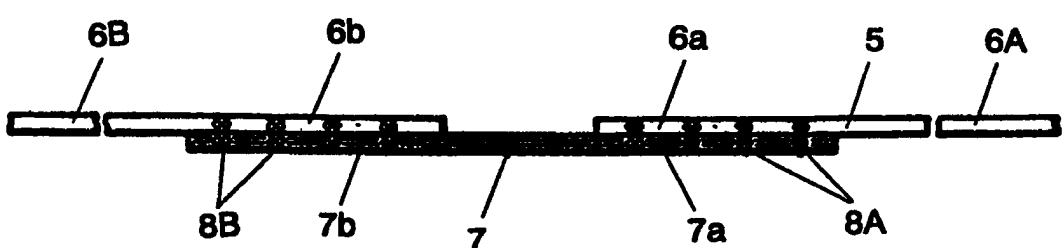


(51) 国際特許分類6 D01F 9/12	A1	(11) 国際公開番号 WO98/36113 (43) 国際公開日 1998年8月20日 (20.08.98)
(21) 国際出願番号 PCT/JP98/00581 (22) 国際出願日 1998年2月13日 (13.02.98) (30) 優先権データ 特願平9/47255 1997年2月14日 (14.02.97) JP (71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 東レ株式会社(TORAY INDUSTRIES, INC.)[JP/JP] 〒103-8666 東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号 Tokyo, (JP) (72) 発明者 ; および (75) 発明者 / 出願人 (米国についてののみ) 吉村康輔(YOSHIMURA, Kousuke)[JP/JP] 〒520-0842 滋賀県大津市園山2丁目15番1号 Shiga, (JP) 関戸俊英(SEKIDO, Toshihide)[JP/JP] 〒520-0046 滋賀県大津市長等2丁目8番40-704号 Shiga, (JP) 遠藤 真(ENDO, Makoto)[JP/JP] 〒791-3120 愛媛県伊予郡松前町大字筒井1451番6-11号 Ehime, (JP) 佐野高男(SANO, Takao)[JP/JP] 〒524-0045 滋賀県守山市金森町650番22号 Shiga, (JP)		(81) 指定国 HU, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE). 添付公開書類 国際調査報告書
(54)Title: PRECURSOR FIBER BUNDLE FOR MANUFACTURE OF CARBON FIBER, MANUFACTURING APPARATUS AND METHOD OF MANUFACTURING CARBON FIBER BUNDLE (54)発明の名称 炭素繊維製造用前駆体繊維束、および、その製造装置、ならびに、炭素繊維束の製造方法  (57) Abstract A series of precursor fiber bundles for manufacture of carbon fiber that comprise a plurality of precursor fiber bundles for manufacture of carbon fiber, which have 30,000 or more filaments and which are joined to one another at terminal ends and starting ends directly or through intervening fiber bundles (for example, flameproof fiber bundles) having a non-heating property at a flameproof treatment temperature. At the joining portions, filaments of the respective fiber bundles interlace at a filament level with one another. Interlacing at the filament level is performed by subjecting overlapping portions of terminal ends and starting ends of flatly opened fiber bundles to filament interlacing treatment with a jetting fluid or a needle punch. The series of precursor fiber bundles for manufacture of carbon fiber involve less heat accumulation at the joining portions during flameproof treatment although they are thick.		

30,000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束の複数本を、その終端部と始端部とにおいて、直接、あるいは、耐炎化処理温度において非発熱性を有する介在繊維束（例えば、耐炎化繊維束）を介して、結合してなる一連の炭素繊維製造用前駆体繊維束繊維束。結合部において、それぞれの繊維束のフィラメントが、相互に、フィラメントレベルで絡合している。

フィラメントレベルの絡合は、扁平状に開織させた繊維束の終端部と始端部とを重ね合わせた部分を、噴射流体、あるいは、ニードルパンチによるフィラメント絡合処理により行われる。

この一連の炭素繊維製造用前駆体繊維束繊維束は、繊維束が太いにも拘わらず、耐炎化処理において、結合部における蓄熱が少ない。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード（参考情報）

AL	アルバニア	FI	フィンランド	LT	リトアニア	SN	セネガル
AM	アルメニア	FR	フランス	LU	ルクセンブルグ	SZ	スワジランド
AT	オーストリア	GA	ガボン	LV	ラトヴィア	TD	チャード
AZ	アゼルバイジャン	GB	英国	MC	モナコ	TG	トーゴ
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GE	ジョージア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BB	バルバドス	GM	ガンビア	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BE	ベルギー	GN	ギニア	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア共和国	TR	トルコ
BF	ブルキナ・ファソ	GW	ギニア・ビサウ	ML	マリ	TT	トリニダード・トバゴ
BG	ブルガリア	GR	ギリシャ	MN	モンゴル	UA	ウクライナ
BJ	ベナン	HU	ハンガリー	MR	モーリタニア	UG	ウガンダ
BR	ブラジル	ID	インドネシア	MW	マラウイ	US	米国
BY	ベラルーシ	IE	アイルランド	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
CA	カナダ	IL	イスラエル	NE	ニジェール	VN	ベトナム
CF	中央アフリカ共和国	IS	アイスランド	NL	オランダ	YU	ユーゴスラヴィア
CG	コンゴ共和国	IT	イタリア	NO	ノルウェー	ZW	ジンバブエ
CH	スイス	JP	日本	NZ	ニュージーランド		
CI	コートジボワール	KE	ケニア	PL	ポーランド		
CC	カメルーン	KR	韓国	PT	ポルトガル		
CN	中国	KP	北朝鮮	RO	ルーマニア		
CU	キューバ	KZ	韓国	RU	ロシア		
CY	キプロス	LC	セント・ルシア	SE	スウェーデン		
CZ	チェコ	LI	リヒテンシュタイン	SG	シンガポール		
DE	ドイツ	LK	スリランカ	SI	スロベニア		
DK	デンマーク	LR	リベリア	SK	スロヴァキア		
EE	エストニア	LS	レソト	SL	シエラ・レオネ		

明 細 書

炭素繊維製造用前駆体繊維束、および、その製造装置、
ならびに、炭素繊維束の製造方法

技 術 分 野

本発明は、炭素繊維製造用前駆体繊維束、および、その製造装置、ならびに、炭素繊維束の製造方法に関する。本発明は、特に、30,000本以上のフィラメントからなる炭素繊維製造用前駆体繊維束の少なくとも2束が、一方の繊維束の終端部と他方の繊維束の始端部とにおいて、介在繊維束を介して、あるいは、直接、結合されて形成される1本の連続した炭素繊維製造用前駆体繊維束、および、その製造装置、ならびに、この1本の連続した炭素繊維製造用前駆体繊維束を用いた炭素繊維束の製造方法に関する。この1本化された炭素繊維製造用前駆体繊維束は、耐炎化处理され、耐炎化繊維束となり、更に、炭化处理され、炭素繊維束となる。

背 景 技 術

炭素繊維は、従来から、航空機、スポーツ用具の補強基材として用いられている。また、炭素繊維は、最近、建築・土木用基材、エネルギー関連機器用部材の補強材としても用いられ始め、その需要は、急速に伸びている。この需要に応じるため、また、この需要を更に伸ばすために、少なくとも従来の特性を備え、かつ、従来よりも価格の安い炭素繊維が求められている。

より安価な炭素繊維を市場に供給するには、炭素繊維の製造コストを下げる必要がある。この低コスト化の手段の一つとして、従来よりも遥かに多いフィラメント数を有する炭素繊維製造用前駆体繊維束を、熱処理（耐炎化处理および炭化处理）することにより、炭素繊維の生産性の向上を図る方法がある。

しかし、前駆体繊維束のフィラメント数が増大すると、すなわち、フィ

ラメント密度が高くなると、酸化性雰囲気（空気）中で行われる耐炎化処理において、前駆体繊維束の蓄熱量が大きくなる傾向がある。この結果、フィラメント自身が発熱し易くなり、耐炎化処理におけるフィラメントの酸化反応が暴走し易くなる問題がある。

そのため、フィラメント密度を高くする場合には、暴走反応によるフィラメント切れを防止するため、耐炎化処理での耐炎化温度を、フィラメント密度が小さい前駆体繊維束の耐炎化処理の場合よりも、低い温度に設定し、より長時間をかけて耐炎化処理をする必要がある。

しかし、この耐炎化処理温度の低下幅が大きいと、耐炎化処理時間が長くなり過ぎて、フィラメント密度を上げたにも拘わらず、耐炎化処理工程での生産性の向上には結び付かない場合がある。

一方、耐炎化処理工程は、走行する一連の前駆体繊維束が、耐炎化処理炉の入り口から炉内へ連続して供給され、炉内で耐炎化処理を受け、耐炎化繊維束となり、この耐炎化繊維束が、炉出口から連続して引き取られることからなる。この耐炎化処理工程に連続して供給される前駆体繊維束は、ボビンやスプールに巻き上げられている、あるいは、キャンに収納されている一定の長さを有する複数本の前駆体繊維束の一つの終端部と他の一つの始端部とを結合してなる一連の前駆体繊維束である必要がある。

しかし、前記フィラメント密度の高い前駆体繊維束同士を、単純に結合すると、結合部のフィラメント密度が、始端部、終端部以外の部分（本体部分）のフィラメント密度よりも飛躍的に高くなる。単純には、2倍になる。そのため、耐炎化処理において、この結合部分での、フィラメントの酸化反応が、本体部分に比べ、より暴走し易くなる問題がある。

前駆体繊維束同士の結合方法として、特公昭53-23411号公報に記載されている方法がある。これは、一つの前駆体繊維束の終端部と他の一つの前駆体繊維束の始端部とを結び合わせて、一連の前駆体繊維束とし、この一連の前駆体繊維束を耐炎化処理した後、耐炎化繊維束の結び目を切断除去し、改めて結び直して、一連の耐炎化繊維束とし、これを炭化処理するものである。

また、特開昭54-50624号公報には、結合部にシリコングリース等の耐炎性化合物を付与する方法が記載されている。

また、更に、特開昭56-37315号公報には、前駆体繊維束の末端部（終端部、始端部）を予め熱処理し、一つの前駆体繊維束の熱処理された終端部と他の一つの前駆体繊維束の熱処理された始端部とを特殊な結び方で結合する方法が記載されている。

更に、特開昭58-208420号公報には、一方に前駆体繊維束の終端部と他方の前駆体繊維束の始端部のフィラメント同士を、高速流体処理により、絡合する方法が記載されている。

しかし、これらいずれの方法においても、結合部でフィラメント密度が本体部のフィラメント密度よりも相当高くなるため、耐炎化処理時に蓄熱によるフィラメントの焼損やフィラメント切れなどが発生し易い。

また、特公昭60-2407号公報には、蓄熱を抑制するために、結合部に、耐炎化繊維または炭素繊維を介在させることが記載されている。しかし、そこでの結合方法は、こぶ結びであるため、結び目が引き締められて、フィラメント密度が高くなり、蓄熱抑制効果は小さい。

これらを改善する方法として、特公平1-12850号公報には、前駆体繊維束同士を、または、前駆体繊維束と耐炎化繊維束とを、高速流体処理により、絡合する方法が記載されている。

第1図は、その実施例を示す斜視図である。これは、結合する繊維束の一方の終端部2aと他方の始端部2bとを、単に束状のまま重ねて、流体交絡ノズル1の絡合処理室4内に挿入し、約5～60%弛緩させ、2つのノズル孔3から噴射される高速流体を用いて、両端部2a、2bのフィラメントを絡合させるものである。なお、耐炎化繊維束を介在させる結合方法は、耐炎化繊維が耐炎化工程においてほとんど発熱しないので、前駆体繊維束同士の結合に比べて、結合部での蓄熱が少ないという効果がある。

この従来の方で使用する流体交絡ノズルは、第1図に示すように、小さな絡合処理室4に設けられた2つのノズル孔3から噴射される高速噴射流体が、絡合処理室4内でぶつかって乱流を発生し、この乱流により繊

維束を開繊させ、フィラメントを絡合させるものであり、繊維束を構成するフィラメント数が少ない繊維束については効果がある。

しかし、絡合させる繊維束のフィラメント数が著しく大きくなると、ノズルから噴射された噴射流体が、繊維束全体に当たらなくなり、繊維束がフィラメントレベルで絡合せず、幾つかの小束に分かれて絡合する現象が顕著になる。このような小束フィラメントの絡合が結合部に不均一に生じると、局部的に繊維束のフィラメント密度の高い部分ができ、そこでの蓄熱が生じ易くなる。

また、幾つかの小束フィラメントに分かれた絡合は、フィラメント同士の絡まりも弱いため、結合強度も弱くなる。前記特公平1-12850号公報に記載されている各実施例は、フィラメント数が12,000本までの繊維束を開示するに過ぎない。本発明において取り扱うフィラメント数30,000本以上の前駆体繊維束の末端部同士を、直接結合、または、耐炎化繊維束を介在させて結合する際に、この公知の方法をそのまま用いても、上述した理由により、耐炎化処理工程で、フィラメントの破断や蓄熱による焼き切れが発生する。

それに加えて、高いフィラメント密度を有する前駆体繊維束の場合、収容状態から連続して取り出すときの取り扱い性を向上させるために、繊維束に捲縮を付与し、フィラメント同士の集束性を大きくする場合がある。捲縮のかかった繊維束は、嵩高で、各フィラメントが少しずつ絡まり合っているため、捲縮のかかった前駆体繊維束の末端部同士の結合を、前記特公平1-12850号公報の方法を用いて、行うことは困難である。

すなわち、捲縮を有する維束同士を重ねて高速流体処理を施しても、捲縮があるがため、繊維束のフィラメントレベルの開繊が、捲縮を有していない繊維束の場合に比べ、十分とはならない。また、捲縮があるがため、繊維束は、嵩高で綿状であり、フィラメントレベルでの動きが抑制されがちで、フィラメントレベルでの絡合が、捲縮を有していない繊維束の場合に比べ、十分とはならない。従って、捲縮を有していない繊維束の場合に比べ、結合部における絡合が不均一で、結合部の結合強度も低いものとな

る。

発 明 の 開 示

本発明は、上述した問題点に鑑み、フィラメント数30,000本以上の太い前駆体繊維束の2束が、一方の束の終端部と他方の束の始端部において、介在繊維束を介して、あるいは、直接、結合され、その結合部における双方の繊維束のフィラメント同士が均一な絡合を有している炭素繊維製造用前駆体繊維束、および、その製造装置を提供することを目的とする。

