

(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  
2012 年 12 月 20 日(20.12.2012)



(10) 国際公開番号  
**WO 2012/172982 A1**

- (51) 国際特許分類:  
B29C 43/18 (2006.01) B29K 101/12 (2006.01)  
B29C 43/34 (2006.01) B29K 105/12 (2006.01)  
B29C 45/56 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/064023
- (22) 国際出願日: 2012 年 5 月 31 日(31.05.2012)
- (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 2011-134451 2011 年 6 月 16 日(16.06.2011) JP  
特願 2011-148952 2011 年 7 月 5 日(05.07.2011) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 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; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 舘山勝 (TATEYAMA Masaru) [JP/JP]; 〒4558502 愛知県名古屋市中区大津 9 番地の 1 東レ株式会社名古屋事業場内 Aichi (JP). 橋本貴史 (HASHIMOTO Takafumi) [JP/JP]; 〒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).

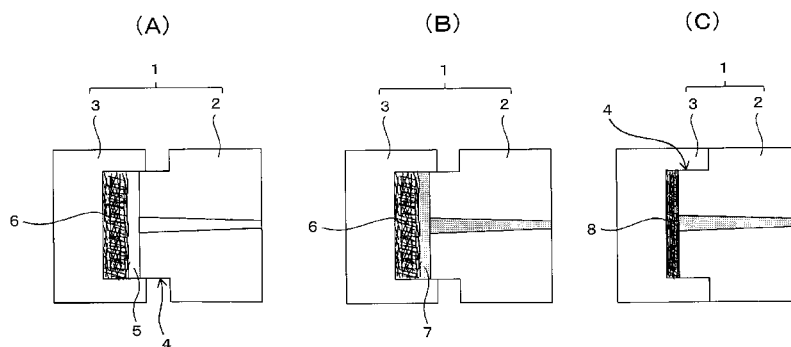
- (74) 代理人: 伴俊光, 外 (BAN Toshimitsu et al.); 〒1600023 東京都新宿区西新宿 8 丁目 1 番 9 号 シンコービル オネスト国際特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, 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, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーロパ (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

[続葉有]

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

(54) 発明の名称: 繊維強化プラスチックの製造方法

[図1]



(57) Abstract: A method for manufacturing a fiber-reinforced plastic that places a compressible reinforcing fiber base material made of noncontiguous reinforcing fibers in the cavity of a mold, injects melted thermoplastic resin in the cavity, and impregnates the reinforcing fiber base material, wherein the mold is one that can be configured to change the cavity volume and the reinforcing fiber base material is compressed in the cavity after having been or while being impregnated with the thermoplastic resin by reducing the cavity volume of the mold after injecting the melted thermoplastic resin. This method makes it possible to mold fiber-reinforced plastics, even those of complex shapes, having high mechanical properties easily and inexpensively.

(57) 要約: 不連続な強化繊維からなる、圧縮可能な強化繊維基材を金型のキャビティ内に配置し、該キャビティ内に溶融した熱可塑性樹脂を注入して強化繊維基材に含浸させる繊維強化プラスチックの製造方法において、金型をそのキャビティ容積を可変可能な金型に構成し、溶融した熱可塑性樹脂を注入した後、金型のキャビティ容積を縮小することにより、熱可塑性樹脂が含浸した、あるいは含浸しつつある強化繊維基材をキャビティ内で圧縮することを特徴とする繊維強化プラスチックの製造方法。この方法により、複雑な形状であっても高い機械特性を有する繊維強化プラスチックを容易にかつ安価に成形できる。

WO 2012/172982 A1

**WO 2012/172982 A1**



---

(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG). 添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

## 明 細 書

発明の名称： 繊維強化プラスチックの製造方法

### 技術分野

[0001] 本発明は、繊維強化プラスチックの製造方法に関し、とくに、複雑な形状であっても高い機械特性を有する繊維強化プラスチックを容易にかつ安価に成形可能な繊維強化プラスチックの製造方法に関する。

### 背景技術

[0002] 強化繊維とマトリックス樹脂からなる繊維強化プラスチック（F R P [Fiber Reinforced Plastic] と言うこともある。）、中でも、炭素繊維とマトリックス樹脂からなる炭素繊維強化プラスチック（C F R P [Carbon Fiber Reinforced Plastic] と言うこともある。）は、機械特性、軽量性、耐腐食性等に優れることから、種々の用途に幅広く展開されている。F R Pの製造方法としては、予め樹脂を含浸させた、いわゆるプリプレグを用いる方法もあるが、成形できるF R Pの形状の範囲をより広くし、成形に要する時間をより短くすることが要求される場合には、例えば、自動車用部品や電子機器部品等のように大量生産することが求められる場合には、実質的に樹脂を含まない強化繊維基材（乾式の強化繊維基材）を所定の形状に賦形し、それにマトリックス樹脂を含浸させて所望のF R Pを成形する方法が多く用いられる。

[0003] このようなF R Pの成形において、マトリックス樹脂として熱硬化性樹脂を使用する場合には、硬化前の熱硬化性樹脂の粘度が低いため、それを金型内で強化繊維基材に含浸してから硬化させることができる。この方法は高価なオートクレーブが不要であり、成形時間も比較的短時間ですむという利点がある。

[0004] 一方、より複雑な形状のF R Pを成形するためには、とくに量産品にも対応させるためには、マトリックス樹脂として、成形性のより良好な熱可塑性樹脂を使用することが望ましいと考えられる。ところが、熱可塑性樹脂は、

一般に、熱硬化性樹脂と比較して溶融時の粘度が高いため、溶融樹脂を短時間のうちに良好に強化繊維基材に含浸させることが困難なことが多く、金型内で樹脂を強化繊維基材に含浸する成形方法によりFRPを高い生産性をもって製造することは困難であった。

[0005] マトリックス樹脂として熱可塑性樹脂を使用し、それを比較的良好に強化繊維基材に含浸させるためには、強化繊維基材を不連続な強化繊維を用いて不織布状に形成し、該基材の空隙率を高くして高粘度の樹脂を含浸しやすくすることが考えられる。しかし、このような空隙率の高い繊維強化基材であっても熱可塑性樹脂を含浸することは容易ではなく、もっぱらマトリックス樹脂を一旦、不織布等のシート状とし、強化繊維基材と積層した状態で加熱しながら加圧する方法が知られているのみであった（例えば、特許文献1、2）。かかる空隙率の高い強化繊維基材を射出成形用金型の中に配置して熱可塑性樹脂を射出してもきわめて繊維含有率が低いか、空隙（ボイド）の多いCFRPしか得ることができなかった。

## 先行技術文献

### 特許文献

[0006] 特許文献1：特開2010-037358号公報

特許文献2：特開2010-235779号公報

### 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

[0007] そこで本発明の課題は、複雑な形状であっても高い機械特性を有する繊維強化プラスチックを容易にかつ安価に成形できる繊維強化プラスチックの製造方法を提供することにある。

### 課題を解決するための手段

[0008] 上記課題を解決するために、本発明に係る繊維強化プラスチックの製造方法は、不連続な強化繊維からなる、圧縮可能な強化繊維基材を金型のキャビティ内に配置し、該キャビティ内に溶融した熱可塑性樹脂を注入して前記強

