(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
2015 年 8 月 6 日(06.08.2015)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2015/115408 A1

(51) 国際特許分類:
B29B 11/16 (2006.01) *B29K 105/12* (2006.01)
B29B 9/14 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2015/052157

(22) 国際出願日: 2015 年 1 月 27 日(27.01.2015)

(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 2014-018332 2014 年 2 月 3 日(03.02.2014) 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: 玉井晃義(TAMAI, Akiyoshi); 〒4558502 愛知県名古屋市港区大江町９番地の１　東レ株式会社　名古屋事業場内 Aichi (JP). 服部公彦(HATTORI, Kimihiko); 〒4558502 愛知県名古屋市港区大江町９番地の１　東レ株式会社　名古屋事業場内 Aichi (JP). 歌崎憲一(UTAZAKI, Kenichi); 〒4558502 愛知県名古屋市港区大江町９番地の１　東レ株式会社　名古屋事業場内 Aichi (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:
— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

WO 2015/115408 A1

(54) **Title**: FIBER-REINFORCED MULTILAYERED PELLET, MOLDED ARTICLE MOLDED THEREFROM, AND METHOD FOR PRODUCING FIBER-REINFORCED MULTILAYERED PELLET

(54) 発明の名称 : 繊維強化多層ペレット、それを成形してなる成形品、および繊維強化多層ペレットの製造方法

(57) **Abstract**: A fiber-reinforced multilayered pellet having a sheath layer and a core layer, wherein the fiber-reinforced multilayered pellet is characterized in that the sheath layer is configured from a resin composition containing a thermoplastic resin (a1) and a fibrous filler (b1), the weight-average fiber length (Lw) of the fibrous filler (b1) being from 0.1 mm to less than 0.5 mm, and the ratio (Lw/Ln) of the weight-average fiber length/number-average fiber length being from 1.0 to less than 1.8, and the core layer is configured from a resin composition containing a thermoplastic resin (a2) and a fibrous filler (b2), the weight-average fiber length (Lw) of the fibrous filler (b2) being from 0.5 mm to less than 15.0 mm, and the ratio (Lw/Ln) of the weight-average fiber length/number-average fiber length being from 1.8 to less than 5.0. Provided is a fiber-reinforced multilayered pellet permitting a high level of filling by fibrous filler and having exceptional productivity, fluidity, and mechanical properties of the molded articles obtained therefrom.

(57) 要約: 鞘層および芯層を有する繊維強化多層ペレットであって、鞘層が、熱可塑性樹脂（ａ１）および繊維状充填材（ｂ１）を含み、繊維状充填材（ｂ１）の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．１ｍｍ以上０．５ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）が１．０以上１．８未満である樹脂組成物から構成され、芯層が、熱可塑性樹脂（ａ２）および繊維状充填材（ｂ２）を含み、繊維状充填材（ｂ２）の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．５ｍｍ以上１５．０ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）が１．８以上５．０未満である樹脂組成物から構成されることを特徴とする繊維強化多層ペレット。　生産性、流動性および得られる成形品の機械特性に優れ、繊維状充填材を高充填可能な繊維強化多層ペレットを提供すること。

明　細　書

発明の名称 ：

繊維強化多層ペレット、それを成形してなる成形品、および繊維強化多層ペレットの製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、繊維強化多層ペレット、それを成形してなる成形品、および繊維強化多層ペレットの製造方法に関する。

背景技術

[0002] 熱可塑性樹脂の機械特性を向上させるための手段として、ガラス繊維や炭素繊維等の繊維状充填材を配合することが一般的に知られている。繊維状充填材の一般的な配合手法としては、熱可塑性樹脂と繊維のチョップドストランド（短繊維）を押出機中で溶融混練する手法などが挙げられる。

[0003] しかし、近年プラスチックの高性能化に対する要求が高度化し、金属同等の剛性が求められるようになってきている。金属同等の剛性を実現するためには、繊維状充填材を高充填しつつ繊維長を長く保つ必要があるが、押出機中で溶融混練する一般的な手法では、流動性が低下すること、溶融混練時の剪断により繊維状充填材が折損して機械特性が低下すること、多量の繊維状充填材起因の剪断発熱によって樹脂を劣化させることなど多くの課題があり、熱可塑性樹脂と繊維状充填材を押出機等溶融混練装置で溶融混練する手法による高性能化には限界があった。

先行技術文献

特許文献

[0004] 薄肉成形品における外観特性、機械特性、耐衝撃性、流動性と成形性に優れた樹脂組成物として、芳香族ポリカーボネート樹脂、芳香族ポリカーボネートオリゴマー、短繊維と長繊維を含むガラス繊維および複合ゴム系グラフト共重合体からなるガラス繊維強化ポリカーボネート樹脂組成物が提案されている（例えば、特許文献１参照）。

[0005] また、炭素繊維の連続長繊維にマトリックス樹脂である熱可塑性樹脂を含浸、成形、冷却して長手方向に配列集束された繊維強化熱可塑性樹脂を製造する方法（いわゆるプルトルージョン法）（例えば、特許文献２参照）や、金属繊維、金属で被覆された非金属繊維及び炭素繊維から選ばれる繊維束に樹脂を含浸させた樹脂含浸繊維束をクロスヘッドダイ出口の賦形ノズルで賦形し、ペレタイザーにより所定長さに切断し、ペレット状の樹脂含浸繊維束を得る方法（例えば、特許文献３参照）等が提案されている。

[0006] さらに繊維長を長く残し機械特性を改善する手法として、長繊維ペレットと短繊維ペレットを併用する方法や、炭素繊維のチョップドストランドと熱可塑性樹脂ペレットを併用する方法（例えば、特許文献４参照）が提案されている。

[0007] 一方で、ペレットの多層化に関して、結晶性ポリオレフィンを鞘とし柔軟なオレフィン系共重合体を芯とすることにより、互着を抑制しハンドリング性を改良する手法（例えば、特許文献５参照）や、エチレン／ビニルアルコール共重合体を主成分とする樹脂層とポリアミドを主成分とする樹脂層を含む多層ペレットにより、熱安定性、滞留防止性、耐熱水性およびガスバリア性を改良する手法（例えば、特許文献６参照）が提案されている。

特許文献1：特開平９－１２８５８号公報

特許文献2：特開平４－１５３００７号公報

特許文献3：特開２００４－１４９９０号公報

特許文献4：特開２０００－２１８７１１号公報

特許文献5：特開２００３－４８９９１号公報

特許文献6：特開２００９－２４２５９１号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] しかしながら、特許文献１に開示された手法では、短繊維のガラス繊維を用いることにより流動性や表面外観等は向上するものの、機械特性が不十分である課題があった。

[0009] 特許文献２や特許文献３に開示された手法では、両手法共に連続長繊維束をダイより引き抜きながら熱可塑性樹脂で被覆する手法であるため、生産速度を高くすると連続長繊維束が熱可塑性樹脂被覆からはみ出し易く、生産性に課題があった。

[0010] 特許文献４に開示された手法では、繊維長を長く残存させることができるものの、繊維の分散性が低く、機械特性が不十分である課題があった。

[0011] 特許文献５や特許文献６に開示された手法では、これらの多層ペレットによりハンドリング性や生産性を改良できるものの、機械特性が不十分である課題があった。

[0012] 本発明は、前記問題点を解決し、生産性、流動性および得られる成形品の機械特性に優れ、繊維状充填材を高充填可能な繊維強化多層ペレットを提供することをその課題とするものである。

課題を解決するための手段

[0013] 上記課題を解決するため本発明の繊維強化多層ペレットは、次の（１）または（２）のいずれかの構成を有する。すなわち、

（１）鞘層および芯層を有する繊維強化多層ペレットであって、鞘層が、熱可塑性樹脂（ａ１）および繊維状充填材（ｂ１）を含み、繊維状充填材の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．１ｍｍ以上０．５ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）が１．０以上１．８未満である樹脂組成物から構成され、芯層が、熱可塑性樹脂（ａ２）および繊維状充填材（ｂ２）を含み、繊維状充填材（ｂ２）の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．５ｍｍ以上１５．０ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）が１．８以上５．０未満である樹脂組成物から構成される繊維強化多層ペレット、

または、

（２）熱可塑性樹脂（ａ３）および繊維状充填材（ｂ３）を含む繊維強化ペレットであって、ペレット表層部における繊維状充填材の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．１ｍｍ以上０．５ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／数平

均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）が１．０以上１．８未満であり、ペレット中心部における繊維状充填材の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．５ｍｍ以上１５．０ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）が１．８以上５．０未満である繊維強化多層ペレット、である。

[0014] 本発明の成形品は、次の構成を有する。すなわち、

上記繊維強化多層ペレットを成形してなる成形品、である。

[0015] 本発明の繊維強化多層ペレットの製造方法は、次の構成を有する。すなわち、

前記鞘層を構成する樹脂組成物および前記芯層を構成する樹脂組成物をそれぞれ溶融混練し、クロスヘッドダイを用いて吐出することにより多層構造を形成する前記繊維強化多層ペレット（１）の製造方法、である。

[0016] 本発明の前記繊維強化多層ペレット（１）は、前記鞘層を構成する樹脂組成物が、熱可塑性樹脂（ａ１）４０～９５重量％および繊維状充填材（ｂ１）５～６０重量％を含むことが好ましい。

[0017] 本発明の前記繊維強化多層ペレット（１）は、前記芯層を構成する樹脂組成物が、熱可塑性樹脂（ａ２）４０～９５重量％および繊維状充填材（ｂ２）５～６０重量％を含むことが好ましい。

[0018] 本発明の前記繊維強化多層ペレット（１）は、前記鞘層に含まれる繊維状充填材（ｂ１）および／または前記芯層に含まれる繊維状充填材（ｂ２）が、ガラス繊維、ポリアクリロニトリル系またはピッチ系炭素繊維およびステンレス繊維からなる群より選ばれる少なくとも１種であることが好ましい。

[0019] 本発明の前記繊維強化多層ペレット（２）は、前記繊維状充填材が、ガラス繊維、ポリアクリロニトリル系またはピッチ系炭素繊維およびステンレス繊維からなる群より選ばれる少なくとも１種であることが好ましい。

発明の効果

[0020] 本発明によれば、特定の繊維長分布を有する樹脂組成物を芯層またはペレット中心部に配置し、さらに特定の繊維長分布を有する樹脂組成物を鞘層またはペレット表層部に配置した多層構造のペレットとすることで、生産性、

流動性および成形品の機械特性に優れ、繊維状充填材を高充填可能な繊維強化多層ペレットを提供することができる。本発明の繊維強化多層ペレットを用いることにより、優れた機械特性を有する成形品を得ることができる。

発明を実施するための形態

[0021] 以下に本発明の繊維強化多層ペレットについて具体的に説明する。

[0022] 本発明の第一の態様の繊維強化多層ペレットは、重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．１ｍｍ以上０．５ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）が１．０以上１．８未満である繊維状充填材（ｂ１）を含む鞘層と、重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．５ｍｍ以上１５．０ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）が１．８以上５．０未満である繊維状充填材（ｂ２）を含む芯層とを有する。ＬｗおよびＬｗ／Ｌｎの大きい繊維状充填材を含む、優れた機械特性を有する芯層を、ＬｗおよびＬｗ／Ｌｎの小さい繊維状充填材を含む、流動性および生産性に優れる鞘層で被覆することにより、両層の利点を併せ持つ、流動性、生産性および成形品の機械特性に優れる繊維強化多層ペレットを得ることができる。

[0023] 本発明の繊維強化多層ペレットの形状は、特に限定されるものではないが、直径１～７ｍｍ、ペレット長３～３０ｍｍの円柱形状であることが好ましい。直径が１ｍｍ以上であれば、ペレットをより容易に製造することができる。直径が７ｍｍ以下であれば、成形時の成形機への噛み込み性に優れ、供給を安定に行うことができる。一方、ペレット長が３ｍｍ以上であれば、成形品の機械特性をより向上させることができる。ペレット長が３０ｍｍ以下であれば、成形時の成形機への供給を安定に行うことができる。鞘層および芯層の構成は、両層の合計１００重量％に対して、芯層が１０重量％以上９０重量％以下、鞘層が１０重量％以上９０重量％以下であることが好ましい。芯層を１０重量％以上、鞘層を９０重量％以下とすることにより、繊維強化多層ペレットを成形して得られる成形品の機械強度をより向上させることができる。芯層は２０重量％以上がより好ましく、４０重量％以上がさらに

