

高分子液晶の金型内 Hele-Shaw 流れの数値シミュレーション*

孫 建 業^{*1}, 蝶 野 成 臣^{*2}, 辻 知 宏^{*2}Numerical Simulation of Molding Hele-Shaw Flow
of Polymeric Liquid CrystalsJianye SUN, Shigeomi CHONO^{*3} and Tomohiro TSUJI^{**} Department of Intelligent Mechanical Systems Engineering, Kochi University of Technology,
185 Miyanokuchi, Tosayamada-cho, Kami-shi, Kochi, 782 8502 Japan

To develop a simulation software which is able to predict the molding flow of polymeric liquid crystals, we present a basic model and its computational procedure. The flow is modeled by the Transversely Isotropic Fluid theory, which is equivalent to the Leslie-Ericksen equations in the high viscosity limit. In the modeling, the Hele-Shaw approximation is applied in order to reduce computational power. Finite difference technique is used to solve governing equations except for the angular momentum equation, which is solved by the streamline integration method. Two thin molds with simple shape are selected to evaluate the model. The computational results for locations of flow front, temperature and molecular orientation profiles show that the model can predict smooth molding process and that molecular orientation depends largely on the position in the gap direction. Since alignment of molecules is disordered by the occurrence of tumbling, which depends on fluid temperature and shear strain, mold temperature and gate position are important for effective molding.

Key Words: Numerical Analysis, Non Newtonian Flow, Polymeric Liquid Crystal, Molding Process, Hele-Shaw Approximation, Transversely Isotropic Fluid

1. 結 言

液晶ディスプレイに用いられている液晶は低分子液晶であるのに対し, 高分子液晶は高機能・高性能なスーパーエンブレの一つとして注目されている^①. これは, 高分子液晶が有する高い機械的強度や, 優れた寸法安定性に起因している. しかし一方で, 高配向であるが故に配向に沿った方向に割れが生じやすい欠点も包含しており, 分子配向を考慮した成形加工技術が重要となっている. このため用途に応じた成形条件を適切かつ迅速に選択することが肝要で, 計算機シミュレーションに期待が寄せられている.

通常の等方性高分子材料について振り返ると, 種々の構成方程式が提案され, 金型内の流動を満足にシミュレートできる CAE 技術が, この 10 年程度の間飛躍的に進歩した. その結果, 今では多数の汎用ソフトウェアが市販されている. これに対して高分子液晶は,

負の法線応力差^{②③}, ディレクタのタンプリング (tumbling) 挙動^④, さらにポリドメイン構造^⑤を発現し, そのレオロジー挙動は極めて複雑である. 従って CAE 技術のベースとなる流動の理論的取扱いは等方性高分子材料に比べて極めて立ち後れており, さらなる理論的, 数値的研究が強く望まれている.

液晶流動を記述する理論として, Leslie-Ericksen (L-E) 理論^{⑥⑦}と土井理論^{⑧⑨}が挙げられる. 一般に L-E 理論は低分子液晶に, 土井理論は高分子液晶に用いられているが, L-E 理論を高分子液晶に応用した例も見られる^⑩. 土井理論は負の法線応力の発生やディレクタの特異挙動を明確に説明できるが, 配向状態を配向分布関数で表現するため計算量は膨大になる^{⑪⑫}. そこで土井理論を 2 階のテンソルで近似した式が用いられている^{⑬⑭}, 汎用ソフトウェアの基礎式として用いるにはやはり複雑である. これに対して L-E 理論はベクトルで表現された理論であることから, 配向状態の厳密性にはやや欠けるところがあるものの, 取り扱いが比較的容易で, ソフトウェアの汎用化には適していると考えられる.

* 原稿受付 2005 年 9 月 15 日.

^{*1} 高知工科大学大学院工学研究科(☎782-8502 香美市土佐田町宮ノ口185).^{*2} 正員, 高知工科大学知能機械システム工学科.

E-mail: chono.shigeomi@kochi-tech.ac.jp

本研究では高分子液晶の金型内薄膜流動に関する汎用ソフトウェアの構築を最終目的として、次章で言及するように、L-E 理論をさらに簡略化した Transversely Isotropic Fluid (TIF) 理論^{9,10)}を構成方程式としたモデルを提案し、さらに計算結果を例示する。なおポリドメイン構造を満足に表現できる理論は未だ存在せず、また比較的大きな速度こう配が発生する加工中ではポリドメイン構造は崩壊するので、本研究ではモノドメイン状態の高分子液晶の薄膜流動に限定する。

2. モデリング

2.1 支配方程式 一般に液晶の流動は、慣性力、粘性力、圧力による力、ならびに分子配向の空間的歪みに基づく弾性力の大小関係によって決定される。しかし高分子液晶の場合、低分子系の液晶に比べて粘性力が極めて大きいため慣性力と弾性力は無視できる。ネマティック液晶の理論である L-E 理論において弾性力を無視すると、Ericksen によって導かれた TIF 理論となる。本研究ではこの理論を構成方程式として用いる。すなわち、高分子液晶の遅い流れを記述する支配方程式は

・連続の式

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (1)$$

・運動方程式

$$\mathbf{0} = \nabla \cdot (-p\mathbf{I} + \boldsymbol{\tau}) \quad (2)$$

・構成方程式

$$\boldsymbol{\tau} = \beta_1 \mathbf{A} + \beta_2 \mathbf{A} : \mathbf{n} \mathbf{n} \mathbf{n} + \beta_3 (\mathbf{n} \mathbf{n} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{A} \cdot \mathbf{n} \mathbf{n}) \quad (3)$$