本発明は、この炭素繊維製造用前駆体繊維束を耐炎化处理し、次いで炭化处理してなる炭素繊維束の製造方法を提供することを目的とする。

この目的を達成するための本発明の炭素繊維製造用前駆体繊維束、および、その製造装置、ならびに、この炭素繊維製造用前駆体繊維束を用いて製造する炭素繊維束の製造方法は、次の通りである。

次の発明A1乃至A6は、本発明の炭素繊維製造用前駆体繊維束に関するものである。

発明A1：

30,000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第1の繊維束と、30,000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第2の繊維束と、耐炎化处理温度において、非発熱性を有する多数のフィラメントからなる介在繊維束とからなり、前記第1の繊維束の終端部と前記第2の繊維束の始端部とが、前記介在繊維束を介して結合されており、前記第1の繊維束の終端部と前記介在繊維束の始端部とが結合されている第1の結合部と前記介在繊維束の終端部と前記第2の繊維束の始端部とが結合されている第2の結合部とにおいて、それぞれの繊維束を構成しているフィラメント同士が、実質的に均一に絡合されている炭素繊維製造用前駆体繊維束。

発明A2： 発明A1において、前記介在繊維束が耐炎化繊維束である炭素繊維製造用前駆体繊維束。

発明A3： 発明A2において、前記耐炎化繊維束のフィラメント数を

Fとし、前記各炭素繊維製造用前駆体繊維束のフィラメント数をGとしたとき、 $0.4 \times G \leq F \leq 1.5 \times G$ なる関係を満足している炭素繊維製造用前駆体繊維束。

発明A4： 発明A1、A2、あるいは、A3において、前記各炭素繊維製造用前駆体繊維束が、捲縮を有するフィラメントからなり、かつ、前記結合部においては、その捲縮が除去されている炭素繊維製造用前駆体繊維束。

発明A5：

30,000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第1の繊維束と、30,000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第2の繊維束とからなり、前記第1の繊維束の終端部と前記第2の繊維束の始端部とが直接結合されており、この結合部において、それぞれの繊維束を構成しているフィラメント同士が、実質的に均一に絡合されている炭素繊維製造用前駆体繊維束。

発明A6： 発明A5において、前記炭素繊維製造用前駆体繊維束が、捲縮を有するフィラメントからなり、かつ、前記結合部においては、その捲縮が除去されている炭素繊維製造用前駆体繊維束。

次の発明B1乃至B6は、本発明の炭素繊維製造用前駆体繊維束の製造装置に関するものである。

発明B1：

(a) 30,000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第1の繊維束の扁平状に開繊された状態の終端部を、該終端部を横断する方向において、間隔をおいて、少なくとも2カ所で、保持する第1の繊維束保持手段と、

(b) 30,000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第2の繊維束の扁平状に開繊された状態の始端部を、該始端部を横断する方向において、間隔をおいて、少なくとも2カ所で、保持する第2の繊維束保持手段と、

(c) 耐炎化処理温度において、非発熱性を有する多数のフィラメント

からなる介在繊維束の扁平状に開繊された状態の始端部と終端部とを、該介在繊維束を横断する方向において、間隔をおいて、少なくとも2カ所で、保持する介在繊維束保持手段と、

(d) 前記第1の繊維束の終端部と前記介在繊維束の始端部とのフィラメントに交絡を付与する第1の交絡処理手段と、

(e) 前記第2の繊維束の始端部と前記介在繊維束の終端部とのフィラメントに交絡を付与する第2の交絡処理手段と、
からなり、

(f) 前記第1の繊維束保持手段と前記第2の繊維束保持手段とは、それらに保持される前記第1の繊維束の終端部の先端と前記第2の繊維の始端部先端とが向かい合う位置関係を有して配設され、

(g) 前記介在繊維束保持手段は、そこに保持される介在繊維束を、前記第1の繊維束保持手段に保持される前記第1の繊維束と前記第2の繊維束保持手段に保持される前記第2の繊維束との双方を重ね合わせる位置関係を有して配設され、

ている炭素繊維製造用前駆体繊維束の製造装置。

発明B2： 発明B1において、前記第1の交絡処理手段および前記第2の交絡処理手段が、流体を用いたフィラメント交絡処理手段である炭素繊維製造用前駆体繊維束の製造装置。

発明B3： 発明B1において、前記第1の交絡処理手段および前記第2の交絡処理手段が、ニードルパンチを用いたフィラメント交絡処理手段である炭素繊維製造用前駆体繊維束の製造装置。

発明B4：

(a) 30,000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第1の繊維束の扁平状に開繊された状態の終端部を、該終端部を横断する方向において、間隔をおいて、少なくとも2カ所で、保持する第1の繊維束保持手段と、

(b) 30,000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第2の繊維束の扁平状に開繊された状態の始端部を、該

始端部を横断する方向において、間隔をおいて、少なくとも2カ所で、保持する第2の繊維束保持手段と、

(c) 前記第1の繊維束の終端部と前記第2の繊維束の始端部とのフィラメントに交絡を付与する交絡処理手段と、
からなり、

(d) 前記第1の繊維束保持手段と前記第2の繊維束保持手段とは、前記第1の繊維束保持手段に保持される前記第1の繊維束と前記第2の繊維束保持手段に保持される前記第2の繊維束との双方を重ね合わせる位置関係を有して配設され、
ている炭素繊維製造用前駆体繊維束の製造装置。

発明B5： 発明B4において、前記交絡処理手段が、流体を用いたフィラメント交絡処理手段である炭素繊維製造用前駆体繊維束の製造装置。

発明B6： 発明B4において、前記交絡処理手段が、ニードルパンチを用いたフィラメント交絡処理手段である炭素繊維製造用前駆体繊維束の製造装置。

次の発明C1乃至C16は、本発明の炭素繊維束の製造方法に関するものである。

発明C1：

(a) 30,000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第1の繊維束の扁平状に開繊された状態の終端部と非発熱性を有する多数のフィラメントからなる介在繊維束の扁平状に開繊された状態の始端部とを重ね合わせ、両繊維束のフィラメント同士を実質的に均一に絡合させ第1の結合部を形成する工程と、

(b) 30,000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第2の繊維束の扁平状に開繊された状態の始端部と前記介在繊維束の扁平状に開繊された状態の終端部とを重ね合わせ、両繊維束のフィラメント同士を実質的に均一に絡合させ第2の結合部を形成する工程と、

(c) 前記第1の繊維束と前記第2の繊維束とが、前記第1の結合部お

よび第2の結合部により前記介在繊維束を介して結合されてなる1本の連続した炭素繊維製造用前駆体繊維束を、耐炎化处理して耐炎化繊維束を得る工程と、

(d) 得られた耐炎化繊維束を、炭化处理して炭素繊維束を得る工程、とからなる炭素繊維束の製造方法。

発明C2： 発明C1において、前記介在繊維束が、耐炎化繊維束である炭素繊維束の製造方法。

発明C3： 発明C2において、前記介在繊維束である耐炎化繊維束のフィラメント数をFとし、前記各炭素繊維製造用前駆体繊維束のフィラメント数をGとしたとき、 $0.4 \times G \leq F \leq 1.5 \times G$ なる関係を満足している炭素繊維束の製造方法。

発明C4： 発明C1、C2、あるいは、C3において、前記第1の結合部および第2の結合部を形成する手段が、流体を用いたフィラメント交絡処理である炭素繊維束の製造方法。

発明C5： 発明C4において、前記第1の結合部および第2の結合部を形成する際に、重ね合わせられる両繊維束のフィラメント密度が、4,000本/mm以下の状態に、扁平状に開繊されている炭素繊維束の製造方法。

発明C6： 発明C5において、前記第1の繊維束および第2の繊維束のフィラメントが捲縮を有する場合、前記第1の結合部および第2の結合部を形成する際に、前記第1の繊維束の終端部と前記第2の繊維束の始端部におけるフィラメントの捲縮を予め除去する炭素繊維束の製造方法。

発明C7： 発明C1、C2、あるいは、C3において、前記第1の結合部および第2の結合部を形成する手段が、ニードルパンチを用いたフィラメント交絡処理である炭素繊維束の製造方法。

発明C8： 発明C7において、前記第1の結合部および第2の結合部を形成する際に、重ね合わせられる両繊維束のフィラメント密度が、4,000本/mm以下の状態に、扁平状に開繊されている炭素繊維束の製造方法。

発明 C 9 : 発明 C 8 において、前記第 1 の繊維束および第 2 の繊維束のフィラメントが捲縮を有する場合、前記第 1 の結合部および第 2 の結合部を形成する際に、前記第 1 の繊維束の終端部と前記第 2 の繊維束の始端部におけるフィラメントの捲縮を予め除去する炭素繊維束の製造方法。

発明 C 1 0 :

(a) 30,000 本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第 1 の繊維束の扁平状に開繊された状態の終端部と 30,000 本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第 2 の繊維束の扁平状に開繊された状態の始端部とを重ね合わせ、両繊維束のフィラメント同士を実質的に均一に絡合させ結合部を形成する工程と、

(b) 前記第 1 の繊維束と前記第 2 の繊維束とが、前記結合部により結合されてなる 1 本の連続した炭素繊維製造用前駆体繊維束を、耐炎化処理して耐炎化繊維束を得る工程と、

(c) 得られた耐炎化繊維束を、炭化処理して炭素繊維束を得る工程、とからなる炭素繊維束の製造方法。

発明 C 1 1 : 発明 C 1 0 において、前記結合部を形成する手段が、流体を用いたフィラメント交絡処理である炭素繊維束の製造方法。

発明 C 1 2 : 発明 C 1 0 において、前記結合部を形成する手段が、ニードルパンチを用いたフィラメント交絡処理である炭素繊維束の製造方法。

発明 C 1 3 : 発明 C 1 1、あるいは、C 1 2 において、前記結合部を形成する際に、重ね合わせられる両繊維束のフィラメント密度が、4,000 本/mm 以下の状態に、扁平状に開繊されている炭素繊維束の製造方法。

発明 C 1 4 : 発明 C 1 3 において、前記第 1 の繊維束および第 2 の繊維束のフィラメントが捲縮を有する場合、前記結合部を形成する際に、前記第 1 の繊維束の終端部と前記第 2 の繊維束の始端部におけるフィラメントの捲縮を予め除去する炭素繊維束の製造方法。

発明 C 1 5 : 発明 C 1 3、あるいは、C 1 4 において、前記結合部が

形成された後、前記耐炎化処理前に、前記結合部に耐炎化抑制剤を付与する炭素繊維束の製造方法。

発明 C 1 6 : 発明 C 1 5 において、前記耐炎化抑制剤が、硼酸水である炭素繊維束の製造方法。

本発明において、炭素繊維製造用前駆体繊維束を構成するフィラメントとして、従来から炭素繊維の製造用に用いられているアクリル系重合体からなるフィラメントが、好ましく用いられる。

本発明において、炭素繊維製造用前駆体繊維束としては、フィラメントが捲縮を有しているもの、あるいは、捲縮を有していないもの、双方を用いることができる。なお、捲縮を有する場合は、その捲縮の程度は、8山／25mm乃至13山／25mmの捲縮が好ましい。炭素繊維製造用前駆体繊維束を、介在繊維束あるいは他の炭素繊維製造用前駆体繊維束に結合するに当たり、結合部において、この捲縮は、除去されていることが好ましい。この捲縮の除去は、繊維束の末端部を熱処理することにより行うのが好ましい。

本発明において、介在繊維束のフィラメントが、耐炎化処理温度において、非発熱性を有するとは、耐炎化処理温度において、DSC（示差走査熱量計）法で求めた発熱量が、500cal/g以下であることをいい、詳細については後述する。

耐炎化処理温度において、非発熱性を有する多数のフィラメントからなる介在繊維束として、耐炎化処理を受けている耐炎化繊維束、特に、アクリル系重合体からなるフィラメントで形成された繊維束を、200℃乃至350℃の空气中で、耐炎化処理して得られる耐炎化繊維束が、好ましく用いられる。

本発明において、フィラメント同士が、実質的に均一に絡合されているとは、一方の繊維束の多数本のフィラメントの集まりの1群と、他方の繊維束の多数本のフィラメントの集まりの1群とが、群同士で交絡しているのではなく、双方の繊維束のフィラメント同士が、1本のフィラメントレベルで絡合している状態を云う。

本発明において、前駆体繊維束の末端部（終端部、始端部）と介在繊維束の末端部（始端部、終端部）とで形成される結合部、あるいは、前駆体繊維束の末端部（終端部）と他の前駆体繊維束の末端部（始端部）とで形成される結合部におけるフィラメント同士の実質的に均一な絡合を形成するフィラメント交絡処理手段としては、流体を用いたフィラメント交絡処理手段、あるいは、ニードルパンチを用いたフィラメント交絡処理手段が、好ましく用いられる。

また、本発明における炭素繊維製造用前駆体繊維束の耐炎化処理温度として、200℃乃至350℃が、好ましく用いられる。

炭素繊維製造用前駆体繊維束の末端部同士を直接結合して得られる1本の連続した炭素繊維製造用前駆体繊維束を耐炎化処理する前に、両繊維束の結合部に耐炎化抑制剤を付与する目的は、耐炎化処理中の結合部における蓄熱により生じ易くなるフィラメントの焼損、糸切れを防止することにある。なお、この耐炎化抑制剤として、硼酸水が、好ましく用いられる。