好ましく、６０重量％以上が特に好ましい。鞘層は８０重量％以下がより好ましく、６０重量％以下がさらに好ましく、４０重量％以下が特に好ましい。一方、芯層を９０重量％以下、鞘層を１０重量％以上とすることにより、繊維強化多層ペレットの生産性をより向上させることができる。芯層は８７．５重量％以下がより好ましく、８５重量％以下がさらに好ましく、８０重量％以下が特に好ましい。鞘層は１２．５重量％以上がより好ましく、１５重量％以上がさらに好ましく、２０重量％以上が特に好ましい。なお、本発明の繊維強化多層ペレットは、芯層を２層以上有してもよいし、鞘層を２層以上有してもよい。芯層または鞘層を２層以上有する場合、各層の合計重量を前記範囲とすることが好ましい。

[0024] 次に、鞘層について説明する。鞘層は、熱可塑性樹脂（ａ１）および繊維状充填材（ｂ１）を含み、繊維状充填材の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．１ｍｍ以上０．５ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）が１．０以上１．８未満である樹脂組成物から構成される。すなわち、繊維強化多層ペレットの鞘層における繊維状充填材の重量平均繊維長（Ｌｗ）は０．１ｍｍ以上０．５ｍｍ未満であり、重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）は１．０以上１．８未満である。

[0025] 本発明の繊維強化多層ペレットにおいて、鞘層を構成する樹脂組成物に使用する熱可塑性樹脂（ａ１）は、熱可塑性を示す樹脂であれば特に限定されず、例えば、スチレン系樹脂、オレフィン系樹脂、熱可塑性エラストマー、ポリアミド、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアリーレンサルファイド、セルロース誘導体、フッ素樹脂、ポリオキシメチレン、ポリイミド、ポリアミドイミド、塩化ビニル、ポリアクリレート、ポリフェニレンエーテル、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルイミド、ポリエーテルケトン、ポリエーテルエーテルケトン、液晶性樹脂およびこれらの変性材などが挙げられる。これらを２種以上含有してもよい。

[0026] スチレン系樹脂としては、ＰＳ（ポリスチレン）、ＨＩＰＳ（高衝撃ポリスチレン）、ＡＳ（アクリロニトリル／スチレン共重合体）、ＡＥＳ（アク

リロニトリル／エチレン・プロピレン・非共役ジエンゴム／スチレン共重合体）、ＡＢＳ（アクリロニトリル／ブタジエン／スチレン共重合体）、ＭＢＳ（メタクリル酸メチル／ブタジエン／スチレン共重合体）などが挙げられる。ここで、「／」は共重合体を示し、以下同じである。これらを２種以上含有してもよい。これらの中でも、特にＡＢＳが好ましい。

[0027] オレフィン系樹脂としては、ポリプロピレン、ポリエチレン、エチレン／プロピレン共重合体、エチレン／１－ブテン共重合体、エチレン／プロピレン／非共役ジエン共重合体、エチレン／アクリル酸エチル共重合体、エチレン／メタクリル酸グリシジル共重合体、エチレン／酢酸ビニル／メタクリル酸グリシジル共重合体、エチレン／プロピレン－ｇ－無水マレイン酸共重合体、メタクリル酸／メタクリル酸メチル／グルタル酸無水物共重合体などが挙げられ、これらを２種以上含有してもよい。これらの中でも、流動性および成形品の機械強度をより向上させる観点から、特にポリプロピレンが好ましい。

[0028] 上記ポリプロピレンとしては、プロピレンを単独重合して得られるホモポリマー、プロピレンとエチレンなどを共重合したランダムコポリマー、ポリプロピレンにポリエチレンやエチレン／プロピレンゴムを配合して得られるブロックコポリマーなどが挙げられ、いずれも好ましく用いられる。また、ポリプロピレンの構造には特に制限はなく、ランダムな構造のアタクチック、規則的に交互に配置する構造のシンジオタクチック、一方向に規則的に配置する構造のアイソタクチックのいずれの構造をとってもよい。

[0029] オレフィン系樹脂の分子量は、ＭＦＲ（メルトフローレート）が指標の一つであり、ＩＳＯ１１３３に準拠し、２３０℃－２．１６ｋｇ荷重で測定した値が、０．１～２００ｇ／１０分の範囲にあることが好ましい。ＭＦＲを０．１ｇ／１０分以上とすることにより、成形品の機械強度をより向上させることができる。０．５ｇ／１０分以上がより好ましく、１ｇ／１０分以上がさらに好ましい。一方ＭＦＲを２００ｇ／１０分以下とすることにより、生産性をより向上させることができる。１００ｇ／１０分以下がより好まし

く、５０ｇ／１０分以下がさらに。また、ポリプロピレンなどではデカヒドロナフタレンまたはテトラヒドロナフタレン溶媒中で測定される固有粘度も基本的な指標として用いることもできる。

[0030] 熱可塑性エラストマーとしては、ポリエステルポリエーテルエラストマー、ポリエステルポリエステルエラストマー、熱可塑性ポリウレタンエラストマー、熱可塑性スチレンブタジエンエラストマー、熱可塑性オレフィンエラストマー、熱可塑性ポリアミドエラストマーなどが挙げられる。これらを２種以上含有してもよい。

[0031] ポリアミドは、ラクタム類の開環重合、ジアミンとジカルボン酸の重縮合、アミノカルボン酸の重縮合等により得られる、繰り返し構造中にアミド結合を有するものであれば、特に限定されない。ラクタム類としては、例えば、ε－カプロラクタム、エナントラクタム、ω－ラウロラクタム等が挙げられる。ジアミンとしては、例えば、テトラメチレンジアミン、ヘキサメチレンジアミン、ウンデカメチレンジアミン、ドデカメチレンジアミン、トリデカメチレンジアミン、１，９－ノナンジアミン、１，１０－デカンジアミン、２－メチル－１，８－オクタンジアミン、２，２，４－トリメチルヘキサメチレンジアミン、２，４，４－トリメチルヘキサメチレンジアミン、５－メチルノナメチレンジアミン等の脂肪族ジアミン、１，３－ビスアミノメチルシクロヘキサン、１，４－ビスアミノメチルシクロヘキサン等の脂環式ジアミン、ｍ－フェニレンジアミン、ｐ－フェニレンジアミン、ｍ－キシリレンジアミン、ｐ－キシリレンジアミン等の芳香族ジアミン等が挙げられる。ジカルボン酸としては、例えば、アジピン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ダイマー酸、ドデカン二酸、１，１，３－トリデカン二酸等の脂肪族ジカルボン酸、１，３－シクロヘキサンジカルボン酸等の脂環式ジカルボン酸、テレフタル酸、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸等の芳香族ジカルボン酸等が挙げられる。アミノカルボン酸としては、例えば、ε－アミノカプロン酸、７－アミノヘプタン酸、８－アミノオクタン酸、９－アミノノナン酸、１１－アミノウンデカン酸、１２－アミノドデカン酸、およ

び１３－アミノトリデカン酸等が挙げられる。

[0032] ポリアミドの具体的な例としては、例えば、ナイロン６、ナイロン４６、ナイロン６６、ナイロン１１、ナイロン１２、ナイロン６１０、ナイロン６１２、ナイロン６／６６、ナイロン６／６１２、ナイロンＭＸＤ（ｍ－キシリレンジアミン）６、ナイロン９Ｔ、ナイロン１０Ｔ、ナイロン６Ｔ／６６、ナイロン６Ｔ／６Ｉ、ナイロン６Ｔ／Ｍ５Ｔ、ナイロン６Ｔ／１２、ナイロン６６／６Ｔ／６Ｉ、ナイロン６Ｔ／６などが挙げられる。これらを２種以上含有してもよい。これらの中でも、ナイロン６、ナイロン６６、ナイロン６１０、ナイロン９Ｔが好ましい。

[0033] ポリアミドの重合度には特に制限がないが、樹脂濃度０．０１ｇ／ｍｌの９８％濃硫酸溶液中、２５℃で測定した相対粘度が１．５～７．０の範囲のものが好ましい。相対粘度を１．５以上とすることにより、多層ペレット化する際の被覆力が高く、生産性がより向上するばかりでなく、繊維強化多層ペレットを成形して得られる成形品の機械強度をもより向上させることができる。相対粘度は２．０以上がより好ましく、２．２以上がさらに好ましい。一方、相対粘度を７．０以下とすることにより、多層ペレット化する際の繊維状充填材の折損を軽減でき、剛性や強度等の機械特性がより向上するばかりか、生産安定性もより向上させることができる。相対粘度は５．０以下がより好ましく、３．０以下がさらに好ましい。

[0034] ポリエステルとしては、ジカルボン酸またはそのエステル形成性誘導体とジオールまたはそのエステル形成性誘導体の残基を主構造単位とする重合体または共重合体が好ましい。中でも、ポリエチレンテレフタレート、ポリプロピレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリシクロヘキサンジメチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリプロピレンナフタレート、ポリブチレンナフタレート、ポリエチレンイソフタレート／テレフタレート、ポリプロピレンイソフタレート／テレフタレート、ポリブチレンイソフタレート／テレフタレート、ポリエチレンテレフタレート／ナフタレート、ポリプロピレンテレフタレート／ナフタレート、ポリブチレン

テレフタレート／ナフタレートなどの芳香族ポリエステル樹脂が特に好ましく、ポリブチレンテレフタレートが最も好ましい。これらを２種以上含有してもよい。これらのポリエステルにおいて、全ジカルボン酸残基に対するテレフタル酸残基の割合が３０モル％以上であることが好ましく、４０モル％以上であることがさらに好ましい。

[0035] また、ポリエステルは、ヒドロキシカルボン酸あるいはそのエステル形成性誘導体およびラクトンから選択された一種以上の残基を含有していてもよい。ヒドロキシカルボン酸としては、例えば、グリコール酸、乳酸、ヒドロキシプロピオン酸、ヒドロキシ酪酸、ヒドロキシ吉草酸、ヒドロキシカプロン酸、ヒドロキシ安息香酸、ｐ－ヒドロキシ安息香酸、６－ヒドロキシ－２－ナフトエ酸などが挙げられる。ラクトンとしては、例えば、カプロラクトン、バレロラクトン、プロピオラクトン、ウンデカラクトン、１，５－オキセパン－２－オンなどが挙げられる。これらの残基を構造単位とする重合体または共重合体としては、例えば、ポリグリコール酸、ポリ乳酸、ポリグリコール酸／乳酸、ポリヒドロキシ酪酸／β－ヒドロキシ酪酸／β－ヒドロキシ吉草酸などの脂肪族ポリエステル樹脂が挙げられる。これらを２種以上含有してもよい。

[0036] ポリエステルの融点は、特に限定されないが、耐熱性の点で、１２０℃以上であることが好ましく、２２０℃以上であることがより好ましい。上限は、特に限定されないが、３００℃以下であることが好ましく、２８０℃以下であることがより好ましい。なお、上記ポリエステルの融点は、示差走査熱量計（ＤＳＣ）により昇温速度２０℃／分で測定した値である。ポリエステルのカルボキシル末端基量は、特に限定されないが、流動性、耐加水分解性および耐熱性の点で、５０ｅｑ／ｔ以下であることが好ましく、１０ｅｑ／ｔ以下であることがより好ましい。下限は０ｅｑ／ｔである。なおポリエステル樹脂のカルボキシル末端基量は、ｏ－クレゾール／クロロホルム溶媒に溶解させた後、エタノール性水酸化カリウムで滴定し測定した値である。

[0037] ポリエステルの粘度は、溶融混練が可能であれば特に限定されないが、成

形性の点で、ｏ－クロロフェノール溶液を２５℃で測定したときの固有粘度が０．３６～１．６０ｄｌ／ｇの範囲であることが好ましい。固有粘度を０．３６ｄｌ／ｇ以上とすることにより、多層ペレット化する際の被覆力が高く生産性がより向上するばかりでなく、繊維強化多層ペレットを成形して得られる成形品の機械強度をもより向上させることができる。固有粘度は０．５０ｄｌ／ｇ以上がより好ましく、０．７０ｄｌ／ｇ以上がさらに好ましい。一方、固有粘度を１．６０ｄｌ／ｇ以下とすることにより、多層ペレット化する際の繊維状充填材の折損を軽減でき、剛性や強度等の機械特性がより向上するばかりか、生産安定性もより向上させることができる。固有粘度は１．２５ｄｌ／ｇ以下がより好ましく、１．０ｄｌ／ｇ以下がさらに好ましい。ポリエステル樹脂の分子量は、特に限定されないが、耐熱性の点で、重量平均分子量（Ｍｗ）５万～５０万の範囲であることが好ましく、１５万～２５万の範囲であることがより好ましい。なお、本発明において、上記ポリエステルの分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定した値である。

