

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4734983号  
(P4734983)

(45) 発行日 平成23年7月27日(2011.7.27)

(24) 登録日 平成23年5月13日(2011.5.13)

(51) Int.Cl.

F I

**B 2 9 C 43/20 (2006.01)**

B 2 9 C 43/20

B 2 9 K 105/08 (2006.01)

B 2 9 K 105/08

請求項の数 10 (全 13 頁)

(21) 出願番号 特願2005-78769 (P2005-78769)  
 (22) 出願日 平成17年3月18日(2005.3.18)  
 (65) 公開番号 特開2006-256202 (P2006-256202A)  
 (43) 公開日 平成18年9月28日(2006.9.28)  
 審査請求日 平成19年12月21日(2007.12.21)

(73) 特許権者 000003159  
 東レ株式会社  
 東京都中央区日本橋室町2丁目1番1号  
 (72) 発明者 長岡 悟  
 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  
 (72) 発明者 須賀 康雄  
 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  
 (72) 発明者 浅原 信雄  
 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

審査官 田口 昌浩

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 プリフォーム用基材およびその製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

強化繊維が配列したシートを3枚以上厚み方向に配置し、シート間が部分的に接合されたプリフォーム用基材であって、前記強化繊維が配列したシートの少なくとも片面に、熱可塑性樹脂を含む樹脂材料が配置されているとともに、下記(a)、(b)の少なくとも一方の手段を用いてなることにより、各シート間の剥離強さが厚み方向に変化することを特徴とするプリフォーム用基材。

(a) 温度の異なる熱媒体で上下から加熱し、厚み方向に温度勾配を持たせて、前記樹脂材料の軟化具合を調整する加熱手段

(b) 圧子を用いた押圧時間を短くして、押圧力を多方向に分散させる押圧手段

10

【請求項2】

強化繊維が配列したシートを4枚以上厚み方向に配置し、シート間が部分的に接合されたプリフォーム用基材であって、前記強化繊維が配列したシートの少なくとも片面に、熱可塑性樹脂を含む樹脂材料が配置されているとともに、下記(a)、(b)の少なくとも一方の手段を用いてなることにより、各シート間の剥離強さが、中心部から少なくとも一方の片側表面に向かって増加または減少することを特徴とするプリフォーム用基材。

(a) 温度の異なる熱媒体で上下から加熱し、厚み方向に温度勾配を持たせて、前記樹脂材料の軟化具合を調整する加熱手段

(b) 圧子を用いた押圧時間を短くして、押圧力を多方向に分散させる押圧手段

【請求項3】

20

各シートに配置されている熱可塑性樹脂を含む樹脂材料の配置量が異なる、請求項 1 または 2 に記載のプリフォーム用基材。

【請求項 4】

各シート間の剥離強さが  $10 \sim 700 \text{ N/m}^2$  の範囲である、請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載のプリフォーム用基材。

【請求項 5】

前記強化繊維の少なくとも一部が炭素繊維である、請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載のプリフォーム用基材。

【請求項 6】

前記熱可塑性樹脂を含む樹脂材料の配置量が強化繊維に対して  $0.5 \sim 20$  重量% の範囲である、請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載のプリフォーム用基材。

10

【請求項 7】

請求項 1 ～ 6 のいずれかに記載のプリフォーム用基材を型に沿わせて賦形したプリフォーム。

【請求項 8】

少なくとも次の工程 (A) ～ (C) を順次経ることを特徴とするプリフォーム用基材の製造方法。

(A) 強化繊維を配列したシートの少なくとも片側表面に、熱可塑性樹脂を含む樹脂材料を配置する接合機能材料配置工程。

(B) 少なくとも前記 (A) 工程で、前記熱可塑性樹脂を含む樹脂材料を配置したシートを複数枚厚み方向に配置する配置工程。

20

(C) 熱可塑性樹脂を含む樹脂材料を媒体として、下記 (a)、(b) の少なくとも一方の工程を用いて、加熱された圧子を用いて加熱・加圧することにより、前記シート同士を厚み方向に部分的に接合する接合工程。

(a) 温度の異なる熱媒体で上下から加熱し、厚み方向に温度勾配を持たせて、前記樹脂材料の軟化具合を調整する加熱工程

(b) 圧子を用いた押圧時間を短くして、押圧力を多方向に分散させる押圧工程

【請求項 9】

前記工程 (A) において、熱可塑性樹脂を含む樹脂材料を、前記強化繊維を配列したシートに加熱して付着させる、請求項 8 に記載のプリフォーム用基材の製造方法。

30

【請求項 10】

前記工程 (B) において、熱可塑性樹脂を含む樹脂材料の配置量が異なるシートを厚み方向に配置する、請求項 8 または 9 のいずれかに記載のプリフォーム用基材の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は強化繊維プラスチックを樹脂注入成形法、特にレジントランスファーマーモルディング法 (以下、RTM法という) により製造する際の中間基材であるプリフォームを製作するためのプリフォーム用基材およびその製造方法に関する。

