

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2005-290195

(P2005-290195A)

(43) 公開日 平成17年10月20日(2005. 10. 20)

(51) Int.Cl.⁷

C08J 5/04

B29B 9/14

B29B 11/02

// B29K 105:12

C08L 101:00

F I

C08J 5/04

C08J 5/04

B29B 9/14

B29B 11/02

B29K 105:12

CEZ

CER

テーマコード (参考)

4F072

4F201

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 14 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2004-106927 (P2004-106927)

(22) 出願日 平成16年3月31日 (2004. 3. 31)

(71) 出願人 000116792

旭ファイバーグラス株式会社

東京都千代田区神田鍛冶町三丁目六番地三

(74) 代理人 100090918

弁理士 泉名 謙治

(74) 代理人 100082887

弁理士 小川 利春

(74) 代理人 100072774

弁理士 山本 量三

(72) 発明者 武藤 知之

東京都千代田区神田鍛冶町 3 丁目 6 番地 3

旭ファイバーグラス株式会社内

Fターム(参考) 4F072 AA08 AB02 AB05 AB09 AB10

AB14 AB22 AB34 AC05 AD04

AD05 AD37 AD44 AD45 AD46

最終頁に続く

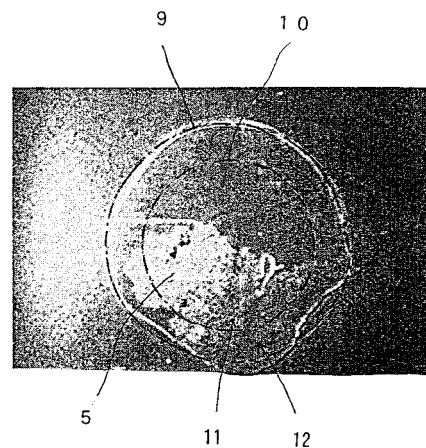
(54) 【発明の名称】 長繊維強化樹脂成形材料およびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】毛羽立ちの少ないペレット状の長繊維強化樹脂成形材料を提供する。

【解決手段】熱可塑性樹脂に、実質的に互いに平行に配列した強化用長繊維を20～60質量%含むペレット状の長繊維強化樹脂成形材料であって、該長繊維強化樹脂成形材料の長さが3～50mmであり、該長繊維強化樹脂成形材料の強化用長繊維の方向と直交する任意のペレット断面を、該ペレット断面の外周平均円直径の70.7%径となる同心円で2分割し、分割された断面の内側円に含まれる繊維の本数をA、該内側円の外側の環状部に含まれる繊維の本数をBとしたとき、ほぼ全てのペレット断面においてA/Bを1.5以上にする。

【選択図】 図3



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

熱可塑性樹脂に、実質的に互いに平行に配列した強化用長繊維を 20～60 質量% 含むペレット状の長繊維強化樹脂成形材料であって、該長繊維強化樹脂成形材料の長さが 3～50 mm であり、該長繊維強化樹脂成形材料の強化用長繊維の方向と直交するペレット断面を、該ペレット断面の外周平均円直径の 70.7% 径となる同心円で 2 分割し、分割された断面の内側円に含まれる繊維の本数を A、該内側円の外側の環状部に含まれる繊維の本数を B としたとき、ほぼ全てのペレット断面において A/B が 1.5 以上であることを特徴とする長繊維強化樹脂成形材料。

【請求項 2】

10

前記強化用長繊維の本数が 3400～5200 本である請求項 1 に記載の長繊維強化樹脂成形材料。

【請求項 3】

回巻体から引き出された強化用長繊維束を、溶融した熱可塑性樹脂が充填された含浸ダイを連続的に通過させ、該含浸ダイ中に設けた開織具により開織させて強化用長繊維に熱可塑性樹脂を含浸させた後、含浸ダイのダイノズルから所定の線径に引き出してペレット状の長繊維強化樹脂成形材料を製造する方法において、強化用長繊維束が最後に通過する開織具からダイノズルの先端までの距離を次式によって得られる距離 L にすることを特徴とする長繊維強化樹脂成形材料の製造方法。

$$L = D \times X \quad (\text{但し、} X = 0.6 \sim 1.6、D \text{ は回巻体の内径 (mm)})$$

20

【請求項 4】

回巻体の内径 D が 160～400 mm である請求項 3 に記載の長繊維強化樹脂成形材料の製造方法。

【請求項 5】

前記距離 L が 210～360 mm である請求項 3 又は 4 に記載の長繊維強化樹脂成形材料の製造方法。

【請求項 6】

連続した強化用長繊維束が通過する入口孔とダイノズルとを有し、該入口孔とダイノズルとの間の強化用長繊維束が通過する領域に溶融した熱可塑性樹脂を充填させる空間部を有し、該空間部に強化用長繊維束を開織するための開織具が設置されており、前記強化用長繊維束が最後に通過する開織具からダイノズルの先端までの距離 L が、該強化用長繊維束の回巻体の内径を D としたとき、 $L = D \times X$ (但し、 $X = 0.6 \sim 1.6$) であることを特徴とする長繊維強化樹脂成形材料の成形用含浸ダイ。

30

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、ペレット状の長繊維強化樹脂成形材料およびその製造方法に関し、特に毛羽立ちの少ないペレット状の長繊維強化樹脂成形材料に関する。