[0038] ポリエステルの製造方法は、特に限定されるものではなく、公知の重縮合法や開環重合法などにより製造することができる。バッチ重合および連続重合のいずれでもよく、また、エステル交換反応および直接重合による反応のいずれでも適用することができる。

[0039] ポリカーボネートは、２官能フェノール系化合物に苛性アルカリおよび溶剤の存在下でホスゲンを吹き込むホスゲン法、二官能フェノール系化合物と炭酸ジエチルとを触媒の存在下でエステル交換させるエステル交換法などにより得ることができる。ポリカーボネートとしては、芳香族ホモポリカーボネート、芳香族コポリカーボネート等が挙げられる。これらの芳香族ポリカーボネートの粘度平均分子量は、１０，０００以上であることが好ましく、１５，０００以上であることがより好ましい。上限については繊維状充填材の折損軽減、生産安定性から１００，０００以下であることが好ましく、５０，０００以下がより好ましい。２官能フェノール系化合物としては、２，

２’－ビス（４－ヒドロキシフェニル）プロパン、２，２’－ビス（４－ヒドロキシ－３，５－ジメチルフェニル）プロパン、ビス（４－ヒドロキシフェニル）メタン、１，１’－ビス（４－ヒドロキシフェニル）エタン、２，２’－ビス（４－ヒドロキシフェニル）ブタン、２，２’－ビス（４－ヒドロキシ－３，５－ジフェニル）ブタン、２，２’－ビス（４－ヒドロキシ－３，５－ジプロピルフェニル）プロパン、１，１’－ビス（４－ヒドロキシフェニル）シクロヘキサン、１－フェニル－１，１’－ビス（４－ヒドロキシフェニル）エタン等が挙げられる。これらを２種以上用いてもよい。

[0040] ポリアリーレンサルファイドとしては、ポリフェニレンスルフィド（ＰＰＳ）、ポリフェニレンスルフィドスルホン、ポリフェニレンスルフィドケトン、これらのランダム共重合体、ブロック共重合体等が挙げられる。これらを２種以上含有してもよい。中でもポリフェニレンスルフィドが特に好ましく使用される。

[0041] ポリアリーレンサルファイドは、特公昭４５－３３６８号公報に記載される、比較的分子量の小さな重合体を得る方法、特公昭５２－１２２４０号公報や特開昭６１－７３３２号公報に記載される、比較的分子量の大きな重合体を得る方法などの通常公知の方法によって製造することができる。得られたポリアリーレンサルファイドを、加熱による架橋／高分子量化、窒素などの不活性ガス雰囲気下あるいは減圧下での熱処理、有機溶媒、熱水、酸水溶液などによる洗浄、酸無水物、アミン、イソシアネート、官能基含有ジスルフィド化合物などの官能基含有化合物による活性化などの種々の処理を施した上で使用することも、もちろん可能である。ポリアリーレンサルファイドを加熱により架橋／高分子量化する場合の具体的方法としては、空気、酸素などの酸化性ガス雰囲気下あるいは前記酸化性ガスと窒素、アルゴンなどの不活性ガスとの混合ガス雰囲気下で、加熱容器中で所定の温度において希望する溶融粘度が得られるまで加熱を行う方法を例示することができる。加熱処理温度は２００～２７０℃の範囲が好ましく、処理時間は２～５０時間の範囲が好ましい。効率よくより均一に加熱処理する観点から、回転式あるい

は撹拌翼付の加熱容器中で加熱することが好ましい。また、ポリアリーレンサルファイドを窒素などの不活性ガス雰囲気下あるいは減圧下で熱処理する場合の具体的方法としては、窒素などの不活性ガス雰囲気下あるいは減圧（好ましくは７，０００Ｎｍ$^{-2}$以下）下で、加熱処理温度２００～２７０℃、加熱時間２～５０時間の条件で加熱処理する方法を例示することができる。かかる加熱処理の装置は、通常の熱風乾燥機でもまた回転式あるいは撹拌翼付の加熱装置であってもよいが、効率よくより均一に加熱処理する観点から、回転式あるいは撹拌翼付の加熱容器中で加熱することがより好ましい。ポリアリーレンサルファイドを有機溶媒で洗浄する場合、有機溶媒としては、Ｎ－メチルピロリドン、アセトン、ジメチルホルムアミドおよびクロロホルムなどが好ましく使用される。有機溶媒による洗浄の方法としては、例えば、有機溶媒中にポリアリーレンサルファイド樹脂を浸漬せしめるなどの方法があり、必要により適宜撹拌または加熱することも可能である。洗浄温度は常温～１５０℃が好ましい。有機溶媒洗浄を施されたポリアリーレンサルファイド樹脂は、残留している有機溶媒を除去するため、水または温水で数回洗浄することが好ましい。ポリアリーレンサルファイドを熱水で処理する場合、使用する水は蒸留水あるいは脱イオン水であることが好ましい。熱水処理の操作は、通常、所定量の水に所定量のポリアリーレンサルファイドを投入し、常圧であるいは圧力容器内で加熱、撹拌することにより行われる。ポリアリーレンサルファイド樹脂と水との割合は、好ましくは水１リットルに対し、ポリアリーレンサルファイド２００ｇ以下の浴比で使用される。ポリアリーレンサルファイドを酸処理する場合の具体的方法としては、例えば、酸または酸の水溶液にポリアリーレンサルファイド樹脂を浸漬せしめるなどの方法があり、必要により適宜撹拌または加熱することも可能である。酸としては、酢酸、塩酸が好ましく用いられる。酸処理を施されたポリアリーレンサルファイドは、残留している酸または塩などを除去するため、水または温水で数回洗浄することが好ましい。洗浄に用いる水は、蒸留水または脱イオン水であることが好ましい。

[0042] ポリアリーレンサルファイドの溶融粘度は、３１０℃、剪断速度１０００／秒の条件下で８０Ｐａ・ｓ以下であることが好ましく、２０Ｐａ・ｓ以下であることがより好ましい。下限については特に制限はないが、５Ｐａ・ｓ以上であることが好ましい。溶融粘度の異なる２種以上のポリアリーレンサルファイドを併用してもよい。なお、溶融粘度は、キャピログラフ（東洋精機（株）社製）装置を用い、ダイス長１０ｍｍ、ダイス孔直径０．５～１．０ｍｍの条件により測定することができる。

[0043] セルロース誘導体としては、例えば、セルロースアセテート、セルロースアセテートブチレート、エチルセルロース等を挙げることができる。これらを２種以上含有してもよい。

[0044] これらの熱可塑性樹脂のうち、ポリアミド、スチレン系樹脂、オレフィン系樹脂、ポリカーボネートおよびポリアリーレンサルファイドなどが好ましい。これらの熱可塑性樹脂は繊維状充填材との親和性に優れることから、成形加工性に優れ、成形品の機械特性および表面外観をより向上させることができる。特にナイロン６、ナイロン６６、ナイロン６１０、ナイロン９Ｔ、ＡＢＳ（アクリロニトリル／ブタジエン／スチレン共重合体）、ポリプロピレン、ポリカーボネート、ポリフェニレンスルフィドなどがより好ましく使用できる。

[0045] 本発明の繊維強化多層ペレットにおいて、鞘層を構成する樹脂組成物に使用する繊維状充填材（ｂ１）としては、繊維状の形状を有するいずれの充填材も使用することができる。繊維状充填材を含有することにより、強度、剛性などの機械特性に加え、寸法安定性に優れた成形品を得ることができる。具体的には、ガラス繊維、ポリアクリルニトリル（ＰＡＮ）系やピッチ系の炭素繊維、ステンレス繊維、アルミニウム繊維や黄銅繊維などの金属繊維、芳香族ポリアミド繊維などの有機繊維、石膏繊維、セラミック繊維、アスベスト繊維、ジルコニア繊維、アルミナ繊維、シリカ繊維、酸化チタン繊維、炭化ケイ素繊維、ロックウール、チタン酸カリウムウィスカー、窒化ケイ素ウィスカー、ワラステナイト、アルミナシリケートなどの繊維状、ウィスカ

一状充填材、金属（ニッケル、銅、コバルト、銀、アルミニウム、鉄およびこれらの合金等）で被覆された非金属繊維（ガラス繊維、アラミド繊維、ポリエステル繊維、炭素繊維等）等が挙げられる。これらを２種以上含有してもよい。前記繊維状充填材（ｂ１）中、成形品の強度、剛性などの機械特性と流動性のバランスの観点から、ガラス繊維、ＰＡＮ系またはピッチ系の炭素繊維、ステンレス繊維がより好ましく、ＰＡＮ系炭素繊維がさらに好ましい。ＰＡＮ系炭素繊維は機械特性の向上効果が大きいこと、溶融混練時に折損し難いことから好ましく使用できる。

[0046] 繊維状充填材（ｂ１）の表面に、樹脂の濡れ性の改善、取り扱い性の向上を目的として、カップリング剤や集束剤等を付着させたものを用いてもよい。カップリング剤としては、例えば、アミノ系、エポキシ系、クロル系、メルカプト系、およびカチオン系のシランカップリング剤等が挙げられ、アミノ系シラン系カップリング剤が好適に使用可能である。集束剤としては、例えば、無水マレイン酸系化合物、ウレタン系化合物、アクリル系化合物、エポキシ系化合物、フェノール系化合物および／またはこれら化合物の誘導体を含有する集束剤が挙げられ、ウレタン系化合物を含有する集束剤が好適に使用可能である。繊維状充填材（ｂ１）中の集束剤の含有量は、０．１～１０．０重量％が好ましく、０．３～８．０重量％がさらに好ましく、０．５～６．０重量％が特に好ましい。

[0047] 本発明の繊維強化多層ペレットは、鞘層を構成する樹脂組成物中の繊維状充填材（ｂ１）の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．１ｍｍ以上０．５ｍｍ未満の範囲であり、重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ：分散度）が１．０以上１．８未満の範囲であることを特徴とする。鞘層における繊維状充填材（ｂ１）のＬｗが０．１ｍｍ未満であると、繊維強化多層ペレットから得られる成形品の機械特性、特に曲げ弾性率が低下する。０．１２５ｍｍ以上が好ましく、０．１５ｍｍ以上がより好ましい。一方、鞘層における繊維状充填材（ｂ１）のＬｗが０．５ｍｍ以上であると、繊維強化多層ペレットの表面外観が低下し、生産性が低下する。０．４５ｍｍ未満がより好ま

しく、０．４０ｍｍ未満がさらに好ましい。また、鞘層における繊維状充填材（ｂ１）のＬｗ／Ｌｎ（分散度）が１．０未満であると、繊維強化多層ペレットから得られる成形品の機械特性、特に曲げ弾性率が低下する。１．０５以上が好ましく、１．１以上がより好ましい。一方、鞘層における繊維状充填材（ｂ１）のＬｗ／Ｌｎ（分散度）が１．８以上であると、繊維強化多層ペレットの表面外観が低下し、生産性が低下する。１．７未満が好ましく、１．６未満がより好ましい。

ここで、樹脂組成物中の繊維状充填材（ｂ１）の重量平均繊維長（Ｌｗ）、数平均繊維長（Ｌｎ）は、例えば、次のようにして求めることができる。まず、繊維強化多層ペレットを製造する時に、芯層の供給を止めて鞘層のみを供給することにより、鞘層をサンプリングする。または、繊維強化多層ペレット外周部表層を切削することにより、鞘層をサンプリングすることもできる。この際の鞘層と芯層が識別可能であれば、外周部の鞘層のみを切削することによりサンプリングすることが好ましいが、識別が困難な場合には、外周部表層を繊維強化多層ペレットの最表層から１０重量％以内の部分と定義してサンプリングするものである。そのサンプルを、熱可塑性樹脂が溶解する溶剤にて溶解させた後、濾紙上で濾過・洗浄を行う。その濾紙上の残渣である繊維状充填材を、光学顕微鏡を使用し５０倍の倍率で観察する。繊維状充填材１０００本の長さを測定し、その測定値（ｍｍ）（小数点２桁が有効数字）から重量平均繊維長（Ｌｗ）、数平均繊維長（Ｌｎ）、分散度（Ｌｗ／Ｌｎ）を算出する。