【背景技術】

40

【0002】

従来から、炭素繊維などを強化繊維とした複合材料は、優れた力学特性、軽量特性を満たすことから主に航空、宇宙、スポーツ用途に用いられてきた。これらの代表的な製造方法として、RTM法などの樹脂注入成形法が挙げられ複雑な形状を有する大型の部材を短時間で成形することができる。

かかる RTM 成形法では、強化繊維からなるプリフォームを成型型の中に配置して、液状のマトリックス樹脂を注入することにより強化繊維中にマトリックス樹脂を含浸させ、その後、加熱硬化して強化繊維プラスチックを得ることができる。

RTM 法などの樹脂注入成形法に適用するプリフォームは従来、平面上の強化繊維が配列したシートを一枚一枚厚み方向に配置したシート積層体を最終製品形状に準ずる形をした

50

賦形型の上に搬送、配置して作成していた。しかしながら該シート積層体を用いてプリフォームを作成する場合、該シート積層体のシート間は接合されていないことから、型への沿い性という点では優れるものの、賦形型への搬送中に該シートの配向角がずれたり、型に配置しているときにシートがすべり落ちたりするなど、作業性が悪いこと、信頼性の高い強化繊維プラスチックが得にくいことに問題があった。

そこで予め何らかの手段でシート積層体のシート間を接合したプリフォーム用基材を製造することが考えられる。先行する特許文献に現れる技術として、シート間がステッチ系により接合されたプリフォーム用基材が提案されている（特許文献1）。該プリフォーム用基材はシート間がステッチ系で接合一体化されていることから、搬送性、取り扱い性などの作業性に優れる。しかしながら、該プリフォーム用基材を賦形型に沿わせて変形、固定させる場合、緩やかな形状には適用可能であるが、例えば、直角に曲げる部分に沿わせる場合、ステッチ系の締め付けが規制となり、曲げ部分で内側と外側の周長の差が生じ、内側のシートに皺が発生し、強化繊維プラスチックにした時に本来の強度を発現できないという問題があった。

10

#### 【0003】

上記以外のプリフォーム用基材として、熱可塑性樹脂を含む樹脂材料によりシート間が接合されたプリフォーム用基材が提案されている（特許文献2）。該プリフォーム用基材は、各シート間の厚み方向の剥離強さがある値以上であることから3次元形状の型に配置してもシートが滑り落ちたりすることがなく、またシート間に樹脂材料を配置していることから衝撃付与後の圧縮強度などの力学特性に優れるなど、信頼性の高い強化繊維プラスチックを得ることができる。しかしながら、該プリフォーム用基材を曲率半径の小さい部分に沿わせる場合、シート間の滑りが円滑に起こらないために、皺が発生するなどの問題があった。

20

#### 【0004】

また、ニードルパンチにより強化繊維を起毛処理して、シート同士がブリッジングされたものが提案されている（特許文献3）。該プリフォーム用基材においても、曲率半径の小さい部分に沿わせる場合、同様に皺が発生するなどの問題があった。

#### 【0005】

一方、シート間の滑りが円滑に起こるプリフォーム用基材として、端部のみが熱可塑性樹脂で接合されたプリフォーム用基材が提案されている（特許文献4）。該プリフォーム用基材を3次元形状に賦形した場合、端部の接合部を基点として各シートが滑動するため、皺のないプリフォームを作製することができる。しかしながら、該プリフォーム用基材は端部以外は接合されておらず、型に搬送している際や賦形しているときにシートがめくれたり、配向角がずれるなどの問題があり、3次元形状のプリフォームを正確かつ効率よく作製するという点で不十分なものであった。

30

【特許文献1】特開2004-160927号公報

【特許文献2】特開2004-114586号公報

【特許文献3】特開2004-60058号公報

【特許文献4】特開平5-185539号公報

【発明の開示】

40

【発明が解決しようとする課題】

#### 【0006】

本発明の目的は、かかる問題点を解決し、取り扱い性に優れ、3次元形状にも皺無く賦形できるとともに、優れた力学特性を有する強化繊維プラスチックが得られるプリフォーム用基材を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

#### 【0007】

発明者は、上記問題点を解決するために鋭意検討を行い、プリフォーム用基材を曲面形状に賦形する際に生じる皺とシート間の剥離強さに密接な関係があることを見いだすとともに、以下の構成を有することにより、取り扱い性が良好で3次元形状にも優れた賦形性

50

を有し、また成形したときに優れた力学特性を有するプリフォーム用基材が得られることを見いだすに至った。すなわち、

(1) 強化繊維が配列したシートを3枚以上厚み方向に配置し、シート間が部分的に接合されたプリフォーム用基材であって、前記強化繊維が配列したシートの少なくとも片面に、熱可塑性樹脂を含む樹脂材料が配置されているとともに、下記(a)、(b)の少なくとも一方の手段を用いてなることにより、各シート間の剥離強さが厚み方向に変化することを特徴とするプリフォーム用基材。