化繊維基材に含浸させる繊維強化プラスチックの製造方法において、前記金型をそのキャビティ容積を可変可能な金型に構成し、前記溶融した熱可塑性樹脂を注入した後、金型のキャビティ容積を縮小することにより、熱可塑性樹脂が含浸した、あるいは含浸しつつある前記強化繊維基材をキャビティ内で圧縮することを特徴とする方法からなる。

[0009] このような本発明に係る繊維強化プラスチックの製造方法においては、強化繊維基材が、不連続な強化繊維から形成されているので、密な織物基材等に比べて空隙率が高く、粘度の高い溶融熱可塑性樹脂が比較的含浸されやすい基材に形成されている。したがって、この強化繊維基材のみについてみれば、良好な樹脂含浸性を有し、この面からは優れた成形性を発現する。しかし、単にこの強化繊維基材に高粘度の熱可塑性樹脂を含浸させるだけでは、前述したように、強化繊維の繊維体積含有率が低くなり、FRPに成形された場合に所望の高い機械特性が得られないか、FRP内のボイドが多くなるため、良好な品位のFRPが得られにくい。そこで本発明では、このような良好な樹脂含浸性を有する強化繊維基材を金型のキャビティ内に配置し、例えば繊維強化基材を金型内に配置する前、または配置した後に金型を加熱した後、溶融熱可塑性樹脂を金型内に注入するに際し、金型をそのキャビティ容積を可変可能な金型に構成しておき、溶融熱可塑性樹脂を金型のキャビティ内に注入した後に、金型のキャビティ容積を機械的に縮小する。そして、この金型のキャビティ容積の縮小により、熱可塑性樹脂が含浸した、あるいは含浸しつつある上記強化繊維基材をキャビティ内で圧縮するようにしている。このキャビティ内での強化繊維基材の圧縮により、その見かけ空隙率が小さくされ、成形されるFRPの繊維体積含有率が高められて、FRPとしての高い機械特性が実現される。また同時に、強化繊維基材の見かけ空隙率が小さくされることで、基材内に閉じ込められようとしていたボイドが押し出されるか、極めて小さく抑えられ、FRPに成形した後の良好な品位が確保される。具体的には、例えば、キャビティ内に強化繊維基材を配置した段階で、キャビティ内に空間を形成しておき、この空間に溶融熱可塑性樹脂を

注入すると、該樹脂が容易に空間内に充満し、実質的に充満後にプレスすることにより、強化繊維基材の空間に面する全面から空隙率の高い基材に短い含浸距離をもって迅速に樹脂を含浸させることができる。それとともに、強化繊維基材もプレスによって圧縮されるから、繊維体積含有率が高められて、FRPとして高い機械特性が得られることとなる。さらに、不連続な強化繊維から形成された、例えば不織布状に形成された強化繊維基材は、優れた賦形性を有するので、複雑な成形形状にも容易に対応でき、このような強化繊維基材を用いることで良好な成形性が維持される。この良好な成形性は、強化繊維基材を金型内に配置した後の金型内での上記圧縮によっては、何ら阻害されない。すなわち、良好な成形性が維持されつつ、FRPとしての高い機械特性、良好な品位が容易に確保されることになる。

[0010] 上記のような本発明に係る繊維強化プラスチックの製造方法においては、金型のキャビティ容積の縮小は、次のように行うことができる。例えば、予め金型を開いた状態で上記溶融した熱可塑性樹脂を金型のキャビティ内に注入した後、金型を型締めすることにより、金型のキャビティ容積を縮小することができる。また、上記強化繊維基材を金型のキャビティ内に配置し型締めした後、上記溶融した熱可塑性樹脂をキャビティ内に注入する樹脂圧で金型を開いた後、キャビティ容積を縮小することもできる。いずれの方法にあっても、見かけ空隙率が高く良好な樹脂含浸性を有する強化繊維基材の状態ですべての基材に容易にかつ十分に熱可塑性樹脂を含浸させ、樹脂が含浸した、あるいは含浸しつつある強化繊維基材をキャビティ内で圧縮することができ、それによって、成形されるFRPの繊維体積含有率が高められて、FRPとしての高い機械特性が実現される。

[0011] また、上記金型のキャビティ容積の縮小においては、キャビティ容積を縮小する際の圧縮力が10MPa以上であることが好ましい。すなわち、キャビティ内で樹脂が含浸した、あるいは含浸しつつある強化繊維基材を圧縮することになるので、圧縮により十分に低い見かけ空隙率（十分に高い繊維体積含有率）を達成するためには、圧縮力が10MPa以上であることが好ま

しい。

[0012] また、上記キャビティ容積が可変可能な金型としては、例えば、対向配置される型同士がインロー構造または可動コアを介して型締め、型開き可能な金型を用いることができる。すなわち、インロー構造を有する金型においては、型開き状態にある型同士を型締め方向に作動させることによりキャビティ容積を縮小することができる。可動コアを備えた金型においては、可動コアをキャビティ内で特定方向に作動させることによりキャビティ容積を縮小することができる。ただし、キャビティ容積が可変可能な金型であれば、これらの構造以外の金型も使用可能である。

[0013] また、上記溶融した熱可塑性樹脂のキャビティ内への注入に関しては、キャビティ内を減圧した状態で溶融した熱可塑性樹脂を注入することもでき、樹脂注入後に、キャビティ容積を縮小させればよい。減圧により、強化繊維基材からガスを円滑に排出できるので、ガスによるボイドの発生を一層良好に抑えることができる。また、減圧したキャビティ内へ溶融した熱可塑性樹脂を注入することにより、より容易に万遍なく樹脂をキャビティ内に行き渡らせることが可能になる。

[0014] また、本発明に係る繊維強化プラスチックの製造方法においては、強化繊維基材は、その初期特性として、極力空隙率が高く、高粘度の溶融熱可塑性樹脂が含浸されやすいことが好ましい。一方で、上記金型内での所定の圧縮後には、高い繊維体積含有率を達成するために、極力空隙率が低く抑えられることが好ましい。このような観点から、本発明では、上記強化繊維基材自体の特性として、2 MPaで圧縮したときの（つまり、基材自体の特性を定量的に規定するために小さな圧力で圧縮したときの）基材の見かけ空隙率が70%以上であることが好ましい。また、上記強化繊維基材を10 MPaで圧縮したときの基材の見かけ空隙率が40%以下であることが好ましい。

[0015] また、本発明では、上記強化繊維基材の強化繊維の種類としては特に限定されず、炭素繊維やガラス繊維、アラミド繊維など、さらにはこれらを組み合わせたハイブリッド構成の強化繊維の使用が可能であるが、より高い機械

