

(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
2016 年 11 月 10 日(10.11.2016)



(10) 国際公開番号

WO 2016/178399 A1

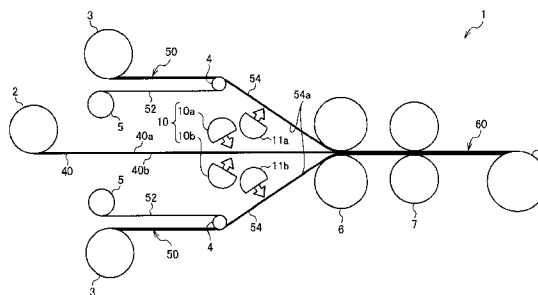
- (51) 国際特許分類:
B29B 11/16 (2006.01) C08J 5/24 (2006.01)
B29C 70/06 (2006.01) B29K 101/10 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/063263
- (22) 国際出願日: 2016 年 4 月 27 日(27.04.2016)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2015-094376 2015 年 5 月 1 日(01.05.2015) JP
- (71) 出願人: 日立化成株式会社(HITACHI CHEMICAL COMPANY, LTD.) [JP/JP]; 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目 9 番 2 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 登坂 祐治(TOSAKA, Yuji); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目 9 番 2 号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 佐藤 義則(SATO, Yoshinori); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目 9 番 2 号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 斉藤 猛(SAITOH, Takeshi); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目 9 番 2 号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 大谷 保, 外(OHTANI, Tamotsu et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目 2 5 番 2 号 虎ノ門 E S ビル 7 階 特許業務法人大谷特許事務所 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, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, 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, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, 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, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, 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, MK, MT, NL, NO, PL, PT, 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).

[続葉有]

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING FRP PRECURSOR AND DEVICE FOR PRODUCING SAME

(54) 発明の名称: FRP 前駆体の製造方法及びその製造装置

[図1]



(57) Abstract: Provided are a method for producing an FRP precursor and a device for producing an FRP precursor, said method and device having good productivity and enabling filling of an aggregate into a bulk gap as well as preventing resin discharge from an end portion at normal pressure. This method for producing an FRP precursor, in which an FRP precursor is produced by melting and affixing a pair of thermosetting resin films (44) to both surfaces (40a, 40b) of a sheet-like aggregate (40), includes an aggregate surface heating step in which the aggregate surfaces which are both surfaces (40a, 40b) of the aggregate (40) are heated, and a film pressure welding step in which, at normal pressure, an aggregate-side film surface (45a) of the pair of films (44) is pressure-welded to one of the heated aggregate surfaces, and an aggregate-side film surface (45a) of the pair of films (44) is pressure-welded to the other of the heated aggregate surfaces, thereby obtaining an FRP precursor.

(57) 要約:

[続葉有]



WO 2016/178399 A1



添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

常圧下において、骨材の嵩空隙への充填性 と端部からの樹脂噴出し防止 とを両立させた、生産性の良いFRP前駆体の製造方法及びFRP前駆体の製造装置を提供する。シート状の骨材(40)の両方の表面(40a、40b)にそれぞれ熱硬化性樹脂の一对のフィルム(44)を熔融貼付してFRP前駆体を製造するFRP前駆体の製造方法は、骨材(40)の両方の表面(40a、40b)である骨材両表面を加熱する骨材表面加熱工程と、常圧下において、一对のフィルム(44)の骨材側フィルム表面(45a)を、加熱された前記骨材両表面の一方に圧接させ、一对のフィルム(44)の骨材側フィルム表面(45a)を、加熱された骨材両表面の他方に圧接させてFRP前駆体を得るフィルム圧接工程と、を含む。

明 細 書

発明の名称： F R P 前駆体の製造方法及びその製造装置

技術分野

[0001] 本発明は F R P 前駆体及びその製造装置に関する。

背景技術

[0002] F R P (Fiber Reinforced Plastics ; 繊維強化プラスチック) は、ファイバーなどの弾性率の高い材料を骨材とし、その骨材を、プラスチックのような母材 (マトリックス) の中に入れて強度を向上させた複合材料であり、耐候性、耐熱性、耐薬品性、軽量性を生かした、安価かつ軽量で耐久性に優れた複合材料である。

これらの性能を生かして、F R P は幅広い分野で使用されている。例えば、F R P は、造型性及び高い強度を有することから、住宅機器、船舶、車両、航空機などの構造材として使用されている。また、絶縁性を生かして、電気装置、プリント配線板などの電子部品分野でも使用されている。

[0003] F R P の製造方法としては、骨材を敷き詰めた合わせ型に樹脂を注入する R T M (Resin Transfer Molding、樹脂トランスファー成形) 法、骨材を敷き、樹脂を脱泡しながら多重積層するハンドレイアップ法及びスプレーアップ法、あらかじめ骨材と樹脂とを混合したシート状のものを金型で圧縮成型する S M C (Sheet Molding Compound) プレス法などが挙げられる。

[0004] F R P をプリント配線板に用いる場合、プリント配線板用の F R P の厚みは、他の用途の F R P の厚みと比較して薄くすることが要求される。また、プリント配線板用の F R P には、F R P を成型した後の厚みのばらつきの許容範囲が狭いこと、ボイドが無いことなど、高いスペックが要求される。

そのため、プリント配線板用の F R P の多くが、ハンドレイアップ (Hand Lay-up ; HLU) 法で製造されている。ハンドレイアップ法は、塗工機を用いて、骨材に、樹脂を溶解したワニス塗布し、乾燥させて溶剤除去及び熱硬化を行う製造方法である (特許文献 1) 。ハンドレイアップ法は、予め、骨材

に熱硬化性樹脂を塗布しておくこと、作業性が向上し、また、周辺環境にかかる負荷を低減させることができる。

[0005] しかし、骨材としてカレンダー処理の無いアラミド不織布、薄いガラスペーパー、薄い織布などを用いる場合、これらは骨材としての強度が低いため、ワニス塗布、溶剤除去、乾燥、熱硬化を行う際に、自重が骨材の耐荷重を上回り、切れてしまったり、塗布する樹脂量を調整するためにコーターのギャップを狭くした際に、千切れてしまったりするなど作業性が悪い。

[0006] また、プリント配線板用のFRPでは、積層後の厚みの高精度性と、内層回路パターンへの樹脂の充填性（成型性）とを両立させる必要がある。このため、骨材に付着させた樹脂量が数質量%異なるもの、熱硬化性樹脂の硬化時間を変えたもの、それらを組合せたものなど、1種類の骨材で複数種類のFRP前駆体を製造しなければならず、煩雑である。さらに、各々塗工条件を変えて製造するために、製造に用いる材料のロスも大きい。

[0007] そのため、骨材に熱硬化性樹脂を直接塗布するのではなく、予め熱硬化性樹脂をフィルム状にした樹脂フィルムを作製しておき、骨材と樹脂フィルムとを加熱及び加圧して接着し、FRP前駆体にする方法がある（特許文献2）。

[0008] しかし、この方法によると、骨材の嵩隙間への樹脂の充填を行うため、貼り付けを真空中で行うと、トラブル時の対応性、作業性などの効率が良くない。他方、貼り付けを大気中に行うと、骨材への樹脂の充填性が悪く、ボイドが発生する場合がある。また、充填性を高めるために、ラミネート温度を高くして樹脂の粘度を下げたり、加圧圧力を上げて骨材への充填性を高めたりすると、端部から樹脂が吹き出てしまったり、面内で樹脂の厚みにばらつきが生じたりしてしまい、良好な製品を得ることが困難である。

[0009] そこで、加熱及び加圧を中央部から行い、順次空気を押出す方法（特許文献3）が提案されているが、この方法では中央部と端部で加熱条件が変わるため、熱硬化性樹脂の硬化度が面内で異なってしまう。また、複数回にわたってロールラミネート処理を行うので、製造装置には、多数の加熱加圧ロー

ルを取り付ける必要がある。

- [0010] また、上述の製造方法は、加熱により樹脂を低粘度化させるが、熱源が加熱加圧ロールであるため、骨材に含浸する樹脂の表面が熱源から最も遠くなる。また、加熱加圧ロールが骨材と接触すると、加熱加圧ロールの熱が骨材に奪われてしまうため、樹脂が低温化し、粘度の上昇により流動性（含浸性）が著しく悪化してしまうことがある。