・角運動方程式

$$\frac{D\mathbf{n}}{Dt} = \boldsymbol{\Omega} \cdot \mathbf{n} + \lambda (\mathbf{A} \cdot \mathbf{n} - \mathbf{A} : \mathbf{n} \mathbf{n}) \quad (4)$$

・エネルギー方程式

$$\rho c \frac{DT}{Dt} = -(\nabla \cdot \mathbf{q}) + (\boldsymbol{\tau} : \nabla \mathbf{v}) \quad (5)$$

である。これらの式において ∇ は微分演算子、 \mathbf{v} は速度ベクトル、 p は圧力、 \mathbf{I} は単位テンソル、 $\boldsymbol{\tau}$ は偏差応力テンソル、 \mathbf{n} はディレクタであり棒状液晶分子の局所的な平均配向方向を表す。 D/Dt は実質微分、 λ はタンプリングパラメータ、 β_i ($i=1\sim 3$) は粘性係数、 ρ は流体密度、 T は温度、 c は比熱である。 \mathbf{A} は変形速度テンソル、 $\boldsymbol{\Omega}$ は渦度テンソルで、

$$2\mathbf{A} = (\nabla \mathbf{v})^T + \nabla \mathbf{v} \quad (6)$$

$$2\boldsymbol{\Omega} = (\nabla \mathbf{v})^T - \nabla \mathbf{v} \quad (7)$$

である。また \mathbf{q} は熱流束ベクトルで異方性流体では

$$\mathbf{q} = -k_1 (\mathbf{n} \cdot \nabla T) \mathbf{n} - k_2 \nabla T \quad (8)$$

と表される。ここで k_1 、 k_2 は熱伝導率であり、右辺第 1 項が異方性を意味する¹¹⁾。

2.2 Hele-Shaw 近似 本研究では図 1 に示すような金型内薄膜流動を対象とするので、Hele-Shaw 近似を適用することができる。この場合、自由表面近傍や側壁近傍の流動は正確に表現されないが、その範囲は金型厚さ程度である。

2.2.1 運動方程式 図 1 の座標系において z 方向速度を 0 とし、且つ z 方向変化に比べて x 、 y 方向変化は極めて緩やかであるので、圧力以外の $\partial/\partial x$ 、 $\partial/\partial y$ に関する項を落とすと、成分表示した運動方程式(2)は

$$x \text{ 方向: } \frac{\partial p}{\partial x} = \frac{\partial \tau_{zx}}{\partial z} \quad (9a)$$

$$y \text{ 方向: } \frac{\partial p}{\partial y} = \frac{\partial \tau_{zy}}{\partial z} \quad (9b)$$

$$z \text{ 方向: } \frac{\partial p}{\partial z} = 0 \quad (9c)$$

となる。式(9c)より圧力 p は x 、 y のみの関数である。

式(9a)、(9b)のせん断応力 τ_{zx} 、 τ_{zy} は、式(3)より

$$\tau_{zx} = f_1(x, y, z) \frac{\partial u(x, y, z)}{\partial z} + f_2(x, y, z) \frac{\partial v(x, y, z)}{\partial z} \quad (10a)$$

$$\tau_{zy} = f_2(x, y, z) \frac{\partial u(x, y, z)}{\partial z} + f_3(x, y, z) \frac{\partial v(x, y, z)}{\partial z} \quad (10b)$$

となる。ここで u 、 v は、それぞれ速度ベクトル \mathbf{v} の x 方向および y 方向成分である。また $f_1 \sim f_3$ は、

$$f_1 = \frac{\beta_1}{2} + \beta_2 n_x^2 n_z^2 + \frac{\beta_3}{2} (n_x^2 + n_z^2) \quad (11a)$$

$$f_2 = \left(\beta_2 n_z^2 + \frac{\beta_3}{2} \right) n_x n_y \quad (11b)$$

$$f_3 = \frac{\beta_1}{2} + \beta_2 n_y^2 n_z^2 + \frac{\beta_3}{2} (n_y^2 + n_z^2) \quad (11c)$$

のように表される。ただし n_x 、 n_y 、 n_z はディレクタ \mathbf{n} の x 、 y 、 z 成分である。

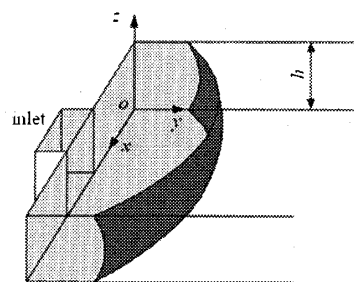


Fig. 1 Hele-Shaw type flow in a mold cavity

式(10)を式(9)に代入し, $z=0$ で $u=v=0$ の条件を用いて z に関して積分すると,

$$u = \frac{\partial p}{\partial x} \int_0^z \frac{f_3}{D} z dz - \frac{\partial p}{\partial y} \int_0^z \frac{f_2}{D} z dz + C_1 \int_0^z \frac{f_3}{D} dz - C_2 \int_0^z \frac{f_2}{D} dz \quad (12a)$$

$$v = -\frac{\partial p}{\partial x} \int_0^z \frac{f_2}{D} z dz + \frac{\partial p}{\partial y} \int_0^z \frac{f_1}{D} z dz - C_1 \int_0^z \frac{f_2}{D} dz + C_2 \int_0^z \frac{f_1}{D} dz \quad (12b)$$

