

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2024年8月8日(08.08.2024)



(10) 国際公開番号

WO 2024/161758 A1

- (51) 国際特許分類:
C08J 5/04 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2023/041424
- (22) 国際出願日: 2023年11月17日(17.11.2023)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2023-012422 2023年1月31日(31.01.2023) JP
- (71) 出願人: 東レ株式会社 (TORAY INDUSTRIES, INC.) [JP/JP]; 〒1038666 東京都中央区日本橋室町2丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 仙頭 裕一郎 (SENTO Yuichiro); 〒4558502 愛知県名古屋市港区大江町9番地の1 東レ株式会社 名古屋事業場内 Aichi (JP). 平田 慎 (HIRATA Shin); 〒4558502 愛知県名古屋市港区大江町9番地の1 東レ株式会社 名古屋事業場内 Aichi (JP). 濱口 美都繁 (HAMAGUCHI Mitsushige); 〒4558502 愛知県名古屋市港区大江町9番地の1 東レ株式会社 名古屋事業場内 Aichi (JP).
- (74) 代理人: 伴 俊光, 外 (BAN Toshimitsu et al.); 〒1600023 東京都新宿区西新宿8丁目1番9号 シンコービル オネスト国際特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT,

(54) Title: FIBER-REINFORCED RESIN MOLDED ARTICLE AND MOLDING MATERIAL

(54) 発明の名称: 繊維強化樹脂成形品および成形材料

(57) Abstract: This fiber-reinforced resin molded article contains carbon fibers (A) and a thermoplastic resin (B), and is characterized in that the carbon fibers (A) are contained at a quantity of 5-40 parts by weight relative to a total of 100 parts by weight of the carbon fibers (A) and the thermoplastic resin (B), and that the carbon fibers (A) are such that 1000 carbon fibers (A) randomly selected from a molded article have a long/short ratio of fiber length, as expressed by formula 1, of 2-20. Long/short ratio of fiber length= $\Sigma(L_{0.6})/\Sigma(L_{0.1}) \cdots$ (Formula 1). $L_{0.6}$ denotes the length (mm) of fibers having a fiber length of 0.6 mm or more, and $L_{0.1}$ denotes the length (mm) of fibers having a fiber length of 0.1 mm or less. The present invention is capable of providing: a fiber-reinforced resin molded article which exhibits excellent fluidity and mechanical characteristics and also exhibits excellent aesthetic quality; and a fiber-reinforced resin molding material that can realize this molded article.

(57) 要約: 炭素繊維 (A) および熱可塑性樹脂 (B) を含む繊維強化樹脂成形品であって、炭素繊維 (A) と熱可塑性樹脂 (B) の合計100重量部に対して、炭素繊維 (A) を5~40重量部含み、炭素繊維 (A) は、成形品中から無作為に選んだ1000本の炭素繊維 (A) が、以下の式1に示す繊維長の長短比において2以上20以下であることを特徴とする繊維強化樹脂成形品。繊維長の長短比= $\Sigma(L_{0.6})/\Sigma(L_{0.1}) \cdots$ (式1) $L_{0.6}$: 0.6 mm以上の繊維長を有する繊維の長さ (mm) $L_{0.1}$: 0.1 mm以下の繊維長を有する繊維の長さ (mm) 本発明により、優れた流動性と力学特性を両立でき、さらに優れた外観品位を有する繊維強化樹脂成形品と、これを実現する繊維強化樹脂成形材料を提供できる。

RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF,
CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE,
SN, TD, TG).

添付公開書類：

- 一 国際調査報告（条約第21条(3)）

明 細 書

発明の名称： 繊維強化樹脂成形品および成形材料

技術分野

[0001] 本発明は、強化繊維として炭素繊維と、熱可塑性樹脂を含む成形品および炭素繊維と熱可塑性樹脂を含む成形材料に関する。

背景技術

[0002] 強化繊維と熱可塑性樹脂からなる繊維強化樹脂は、軽量性や力学特性に優れることから、各種産業用途に幅広く利用されている。とくにペレット状に加工した成形材料を射出成形やスタンピング成形などの経済性、生産性に優れた成形方法で成形した成形品は、自動車機器部品や、パソコン、OA機器、AV機器、携帯電話、電話機、家電製品、玩具用品などの電気・電子機器の部品や筐体に頻繁に利用されている。

[0003] とくに強化繊維として炭素繊維を用いた繊維強化樹脂は、炭素繊維の優れた比強度により、軽量ながらも高い引張強度、弾性率を発現することから軽量性と力学特性が高い次元で求められる場合に頻繁に利用される。

[0004] 特許文献1には、ペレットと実質的に同一長さの強化繊維を少なくとも含む長繊維強化熱可塑性樹脂ペレットを射出成形することにより得られた、力学特性に優れる成形品が開示されている。また特許文献2、3、4には、長い繊維長を有する強化繊維と短い繊維長を有する2種の強化繊維を熱可塑性樹脂と組み合わせた熱可塑性樹脂ペレットを射出成形することにより力学特性と外観品位を改善した成形品を得られることが開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開平10-138379号公報

特許文献2：特開2006-181776号公報

特許文献3：特開2018-162337号公報

特許文献4：特開平10-138244号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] しかし、近年になり、成形品の小型化、薄肉化、複雑化が進み、成形材料には高い成形性が要求されるようになり、小型、薄肉、複雑形状に対応できる優れた流動性と力学特性を高次元なバランスで両立することが要求されるようになってきた。

[0007] 従来、強化繊維を含む繊維強化樹脂成形材料は、繊維長による力学特性の向上効果に相関して流動性が低下していく傾向にあった。とくに炭素繊維は、ガラス繊維など他の強化繊維と比較して、優れた比強度、比弾性率を発現するが、一般的に繊維径が細いことに起因して成形時に繊維干渉が発生しやすく、流動性向上が難しい傾向にあった。しかし、更なる成形品の小型、薄肉、複雑形状の達成のために、従来以上に優れた流動性を示しながらも、高い力学特性を保持可能な成形品が要求されている。

[0008] そこで本発明の課題は、上記問題および必要性に鑑み、優れた流動性と力学特性を両立し、さらに優れた外観品位を有する繊維強化樹脂成形品と、これを実現する繊維強化樹脂成形材料を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0009] 上記課題を解決するために、本発明は以下の構成を有する。

(1) 炭素繊維 (A) および熱可塑性樹脂 (B) を含む繊維強化樹脂成形品であって、炭素繊維 (A) と熱可塑性樹脂 (B) の合計 100 重量部に対して、炭素繊維 (A) を 5~40 重量部含み、炭素繊維 (A) は、成形品中から無作為に選んだ 1000 本の炭素繊維 (A) が、以下の式 1 に示す繊維長の長短比において 2 以上 20 以下であることを特徴とする繊維強化樹脂成形品。

$$\text{繊維長の長短比} = \Sigma (L_{0.6}) / \Sigma (L_{0.1}) \cdots \text{(式 1)}$$

$L_{0.6}$: 0.6 mm 以上の繊維長を有する繊維の長さ (mm)

$L_{0.1}$: 0.1 mm 以下の繊維長を有する繊維の長さ (mm)

また、式 1 は以下の式 1-2 の形に変形することができる。

$$\text{繊維長の長短比} = \Sigma (M_{0.6} \times N_{0.6}) / \Sigma (M_{0.1} \times N_{0.1}) \quad \dots$$

(式 1 - 2)

$M_{0.6}$: 0.6 mm以上の長さを有する繊維の各長さ (mm)

$N_{0.6}$: 0.6 mm以上の長さを有する繊維について各長さを有する繊維の個数

$M_{0.1}$: 0.1 mm以下の長さを有する繊維の各長さ (mm)

$N_{0.1}$: 0.1 mm以下の長さを有する繊維について各長さを有する繊維の個数

(2) 前記炭素繊維 (A) は、成形品中から無作為に選んだ 1000本の炭素繊維 (A) が、以下の式 2 に示す短繊維割合において 15%以下であることを特徴とする (1) に記載の繊維強化樹脂成形品。

$$\text{短繊維割合} = \Sigma (L_{0.1}) / \Sigma (L_i) \times 100 (\%) \quad \dots \quad (\text{式 2})$$

$L_{0.1}$: 0.1 mm以下の繊維長を有する繊維の長さ (mm)

L_i : 各繊維の繊維の長さ (mm)

また、式 2 は以下の式 2 - 2 の形に変形することができる。

$$\text{短繊維割合} = \Sigma (M_{0.1} \times N_{0.1}) / \Sigma (M_i \times N_i) \times 100 (\%)$$

... (式 2 - 2)

$M_{0.1}$: 繊維長 0.1 mm以下の繊維の長さ (mm)

$N_{0.1}$: $M_{0.1}$ の繊維の個数

M_i : 各繊維の長さ (mm)

N_i : M_i の繊維の個数

(3) 前記炭素繊維 (A) は、成形品中から無作為に選んだ 1000本の炭素繊維 (A) が以下の式 3 に示す繊維長分布の広がりにおいて 1.4 以上であることを特徴とする請求項 (1) または (2) に記載の繊維強化樹脂成形品。

$$\text{繊維長分布の広がり} = (\Sigma (L_i^2) / \Sigma (L_i)) / (\Sigma (L_i) / 1000) \quad \dots \quad (\text{式 3})$$

L_i : 各繊維の繊維の長さ (mm)

また式3は以下の式3-2の形に変形することができる。

$$\text{繊維長分布の広がり} = \left(\frac{\sum (M_i^2 \times N_i)}{\sum (M_i \times N_i)} \right) \div \left(\frac{\sum (M_i \times N_i)}{\sum N_i} \right) \cdots \text{(式3-2)}$$

M_i : 各繊維の長さ (mm)

N_i : M_i の繊維の個数

- (4) 前記炭素繊維 (A) は、リサイクル炭素繊維を含むことを特徴とする (1) ~ (3) のいずれかに記載の繊維強化樹脂成形品。
- (5) 前記繊維強化樹脂成形品に含まれる炭素繊維 (A) は、ラマンシフト 1360 cm^{-1} 付近に現れる炭素繊維表面のラマン散乱強度の極大値 I_{1360} 、ラマンシフト 1480 cm^{-1} 付近に現れる炭素繊維表面のラマン散乱強度の極小値 I_{1480} 、ラマンシフト 1580 cm^{-1} 付近に現れる炭素繊維表面のラマン散乱強度の極大値 I_{1580} の比、 I_{1360}/I_{1580} と I_{1480}/I_{1580} が異なる2種の炭素繊維 (A-1) と炭素繊維 (A-2) を含み、前記炭素繊維 (A-2) は、前記炭素繊維 (A-1) と比較して、 I_{1360}/I_{1580} が大きい値または同じ値かつ I_{1480}/I_{1580} が小さい値であることを特徴とする (1) ~ (4) のいずれかに記載の繊維強化樹脂成形品。
- (6) 前記繊維強化樹脂成形品に含まれる炭素繊維 (A) のうち、繊維長 0.6 mm 以上の繊維において、前記炭素繊維 (A-1) と前記炭素繊維 (A-2) の本数比率、 0.6 mm 以上の (A-1) の本数 : 0.6 mm 以上の (A-2) の本数が $100 : 0 \sim 50 : 50$ である (5) に記載の繊維強化樹脂成形品。
- (7) 前記炭素繊維 (A) 100 重量部に対して、前記炭素繊維 (A-2) を $10 \sim 70$ 重量部含むことを特徴とする (5) または (6) に記載の繊維強化樹脂成形品。
- (8) 前記炭素繊維 (A-1) の繊維径 $\phi (A-1)$ と前記、炭素繊維 (A-2) の繊維径 $\phi (A-2)$ の比、 $\phi (A-1) / \phi (A-2)$ が 1.2 以上 2.0 以下であることを特徴とする (5) ~ (7) のいずれかに記載の繊維強化樹脂成形品。

(9) 炭素繊維 (A) および熱可塑性樹脂 (B) を含む繊維強化樹脂成形材料 (C) であって、長さ 3 mm 以上 10 mm 以下の繊維長を有し、成形材料の長手方向に配向している炭素繊維 (CF-1) および熱可塑性樹脂 (B) を含む繊維強化樹脂成形材料 (C-1) および、短繊維状の炭素繊維 (CF-2) および熱可塑性樹脂 (B) を含む繊維強化樹脂成形材料 (C-2) を含み、炭素繊維 (CF-1) の繊維径 ϕ (CF-1) と炭素繊維 (CF-2) の繊維径 ϕ (CF-2) の比、 ϕ (CF-1) / ϕ (CF-2) が 1.2 以上 2.0 以下であることを特徴とする繊維強化樹脂成形材料。