[0048] 数平均繊維長（Ｌｎ）＝Σ（Ｌｉ×ｎｉ）／Σｎｉ

重量平均繊維長（Ｌｗ）＝Σ（Ｗｉ×Ｌｉ）／ΣＷｉ＝Σ（π ｒｉ^2×Ｌｉ×ρ×ｎｉ×Ｌｉ）／Σ（π ｒｉ^2×Ｌｉ×ρ×ｎｉ）

繊維径ｒｉ、および密度ρが一定である場合、上式は簡略化され、以下の式となる。

[0049] 重量平均繊維長（Ｌｗ）＝Σ（Ｌｉ^2×ｎｉ）／Σ（Ｌｉ×ｎｉ）

Ｌｉ：繊維状充填材の繊維長

ｎｉ：繊維長Ｌｉの繊維状充填材の本数

Ｗｉ：繊維状充填材の重量

ｒｉ：繊維状充填材の繊維径

ρ：繊維状充填材の密度

繊維状充填材（ｂ１）としては、溶融混練装置に添加できる形態であれば制限はなく、予め裁断されているチョップドストランドや破砕繊維、連続長繊維等が挙げられる。生産性の観点からチョップドストランドが好ましく利用できる。

[0050] 鞘層における繊維状充填材（ｂ１）の繊維長分布を前記範囲に調整する手段としては、例えば、目的の繊維長分布に合わせて任意の繊維長分布を有する繊維状充填材を原料とする方法、使用する熱可塑性樹脂の溶融粘度を調整することにより繊維状充填材への剪断付与を調整する方法、後述する樹脂組成物の溶融混練時のスクリュー回転数、シリンダー温度、吐出量を調整する方法などが挙げられる。

[0051] 鞘層を構成する樹脂組成物において、熱可塑性樹脂（ａ１）の含有量は４０重量％以上９５重量％以下が好ましく、繊維状充填材（ｂ１）の含有量は５重量％以上６０重量％以下が好ましい。熱可塑性樹脂（ａ１）の含有量を４０重量％以上とし、繊維状充填材（ｂ１）の含有量を６０重量％以下とすることにより、成形性および繊維強化多層ペレットの表面外観をより向上させることができる。熱可塑性樹脂（ａ１）の含有量は、４５重量％以上がより好ましく、５０重量％以上がより好ましい。同様に、繊維状充填材（ｂ１）の含有量は、５５重量％以下がより好ましく、５０重量％以下がさらに好ましい。一方、熱可塑性樹脂（ａ１）の含有量を９５重量％以下とし、繊維状充填材（ｂ１）の含有量を５重量％以上とすることにより、繊維強化多層ペレットから得られる成形品の機械特性、特に曲げ弾性率をより向上させることができる。熱可塑性樹脂（ａ１）の含有量は、９０重量％以下がより好ましく、８５重量％以下がより好ましい。同様に、繊維状充填材（ｂ１）の含有量は、１０重量％以上がより好ましく、１５重量％以上がより好ましい

。

[0052] 鞘層を構成する樹脂組成物は、さらに任意の成分を含有してもよい。例えば、熱可塑性樹脂（ａ１）としてポリアミドを用いる場合、長期耐熱性を向上させる添加物として、銅化合物が好ましく用いられる。銅化合物としては、１価のハロゲン化銅化合物が好ましく、ヨウ化第１銅等が挙げられる。銅化合物の添加量は、ポリアミド１００重量部に対して０．０１５～１重量部が好ましい。成形時の金属銅の遊離に起因する成形品の着色を抑制するため、銅化合物とともにハロゲン化アルカリを添加してもよい。ハロゲン化アルカリ化合物としては、ヨウ化カリウムおよびヨウ化ナトリウムが好ましい。

[0053] また、繊維状充填材（ｂ１）とともに非繊維状充填材を併用することもできる。非繊維状充填材は、特に限定されるものでなく、板状、粉末状、粒状などのいずれの充填材も使用することができる。具体的には、タルク、ゼオライト、セリサイト、マイカ、カオリン、クレー、パイロフィライト、ベントナイトなどの珪酸塩、酸化マグネシウム、アルミナ、酸化ジルコニウム、酸化鉄などの金属化合物、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、ドロマイトなどの炭酸塩、硫酸カルシウム、硫酸バリウムなどの硫酸塩、ガラスビーズ、セラミックビーズ、窒化ホウ素、燐酸カルシウム、水酸化カルシウム、水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウムなどの水酸化物、ガラスフレーク、ガラス粉、ガラスバルーン、カーボンブラックおよびシリカ、黒鉛などの非繊維状充填材、およびモンモリロナイト、バイデライト、ノントロナイト、サポナイト、ヘクトライト、ソーコナイトなどのスメクタイト系粘土鉱物やバーミキュライト、ハロイサイト、カネマイト、ケニヤイト、燐酸ジルコニウム、燐酸チタニウムなどの各種粘土鉱物、Ｌｉ型フッ素テニオライト、Ｎａ型フッ素テニオライト、Ｎａ型四珪素フッ素雲母、Ｌｉ型四珪素フッ素雲母等の膨潤性雲母に代表される層状珪酸塩が挙げられる。これらを２種以上含有してもよい。層状珪酸塩は層間に存在する交換性陽イオンが有機オニウムイオンで交換された層状珪酸塩であってもよく、有機オニウムイオンとしてはアンモニウムイオンやホスホニウムイオン、スルホニウムイオンなどが

挙げられる。また、これら非繊維状充填材は、シラン系、チタネート系などのカップリング剤、その他表面処理剤で処理されていることが好ましく、エポキシシラン、アミノシラン系のカップリング剤で処理されていることがより好ましい。これらの中でも、ガラスフレーク、ガラスビーズがより好ましく用いられる。非繊維状充填材の含有量は、樹脂組成物１００重量％中、０．０１～２０重量％であり、好ましくは０．０２～１５重量％、より好ましくは０．０５～１０重量％である。非繊維状充填材の含有量が０．０１重量％以上であれば、成形品の機械特性をより向上させることができる。一方、２０重量％以下であれば、繊維強化多層ペレットの表面外観および成形性をより向上させることができる。

[0054] また、本発明の効果を損なわない範囲において、ヒンダードフェノール系化合物、ホスファイト系化合物、ポリアルキレンオキサイドオリゴマ系化合物、チオエーテル系化合物、エステル系化合物、有機リン化合物などの可塑剤、タルク、カオリン、有機リン化合物、ポリエーテルエーテルケトンなどの結晶核剤、ポリオレフィン系化合物、シリコーン系化合物、長鎖脂肪族エステル系化合物、長鎖脂肪族アミド系化合物などの離型剤、防食剤、着色防止剤、酸化防止剤、熱安定剤、ステアリン酸リチウム、ステアリン酸アルミニウムなどの滑剤、難燃剤、紫外線防止剤、着色剤、発泡剤などの通常の添加剤を含有してもよい。

[0055] 次に、芯層について説明する。芯層は、熱可塑性樹脂（ａ２）および繊維状充填材（ｂ２）を含み、繊維状充填材の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．５ｍｍ以上１５．０ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）が１．８以上５．０未満である樹脂組成物から構成される。すなわち、繊維強化多層ペレットの芯層における繊維状充填材の重量平均繊維長（Ｌｗ）は０．５ｍｍ以上１５．０ｍｍ未満であり、重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）は１．８以上５．０未満である。

[0056] 本発明の繊維強化多層ペレットにおいて、芯層を構成する樹脂組成物に使用する熱可塑性樹脂（ａ２）は、熱可塑性を示す樹脂であれば特に限定され

ず、例えば、鞘層を構成する樹脂組成物に使用する熱可塑性樹脂（ａ１）として例示したものを挙げることができる。

[0057] 熱可塑性樹脂（ａ２）としては、ポリアミド、スチレン系樹脂、オレフィン系樹脂、ポリカーボネート、ポリアリーレンサルファイドなどが好ましい。特にナイロン６、ナイロン６６、ナイロン６１０、ナイロン９Ｔ、ＡＢＳ（アクリロニトリル／ブタジエン／スチレン共重合体）、ポリプロピレン、ポリカーボネート、ポリフェニレンスルフィドなどが好ましく使用できる。

[0058] 本発明の繊維強化多層ペレットにおいて、芯層を構成する樹脂組成物に使用する繊維状充填材（ｂ２）は、繊維状の形状を有するいずれの充填材も使用することができる。具体的には、鞘層を構成する樹脂組成物に使用する繊維状充填材（ｂ１）として例示したものを挙げることができる。繊維状充填材（ｂ２）としては、ＰＡＮ系炭素繊維が特に好ましい。ＰＡＮ系炭素繊維は機械特性の向上効果が大きいこと、溶融混練時に折損し難いことから好ましく使用できる。

[0059] 繊維状充填材（ｂ２）の表面に、樹脂の濡れ性の改善、取り扱い性の向上を目的として、カップリング剤や集束剤等を付着させたものを用いてもよい。カップリング剤および集束剤としては、（ｂ１）に用いられるカップリング剤や集束剤として先に例示したものを挙げることができる。繊維状充填材（ｂ２）中の集束剤の含有量は、０．１～１０．０重量％が好ましく、０．３～８．０重量％がさらに好ましく、０．５～６．０重量％が特に好ましい。

[0060] 本発明の繊維強化多層ペレットは、芯層を構成する樹脂組成物中の繊維状充填材（ｂ２）の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．５ｍｍ以上１５．０ｍｍ未満の範囲であり、重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ：分散度）が１．８以上５．０未満の範囲であることを特徴とする。芯層における繊維状充填材（ｂ２）のＬｗが０．５ｍｍ未満であると、繊維強化多層ペレットから得られる成形品の機械特性、特に衝撃強度が低下する。０．５５ｍｍ以上が好ましく、０．６ｍｍ以上がより好ましい。一方、芯層における繊維

状充填材（ｂ２）のＬｗが１５．０ｍｍ以上であると、繊維強化多層ペレットのペレット表面外観が低下する。１０．０ｍｍ以下が好ましく、６．０ｍｍ以下がより好ましい。また、芯層における繊維状充填材（ｂ２）のＬｗ／Ｌｎ（分散度）が１．８未満であると、繊維強化多層ペレットから得られる成形品の機械特性、特に衝撃強度が低下する。１．９以上が好ましく、２．０以上がより好ましい。一方、芯層における繊維状充填材（ｂ２）のＬｗ／Ｌｎ（分散度）が５．０以上であると、繊維強化多層ペレットの表面外観が低下する。４．５以下が好ましく、４．０以下がより好ましい。

[0061] ここで、樹脂組成物中の繊維状充填材（ｂ２）の重量平均繊維長（Ｌｗ）、数平均繊維長（Ｌｎ）は、例えば、次のようにして求めることができる。まず、繊維強化多層ペレットを製造する時に、鞘層の供給を止めて芯層のみを供給することにより、芯層をサンプリングする。または、繊維強化多層ペレットを流れ方向に沿って中央部で切断し流れ方向に沿って中心部を切削することにより、芯層をサンプリングすることもできる。この際、鞘層と芯層が識別可能であれば、中央部の芯層のみを切削することによりサンプリングすることが好ましいが、識別が困難な場合には、中心部を繊維強化多層ペレットの中心から１０重量％以内の部分と定義してサンプリングするものである。そのサンプルを、熱可塑性樹脂が溶解する溶剤にて溶解させた後、濾紙上で濾過・洗浄を行う。その濾紙上の残渣である繊維状充填材を、光学顕微鏡を使用し５０倍の倍率で観察する。繊維状充填材１，０００本の長さを測定し、その測定値（ｍｍ）（小数点２桁が有効数字）から重量平均繊維長（Ｌｗ）、数平均繊維長（Ｌｎ）、分散度（Ｌｗ／Ｌｎ）を算出する。

[0062] 数平均繊維長（Ｌｎ）＝Σ（Ｌｉ×ｎｉ）／Σｎｉ

重量平均繊維長（Ｌｗ）＝Σ（Ｗｉ×Ｌｉ）／ΣＷｉ＝Σ（π ｒｉ^2×Ｌｉ×ρ×ｎｉ×Ｌｉ）／Σ（π ｒｉ^2×Ｌｉ×ρ×ｎｉ）

繊維径ｒｉ、および密度ρが一定である場合、上式は簡略化され、以下の式となる。

[0063] 重量平均繊維長（Ｌｗ）＝Σ（Ｌｉ^2×ｎｉ）／Σ（Ｌｉ×ｎｉ）

Ｌｉ：繊維状充填材の繊維長

ｎｉ：繊維長Ｌｉの繊維状充填材の本数

Ｗｉ：繊維状充填材の重量

ｒｉ：繊維状充填材の繊維径

ρ：繊維状充填材の密度

繊維状充填材（ｂ２）としては、溶融混練装置に添加できる形態であれば制限はなく、予め裁断されているチョップドストランドや破砕繊維、連続長繊維等が挙げられる。生産性の観点からチョップドストランドが好ましく利用できる。

