(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
2020年2月27日(27.02.2020)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2020/040154 A1

(51) 国際特許分類:
B29B 11/16 (2006.01) *B29K 101/10* (2006.01)
B29B 15/12 (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2019/032496

(22) 国際出願日： 2019年8月20日(20.08.2019)

(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 2018-155066 2018年8月22日(22.08.2018) JP
特願 2018-155077 2018年8月22日(22.08.2018) JP

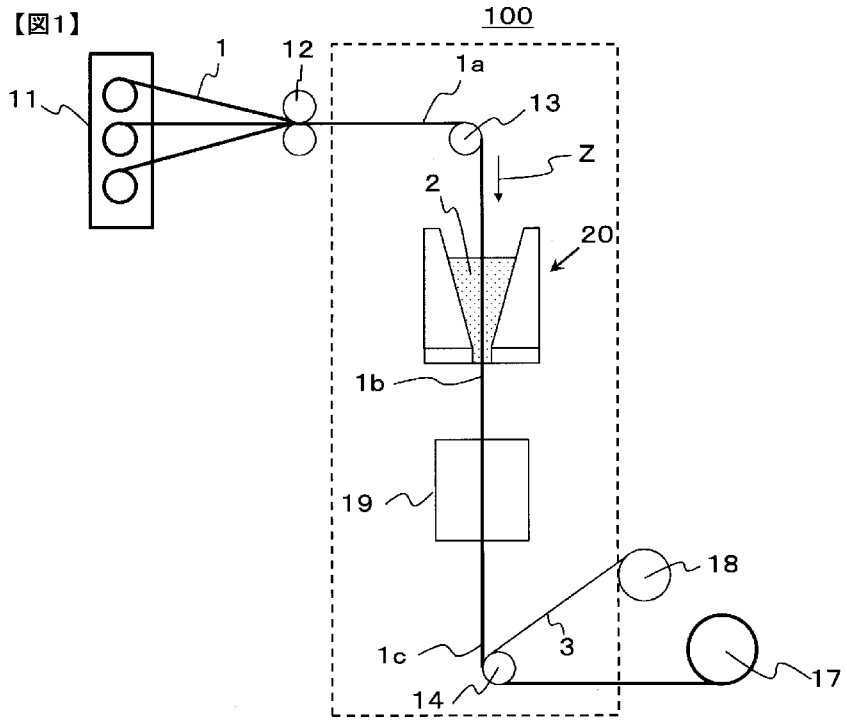
(71) 出願人: 東レ株式会社(**TORAY INDUSTRIES, INC.**) [JP/JP]; 〒1038666 東京都中央区日本橋室町２丁目１番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 越智隆志(**OCHI, Takashi**); 〒7913193 愛媛県伊予郡松前町大字筒井１５１５番地 東レ株式会社 愛媛工場内 Ehime (JP). 河野祥和(**KONO, Yoshikazu**); 〒7913193 愛媛県伊予郡松前町大字筒井１５１５番地 東レ株式会社 愛媛工場内 Ehime (JP). 西野聡(**NISHINO, So**); 〒5208558 滋賀県大津市園山１丁目１番１号 東レ株式会社 滋賀事業場内 Shiga (JP). 青木惇一(**AOKI, Junichi**); 〒7913193 愛媛県伊予郡松前町大字筒井１５１５番地 東レ株式会社 愛媛工場内 Ehime (JP). 箕浦潔(**MINOURA, Kiyoshi**); 〒5208558 滋賀県大津市

(54) **Title:** PRODUCTION METHOD FOR PREPREG, PREPREG TAPE, AND FIBER REINFORCED COMPOSITE MATERIAL, AND PREPREG PRODUCTION DEVICE

(54) 発明の名称： プリプレグ、プリプレグテープおよび繊維強化複合材料の製造方法、プリプレグ製造装置

【図1】



(57) **Abstract:** Regarding a method for producing a prepreg that is obtained by applying a matrix resin to a fiber reinforced sheet, the present invention addresses the problem of providing a prepreg production method by which continuously travel can be performed without involving jamming of a generated fluff even when the travel speed is high, and by which a fiber reinforced sheet can be efficiently impregnated with a matrix resin. The present invention uses a prepreg production method

WO 2020/040154 A1

［続葉有］

園山１丁目１番１号 東レ株式会社 滋賀事業場内 Shiga (JP). 鈴木保(**SUZUKI, Tamotsu**); 〒5208558 滋賀県大津市園山１丁目１番１号 東レ株式会社 滋賀事業場内 Shiga (JP).