先行技術文献

特許文献

- [0011] 特許文献1：特開平01－272416号公報
特許文献2：特開2011－132535号公報
特許文献3：特開平11－114953号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0012] 本発明の課題は、常圧下において、骨材の嵩空隙への樹脂充填性と端部からの樹脂噴出し防止とを両立させた、生産性の良いFRP前駆体の製造方法及びFRP前駆体の製造装置を提供することにある。

課題を解決するための手段

- [0013] 本発明者らは、精鋭研究した結果、作業性が良い大気中（常圧下）において、熱硬化性樹脂フィルムの骨材に接着する側から加熱、又は、予め骨材を加熱しておくことで、骨材の嵩空隙への樹脂充填性と端部からの樹脂噴出し防止とを両立させ、生産性の良いFRP前駆体の製造方法及びFRP前駆体の製造装置を提供することができることを突き止めた。

すなわち、本発明は、以下のとおりである。

- [0014] [1] シート状の骨材の一方の表面に熱硬化性樹脂のフィルムを溶融貼付してFRP前駆体を製造するFRP前駆体の製造方法であって、
前記骨材の一方の表面を加熱する骨材表面加熱工程と、
常圧下において、前記フィルムの両表面のうち、前記骨材側の表面である

骨材側フィルム表面を、加熱された前記骨材の一方の表面である骨材表面に圧接させてF R P前駆体を得るフィルム圧接工程と、を含む、F R P前駆体の製造方法。

〔2〕前記フィルム圧接工程が、前記フィルムと前記骨材とを加熱しながら圧接する工程であり、前記骨材表面加熱工程における、前記骨材の一方の表面の加熱温度が、前記フィルム圧接工程の加熱温度より、5～70℃高温である、上記〔1〕に記載のF R P前駆体の製造方法。

〔3〕さらに、前記骨材側フィルム表面を、前記骨材側フィルム表面側からの輻射により加熱するフィルム予備加熱工程を含む、上記〔1〕又は〔2〕に記載のF R P前駆体の製造方法。

〔4〕前記フィルム圧接工程が、前記フィルムと前記骨材とを加熱しながら圧接する工程であり、前記フィルム予備加熱工程における、前記骨材側フィルム表面の加熱温度が、前記フィルム圧接工程の加熱温度より、5～70℃高温である、上記〔3〕に記載のF R P前駆体の製造方法。

〔5〕前記フィルム圧接工程を、前記熱硬化性樹脂のフィルムの最低熔融粘度温度のマイナス40℃からプラス20℃の範囲で行う、上記〔1〕～〔4〕のいずれかに記載のF R P前駆体の製造方法。

〔6〕シート状の骨材の両方の表面にそれぞれ熱硬化性樹脂の一对のフィルムを熔融貼付してF R P前駆体を製造するF R P前駆体の製造方法であって、

前記骨材の両方の表面である骨材両表面を加熱する骨材表面加熱工程と、
常圧下において、前記一对のフィルムのうち一方のフィルムの両表面のうち、前記骨材側の表面である一方の骨材側フィルム表面を、加熱された前記骨材両表面の一方の表面に圧接させ、前記一对のフィルムのうち他方のフィルムの両表面のうち、前記骨材側の表面である他方の骨材側フィルム表面を、加熱された前記骨材両表面の他方の表面に圧接させてF R P前駆体を得るフィルム圧接工程と、を含む、F R P前駆体の製造方法。

〔7〕前記フィルム圧接工程が、前記一对のフィルムと前記骨材とを加熱し

ながら圧接する工程であり、前記骨材表面加熱工程における、前記骨材両表面の加熱温度が、前記フィルム圧接工程の加熱温度より、 $5 \sim 70^{\circ}\text{C}$ 高温である、上記〔6〕に記載のFRP前駆体の製造方法。

〔8〕さらに、前記一方の骨材側フィルム表面を、前記一方の骨材側フィルム表面側からの輻射により加熱し、前記他方の骨材側フィルム表面を、前記他方の骨材側フィルム表面側からの輻射により加熱するフィルム予備加熱工程を含む、上記〔7〕に記載のFRP前駆体の製造方法。

〔9〕前記フィルム圧接工程が、前記一对のフィルムと前記骨材とを加熱しながら圧接する工程であり、前記フィルム予備加熱工程における、前記一方の骨材側フィルム表面及び前記他方の骨材側フィルム表面の加熱温度は、それぞれ、前記フィルム圧接工程の加熱温度より、 $5 \sim 70^{\circ}\text{C}$ 高温である、上記〔8〕に記載のFRP前駆体の製造方法。

〔10〕前記フィルム圧接工程を、前記熱硬化性樹脂のフィルムの最低熔融粘度温度のマイナス 40°C からプラス 20°C の範囲で行う、上記〔6〕～〔9〕のいずれかに記載のFRP前駆体の製造方法。

〔11〕上記〔1〕～〔5〕のいずれかに記載のFRP前駆体の製造方法に用いられるFRP前駆体の製造装置であって、

前記骨材の一方の表面を加熱する骨材表面加熱手段と、

常圧下において、前記フィルムの両表面のうち、前記骨材側の表面である骨材側フィルム表面を、加熱された前記骨材の一方の表面である骨材表面に圧接させてFRP前駆体を得るフィルム圧接手段と、を含む、FRP前駆体の製造装置。

〔12〕上記〔6〕～〔10〕のいずれかに記載のFRP前駆体の製造方法に用いられるFRP前駆体の製造装置であって、

前記骨材の両方の表面である骨材両表面を加熱する骨材表面加熱手段と、

常圧下において、前記一对のフィルムのうち一方のフィルムの両表面のうち、前記骨材側の表面である一方の骨材側フィルム表面を、加熱された前記骨材両表面の一方に圧接させ、前記一对のフィルムのうち他方のフィルムの

両表面のうち、前記骨材側の表面である他方の骨材側フィルム表面を、加熱された前記骨材両表面の他方に圧接させてF R P前駆体を得るフィルム圧接手段と、を含む、F R P前駆体の製造装置。

発明の効果

[0015] 本発明によれば、常圧下において、骨材の嵩空隙への樹脂充填性と端部からの樹脂噴出し防止とを両立させ、生産性の良いF R P前駆体の製造方法及びF R P前駆体の製造装置を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0016] [図1]本発明に係るF R P前駆体の製造方法及びF R P前駆体の製造装置の概念図である。

発明を実施するための形態

[0017] 図1を参照して、本発明に係るF R P前駆体の製造方法及びF R P前駆体の製造装置1の実施の形態を説明する。なお、F R P前駆体の製造装置1は、一对の樹脂フィルム（熱硬化性樹脂のフィルム）54を、それぞれ、シート状の骨材40の両面に溶融貼付する装置として説明するが、1つの樹脂フィルム54をシート状の骨材40の一方の表面にのみ溶融貼付する装置としてもよい。この場合、図1において、骨材40より下側（又は上側）にある、一方の樹脂フィルム送出装置3、保護フィルム剥がし機構4、保護フィルム巻取装置5、及び、加熱体10a（又は10b）、樹脂フィルム加熱装置11a（又は11b）は不要である。

F R P前駆体の製造装置1は、常圧下におかれる。本発明に係るF R P前駆体の製造方法は、F R P前駆体の製造装置1で行うことができる。

[0018] F R P前駆体の製造装置1は、骨材送出装置2と、一对の樹脂フィルム送出装置3、3と、骨材加熱装置10と、シート加熱加圧装置6と、F R P前駆体巻取装置8と、を備える。F R P前駆体の製造装置1は、さらに、シート加圧冷却装置7と、一对の樹脂フィルム加熱装置11a、11bと、一对の保護フィルム剥がし機構4、4と、一对の保護フィルム巻取装置5、5と、を備えることが好ましい。

[0019] 骨材送出装置 2 は、シート状の骨材 4 0 が巻かれたローラを巻き方向とは反対方向に回転させて、ローラに巻かれた骨材 4 0 を送り出す装置である。