【背景技術】

【0002】

40

従来より、連続強化繊維に熱可塑性樹脂をマトリックス樹脂として含浸させてこれをペレットにした長繊維強化樹脂成形材料が知られている。長繊維強化樹脂成形材料の製造方法としては、マトリックス樹脂原料を押出機にて可塑化し溶融させ、溶融した樹脂を含浸ダイに充填させるとともに、回巻体等から引き出された強化繊維を含浸ダイ中に通過させることにより、強化繊維すなわちフィラメントの集合体であるストランド中に樹脂を含浸せしめ、この樹脂が含浸した強化繊維をノズル等の含浸ダイ出口孔により賦形した線状の長繊維強化樹脂を切断することにより得ることが知られている。

【0003】

長繊維強化樹脂成形材料（ペレット）としては、特許文献 1 に、メルトフローレートが 30 g/10 min 以上であるポリオレフィン樹脂に、繊維長が 5 mm 以上であって実質的

50

に互いに平行に並んだ強化用長繊維を20wt%以上含み、かつ、該強化用長繊維の方向と直交するペレット断面における $\pi \cdot (5d)^2$ (d : 強化用長繊維の平均繊維径) の面積を有する単位円内に含まれる強化繊維の本数 n が、 $n \leq -1.8X + 28\sqrt{X} - 58$ (X : 強化用長繊維の含有量 (wt%)) を満たすことが開示されている。そして、強化用長繊維をこのように分散させることにより、成形時の繊維の開繊性が良好となり、成形品中での繊維の分散が均一でかつ折れが少なく、引張強度などの機械的強度や剛性に優れ、さらにアイゾット衝撃強度や落錘衝撃強度などの衝撃強度にも優れ、しかも強度の異方性や反り変形がほとんどない成形品を得ることが可能となることが記載されている。

【0004】

また、特許文献2には、繊維強化樹脂成形材料として、熔融樹脂の含浸効率を高めるため、1000m当りの重量が50～4400g (50～4400TEX) の繊維束を開繊手段により幅／厚さの割合が35～750になるように開繊して熔融樹脂を含浸させ、長繊維強化熱可塑性樹脂構造体を得ること、この構造体は、長手方向に実質的に平行にかつ前記構造体と実質的に同じ長さで配列した補強用繊維を10～80重量%含むこと、および構造体の長さは3～100mmであり、充填率10容量%の割合で構造体を含む容器を、60回／分の速度で500回交互に180°回転させる振盪試験において、前記構造体から解離する繊維が1000ppm以下であることが記載されている。

【特許文献1】特開平5-17631号公報

【特許文献2】特開平7-314444号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

しかしながら、特許文献1に記載された長繊維強化ポリオレフィン成形材料、すなわち繊維を均一分散させた長繊維強化ペレットを得るためには、回巻体から引き出された繊維の撚りをなくすことが必要で、装置的にも作業的にも煩雑になる。また、特許文献1に記載されている長繊維強化ペレットは、図7のペレット断面写真に示す如くガラス繊維5 (白色部) をペレット中に均一に分散している。このように繊維をペレットの表層部分まで均一分散させた長繊維強化ペレットは、繊維がペレットから脱落しやすく、後工程の成形において作業性を悪化し、また、ペレット表面の繊維が多いことから摩擦係数が高まり、射出成形機等の原料を投入するためのホッパーにおいて、ペレット投入時にブリッジが起きやすい問題を有していた。

【0006】

一方、特許文献2に記載された長繊維強化ペレットでは、ペレットを振盪させることにより脱落する繊維量が少ないペレットを得ることを目的として、繊維を50～4000TEXとし、繊維束の開繊幅を特定させることが記載されている。しかし、特許文献2に開示された製造方法では、繊維束を高度に開繊して熱可塑性樹脂の含浸効率を高めることを主目的にしているため、ペレットからの脱落繊維の量を十分に少なくすることは困難であった。

【0007】

本発明は、かかる問題を解決するためになされたものであり、その目的は、ペレット状の長繊維強化樹脂成形材料における繊維に対する熱可塑性樹脂の含浸性が良好であり、得られる成形品の機械的強度が高く、しかもペレットからの繊維の脱落が極めて少なく、成形品の成形時での取扱い性および成形品の生産性に優れた長繊維強化樹脂成形材料およびその製造方法を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明者は、前記目的を達成するために鋭意検討した結果、強化用長繊維をペレット状の長繊維強化樹脂成形材料のコア部分に表層部分より集中して分散させることにより、毛羽立ちが少なくペレットからの繊維の脱落を少なくでき、さらに強化用長繊維に対する熱可塑性樹脂の含浸性をよくすることにより機械的強度の高い、品質のばらつきの小さい成

形品が得られることを見だし、本発明を完成した。

【0009】

すなわち、本発明は次の長繊維強化樹脂成形材料およびその製造方法を提供する。

(1) 熱可塑性樹脂に、実質的に互いに平行に配列した強化用長繊維を20～60質量%含むペレット状の長繊維強化樹脂成形材料であって、該長繊維強化樹脂成形材料の長さが3～50mmであり、該長繊維強化樹脂成形材料の強化用長繊維の方向と直交するペレット断面を、該ペレット断面の外周平均円直径の70.7%径となる同心円で2分割し、分割された断面の内側円に含まれる繊維の本数をA、該内側円の外側の環状部に含まれる繊維の本数をBとしたとき、ほぼ全てのペレット断面において A/B が1.5以上であることを特徴とする長繊維強化樹脂成形材料。