(a) 温度の異なる熱媒体で上下から加熱し、厚み方向に温度勾配を持たせて、前記樹脂材料の軟化具合を調整する加熱手段

(b) 圧子を用いた押圧時間を短くして、押圧力を多方向に分散させる押圧手段

10

(2) 強化繊維が配列したシートを4枚以上厚み方向に配置し、シート間が部分的に接合されたプリフォーム用基材であって、前記強化繊維が配列したシートの少なくとも片面に、熱可塑性樹脂を含む樹脂材料が配置されているとともに、下記(a)、(b)の少なくとも一方の手段を用いてなることにより、各シート間の剥離強さが、中心部から少なくとも一方の片側表面に向かって増加または減少することを特徴とするプリフォーム用基材。

(a) 温度の異なる熱媒体で上下から加熱し、厚み方向に温度勾配を持たせて、前記樹脂材料の軟化具合を調整する加熱手段

(b) 圧子を用いた押圧時間を短くして、押圧力を多方向に分散させる押圧手段

(3) 各シートに配置されている熱可塑性樹脂を含む樹脂材料の配置量が異なる、前記(1)または(2)に記載のプリフォーム用基材。

20

(4) 各シート間の剥離強さが10～700N/m<sup>2</sup>の範囲である、前記(1)～(3)のいずれかに記載のプリフォーム用基材。

(5) 前記強化繊維の少なくとも一部が炭素繊維である、前記(1)～(4)のいずれかに記載のプリフォーム用基材。

(6) 前記熱可塑性樹脂を含む樹脂材料の配置量が強化繊維に対して0.5～20重量%の範囲である、前記(1)～(5)のいずれかに記載のプリフォーム用基材。

(7) 前記(1)～(6)のいずれかに記載のプリフォーム用基材を型に沿わせて賦形したプリフォーム。

(8) 少なくとも次の工程(A)～(C)を順次経ることを特徴とするプリフォーム用基材の製造方法。

30

(A) 強化繊維を配列したシートの少なくとも片側表面に、熱可塑性樹脂を含む樹脂材料を配置する接合機能材料配置工程。

(B) 少なくとも前記(A)工程で、前記熱可塑性樹脂を含む樹脂材料を配置したシートを複数枚厚み方向に配置する配置工程。

(C) 熱可塑性樹脂を含む樹脂材料を媒体として、下記(a)、(b)の少なくとも一方の工程を用いて、加熱された圧子を用いて加熱・加圧することにより、前記シート同士を厚み方向に部分的に接合する接合工程。

(a) 温度の異なる熱媒体で上下から加熱し、厚み方向に温度勾配を持たせて、前記樹脂材料の軟化具合を調整する加熱工程

40

(b) 圧子を用いた押圧時間を短くして、押圧力を多方向に分散させる押圧工程

(9) 前記工程(A)において、熱可塑性樹脂を含む樹脂材料を、前記強化繊維を配列したシートに加熱して付着させる、前記(8)に記載のプリフォーム用基材の製造方法。

(10) 前記工程(B)において、熱可塑性樹脂を含む樹脂材料の配置量が異なるシートを厚み方向に配置する、前記(8)または(9)のいずれかに記載のプリフォーム用基材の製造方法。

【発明の効果】

【0008】

本発明のプリフォーム用基材は、取り扱い性が良好で、3次元形状にも優れた賦形性を有し、かつ、本発明のプリフォーム用基材を用いた成形品は優れた力学特性を有する。

50

## 【発明を実施するための最良の形態】

## 【0009】

以下、本発明について、望ましい実施の形態とともに具体的に説明する。図1は本発明のプリフォーム用基材の一例を概略的に示す斜視図であり、図2は図1のプリフォーム用基材のA-A矢視の断面図である。

## 【0010】

図1において本発明のプリフォーム用基材1は強化繊維が配列したシート2が少なくとも3枚以上厚み方向に配置されており、各シート間は接合機能を有する材料3、すなわち、以下に示す、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂、またはこれらの組み合わせからなる樹脂材料がシートの少なくとも片面に配置されて、部分的に接合されている。該接合はピッチPの間隔で行われており、また窪み4は接合時に押圧されて形成されたものである。

10

## 【0011】

該プリフォーム用基材を手または治具、あるいはフィルムやシートを用いて三次元形状に賦形する場合、各シート間の剥離強さは厚み方向に変化することが必要である。

## 【0012】

この理由を以下に示す。プリフォーム用基材1を3次元形状に賦形する場合、特に曲率半径の小さな曲げ部分では内側と外側の周長の差が大きくなるため、該曲げ部分ではシート間が、すべりを起こさなければ、内側部分で皺が発生する。この時、プリフォーム用基材1のシート間に内側と外側の周長の差に対応するすべりが生じれば皺の発生が防止できるが、各シート間のすべり易さが一定である場合、より長い距離をすべる必要のある外側の各シート間ほどすべり難くなる。そのため、すべり易さが厚み方向に変化したプリフォーム用基材を適用することにより、より長い距離をすべる必要のある部分にはシート間がすべり易い側を設定することで、皺を発生させずに適用可能な賦形形状の幅が広くなり、用途・応用範囲が広がる。ここでは賦形の際に直接的に働くのはシート間のすべり易さであるが、すべり易さはシート間の剥離強度と良い相関関係があるため、より評価し易い各シート間の剥離強さで表すこととした。