(10) 前記炭素繊維 (CF-2) は、繊維強化樹脂成形材料 (C-2) 中から無作為に選んだ 1000 本の炭素繊維 (CF-2) が以下の式 4 に示す繊維長において 0.1 mm 以上 0.4 mm 以下であること特徴とする (9) に記載の繊維強化樹脂成形材料。

$$\text{炭素繊維 (CF-2) の繊維長} = \sum (L_i) / 1000 \cdots \text{(式 4)}$$

L_i : 各繊維の長さ (mm)

また式 4 は以下の式 4-2 の形に変形することができる。

$$\text{炭素繊維 (CF-2) の繊維長} = \sum (M_i \times N_i) / \sum N_i \cdots \text{(式 4-2)}$$

M_i : 各繊維の長さ (mm)

N_i : M_i の繊維の個数

(11) 前記繊維強化樹脂成形材料 (C-1) は、炭素繊維 (CF-1) と熱可塑性樹脂 (B) に加えて、炭素繊維 (CF-1) の各繊維間を満たす状態で存在する熱可塑性樹脂 (B) とは異なる化合物 (D) を含むことを特徴とする (9) または (10) に記載の繊維強化樹脂成形材料。

(12) 前記炭素繊維 (CF-2) は、リサイクル炭素繊維を含むことを特徴とする (9) ~ (11) に記載の繊維強化樹脂成形材料。

発明の効果

[0010] 本発明によれば、薄肉性と複雑形状および力学特性を両立した成形品を得ることができる。本発明の成形材料は、成形加工時の流動性に優れており、

力学特性に優れた成形品を容易に製造することができるため、射出成形、トランスファー成形、ブロー成形、インサート成形などの成形方法に限らず、プランジャー成形、プレス成形、スタンピング成形など幅広い成形方法にも応用することができる。

- [0011] 本発明の成形品は、成形加工時の流動性に優れながらも、優れた力学特性を維持しており、スラストワッシャー、オイルフィルター、シール、ベアリング、ギア、シリンダーヘッドカバー、ベアリングリテーナ、インテークマニホールド、ペダル等の自動車部品、シリコンウエハーキャリアー、ICチップトレイ、電解コンデンサートレイ、絶縁フィルム等の半導体・液晶製造装置部品、ポンプ、バルブ、シール等のコンプレッサー部品や航空機のキャビン内装部品といった産業機械部品、滅菌器具、カラム、配管等の医療器具部品や食品・飲料製造設備部品、パソコン、OA機器、AV機器、携帯電話、電話機、家電製品、玩具用品などの電気・電子機器の部品や筐体を使用することができる。本発明の成形材料を使用すれば、0.5～2mmといった薄肉の成形品を比較的容易に得ることができ、強化繊維として用いられる炭素繊維には導電性を有するため、電磁波シールド性が付与でき、電気・電子機器の部品や筐体に好適である。

発明を実施するための形態

- [0012] 以下に、本発明について実施の形態とともに詳細を説明する。

[0013] <成形品>

本発明の成形品は炭素繊維（A）と熱可塑性樹脂（B）を含む。炭素繊維（A）をある範囲の繊維長の長短比とすることによって、長い炭素繊維を残存させながらも、短い炭素繊維を多く含むことができ、優れた力学特性と薄肉性を両立することができる。

[0014] [炭素繊維（A）]

本発明における炭素繊維（A）について説明する。

本発明における炭素繊維（A）の種類については、特に制限されず、PAN（ポリアクリロニトリル）系、ピッチ系、レーヨン系などの炭素繊維が好

ましく用いられる。特に、高強度の観点からは、引張強度が3000MPa以上の炭素繊維が好ましく、より好ましくは、4000MPa以上である。高弾性率の観点からは、引張弾性率が200GPa以上の炭素繊維が好ましく、より好ましくは、300GPa以上である。特に、繊維長を長く保つことが難しい弾性率が300GPa以上の炭素繊維は、後述する本発明の成形材料の効果をより発現できるため好ましい。炭素繊維(A)の繊維径は、3~20 μ mであることが好ましく、4~15 μ mであることがより好ましく、4.2~13 μ mであることがさらに好ましい。繊維径が3 μ m未満では、成形品中における繊維の交絡点が著しく増加し、成形品の薄肉性と表面外観が損なわれる。また、得られる成形品の経済性、環境負荷の観点から、リサイクル炭素繊維を好ましく併用することができる。

[0015] 炭素繊維(A)には集束剤が付着されていることが好ましい。これは炭素繊維(A)に集束剤を付着させることで、炭素繊維の移送時の取扱性や、成形材料を製造する過程でのプロセス性および成形品の力学特性と外観特性を高めることができる。集束剤の種類には特に限定はないが、エポキシ樹脂、ウレタン樹脂、アクリル樹脂や種々の熱可塑性樹脂などの集束剤を1種または2種以上併用することができる。

[0016] 成形品100重量部に対して、炭素繊維(A)は5~40重量部であることが好ましい、より好ましくは8~35重量部、さらに好ましくは10~30重量部である。炭素繊維(A)が5重量部未満では、力学特性が不十分となる場合があり、40重量部を超えると成形品表面に炭素繊維(A)が露出し、表面外観が低下する場合がある。

[0017] 成形品中の炭素繊維(A)の以下に定義する繊維長の長短比は、2以上20以下である。より好ましくは3以上15以下であり、さらに好ましくは4以上13以下である。炭素繊維を用いた場合、繊維長0.6mm以上の繊維は成形品の衝撃強度向上に大きく影響する一方、成形時の繊維干渉による流動性低下を伴い、成形品の薄肉性を損なう要因となる場合がある。繊維長0.1mm以下の繊維は、成形時の繊維干渉が発生しづらく、流動性向上を図

ることができるため、成形品の薄肉性を向上可能である一方、強度、弾性率の向上割合が繊維長0.6mm以上の繊維と比較して大幅に低下する。したがって、繊維長0.6mm以上の炭素繊維と、0.1mm以下の炭素繊維の比率に関連する繊維長の長短比2未満では、力学特性が不十分となる場合があり、20を超えると成形品表面に炭素繊維（A）が露出し、表面外観が低下する場合がある。

[0018] ここで、本発明における「繊維長の長短比」とは、下記式1から算出される繊維長0.6mm以上の繊維と繊維長0.1mm以下の繊維の比である。

繊維長の長短比 = $\Sigma (L_{0.6}) / \Sigma (L_{0.1}) \cdots$ (式1)

$L_{0.6}$: 0.6mm以上の繊維長を有する繊維の長さ (mm)

$L_{0.1}$: 0.1mm以下の繊維長を有する繊維の長さ (mm)。

[0019] 上記繊維長の長短比の測定は、次の方法により行うことができる。ホットステージ付き光学顕微鏡を用い、成形品から適宜試験片を切り出し、用いた熱可塑性樹脂（B）の熔融温度に合わせ、150～500℃で適宜設定したホットステージの上にガラス板間に挟んだ状態で加熱し、フィルム状にして炭素繊維（A）を均一分散させ、熱可塑性樹脂（B）が熔融した状態で、光学顕微鏡（50～200倍）にて観察する。無作為に選んだ1000本の炭素繊維（A）の繊維長を計測して、上記式1から長短比を算出する。または、成形品から切り出した試験片を熱可塑性樹脂（B）が溶解する溶剤中へ投入し、適宜加熱処理を加え、炭素繊維（A）が均一に分散した溶液を作製する。その後、その溶液を濾過して濾紙上に分散した炭素繊維（A）を光学顕微鏡（50～200倍）にて観察する。無作為に選んだ1000本の炭素繊維（A）の繊維長を計測して、上記式1から長短比を算出する。また、このとき用いる濾紙としては、アドバンテック社製の定量濾紙（型番：No. 5C）などが挙げられる。

[0020] 成形品中の炭素繊維（A）の繊維長0.1mm以下の短繊維の割合は、15%以下であることが好ましい。より好ましくは10%以下、さらに好ましくは5%以下である。下限については特に制限されず、0%であってもよい

。短繊維割合が15%を超えると、力学特性が不十分となる場合がある。

[0021] ここで、本発明における「短繊維割合」とは、下記式2から算出される長さ0.1mm以下の繊維の割合である。

$$\text{短繊維割合} = \sum (L_{0.1}) / \sum (L_i) \times 100 (\%) \cdots (\text{式2})$$

$L_{0.1}$: 0.1mm以下の繊維長を有する繊維の長さ (mm)

L_i : 各繊維の繊維の長さ (mm)。

[0022] 上記短繊維の割合は、繊維長の長短比の測定を行う場合と同様な方法で無作為に選んだ1000本の炭素繊維(A)の繊維長を計測して、上記式2から短繊維割合を算出する。

[0023] 成形品中の炭素繊維(A)の繊維長分布の広がり(分散係数)は1.4以上であることが好ましい。より好ましくは1.5以上であり、さらに好ましくは1.7以上である。上限については30である。繊維長分布の広がりが1.4未満では力学特性と流動性の両立が困難となる場合がある。

[0024] ここで、本発明における「繊維長分布の広がり」とは、下記式3から算出される値である。

$$\text{繊維長分布の広がり} = (\sum (L_i^2) / \sum (L_i)) / (\sum (L_i) / 1000) \cdots (\text{式3})$$

L_i : 各繊維の繊維の長さ (mm)。

[0025] 上記繊維長分布の広がり(分散係数)は、繊維長の長短比の測定を行う場合と同様な方法で、無作為に選んだ1000本の炭素繊維(A)の繊維長を計測して、上記式3から繊維長分布の広がりを算出する。

[0026] 本発明の成形品に含まれる炭素繊維(A)は、リサイクル炭素繊維を含むことが好ましい。ここで、リサイクル炭素繊維とは、使用済の炭素繊維を含む成形品や、炭素繊維を含む樹脂組成物や成形品の工程端材などから回収して再利用する炭素繊維である。

[0027] 成形品中の炭素繊維(A)は、目的に応じて異なる強度、弾性率、繊維径、表面状態、繊維長などの異なる特性を有する2種以上の炭素繊維を含んでもよい。3種以上の炭素繊維を含んでもよいが、本発明の成形品におい

て、炭素繊維（A）が異なる特性を有する炭素繊維（A-1）と炭素繊維（A-2）の2種を含み、炭素繊維（A-1）は繊維長0.6mm以上の繊維を有することが好ましい。また、炭素繊維（A-2）を炭素繊維（A-1）より繊維長が短い材料とすることが好ましく、得られる成形品の力学特性を維持しながら、細部への充填性および薄肉性を向上することができる。

[0028] 炭素繊維（A-1）と炭素繊維（A-2）の判別方法としては、炭素繊維の分析方法として公知の技術が挙げられ、光学顕微鏡観察、走査型電子顕微鏡観察、フーリエ変換赤外分光光度法、ラマン分光光度法、X線光電子分光法、X線回折法などによって判別が可能である。本発明では、炭素繊維（A-1）と炭素繊維（A-2）の判別として、レーザーラマン分光測定装置を用いて、得られるラマンスペクトルのラマンシフト 1360 cm^{-1} 付近に現れる炭素繊維表面のラマン散乱強度の極大値 I_{1360} 、ラマンシフト 1480 cm^{-1} 付近に現れる炭素繊維表面のラマン散乱強度の極小値 I_{1480} 、ラマンシフト 1580 cm^{-1} 付近に現れる炭素繊維表面のラマン散乱強度の極大値 I_{1580} の比、 I_{1360}/I_{1580} と I_{1480}/I_{1580} を求め、炭素繊維（A-2）は、前記炭素繊維（A-1）と比較して、 I_{1360}/I_{1580} が大きい値または同じ値かつ I_{1480}/I_{1580} が小さい値である炭素繊維として定義する。

[0029] 本発明の成形品中の炭素繊維（A）における繊維長0.6mm以上の繊維において、前記炭素繊維（A-1）と前記炭素繊維（A-2）の本数比率A-1:A-2が100:0~50:50であることが好ましい。100:0~80:20であることがより好ましく、100:0であることがさらに好ましい。炭素繊維（A-1）と炭素繊維（A-2）の繊維長0.6mm以上の本数比率に差が大きいほうが好ましく、成形品の力学特性を維持しながら、成形時の流動性が向上し、細部の充填性が向上しやすくなる。

