

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2004 年 3 月 4 日 (04.03.2004)

PCT

(10) 国際公開番号  
**WO 2004/018186 A1**

- (51) 国際特許分類: **B29C 70/68**
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2003/010516
- (22) 国際出願日: 2003 年 8 月 20 日 (20.08.2003)
- (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2002-239625 2002 年 8 月 20 日 (20.08.2002) JP  
特願2003-86132 2003 年 3 月 26 日 (26.03.2003) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三菱  
レイヨン株式会社 (MITSUBISHI RAYON CO.,LTD.)  
[JP/JP]; 〒108-8506 東京都港区港南 1 丁目 6 番 4 1 号  
Tokyo (JP).

(TAKANO,Tsuneo) [JP/JP]; 〒440-8601 愛知県 豊橋市  
牛川通四丁目 1 番地の 2 三菱レイヨン株式会社豊  
橋事業所内 Aichi (JP). 沼田 喜春 (NUMATA,Kiharu)  
[JP/JP]; 〒440-8601 愛知県 豊橋市 牛川通四丁目  
1 番地の 2 三菱レイヨン株式会社豊橋事業所  
内 Aichi (JP). 伊藤 彰浩 (ITOU,Akihiro) [JP/JP]; 〒  
440-8601 愛知県 豊橋市 牛川通四丁目 1 番地の 2  
三菱レイヨン株式会社豊橋事業所内 Aichi (JP). 田  
口 真仁 (TAGUCHI,Masato) [JP/JP]; 〒440-8601 愛  
知県 豊橋市 牛川通四丁目 1 番地の 2 三菱レイ  
ヨン株式会社豊橋事業所内 Aichi (JP). 村松 純一  
(MURAMATSU,Junnichi) [JP/JP]; 〒440-8601 愛知県  
豊橋市 牛川通四丁目 1 番地の 2 三菱レイヨン株式  
会社豊橋事業所内 Aichi (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 高野 恒男

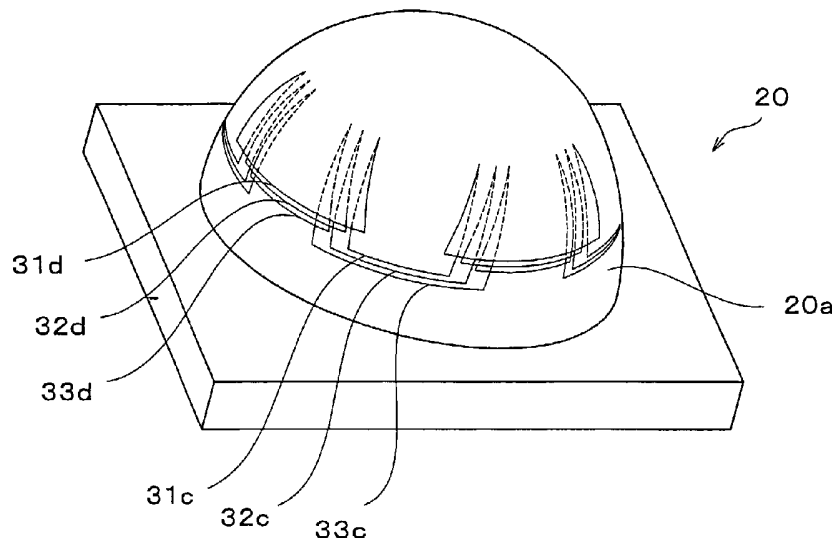
(74) 代理人: 野口 武男 (NOGUCHI,Takeo); 〒101-0063 東京  
都千代田区 神田淡路町 2 丁目 1 0 番 1 4 号 ぱん  
だいビル むつみ国際特許事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (国内): CA, CN, JP, KR, US.

/ 続葉有 /

(54) Title: METHOD OF PRODUCING FORMED PRODUCT OF FIBER-REINFORCED COMPOSITE MATERIAL AND THE FORMED PRODUCT

(54) 発明の名称: 繊維強化複合材料成形品の製造方法と同製品



(57) Abstract: Incisions or cutouts (31b-33b) are formed in individual cut out pre-impregnated objects (31-33), and at least one set of a partially separated flap (31c, 32c, 33c) and residual portion (31d, 32d, 33d) is formed in each of the pre-impregnated objects. The partially separated flaps (31c-33c) of the pre-impregnated objects are laid over predetermined portions of press die (10) as positioning flaps. After that the partially separated flaps (31c-33c) of the pre-impregnated objects are pressed to obtain a desired tridimensional shape. Then the end edge portions of the residual portions (31d-33d) are laid over on the end edge portions of the partially separated flaps (31c-33c) and are further pressed, so that a formed product of a fiber-reinforced composite material having a desired tridimensional shape as a whole is obtained. This way, a formed product of a fiber-reinforced composite material is stably produced with high efficiency without wrinkles.

/ 続葉有 /

WO 2004/018186 A1



(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

添付公開書類:

— 国際調査報告書

---

(57) 要約:

裁断された各プリプレグ(31~33)に複数の切り込み又は切り欠き(31b~33b)を形成してプリプレグごとに少なくとも1組の一部分離片(31c~33c)と残部(31d~33d)とを形成する。この各プリプレグの一部分離片(31c~33c)を位置決め片としてプレス型(10)の所定部位に重ねて配した後、各プリプレグの一部分離片(31c~33c)を押圧して所望の立体形状とする。次いで、前記一部分離片(31c~33c)の端縁部に残部(31d~33d)の端縁部分を重ねてさらに押圧し、全体が所望の立体形状をなす繊維強化複合材料成形品を製造する。

このようにして、繊維強化複合材料成形品を、しわを生じることなく安定して、高効率に製造することができる。

## 明 細 書

## 繊維強化複合材料成形品の製造方法と同製品

## 5 技術分野

本発明は、立体形状をなす繊維強化複合材料成形品を製造する方法であり、特に複数のプリプレグを使用して外観の良好な曲率の大きい立体形状の成形品を効率よく製造するのに適した繊維強化複合材料成形品の製造方法に関する。

10

## 背景技術

従来、強化繊維にマトリックス樹脂を含浸したプリプレグを使用して、容器形状などの立体形状をなす繊維強化複合材料成形品を成形するにあたって、その立体形状が曲率の小さな緩やかな凸形状又は凹形状の場合には、所望の形状をもつプレス型によりプリプレグを両面から押圧、  
15 延伸させることにより容易に成形することができた。

例えば、特開平6-98933号公報（特許文献1）に開示されているゴルフクラブの製造方法では、立体形状をなすゴルフクラブのヘッド部分を予備成形する際に、複数のパーツに分割しているが、各パーツは、  
20 所定の形状に切断されたプリプレグをプレス型により押圧成形することによって作られている。こうして予備成形されたヘッドの各パーツと、予備成形されたシャフトとを中空の成形型内に挿入し、それら予備成形品の内側から圧力を加えて加熱成形し、ヘッドの各パーツとともにシャフトを接合一体化させてゴルフクラブを製作する。

25

しかしながら、プリプレグを用いてプレス型により立体形状の成形品を押圧成形する方法では、成形品が曲率の大きな凹凸形状である場合に

、同様に大きな曲率の凹凸面を有するプレス型面にシート状のプリプレグを載置して押圧成形すると、どうしてもシワが入ってしまう。そのため、曲率の大きな立体形状に成形する場合に、プリプレグに予め部分的に切り込み又は切り欠きを形成し、その切り込み又は切り欠きの端縁部分同士を重ね合わせてシワが入らないように積層して成形していた。

例えば、半球状に成形する場合には、図 10 に示すように、まずプリプレグを円形に裁断し、円形プリプレグ 3 の中心部 3 a を残して放射状に等間隔で複数本の切り込み 3 b を形成し、或いは図 11 に示すように、円形プリプレグ 4 の中心部 4 a を残して放射状に等間隔で切り欠き 4 b を形成する。続いて、円形プリプレグ 3、4 の中心部 3 a、4 a を図 6 に示す半球凸部 20 a をもつプレス型（後述する第 3 プレス型）20 の頂点部分に合わせ、図 7 に示す半球凹部 21 a をもつプレス型（後述する第 4 プレス型）21 の底中央部に合わせて、半球状のプレス型 20 又は 21 に積層する。このとき、切り込み 3 b 又は切り欠き 4 b の隣り合う端縁部分を互いに重ね合わせる。次いで、相手方のプレス型を被せて押圧成形して、全体が半球状の成形品を成形していた。

ところで、従来はプリプレグをプレス型に載置し、その切り込み又は切り欠きの端縁部分を重ねる工程を、通常は手作業で行っている。そのため、前述の方法では成形品の品質の安定性に欠けやすく、均一性や生産性の点でも不十分である。また、相手方のプレス型を被せて押圧成形を行う際に、切り込み又は切り欠きの端縁部分の重なりが不十分な場合や不安定な場合に、その端縁部分に引き込まれなどによるシワが入りやすく、また強化繊維の配列を乱すため、高強度と外観が要求される成形品では、前述の方法を採用することが難しいとされていた。

本発明は、この従来課題を解決すべくなされたものであり、その目的は、所定形状に裁断されたプリプレグを用いた、押圧の付与により立

体形状をなす繊維強化複合材料成形品の製造方法にあって、成形品にシワが生じることがなく、均一な品質の成形品を安定して且つ高効率に製造可能とする繊維強化複合材料成形品の製造方法と同方法により得られる予備成形品及び完成成形品とを提供することにある。

5

#### 発明の開示

本方法発明の基本的構成は、所定形状に裁断した複数枚のプリプレグを同時に成形することによる繊維強化複合材料成形品の製造方法であって、

10 (1) 各プリプレグに複数の切り込み又は切り欠きを形成することによりプリプレグごとに少なくとも1組の一部分離片と残部とをそれぞれ形成すること、

(2) 各プリプレグの一部分離片を位置決め片として各プリプレグをプレス型の所定部位に重ねて配置すること、

15 (3) 各プリプレグの一部分離片に押圧を付与して所望の立体形状とし、及び

(4) 前記一部分離片に残部の端縁部分を重ねて、更に押圧して全体を所望の立体形状とすること、

を含んでなることを特徴とする繊維強化複合材料の製造方法にある。

20 ここで、本発明における繊維強化複合材料成形品とは、それ自体が製品となり得る最終製品だけでなく、後に他の部品と接合一体化する若しくは更に別の方法によって成形するなどして最終製品に形成する以前の予備成形品をも含むものである。また、本発明における複数のプリプレグを重ねて配置するとは、型に載せられたときに複数の重ねて配置させてい

