

(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
2017年9月21日(21.09.2017)

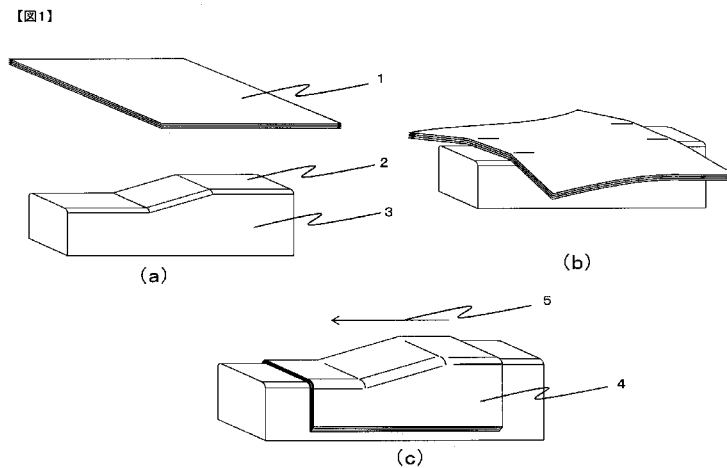


(10) 国際公開番号
WO 2017/159567 A1

- (51) 国際特許分類:
B29C 70/10 (2006.01) *B32B 27/30* (2006.01)
B29B 11/16 (2006.01) *C08J 5/04* (2006.01)
B29C 70/06 (2006.01) *C08J 5/24* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/009750
- (22) 国際出願日: 2017年3月10日(10.03.2017)
- (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 2016-051892 2016年3月16日(16.03.2016) 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: 藤田 雄三(FUJITA, Yuzo); 〒7913193 愛媛県伊予郡松前町大字筒井1515番地 東レ株式会社 愛媛工場内 Ehime (JP). 内藤 悠太(NAITO, Yuta); 〒7913193 愛媛県伊予郡松前町大字筒井1515番地 東レ株式会社 愛媛工場内 Ehime (JP). 武田 一郎(TAKETA, Ichiro); 〒7913193 愛媛県伊予郡松前町大字筒井1515番地 東レ株式会社 愛媛工場内 Ehime (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, DJ, 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, KH, KN, KP, KR, KW, 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).
- 添付公開書類:
 — 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: MANUFACTURING METHOD FOR FIBER-REINFORCED PLASTIC AND FIBER-REINFORCED PLASTIC

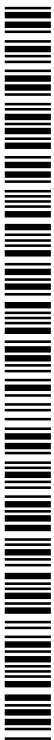
(54) 発明の名称: 繊維強化プラスチックの製造方法および繊維強化プラスチック



(57) Abstract: This manufacturing method for a fiber-reinforced plastic includes: a lamination step for obtaining a pre-preg laminated body by laminating a plurality of sheets of a pre-preg group containing a notched pre-preg, wherein the notched pre-preg is made by inserting, in a pre-preg including a reinforced fiber arranged in one direction and a resin, a plurality of notches dividing the reinforced fiber in at least a portion of an area of the pre-preg; a shape step for obtaining an approximately mold-shaped pre-form by placing the pre-preg laminated body on an upper surface of a mold including an upper surface and a side surface or a lower surface of a mold including a lower surface and a side surface, and bending and shaping along the side surface; and a solidification step for placing the pre-form in a mold differing from the mold used in the shape step for solidifying. Provided is the manufacturing method for the fiber-reinforced plastic exhibiting excellent surface quality and mechanical characteristics by hot forming.

(57) 要約:

[続葉有]



WO 2017/159567 A1



一方向に配向した強化繊維と樹脂とを含むプリプレグの、少なくとも一部の領域に強化繊維を分断する複数の切込が挿入されたプリプレグを切込プリプレグとすると、切込プリプレグを含むプリプレグ群を、複数枚積層してプリプレグ積層体を得る積層工程と、プリプレグ積層体を、上面と側面を含む型の上面に配置又は下面と側面を含む型の下面に配置し、側面に沿って曲げ賦形し、略型形状としたプリフォームを得る賦形工程と、賦形工程で用いた型とは異なる型にプリフォームを配置し、固化する、固化工程を含む、繊維強化プラスチックの製造方法。ホットフォーミングにより、優れた表面品位と力学特性を発現する繊維強化プラスチックの製造方法を提供する。

明 細 書

発明の名称：

繊維強化プラスチックの製造方法および繊維強化プラスチック

技術分野

[0001] 本発明は、高い力学特性を有する繊維強化プラスチックおよびその製造方法に関する。

背景技術

[0002] 強化繊維と樹脂とからなる繊維強化プラスチックは、比強度、比弾性率が高く、力学特性に優れること、耐候性、耐薬品性などの高機能特性を有することなどから産業用途においても注目され、航空機、宇宙機、自動車、鉄道、船舶、電化製品、スポーツ等の構造用途に展開され、その需要は年々高まりつつある。

[0003] 航空機等の構造部材に用いられる繊維強化プラスチックは高い力学特性が要求され、連続した強化繊維に樹脂を含浸したプリプレグの積層体を、所定の形状に賦形しプリフォームとし、プリフォームをオートクレーブ等で固化して成形される。

先行技術文献

特許文献

[0004] プリフォームを得る手段として、広幅のプリプレグを繊維方向に裁断して細幅に分割したスリットテーププリプレグを、自動機を用いて連続的に積層させるオートファイバープレースメントと呼ばれる方法が知られている（例えば、特許文献1）。実質二次元変形した細幅のスリットテーププリプレグを並べることで、複雑な3次元形状であっても賦形可能としている。

[0005] 安価な広幅のプリプレグを用い、かつ生産性の高い賦形工程を実現するために、予め自動機を用いて高速に平板状に積層したプリプレグの積層体を、熱を加えながら型に押し付けて三次元形状に賦形していく、ホットフォーミングと呼ばれる賦形方法が開発されている（例えば、特許文献2）。

特許文献1：国際公開2009/052263号公報

特許文献2：国際公開96/06725号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] しかしながら、特許文献1の技術では、スリットテーププリプレグは所望の形状に並べるのに時間を要し生産性が低く、広幅のプリプレグを裁断してスリットテーププリプレグとする工程が増えるため材料費自体も高くなるという問題があった。

[0007] また、特許文献2の技術では、ホットフォーミングでプリプレグ積層体を三次元形状に賦形する際、三次元形状に追従しきれずにシワが発生する、あるいは強化繊維が突っ張り、型との間で強化繊維を含まない樹脂リッチ部が発生する問題がある。シワや樹脂リッチ部は繊維強化プラスチックの表面品位や力学特性を低下させる欠陥となり得るため、シワのないプリフォームへ賦形することが重要である。

[0008] 本発明の課題は、かかる背景技術における問題点に鑑み、ホットフォーミングによりシワのないプリフォームへと賦形することができ、繊維強化プラスチックとした際に高い力学特性を発現する繊維強化プラスチックの製造方法を提供することである。また、本発明の別の課題は、複雑形状を有しながらも、高い力学特性を有する繊維強化プラスチックを提供することである。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明の繊維強化プラスチックの製造方法は、かかる課題を解決するために、次の構成を有する。すなわち、

一方向に配向した強化繊維と樹脂とを含むプリプレグの、少なくとも一部の領域に強化繊維を分断する複数の切込が挿入されたプリプレグを切込プリプレグとすると、切込プリプレグを含むプリプレグ群を、複数枚積層してプリプレグ積層体を得る積層工程と、

プリプレグ積層体を、上面と側面を含む型の上面に配置又は下面と側面を含む型の下面に配置し、側面に沿って曲げ賦形し、略型形状としたプリフォ

ームを得る賦形工程と、

賦形工程で用いた型とは異なる型にプリフォームを配置し、固化する、固化工程を含む、繊維強化プラスチックの製造方法、である。

[0010] また、本発明の繊維強化プラスチックは、次の構成を有する。すなわち、樹脂と強化繊維とを含み、平面部と曲面部とを有する繊維強化プラスチックであって、

繊維強化プラスチックは、少なくとも一部が分断された強化繊維が一方向に配向し、かつ強化繊維の配向方向に隣接する繊維束間に樹脂部Pが存在し、

樹脂部Pの端部同士を結んだ線分が、強化繊維の配向方向に対して斜めに配置された樹脂部Pを有する層を層Aとするとき、繊維強化プラスチックは曲面部の内周よりも外周に近い側に層Aを含む繊維強化プラスチック、である。

[0011] 本発明の繊維強化プラスチックの製造方法は、前記切込プリプレグは、切込プリプレグの前記領域内から任意に選択される、10個の直径10mmの円形の小領域内に含まれる切込の個数を母集団とした場合に、母集団の平均値が10以上、かつ変動係数が20%以内であることが好ましい。

[0012] 本発明の繊維強化プラスチックの製造方法は、切込と強化繊維の配向方向とのなす角度 θ の絶対値が、実質的に同一であり、 θ が正である正切込と θ が負である負切込を略同数含み、任意の切込と、当該切込の延長線上に存在する最近接する別の切込との間隔について、正切込同士の間隔と負切込同士の間隔とで長さが異なることが好ましい。

[0013] 本発明の繊維強化プラスチックの製造方法は、プリフォームに面外変形が少なくとも一つ含まれ、該面外変形の高さがプリプレグ積層体の平均厚みの0.5倍以上3倍以下であることが好ましい。

[0014] 本発明の繊維強化プラスチックの製造方法は、賦形工程において、略型形状としたプリフォームの少なくとも一部に対して、せん断力を加えながら前記型に押し付けて平坦化することが好ましい。

[0015] 本発明の繊維強化プラスチックは、層Aの面内の任意の樹脂部Pにおいて、該樹脂部Pの輪郭と接し、距離が最短となる2本の平行線を描いたとき、平行線の距離の平均値が0.2mm以下であることが好ましい。

[0016] 本発明の繊維強化プラスチックは、層A中の樹脂部Pの体積の合計が、該層Aの体積の5%以下であることが好ましい。

発明の効果

[0017] 本発明によれば、ホットフォーミングでプリフォームをシワなく賦形し、優れた表面品位と力学特性を有する繊維強化プラスチックを製造することができる。

図面の簡単な説明

- [0018] [図1]プリフォーム作製方法の概念図である。
[図2]側面に凹凸のある型の概念図である。
[図3]型の長手方向の断面形状の例である。
[図4]切込プリプレグの概念図である。
[図5]切込プリプレグにおける切込パターンの例である。
[図6]賦形工程における面外変形の概念図である。
[図7]本発明の繊維強化プラスチックの概念図である。
[図8]樹脂部Pの概念図である。
[図9]実施例に用いた型である。
[図10]曲げ賦形方法の概念図である。

発明を実施するための形態

[0019] 本発明者らは、航空機等の構造部材に適用可能な、力学特性に優れた繊維強化プラスチックを、一方向に配向した強化繊維と樹脂とを含むプリプレグ複数枚積層してプリプレグ積層体を得る積層工程と、プリプレグ積層体を、上面と側面を含む型の上面に配置又は下面と側面を含む型の下面に配置し、側面に沿って曲げ賦形し、略型形状としたプリフォームを得る賦形工程と、賦形工程で用いた型とは異なる型にプリフォームを配置し、固化する、固化工程を含むホットフォーミングによって製造するために、鋭意検討し、プリ

プリプレグ積層体を、少なくとも一部の領域に強化繊維を分断する複数の切込が挿入された切込プリプレグを含むプリプレグ群で構成することで、かかる課題を解決することを究明したものである。