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

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

添付公開書類：

一　国際調査報告（条約第21条(3)）

comprising causing a fiber reinforced sheet to substantially, vertically downward pass through the inside of a coating part in which a matrix resin is reserved, so as to obtain a matrix resin-impregnated fiber reinforced sheet in which the matrix resin has been applied to the fiber reinforced sheet, and subsequently, heating at least the matrix resin-impregnated fiber reinforced sheet, wherein: the coating part is provided with a liquid reservoir section and a constriction section which are connected to each other; the liquid reservoir section has a portion the cross-sectional area of which continuously decreases along the travel direction of the fiber reinforced sheet; the constriction section has a slit-shaped cross section, and has a cross-sectional area smaller than that of the upper surface of the liquid reservoir section; the distance N from an outlet of the coating part to a heating start point of the matrix resin-impregnated fiber reinforced sheet is 1 m or shorter; and, at a heating end point, a surface temperature P2 (°C) of the matrix resin-impregnated fiber reinforced sheet is equal to or higher than the temperature M (°C) of the matrix resin reserved in the coating part (expression 1).

(57) 要約：本発明は、強化繊維シートにマトリックス樹脂を付与したプリプレグの製造方法に関して、走行速度が速い場合でも発生した毛羽が詰まることなく連続走行が可能で、かつ強化繊維シートにマトリックス樹脂を効率よく含浸させることが可能なプリプレグの製造方法を提供することを課題とし、マトリックス樹脂が貯留された塗布部の内部に強化繊維シートを実質的に鉛直方向下向きに通過させることで、マトリックス樹脂が強化繊維シートに付与されたマトリックス樹脂含浸強化繊維シートを得た後、マトリックス樹脂含浸強化繊維シートを少なくとも加熱するプリプレグの製造方法であって、前記塗布部は互いに連通された液溜り部と狭窄部を備え、前記液溜り部は強化繊維シートの走行方向に沿って断面積が連続的に減少する部分を有し、前記狭窄部はスリット状の断面を有し、かつ液溜り部上面よりも小さい断面積を有し、前記塗布部出口からマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの加熱開始点までの距離Ｎが１ｍ以内であり、加熱終了点でのマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度Ｐ２（℃）が塗布部の内部に貯留されるマトリックス樹脂温度Ｍ（℃）以上（式１）である、プリプレグの製造方法を適用することを本旨とする。

明　細　書

発明の名称 ：

プリプレグ、プリプレグテープおよび繊維強化複合材料の製造方法、プリプレグ製造装置

技術分野

[0001] 本発明は、プリプレグ、プリプレグテープおよび繊維強化複合材料の製造方法、プリプレグ製造装置に関し、特に強化繊維シートにマトリックス樹脂を均一に含浸する方法、および装置に関する。

背景技術

[0002] 熱可塑性樹脂や熱硬化性樹脂を含むマトリックス樹脂を強化繊維で補強した繊維強化複合材料（ＦＲＰ）は、航空・宇宙用材料、自動車材料、産業用材料、圧力容器、建築材料、筐体、医療用途、スポーツ用途など様々な分野で用いられている。特に高い力学特性と軽量性が必要な場合には、炭素繊維強化複合材料（ＣＦＲＰ）が幅広く好適に用いられている。一方、力学特性や軽量性よりもコストが優先される場合にはガラス繊維強化複合材料（ＧＦＲＰ）が用いられる場合がある。ＦＲＰは強化繊維束にマトリックス樹脂を含浸し中間基材を得、これを積層、成形し、さらに熱硬化樹脂を用いた場合には熱硬化させて、ＦＲＰからなる部材を製造している。前記用途では平面状物やそれを折り曲げた形態のものが多く、ＦＲＰの中間基材としても１次元のストランドやロービング状物よりも、２次元のシート状物の方が部材を作製する際の積層効率や成形性の観点から幅広く使用されている。

