

Satoru Yamamoto

要 旨

流体中に分散した粒子の運動を解析する粒子シミュレーション法を提案した。本方法では, 粒子を球の集合体としてモデル化し,隣接する球を引張り・曲げ・ねじりの各変形を表す3種類 のバネで結合する。流体中における各球の運動を計算することにより粒子全体の運動を追跡す る。流体力学的相互作用は粒子内と粒子間に分けて考慮し,前者では各粒子を構成する球間の 多体問題として流動性マトリックスを計算することにより,各球が流体から受ける粘性力とト ルクを求める。粒子間の流体力学的相互作用については潤滑近似を用いて近距離の相互作用の みを考慮する。本方法を繊維および板状粒子分散流体のミクロ構造とレオロジー特性の予測, 射出成形における充填材の運動解析に応用した。

## Abstract

A particle simulation method (PSM) is proposed for computing the dynamics of particle dispersed systems. In this method, a particle is modeled by using arrays of spheres. Two adjacent spheres are connected with three types of springs; stretch, bend, and twist for the deformability of the particle. The motion of the particles in flow is followed by solving the translational and rotational equations of motion for each constituent sphere. The hydrodynamic interaction among particles is considered by decomposing into intraand inter-fiber ones. In the former, the many-body problem is solved by calculating the mobility matrix for each particle to obtain the hydrodynamic force and torque exerted on each sphere. In the latter, only the near-field lubrication force is treated between spheres of a given particle and another. The method was applied to predicting the microstructure of fiber and platelike particle dispersed systems, their rheological properties, and the motion of fillers in an injection molding flow.

キーワード 粒子分散流体,サスペンジョン,ミクロ構造,レオロジー,粒子シミュレーション,充填材,せん断流 れ,射出成形,繊維,タルク,配向

### 1.はじめに

粒子分散材料の物性は,分散粒子の形状,剛性, 充填率,分散状態など粒子が形成するミクロな構 造に強く依存する。このようなミクロ構造は材料 の成形加工時の流動に起因することが多くある。 例えば,繊維強化樹脂の射出成形の分野では,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,繊維配向によって機械的性質に異方性 が生じるということはよく経験することである。

材料中の粒子のミクロ構造が分かれば,材料物 性を推定する手がかりとなり,一歩進んで流動条 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 中の粒子の運動を理解し,どのようなミクロ構造 を形成するかを予測することが重要である。 流体中の粒子の運動は,サスペンジョンが希薄 であれば直接観察することができるが,多くの材 料では粒子の充填率が高いためこのような方法は とれない。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場合はほとんどない。さらに, 繊維やタルク等の異方性粒子が分散した材料で は,複雑なレオロジー挙動を示すため,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 困難である。

近年,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<sup>1)</sup>,構 造粘性の現象解明<sup>2)や</sup>,電気粘性流体のレオロジ ー解析<sup>3)</sup>などに応用されている。実験では容易に 知ることのできないサスペンジョン内部の構造を 考察する上で,計算機シミュレーションは有効な 方法である。しかし,これまでの計算機シミュレ ーションでは球形の粒子が分散した系を対象とし たものがほとんどであった。

当所では,粒子分散流体のミクロ構造とレオロ ジー特性を予測することをねらいとして粒子シミ ュレーション法の開発を進めている<sup>4-12)</sup>。この 方法は,繊維や板状粒子など様々な形状の粒子を 球の集合体としてモデル化し,流動場において各 球の運動方程式を解くことにより粒子全体の運動 を解析する方法である。隣接する球をバネで結合 することにより,剛直あるいは柔軟な粒子,さら には脆性な粒子の運動を解析することが可能であ る。粒子内および粒子間に流体力学的相互作用を 考慮することにより,多数の粒子が分散した濃厚 系の解析を行うことができる。

ここでは,粒子シミュレーション法の内容と, 本方法を用いて繊維および板状粒子分散流体のミ クロ構造とレオロジー解析,射出成形における充 填材の運動解析を行った内容について報告する。