10

(2) 前記強化用長繊維の本数が3400～5200本である上記(1)の長繊維強化樹脂成形材料。

(3) 回巻体から引き出された強化用長繊維束を、溶融した熱可塑性樹脂が充填された含浸ダイを連続的に通過させ、該含浸ダイ中に設けた開繊具により開繊させて強化用長繊維に熱可塑性樹脂を含浸させた後、含浸ダイのダイノズルから所定の線径に引き出してペレット状の長繊維強化樹脂成形材料を製造する方法において、強化用長繊維束が最後に通過する開繊具からダイノズルの先端までの距離を次式によって得られる距離Lにすることを特徴とする繊維強化樹脂成形材料の製造方法。

【0010】

$L = D \times X$ (但し、 $X = 0.6 \sim 1.6$ 、Dは回巻体の内径(mm))

20

(4) 回巻体の内径Dが160～400mmである上記(3)の長繊維強化樹脂成形材料の製造方法。

(5) 前記距離Lが210～360mmである上記(3)又は(4)に記載の長繊維強化樹脂成形材料の製造方法。

(6) 連続した強化用長繊維束が通過する入口孔とダイノズルとを有し、該入口孔とダイノズルとの間の強化用長繊維束が通過する領域に溶融した熱可塑性樹脂を充填させる空間部を有し、該空間部に強化用長繊維束を開繊するための開繊具が設置されており、前記強化用長繊維束が最後に通過する開繊具からダイノズルの先端までの距離Lが、該強化用長繊維束の回巻体の内径をDとしたとき、 $L = D \times X$ (但し、 $X = 0.6 \sim 1.6$)であることを特徴とする長繊維強化樹脂成形材料の成形用含浸ダイ。

30

【発明の効果】

【0011】

本発明は、強化用長繊維をペレット状の長繊維強化樹脂成形材料のコア部分に重点的に分散させ、ペレットの表層部分の強化用長繊維量を少なくすることにより、強化用長繊維ができるだけペレット表面に現出しないようにしているので、毛羽立ちが少なくペレットからの繊維の脱落を少なくできる。

【0012】

さらにペレット表面に強化用長繊維が実質的に現出していないので、表面平滑性が高く摩擦の小さいペレットを得ることができ、これにより該ペレットを用いて成形品を製造するときの作業性と生産性を高めることができる。また強化用長繊維に対する熱可塑性樹脂の含浸効率が高いので、機械的強度の高い、品質のばらつきの小さい成形品を得ることができる。

40

【発明を実施するための最良の形態】

【0013】

以下、本発明について好ましい具体例を挙げて更に詳細に説明する。

本発明のペレット状の長繊維強化樹脂成形材料(以下、単にペレットということもある)に用いる熱可塑性樹脂としては、特に限定されないが、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリアミド、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリスチレン、AS(アクリロニトリルスチレン)樹脂、ABS(アクリロニトリルブタジエンスチレン)樹脂、PPS(ポリフェニレンサルファイド)、PEI(ポリエーテルイミ

50

ド)、PEEK(ポリエーテルエーテルケトン)等が例示される。これら例示から明らかのように汎用されている熱可塑性樹脂を使用することができ、通常はポリプロピレン、ポリアミドなどが多く用いられる。この熱可塑性樹脂には、用途や成形条件に応じて、着色剤、改質剤、強化繊維以外の充填材および公知の添加剤等を適宜含有させることができ、これらは常法に従い混練使用される。

【0014】

本発明において、強化用長繊維としては、ガラス繊維、炭素繊維などの無機繊維や合成繊維等を熱可塑性樹脂の種類やペレットの用途に応じて使用できる。汎用のペレットにはガラス繊維と炭素繊維が多く使用されており、中でもガラス繊維は好ましく使用されることが多い。これらの強化用長繊維を多数のモノフィラメントの集合体として熱可塑性樹脂中に分散することによりペレットが形成される。このようなペレットの基本構成は、本発明のペレットも従来のペレットと実質的に同じであり、複数本の強化用長繊維(モノフィラメント)がペレットの長手方向(引抜き方向)に沿って引き揃えられ、熱可塑性樹脂が該強化用長繊維の個々のモノフィラメントの間隙に含浸されている。この場合、熱可塑性樹脂に分散された強化用長繊維は、ペレットの長手方向に連続しており、かつ互いにほぼ平行な状態で配列している。つまり、前記強化用長繊維は実質的に平行に配列していればよく、少量の強化用長繊維が長手方向において湾曲したり、絡み合っているいてもよい。

10

【0015】

本発明において、ペレット中に含有される強化用長繊維の本数としては3400~5200本程度が好ましく、より好ましくは4000~5200本である。強化用長繊維の本数がこの範囲であれば、所望の補強効果が得られるとともに、後述するペレットのコア部分にその大半を繊維同士の接触を避けながら熱可塑性樹脂中に分散できる。

20

【0016】

強化用長繊維が例えばガラス繊維の場合には、6~25 μ m径のモノフィラメントを複数本集束してなるガラス繊維束(以下、ガラス繊維ストランドまたはストランドという)を用いる。該ガラス繊維ストランドは巻き取り装置によって巻き取り、必要により自然乾燥又は加熱乾燥して得られる回巻体から内取りで引き出して使用できる。モノフィラメント径が6 μ m未満では、ガラス繊維の生産性が低く、コスト高となるため実用的ではない。また、モノフィラメント径が25 μ mを超えると、モノフィラメントの剛直性が増して脆くなるため、ペレット製造装置の含浸ダイを通過する際のダイとガラス繊維との間、あるいはガラス繊維同志の摩擦によってモノフィラメントが切断されやすくなり、ペレットの品質を低下させたり、製造装置内に発生する毛羽が生産性を悪くする惧れがある。