[0030] 廃棄物を削減する観点から、前記炭素繊維（A-1）と前記炭素繊維（A-2）のうち、前記炭素繊維（A-2）にはリサイクル炭素繊維を用いることが好ましい。リサイクル炭素繊維としては、公知の製法で製造された繊維を用いることができ、例えば、以下の（a）~（c）に至る各工程を行い、

リサイクル炭素繊維を得る方法が挙げられる。

(a) 繊維強化樹脂廃材を破砕し、所定の繊維長を有する破砕片を作製する破砕工程。

(b) 破砕片を熱分解炉に定量供給しながら加熱し、マトリックス樹脂成分を除去して熱分解体を得る熱分解処理工程。

(c) 熱分解体を繊維長ごとに分級して、リサイクル炭素繊維を得る分級工程。

分級工程後のリサイクル炭素繊維には、集束剤を付与してもよい。

[0031] 前記リサイクル炭素繊維は、炭素繊維(A)100重量部に対して、10~70重量部含まれることが好ましく、20~70重量部含まれることがより好ましい。10重量部未満では、細部の充填性が不十分となる場合があり、70重量部を超えると、力学特性が不十分となる場合がある。

[0032] 炭素繊維(A)に含まれる2種の炭素繊維(A-1)と炭素繊維(A-2)は異なる繊維径を有していることが好ましい。炭素繊維(A-1)は炭素繊維(A-2)より太径であることが好ましく、前記炭素繊維(A-1)の繊維径 $\phi(A-1)$ と前記炭素繊維(A-2)の繊維径 $\phi(A-2)$ の比、 $\phi(A-1)/\phi(A-2)$ が1.2以上2.0以下であることがより好ましい。さらに好ましくは1.3以上1.8以下であることが好ましい。上記範囲とすることで、成形品中の繊維長を残存させながらも、細部の充填性を保持しやすくなる。

[0033] 上記炭素繊維(A-2)は、単系分散状態であっても、一部束状繊維を含んでいてもよい。束状繊維を含むことで、単系分散と比べた場合、成形品の衝撃強度は高まるが、成形品表面に束状繊維が浮き出ることがある。好ましくは単系分散状態であり、束状繊維を含む場合と比較して、衝撃強度が若干低下する一方、成形品の外観特性およびに力学特性に優れる。

[0034] また、上記炭素繊維(A-1)は、後述する成形材料(C-1)に含まれる(CF-1)由来の炭素繊維であり、炭素繊維(A-2)は、後述する成形材料(C-2)に含まれる(CF-2)由来の炭素繊維であることが好ま

しい。

[0035] [熱可塑性樹脂 (B)]

本発明の成形品は、熱可塑性樹脂 (B) を炭素繊維 (A) と熱可塑性樹脂 (B) 合計 100 重量部に対して、60～95 重量部含む。

[0036] 本発明において熱可塑性樹脂 (B) は、成形温度 (溶融温度) が 200～450℃であるものが好ましく、ポリオレフィン樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリアミド樹脂、ハロゲン化ビニル樹脂、ポリアセタール樹脂、飽和ポリエステル樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリアリールスルホン樹脂、ポリアリールケトン樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリフェニレンスルフィド樹脂、ポリアリールエーテルケトン樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、ポリフェニレンサルファイドスルフォン樹脂、ポリアリレート樹脂、ポリアミド樹脂等が挙げられ、これらを 2 種以上の複数用いることもできる。熱可塑性樹脂のなかでも、軽量、かつ、力学特性や成形性のバランスに優れるポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリカーボネート樹脂およびポリアリールスルフィド樹脂がより好ましい。

[0037] ここで言うポリオレフィン樹脂とは、無変性のものも、変性されたものも含まれる。例えば、無変性のポリプロピレン樹脂は、具体的には、プロピレンの単独重合体またはプロピレンと少なくとも 1 種の α -オレフィン、共役ジエン、非共役ジエンなどとの共重合体である。プロピレンと共重合する α -オレフィンとしては、例えば、エチレン、1-ブテン、3-メチル-1-ブテン、4-メチル-1-ペンテン、3-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ヘキセン、4,4ジメチル-1-ヘキセン、1-ノネン、1-オクテン、1-ヘプテン、1-ヘキセン、1-デセン、1-ウンデセン、1-ドデセン等の炭素数 2～12 の α -オレフィン (プロピレンを除く) などが挙げられる。プロピレンと共重合する共役ジエン、非共役ジエンとしては、例えば、ブタジエン、エチリデンノルボルネン、ジシクロペンタジエン、1,5-ヘキサジエン等が挙げられる。これらを 2 種以上用いてもよい。無変性ポリプロピレン樹脂の骨格構造としては、プロピレンの単独重合体、プロピ

レンと前記その他の単量体のランダムあるいはブロック共重合体、またはプロピレンと他の熱可塑性単量体とのランダムあるいはブロック共重合体等を挙げることができる。例えば、ポリプロピレン、エチレン・プロピレン共重合体、プロピレン・1-ブテン共重合体、エチレン・プロピレン・1-ブテン共重合体などが好適なものとして挙げられる。プロピレンの単独重合体は成形品の剛性をより向上させる観点から好ましく、プロピレンと前記その他の単量体のランダムあるいはブロック共重合体は成形品の衝撃強度をより向上させる観点から好ましい。

[0038] また、変性ポリプロピレン樹脂としては、酸変性ポリプロピレン樹脂が好ましく、重合体鎖に結合したカルボン酸および／またはその塩の基を有するポリプロピレン樹脂がより好ましい。上記酸変性ポリプロピレン樹脂は種々の方法で得ることができ、例えば、ポリプロピレン樹脂に、中和されているか、中和されていないカルボン酸基を有する単量体、および／または、ケン化されているか、ケン化されていないカルボン酸エステルを有する単量体を、グラフト重合することにより得ることができる。ここで、中和されているか、中和されていないカルボン酸基を有する単量体、または、ケン化されているか、ケン化されていないカルボン酸エステル基を有する単量体としては、例えば、エチレン系不飽和カルボン酸、その無水物、これらのエステル化物などが挙げられる。さらに、オレフィン以外の不飽和ビニル基を有する化合物なども挙げられる。

[0039] エチレン系不飽和カルボン酸としては、(メタ)アクリル酸、マレイン酸、フマル酸、テトラヒドロフタル酸、イタコン酸、シトラコン酸、クロトン酸、イソクロトン酸などが例示され、その無水物としては、ナジック酸TM (エンドシスービスクロ [2, 2, 1] ヘプト-5-エン-2, 3-ジカルボン酸)、無水マレイン酸、無水シトラコン酸などが例示できる。

[0040] エチレン系不飽和カルボン酸のエステル化物としては、メチル(メタ)アクリレート、エチル(メタ)アクリレート、プロピル(メタ)アクリレート、n-ブチル(メタ)アクリレート、i s o-ブチル(メタ)アクリレート

、tert-ブチル（メタ）アクリレート、n-アミル（メタ）アクリレート、イソアミル（メタ）アクリレート、n-ヘキシル（メタ）アクリレート、2-エチルヘキシル（メタ）アクリレート、オクチル（メタ）アクリレート、デシル（メタ）アクリレート、ドデシル（メタ）アクリレート、オクタデシル（メタ）アクリレート、ステアリル（メタ）アクリレート、トリデシル（メタ）アクリレート、ラウロイル（メタ）アクリレート、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、ベンジル（メタ）アクリレート、フェニル（メタ）アクリレート、イソボロニル（メタ）アクリレート、ジシクロペンタニル（メタ）アクリレート、ジシクロペンテニル（メタ）アクリレート、ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレート、ジエチルアミノエチル（メタ）アクリレート等の（メタ）アクリル酸エステル類、ヒドロキシエチルアクリレート、2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、4-ヒドロキシブチルアクリレート、ラクトン変性ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、2-ヒドロキシ-3-フェノキシプロピルアクリレート等の水酸基含有（メタ）アクリル酸エステル類、グリシジル（メタ）アクリレート、メチルグリシジル（メタ）アクリレート等のエポキシ基含有（メタ）アクリル酸エステル類、N,N-ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレート、N,N-ジエチルアミノエチル（メタ）アクリレート、N,N-ジメチルアミノプロピル（メタ）アクリレート、N,N-ジプロピルアミノエチル（メタ）アクリレート、N,N-ジブチルアミノエチル（メタ）アクリレート、N,N-ジヒドロキシエチルアミノエチル（メタ）アクリレート等のアミノアルキル（メタ）アクリレート類などが挙げられる。

[0041] オレフィン以外の不飽和ビニル基を有する単量体としては、ビニルイソシアナート、イソプロペニルイソシアナート等のイソシアナート基含有ビニル類、スチレン、 α -メチルスチレン、ビニルトルエン、t-ブチルスチレン等の芳香族ビニル類、アクリルアミド、メタクリルアミド、N-メチロールメタクリルアミド、N-メチロールアクリルアミド、ジアセトンアクリルア

ミド、マレイン酸アミド等のアミド基含有ビニル類、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル等のビニルエステル類、スチレンスルホン酸、スチレンスルホン酸ソーダ、2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸等の不飽和スルホン酸類、モノ(2-メタクリロイロキシエチル)アシッドホスフェート、モノ(2-アクリロイロキシエチル)アシッドホスフェート等の不飽和リン酸類等が挙げられる。

[0042] これらを2種以上用いることもできる。また、これらの中でも、エチレン系不飽和カルボン酸無水物類が好ましく、無水マレイン酸がより好ましい。

[0043] ここで、成形品の曲げ強度および引張強度を向上させるため、無変性ポリプロピレン樹脂と変性ポリプロピレン樹脂を共に用いることが好ましく、特に難燃性や力学特性のバランスの観点から、無変性ポリプロピレン樹脂と変性ポリプロピレン樹脂の重量比が95/5~75/25となるように用いることが好ましい。より好ましくは95/5~80/20、さらに好ましくは90/10~80/20である。

[0044] また、ポリアミド樹脂は、アミノ酸、ラクタム、あるいはジアミンとジカルボン酸を主たる原料とする樹脂である。その主要原料の代表例としては、6-アミノカプロン酸、11-アミノウンデカン酸、12-アミノドデカン酸、パラアミノメチル安息香酸などのアミノ酸、ε-カプロラクタム、ω-ラウロラクタムなどのラクタム、テトラメチレンジアミン、ヘキサメチレンジアミン、2-メチルペンタメチレンジアミン、ノナメチレンジアミン、ウンデカメチレンジアミン、ドデカメチレンジアミン、2,2,4-トリメチルヘキサメチレンジアミン、5-メチルノナメチレンジアミンなどの脂肪族ジアミン、メタキシリレンジアミン、パラキシリレンジアミンなどの芳香族ジアミン、1,3-ビス(アミノメチル)シクロヘキサン、1,4-ビス(アミノメチル)シクロヘキサン、1-アミノ-3-アミノメチル-3,5,5-トリメチルシクロヘキサン、ビス(4-アミノシクロヘキシル)メタン、ビス(3-メチル-4-アミノシクロヘキシル)メタン、2,2-ビス(4-アミノシクロヘキシル)プロパン、ビス(アミノプロピ

ル) ピペラジン、アミノエチルピペラジンなどの脂環族ジアミン、アジピン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカン二酸などの脂肪族ジカルボン酸、テレフタル酸、イソフタル酸、2-クロロテレフタル酸、2-メチルテレフタル酸、5-メチルイソフタル酸、5-ナトリウムスルホイソフタル酸、ヘキサヒドロテレフタル酸、ヘキサヒドロイソフタル酸などの芳香族ジカルボン酸、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸、1,3-シクロヘキサンジカルボン酸、1,2-シクロヘキサンジカルボン酸などの脂環族ジカルボン酸などが挙げられる。これらを2種以上用いてもよい。