を得る. ただし $D(x,y,z) = f_1 f_3 - f_2^2$ である. $C_1(x,y)$, $C_2(x,y)$ は積分定数であり, $z=h$ (h は流路厚さ) で $u=v=0$ の条件より決定される (付録参照). z 方向に平均した速度ベクトル $\bar{v}(x,y)$ は

$$\bar{v} = \frac{1}{h} \int_0^h v dz \quad (13)$$

であるので, 式(12)を式(13)に代入し部分積分を行えば, 平均速度成分 $\bar{u}(x,y)$, $\bar{v}(x,y)$ に関して

$$h\bar{u} = G_1(x,y) \frac{\partial p}{\partial x} + G_2(x,y) \frac{\partial p}{\partial y} \quad (14a)$$

$$h\bar{v} = G_3(x,y) \frac{\partial p}{\partial x} + G_4(x,y) \frac{\partial p}{\partial y} \quad (14b)$$

を得る (G_i については付録参照). Hele-Shaw 近似した連続の式

$$\frac{\partial(h\bar{u})}{\partial x} + \frac{\partial(h\bar{v})}{\partial y} = 0 \quad (15)$$

に式(14)を代入すると, 最終的に次式で表される圧力に関する楕円形方程式が得られる.

$$G_1 \frac{\partial^2 p}{\partial x^2} + (G_2 + G_3) \frac{\partial^2 p}{\partial x \partial y} + G_4 \frac{\partial^2 p}{\partial y^2} + \left(\frac{\partial G_1}{\partial x} + \frac{\partial G_3}{\partial y} \right) \frac{\partial p}{\partial x} + \left(\frac{\partial G_2}{\partial x} + \frac{\partial G_4}{\partial y} \right) \frac{\partial p}{\partial y} = 0 \quad (16)$$

2・2・2 角運動方程式 図1の座標系で展開した角運動方程式(4)は

$$\frac{\partial n_x}{\partial t} + u \frac{\partial n_x}{\partial x} + v \frac{\partial n_x}{\partial y} = \frac{1+\lambda}{2} \left(\frac{\partial u}{\partial y} n_y + \frac{\partial u}{\partial z} n_z \right) - \lambda n_x \left(C - \frac{\partial u}{\partial x} \right) - \frac{1-\lambda}{2} \frac{\partial v}{\partial x} n_y \quad (17a)$$

$$\frac{\partial n_y}{\partial t} + u \frac{\partial n_y}{\partial x} + v \frac{\partial n_y}{\partial y} = \frac{1+\lambda}{2} \left(\frac{\partial v}{\partial x} n_x + \frac{\partial v}{\partial z} n_z \right) - \lambda n_y \left(C - \frac{\partial v}{\partial y} \right) - \frac{1-\lambda}{2} \frac{\partial u}{\partial y} n_x \quad (17b)$$

$$\frac{\partial n_z}{\partial t} + u \frac{\partial n_z}{\partial x} + v \frac{\partial n_z}{\partial y} = -\frac{1-\lambda}{2} \left(\frac{\partial u}{\partial z} n_x + \frac{\partial v}{\partial z} n_y \right) - \lambda n_z C \quad (17c)$$

$$C = \frac{n_x^2 \frac{\partial u}{\partial x} + n_y^2 \frac{\partial v}{\partial y} + n_x n_y \left(\frac{\partial u}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial x} \right) + n_z \left(\frac{\partial u}{\partial z} n_x + \frac{\partial v}{\partial z} n_y \right)}$$

となる. 式(17)の右辺において速度の x , y 微分項 (を施した項) は Hele-Shaw 近似により無視される. ただし金型の中央面 ($z=h/2$) では速度の z 微分項が 0 になるので, 配向は Hele-shaw 近似で無視される の項で決定され, 中央面は配向に関して一種の特異面となる.

2・2・3 エネルギー方程式 Hele-Shaw 流れでは, 熱伝導は $x-y$ 平面方向に比べて z 方向が支配的であるので, 熱伝導に関する項の中で温度 T の x , y 微分を 0 とすると, 式(8)を代入した式(5)は以下となる.

$$\rho c \left(\frac{\partial T}{\partial t} + u \frac{\partial T}{\partial x} + v \frac{\partial T}{\partial y} \right) = (k_1 n_z^2 + k_2) \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} + k_1 \left\{ \frac{\partial(n_x n_z)}{\partial x} + \frac{\partial(n_y n_z)}{\partial y} + \frac{\partial n_z^2}{\partial z} \right\} \frac{\partial T}{\partial z} + f_1 \left(\frac{\partial u}{\partial z} \right)^2 + 2f_2 \frac{\partial u}{\partial z} \frac{\partial v}{\partial z} + f_3 \left(\frac{\partial v}{\partial z} \right)^2 \quad (18)$$

3. 数値計算

3・1 境界条件 式(16)の圧力の境界条件として, x 軸に平行な側壁では $\bar{v} = 0$ であるので式(14b)より

$$G_3 \frac{\partial p}{\partial x} + G_4 \frac{\partial p}{\partial y} = 0 \quad (19)$$

y 軸に平行な側壁では $\bar{u} = 0$ なので式(14a)より

$$G_1 \frac{\partial p}{\partial x} + G_2 \frac{\partial p}{\partial y} = 0 \quad (20)$$

を用いる. 自由表面では大気圧, 入り口では成形圧とおけばよい.

一方, 配向状態を決定する式(17)は双曲型であるので境界条件は入り口のみで与えればよく, 本研究では図1において, 液晶分子は y 方向に配向しているとした.

式(18)の温度境界条件として金型入り口で T を与え, さらに金型が中央面に関して対称であるので, 金型下壁面で T を与え中央面で $\partial T / \partial z = 0$ とした.