25 いればよく、一枚ずつ型に位置決めしながら順次重ねて配置すること、或いは型に載せる前に複数のプリプレグを積層し、これを型に位置決め

しながら載せることも含んでいる。

更に、プリプレグごと少なくとも1組の一部分離片と残部とをそれぞれ形成する方法が、所定形状に裁断した複数のプリプレグを積層して積層体を構成し、この積層体に切り込み又は切り欠きを形成することで、  
5 プリプレグごとに少なくとも1組の一部分離片と残部とをそれぞれ形成する方法、或いは各プリプレグ一枚ごとに切り込み又は切り欠きを形成することで、プリプレグごとの少なくとも1組の一部分離片と残部とをそれぞれ形成する方法のいずれかであってもよい。

前者の方法であれば、複数枚のプリプレグに同時に一部分離片と残部  
10 とをそれぞれ形成することができ、生産効率が向上する。一方、後者の方法であれば、一枚ずつに切り込み又は切り欠きを入れることになるが、各プリプレグごとの一部分離片の形状を、後述するような好ましい形状によりしやすくなる。

上述した製造方法によれば、先ず、前記切り込み又は切り欠きにより  
15 分離された一部の分離片を押圧することにより立体形状に成形し、その後、前記一部の分離片に残部の一部を重ねて別途押圧を付与するため、その成形作業が容易となり、しかも型締めの際にも、切り込み又は切り欠きの端縁が引き込まれることによるシワや強化繊維の配列の乱れが生じることもない。

20 重ね合わせられる複数のプリプレグの前記切り込み又は切り欠きは、少なくとも2種類の異なる位置となるように形成することが望ましい。このような複数のプリプレグを使用すると、各プリプレグを立体形状に成形した後に重ね合わせるとき、仮に単独のプリプレグの切り込み又は切り欠き間に隙間が生じて、全体では塞がった状態が得られ、一部の分離片の重なり部分が各プリプレグ間では偏りによる集中が生じないため  
25 局部的に肉厚となることもなく、外観と強度の向上に大きく寄与する

ことができる。

また、本発明によれば、複数のプリプレグにあって、各プリプレグの一部分離片の形状を他のプリプレグとほぼ相似に若しくは合同に形成することが好ましく、更には同じ位置に重ねられる各プリプレグの一部分  
5 離片について、ある一部分離片に対して、押圧の付与により凹面となる層側にある一部分離片の幅を大きくなるように切り込み又は切り欠きを形成することが好ましい。このような条件で成形することにより、一連の工程で同時に成形することができるようになり、しかも積層枚数が多い場合には内面側と外面側の曲率差を適正に補正しながら成形すること  
10 ができるようになる。

また本発明によれば、プリプレグの各一部分離片を形成する切り込み又は切り欠きの端縁が、ほぼ平行に又は外周部に向けて狭くなっていることが好ましい。この構成により、一部分離片とプレス型との干渉による成形品のシワの発生を防止ができる。

15 更に、積層される複数のプリプレグにあって、各プリプレグの切り込み又は切り欠きの中心側の先端同士を2 mm以上離間させて形成することが好ましい。

本発明の成形では、残部を一部分離片に重ねるが、複数のプリプレグが重ねられた状態で切り込み又は切り欠きの終端位置が一致している場  
20 合には、その終端位置において複数のプリプレグが互いに干渉し合って残部を一部分離片に重ねることが困難となるため、成形したときに、その終端位置において目開きとなってしまうことがある。

これを無くするためには、複数のプリプレグ間にあって各切り込み又は切り欠きの中心側の先端同士が2 mm以上離間させることが好ましく、  
25 2 mm未満に近づくと、各プリプレグにおける切り込み又は切り欠きの終端がほぼ一点に集中してしまい、いわゆる成形後の目開きが集中する

。かかる目開きは、製品強度を大幅に低下させかねない。

複数のプリプレグの間で、互いの切り込み又は切り欠きの終端同士を 2 mm 以上離間させることにより、一つのプリプレグにできてしまった目開きを、他のプリプレグで覆うことができるようになり、成形品全体として外観がきれいで、強度も有する成形品が得られる。なお、前述の終端間の離間距離は、成形品の曲率によって適宜決定することができ、実質的に異なるプリプレグ間で切り込み又は切り欠きの終端同士が接触しなければよいが、特に 5 mm 以上離間させる場合には、曲率の大きい成形品であっても上述のような問題が起こりにくくなる。

本発明における強化繊維には、炭素繊維、ガラス繊維又は有機繊維（アラミド繊維、PBO 繊維を含む）からなる群から選ばれるいずれかの強化繊維をプリプレグに用いることが好ましい。更には、強化繊維が一方方向に引き揃えられた一方向材又は織物からなるプリプレグを用いることが好ましい。しかし、強化繊維の材質やそのプリプレグ構造は繊維強化複合材料成形品の用途や要求される強度などに応じて適宜選択が可能であり、またその繊維方向も適宜組み合わせて積層することができる。

また、本発明にあって、マトリックス樹脂としては、強化繊維との接着強度に優れるエポキシ樹脂を用いると、最終製品が強度に優れたものとなるので好ましい。特に、以下の A 成分、B 成分、C 成分及び D 成分からなるエポキシ樹脂組成物を用いることが好ましい。

A 成分：エポキシ樹脂

B 成分：分子内に少なくとも一つの硫黄原子を有するアミン化合物（B-1 成分）及び／又はエポキシ樹脂と分子内に少なくとも一つの硫黄原子を有するアミン化合物との反応生成物（B-2 成分）

C 成分：尿素化合物

D 成分：ジシアンジアミド

前記エポキシ樹脂組成物中の硫黄原子及びC成分の含有率は、それぞれ0.2～7質量%及び1～15質量%であることが好ましく、更にはC成分が平均粒径150 $\mu$ m以下の粒状物であることが好ましい。熱硬化性樹脂として、こうしたエポキシ樹脂組成物を用いることにより、ごく短時間で、外観が優れた本発明に係る繊維強化複合材料成形品を得ることができる。本発明における繊維強化複合材料成形品とは、既述したとおり、熱硬化性樹脂（エポキシ樹脂組成物）が、完全に硬化される前の予備成形品も含まれる。

そして、本発明に係る上記製造方法を用いれば、プリプレグからなる繊維強化複合材料成形品の予備成形品を製造することができる。この予備成形品を更に加熱および加圧して硬化成形することにより、外観に優れた最終製品を短時間で製造することができるようになる。特に、この工程で圧縮成形を採用すると、高圧で成形が可能となり短時間での硬化が可能となるため好ましい。

#### 図面の簡単な説明

第1図は一枚の円形プリプレグに切り込みを入れて、4組の一部分離片と残部とを形成した平面図である。

第2図は一枚の円形プリプレグに切り欠きを入れて、4組の一部分離片と残部とを形成した平面図である。

第3図は三枚の円形プリプレグを重ねたときの平面図である。

第4図は第1プレス型の代表例を示す模式図である。

第5図は第2プレス型の代表例を示す模式図である。

第6図は第3プレス型の代表例を示す模式図である。

第7図は第4プレス型の代表例を示す模式図である。

第8図は第1プレス型上において、三枚のプリプレグの一部分離片の

みが半球状に成形されたときの模式図である。

第 9 図は第 3 プレス型上において、三枚のプリプレグの残部を一部分離片に重ねて、すべて半球状に成形されたときの模式図である。

5 第 10 図は従来の半球状成形体の成形材料である円形プリプレグの切り込み形状の一例を示す平面図である。

第 11 図は従来の半球状成形体の成形材料である円形プリプレグの切り欠き形状の一例を示す平面図である。

発明を実施するための最良の形態

10 以下、本発明の実施の形態について、半球状の繊維強化複合材料成形品を製造する場合を例として、図面を参照しながら具体的に説明する。なお、本発明は、これらの図面及び方法に限定されるものではない。

まず、各プリプレグに切り込み又は切り欠きを形成する方法について説明する。

15 半球状の繊維強化複合材料成形品を製造する場合、先ずプリプレグを円形に裁断する。そして図 1 に示すように、この円形プリプレグ 1 の中央部 1 a を残して 2 本 1 組の平行線状の切り込み 1 b を 4 組形成し、その切り込み 1 b 間に中央部 1 a を挟んで十文字状に 4 枚の一部分離片 1 c を前記中央部 1 a の回りに形成するとともに、各一部分離片 1 c の間に扇形の 4 枚の残部 1 d を形成する。なお、前記プリプレグの裁断形状は必ずしも円形である必要はなく、半球状以外に成形する場合には、楕円や扇型や矩形など、必要に応じた好適な形状に裁断することが可能である。また、前記切り込み 1 b は必ずしも平行である必要はなく、各々の一部分離片 1 c が外周に向けて狭くなるように形成することが望ましいが、後述するように、第 1 プレス型による成形時に一部分離片と型との干渉を起こす恐れを確実になくするためには、少なくとも外周に向けて

20

25

広くはならないようにすることが好ましい。

一方で、図 2 に示す円形プリプレグ 2 のように、中央部 2 a を残して  
十文字状の一部分離片 2 c を 4 組形成するとともに、それぞれの一部分  
5 離片 2 c に隣接する扇型残部 2 d の各切り込み縁部を更に三角形状に切  
り欠いて切り欠き 2 b を形成してもよい。この例では、押圧成形のとき  
に切り欠き 2 b を挟んで隣り合う一部分離片 2 c と残部 2 d との間にお  
ける不要な重なりを取り除くことができるようになり、重なり部分の面  
積を小さくすることができるとともに軽量化が図れる。この場合におい  
ても、一部分離片 2 c の切り欠き端縁部同士は必ずしも平行である必要  
10 はなく、外周に向けて狭くなっているとしても良いが、広くはならないほうが  
好ましい。

更に、前記切り込み又は切り欠きによって形成される一部分離片及び  
残部は、1 組あれば所望の立体形状に成形することが可能ではあるが、  
より安定的に成形するには、2 組以上、特に 4 組以上を形成することが  
15 好ましい。

次に、切断したプリプレグを用いて成形する方法について説明する。  
なお、以下の説明では図 1 に示すように円形プリプレグに切り込みを形  
成した 3 枚のプリプレグを用いた例を、図面を用いて説明するが、本発  
明は当然に図示例限定されるものではなく、2 枚又は 4 枚以上を同時に  
20 用いて成形しても差し支えない。

まず、図 3 に円形に裁断した 3 枚のプリプレグ 3 1 ~ 3 3 を重ねた状  
態を示す。これらの円形プリプレグ 3 1 ~ 3 3 は、一枚の大きなプリプ  
レグから裁断したものでもよいし、個々に製造した別種のプリプレグを  
同一形状に整えたものでもよい。この図では、3 枚のプリプレグ 3 1 ,  
25 3 2 , 3 3 は、その中央部の形状は同一としているが、上層のプリプレ  
グ 3 1 から最下層のプリプレグ 3 3 の順に、一部分離片 3 1 c , 3 2 c