[0020] 本発明の繊維強化プラスチックの製造方法は、積層工程、賦形工程、固化工程を含む。そして積層工程とは、一方向に配向した強化繊維と樹脂とを含むプリプレグ（以下、一方向プリプレグという場合がある）の、少なくとも一部の領域に強化繊維を分断する複数の切込が挿入されたプリプレグを切込プリプレグとした時に、切込プリプレグを含むプリプレグ群を、複数枚積層してプリプレグ積層体を得る工程をいう。後述するようにプリプレグ積層体を構成するプリプレグ群は、切込プリプレグを含みさえすれば特に限定されず、切込プリプレグのみから構成された態様であっても、一部に切込プリプレグを含む態様であっても特に限定されない。プリプレグ積層体は、成形対象とする繊維強化プラスチックの目標厚みに対応して部分的に積層枚数が異なるものであってもよい。なお、切込プリプレグにおいて、強化繊維を分断する複数の切込を有する領域を、以下、切込領域という。予めプリプレグ全面に切込を挿入し、全面を切込領域とした切込プリプレグの方が、生産しやすく、汎用性が高いため好ましい。切込領域内では、全ての強化繊維が切込によって分断されていても、切込によって分断されない強化繊維を含んでいても良い。凹凸形状の多い複雑な形状へと賦形する場合は、切込領域内で全ての強化繊維が切込によって分断されていることが好ましい。

[0021] 図1は、プリプレグ積層体1を型の上面2に押し当てて配置し、側面3に沿って曲げ賦形することで、略型形状のプリフォーム4へと賦形するホットフォーミングの賦形工程の概念図を示している。図1の型を上下反転させた型を用いる場合、上面2が下面となり、賦形工程では下面の下に基材を配置し、側面へ曲げ賦形してもよい。型は上面と側面を含みさえすれば、他の面を含んでいてもよい。略型形状のプリフォームとは、プリプレグ積層体が曲げ賦形により上面または下面と側面を含む形状へと賦形されたプリプレグ積層体であり、型から取り外す前は、型と接していても良く、型から浮いた部

分が存在していても良い。型から取り外す前で型から浮いている部分が存在する場合は、略型形状のプリフォームとは、プリプレグ積層体の型側の面の80%以上が、型の表面との距離がプリプレグ積層体の平均厚みの3倍以下にある状態を指す。

[0022] 賦形工程に用いる型は、上面と側面とを有しさえすれば、特に限定されない。つまりプリプレグ積層体を押し付ける型は、図1のように、上面に凹凸があってもよく、図2のように側面に凹凸があってもよい。上面と側面のどちらにも凹凸があってもよく、型の長手方向5が曲線であってもよい。プリフォーム曲面部を含む切断面が、例えば図3(a)のようなC型、図3(b)のようなL型、図3(c)のようなZ型のいずれかの断面が型の長手方向5に連なる型を用いて賦形してもよい。図3(a)のC型の型については、側面が上面に対して直角な面でなくてもよい。図3(b)のL型形状への賦形については、上面を片方の面、側面をもう片方の面としても良いし、上面を2つの面の交わる稜線部とし、2つの面を側面としてもよい。図3(c)のZ型形状のように、上面、側面とは異なる面を含んでおり、C型やL型のように上面に対して両側に側面があるのではなく、上面に対して片側のみに側面が存在していてもよい。

[0023] 賦形工程では、加熱されたプリプレグ積層体を側面に沿って曲げ賦形を行うことで、略型形状のプリフォームとする。賦形工程では、熱源を有するチャンバー内やヒーター近傍で曲げ賦形を行うことでプリプレグ積層体を加熱することが好ましい。通常プリプレグ積層体の曲げ賦形を行う際、内周と外周の周長差が生じるため、プリプレグ層間を滑らせながら型の凹凸に合わせて面内変形する必要がある。切込を有さない一方向プリプレグは強化繊維の配向方向（以下、単に繊維方向という場合がある）には変形しないため、層間滑りとともに面内変形したとしても形状追従できない場合があるが、切込プリプレグは繊維方向も伸張しながら面内変形が可能のため、一方向プリプレグと比べて形状追従性が向上している。したがって、プリプレグ積層体として、切込プリプレグを含むプリプレグ群を用いることで、繊維方向へも伸

張を許容し、曲げ賦形時の凹凸形状への形状追従性が向上する。プリプレグ積層体を構成するプリプレグ群は、切込プリプレグを含みさえすれば特に限定されず、プリプレグ積層体を構成するプリプレグ群のうち、全てが切込プリプレグであってもよいし、繊維方向への伸張が必要なプリプレグのみに切込が挿入されていても良い。

[0024] 賦形工程において、曲げ賦形する方法は、密封空間で減圧吸引を行うことで型に押し付けても良いし、プリプレグ積層体を型に押し付けるための押さえを用いて賦形しても良い。あるいは、手作業で賦形しても良い。

[0025] 略型形状のプリフォームを作製した後の固化工程では、繊維強化プラスチック表面の樹脂欠け等の欠陥を抑制し外観品位を向上させるために、賦形工程で用いた型とは異なる型にプリフォームを配置して固化することが好ましい。また、略型形状のプリフォームに面外変形が含まれていたとしても、固化時には面外変形が面内に吸収され、面外変形のない繊維強化プラスチックを得ることができる。固化工程に用いる型は、プリフォームの外周形状を想定した形状であってもよく、樹脂の熱収縮や流動を考慮して外周形状を修正した形状であってもよい。また、プリフォームに用いた型にプリフォームを配置したまま、雌型をかぶせる態様も含まれる。固化方法は、樹脂が熱硬化樹脂の場合は、ボイド等の欠陥を抑制するために、オートクレーブを用いて硬化することが好ましいが、真空圧を併用して加熱温度をコントロールしながら固化させる方法でもよい。

[0026] 本発明に用いられる切込プリプレグにおいて、切込は高密度かつ均一に分布していることが好ましい。すなわち、少なくとも一部の領域に強化繊維を分断する複数の切込が挿入されたプリプレグを切込プリプレグとした時に、切込プリプレグの前記切込領域内から任意に選択される、10個の直径10mmの円形の小領域内に含まれる切込の個数を母集団とした場合に、母集団の平均値が10以上、かつ変動係数が20%以内であることが好ましい（以下、母集団の平均値が10以上の状態を高密度、変動係数が20%以内の状態を均質と表現する）。前記低密度の切込分布と同じ本数の強化繊維を切込に

より分断する場合でも、高密度で切込が分布している場合は一つ一つの切込を小さくすることができ、そうすることにより、切込プリプレグが伸張する際に一つ一つの切込の開口を最小限に抑え、固化した際の繊維強化プラスチックの力学特性が低下せず、また、表面品位が向上する。また、均一に切込が分布することで、切込プリプレグの局所的な伸張の偏りを抑制し、力学特性および、表面品位を向上させる効果がある。切込によって分断される強化繊維長さは力学特性の観点からは10mm以上が好ましい。切込によって分断される強化繊維長さはより好ましくは15mm以上、さらに好ましくは20mm以上である。切込を細かく高密度で挿入することで、強化繊維の長さが15mm以上の長い切込プリプレグとすることができ、三次元形状の追従性と良好な表面品位を保ちつつ、一つ一つの切込が小さいことによる、力学特性低下の抑制、および強化繊維が長いことによる力学特性の向上という相乗効果が期待できる。

[0027] 図4(a)はプリプレグに複数の切込7が挿入された切込領域8を含む切込プリプレグ6の概念図を示しており、図4(b)は切込領域8内で直径10mmの円形の小領域9を10箇所抽出した様子を示している。小領域は、切込領域内から小領域が重ならない程度に密に抽出することが好ましいが、切込領域が小領域を10個全て重ならず抽出するのに十分なサイズでない場合には、小領域同士が重なるように抽出しても良い。ただし、前述の母集団の平均値と変動係数をより精度よく測るために、切込領域の境界を越えて小領域が設定してはならない。切込領域の境界は、全ての切込が含まれるように切込の端部同士を結ぶ線分を繋げた線分群であって、かつ該線分群の長さの合計が最小となる線分群とする。

[0028] 小領域内に含まれる切込みの個数とは、小領域内に存在する切込と、小領域の輪郭に一部が接触する切込の合計数とする。なお、前述の母集団の平均値と前述の母集団の変動係数は、10個の小領域内の切込数を n_i ($i = 1 \sim 10$) とすると、それぞれ式1、式2で計算される。

[0029]

[数1]

$$\text{平均値} = \frac{1}{10} \sum_{i=1}^{10} n_i \quad \dots \text{式1}$$

[0030] [数2]

⋮
式2

$$\text{変動係数} = \frac{1}{\text{平均値}} \sqrt{\frac{1}{10} \sum_{i=1}^{10} (n_i - \text{平均値})^2}$$

[0031] 高密度で切込を挿入する方法として、強化繊維の配向方向に直角な平面に投影した長さを投影長さWsとすると、Wsを1mmよりも小さくする方法

が挙げられる。賦形工程または固化工程にて、伸張に伴い切込開口部に繊維を流入させて切込開口部を見えにくくさせることができる。 W_s が小さいほど、この効果を顕著に引き出すことができるため、好ましい。

[0032] 切込のパターンとしては、単に W_s を小さくするだけでなく、図5(a)のように任意の近接する切込 S_1 に最近接する切込 S_2 が同一強化繊維を分断しないことが好ましい。最近接する切込同士で分断された強化繊維は、比較的短い強化繊維となってしまいうため、繊維強化プラスチックとした際に力学特性を低下させる要因となる。また、切込 S_1 と最近接する切込 S_2 との間に、切込 S_1 と切込 S_2 のどちらによっても分断されていない強化繊維が存在することで、繊維強化プラスチックとした際に、切込 S_1 と切込 S_2 が損傷により連結しにくくなり、力学特性が向上する。

[0033] 切込 S_1 と切込 S_2 の間の強化繊維が、切込 S_1 および切込 S_2 に最近接していない切込によって分断されていてもよいし、切込 S_1 と切込 S_2 の間の強化繊維が、切込によって分断されていなくてもよい。最近接する切込に挟まれる帯部の幅 l_0 は、強化繊維の直角方向に、切込を強化繊維に直角な平面に投影した投影長さ W_s の0.5倍以上であることが好ましく、より好ましくは W_s の1倍以上である。

[0034] 高密度に切込を分布させた切込プリプレグでは、切込同士の距離が近くなり、最近接する切込同士が同一の強化繊維を分断してしまった際には非常に短い強化繊維が混入してしまう可能性があるため、最近接する切込同士が同一の強化繊維を分断しないように間隔を設けることで、高密度な切込パターンであっても短い強化繊維の混入を抑制し、安定した力学特性を発現させることができる。

[0035] さらに好ましい切込パターンとしては、切込は実質的に同一の長さ Y （以下、 Y を切込長さともいう）であり、最近接する切込同士の距離は、 Y の0.5倍よりも長い切込プリプレグが挙げられる。ここで、実質的に同一の長さとは、全ての切込長さが全切込長さの平均値 $\pm 5\%$ 以内であることをいう（以下同じ）。なお、本発明において切込は、直線状でも曲線状でもよく、

いずれの場合でも切込の端部同士を結ぶ線分を切込長さ Y とする。

[0036] 最近接する切込同士の距離とは、最近接する切込同士の最短距離を意味する。最近接する切込同士の距離が近い場合、繊維強化プラスチックに損傷が入った場合に、損傷が切込同士を連結しやすくなるため、最近接する切込同士の距離が、切込長さ Y の0.5倍より大きいことが好ましい。最近接する切込同士の距離は、より好ましくは Y の0.8倍以上、さらに好ましくは Y の1.2倍以上である。一方で、最近接する切込同士の距離に上限は特にないが、プリプレグに高密度な切込を付与するにあたり、最近接する切込同士の距離が切込長さ Y の10倍以上とすることは容易ではない。