3・2 数値計算 式(16)~(18)を連立させながら時間進行を行う. 配向場は, 式(17)の左辺を時間に関する常微分に置換し流線積分法によって求める. 離散化

には 4 次のルンゲクッタ法を用いた。温度場は、式(18)の左辺を一次風上差分で、右辺を二次中心差分で離散化して求める。速度場については、液晶が充填されている領域に式(16)を適用し差分法で圧力分布を求め、その結果から式(12)より速度場 u , v が得られる。圧力場から式(14)を用いて領域内の \bar{u} , \bar{v} を計算し、外挿によって自由表面位置での \bar{u} , \bar{v} を求め、次の時刻での自由表面位置を決定する。以上のプロセスを充填が完了するまで継続する。

3・3 物性値 計算に必要な物性値はタンブリングパラメータ λ , 粘性係数 $\beta_1 \sim \beta_3$, 比熱 c , 密度 ρ , 熱伝導率 k_1 , k_2 であり、これらの値は加工対象となる高分子液晶を用いて実測すればよい。本研究では高分子液晶の物性値測定を行っていないので、計算を遂行するため高分子液晶のレオロジーに関する従来の理論と測定値を併用することで、これらの物性値を以下のように見積もった。

タンブリングパラメータ λ は

$$\lambda = R \frac{5S_2 + 16S_4 + 14}{35S_2} \quad (21)$$

と近似できる²³⁾。ここで R は棒状分子のアスペクト比 a を用いて

$$R = (a^2 - 1)/(a^2 + 1) \quad (22)$$

と表される。高分子液晶では $a \gg 1$ であるので近似的に $R=1$ とおくことができる。 S_2 , S_4 はそれぞれ配向分布関数の 2 次モーメントおよび 4 次モーメントであり、Maier-Saupe 理論²⁴⁾を仮定すれば、温度 T (実際には等方-ネマティック相転移温度 T_{NI} に対する比 T/T_{NI}) の関数として S_2 , S_4 を見積もることができる²⁵⁾。

粘性係数 $\beta_1 \sim \beta_3$ は L-E 理論に現れる 5 種類のレズリー粘性係数 $\alpha_1 \sim \alpha_5$ と以下の関係がある。

$$\beta_1 = \alpha_4 \quad (23a)$$

$$\beta_2 = \alpha_1 - \lambda(\alpha_2 + \alpha_3) \quad (23b)$$

$$\beta_3 = \alpha_5 + \lambda\alpha_2 \quad (23c)$$

ここで $\alpha_1 \sim \alpha_5$ は、土井理論^{26,27)}を用いて

$$\alpha_1 = -2\eta R^2 S_4 \quad (24a)$$

$$\alpha_2 = -\eta R(1 + 1/\lambda)S_2 \quad (24b)$$

$$\alpha_3 = -\eta R(1 - 1/\lambda)S_2 \quad (24c)$$

$$\alpha_4 = \eta R^2 \frac{2}{35} (7 - 5S_2 - 2S_4) \quad (24d)$$

$$\alpha_5 = \eta R \left\{ \frac{1}{7} R(3S_2 + 4S_4) + S_2 \right\} \quad (24e)$$

と表される²⁸⁾。 η は代表粘度である。等方状態では、式(24)において $S_2 = S_4 = 0$ とおけば、

$$\alpha_4 = 2\eta/5 \quad (25)$$

それ以外の α_i は 0 となる。一方 L-E 理論では、ディレクタに依存しない粘性係数は α_4 のみであるので (一般にバルク粘度と呼ばれる), 等方状態の粘度 η_{iso} は、せん断速度を $\dot{\gamma}$ とすると

$$\eta_{iso} = \tau_{yx}/\dot{\gamma} = \alpha_4/2 \quad (26)$$

と表される。式(25), (26)より、

$$\eta = 5\eta_{iso} \quad (27)$$

となる。 η_{iso} については、ethylene terephthalate (ETP) と p-hydroxy benzoic acid (HBA) を 40:60 のモル比でブレンドした高分子液晶の粘度実測値²⁹⁾を基にして、Lekakou が導いた近似式

$$\eta_{iso} = 8.18 \times 10^{-4} \dot{\gamma}^{-0.18} e^{6752/(T+273)} \text{ Pa}\cdot\text{s} \quad (28)$$

を用いた²⁹⁾。式(28)の流動曲線を図 2 に示す。

比熱 $c=1900 \text{ J/kg}\cdot\text{K}$ ³⁰⁾, 密度 $\rho=1270 \text{ kg/m}^3$ ³⁰⁾, 熱伝導率 $k_1=1.08 \text{ J/m}\cdot\text{s}\cdot\text{K}$, $k_2=0.17 \text{ J/m}\cdot\text{s}\cdot\text{K}$ ³⁰⁾とした。

4. 計算結果

本計算に使用した 2 種類の金型の平面図を図 3 に示す。流路厚さはいずれの金型においても $h=3 \text{ mm}$ である。予備計算結果から差分格子 $\Delta x = \Delta y = 1 \text{ mm}$, $\Delta z = h/20$ を用いた。時間刻み Δt は $\Delta x/10$ を自由表

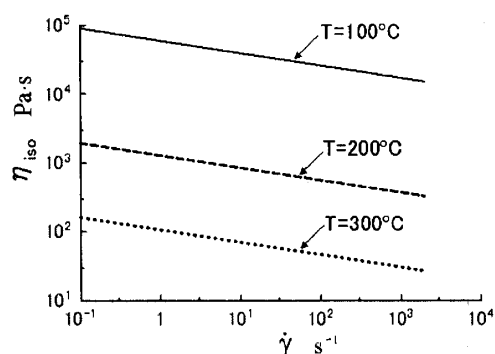


Fig. 2 Flow curves of Eq. (28)