[0003] また、最近、ＦＲＰからなる部材の生産効率を向上させるため、シート状中間基材の積層の機械化・自動化が推進されており、ここでは細幅テープ状中間基材が好適に使用されている。細幅テープ状中間基材は広幅シート状中間基材を所望の幅でスライスしたり、細幅の強化繊維シートに直接マトリックス樹脂を含浸させて得ることができる。

[0004] ２次元のシート状中間基材としては、強化繊維シートにマトリックス樹脂

を含浸させたプリプレグが幅広く使用されている。プリプレグに用いる強化繊維シートとしては、強化繊維を一方向に配列させシート状としたＵＤ基材や多方向に配列させた織物である強化繊維ファブリックがある。特に力学特性が優先される場合にはＵＤ基材が使用される場合が多い。

[0005] プリプレグの製造方法の一つであるホットメルト法は、マトリックス樹脂を溶融した後、離型シート上にコーティングし、これを強化繊維シートの上面、下面でサンドイッチした積層構造を作製後、熱と圧力でマトリックス樹脂を強化繊維シート内部に含浸するものである。本方法は工程数が多く、また生産速度も上げられず、高コストとなる問題があった。

[0006] 含浸の効率化としては、例えば特許文献１のような提案があった。これはガラス繊維を溶融紡糸し、それを集束してストランドやロービング状としたものを熱可塑性樹脂を満たした円錐状の流路を有する液溜り部に通過させる方法であった。

[0007] 他方、シート状物の両面に同時に塗膜形成する方法が特許文献２に記載されているが、これは塗膜形成時のシート状物の揺らぎを防止するため、ウエブガイドにシート状物を通し、その後、パイプ型ドクターで塗工するものである。

[0008] 熱可塑性樹脂を用いた帯状プリプレグの製造方法として、帯状強化繊維束を水平方向（横方向）に搬送し、ダイに通過させ、帯状強化繊維束に熱可塑性樹脂を付与・含浸する横型引き抜き方式（特許文献３、特許文献４など）が知られている。特許文献３には、テープ状強化繊維をクロスヘッド（特許文献３の図２）に通し、クロスヘッド内の直線状のダイ部直前で樹脂がテープ状強化繊維束に付与される。特許文献４には、複数の帯状強化繊維束を別々に溶融熱可塑樹脂が満たされたダイ内へ導入し、固定ガイド（例えばスクイーズバー）により、開繊、含浸、積層し、最終的に１枚のシート状プリプレグとしてダイから引き抜くことが記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0009] 特許文献1：国際公開ＷＯ２００１／０２８９５１パンフレット

特許文献2：特許第３２５２２７８号明細書

特許文献3：特開平６－３１８２１号公報

特許文献4：国際公開ＷＯ２０１２／００２４１７パンフレット

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0010] しかしながら、特許文献１の方法ではストランドやロービング状物しか製造できず、本発明の対象とするシート状プリプレグの製造には適用できない。また、特許文献１では含浸効率を向上させるため、ストランドやロービング状強化繊維束側面に熱可塑性樹脂の流体を当て円錐状流路内で乱流を積極的に発生させている。これは強化繊維束の配列を一部乱してマトリックス樹脂を流入させることを意図していると考えられるが、この思想を強化繊維シートに適用すると、強化繊維の配列が乱れ、プリプレグの品位が低下するばかりか、ＦＲＰの力学特性が低下してしまうと考えられる。

[0011] また、特許文献２におけるシート状物は、フィルム、布、紙、箔、パンチングプレート、網状シート材などであり、本発明の対象である強化繊維シートは意図されていない。仮に、炭素繊維からなる強化繊維シートに特許文献２の技術を適用した場合には、ウエブガイドでの擦過により毛羽が発生し、強化繊維シートが走行困難になると考えられる。また、特許文献２の技術は樹脂の塗工であり、含浸は意図されていない。