図 1 において、骨材送出装置 2 は、骨材 4 0 をローラの下側からシート加熱加圧装置 6 に向けて送り出している。

[0020] 一对の樹脂フィルム送出装置 3 及び 3 は、保護フィルム付き樹脂フィルム 5 0 が巻かれたローラと、送り出される保護フィルム付き樹脂フィルム 5 0 に所定の張力を付与させながらローラを回転可能に支持する支持機構とを有し、保護フィルム付き樹脂フィルム 5 0 が巻かれたローラを巻き方向とは反対方向に回転させて、ローラに巻かれた保護フィルム付き樹脂フィルム 5 0 を送り出す装置である。後述するように、保護フィルム付き樹脂フィルム 5 0 は、樹脂フィルム 5 4 と、樹脂フィルム 5 4 の片方の骨材側フィルム表面（樹脂フィルム 5 4 の両表面のうち、骨材 4 0 側の表面）5 4 a に積層された保護フィルム 5 2 とを含むシート状のフィルムである。

[0021] 一对の樹脂フィルム送出装置 3 及び 3 は、それぞれ、送り出された骨材 4 0 の表面 4 0 a 側及び裏面 4 0 b 側に位置する。

一方の樹脂フィルム送出装置 3 は、送り出された骨材 4 0 の表面 4 0 a 側に位置し、保護フィルム 5 2 が、送り出された骨材 4 0 側になるように、一方の保護フィルム付き樹脂フィルム 5 0 をローラの下側から一方の保護フィルム剥がし機構 4 に向けて送り出す装置である。

同様に、他方の樹脂フィルム送出装置 3 は、送り出された骨材 4 0 の裏面 4 0 b 側に位置し、保護フィルム 5 2 が、送り出された骨材 4 0 側になるように、他方の保護フィルム付き樹脂フィルム 5 0 をローラの上側から他方の保護フィルム剥がし機構 4 に向けて送り出す装置である。

[0022] 一对の保護フィルム剥がし機構 4 及び 4 は、それぞれ、送り出された骨材 4 0 の表面 4 0 a 側及び裏面 4 0 b 側に位置する転向ローラである。

一方の保護フィルム剥がし機構 4 は、一方の樹脂フィルム送出装置 3 から送り出され、一方の保護フィルム剥がし機構 4 に向けて進む保護フィルム付き樹脂フィルム 5 0 を、回転する転向ローラの表面で受け、一方の保護フィ

フィルム付き樹脂フィルム 50 のうち一方の樹脂フィルム 54 をシート加熱加圧装置 6 に向けて進ませると共に、一方の保護フィルム 52 を一方の保護フィルム巻取装置 5 に向けて進ませることにより、一方の保護フィルム付き樹脂フィルム 50 から一方の保護フィルム 52 を剥がす機構である。これにより、一方の樹脂フィルム 54 の骨材側フィルム表面 54 a が露出する。

同様に他方の保護フィルム剥がし機構 4 は、他方の樹脂フィルム送出装置 3 から送り出され、他方の保護フィルム剥がし機構 4 に向けて進む他方の保護フィルム付き樹脂フィルム 50 を、回転する転向ローラの表面で受け、他方の保護フィルム付き樹脂フィルム 50 のうち他方の樹脂フィルム 54 をシート加熱加圧装置 6 に向けて進ませると共に、他方の保護フィルム 52 を他方の保護フィルム巻取装置 5 に向けて進ませることにより、他方の保護フィルム付き樹脂フィルム 50 から他方の保護フィルム 52 を剥がす機構である。これにより、他方の樹脂フィルム 54 の骨材側フィルム表面 54 a が露出する。

[0023] 一対の保護フィルム巻取装置 5 及び 5 は、それぞれ、送り出された骨材 40 の表面 40 a 側及び裏面 40 b 側に位置し、一対の保護フィルム剥がし機構 4 及び 4 で剥がされた、保護フィルム 52 及び 52 を巻き取る巻取装置である。

[0024] 骨材加熱装置 10 は、送り出された骨材 40 の表面 40 a 側及び裏面 40 b 側にそれぞれ位置する加熱体 10 a 及び 10 b を有する。加熱体 10 a は、常圧下において、骨材 40 の表面 40 a を加熱する輻射型加熱体であり、加熱体 10 b は、常圧下において、骨材 40 の裏面 40 b を加熱する輻射型加熱体である。

なお、骨材の加熱方法は、輻射、接触、対流など種々使用できるが、後述する樹脂フィルムの加熱方法を利用すると簡便になり好ましい。加熱位置は、放冷を抑制する観点から、加熱圧縮ローラの手前でライン速度を計算して 20 秒以内の位置が好ましく、5 秒以内の位置がより好ましい。

骨材表面加熱工程における、骨材 40 の表面 40 a 及び裏面 40 b の加熱

温度は、それぞれ、後のフィルム圧接工程の加熱温度より、5～70℃高温であることが好ましく、7～60℃高温であることがより好ましく、10～50℃高温であることが好ましい。

[0025] 樹脂フィルム加熱装置11aは、送り出される一方の樹脂フィルム54の骨材側フィルム表面54aを加熱することができるように、送り出された骨材40の表面40aと、一方の樹脂フィルム54の骨材側フィルム表面54aとの間に位置する。

樹脂フィルム加熱装置11bは、送り出される他方の樹脂フィルム54の骨材側フィルム表面54aを加熱することができるように、送り出された骨材40の裏面40bと、他方の樹脂フィルム54の骨材側フィルム表面54aとの間に位置する。

一对の樹脂フィルム加熱装置11a及び11bは、それぞれ、常圧下において、一方及び他方の樹脂フィルム54及び54の骨材側フィルム表面54aを加熱する加熱体である。加熱体は、例えば、輻射型加熱体である。

[0026] 前記輻射型加熱体、赤外線又は赤外線を含む可視光が簡便で行い易い。これにより、フィルムのばたつきによる樹脂面の変形、表面のべたつきなどを抑制することができる。加熱位置は、放冷を抑制する観点から、加熱加圧ロールの手前でライン速度を計算して20秒以内の位置が好ましく5秒以内がより好ましい。また加熱する温度は樹脂の表面温度が熱硬化性樹脂組成物をレオメータで測定した最低熔融粘度温度のマイナス20℃からプラス30℃の範囲が好ましい。

また、フィルム予備加熱工程における、一对の樹脂フィルム54及び54の骨材側フィルム表面54a及び54aの加熱温度は、それぞれ、後のフィルム圧接工程の加熱温度より、5～70℃高温であることが好ましく、7～60℃高温であることがより好ましく、10～50℃高温であることが好ましい。

[0027] シート加熱加圧装置6は、一对の加熱圧縮ローラと、一对の加熱圧縮ローラに圧縮力を付与する圧縮力付与機構（図示せず）とを有する。一对の加熱

圧縮ローラは、所定の設定された温度で加熱ができるよう、内部に加熱体を有する。

シート加熱加圧装置 6 は、入り込んだ骨材 40 に樹脂フィルム 54、54 を回転する一对の加熱圧縮ローラで圧接させてシート状の F R P 前駆体 60 を形成する（フィルム圧接工程）と共に、F R P 前駆体 60 をシート加圧冷却装置 7 に向けて送り出す。具体的には、骨材送出装置 2 から送り出された骨材 40 の表面 40 a 及び裏面 40 b に、それぞれ、一对の保護フィルム剥がし機構 4 及び 4 から送り出された樹脂フィルム 54 及び 54 が積層するように、骨材送出装置 2 から送り出された骨材 40 と、一对の保護フィルム剥がし機構 4、4 からそれぞれ送り出された樹脂フィルム 54、54 とが、一对の加熱圧縮ローラの間に入り込む。

このとき、一方の樹脂フィルム 54 の骨材側フィルム表面 54 a 側が骨材 40 の表面 40 a 側に接着するように、一方の樹脂フィルム 54 が骨材 40 に積層し、また、他方の樹脂フィルム 54 の骨材側フィルム表面 54 a 側が骨材 40 の裏面 40 b 側に接着するように、他方の樹脂フィルム 54 が骨材 40 に積層して F R P 前駆体 60 が形成される。シート加熱加圧装置 6 から送り出された F R P 前駆体 60 は高温状態である。