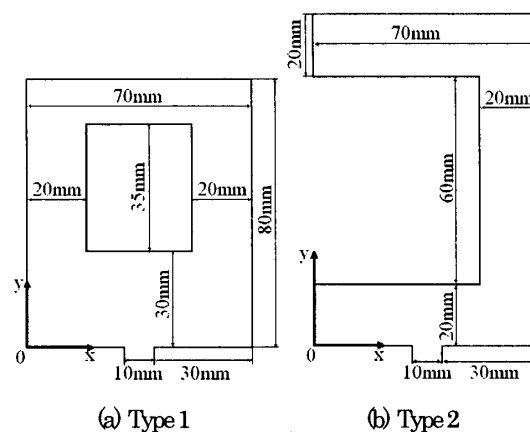


Fig. 3 Geometries of molds used in this computation

面位置における時々刻々の最大速度で除した可変ステップ値とした。

4.1 タイプ 1 タイプ 1 の金型の結果を図 4～図 6 に示す。成形圧力（ゲージ圧）は 6 MPa（約 60 気圧），入り口温度は 300 °C，金型温度 T_m は 100 °C で，充填に要した時間は約 5.0 秒であった。図 4 は自由表面位置を 0.2 秒間隔で描いたものである。図のように入り口から流入した高分子液晶は半円状に拡大しながら左右に分かれて流動し，左右対称性を保持しつつ図の上部で合流しており，スムーズな充填がシミュレートされている。上部の点線は左右からの合流位置（ウェルドライン）である。充填が進むに従い流動領域が増加し，さらに金型温度が入り口温度より低いので粘度も増加するため，工程の終盤で自由表面の移動は低速となり，曲線は密集している。

図 5 は充填完了直後における代表的な z 位置での温度分布をグレースケールで示したものである。 z として $z=0.1$ （壁面近傍）， $z=0.25$ （壁面と金型中央面の中間）， $z=0.5$ （金型中央面）を選択した。入り口温度 300 °C と比較して金型温度 T_m が 100 °C と低いので， z 方向の差異は明確で壁面近傍ほど流体温度は低い。またウェルドライン近傍の温度が高くなっている。これは式(18)から明らかなように，各位置での温度は上流からの対流と z 方向の拡散によって決定されるが，自由表面位置は金型壁面への熱伝導が上流位置に比べて十分に進展していないためである。図 5 は充填完了直後の結果であるが，充填途中においても自由表面の温度は高い。

図 6 は充填完了直後の配向分布である。 $z=0.1$ と 0.25 では， z 方向のせん断速度が支配的であるので，分子は概略流れ方向に配向している。これに対して $z=0.5$ では，配向分布は他の z と大きく異なっている。これは，金型中央面では上記の z 方向せん断

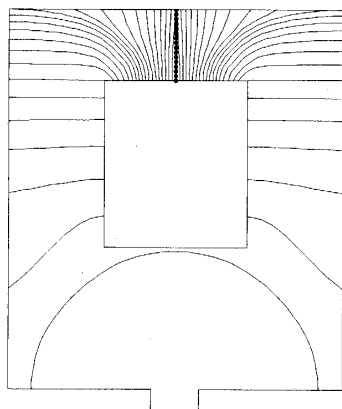


Fig. 4 Free surface locations at intervals of 0.2 s

度が 0 であるので，分子配向は $x-y$ 面内の速度こう配によって決定される。つまり流路幅が縮小するような位置では分子は流れと平行に配向し，流路幅が拡大する位置では流れに対して垂直に配向する。このような挙動に角運動方程式の対流項の影響も付加されることにより配向状態は複雑となる。

詳細に見ると， $z=0.1$ と 0.25 では分子配向の特異な領域が数カ所見受けられ，ここでは線分が短くなっている。すなわち液晶分子は $x-y$ 平面外の成分を有

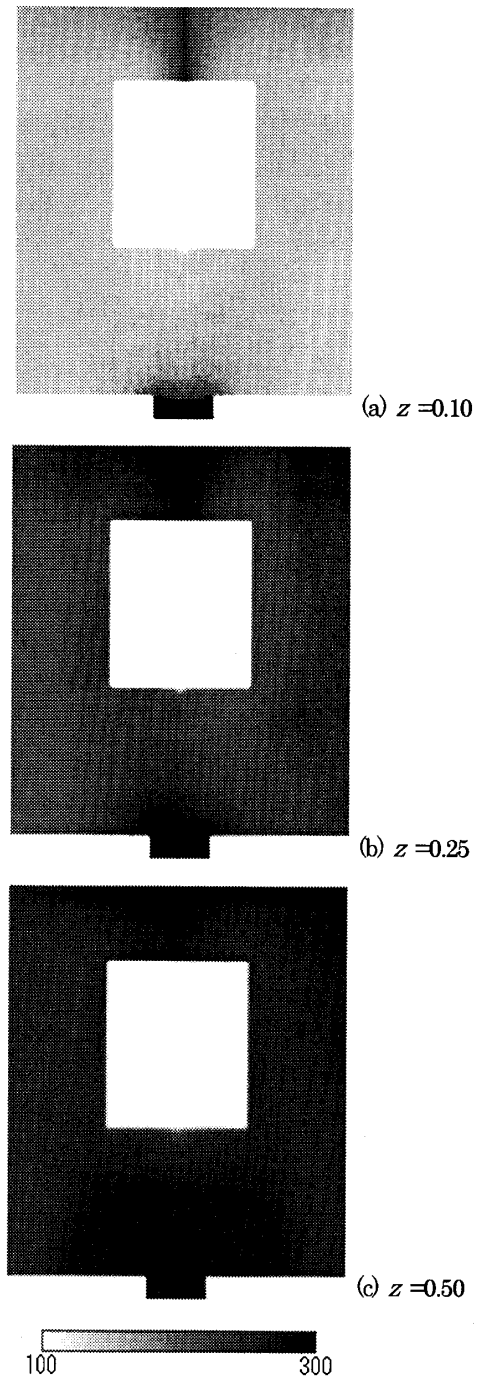


Fig. 5 Temperature profiles

しており、タンブリング挙動が発生している。タンブリングの発生条件はタンブリングパラメータ $\lambda < 1$ である。単純せん断流れではタンブリングはある時間周期で発生し、その周期はせん断速度が大きいほど、そして λ が小さいほど短い。管内流れではタンブリングは一定の距離毎に発生することになり、壁面近傍はせん断速度が大きく且つ対流速度が小さいので空間的により多く発生する。本研究は非等温流れであることから、温度の関数である λ は場所

