

誘電率式センサによる熱可塑性 CFRP のプレス成形の制御

Process Control of Press Molding with Dielectric Sensor for Thermoplastic Composites

山 岸 謙二郎	技術開発本部基盤技術研究所材料研究部 博士 (工学)
盛 田 英 夫	航空宇宙事業本部生産センター田無工場 課長 博士 (工学)
近 藤 操	航空宇宙事業本部生産センター田無工場
元 木 信 弥	大阪市立大学工学部知的材料工学科 教授 工学博士
福 田 武 人	大阪市立大学工学部知的材料工学科 教授 工学博士

熱可塑性 CFRP は鳥吸い込み時の耐衝撃性を保ちつつ軽量化ができる素材として、ジェットエンジン静翼部品への適用が検討されている。しかし、熱可塑性 CFRP の成形は加圧タイミングの設定が難しく、成形条件決定までには多数の成形試行を必要とする。そこで、誘電率式センサを熱可塑性樹脂のプレス成形のモニタリングに適用する方法と、モニタされたデータを用いてプレスによる加圧のタイミング制御を行う手法を考案した。その結果、良好な状態の成形品が得られることを確認した。

Thermoplastic composites have high impact resistance and are good materials for the vanes of jet engines that sometimes suffer bird strike damage. Matched-die press molding is a good molding process for the vanes that need precise molding. However, many laborious test moldings are needed to fix the optimum process parameters for press molding. Process control utilizing in-mold sensors can significantly reduce the number of test moldings. A process control procedure for controlling the molding process of CF/PEEK composite vane was devised. A CF/PEEK stator vane model was molded under the control of two dielectric sensors. The temperature distribution of the mold was controlled by AC conductivity. The vane model was successfully molded by the controlled process.

1. 緒 言

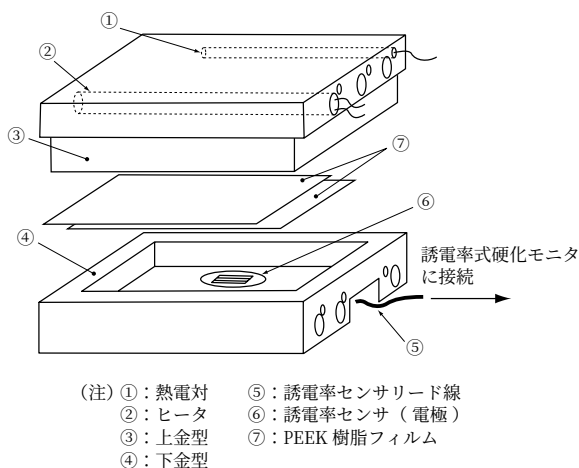
現在ジェットエンジンのファン周辺の部品には、軽量化のために CFRP (Carbon Fiber Reinforced Plastics) 材料の適用が進められている。熱可塑性樹脂は耐衝撃性に優れているため、耐衝撃性を保ちつつ軽量化ができる素材として、鳥吸い込み時に大きな衝撃を受けるジェットエンジン静翼部品へ、熱可塑性 CFRP を適用する検討が行われている⁽¹⁾。この熱可塑性 CFRP を用いて静翼部品を製作するためには、成形精度の点から細かな温度や圧力の制御が可能なホットプレスを用いた成形方法が適している。熱可塑性 CFRP の成形過程は大きく分けて樹脂を加熱溶融させる過程と冷却固化させる過程に分けられる。結晶性の熱可塑性樹脂では固化時に粘度変化や体積収縮が急激に起こるため加圧時期の設定が難しく、その成形条件の決定までには多数の成形試作を必要とする。成形試行の回数を減らす方法として、型内にセンサを入れて材料の状態を直接モニタし、温度や圧力を制御することが考えられる。しかし、熱可塑性樹脂や熱可塑性 CFRP に対して用いられてきたセンサは、耐熱性などの点に不都合があった。そこで本研究で

