文集, Vol. 85 (2019), No. 874, 19-00058-19-00058 (2019)
- (4) 斎藤理沙, 山口裕矢, 森口周二, 三原康子, 小林卓哉, 寺田賢二郎 “硬化プロセスを考慮した繊維強化プラスチックのマクロ構成則における粘弾性特性および熱変形・硬化収縮特性の同定方法”, 日本機械学会論文集 Vol85, No.870, 2019