[0028] シート加圧冷却装置 7 は、一对の冷却圧縮ローラと、一对の冷却圧縮ローラに圧縮力を付与する圧縮力付与機構（図示せず）とを有する。一对の冷却圧縮ローラは、シート加熱加圧装置 6 から送り出された、高温の F R P 前駆体 60 を回転する一对の冷却圧縮ローラで圧縮すると共に冷却し、F R P 前駆体巻取装置 8 に送り出す。

[0029] F R P 前駆体巻取装置 8 は、シート加圧冷却装置 7 から送り出されたシート状の F R P 前駆体 60 を巻き取るロールと、ロールを回転させる駆動機構（図示せず）とを有する。

[0030] なお、F R P 前駆体の製造装置 1 は、所謂ローララミネート方法を採用しているので、骨材 40 及び樹脂フィルム 54 への加熱温度は、これらの幅方向で中央が高く、端部が低いほうが好ましい。ローララミネートの加圧は口

ーラ端部に圧力を掛け、ローラの剛直性を利用して全体に線圧を掛けるが、その際に、ローラは微妙に弓形に変形する。そのため、同じ粘度であると弓形の変形を助長するので、樹脂フィルム54の中央部の粘度を低く、端部の粘度を高くすることにより、中央部と端部との間の流動性に差を発生させ、弓形の変形を抑えるようにしている。

また、幅方向の加熱温度に差を付けると、幅方向における溶融した樹脂の硬化性の差が生じてしまうので、加熱量は同じであるがローララミネート時の温度が異なるように、加熱体をVの字型に配置して中央部と端部のローラまでの距離を制御することが好ましい。また、ローララミネート後は冷却圧縮ローラで冷却し、不要な熱の除去と製品の平坦化を行うことが好ましい。

[0031] 以上のFRP前駆体の製造装置1は、以下のように動作する。

[0032] 先ず、骨材送出装置2からシート状の骨材40を、シート加熱加圧装置6に向けて送り出す。このとき、骨材40の表面40a及び裏面40bは、露出している。

[0033] 次に、骨材40の表面40a及び裏面40bを、それぞれ、常圧下において、骨材加熱装置10の加熱体10a及び10bで加熱する（骨材表面加熱工程）。

[0034] 他方、保護フィルム52が、送り出された骨材40側になるように、一方の保護フィルム付き樹脂フィルム50を一方の樹脂フィルム送出装置3のローラの下側から一方の保護フィルム剥がし機構4に向けて送り出している。また、保護フィルム52が、送り出された骨材40側になるように、他方の保護フィルム付き樹脂フィルム50を他方の樹脂フィルム送出装置3のローラの上側から他方の保護フィルム剥がし機構4に向けて送り出している。

[0035] 次に、送り出された一方の保護フィルム付き樹脂フィルム50は、一方の保護フィルム剥がし機構4である転向ローラに架けられ転向する際に、骨材側フィルム表面54aが露出するように、一方の保護フィルム付き樹脂フィルム50から一方の保護フィルム52を剥がして一方の樹脂フィルム54をシート加熱加圧装置6に向けて進ませる。これにより、一方の樹脂フィルム

54の骨材側フィルム表面54aが露出する。同様に、送り出された他方の保護フィルム付き樹脂フィルム50は、他方の保護フィルム剥がし機構4である転向ローラに架けられ転向する際に、骨材側フィルム表面54aが露出するように、他方の保護フィルム付き樹脂フィルム50から他方の保護フィルム52を剥がして他方の樹脂フィルム54をシート加熱加圧装置6に向けて進ませる。これにより、他方の樹脂フィルム54の骨材側フィルム表面54aが露出する。

剥がされた一対の保護フィルム52及び52は、それぞれ、一対の保護フィルム巻取装置5及び5で巻き取られる。

骨材側フィルム表面54aが露出した一方及び他方の樹脂フィルム54及び54がシート加熱加圧装置6に到達する前に、一方及び他方の樹脂フィルム54及び54を、それぞれ、一対の樹脂フィルム加熱装置11a及び11bで、一方及び他方の樹脂フィルム54及び54の骨材側フィルム表面54a及び54a側から輻射により加熱する（フィルム予備加熱工程）。これにより、一方及び他方の樹脂フィルム54及び54の骨材側フィルム表面54a及び54aが溶融する。

[0036] 骨材送出装置2から送り出され、表面40a及び裏面40bが加熱された骨材40に、それぞれ、骨材側フィルム表面54a及び54aが溶融した樹脂フィルム54及び54が積層するように、骨材送出装置2から送り出された骨材40と、一対の保護フィルム剥がし機構4及び4からそれぞれ送り出された樹脂フィルム54及び54とが一対の加熱圧縮ローラ6の間に入り込む。さらに、常圧下において、一対の樹脂フィルム54及び54の骨材側フィルム表面54a及び54aを、それぞれ、表面40a及び裏面40bが加熱された骨材40に、シート加熱加圧装置6で圧接させてFRP前駆体60を得る（フィルム圧接工程）。このとき、一対の加熱圧縮ローラの内部にある加熱体の温度制御をすることにより、一対の加熱圧縮ローラを所定の温度に維持し、フィルム圧接工程をする際に加熱しながら加圧をする。

[0037] 骨材に熱硬化性樹脂のフィルムを加熱加圧接着する際、加熱圧縮ローラの

温度は使用する熱硬化性樹脂組成物をレオメータで測定した最低溶融粘度温度のマイナス40℃からプラス20℃の範囲が好ましい。圧力は任意の線圧でよいがIPC-TM-650のNo. 2, 3, 17, 1の試験方法で加熱加圧をロールラミネートで実施し、1.6mmのパンチ穴の染み出しが50μm以上で6.4mmのパンチ穴の染み出しが1200μm以下が好ましく、1.6mmのパンチ穴の染み出しが100μm以上で6.4mmのパンチ穴の染み出しが500μm以下がより好ましい。

[0038] また、熱硬化性樹脂組成物の最低溶融粘度温度は、FRP前駆体の生産性の観点から、60～150℃が好ましく、80～140℃がより好ましく、100～130℃がさらに好ましい。

[0039] フィルム圧接工程では、作業性が良い大気中で骨材40に樹脂フィルム54を接着する。その際、シート加熱加圧装置6の加熱圧縮ローラによるキャリアフィルム越しの骨材側フィルム表面54aへの加温によって樹脂フィルム54を溶融し流動させるのではなく、樹脂フィルム54の骨材40に接着する側から加熱、又は予め骨材40を加熱する。これにより、骨材40の表面40a及び裏面40bで溶融した樹脂の温度が低下しないため、樹脂を高温化して低粘度化による含浸性の向上が得られると共に、シート加熱加圧装置6の加熱加圧ロールからの過剰な加熱による骨材40への充填に関与しない部分の樹脂粘度の低下を抑え、骨材40の嵩空隙への樹脂充填性と端部からの樹脂噴出し防止を両立させ、FRP前駆体60の生産性を良くすることができる。

[0040] シート加熱加圧装置6から送り出されたFRP前駆体60を、シート加圧冷却装置7により、さらに加圧し、また、冷却する。

シート加圧冷却装置7から送り出されたFRP前駆体60を、FRP前駆体巻取装置8により、巻き取る。

[0041] FRP前駆体の製造装置1で製造されるFRP前駆体について説明する。

[0042] 製造するFRP前駆体の骨材としては、ガラス、カーボン等の無機繊維基材；アラミド、セルロース等の有機繊維基材；鉄、銅、アルミニウム、これ

ら金属の合金等からなる金属繊維基材などを、単体で又は混合して使用した織布、不織布などが挙げられる。

[0043] 本発明の製造方法に用いる熱硬化性樹脂のフィルムは、熱硬化性樹脂を含むフィルムであり、熱硬化性樹脂を含む組成物（以下、「熱硬化性樹脂組成物」ともいう）をフィルム状にしたものである。

[0044] 熱硬化性樹脂としては、フェノール樹脂、尿素樹脂、フラン樹脂、エポキシ樹脂などが挙げられる。特に、作業性、取り扱い性、価格の点でエポキシ樹脂が好ましい。