[0064] 芯層における繊維状充填材（ｂ２）の繊維長分布を前記範囲に調整する手段としては、例えば、目的の繊維長分布に合わせて任意の繊維長分布を有する繊維状充填材を原料とする方法、使用する熱可塑性樹脂の溶融粘度を調整することにより繊維状充填材への剪断付与を調整する方法、後述する樹脂組成物の溶融混練時のスクリュー回転数、シリンダー温度、吐出量を調整する方法などが挙げられる。

[0065] 芯層を構成する樹脂組成物は、さらに任意の成分を含有してもよい。任意の成分としては、鞘層を構成する樹脂組成物における任意成分として例示したものを挙げることができる。

[0066] 芯層を構成する樹脂組成物において、熱可塑性樹脂（ａ２）の含有量は４０重量％以上９５重量％以下が好ましく、繊維状充填材（ｂ２）の含有量は５重量％以上６０重量％以下が好ましい。熱可塑性樹脂（ａ２）の含有量を４０重量％以上とし、繊維状充填材（ｂ２）の含有量を６０重量％以下とすることにより、成形性および繊維強化多層ペレットの表面外観をより向上させることができる。熱可塑性樹脂（ａ２）の含有量は、４５重量％以上がより好ましく、５０重量％以上がより好ましい。同様に、繊維状充填材（ｂ２）の含有量は、５５重量％以下がより好ましく、５０重量％以下がさらに好ましい。一方、熱可塑性樹脂（ａ２）の含有量を９５重量％以下とし、繊維状充填材（ｂ２）の含有量を５重量％以上とすることにより、繊維強化多層

ペレットから得られる成形品の機械特性、特に曲げ弾性率をより向上させることができる。熱可塑性樹脂（ａ２）の含有量は、９０重量％以下がより好ましく、８５重量％以下がより好ましい。同様に、繊維状充填材（ｂ２）の含有量は、１０重量％以上がより好ましく、１５重量％以上がより好ましい。

本発明の繊維強化多層ペレットは、前記の鞘層／芯層からなる２層ペレットのみならず、熱可塑性樹脂（ａ３）および繊維状充填剤（ｂ３）を含む繊維強化ペレットであって、ペレット表層部における繊維状充填材の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．１ｍｍ以上０．５ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）が１．０以上１．８未満であり、ペレット中心部における繊維状充填材の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．５ｍｍ以上１５．０ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）が１．８以上５．０未満である繊維強化多層ペレットも含む。前記、鞘層／芯層からなる２層ペレット同様に、ＬｗおよびＬｗ／Ｌｎの大きい繊維状充填材をペレット中心部に含むことで優れた機械特性を発現し、ＬｗおよびＬｗ／Ｌｎの小さい繊維状充填材をペレット表層部に含むことで流動性および生産性を併せ持つ繊維強化多層ペレットを得ることができる。

本発明の繊維強化多層ペレットに使用する熱可塑性樹脂（ａ３）は、熱可塑性を示す樹脂であれば特に限定されず、例えば、前記鞘層を構成する樹脂組成物に使用する熱可塑性樹脂（ａ１）として例示したものを挙げることができる。

[0067] 熱可塑性樹脂（ａ３）としては、ポリアミド、スチレン系樹脂、オレフィン系樹脂、ポリカーボネート、ポリアリーレンサルファイドなどが好ましい。特にナイロン６、ナイロン６６、ナイロン６１０、ナイロン９Ｔ、ＡＢＳ（アクリロニトリル／ブタジエン／スチレン共重合体）、ポリプロピレン、ポリカーボネート、ポリフェニレンスルフィドなどが好ましく使用できる。

[0068] 本発明の繊維強化多層ペレットに使用する繊維状充填材（ｂ３）は、繊維状の形状を有するいずれの充填材も使用することができる。具体的には、鞘

層を構成する樹脂組成物に使用する繊維状充填材（ｂ１）として例示したものを挙げることができる。繊維状充填材（ｂ３）としては、ＰＡＮ系炭素繊維が特に好ましい。ＰＡＮ系炭素繊維は機械特性の向上効果が大きいこと、溶融混練時に折損し難いことから好ましく使用できる。

[0069] 繊維状充填材（ｂ３）の表面に、樹脂の濡れ性の改善、取り扱い性の向上を目的として、カップリング剤や集束剤等を付着させたものを用いてもよい。カップリング剤および集束剤としては、（ｂ１）に用いられるカップリング剤や集束剤として先に例示したものを挙げることができる。繊維状充填材（ｂ３）中の集束剤の含有量は、０．１～１０．０重量％が好ましく、０．３～８．０重量％がさらに好ましく、０．５～６．０重量％が特に好ましい。

本発明の繊維強化多層ペレットにおいて、ペレット表層部と中心部における繊維状充填材の重量平均繊維長（Ｌｗ）、および重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）とは、ペレットの最表層および中心からそれぞれ１０重量％以内の部分より得られる値である。

[0070] 本発明の繊維強化多層ペレットは、ペレット表層部における繊維状充填材（ｂ３）の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．１ｍｍ以上０．５ｍｍ未満の範囲であり、重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）が１．０以上１．８未満の範囲であることを特徴とする。

ペレット表層部における繊維状充填材（ｂ３）のＬｗが０．１ｍｍ未満であると、繊維強化多層ペレットから得られる成形品の機械特性、特に曲げ弾性率が低下する。０．１２５ｍｍ以上が好ましく、０．１５ｍｍ以上がより好ましい。一方、ペレット表層部における繊維状充填材（ｂ３）のＬｗが０．５ｍｍ以上であると、繊維強化多層ペレットの表面外観が低下し、生産性が低下する。０．４５ｍｍ未満がより好ましく、０．４０ｍｍ未満がさらに好ましい。また、ペレット表層部における繊維状充填材（ｂ３）のＬｗ／Ｌｎ（分散度）が１．０未満であると、繊維強化多層ペレットから得られる成形品の機械特性、特に曲げ弾性率が低下する。１．０５以上が好ましく、１．

１以上がより好ましい。一方、ペレット表層部における繊維状充填材（ｂ３）のＬｗ／Ｌｎ（分散度）が１．８以上であると、繊維強化多層ペレットの表面外観が低下し、生産性が低下する。１．７未満が好ましく、１．６未満がより好ましい。

[0071] 本発明の繊維強化多層ペレットは、ペレット中心部における繊維状充填材（ｂ３）の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．５ｍｍ以上１５．０ｍｍ未満の範囲であり、重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）が１．８以上５．０未満の範囲であることを特徴とする。

ペレット中心部における繊維状充填材（ｂ３）のＬｗが０．５ｍｍ未満であると、繊維強化多層ペレットから得られる成形品の機械特性、特に衝撃強度が低下する。０．５５ｍｍ以上が好ましく、０．６ｍｍ以上がより好ましい。一方、ペレット中心部における繊維状充填材（ｂ３）のＬｗが１５．０ｍｍ以上であると、繊維強化多層ペレットのペレット表面外観が低下する。１０．０ｍｍ以下が好ましく、６．０ｍｍ以下がより好ましい。また、ペレット中心部における繊維状充填材（ｂ３）のＬｗ／Ｌｎ（分散度）が１．８未満であると、繊維強化多層ペレットから得られる成形品の機械特性、特に衝撃強度が低下する。１．９以上が好ましく、２．０以上がより好ましい。一方、ペレット中心部における繊維状充填材（ｂ３）のＬｗ／Ｌｎ（分散度）が５．０以上であると、繊維強化多層ペレットの表面外観が低下する。４．５以下が好ましく、４．０以下がより好ましい。

[0072] ここで、樹脂組成物中の繊維状充填材（ｂ３）の重量平均繊維長（Ｌｗ）、数平均繊維長（Ｌｎ）は、例えば、次のようにして求めることができる。例えば得られた繊維強化多層ペレットを流れ方向に沿って中央部で切断し、表層部および中心部からそれぞれ１０重量％以内の部分を切削することにより、サンプリングすることができる。そのサンプルを、熱可塑性樹脂が溶解する溶剤にてそれぞれ溶解させた後、濾紙上で濾過・洗浄を行う。その濾紙上の残渣である繊維状充填材を、光学顕微鏡を使用し５０倍の倍率で観察する。繊維状充填材１，０００本の長さを測定し、その測定値（ｍｍ）（小数

点２桁が有効数字）から重量平均繊維長（Ｌｗ）、数平均繊維長（Ｌｎ）、分散度（Ｌｗ／Ｌｎ）を算出する。算出式については、繊維状充填材（ｂ１）にて示した式と同様とする。

[0073] 繊維状充填材（ｂ３）としては、溶融混練装置に添加できる形態であれば制限はなく、予め裁断されているチョップドストランドや破砕繊維、連続長繊維等が挙げられ、これらは２種以上併用することもできる。生産性の観点からチョップドストランドが好ましく利用できる。

[0074] 本発明の繊維強化多層ペレットにおいて、繊維状充填材（ｂ３）の繊維長分布を前記範囲に調整する手段としては、例えば、目的の繊維長分布に合わせて任意の繊維長分布を有する繊維状充填材を原料とする方法、弾性率の異なる繊維状充填剤を用いて剪断による折損を調整する方法、後述する樹脂組成物の溶融混練時のスクリュー回転数、シリンダー温度、吐出量を調整する方法などが挙げられる。

[0075] 本発明の繊維強化多層ペレットにおいて、熱可塑性樹脂（ａ３）の含有量は４０重量％以上９５重量％以下が好ましく、繊維状充填材（ｂ３）の含有量は５重量％以上６０重量％以下が好ましい。熱可塑性樹脂（ａ３）の含有量を４０重量％以上とし、繊維状充填材（ｂ３）の含有量を６０重量％以下とすることにより、成形性および繊維強化多層ペレットの表面外観をより向上させることができる。熱可塑性樹脂（ａ３）の含有量は、４５重量％以上がより好ましく、５０重量％以上がより好ましい。同様に、繊維状充填材（ｂ３）の含有量は、５５重量％以下がより好ましく、５０重量％以下がさらに好ましい。一方、熱可塑性樹脂（ａ３）の含有量を９５重量％以下とし、繊維状充填材（ｂ３）の含有量を５重量％以上とすることにより、繊維強化多層ペレットから得られる成形品の機械特性、特に曲げ弾性率をより向上させることができる。熱可塑性樹脂（ａ３）の含有量は、９０重量％以下がより好ましく、８５重量％以下がより好ましい。同様に、繊維状充填材（ｂ３）の含有量は、１０重量％以上がより好ましく、１５重量％以上がより好ましい。

[0076] 次に、本発明の繊維強化多層ペレットの製造方法について説明する。例えば、前述の鞘層を構成する樹脂組成物および芯層を構成する樹脂組成物をそれぞれ溶融混練し、クロスヘッドダイを用いて吐出することにより多層構造を形成する製造方法、目的の繊維長分布に合わせて任意の繊維長分布を有する繊維状充填材を原料として溶融混練する製造方法、樹脂組成物の溶融混練時のスクリュー回転数、シリンダー温度、吐出量を調整する製造方法等を挙げることができるが、特にクロスヘッドダイを用いて吐出することにより多層構造を形成する製造方法が、簡便かつ用いる熱可塑性樹脂、繊維状充填材に制約がないことから好ましい。以下、クロスヘッドダイを用いた、鞘層および芯層を有する繊維強化多層ペレットの製造方法を例に説明する。

[0077] 鞘層を構成する樹脂組成物は、熱可塑性樹脂（ａ１）、繊維状充填材（ｂ１）および必要により他の成分（例えば非繊維状充填材）を、溶融混練装置を用いて溶融混練することが好ましい。溶融混練装置の設定温度は、使用する熱可塑性樹脂の融点（Ｔｍ）＋３０℃以上またはガラス転移点（Ｔｇ）＋１２０℃以上が好ましい。熱可塑性樹脂（ａ１）と繊維状充填材（ｂ１）を溶融混練装置に供給する原料供給位置は、特に制限はないが、２軸押出機であれば、熱可塑性樹脂（ａ１）は主原料供給口が好ましい。繊維状充填材（ｂ１）は、主原料供給口と吐出口の中間、具体的には、スクリューエレメントデザインで主原料供給口に最も近いシールゾーンまたはミキシングゾーンと、吐出口に最も近いシールゾーンまたはミキシングゾーンとの中間位置が、重量平均繊維長のコントロールが容易となり好ましい。