、 3 3 c の幅を順次広くするようにして重ねるとともに、各切り込み 3 1 b, 3 2 b, 3 3 b の左右の縁部が、それぞれ順に左右に露呈するようにしている。

なお、一部分離片 3 1 c ~ 3 3 c は、必ずしもこのように形成しなくてもよいが、ある一部分離片 3 1 c ~ 3 3 c に対して、押圧成形により凹面を形成する層側にある一部分離片の幅は、凸面を形成する層側にある一部分離片の幅よりも狭くしないほうが好ましい。凹面を形成する層側にある一部分離片の幅を、凸面を形成する層側にある一部分離片の幅よりも広くすると、一部分離片が型に巻き込まれる恐れがある。

また、同じ理由により、重ねられた一部分離片の形状はほぼ相似または合同であることが好ましく、各一部分離片の形状が著しく異なると、一部分離片が型に巻き込まれる恐れがあるとともに、残部を重ねた際に、成形品に厚薄部分が生じる恐れがある。

次に、複数枚の円形プリプレグ 3 1, 3 2, 3 3 を重ねて成形する方法について順次説明する。まず、一部分離片 3 1 c, 3 2 c, 3 3 c のみをプレス型を用いて半球状に湾曲させて成形した後、残部 3 1 d, 3 2 d, 3 3 d を半球状に湾曲させて、一部分離片 3 1 c, 3 2 c, 3 3 c に一部を重ねた状態で成形する。

以下、その具体的な成形方法について説明する。

まず、各プリプレグ 3 1 ~ 3 3 を重ねて、それらの一部分離片 3 1 c ~ 3 3 c を半球状に湾曲させて成形する際には、図 4 に示す第 1 プレス型 1 0 及び図 5 に示す第 2 プレス型 1 1 を用いる。第 1 プレス型 1 0 は、成形品半球形状の凹面側、すなわち内側面を形成するものであり、十文字状の半球面からなる凹溝部 1 0 a を有し、その他の部位、すなわち、前記円形プリプレグ 3 1 ~ 3 3 の残部 3 1 d ~ 3 3 d に対応する位置には、平坦な上面をもつ扇形をなす突起部 1 0 b が、前記 1 0 a の頂部

とほぼ同一の高さまで突設されている。ここで、3枚のプリプレグ31～33は1枚ずつ第1プレス型10にセットして積層してもよいが、図3に示すように予め3枚を積層してから第1プレス型10にセットしてもよい。

5 一方、第2プレス型11は、前記半球状の凹溝部10aに嵌着する形状を有しており、前記第1プレス型10と所定の間隔を取って嵌合する。同第2プレス型11は、枠体11aの中央に円形開口部11bが形成されており、同円形開口11bに、前記扇形の突起部10b間に嵌合し、前記十文字状の凹溝部10aの表面に嵌合する十文字状の半球状突起部11cが形成されている。

10 上記第1及び第2のプレス型10、11を用いて成形するには、先ず、前記第1プレス型10に3枚の前記円形プリプレグ31、32、33を載置する。このとき、図8に示すように、各円形プリプレグ1の中央部31a、32a、33aを前記第1プレス型10の半球10aの頂部に重ねて載置し、各一部分離片31c、32c、33cを前記プレス型15 10の十文字状の半球状凹溝部10aに沿うように配置すると共に、隣接する各残部31d、32d、33dを同プレス型10の扇形突起部10bの平坦面上に配する。

20 ここで、前記半球状凹溝部10aや扇形突起部10bの形状は必ずしもプリプレグの切り込み形状と完全に一致させる必要はなく、所定の立体形状に折り曲げ又は湾曲させたり、重ねたりすることが可能な程度であれば十分である。

25 かかる形状の第1及び第2のプレス型10、11を用いることで、前記一部分離片31c、32c、33cを前記扇形突起部10b間に形成された十文字状の凹溝部10aに配置することにより、各円形プリプレグ31、32、33を前記プレス型10に対して常に一定の位置に正確

に位置決めして載置することができる。また、各円形プリプレグ 3 1、  
3 2、3 3 は、2 本 1 組の切り込み 3 1 b、3 2 b、3 3 b が平行又は  
外周に向けて狭く形成される一方で、第 1 プレス型 1 0 の凹溝部 1 0 a  
の幅が一部分離片 3 3 c の幅と同じか、或いはそれ以上広くなっている  
5 ため、その 2 本の切り込み 1 b 間の各一部分離片 3 1 c、3 2 c、3 3  
c は、隣接する扇形の残部 3 1 d、3 2 d、3 3 d を載置する扇形突起  
部 1 0 b と干渉することがない。

すなわち、前述のように一部分離片 3 1 c、3 2 c、3 3 c の各縁部  
と第 1 プレス型 1 0 の各扇形状突起部 1 0 b とが互いに干渉することを  
10 回避する目的から、前記切り込み 3 1 b、3 2 b、3 3 b は前述のよう  
に互いにほぼ平行か、或いは外周に向けて狭まるように形成している。

この状態で、第 2 プレス型 1 1 を前記第 1 プレス型 1 0 に嵌合させて  
、各円形プリプレグ 3 1、3 2、3 3 の中央部 3 1 a、3 2 a、3 3 a  
及び一部分離片 3 1 c、3 2 c、3 3 c を第 1 プレス型 1 0 の十文字状  
15 の凹溝部 1 0 a と第 2 プレス型 1 1 の十文字状をなす半球状突起部 1 1  
c とにより押圧成形する。この十文字状をなす半球状突起部 1 1 c の幅  
は、凹面側（すなわち最下層）にある一部分離片 3 3 c の幅と同じまた  
はそれ以下とすることで、半球状突起部 1 1 c と扇形状の残部 3 1 d、  
3 2 d、3 3 d とが干渉することはない。

重ねて成形された一部分離片 3 1 c、3 2 c、3 3 c に扇形状の残部  
3 1 d、3 2 d、3 3 d の端縁部を重ねる成形には、図 6 に示す半球状  
の凸部 2 0 a をもつ第 3 プレス型 2 0 と、図 7 に示すほぼ同一径の半球  
状の凹部 2 1 a をもつ第 4 プレス型 2 1 を用いる。第 3 プレス型 2 0 の  
突部 2 0 a の中心に、中央部 3 1 a、3 2 a、3 3 a の中心を位置合わ  
25 せして載置し、半球状の凹部 2 1 a をもつ第 4 プレス型 2 1 を前記第 3  
プレス型 2 0 に嵌合させて押圧成形する。このとき、図 9 に示すように

残部 3 1 d, 3 2 d, 3 3 d の端縁部分は一部分離片 3 1 c, 3 2 c, 3 3 c の端縁部分の表面に重なる。

この成形時には、上述のように予め円形プリプレグ 3 1, 3 2, 3 3 の中央部 3 1 a, 3 2 a, 3 3 a と一部分離片 3 1 c, 3 2 c, 3 3 c とが半球状に湾曲して成形されているため、前記残部 3 1 d, 3 2 d, 3 3 d はシワなどが生じることなく前記一部分離片 3 1 c, 3 2 c, 3 3 c の端縁表面に容易に重ねることができ、また型締めの際にも引き込まれによって前記残部 3 1 d, 3 2 d, 3 3 d にシワが生じることもない。

ここで、更に各プリプレグ 3 1, 3 2, 3 3 ごとの切り込み 3 1 b, 3 2 b, 3 3 b の形成位置を周方向に若干ずらして形成しておけば、複数のプリプレグを重ねた時、切り込み 3 1 b, 3 2 b, 3 3 b の端縁同士の重なり部分がずれると同時に、重ね合わせ部分に隙間が生じにくくなり、肉厚差を低減することができるばかりでなく、品質の改善をすることもできる。この状態で、残部 3 1 d, 3 2 d, 3 3 d の端縁を重ね合わせて半球状に成形し、更に加熱硬化することにより繊維強化複合材料成形品が形成される。

ところで、本発明の成形では、複数の各プリプレグに切り込み又は切り欠きを形成したのち、これを積層して残部を一部分離片に重ねて成形するが、積層された複数のプリプレグの間で、各切り込み又は切り欠きの中心側の切断端（終端）が同一位置にあると、その終端位置において複数のプリプレグが互いに干渉し合っ

て残部を一部分離片に重ねることが困難となることが多く、成形したのちに目開きとなってしまうことがある。この目開きは、特に各プリプレグにおける切り込み又は切り欠きの終端同士が 2 mm 未満となると、ほぼ一点に、切り込みまたは切り欠きの終端部分が集中してしまい、そこに目開きが集中しやすい。その結

果、製品としては、その目開き部分で強度の低下をもたらすことが多くなる。

そこで本発明にあっては、積層される複数のプリプレグにあって、更に各プリプレグの切り込み又は切り欠きの中心側の終端同士を 2 mm 以上離間させて形成することが好ましい。ここで、「離間させて形成する」とは、各プリプレグ間の切り込み又は切り欠きの中心側の終端位置がずれて形成されることを言い、このときの終端同士のずれは中心側にずれる場合、プリプレグの外縁に沿ってずれる場合、中心側に斜めにずれる場合を含むものである。

このように、複数のプリプレグの間で、互いの切り込み又は切り欠きの終端同士を 2 mm 以上離間させることにより、一つのプリプレグにできてしまった目開きを、他のプリプレグで覆うことができるようになり、成形品全体として外観がきれいで、高い強度も有する成形品が得られる。前述の終端間距離は、成形品の曲率によって適宜決定することができる。実質的に異なるプリプレグ間で切り込み又は切り欠きの終端同士が接触しなければよいが、特に 5 mm 以上離間させる場合には、曲率の大きい成形品であっても上述のような問題が起こりにくくなる。

本発明の繊維強化複合材料成形品を成形するにあたって、円形プリプレグ 31, 32, 33 の中央部 31a, 32a, 33a と一部分離片 31c, 32c, 33c とをまず半球状に成形する第 1 プレス型 10 及び第 2 プレス型 11 による第一の成形工程と、残りの残部 31d, 32d, 33d の端縁を前記一部分離片 31c, 32c, 33c の端縁に重ねて半球状に成形する第 3 プレス型 20 及び第 4 プレス型 21 を用いる第二の成形工程との 2 つの工程を経て、押圧成形を行う。

この方法によれば、第一の成形工程において円形プリプレグ 31, 32, 33 は切り込み 31b, 32b, 33b を利用してプレス型に正確

に位置決めされるため、均一な品質の成形品を製造することができる。  
また、第二の成形工程では、第一の成形工程で完成品の略半部が半球状に成形されているため、残部をシワが生じることなく先に成形された半部に成形一体化される。