[0045] 本発明においては、耐熱性や強度に優れるという点から、170℃以上の融点を有するポリアミド樹脂が特に有用である。その具体的な例としては、ポリカプロアミド(ナイロン6)、ポリヘキサメチレンアジパミド(ナイロン66)、ポリカプロアミド/ポリヘキサメチレンアジパミドコポリマー(ナイロン6/66)、ポリテトラメチレンアジパミド(ナイロン46)、ポリヘキサメチレンセバカミド(ナイロン610)、ポリヘキサメチレンドデカミド(ナイロン612)、ポリデカメチレンデカミド(ナイロン1010)、ポリデカメチレンドデカミド(ナイロン1012)、ポリドデカメチレンドデカミド(ナイロン1212)、ポリウンデカンアミド(ナイロン11)、ポリドデカンアミド(ナイロン12)、ポリヘキサメチレンテレフタルアミド/ポリカプロアミドコポリマー(ナイロン6T/6)、ポリヘキサメチレンアジパミド/ポリヘキサメチレンテレフタルアミドコポリマー(ナイロン66/6T)、ポリヘキサメチレンアジパミド/ポリヘキサメチレンイソフタルアミドコポリマー(ナイロン66/6I)、ポリヘキサメチレンアジパミド/ポリヘキサメチレンテレフタルアミド/ポリヘキサメチレンイソフタルアミドコポリマー(ナイロン66/6T/6I)、ポリヘキサメチレンテレフタルアミド/ポリヘキサメチレンイソフタルアミドコポリマー(ナイロン6T/6I)、ポリヘキサメチレンテレフタルアミド/ポリドデカンアミドコポリマー(ナイロン6T/12)、ポリヘキサメチレンテレフタルアミド/ポリ(2-メチルペンタメチレン)テレフタルアミドコポリマー(

ナイロン6 T/M5 T)、ポリキシリレンアジパミド(ナイロンXD6)、ポリノナメチレンテレフタルアミド(ナイロン9 T)およびこれらの共重合体などが挙げられる。これらを2種以上用いてもよい。これらの中でも、ナイロン6、ナイロン66、ナイロン610、ナイロン11、ナイロン12およびナイロン9 Tがより好ましい。

[0046] これらポリアミド樹脂の重合度には特に制限がなく、98%濃硫酸25 mlにポリアミド樹脂0.25 gを溶解した溶液の25℃で測定した相対粘度が1.5~5.0の範囲が好ましく、特に2.0~3.5の範囲のポリアミド樹脂がより好ましい。

[0047] また、ポリカーボネート樹脂は、二価フェノールとカーボネート前駆体とを反応させて得られるものである。2種以上の二価フェノールまたは2種以上のカーボネート前駆体を用いて得られる共重合体であってもよい。反応方法の一例として、界面重合法、溶融エステル交換法、カーボネートプレポリマーの固相エステル交換法、および環状カーボネート化合物の開環重合法などを挙げることができる。かかるポリカーボネート樹脂はそれ自体公知であり、例えば、特開2002-129027号公報に記載のポリカーボネート樹脂を使用できる。

[0048] 二価フェノールとしては、例えば、1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサン、ビス(4-ヒドロキシフェニル)アルカン(ビスフェノールAなど)、2,2-ビス{(4-ヒドロキシ-3-メチル)フェニル}プロパン、 α, α' -ビス(4-ヒドロキシフェニル)- m -ジイソプロピルベンゼン、9,9-ビス(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)フルオレンなどが挙げられる。これらを2種以上用いてもよい。これらの中でも、ビスフェノールAが好ましく、耐衝撃特性により優れたポリカーボネート樹脂を得ることができる。一方、ビスフェノールAと他の二価フェノールを用いて得られる共重合体は、高耐熱性または低吸水性の点で優れている。

[0049] カーボネート前駆体としては、例えば、カルボニルハライド、炭酸ジエス

テルまたはハロホルメートなどが使用され、具体的には、ホスゲン、ジフェニルカーボネートまたは二価フェノールのジハロホルメートなどが挙げられる。

[0050] 上記二価フェノールとカーボネート前駆体からポリカーボネート樹脂を製造するにあたっては、必要に応じて触媒、末端停止剤、二価フェノールの酸化を防止する酸化防止剤などを使用してもよい。

[0051] また、本発明におけるポリカーボネート樹脂には、三官能以上の多官能性芳香族化合物を共重合した分岐ポリカーボネート樹脂、芳香族または脂肪族（脂環族を含む）の二官能性カルボン酸を共重合したポリエステルカーボネート樹脂、二官能性アルコール（脂環族を含む）を共重合した共重合ポリカーボネート樹脂、並びにかかる二官能性カルボン酸および二官能性アルコールを共に共重合したポリエステルカーボネート樹脂を含む。これらのポリカーボネート樹脂も公知である。また、これらのポリカーボネート樹脂を2種以上用いてもよい。

[0052] ポリカーボネート樹脂の分子量は特定されないが、粘度平均分子量が10,000~50,000のものが好ましい。粘度平均分子量が10,000以上であれば、成形品の強度をより向上させることができる。15,000以上がより好ましく、18,000以上がさらに好ましい。一方、粘度平均分子量が50,000以下であれば、成形加工性が向上する。40,000以下がより好ましく、30,000以下がさらに好ましい。ポリカーボネート樹脂を2種以上用いる場合、少なくとも1種の粘度平均分子量が上記範囲にあることが好ましい。この場合、他のポリカーボネート樹脂として、粘度平均分子量が50,000を超える、好ましくは80,000を超えるポリカーボネート樹脂を用いることが好ましい。かかるポリカーボネート樹脂は、エントロピー弾性が高く、ガスアシスト成形等を併用する場合に有利となる他、高いエントロピー弾性に由来する特性（ドリップ防止特性、ドロウダウン特性、およびジェットング改良などの溶融特性を改良する特性）を発揮する。

[0053] ポリカーボネート樹脂の粘度平均分子量（M）は、塩化メチレン100mlにポリカーボネート樹脂0.7gを溶解した溶液から20℃で求めた比粘度（ η_{sp} ）を次式に挿入して求めたものである。

$$\eta_{sp}/c = [\eta] + 0.45 \times [\eta]^2 c \quad (\text{但し } [\eta] \text{ は極限粘度})$$

$$[\eta] = 1.23 \times 10^{-4} M^{0.83}$$

$$c = 0.7$$

[0054] 本発明において、ポリアリールスルフィド樹脂としては、例えば、ポリフェニレンスルフィド（PPS）樹脂、ポリフェニレンスルフィドスルホン樹脂、ポリフェニレンスルフィドケトン樹脂、これらのランダムまたはブロック共重合体などが挙げられる。これらを2種以上用いてもよい。中でもポリフェニレンスルフィド樹脂が特に好ましく使用される。

[0055] ポリアリールスルフィド樹脂は、例えば、特公昭45-3368号公報に記載される比較的分子量の小さな重合体を得る方法、特公昭52-12240号公報や特開昭61-7332号公報に記載される比較的分子量の大きな重合体を得る方法など、任意の方法によって製造することができる。

[0056] 得られたポリアリールスルフィド樹脂を、空気中加熱による架橋／高分子量化、窒素などの不活性ガス雰囲気下あるいは減圧下での熱処理、有機溶媒、熱水、酸水溶液などによる洗浄、酸無水物、アミン、イソシアネート、官能基含有ジスルフィド化合物などの官能基含有化合物による活性化などの種々の処理を施してもよい。

[0057] ポリアリールスルフィド樹脂の溶融粘度は、310℃、剪断速度1000/秒の条件下で80Pa・s以下であることが好ましく、20Pa・s以下であることがより好ましい。下限については特に制限はないが、5Pa・s以上であることが好ましい。溶融粘度の異なる2種以上のポリアリールスルフィド樹脂を併用してもよい。なお、溶融粘度は、キャピログラフ（東洋精機（株）社製）装置を用い、ダイス長10mm、ダイス孔直径0.5～1.0mmの条件により測定することができる。

[0058] ポリアリールスルフィド樹脂として、東レ（株）製“トレリナ”（登録

商標)、D I C (株) 製 “D I C. P P S” (登録商標)、ポリプラスチックス (株) 製 “ジュラファイド” (登録商標) などとして上市されているポリフェニレンスルフィド樹脂を用いることもできる。

[0059] <成形材料>

本発明の繊維強化樹脂成形品は、たとえば以下に記載する成形材料を用いて公知の方法で成形することで製造することができる。本発明の繊維強化樹脂成形材料は、炭素繊維 (A) と熱可塑性樹脂 (B) を含む。炭素繊維 (A) を含むことによって、炭素繊維の繊維長を長く保ちながら、流動性を保つことができ、優れた力学特性を発現する成形品を得ることができる。

[0060] 本発明の繊維強化樹脂成形材料は、炭素繊維 (A) と熱可塑性樹脂 (B) を含む。熱可塑性樹脂 (B) の種類としては、特に制限されず、成形品の熱可塑性樹脂 (B) の説明で述べた熱可塑性樹脂を例示することができる。また、好ましい熱可塑性樹脂の種類も同様であり、その好ましい理由も同様である。

[0061] 本発明の繊維強化樹脂成形品は、長さ 3 mm 以上 10 mm 以下の繊維長を有し、成形材料の長手方向に配向している炭素繊維 (C F - 1) および熱可塑性樹脂 (B) を含む、繊維強化樹脂成形材料 (C - 1) と短繊維状の炭素繊維 (C F - 2) および熱可塑性樹脂 (B) を含む繊維強化樹脂成形材料 (C - 2) を含む成形材料を用いて公知の方法で成形することで製造することができる。いわゆる長繊維ペレットである繊維強化樹脂成形材料 (C - 1) と、短繊維ペレットである繊維強化樹脂成形材料 (C - 2) をドライブレンドして、成形に供することが好ましく、成形材料 (C - 1) に含まれる炭素繊維 (C F - 1) 由来の炭素繊維 (A - 1) と、成形材料 (C - 2) に含まれる炭素繊維 (C F - 2) 由来の炭素繊維 (A - 2) の含有量を容易に調整することができる。ここでドライブレンドとは、熔融混練を伴うブレンドとは異なり、複数の材料を樹脂成分が熔融しない温度で攪拌・混合し、実質的に均一な状態とすることを指し、主に射出成形や押出成形など、ペレット形状の成形材料を用いる場合に好ましく用いられる。

[0062] 成形材料 (C-1) に含まれる炭素繊維 (CF-1) と成形材料 (C-2) に含まれる炭素繊維 (CF-2) は異なる繊維径を有していることが好ましく、炭素繊維 (CF-1) は炭素繊維 (CF-2) より太径であり、炭素繊維 (CF-1) の繊維径 ϕ (CF-1) と炭素繊維 (CF-2) の繊維径 ϕ (CF-2) の比、 ϕ (CF-1) / ϕ (CF-2) が 1.2 以上 2.0 以下であることが好ましい。さらに好ましくは 1.3 以上 1.8 以下であることが好ましい。上記範囲とすることで、炭素繊維 (CF-1) の成形時折損を抑制し、成形品中での繊維長の長短比、短繊維割合、繊維長分布の広がり適切に制御することができるので好ましい。炭素繊維 (CF-1) が折損して、繊維長 0.1 mm 未満の繊維となることを抑制することにより、少量の炭素繊維 (CF-1) 含有量でも高い力学特性を発現できる。

[0063] <成形材料 (C-1)>

長さ 3 mm 以上 10 mm 以下の繊維長を有し、成形材料の長手方向に配向している炭素繊維 (CF-1) および熱可塑性樹脂 (B) を含む繊維強化樹脂成形材料 (C-1) に含まれる炭素繊維 (CF-1) の種類としては、特に制限されず、成形品の炭素繊維 (A) の説明で述べた炭素繊維を例示することができる。炭素繊維 (CF-1) の長さは 3 ~ 10 mm である。好ましくは 5 ~ 9 mm である。炭素繊維 (CF-1) は、単繊維が一方向に配列された状態であることが好ましい。好ましい形態として、一方向性繊維束、二方向性繊維束、多方向性繊維束などが例示できるが、成形材料を製造する過程での生産性の観点から、一方向性繊維束がより好ましく使用できる。炭素繊維 (CF-1) は、炭素繊維の単糸数が多いほど経済性には有利であることから、成形材料を例えばペレット状に形成する場合に 1 ペレット内の単繊維は 10,000 本以上が好ましい。他方、炭素繊維の単糸数が多いほどマトリックス樹脂の含浸性には不利となる傾向があるため、経済性と含浸性の両立を図る観点から、15,000 本以上 100,000 本以下がより好ましく、20,000 本以上 50,000 本以下がとりわけ好ましく使用できる。また、炭素繊維 (CF-1) は、成形材料において、炭素繊維 (CF-

1) が成形材料の長手方向に揃っており、かつ炭素繊維 (CF-1) の長さが成形材料の長さを実質的に同じであることが好ましい。ここで、成形材料の長手方向に揃っているとは、炭素繊維 (CF-1) の長軸の軸線と、成形材料の長軸の軸線とが、同方向を指向している状態を指し、軸線同士の角度のずれは、好ましくは 20° 以下であり、より好ましくは 10° 以下であり、さらに好ましくは 5° 以下である。また、実質的に同じ長さとは、例えばペレット状の成形材料において、ペレット内部の途中で炭素繊維 (CF-1) が切断されていたり、ペレット全長よりも有意に短い炭素繊維 (CF-1) が実質的に含まれたりしないことである。なお、ペレット全長とはペレット中の炭素繊維 (CF-1) 配向方向の長さである。炭素繊維 (CF-1) が成形材料と実質的に同じの長さを有することで、成形品中の炭素繊維長を長くすることができ、優れた力学特性および寸法精度を得ることができる。