[0037] 高密度に切込が分布する切込プリプレグにおいては、三次元形状追従性は向上し、一つ一つの切込が小さいことによる力学特性の向上が見込めるが、切込同士の距離が近い場合よりも切込同士が離れている方が力学特性はさらに向上する。したがって、密に切込を挿入した場合には、切込同士の距離を空けた切込パターン、すなわち最近接する切込同士の距離を、切込長さ Y の0.5倍より大きくすることが力学特性向上のために特に重要となる。さらに、図5(a)のように切込領域内で全ての強化繊維を分断し賦形性を向上させた切込プリプレグの場合、最近接する切込同士の距離 11 を、切込長さ Y の0.5倍よりも大きく空け、かつ最近接する切込同士が同一の強化繊維を分断しないことで、三次元形状への追従正および表面品位を損なわずに、最大限に力学特性を発現できる。

[0038] さらに好ましい切込パターンとしては、切込が、強化繊維の配向方向に対して、斜めに挿入されている切込プリプレグが挙げられる。切込が曲線状の場合は、切込の端部同士を結ぶ線分が、強化繊維の配向方向に対して斜めであることを指す。切込を、強化繊維の配向方向に対して斜めとすることで、切込プリプレグの三次元形状追従性や繊維強化プラスチックとした際の力学特性を向上することができる。強化繊維の配向方向と切込のなす角度を θ とすると、 θ が $2 \sim 60^\circ$ であることが好ましい。特に θ の絶対値が 25° 以下であることで力学特性、中でも引張強度の向上が著しく、かかる観点から

θ の絶対値が 25° 以下がより好ましい。賦形工程では切込プリプレグが伸張するに伴い θ が小さくなる場合がある。 θ が小さくなるほど切込プリプレグ伸張時の切込開口が小さいため表面品位が良好となり、さらに、プリフォームを固化した繊維強化プラスチックの力学特性が高くなる。 θ の絶対値が 2° 以上であることがより好ましい。この好ましい範囲であると、刃で切込を入れる際、強化繊維が刃から逃げやすくなることはなく、切込の位置精度を担保しながら挿入することが可能である。なお、切込は直線状でも曲線状でもよく、曲線状の場合は切込の端部同士を結ぶ線分と強化繊維の配向方向とのなす角を θ とする。

[0039] 高密度に切込が分布する場合に限らず、 θ の絶対値が小さくなるほど、力学特性の向上が見込める一方、特に切込領域内で全ての強化繊維を分断する場合に、切込同士が近くなり、切込で発生した損傷が連結しやすく力学特性が低下する懸念もある。しかし、任意の切込と、当該切込に最近接する別の切込とは、同一の強化繊維を分断していないこと、かつ切込は、実質的に同一の長さ Y であり、最近接する切込同士の距離が、 Y の 0.5 倍よりも長く制御すると、切込が強化繊維の配向方向に対して直角な場合と比較して、さらなる力学特性の向上が見込めるので好ましい。特に、切込が高密度の場合は、力学特性の向上と共に、切込開口の抑制による表面品位の向上が見込めるので好ましい。

[0040] 本発明における切込プリプレグの好ましい態様として、切込と強化繊維の配向方向とのなす角度 θ の絶対値が、実質的に同一であり、さらに θ が正である正切込と θ が負である負切込を略同数含む切込プリプレグが挙げられる。 θ の絶対値が実質的に同一とは、全ての切込において角度 θ が、全切込における角度 θ の平均値 $\pm 1^\circ$ 以内のずれであることをいう。正切込と負切込を略同数含むとは、 θ が正となる切込の数と θ が負となる切込の数が略同数であることを意味する。そして、 θ が正となる切込の数と θ が負となる切込の数が略同数とは、数を基準とした百分率で示した時に、正の角となる θ の数と負の数となる θ の数がいずれも 45% 以上 55% 以下であることをいう。

(以下同じ)。切込プリプレグ内に正切込だけでなく、負切込も挿入することで、切込プリプレグが伸張時に正切込近傍で面内せん断変形が発生した場合に、負切込近傍では逆向きのせん断変形が生じることによりマクロとして面内のせん断変形を抑制し伸張させることができる。

[0041] 図5 (b) のように正切込12と負切込13を互いに交互に配置することで、高い密度で切込を挿入しながらも、近接する切込間の距離を確保しやすくなる。切込と強化繊維の配向方向とのなす角度 θ の絶対値が実質的に同一であり、正切込と負切込が略同数となる切込パターンであれば、通常の連続繊維プリプレグと同様の扱いで積層が可能となり、正切込または負切込のみを含む切込プリプレグの場合とは異なって、積層手順を制御する手間が増えるのを防ぐことができる。

[0042] さらに好ましくは、正切込と負切込を略同数含み、任意の切込と、当該切込の延長線上に存在する最近接する別の切込との間隔について、正切込同士の間隔と負切込同士の間隔とで長さが異なる、切込プリプレグである。図5 (b) で正切込12は直線14上に、負切込13は直線15上に配置されており、直線14上での正切込の間隔は直線15上での負切込の間隔よりも小さくなっている。このような切込の配置にすることで、均質・高密度かつ近接する切込間の距離を確保することができ、最近接する切込が同一の強化繊維を分断しない切込パターンを作成することが可能である。さらに、任意の切込と、当該切込の延長線上に存在する最近接する別の切込との間隔について、正切込同士の間隔と負切込同士の間隔とで長さが同一の場合よりも強化繊維の長さを長くすることが可能であり、高密度で切込が分布されていても力学特性を維持することが可能である。なお、切込の延長線上に切込が存在するとは、切込を延長した直線と対象となる切込同士の最も近接する点同士を結んだ直線との角度が 1° 以内であることを指す。

[0043] 任意の切込と、当該切込の延長線上に存在する最近接する別の切込との間隔について、正切込同士の間隔と負切込同士の間隔とで長さが異なる切込パターンとすることで、高密度であっても強化繊維の長さをより長くすること

ができ、さらに切込領域内で全ての強化繊維を分断する場合にも、任意の切込と、当該切込に最近接する別の切込とは、同一の強化繊維を分断せず、最近接する切込同士の距離が切込長さYの0.5倍よりも長い切込パターンが得やすくなる。これにより、より効果的に、表面品位と三次元形状追従性を損なわずに、力学特性を向上させることができる。このことから、正切込と負切込が略同数挿入されており、任意の切込と、当該切込の延長線上に存在する最近接する別の切込との間隔について、正切込同士の間隔と負切込同士の間隔とで長さが異なり、任意の切込と、当該切込に最近接する別の切込とは、同一の強化繊維を分断せず、最近接する切込同士の距離が切込長さYの0.5倍よりも長く、切込領域にて実質的に全ての強化繊維が繊維長さ15mm以上に分断されている切込パターンが、三次元形状追従性、表面品位、力学特性の観点から、特に好ましい。

[0044] 本発明において、プリプレグおよび切込プリプレグに含まれる樹脂は、熱可塑性樹脂でも熱硬化性樹脂でもよく、熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリアミド(PA)、ポリアセタール、ポリアクリレート、ポリスルホン、ABS、ポリエステル、アクリル、ポリブチレンテレフタレート(PBT)、ポリカーボネート(PC)、ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリフェニレンスルフィド(PPS)、ポリエーテルエーテルケトン(PEEK)、ポリエーテルイミド(PEI)、ポリエーテルケトンケトン(PEKK)、液晶ポリマー、塩ビ、ポリテトラフルオロエチレンなどのフッ素系樹脂、シリコンなどが挙げられる。熱硬化性樹脂としては、樹脂が熱により架橋反応を起こし少なくとも部分的な三次元架橋構造を形成するものであればよい。これらの熱硬化性樹脂としては、不飽和ポリエステル樹脂、ビニルエステル樹脂、エポキシ樹脂、ベンゾオキサジン樹脂、フェノール樹脂、尿素樹脂、メラミン樹脂およびポリイミド樹脂等が挙げられる。これらの樹脂の変形および2種以上のブレンドの樹脂を用いることもできる。また、これらの熱硬化性樹脂は熱により自己硬化する樹脂であってもよいし、硬化剤や硬化促進剤等を含むものであってもよい。

- [0045] 本発明においてプリプレグおよび切込プリプレグに含まれる強化繊維は、ガラス繊維、ケブラー繊維、炭素繊維、グラファイト繊維またはボロン繊維等であってもよい。この内、比強度および比弾性率の観点からは、炭素繊維が好ましい。
- [0046] プリプレグ積層体中の強化繊維の体積含有率 V_f は 70%以下とすることで切込部の強化繊維のずれがおき、ブリッジングを効果的に抑制し、形状追従性とポイド等の成形不具合の抑制効果を得ることができる。かかる観点から V_f が 70%以下であることがより好ましい。また、 V_f は低いほどブリッジングは抑制できるが、 V_f が 40%より小さくなると、構造材に必要な高力学特性が得られにくくなる。かかる観点から V_f が 40%以上であることがより好ましい。より好ましい V_f の範囲は 45~65%、さらに好ましくは 50~60%である。
- [0047] プリプレグおよび切込プリプレグは強化繊維へ部分的に樹脂を含浸させた（すなわち、一部を未含浸とした）プリプレグを用いて製造してもよい。強化繊維に部分的に樹脂を含浸させた切込プリプレグを用いることで、プリプレグ内部の強化繊維の未含浸部が面内の流路となり、積層の際に切込プリプレグの層間に閉じ込められた空気や切込プリプレグからの揮発成分などの気体が切込プリプレグ外に排出されやすくなる（このような気体の流路を脱気パスと呼ぶ）。含浸率は 10~90%が好ましい。この好ましい範囲であると、強化繊維と樹脂の間で剥離が生じ難く、切込プリプレグ積層時に未含浸部で切込プリプレグが二つに割れてしまうこともないなど作業性に優れ、成形中の含浸時間を長く取らなくともポイドが残り難い。かかる観点から、含浸率の範囲のより好ましい上限は 70%であり、さらに好ましい上限は 50%であり、含浸率の範囲のより好ましい下限は 20%である。
- [0048] 本発明においてプリプレグおよび切込プリプレグは、その表面に樹脂層が存在しても良い。切込プリプレグの表面に樹脂層が存在することで、切込プリプレグを積層した際に、切込プリプレグ同士の間層間樹脂層が形成される。これにより、面外衝撃荷重が加わった際、クラックが柔軟な層間樹脂層

に誘導され、かつ熱可塑性樹脂の存在により靱性が高いため剥離が抑制されることで、面外衝撃後の残存圧縮強度を高くすることができ、航空機などの高い安全性が要求される主構造用材料として適する。

[0049] 本発明の好ましい態様としてプリフォームに面外変形が少なくとも一つ含まれ、該面外変形の高さがプリプレグ積層体の平均厚みの0.5倍以上3倍以下であることが挙げられる。

[0050] プリプレグ積層体の平均厚みは、賦形前の平板状のプリプレグ積層体を先端が平坦となっているラチェット式マイクロメーターを用いて測定圧5Nで計った厚みとし、プリプレグ積層体の端部を3箇所計った厚みの平均値とする。プリフォームの面外変形とは、図6のように曲げ賦形後のプリフォームの端面16を見た際に、端面の凸部と平坦部のように高低差のある箇所の高さの差17の最大値を意味する。凸部と平坦部だけでなく、凹部が存在すれば、凹部と平面部、凹部と凸部のいずれかの高さの差（シワとも言う）とする。つまり、賦形工程におけるプリプレグ積層体の面外変形とは、賦形中のプリプレグ積層体の端部における、高さの差の最大値を意味する。