は、熱硬化性樹脂の硬化モニタ用に用いられていた誘電率式センサを熱可塑性樹脂の溶融状態のモニタに用いることを試みた。さらに、円弧状の断面をもつ静翼モデルの成形への誘電率式センサを利用した制御によって、同制御を複雑形状の実部品成形へ適用する可能性の確認を行った。

2. 誘電率式センサによる成形モニタ可能性の検討

2.1 試験方法

誘電率式センサは熱硬化性樹脂の硬化モニタに用いられているもので、熱可塑性樹脂に適用した例は少ない。そこで、はじめに CFRP 静翼に用いる熱可塑性 CFRP のマトリックスとなる熱可塑性樹脂単体のプレス成形過程における誘電係数変化と、樹脂の粘度や体積変化との相関について検討した。プレス成形試験には第 1 図に示すように、キャビティ寸法が 150 × 150 × 2 mm の金型を用いた。金型の底面には直径 16 mm の、くし形電極をもつ誘電率式センサ (Holometrix-Micromet 製, アメリカ) を 1 個設置した。電極の直下には熱電対が 1 個埋め込まれている。樹脂単体の成形には、CFRP 静翼のマトリックスとして用いられる耐熱熱可塑性樹脂である PEEK (ポリエーテルエーテ



第1図 PEEK 樹脂プレス成形に用いた金型
 Fig. 1 Experimental set up of the mold

ルケトン）樹脂フィルムを用いた。金型温度の条件は、室温から 380℃まで 2℃/min の速度で昇温、380℃で 30 min 保持、2℃/min で冷却、である。プレス圧力の条件は、0.22 MPa の一定である。誘電係数の測定には誘電率式硬化モニタ装置（型式：Eumetric100A, Holometrix-Micromet製, アメリカ）を用いた。この装置はセンサの電極に交流の電圧（振幅±1 V）を印加して対象とする物質の複素誘電率 ϵ^* を測定するものである。

複素誘電率 ϵ^* は以下のように表される。

$$\sigma_{AC} = \epsilon_0 \cdot \omega \cdot \epsilon'' \quad \dots\dots\dots (1)$$

実数成分 ϵ' は誘電率、虚数成分 ϵ'' は損失係数と呼ばれ、それぞれ物質に静電エネルギーとして貯えられる量、熱エネルギーとなって消失する量を表している。また、損失係数 ϵ'' は分子中の電気双極子による寄与 ϵ''_{dipole} と樹脂中のイオンによる電導の寄与 ϵ''_{ion} との和で表される⁽²⁾。

$$\epsilon^* = \epsilon' + i\epsilon'' \quad \dots\dots\dots (2)$$

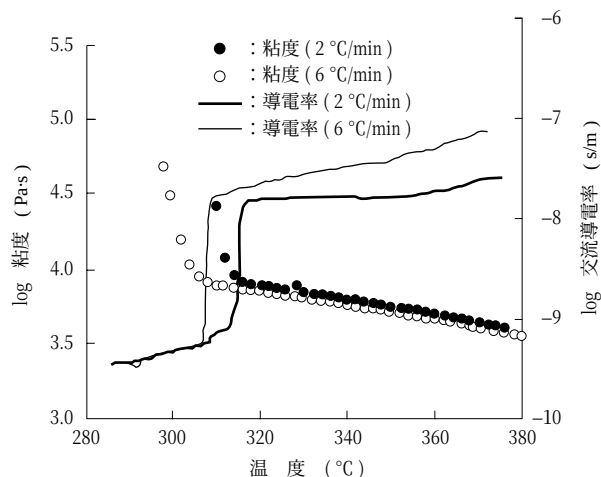
交流の電場に対する樹脂の導電率 σ_{AC} は、損失係数 (ϵ'') を用いて次の形で表される^{(2),(3)}。

$$\epsilon'' = \epsilon''_{dipole} + \epsilon''_{ion} \quad \dots\dots\dots (3)$$