[0064] 本発明の繊維強化樹脂成形材料 (C-1) は、炭素繊維 (CF-1) と熱可塑性樹脂 (B) に加えて、炭素繊維 (CF-1) の各繊維間を満たす状態で存在する熱可塑性樹脂 (B) とは異なる化合物 (D) を含むことが好ましい。各繊維間を満たす状態で化合物 D が存在することで、成形時の繊維の分散性を向上させることができ、また、成形時の繊維の折損を抑制することができる。

[0065] 上記化合物 (D) は、熱可塑性樹脂 (B) よりも溶融粘度が低いことが好ましい。化合物 (D) の溶融粘度が熱可塑性樹脂 (B) よりも低いことにより、成形材料を成形する際、化合物 (D) の流動性が高く、炭素繊維 (CF-1) の熱可塑性樹脂 (B) 内への分散効果をより向上させることができ、繊維の折損を抑制することができる。また、化合物 (D) は、熱可塑性樹脂 (B) との親和性が高いものが好ましい。熱可塑性樹脂 (B) と親和性が高い含浸樹脂を選択することにより、成形時に、熱可塑性樹脂 (B) と効率良く相溶するため、炭素繊維の分散性をさらに向上させることができる。

[0066] 上記化合物 (D) としては、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、テルペン樹脂からなる群より選択される樹脂であることが好ましく、単独重合体や他成

分との反応体があげられる。化合物（D）を炭素繊維（CF-1）に予め含浸させることで、成形時、効率良く分散性を向上させることができるので好ましく用いられる。

[0067] 化合物（D）の数平均分子量は、200～5000が好ましい。数平均分子量が200以上であれば、成形品の曲げ強度および引張強度をより向上させることができる。数平均分子量は1000以上がより好ましい。また、数平均分子量が5,000以下であれば、化合物の粘度が適度に低いことから、炭素繊維（A-1）への含浸性に優れ、成形品中における炭素繊維の分散性をより向上させることができる。数平均分子量は3,000以下がより好ましい。なお、かかる化合物の数平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）を用いて測定することができる。

[0068] 成形材料（C-1）100重量部に対し、化合物（D）は0.1～20重量部であることが好ましく、より好ましくは、3～10重量部である。かかる範囲とすることで、成形性と取扱性に優れた成形材料が得られる。

[0069] <成形材料（C-2）>

短繊維状の炭素繊維（CF-2）および熱可塑性樹脂（B）を含む繊維強化樹脂成形材料（C-2）に含まれる炭素繊維（CF-2）の種類としては、特に制限されず、成形品の炭素繊維（A）の説明で述べた炭素繊維を例示することができる。

[0070] 成形材料（C-2）は、熱可塑性樹脂（B）および炭素繊維を熔融混練することで得られる。熔融混練時に使用する炭素繊維原料の形態としては、熔融混練装置に投入できる形態であれば特に制限はなく、予め裁断されているチョップドストランドや破碎繊維、連続長繊維等が挙げられ、生産性の観点からチョップドストランドが好ましく利用できる。チョップドストランドとしては、繊維強化樹脂成形物を粉碎し、マトリックス樹脂を熱分解して得られるリサイクルチョップドストランドであってもよい。リサイクルチョップドストランドを得る方法としては、公知の製法により得ることができる。

[0071] 成形材料（C-2）に含まれる炭素繊維（CF-2）の繊維長は、0.1

～0.4 mmが好ましく、より好ましくは0.2～0.4 mmである。炭素繊維（CF-2）の繊維長が0.1 mm未満の場合、成形品としたときの力学特性が不十分となる場合がある。一方で、炭素繊維（CF-2）の繊維長が0.4 mm以上である場合、成形時の流動性が不十分となる場合がある。

[0072] ここで本発明における成形材料（C-2）に含まれる「炭素繊維（CF-2）の繊維長」とは、下記式4から算出される数平均繊維長を指す。

$$\text{炭素繊維（CF-2）の繊維長} = \Sigma (L_i) / 1000 \cdots \text{(式4)}$$

L_i : 各繊維の長さ (mm)。

[0073] 上記炭素繊維（CF-2）の繊維長の測定は、前記成形品に含まれる炭素繊維の繊維長を測定する方法で述べた方法により行うことができる。無作為に選んだ1000本の炭素繊維（CF-2）の繊維長を計測して、上記式4から繊維長を算出する。

[0074] 本発明の繊維強化樹脂成形材料においても、前述の成形品同様、リサイクル炭素繊維を含むことができ、上記炭素繊維（CF-2）がリサイクル炭素繊維を含むことが好ましい。

実施例

[0075] 以下に実施例を示し、本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれら実施例の記載に限定されるものではない。まず、本実施例で用いる各特性の評価方法について説明する。

[0076] (1) 成形品中における炭素繊維（A）繊維長の長短比

成形品から切り出した試験片を、各実施例、比較例で用いた熱可塑性樹脂（B）が溶解する溶剤中に投入し、適宜加熱処理を加え、炭素繊維（A）が均一に分散した溶液を得た。その後、アドバンテック社製の定量濾紙（No. 5C）を用いて、溶液を濾過して濾紙上に分散した炭素繊維（A）を光学顕微鏡（50～200倍）にて観察した。無作為に選んだ1000本の炭素繊維（A）の繊維長を計測して、下記式1から長さ0.6 mm以上の繊維と長さ0.1 mm以上の繊維の比であらわされる繊維長の長短比を算出した。

$$\text{繊維長の長短比} = \Sigma (L_{0.6}) / \Sigma (L_{0.1}) \cdots \text{(式1)}$$

$L_{0.6}$: 0.6 mm以上の繊維長を有する繊維の長さ (mm)

$L_{0.1}$: 0.1 mm以下の繊維長を有する繊維の長さ (mm)。

[0077] (2) 成形品中における炭素繊維 (A) の短繊維割合

上記 (1) と同様の方法で炭素繊維 (A) を光学顕微鏡 (50~200倍) にて観察した。無作為に選んだ1000本の炭素繊維 (A) の繊維長を計測して、下記式2から長さ0.1 mm以下の繊維の割合であらわされる短繊維割合を算出した。

$$\text{短繊維割合} = \Sigma (L_{0.1}) / \Sigma (L_i) \times 100 (\%) \quad \dots (式2)$$

$L_{0.1}$: 0.1 mm以下の繊維長を有する繊維の長さ (mm)

L_i : 各繊維の繊維の長さ (mm)。

[0078] (3) 成形品中における炭素繊維 (A) の繊維長分布の広がり

上記 (1) と同様の方法で炭素繊維 (A) を光学顕微鏡 (50~200倍) にて観察した。無作為に選んだ1000本の炭素繊維 (A) の繊維長を計測して、下記式3から繊維長分布の広がりを算出した。

$$\text{繊維長分布の広がり} = (\Sigma (L_i^2) / \Sigma (L_i)) / (\Sigma L_i / 1000) \quad \dots (式3)$$

L_i : 各繊維の繊維の長さ (mm)。

[0079] (4) 成形品中における炭素繊維 (A-1)、炭素繊維 (A-2) の繊維長0.6 mm以上を有する繊維の本数比率

上記 (1) と同様の方法で炭素繊維 (A) を光学顕微鏡 (50~200倍) にて観察した。無作為に選んだ400本の炭素繊維 (A) の繊維長を計測して、0.6 mm以上の繊維長を有する繊維を抜き出した。抜き出した繊維をそれぞれレーザーラマン分光光度計を用いて測定し、得られたラマンスペクトルのラマンシフト1360 cm^{-1} 付近に現れる炭素繊維表面のラマン散乱強度の極大値、ラマンシフト1480 cm^{-1} 付近に現れる炭素繊維表面のラマン散乱強度の極小値、ラマンシフト1580 cm^{-1} 付近に現れる炭素繊維表面のラマン散乱強度の極大値の比炭素繊維 (A-1) および炭素繊維 (A-2) の同定を行うことで炭素繊維 (A-1)、炭素繊維 (A-2) の0

． 6 mm以上の繊維長を有する繊維の本数比率を算出した。

[0080] (5) 成形品のシャルピー衝撃強度測定

各実施例および比較例により得られたISO型ダンベル試験片の平行部を切り出し、株式会社東京試験機製C1-4-01型試験機を用い、ISO179に準拠してVノッチ付きシャルピー衝撃試験を実施し、衝撃強度 (kJ/cm^2) を算出した。算出値を以下の基準で判定を行い、A、Bを合格とした。

A : $11 \text{ kJ}/\text{m}^2$ 以上

B : $9 \text{ kJ}/\text{m}^2$ 以上 $11 \text{ kJ}/\text{m}^2$ 未満

C : $9 \text{ kJ}/\text{m}^2$ 未満。

[0081] (6) 成形品の曲げ強度および曲げ弾性率の測定

成形材料を射出成形し得られたISO型ダンベル試験片について、ISO178(1993)に従い曲げ特性を測定した。3点曲げ試験治具(圧子半径5mm)を用いて支点距離を64mmに設定し、試験速度2mm/分の試験条件にて曲げ弾性率を測定した。試験機として、“インストロン(登録商標)” 万能試験機5566型(インストロン社製)を用いた。以下の基準で判定を行い、A、Bを合格とした。

曲げ強度

A : 410MPa以上

B : 380MPa以上410MPa未満

C : 330MPa以上380MPa未満

D : 260MPa以上330MPa未満

E : 260MPa未満。

曲げ弾性率

A : 22GPa以上

B : 21GPa以上22GPa未満

C : 17MPa以上21GPa未満

D : 17MPa未満。

[0082] (7) 成形品の引張強度の測定

成形材料を射出成形し得られたISO型ダンベル試験片について、ISO 527 (1993) に従い曲げ特性を測定した。引張試験治具を用いてつかみ具間距離を115mmに設定し、試験速度5mm/分の試験条件にて曲げ弾性率を測定した。試験機として、“インストロン (登録商標)” 万能試験機5566型 (インストロン社製) を用いた。以下の基準で判定を行い、A、Bを合格とした。

A : 260MPa以上

B : 240MPa以上260MPa未満

C : 200MPa以上240MPa未満

D : 160MPa以上200MPa未満

E : 160MPa未満

[0083] (8) 成形材料 (C-2) 中の繊維長

成形材料 (C-2) から抜き出した試験片を、各実施例、比較例で用いた熱可塑性樹脂 (B) が溶解する溶剤中に投入し、適宜加熱処理を加え、炭素繊維 (A) が均一に分散した溶液を得た。その後、アドバンテック社製の定量濾紙 (No. 5C) を用いて、溶液を濾過して濾紙上に分散した炭素繊維 (CF-2) を光学顕微鏡 (50~200倍) にて観察した。無作為に選んだ1000本の炭素繊維 (A) の繊維長を計測して、下記式4から算出した。

炭素繊維 (CF-2) の繊維長 = $\sum (L_i) / 1000 \dots$ (式4)

L_i : 各繊維の長さ (mm)。

[0084] (9) 成形材料の流動性

成形材料を射出成形機にて、幅10mm、長さ125mm、2mmtの金型を用い、射出速度30mm/s、背圧力10MPa、保圧力40MPa、シリンダ温度260℃、金型温度80℃とした条件で射出成形することで成形品を作製した際のシリンダピーク圧力を流動性の指標とした。シリンダ圧力は20ショットの平均値とし、その平均値を各実施例および比較例の評価

に使用した。以下の基準で判定を行い、A、Bを合格とした。

A : 90 MPa 未満

B : 90 MPa 以上 110 MPa 未満

C : 110 MPa 以上。

[0085] 参考例 1

炭素繊維 (CF-1) の作製

炭素繊維“トレカ”(登録商標)東レ(株)製 T700S-24000 (総単系数 24,000 本、単繊維径 7 μ m) に対して、多官能性化合物としてグリセロールポリグリシジルエーテルを 2 重量%になるように水に溶解させたサイジング剤母液を調製し、浸漬法により炭素繊維にサイジング剤を付与し、230°Cで乾燥を行った。こうして得られた炭素繊維のサイジング剤付着量は 1.0 重量%であった。