特性を実現するためには、上記強化繊維基材の強化繊維が炭素繊維からなることが好ましい。

[0016] また、本発明では、上記強化繊維基材の強化繊維が炭素繊維からなる場合、高い機械特性を実現するために、強化繊維基材に含まれる炭素繊維の重量平均繊維長が1 mm以上であることが好ましい。重量平均繊維長が短すぎると、強化繊維としての機能が小さくなり、機械特性向上効果が小さくなる。また、前述したような良好な成形性を維持するためには、上記強化繊維基材に含まれる炭素繊維の重量平均繊維長が100 mm以下であることが好ましい。重量平均繊維長が長すぎると、連続繊維に近くなるので、基材の賦形性、FRPの成形性が低下するおそれがある。

[0017] また、本発明においては、上記強化繊維基材中に熱可塑性樹脂を3～50重量%含むことが可能である。この熱可塑性樹脂は、強化繊維基材の形態を保持するための接着機能を主な役目としており、FRP成形のためのマトリックス樹脂とは役目を異にする。ただし、その樹脂種は、マトリックス樹脂と同一種であってもよい。

[0018] また、本発明では、基材の良好な賦形性を確保し、基材への良好な樹脂含浸性を確保するためには、上記不連続な強化繊維から形成される強化繊維基材は不織布の形態に形成されていることが望ましい。このような望ましい形態は、上記強化繊維基材が抄紙により作製されたものであることにより、あるいは、上記強化繊維基材がカード装置により作製されたものであることにより、実現可能である。

[0019] また、本発明において、とくに、より優れた基材の賦形性やより複雑な形状のFRPの成形が望まれる場合には、上記強化繊維基材が、不連続な強化繊維がランダムに配向されたものからなる形態が好ましい。一方、成形されるFRPに特定の方向への高い機械特性の発現が望まれる場合には、上記強化繊維基材が、不連続な強化繊維の少なくとも一部がその特定の方向に配向されたものからなる形態が好ましい。このように不連続な強化繊維の少なくとも一部を特定の方向に配向させることは、上述のカード装置によっても実

現可能である。

[0020] また、上記のように不連続な強化繊維の少なくとも一部を特定の方向に配向させる場合、成形後の繊維強化プラスチックの上記特定の方向の弾性率と該特定の方向と直交する方向の弾性率の比を、例えば、2 : 1 ~ 10 : 1 の範囲内にすることが可能である。

[0021] また、本発明においては、上記強化繊維基材に含浸されるマトリックス樹脂としての上記熱可塑性樹脂の種類は特に限定されないが、その成形温度は、例えば100℃以上であることが好ましい。例えば、本発明において金型を100℃以上の温度に加熱する場合、とくに熱可塑性樹脂の成形温度が100℃以上であることが好ましい。

[0022] 本発明において使用可能な熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリオレフィン、ポリアミド、ポリエステル、ポリフェニレンスルフィド、ポリカーボネート、ポリエーテルケトン、ポリエーテルイミドからなる群から選ばれたものを例示できる。

[0023] また、本発明においては、上記金型として、熱可塑性樹脂が充填されるゲートと反対側のキャビティ部位にガス抜きを設けた射出圧縮成形用金型を用いることができる。このような金型を用いれば、金型のキャビティ内に溶融した熱可塑性樹脂が注入される際、ガス抜きを通して適切にガスが排出されるとともに、金型のキャビティ容積を縮小する際にも適切にガスが排出され、より円滑に圧縮成形を行うことが可能になる。

[0024] また、本発明においては、上記圧縮可能な強化繊維基材が樹脂フィルムパック中に減圧された状態で保持された基材を用いることもでき、このような形態の基材を金型のキャビティ内に配置することができる。このような形態の基材を用いれば、強化繊維基材の望ましい圧縮可能な状態をハンドリング中にも保持しておくことが可能になり、圧縮が必要とされるときにのみ、その圧縮に供することが可能になる。

[0025] さらに、本発明においては、上記圧縮可能な強化繊維基材中に強化繊維が繊維束の状態で存在する場合もあるが、そのような場合には、強化繊維基材

中における繊維束の割合が多くなりすぎると、圧縮成形の際の強化繊維含有樹脂の流動性が損なわれるおそれがある。したがって、圧縮可能な強化繊維基材中において、例えば、強化繊維が50～1000本の繊維束を、その圧縮可能な強化繊維基材全体に対して80重量%以下の量に抑えておくことが好ましい。

### 発明の効果

[0026] このように、本発明によれば、複雑な形状であっても高い機械特性を有する繊維強化プラスチックを容易にかつ安価に成形することができる。

### 図面の簡単な説明

[0027] [図1]本発明の一実施態様に係る繊維強化プラスチックの製造方法における各ステップを示す金型の概略断面図である。

[図2]本発明の別の実施態様に係る繊維強化プラスチックの製造方法における各ステップを示す金型の概略断面図である。

[図3]本発明のさらに別の実施態様に係る繊維強化プラスチックの製造方法における各ステップを示す金型の概略断面図である。

[図4]本発明において強化繊維基材をカード装置によって作製する場合の概略構成図である。

### 発明を実施するための形態

[0028] 以下に、本発明のより具体的な実施の形態について説明する。

例えば不連続な強化繊維として、重量平均繊維長50mmにカットした炭素繊維を用い、該炭素繊維をカード装置に供給して圧縮可能なシート状の炭素繊維基材を作製する。この基材シートを、例えば、射出プレス機に設置した金型のキャビティ内に配置する。基材配置後に、金型を100℃以上の温度に加熱し、熱可塑性樹脂として例えば溶融ポリアミド樹脂を金型のキャビティ内に射出する。射出とともに、または射出後に、金型のキャビティ容積を縮小することにより、金型内部を圧縮するが、この金型のキャビティ容積の縮小による圧縮動作の例については、図1～図3を参照して後述する。

[0029] 上記のカード装置による炭素繊維基材の作製は、例えば次のように行う。

図４は、本発明において強化繊維基材をカード装置によって作製する場合の概略構成を例示している。図４に示すカード装置４１は、シリンダーロール４２と、その外周面に近接して上流側に設けられたティクインロール４３と、ティクインロール４３とは反対側の下流側においてシリンダーロール４２の外周面に近接して設けられたドッファーロール４４と、ティクインロール４３とドッファーロール４４との間においてシリンダーロール４２の外周面に近接して設けられた複数のワーカーロール４５と、ワーカーロール４５に近接して設けられたストリッパーロール４６と、ティクインロール４３と近接して設けられたフィードロール４７及びベルトコンベアー４８とから主として構成されている。

[0030] ベルトコンベアー４８上に、例えば重量平均繊維長５０mmにカットした不連続な炭素繊維４９の集合体が供給され、不連続な炭素繊維４９はフィードロール４７の外周面、次いでティクインロール４３の外周面を介してシリンダーロール４２の外周面上に導入される。この段階までは、不連続な炭素繊維４９は綿状の形態になっている。シリンダーロール４２の外周面上に導入された綿状の炭素繊維の一部は、各ワーカーロール４５の外周面上に巻き付くが、この炭素繊維は各ストリッパーロール４６によって剥ぎ取られ再びシリンダーロール４２の外周面上に戻される。フィードロール４７、ティクインロール４３、シリンダーロール４２、ワーカーロール４５、ストリッパーロール４６のそれぞれのロールの外周面上には多数の針、突起が立った状態で存在しており、上記工程で炭素繊維が針の作用により単繊維状に開繊されると同時に大半の炭素繊維の配向方向が特定の方向、つまり、シリンダーロール４２の回転方向に揃えられる。かかる過程を経て開繊され繊維の配向が進められた炭素繊維は、炭素繊維集合体の一形態であるシート状のウェブ５０としてドッファーロール４４の外周面上に移動する。さらに、ウェブ５０を、その幅を所定幅まで狭めながら引き取ることにより、不連続な炭素繊維からなるシート状の基材が形成される。