[0045] エポキシ樹脂としては、2官能以上のエポキシ樹脂が好ましい。2官能以上のエポキシ樹脂としては、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビスフェノールAD型エポキシ樹脂等のビスフェノール型エポキシ樹脂；脂環式エポキシ樹脂；フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ビスフェノールAノボラック型エポキシ樹脂、アラルキルノボラック型エポキシ樹脂等のノボラック型エポキシ樹脂；多官能フェノールのジグリシジルエーテル化物；これらの水素添加物などが挙げられる。これらのエポキシ樹脂は単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

難燃性が必要とされる場合は、ハロゲン化エポキシ樹脂を配合してもよい。また、ハロゲン化エポキシ樹脂を添加せずに難燃性を満足させるためにテトラブロモビスフェノールA、デカブロモジフェニルエーテル、酸化アンチモン、テトラフェニルフォスフィン、有機リン化合物、酸化亜鉛などの一般に難燃剤、難燃助剤と称される化合物を添加してもよい。

[0046] 熱硬化性樹脂としてエポキシ樹脂を使用する場合、エポキシ樹脂硬化剤を使用してもよい。

エポキシ樹脂硬化剤としては、フェノール樹脂、アミン化合物、酸無水物、3フッ化ホウ素モノエチルアミン、イソシアネート、ジシアンジアミド、ユリア樹脂などが挙げられる。

フェノール樹脂としては、フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラ

ック樹脂等のノボラック型フェノール樹脂；ナフタレン型フェノール樹脂、ハイオルソ型ノボラックフェノール樹脂、テルペン変性フェノール樹脂、テルペンフェノール変性フェノール樹脂、アラルキル型フェノール樹脂、ジシクロペンタジエン型フェノール樹脂、サリチルアルデヒド型フェノール樹脂、ベンズアルデヒド型フェノール樹脂などが挙げられる。これらの中でも、フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂、一部修飾されたアミノトリアジンノボラック樹脂が好ましい。

アミン化合物としては、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ジエチルアミノプロピルアミン等の脂肪族アミン；メタフェニレンジアミン、4, 4'-ジアミノジフェニルメタン等の芳香族アミンなどが挙げられる。

酸無水物としては、無水フタル酸、メチルテトラヒドロ無水フタル酸、テトラヒドロ無水フタル酸、ヘキサヒドロ無水フタル酸などが挙げられる。これらのエポキシ樹脂硬化剤は単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

エポキシ樹脂硬化剤の配合量は、エポキシ樹脂のエポキシ当量1に対して、硬化剤の反応基当量比が0.3～1.5当量となる量が好ましい。エポキシ樹脂硬化剤の配合量が前記範囲内であると、硬化度の制御が容易であり、生産性が良好になる。

[0047] 熱硬化性樹脂組成物は、さらに、硬化促進剤を含有していてもよい。

硬化促進剤としては、イミダゾール化合物、有機リン化合物、第3級アミン、第4級アンモニウム塩などが挙げられる。イミダゾール化合物は、イミダゾールの2級アミノ基をアクリロニトリル、イソシアネート、メラミン、アクリレートなどでマスク化して潜在性を持たしたイミダゾール化合物であってもよい。ここで用いられるイミダゾール化合物としては、イミダゾール、2-メチルイミダゾール、4-エチル-2-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール、1-ベンジル-2-メチルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾール、4, 5-ジフェニルイ

ミダゾール、2-メチルイミダゾリン、2-エチル-4-メチルイミダゾリン、2-ウンデシルイミダゾリン、2-フェニル-4-メチルイミダゾリンなどが挙げられる。

また、光分解によりラジカル、アニオン又はカチオンを生成し硬化開始する光開始剤を使用してもよい。

これらの硬化促進剤は単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

[0048] 硬化促進剤の配合量はエポキシ樹脂100質量部に対して、0.01～20質量部が好ましい。0.01質量部以上であると、十分な硬化促進効果が得られ、20質量部以下であると、熱硬化性樹脂組成物の保存性及び硬化物の物性に優れ、経済性にも優れる。

[0049] 熱硬化性樹脂組成物は、さらに、不透過性及び耐摩耗性の向上並びに増量のために、充填材を含有していてもよい。

充填材としては、シリカ、酸化アルミニウム、ジルコニア、ムライト、マグネシア等の酸化物；水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、ハイドロタルサイト等の水酸化物；窒化アルミニウム、窒化珪素、窒化ホウ素等の窒化系セラミックス；タルク、モンモリロナイト、サポナイト等の天然鉱物；金属粒子、カーボン粒子などが挙げられる。

[0050] 充填材は樹脂と比較して比重が小さい物から大きい物まで幅広いため、充填材の添加量は質量部ではなく体積率で考えることが好ましい。

充填材の配合量は添加目的により大きく異なるが、熱硬化性樹脂組成物の固形分体積中、0.1～65体積％範囲が好ましい。0.1体積％以上であると、着色及び不透化目的で添加する場合に十分効果を発揮する。また、65体積％以下であると、粘度の増加を抑制し、作業性及び接着性を悪化させることなく増量することができる。

ここで、本明細書における固形分とは、水分、後述する有機溶剤等の揮発する物質以外の組成物中の成分のことをいう。すなわち、固形分は、25℃付近の室温で液状、水飴状及びワックス状のものも含み、必ずしも固体であることを意味するものではない。

[0051] 上記成分以外でも必要に応じて本発明の効果を阻害しない範囲で他の化合物を混合することも可能である。例えば、樹脂硬化物に樹脂のタック性を付与し、接着時の密着性を良くするために、可とう性材料を添加してもよい。

可とう性材料としては、ポリスチレン、ポリオレフィン、ポリウレタン、アクリル樹脂、アクリルニトリルゴム、ポリビニルアルコール、それらを硬化系内に取り込むためエポキシ又はカルボキシ基などで変性した物、エポキシ樹脂を予め反応させ大分子化したフェノキシなどが挙げられる。これらの可とう性材料は単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

可とう性材料の配合量は、熱硬化樹脂組成物の固形分に対して、3～200質量部が好ましい。3質量部以上であると、可とう性を十分に付与することができ、200質量部以下であると、硬化物の弾性率を良好に保つことができる。ただし、弾性率の低下が目的の仕様に影響を与えない場合は、前記範囲に限らず、目的に応じて適宜上限値を決定すればよい。

[0052] 熱硬化性樹脂組成物は、均一化を図るため、有機溶剤に溶解及び／又は分散させたワニスの形態とすることが好ましい。

有機溶剤としては、アセトン、メチルエチルケトン、トルエン、キシレン、シクロヘキサノン、4-メチル-2-ペンタノン、酢酸エチル、エチレングリコールモノエチルエーテル、ジプロピレングリコールモノメチルエーテル、ジプロピレングリコールモノエチルエーテル、トリプロピレングリコールモノメチルエーテル、N，N-ジメチルホルムアミド、N，N-ジメチルアセトアミドなどが挙げられる。これらの有機溶剤は単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。また特性上問題がなければ、上記材料を粉末状にして混合する粉体混合を行ってもよく、鹼濁化などにより水溶液化してもよい。また、熱硬化性樹脂の硬化が著しく進行しない温度且つ熱硬化性樹脂が液状化する温度下において直接攪拌し混合して均一化を図ってもよい。

[0053] 充填材の分散性の向上、及び、骨材又は対象物への密着性向上を図るためにカップリング剤を添加してもよい。カップリング剤としては、ビニルトリクロルシラン、ビニルトリエトキシシラン等のビニル基を有するシランカッ

プリング剤；3-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、2-（3，4-エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシラン等のエポキシ基を有するシランカップリング剤；3-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-2-（アミノエチル）-3-アミノプロピルトリエトキシシラン等のアミノ基を有するシランカップリング剤；チタネート系カップリング剤などが挙げられる。これらのカップリング剤は単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

カップリング剤の添加量は、熱硬化性樹脂組成物の固形分に対して、0.01～5質量部が好ましい。0.01質量部以上であると、骨材の表面及び充填材の表面を十分に被覆することができ、5質量部以下であると、余剰のカップリング剤の発生を抑制できる。