2. 粒子シミュレーション法

2.1 粒子モデル

粒子シミュレーション法では,アスペクト比N の繊維,あるいは縦:横:厚さの比が $N_1: N_2: 1(N_1 \times N_2 = N)$ の板状粒子をFig. 1のようにN個の球(半 径a)を用いてモデル化する。隣り合う球どうしは, 引張り・曲げ・ねじりの3種類のバネで結合され ており, Fig. 2(a)~(c)に示すような各変形が可能 である。各変形に対して,変形量に比例した復元 カ $F^s$ あるいは復元トルク $T^b$ ,  $T^t$ が式(1)~(3)によ って各球に働く。このとき,各変形に対する粒子 の剛性を表す定数 $k_s$ ,  $k_b$ および $k_t$ は粒子の縦弾性 係数(ヤング率) Eあるいは横弾性係数(剛性率) Gを用いて表すことができる。

- $F^s = -k_s r \tag{1}$
- $T^{b} = -k_{b}\theta_{b} \tag{2}$
- $T^{t} = -k_{t}\theta_{t} \tag{3}$

ただし $k_s = \frac{\pi a}{2} E$ ,  $k_b = \frac{\pi a^3}{8} E$ ,  $k_t = \frac{\pi a^3}{4} G$ で, rは結 合長,  $\theta_b$ は結合角,  $\theta_t$ はねじり角の各変位を表す。 2.2 支配方程式

ここでは, せん断流動場における繊維状粒子の 運動を例にして, 計算方法を述べる。多数の粒子



Fig. 1 Schematic illustrations of fiber and platelike particle models.



Fig. 2 Configurations of a pair of connected spheres for deformation: (a) stretching, (b) bending, and (c) twisting.

が分散した系を表すためにFig. 3に示すように, 一辺の長さLの基本セル(体積 $V = L^3$ )を考えて, 粘度 $\eta$ の分散媒中にN個の球で構成される粒子M個をランダムに分散する(Fig. 3は繊維分散流体の 場合)。このとき,体積分率は次式で定義される。

$$\phi = \frac{4}{3} \pi a^3 NM / L^3 \tag{4}$$

そこへ, Fig. 3に示したせん断流動場(せん断速 度γ)を次式で与えて,周期境界条件を考慮して 粒子の運動を計算する。

$$v_x = -\gamma \dot{y} , v_y = 0 , v_z = 0$$
(5)

粒子を構成する各球の位置を $\mathbf{r}_i$ ,配向角を $\theta_i$ , 速度を $\mathbf{v}_i$ ,角速度を $\omega_i$ で表すと,各球の並進運動 と回転運動の方程式および結合した球との間で滑 りが無い条件は次のようになる。

$$m \frac{d\mathbf{v}_i}{dt} = \Sigma \mathbf{F}_t^s + \Sigma \mathbf{f}_{ij} + \mathbf{F}_i^h + \Sigma \mathbf{F}_{ij}^p$$
(6)

$$\frac{2}{5}ma^{2}\frac{d\omega_{t}}{dt} = \Sigma \mathbf{T}_{i}^{b} + \Sigma \mathbf{T}_{i}^{t} + \Sigma \mathbf{f}_{ij} \times a\mathbf{n}_{ij} + \mathbf{T}_{i}^{h}$$
(7)

$$\mathbf{v}_i + a\mathbf{\omega}_i \times \mathbf{n}_{ii} = \mathbf{v}_i + a\mathbf{\omega}_i \times \mathbf{n}_{ii}$$
(8)

ただし, **n**<sub>ij</sub>は隣り合う球の中心を結ぶ方向の単 位ベクトル

 $\mathbf{n}_{ij} = (\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i) / |\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i|$  (9) であり, mは球の質量,  $\mathbf{F}_i^h \ge \mathbf{T}_i^h$ は各球が流体か



Fig. 3 Schematic illustration of the fiber suspension in shear flow. Fibers constructed from *N* spheres of radius *a* are dispersed into a unit cell with periodic boundaries.

ら受ける粘性力と粘性トルクである。また, $\mathbf{F}_{i}^{s}$ は 引張り変形に対する復元力, $\mathbf{T}_{i}^{b}$ は曲げ変形に対 する復元トルク, $\mathbf{T}_{i}^{t}$ はねじり変形に対する復元ト ルク, $\mathbf{f}_{ij}$ は結合した球の間に働く摩擦力であり, 総和記号は両側の球との間の力およびトルクを考 えることを意味する。 $\mathbf{F}_{ij}^{p}$ は粒子間の流体力学的 相互作用を表す項であり,球*i*と他の粒子を構成 する球との間の力を考慮する。式(6)~(8)を連立 させて各球の運動すなわち粒子全体の運動を計算 する。