図面の簡単な説明

第1図は、炭素繊維製造用前駆体繊維束同士の結合を行うための従来のエア交絡ノズルの斜視図である。

第2図は、本発明に係る炭素繊維製造用前駆体繊維束の結合部の一実施例の模式的側面図である。

第3図は、介在繊維束の発熱量の求め方を説明するためのグラフを示す図である。

第4図は、本発明に係る炭素繊維製造用前駆体繊維束の結合部の他の実施例の模式的平面図である。

第5図は、本発明に係る炭素繊維製造用前駆体繊維束の結合部の更に他の実施例の模式的平面図である。

第6図は、本発明に係る炭素繊維製造用前駆体繊維束の結合部のまた更に他の実施例の模式的平面図である。

第7図は、本発明に係る炭素繊維製造用前駆体繊維束の結合部を形成す

るために好ましく用いられるエア交絡ノズル装置の一例の概略横断面図である。

第 8 図は、第 7 図に示すノズル装置を用いた炭素繊維製造用前駆体繊維束の結合部の形成操作を説明する概略横断面図である。

第 9 図は、本発明に係る炭素繊維製造用前駆体繊維束の結合部を形成するために好ましく用いられるエア交絡ノズル装置の他の例の透視斜視図である。

第 10 図は、本発明に係る炭素繊維製造用前駆体繊維束の結合部を形成するために好ましく用いられるエア交絡ノズル装置の更に他の例の透視斜視図である。

第 11 図は、本発明に係る炭素繊維製造用前駆体繊維束の製造装置の一例の概略斜視図である。

第 12 図は、第 11 図に示す装置を用いた炭素繊維製造用前駆体繊維束の結合部の形成操作を説明する概略縦断面図である。

第 13 図は、本発明に係る炭素繊維製造用前駆体繊維束の製造装置の他の一例の概略縦断面図である。

第 14 図は、本発明に云う炭素繊維製造用前駆体繊維束の捲縮を除去する際に用いられる熱処理装置の一例の概略側面図である。

第 15 図は、本発明に係る炭素繊維製造用前駆体繊維束の製造装置の他の一例の概略縦断面図である。

発明を実施するための最良の形態

次に、本発明を、その実施例を用いて図面を参照しながら、更に説明する。

アクリル系重合体を紡糸口金からフィラメント状に押し出し多数本のフィラメントを成形し、これを引き取ることにより、炭素繊維製造用前駆体繊維束が製造される。この前駆体繊維束を、耐炎化处理することにより、耐炎化繊維束が製造される。更に、この耐炎化繊維束を、炭化处理することにより、炭素繊維束が製造される。

前駆体繊維束の製造工程における繊維束の走行速度と、耐炎化処理工程における繊維束の走行速度とは、大幅に異なるため、前駆体繊維束は、前駆体繊維束の製造工程の終わりにおいて、一旦、ボビンに巻き上げられ、あるいは、箱体（キャン）内に折りたたみ積層され、収容される。

前駆体繊維束の耐炎化処理は、前駆体繊維束を、前記収容状態から引き出し、これを耐炎化処理工程に供給することにより行われる。なお、以下の説明は、前駆体繊維束がキャンに収容された場合についてのものである。

キャンに収容されている炭素繊維製造用前駆体繊維束は、キャンから引き出された後、耐炎化処理炉内で耐炎化処理される。この耐炎化処理炉は、従来から知られているものである。この耐炎化処理において、前駆体繊維束は、酸化性雰囲気（通常は、空気）中で、 $200^{\circ}\text{C} \sim 350^{\circ}\text{C}$ で加熱処理され、耐炎化繊維束となる。

耐炎化繊維束は、次いで、炭化処理炉内で炭化処理される。この炭化処理炉は、従来から知られているものである。この炭化処理において、耐炎化繊維束は、不活性雰囲気（通常は、窒素）中で、 $500 \sim 1,500^{\circ}\text{C}$ で加熱処理され、炭素繊維束となる。

なお、炭素繊維束は、次いで、通常、サイジング剤付与等の表面処理を受けた後引き取られて、炭素繊維製品となる。

前記耐炎化処理工程において、キャンから引き出されて耐炎化炉へと走行している前駆体繊維束の終端部がくると、その終端部と次のキャンに収容されている前駆体繊維束の始端部とが結合される。つまり、前駆体繊維束の末端部同士が結合される。結合された前駆体繊維束が続けて耐炎化炉へと供給される。これにより、複数のキャンに収容されている前駆体繊維束は、中断することなく連続して耐炎化炉へと流れ、耐炎化炉は、連続して運転されることになる。

次に、前駆体繊維束の各末端部を、介在繊維束を介して結合する方法について説明する。

第2図は、本発明に係る1本の連続した炭素繊維製造用前駆体繊維束の模式的側面図を示す。この1本の連続した炭素繊維製造用前駆体繊維束5

は、30,000本以上のフィラメントを有する前駆体繊維束からなる第1の繊維束6Aの終端部6aと、耐炎化処理温度において、非発熱性を有する多数のフィラメントからなる介在繊維束7の始端部7aとが結合されてなる第1の結合部8Aを、有している。また、介在繊維束7の終端部7bと、30,000本以上のフィラメントを有する前駆体繊維束からなる第2の繊維束6Bの始端部6bとが結合されてなる第2の結合部8Bを、有している。両結合部8A、8Bにおいて、それぞれの繊維束を構成しているフィラメントは、互いに、実質的に均一に絡合されている。

ここで、耐炎化処理温度において非発熱性であるとは、DSC（示差走査熱量計）法により求めた発熱量が500 cal/g以下であることを云う。この発熱量の測定方法は、次の通りである。

測定装置として、示差走査熱量計（DSC）を使用する。測定サンプルの調製は、介在繊維束（耐炎化繊維）2mgを長さ3mm程度に粉碎して、アルミパンに挿入することにより行う。測定は、大気中、10℃/分の昇温速度で、室温から400℃まで昇温することにより行う。発熱量の求め方は、次の通りである。

第3図は、横軸を温度（時間）、縦軸を発熱量としたDSC曲線を示すグラフである。第3図に示すように、得られた発熱曲線の200℃における点と400℃における点との間に直線を引き、この直線と発熱曲線とで囲まれた面積を発熱量（cal/g）とする。第3図には、前駆体繊維のDSC曲線6Cと耐炎化繊維のDSC曲線7Cの双方が示されている。

介在繊維束（耐炎化繊維束）7と前駆体繊維束6A、6Bとは、次のようにして結合される。前駆体繊維束6A、6Bと耐炎化繊維束7の末端部6a、6b、7a、7bを、各々扁平状に開繊した後、扁平状に開繊された前駆体繊維束6A、6Bの各末端部6a、6bに、耐炎化繊維束7の両端部7a、7bを上下に重ね合わせた状態で、流体を用いたフィラメント絡合処理によるフィラメント間の絡合を形成することにより結合する。

予め、繊維束6A、6B、7の末端部6a、6b、7a、7bを扁平状に開繊して重ね合わせておくことにより、流体処理によりなされるフィラ

メント間の絡合が、フィラメントレベルで均一に、かつ、充分に行われる。

このとき、繊維束が、扁平状に開繊されていないと、多数本のフィラメント同士が、束状のまま絡合し、絡合が不均一となる。扁平状の開繊は、フィラメント密度が、4, 0 0 0 本/mm以下なるようにすることが、好ましい。

なお、繊維束の末端部の開繊は、繊維束の開繊に当たり従来から使用されている手法で行われる。従来知られている開繊のための装置、器具を用いても良いが、通常は、手作業で、所望の開繊を行うことができる。例えば、所望の開繊作業は、後述する繊維束保持手段の平らな保持要素上に繊維束の末端部を載せ、繊維束が捻れている場合は、手作業で捻れを戻し、手作業でフィラメントをなだらかに斑のないように、所望のフィラメント密度（単位幅当たりのフィラメント数）になるように、幅方向に分散させることにより行われる。

また、介在繊維束として耐炎化繊維束を使用する場合、相手の前駆体繊維束の性状、フィラメント数、形態、破断強度等を考慮して、耐炎化繊維束のフィラメント数を適正な範囲に選ぶことが望ましい。

前駆体繊維束のフィラメント数をGとした場合、耐炎化繊維束のフィラメント数Fが、前駆体繊維束のフィラメント数Gに対して、少なくなるにつれて、結合部8 A、8 Bでのフィラメント間の交絡による結合力が低下する。この場合、前駆体繊維束6 A、6 Bと耐炎化繊維束7とは、結合はされているが、これを耐炎化処理に供給すると、耐炎化処理炉において繊維束に発生する張力に対して、結合部8 A、8 Bが耐えられなくなる場合がある。これは、耐炎化処理工程における繊維束通過率の低下をもたらす。

逆に、耐炎化繊維束のフィラメント数Fが、前駆体繊維束のフィラメント数Gに対して多くなるにつれて、結合部の前駆体繊維束を耐炎化繊維束が覆う形態となり、前駆体繊維束の耐炎化反応熱が除熱されにくくなる現象が生じる場合がある。この結果として、結合部の蓄熱を抑制する効果が低下する。

このため、介在繊維束として介在させる耐炎化繊維束のフィラメント数

Fと前駆体繊維束のフィラメント数Gとは、 $0.4 \times G \leq F \leq 1.5 \times G$ なる関係にあることが好ましい。

第4図～第6図は、前駆体繊維束と介在繊維束との結合のそれぞれ異なる形態を示す平面図である。

第4図に示す例では、前駆体繊維束10A、10Bの扁平状に開繊された末端部10a、10bと介在繊維束11の両端部11a、11bとの結合部12A、12Bが、次のよう形成されている。すなわち、結合部12A、12Bにおける流体を用いたフィラメント交絡処理によるフィラメントの交絡箇所が、繊維束の横断方向に連続して存在し、かつ、これが繊維束の長手方向に複数列存在する。

第5図に示す例では、結合部13A、13Bにおけるフィラメントの交絡箇所が、多点状に存在する。

第6図に示す例では、結合部14A、14Bにおけるフィラメントの交絡箇所が、結合部の略全面に亘って存在する。

第4図～第6図の例では、介在繊維束11が、前駆体繊維束10A、10Bの片面のみに配置されているが、介在繊維束11は、前駆体繊維束10A、10Bを、両面から挟むように配置しても良い。

第4図～第6図に示したような、流体を用いたフィラメント交絡処理によるフィラメントの交絡に用いる流体は、高速でフィラメントに噴射されることが好ましく、流体としては、スチーム、水、エア等が利用できるが、作業性、経済性の面で、エアが好ましい。

エアを用いたフィラメント交絡処理のための装置としては、例えば、第7図に示すエア交絡ノズル装置が、好ましく用いられる。

第7図は、エア交絡ノズル装置の一例の概略横断面図である。第8図は、第7図に示すエア交絡ノズル装置によるフィラメント交絡処理を説明するための概略横断面図である。

第7および8図において、エア交絡ノズル装置21は、流体処理を施す繊維束10A（10B）の終端部10a（始端部10b）および介在繊維束の始端部11a（終端部11b）を流体処理室内に配置するため、ノズ

ル上部 2 1 a とノズル下部 2 1 b に分離される構造となっている。エア交絡ノズル装置 2 1 内に、前駆体繊維束 1 0 A (1 0 B) の扁平状に開繊された末端部 1 0 a (1 0 b) と介在繊維束 1 1 の扁平状に開繊された末端部 1 1 a (1 1 b) とが、これらが重ね合わされた状態で、配置される。次いで、第 8 図に示すように、ノズル上部 2 1 a とノズル下部 2 1 b が結合され、上下両側から、均圧室 2 3 a、2 3 b で均圧化された加圧エアが、多数列設されたノズル孔 2 2 から、結合部 1 2 A (1 2 B) を形成する位置に向け噴射される。この噴射されたエアは、繊維束のフィラメントを実質的に 1 本のフィラメントレベルに開繊するとともに、これらフィラメントを相互に交絡させて、結合部 1 2 A (1 2 B) を形成する。

エア交絡ノズル装置に供給されるエアの圧力の適正值は、フィラメント繊度、フィラメント数、捲縮の有無、フィラメントへの油剤の付着状況、ノズル形状によって、異なる。しかし、エア交絡ノズル装置の入口部で、ゲージ圧 0. 2 MP a 以上であることが好ましく、0. 4 ~ 0. 8 MP a であることがより好ましい。圧力が低すぎると、交絡不足で前記結合力の低下をきたし、圧力が高すぎると、フィラメント切れ等の結合部での損傷が発生する。

また、ノズル孔 2 2 の配置の仕方により、あるいは、エア交絡ノズル装置 2 1 を繊維束の長手方向に走査し、その際に、エアを連続的に噴射したり、断続的に噴射したりすることにより、第 4 図~第 6 図に示したような種々の絡合形態が得られる。また、エア交絡ノズル装置 2 1 を複数個並べて設置し、複数箇所流体処理を行っても良い。

第 9 図および第 10 図は、エア交絡ノズル装置のそれぞれ別の他の例の概略斜視図である。

第 9 図に示す例では、ノズル本体 3 1 の上下部に、互いに対向するように各々一列にノズル孔 3 2 が配列されている。流体処理室 3 3 内に、前駆体繊維束の扁平状に開繊された末端部と耐炎化繊維束の扁平状に開繊された末端部とが、配置される。ノズル孔 3 2 から噴射されるエアによって、それらの繊維束のフィラメント同士が、1 本のフィラメントレベルで絡合

される。

なお、ノズル孔 3 2 は、上下方向から向かい合うように位置せしめ、それらからの噴射エアが、互いにぶつかるようにしてもよいし、位置をずらせて、旋回流が発生するようにしても良い。

第 10 図に示す例では、ノズル本体 4 1 の上部側に、2 個一対の斜めに延びるノズル孔 4 2 が、複数列設けられている。各ノズル孔 4 2 から噴射されるエアによって、流体処理室 4 3 内に配置された前駆体繊維束の扁平状に開繊された末端部と耐炎化繊維束の扁平状に開繊された末端部とのフィラメント同士が、1 本のフィラメントレベルで絡合される。

前駆体繊維束 1 0 A、1 0 B と介在繊維束 1 1 との結合部 1 2 A、1 2 B を形成する前に、これら繊維束の重ね合わせた状態を形成する必要がある。次に、この重ね合わせのための装置の例を説明する。

第 11 図は、重ね合わせ装置の一例の模式的斜視図である。第 12 図は、第 11 図に示した装置による結合部の形成を説明する概略縦断面図である。

第 11 図において、第 1 の繊維束保持手段 6 2 A は、第 1 の前駆体繊維束 1 0 A の終端部 1 0 a を、その長手方向に間隔をおいて 2 カ所で保持するための、繊維束の横断方向亘って位置する繊維束保持バー 6 1 A a、6 1 A b を有する。また、第 2 の繊維束保持手段 6 2 B は、第 2 の前駆体繊維束 1 0 B の終端部 1 0 b を、その長手方向に間隔をおいて 2 カ所で保持するための、繊維束の横断方向亘って位置する繊維束保持バー 6 1 B a、6 1 B b を有する。第 1 の繊維束保持手段 6 2 A と第 2 の繊維束保持手段 6 2 B とは、それらに保持される第 1 の前駆体繊維束 1 0 A の終端部 1 0 a の先端と第 2 の前駆体繊維束 1 0 B の終端部 1 0 b の先端とが向かい合う状態が形成されるように、配置されている。