30

【0017】

上記回巻体としては、図1(a)に示す円筒状のダイレクトワインドロービング2と、図1(b)の太鼓状のケーキ1が代表的に挙げられる。これらのダイレクトワインドロービング2およびケーキ1は、回巻体の巻き取りをそれぞれ往復動する案内部材およびスパラルワイヤーで綾振りすることによって得ることができるが、この方法はガラス繊維製造において一般的に行われている、従来のものと同じである。その際に巻取り径Dの巻取り具を使用することによって、内径Dの回巻体を得ることができる。

【0018】

この回巻体の内径Dとしては、160~400mmの範囲が好ましく、200~400mmの範囲のものがより好ましい。内径Dが160mm未満であると、ストランドが小径で巻かれているため単位長さ当たりの撚り数が多くなって、引き出されるストランドの撚りが強くなるために熱可塑性樹脂の含浸性が劣る。また、糸つなぎ等のジョブチェンジの回数をできるだけ少なくするには、回巻体はできるだけ巻き量の多いものが好ましいが、内径が160mm未満でこの巻き量を多くすると、回巻体の厚さが厚くなるため、集束剤の乾燥効率が劣り好ましくない。内径が400mmを超えると、回巻体が嵩張るために運搬し難くなるとともに広い置き場所が必要となる。ストランドの巻き量を同一にして内径を400mmを超えて大きくする場合は、得られる回巻体の厚さが薄くなるために、回巻体の形状が保持しにくくなり、巻き量を多くすると回巻体が嵩張る上に重くなるために、

40

50

取扱い時や搬送時等の作業性が劣るといった問題を生じる。

【0019】

さらに、強化用長繊維がガラス繊維の場合、回巻体としてはダイレクトワインドロービングよりケーキの方が好ましい。ダイレクトワインドロービングは円筒状の安定した形状をしているため、積み重ねや搬送等における取り扱いやすい点では優れているが、ダイレクトワインドロービングの製造において、マイグレーション（ダイレクトワインドロービングの製造においては、ガラス繊維巻き取り後の自然乾燥や加熱乾燥工程において水分の移動に伴って集束剤が回巻体の表面に集積する現象）が円筒の外周面と両端面に発生する。マイグレーションが発生した外周面のストランドは、使用しないで捨てることができても、両端面のストランドは使用せざるを得ないため、ダイレクトワインドロービングからストランドを引き出して使用すると、マイグレーションによって集束剤が高濃度に蓄積した部分がところどころに現れる。また、ダイレクトワインドロービングは、一般にモノフィラメントの集束本数が多くなる傾向があるため、開織具で開織しても熱可塑性樹脂がストランドの内部まで浸透しにくく、成形品（FRTP）の機械的物性の低下を招く恐れがある。

【0020】

これに対し、上記ケーキは図2に示されるように、ブッシング4から多数本のモノフィラメント5を引き出し、このモノフィラメント5にアプリーケーター6によって集束剤を塗布した後に集束部材7で集束してガラス繊維ストランド3とし、このガラス繊維ストランド3をスパイラルワイヤー8で綾振りさせながら巻き取ることにより、太鼓状のケーキ2を製造することができる。

【0021】

こうして得られたケーキ2は、ストランドがスパイラルワイヤー上で扁平に広がり、フィラメント同志がほぼ平行に並んだ状態で巻かれているため、樹脂を含浸させる際に開織させやすく含浸性に優れている。また図1（b）に示すように、ストランド3が太鼓状に巻き取られた形状、すなわち中央部が膨らみ、両端面がすばまった形状をなしているため、巻き取り後の自然乾燥や加熱乾燥工程におけるマイグレーションが、前記のダイレクトワインドロービングに比べて発生しにくく、また発生してもケーキ最内側の巻き始め部分とケーキ最外側の巻き終わり部分であるので、この部分を使用しなければよい。

【0022】

また、ガラス繊維ストランドの1本当たりのモノフィラメントの集束本数は、1200本以下とすることが好ましい。前記集束本数が1200本を超えると、ガラス繊維ストランド内部へ樹脂が含浸し難くなり、特に撚りがかかっている部分は熱可塑性樹脂の含浸性が悪くなる。ガラス繊維ストランドの1本当たりのモノフィラメントの集束本数は、100～1000本であることが更に好ましく、200～800本であると最も好ましい。

【0023】

さらに、前記ガラス繊維ストランドの1本当たりの番手（TEX）は150～500の範囲が好ましく、200～350の範囲がより好ましい。前記番手が150未満であると、モノフィラメントの本数を少なくするか、あるいはモノフィラメントの径を小さくする必要があるので、ガラス繊維の生産性が低下し、コスト高となる。前記番手が500を超えると、一般にフィラメント本数が多くなるため樹脂が含浸しにくくなり、さらにストランドが太くなることにより撚りの影響が大きくなる。