[0051] 切込のない一方向プリプレグの場合、面外変形を面内に吸収することができないため、プリフォームに面外変形が存在すると、固化した際に、外観品位の悪い繊維強化プラスチックとなる。本発明では、面外変形をプリプレグ積層体の平均厚みの0.5倍以下とすることが困難な場合でも、固化工程にて面外変形を面内に吸収することができるため、プリフォームに面外変形が存在していても外観品位の良い繊維強化プラスチックを得ることができる。特に、図6に示したフランジ26のように、固化時に高い圧力を与えられる箇所に有効な方法である。ただし、面外変形が大きすぎる場合は面内に吸収しきれないため、面外変形の高さはプリプレグの平均厚みの3倍以下が好ましい。プリフォームに面外変形の残存を許容することで、プリフォームの面外変形をなくす労力を削減することができ、繊維強化プラスチックの生産性が向上する。

[0052] また、賦形工程において、常にプリプレグ積層体の面外変形がプリプレグ

積層体の平均厚みの3倍以下となるように曲げ賦形することが好ましい。さらに好ましくは1倍以下である。プリプレグ積層体の面外変形をコントロールする具体的な方法としては、型にプリプレグ積層体を面外方向に圧縮する押さえが複数個所存在する装置を用い、面外変形をセンサー等で検知しながら押さえを制御し、賦形してもよく、目視で厚み変化を確認しながら、手で面外変形が大きい箇所を押さえながら曲げ賦形してもよい。予備の曲げ賦形テストもしくはシミュレーションを行い、賦形工程中に面外変形がプリプレグ積層体の平均厚みの3倍以下を保つようにプリプレグ積層体を押さえつける箇所やタイミングを決定してもよい。

[0053] 本発明のさらに好ましい態様として、賦形工程において、略型形状としたプリフォームの少なくとも一部に対して、せん断力を加えながら前記型に押し付けて平坦化することが好ましい。本発明では、上記のようにプリフォームに面外変形が存在していても外観品位の良い繊維強化プラスチックを得ることができるが、固化工程にて雌型にプリフォームをセットする際、圧力の与えにくい側面に面外変形が存在する場合は、予めプリフォームの面外変形を平坦化してもよい。切込の入っていないプリプレグ群のみで構成されたプリプレグ積層体の場合、プリプレグ積層体が繊維方向に伸張しないため、プリフォームの面外変形を消すことができず、凹凸が残ってしまうが、切込プリプレグでは、型にプリフォームを押さえつけて、面外方向にせん断力を加えることで、面外変形を面内に吸収させて平坦化することができる。

[0054] 図6は、面外変形を含むプリフォーム4に、せん断力18を加えながら型に押さえつける概念図を示している。せん断変形は面外変形を伸ばす方向であることが好ましい。具体的にせん断力を加える方法としては、ローラー等で型を押しても良いし、手作業で擦りながら面外変形を平坦化してもよい。この平坦化を行う工程では、プリプレグ積層体が軟化する温度領域で行うことが、プリプレグ積層体の面内が変形しやすく、好ましい。賦形工程でプリプレグ積層体の面外変形をプリプレグ積層体の平均厚みの3倍以下とすることで、さらにせん断力によって面外変形を平坦化しやすく、好ましい。なお

、略型形状としたプリフォームに対して、せん断力を加えながら型に押し付けて平坦化する際には、プリフォームの全体に対してせん断力を加えながら型に押し付けて平坦化することも可能であるが、大きな凹凸を有する特定の箇所のみせん断力を加えながら型に押し付けて平坦化すれば十分である。

[0055] 上記のように、本発明においては、プリフォームの面外変形を許容して固化する場合と、平坦化してから固化する場合があり、どちらの方法を選択するかは、固化工程において、面外変形が発生した箇所に与えられる圧力が大きい場合、例えば3MPa以上の圧力をかけられる場合は面外変形を許容してもよいが、大きな圧力を与えられない場合は予め面外変形を平坦しておくことが好ましい。

[0056] 本発明は、航空機の桁材等に好ましく適用可能であり、優れた力学特性を有し、曲面を含む繊維強化プラスチックも提供する。すなわち、樹脂と強化繊維とを含み、平面部と曲面部とを有する繊維強化プラスチックであって、繊維強化プラスチックは、少なくとも一部が分断された強化繊維が一方向に配向し、かつ強化繊維の配向方向に隣接する繊維束間に樹脂部Pが存在し、樹脂部Pの端部同士を結んだ線分が、強化繊維の配向方向に対して斜めに配置された樹脂部Pを有する層を層Aとするとき、繊維強化プラスチックは曲面部の内周よりも外周に近い側に層Aを含む繊維強化プラスチックである。このような本発明の繊維強化プラスチックの製造方法は特に限定されないが、例えば、前述の積層工程、賦形工程、固化工程を含む本発明の製造方法によって得ることができる。

[0057] 本発明において、曲面部とは、繊維強化プラスチックの外径の曲率半径が1～100mmである箇所を指す。

[0058] 本発明の繊維強化プラスチックにおいて、層Aは複数層存在してもよく、複数の層Aが存在する場合、各層Aにおいて強化繊維の配向方向は同じでも異なってもよい。層Aを除く部分において強化繊維の配向状態は特に限定されないが、一方向に配向した方が、強化繊維の体積含有率を上げることができ、また強化繊維の配向方向の力学特性が顕著に高くなるため好ましい

- 。
- [0059] なお、本発明の繊維強化プラスチックの厚み方向を横切る断面を観察した際、強化繊維がランダムに配向している場合は強化繊維の断面が線状から円状まで様々な形をとり得るが、強化繊維が一方向に配向している場合は強化繊維の断面が同一となる。例えば、繊維方向に対して直角な断面では円、繊維方向に対して斜めな断面では楕円となる。本発明では、繊維強化プラスチックの厚み方向を横切る断面において、厚み方向に視認できる層が存在しており、該層内において、無作為に選んだ100個の強化繊維の断面の長径の変動係数が20%以下である場合に、該層に存在する強化繊維は一方向に配向しているとみなす。また本発明の繊維強化プラスチックにおいて層Aは、強化繊維の配向方向（以後、繊維方向という）に隣接する繊維束間に樹脂部Pが存在する。短繊維から成る繊維強化プラスチック内で、繊維方向に隣接する繊維束間に樹脂部Pが存在する場合、樹脂部は受け持つ荷重が低く、損傷の起点となりやすい。したがって、樹脂部はせん断応力によって隣接する繊維束間の荷重を伝達するために、樹脂部Pの端部同士を結んだ線分は、強化繊維の配向方向に対して斜めに配置されていることが好ましい。さらに、全ての強化繊維の長さが10mm～50mmの範囲内であることが好ましい。
- [0060] 本発明の繊維強化プラスチックの曲面部における剛性を向上させるために、本発明の繊維強化プラスチックは、樹脂部Pを含む層Aを、その曲面部の内周側よりも外周側に近い部位に含むことで曲面部も隅々まで強化繊維が充填される。
- [0061] また、繊維強化プラスチックへ負荷が与えられた際、曲面部には高い応力が発生しやすく、損傷しやすいため、曲面部における層Aの厚さを、平面部における層Aの厚さよりも薄くすることで、樹脂部Pも薄くなり、損傷を抑制することができ、好ましい。
- [0062] 本発明の繊維強化プラスチックは予め強化繊維が一方向に並んだプリプレグに切込を挿入して得た切込プリプレグを含むプリプレグ積層体から成形さ

れてもよいし、短繊維を一方向に並べ、樹脂を含浸させたプリプレグを用いても良い。

[0063] 本発明の繊維強化プラスチックのさらに好ましい態様としては、層Aの面内の任意の樹脂部Pにおいて、該樹脂部Pの輪郭と接し、距離が最短となる2本の平行線を描いたとき、平行線の距離の平均値が0.2mm以下の繊維強化プラスチックである。

[0064] 樹脂部Pの輪郭と接し、距離が最短となる2本の平行線の距離を樹脂部Pの幅とすると、樹脂部Pの幅が小さいほど、樹脂部Pを挟んで隣接する強化繊維同士の荷重伝達が効率よく行われて好ましい。樹脂部Pの幅の平均値は0.15mm以下であることがより好ましい。

[0065] 樹脂部Pの幅の平均値とは、図7のように層Aの表面を研磨機等で削り出し、その表面をデジタル顕微鏡等の撮影装置を用いて撮影することで得られる画像から樹脂部Pを10個抽出し、樹脂部Pの幅の平均値を計算することで得られる。樹脂部Pの幅は、図8に示すように樹脂部Pの輪郭と接する2本の平行線の距離27であるが、2本の平行線を描く手段は、画像を印刷した後手書きで描いてもよいし、デジタル顕微鏡に備わっている計測手段を用いてもよい。

[0066] 本発明の繊維強化プラスチックのさらに好ましい態様としては、層A中の樹脂部Pの体積の合計が、層Aの体積の5%以下の繊維強化プラスチックである。樹脂部Pに関して繊維強化プラスチックの全体の体積の5%以下であることが好ましく、より好ましくは3%以下である。この好ましい範囲であると、繊維強化プラスチックの表面品位を悪化させることはなく、構造物中の欠陥となることもない。また、曲面部における樹脂部Pの体積の割合は、曲面部における層Aの体積の0.1%以上であることが好ましい。この好ましい範囲であると、強化方向に隣接する強化繊維間で樹脂が充填せずにボイド等が発生する可能性が低く、力学特性の低下を防ぐことができる。

[0067] 層Aにおける樹脂部Pの体積は、樹脂部Pが厚み方向に同じ形状であると仮定し層Aの表面から計測される樹脂部Pの面積を用いて計算する。樹脂部

P 1つの面積は、樹脂部Pの幅と、樹脂部Pの長さの積の $1/2$ と定義する。樹脂部Pの長さは、図8に示すように樹脂部Pの輪郭と接し、距離が最長となる2本の平行線の距離とする。層Aの表面 $10\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ の領域を観察し、該領域内に存在する全ての樹脂部Pの面積の合計(mm^2)が層Aにおける樹脂部Pの体積率(%)となる。

実施例

[0068] 以下、実施例により本発明をさらに具体的に説明するが、本発明は、実施例に記載の発明に限定されるものではない。

[0069] <プリプレグ積層体の作製>

“トレカ” (商標登録) プリプレグシートP3052S-15 (強化繊維: T700S、樹脂: 2500、強化繊維の体積含有率: 56%、片面離型紙を積層) に、所定の位置に刃を配置した回転刃ローラーに押し当てて、プリプレグを貫通する切込を挿入した。切込領域はプリプレグ全域とし、全ての強化繊維を切込によって切断した。いずれの実施例においても、 $200\text{ mm} \times 200\text{ mm}$ の切込プリプレグの樹脂を 400°C にて焼き飛ばした際、 200 mm の強化繊維が残っておらず、全ての強化繊維が分断されていることを確認した。

[0070] プリプレグ積層体を構成するプリプレグ群は全て切込プリプレグとした。積層工程にて、 $150\text{ mm} \times 150\text{ mm}$ の正方形の一辺と該辺と直角な辺をそれぞれ 0° 、 90° とすると、切込プリプレグの強化繊維の配向方向が、 $[+45^\circ / 0^\circ / -45^\circ / 90^\circ]_{2s}$ となるように積層し、積層後30分間の真空引きにより密着させ、 $150\text{ mm} \times 150\text{ mm}$ のプリプレグ積層体を得た。

[0071] <切込分布評価>

切込プリプレグの表面を倍率10倍のデジタルマイクロスコープで複数枚撮影し、画面上で画像を連結し、切込プリプレグの表面 $50\text{ mm} \times 50\text{ mm}$ を画面上に表示させ、計測ソフトウェアを用いて直系 10 mm の円を、ボーリングのピンの配置のように、隣接する3つ円の中心が正三角形を描くよう