一方、第 1 の繊維束保持手段 6 2 A と第 2 の繊維束保持手段 6 2 B との上側には、介在繊維束保持手段 6 4 が位置する。この介在繊維束保持手段 6 4 は、介在繊維束 1 1 の始端部と終端部とを、間隔をおいて 2 カ所で保持するための、繊維束の横断方向亘って位置する繊維束保持バー 6 3 a、6 3 b を有する。

この状態で、第12図に示すように、流体を用いたフィラメント交絡処理を行うための交絡ノズル65A、65Bを、これら交絡ノズル65A、65Bの処理室65a、65b内に上記重ね合わせた各末端部10a、10bと介在繊維束11とが位置するように設ける。ノズル65A、65Bからのエア噴射によって、所望の結合状態を得る。ノズル65A、65Bによるフィラメント交絡の形成は、必要に応じて、ノズル65A、65Bを、第12図において矢印65Aa、65Bbで示すように、繊維束の長手方向に移動させることによって、所望の長さに亘って行っても良い。

また、ノズル65A、65Bは、一方ずつ、あるいは、双方同時に作動させるようにしても良い。また、これらノズル65A、65Bをいずれか一方のみとし、1個のノズルを用いて双方の部分の交絡処理を、順次行うようにしても良い。

なお、ノズル65A、65Bによる流体処理の前に、第1の繊維束保持手段62A、第2の繊維束保持手段62B、介在繊維束保持手段64に保持された前駆体繊維束10A、10Bと介在繊維束11を、多少弛ませるようにすると、フィラメント同士の絡合が行われ易くなる。

第13図は、他の重ね合わせ装置ならびにそれを用いての前駆体繊維束と介在繊維束との結合方法を説明するための概略縦断面図である。この装置は、第4図に示した列状の交絡を複数箇所設ける場合に、好ましく用いられる。繊維束の結合手順は、第11図を用いて説明したのと同様にして、両前駆体繊維束10A、10Bと介在繊維束11を保持した後、第12図を用いて説明したのと同様にして、両前駆体繊維束10A、10Bと介在繊維束11とを重ね合わせた状態にする。

次に、第13図の(a)に示すように、交絡を実施する箇所に、それぞれエア交絡ノズル65を設置する。各エア交絡ノズル65の両側には、リラックス保持手段66が、所定の間隔で設置されている。

次いで、第13図の(b)に示すように、前駆体繊維束保持手段61Aa、61Ab、61Ba、61Bbと介在繊維束保持手段63a、63bとが、一旦、開放されるとともに、エア交絡ノズル65とリラックス保持

部 6 6 とが、第 1 3 図 (b) に示すように、それぞれ移動せしめられる。この作動により、繊維束の交絡が施される箇所は、弛んだ状態となる。

続いて、各エア交絡ノズル 6 5 により、各箇所で絡合処理が行われる。これにより、第 4 図に示した結合部 1 2 A、1 2 B における複数の列状の交絡部が形成される。

この方法によれば、繊維束に弛みを与えることができるため、交絡がかかりやすく、絡合を強化できる。また、各交絡箇所のリラックス率を、各々設定できるので、望ましい結合形態、結合強度が得られる。なお、第 4 図に示す結合形態の場合、結合強度のばらつきを少なくするためには、交絡箇所の数は、3 ～ 5 箇所程度とすることが好ましい。

上記のような結合方法においては、介在繊維束として、耐炎化处理温度において非発熱性である耐炎化繊維束が用いられるので、結合部が多少太くなくても、耐炎化炉内における前駆体繊維束の結合部における発熱量が小さく抑えられ、過大蓄熱によるフィラメント切れ等の不都合の発生が回避される。

その結果、30,000 本以上のフィラメントを有する、従来のものに比べ、著しく太い前駆体繊維束であっても、耐炎化处理温度を実質的に大きく低下させることなく、かつ、耐炎化处理速度（繊維束の走行速度）を低下させることなく、耐炎化处理が可能となる。従って、最終的に、太い炭素繊維束を連続的に製造することが可能となり、炭素繊維を低コストで製造することが可能となる。

特に、前駆体繊維束および介在繊維束の末端部を扁平状に開繊した状態において、それぞれの繊維束のフィラメント同士を流体処理により絡合させて、2 本の前駆体繊維束を 1 本に結合するので、従来の、繊維束を結ぶ方式で生じていたこぶ状の結合部や、従来の、流体処理による結合方式で生じていたこぶや状あるいはねじれ状の結合部における繊維束の強固な締まりが生じない。

すなわち、前駆体繊維束が、太い繊維束であっても、結合部が、単位面積当たり、あるいは、単位体積当たりの発熱量が少ない形態に形成できる

ので、非発熱性の介在繊維束を使用することと相まって、結合部での過大な発熱や蓄熱を、従来手法による場合に比べ、より確実に抑制することができる。

また、従来、結合部が耐炎化処理炉を通過するとき、炉の温度をかなり低下させていたが、本発明によれば、耐炎化処理炉の温度をそれ程低く設定しなくて済み、太い前駆体繊維束を、効率よく、かつ、安定して、耐炎化処理することが可能となり、生産性が高められ、従って、低コストで炭素繊維を製造することが可能となった。

一方、上述した前駆体繊維束と介在繊維束の末端部を、扁平状に開繊した状態にして、流体処理による絡合を施す手法は、前駆体繊維束の末端部同士を、介在繊維束を介さずに、直接結合する方法にも適用できる。

従来技術により太い前駆体繊維束の末端部を結合しようとする、フィラメント数が多すぎて、流体処理を施しても絡合が弱く、フィラメント密度が不均一となって、結合力不足、局所的な高フィラメント密度による蓄熱、焼損が発生する。

しかし、本発明による扁平状に開繊させた状態で繊維束を流体処理により絡合させる方法によれば、太い前駆体繊維束の末端部同士を直接結合しても、従来技術に比較して結合力が大幅に向上し、また、結合部においては、単位面積当たり、あるいは、単位体積当たりの発熱量の少ない均一なフィラメントの絡合が可能となり、結合部における過大な発熱や蓄熱を抑制することが可能となった。

太い前駆体繊維束同士の末端部を扁平状に開繊させて直接絡合させる方法は、上述した介在繊維束を介する方法と基本的に同様な方法で実施できる。

絡合形態の具体例は、第4図～第6図に示した前駆体繊維束10Aの末端部（終端部）10aに、それに結合された介在繊維束11の代わりに、前駆体繊維束10Bの末端部（始端部）10bを結合させる形態とすることで良い。結合部としては、第4図の列状交絡、第5図の多点状交絡、第6図の全面交絡等の絡合形態を、採用することができる。

また、その際の絡合手段としては、介在繊維束を用いる場合と同様に、例えば、第8図に示したようなエア交絡ノズル装置21を用いて、第8図の前駆体繊維束10Aの末端部（終端部）10aに対して、介在繊維束11の代わりに、前駆体繊維束10Bの末端部（始端部）10bとを重ね合わせてノズル内に配置し、ノズル孔22から噴射される流体により、重ね合わされた両末端部のフィラメントをフィラメントレベルに開繊するとともに、これらを絡合させることで良い。

介在繊維束を介さない前駆体繊維束の末端部同士の直接結合は、例えば、第11および12図に示した介在繊維束を介した結合方法および装置と同様なもので行える。具体的には、第11および12図の前駆体繊維束保持手段62Aに、前駆体繊維束10Aの末端部（終端部）10aを保持させ、介在繊維束保持手段64に、介在繊維束11の代わりに、前駆体繊維束10Bの末端部（始端部）10bを保持させる。この場合、前駆体繊維束保持手段62Bは、不要となる。

次に、第12図に示すように、前駆体繊維束の終端部10aと前駆体繊維束の始端部10bとを重ね合わせて、エア交絡ノズル装置65によって、流体処理による絡合処理を施す。

このとき、流体による絡合処理の絡合の強化と均一化のため、前駆体繊維束の末端部（終端部および始端部）10a、10bを、扁平状に開繊させた状態で保持させる。特に、各繊維束は、フィラメント密度が、4,000本/mm以下の状態に扁平状に開繊されていることが好ましい。

また、第13図に示す結合方法および装置についても、介在繊維束保持手段64に、介在繊維束11の代わりに、前駆体繊維束10Bの末端部（始端部）10bを保持させることにより、前駆体繊維束の末端部同士の結合を行うことができる。

上述した前駆体繊維束の末端部を介在繊維束を介して結合する方法、および、前駆体繊維束の末端部同士を直接結合する方法においては、繊維束を予め扁平状に開繊した状態で配置した後、流体処理を施すため、結合する前駆体繊維束のフィラメントが捲縮を有していても、所望の結合強度で

結合可能である。

しかし、捲縮のかかった前駆体繊維束は、綿状で、フィラメントが絡まっている場合があるため、この場合は、結合する繊維束同士の絡合の均一性がやや劣ることになる。

この問題を解決するには、捲縮のかかった前駆体繊維束の結合に使用する末端部のみの捲縮を除去すれば良い。

この捲縮除去の程度は、流体処理による絡合の強化が目的であるため、捲縮がかかりフィラメントが絡み合った綿状の繊維束に、張力を負荷して真っ直ぐにした状態で、短時間の熱処理を施して、各フィラメントがある程度真っ直ぐで、かつフィラメントの絡み合いが無くなれば充分である。

この熱処理方法としては、ホットエアやスチームの吹き付け、あるいは、面状ヒーターによるプレスなど様々な方法がある。

第14図は、この熱処理を実施するための熱処理装置の一例の概略側面図である。第14図において、捲縮のかかった前駆体繊維束10Aの末端部10aは、繊維束保持手段68a、68bで保持される。次いで、前駆体繊維束保持手段68a、68bが、繊維束の長手方向で、互いに反対方向に移動せしめられ、繊維束保持手段68a、68bにより挟まれた部分の前駆体繊維束10Aの末端部10aの捲縮が引き延ばされ、捲縮が消えた状態が形成される。このとき、繊維束保持手段68a、68bの移動は、所定の間隔となるようにしても良いし、繊維束に負荷される張力が所定の荷重となるようにしても良い。

その後、繊維束10Aの末端部10aを、上下両面から、面状ヒーター69で挟むことによりプレスし、捲縮を除去する。この面状ヒーター69の温度は、80℃～180℃、好ましくは、100℃～150℃とし、熱処理時間は、3秒～10秒で良い。

第14図に示した捲縮除去手段は、非常に簡単であるため、前述した第11、12および13図に示した結合装置に、容易に組み込むことが可能である。

なお、前駆体繊維束同士を直接結合する方法では、耐炎化処理温度にお

いて非発熱性の介在繊維束を介して結合する方法に比べ、結合部の前駆体繊維の密度が2倍となるため、介在繊維束を介在させる場合に比べ、蓄熱しやすい。

これを緩和するには、太い前駆体繊維束同士を直接結合した部分に、耐炎化反応抑制剤を付与するのが良い。

耐炎化反応抑制剤を付与することにより、発熱反応が抑制されるため、結合部の蓄熱を抑えることが可能となり、耐炎化処理工程でのフィラメント焼損、フィラメント切れ等の不都合を回避することができる。耐炎化反応抑制剤としては、硼酸水を用いるのが好ましい。

以上において、前駆体繊維束の末端部と介在繊維束の末端部とで形成される結合部、あるいは、前駆体繊維束の末端部と他の前駆体繊維束の末端部とで形成される結合部におけるフィラメント同士の実質的に均一な絡合を形成するフィラメント交絡処理手段として、流体を用いたフィラメント交絡処理手段について説明したが、次に、ニードルパンチを用いたフィラメント交絡処理手段について説明する。

前駆体繊維束の扁平状に開繊された末端部と介在繊維束の扁平状に開繊された末端部とを重ね合わせ、あるいは、前駆体繊維束の扁平状に開繊された末端部と他の前駆体繊維束の扁平状に開繊された末端部とを重ね合わせ、重ね合わせた部分を、上記流体を用いたフィラメント交絡処理に代えて、ニードルパンチ処理することによっても、両繊維束の結合部におけるフィラメント同士の実質的に均一な絡合を形成することができる。すなわち、このニードルパンチ処理は、上記流体を用いたフィラメント交絡処理が適用できる全ての場合において、流体を用いたフィラメント交絡処理に代えて用いることができる。

なお、ニードルパンチは、従来知られているニードルパンチ装置を用いることにより行われる。繊維束に対して垂直な方向に、棘を持った針が上下運動して、針の先端、あるいは、棘に引っかかった繊維束を構成しているフィラメントの相対位置が変更せしめられ、フィラメントが相互に立体的に絡み合う。ニードルパンチの回数、密度、針の形を最適化して、結合

部の所望の結合力を得ることができる。

ニードルパンチによる結合部の形成の一例として、第4図に示した態様の介在繊維束を介した一連の前駆体繊維束の形成について説明する。前駆体繊維束10Aの終端部10aと介在繊維束（耐炎化繊維束）11の始端部との重ね合わせ、および、前駆体繊維束10Bの始端部10bと介在繊維束11の終端部との重ね合わせは、第11図を用いて説明したのと全く同様に行われる。

第15図は、第11図に示した装置による結合部の形成を説明する概略縦断面図である。第15図を用いて説明する結合部の形成は、第12図を用いて説明したフィラメント交絡処理を行うための交絡ノズル65A、65Bに代えて、ニードルパンチ手段により行われる。

第15図において、ニードルパンチの処理室内に、上記重ね合わされた各末端部10a、10bと介在繊維束11とが配置されるようにニードルパンチ70A、70Bを設置し、ニードルパンチにより重ね合わされた繊維束を絡め合わせる。ニードルパンチは、ストリッパプレート71A、71Bとベッドプレート72A、72Bとが、重ね合わせた繊維束を挟んだ状態で、ニードルビームが上下方向に動くことにより行われる。

実 施 例

以下、実施例を挙げて、本発明の内容をより具体的に説明する。

本発明による効果を確認するため、耐炎化処理炉を用いて以下のような前駆体繊維束の耐炎化処理炉走行テストを実施した。

第1のキャンに収容された前駆体繊維束は、耐炎化炉内へと走行しながら導かれ、所定の温度、通過時間にて、耐炎化処理を受ける。第1のキャンのある場所に、次の前駆体繊維束の入った第2のキャンを用意し、後に詳述する前駆体繊維束の結合方法により、第1のキャンに収容された前駆体繊維束の終端部と次の前駆体繊維束の始端部を結合した。