【0024】

強化用長繊維がガラス繊維である場合、ペレット状の長繊維強化樹脂成形材料に含有させる上記ガラス繊維ストランドの本数は、ストランドのモノフィラメント集束本数、ペレット径（ダイノズル径）などに合わせて適宜決められる。したがって、ストランドの本数は特定されないが、通常3～35本程度が好ましく、5～15本であればより好ましい。ストランドの本数が3本未満では、樹脂との配合割合の関係でペレットが小径となるので生産効率が低下すると共に、必然的にストランド一本当たりのモノフィラメント集束本数が多くなるために、糸つなぎ箇所を含浸ダイのノズル詰まりが発生しやすくなる。一方、

ストランドの本数が35本を超えると、ガラス繊維ストランド内部へ樹脂が含浸し難くなり、ペレット化したときペレット割れを生じやすくなる。さらに、ストランド本数が多くなることにより、生産する際のセッティングに要する時間が長くなり且つ糸つなぎが多くなる。

【0025】

本発明において、長繊維強化樹脂成形材料中における強化用長繊維の含有率は20～60質量%であり、より好ましくは40～60質量%である。強化用長繊維の含有率が20質量%未満では、マスターペレットとして補強用繊維が不足し、成形品に所望の強度が得られなくなる惧れがある。強化用長繊維の含有量は通常の長繊維強化樹脂成形材料では80質量%程度まで可能とされているが、本発明では強化用長繊維を長繊維強化樹脂成形材料のコア部分に重点して分散させるため少な目に抑えている。このように強化用長繊維をコア部分に集中して含有する場合、強化用長繊維の含有率が60質量%を超えると、前記コア部分における樹脂量が相対的に不足して繊維同士が集合し繊維の分散性が悪化する惧れがある。

10

【0026】

本発明において、長繊維強化樹脂成形材料の長さは3～50mmであり、より好ましくは8～12mmである。長繊維強化樹脂成形材料の長さは、成形品の形状や種類などによってこの範囲内で適宜決めることができる。該長さが3mm未満では、繊維による補強効果が十分に得られなくなり、50mmを超えると、成形品の成形加工において不都合が生じたり、他のペレット等とブレンドした時に粒径の違いにより分級が生じ混ざりにくくなるなどの問題が生じることがある。また、長繊維強化樹脂成形材料の断面形状は、円形または円形に近い形状が好ましい。しかし、これに限定されないで外周平均円直径を求めることができる、例えば楕円状や多角形状などの形状であってもよい。さらに、該断面形状は長繊維強化樹脂成形材料の長手方向の全体において必ずしも同一の形状でなくてもよい。これらの断面形状において、その最大直径は通常2～4mm程度である。

20

【0027】

本発明はこのような長繊維強化樹脂成形材料（以下、ペレットということもある）のコア部分に、強化用長繊維を表層部分より多く含有させることを特徴とする。次に、これについて図面を参照して具体的に説明する。図3は、強化用長繊維としてガラス繊維を使用し、該ガラス繊維と熱可塑性樹脂とを複合してなるペレットの、長手方向と直交する方向における断面（以下、ペレット断面とする）の写真を例示したものである。図3に示す如くガラス繊維5（白色部分）がペレットのコア部分に密集して分散しており、ペレットの表層部分におけるガラス繊維の分散量はコア部分に比べて少なくなっている。すなわち、上記ペレット断面を、該断面の外周平均円直径9の70.7%を直径とする同心円10で2分割し、分割された断面の内側円11に含まれる繊維の本数をA、該内側円11の外側の環状部12に含まれる繊維の本数をBとしたとき、 A/B が1.5以上となっている。ここで、ペレット断面の外周平均円直径は、ペレット断面の外形（輪郭）の最大外径と最小外径との平均値として求めることができる。そして、内側円11は、最大外径の中心をペレット断面の中心点とし、該中心点を中心に前記外周平均円直径の70.7%を直径とする真円を描くことにより得られる。ペレット断面における前記内側円11および環状部12は、概略にペレットのコア部分および表層部分にそれぞれ相当するため、コア部分に分散する繊維の本数と表層部分に分散する繊維の本数との割合を A/B により規定することができる。

30

40

【0028】

この場合、ペレットのすべてのペレット断面において A/B が1.5以上でなくても、ほぼすべてのペレット断面において、この要件が満足されていれば、本発明の目的を達成できる。例えば、ペレットから任意に選択したペレット断面の90%以上、更に好ましくは95%以上においてこの要件が満たされていれば、ペレットの毛羽立ちを実質的に防止することができる。因みに従来のペレットでは、繊維が内側円11と環状部12とに実質的に均一に、または内側円11より環状部12にむしろ多く分散されているため、ほぼす

50

すべてのペレット断面において A/B は約 1 またはそれ以下である。

【0029】

また、ガラス繊維 5 が図 3 のようにペレットの中心部に対し若干偏って分散していても、ペレット断面全体として A/B が 1.5 以上であればよい。 A/B を 1.5 以上にするにより、ほとんどのガラス繊維 5 をコア部分の熱可塑性樹脂に留めることができるので、ガラス繊維がペレット表面に現出するのを防止できる。たまたま一部のガラス繊維がペレット表面に現出する場合でも、その量を毛羽立ちが実質的に生じない程度に減少できる。これに対し、 A/B が 1.5 未満であると、ペレットの表層部分におけるガラス繊維の分散量が増加するために、ペレットの表面に現出するガラス繊維量も増大し、ペレットを扱う際に毛羽が多く発生する。本発明において好ましい A/B は 1.8 以上である。