5 上述した実施形態にあつては、上述した2つの成形工程をそれぞれ別個のプレス型を用いて行っているが、例えば、第1プレス型10の扇形突起部10bを可動の駒部材により構成し、或いは第2プレス型11の円形開口部11bに可動式の駒部材を嵌合させることで、上下位置関係に捕らわれず、一組のプレス型によって2段の成形が可能となる。また  
10 、成形品の形状によっては、複数のプリプレグ31、32、33の一部分離片31c、32c、33cを重ね合わせながら、先に第2プレス型11の半球状突起部11cの内面に配置し、次いで第1プレス型10を押し付けて成形することもできる。

更に、プレス型の形態においても、裁断したプリプレグの形状や切り  
15 込みや切り欠きの入れ方によって適宜好適なプレス型を用いることにより、こうした円形以外の成形体の製造も同様に行うことが可能である。

プリプレグとしては、強化繊維を一方向に引き揃えたシートにマトリックス樹脂を含浸させたものや、たて糸又はよこ糸の少なくとも一方に強化繊維を用いた織物にマトリックス樹脂を含浸させたものが好適に用  
20 いられる。

また、強化繊維を一方向に引き揃えたシートからなるプリプレグを、繊維が0°方向と90°方向との2方向となるよう複数層に積層したもの、更には±45°方向に配向したものを積層したもの、或いはこれらを繰り返し積層させたものを用いて成形することもできる。更に、織物  
25 からなるプリプレグにおいても、繊維の配向角度を代えて複数層積層することもできる。こうしたプリプレグの積層体を用いると、多方向にわ

たって強化繊維による強度が得られるため、強度バランスが取りやすい。  
。

強化繊維の種類としては、炭素繊維、ガラス繊維、有機繊維（アラミ  
ド繊維、PBO繊維を含む）、などを用いることが可能である。また、  
5 これらの強化繊維のうち複数を一枚のプリプレグ中に織り込むことや、  
成形時に、異なる強化繊維からなるプリプレグを重ね合わせて同時に成  
形することも可能である。特に、炭素繊維は軽量かつ高強度の成形品が  
得られることから特に好適に用いることができるが、ガラス繊維も、前  
述の繊維の中でも比較的安価に手に入れられるため、同様に好適に用い  
10 られる。

本発明による製造方法によれば、繊維強化複合材料成形品として、半  
球状に限らず、矩形の箱状、紡錘形状、楕円球面状など、様々な立体形  
状の成形に適用できる。さらには、突起や凹部を有する実質的に平板状  
の成形品を製造する際にも応用できる。

15 本発明の製造方法で得られる強化繊維複合材料成形品は、最終製品に  
限定されるものではなく、例えば、容器形状の予備成形品を本発明の方  
法により成形し、その後、成形型内で予備成形品を組み合わせ、内圧成  
形や真空バッグ成形、オートクレーブ成形、圧縮成形などにより最終製  
品とすることも可能である。このときの予備成形品もまた本発明の強化  
20 繊維複合材料成形品の一部である。

上記マトリックス樹脂の種類は、特に制限はなく、エポキシ樹脂、ビ  
スマレイミド樹脂、フェノール樹脂などの熱硬化性樹脂、ポリオレフィ  
ン、ポリビニルアセタールなどの熱可塑性樹脂のいずれも用いることが  
できるが、熱硬化性樹脂を用いると、成形品の強度が向上するので好ま  
25 しい。中でもエポキシ樹脂は、強化繊維との接着強度に優れるので特に  
好ましい。

マトリックス樹脂が熱硬化性樹脂であるプリプレグを用いて、予備成形品から最終製品を製造する場合は、熱硬化性樹脂の未硬化状態を保ちながら、既述した本発明の製造方法によりその予備成形品を成形したのち、この予備成形品をさらに加熱および加圧して硬化成形することによって、最終製品とすることができる。このとき、硬化成形時の最適条件は、熱硬化性樹脂の種類に依存するが、十分硬化させないと、未硬化の樹脂の流動による表面の乱れやピンホールの発生につながる恐れがある。一方で、厳しすぎる条件で成形すると、成形ムラや外観の劣化が激しくなる。

しかし、成形品の生産性を考えると、外観が良好な成形品をできるだけ短時間で得ることが必要である。そこで、より好適な樹脂組成物を用いると短時間での成形が可能となる。

そこで、本発明の強化繊維複合材料成形品においては、以下のA成分、B成分、C成分及びD成分からなるエポキシ樹脂組成物を用いることが好ましい。

A成分：エポキシ樹脂

B成分：分子内に少なくとも一つの硫黄原子を有するアミン化合物（B-1成分）及び／又はエポキシ樹脂と分子内に少なくとも一つの硫黄原子を有するアミン化合物との反応生成物（B-2成分）

C成分：尿素化合物

D成分：ジシアンジアミド

本発明におけるA成分は、エポキシ樹脂である。この例として、2官能性エポキシ樹脂ではビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビフェニル型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、フルオレン型エポキシ樹脂あるいはこれらを変性したエポキシ樹脂等が挙げられる。3官能以

上の多官能性エポキシ樹脂としては、例えば、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾール型エポキシ樹脂、テトラグリシジルジアミノジフェニルメタン、トリグリシジルアミノフェノール、テトラグリシジルアミンのようなグリシジルアミン型エポキシ樹脂、テトラキス（グリシジルオキシフェニル）エタンやトリス（グリシジルオキシメタン）のようなグリシジルエーテル型エポキシ樹脂及びこれらを変性したエポキシ樹脂やこれらのエポキシ樹脂をブロム化したブロム化エポキシ樹脂が挙げられるが、これらに限定はされない。また、A成分として、これらエポキシ樹脂を1種類以上組み合わせて使用しても構わない。

本発明のB成分は、分子内に少なくとも一つの硫黄原子を有するアミン化合物（B-1成分）及び／又はエポキシ樹脂と分子内に少なくとも一つの硫黄原子を有するアミン化合物との反応生成物（B-2成分）である。

B-1成分は分子内に少なくとも一つの硫黄原子を有するアミン化合物であれば特に限定しないが、例として、4, 4'-ジアミノジフェニルスルホン、3, 3'-ジアミノジフェニルスルホン、4, 4'-ジアミノジフェニルスルファイド、ビス（4-（4アミノフェノキシ）フェニル）スルホン、ビス（4-（3アミノフェノキシ）フェニル）スルホン、4, 4'-ジアミノジフェニルスルファイド、o-トリアン

スルホン、及び、これらの誘導体等が好ましく用いられる。

一方、B-2成分は、上述した、エポキシ樹脂と分子内に少なくとも一つの硫黄原子を有するアミン化合物とを反応させた反応生成物である。本発明のエポキシ樹脂組成物においては、A成分とB-1成分とを混合し、反応させることでB-2成分を含む混合物が得られるが、この中からB-2成分を単離して用いる必要は特にない。

また、本発明のエポキシ樹脂組成物を製造する過程において、A成分

と B-1 成分として添加したものの一部又は全部が B-2 成分に変化していてもよい。

更に、これらの場合に、A 成分と B-1 成分のうち的一方又は両方がすべて消費されて B-2 成分に変化してもよい。

5      本発明における C 成分は、尿素化合物である。例えば、ジクロロジメチルウレア、フェニルジメチルウレア、o-トリジンスルホン、ビス(4-(3-アミノフェノキシ)フェニル)スルホン、メソオキサリルウレア、バルビツル酸、ヒドロキシバルビツル酸、ジリツル酸、ピオ  
10      ルル酸、等が好適に用いられる。中でも、C 成分として分子内にハロゲンを有しない化合物、例えばフェニルジメチルウレア等は反応性が高く、毒性も低いので、特に好適に用いることができる。

エポキシ樹脂組成物中の、C 成分の含有率は、1~15 質量%であることが特に好ましい。3 質量%以上であることがさらに好ましく、12 質量%以下であることが好ましい。1 質量%未満であると、短時間では  
15      十分に硬化反応が完了しない場合があり、15 質量%を超えると、室温付近では長期間保存できない恐れがあり、樹脂の保管等の点で好ましくない。

さらに、C 成分として固体のものをを用いる場合は、平均粒径が、150  $\mu\text{m}$  以下、さらに好ましくは 50  $\mu\text{m}$  以下であることが好ましい。平均粒径が 150  $\mu\text{m}$  以下を超えると、粒子の分散速度が低下するため、  
20      結果として硬化反応の速度が低下し、本発明の重要な効果の一つである短時間での硬化が達成できなくなる恐れがある。

本発明における D 成分は、ジシアンジアミドである。このジシアンジアミドはエポキシ樹脂の硬化剤としてはたらき、本発明における他の成分と組み合わせて用いることにより、比較的低温で、短時間での硬化が  
25      できるものである。

本発明においては、エポキシ樹脂組成物中のD成分の含有率は0.1～10質量%であることが好ましい。また、D成分の平均粒径は150 $\mu$ m以下、特に、50 $\mu$ m以下であれば、分散性が良くなって反応速度が速くなるので好ましい。

5 本発明のエポキシ樹脂には、さらに、微粉末状のシリカなどの無機質微粒子、顔料、エラストマー、脱泡剤、難燃剤となる水酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、含臭素化合物又はリン系化合物、ポリビニルフォルマール、ポリビニルアセタール、ポリビニルブチラール、ポリヒドロキシポリエーテルなどの取り扱い性や柔軟性の向上を目的とした熱可  
10 塑性樹脂、硬化反応の触媒となる、イミダゾール誘導体、金属錯体塩又は3級アミン化合物等を適量添加してもよい。

本発明のエポキシ樹脂組成物は、エポキシ樹脂組成物中の硫黄原子の含有率が0.2～7質量%であることが好ましい。0.2質量%未満であると、短時間では硬化成形を完了することが困難となり、7質量%を  
15 超えると、室温付近では長期間保存できない恐れがあり、樹脂の保管等の点で好ましくない。

上述のエポキシ樹脂を用いると、硬化成形を短時間で完了できる。特に、成形時に高い圧力をかけると更に短時間で、硬化が可能になるので、成形方法としては、圧縮成形を用いるのが最も好ましい。圧縮成形を用いる場合は、成形圧力を20kgf/cm<sup>2</sup>以上とすると、15分以内で成形することが可能になり生産性が向上する。特に、80kgf/cm<sup>2</sup>以上で成形すると、5分以内で成形することが可能になるのでさらに好ましい。また、温度条件は、熱硬化性樹脂が硬化する条件であれば、特に制限はないが、130℃以上220℃以下、より好ましくは1  
20 40℃以上180℃以下とすると、成形時間を短縮しつつ、外観の良好性が保たれるの更に好ましい。