2.3 粒子分散流体の応力

粒子分散流体の応力の各成分は,球と流体との 摩擦による散逸エネルギーに基づいて求めること ができ,例えばせん断応力 $\sigma_{xy}$ と法線応力 $\sigma_{xx}$ は次 のように表される。

$$\sigma_{xy} = \left( \left| 1 + \frac{5}{2} \phi \right| \right) \eta \left( \kappa_{xy} + \kappa_{yx} \right) + \Delta \sigma_{xy}$$
(10)

$$\sigma_{xx} = P + \Delta \sigma_{xx} \tag{11}$$

ただし, κは速度勾配テンソル, Pは圧力であ る。式(10)の第1項は粒子を分散したことによる 寄与であり,式(10)と(11)における第2項が粒子間 の相互作用による寄与である。これらは次のよう に表すことができる。

$$\Delta \sigma_{xy} = \frac{1}{V} \left( \sum_{i} F_{ix}^{h} r_{iy} - \frac{1}{2} \sum_{i} T_{iz}^{h} \right)$$
(12)

$$\Delta \sigma_{xx} = \frac{1}{V} \sum_{i} F_{ix}^{h} r_{ix}$$
(13)

# 2.4 粒子間相互作用

一般に,粒子分散系の流体力学的相互作用は多体問題として扱われるが,本方法においてそれを用いることは計算量から考えて現実的ではない。 そこで,流体力学的相互作用を粒子内と粒子間に分けて扱うこととし,粒子間については潤滑近似を用いて近距離の相互作用のみを考慮し,遠距離のものについては無視した。

はじめに粒子内の流体力学的相互作用について 述べる。粒子を構成する各球が流体から受ける粘 性力 $\mathbf{F}_{i}^{h}$ と粘性トルク $\mathbf{T}_{i}^{h}$ については、粒子内の流 体力学的相互作用を考慮して、次のようにN個の 球の間の多体問題として取り扱う。すなわち、各 球が流体から受ける力 $\mathbf{F}_{i}^{h}$ とトルク $\mathbf{T}_{i}^{h}$ は次のよう に表される。

$$\begin{pmatrix} \mathbf{F} \\ \mathbf{T} \end{pmatrix} = -\mathbf{M}^{-1} \begin{pmatrix} \mathbf{V} - \mathbf{V}_0 \\ \Omega - \Omega_0 \end{pmatrix}$$
(14)

ここで, F, Tは各球に働く力とトルクを表す ベクトル(3N)であり, V, V<sub>0</sub>,  $\Omega$ ,  $\Omega_0$ は各球と 流体の速度と角速度を表すベクトル(3N)であ る。また, Mは流動性マトリックスと呼ばれる  $6N \times 6N$ の行列である。各時刻における粒子を構 成する各球の配置から行列Mを計算し,その逆行 列を求めた後,式(14)から各球に働く粘性力と粘 性トルクを計算する。この操作を全ての粒子につ いて行う。

次に,粒子間の流体力学的相互作用については, ここでは潤滑近似を用いて球と球との間の2体問 題として取り扱うこととする。すなわち,球iが 他の粒子を構成する球jに接近したときに,次の 力 $\mathbf{F}_{ij}$ が球iに働くものとした。

$$\mathbf{F}_{ij}^{p} = \frac{3}{2} a^{2} \pi \eta \frac{(\mathbf{v}_{j} - \mathbf{v}_{i}) \cdot \mathbf{n}_{ij}}{|\mathbf{r}_{j} - \mathbf{r}_{i}| - 2a} \mathbf{n}_{ij}, \quad |\mathbf{r}_{j} - \mathbf{r}_{i}| < 3a \text{ のとき}$$
(15)

式(15)から分かるように,2つの球が接近すると きには斥力が働き離れようとするときには引力が 働く。また,2球が接触すると力は無限大になるこ とから,この力を考慮するだけで球どうしの重な り合いを防ぐことができることになる。しかし, 実際の計算では誤差によって僅かな重なりが生じ てしまう。そこで,重なったときには剛体反発力 を作用させて球どうしの重なりを防ぐこととした。

3 . 応用

3.1 繊維分散流体のレオロジー解析

Fig. 3で示した基本セルを用いて,アスペクト比 5および10の剛直な繊維が分散した濃度0.1~ 25vol%の流体を作り,そこへせん断流動場を与え たときのミクロ構造とレオロジー挙動を計算した。