[0054] 次に、上記配合で得られた熱硬化性樹脂組成物をキャリアフィルムに塗布し、不要な有機溶剤を除去し、熱硬化させて、熱硬化性樹脂のフィルムを得ることができる。なお、ここでの熱硬化は、熱硬化性樹脂組成物をいわゆる半硬化（Bステージ化）状態とすることを目的とするものであり、ラミネートの作業性が良い粘度になるように、熱硬化性樹脂組成物を半硬化させることが好ましい。

キャリアフィルムとしては、ポリエチレンテレフタレート（PET）、二軸延伸ポリプロピレン（OPP）、ポリエチレン、ポリビニルフルオレート、ポリイミド等の有機フィルム；銅、アルミニウム、これら金属の合金のフィルム；これらの有機フィルム又は金属フィルムの表面に離型剤で離型処理を行ったフィルムなどが挙げられる。

また、熱硬化性樹脂組成物を塗布し半硬化させた面にキャリアフィルムを積層し熱硬化性樹脂組成物を挟んで巻き取ると作業性がよい。

[0055] 熱硬化性樹脂のフィルムと骨材をラミネートする際、使用する熱硬化性樹脂のフィルムの厚みは任意であり、骨材の厚みより薄い熱硬化性樹脂のフィルムを用いる場合は、熱硬化性樹脂のフィルムを骨材にラミネートしたものに対して、再度、熱硬化性樹脂のフィルムのラミネートを行ってもよい。

また熱硬化性樹脂のフィルムを複数枚使用する場合、熱硬化性樹脂のフィルムの熱硬化度、配合組成等が異なるものを組み合わせて使用してもよい。

骨材に熱硬化性樹脂のフィルムをラミネートしたFRP前駆体を得る際、これを任意のサイズに切断し所定の物と接着、熱硬化を行ってもよい。また、ロール to ロールで使用してもよい。

実施例

[0056] 次に、下記の実施例により本発明をさらに詳しく説明するが、これらの実施例は本発明を制限するものではない。

[0057] [FRP前駆体の製造]

(実施例1)

フェノールノボラック型エポキシ樹脂(N-660; DIC株式会社製) 100質量部、クレゾールノボラック樹脂(KA-1165; DIC株式会社製) 60質量部に、シクロヘキサン15質量部、メチルエチルケトン130質量部を加え、良く攪拌して溶解した。そこに、充填材として水酸化アルミニウム(CL-303; 住友化学株式会社製) 180質量部、カップリング剤(A-187; モメンティブ パフォーマンス マテリアルズ社製) 1質量部、硬化促進剤としてイソシアネートマスキングダゾール(G8009L; 第一工業製薬株式会社製) 2.5質量部を加え、攪拌して溶解及び分散を行い、不揮発分70質量%の熱硬化性樹脂ワニスAを得た。

[0058] この熱硬化性樹脂ワニスAを、580mm幅のPETフィルム(G-2; 帝人デュポンフィルム株式会社製)に、塗布幅525mm、乾燥後の厚みが20 μ mになるように塗布して熱硬化性樹脂フィルムAを作製した。

作製した熱硬化性樹脂フィルムAの最低溶融粘度温度を、レオメータ(ARR-200ex; ティー エイ インストルメント ジャパン株式会社製、 ϕ 20mm治具)を用いて昇温速度3 $^{\circ}$ C/分の条件で測定したところ、最低溶融粘度温度は128 $^{\circ}$ Cであった。

[0059] 次に、予め温めた熱硬化性樹脂フィルムAを予め温めた骨材であるガラス織布(坪量48g/m²、IPC#1080、基材幅530mm: 日東紡績株

式会社製)に両面から当て、加熱加圧ロールに挟み込み骨材に熱硬化性樹脂を加圧含浸させ、その後、冷却ロールで冷却し、巻取りを行い、FRP前駆体Aを作製した。

ラミネートの加圧ロール条件は、ロール温度100℃、線圧0.2MPa、速度2.0m/分とした。

熱硬化性樹脂フィルムAの骨材側フィルム表面への加熱(フィルム予備加熱工程)はハロゲンヒータ(UH-USF-CL-700;ウシオ電機株式会社製)を用いて行った。加熱位置はハロゲンヒータの加熱面中心部が加圧ロールから30mm手前となる位置とし、加熱温度は加熱面中心で表面温度が135℃になるように調整した。

骨材の表面の加熱(骨材表面加熱工程)も上記と同様のハロゲンヒータを用いて行い、骨材の表面温度が140℃になるように調整した。

[0060] (実施例2)

実施例1の熱硬化性樹脂ワニスAを、580mm幅のPETフィルムに、塗布幅525mm、乾燥後の厚みが50μmになるように塗布して熱硬化性樹脂フィルムBを作製した。実施例1と同様の条件で測定した熱硬化性樹脂フィルムBの最低溶融粘度温度は122℃であった。

次に、実施例1において、熱硬化性樹脂フィルムAに変えて、熱硬化性樹脂フィルムBを用いた以外は、実施例1と同様の方法により、FRP前駆体Bを作製した。

[0061] (実施例3)

実施例1の熱硬化性樹脂ワニスAを、580mm幅のPETフィルムに、塗布幅525mm、乾燥後の厚みが80μmになるように塗布して熱硬化性樹脂フィルムCを作製した。実施例1と同様の条件で測定した熱硬化性樹脂フィルムCの最低溶融粘度温度は117℃であった。

次に、骨材としてガラス織布(坪量209g/m²、IPC#7628、基材幅530mm:日東紡績株式会社製)を用い、熱硬化性樹脂フィルムAに変えて、熱硬化性樹脂フィルムCを用いた以外は、実施例1と同様の方法に

より、FRP前駆体Cを作製した。

[0062] (実施例4)

実施例1の熱硬化性樹脂ワニスAを、580mm幅のPETフィルムに、塗布幅525mm、乾燥後の厚みが40 μ mになるように塗布して熱硬化性樹脂フィルムDを作製した。実施例1と同様の条件で測定した熱硬化性樹脂フィルムDの最低熔融粘度温度は108℃であった。

[0063] 次に、予め温めた熱硬化性樹脂フィルムDを、予め温めた骨材であるアラミドペーパー（ノーメックス411、公称厚み0.18mm、坪量175g/m²、デュポン帝人アドバンスドペーパー株式会社製）に両面から当て、加熱加圧ロールに挟み込み骨材に熱硬化性樹脂を加圧含浸させ、その後、冷却ロールで冷却し巻取りを行い、FRP前駆体Dを作製した。

ラミネートの加圧ロール条件は、ロール温度80℃、線圧0.2MPa、速度2.0m/分とした。

熱硬化性樹脂フィルムDの骨材側フィルム表面への加熱（フィルム予備加熱工程）は実施例1と同様のハロゲンヒータで行い、加熱位置はヒータの加熱面中心部が加圧ロールから50mm手前となる位置とし、加熱温度は加熱面中心で表面温度が120℃になるように調整した。

骨材の表面の加熱（骨材表面加熱工程）も上記と同様のハロゲンヒータを用いて行い、骨材の表面温度が140℃になるように調整した。

[0064] (比較例1)

実施例1と同様の手法で熱硬化性樹脂フィルムAを作製し、骨材であるガラス織布（坪量48g/m²、IPC#1080、基材幅530mm：日東紡績株式会社製）の両面にラミネートした。ラミネート前における熱硬化性樹脂フィルムA及び骨材の加熱は行わなかった。ラミネートの加圧ロール条件は、ロール温度100℃、線圧0.2MPa、速度2.0m/分とした。

[0065] (比較例2)

実施例1と同様の手法で熱硬化性樹脂フィルムAを作製し、骨材であるガラス織布（坪量48g/m²、IPC#1080、基材幅530mm：日東紡

績株式会社製)の両面にラミネートした。ラミネート前における熱硬化性樹脂フィルムA及び骨材の加熱は行わなかった。ラミネートの加圧ロール条件は、ロール温度150℃、線圧0.3MPa、速度1.5m/分とした。

[0066] (比較例3)