20

## 【0013】

各シート間の剥離強さの厚み方向の変化は、搬送中や型にセットしたときにシートが剥がれたりせず、また賦形時に曲げ部分に皺なく沿うようなすべりが発生するのであれば特に限定されるものではないが、強化繊維が配列したシートを4枚以上厚み方向に配置したプリフォーム用基材では、中心部から少なくともプリフォーム用基材の片側表面に向かって増加または減少するのが好ましい。具体例として以下の3つが挙げられる。

30

(1) 剥離強さの変化を片側表面から厚み方向に減少または増加するようにすれば、剥離強さの強い側を内側にして図4の(a)のような賦形型9を用いてC型形状に賦形した場合、シート間の剥離強さが外側に向かって弱くなるため、外側のシート間の滑りが効率よく起こり、その結果皺のないプリフォームを得ることができる。ここでいう剥離強さの減少および増加の比率Raは、曲げ部分で皺を防止するようなすべりが発生するのであれば特に限定されるものではないが、周長の差が大きくなるほどシート間のすべりも量も大きくする必要があることから、以下の関係式を満たすことが好ましい。

## 【0014】

40

## 【数1】

$$Ra = \frac{|\sigma_{\text{外}} - \sigma_{\text{内}}|}{\sigma_{\text{内}}} > R_l = \frac{\text{内側と外側の周長の差}}{\text{シートの長さ}}$$

$\sigma_{\text{外}}$ : 曲げの外側の剥離強さ ( $N/m^2$ )

$\sigma_{\text{内}}$ : 曲げの内側の剥離強さ ( $N/m^2$ )

シートの長さ: 図4に示す曲線ABCD (mm)

内側と外側の周長の差: 図4に示す曲線BCとEFの距離の差 (mm)

## 【0015】

50

上記例では剥離強さの強い側を内側にして賦形したが、皺が発生しないのであればこれに限定されず、賦形の仕方や作業性に応じて、剥離強さの強い側を外側にしても良い。

(2) 剥離強さの変化を両側表面から中心部に向かって増加するようにすれば、両側とも曲げの内側になったり外側になったりする図4の(b)のようなZ型形状に好適であり、皺を防止するシート間のすべりを円滑に発生させることができる。

(3) 剥離強さの変化を両側表面から中心部に向かって減少するようにすれば、外力を受けやすい両側表面のシートの剥離を予防することができ、取り扱い性に優れたプリフォーム用基材が得られる。

#### 【0016】

また各シート間の剥離強さは $10 \sim 700 \text{ N/m}^2$ の範囲であることが好ましく、 $15 \sim 450 \text{ N/m}^2$ の範囲であることがより好ましく、さらに好ましくは $20 \sim 200 \text{ N/m}^2$ である。剥離強さが $10 \text{ N/m}^2$ 以上であると、取り扱い時にシート間の剥離が生じないこと、搬送中に繊維配向のずれが生じないことから、取り扱い性に優れ、所望の力学特性を有する成形品を得ることができる。また剥離強さが $700 \text{ N/m}^2$ 以下であると、皺を防止するすべりが発生し易く好都合である。

#### 【0017】

ここでいう剥離強さとは、シート間を剥がすのに要する応力をいう。以下に具体的に厚み方向の剥離強さの変化を測定する方法の一例を示す。まずプリフォーム用基材1から $150 \text{ mm}$ 角の大きさを切り出し、適宜シート間を剥がし、約3分割(シート枚数に応じて分割数を増やす)にする。配置枚数が6plyならば、2-3シート間と4-5シート間を剥がし(シート間を剥がすときは曲げやねじりを極力発生させないように、ゆっくりと剥がす)、試験片を3水準(水準1:1-2シート、水準2(中心部):3-4シート、水準3:5-6シート:N数5個)作成する。次に該試験片の両面に十分な剛性を有する鉄鋼板など(試験片とほぼ同形状 $150 \text{ mm}$ 角)を全面にわたって接着させ試験体(重り取り付け用の機構が備わっている)を作成する。なお、試験片と上下面の板は、試験中にシート間より先に剥がれないようにしっかりと接着されており、また試験片と上面の板の重心位置は試験片にねじりモーメントが加わらないように、ほぼ一直線になるように配置する。

次に試験体の片側を十分な荷重を支持可能な構造体(引っ張り試験機用の治具など)にセットし、もう片側に重りをゆっくりと取り付け、シート間が剥がれたときの重さを読みとる。試験結果はシート間が剥離した時の重さ(kg)を剥離荷重とし、これを用いて以下の算出式から剥離強さを求め、各種水準の剥離強さの大小を比較・評価する。

#### 【0018】

##### 【数2】

$$\sigma_n = \frac{(P_1 + \dots + P_5)}{5 \times 150 \times 150} \times g$$

$P_n$ : 重り (kg)

$g$ : 重力加速度 ( $\text{m/s}^2$ )