[0078] 溶融混練装置としては特に制限はなく、熱可塑性樹脂（ａ１）、繊維状充填材（ｂ１）および必要により他の成分を、適度な剪断場の下で加熱溶融混合することが可能な、樹脂加工用に使用される公知の押出機、連続式ニーダー等の溶融混練装置を使用することができる。例えば、スクリューが１本の単軸押出機およびニーダー、スクリューが２本の二軸押出機およびニーダー、スクリューが３本以上の多軸押出機およびニーダー、さらに、押出機およびニーダーが２台繋がったタンデム押出機、溶融混練せず原料供給のみ可能

なサイドフィーダーが設置された押出機およびニーダー等が挙げられる。スクリューエレメントデザインにおいては、フルフライトスクリュー等を有する溶融または非溶融搬送ゾーン、シールリング等を有するシールゾーン、ユニメルト、ニーディング等を有するミキシングゾーン等の組み合わせにも特に制限はない。シールゾーンおよび／またはミキシングゾーンを２ヶ所以上有し、原料供給口を２ヶ所以上有する連続溶融混練装置が好ましく、シールゾーンおよび／またはミキシングゾーンを２ヶ所以上有し、原料供給口を２ヶ所以上有する２軸スクリュー部を有する連続溶融混練装置がさらに好ましく、シールゾーンおよび／またはミキシングゾーンを２ヶ所以上有し、原料供給口を２ヶ所以上有する２軸押出機が最も好ましい。なお、樹脂組成物が非繊維状充填材を含有する場合、非繊維状充填材は繊維状充填材とともに溶融混練装置に供給することが好ましい。

[0079] 芯層を構成する樹脂組成物は、熱可塑性樹脂（ｂ２）、繊維状充填材（ｂ２）および必要により他の成分（例えば非繊維状充填材）を、溶融混練装置を用いて溶融混練することが好ましい。溶融混練装置の設定温度は、使用する熱可塑性樹脂（ｂ２）の融点（Ｔｍ）＋３０℃以上またはガラス転移点（Ｔｇ）＋１２０℃以上が好ましい。熱可塑性樹脂（ａ２）と繊維状充填材（ｂ２）を溶融混練装置に供給する原料供給位置は、特に制限はないが、単軸押出機であれば、熱可塑性樹脂（ａ２）および繊維状充填材（ｂ２）を主原料供給口から投入することが好ましい。

[0080] 溶融混練装置としては特に制限はなく、熱可塑性樹脂（ａ２）、繊維状充填材（ｂ２）および必要により他の成分を、低剪断場の下で加熱溶融混合することが可能な、樹脂加工用に使用される公知の押出機、連続式ニーダー等の溶融混練装置を使用することができる。例えば、スクリューが１本の単軸押出機およびニーダー、スクリューが２本の二軸押出機およびニーダー、スクリューが３本以上の多軸押出機およびニーダー、さらに、押出機およびニーダーが２台繋がったタンデム押出機、溶融混練せず原料供給のみ可能なサイドフィーダーが設置された押出機およびニーダー等が挙げられる。スクリ

ューエレメントデザインにおいては、フルフライトスクリュー等を有する溶融または非溶融搬送ゾーン、シールリング等を有するシールゾーン、ユニメルト、ニーディング等を有するミキシングゾーン等の組み合わせにも特に制限はない。シールゾーンおよび／またはミキシングゾーンを有さないフルフライトスクリューを有する連続溶融混練装置が好ましい。なお、樹脂組成物が非繊維状充填材を含有する場合、非繊維状充填材は繊維状充填材とともに溶融混練装置に供給することが好ましい。

[0081] 次に、溶融混練された各層を構成する樹脂組成物を、例えば、１つのクロスヘッドダイに供給して吐出することにより、本発明の繊維強化多層ペレットを得ることができる。かかる製造方法により、繊維状充填材を高充填した繊維強化ペレットを生産性よく製造することができる。すなわち、熱可塑性樹脂（ａ１）と繊維状充填材（ｂ１）を溶融混練装置で溶融混練し、繊維状充填材（ｂ１）の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．１ｍｍ以上０．５ｍｍ未満で、且つ重量平均繊維長／数平均繊維長（Ｌｗ／Ｌｎ）の比が１．０以上１．８未満の範囲となるようにコントロールした樹脂組成物（Ａ）をクロスヘッドダイに供給し鞘層を形成させ、熱可塑性樹脂（ａ２）と繊維状充填材（ｂ２）を溶融混練装置で溶融混練し、繊維状充填材（ｂ２）の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．５ｍｍ以上１５．０ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／数平均繊維長（Ｌｗ／Ｌｎ）の比が１．８以上５．０未満の範囲となるようにコントロールした樹脂組成物（Ｂ）をクロスヘッドダイに供給し芯層を形成し、繊維強化多層ペレットが得られる。

[0082] かくして得られる本発明の繊維強化多層ペレットは、生産性、流動性および表面外観に優れ、さらに、機械特性に優れた成形品を成形することができる。

[0083] 本発明の繊維強化多層ペレットは、通常の射出成形、押出成形、プレス成形などの成形方法によって、優れた表面外観（光沢）および機械特性を有する成形品などに加工することが可能である。かかる特性を活かして、本発明の繊維強化多層ペレットは、自動車部品、電気・電子部品、スポーツ用品部

品等の射出成形品で、厚み０．１～２．０ｍｍの薄肉部を有する成形品や、寸法精度が要求される成形品などに有用である。

[0084] 本発明において、上記各種成形品は、自動車部品、電気・電子部品、建築部材、スポーツ用品部品、各種容器、日用品、生活雑貨および衛生用品など各種用途に利用することができる。具体的な用途としては、エアフローメーター、エアポンプ、サーモスタットハウジング、エンジンマウント、イグニッションホビン、イグニッションケース、クラッチボビン、センサーハウジング、アイドルスピードコントロールバルブ、バキュームスイッチングバルブ、ＥＣＵハウジング、バキュームポンプケース、インヒビタースイッチ、回転センサー、加速度センサー、ディストリビューターキャップ、コイルベース、ＡＢＳ用アクチュエーターケース、ラジエータタンクのトップおよびボトム、クーリングファン、ファンシュラウド、エンジンカバー、シリンダーヘッドカバー、オイルキャップ、オイルパン、オイルフィルター、フューエルキャップ、フューエルストレーナー、ディストリビューターキャップ、ベーパーキャニスターハウジング、エアクリーナーハウジング、タイミングベルトカバー、ブレーキブースター部品、各種ケース、各種チューブ、各種タンク、各種ホース、各種クリップ、各種バルブ、各種パイプなどの自動車用アンダーフード部品、トルクコントロールレバー、安全ベルト部品、レジスターブレード、ウオッシャーレバー、ウインドレギュレーターハンドル、ウインドレギュレーターハンドルのノブ、パッシングライトレバー、サンバイザーブラケット、各種モーターハウジングなどの自動車用内装部品、ルーフレール、フェンダー、ガーニッシュ、バンパー、ドアミラーステー、スポイラー、フードルーバー、ホイールカバー、ホイールキャップ、グリルエプロンカバーフレーム、ランプリフレクター、ランプベゼル、ドアハンドルなどの自動車用外装部品、リレーケース、コイルボビン、光ピックアップシャーシ、モーターケース、ノートパソコンのハウジング、シャーシおよび内部部品、ＣＲＴディスプレーハウジングおよび内部部品、プリンターハウジングおよび内部部品、携帯電話、モバイルパソコン、ハンドヘルド型モバイル

などの携帯端末ハウジング、シャーシおよび内部部品、記録媒体（ＣＤ、ＤＶＤ、ＰＤ、ＦＤＤなど）ドライブのハウジング、シャーシおよび内部部品、コピー機のハウジング、シャーシおよび内部部品、ファクシミリのハウジング、シャーシおよび内部部品、パラボラアンテナなどに代表される電気・電子部品を挙げることができる。更に、ＶＴＲ部品、テレビ部品、アイロン、ヘアードライヤー、炊飯器部品、電子レンジ部品、音響部品、ビデオカメラ、プロジェクターなどの映像機器部品、レーザーディスク（登録商標）、コンパクトディスク（ＣＤ）、ＣＤ－ＲＯＭ、ＣＤ－Ｒ、ＣＤ－ＲＷ、ＤＶＤ－ＲＯＭ、ＤＶＤ－Ｒ、ＤＶＤ－ＲＷ、ＤＶＤ－ＲＡＭ、ブルーレイディスクなどの光記録媒体の基板、照明部品およびハウジング、シャーシ部品、冷蔵庫部品、エアコン部品、タイプライター部品、ワードプロセッサー部品などに代表される家庭・事務電気製品部品を挙げることができる。また、電子楽器、家庭用ゲーム機、携帯型ゲーム機などのハウジング、シャーシおよび内部部品、各種ギヤー、各種ケース、センサー、ＬＥＰランプ、コネクター、ソケット、抵抗器、リレーケース、スイッチ、コイルボビン、コンデンサー、バリコンケース、光ピックアップ、発振子、各種端子板、変成器、プラグ、プリント配線板、チューナー、スピーカー、マイクロフォン、ヘッドホン、小型モーター、磁気ヘッドベース、パワーモジュール、半導体、液晶、ＦＤＤキャリッジ、ＦＤＤシャーシ、モーターブラッシュホルダー、トランス部材、コイルボビンなどの電気・電子部品、サッシ戸車、ブラインドカーテンパーツ、配管ジョイント、カーテンライナー、ブラインド部品、ガスメーター部品、水道メーター部品、湯沸かし器部品、ルーフパネル、断熱壁、アジャスター、プラ束、天井釣り具、階段、ドアー、床などの建築部材、コンクリート型枠などの土木関連部材、釣竿部品、リールのハウジングおよびシャーシ部品、ルアー部品、クーラーボックス部品、ゴルフクラブ部品、テニス、バドミントン、スカッシュ等のラケット部品、スキー板部品、スキーストック部品、自転車のフレーム、ペダル、フロントフォーク、ハンドルバー、クランク、シートピラー、車輪等の部品、ボート用オール、スポーツ

用ヘルメット、フェンス構成部材、ゴルフティー、剣道用防具（面）および竹刀などのスポーツ用品部品、歯車、ねじ、バネ、軸受、レバー、キーステム、カム、ラチェット、ローラー、給水部品、玩具部品、結束バンド、クリップ、ファン、パイプ、洗浄用治具、モーター部品、顕微鏡、双眼鏡、カメラ、時計などの機械部品、育苗用ポット、植生杭、農ビの止め具などの農業部材、骨折補強材などの医療用品、トレイ、ブリスター、ナイフ、フォーク、スプーン、チューブ、プラスチック缶、パウチ、コンテナー、タンク、カゴなどの容器・食器類、ホットフィル容器類、電子レンジ調理用容器類化粧品容器、ＩＣトレイ、文房具、排水溝フィルター、カバン、イス、テーブル、クーラーボックス、クマデ、ホースリール、プランター、ホースノズル、食卓、机の表面、家具パネル、台所キャビネット、ペンキャップ、ガスライターなどとして有用である。特に自動車用内装部品、自動車用外装部品、スポーツ用品部材および各種電気・電子部品のハウジング、シャーシおよび内部部品として有用である。

[0085] 本発明の繊維強化樹脂ペレットおよび成形品は、リサイクルすることが可能である。例えば、繊維強化樹脂ペレットおよびそれからなる成形品を粉砕し、好ましくは粉末状とした後、必要に応じて添加剤を配合して使用することができるが、繊維の折損がおきている場合、得られる樹脂組成物は、本発明の成形品と同様の機械強度を発現することは困難である。

実施例

[0086] 本発明をさらに具体的に説明するために、以下、実施例および比較例を挙げて説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。実施例中の部数およびｗｔ％はそれぞれ重量部および重量％を示す。