結合部は、ガイドバーや、ドライブステーションを通過して、耐炎化処理炉に入る。耐炎化処理時間は60分とし、各水準について耐炎化処理炉

内温度を変化させて、繊維束が通過可能な上限温度を測定し、その温度における耐炎化工程通過率を測定した。炉内温度制御の変動幅があるため、測定温度は、5℃きざみとした。

耐炎化処理炉を通過した結合部は、続いて、炭化処理炉において、窒素雰囲気中で1500℃にて炭化処理され、炭化処理炉通過後、得られた炭素繊維束は、巻取機によりボビンに巻き上げられた。

耐炎化処理炉内で前駆体繊維束にかかる張力は、初期には約6 kgf / s t、後期には繊維束が収縮して9 kgf / s t程度であった。

また、耐炎化する前駆体繊維束は、単糸デニール1.5 d、フィラメント数70,000本のポリアクリル系前駆体繊維束である。キャンからの立ち上げ、糸道通過を容易にするため、この繊維束は、捲縮を有する。

実施例、比較実施例における条件、結果を表1にまとめた。

[ブランク]

ブランクとして、フィラメント数70,000本(70K)の前駆体繊維束自体(結合部なし)について、耐炎化処理炉の通過可能な上限温度と、工程通過率を測定した。結果は、耐炎化可能な上限温度が235℃であり、耐炎化温度を240℃に設定すると、前駆体繊維束が焼き切れた。また、耐炎化温度235℃では、耐炎化工程、炭化工程の工程通過率は、共に100%であった。

[実施例1]

フィラメント数70,000本の前駆体繊維束の末端部同士を、耐炎化繊維束を介在させて結合した。このとき、介在させる耐炎化繊維束のフィラメント数を、36,000本、48,000本、60,000本、100,000本として、4種類の結合サンプルを作製した。

結合には、第14図の捲縮除去手段と、第13図の繊維束の結合装置を使用し、第4図に示す形態となるように結合した。交絡箇所は、第4図と同様に各重ね合わせ部において4列とした。以下に手順を示す。

(i) 第14図の捲縮除去手段を用いて、前駆体繊維束の末端部の捲縮を除去する。表面温度100℃～130℃の面状ヒーターで引き延ばした状

態の繊維束を両面から 5 秒間プレスした。

(ii) 第 13 図 (a) に示すように、捲縮除去した前駆体繊維束と介在繊維束である耐炎化繊維束を、それぞれ幅 25 mm の扁平状に開繊 (拡幅) した後、重ね合わせた。

(iii) 第 13 図 (b) に示すように、各エア交絡箇所において繊維束をその長手方向に弛ませ、各エア交絡ノズル 65A、65B から圧空を噴射して、絡合処理をした。エア交絡ノズルは、第 9 図に示した形状であり、絡合処理空間の横幅は、50 mm、隙間は 6 mm のものを使用した。また、ノズルから噴射される圧空の供給元での圧力は、0.5 MPa とした。

(iv) 結合された前駆体繊維束と耐炎化繊維束の各末端部の余った邪魔な部分を切断除去して、結合部が第 4 図に示す形態となるようにした。

このようにして形成した結合部は、エア交絡部において、フィラメントが充分均一に混繊・絡合しており、小束のフィラメントが捻れるような形態の絡合は発生しなかった。

(v) こうして形成した結合部を有する一連の前駆体繊維束を、耐炎化処理炉に通過させ、通過可能な上限温度を測定した。

(vi) 同一条件による前駆体繊維束の結合部を作製し、耐炎化処理炉を通過可能な上限温度に設定した状態での結合部の耐炎化工程通過率、および、炭化工程の通過率を測定した。

表 1 に示す通り、ブランクと比較して、実施例における前駆体繊維束の耐炎化処理炉の通過可能な上限温度は、同等あるいは、5℃程度低下する程度で、温度低下幅を非常に小さくすることができた。

また、耐炎化処理炉の温度を、通過可能な上限温度に設定して、結合により形成された一連の前駆体繊維束を、耐炎化処理炉中に走行させ、ここで得られた耐炎化繊維束を、次いで、炭化処理炉中に走行させ、ここに得られた炭素繊維束を、巻取機によりボビンに巻き上げた。

特に、結合部における交絡部分の形態が、扁平状で、フィラメントが均一に絡合されているため、双方の炉で使用される繊維束を支持し走行させるために用いられる溝付きローラーの溝部への繊維束の収まりが良好であ

った。

〔比較実施例 1〕

フィラメント数 70, 000 本の前駆体繊維束の末端部同士を、特公平 1-12850 号公報に記載の従来技術であるエア交絡方法により結合した。エア交絡ノズルは、第 1 図に示す構造のノズルで、フィラメント数の多い繊維束用に、絡合処理室と、ノズル孔径を大きくしたものを使用した。交絡箇所は、実施例 1 と同様に、結合する繊維束同士の重ね合わせ部において 4 列とした。結合する束状の繊維束同士を重ねた状態でこのエア交絡ノズルの絡合処理室内に配置し、ノズルに供給する圧空圧を 0.5 MPa として、エア交絡処理をした。

この方法によるエア交絡では、フィラメントが幾つかの小束に分かれて、捻れ、フィラメントが小束同士で絡合する形態となった。

このようにして結合された前駆体繊維束について、実施例 1 と同様な方法で、耐炎化処理炉の通過可能な上限温度及び工程通過率を測定した。

耐炎化処理炉内で、捻れるように絡合したエア交絡部が蓄熱・焼損しやすく、耐炎化処理炉通過可能な上限温度が 220℃となり、ブランクに比べて大きく低下した。また、結合部の結合力が実施例 1 に比べ、大幅に弱く、また、ばらつきが大きいため、220℃における耐炎化処理炉の通過テストでは、結合部の素抜けや、破断が多発した。

〔比較実施例 2〕

フィラメント数 70, 000 本の前駆体繊維束の末端部同士を、特公平 1-12850 号公報に記載の従来技術であるエア交絡方法により、フィラメント数 60, 000 本の耐炎化繊維束を介在させて結合した。結合方法は、比較実施例 1 と同一方法とした。

この方法によるエア交絡では、比較実施例例 1 と同様に前駆体繊維束フィラメントと耐炎化繊維束のフィラメントとが、それぞれ幾つかのフィラメントの小束に分かれて、捻れるように、小束同士で絡合する形態となった。

このようにして得られた一連の前駆体繊維束について、実施例 1 と同様

な方法で、耐炎化処理炉の通過可能な上限温度および工程通過率を測定した。

耐炎化処理炉内で、比較実施例 1 に比べると、耐炎化繊維束を介在させたことによる蓄熱抑制効果があり、耐炎化処理炉通過可能な上限温度が 225℃となったが、ブランクに比べて大きく低下した。また、比較実施例 1 と同様に、結合部における結合力が実施例 1 に比べて大幅に弱く、また、ばらつきが大きいいため、225℃における耐炎化工程通過テストでは、結合部の素抜けや、破断が多発した。

上述した実施例 1 と比較実施例 1、2 から、本発明の結合方法によれば、従来技術に比べて、結合部の結合強度向上と結合される繊維束のフィラメント同士の均一な混織及び絡合、蓄熱の抑制効果が達成されることが判る。

特に、実施例 1 の (1) ~ (4) の結果から、介在させる耐炎化繊維束のフィラメント数 F は、前駆体繊維束のフィラメント数 G に対して、 $0.4 \times G \leq F \leq 1.5 \times G$ の範囲にあることが好ましく、 $0.6 \times G \leq F \leq 1.0 \times G$ の範囲にあることが特に好ましいことが判る。

[実施例 2]

フィラメント数 60,000 本 (60K) の耐炎化繊維束を介在させて、フィラメント数 70,000 本 (70K) の前駆体繊維束の末端部同士を結合した。結合は、実施例 1 と同じで、前記の (i) ~ (iv) の手順で行った。ただし、各繊維束の末端部を扁平状の開織幅を、25mmではなく、14mmとした。

この結合方法で作製した結合部は、実施例 1 の (3) に比べ、エア交絡部のフィラメントの混織・絡合にばらつきがあった。耐炎化炉通過可能な上限温度、および、工程通過率は、実施例 1 の (3) に比べると、少し低い、比較実施例 2 に比べると、大幅に改善されている。

表 1 に示すように、エア交絡前の各繊維束の末端部の扁平状の開織におけるフィラメント密度が、実施例 1 では、4000 本/mm より大であるのに対して、実施例 1、3、4 では、4000 本/mm 以下である。これらを比較すると、結合する各繊維束の末端部の扁平状の開織におけるフィ

ラメント密度は、4 0 0 0 本/mm以下であることが好ましいことが判る。

[実施例 3]

フィラメント数 7 0, 0 0 0 本の前駆体繊維束の末端部同士を、耐炎化繊維束を介在させずに直接結合した。

結合は、実施例 1 と同様であるが、前駆体繊維束の末端部と介在繊維束（耐炎化繊維束）を重ね合わせる代わりに、前駆体繊維束の末端部同士を直接重ね合わせて行った。交絡箇所は 4 列とした。

このようにして形成した結合部は、エア交絡部においてフィラメントが充分均一に混織・絡合しており、小束のフィラメント同士の捻れるような形態の絡合は発生しなかった。

こうして結合した一連の前駆体繊維束を、耐炎化処理炉に通過させ、通過可能な上限温度を測定した。

結合部における前駆体繊維束のフィラメント密度が高いため、結合部が蓄熱しやすく、耐炎化処理炉通過可能な上限温度が 2 2 5℃となった。この耐炎化処理炉通過可能な上限温度は、ブランクに比べて低下したが、比較実施例 1 に比べて高く改善されている。また、耐炎化処理炉の温度をこの上限温度 2 2 5℃とし、前駆体繊維束を耐炎化処理、次いで炭化処理した。繊維束は、耐炎化処理工程、炭化処理工程を通過し、得られた炭素繊維束は、巻取機によりボビンに巻き上げられた。

特に、結合部における交絡部分の形態が、扁平状で、フィラメントが均一に絡合されているため、両工程で用いられる溝付きローラーの溝部への繊維束の収まりが良好であった。この方法は、介在繊維束（耐炎化繊維束）を介在させる方法よりも、生産性が低下するが、実施例 1 に比べて簡便な方法であるので、耐炎化処理炉の温度を多少下げてもよい場合において、充分に生産に適用できる。

[実施例 4]

実施例 3 と同一の方法で、フィラメント数 7 0, 0 0 0 本の前駆体繊維束の末端部同士を直接結合した後、耐炎化反応抑制剤として、結合部に硼酸水を付与した。

耐炎化処理炉の通過可能な上限温度が235℃となった。ブランクと同等の条件で、耐炎化処理炉を通過させることができた。

ただし、硼酸水を付与した部分は、反応が抑制されて耐炎化が遅れているため、このまま炭化処理しても焼き切れる場合がある。そのため、結合部に硼酸水処理を施す場合には、耐炎化処理後、得られた耐炎化繊維束の硼酸水処理を行った部分を切断・除去し、再結合することが好ましい。

[実施例5]

実施例1と同様にして、前駆体繊維束および介在繊維束である耐炎化繊維束を用意した。これら繊維束の結合手段として、実施例1で用いた結合手段であるエア交絡ノズルに代え、ニードルパンチを用いた。第15図に示すように、各繊維束の重ね合わせ部分をニードルパンチで絡合させた。

結合された前駆体繊維束と耐炎化繊維束の各末端部の余った邪魔な部分を切断除去して、結合部が第4図に示す形態となるようにした。

このようにして形成した結合部は、ニードルパンチ交絡部において、フィラメントが充分均一に混織・絡合しており、小束のフィラメントの捻れるような形態の絡合は発生しなかった。

こうして形成した結合部を有する一連の前駆体繊維束を、耐炎化処理炉に通過させ、通過可能な上限温度を測定した。

同一条件による前駆体繊維束の結合部を作製し、耐炎化処理炉を通過可能な上限温度に設定した状態での結合部の耐炎化工程通過率、および、炭化工程の通過率を測定した。

表2に示す通り、ブランク（表1参照）と比較して、実施例における前駆体繊維束の耐炎化処理炉の通過可能な上限温度は、同等あるいは、5℃程度低下する程度で、温度低下幅を非常に小さくすることができた。

また、耐炎化処理炉の温度を、通過可能な上限温度に設定して、結合された一連の前駆体繊維束を耐炎化処理炉中に走行させ、得られた耐炎化繊維束を、次いで、炭化処理炉中に走行させ、得られた炭素繊維束を、巻取機によりボビンに巻き上げた。

特に、結合部における交絡部分の形態が、扁平状で、フィラメントが均

一に絡合されているため、双方の炉で使用される繊維束を炉中で支持し走行させるために用いられる溝付きローラーの溝部への繊維束の収まりが良好であった。

[実施例 6]

実施例 2 と同様にして、前駆体繊維束および介在繊維束である耐炎化繊維束を用意した。これら繊維束の結合手段として、実施例 2 で用いた結合手段であるエア交絡ノズルに代え、ニードルパンチを用いた。第 15 図に示すように、各繊維束の重ね合わせ部分をニードルパンチで絡合させた。

この結合方法で作製した結合部は、実施例 5 の (3) に比べ、ニードルパンチ交絡部のフィラメントの混織・絡合にばらつきがあった。耐炎化炉通過可能な上限温度、および、工程通過率は、実施例 5 の (3) に比べると、少し低い、比較実施例 2 に比べると、大幅に改善されている。

表 2 に示すように、ニードルパンチ交絡前の各繊維束の末端部の扁平状の開織におけるフィラメント密度が、実施例 6 では、4000 本/mm より大であるのに対して、実施例 5、7、8 では、4000 本/mm 以下である。これらを比較すると、結合する各繊維束の末端部の扁平状の開織におけるフィラメント密度は、4000 本/mm 以下であることが好ましいことが判る。

[実施例 7]