[0031] 上記のようなカーディングにおいて、不連続な炭素繊維４９の集合体は、

炭素繊維のみから構成されていてもよいが、不連続な有機繊維、とくに熱可塑性樹脂からなる繊維を混合してカーディングを行うこともできる。特に、カーディングする際に熱可塑性樹脂繊維を添加することは、カーディングでの炭素繊維の破断を防ぐことができるので好ましい。炭素繊維は剛直で脆いため、絡まりにくく折れやすい。そのため、炭素繊維だけからなる炭素繊維集合体では、カーディング中に、炭素繊維が切れやすかったり、炭素繊維が脱落しやすいという問題がある。そこで、柔軟で折れにくく、絡みやすい熱可塑性樹脂繊維を含むことにより、炭素繊維が切れにくく、炭素繊維が脱落しにくい炭素繊維集合体を形成することができる。また、このような熱可塑性樹脂繊維を混合してカーディングを行い、カーディング後に、熱可塑性樹脂繊維の少なくとも一部を溶融させた後、プレスを施すようにすることも好ましい。すなわち、適度に少ない量の熱可塑性樹脂繊維を混合しておき、炭素繊維に所定のカーディング処理、例えば、一部の炭素繊維が特定の方向に配向されるようにカーディング処理を施した状態で熱可塑性樹脂繊維の少なくとも一部を溶融させることにより、熱可塑性樹脂繊維に所定のシート状基材の形態を保持するためのバインダーの役目を担わせ、その状態でプレスを施すことにより、保持された形態を熱可塑性樹脂繊維を介して適度に固定することも好ましい。

[0032] 上記のように炭素繊維集合体中に熱可塑性樹脂繊維を含む場合には、炭素繊維集合体中の炭素繊維の含有率は、好ましくは50～95質量%、より好ましくは70～95質量%である。炭素繊維の割合が低いと炭素繊維強化プラスチックとしたときに高い機械特性を得ることが困難となり、逆に、熱可塑性樹脂繊維の割合が低すぎると、上記の炭素繊維集合体に熱可塑性樹脂繊維を混合させた際の熱可塑性樹脂繊維の役割が期待できないか、小さくなる。

[0033] また、上述の熱可塑性樹脂繊維による、絡み合いの効果をより高めるためには、熱可塑性樹脂繊維に捲縮を付与しておくことが好ましい。捲縮の程度は、特に限定されないが、一般的には捲縮数5～25山/25mm程度、捲

縮率3～30%程度の熱可塑性樹脂繊維を用いることができる。

[0034] かかる熱可塑性樹脂繊維の材料としては特に制限は無く、炭素繊維強化プラスチックの機械特性を大きく低下させない範囲で適宜選択することができる。例示するなら、ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィン系樹脂、ナイロン6、ナイロン6,6等のポリアミド系樹脂、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート等のポリエステル系樹脂、ポリエーテルケトン、ポリエーテルスルホン、芳香族ポリアミド等の樹脂を紡糸して得られた繊維を用いることができる。かかる熱可塑性樹脂繊維の材料は、炭素繊維強化プラスチックのマトリックス樹脂との組み合わせにより適宜選択することが好ましい。特に、マトリックス樹脂と同じ樹脂、あるいはマトリックス樹脂と相溶性のある樹脂、マトリックス樹脂と接着性の高い樹脂を用いてなる熱可塑性樹脂繊維は、炭素繊維強化プラスチックの機械特性を低下させないので好ましい

[0035] また、上記のように熱可塑性樹脂繊維を炭素繊維に混合してカーディングを行い、カーディング後に、熱可塑性樹脂繊維の少なくとも一部を溶融させた後、プレスを施す場合のプレスの方法としては、とくに限定されず、例えば、平板で挟んで加圧する通常のプレス機や一對のロールで挟んで加圧するカレンダーロール等を用いることができる。

[0036] なお、上記はカーディング処理を施して、炭素繊維基材を作製する手法を例示したが、カーディング処理を施さずに、単に抄紙により炭素繊維基材を作製することも可能である。例えば、図4におけるベルトコンベアー48上に、重量平均繊維長50mmにカットした不連続な炭素繊維49の集合体を供給し、それを例えば上述のようなカレンダーロール等を用いて加圧することにより、シート状の炭素繊維基材を作製することも可能である。この場合、上記同様、炭素繊維集合体中に熱可塑性樹脂繊維を混合し、それに、シート状の基材形態を保持させるためのバインダーの機能を持たせることが好ましい。

[0037] また、上記のようなカレンダーロール等を用いた処理や類似の処理により

、基材自体の特性、とくに、前述した2 MPaで圧縮したときの基材の見かけ空隙率や10 MPaで圧縮したときの基材の見かけ空隙率を、望ましい特性に制御することが可能である。

[0038] このように望ましい圧縮特性を有するように作成された基材を用いて、その圧縮可能な基材を金型内に配置し、基材配置前あるいは基材配置後に、金型を例えば100℃以上の温度に加熱し、溶融熱可塑性樹脂を金型内に射出等により注入し、注入とともに、または注入後に、金型内部を圧縮することにより、複雑な成形形状であっても、高い機械特性を有する繊維強化プラスチックを容易にかつ安価に製造することができる。

[0039] 以下に、本発明における金型のキャビティ容積の縮小による圧縮動作について、図1～図3を参照して例示する。

[0040] 図1は、本発明の一実施態様に係る繊維強化プラスチックの製造方法における各ステップを示している。図1(A)に示すように、互いに対向配置される型2、3同士がインロー構造4を有する金型1が用いられ、型開き状態にある金型1のキャビティ5内に、前述の如く作成された見かけ空隙率が比較的低い強化繊維基材6が配置される。この状態にて、図1(B)に示すように、例えば一方の型2を通して、キャビティ5内に溶融した熱可塑性樹脂7が射出により注入、供給される。そして、図1(C)に示すように、型2、3同士が、インロー構造4を介して精度よく型締めされ、上記キャビティ5の容積が縮小される。このキャビティ容積の縮小により、金型1のキャビティ5の内部が圧縮され、熱可塑性樹脂7が含浸された、あるいは含浸されつつあった強化繊維基材6も圧縮される。この圧縮を介して、ボイドが抑制された、優れた樹脂含浸状態が得られるとともに、高い繊維体積含有率が達成され、高い機械特性を有する繊維強化プラスチック8が得られる。

[0041] 図2は、本発明の別の実施態様に係る繊維強化プラスチックの製造方法における各ステップを示している。図2(A)に示すように、上述の実施態様と同様の、互いに対向配置される型2、3同士がインロー構造4を有する金型1が用いられ、そのキャビティ5内に強化繊維基材11が配置されて先に