25

この圧縮成形による成形によって、複数のプリプレグを積層するなどして、一体硬化した成形品を得ることも可能である。例えば、強化繊維が一方向材である予備成形品を複数重ねたものの上に、強化繊維が織物である予備成形品を重ねて成形する場合や、予備成形品の表面の少なくとも一部にさらにSMCを貼り付けて一体成形することもできる。特にSMCを貼り付けることで、複雑な曲面形状の成形品も製造することが可能となる。

以下、本発明について更に具体的な実施例及び比較例を挙げて説明する。

#### 【実施例】

以下の実施例では、マトリックス樹脂の成分は次のものを用いた。なお、以下で硫黄原子の含有量が記載されていないものは、分子中に硫黄原子を含まない。

Y P D N 7 0 1 : クレゾールノボラック型樹脂 (東都化成 (株) 製 Y D P N - 7 0 1 )

E p 8 2 8 : ビスフェノールA型液状エポキシ樹脂 (ジャパンエポキシレジン (株) 製エピコート828)

E p 8 0 7 : ビスフェノールF型液状エポキシ樹脂 (ジャパンエポキシレジン (株) 製エピコート807)

E p 1 0 0 1 : ビスフェノールA型固体エポキシ樹脂 (ジャパンエポキシレジン (株) 製エピコート1001)

E p 6 0 4 : グリシジルアミン型エポキシ樹脂 (ジャパンエポキシレジン (株) 製エピコート604)

N - 7 4 0 : フェノールノボラック型エポキシ樹脂 (大日本インキ化学工業 (株) 製 E P I C L O N N - 7 4 0 )

D D S : ジアミノジフェニルスルフォン (和歌山精化 (株))

製、セイカキュアーS、硫黄原子含有率、12.9質量%)

BAPS : 4,4'-ジアミノジフェニルジスルフィド (和歌山精化(株)、BAPS、硫黄原子含有率、7.4質量%)

PDMU : 3-フェニル-1,1-ジメチルウレア

5 DCMU : 3,4-ジクロロフェニル-N,N-ジメチルウレア

DICY : ジシアンジアミド (平均粒径  $7\mu\text{m}$ )

PVF : ポリビニルフォルマール (チッソ(株)製 ビニレックE)

10 (実施例1)

本実施例で用いたプリプレグは、三菱レイヨン(株)製炭素繊維「TR50S」を一方向に引き揃えた一方向材に、YDPN701が35重量部、Ep828が59重量部、DICYが4重量部、および、DCMUが2重量部を加熱して混合した樹脂組成物中に硫黄原子を含まないエポキシ樹脂組成物を一方向材の両側から加熱含浸することにより、繊維目付が  $175\text{g}/\text{m}^2$ 、樹脂の含有率が35%の一方向材プリプレグ (炭素繊維含有量56体積%)を得た。そして、この一方向材を、繊維が  $0^\circ$  の方向と  $90^\circ$  の方向とが交互になるように積層した積層体を構成単位1セットのプリプレグとして使用した。

20 先ず、プリプレグ1セットずつを円形に裁断し、図3に示したように構成単位3セットのプリプレグを重ねた。各プリプレグ31, 32, 33の上層から下層にかけて、それぞれの一部分離片31c, 32c, 33cの幅を順に広くなるように切り込み31b, 32b, 33bを形成した。各プリプレグ31, 32, 33の中央部31a, 32a, 33aを、図4に示す第1プレス型10の十文字状半球10aの頂部に載置させて、一部分離片31c, 32c, 33cを前記半球状凹溝部10aの

25

溝面に沿って載置すると共に、残部 3 1 d, 3 2 d, 3 3 d を同プレス型 1 0 の扇形突起部 1 0 b 上の平坦面に載置した。

本実施例においては、最下層の一部分離片 3 3 c の幅と第 1 プレス型 1 0 の扇形突起部 1 0 b 間の間隔とを同じになるように設定して、位置  
5 合わせを行った。ここで、第 1 及び第 2 のプレス型 1 0, 1 1 を嵌合する前に、プリプレグを軟化させるため、赤外線ヒーターを用いて 8 0 ℃で 1 0 秒間加熱した。次いで、図 5 に示す第 2 プレス型 1 1 を前記第 1 プレス型 1 0 に嵌合させて、前記中央部 3 1 a, 3 2 a, 3 3 a を含む  
10 十文字状の一部分離片 3 1 c, 3 2 c, 3 3 c を半球状に押圧成形して、図 8 の示す形状に賦形した。その後、第 1 及び第 2 のプレス型 1 0, 1 1 内をエアブローにより 2 0 ℃まで冷却した後、プリプレグの形状を固定化し脱型した。

脱型したときの形状で固定化されたプリプレグを、図 6 に示す第 3 プレス型 2 0 の半球凸部 2 0 a 上に、同凸部 2 0 a の頂部と前記プリプレグの中央部 3 1 a, 3 2 a, 3 3 a の頂部とを合わせて配置し、赤外線  
15 ヒーターを用いて 8 0 ℃で 1 0 秒加熱して軟化させたのち、図 7 に示す第 4 プレス型 2 1 を被せて扇形残部 3 1 d, 3 2 d, 3 3 d を半球状に湾曲させて前記一部分離片 3 1 c, 3 2 c, 3 3 c の端縁部に重ね合わせて接着し、図 9 に示すような半球状に成形した。その後、プレス型内  
20 をエアブローにより 2 0 ℃まで冷却した後、プリプレグの形状を固定化して脱型し、予備成形品 4 1 を得た。

この予備成形品 4 1 を、シェアエッジ構造を有する図示せぬ圧縮成形用の型の下型にセットして、圧力 4 k g f / c m<sup>2</sup> の荷重をかけて 1 2 0 ℃で 2 時間硬化成形を行い、最終成形品を得た。この最終成形品は切  
25 り込み位置での隙間が塞がれ、一部分離片と残部の積層部が分散されて偏肉が緩和され、積層強度や、外観が良好な、生産安定性に優れる最終

製品を得ることができた。

(実施例 2)

プリプレグとして、三菱レイヨン（株）製炭素繊維 TR 50 S を一方向に引き揃えた一方向材（繊維目付  $125 \text{ g/m}^2$ ）に、以下の組成 5  
0℃で均一になるまで混練して得られたエポキシ樹脂組成物を含浸した  
もの（樹脂含有率 30%）を用いた以外は、実施例 1 と同様にして、予  
備成形品 41 を得た。このエポキシ樹脂組成物の硫黄原子含有率は 0.  
77%である。

(A 成分) Ep 828 : Ep 1001 = 47 : 35 (質量比) の溶融  
10 混合物、82 質量部

(B 成分) DDS、6 質量部

(C 成分) PDMU (平均粒径  $50 \mu\text{m}$ )、5 質量部

(D 成分) DICY、7 質量部

得られた予備成形品には、シワや繊維の乱れは発生せず、きれいな予  
15 備成形品が得られた。

この予備成形品を、シェアエッジ構造を有する図示せぬ圧縮成形用の  
型の下型にセットして、圧力  $80 \text{ kgf/cm}^2$  の荷重をかけて  $140$   
℃で 5 分間硬化成形を行い、最終成形品を得た。切り込み位置での隙間  
が塞がれ、一部分離片と残部の積層部が分散されて偏肉が緩和された、  
20 外観が良好で、生産安定性に優れる最終製品を得ることができた。この  
ように、実施例 1 と同様に優れた成形品が得られたが、特に成形時間 5  
分という短い時間で成形を完了させることができた。

(実施例 3 ~ 10)

エポキシ樹脂として、表 1 の組成からなるエポキシ樹脂組成物を用い  
25 、必要に応じて A 成分と B 成分を予備反応させたこと以外は、実施例 2  
と同様にして予備成形品および最終製品を得た。いずれも、予備成形品

には、シワや繊維の乱れは発生せず、きれいな予備成形品が得られた。

また、最終製品も、外観が良好な成形品が得られた。

【表 1】

| 成分            | 化合物名  | 実施例 3 | 実施例 4 | 実施例 5 | 実施例 6 | 実施例 7 | 実施例 8 | 実施例 9 | 実施例 10 |
|---------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|--------|
| A成分<br>(質量部)  | Ep828 | 86    | 84    | 68    |       |       |       |       | 77     |
|               | Ep807 |       |       |       | 70    | 58    |       |       |        |
|               | Ep604 |       |       |       |       |       | 70    |       |        |
|               | N740  |       |       |       |       |       |       | 70    |        |
| B成分<br>(質量部)  | DDS   | 2     | 4     | 20    | 20    | 20    |       |       | 10     |
|               | BAPS  |       |       |       |       |       | 20    | 20    |        |
| C成分<br>(質量部)  | PDMU  | 5     | 5     | 5     |       |       | 5     | 5     |        |
|               | DCMU  |       |       |       | 3     | 15    |       |       | 5      |
| D成分<br>(質量部)  | DICY  | 7     | 7     | 7     | 7     | 7     | 5     | 5     | 5      |
| 添加剤           | PVF   |       |       |       |       |       |       |       | 3      |
| 硫黄原子含有率 (質量%) |       | 0.26  | 0.52  | 2.58  | 2.58  | 2.58  | 1.48  | 1.48  | 1.29   |

5

(実施例 11～実施例 14)

エポキシ樹脂として、表 2 の組成からなるエポキシ樹脂組成物を用いた以外は、実施例 2 と同様にして予備成形品および最終製品を得た。いずれも、予備成形品は、シワや繊維の乱れは発生せず、きれいな予備成形品が得られた。しかしながら、最終製品は、一見すると平滑であるが、表面に光を当てるとわずかにシワやクモリが見られるような外観であった。

10

【表 2】

| 成分            | 化合物名  | 実施例 11 | 実施例 12 | 実施例 13 | 実施例 14 |
|---------------|-------|--------|--------|--------|--------|
| A成分<br>(質量部)  | Ep828 | 87     | 33     |        |        |
|               | Ep807 |        |        | 72.1   | 57     |
|               | Ep604 |        |        |        |        |
|               | N740  |        |        |        |        |
| B成分<br>(質量部)  | DDS   | 1      | 55     | 20     | 20     |
|               | BAPS  |        |        |        |        |
| C成分<br>(質量部)  | PDMU  | 5      | 5      | 0.9    | 16     |
|               | DCMU  |        |        |        |        |
| D成分<br>(質量部)  | DICY  | 7      | 7      | 7      | 7      |
| 添加剤           | PVF   |        |        |        |        |
| 硫黄原子含有率 (質量%) |       | 0.13   | 7.10   | 2.58   | 2.58   |

(実施例 15)

三菱レイヨン（株）製炭素繊維 T R 5 0 S を一方向に引き揃えたプリ  
プレグに代えて、三菱レイヨン（株）製炭素繊維織物 T R 3 1 1 0（織  
5 維目付 2 0 0 g / m<sup>2</sup>）を用いた以外は、実施例 2 と同様にして、予備  
成形品、および最終製品が得られた。予備成形品には、シワや繊維の乱  
れは発生せず、きれいな予備成形品が得られた。また、最終製品も外観  
が良好な成形品が得られた。