ここで ϵ_0 は真空中の誘電率 8.85×10^{-12} F/m, ω は交流電場の角速度である。一般に熱硬化性樹脂の硬化状態のモニタには、 σ_{AC} または σ_{AC} の逆数の変化が利用されている^{(3)~(7)}。熱硬化性樹脂の硬化前・硬化途中では ϵ'' に対するイオン電導 ϵ''_{ion} の寄与割合は ϵ''_{dipole} のそれよりも大きく、 σ_{AC} の逆数はイオン粘度とも呼ばれる^{(4)~(7)}。

2.2 試験結果と検討

冷却段階での σ_{AC} と樹脂熔融粘度測定装置によって別途測定された樹脂粘度の温度変化との比較を第2図に、 σ_{AC} と PvT 測定装置によって別途測定された樹脂比容積の温

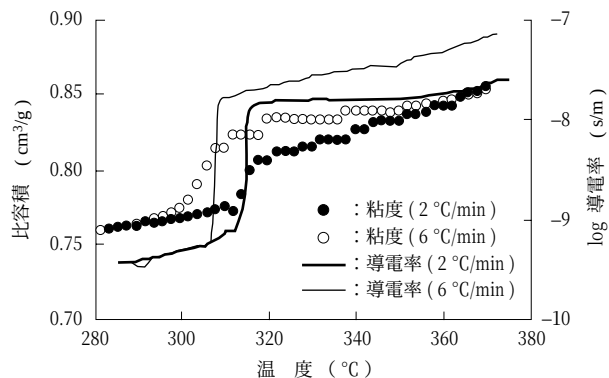


第2図 PEEK 樹脂プレス成形中における σ_{AC} の変化と粘度測定機による粘度変化との相関
 Fig. 2 Correlations between σ_{AC} conductivity and dynamic viscosity of the PEEK resin at cooling

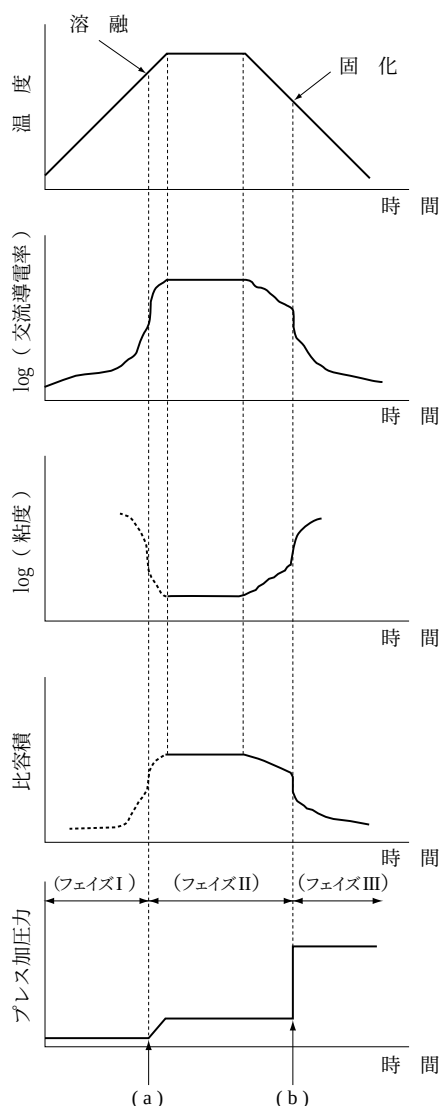
度変化との比較を第3図に示す。冷却速度は 2℃/min および 6℃/min である。 σ_{AC} の急激な減少が樹脂の固化（結晶化）による粘度の急激な上昇の開始や比容積の急減少の開始と一致している。冷却速度が増し、粘度上昇の開始温度が低温側に移動した場合にもこの一致が保たれることから、熱電対などの温度センサと比較して、温度だけでなく冷却速度によっても影響を受ける固化の開始をモニタするためには誘電率式センサは適した方法であるといえる。この結果から、本研究では σ_{AC} をモニタし、制御の指標として用いた。