に10個描いた。隣接する円の中心間距離は12mmとした。各円に含まれる、もしくは接する切込の数をカウントして母集団とし、母集団の平均値と変動係数を算出した。

[0072] <賦形性評価>

図9の上面と側面を含み、C型の断面が長手方向に続く形状の型の上面に、プリプレグ積層体の0°が長手方向となるようにプリプレグ積層体を配置し、側面に沿って曲げ賦形し、略形状のプリフォームを得た。賦形方法は図10のように、板の上に型を置き、その上にプリプレグ積層体を置き、バグフィルムで密封後に真空引きを行いバグフィルムが型に吸い寄せられると同時にプリプレグ積層体が曲げ賦形される方法とした。面外変形が生じた場合は手作業でせん断力を加えながら型に押し付けて、平坦化した。この賦形工程は、60℃に温調されたオープンの中で行った。型は、図9中のhが2mmの型と6mmの型を準備した。完成したプリフォームの三次元形状追従性について、以下の3段階で評価した。

A：一度目の曲げ賦形で形状に追従することができた。

B：一度目の曲げ賦形後は面外変形が生じたが、せん断力を与えながら型に押し付けることで面外変形を平坦化することができた。

C：一度目の曲げ賦形後は面外変形が生じたので、せん断力を加えながら型に押し付けたが、面外変形を平坦化することができず、面外変形が残った。

[0073] <繊維強化プラスチックの表面品位>

上記プリフォームを型から取り外し、曲げ賦形に用いた型とは別の雌型にセットし、型ごとバグフィルムで被って真空引きを行いながらオートクレーブで130℃、1.5時間で硬化した。製造された繊維強化プラスチックの表面を目視で確認し、以下の3段階に分けた。強化繊維のうねりとは、繊維強化プラスチックの表面において、強化繊維の配向に乱れが生じ、表面品位を悪化させているものを指す。

A：切込の開口がほとんど認識できず、強化繊維のうねりも発生していない

B：切込の開口が認識されるが、強化繊維のうねりが発生していない

C：強化繊維のうねりが発生している。

[0074] <強化繊維の配向状態評価>

得られた繊維強化プラスチックにおいて、図9における型の上面の傾斜のある箇所の中央部を長手方向に垂直な平面で切断し、矩形の断面を得た。さらに、上面に相当する箇所を10mm×10mmで切り出し、曲面部において外周に近い側となっている8層について、強化繊維の断面形状を観察した。各層において、無作為に選んだ100個の強化繊維の断面の長径を計測し、長径の変動係数が20%以下の場合に、該層は強化繊維が一方向であるとみなした。

[0075] <樹脂部Pの幅の測定>

強化繊維の配向状態評価で、強化繊維が一方向であるとみなされた層に対して、表層から順番に研磨機で層の表面を削りだした。樹脂部Pが確認できた層について、10個ずつ樹脂部Pの幅を測定して平均値を算出した。

[0076] <樹脂部Pの体積割合測定>

樹脂部Pの幅の測定と同時に、樹脂部Pの長さの測定を行った。10mm×10mmの正方形の表面の画像内に含まれる全ての樹脂部Pの幅×長さ×1/2の和を計算し、100mm²で割ることで、層Aに含まれる樹脂部Pの体積の割合を計算した。

[0077] <力学特性>

曲面部を有する繊維強化プラスチックの強度比較が困難であるため、平板状の試験片を準備し引張試験を行った。350mm×350mmに切り出した切込プリプレグを積層構成が[+45°/0°/-45°/90°]_{2s}となるように積層し、オートクレーブで130℃、1.5時間で硬化させた。

[0078] 平板成形後、0°方向が長手方向となるように、25mm×250mmの試験片を切り出し、ASTM D3039(2008)に規定された方法で引張試験を行った。測定した試験片の数は各水準5本とし、引張弾性率および引張強度の平均値を代表値として算出した。

[0079] (実施例1)

切込パターンが図5 (a) に示すパターンで、分断された強化繊維の長さは20 mm、切込を強化繊維の配向方向に直角な平面に投影した投影長さ $W_s = 5$ mm、切込と強化繊維の配向方向とのなす角度 θ が 45° の切込プリプレグでプリプレグ積層体を構成した。

[0080] 切込分布評価では、母集団の平均値は1.6、変動係数は32%であった。

[0081] 賦形性評価では、 $h = 2$ mmの場合は問題なく賦形できたが、 $h = 6$ mmの場合は平坦化できず、面外変形が残った。硬化後の繊維強化プラスチックの表面品位は $h = 2$ mmの場合も $h = 6$ mmの場合も切込の開口が見られた。力学特性は切込のない場合とくらべて非常に低かった。

[0082] 繊維強化プラスチックにおける樹脂部Pの幅は、0.24 mm、樹脂部Pの体積は5.7%であった。引張強度は490 MPaであった。

[0083] (実施例2)

切込パターンが図5 (a) に示すパターンで、分断された強化繊維の長さは20 mm、切込を強化繊維の配向方向に直角な平面に投影した投影長さ $W_s = 0.2$ mm、切込と強化繊維の配向方向とのなす角度 θ が 14° の切込プリプレグでプリプレグ積層体を構成した。切込分布評価では、母集団の平均値は17.5、変動係数は8%であった。

[0084] 賦形性評価では、 $h = 2$ mmの場合は問題なく賦形できたが、 $h = 6$ mmの場合は平坦化できず、面外変形が残った。繊維強化プラスチックの表面品位は、 $h = 2$ mmの場合は切込開口が見られなかった。 $h = 6$ mmの場合は切込開口が見られたが、実施例1よりは開口が見えにくくなっていた。

[0085] 繊維強化プラスチックにおける樹脂部Pの幅、体積はともに実施例1よりも小さくなった引張強度は実施例1よりも高くなった。

[0086] (実施例3)

切込パターンが図5 (b) に示した切込プリプレグでプリプレグ積層体を構成した。全ての切込の長さは、分断された強化繊維の長さは20 mm、切込を強化繊維の配向方向に直角な平面に投影した投影長さ $W_s = 0.2$ mm、

切込と強化繊維の配向方向とのなす角度 θ が 20° である。さらに、 θ が正である正切込と θ が負である負切込を略同数含み、切込の延長線上に存在する切込同士の間隔が、正切込(2.8 mm)と負切込(1.7 mm)とで異なる。切込分布評価では、母集団の平均値は15.1、変動係数は6%であり、高密度かつ均質に切込が分布していた。

[0087] 賦形性評価では、 $h = 2\text{ mm}$ の場合は問題なく賦形でき、 $h = 6\text{ mm}$ の場合は面外変形があったが、平坦化することができた。硬化後は $h = 2\text{ mm}$ 、 6 mm の場合共に良好な品質であった。

[0088] 繊維強化プラスチックにおける樹脂部Pの幅、体積はともに実施例2よりもさらに小さくなった。引張強度も実施例2よりもさらに向上していた。

[0089] (実施例4)

実施例3と同じ切込プリプレグ積層体を用いて、賦形工程で曲げ賦形だけでなく、フランジ部も賦形し、図6(b)のようにフランジのあるプリフォームを作製した。プリフォームの端に面外変形が残っており、その高さはプリプレグ積層体の厚みの1.8倍であった。面外からせん断力を与えることで面外変形を少なくすることも可能であると思えたが、労力を要するため、面外変形が存在したままフランジにも圧力を与えることのできる雌型にセットし、実施例1~3と同じように繊維強化プラスチックを製造した。その結果、フランジに存在していた面外変形は消え、平坦なフランジを有する繊維強化プラスチックを製造することができた。

[0090] (比較例1)

切込の入っていないプリプレグのみでプリプレグ積層体を構成した。 $h = 2\text{ mm}$ 、 6 mm の場合共に、面外変形が生じ、平坦化もできなかった。硬化後の表面品位は $h = 2\text{ mm}$ 、 6 mm の場合共に繊維のうねりが確認できた。

[0091]

[表1]

【表1】

	三次元追従性		繊維強化プラスチックの表面品位		樹脂部Pの幅の平均値 [mm]	樹脂部Pの体積割合 [%]	引張強度 [MPa]
	h=2mm	h=6mm	h=2mm	h=6mm			
実施例1	A	B	B	B	0.24	5.7	490
実施例2	A	B	A	B	0.16	3.8	610
実施例3	A	B	A	A	0.13	2.5	660
比較例1	C	C	C	C	—	—	750

産業上の利用可能性

[0092] 本発明は、ホットフォーミングによりシワのないプリフォームへと賦形することができ、繊維強化プラスチックとした際に高い力学特性を発現する繊維強化プラスチックの製造方法を提供でき、また、複雑形状を有しながらも、高い力学特性を有する繊維強化プラスチックを提供することができるので、航空機、宇宙機、自動車、鉄道、船舶、電化製品、スポーツ等の構造用途に展開することができる。

符号の説明

- [0093] 1：プリプレグ積層体
 2：型の上面
 3：型の側面
 4：プリフォーム
 5：型の長手方向
 6：切込プリプレグ
 7：切込
 8：切込領域
 9：小領域
 10：最近接する切込間に存在する帯部の幅
 11：最近接する切込間距離
 12：正切込
 13：負切込
 14：正切込を含む直線

- 15 : 負切込を含む直線
- 16 : 賦形中のプリプレグ積層体の端面
- 17 : 面外変形
- 18 : せん断力
- 24 : バグフィルム
- 25 : 図9に示した型
- 26 : フランジ部
- 27 : 樹脂部Pの幅
- 28 : 樹脂部Pの長さ

請求の範囲

- [請求項1] 一方向に配向した強化繊維と樹脂とを含むプリプレグの、少なくとも一部の領域に強化繊維を分断する複数の切込が挿入されたプリプレグを切込プリプレグとすると、切込プリプレグを含むプリプレグ群を、複数枚積層してプリプレグ積層体を得る積層工程と、
- プリプレグ積層体を、上面と側面を含む型の上面に配置又は下面と側面を含む型の下面に配置し、側面に沿って曲げ賦形し、略型形状としたプリフォームを得る賦形工程と、
- 賦形工程で用いた型とは異なる型にプリフォームを配置し、固化する、固化工程を含む、繊維強化プラスチックの製造方法。
- [請求項2] 前記切込プリプレグは、切込プリプレグの前記領域内から任意に選択される、10個の直径10mmの円形の小領域内に含まれる切込の個数を母集団とした場合に、母集団の平均値が10以上、かつ変動係数が20%以内である、請求項1に記載の繊維強化プラスチックの製造方法。
- [請求項3] 切込と強化繊維の配向方向とのなす角度 θ の絶対値が、実質的に同一であり、 θ が正である正切込と θ が負である負切込を略同数含み、任意の切込と、当該切込の延長線上に存在する最近接する別の切込との間隔について、正切込同士の間隔と負切込同士の間隔とで長さが異なる、請求項2に記載の切込プリプレグ。
- [請求項4] プリフォームに面外変形が少なくとも一つ含まれ、該面外変形の高さがプリプレグ積層体の平均厚みの0.5倍以上3倍以下である請求項1～3のいずれかに記載の繊維強化プラスチックの製造方法。
- [請求項5] 賦形工程において、略型形状としたプリフォームの少なくとも一部に対して、せん断力を加えながら前記型に押し付けて平坦化する、請求項1～4のいずれかに記載の繊維強化プラスチックの製造方法。
- [請求項6] 樹脂と強化繊維とを含み、平面部と曲面部とを有する繊維強化プラスチックであって、