[0086] 参考例 2

炭素繊維 (CF-2) - (1) の作製

炭素繊維“トレカ”(登録商標)東レ(株)製 T700S-24000 (総単系数 24,000 本、単繊維径 7 μ m) に対して、多官能性化合物としてグリセロールポリグリシジルエーテルを 2 重量%になるように水に溶解させたサイジング剤母液を調製し、浸漬法により炭素繊維にサイジング剤を付与し、230°Cで乾燥を行った。得られた炭素繊維のサイジング剤付着量は 1.0 重量%であった。こうして得られた炭素繊維をカートリッジカッターで切断し、チョップド長 6 mm の炭素繊維チョップド糸を得た。

[0087] 参考例 3

炭素繊維 (CF-2) - (2) の作製

炭素繊維“トレカ”(登録商標)東レ(株)製 プリプレグ P3252S-12 (単繊維径 7 μ m) を、プレス機で 0.6 MPa の圧力をかけ、160°Cで 2 時間加温することで作製された炭素繊維強化プラスチック (CFRP) 成形品を廃 CFRP として、破碎および分級を施した廃 CFRP 片を得た。この廃 CFRP 片を金属バット状に均一に広げ、内容積 59 リットルの電

気マッフル炉に入れて、炉内に窒素ガスを導入しながら、処理温度を500℃に保って、処理時間3.5時間で熱処理を行った。その後同様に、炉内に空気を導入しながら、処理温度を所定温度（300℃）に保って、処理時間2時間で熱処理を行うことで、リサイクル炭素繊維チョップド糸を得た。

[0088] 参考例4

炭素繊維（CF-2）-（3）の作製

炭素繊維“トレカ”（登録商標）東レ（株）製プリプレグP2252S-12（単繊維径5μm）を、プレス機で0.6MPaの圧力をかけ、160℃で2時間加温することで作製された炭素繊維強化プラスチック（CFRP）成形品を廃CFRPとして、破碎および分級を施した廃CFRP片を得た。この廃CFRP片を金属バット状に均一に広げ、内容積59リットルの電気マッフル炉に入れて、炉内に窒素ガスを導入しながら、処理温度を500℃に保って、処理時間3.5時間で熱処理を行った。その後同様に、炉内に空気を導入しながら、処理温度を所定温度（300℃）に保って、処理時間2時間で熱処理を行うことで、リサイクル炭素繊維チョップド糸を得た。

[0089] 参考例5

炭素繊維（CF-2）-（4）の作製

炭素繊維“トレカ”（登録商標）東レ（株）製プリプレグP2252S-12（単繊維径5μm）を、プレス機で0.6MPaの圧力をかけ、160℃で2時間加温することで作製された炭素繊維強化プラスチック（CFRP）成形品を廃CFRPとして、破碎および分級を施した廃CFRP片を得た。この廃CFRP片を金属バット状に均一に広げ、内容積59リットルの電気マッフル炉に入れて、炉内に窒素ガスを導入しながら、処理温度を400℃に保って、処理時間1時間で熱処理を行った。その後同様に、炉内に空気を導入しながら、処理温度を所定温度（300℃）に保って、処理時間1時間で熱処理を行うことで、リサイクル炭素繊維チョップド糸を得た。得られたリサイクル炭素繊維チョップド糸は一部繊維がCFRPの残存樹脂により結着されて束状となった。

[0090] <熱可塑性樹脂 (B)>

(B-1) ポリアミド6樹脂 (ナイロン6樹脂「東レ (株) 製 “アミラン” (登録商標) CM1001」)

(B-2) ポリカーボネート樹脂 (「三菱エンジニアリングプラスチックス (株) 製 “ユーピロン” (登録商標) S-3000」)

(B-3) ポリプロピレン樹脂 (「プライムポリマー (株) 製 “プライムポリプロ” (登録商標) J137G」) / マレイン酸変性ポリプロピレン樹脂 (「三井化学 (株) 製 “アドマー” (登録商標) QE840」) を、重量比 90 / 10 でブレンド) を用いた。

[0091] <化合物 (D)>

(D-1) テルペンフェノール樹脂 (「ヤスハラケミカル (株) 製、YSポリスターN125」)

(D-2) ビスフェノールA型エポキシ樹脂 (「三菱ケミカル (株) 製 “jER” (登録商標) 1004AF」)

(D-3) 水添テルペン樹脂 (ヤスハラケミカル (株) 製、 “クリアロン” (登録商標) P125) を用いた。

[0092] (実施例1)

(株) 日本製鋼所製TEX-30 α 型2軸押出機 (スクリュー直径30mm、L/D=32) の先端に電線樹脂被覆法用のコーティングダイを設置した長繊維強化樹脂ペレット製造装置を使用し、押出機シリンダ温度を230℃に設定し、上記に示した熱可塑性樹脂 (B-1) をメインホッパーから供給し、スクリュー回転数200rpmで溶融混練した。250℃にて加熱溶融させた化合物 (D-1) を、炭素繊維 (CF-1) と熱可塑性樹脂 (B-1) の合計100重量部に対して、6重量部となるように吐出量を調整した。その後、化合物 (D-1) を吐出し、炭素繊維 (CF-1) からなる繊維束に含浸付与した後、溶融した熱可塑性樹脂 (B-1) を吐出するダイス孔 (直径3mm) に化合物 (D-1) が付与された炭素繊維 (CF-1) の繊維束を供給して、炭素繊維 (CF-1) の周囲を熱可塑性樹脂 (B) が被覆

するように連続的に配置した。この時の繊維束内部断面は、炭素繊維（CF-1）の少なくとも一部が、熱可塑性樹脂（B-1）に接していた。得られたストランドを冷却後、カッターでペレット長7mmに切断し、繊維強化樹脂成形材料（C-1）-（1）とした。このとき、（CF-1）、（B-1）の合計100重量部に対し、炭素繊維（CF-1）が30重量部となるように、引取速度を調整した。得られた繊維強化樹脂成形材料（C-1）-（1）の炭素繊維（CF-1）の長さ、ペレット長さは実質的に同じであり、かつ炭素繊維束が成形材料の軸心方向に平行に並列されていた。

[0093] 次に、別の2軸押出機（（株）日本製鋼所製TEX30α）の主ホッパーに熱可塑性樹脂（B-1）を供給後、炭素繊維（CF-2）-（1）をサイドフィーダーから熔融樹脂中に供給し、スクリー回転数を200rpmに設定した。ダイから吐出されたストランドを水中にて冷却、ストランドカッターにより長さ3.0mm長にカットしてペレット化を実施し、繊維強化樹脂成形材料（C-2）-（1）を得た。この時、（CF-2）-（1）、（B-1）の合計100重量部に対し、炭素繊維（CF-2）-（1）が30重量部となるように、炭素繊維（CF-2）-（1）の投入量を調整した。

[0094] こうして得られた繊維強化樹脂成形材料（C-1）-（1）および（C-2）-（1）を表1に示した割合でドライブレンドすることで中間原料となる繊維強化樹脂成形材料（C）を得た。こうして得られた繊維強化樹脂成形材料（C）を、射出成形機（（株）日本製鋼所製J110AD）を用いて、射出速度：30mm/s、背圧力：10MPa、保圧力：40MPa、保圧時間：10秒、シリンダ温度：260℃、金型温度：80℃の条件で射出成形することにより、成形品としてのISO型ダンベル試験片の作製、幅10mm×125mm×2mm厚の成形時におけるシリンダピーク圧力の測定を行った。表1の炭素繊維（CF-1）、炭素繊維（CF-2）、熱可塑性樹脂（B-1）、及び化合物（D）の組成比は、ドライブレンドの割合で調整した。ここでシリンダ温度とは、射出成形機の成形材料を加熱熔融する部分の温度を示し、金型温度とは、所定の形状にするための樹脂を注入する金型

の温度を示す。得られた試験片（成形品）を、温度23℃、50%RHに調整された恒温恒湿室に24時間静置後に特性評価に供した。前述の方法により評価した評価結果をまとめて表1に示した。

[0095]（実施例2～11、比較例1～6）

表1～3に記載の各成分の比率とした以外は、上記実施例1と同様にして材料および成形品を得た。

[0096]（実施例12）

（株）日本製鋼所製TEX-30 α 型2軸押出機（スクリー直径30mm、L/D=32）の先端に電線樹脂被覆法用のコーティングダイを設置した長繊維強化樹脂ペレット製造装置を使用し、押出機シリンダ温度を300℃に設定し、上記に示した熱可塑性樹脂（B-2）をメインホッパーから供給し、スクリー回転数200rpmで溶融混練した。250℃にて加熱溶融させた化合物（D-2）を、炭素繊維（CF-1）と熱可塑性樹脂（B-2）の合計100重量部に対して、6重量部となるように吐出量を調整した。その後、化合物（D-2）を吐出し、炭素繊維（CF-1）からなる繊維束に含浸付与した後、溶融した熱可塑性樹脂（B-2）を吐出するダイス孔（直径3mm）に化合物（D-2）が付与された炭素繊維（CF-1）の繊維束を供給して、炭素繊維（CF-1）の周囲を熱可塑性樹脂（B-2）が被覆するように連続的に配置した。この時の繊維束内部断面は、炭素繊維（CF-1）の少なくとも一部が、熱可塑性樹脂（B-2）に接していた。得られたストランドを冷却後、カッターでペレット長7mmに切断し、繊維強化樹脂成形材料（C-1）-（2）とした。このとき、（CF-1）、（B-2）の合計100重量部に対し、炭素繊維（CF-1）が30重量部となるように、引取速度を調整した。得られた繊維強化樹脂成形材料（C-1）-（2）の炭素繊維（CF-1）の長さ、ペレット長さは実質的に同じであり、かつ炭素繊維束が成形材料の軸心方向に平行に並列されていた。

[0097] 次に、別の2軸押出機（（株）日本製鋼所製TEX30 α ）の主ホッパーに熱可塑性樹脂（B-2）を供給後、炭素繊維（CF-2）-（3）をサイ

ドフィーダーから熔融樹脂中に供給し、スクリー回転数を200rpmに設定した。ダイから吐出されたストランドを水中にて冷却、ストランドカッターにより長さ3.0mm長にカットしてペレット化を実施し、繊維強化樹脂成形材料(C-2)-(2)を得た。この時、(CF-2)-(3)、(B-2)の合計100重量部に対し、炭素繊維(CF-2)-(3)が30重量部となるように、炭素繊維(CF-2)-(3)の投入量を調整した。

[0098] こうして得られた繊維強化樹脂成形材料(C-1)および(C-2)を表4に示した割合でドライブレンドすることで中間原料となる繊維強化樹脂成形材料(C)を得た。こうして得られた繊維強化樹脂成形材料(C)を、射出成形機((株)日本製鋼所製J110AD)を用いて、射出速度:30mm/s、背圧力:10MPa、保圧力:40MPa、保圧時間:10秒、シリンダ温度:300℃、金型温度:80℃の条件で射出成形することにより、成形品としてのISO型ダンベル試験片の作製、幅10mm×125mm×2mm厚の成形時におけるシリンダピーク圧力の測定を行った。表4の炭素繊維(CF-1)、炭素繊維(CF-2)、熱可塑性樹脂(B)、及び化合物(D)の組成比は、ドライブレンドの割合で調整した。ここでシリンダ温度とは、射出成形機の成形材料を加熱熔融する部分の温度を示し、金型温度とは、所定の形状にするための樹脂を注入する金型の温度を示す。得られた試験片(成形品)を、温度23℃、50%RHに調整された恒温恒湿室に24時間静置後に特性評価に供した。前述の方法により評価した評価結果をまとめて表4に示した。

[0099] (比較例7)

表4に記載の各成分の比率とした以外は、上記実施例12と同様にして材料および成形品を得た。

[0100] (実施例13)

(株)日本製鋼所製TEX-30 α 型2軸押出機(スクリー直径30mm、L/D=32)の先端に電線樹脂被覆法用のコーティングダイを設置した長繊維強化樹脂ペレット製造装置を使用し、押出機シリンダ温度を220