2.3 プレス加圧タイミングの制御方法

温度と熱可塑性樹脂の粘度・比容積の関係と、考案した誘電率式センサを用いた制御における加圧タイミングを第4図に示す。実測していない加熱過程での粘度や比容積の変化は破線で示した。熱可塑性樹脂単体と同じ樹脂を用い



第3図 PEEK 樹脂プレス成形中における σ_{AC} の温度変化と PvT 測定機による比容積変化との相関
 Fig. 3 Correlations between σ_{AC} conductivity and PvT property of the PEEK resin at cooling



第4図 考案した熱可塑性（結晶性）CFRP プレス成形の圧力制御方法の模式図

Fig. 4 Schematic diagram of the pressure control for the crystalline thermoplastic matrix composite

た CFRP とでは、同じ粘度・比容積変化を示すと考えられる。熱可塑性の一方強化プリプレグを用いた CFRP 成形では、樹脂の固化収縮によるボイドなど成形不良を防ぐために固化時に高い加圧力が必要である。しかし、プリプレグ中の樹脂の粘度が比較的低い段階で加圧力が大きすぎると、過大な樹脂の流動が起こり、蛇行など強化繊維の不整につながるため、成形開始時から高い圧力を加え続けることはできず、樹脂の固化に時期を合わせて加圧力を一気に上げることが必要である。

フェイズ I ではまだ樹脂は溶融しておらずプリプレグが固いため、加圧力は積層されたプリプレグがずれてしまわない程度の低い圧力としておく。次に、温度が上昇して樹脂の融点に達すると、誘電率式センサによって測定された

σ_{AC} の急激な増加で、プリプレグの樹脂が溶融したことがモニタされる（第4図の(a)）。フェイズ II では、すでに樹脂が溶融しているため、少し圧力を上げて溶融したプリプレグの形状を整える（製品形状にする）。この段階の加圧にはプリプレグ層間の空気を外へ押し出す役割もある。次に冷却過程に入り樹脂の固化が始まると、 σ_{AC} の急激な減少から樹脂の固化がモニタされる（第4図の(b)）。樹脂の固化がモニタされたところで直ちにプレスの加圧力を上げて固化時の収縮によるボイドの発生を防ぐ。これは次の理由による。

- (1) 樹脂の収縮によって成形物の体積が減少すると金型キャビティ容積と成形物体積との間には差が生じ、その差がボイドや表面の「ひけ」となる。加圧によってキャビティ容積を減らし、両者の差がなくなればボイドの発生を防ぐことができる。
- (2) 樹脂の固化時には収縮とともに樹脂の粘度が上がっているため、加圧に対する材料の変形抵抗が大きくなり、加圧力が低い場合には十分にキャビティ容積を減少させることができないので、粘度に応じて加圧力を高めることが必要となる。
- (3) 固化前から高い圧力を加えた場合には、前述のような過大な樹脂流動を起こしてしまう。フェイズ III のうち、樹脂のガラス転移点以上の温度では樹脂がまだ軟らかいため、熱変形を防ぐために加圧を続ける。樹脂は、すでに固化していて樹脂流動による繊維不整の恐れはないので、高い圧力を加えることができる。