基本セル内に100本の繊維をランダムに分散し た状態を初期条件とし,繊維の濃度は基本セルの サイズを変えることによって調整する。繊維の剛 性は,流動場のせん断応力 $\eta\gamma$ と繊維のヤング率*E* との比で定義することができ,繊維が十分に剛直 であるように $\eta\gamma'/E = 0.0002$ と設定した。

繊維の形成するミクロ構造の一例として,アス

ペクト比10の繊維が分散した5vol%の場合をFig. 4とFig.5に示す。それぞれ,ひずみ10のときの ミクロ構造とひずみ1000のときのものである。 いずれの場合にも視点を変えた2つの図を示した。 せん断流動場を与えた直後のミクロ構造では,繊 維が全体にせん断方向(x方向)に強く配向して いる。この状態から繊維はz軸に垂直な面内もし くはそれに近い軌道で回転運動をしようとする が,繊維どうしが互いに相互作用するため,繊維 どうしの衝突を避けるように次第にz軸に近い軌 道で運動するようになる。その結果,Fig.5に見 られるように繊維はy軸に垂直な面内で運動する 構造へと変化する。



Fig. 4 Snapshots of the microstructure of the rigid fiber suspension at an early stage of strain 10. Fibers strongly align in the shear direction.



Fig. 5 Snapshots of the microstructure of the rigid fiber suspension at an equilibrium state of strain 1000. The planar orientation of fibers parallel to *z*-*x* plane is observed.

種々の繊維濃度について同様の計算を行った結 果,準希薄系から濃厚系にかけての濃度領域で 繊維が面内配向するようにミクロ構造が変化し, それに伴って粘度のオーバーシュートが見られ た(Fig. 6)。

相対粘度と濃度の関係をプロットしたFig.7では、ミクロ構造の変化の起こる濃度領域において 平坦部が見られ、さらに濃厚になると粘度が急激 に大きくなった。

一方,繊維が柔軟な場合( $\eta \dot{\gamma} / E = 0.004$ )には Fig. 8に示すように,繊維が変形しながらせん断



Fig. 6 Transient changes of relative viscosity for rigid fiber suspensions of aspect ratio 5. Smoothed data are indicated by dotted lines.



Fig. 7 Relation between relative viscosity and concentration for rigid fiber suspensiions of aspect ratios 5 and 10. Data are average for last 100 strains.

方向へ配向するミクロ構造になる。このとき,繊 維の変形により第一法線応力差が現れ,繊維分散 流体に弾性的な性質が現れる。

3.2 板状粒子分散流体のミクロ構造解析

板状粒子分散流体の例として,粒子が正方形の 場合と長方形の場合についてミクロ構造を解析し た。その結果,一般に板状粒子は面配向すること が明らかになったが,粒子が長方形の場合には繊 維分散流体の性質も合わせて発現することが分か った。すなわち,Fig.9は長方形(5:2:1)の粒 子が分散した濃度5vol%の流体のミクロ構造であ



Fig. 8 Microstructure of the flexible fiber suspension at an equilibrium state of strain 1000. Fibers are deformed and stretched in the shear direction.



Fig. 9 Microstructure of a rectangular platelike particle dispersed system. The planar orientation of particles parallel to the *z*-*x* plane and the orientation of the major axis of the particle in the shear direction (the *x* axis) are observed.

るが,粒子が*z-x*面に平行に面配向すると同時に 板の長軸がせん断方向(*x*軸方向)に配向したミ クロ構造となり,板と繊維の両方の性質が現れた。

3.3 射出成形における充填材の運動解析

3次元樹脂流動解析プログラムRemylop<sup>13)</sup>を用 いて求めた樹脂流動場において粒子の運動を計算 することにより,射出成形中の充填材の運動を解 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。

射出成形中の繊維の運動解析例として,ジグザ グ形キャビティをもつガラス可視型について計算 を行い,実験結果と比較した。繊維は直径 0.15mm,長さ2.5mmの金属繊維で,濃度は 0.1vol%である。キャビティ形状と射出成形時の 繊維の運動の様子をFig. 10に示す。ゲートと最 終充填部を結ぶパス上に繊維の密度が高くなるこ と,後から充填された繊維が先に充填されている 繊維を追い越してメルトフロントに到達するこ と,コーナー部と壁面近傍の繊維が移動を停止し て滞留することなど,可視化実験による観察結果 と一致した。