［熱可塑性樹脂］

（ａ１）鞘層の熱可塑性樹脂

（ａ１－１）ナイロン６樹脂（樹脂濃度０．０１ｇ／ｍｌの９８％濃硫酸溶液中、２５℃で測定した相対粘度２．３５）を使用した。

[0087] （ａ１－２）ナイロン６樹脂（樹脂濃度０．０１ｇ／ｍｌの９８％濃硫酸

溶液中、２５℃で測定した相対粘度３．４０）を使用した。

[0088] （ａ１－３）ポリカーボネート樹脂“タフロン”（登録商標）Ａ１９００（出光興産株式会社製）を使用した。

（ａ２）芯層の熱可塑性樹脂

（ａ２－１）（ａ１－１）と同じナイロン６樹脂を使用した。

[0089] （ａ２－２）（ａ１－３）と同じポリカーボネート樹脂を使用した。

［繊維状充填材］

（ｂ１）鞘層の繊維状充填材

（ｂ１－１）炭素繊維“トレカ”（登録商標）カットファイバーＴＶ１４－００６（繊維長６ｍｍのチョップドストランド）（東レ株式会社製、原糸Ｔ７００ＳＣ－１２Ｋ：引張強度４．９０ＧＰａ、引張弾性率２３０ＧＰａ、繊維径６．８μｍ）を使用した。

（ｂ２）芯層の繊維状充填材

（ｂ２－１）（ｂ１－１）と同じ炭素繊維を使用した。［炭素繊維強化ペレット］

（ｃ１）炭素繊維強化ナイロン６樹脂“トレカ”（登録商標）長繊維ペレットＴＬＰ１０６０（炭素繊維含有量３０ｗｔ％、東レ株式会社製）（長繊維強化ペレット）を使用した。

（ｃ２）表１中の比較例１にて得られた炭素繊維強化ナイロン６樹脂（短繊維強化ペレット）を使用した。

［実施例１～５、比較例１～５］

表１記載の鞘層樹脂組成物（Ａ）の組成比で、表中に示す諸条件に設定した鞘層用２軸押出機（日本製鋼所製ＴＥＸ３０α）を用い、熱可塑性樹脂（ａ１）を主ホッパーに供給後、繊維状充填材（ｂ１）をサイドフィーダーを用いて溶融樹脂中に供給して溶融混練し、芯鞘形成用クロスヘッドダイに供給した。表１記載の芯層樹脂組成物（Ｂ）の組成比で、表中に示す諸条件に設定した芯層用単軸押出機（φ４０ｍｍ、Ｌ／Ｄ３０）に熱可塑性樹脂（ａ２）および繊維状充填材（ｂ２）を主ホッパーに供給して溶融混練し、芯鞘

形成用クロスヘッドダイに供給した。ダイから直径４ｍｍで吐出された多層ストランドを水中にて冷却し、ストランドカッターにより長さ３．０ｍｍ長にカットしてペレット化を実施し、繊維強化多層ペレットを得た。なお、芯層／鞘層の構成比は芯層および鞘層の溶融混練装置の吐出量により調整した。ただし、比較例１、２においては芯層樹脂組成物（Ｂ）を用いず、比較例３においては鞘層樹脂組成物（Ａ）を用いなかったのでこれら比較例１～３は多層ペレットではない。

[0090] 上記で得られた繊維強化多層ペレットを８０℃で一昼夜真空乾燥し、表１記載の条件で射出成形機（住友重機械社製ＳＧ７５Ｈ－ＭＩＶ）を使用し、射出速度５０ｍｍ／ｓｅｃ、射出圧を下限圧＋１ＭＰａでそれぞれの試験片を成形し、次の条件で物性を測定した。

［繊維長］鞘層用樹脂組成物を鞘層用２軸押出機で、芯層用樹脂組成物を芯層用単軸押出機で、それぞれ単独で各実施例および比較例と同じ押出条件で溶融混練し、クロスヘッドダイより吐出されたストランドをサンプリングした。さらに、実施例１～５および比較例４～５については、クロスヘッドダイより吐出された繊維強化多層ペレットを、流れ方向に沿って中央部で切断し、最表層および中心からそれぞれ１０重量％以内の部分を切削することにより、鞘層および芯層のサンプリングをした。得られたサンプルは、ギ酸にて溶かした後、洗浄・濾過を行い、その残渣を光学顕微鏡にて５０倍の倍率で観察しながら、無作為に選んだ１，０００本の長さを測定した。得られた測定値から、下記式により、重量平均繊維長（Ｌｗ）、数平均繊維長（Ｌｎ）および分散度（Ｌｗ／Ｌｎ）を算出した。

[0091] 数平均繊維長（Ｌｎ）＝Σ（Ｌｉ×ｎｉ）／Σｎｉ

重量平均繊維長（Ｌｗ）＝Σ（$Ｌｉ^{2}$×ｎｉ）／Σ（Ｌｉ×ｎｉ）

Ｌｉ：繊維状充填材の繊維長

ｎｉ：繊維長Ｌｉの繊維状充填材の本数。

［生産性（連続引き取り性）］クロスヘッドダイから１０ｋｇ／ｈｒの速度で３０分間吐出し、ストランドの切れた回数を求めた。

［耐衝撃性］ＩＳＯ３１６７タイプＢ試験片を使用し、ＩＳＯ１７９に従い２３℃でシャルピー衝撃強さ（ノッチ付き）を評価した。試験片１２本について測定した値の平均値とした。

［引張強度］ＩＳＯ３１６７タイプＡ試験片を使用し、ＩＳＯ５２７に従い２３℃で引張強度を評価した。いずれも試験片６本について測定した値の平均値とした。

［曲げ強度、曲げ弾性率］ＩＳＯ３１６７タイプＡ試験片を使用し、ＩＳＯ１７８に従い２３℃で曲げ強度および曲げ弾性率を評価した。いずれも試験片６本について測定した値の平均値とした。

［スパイラルフロー長］幅１０ｍｍ、２ｍｍｔの金型を用い、表中に示す温度条件、射出速度５０ｍｍ／ｓｅｃ、射出圧力８０ＭＰａで成形した際の流動長を測定した。流動長は２０ショットの平均の値とした。

［外観評価］８０ｍｍ×８０ｍｍ×３ｍｍ厚の角板金型を用い、表中に示す温度条件、射出速度５０ｍｍ／ｓｅｃ、射出圧を下限圧＋１ＭＰａで成形した際の成形品表面に存在する繊維状充填材凝集物の個数を目視にて数えた。凝集物の個数は角板１０枚について計数した値の平均値とした。

［比較例６］

表１記載のとおり、長繊維強化ペレット（ｃ１）のみを射出成形機に供給し、実施例１～５および比較例１～５と同様に試験片を成形し、物性を測定した。

［比較例７］

表１記載のとおり、長繊維強化ペレット（ｃ１）と短繊維強化ペレット（ｃ２）を５０重量部：５０重量部の組成比でドライブレンドした混合ペレットを射出成形機に供給し、実施例１～５および比較例１～５と同様に試験片を成形し、物性を測定した。

［比較例８］

表１記載のとおり、ナイロン６樹脂（ａ１－１）と炭素繊維チョップドストランド（ｂ１－１）を７０重量部：３０重量部の組成比でドライブレンド

して射出成形機に供給し、実施例１～５および比較例１～５と同様に試験片を成形し、物性を測定した。

[0092] 実施例１～５および比較例１～８の評価結果を表１に示す。

[0093]

[表1]

【表１】

			実施例１	実施例２	実施例３	実施例４	実施例５	比較例１	比較例２	比較例３	比較例４	比較例５	比較例６	比較例７	比較例８
鞘層樹脂組成物（A）	熱可塑性樹脂(a1)	重量部	(a1-1) 70	(a1-1) 70	(a1-1) 70	(a1-1) 70	(a1-1) 55	(a1-1) 70	(a1-1) 55	—	(a1-1) 70	(a1-1) 70	(c1) 100	(c1) 50 (c2) 50 ペレットブレンド	(a1-1) 70 (b1-1) 30 成形機ブレンド
	繊維状充填材(b1)	重量部	(b1-1) 30	(b1-1) 30	(b1-1) 30	(b1-1) 30	(b1-1) 45	(b1-1) 30	(b1-1) 45	—	(b1-1) 30	(b1-1) 30			
鞘層押出条件	押出温度	℃	260	260	260	260	260	260	260	—	260	260			
	スクリュー回転数		200	200	200	200	200	200	200	—	50	200			
	吐出量	kg/hr	7.5	7.5	5	3	7.5	7.5	7.5	—	7.5	7.5			
	備考		二軸ミキシング 2カ所	二軸ミキシング 2カ所	二軸ミキシング 2カ所	二軸ミキシング 2カ所	二軸ミキシング 2カ所	二軸ミキシング 2カ所	二軸ミキシング 2カ所	—	二軸ミキシング 2カ所	二軸ミキシング 2カ所			
鞘層繊維長（ストランド）	重量平均繊維長（Lw）	mm	0.40	0.40	0.35	0.31	0.28	0.40	0.28	—	0.60	0.40			
	数平均繊維長（Ln）	mm	0.34	0.34	0.27	0.23	0.20	0.34	0.20	—	0.36	0.34			
	分散度（Lw/Ln）		1.18	1.18	1.30	1.35	1.40	1.18	1.40	—	1.67	1.18			
芯層樹脂組成物（B）	熱可塑性樹脂(a2)	重量部	(a2-1) 70	(a2-1) 70	(a2-1) 70	(a2-1) 70	(a2-1) 55	—	—	(a2-1) 70	(a2-1) 70	(a2-1) 70			
	繊維状充填材(b2)	重量部	(b2-1) 30	(b2-1) 30	(b2-1) 30	(b2-1) 30	(b2-1) 45	—	—	(b2-1) 30	(b2-1) 30	(b2-1) 30			
芯層押出条件	押出温度	℃	260	260	260	260	260	—	—	260	260	260			
	スクリュー回転数		50	25	25	25	25	—	—	50	25	200			
	吐出量	kg/hr	7.5	7.5	10.0	12.0	7.5	—	—	7.5	7.5	7.5			
	備考		単軸フルフライト	単軸フルフライト	単軸フルフライト	単軸フルフライト	単軸フルフライト	—	—	単軸フルフライト	単軸フルフライト	単軸フルフライト			
芯層繊維長（ストランド）	重量平均繊維長（Lw）	mm	1.15	2.02	2.17	2.32	1.34	—	—	1.16	2.02	0.64			
	数平均繊維長（Ln）	mm	0.44	0.81	0.92	1.03	0.63	—	—	0.45	0.81	0.38			
	分散度（Lw/Ln）		2.61	2.49	2.36	2.25	2.13	—	—	2.58	2.49	1.68			
鞘層繊維長（多層ペレット）	重量平均繊維長（Lw）	mm	0.39	0.39	0.35	0.31	0.28	—	—	—	0.59	0.39			
	数平均繊維長（Ln）	mm	0.34	0.34	0.27	0.23	0.20	—	—	—	0.35	0.34			
	分散度（Lw/Ln）		1.15	1.15	1.30	1.35	1.40	—	—	—	1.69	1.15			
芯層繊維長（多層ペレット）	重量平均繊維長（Lw）	mm	1.14	2.01	2.14	2.29	1.33	—	—	—	2.01	0.62			
	数平均繊維長（Ln）	mm	0.43	0.81	0.92	1.02	0.62	—	—	—	0.82	0.37			
	分散度（Lw/Ln）		2.65	2.48	2.33	2.25	2.15	—	—	—	2.45	1.68			
射出成形条件	成形温度	℃	280	280	280	280	280	280	280	280	280	280	280	280	280
	金型温度	℃	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80
生産性	ストランド切れ数	回	0	0	0	0	0	0	0	引取不可	52	0	—	—	—
	備考									毛羽発生	毛羽発生		—	—	—
特性	耐衝撃性（ノッチあり）	kJ/m^2	15	17	18	19	18	11	10	—	19	12	23	19	18
	引張強度	MPa	260	265	265	265	230	260	230	—	250	265	290	270	190
	曲げ強度	MPa	360	360	360	365	380	355	375	—	350	360	390	360	320
	曲げ弾性率	Gpa	20.7	21.0	21.2	20.9	31.6	20.1	30.8	—	21.1	21.0	20.3	20.7	21.0
	スパイラルフロー長	mm	435	430	430	425	300	440	310	—	390	435	325	375	300
	外観	個	0	0	0	0	0	0	0	—	8	0	9	6	>15