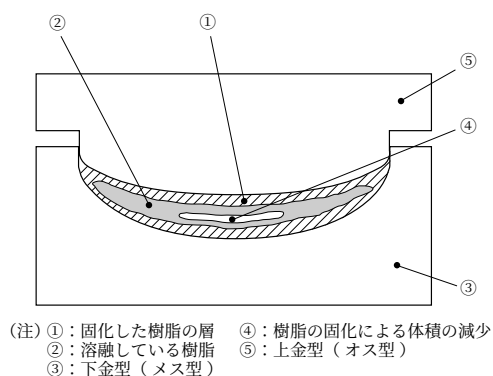
以上が基本的な加圧タイミングの制御法である。

3. モデル翼の成形制御試験

3.1 モデル翼の成形制御方法

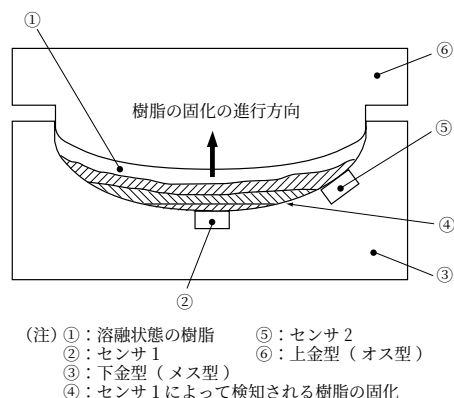
熱可塑性樹脂の固化は冷却によって樹脂温度が固化温度に達した部分から起こり、樹脂は固化に伴って収縮する。結晶性樹脂の場合には、結晶化が起こるため特に収縮率が大きくなる。この固化温度は、冷却速度や圧力によって変化する。樹脂の収縮によって樹脂や CFRP 成形品の体積は減少するが、成形品全体の温度が不均一で固化温度よりも高温の溶融樹脂が十分に残っている場合には、収縮分の体積が溶融樹脂によって補われるため、成形品表面の「ひけ」や内部のボイドは形成されにくい。しかし、成形品中で最後に固化する部分の体積収縮は、これを補う樹脂がもはや存在しないため、加圧によって金型キャビティ容積を減らさなければ、収縮分の体積とキャビティ容積との差は

ポイドや表面の「ひけ」と呼ばれる成形不良となってしまうと考えられる。これを熱可塑性 CFRP の成形中に成形型が全周で一様に冷却された場合に当てはめると、成形物の温度は表面から下がっていくため、はじめに表面が殻状に固化した樹脂で覆われ、表面から内部に向かって固化が進み、最後に中心部分が固化すると推測される。このとき、加圧によってキャビティ容積を減らそうとしても、固化した樹脂が固い殻状になってキャビティ容積を減少させることができず、最後に固化する成形品内の中心部にポイドが形成されてしまうと考えられる（第 5 図）。そこで、冷却時の成形品に温度勾配をつけて、全周を覆う「殻」ができないようにして加圧を行い、キャビティ容積を減らしてポイド形成を防ぐ方法を考案した（第 6 図）。まずはじめに、固化していない部分の厚みが水平面内ではほぼ同一になるように厚みの大きい部分（の下部）のみを先に冷却固化させ、固化していない部分の厚みが全体でほぼ一様となるようにする。この冷却は下金型中央部の 2 本のヒータ出力を、



第 5 図 熱可塑性 CFRP の固化形態の模式図（温度制御なしの場合）

Fig. 5 Schematic of consolidation of the thermoplastic composite vane in the mold (without control)



第 6 図 熱可塑性 CFRP の固化形態の模式図（考案した温度制御を用いた場合）

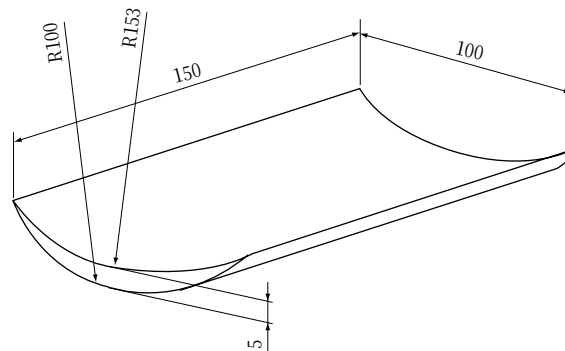
Fig. 6 Schematic of consolidation of the thermoplastic composite vane in the mold (with control)