[0012] 特許文献３の技術では、クロスヘッド内のダイ部の前部は樹脂が無い状態でテープ状強化繊維がスリット状のガイダーチップを通過するため、毛羽が詰まり易く、また毛羽を除去する機能も無いため、長時間連続走行させることは困難と考えられる。特に毛羽が発生し易い炭素繊維ではこの傾向が顕著になると考えられる。

[0013] また、特許文献４の方法では連続生産時に液溜り部に毛羽が滞留し易く、引き抜き部で毛羽が詰まり易い。特に、帯状強化繊維束を高速で連続走行させると、毛羽が詰まる頻度が非常に高まるため、非常に遅い速度でしか生産

ができず、生産性が上がらない問題点があった。また、横型引き抜き方式の場合、ダイ部は液漏れ防止のため密閉する必要があり、連続生産中に毛羽を回収することも十分ではない。さらに、横型引き抜き方式においては、強化繊維シートの内部にマトリックス樹脂が含浸する際、強化繊維シートの内部に残留していた気泡は、浮力により強化繊維シートの走行方向と直交する方向に排出されるため、含浸してくるマトリックス樹脂を押しのけるようにして気泡の排出が進む。そのため、気泡の移動が液によって阻害される上に、マトリックス樹脂の含浸も気泡によって阻害されるため、含浸効率が悪いという問題点があった。なお、特許文献４では気泡をベントから排気することも提案されているが、ダイ出口付近のみであり、その効果は限定的と考えられる。

[0014] このように、ＵＤ基材や強化繊維ファブリックなど強化繊維シートへの効率的なマトリックス樹脂付与方法、特にＵＤ基材を用いたシート状プリプレグの効率的な製造方法は未だ確立されていなかった。

[0015] 本発明の課題は、プリプレグの製造方法に関して、毛羽発生を抑制し、かつ毛羽が詰まることなく連続生産が可能であり、さらに強化繊維シートにマトリックス樹脂を効率よく含浸させ、生産速度の高速化が可能であり、さらに得られた強化繊維シートの折れなどが抑制され目付量が均一な、プリプレグの製造方法および製造装置を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0016] 前記の課題を解決する本発明のプリプレグの製造方法は、マトリックス樹脂が貯留された塗布部の内部に強化繊維シートを実質的に鉛直方向下向きに通過させ、強化繊維シートにマトリックス樹脂を付与してマトリックス樹脂含浸強化繊維シートを得る工程、該マトリックス樹脂含浸強化繊維シートに非接触で加熱を行う工程を含むプリプレグの製造方法であって、

前記塗布部は互いに連通された液溜り部と狭窄部を備え、前記液溜り部は強化繊維シートの走行方向に沿って断面積が連続的に減少する部分を有し、前記狭窄部はスリット状の断面を有し、かつ液溜り部上面よりも小さい断面積

を有し、

前記非接触の加熱は、前記狭窄部の開口部からマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの走行方向に向かって１ｍ以内の領域で開始され、かつ、加熱終了点でのマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度をＰ２（℃）、前記塗布部の内部に貯留されたマトリックス樹脂の温度をＭ（℃）としたとき、下式１を満たす、プリプレグの製造方法。

Ｍ　≦　Ｐ２　（式１）　。

[0017] また、マトリックス樹脂が貯留された塗布部の内部に強化繊維シートを実質的に鉛直方向下向きに通過させることで、マトリックス樹脂が強化繊維シートに付与されたマトリックス樹脂含浸強化繊維シートを得た後、マトリックス樹脂含浸強化繊維シートを少なくとも加圧する追含浸を行うプリプレグの製造方法であって、前記塗布部は互いに連通された液溜り部と狭窄部を備え、前記液溜り部は強化繊維シートの走行方向に沿って断面積が連続的に減少する部分を有し、前記狭窄部はスリット状の断面を有し、かつ液溜り部上面よりも小さい断面積を有し、塗布部出口から追含浸の加圧開始点までの距離Ｎが１ｍ以内であり、追含浸前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度Ｐ（℃）が塗布部の内部に貯留されるマトリックス樹脂温度Ｍ（℃）に対し式２の関係を満たす。