実施例1の熱硬化性樹脂ワニスAを作製し、該熱硬化性樹脂ワニスAを、骨材であるガラス織布(坪量48g/m²、IPC#1080:日東紡績株式会社製)に塗工機を用いて塗布した後、乾燥させて溶剤除去及び熱硬化させた。塗布重量の調整はスクイズロール法で行い、付着樹脂量は実施例2相当量を目標に塗工した。

[0067] (比較例4)

実施例3と同様の手法で熱硬化性樹脂フィルムCを作製し、骨材であるガラス織布(坪量209g/m²、IPC#7628:日東紡績株式会社製)の両面にラミネートした。ラミネート前における熱硬化性樹脂フィルムC及び骨材の加熱は行わなかった。ラミネートの加圧ロール条件は、ロール温度150℃、線圧0.3MPa、速度1.2m/分とした。

[0068] [評価方法]

実施例及び比較例で得られたFRP前駆体について、以下の評価を行った。結果を表1に示す。

[0069] (1) 厚みのばらつき

各例で得られたFRP前駆体の幅方向の中心から50mm単位で幅方向に計11点、前記11点を各々起点として長さ方向に50mm単位で10点(すなわち、11点×10点=110点)の厚みを、アップライトゲージを用いて0.001mm単位で測定し、その最大値と最小値との間の差を求め、厚みのばらつきとした。

[0070] (2) 端部からの樹脂染み出し

端部からの樹脂染み出しは、IPC-TM-650 No. 2.3.17.1の試験方法により測定した。

[0071] (3) 骨材への含浸性

F R P 前駆体を液体窒素で冷却後、切断し、室温（25℃）に戻した後、光学顕微鏡により破断面を観察し、下記基準に従って評価した。

A：未充填部分の存在が確認されなかった。

B：未充填部分の存在が確認された。

[0072] [表1]

表1

		実施例				比較例			
		1	2	3	4	1	2	3	4
FRP前駆体中の樹脂組成物の含有量*	質量%	59	78	56	52	59	59	74	56
(1) 厚みのばらつき	μm	± 2	± 3.6	± 0.21	± 3.3	± 1.6	± 5.8	塗布の上限。 樹脂が表面 を垂れ落ちそ うになる。	± 5.6
(2) 端部からの樹脂染み出し	mm	0.4	1.2	1.1	0.8	0.6	3.5		4.3
(3) 骨材への含浸性	—	A	A	A	A	B	A		B

*: 樹脂組成物の含有量は充填材の含有量も含む。

[0073] 表1から明らかなように、本発明の製造方法により得られたF R P 前駆体は、骨材の嵩空隙への樹脂充填性に優れ、端部からの樹脂噴出し防止が達成できていることが分かる。

符号の説明

- [0074] 1 F R P 前駆体の製造装置
- 2 骨材送出装置
- 3 樹脂フィルム送出装置
- 4 保護フィルム剥がし機構
- 5 保護フィルム巻取装置
- 6 シート加熱加圧装置（フィルム圧接手段）
- 7 シート加圧冷却装置
- 8 F R P 前駆体巻取装置
- 10 骨材加熱装置（骨材表面加熱手段）
- 11 a、11 b 樹脂フィルム加熱装置
- 40 骨材
- 40 a 骨材の表面（骨材の一方の表面、骨材両表面の一方）

- 4 0 b 骨材の裏面（骨材の他方の表面、骨材両表面の他方）
- 5 0 保護フィルム付き樹脂フィルム
- 5 2 保護フィルム
- 5 4 樹脂フィルム（フィルム）
- 5 4 a 樹脂フィルムの骨材側の表面（骨材側フィルム表面）
- 6 0 F R P 前駆体

請求の範囲

- [請求項1] シート状の骨材の一方の表面に熱硬化性樹脂のフィルムを溶融貼付して F R P 前駆体を製造する F R P 前駆体の製造方法であって、
前記骨材の一方の表面を加熱する骨材表面加熱工程と、
常圧下において、前記フィルムの両表面のうち、前記骨材側の表面である骨材側フィルム表面を、加熱された前記骨材の一方の表面である骨材表面に圧接させて F R P 前駆体を得るフィルム圧接工程と、を含む、F R P 前駆体の製造方法。
- [請求項2] 前記フィルム圧接工程が、前記フィルムと前記骨材とを加熱しながら圧接する工程であり、前記骨材表面加熱工程における、前記骨材の一方の表面の加熱温度が、前記フィルム圧接工程の加熱温度より、5～70℃高温である、請求項1に記載のF R P 前駆体の製造方法。
- [請求項3] さらに、前記骨材側フィルム表面を、前記骨材側フィルム表面側からの輻射により加熱するフィルム予備加熱工程を含む、請求項1又は2に記載のF R P 前駆体の製造方法。
- [請求項4] 前記フィルム圧接工程が、前記フィルムと前記骨材とを加熱しながら圧接する工程であり、前記フィルム予備加熱工程における、前記骨材側フィルム表面の加熱温度が、前記フィルム圧接工程の加熱温度より、5～70℃高温である、請求項3に記載のF R P 前駆体の製造方法。
- [請求項5] 前記フィルム圧接工程を、前記熱硬化性樹脂のフィルムの最低溶融粘度温度のマイナス40℃からプラス20℃の範囲で行う、請求項1～4のいずれか1項に記載のF R P 前駆体の製造方法。
- [請求項6] シート状の骨材の両方の表面にそれぞれ熱硬化性樹脂の一对のフィルムを溶融貼付して F R P 前駆体を製造する F R P 前駆体の製造方法であって、
前記骨材の両方の表面である骨材両表面を加熱する骨材表面加熱工程と、

常圧下において、前記一对のフィルムのうち一方のフィルムの両表面のうち、前記骨材側の表面である一方の骨材側フィルム表面を、加熱された前記骨材両表面の一方の表面に圧接させ、前記一对のフィルムのうち他方のフィルムの両表面のうち、前記骨材側の表面である他方の骨材側フィルム表面を、加熱された前記骨材両表面の他方の表面に圧接させてF R P前駆体を得るフィルム圧接工程と、を含む、F R P前駆体の製造方法。

[請求項7] 前記フィルム圧接工程が、前記一对のフィルムと前記骨材とを加熱しながら圧接する工程であり、前記骨材表面加熱工程における、前記骨材両表面の加熱温度が、前記フィルム圧接工程の加熱温度より、5～70℃高温である、請求項6に記載のF R P前駆体の製造方法。

[請求項8] さらに、前記一方の骨材側フィルム表面を、前記一方の骨材側フィルム表面側からの輻射により加熱し、前記他方の骨材側フィルム表面を、前記他方の骨材側フィルム表面側からの輻射により加熱するフィルム予備加熱工程を含む、請求項7に記載のF R P前駆体の製造方法。

[請求項9] 前記フィルム圧接工程が、前記一对のフィルムと前記骨材とを加熱しながら圧接する工程であり、前記フィルム予備加熱工程における、前記一方の骨材側フィルム表面及び前記他方の骨材側フィルム表面の加熱温度は、それぞれ、前記フィルム圧接工程の加熱温度より、5～70℃高温である、請求項8に記載のF R P前駆体の製造方法。

[請求項10] 前記フィルム圧接工程を、前記熱硬化性樹脂のフィルムの最低溶融粘度温度のマイナス40℃からプラス20℃の範囲で行う、請求項6～9のいずれか1項に記載のF R P前駆体の製造方法。