℃に設定し、上記に示した熱可塑性樹脂（B-3）をメインホッパーから供給し、スクリー回転数200rpmで溶融混練した。200℃にて加熱溶融させた化合物（D-3）を、炭素繊維（CF-1）と熱可塑性樹脂（B-3）の合計100重量部に対して、6重量部となるように吐出量を調整した。その後、化合物（D-3）を吐出し、炭素繊維（CF-1）からなる繊維束に含浸付与した後、溶融した熱可塑性樹脂（B-3）を吐出するダイス孔（直径3mm）に化合物（D-3）が付与された炭素繊維（CF-1）の繊維束を供給して、炭素繊維（CF-1）の周囲を熱可塑性樹脂（B-3）が被覆するように連続的に配置した。この時の繊維束内部断面は、炭素繊維（CF-1）の少なくとも一部が、熱可塑性樹脂（B-3）に接していた。得られたストランドを冷却後、カッターでペレット長7mmに切断し、繊維強化樹脂成形材料（C-1）-（3）とした。このとき、（CF-1）、（B-3）の合計100重量部に対し、炭素繊維（CF-1）が30重量部となるように、引取速度を調整した。得られた繊維強化樹脂成形材料（C-1）-（3）の炭素繊維（CF-1）の長さ、ペレット長さは実質的に同じであり、かつ炭素繊維束が成形材料の軸心方向に平行に並列されていた。

[0101] 次に、別の2軸押出機（（株）日本製鋼所製TEX30α）の主ホッパーに熱可塑性樹脂（B-3）を供給後、炭素繊維（CF-2）-（3）をサイドフィーダーから溶融樹脂中に供給し、スクリー回転数を200rpmに設定した。ダイから吐出されたストランドを水中にて冷却、ストランドカッターにより長さ3.0mm長にカットしてペレット化を実施し、繊維強化樹脂成形材料（C-2）-（3）を得た。この時、（CF-2）-（3）、（B-3）の合計100重量部に対し、炭素繊維（CF-2）-（3）が30重量部となるように、炭素繊維（CF-2）-（3）の投入量を調整した。

[0102] こうして得られた繊維強化樹脂成形材料（C-1）および（C-2）を表4に示した割合でドライブレンドすることで中間原料となる繊維強化樹脂成形材料（C）を得た。こうして得られた繊維強化樹脂成形材料（C）を、射出成形機（（株）日本製鋼所製J110AD）を用いて、射出速度：30m

m/s、背圧力：10MPa、保圧力：40MPa、保圧時間：10秒、シリンダ温度：230℃、金型温度：60℃の条件で射出成形することにより、成形品としてのISO型ダンベル試験片の作製、幅10mm×125mm×2mm厚の成形時におけるシリンダピーク圧力の測定を行った。表1の炭素繊維（A-1）、炭素繊維（A-2）、熱可塑性樹脂（B）、及び化合物（D）の組成比は、ドライブレンドの割合で調整した。ここでシリンダ温度とは、射出成形機の成形材料を加熱溶融する部分の温度を示し、金型温度とは、所定の形状にするための樹脂を注入する金型の温度を示す。得られた試験片（成形品）を、温度23℃、50%RHに調整された恒温恒湿室に24時間静置後に特性評価に供した。前述の方法により評価した評価結果をまとめて表4に示した。

[0103]（比較例8）

表4に記載の各成分の比率とした以外は、上記実施例13と同様にして材料および成形品を得た。

[0104]

[表1]

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5
繊維強化樹脂 成形材料 (C-1)	種類	--	(CF-1)	(CF-1)	(CF-1)	(CF-1)
	重量部	30	30	30	30	30
	繊維径	μm	7	7	7	7
	繊維長	mm	7	7	7	7
	形態	束	束	束	束	束
	種類	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)
	重量部	70	70	70	70	70
	種類	(D-1)	(D-1)	(D-1)	(D-1)	(D-1)
	重量部	6	6	6	6	6
	種類	(CF-2)	(CF-2)	(CF-2)	(CF-2)	(CF-2)
繊維強化樹脂 成形材料 (C-2)	重量部	(1)	(1)	(2)	(3)	(3)
	繊維径	μm	30	30	30	30
	繊維長	mm	7	7	7	5
	形態	単糸	単糸	単糸	単糸	単糸
	種類	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)
	重量部	70	70	70	70	70
	ブレンド割合	%	90	70	70	90
	ブレンド割合	%	10	30	30	10
	リサイクル割合	%	0	0	30	10
	重量部	30	30	30	30	30
繊維強化樹脂 成形材料 (C)	繊維径の比	1	1	1	1.4	1.4
	重量部	70	70	70	70	70
	流動性	B	A	B	B	B
	炭素繊維 (A) の繊維長の長短比	2.9	7.4	6.1	10.6	6.8
	炭素繊維 (A) の短繊維割合	%	6	3	4	5
	炭素繊維 (A) の繊維長分布の広がり	1.8	1.7	1.6	2.2	2.4
	炭素繊維 (A) の0.6mm以上の本数比率	A-1,A-2の 同定不可	A-1,A-2の 同定不可	100:0	100:0	100:0
	炭素繊維 (A-1) : (A-2)	A-1,A-2の 同定不可	A-1,A-2の 同定不可	1	1.4	1.4
	繊維径の比	(A-1) / φ (A-2)	(A-1) / φ (A-2)	B	A	A
	シャルピー衝撃強度	A	B	B	A	A
曲げ強度	A	A	A	A	A	
曲げ弾性率	A	A	A	A	A	
引張強度	A	B	B	A	A	

[0105]

[表2]

繊維強化樹脂 成形材料 (C-1)	炭素繊維 (CF-1)	種類	実施例										
			6	7	8	9	10	11					
		重量部	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30
		繊維径	7	7	7	7	7	7	7	7	7	7	7
		繊維長	7	7	7	7	7	7	7	7	7	7	7
		形態	束	束	束	束	束	束	束	束	束	束	束
		種類	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)
		重量部	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70
		種類	(D-1)	(D-1)	(D-1)	(D-1)	(D-1)	(D-1)	(D-1)	(D-1)	(D-1)	(D-1)	(D-1)
		重量部	6	6	6	6	6	6	6	6	6	6	6
		種類	(CF-2)	(CF-2)	(CF-2)	(CF-2)	(CF-2)	(CF-2)	(CF-2)	(CF-2)	(CF-2)	(CF-2)	(CF-2)
		重量部	-(3)	-(3)	-(3)	-(3)	-(3)	-(3)	-(3)	-(3)	-(3)	-(3)	-(3)
		重量部	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30
		繊維径	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
		繊維長	0.20	0.20	0.20	0.21	0.21	0.21	0.21	0.21	0.21	0.21	0.21
		形態	単糸	単糸	単糸	単糸	単糸	単糸	単糸	単糸	単糸	単糸	単糸
		種類	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)
		重量部	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70
		ブレンド割合	50	30	30	90	70	70	50	50	30	30	30
		アレンド割合	50	70	70	10	10	30	50	50	70	70	70
		リサイクル割合	50	70	70	10	10	30	50	50	70	70	70
		重量部	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30
		繊維径の比	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4
		重量部	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70
		流動性	B	A	A	B	B	B	B	B	B	B	A
		炭素繊維 (A) の繊維長の長短比	6.4	4.5	10.9	10.9	10.6	4.1	4.1	6.1	6.1	6.1	6.1
		炭素繊維 (A) の短繊維割合	6	4	3	3	3	7	7	3	3	3	3
		炭素繊維 (A) の繊維長分布の広がり	2.3	2.2	2.3	2.3	2.3	1.7	1.7	1.4	1.4	1.4	1.4
		炭素繊維 (A) の0.6mm以上の本数比率	100:0	100:0	100:0	100:0	100:0	100:0	100:0	100:0	100:0	100:0	100:0
		炭素繊維 (A-1) : (A-2)	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4
		繊維径の比	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	B
		シャルピー衝撃強度	A	A	A	A	A	B	B	B	B	B	B
		曲げ強度	A	A	A	A	A	B	B	B	B	B	B
		曲げ弾性率	A	A	A	A	A	B	B	B	B	B	B
		引張強度	A	A	A	A	A	B	B	B	B	B	B

[0106]

[表3]

				比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6
繊維強化樹脂 成形材料 (C-1)	炭素繊維 (CF-1)	種類	—	(CF-1)	(CF-1)	(CF-1)	—	—	(CF-1)
		重量部	—	30	30	30	—	—	30
		繊維径	μm	7	7	7	—	—	7
		繊維長	mm	7	7	7	—	—	7
	熱可塑性樹脂 (B)	種類	—	(B-1)	(B-1)	(B-1)	—	—	(B-1)
		重量部	—	70	70	70	—	—	70
	化合物 (D)	種類	—	(D-1)	(D-1)	(D-1)	—	—	(D-1)
		重量部	—	6	6	6	—	—	6
繊維強化樹脂 成形材料 (C-2)	炭素繊維 (CF-2)	種類	—	(CF-2) - (1)	(CF-2) - (3)	(CF-2) - (4)	(CF-2) - (3)	(CF-2) - (1)	—
		重量部	—	30	30	30	30	30	—
		繊維径	μm	7	5	5	5	7	—
		繊維長	mm	0.22	0.20	0.21	0.20	0.22	—
	熱可塑性樹脂 (B)	種類	—	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)	(B-1)	—
		重量部	—	70	70	70	70	70	—
繊維強化樹脂 成形材料 (C)	成形材料 (C-1)	ブレンド割合	%	50	10	10	—	—	100
	成形材料 (C-2)	ブレンド割合	%	50	90	90	100	100	—
	炭素繊維 (A)	リサイクル 割合	%	0	90	90	100	0	0
		重量部	—	30	30	30	30	30	30
		繊維径の比	—	1	1.4	1.4	—	—	—
	熱可塑性樹脂 (B)	重量部	—	70	70	70	70	70	70
流動性	—	—	A	A	A	A	A	C	
成形品	炭素繊維 (A) の 繊維長の長短比		—	0.5	1.9	1.9	0.0	0.0	26.3
	炭素繊維 (A) の 短繊維割合		%	21	4	4	18	16	0
	炭素繊維 (A) の 繊維長分布の広がり		—	2.2	1.5	1.4	1.3	1.3	2.5
	炭素繊維 (A) の 0.6mm以上の本数比率 (A-1) : (A-2)		—	A-1,A-2の 同定不可	100:0	100:0	A-1,A-2の 同定不可	A-1,A-2の 同定不可	A-1,A-2の 同定不可
	繊維径の比 $\phi(A-1) / \phi(A-2)$		—	A-1,A-2の 同定不可	1.4	1.4	A-1,A-2の 同定不可	A-1,A-2の 同定不可	A-1,A-2の 同定不可
	シャルピー衝撃強度		—	B	C	C	C	C	A
	曲げ強度		—	C	D	D	D	D	A
	曲げ弾性率		—	B	C	C	B	B	A
引張強度		—	B	C	C	C	C	A	

[0107]

[表4]

			実施例 1 2	比較例 7	実施例 1 3	比較例 8		
繊維強化樹脂 成形材料 (C-1)	炭素繊維 (CF-1)	種類	-	(CF-1)	-	(CF-1)	-	
		重量部	-	30	-	30	-	
		繊維径	μm	7	-	7	-	
		繊維長	mm	7	-	7	-	
	熱可塑性樹脂 (B)	種類	-	(B-2)	-	(B-3)	-	
		重量部	-	70	-	70	-	
		化合物 (D)	種類	-	(D-2)	-	(D-3)	-
			重量部	-	6	-	6	-
繊維強化樹脂 成形材料 (C-2)	炭素繊維 (CF-2)	種類	-	(CF-2) - (3)	(CF-2) - (3)	(CF-2) - (3)	(CF-2) - (3)	
		重量部	-	30	30	30	30	
		繊維径	μm	5	5	5	5	
		繊維長	mm	0.2	0.2	0.2	0.2	
	熱可塑性樹脂 (B)	種類	-	(B-2)	(B-2)	(B-3)	(B-2)	
		重量部	-	70	70	70	70	
繊維強化樹脂 成形材料 (C)	成形材料 (C-1)	ブレンド割合	%	70	-	70	-	
	成形材料 (C-2)	ブレンド割合	%	30	100	30	100	
	炭素繊維 (A)	リサイクル 割合	%	30	100	30	100	
		重量部	-	30	30	30	30	
		繊維径の比	-	1.4	-	1.4	-	
	熱可塑性樹脂 (B)	重量部	-	70	70	70	70	
流動性	-	-	B	A	A	A		
成形品	炭素繊維 (A) の 繊維長の長短比		-	4.7	0.0	8	0.0	
	炭素繊維 (A) の 短繊維割合		%	5	19	2	17	
	炭素繊維 (A) の 繊維長分布の広がり		-	2.2	1.3	2.8	1.3	
	炭素繊維 (A) の 0.6mm以上の本数比率 (A-1) : (A-2)		-	100:0	A-1,A-2の 同定不可	100:0	A-1,A-2の 同定不可	
	繊維径の比 $\phi(A-1) / \phi(A-2)$		-	1.4	A-1,A-2の 同定不可	1.4	A-1,A-2の 同定不可	
	シャルピー衝撃強度		-	B	C	A	C	
	曲げ強度		-	D	E	D	E	
	曲げ弾性率		-	C	D	C	D	
	引張強度		-	D	E	D	E	