型締めされる。このときには、基材 11 は大きくは圧縮されない。この状態にて、図 2 (B) に示すように、例えば一方の型 2 を通して、キャビティ 5 内に溶融した熱可塑性樹脂 7 が射出により注入、供給され、注入される際の樹脂圧で、型 2、3 同士が、インロー構造 4 を介して精度よく少し型開きされる。キャビティ 5 内に充填された溶融熱可塑性樹脂 7 は、比較的空隙率の大きな強化繊維基材 11 に含浸し始める。そして、図 2 (C) に示すように、型 2、3 同士が、インロー構造 4 を介して精度よく型締めされ、上記キャビティ 5 の容積が縮小される。この段階でのキャビティ容積の縮小により、金型 1 のキャビティ 5 の内部が圧縮され、熱可塑性樹脂 7 が含浸された、あるいは含浸されつつあった強化繊維基材 11 も圧縮される。この圧縮を介して、ボイドが抑制された、優れた樹脂含浸状態が得られるとともに、高い繊維体積含有率が達成され、高い機械特性を有する繊維強化プラスチック 12 が得られる。

[0042] 図 3 は、本発明のさらに別の実施態様に係る繊維強化プラスチックの製造方法における各ステップを示している。図 3 (A) に示すように、互いに対向配置される型 22、23 間にキャビティ 24 を形成する金型 21 が用いられる。このキャビティ 24 内には、キャビティ 24 内を移動可能な可動コア 25 が設けられており、可動コア 25 は、一方の型 23 に設けられた駆動手段 26 (例えば、ボールスクリューからなる駆動手段) により、キャビティ 24 内を両方向に強制移動できるようになっている。金型 21 のキャビティ 24 内には、前述の如く作成された見かけ空隙率が比較的低い強化繊維基材 27 が配置される。強化繊維基材 27 を配置した後、他方の型 22 に設けられた弁 28 が開かれ、吸引路 29 を通しての吸引 (矢印) により、キャビティ 24 内が減圧される。このとき、キャビティ 24 は、型 22、23 間に配置されたシール材 30 により外部からシールされている。この状態にて、図 3 (B) に示すように、例えば一方の型 22 を通して、キャビティ 24 内に溶融した熱可塑性樹脂 31 が射出により注入、供給される。このとき、弁 28 は閉じられ、吸引路 29 の樹脂詰まりは回避されている。キャビティ 24

内に充填された溶融熱可塑性樹脂 3 1 は、比較的空隙率の大きな強化繊維基材 2 7 に含浸し始める。そして、図 3 (C) に示すように、可動コア 2 5 が駆動手段 2 6 によりキャビティ 2 4 内で強制的に移動され、キャビティ 2 4 の容積が縮小される。このキャビティ容積の縮小により、熱可塑性樹脂 3 1 が含浸された、あるいは含浸されつつあった強化繊維基材 2 7 も圧縮される。この圧縮を介して、ボイドが抑制された、優れた樹脂含浸状態が得られるとともに、高い繊維体積含有率が達成され、高い機械特性を有する繊維強化プラスチック 3 2 が得られる。

### 産業上の利用可能性

[0043] 本発明に係る方法は、基本的に熱可塑性樹脂をマトリックス樹脂とするあらゆる繊維強化プラスチックの製造に適用可能である。

### 符号の説明

- [0044] 1、2 1 金型  
2、3、2 2、2 3 型  
4 インロー構造  
5、2 4 キャビティ  
6、1 1、2 7 強化繊維基材  
7、3 1 熱可塑性樹脂  
8、1 2、3 2 繊維強化プラスチック  
2 5 可動コア  
2 6 駆動手段  
2 8 弁  
2 9 吸引路  
3 0 シール材  
4 1 カード装置  
4 2 シリンダーロール  
4 3 テイクインロール  
4 4 ドッファーロール

- 4 5 ワーカーロール
- 4 6 ストリッパーロール
- 4 7 フィードロール
- 4 8 ベルトコンベアー
- 4 9 不連続な炭素繊維
- 5 0 シート状のウェブ

## 請求の範囲

- [請求項1] 不連続な強化繊維からなる、圧縮可能な強化繊維基材を金型のキャビティ内に配置し、該キャビティ内に溶融した熱可塑性樹脂を注入して前記強化繊維基材に含浸させる繊維強化プラスチックの製造方法において、前記金型をそのキャビティ容積を可変可能な金型に構成し、前記溶融した熱可塑性樹脂を注入した後、金型のキャビティ容積を縮小することにより、熱可塑性樹脂が含浸した、あるいは含浸しつつある前記強化繊維基材をキャビティ内で圧縮することを特徴とする、繊維強化プラスチックの製造方法。
- [請求項2] 予め金型を開いた状態で前記溶融した熱可塑性樹脂を金型のキャビティ内に注入した後、金型を型締めすることにより、金型のキャビティ容積を縮小する、請求項1に記載の繊維強化プラスチックの製造方法。
- [請求項3] 前記強化繊維基材を金型のキャビティ内に配置し型締めした後、前記溶融した熱可塑性樹脂をキャビティ内に注入する樹脂圧で金型を開いた後、キャビティ容積を縮小する、請求項1に記載の繊維強化プラスチックの製造方法。
- [請求項4] 前記キャビティ容積を縮小する際の圧縮力が10MPa以上である、請求項1～3のいずれかに記載の繊維強化プラスチックの製造方法。
- [請求項5] 前記キャビティ容積が可変可能な金型として、対向配置される型同士がインロー構造または可動コアを介して型締め、型開き可能な金型を用いる、請求項1～4のいずれかに記載の繊維強化プラスチックの製造方法。
- [請求項6] キャビティ内を減圧した状態で溶融した熱可塑性樹脂を注入した後、キャビティ容積を縮小させる、請求項1～5のいずれかに記載の繊維強化プラスチックの製造方法。
- [請求項7] 前記圧縮可能な強化繊維基材として、2MPaで圧縮したときの基

材の見かけ空隙率が70%以上である基材を用いる、請求項1～6のいずれかに記載の繊維強化プラスチックの製造方法。

[請求項8] 前記圧縮可能な強化繊維基材として、10MPaで圧縮したときの基材の見かけ空隙率が40%以下である基材を用いる、請求項1～7のいずれかに記載の繊維強化プラスチックの製造方法。

[請求項9] 前記強化繊維基材の強化繊維が炭素繊維からなる、請求項1～8のいずれかに記載の繊維強化プラスチックの製造方法。

[請求項10] 前記強化繊維基材に含まれる炭素繊維の重量平均繊維長が1mm以上、100mm以下である、請求項9に記載の繊維強化プラスチックの製造方法。

[請求項11] 前記強化繊維基材中に熱可塑性樹脂を3～50重量%含む、請求項1～10のいずれかに記載の繊維強化プラスチックの製造方法。

[請求項12] 前記強化繊維基材が抄紙により作成されたものである、請求項1～11のいずれかに記載の繊維強化プラスチックの製造方法。

[請求項13] 前記強化繊維基材がカード装置により作成されたものである、請求項1～11のいずれかに記載の繊維強化プラスチックの製造方法。

[請求項14] 前記強化繊維基材が、前記不連続な強化繊維がランダムに配向されたものからなる、請求項1～13のいずれかに記載の繊維強化プラスチックの製造方法。

[請求項15] 前記強化繊維基材が、前記不連続な強化繊維の少なくとも一部が特定の方向に配向されたものからなる、請求項1～13のいずれかに記載の繊維強化プラスチックの製造方法。