[0094] 実施例１～５、比較例１～８より、鞘層の樹脂組成物（Ａ）が熱可塑性樹脂（ａ１）および重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．１ｍｍ以上０．５ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／数平均繊維長（Ｌｗ／Ｌｎ）の比が１以上１．８未満である繊維状充填材（ｂ１）を含む構成であり、芯層の樹脂組成物（Ｂ）が熱可塑性樹脂（ａ２）および重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．５ｍｍ以上１５．０ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／数平均繊維長（Ｌｗ／Ｌｎ）の比が１．８以上５．０未満である繊維状充填材（ｂ２）を含む構成である繊維強化多層ペレットは、繊維状充填材を高充填しているにも関わらず、生産性が高く、耐衝撃性が大幅に向上し、流動性、外観に優れることがわかる。

[0095] 具体的には比較例１、２において、鞘層組成物単独では生産性に優れるものの機械特性の向上はなく特に衝撃強度が低い。比較例３において、芯層組成物単独では、ストランドが毛羽により膨張しストランドが引けずペレット化できないまたは生産性に劣るものとなる。比較例４において、鞘層の繊維長が０．５ｍｍ以上のものは、機械特性は優れるもののストランドが毛羽により膨張しストランド切れが多発し生産性に劣るものとなる。比較例５において、芯層の重量平均繊維長／数平均繊維長（Ｌｗ／Ｌｎ）の比が１．８未満のものは、生産性に優れるが比較例１同様に機械特性の向上はなく特に衝撃強度が低く劣るものとなる。比較例６において、炭素繊維をナイロン６樹脂で電線被覆した長繊維強化ペレット単独や、比較例７において、長繊維強化ペレットと短繊維強化ペレットをブレンドしたものは、機械特性に優れるが流動性が低く、さらに繊維状充填材の分散性も低いため成形品の外観が低下する。さらに比較例８において、熱可塑性樹脂と繊維状充填材をドライブレンドしたものを直接成形機で混合したものは、機械特性、流動性、外観いずれも低下する。

［実施例６～１１、比較例９～１２］

表２記載の鞘層樹脂組成物（Ａ）の組成比で、表中に示す諸条件に設定した鞘層用２軸押出機（日本製鋼所製ＴＥＸ３０α）を用い、熱可塑性樹脂（

ａ１）を主ホッパーに供給後、繊維状充填材（ｂ１）をサイドフィーダーを用いて溶融樹脂中に供給して溶融混練し、芯鞘形成用クロスヘッドダイに供給した。表２記載の芯層樹脂組成物（Ｂ）の組成比で、表中に示す諸条件に設定した芯層用２軸押出機（日本製鋼所製ＴＥＸ３０α、Ｌ／Ｄ３５）に熱可塑性樹脂（ａ２）および繊維状充填材（ｂ２）を主ホッパーに供給して溶融混練し、芯鞘形成用クロスヘッドダイに供給した。ダイから直径４ｍｍで吐出された多層ストランドを水中にて冷却、ストランドカッターにより長さ３．０ｍｍ長にカットしてペレット化を実施し、繊維強化多層ペレットを得た。なお、芯層／鞘層の構成比は芯層および鞘層の溶融混練装置の吐出量により調整した。ただし、比較例９、１２においては鞘層樹脂組成物（Ａ）を用いず、比較例１１においては芯層樹脂組成物（Ｂ）を用いなかったのでこれら比較例９、１１、１２は多層ペレットではない。

[0096] 上記で得られた繊維強化多層ペレットのうち、熱可塑性樹脂としてナイロン６樹脂を用いたものは８０℃で一昼夜真空乾燥、熱可塑性樹脂としてポリカーボネート樹脂を用いたものは１２０℃で５時間以上熱風乾燥した後、表２記載の条件で射出成形機（住友重機械社製ＳＧ７５Ｈ－ＭＩＶ）を使用し、射出速度５０ｍｍ／ｓｅｃ、射出圧を下限圧＋１ＭＰａでそれぞれの試験片を成形し、前記実施例１～５および比較例１～８と同様に物性を測定した。評価結果を表２に示す。

[0097]

[表2]

【表２】

			実施例６	実施例７	実施例８	実施例９	実施例１０	実施例１１	比較例９	比較例１０	比較例１１	比較例１２
鞘層樹脂組成物（Ａ）	熱可塑性樹脂(a1)	重量部	(a1-1) 70	(a1-1) 70	(a1-1) 55	(a1-2) 70	(a1-3) 70	(a1-3) 70	—	(a1-1) 70	(a1-3) 70	—
	繊維状充填材(b1)	重量部	(b1-1) 30	(b1-1) 30	(b1-1) 45	(b1-1) 30	(b1-1) 30	(b1-1) 30	—	(b1-1) 30	(b1-1) 30	—
鞘層押出条件	押出温度	℃	260	260	260	260	280	280	—	260	280	—
	スクリュー回転数		200	200	200	200	200	200	—	50	200	—
	吐出量	kg/hr	7.5	3	7.5	7.5	7.5	3	—	7.5	7.5	—
	備考		二軸ミキシング 2ヵ所	二軸ミキシング 2ヵ所	二軸ミキシング 2ヵ所	二軸ミキシング 2ヵ所	二軸ミキシング 2ヵ所	二軸ミキシング 2ヵ所	—	二軸ミキシング 2ヵ所	二軸ミキシング 2ヵ所	—
鞘層繊維長（ストランド）	重量平均繊維長（Lw）	mm	0.40	0.31	0.27	0.36	0.30	0.25	—	0.60	0.30	—
	数平均繊維長（Ln）	mm	0.34	0.24	0.20	0.27	0.23	0.19	—	0.36	0.23	—
	分散度（Lw/Ln）		1.18	1.29	1.35	1.33	1.30	1.32	—	1.67	1.30	—
芯層樹脂組成物（Ｂ）	熱可塑性樹脂(a2)	重量部	(a2-1) 70	(a2-1) 70	(a2-1) 55	(a2-1) 70	(a2-2) 70	(a2-2) 70	(a2-1) 70	(a2-1) 70	—	(a2-2) 70
	繊維状充填材(b2)	重量部	(b2-1) 30	(b2-1) 30	(b2-1) 45	(b2-1) 30	(b2-1) 30	(b2-1) 30	(b2-1) 30	(b2-1) 30	—	(b2-1) 30
芯層押出条件	押出温度	℃	280	280	280	280	310	310	280	280	—	310
	スクリュー回転数		40	40	40	40	40	40	40	40	—	40
	吐出量	kg/hr	7.5	12	7.5	7.5	7.5	12	7.5	7.5	—	7.5
	備考		二軸ミキシング 1ヵ所	二軸ミキシング 1ヵ所	二軸ミキシング 1ヵ所	二軸ミキシング 1ヵ所	二軸ミキシング 1ヵ所	二軸ミキシング 1ヵ所	二軸ミキシング 1ヵ所	二軸ミキシング 1ヵ所	—	二軸ミキシング 1ヵ所
芯層繊維長（ストランド）	重量平均繊維長（Lw）	mm	1.89	2.21	1.28	1.89	0.64	0.71	1.89	1.89	—	0.64
	数平均繊維長（Ln）	mm	0.96	1.03	0.49	0.96	0.32	0.35	0.96	0.96	—	0.32
	分散度（Lw/Ln）		1.97	2.15	2.61	1.97	2.00	2.03	1.97	1.97	—	2.00
射出成形条件	成形温度	℃	280	280	280	280	300	300	280	280	300	300
	金型温度	℃	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80
生産性	ストランド切れ数	回	0	0	0	0	0	0	引取不可	36	0	24
	備考								毛羽発生	毛羽発生		毛羽発生
特性	耐衝撃性（ノッチあり）	kJ/m^2	18	19	18	22	16	18	—	18	11	17
	引張強度	MPa	295	300	255	290	185	190	—	255	170	155
	曲げ強度	MPa	395	400	395	390	275	275	—	360	260	250
	曲げ弾性率	Gpa	21.2	21.5	31.3	20.7	18.9	18.6	—	20.9	18.1	18.6
	スパイラルフロー長	mm	430	430	305	380	330	325	—	395	340	305
	外観	個	0	0	0	0	0	0	—	6	0	5

[0098] 実施例６～１１、比較例９～１２より、芯層の樹脂組成物（Ｂ）を二軸押出機で溶融混練した場合においても、前記同様に重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．５ｍｍ以上１５．０ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／数平均繊維長（Ｌｗ／Ｌｎ）の比が１．８以上５．０未満である繊維状充填材（ｂ２）を含む繊維強化多層ペレットが得られ、生産性が高く、耐衝撃性が大幅に向上し、流動性、外観に優れることがわかる。

産業上の利用可能性

[0099] 本発明の繊維強化多層ペレットは、自動車用内装部品、自動車用外装部品、スポーツ用品部材および各種電気・電子部品のハウジング、シャーシおよび内部部品など種々の用途に用いることができる。

請求の範囲

[請求項1] 鞘層および芯層を有する繊維強化多層ペレットであって、鞘層が、熱可塑性樹脂（ａ１）および繊維状充填材（ｂ１）を含み、繊維状充填材（ｂ１）の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．１ｍｍ以上０．５ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）が１．０以上１．８未満である樹脂組成物から構成され、芯層が、熱可塑性樹脂（ａ２）および繊維状充填材（ｂ２）を含み、繊維状充填材（ｂ２）の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．５ｍｍ以上１５．０ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）が１．８以上５．０未満である樹脂組成物から構成される繊維強化多層ペレット。

[請求項2] 前記鞘層を構成する樹脂組成物が、熱可塑性樹脂（ａ１）４０～９５重量％および繊維状充填材（ｂ１）５～６０重量％を含む請求項１に記載の繊維強化多層ペレット。

[請求項3] 前記芯層を構成する樹脂組成物が、熱可塑性樹脂（ａ２）４０～９５重量％および繊維状充填材（ｂ２）５～６０重量％を含む請求項１または２に記載の繊維強化多層ペレット。

[請求項4] 前記鞘層に含まれる繊維状充填材（ｂ１）および／または前記芯層に含まれる繊維状充填材（ｂ２）が、ガラス繊維、ポリアクリロニトリル系またはピッチ系炭素繊維およびステンレス繊維からなる群より選ばれる少なくとも１種である請求項１～３のいずれかに記載の繊維強化多層ペレット。

[請求項5] 熱可塑性樹脂（ａ３）および繊維状充填材（ｂ３）を含む繊維強化ペレットであって、ペレット表層部における繊維状充填材の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．１ｍｍ以上０．５ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）が１．０以上１．８未満であり、ペレット中心部における繊維状充填材の重量平均繊維長（Ｌｗ）が０．５ｍｍ以上１５．０ｍｍ未満であり、且つ重量平均繊維長／

数平均繊維長の比（Ｌｗ／Ｌｎ）が１．８以上５．０未満である繊維強化多層ペレット。

[請求項6] 前記繊維状充填材が、ガラス繊維、ポリアクリロニトリル系またはピッチ系炭素繊維およびステンレス繊維からなる群より選ばれる少なくとも１種である請求項５に記載の繊維強化多層ペレット。

[請求項7] 請求項１～６のいずれかに記載の繊維強化多層ペレットを成形してなる成形品。

[請求項8] 前記鞘層を構成する樹脂組成物および前記芯層を構成する樹脂組成物をそれぞれ溶融混練し、クロスヘッドダイを用いて吐出することにより多層構造を形成する請求項１～４のいずれかに記載の繊維強化多層ペレットの製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2015/052157

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
B29B11/16(2006.01)i, *B29B9/14*(2006.01)i, *B29K105/12*(2006.01)n

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
B29B11/16, B29B9/14, C08J3/12

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	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

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.
A	JP 4-316807 A (Mitsubishi Rayon Co., Ltd.), 09 November 1992 (09.11.1992), entire text (Family: none)	1-8
A	JP 6-320536 A (Kobe Steel, Ltd.), 22 November 1994 (22.11.1994), entire text (Family: none)	1-8

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

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
06 April 2015 (06.04.15)	14 April 2015 (14.04.15)

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
Japan Patent Office 3-4-3,Kasumigaseki,Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915,Japan	Telephone No.

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１５／０５２１５７

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　B29B11/16(2006.01)i, B29B9/14(2006.01)i, B29K105/12(2006.01)n

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　B29B11/16, B29B9/14, C08J3/12

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	１９７１－２０１５年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１５年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１５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
A	JP 4-316807 A（三菱レイヨン株式会社）1992.11.09, 全文 （ファミリーなし）	1－8
A	JP 6-320536 A（株式会社神戸製鋼所）1994.11.22, 全文 （ファミリーなし）	1－8

☐　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	国際調査報告の発送日
０６．０４．２０１５	１４．０４．２０１５

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
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）　４Ｆ　９１６１
芦原　ゆりか
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４３０