[請求項11] 請求項1～5のいずれか1項に記載のF R P前駆体の製造方法に用いられるF R P前駆体の製造装置であって、

前記骨材の一方の表面を加熱する骨材表面加熱手段と、

常圧下において、前記フィルムの両表面のうち、前記骨材側の表面

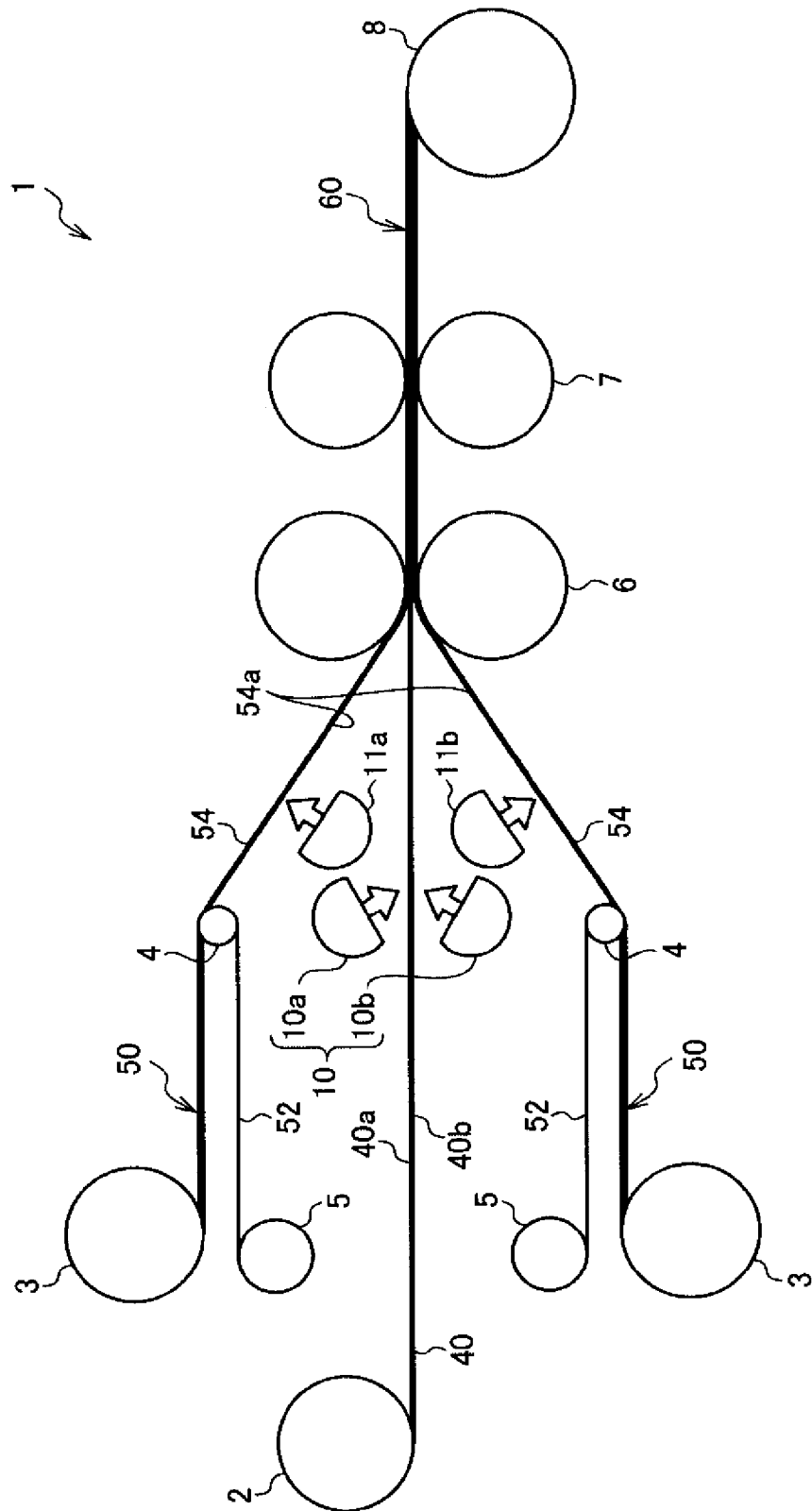
である骨材側フィルム表面を、加熱された前記骨材の一方の表面である骨材表面に圧接させてF R P前駆体を得るフィルム圧接手段と、を含む、F R P前駆体の製造装置。

[請求項12] 請求項6～10のいずれか1項に記載のF R P前駆体の製造方法に用いられるF R P前駆体の製造装置であって、

前記骨材の両方の表面である骨材両表面を加熱する骨材表面加熱手段と、

常圧下において、前記一对のフィルムのうち一方のフィルムの両表面のうち、前記骨材側の表面である一方の骨材側フィルム表面を、加熱された前記骨材両表面の一方に圧接させ、前記一对のフィルムのうち他方のフィルムの両表面のうち、前記骨材側の表面である他方の骨材側フィルム表面を、加熱された前記骨材両表面の他方に圧接させてF R P前駆体を得るフィルム圧接手段と、を含む、F R P前駆体の製造装置。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/063263

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B29B11/16(2006.01)i, B29C70/06(2006.01)i, C08J5/24(2006.01)i, B29K101/10(2006.01)n

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, B29C70/06, C08J5/24, B29K101/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

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 Y A	JP 5-200748 A (Kurt Held), 10 August 1993 (10.08.1993), entire text; particularly, claims; paragraphs [0026], [0043]; fig. 6 & US 5330595 A claims; column 9, lines 19 to 24; fig. 6 & EP 530450 A1 & DE 4129190 A1 & RU 2090367 C	1, 2, 5, 11 6, 7, 10, 12 3, 4, 8, 9
Y A	JP 2013-108058 A (Toray Industries, Inc.), 06 June 2013 (06.06.2013), entire text; particularly, claims; fig. 1 & US 2014/0299253 A1 claims; fig. 1 & WO 2013/061682 A1 & EP 2730914 A1 & KR 10-2014-0072130 A	6, 7, 10, 12

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ 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

"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
30 June 2016 (30.06.16)

Date of mailing of the international search report
12 July 2016 (12.07.16)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/063263

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 58-078724 A (Tokyo Shibaura Electric Co., Ltd.), 12 May 1983 (12.05.1983), entire text; particularly, claims; drawings (Family: none)	1-12
A	JP 4-219213 A (Kuraray Co., Ltd.), 10 August 1992 (10.08.1992), entire text; fig. 1 & US 5225140 A fig. 1 & EP 458038 A1 & DE 69128374 T & DE 69128374 D	1-12
A	WO 2013/014893 A1 (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.), 31 January 2013 (31.01.2013), entire text & JP 2013-46997 A & TW 201311454 A	1-12
A	JP 2011-132389 A (Toray Industries, Inc.), 07 July 2011 (07.07.2011), entire text (Family: none)	1-12

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. B29B11/16(2006.01)i, B29C70/06(2006.01)i, C08J5/24(2006.01)i, B29K101/10(2006.01)n

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））

Int.Cl. B29B11/16, B29C70/06, C08J5/24, B29K101/10

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	1971-2016年
日本国実用新案登録公報	1996-2016年
日本国登録実用新案公報	1994-2016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 Y A	JP 5-200748 A（クルト ヘルト）1993.08.10, 文献全体、特に特許請求の範囲、【0026】、【0043】、【図6】 & US 5330595 A, 請求の範囲、第9欄第19行-24行、FIG.6 & EP 530450 A1 & DE 4129190 A1 & RU 2090367 C	1, 2, 5, 11 6, 7, 10, 12 3, 4, 8, 9
Y A	JP 2013-108058 A（東レ株式会社）2013.06.06, 文献全体、特に特許請求の範囲、【図1】 & US 2014/0299253 A1, 請求の範囲、FIG.1 & WO 2013/061682 A1 & EP 2730914 A1 & KR 10-2014-0072130 A	6, 7, 10, 12

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ 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

「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矛盾するものではなく、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

30.06.2016

国際調査報告の発送日

12.07.2016

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（ISA/J P）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

大村 博一

4 F

3973

電話番号 03-3581-1101 内線 3430

C (続き) . 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	JP 58-078724 A (東京芝浦電気株式会社) 1983. 05. 12, 文献全体、 特に特許請求の範囲、図面 (ファミリーなし)	1-12
A	JP 4-219213 A (株式会社クラレ) 1992. 08. 10, 文献全体、【図 1】 & US 5225140 A, Fig. 1 & EP 458038 A1 & DE 69128374 T & DE 69128374 D	1-12
A	WO 2013/014893 A1 (住友ベークライト株式会社) 2013. 01. 31, 文献 全体 & JP 2013-46997 A & TW 201311454 A	1-12
A	JP 2011-132389 A (東レ株式会社) 2011. 07. 07, 文献全体 (ファミ リーなし)	1-12