[請求項16] 成形後の繊維強化プラスチックの前記特定方向の弾性率と特定方向と直交する方向の弾性率の比が2:1～10:1である、請求項15に記載の繊維強化プラスチックの製造方法。

[請求項17] 前記熱可塑性樹脂の成形温度が100℃以上である、請求項1～16のいずれかに記載の繊維強化プラスチックの製造方法。

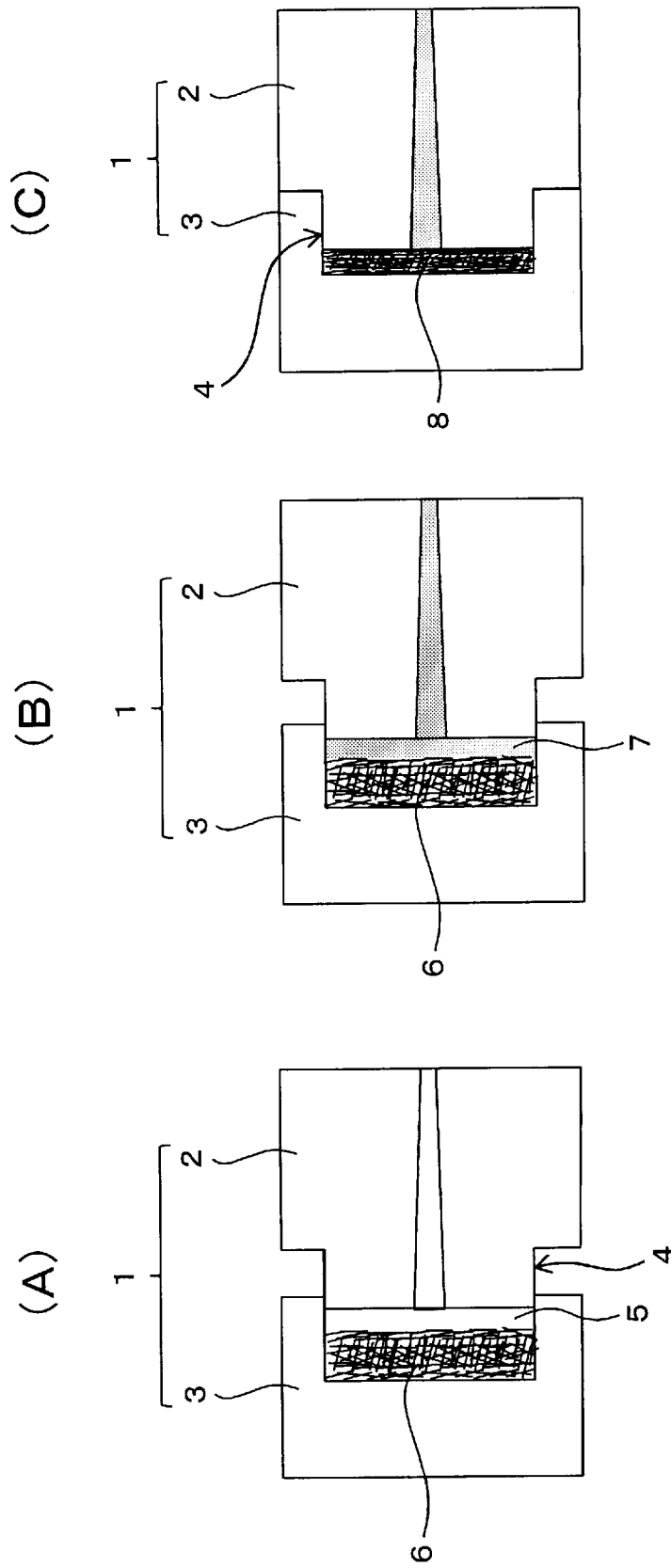
[請求項18] 前記熱可塑性樹脂が、ポリオレフィン、ポリアミド、ポリエステル

、ポリフェニレンスルフィド、ポリカーボネート、ポリエーテルケトン、ポリエーテルイミドからなる群から選ばれたものからなる、請求項 1 ～ 17 のいずれかに記載の繊維強化プラスチックの製造方法。

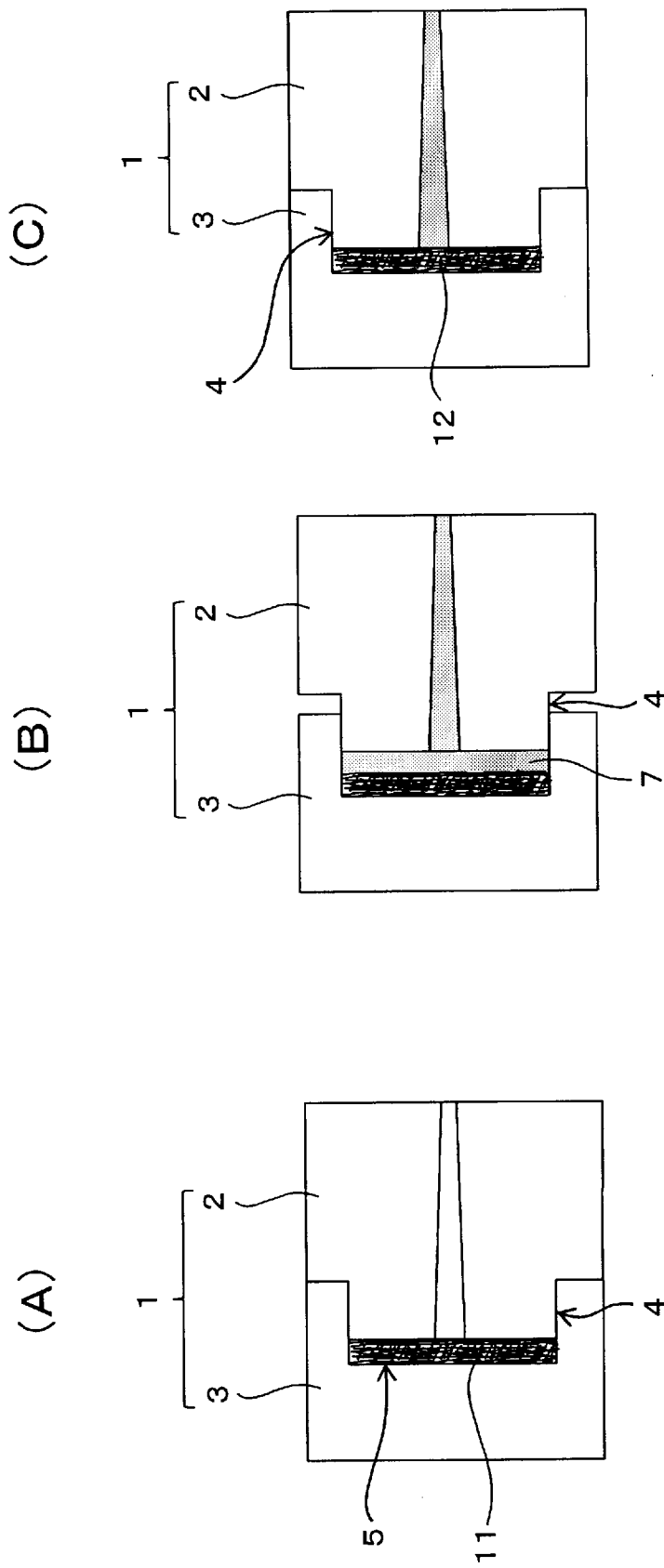
[請求項19] 前記金型として、熱可塑性樹脂が充填されるゲートと反対側のキャビティ部位にガス抜きを設けた射出圧縮成形用金型を用いる、請求項 1 ～ 18 のいずれかに記載の繊維強化プラスチックの製造方法。