[0108] 実施例 1 ~ 2 は力学特性および流動性に優れる結果であったが、実施例 3 は、リサイクル炭素繊維チョップドを用いたことから実施例 2 と比較した場合の力学特性で若干劣るものの優れた力学特性を示した。実施例 4 ~ 7 は、

繊維種を変えた場合でも同様に力学特性および流動性に優れ、実施例 1～3 と比較してリサイクル炭素繊維チョップド糸が増えた場合でも同様の力学特性を示した。実施例 8～11 は、実施例 4～7 と比較すると若干劣るものの優れた力学特性と流動性を示した。実施例 12 および実施例 13 は、樹脂種を変えた場合でも、実施例 5 と比較すると若干劣るものの優れた力学特性と流動性を示した。

[0109] 一方で、比較例 1 は、成形品中の炭素繊維 (A) の長短比が小さく、曲げ強度で劣る結果であった。成形材料 (C) 中の炭素繊維 (CF-1) と炭素繊維 (CF-2) の繊維径の比が小さいため、成形時の繊維折損により、短繊維割合が増加したためである。比較例 2 および比較例 3 も同様に、成形品中の炭素繊維 (A) の長短比が小さく、力学特性に劣る結果であった。炭素繊維 (A) に占める炭素繊維 (A-2) の割合が多く、長い繊維長を有する炭素繊維 (A-1) の割合が少なくなったためである。比較例 4 および比較例 5 は、成形材料 (C-1) を含まないため、成形品中の炭素繊維が短く、力学特性に劣る結果であった。比較例 6 は、成形材料 (C-2) を含まないため、成形品中の短い炭素繊維が少なく、流動性に劣る結果であった。比較例 7 および比較例 8 は、成形材料 (C-1) を含まないため、成形品中の炭素繊維が短く、力学特性に劣る結果であった。

請求の範囲

[請求項1] 炭素繊維（A）および熱可塑性樹脂（B）を含む繊維強化樹脂成形品であって、炭素繊維（A）と熱可塑性樹脂（B）の合計100重量部に対して、炭素繊維（A）を5～40重量部含み、炭素繊維（A）は、成形品中から無作為に選んだ1000本の炭素繊維（A）が、以下の式1に示す繊維長の長短比において2以上20以下であることを特徴とする繊維強化樹脂成形品。

$$\text{繊維長の長短比} = \Sigma (L_{0.6}) / \Sigma (L_{0.1}) \cdots \text{(式1)}$$

$L_{0.6}$: 0.6 mm以上の繊維長を有する繊維の長さ (mm)

$L_{0.1}$: 0.1 mm以下の繊維長を有する繊維の長さ (mm)

[請求項2] 前記炭素繊維（A）は、成形品中から無作為に選んだ1000本の炭素繊維（A）が、以下の式2に示す短繊維割合において15%以下であることを特徴とする請求項1に記載の繊維強化樹脂成形品。

$$\text{短繊維割合} = \Sigma (L_{0.1}) / \Sigma (L_i) \times 100 (\%)$$

\cdots (式2)

$L_{0.1}$: 0.1 mm以下の繊維長を有する繊維の長さ (mm)

L_i : 各繊維の繊維の長さ (mm)

[請求項3] 前記炭素繊維（A）は、成形品中から無作為に選んだ1000本の炭素繊維（A）が以下の式3に示す繊維長分布の広がりにおいて1.4以上であることを特徴とする請求項1に記載の繊維強化樹脂成形品。

$$\text{繊維長分布の広がり} = (\Sigma (L_i^2) / \Sigma (L_i)) / (\Sigma L_i / 1000) \cdots \text{(式3)}$$

L_i : 各繊維の繊維の長さ (mm)

[請求項4] 前記炭素繊維（A）は、リサイクル炭素繊維を含むことを特徴とする請求項1に記載の繊維強化樹脂成形品。

[請求項5] 前記繊維強化樹脂成形品に含まれる炭素繊維（A）は、ラマンシフト1360 cm^{-1} 付近に現れる炭素繊維表面のラマン散乱強度の極大値 I_{1360} 、ラマンシフト1480 cm^{-1} 付近に現れる炭素繊維表面の

ラマン散乱強度の極小値 I_{1480} 、ラマンシフト 1580 cm^{-1} 付近に現れる炭素繊維表面のラマン散乱強度の極大値 I_{1580} の比、 I_{1360}/I_{1580} と I_{1480}/I_{1580} が異なる2種の炭素繊維(A-1)と炭素繊維(A-2)を含み、前記炭素繊維(A-2)は、前記炭素繊維(A-1)と比較して、 I_{1360}/I_{1580} が大きい値または同じ値かつ I_{1480}/I_{1580} が小さい値であることを特徴とする請求項1に記載の繊維強化樹脂成形品。

[請求項6] 前記繊維強化樹脂成形品に含まれる炭素繊維(A)のうち、繊維長 0.6 mm 以上の繊維において、前記炭素繊維(A-1)と前記炭素繊維(A-2)の本数比率、 0.6 mm 以上の(A-1)の本数： 0.6 mm 以上の(A-2)の本数が $100:0\sim50:50$ である請求項5に記載の繊維強化樹脂成形品。

[請求項7] 前記炭素繊維(A)100重量部に対して、前記炭素繊維(A-2)を $10\sim70$ 重量部含むことを特徴とする請求項5に記載の繊維強化樹脂成形品。

[請求項8] 前記炭素繊維(A-1)の繊維径 $\phi(A-1)$ と前記炭素繊維(A-2)の繊維径 $\phi(A-2)$ の比、 $\phi(A-1)/\phi(A-2)$ が 1.2 以上 2.0 以下であることを特徴とする請求項5に記載の繊維強化樹脂成形品。

[請求項9] 炭素繊維(A)および熱可塑性樹脂(B)を含む繊維強化樹脂成形材料(C)であって、長さ 3 mm 以上 10 mm 以下の繊維長を有し、成形材料の長手方向に配向している炭素繊維(CF-1)および熱可塑性樹脂(B)を含む繊維強化樹脂成形材料(C-1)および、短繊維状の炭素繊維(CF-2)および熱可塑性樹脂(B)を含む繊維強化樹脂成形材料(C-2)を含み、炭素繊維(CF-1)の繊維径 $\phi(CF-1)$ と炭素繊維(CF-2)の繊維径 $\phi(CF-2)$ の比、 $\phi(CF-1)/\phi(CF-2)$ が 1.2 以上 2.0 以下であることを特徴とする繊維強化樹脂成形材料。

[請求項10] 前記炭素繊維(CF-2)は、繊維強化樹脂成形材料(C-2)中

から無作為に選んだ1000本の炭素繊維（CF-2）が以下の式4に示す繊維長において0.1mm以上0.4mm以下であること特徴とする請求項9に記載の繊維強化樹脂成形材料。

$$\text{炭素繊維（CF-2）の繊維長} = \Sigma (L_i) / 1000$$

・・・（式4）

L_i ：各繊維の長さ（mm）

[請求項11] 前記繊維強化樹脂成形材料（C-1）は、炭素繊維（CF-1）と熱可塑性樹脂（B）に加えて、炭素繊維（CF-1）の各繊維間を満たす状態で存在する熱可塑性樹脂（B）とは異なる化合物（D）を含むことを特徴とする請求項9に記載の繊維強化樹脂成形材料。

[請求項12] 前記炭素繊維（CF-2）は、リサイクル炭素繊維を含むことを特徴とする請求項9に記載の繊維強化樹脂成形材料。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/041424

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
C08J 5/04(2006.01)i FI: C08J5/04 CEZ		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) B29B11/16;15/08-15/14; C08J5/00-5/24; C08K3/00-13/08; C08L1/00-101/14; B29C45/00-45/84; B29C48/00-48/96; B29C70/00-70/88		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2024 Registered utility model specifications of Japan 1996-2024 Published registered utility model applications of Japan 1994-2024		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 9-314558 A (TORAY INDUSTRIES, INC.) 09 December 1997 (1997-12-09) entire document, particularly, claims, paragraphs [0021]-[0022], fig. 2	1, 2
A	JP 2021-091745 A (TEIJIN LIMITED) 17 June 2021 (2021-06-17) entire document, particularly, claims, paragraph [0019]	1-12
A	JP 2006-028313 A (MITSUBISHI CORP.) 02 February 2006 (2006-02-02) entire document, particularly, claims	1-12
A	JP 2006-182948 A (MATSUSHITA ELECTRIC WORKS, LTD.) 13 July 2006 (2006-07-13) entire document, particularly, claims	1-12
A	JP 2002-231051 A (TORAY INDUSTRIES, INC.) 16 August 2002 (2002-08-16) entire document, particularly, claims	1-12
A	JP 2001-207068 A (TORAY INDUSTRIES, INC.) 31 July 2001 (2001-07-31) entire document, particularly, claims	1-12
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "D" document cited by the applicant in the international application "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 12 January 2024		Date of mailing of the international search report 30 January 2024
Name and mailing address of the ISA/JP Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/041424

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 6384128 B1 (TORAY INDUSTRIES, INC.) 07 May 2002 (2002-05-07) entire document, particularly, claims	1-12
E, A	JP 7401029 B1 (TORAY INDUSTRIES, INC.) 19 December 2023 (2023-12-19) entire document, particularly, claims	1-12

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2023/041424

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 9-314558 A	09 December 1997	(Family: none)	
JP 2021-091745 A	17 June 2021	(Family: none)	
JP 2006-028313 A	02 February 2006	(Family: none)	
JP 2006-182948 A	13 July 2006	(Family: none)	
JP 2002-231051 A	16 August 2002	(Family: none)	
JP 2001-207068 A	31 July 2001	(Family: none)	
US 6384128 B1	07 May 2002	(Family: none)	
JP 7401029 B1	19 December 2023	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08J 5/04(2006.01)i FI: C08J5/04 CEZ		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） B29B11/16;15/08-15/14; C08J5/00-5/24; C08K3/00-13/08; C08L1/00-101/14; B29C45/00-45/84; B29C48/00-48/96; B29C70/00-70/88 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2024年 日本国実用新案登録公報 1996-2024年 日本国登録実用新案公報 1994-2024年 国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 9-314558 A (東レ株式会社) 09.12.1997 (1997-12-09) 文献全体、特に特許請求の範囲、段落0021-0022、図2	1,2
A	JP 2021-091745 A (帝人株式会社) 17.06.2021 (2021-06-17) 文献全体、特に特許請求の範囲、段落0019	1-12
A	JP 2006-028313 A (三菱商事株式会社) 02.02.2006 (2006-02-02) 文献全体、特に特許請求の範囲	1-12
A	JP 2006-182948 A (松下電工株式会社) 13.07.2006 (2006-07-13) 文献全体、特に特許請求の範囲	1-12
A	JP 2002-231051 A (東レ株式会社) 16.08.2002 (2002-08-16) 文献全体、特に特許請求の範囲	1-12
A	JP 2001-207068 A (東レ株式会社) 31.07.2001 (2001-07-31) 文献全体、特に特許請求の範囲	1-12
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの “D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献 “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日	12.01.2024	国際調査報告の発送日 30.01.2024
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 大村 博一 4F 3973 電話番号 03-3581-1101 内線 3430	

C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	US 6384128 B1 (TORAY INDUSTRIES, INC.) 07.05.2002 (2002 - 05 - 07) 文献全体、特に特許請求の範囲	1-12
E, A	JP 7401029 B1 (東レ株式会社) 19.12.2023 (2023 - 12 - 19) 文献全体、特に特許請求の範囲	1-12

国際調査報告
特許ファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2023/041424

引用文献	公表日	特許ファミリー文献	公表日
JP 9-314558 A	09.12.1997	(ファミリーなし)	
JP 2021-091745 A	17.06.2021	(ファミリーなし)	
JP 2006-028313 A	02.02.2006	(ファミリーなし)	
JP 2006-182948 A	13.07.2006	(ファミリーなし)	
JP 2002-231051 A	16.08.2002	(ファミリーなし)	
JP 2001-207068 A	31.07.2001	(ファミリーなし)	
US 6384128 B1	07.05.2002	(ファミリーなし)	
JP 7401029 B1	19.12.2023	(ファミリーなし)	