Ｍ－３０　≦　Ｐ　（式２）。

[0018] また、マトリックス樹脂が貯留され、かつ鉛直方向下向きに断面積が連続的に減少する部分を有する液溜り部と、前記液溜り部の下端に連通するスリット状出口を有する狭窄部と、前記液溜り部の内部に設けられ、前記スリット状出口の長手方向に延びる１本以上のバーと、を備える塗布部に、強化繊維シートを鉛直方向下向きに通過させてマトリックス樹脂を付与するプリプレグの製造方法であって、

前記バーと強化繊維シートにより形成される抱き角が全て１０°以上４０°以下となるように、前記強化繊維シートを前記バーに接触させながら、狭窄部から引き取る、

プリプレグの製造方法であることを特徴とする。

[0019] また、本発明のプリプレグテープの製造方法は、上記のプリプレグの製造方法により得られたプリプレグをスリットすることを特徴とする。

[0020] また、本発明の繊維強化複合材料の製造方法は、上記のプリプレグの製造方法により得られたプリプレグまたは上記のプリプレグテープの製造方法により得られたプリプレグテープを硬化させることを特徴とする。

発明の効果

[0021] 本発明のプリプレグの製造方法または本発明のプリプレグ製造装置を用いれば、毛羽による詰まりを大幅に抑制、防止できる。さらに、強化繊維シートを連続かつ高速で走行させることが可能となり、マトリックス樹脂を付与した強化繊維シートの生産性が向上するとともに均一にマトリックス樹脂が含浸したプリプレグを得ることが可能となる。

図面の簡単な説明

[0022] [図1]本発明の第１の製造方法の実施形態に係るプリプレグの製造方法を示す概略横断面図である。

[図2a]本発明の第２の製造方法の実施形態に係るプリプレグの製造方法を示す概略横断面図である。

[図2b]図１における塗布部と追含浸装置１９の力所を拡大した詳細横断面図である。

[図2c]図２ａとは別の実施形態で離型シート３を用いた場合の詳細横断面図である。

[図3]本発明の第３の製造方法の実施形態に係るプリプレグの製造方法を示す概略横断面図である。

[図4]図１における塗布部の部分を拡大した詳細横断面図である。

[図5]図４における塗布部を、図４のＡの方向から見た下面図である。

[図6a]図４における塗布部を、図４のＢの方向から見た場合の塗布部内部の構造を説明する断面図である。

[図6b]図６ａにおける隙間２６でのマトリックス樹脂２の流れを表す断面図

である。

[図7]図３の塗布部を拡大した詳細横断面図である。

[図8]液溜まり部２２内部でバー３５に接触する強化繊維シート１ａの詳細横断面図である。

[図9]別の実施形態のバー３５の詳細横断面図である。

[図10]幅規制機構の設置例を示す図である。

[図11]図７の塗布部を図中Ｂの方向から見た場合の塗布部内部の構造を説明する詳細断面図である。

[図12]図１１とは異なる実施形態の塗布部４１の内部の構造を説明する詳細断面図である。

[図13]バーの両端に幅規制部材を設ける一例を示す図である。

[図14]図１３とは別の実施形態の幅規制部材を示す図である。

[図15]図１１とは異なる実施形態の塗布部４２の内部の構造を説明する詳細断面図である。

[図16]図４とは別の実施形態の塗布部２０ｂの詳細横断面図である。

[図17]図１６とは別の実施形態の塗布部２０ｃの詳細横断面図である。

[図18]図１６とは別の実施形態の塗布部２０ｄの詳細横断面図である。

[図19]図１６とは別の実施形態の塗布部２０ｅの詳細横断面図である。

[図20]本発明とは異なる実施形態の塗布部３０の詳細横断面図である。

[図21]本発明の第１の製造方法を用いたプリプレグ製造工程の実施形態の例を示す概略図である。

[図22]本発明の第２の製造方法を用いた別のプリプレグ製造工程の例の概略図である。

[図23]本発明の第２の製造方法を用いた別のプリプレグ製造工程の例の概略図である。

[図24]本発明の第２の製造方法を用いた別のプリプレグ製造工程の例の概略図である。

[図25]本発明の第２の製造方法を用いた別のプリプレグ製造工程の例の概略

図である。

[図26]本発明の第１の製造方法を用いたプリプレグ製造工程の実施形態の例を示す概略図である。

[図27]本発明の第３の製造方法で用いる塗布部の実施形態の例を示す概略図である。

[図28]本発明の第３の製造方法で用いる別の塗布部の実施形態の例を示す概略図である。

発明を実施するための形態

[0023] 本発明の望ましい実施形態について、図面に基づいて説明する。なお、以下の説明は発明の実施形態を例示するものであり、本発明はこれに限定して解釈されるものではなく、本発明の目的・効果を逸脱しない範囲で種々の変更が可能である。