によって異なるのでタンブリングの発生はさらに複雑となる。式(21)に基づいて、温度に対する λ をプロットしたのが図7である。上述したようにタンブリング挙動の発生条件は $\lambda < 1$ であるので、等方-ネマティック相転移温度 T_{NI} を 300°C とすればタンブリングの発生は $T < 275^\circ\text{C}$ の範囲であり、高温になるとタンブリングは抑制されることがわかる。そこで金型温度 T_m を 100°C から 150°C に上昇させた場合の、 $z=0.1$ と 0.25 の配向分布を図8に示す。図8(a)ではタンブリング領域は依然残っているが、図6(a)に見られた入り口直後の複雑な配向は消失している。また図8(b)の

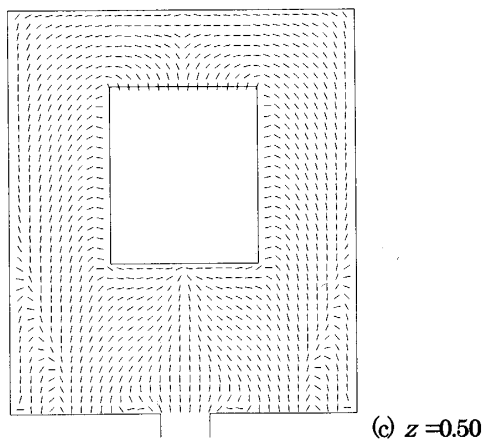
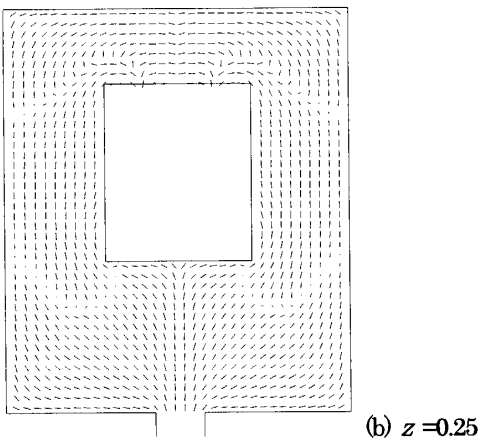
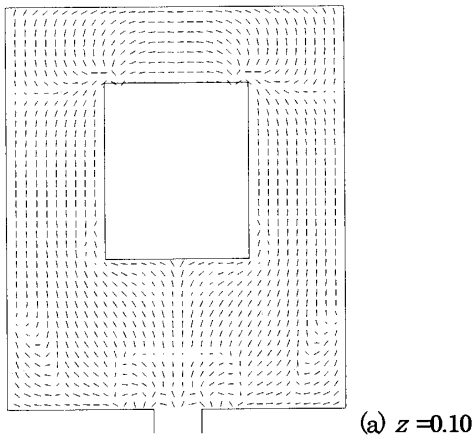


Fig. 6 Director orientation profiles ($T_m=100^\circ\text{C}$)

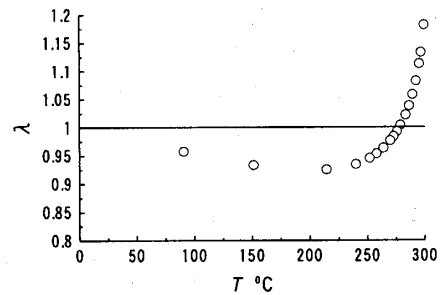


Fig. 7 Tumbling parameter as a function of temperature

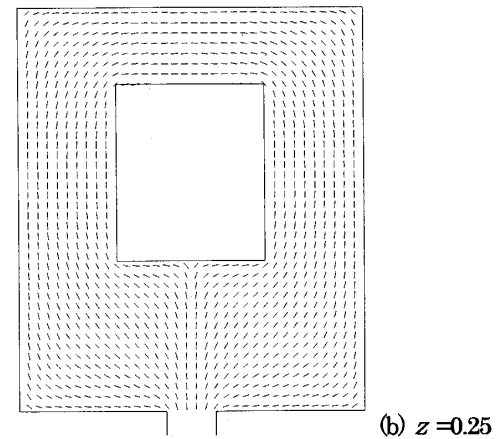
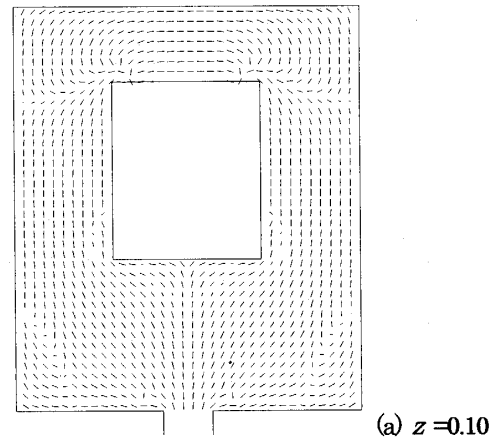