他のヒータよりも先に下げ始めることによって行なわれる。このとき、上面にはまだ溶融状態の樹脂があるため、体積収縮分は溶融した樹脂で補われ、下面に収縮によるポイドや「ひけ」は発生しない。下面のみを先に冷却するので固化した樹脂による閉じた「殻」も形成されない。最後に成形品の上面や端面の固化に合わせて、より大きな圧力を加える。このとき、体積収縮を補う樹脂はもはやないため、ポイドや「ひけ」の発生を防ぐためには高い圧力を加えて金型内の容積を減らさなければならない。

この方法を用いるためには、厚みの大きい部分を先に冷却してこの部分が先に固化していることを確認し、さらに上層や翼端部の固化に合わせて加圧力を増す必要があるが、センサを使用せずに直接金型内部の固化状態の分布を知って加圧を行うことは困難である。前述のように結晶性の熱可塑性樹脂の固化開始は冷却速度によっても影響を受けるので、金型温度を測定するだけでは固化しているかどうか、通常は分からない。しかし、誘電率式センサを用いて金型内部の樹脂の状態をモニタすることによって、この方法を実行することができる。本研究では、最も板厚が大きい位置のキャビティ底面に 1 個の誘電率式センサを置き（第 6 図のセンサ 1）金型のうち、翼中央に当たる部分を先に冷却して、板厚が大きい部分の底面から固化が始まったことを確認し、次に端部寄りに置いたセンサ（第 6 図のセンサ 2）によって成形品端部での固化が始まったことを確認した。センサによって端部の固化が確認された後は直ちに最大圧力での加圧を開始した。

3.2 試験方法

モデル翼部品の形状・寸法を第 7 図に示す。断面形状は、半径 100 mm（背側）、153 mm（腹側）の二つの円弧からなっており、翼の幅（コード長）は 100 mm、翼の長さ（スパン長）は 150 mm、最も厚い部分の厚さは 5 mm で



第 7 図 CFRP 静翼モデルの形状と寸法（単位：mm）
Fig. 7 Dimensions of the CFRP vane model (unit: mm)

ある。これらの寸法は、金型に埋め込むセンサの大きさや、成形に使用するプレス装置のプラテンの大きさから決定した。材料には、炭素繊維／PEEK 樹脂の一方方向強化プリプレグ（型式：AS4 / PEEK, Cytec-Fiberite 製, アメリカ）を使用した。

モデル翼の成形試験に使用した金型を第 8 図に示す。金型キャビティ中央部の底面と、そこから幅方向に約 40 mm 離れた位置にそれぞれ 1 個ずつ、誘電率センサを設置した。センサの電極上にはプリプレグの炭素繊維を絶縁するためにポリイミド樹脂フィルム（ $t = 40 \mu\text{m}$ ）を置いた。下金型（メス型）には 4 本のヒータ、上型（オス型）には 2 本の棒状ヒータを差し込み、各ヒータは熱電対とプログラム式の温度調節器を用いて独立した温度制御を行った。金型に埋め込まれた 2 個の誘電率センサを誘電率式硬化モニタ装置に接続し、プリプレグ中の樹脂の誘電係数変化をモニタした。

3.3 成形試験結果と検討

誘電率式センサを用いた制御によって成形したモデル翼成形品の外観を第 9 図に示す。長手方向中央部に 2 箇所見える円形の部分は、誘電率センサに接触していた部分のこん跡とそこに残った絶縁用樹脂フィルムである。成形時の金型の最高温度は 390°C 、昇温・降温速度は $2^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 、加圧力の最大値は 44.1 kN （圧力 2.9 MPa ）である。今回の成形実験では第 6 図のように樹脂の固化を進行させるため、 $2^{\circ}\text{C}/\text{min}$ の冷却速度に対して下金型中央の 2 本のヒータ出力を 5 min 先に下げ、下金型中央部とその他の部分との間に約 10°C の温度差をつけた。