[0024] ＜プリプレグの製造方法の概略＞

本発明では、３つの新規なプリプレグ製造方法を開示している。これらの製造方法は、マトリックス樹脂が貯留された塗布部の内部に強化繊維シートを実質的に鉛直方向下向きに通すことで、マトリックス樹脂が強化繊維シートに付与されたマトリックス樹脂含浸強化繊維シートを得る点で共通している。この製造方法において、得られるプリプレグの含浸度を更に向上させるために、以下の３つの製造方法を用いるものである。

[0025] まず、本発明の第１の製造方法の概略を図１を用いて述べる。塗工装置１００には、強化繊維シート１ａを実質的に鉛直方向下向きＺに走行させる走行機構である搬送ロール１３、搬送ロール１４の間に設けられ、マトリックス樹脂２が溜められた塗布機構である塗布部２０が具備されている。また、塗工装置１００の前後には、強化繊維１を巻き出す複数のクリール１１と、巻き出された強化繊維１を一方向に配列した強化繊維シート１ａ（図１では紙面奥行き方向に配列）を得る配列装置１２とプリプレグ１ｃの巻取り装置１７を備えることができ、また、図示していないが塗工装置１００にはマトリックス樹脂の供給装置が具備されている。さらに塗布部２０と搬送ロール

１４の間には、追含浸装置１９が具備されている。第１の製造方法では、これが非接触加熱装置となる。非接触加熱装置で追含浸されたプリプレグ１ｃには、離型シート３を付与することもできる。図１では離型シート３は片面のみに付与しているが、プリプレグ１ｃの両面に付与することもできる。

[0026] 次に第２の製造方法の概略を図２ａを用いて述べる。塗工装置１００には、強化繊維シート１ａを実質的に鉛直方向下向きＺに走行させる走行機構である搬送ロール１３、搬送ロール１４の間に設けられ、マトリックス樹脂２が溜められた塗布機構である塗布部２０が具備されている。また、塗工装置１００の前後には、強化繊維１を巻き出す複数のクリール１１と、巻き出された強化繊維１を一方向に配列した強化繊維シート１ａ（図２では紙面奥行き方向に配列）を得る配列装置１２とプリプレグ１ｃの巻取り装置１７を備えることができ、また、図示していないが塗工装置１００にはマトリックス樹脂の供給装置が具備されている。さらに塗布部２０と搬送ロール１４の間には、追含浸装置１９が具備されている。マトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂを追含浸装置１９に導く際、離型シート３を付与することもできる。その場合、塗布部２０直下で得られるマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂの両面に離型シート３を供給する離型シート供給装置１８を備えることができる。マトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂに離型シート３を付与する際は搬送ロール１５、搬送ロール１６を用いて導入、付与することもできる。図２ａではマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂの両面から離型シート３を付与する様子を示すが、付与する離型シート３は片面でもよい。さらに、離型シート３を加熱する離型シートの加熱装置１８ａを備えることもできる。図１では離型シートの加熱装置１８ａを離型シート３の両面から加熱する様子を示すが、片面のみでもよい。さらに図２ａでは離型シートの加熱装置１８ａを離型シート３に非接触の加熱装置を用いた場合を示すが、接触式の加熱装置としてもよい。