Fig. 8 Director orientation profiles ($T_m=150^\circ\text{C}$)

$z=0.25$ ではタンブリングは生じておらず、タンブリングの発生、および配向分布は金型温度に大きく影響されることがわかる。

4.2 タイプ 2 タイプ 2 の金型の結果を図 9, 10 に示す。成形圧力 (ゲージ圧) は 60 気圧, 入り口温度は 300 °C, 金型温度 T_m は 200 °C で, 充填に要した時間は約 6.4 秒であった。図 9 は自由表面位置を 0.2 秒間隔で描いたものであり, タイプ 1 と同様, スムーズな充填がなされている。

図 10 は配向分布である。タイプ 1 の配向結果で言及したように, 金型中央面とそれ以外の面で配向状態は大きく異なることが示されている。タンブリングによる配向の乱れは図 8 同様 $z=0.1$ のみで認められ, 充填終盤の位置でも発生している。単純せん断流中ではタンブリングは分子が受けたせん断ひずみ量の周期関数として発生することが知られている⁽⁹⁾。タイプ 2 の流路はタイプ 1 よりも充填距離が長いので, タンブリングの発生箇所が若干増えたと考えられる。

通常の等方性高分子材料と比較して, 液晶性高分子材料の特徴は棒状分子による配向性であり, これが高強度の主因である。しかし上述した 2 例の結果から明らかのように, 高分子液晶特有のタンブリング挙動は局所的に配向状態の低下を引き起こすので, 高分子液晶の成形プロセスにおいては金型温度やゲート位置の適切な設定が特に重要である。

5. 結 論

高分子液晶の金型内薄膜流動に関する汎用ソフトウェアの構築を最終目的として, Transversely Isotropic Fluid (TIF) 理論を構成方程式としたモデルを提案し, さらに簡単な形状の金型を 2 種類選択して自由表面位置の時間変化や温度分布, 配向分布を求めた。得られ

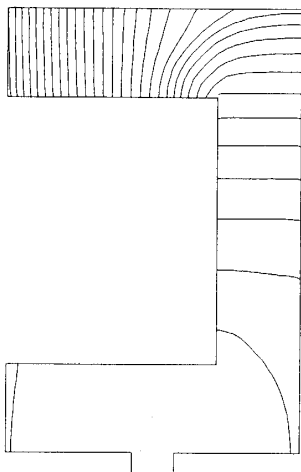


Fig. 9 Free surface locations at intervals of 0.2 s

た結果を要約して以下に示す。

(1) TIF 理論に Hele-Shaw 近似を施したモデルはスムーズな充填を予測することができるとともに, 分子配向や温度分布の予測にも有用である。

(2) 金型の厚さ方向位置によって分子配向分布は大きく異なる。特に中央面では厚さ方向の速度こう配が存在しないので, ここでの分子配向は流路の縮小・拡

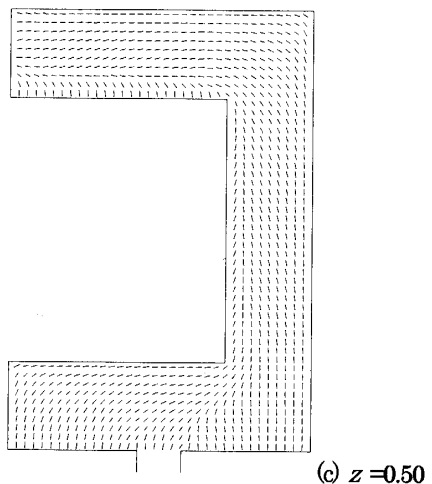
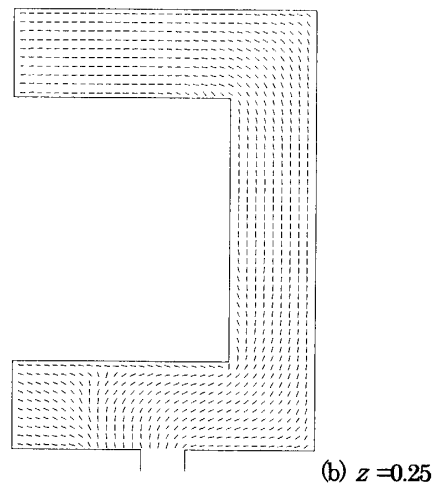
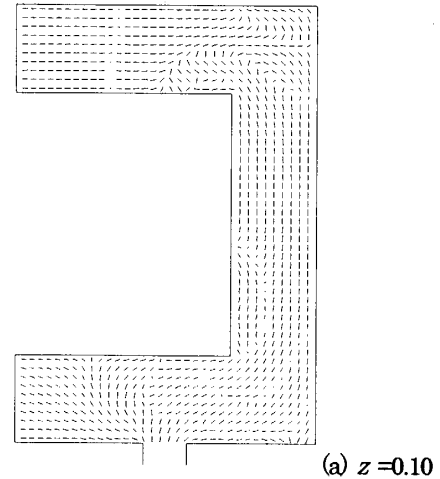


Fig. 10 Director orientation profiles

大という平面形状に依存し複雑な分布となる。

(3) 高分子液晶の特徴であるタンプリング挙動が発生すると、そこでは分子配向が乱れ最終製品の強度低下に繋がる。タンプリングの発生を左右するタンプリングパラメータは流体温度やせん断ひずみ量に依存するので、金型温度やゲート位置の適切な設定が特に重要である。

本研究では、TIF 理論と Hele-Shaw 近似を組み合わせたモデルの提案とその有用性の検討に主眼を置いたため、金型形状は直交直線座標で表現できる簡単なものを選択した。複雑形状の金型に対応できるように境界適合座標等を導入することが今後の課題である。