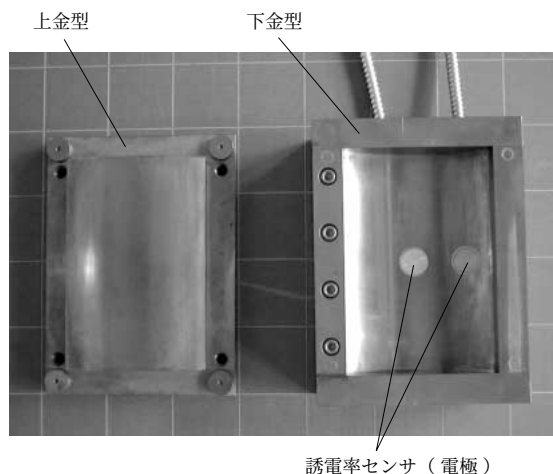
また、このモデル翼の成形過程（冷却過程）に測定され



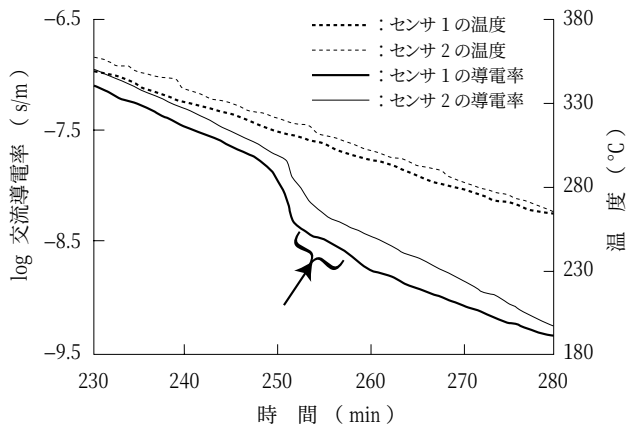
第 9 図 成形した CFRP 静翼モデルの外観（制御あり）
Fig. 9 CFRP vane model (with control)

た交流導電率（ σ_{AC1} , σ_{AC2} ）の変化を第 10 図に示す。センサの電極に与える電場の周波数は $0.5, 1 \text{ Hz}$ とし、固化時の変動がより明りょうに見られた 1 Hz の測定値を制御に用いた。また、加熱過程ではセンサとプリプレグの接触状態が安定していないことによると思われる測定値の乱れが見られた。センサ 1、センサ 2 によって測定された二つの交流導電率（ σ_{AC1} , σ_{AC2} ）の大きな低下によって成形品固化がモニタされている。 σ_{AC1} が急激に低下しているのに対して σ_{AC2} が緩やかに低下しているのは、センサ 1 では電極上の樹脂全体が一気に固化しているのに対し、前述の方法で金型内に温度分布をつけたため、センサ 2 では電極上の樹脂のうち固化している部分が少しずつ増加していることを示していると考えられる。つまり、センサ 2 によってモニタされている板厚の薄い部分が遅れて固化していることを示していると考えられる。さらに第 10 図中の矢印で示すように、センサ 1 では固化の開始に合わせて加圧力を増したことによって σ_{AC1} が一時的に増加し、その後の温度低下によって再び低下していることも分かる。

同成形品の中央付近（センサ 1 の横）の断面を第 11 図に、センサによる制御を用いずに加圧力を一定（ 9.8 kN ）に保って成形を行った成形品の同じ部分の断面を第 12 図に示す。制御を用いた場合にもボイドが見られるものの、用いていない場合と比較してボイドの密度が減少しており、制御を用いた効果がみられる。これらの結果から、誘電率



第 8 図 CFRP 静翼モデルの成形試験に使用した金型
Fig. 8 The mold used for the controlled process of the CFRP vane