また,タルクを含有したポリプロピレン樹脂を 用いて試験片を射出成形し,タルクの配向を観察 して,シミュレーションの結果と比較した。計算 で求めた中央断面におけるタルクの配向をFig.11 に示す。表面近傍では表面に平行になるように面 配向していることが分かるが,この傾向は実験に よる観察結果と一致するものである。

4.まとめ

球を結合したモデルで粒子を表し,流動場にお いて各球の運動を計算するという粒子シミュレー ション法を用いて粒子分散流体のミクロ構造とレ オロジー特性を解析する方法を提案した。流体力 学的相互作用を粒子内と粒子間に分けて考慮する ことにより,多数の粒子が分散した流体の粒子シ ミュレーションが可能になった。

この方法を繊維分散流体に適用した結果,準希 薄系から濃厚系にかけての濃度領域で繊維が面内 配向するようにミクロ構造が変化し,それに伴っ



Fig. 10 Cavity model and snapshots of fiber motion in injection mold filling.

豊田中央研究所 R&D レビュー Vol. 33 No. 2 (1998. 6)





Fig. 11 Injection molded dumbbell specimen and calculated microstructure of square platelike fillers on A-A cross section.

て粘度のオーバーシュートが見られた。また,板 状粒子分散流体では粒子が面配向し,長方形粒子 の場合にはさらに長軸が流れ方向に配向すること が分かった。

樹脂流動解析で得られた流動場で粒子の運動を 計算することにより,射出成形時の充填材の運動 解析に適用できることを確認した。

本報告では,粒子の形状として繊維および板の みであったが,球の結合様式を変えることによっ てこれら以外の形状にも応用可能であり,本方法 を様々な粒子分散材料のミクロ構造予測に応用し ていきたい。

### 参考文献

- 1) Brady, J. F. and Bossis, G. : "Stokesian Dynamics", Ann. Rev. Fluid Mech., 20(1988), 111
- Doi, M. and Chen, D. : "Simulation of Aggregating Colloids in Shear Flow", J. Chem. Phys., 90-10(1989), 5271
- 山本智,松岡孝明,高橋秀郎,倉内紀雄: "電機粘性流体のモデルとシミュレーション",高分子論文集,49-5 (1992),413

- Yamamoto, S. and Matsuoka, T. : "A Method for Dynamic Simulation of Rigid and Flexible Fibers in a Flow Field", J. Chem. Phys., 98-1(1993), 644
- Yamamoto, S. and Matsuoka, T. : "Viscosity of Dilute Suspensions of Rodlike Particle: A Numerical Simulation Method", J. Chem. Phys., 100-4(1994), 3317
- Yamamoto, S. and Matsuoka, T. : "Dynamic Simulation of Flow-Induced Fiber Fracture", Polym. Eng. Sci., 35-12 (1995), 1022
- 松岡孝明,山本智: "拡大流れにおける繊維配向の数値 解析",日本レオロジー学会誌,23-3(1995),139
- Yamamoto, S. and Matsuoka, T. : "Dynamic Simulation of Fiber Suspensions in Shear Flow", J. Chem. Phys., 102-5 (1995), 2254
- 山本智,松岡孝明: "粒子シミュレーション法による繊 維分散系のレオロジー解析",日本レオロジー学会誌, 23-2(1995),95
- Yamamoto, S. and Matsuoka, T. : "Dynamic Simulation of Microstructure and Rheology of Fiber Suspensions", Polym. Eng. Sci., 36-19(1996), 2396
- Yamamoto, S. and Matsuoka, T. : "Dynamic Simulation of a Platelike Particle Dispersed System", J. Chem. Phys., 107-8(1997), 3300
- 12) 山本智,井上良徳,東智美,松岡孝明:"粒子シミュレーション法の樹脂成形への応用",第9回高分子加工技術討論会講演要旨集,(1997),13
- 13) 井上良徳, 松岡孝明: "射出成形樹脂流れの3次元シミ ュレーション", 日本レオロジー学会誌, 21-3(1993), 175

## 著者紹介



 山本智 Satoru Yamamoto
 生年:1963年。
 所属:材料モデリング研究室。
 分野:粒子分散材料・高分子材料のコン ピュータ解析。
 学会等:日本燃焼学会,高分子学会,日 本化学会会員。