10

【0030】

次に、本発明に係るペレットの製造方法を図 4 に基づいて説明する。図 4 はガラス繊維を使用して本発明のペレットを製造する場合の方法の一つを例示したものであるが、本発明はこれに限定されない。また、前記した部材と同一のものには、理解しやすくするために同一の符号を付して説明する。図 4 に示すように複数のガラス繊維回巻体例えばケーキ 1 から内取りで引き出したストランド 3 を引き揃えて予熱炉 14 に供給し、該予熱炉において予熱した後、含浸ダイ 16 に導入する。この含浸ダイ 16 には、図 5 に拡大断面図で示す如くストランド 3 を通す入口孔 24 と出口孔（ダイノズル）25 が設けられており、これら入口孔 24 とダイノズル 25 の間の、ストランドが通過する領域に溶融した熱可塑性樹脂を充填させる空間部 27 を有している。この空間部 27 には、ストランド 3 を開織するための開織具 22 が設置されており、かつ押出機 15 から加熱混練され溶融した熱可塑性樹脂 26 が供給される。含浸ダイ 16 に導入された複数本のストランド 3 は、含浸ダイ 16 の空間部 27 内に設置した前記開織具 22 に接触させることで開織され、開織された繊維（モノフィラメント）の間に熱可塑性樹脂が含浸される。次いで、熱可塑性樹脂が含浸されたストランド 3 は、賦形ダイ 23 のダイノズル 25 を通過させることで、断面がほぼ円形の線状の成形物 19 に賦形される。この間、線状の成形物 19 は引取り機 18 により連続的に引き出され、冷却槽 17 を通る間に冷却固化されたあとペレタイザ 20 に送られ、該ペレタイザ 20 において所定長さのペレット 21 に切断される。

20

【0031】

上記開織具 22 としては、これまでに開織手段として知られているものを使用でき、例えばその代表的なものとして開織バーまたは開織ローラを挙げることができる。本例は 5 本の開織バーを前記含浸ダイ 16 の空間部 27 内にストランド 3 の進行方向に該進行方向と直交させて設置している。この場合、これらの開織バーは、テンションバーとして機能できるように一本おきに高低差をつけて配設し、ストランド 3 をこれら開織バーに互い違いに接触させるのが好ましい（図 5 参照）。ストランド 3 の開織を空間部 27 内の溶融した熱可塑性樹脂中において行うため、開織と同時に開織しながら繊維の間に熱可塑性樹脂を含浸させることができる。図示はしないが該開織バーのストランド 3 が接触する箇所に湾曲凸部を設け（特許文献 2 参照）、ストランド 3 を該湾曲凸部にテンションを利用して押し付けることにより、ストランド 3 の開織を効率よく確実に行うことができる。

30

【0032】

空間部 27 において熱可塑性樹脂が含浸されたストランド 3 は、前記賦形ダイ 23 のダイノズル 25 を通過するとき過剰の樹脂が除去され、該ダイノズルの先端を通過するときほぼ円形の断面を有する線状の成形物に賦形される。ダイノズル 25 の長さと径は、成形するペレットに合わせて適宜決めることができ特定されないが、通常ダイノズル 25 の長さは 10～40 mm 程度、径は 2～4 mm 程度である。

40

【0033】

本発明は、上記ペレットの製造において、 A/B を 1.5 以上にしてペレットの毛羽立ちを少なくし、かつ含浸ダイ 16 内においてストランド 3 の撚り影響を最小限に抑制するために、ストランド 3 が通過する最後の開織具 22 から前記ダイノズル 25 の先端までの距離 L が、回巻体の内径を D としたときに次式を満たすことを必須とする。

50

【0034】

$$L = D \times X \quad (\text{但し、} X \text{は} 0.6 \sim 1.6)$$

図5では最後の開繊バー22'からダイノズル25の先端までの距離がLであり、該Lを樹脂の含浸性と毛羽の発生防止などを考慮して、使用する回巻体の内径Dに対しXを0.6~1.6の範囲内で選定して決める。前記Xが0.6未満では、上記Lの長さが短くなり、最後に通過する開繊バー22'において最終的に開繊され樹脂が含浸されたガラス繊維が広がった状態でダイノズル25を通過するため、ガラス繊維がペレット全体に均一に分散しやすくなり、その結果ペレット表面にガラス繊維が現出し毛羽の多いペレットが得られる。またXが1.6を超えLが長くなると、最後に通過する開繊バー22'において開繊され樹脂が含浸されたガラス繊維が、このLを通過する間に広がった状態から再び撚りがかかった状態になる。その結果、ダイノズル25を通過する際には、ペレット中に繊維が多く密集するが、撚りの影響でガラス繊維の分散性が劣るため、このペレットから得られる成形品に十分な機械的強度や表面外観性が得られなくなる惧れがある。

【0035】

上記ペレットの製造において、ケーキ1から引き出されたストランド3は、引き出しによって生じる張力と僅かな撚りを有しているが、本発明ではケーキ1の内径が20cm以上であるので、図6(a)に示す如く単位長さ当たりの撚り数を例えば1m当たり1回以下と極めて少なくできるため樹脂の含浸性に優れる。これに対し、内径が小さい回巻体から引き出されるストランドは、図6(b)に例示するように撚り数がこの約2倍程度に多くなっている。本例におけるストランド3は、このように撚り数が少なく開繊しやすいため、含浸ダイ16において熱可塑性樹脂を含浸させるとき、1本1本のモノフィラメントの間まで樹脂が十分に含浸する。