第 10 図 考案した成形制御法による成形過程（冷却過程）に測定された交流導電率の変化
Fig. 10 AC conductivity during the cooling step of the controlled process

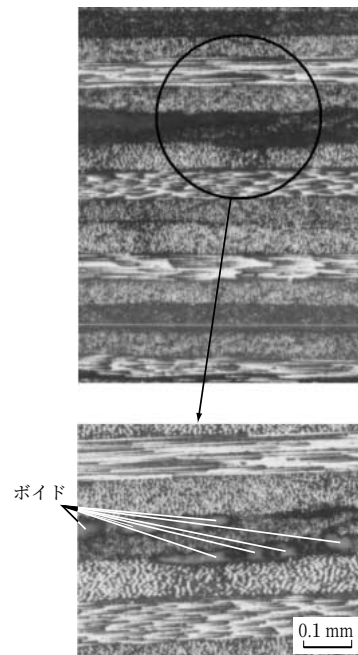
センサを用いて CFRP 静翼の成形制御を行うことによって、その成形状態を改善できることが確認できた。

4. 結 言

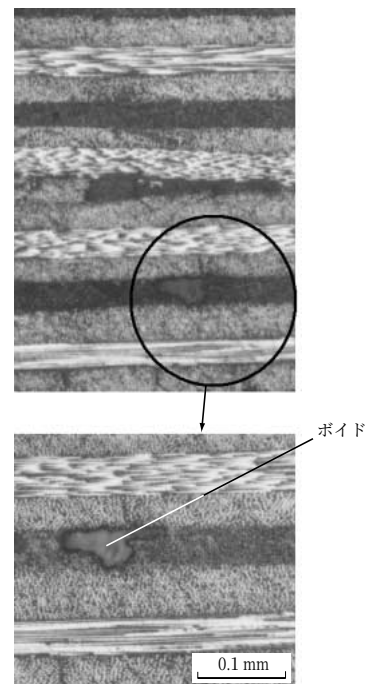
2 個の誘電率式センサを用いた熱可塑性 CFRP 静翼モデルのプレス成形の制御方法を考案した。この方法はプレス加圧のタイミングをセンサによってモニタされた結果を利用し、さらに金型の温度分布の設定にもセンサを利用する、というものである。実際に成形を行った結果、成形品のボイド密度が減少する効果がみられ、全体としても良好な成形を行うことができた。

参 考 文 献

- (1) 八木広幸, 富岡史城, 今村龍三, 正木彰樹, 佐藤慶一, 浜本 章, 大鍋寿一: 第 37 回構造強度に関する講演会講演集 1995 年 pp.183—186
- (2) K. Friedrich, C. Vinh-Tung, G. Boiteux, G. Seytre and J. Ulanski : J. Appl. Polym. Sci. 65 (1997) pp.2 529—2 543
- (3) J. M. Gonnet, J. Guillet, A. Ainser, G. Boiteux, R. Fulchiron and G. Seytre : Proc. SPIE 4017 (1999) pp.94—100
- (4) M. L. Bronberg and D. R. Day : Tech. Pap. Soc. Manuf. Eng. EM 87—125 (1987) pp.1—11
- (5) K. Nixdorf and G. Busse : Compo. Sci. Tech. 61 (2001) pp.889—894



第 11 図 成形した CFRP 静翼モデルの断面（制御なし）
Fig. 11 Cross sectional view of the CFRP vane (without control)



第 12 図 成形した CFRP 静翼モデルの断面（制御あり）
Fig. 12 Cross sectional view of the CFRP vane (with control)

- (6) J. Mijovi, J. M. Kenny, A. Maffezzoli, A. Trivisano, F. Bellicci and L. Nicolais : Compo. Sci. Tech. 49 (1993) pp.277—290
- (7) M. B. Buczek and C. W. Lee : Proc.40th Int. SAMPE Sympo. (1995) pp.696—710