(比較例)

実施例 1 と同じプリプレグを用い、実施例 1 と同様に切り込みを入  
10 れた円形プリプレグ 3 1, 3 2, 3 3 を重ねて、図 6 に示した第 3 プレス  
型 2 0 及び図 7 に示した第 4 プレス型 2 1 のみを用い直接半球状に押圧  
成形した。成形時の条件は実施例 1 と同様とした。その結果、プリプレ  
グがプレス型に引き込まれ、シワや繊維の乱れが発生し、十分な品質の  
予備成形品が得られなかった。

15

【発明の効果】

以上説明したように、本発明の繊維強化複合材料成形品の製造方法に  
あつては、曲率が大きな立体形状であっても、シワが生じることなく、  
且つ均一な品質で効率よく製造することが可能である。更には、マトリ  
20 ックス樹脂として適当なものを選択することで表面は特に外観が良好な  
予備成形品を用いることができる。

本発明の繊維強化複合材料成形品は、最終製品として、ゴルフクラブ  
やヘルメット、さらには、二輪車、自動車、高速車輛、航空機などの外  
板、パソコンや携帯電話等の電子機器の筐体等にも好適に用いることが  
25 できる。

## 請 求 の 範 囲

1. 所定形状に裁断した複数のプリプレグを用いて同時に成形することによる繊維強化複合材料成形品の製造方法であって、

- 5       工程（１）：各プリプレグに複数の切り込み又は切り欠きを形成することにより、プリプレグごとに少なくとも１組の一部分離片と残部とをそれぞれ形成すること、

      工程（２）：各プリプレグの一部分離片を位置決め片として各プリプレグをプレス型の所定部位に配置すること、

- 10       工程（３）：各プリプレグの一部分離片に押圧を付与して所望の立体形状とすること、及び

      工程（４）：前記一部分離片に残部の端縁部分を重ねて、更に押圧して全体を所望の立体形状とすること、  
      を含んでなることを特徴とする繊維強化複合材料成形品の製造方法。

- 15       2. 前記工程（１）において、複数のプリプレグの一部又は全部を積層して積層体とし、この積層体に切り込み又は切り欠きを形成して、プリプレグごとに少なくとも１組の一部分離片と残部とをそれぞれ形成する請求の範囲第１項記載の繊維強化複合材料成形品の製造方法。

- 20       3. 前記工程（１）において、一枚ごとのプリプレグに切り込み又は切り欠きを形成して、プリプレグごとに少なくとも１組の一部分離片と残部とをそれぞれ形成する請求の範囲第１項記載の繊維強化複合材料成形品の製造方法。

- 25       4. 各プリプレグに形成された一部分離片の形状が相似又は合同であり、且つ、その切り込み又は切り欠きの位置を各プリプレグごとにずらしてなる請求の範囲第１～３項のいずれかに記載の繊維強化複合材料成形品の製造方法。

5. 各プリプレグに形成された一部分離片の形状が相似又は合同であり、且つ、同じ位置に重ねられる一部分離片のすべてについて、押圧によって成形品の凹面となる面側に配される一部分離片の幅がそれより凸面となる面側に配される一部分離片の幅よりも狭くならないように、切り込み又は切り欠きを形成する請求の範囲第1～3項のいずれかに記載の繊維強化複合材料成形品の製造方法。
6. 積層される複数のプリプレグにあって、各プリプレグの切り込み又は切り欠きの中心側の切断端同士を互いに2 mm以上離間させて形成する請求の範囲第1～3項のいずれかに記載の繊維強化複合材料成形品の製造方法。
7. 切り込み又は切り欠きにより形成される一部分離片の幅を、平行又は外周部に向けて狭くなるように形成する請求の範囲第1～3項のいずれかに記載の繊維強化複合材料成形品の製造方法。
8. プリプレグに用いられる強化繊維が炭素繊維、ガラス繊維、有機繊維の少なくとも一種類の繊維から選ばれるものである請求の範囲第1～7項のいずれかに記載の繊維強化複合材料成形品の製造方法。
9. プリプレグに用いられる強化繊維が一方向に引き揃えられた一方向材又は織物構造をもつ請求の範囲第1～8項のいずれかに記載の繊維強化複合材料成形品の製造方法。
10. プリプレグに用いられるマトリックス樹脂が熱硬化性樹脂である請求の範囲第1～9項のいずれかに記載の繊維強化複合材料成形品の製造方法。
11. 前記熱硬化性樹脂がエポキシ樹脂組成物である請求の範囲第10項記載の繊維強化複合材料製品の製造方法。
12. 前記エポキシ樹脂組成物が、以下のA成分、B成分、C成分及びD成分からなる請求の範囲第11項記載の繊維強化複合材料の製造方法

。

A成分：エポキシ樹脂

B成分：分子内に少なくとも一つの硫黄原子を有するアミン化合物（  
B－1成分）及び／又はエポキシ樹脂と分子内に少なくとも一つの硫黄  
5 原子を有するアミン化合物との反応生成物（B－2成分）

C成分：尿素化合物

D成分：ジシアンジアミド

1 3．前記エポキシ樹脂組成物中の硫黄原子及びC成分の含有率が、そ  
れぞれ0.2～7質量％及び1～15質量％である請求の範囲第12項  
10 記載の繊維強化複合材料製品の製造方法。

1 4．C成分が平均粒径150  $\mu$ m以下の粒状物である請求の範囲第1  
2又は13項記載の繊維強化複合材料成形品の製造方法。

1 5．請求の範囲第10～14項のいずれかに記載の繊維強化複合材料  
成形品の製造方法を用いて得られる繊維強化複合材料成形品であって、  
15 前記熱硬化性樹脂が未硬化である繊維強化複合材料予備成形品。

1 6．請求の範囲第10～14項記載の繊維強化複合材料成形品の製造  
方法を用いて得られる繊維強化複合材料成形品であって、熱硬化性樹脂  
が硬化している繊維強化複合材料成形品。

1 7．請求の範囲第16項記載の繊維強化複合材料予備成形品を、  
20 工程（5）：さらに加熱および加圧して硬化成形する繊維強化複合材  
料成形品の製造方法。

1 8．前記工程（5）を圧縮成形により行う請求の範囲第17項記載の  
繊維強化複合材料成形品の製造方法。

1 9．圧縮成形時の成形圧力が20 kgf/cm<sup>2</sup>以上、成形時間が1  
25 5分以内である請求の範囲第18項記載の繊維強化複合材料成形品の製  
造方法。

20. 圧縮成形時の成形温度が120℃以上である、請求の範囲第16又は19項記載の繊維強化複合材料成形品の製造方法。

21. 請求の範囲第17～20項のいずれかに記載の繊維強化複合材料成形品の製造方法を用いて、積層した複数枚のプリプレグを一体硬化して得られる繊維強化複合材料成形品。