#### 【0019】

本発明に使用する強化繊維が配列したシート2の強化繊維としては、マルチフィラメントであり、特にその種類に制限はないが、例えば、ガラス繊維、アルミナ繊維、炭化ケイ素繊維、金属繊維、有機(ポリアラミド、PBO、液晶ポリマー繊維、PVA、PEポリフェニレンサルファイド繊維など)繊維または炭素繊維などが好ましく使用できる。これらの中でも、とくに炭素繊維は比強度および比弾性率に優れ、耐吸水性に優れるので、航空機や自動車などの構造材の強化繊維として好ましく用いられる。中でも、高靱性炭素繊維であると、成形される強化繊維プラスチックの衝撃吸収エネルギーが大きくなるので、各種産業用途はもとより航空機1次構造材としても適用が可能となる。

## 【0020】

強化繊維が配列したシート2の形態としては、織物（一方向、多軸）、編物が挙げられる。中でも高い力学特性の成形品が得られることから一方向または2～4軸の織物が好ましい。ここでいう一方向織物とは例えば図3に概略斜視図を示すように、応力が集中するような屈曲を有しない強化繊維6を一方向にお互いに並行にシート上に配列し、このシート面の両側に強化繊維を一方向に互いに並行にシート状に配列し、このシート面の両側に強化繊維と交差する、細い横系7が位置し、これら横系7と、強化繊維と並行する縦系方向補助系8とが繊維組織をなして強化繊維を一体に保持してなる、いわゆる一方向ノンクリンプ織物のことをいう。また多軸の織物としては、2軸の平織りを使用すると意匠面の要望が強い自動車用途を始め、各種産業用途に使用することから好ましい。

10

## 【0021】

プリフォーム用基材を構成するシート2の目付は、取り扱い性が良く、シートを製造するコストが安くできることから、 $100 \sim 1000 \text{ g/m}^2$ 未満であることが好ましい。また該プリフォーム用基材で作成した成形品の所望の力学特性が得られる範囲ならば、適宜目付の異なるシートを組み合わせた構成にしても良い。

## 【0022】

また、シート2を部分的に接合する手段として、レーザーによる溶着接合、超音波による溶着接合、熱プレスによる溶着接合などが挙げられるが、なかでも加熱、加圧をしてシート間を接合する熱プレスによる接合方法が、作成した成形品が高い力学特性を発現できる。接合ピッチPの間隔は、設備が簡略化できること、所望の剥離強さが得やすいことから $5 \sim 300 \text{ mm}$ が好ましく、より好ましくは $15 \sim 100 \text{ mm}$ である。

20

## 【0023】

接合機能を有する材料の形態としては、例えば粒子状、繊維状、フィルム状のものが挙げられる。中でも、プリフォームにおける強化繊維体積率を高くすることができる点から粒子の形態が好ましい。該粒子は、平均直径（楕円形の場合は平均短径）が小さければ、小さいほど均一にシート2の表面に分散させることが可能となるため、 $1 \text{ mm}$ 以下が好ましく、 $250 \mu\text{m}$ 以下であればより好ましく、 $50 \mu\text{m}$ 以下がさらに好ましい。シート2の表面に配置した粒子の径が大きいほど表面の凹凸が大きくなり、強化繊維が屈曲する可能性があるので、強化繊維が配列したシート2表面における粒子の平均厚さは、 $5 \sim 250 \mu\text{m}$ の範囲であることが好ましい。

30

## 【0024】

接合機能を有する材料3の配置量は、前記したような力学特性の向上効果が得られ、かつマトリックス樹脂の含浸性を阻害しない点からプリフォーム用基材1の強化繊維に対して $0.5 \sim 20$ 重量%の範囲であることが好ましい。また厚み方向に剥離強さの異なるプリフォーム用基材が得やすいことから、各シートに配置する接合機能を有する材料3の配置量を上記範囲で厚み方向に変化させてもよい。なお、該接合機能を有する材料3の配置面は含浸性や成形品の力学特性を阻害しなければ、片面、両面のいずれかに特定するものではない。

## 【0025】

接合機能を有する材料3として、シート間を部分的に接合できるものならば特に限定されるものではないが、接合機能以外に各種力学特性を向上させることができることから樹脂材料が好ましく使用される。具体的な樹脂材料としては、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂が挙げられ、これらを単独で使用しても組み合わせて使用しても良い。

40

## 【0026】

熱可塑性樹脂としては、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリエーテルイミド、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリフェニレンエーテル、ポリエーテルニトリル、ポリエーテルエーテルケトン、及びポリエーテルケトンケトン、これらの変性樹脂、共重合樹脂などを使用するのが好ましく、中でもポリアミド、ポリエーテルイミド、ポリフェニレンエーテル、ポリエーテルスルホンを使用するのがシート間の強度を増

50

加させることができる点でより好ましい。

【0027】

熱硬化性樹脂としては、エポキシ樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ビニルエステル樹脂、フェノール樹脂などが好ましく使用することができる。

【0028】

また熱可塑性樹脂と熱硬化性樹脂を組み合わせる使用することは、両者の優れた点を両立でき好ましい。例えば、熱可塑性樹脂を熱硬化性樹脂で改質することにより、熱可塑性樹脂の耐溶剤性を熱硬化性樹脂により改善しかつ、熱可塑性樹脂の特有の高い靱性向上効果を得ることが可能となる。このような目的において、熱可塑性樹脂の配合量は耐衝撃性に優れた強化繊維プラスチックが得られる点から30～100重量%であることが好ましい。