本研究は(独)科学技術振興機構・地域研究開発促進拠点支援(RSP)事業の補助を受けたことを記し謝意を表す。

【付 録】

$$R_{ij} = \int_0^h \frac{f_i(x, y, z) z^j}{D(x, y, z)} dz$$

$$S_{ij} = \int_0^h \frac{f_i(x, y, z) z^j}{D(x, y, z)} (h - z) dz$$

とおくと、

$$E_1 = \frac{R_{20}R_{21} - R_{10}R_{31}}{R_{10}R_{30} - R_{20}^2}, \quad E_2 = \frac{R_{10}R_{21} - R_{11}R_{20}}{R_{10}R_{30} - R_{20}^2}$$

$$E_3 = \frac{R_{21}R_{30} - R_{20}R_{31}}{R_{10}R_{30} - R_{20}^2}, \quad E_4 = \frac{R_{20}R_{21} - R_{11}R_{30}}{R_{10}R_{30} - R_{20}^2}$$

と表される。従って式(10)の積分定数 $C_1(x, y)$, $C_2(x, y)$, および式(14)の係数 $G_1 \sim G_4$ は、

$$C_1 = E_1 \frac{\partial p}{\partial x} + E_2 \frac{\partial p}{\partial y}$$

$$C_2 = E_3 \frac{\partial p}{\partial x} + E_4 \frac{\partial p}{\partial y}$$

$$G_1 = S_{31} + E_1 S_{30} - E_3 S_{20}$$

$$G_2 = -S_{21} + E_2 S_{30} - E_4 S_{20}$$

$$G_3 = -S_{21} - E_1 S_{20} + E_3 S_{10}$$

$$G_4 = S_{11} - E_2 S_{20} + E_4 S_{10}$$

となる。

参考文献

- (1) Suenaga, J., *Liquid crystal polymers for molding and design*, (1995), Sigma.
- (2) Kiss, G. and Porter, R. S., *J. Poly. Sci., Poly. Symp.*, **65** (1978), 193.
- (3) Kiss, G. and Porter, R. S., *J. Poly. Sci., Poly. Phys. Ed.*, **18** (1980), 361.

- (4) Navard, P., *J. Poly. Sci., Poly. Phys. Ed.*, **24** (1986), 435.
- (5) Moldenaers, P. and Mewis, J., *J. Rheol.*, **30** (1986), 567.
- (6) Burghardt, W. R. and Fuller, G. G., *Macromolecules*, **24** (1991), 2546.
- (7) Srinivasarao, M. and Berry, G. C., *J. Rheol.*, **35** (1991), 379.
- (8) Onogi, S. and Asada, T., *Rheology Vol. I*, (1980), Plenum, New York.
- (9) Wissubrun, K. F., *J. Rheol.*, **25** (1981), 619.
- (10) Leslie, F. M., *Arch. Ration. Mech. Anal.*, **28** (1968), 265.
- (11) Leslie, F. M., *Adv. Liq. Cryst.*, **4** (1979), 1.
- (12) Doi, M., *J. Poly. Sci., Poly. Phys. Ed.*, **19** (1981), 229.
- (13) Doi, M. and Edwards, S. F., *The Theory of Polymer Dynamics* (1986), Oxford Univ. Press.
- (14) Rey, A. D. and Denn, M. M., *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **153** (1987), 301.
- (15) Chono, S. et al., *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 62, No. 594 (1996), pp. 600-607.
- (16) Chono, S. and Tsuji, T., *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 65, No. 639 (1999), pp. 3539-3545.
- (17) Metzner, A. B. and Prilutski, G. M., *J. Rheol.*, **30** (1986), 661.
- (18) Doraiswamy, D. and Metzner, A. B., *Rheol. Acta*, **25** (1986), 580.
- (19) Edwards, B. J., Pilitsis, S. and Beris, A. N., *Proc. 10th Int. Congr. Rheol.*, (1988), 312.
- (20) Edwards, B. J. and Beris, A. N., *J. Rheol.*, **33** (1989), 537.
- (21) Chono, S. et al., *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 58, No. 555 (1992), pp. 3257-3262.
- (22) Mori, N., et al., *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, **56** (1995), 85.
- (23) Mori, N., et al., *J. Rheol.*, **41** (1997), 1095.
- (24) Yoshikawa, C. et al., *Nihon Reoriji Gakkaiishi*, **26** (1998), 87.
- (25) Ericksen, J. L., *Arch. Ration. Mech. Anal.*, **4** (1960), 231.
- (26) Ericksen, J. L., *Trans. Soc. Rheol.*, **5** (1961), 23.
- (27) Heynderickx, I., Potze, W. and Ter Maten, E. J. W., *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, **55** (1994), 137.
- (28) Archer, L. A. and Larson, R. G., *J. Chem. Phys.*, **103** (1995), 3108.
- (29) Editors for dictionary of liquid crystals, *Dictionary of liquid crystals*, (1989), 212, Baifukan.
- (30) Larson, R. G., *The Structure and Rheology of Complex Fluids*, (1999), Oxford Univ. Press.
- (31) Kuzuu, N. and Doi, M., *J. Phys. Soc. Jpn.*, **52** (1983), 3486.
- (32) Shenoy, A. V. and Saini, D. R., *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **135** (1986), 343.
- (33) Lekakou, C., *Poly. Eng. Sci.*, **37** (1997), 529.
- (34) Acierno, D. and Collyer, A. A., *Rheology and Processing of Liquid Crystal Polymers*, (1996), 99, Chapman & Hall.
- (35) Tsuji, T. and Chono, S., *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 61, No. 587 (1995), pp. 2456-2461.