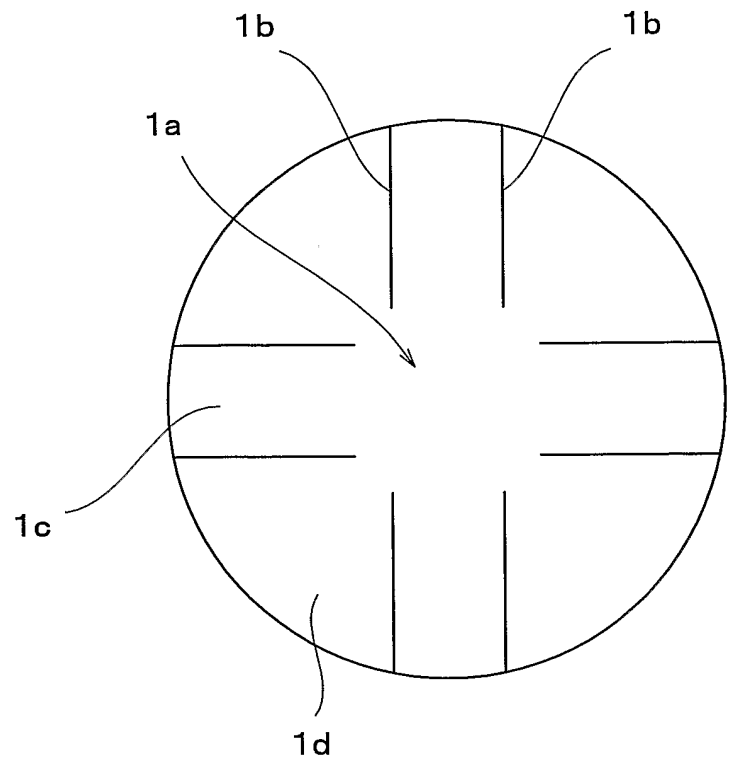
10

15

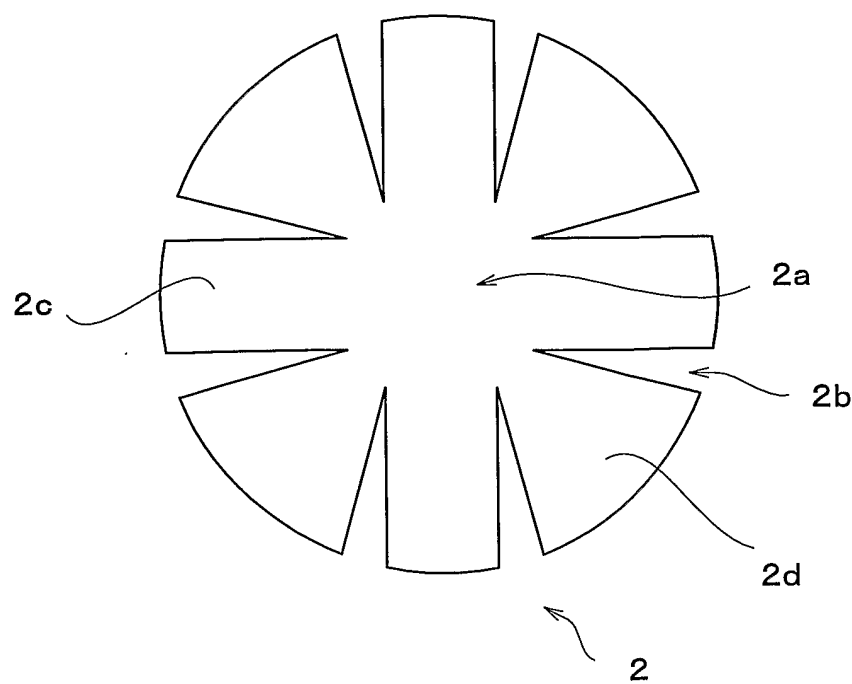
20

25

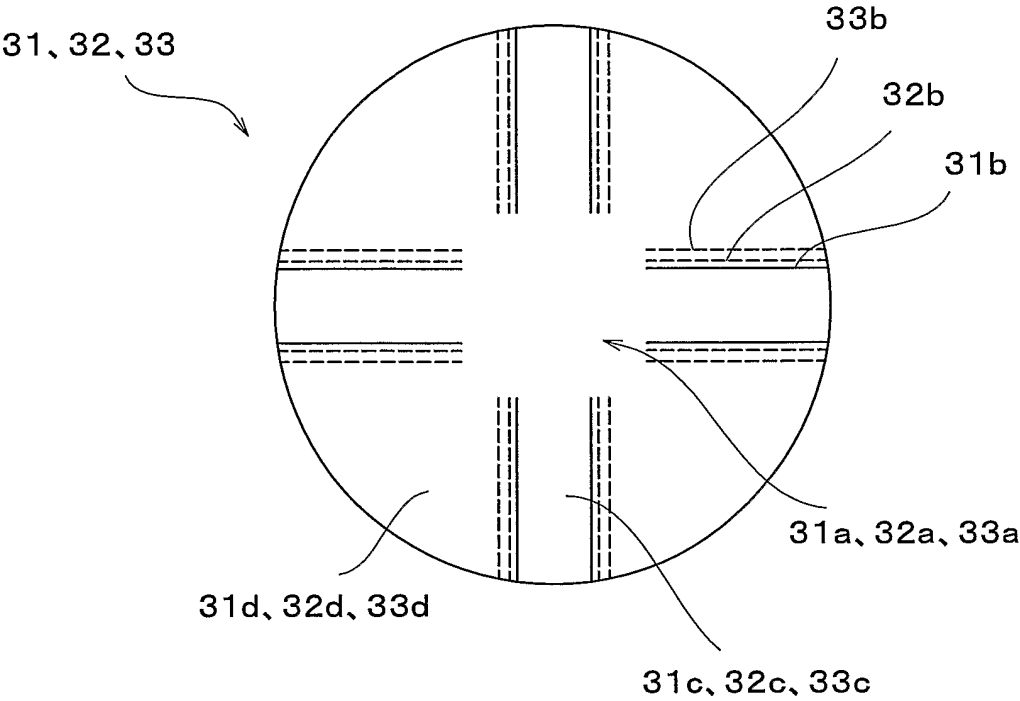
第1図



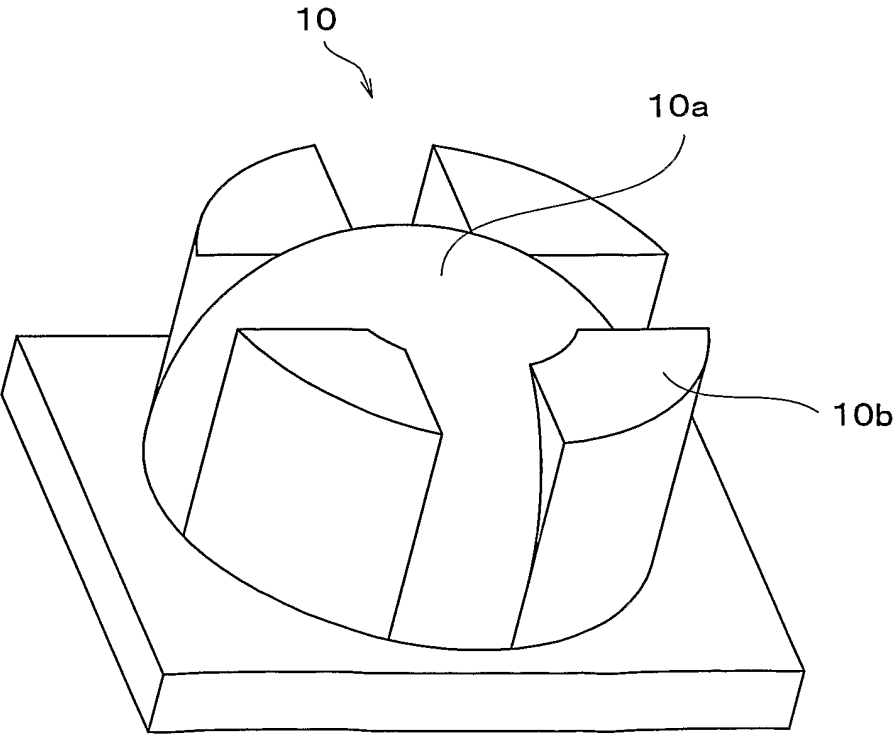
第2図



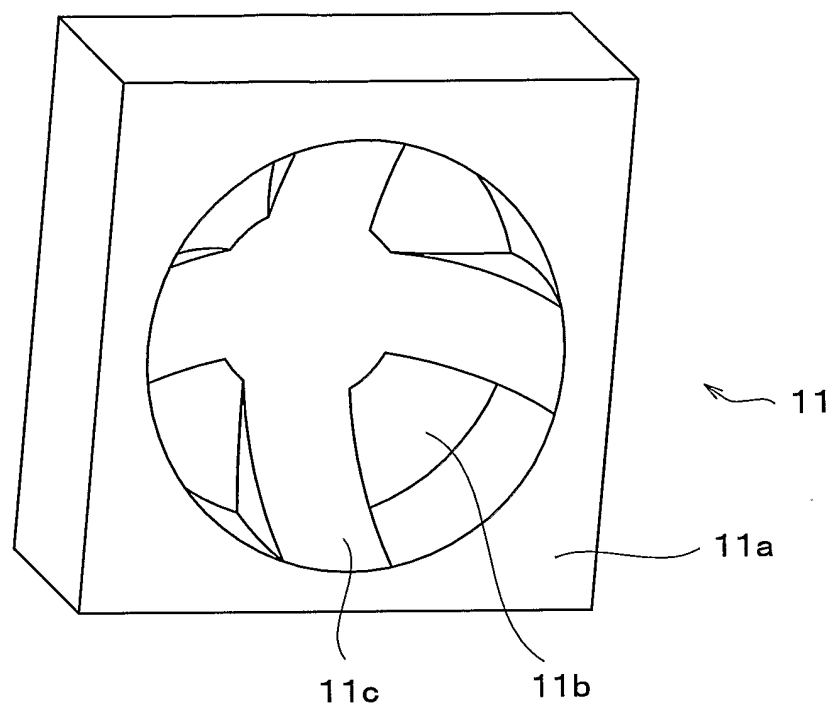
第3図



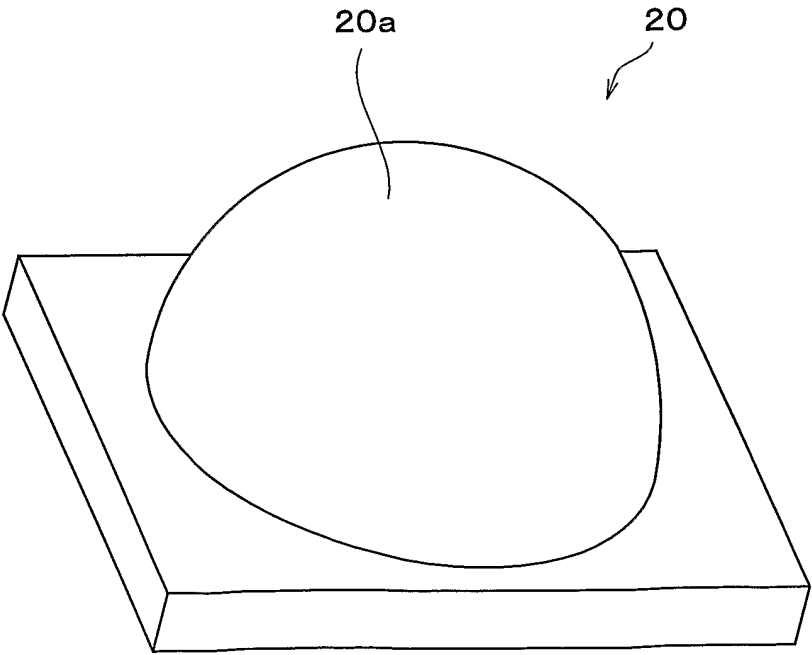
第4図



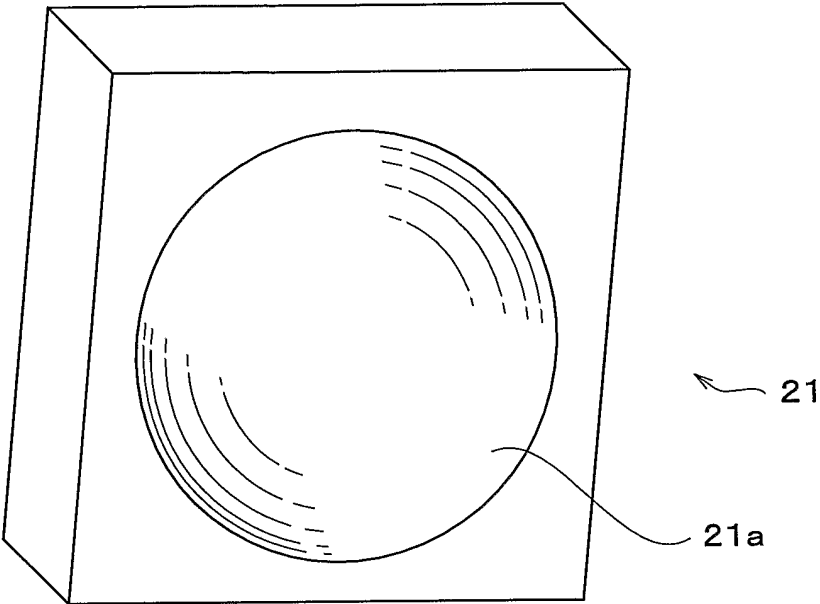
第5図



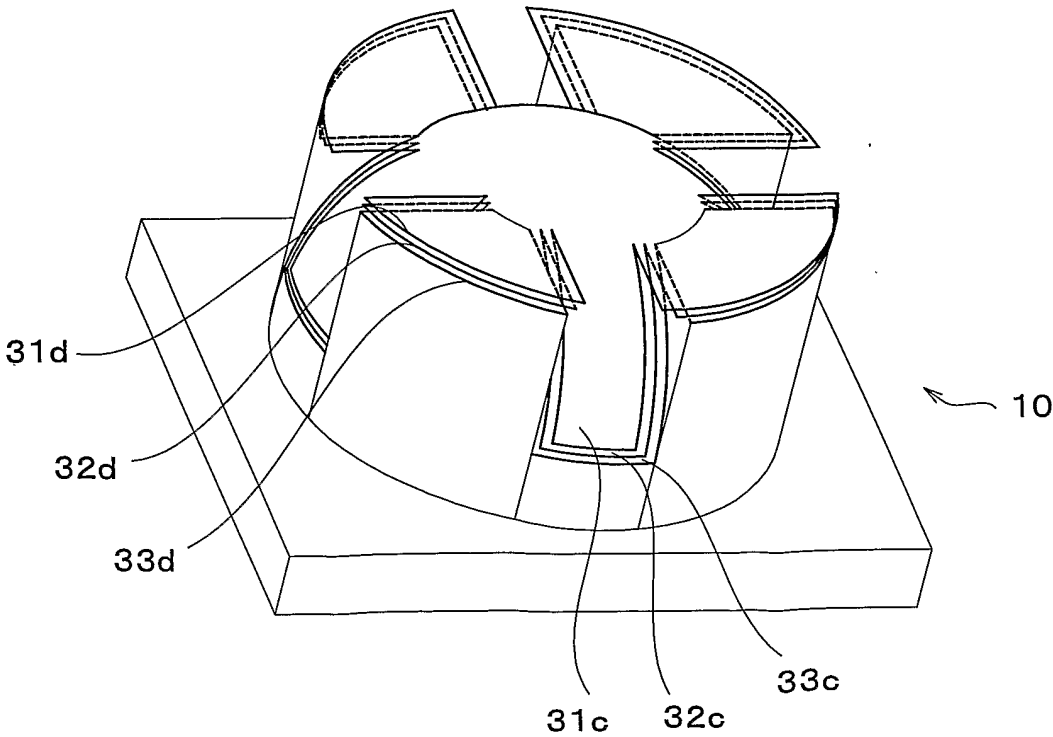
第6図



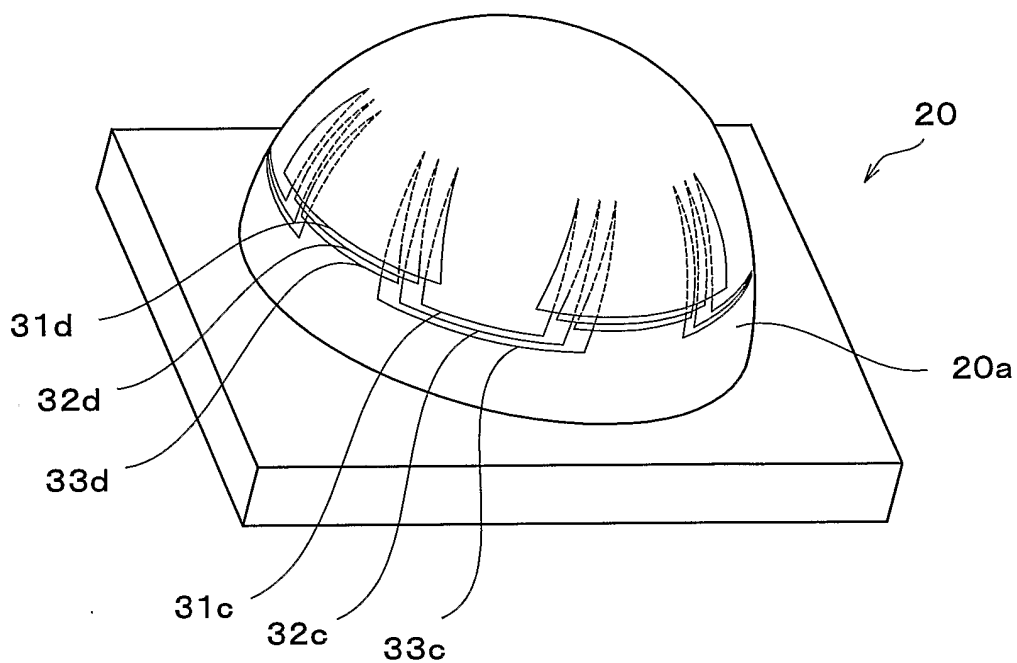
第7図



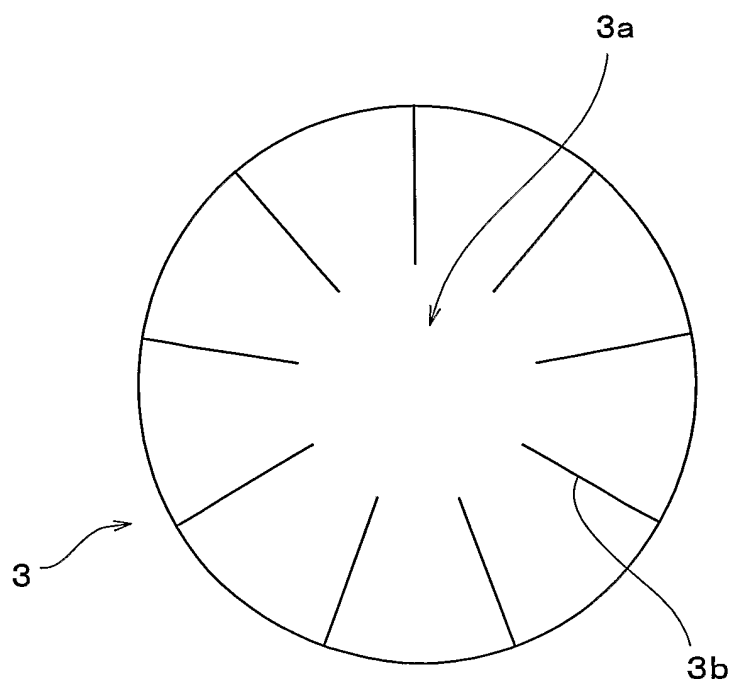
第8図



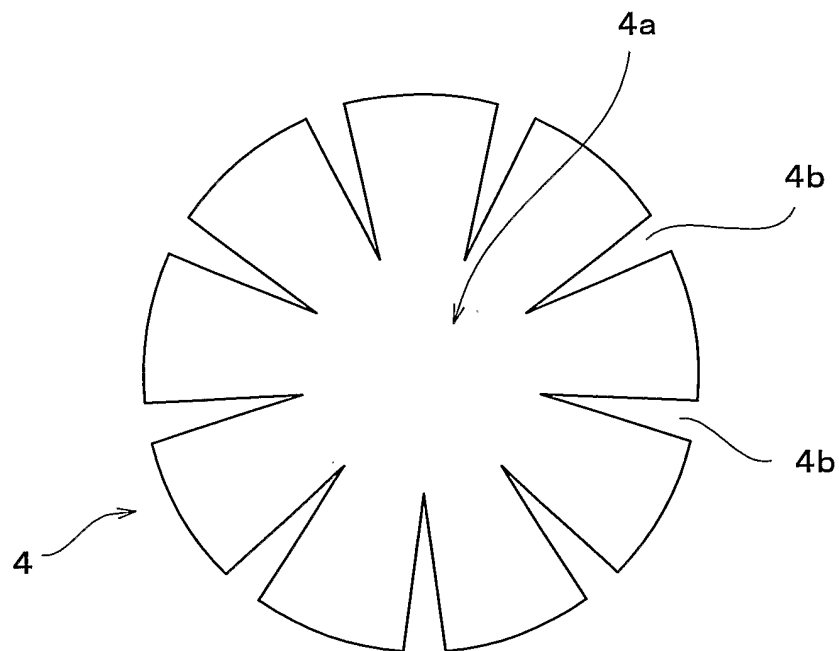
第9図



第10図



第11図



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.  
PCT/JP03/10516

| <b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b><br>Int.Cl <sup>7</sup> B29C70/68                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                               |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |                                                                                    |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------|
| According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                         |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |                                                                                    |
| <b>B. FIELDS SEARCHED</b><br>Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)<br>Int.Cl <sup>7</sup> B29C70/68-70/86                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |                                                                                    |
| Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched<br>Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2003<br>Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2003 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2003                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |                                                                                    |
| Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |                                                                                    |
| <b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |                                                                                    |
| Category*                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                 | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                       | Relevant to claim No.                                                              |
| Y<br>A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    | JP 61-106227 A (Sumitomo Bakelite Co., Ltd.),<br>24 May, 1986 (24.05.86),<br>Claims; examples; Figs. 1 to 10<br>(Family: none)                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           | 15-21<br>1-14                                                                      |
| Y<br>A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    | JP 8-509921 A (The Dow Chemical Co.),<br>22 October, 1996 (22.10.96),<br>Claims; description, page 7, examples<br>& WO 94/26492 A & US 5427725 A<br>& EP 697945 A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                        | 15-21<br>1-14                                                                      |
| <input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          |                                                                                    |
| * Special categories of cited documents:<br>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance<br>"E" earlier document but published on or after the international filing date<br>"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)<br>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means<br>"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<br>"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<br>"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<br>"&" document member of the same patent family |                                                                                    |