10

【0029】

本発明のプリフォーム用基材1のシート枚数は3枚以上であるが、シート間の剥離強さを変化させることができるのであればこれに限定されず、多いほど本発明の効果をより一層発揮することができる。またシート2の配置構成は、所望の力学特性と樹脂の含浸性が得られるのであれば特に限定されるものではないが、(45°/0°/-45°/90°)、(45°/90°/-45°/0°)などの45°ずれや(0°/90°)、(45°/-45°)などの90°ずれや(0°/0°)、(90°/90°)などの同配向の配置構成を少なくとも1種以上含むものが好ましい。中でも方向による力学特性の差が少ない、(45°/0°/-45°/90°)などの45°ずれの配置構成を含むことが好ましい。なお、ここでいう0°とは連続したプリフォーム用基材の長手方向のことであり、強化繊維が配列したシートが一方向に配列したトウシートや一方向織物においては、強化繊維配列方向のことであり、二軸織物においては、たて系の配列方向のことである。

20

【0030】

本発明のプリフォームは前記プリフォーム用基材を用いて作成したものであり、例えば次のように作製することができる。雄型のプリフォーム型に複数枚のプリフォーム用基材を、基材間に接合機能を有する材料3が位置するようにセットし、この上から雌型の賦形型を載せ、賦形型を接合機能を有する材料のTg以上に加熱し、若干加圧した状態で基材同士を接合させた後、温度を下げて脱型することによって得られる。

【0031】

30

次に本発明のプリフォーム用基材の製造方法について図を用いて説明する。図5は本発明の製造方法の実施に用いる製造装置の一態様例を示した概略断面図である。図において、積層体11は接合機能を有する材料3が配置したシート2を所定枚数配置したものであり、シート間を部分的に接合する手段としてツール板10、圧子12、圧着用治具13、プレス機14から構成される。本発明の製造方法は、例えば、該製造装置を用いて以下に述べる工程を経て行われる。

(A) 接合機能材料配置工程

強化繊維が配列したシート2上に少なくとも片面に、樹脂材料などの接合機能を有する材料3を配置する。適宜加熱して、接合機能を有する材料3をシート2に付着させれば、取り扱い性に優れるシートを得ることができる。

40

(B) 配置工程

ツール板10上に接合機能を有する材料3が配置されたシート2を所定枚数配置し、積層体11を作る。剥離強さを厚み方向に変化させるために、所望の力学特性が得られる範囲で接合機能を有する材料3の配置量が異なるシート2を配置することができる。また、該配置工程でシートの間に接合機能を有する材料3を配置しても良く、例えば熱可塑性樹脂から系状体で構成される網状体を配置すれば、マトリックス樹脂の含浸特性や力学特性を向上させることができる。また、ツール板は熱伝導率が高いこと、剛性が高く変形しにくいことから、鉄やアルミなどの金属性のものが好ましいが、FRP性のものでも良い。

(C) 接合工程

前記(B)工程で作成した積層体のシート2同士を、接合機能を有する材料3を媒体と

50



して部分的に接合する。シート 2 同士を部分的に接合する手段として、レーザーによる溶着、超音波による溶着、ステッチ系による接合、熱プレスによる溶着などが挙げられるが、なかでも加熱された圧子を用いて加熱、加圧をしてシート間を接合する熱プレスによる方法が、作成した成形品が高い力学特性を発現できる。以下に、熱プレスで、シート間を部分的に接合する例を示す。

#### 【 0 0 3 2 】

まず、積層体 1 1、ツール板 1 0、圧子 1 2、圧着用治具 1 3、プレス機 1 4 を所定の温度まで加熱する。ここでいう圧着用治具 1 3 とは各シート間を部分的に接合するためのものであり、積層体 1 1 を直接押圧する圧子 1 2 が取り付けられている。またプレス機 1 4 は、圧着用治具 1 3 に所望の力を掛けられるものであるならば特に限定されず、プレス機 1 4 の代わりに重りなどを用いても良い。

10

#### 【 0 0 3 3 】

加熱の手段は、所望の温度に加熱できるのであれば、特に限定されるものではないが、オーブンをを用いた熱風加熱方式で積層体 1 1 を加熱する方法や圧子 1 2 とツール板 1 0 で挟み込んで直接加熱する方法が、効率の良い加熱手段として挙げられる。加熱温度は、接合機能を有する材料 3 を媒体としてシート間を部分的に接合できる範囲ならば特に限定されないが、効率良くシート間を接合できることから、 $T_g$  (ここでいう  $T_g$  とはシートに配置している接合機能を有する材料 3 のガラス転移温度) より高い温度であることが好ましい。また積層体 1 1 を温度の異なる熱媒体で上下から加熱し、厚み方向に温度勾配を持たせて、接合機能を有する材料 3 の軟化具合を調整すれば、効率良く剥離強さが厚み方向に変化するプリフォーム用基材を得ることができる。

20

#### 【 0 0 3 4 】

次にプレス機 1 4 を用いて圧着用治具 1 3 で積層体 1 1 を押圧し、各シート間を接合機能を有する材料 3 で部分的に接合する。部分的に接合する手段としてピン状の圧子 1 2 を用いれば、設備を簡略化できることからより好ましい。