[請求項20] 前記圧縮可能な強化繊維基材が樹脂フィルムパック中に減圧された状態で保持された基材を、前記金型のキャビティ内に配置する、請求項 1 ～ 19 のいずれかに記載の繊維強化プラスチックの製造方法。

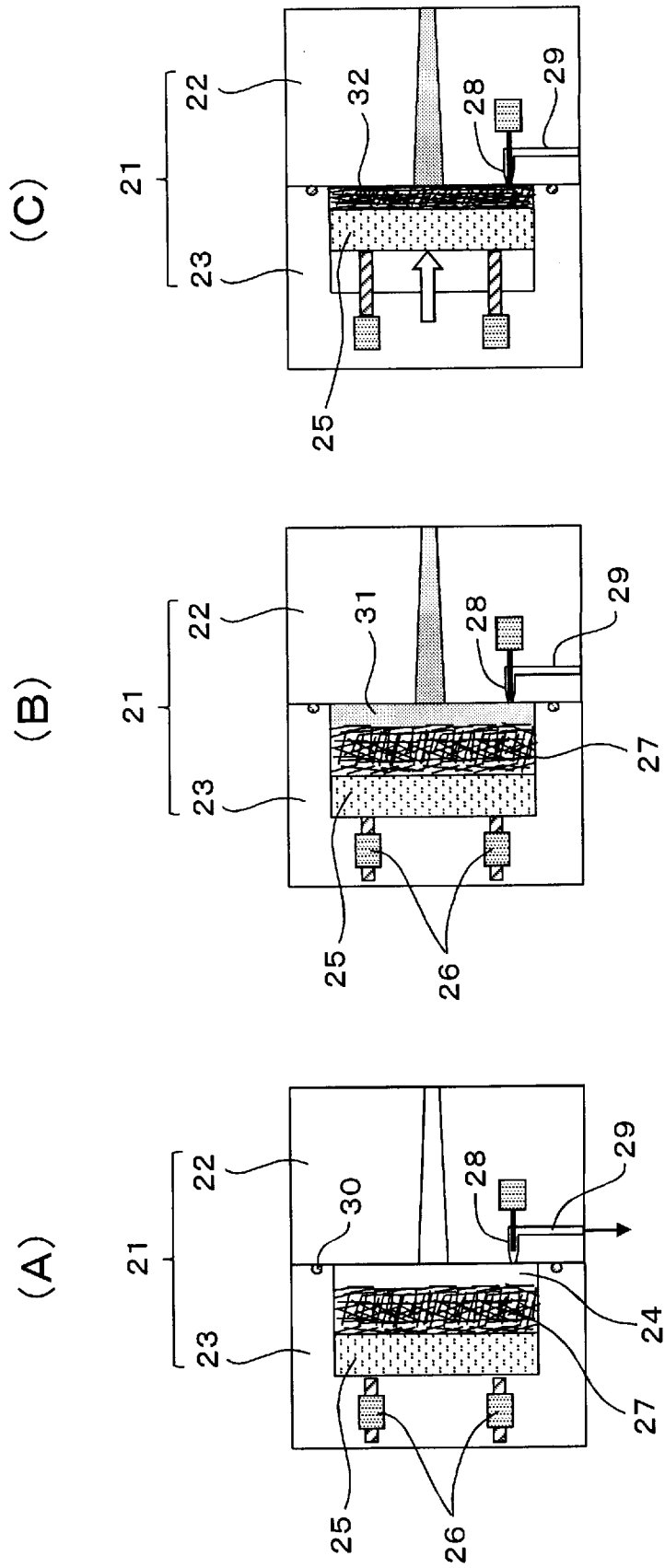
[図1]



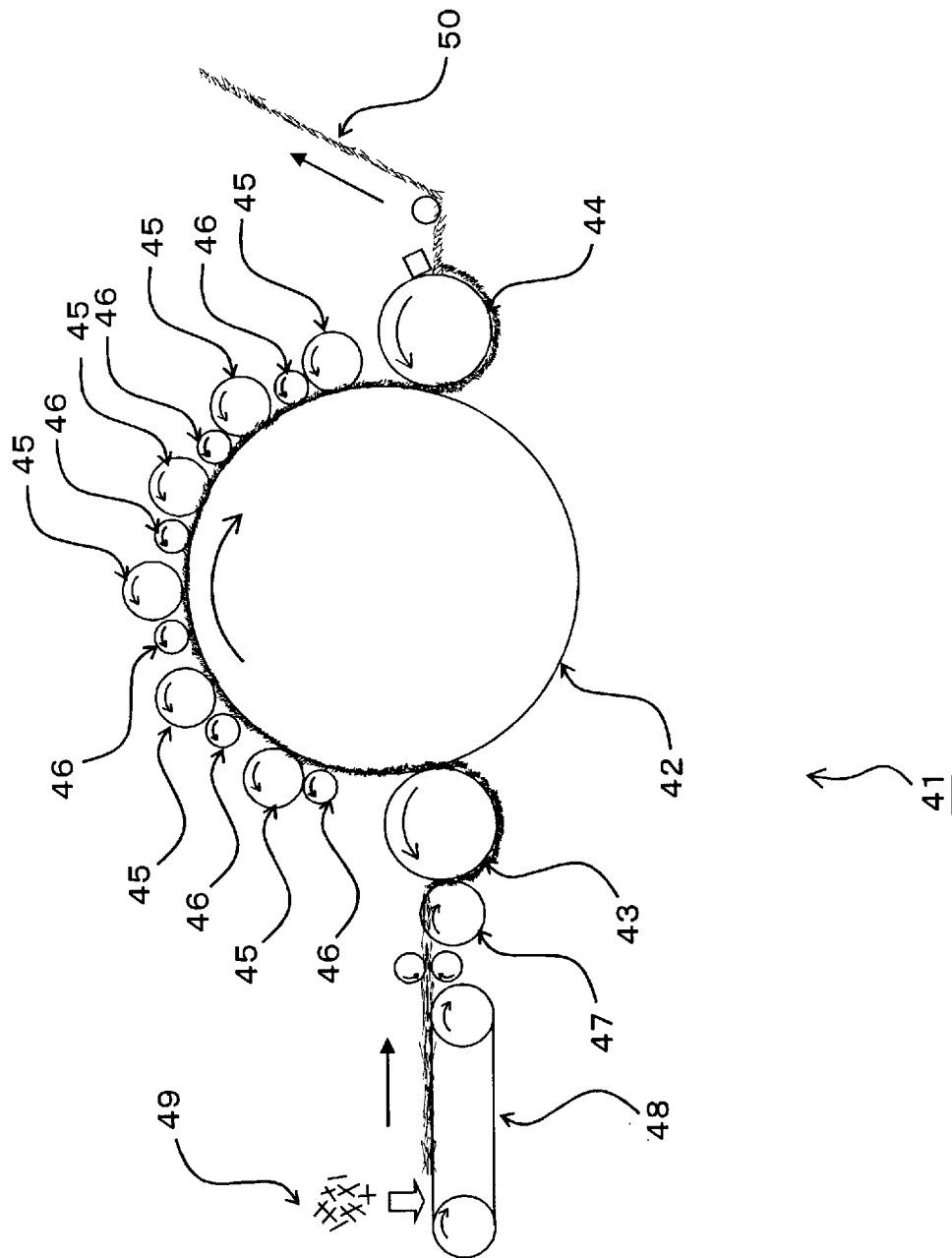
[図2]