繊維強化プラスチックは、少なくとも一部が分断された強化繊維が一方向に配向し、かつ強化繊維の配向方向に隣接する繊維束間に樹脂部 P が存在し、

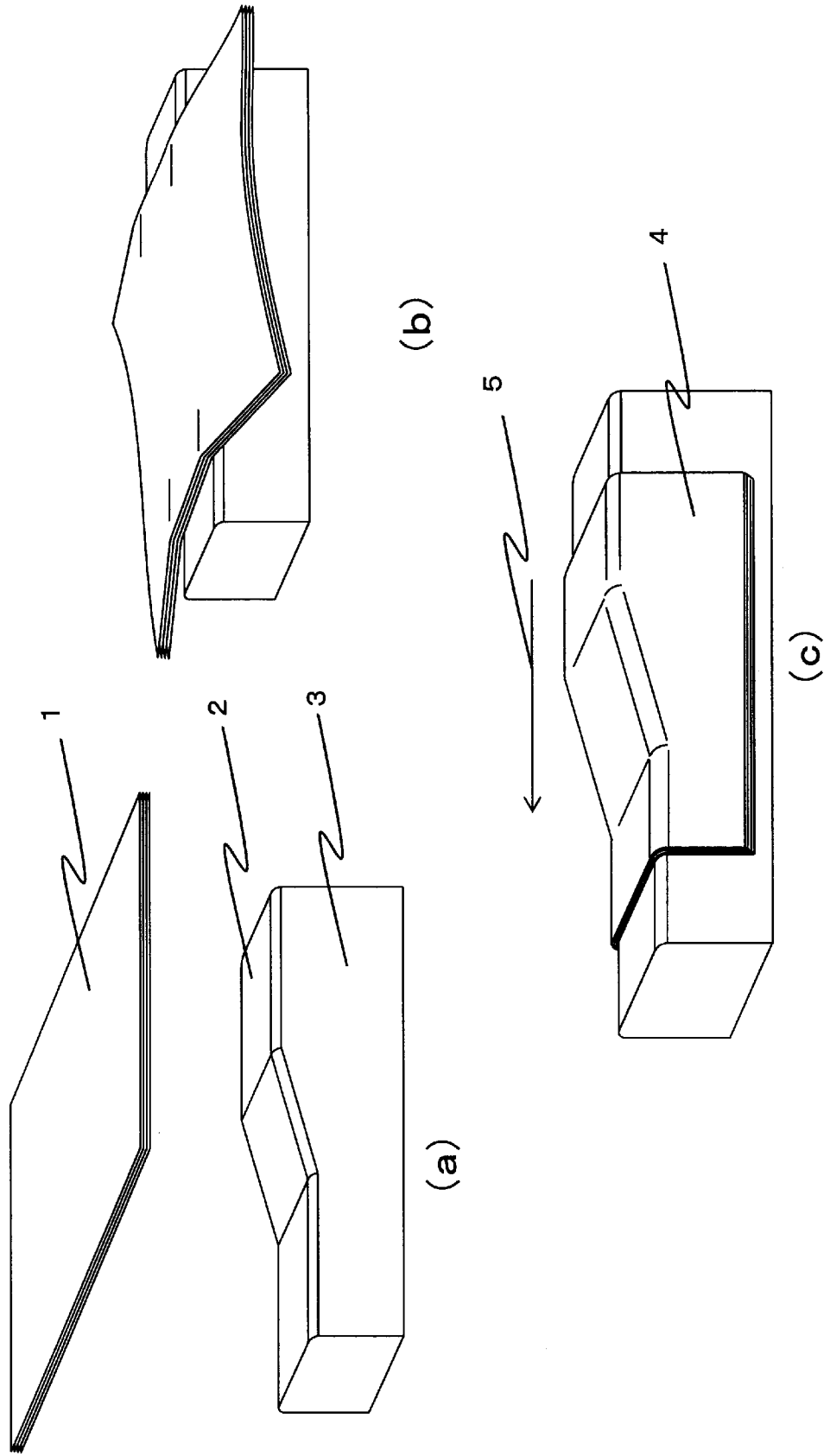
樹脂部 P の端部同士を結んだ線分が、強化繊維の配向方向に対して斜めに配置された樹脂部 P を有する層を層 A とするとき、繊維強化プラスチックは曲面部の内周よりも外周に近い側に層 A を含む繊維強化プラスチック。

[請求項7] 層 A の面内の任意の樹脂部 P において、該樹脂部 P の輪郭と接し、距離が最短となる 2 本の平行線を描いたとき、平行線の距離の平均値が 0.2 mm 以下である、請求項 6 に記載の繊維強化プラスチック。

[請求項8] 層 A 中の樹脂部 P の体積の合計が、該層 A の体積の 5 % 以下である、請求項 6 または 7 に記載の繊維強化プラスチック。

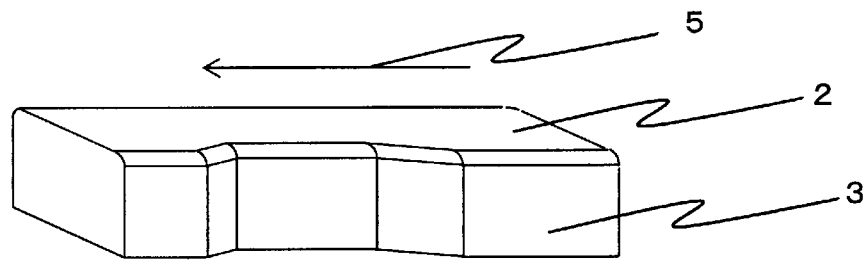
【図1】

【図1】

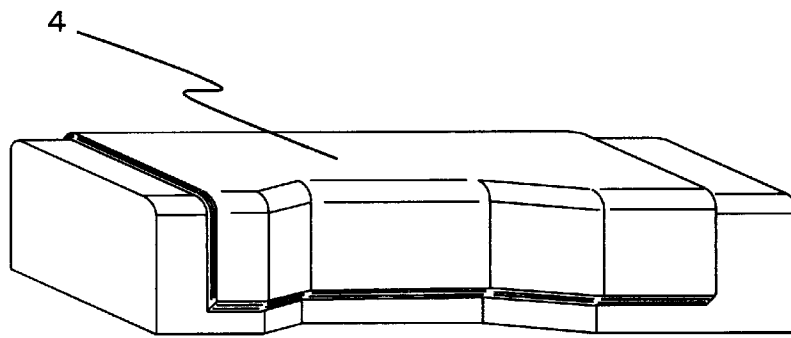


[図2]

【図2】



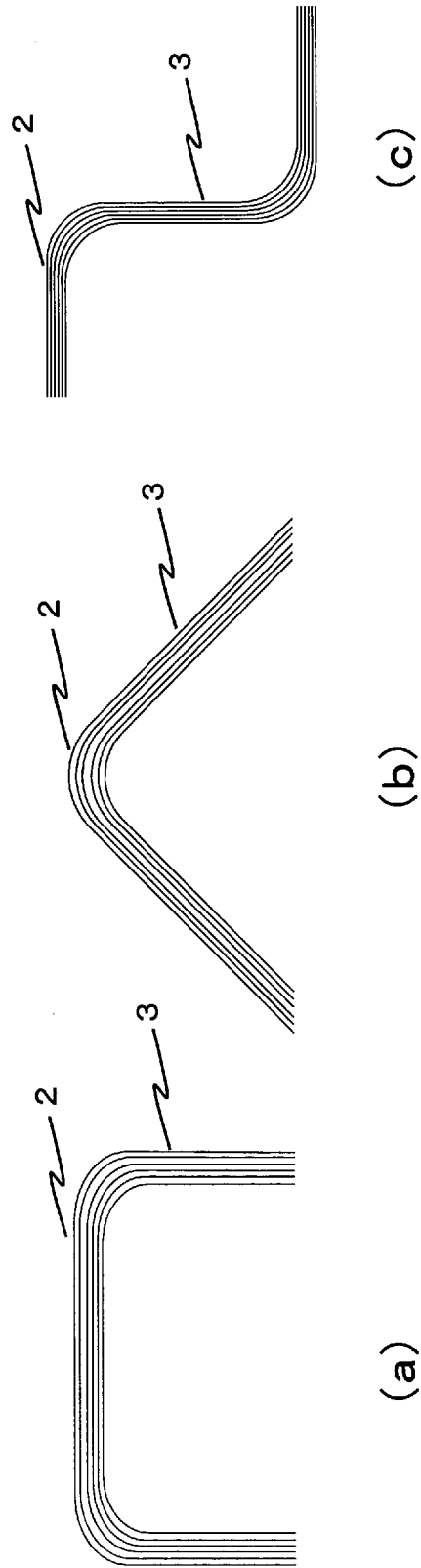
(a)



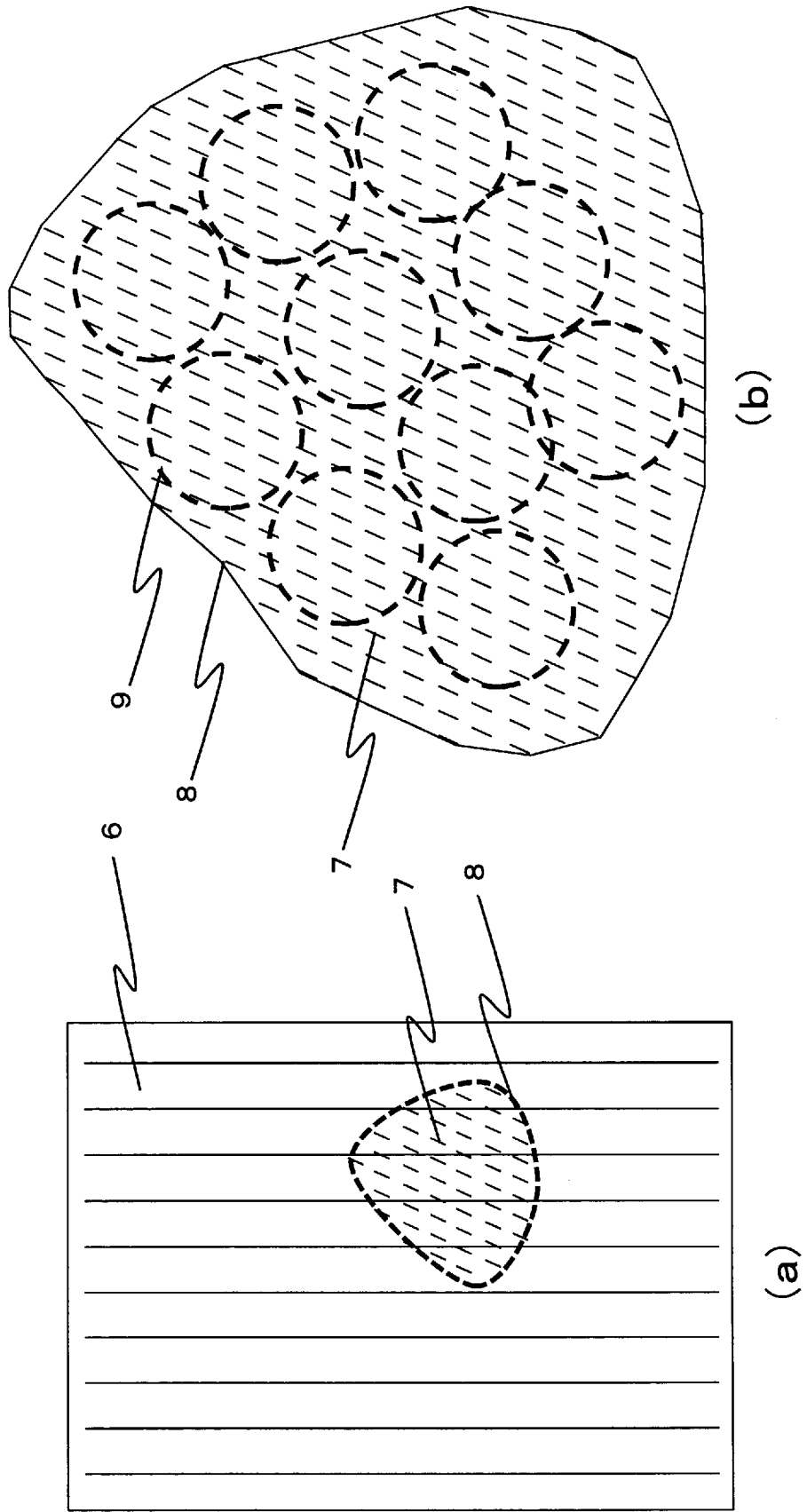
(b)