#### 【 0 0 3 5 】

圧子 1 2 の押圧部の形状はシート 2 を傷つけないものが好ましく、球状もしくは角を面取りした矩形状のものが好ましい。押圧部の面積は、あまり大きくし過ぎるとシート間の自由度が小さくなり皺を防止するようなシート間のすべりが生じにくくなり、また圧着部の面積を小さくし過ぎると所望の剥離強さを得るために圧子の数を増やす必要があることから、 $1 \sim 100 \text{ mm}^2$  が好ましく、 $5 \sim 50 \text{ mm}^2$  であればより好ましい。

30

#### 【 0 0 3 6 】

圧子 1 2 で押圧する時間は、シート間を部分的に接合できる範囲ならば特に限定されないが、厚み方向に剥離強さが変化するプリフォーム用基材 1 が得やすいことから、10 分以内が好ましく、より好ましくは 5 分以内であり、さらに好ましくは 3 分以内である。また押圧時間を短くして、シート間を部分的に接合するための押圧力を多方向に分散させれば、厚み方向に剥離強さが変化するプリフォーム用基材を効率良く作成することができる。

#### 【 0 0 3 7 】

また本プリフォーム用基材 1 は圧子 1 2 で片面から押圧されているために、押圧側表面に窪み 4 を有しているのも特徴の一つである。

40

#### 【実施例 1】

#### 【 0 0 3 8 】

以下にプリフォームを作成する場合の実施例を図面を参照して説明する。まず、強化繊維が配列したシート 2 としては、引張り強さが  $5800 \text{ Mpa}$ 、引張弾性率が  $290 \text{ GPa}$  のフィラメント数が  $24000$  本の炭素繊維を用いて、炭素繊維重量  $200 \text{ g/m}^2$  のシートを製織した。

(A) 接合機能を有する材料を配置する工程では、ポリエーテルスルホンとエポキシ樹脂の配合割合が  $70 : 30$  の混合樹脂を粉砕した樹脂材料 ( $T_g : 70$  ) の粉体を、シート 2 (長  $1000 \text{ mm}$  \* 幅  $300 \text{ mm}$ 、厚み  $1 \text{ mm}$ ) の表面に散布した後、過熱して付着

50

させた。配置量は適宜調整し、樹脂の配置量が異なるシートを各種水準（水準 1：5 g / m<sup>2</sup>、水準 2：10 g / m<sup>2</sup>、水準 3：15 g / m<sup>2</sup>）準備した。

（B）配置工程において、ツール板 10 上に合計 6 枚（水準 1 の 2 枚から水準 2 の 2 枚、水準 3 の 2 枚の順）厚み方向に配置した。配置構成は 90°ずれて、（0° / 90° / 0° / 90° / 0° / 90°）の構成となるように配置し、積層体 11 を作成した。

（C）接合工程において、まず、積層体 11、圧子 12、圧着用治具 13、プレス機 14 を 80 の雰囲気下で 40 分間静置した。次に該積層体 11 に圧着用治具 13 を載せ、プレス機 14 により各圧子 12 の押圧が 0.1 MPa、接合ピッチが 15 mm となるようにして熱プレスを 5 分間行い、プリフォーム用基材 1 を作成した。

#### 【0039】

該プリフォーム用基材からシート間の剥離強さ測定をするために、ツール板側から 2 - 3 シート間と 4 - 5 シート間を剥がし、シート間の剥離強さ測定用の試験体を作成し、評価・比較したところ、<sub>内</sub>（ツール側）= 150 N / m<sup>2</sup>、<sub>中</sub>（中心部）= 170 N / m<sup>2</sup>、<sub>外</sub>（押圧側）= 195 N / m<sup>2</sup> であった。また該プリフォーム用基材から 150 mm 角の大きさを切り出し、剥離強さの強い側（ツール側）を内側にして、賦形型 9（両端は R=5 mm の曲面）に配置・賦形して C 型のプリフォームを作成したところ、皺のないプリフォームが得られた。また上記比率の関係式から増加比率 Ra と Rl を求めたところ、いずれも上記条件 {（<sub>内</sub> と <sub>中</sub>：Ra = 13.3%、Rl = 4.2%、Ra > Rl）、（<sub>内</sub> と <sub>外</sub>：Ra = 30.0%、Rl = 8.4%、Ra > Rl）} を満たしていた。

#### 【実施例 2】

#### 【0040】

実施例 1 において（A）接合機能を有する材料を配置する工程において、樹脂材料の配置量が 10 g / m<sup>2</sup> のシートを 6 枚準備した。

（B）配置工程でツール板 10 上に合計 6 枚のシートを厚み方向に配置した。配置構成は 90°ずれて、（0° / 90° / 0° / 90° / 0° / 90°）の構成となるように配置し、積層体 11 を作成した。