[図3]



[図4]



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/064023

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B29C43/18(2006.01)i, B29C43/34(2006.01)i, B29C45/56(2006.01)i, B29K101/12(2006.01)n, 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)

B29C43/18, B29C43/34, B29C45/56, B29K101/12, B29K105/12

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 1996-2012

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2012 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2012

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category*   | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                               | Relevant to claim No.              |
|-------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------|
| X<br>Y<br>A | JP 3-261519 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.),<br>21 November 1991 (21.11.1991),<br>claims; page 3, upper right column, line 11 to<br>lower left column, line 2; page 4, upper left<br>column, lines 1 to 17; page 5, lower left<br>column, lines 3 to 11; fig. 3<br>& US 5424020 A & US 5275776 A<br>& EP 439625 A1 & EP 423676 A3<br>& WO 1991/002639 A1 & DE 69021361 C<br>& DE 69021361 D & ES 2077684 T<br>& CA 2027741 A & CA 2039160 A<br>& KR 10-0181510 B & CA 2039160 A1 | 1, 2, 4, 5, 7-18<br>6, 19<br>3, 20 |
| Y           | JP 8-174689 A (Toyota Motor Corp.),<br>09 July 1996 (09.07.1996),<br>paragraph [0021]<br>(Family: none)                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                          | 6                                  |



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

28 August, 2012 (28.08.12)

Date of mailing of the international search report

04 September, 2012 (04.09.12)

Name and mailing address of the ISA/

Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/064023

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages                                                                | Relevant to claim No. |
|-----------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------|
| Y         | JP 2003-211500 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.),<br>29 July 2003 (29.07.2003),<br>paragraphs [0005], [0044]; fig. 2<br>(Family: none) | 19                    |
| Y         | JP 2003-159735 A (Matsushita Electric Works, Ltd.),<br>03 June 2003 (03.06.2003),<br>paragraph [0011]; fig. 4<br>(Family: none)                   | 19                    |
| A         | JP 2011-31481 A (Nissan Motor Co., Ltd.),<br>17 February 2011 (17.02.2011),<br>claims; drawings<br>(Family: none)                                 | 1-20                  |

|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |                                                                                                                               |                  |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------------|
| A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））<br>Int.Cl. B29C43/18(2006.01)i, B29C43/34(2006.01)i, B29C45/56(2006.01)i, B29K101/12(2006.01)n, B29K105/12(2006.01)n                                                                                                                                                                                                                                                                                                  |                                                                                                                               |                  |
| B. 調査を行った分野<br>調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））<br>Int.Cl. B29C43/18, B29C43/34, B29C45/56, B29K101/12, B29K105/12                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                        |                                                                                                                               |                  |
| 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<br>日本国実用新案公報 1 9 2 2 - 1 9 9 6 年<br>日本国公開実用新案公報 1 9 7 1 - 2 0 1 2 年<br>日本国実用新案登録公報 1 9 9 6 - 2 0 1 2 年<br>日本国登録実用新案公報 1 9 9 4 - 2 0 1 2 年                                                                                                                                                                                                                                                                                |                                                                                                                               |                  |
| 国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                              |                                                                                                                               |                  |
| C. 関連すると認められる文献                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     |                                                                                                                               |                  |
| 引用文献の<br>カテゴリー*                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                     | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示                                                                                             | 関連する<br>請求項の番号   |
| X                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   | JP 3-261519 A（住友化学工業株式会社）1991.11.21, 特許請求の範囲、第3頁右上欄第11行目～左下欄第2行目、第4頁左上欄第1行目～第17行目、第5頁左下欄第3行目～第11行目、第3図 & US                   | 1, 2, 4, 5, 7-18 |
| Y                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   | 5424020 A & US 5275776 A & EP 439625 A1 & EP 423676 A3 & WO                                                                   | 6, 19            |
| A                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   | 1991/002639 A1 & DE 69021361 C & DE 69021361 D & ES 2077684 T & CA 2027741 A & CA 2039160 A & KR 10-0181510 B & CA 2039160 A1 | 3, 20            |
| Y                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   | JP 8-174689 A（トヨタ自動車株式会社）1996.07.09, 【0021】<br>（ファミリーなし）                                                                      | 6                |
| <input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                 |                                                                                                                               |                  |
| * 引用文献のカテゴリー<br>「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの<br>「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの<br>「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）<br>「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献<br>「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献<br>「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの<br>「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの<br>「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの<br>「&」 同一パテントファミリー文献 |                                                                                                                               |                  |
| 国際調査を完了した日<br>2 8 . 0 8 . 2 0 1 2                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                   | 国際調査報告の発送日<br>0 4 . 0 9 . 2 0 1 2                                                                                             |                  |
| 国際調査機関の名称及びあて先<br>日本国特許庁（I S A / J P）<br>郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5<br>東京都千代田区霞が関三丁目4番3号                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                  | 特許庁審査官（権限のある職員）<br>村松 宏紀<br>電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 3 0                                                           | 4 F 4 1 6 9      |

| C (続き) . 関連すると認められる文献 |                                                                      |                |
|-----------------------|----------------------------------------------------------------------|----------------|
| 引用文献の<br>カテゴリ*        | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示                                    | 関連する<br>請求項の番号 |
| Y                     | JP 2003-211500 A (松下電器産業株式会社) 2003.07.29, 【0005】、【0044】、図2 (ファミリーなし) | 19             |
| Y                     | JP 2003-159735 A (松下電工株式会社) 2003.06.03, 【0011】、図4 (ファミリーなし)          | 19             |
| A                     | JP 2011-31481 A (日産自動車株式会社) 2011.02.17, 【特許請求の範囲】、図面 (ファミリーなし)       | 1-20           |