【図3】

【図3】

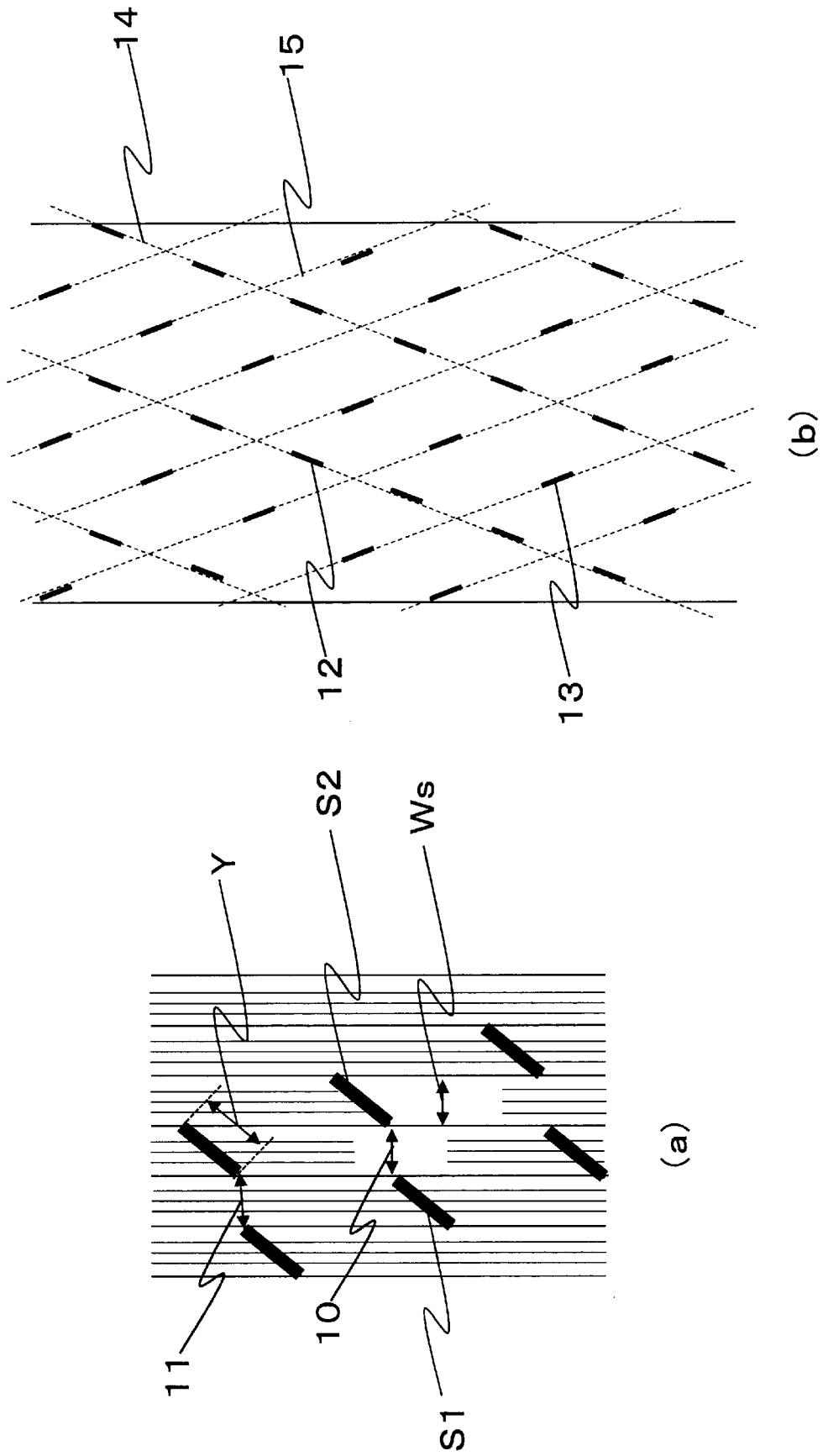


【図4】



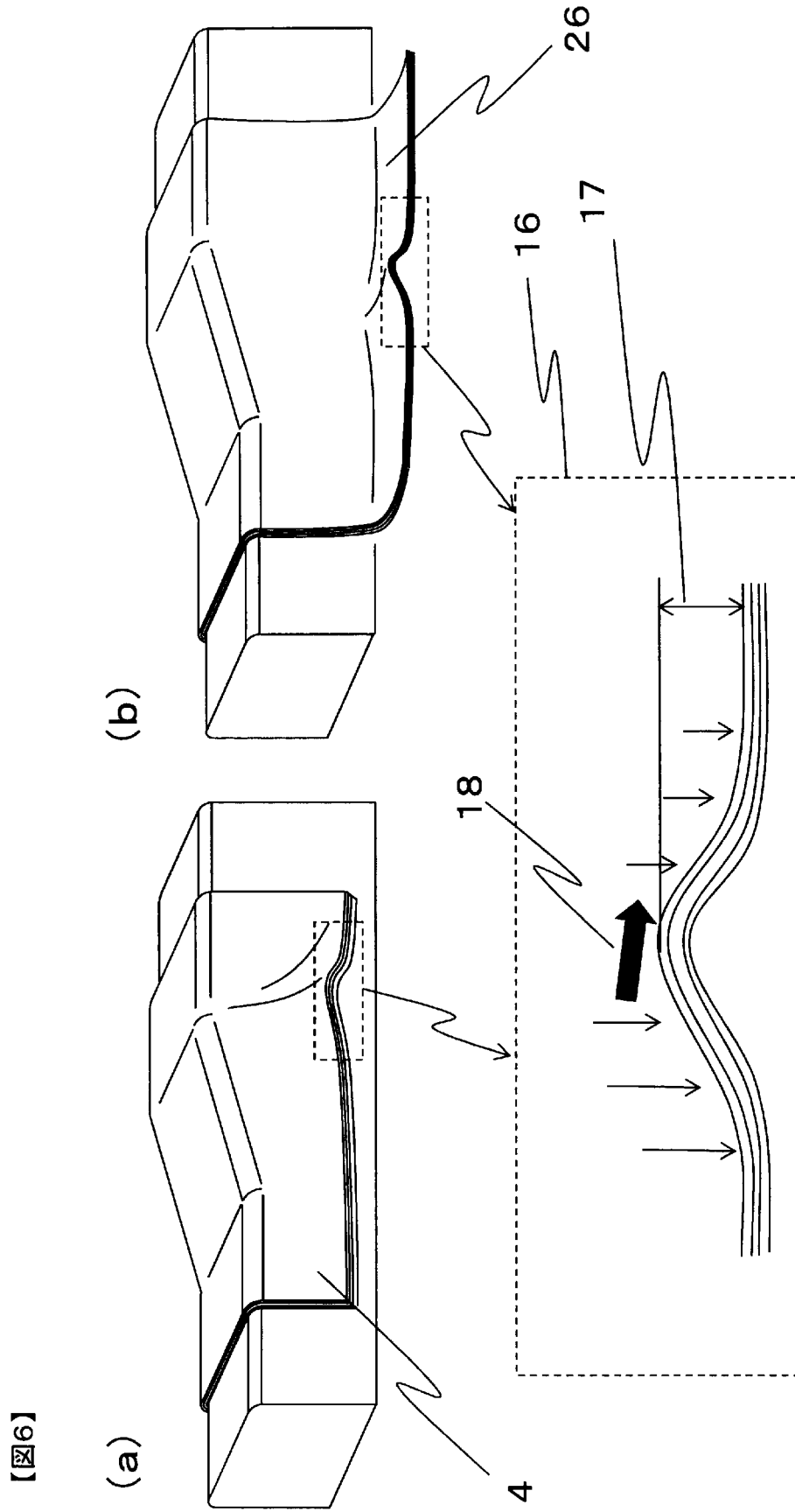
【図4】

【図5】



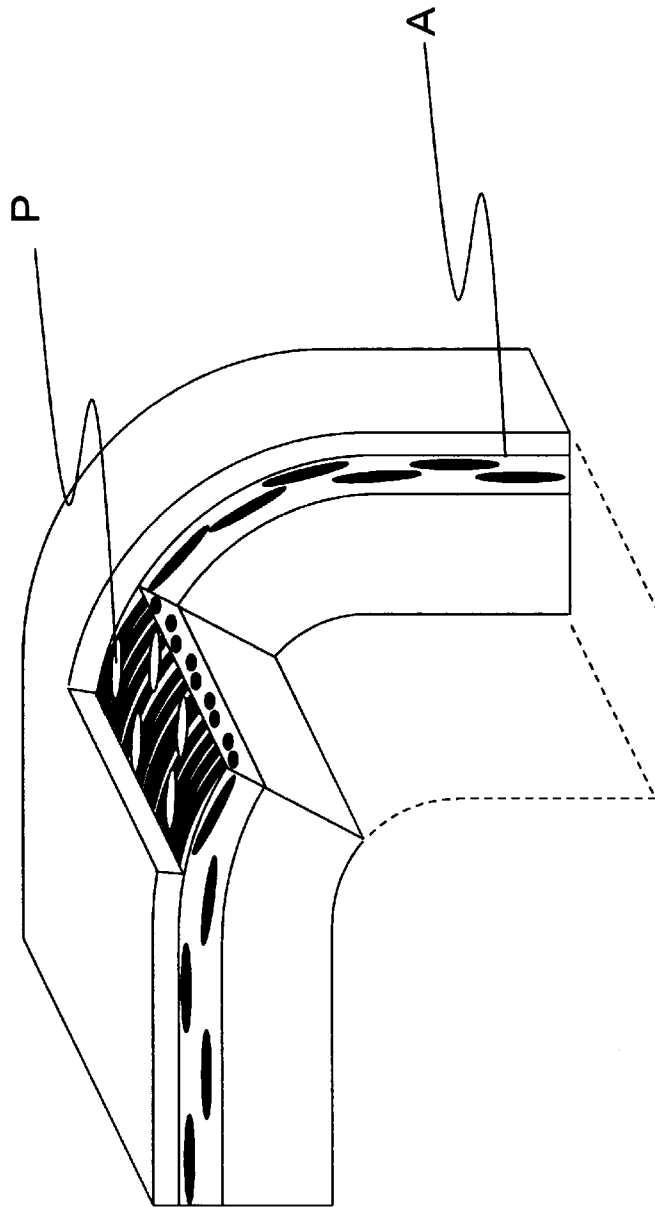
【図5】

【図6】



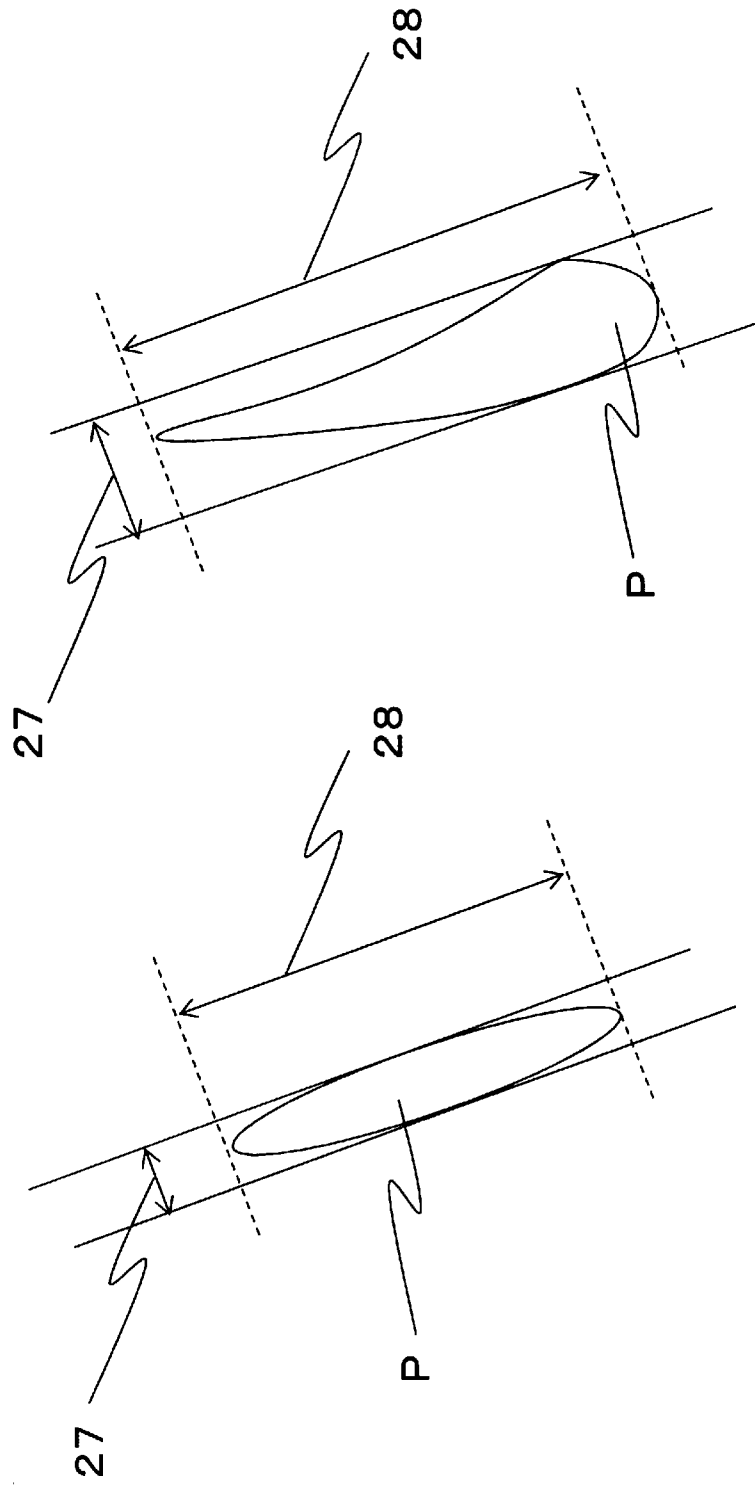
【図6】

【図7】



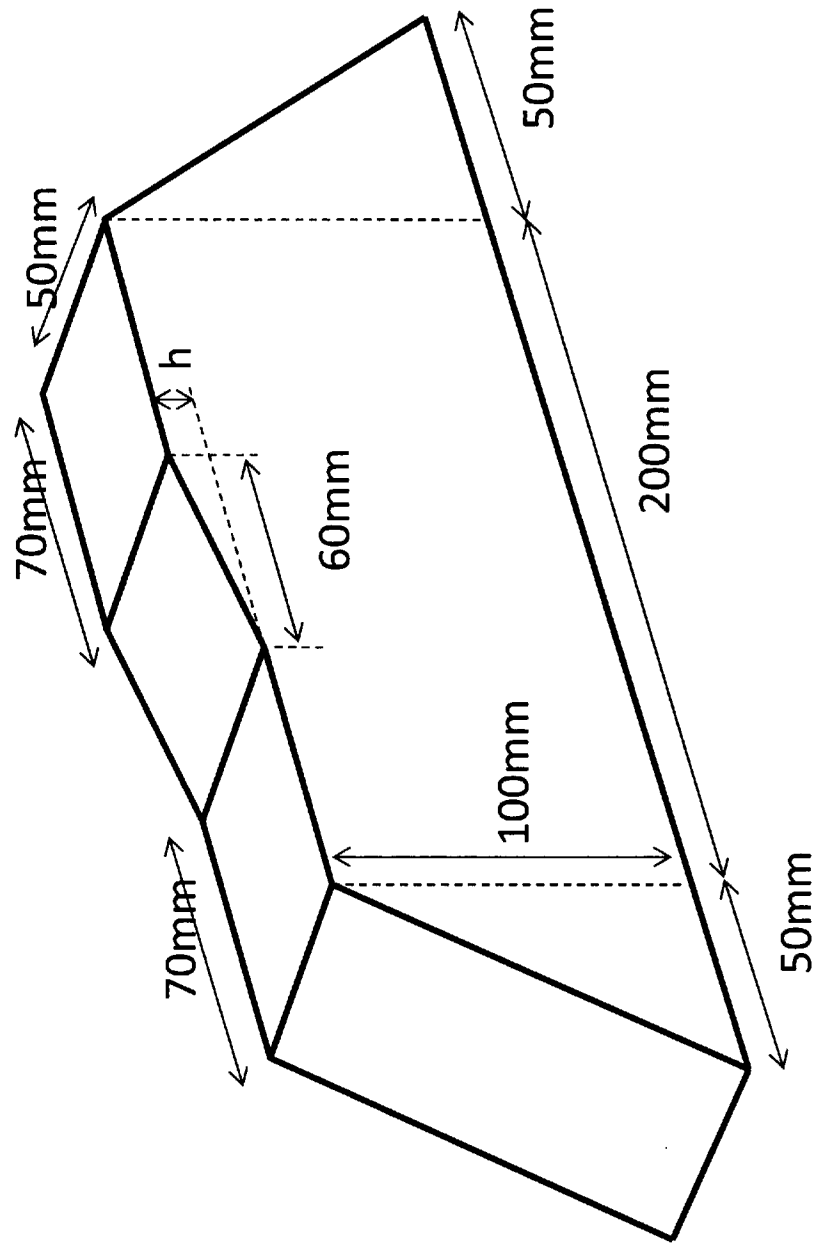
【図7】

【図8】



【図8】

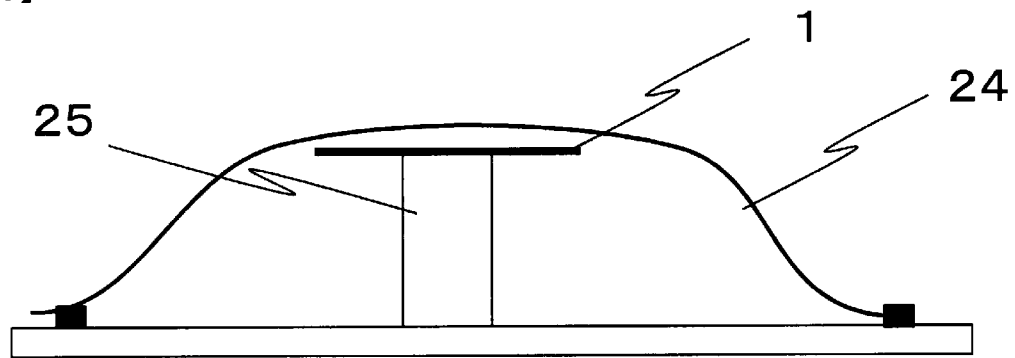
【図9】



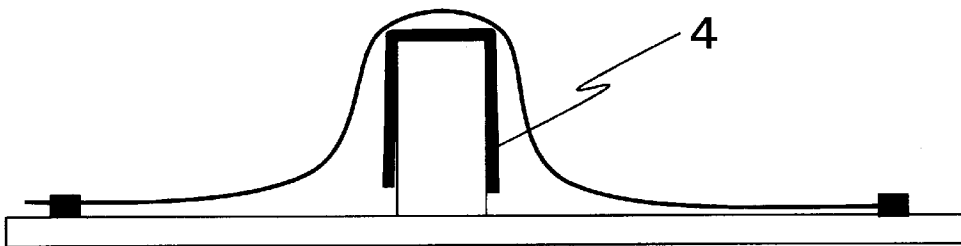
【図9】

[図10]

【図10】



(a)



(b)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/009750

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
B29C70/10(2006.01)i, B29B11/16(2006.01)i, B29C70/06(2006.01)i, B32B27/30(2006.01)i, C08J5/04(2006.01)i, C08J5/24(2006.01)i

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)
B29C70/00-70/88, B29B11/16, B32B1/00-43/00, C08J5/04, C08J5/24

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	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

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	JP 2008-279753 A (Toray Industries, Inc.), 20 November 2008 (20.11.2008), claims; paragraphs [0050], [0070] to [0071], [0092], [0101] to [0102]; fig. 2, 9, 18, 19 (Family: none)	1-3, 6-8 4-5
Y	WO 2007/099825 A1 (Toray Industries, Inc.), 07 September 2007 (07.09.2007), paragraphs [0009] to [0010], [0015], [0065] & US 2009/0068428 A1 paragraphs [0009] to [0010], [0015], [0120] & EP 1990169 A1	4
Y	JP 2015-147311 A (Toray Industries, Inc.), 20 August 2015 (20.08.2015), claims; paragraph [0036] (Family: none)	5

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search 17 April 2017 (17.04.17)	Date of mailing of the international search report 25 April 2017 (25.04.17)
---	--

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/JP2017/009750