実施例 3 と同様にして、前駆体繊維束を用意した。繊維束の結合手段として、実施例 3 で用いた結合手段であるエア交絡ノズルに代え、ニードルパンチを用いた。結合手段は、実施例 5 と同様であるが、前駆体繊維束と耐炎化繊維束を重ね合わせる代わりに、前駆体繊維束の末端部同士を重ね合わせて結合している。ニードルパンチによる絡合部の長さは、約 30 cm とした。

このようにして形成した結合部は、ニードルパンチ交絡部においてフィラメントが充分均一に混織・絡合しており、小束のフィラメント同士の捻れるような形態の絡合は発生しなかった。

こうして結合した一連の前駆体繊維束を、耐炎化処理炉に通過させ、通

過可能な上限温度を測定した。

結合部における前駆体繊維束のフィラメント密度が高いため、結合部が蓄熱しやすく、耐炎化処理炉通過可能な上限温度が225℃となった。この耐炎化処理炉通過可能な上限温度は、ブランク（表1参照）に比べて低下したが、比較実施例1（表1参照）に比べて高く改善されている。また、耐炎化処理炉の温度を前記の上限温度225℃とし、前駆体繊維束を耐炎化処理、次いで炭化処理した。繊維束は、耐炎化処理工程、炭化処理工程を通過し、得られた炭素繊維束は、巻取機によりボビンに巻き上げられた。

特に、結合部における交絡部分の形態が、扁平状で、フィラメントが均一に絡合されているため、両工程で用いられる溝付きローラーの溝部への繊維束の収まりが良好であった。この方法は、介在繊維束（耐炎化繊維束）を介在させる方法よりも、生産性が低下するが、実施例5に比べて簡便な方法であるので、耐炎化処理炉の温度を多少下げてもよい場合において、十分に生産に適用できる。

[実施例8]

実施例7と同一の方法で、前駆体繊維束の末端部同士を直接結合した後、耐炎化反応抑制剤として、結合部に硼酸水を付与した。

耐炎化処理炉の通過可能な上限温度が235℃となった。ブランク（表1参照）と同等の条件で、耐炎化処理炉を通過させることができた。

ただし、硼酸水を付与した部分は、反応が抑制されて耐炎化が遅れているため、このまま炭化処理しても焼き切れる。そのため、結合部に硼酸水処理を施す場合には、耐炎化処理後、得られた耐炎化繊維束の硼酸水処理を行った部分を切断・除去し、再結合することが好ましい。

表 1

		第1および第2の繊維束/ 介在繊維束	結合方法
ブランク		70K 前駆体繊維束結合部なし	-----
実施例 1	(1)	70K 前駆体繊維束/ 36K 耐炎化繊維束	本発明のエア交絡ノズルによる結合方法、装置を用いた結合
	(2)	70K 前駆体繊維束/ 48K 耐炎化繊維束	
	(3)	70K 前駆体繊維束/ 60K 耐炎化繊維束	
	(4)	70K 前駆体繊維束/ 100K 耐炎化繊維束	
実施例 2		70K 前駆体繊維束/ 60K 耐炎化繊維束	
実施例 3		70K 前駆体繊維束同士直接結合	
実施例 4		70K 前駆体繊維束同士直接結合 硼酸水付与	
比較実施例 1		70K 前駆体繊維束同士直接結合	従来のエア交絡ノズル(2孔ノズル)による結合方法、装置を用いた結合
比較実施例 2		70K 前駆体繊維束/ 60K 耐炎化繊維束	

(注) K: フィラメント数 1,000 本を表す。

表 1 (続き)

		エア交絡前の (a): 第1、第2の繊維束および介在繊維束の末端部の開繊維幅(mm) (b): 第1および第2の繊維束の末端部の幅方向密度(本/mm) (c): 介在繊維束の末端部の幅方向密度(本/mm)		耐炎化工程		炭化工程
				工程通過可能な上限温度(°C)	工程通過率(%)	工程通過率(%)
ブランク			---	235	100	100
実施例 1	(1)	(a) (b) (c)	25 2,800 1,500	235	93	90
	(2)	(a) (b) (c)	25 2,800 1,900	235	100	100
	(3)	(a) (b) (c)	25 2,800 2,400	235	100	100
	(4)	(a) (b) (c)	25 2,800 4,000	230	99	95
実施例 2		(a) (b) (c)	25 5,000 4,300	230	93	90
実施例 3		(a) (b) (c)	25 2,800 ---	225	99	95
実施例 4		(a) (b) (c)	25 2,800 ---	235	99	*1
比較実施例 1			-----	220	40	*2
比較実施例 2			-----	225	40	*2

(注) *1: 耐炎化工程を通過できるように耐炎化条件を調整したため、耐炎化工程は通過したが、耐炎化糸としての特性が得られないため、炭化処理は行わなかった。
 *2: 耐炎化工程での繊維束の通過率が低かったため、炭化処理は行わなかった。

表 2

		第1および第2の繊維束/ 介在繊維束	結合方法
実施例 5	(1)	70K 前駆体繊維束/ 36K 耐炎化繊維束	本発明のニードルパンチによる結合方法、 装置を用いた結合
	(2)	70K 前駆体繊維束/ 48K 耐炎化繊維束	
	(3)	70K 前駆体繊維束/ 60K 耐炎化繊維束	
	(4)	70K 前駆体繊維束/ 100K 耐炎化繊維束	
実施例 6		70K 前駆体繊維束/ 60K 耐炎化繊維束	
実施例 7		70K 前駆体繊維束同士直接結合	
実施例 8		70K 前駆体繊維束同士直接結合 硼酸水付与	

(注) K: フィラメント数 1,000 本を表す。

表 2 (続き)

		ニードルパンチ交絡前の (a): 第1、第2の繊維束および介在繊維束の末端部の開繊幅(mm) (b): 第1および第2の繊維束の末端部の幅方向密度(本/mm) (c): 介在繊維束の末端部の幅方向密度(本/mm)		耐炎化工程		炭化工程
				工程通過可能な 上限温度 (°C)	工程通過率 (%)	工程通過率 (%)
実施例 5	(1)	(a) (b) (c)	25 2,800 1,500	235	92	88
	(2)	(a) (b) (c)	25 2,800 1,900	235	100	100
	(3)	(a) (b) (c)	25 2,800 2,400	235	100	100
	(4)	(a) (b) (c)	25 2,800 4,000	230	97	96
実施例 6		(a) (b) (c)	25 5,000 4,300	230	91	88
実施例 7		(a) (b) (c)	25 2,800 ---	225	99	95
実施例 8		(a) (b) (c)	25 2,800 ---	235	99	*1

(注) *1: 耐炎化工程を通過できるように耐炎化条件を調整したため、耐炎化工程は通過したが、耐炎化糸としての特性が得られないため、炭化処理は行わなかった。

産業上の利用可能性

本発明に係る炭素繊維製造用前駆体繊維束は、30,000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束の複数本を、その終端部と始端部とにおいて、直接、あるいは、耐炭化処理温度において非発熱性を有する介在繊維束（例えば、耐炭化繊維束）を介して結合してなる一連の繊維束であり、結合部において、それぞれの繊維束のフィラメントが、相互に、フィラメントレベルで交絡している。

この一連の炭素繊維製造用前駆体繊維束は、その太さが従前のものより大きいにも拘わらず、耐炭化処理工程における結合部での蓄熱が小さく、結合部での焼損が起こりにくい。そのため、耐炭化処理が、高い温度で、連続して行え、安価な炭素繊維の供給が可能となる。

請 求 の 範 囲

1. 30,000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第1の繊維束と、30,000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第2の繊維束と、耐炎化処理温度において、非発熱性を有する多数のフィラメントからなる介在繊維束とからなり、前記第1の繊維束の終端部と前記第2の繊維束の始端部とが、前記介在繊維束を介して結合されており、前記第1の繊維束の終端部と前記介在繊維束の始端部とが結合されている第1の結合部と前記介在繊維束の終端部と前記第2の繊維束の始端部とが結合されている第2の結合部とにおいて、それぞれの繊維束を構成しているフィラメント同士が、実質的に均一に絡合されている炭素繊維製造用前駆体繊維束。

2. 前記介在繊維束が耐炎化繊維束である、請求項1記載の炭素繊維製造用前駆体繊維束。

3. 前記耐炎化繊維束のフィラメント数をFとし、前記各炭素繊維製造用前駆体繊維束のフィラメント数をGとしたとき、 $0.4 \times G \leq F \leq 1.5 \times G$ なる関係を満足している請求項2記載の炭素繊維製造用前駆体繊維束。

4. 前記各炭素繊維製造用前駆体繊維束が、捲縮を有するフィラメントからなり、かつ、前記結合部においては、その捲縮が除去されている請求項1、2、あるいは、3記載の炭素繊維製造用前駆体繊維束。

5. 30,000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第1の繊維束と、30,000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第2の繊維束とからなり、前記第1の繊維束の終端部と前記第2の繊維束の始端部とが直接結合されてお

り、この結合部において、それぞれの繊維束を構成しているフィラメント同士が、実質的に均一に絡合されている炭素繊維製造用前駆体繊維束。

6. 前記炭素繊維製造用前駆体繊維束が、捲縮を有するフィラメントからなり、かつ、前記結合部においては、その捲縮が除去されている請求項5記載の炭素繊維製造用前駆体繊維束。

7. (a) 30,000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第1の繊維束の扁平状に開繊された状態の終端部を、該終端部を横断する方向において、間隔をおいて、少なくとも2カ所で、保持する第1の繊維束保持手段と、

(b) 30,000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第2の繊維束の扁平状に開繊された状態の始端部を、該始端部を横断する方向において、間隔をおいて、少なくとも2カ所で、保持する第2の繊維束保持手段と、

(c) 耐炎化処理温度において、非発熱性を有する多数のフィラメントからなる介在繊維束の扁平状に開繊された状態の始端部と終端部とを、該介在繊維束を横断する方向において、間隔をおいて、少なくとも2カ所で、保持する介在繊維束保持手段と、

(d) 前記第1の繊維束の終端部と前記介在繊維束の始端部とのフィラメントに交絡を付与する第1の交絡処理手段と、

(e) 前記第2の繊維束の始端部と前記介在繊維束の終端部とのフィラメントに交絡を付与する第2の交絡処理手段と、
からなり、

(f) 前記第1の繊維束保持手段と前記第2の繊維束保持手段とは、それらに保持される前記第1の繊維束の終端部の先端と前記第2の繊維の始端部先端とが向かい合う位置関係を有して配設され、

(g) 前記介在繊維束保持手段は、そこに保持される介在繊維束を、前記第1の繊維束保持手段に保持される前記第1の繊維束と前記第2の繊維

束保持手段に保持される前記第 2 の繊維束との双方を重ね合わせる位置関係を有して配設され、

ている炭素繊維製造用前駆体繊維束の製造装置。

8. 前記第 1 の交絡処理手段および前記第 2 の交絡処理手段が、流体を用いたフィラメント交絡処理手段である請求項 7 記載の炭素繊維製造用前駆体繊維束の製造装置。

9. 前記第 1 の交絡処理手段および前記第 2 の交絡処理手段が、ニードルパンチを用いたフィラメント交絡処理手段である請求項 7 記載の炭素繊維製造用前駆体繊維束の製造装置。

10. (a) 30,000 本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第 1 の繊維束の扁平状に開繊された状態の終端部を、該終端部を横断する方向において、間隔をおいて、少なくとも 2 カ所で、保持する第 1 の繊維束保持手段と、

(b) 30,000 本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第 2 の繊維束の扁平状に開繊された状態の始端部を、該始端部を横断する方向において、間隔をおいて、少なくとも 2 カ所で、保持する第 2 の繊維束保持手段と、

(c) 前記第 1 の繊維束の終端部と前記第 2 の繊維束の始端部とのフィラメントに交絡を付与する交絡処理手段と、
からなり、

(d) 前記第 1 の繊維束保持手段と前記第 2 の繊維束保持手段とは、前記第 1 の繊維束保持手段に保持される前記第 1 の繊維束と前記第 2 の繊維束保持手段に保持される前記第 2 の繊維束との双方を重ね合わせる位置関係を有して配設され、
ている炭素繊維製造用前駆体繊維束の製造装置。

1 1. 前記交絡処理手段が、流体を用いたフィラメント交絡処理手段である請求項 1 0 記載の炭素繊維製造用前駆体繊維束の製造装置。

1 2. 前記交絡処理手段が、ニードルパンチを用いたフィラメント交絡処理手段である請求項 1 0 記載の炭素繊維製造用前駆体繊維束の製造装置。

1 3. (a) 3 0, 0 0 0 本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第 1 の繊維束の扁平状に開繊された終端部と非発熱性を有する多数のフィラメントからなる介在繊維束の扁平状に開繊された始端部とを重ね合わせ、両繊維束のフィラメント同士を実質的に均一に絡合させ第 1 の結合部を形成する工程と、

(b) 3 0, 0 0 0 本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第 2 の繊維束の扁平状に開繊された始端部と前記介在繊維束の扁平状に開繊された終端部とを重ね合わせ、両繊維束のフィラメント同士を実質的に均一に絡合させ第 2 の結合部を形成する工程と、

(c) 前記第 1 の繊維束と前記第 2 の繊維束とが、前記第 1 の結合部および第 2 の結合部により前記介在繊維束を介して結合されてなる 1 本の連続した炭素繊維製造用前駆体繊維束を、耐炎化处理して耐炎化繊維束を得る工程と、

(d) 得られた耐炎化繊維束を、炭化处理して炭素繊維束を得る工程、とからなる炭素繊維束の製造方法。

1 4. 前記介在繊維束が、耐炎化繊維束である請求項 1 3 記載の炭素繊維束の製造方法。

1 5. 前記介在繊維束である耐炎化繊維束のフィラメント数を F とし、前記各炭素繊維製造用前駆体繊維束のフィラメント数を G としたとき、 $0.4 \times G \leq F \leq 1.5 \times G$ なる関係を満足している請求項 1 4 記載の炭素繊維束の製造方法。

16. 前記第1の結合部および第2の結合部を形成する手段が、流体を用いたフィラメント交絡処理である請求項13、14、あるいは、15記載の炭素繊維束の製造方法。

17. 前記第1の結合部および第2の結合部を形成する際に、重ね合わせられる両繊維束のフィラメント密度が、4,000本/mm以下である請求項16記載の炭素繊維束の製造方法。

18. 前記第1の繊維束および第2の繊維束のフィラメントが捲縮を有する場合、前記第1の結合部および第2の結合部を形成する際に、前記第1の繊維束の終端部と前記第2の繊維束の始端部におけるフィラメントの捲縮を予め除去する請求項17記載の炭素繊維束の製造方法。