（C）接合工程において、積層体 11 のツール面側を 90、押圧側を 70 の熱媒体を用いて、積層体の厚み方向に温度勾配ができるように加熱し、圧着用治具 13 で熱プレスを 5 分間行い、プリフォーム用基材を作成した。該プリフォーム用基材からツール板側から 2 - 3 シート間と 4 - 5 シート間を剥がし、シート間の剥離強さ測定用の試験体を作成し、評価・比較したところ、<sub>内</sub>（ツール側）= 100 N / m<sup>2</sup>、<sub>中</sub>（中心部）= 110 N / m<sup>2</sup>、<sub>外</sub>（押圧側）= 120 N / m<sup>2</sup> であった。また該プリフォーム用基材から 150 mm 角の大きさを切り出し、剥離強さの強い側（ツール側）を内側にして、賦形型 9 に配置・賦形して C 型のプリフォームを作成したところ、皺のないプリフォームが得られた。また上記比率の関係式から増加比率 Ra と Rl を求めたところ、いずれも上記条件 {（<sub>内</sub> と <sub>中</sub>：Ra = 10.0%、Rl = 4.2%、Ra > Rl）、（<sub>内</sub> と <sub>外</sub>：Ra = 20.0%、Rl = 8.4%、Ra > Rl）} を満たしていた。

#### 【図面の簡単な説明】

#### 【0041】

【図 1】本発明の一実施態様に係るプリフォーム用基材の斜視図である。

【図 2】図 1 のプリフォーム用基材の A - A 線矢視の断面図である。

【図 3】一方向織物基材の一実施態様に係わる斜視図である。

【図 4】プリフォーム用基材を賦形型に沿わせた状態を示す概略図である。

【図 5】本発明のプリフォーム用基材の製造時の断面図である。

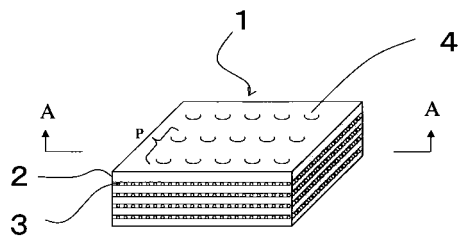
#### 【符号の説明】

#### 【0042】

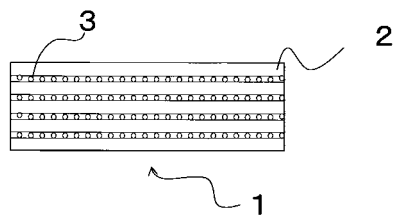
- 1 プリフォーム用基材
- 2 強化繊維が配列したシート
- 3 接合機能を有する材料
- 4 窪み

- 5 一方向織物基材
- 6 強化繊維
- 7 横糸
- 8 縦糸方向補助糸
- 9 賦形型
- 10 ツール板
- 11 積層体
- 12 圧子
- 13 圧着用治具
- 14 プレス機

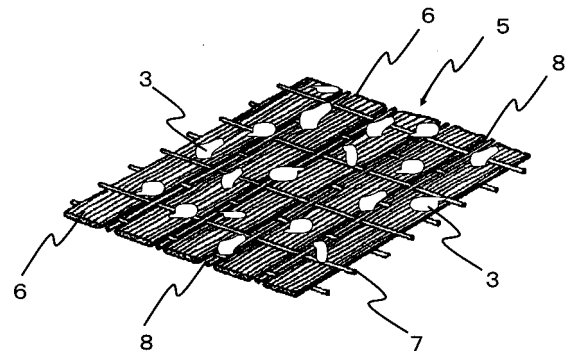
【図1】



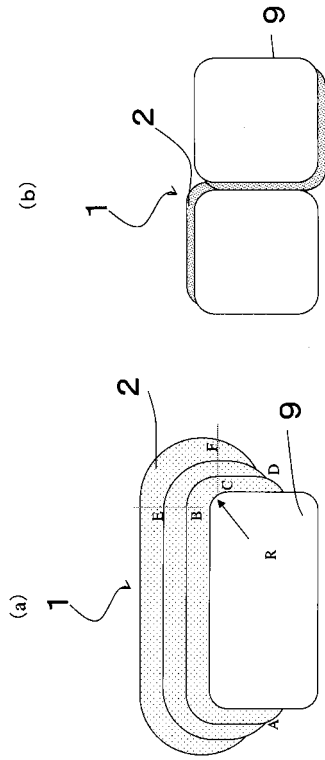
【図2】



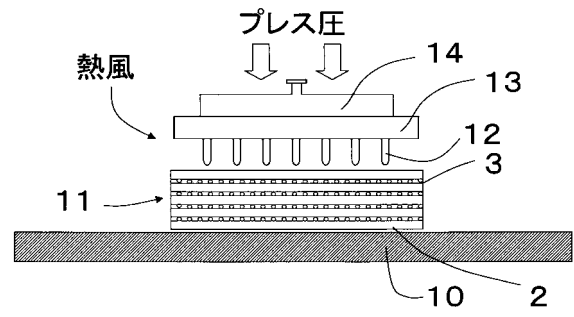
【図3】



【図 4】



【図 5】



---

フロントページの続き

(56)参考文献 特開2004-114586(JP,A)  
特開2003-082117(JP,A)  
特開平09-141654(JP,A)  
特開2003-136550(JP,A)  
特開平05-185539(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)  
B29C43/00~43/58