【0036】

本発明によれば、上記したように強化繊維束の開繊をしやすくして繊維束への樹脂の含浸を良好にしつつ、開繊具とダイノズルの先端との距離Lを特定することにより、ペレット断面における繊維が密なコア部分と、樹脂が密な表層部分とを有するペレットを得ることができる。かかるペレットは単独あるいは補強材を含有しない熱可塑性樹脂だけのペレットと配合されて射出成形機などに投入され、機械的強度が大きくかつ強度のばらつきの小さい成形品を得ることができる。

【実施例】

【0037】

実施例1

補強材として、16 μ m径のモノフィラメントを600本(330TEX)集束し、スパイラルワイヤーを用いて太鼓状に巻き取ってなる内径D286mmのケーキから引き出された1本のガラス繊維ストランドを9本引き揃えて、それぞれ10個の含浸ダイのダイノズルに通し、熱可塑性樹脂として、ポリプロピレンに酸変性ポリプロピレンを10%添加したものをを用い、最終開繊バーとダイノズルの先端部との距離Lが340mm(L/D=1.19)となる含浸ダイを用いて図4に示した方法により、樹脂温度260℃で、 ϕ 2.2mmの10ダイノズルから20m/分の速度で引き抜いて、ガラス繊維含有率60質量%、長さ12mmのポリプロピレン/ガラス繊維のL-FTPペレットを製造した。

【0038】

さらに、このL-FTPペレットをマスターペレットとして、ポリプロピレンを所定量添加し、射出成形機にて、ガラス繊維含有率30質量%のASTMに準拠した強度試験片を作製した。

【0039】

実施例2

補強材として、16 μ m径のモノフィラメントを600本(330TEX)集束し、スパイラルワイヤーを用いて太鼓状に巻き取ってなる内径286mmのケーキから引き出されたガラス繊維ストランド9本を用い、距離Lが220mm(L/D=0.77)となる含浸ダイを用いた他は、実施例1と同様にしてガラス繊維含有率60質量%、長さ12m

mのポリプロピレン／ガラス繊維のL－F T Pペレットを製造した。

【0040】

さらに、実施例1と同様にして、ガラス繊維含有率30質量%のASTMに準拠した強度試験片を作製した。

【0041】

比較例1

補強材として、16 μ m径のモノフィラメントを600本(330TEX)集束し、スパイラルワイヤーを用いて太鼓状に巻き取ってなる内径286mmのケーキから引き出されたガラス繊維ストランド9本を用い、距離Lが120mm($L/D=0.41$)となる含浸ダイを用いた他は、実施例1と同様にしてガラス繊維含有率60質量%、長さ12m 10
mのポリプロピレン／ガラス繊維のL－F T Pペレットを製造した。

【0042】

さらに、実施例1と同様にして、ガラス繊維含有率30質量%のASTMに準拠した強度試験片を作製した。

【0043】

上記実施例1、実施例2および比較例1について、各L－F T Pペレットにおける熱可塑性樹脂の含浸状態をレッドマーカー試験(インクテスト)により測定した。この測定はペレットをインクに浸し、ペレット端部より長手方向に色がついたものを目視で評価し、1(良)～5(悪)の5段階評価で行った。ペレットの毛羽については、ペレットを10g採取し、目視にて毛羽の発生が確認できたものを×、確認できないものを○とした。 20

【0044】

さらに、各ペレットの長手方向の中間点におけるペレット断面の外周平均円直径を算定し、各ペレット断面をそれぞれの外周平均円直径の70.7%径となる同心円で2分割し、分割された内側円に含まれる繊維の本数(A)と内側円の外側の環状枠に含まれる繊維の本数(B)とを計数し、各ペレット断面についてA/Bを算定した。

【0045】

また、各強度試験片について曲げ強度およびアイゾットV付き衝撃強度を測定した。また、ガラス繊維の「分散(外観)」はペレットから射出成形機により肉厚2～3mmの平板を成形し、該平板を目視して未分散のガラス繊維が確認できるものを×、確認できないものを○とした。これらの結果をまとめて表1に前記実施条件と併せて示す。 30

【0046】

【表 1】

	実施例 1	実施例 2	比較例 1
熱可塑性樹脂	ポリプロピレン	ポリプロピレン	ポリプロピレン
ガラス繊維の構成	16 μ m $\times$ 600本	16 μ m $\times$ 600本	16 μ m $\times$ 600本
ペレット長	12 mm	12 mm	12 mm
ストランド本数	9 本	9 本	9 本
回巻体の形態	ケーキ	ケーキ	ケーキ
回巻体の内径D (mm)	286	286	286
距離L (mm)	340	220	120
L/D	1.19	0.77	0.41
A/B	1.9	1.6	1.2
ペレットの含浸状態	2	2	2
ペレットの毛羽	○	○	×
分散(外観)	○	○	○
曲げ強度 (MPa)	166	169	167
アイゾットV付 衝撃強度 (J/m)	28.7	21.5	28.4