19. 前記第1の結合部および第2の結合部を形成する手段が、ニードルパンチを用いたフィラメント交絡処理である請求項13、14、あるいは、15記載の炭素繊維束の製造方法。

20. 前記第1の結合部および第2の結合部を形成する際に、重ね合わせられる両繊維束のフィラメント密度が、4,000本/mm以下である請求項19記載の炭素繊維束の製造方法。

21. 前記第1の繊維束および第2の繊維束のフィラメントが捲縮を有する場合、前記第1の結合部および第2の結合部を形成する際に、前記第1の繊維束の終端部と前記第2の繊維束の始端部におけるフィラメントの捲縮を予め除去する請求項20記載の炭素繊維束の製造方法。

22. (a) 30,000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第1の繊維束の扁平状に開繊された終端部と30,

000本以上のフィラメントを有する炭素繊維製造用前駆体繊維束からなる第2の繊維束の扁平状に開織された始端部とを重ね合わせ、両繊維束のフィラメント同士を実質的に均一に絡合させ結合部を形成する工程と、

(b) 前記第1の繊維束と前記第2の繊維束とが、前記結合部により結合されてなる1本の連続した炭素繊維製造用前駆体繊維束を、耐炎化处理して耐炎化繊維束を得る工程と、

(c) 得られた耐炎化繊維束を、炭化处理して炭素繊維束を得る工程、とからなる炭素繊維束の製造方法。

23. 前記結合部を形成する手段が、流体を用いたフィラメント交絡処理である請求項22記載の炭素繊維束の製造方法。

24. 前記結合部を形成する手段が、ニードルパンチを用いたフィラメント交絡処理である請求項22記載の炭素繊維束の製造方法。

25. 前記結合部を形成する際に、重ね合わせられる両繊維束のフィラメント密度が、4,000本/mm以下である請求項23、あるいは、24記載の炭素繊維束の製造方法。

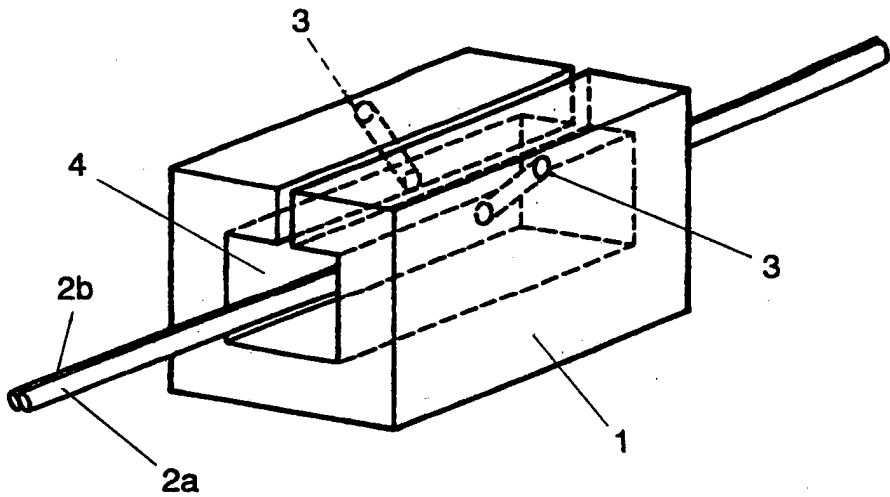
26. 前記第1の繊維束および第2の繊維束のフィラメントが捲縮を有する場合、前記結合部を形成する際に、前記第1の繊維束の終端部と前記第2の繊維束の始端部におけるフィラメントの捲縮を予め除去する請求項25記載の炭素繊維束の製造方法。

27. 前記結合部が形成された後、前記耐炎化处理前に、前記結合部に耐炎化抑制剤を付与する請求項25、あるいは、26記載の炭素繊維束の製造方法。

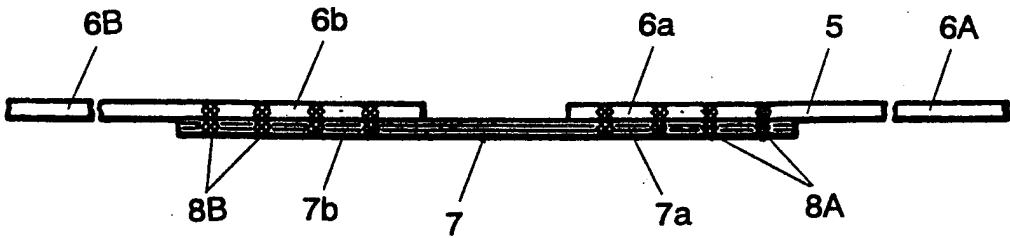
28. 前記耐炎化抑制剤が、硼酸水である請求項27記載の炭素繊維束

の製造方法。

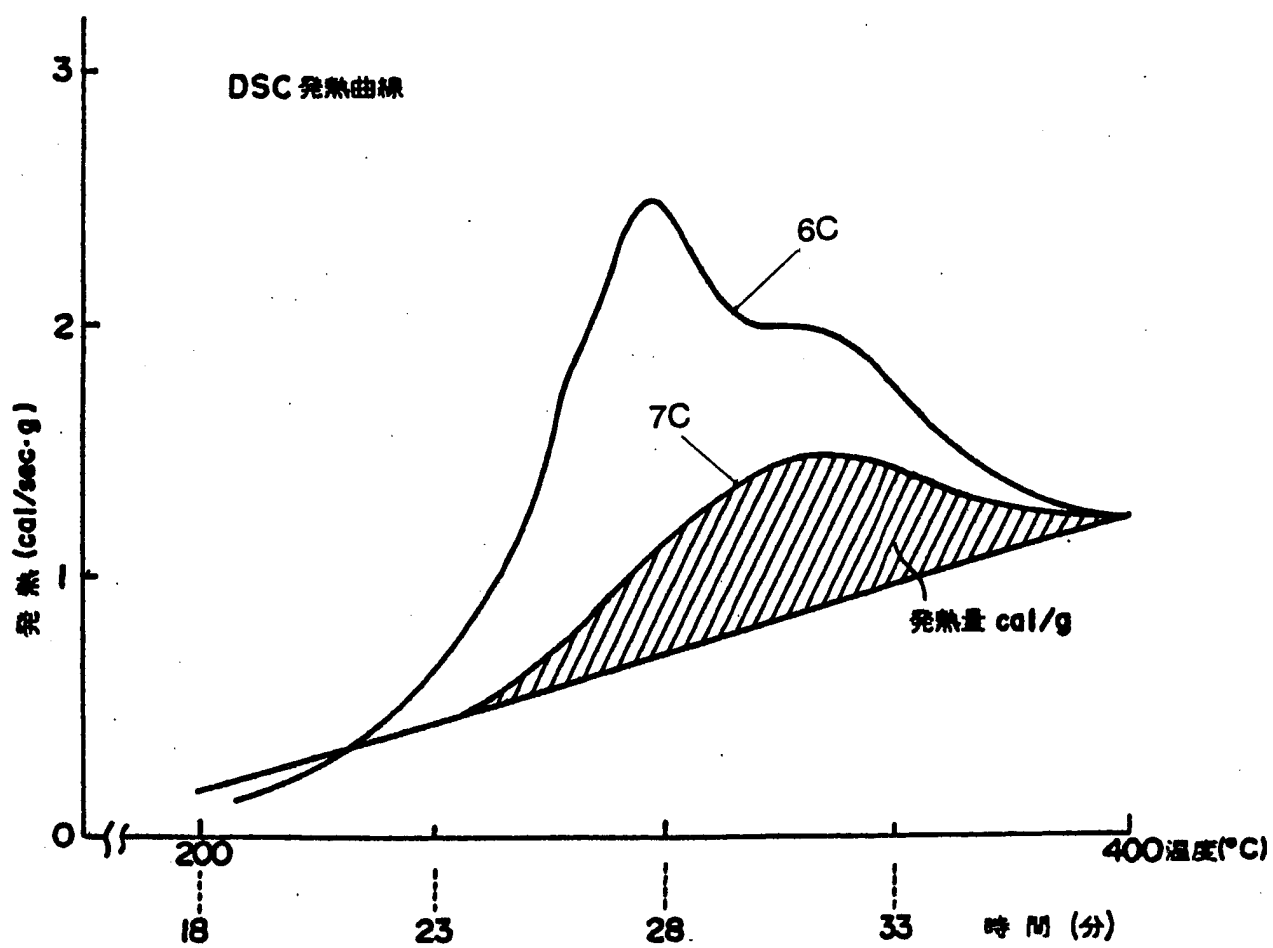
第 1 図 (従来例)