| Date of the actual completion of the international search<br>25 November, 2003 (25.11.03)                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                 |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          | Date of mailing of the international search report<br>09 December, 2003 (09.12.03) |
| Name and mailing address of the ISA/<br>Japanese Patent Office                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                            |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          | Authorized officer                                                                 |
| Facsimile No.                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             |                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          | Telephone No.                                                                      |

|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                           |                                                                                                               |                  |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------|
| A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))<br>Int. Cl. 7 B29C70/68                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |                                                                                                               |                  |
| B. 調査を行った分野<br>調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))<br>Int. Cl. 7 B29C70/68-70/86                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   |                                                                                                               |                  |
| 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<br>日本国実用新案公報 1926-1996年<br>日本国公開実用新案公報 1971-2003年<br>日本国登録実用新案公報 1994-2003年<br>日本国実用新案登録公報 1996-2003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<br>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<br>請求の範囲の番号 |
| Y<br>A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    | JP 61-106227 A (住友ベークライト株式会社) 1986.05.24、特許請求の範囲、実施例、図1-10 (ファミリーなし)                                          | 15-21<br>1-14    |
| Y<br>A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    | JP 8-509921 A (ザ ダウ ケミカル カンパニー) 1996.10.22、特許請求の範囲、明細書第7頁、実施例<br>& WO 94/26492 A & US 5427725 A & EP 697945 A | 15-21<br>1-14    |
| <input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input 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<br>「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<br>「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<br>「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)<br>「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献<br>「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願<br>の日の後に公表された文献<br>「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<br>「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<br>「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<br>「&」 同一パテントファミリー文献 |                                                                                                               |                  |
| 国際調査を完了した日<br>25.11.03                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                    | 国際調査報告の発送日<br>09.12.03                                                                                        |                  |
| 国際調査機関の名称及びあて先<br>日本国特許庁 (ISA/JP)<br>郵便番号100-8915<br>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)<br>井上 雅博 印                                                                                   | 4F 8516          |
| 電話番号 03-3581-1101 内線 3430                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                 |                                                                                                               |                  |