10

20

30

表 1 から明らかなように、実施例 1 および 2 のペレットは、図 3 に例示したペレット断面のようにガラス繊維がコア部分に密集した状態のペレットであり、いずれもペレットの毛羽が少ないものであった。これに対し、比較例 1 のペレットはガラス繊維の分散性が良好であり機械的強度に優れるものの、図 7 のようにペレット表面にガラス繊維が集まりペレットの毛羽が多いものであった。なお、実施例 1、2 のペレットを使用した成形品の機械的強度は、ガラス繊維がコア部分に集中して分散しているペレットにも拘わらず、比較例 1 のペレットを使用した成形品の機械的強度とほぼ同等であった。

40

【産業上の利用可能性】

【0047】

本発明の長繊維強化樹脂成形材料は、毛羽の発生が少なく、樹脂含浸性の優れたマスターペレットとして、各種の長繊維強化樹脂成形品に広く適用できる。

【図面の簡単な説明】

【0048】

【図 1】本発明に係る回巻体の斜視図で、図 1 (a) はダイレクトワインドロービングの斜視図、図 1 (b) はケーキの斜視図。

【図 2】ケーキ用ガラス繊維製造装置の正面図。

【図 3】本発明の好ましい実施態様に係る長繊維強化樹脂成形材料のペレット断面写真。

【図 4】本発明に係る長繊維強化樹脂成形材料の製造装置の一例を示す模式図。

50

【図 5】 図 4 の含浸ダイの拡大断面説明図。

【図 6】 ガラス繊維束の撚りの状態を示す説明図。

【図 7】 従来の長繊維強化樹脂成形材料のペレット断面写真。

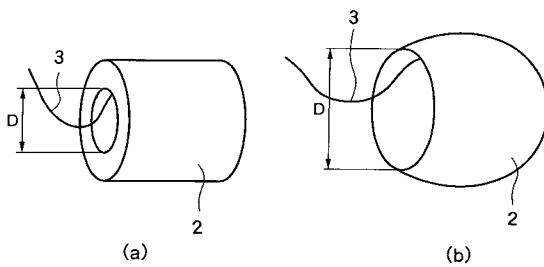
【符号の説明】

【 0 0 4 9 】

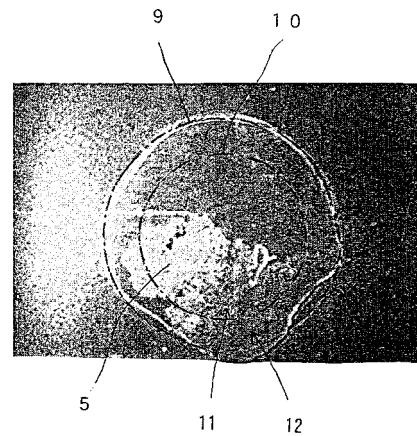
- | | |
|----------------------|--------------------|
| 1 : ケーキ | 2 : ダイレクトワインドロービング |
| 3 : ガラス繊維束 | 4 : ブッシング |
| 5 : モノフィラメント (ガラス繊維) | 6 : モノフィラメント |
| 9 : 外周平均円 | 10 : 同心円 |
| 11 : 内側円 | 12 : 環状枠 |
| 14 : 予熱炉 | 15 : 押出機 |
| 16 : 含浸ダイ | 17 : 冷却槽 |
| 18 : 引取り機 | 19 : 成形物 |
| 20 : ペレタイザ | 21 : ペレット |
| 22 : 開繊具 | 23 : 賦形ダイ |
| 24 : 入口孔 | 25 : ダイノズル |
| 26 : 熱可塑性樹脂 | 27 : 空間部 |

10

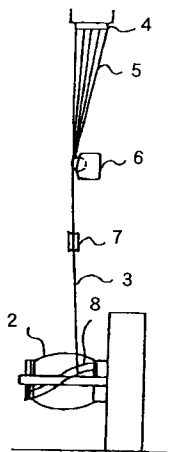
【図 1】



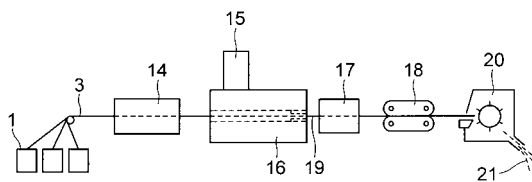
【図 3】



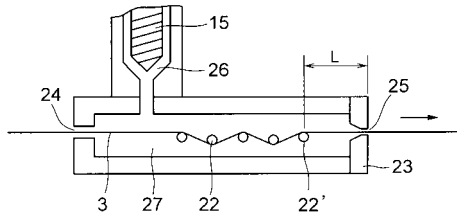
【図 2】



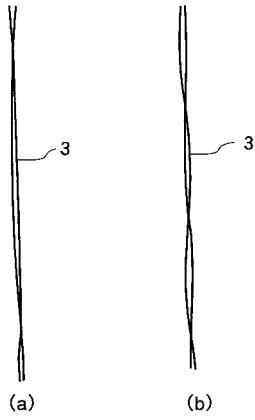
【図 4】



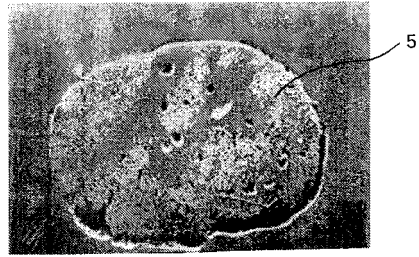
【図 5】



【図 6】



【図 7】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.⁷

F I

テーマコード (参考)

C O 8 L 101:00

Fターム(参考) 4F201 AB25 BA02 BC01 BC02 BK02 BK13 BL08 BL33 BL44