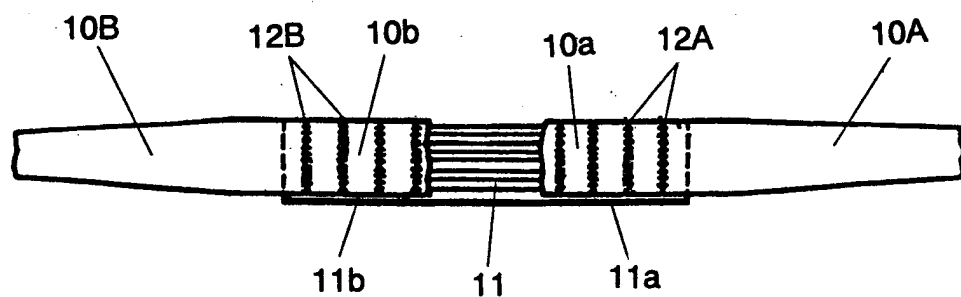
第 2 図



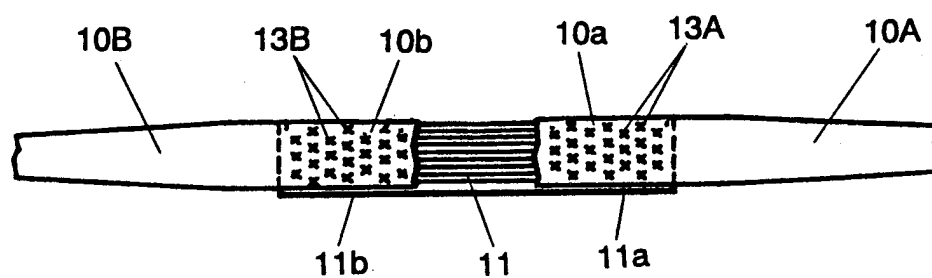
第3図



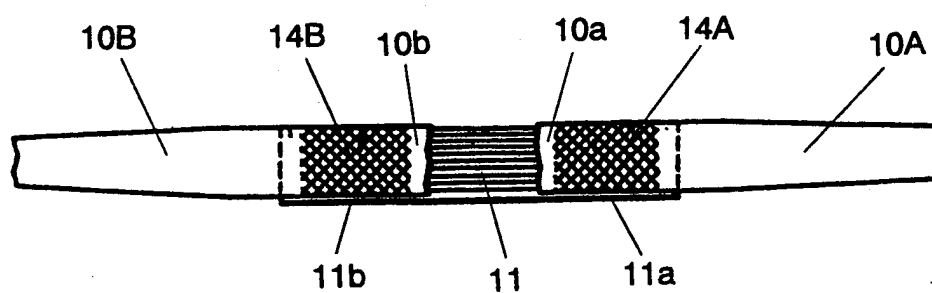
第4図



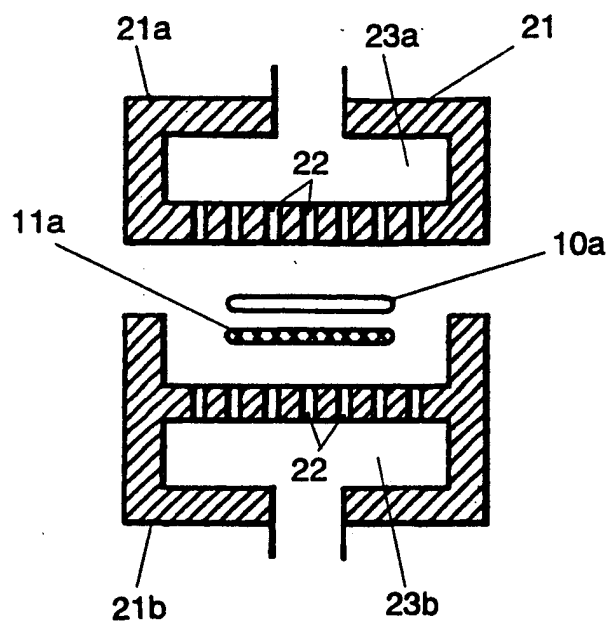
第 5 図



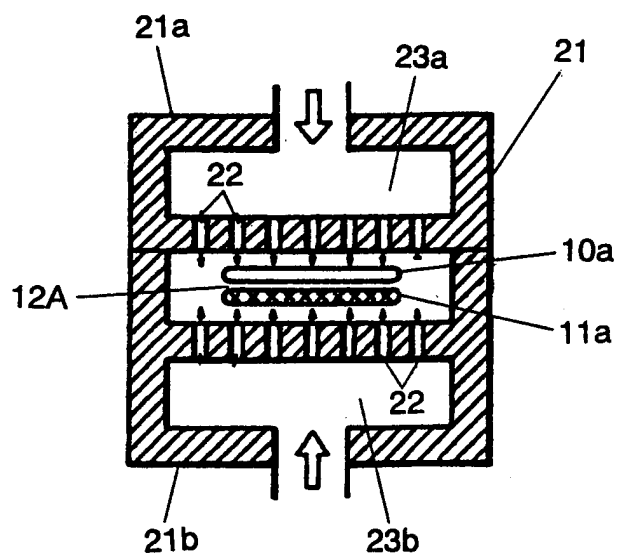
第 6 図



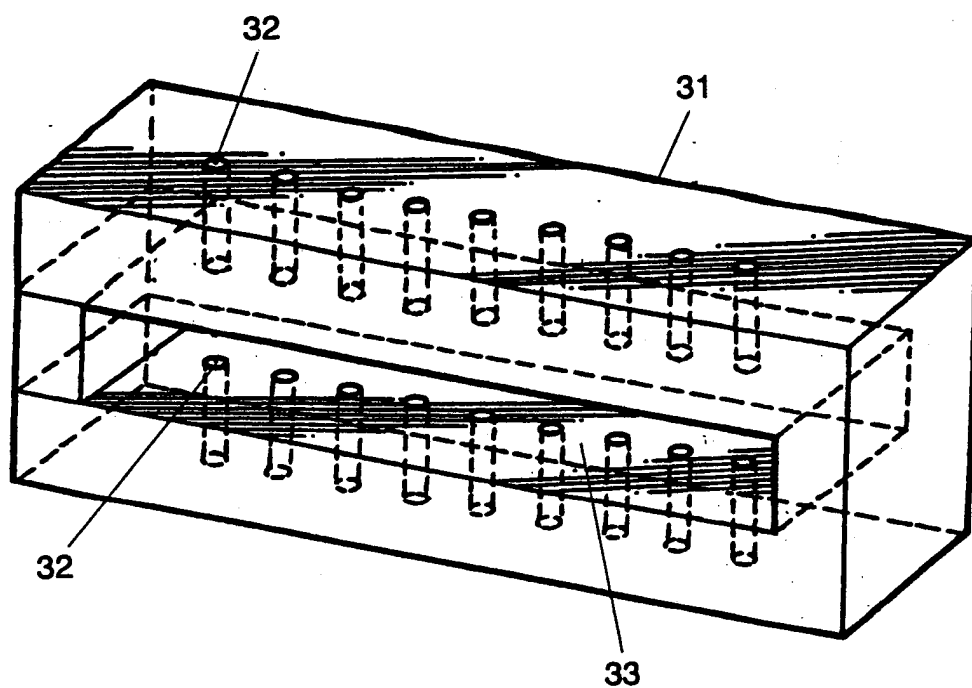
第 7 図



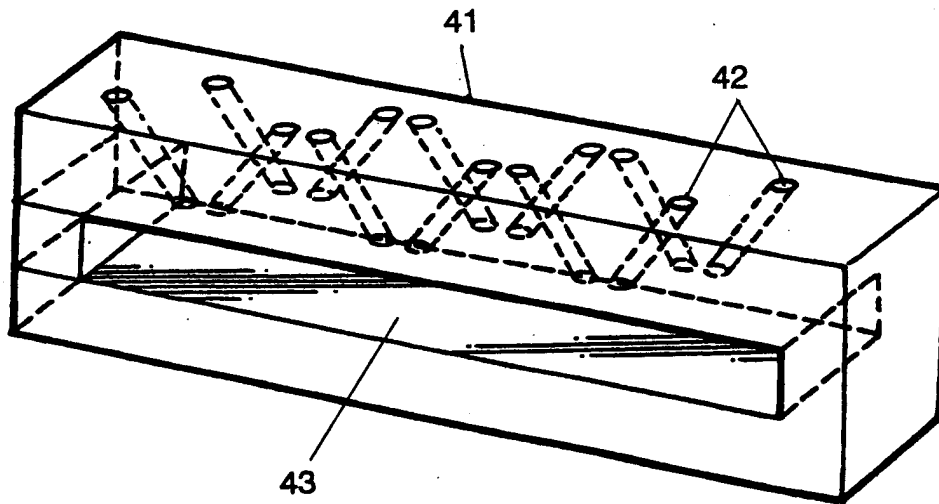
第 8 図



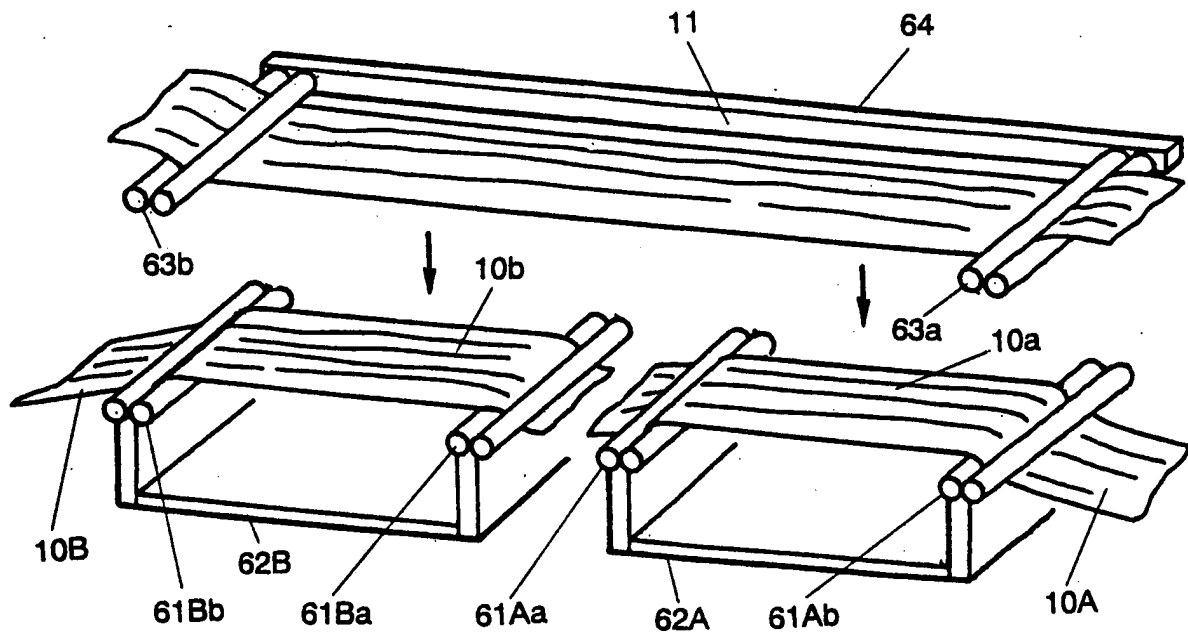
第 9 図



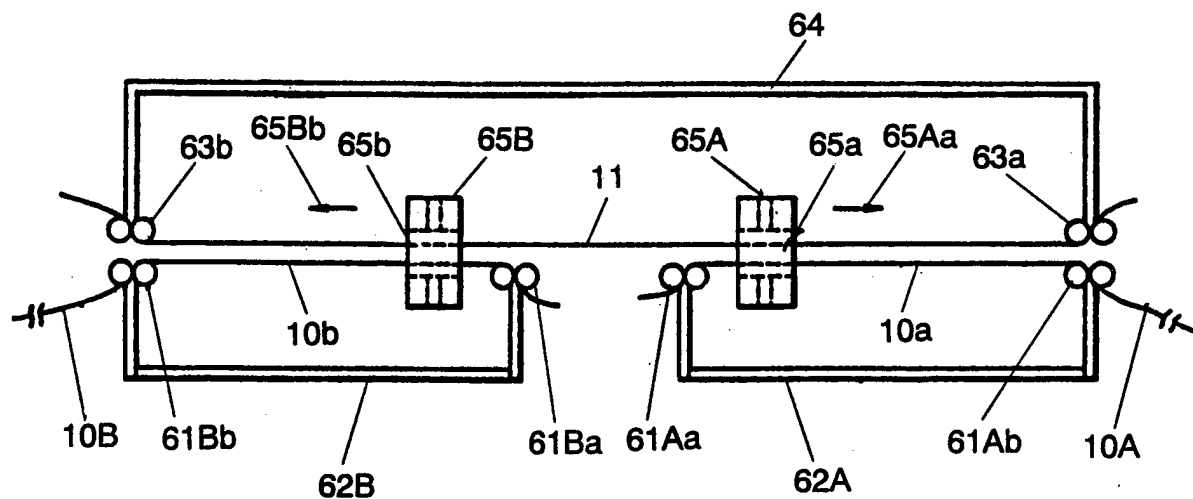
第 1 0 図



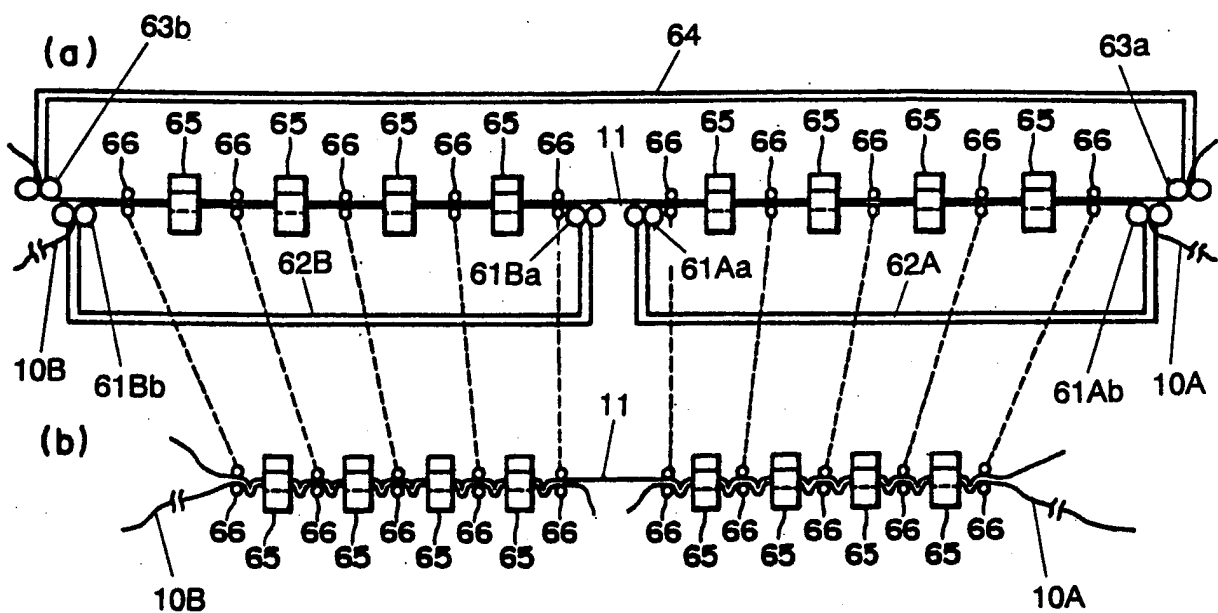
第 1 1 図



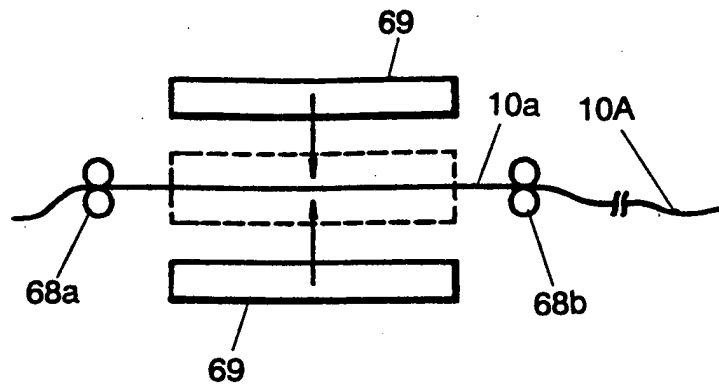
第 1 2 図



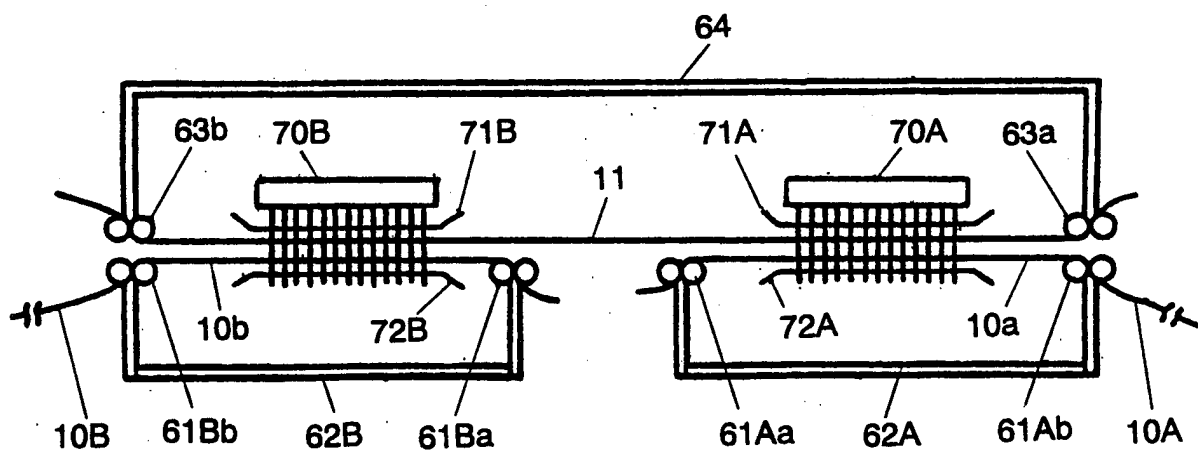
第 1 3 図



第 1 4 図



第 1 5 図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP98/00581

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁶ D01F9/12

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)

Int.Cl⁶ D01F9/12

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

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-1998
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-1996

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, 1-12850, B2 (Toray Industries, Inc.), March 2, 1989 (02. 03. 89) & US, 4466949, A & FR, 2512849, B & GB, 2108946, B	1-28
A	JP, 58-208420, A (Toray Industries, Inc.), December 5, 1983 (05. 12. 83) (Family: none)	1-28
A	JP, 60-2407, B2 (Showa Denko K.K.), January 21, 1985 (21. 01. 85) (Family: none)	1-28

☐ 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 document 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
May 11, 1998 (11. 05. 98)

Date of mailing of the international search report
May 26, 1998 (26. 05. 98)

Name and mailing address of the ISA/
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))

Int. Cl⁶ D01F9/12

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. Cl⁶ D01F9/12

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 1926-1996

日本国公開実用新案公報 1971-1996

日本国登録実用新案公報 1994-1998

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 請求の範囲の番号
A	J P, 1-12850, B2 (東レ株式会社), 2. 3月. 1989 (02. 03. 89), & US, 4466949, A, & F R, 2512849, B, & GB, 2108946, B	1-28
A	J P, 58-208420, A (東レ株式会社), 5. 12月. 1983 (05. 12. 83), (ファミリーなし)	1-28
A	J P, 60-2407, B2 (昭和電工株式会社), 21. 1月. 1985 (21. 01. 85), (ファミリーなし)	1-28

☐ 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」 先行文献ではあるが、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

11. 05. 98

国際調査報告の発送日

26.05.98

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)

真々田 忠 博

3 B

8 2 1 6

電話番号 03-3581-1101 内線 3320