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 2015-148022 A (Toray Industries, Inc.), 20 August 2015 (20.08.2015), entire text (Family: none)	1-8
A	JP 2009-286817 A (Toray Industries, Inc.), 10 December 2009 (10.12.2009), entire text (Family: none)	1-8
A	JP 2010-23449 A (Toray Industries, Inc.), 04 February 2010 (04.02.2010), entire text (Family: none)	1-8
P,X	WO 2016/043156 A1 (Toray Industries, Inc.), 24 March 2016 (24.03.2016), claims & TW 201618918 A	6-8

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. B29C70/10(2006.01)i, B29B11/16(2006.01)i, B29C70/06(2006.01)i, B32B27/30(2006.01)i, C08J5/04(2006.01)i, C08J5/24(2006.01)i

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. B29C70/00-70/88, B29B11/16, B32B1/00-43/00, C08J5/04, C08J5/24

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	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017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 2008-279753 A (東レ株式会社)	1-3, 6-8
Y	2008.11.20, [特許請求の範囲], [0050], [0070] - [0071], [0092], [0101] - [0102], [図2], [図9], [図18], [図19] (ファミリーなし)	4-5
Y	WO 2007/099825 A1 (東レ株式会社) 2007.09.07, [0009] - [0010], [0015], [0065] & US 2009/0068428 A1 [0009]-[0010], [0015], [0120] & EP 1990169 A1	4

☑ 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

17.04.2017

国際調査報告の発送日

25.04.2017

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)

▲高▼橋 理絵

電話番号 03-3581-1101 内線 3469

4R

5797

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
Y	JP 2015-147311 A (東レ株式会社) 2015.08.20, [特許請求の範囲], [0036] (ファミリーなし)	5
A	JP 2015-148022 A (東レ株式会社) 2015.08.20, 全文 (ファミリーなし)	1-8
A	JP 2009-286817 A (東レ株式会社) 2009.12.10, 全文 (ファミリーなし)	1-8
A	JP 2010-23449 A (東レ株式会社) 2010.02.04, 全文 (ファミリーなし)	1-8
P, X	WO 2016/043156 A1 (東レ株式会社) 2016.03.24, [特許請求の範囲], & TW 201618918 A	6-8