[0027] 次に第３の製造方法の概略を図３を用いて述べる。塗工装置１０１には、強化繊維シート１ａを実質的に鉛直方向下向きＺに走行させる走行機構であ

る搬送ロール１３、１４と、搬送ロール１３、１４の間に設けられ、マトリックス樹脂２が溜められた塗布機構である塗布部４０が具備されている。さらに塗布部４０の内部には、紙面奥行き方向に延びるバー群３５（３５ａ、３５ｂ、３５ｃ）が具備されている。また、塗工装置１０１の前後には、強化繊維１を巻き出す複数のクリール１１と、巻き出された強化繊維１を一方向に配列した強化繊維シート１ａ（図３では紙面奥行き方向に配列）を得る配列装置１２とプリプレグ１ｃの巻取り装置１７を備えることができ、また、図示していないが塗工装置１００にはマトリックス樹脂の供給装置が具備されている。さらに、必要に応じ、離型シート３を供給する離型シート供給装置１８を備えることもできる。図３では離型シート３は片面のみに付与しているが、プリプレグ１ｃの両面に付与することもできる。

[0028] ＜強化繊維シート＞

ここで、強化繊維１としては、炭素繊維、ガラス繊維、金属繊維、金属酸化物繊維、金属窒化物繊維、有機繊維（アラミド繊維、ポリベンゾオキサゾール繊維、ポリビニルアルコール繊維、ポリエチレン繊維など）などを例示することができるが、炭素繊維を用いることが、ＦＲＰの力学特性、軽量性の観点から好ましい。

[0029] 本発明で用いられる強化繊維シート１ａとしては一方向に配列したＵＤ基材や織物としての強化繊維ファブリックが挙げられる。

[0030] 強化繊維シート１ａとしての一方向に配列したＵＤ基材とは、複数本の強化繊維を一方向に面上で配列させたものを言い、必ずしも該複数の強化繊維は相互に絡み合う等して一体化している必要は無い。すなわち、本発明の製造方法によれば、マトリックス樹脂の塗布後にはマトリックス樹脂が含浸されたシート状物として得られることから強化繊維が配列された状態として便宜上強化繊維シートと称している。ここで、強化繊維シートは厚み、幅には特に制限は無く、目的、用途に応じ適宜選択することができる。炭素繊維の場合には、通常、１，０００本～１，０００，０００本程度の単繊維がテープ状に集合したものを「トウ」と呼んでおり、このトウを配列させて強化繊

維シートを得ることができるが、トウが厚み方向に積層されていても良い。なお、強化繊維シートは、その幅／厚みで定義されるアスペクト比は１０以上であると、取り扱い易く好ましい。なお、本発明では、テープ状の「トウ」１本も強化繊維シートの一形態と解される。

[0031] また、強化繊維シート１ａを形成する方法は公知の方法を用いることができ、特に制限は無いが、単繊維をあらかじめ配列させた強化繊維束を形成し、この強化繊維束を更に配列させて強化繊維シート１ａを形成させることが、工程効率化、配列均一化の観点から好ましい。例えば炭素繊維では、前記したようにテープ状の強化繊維束である「トウ」がボビンに巻かれているが、ここから引き出されたテープ状の強化繊維束を配列させてＵＤ基材としての強化繊維シートを得ることができる。また、クリールにかけられたボビンから引き出された強化繊維束を整然と並べ、強化繊維シート中で強化繊維束の望ましくない重なりや折りたたみ、強化繊維束間の隙間を無くするための配列機構を有することが好ましい。強化繊維配列機構としては公知のローラーやくし型配列装置などを用いることができる。また、予め配列した強化繊維シートを複数枚重ねることも強化繊維間の隙間を減じる観点から有用である。なお、クリールには強化繊維を引き出す際に張力制御機構が付与されていることが好ましい。張力制御機構としては、公知のものを使用可能であるが、ブレーキ機構などが挙げられる。また、糸道ガイドの調整などによっても張力を制御することができる。

[0032] また、本発明の強化繊維シートとしての強化繊維ファブリックとは、強化繊維を多軸で配列させる、またはランダム配置してシート化したものである。具体的には、織物や編物などの他、強化繊維を２次元で多軸配置したものや、不織布やマット、紙など強化繊維をランダム配向させたものを挙げることができる。この場合、強化繊維はバインダー付与、交絡、溶着、融着などの方法を利用してシート化することもできる。織物としては、平織、ツイル、サテンの基本織組織の他、ノンクリンプ織物やバイアス構造、絡み織、多軸織物、多重織物などを用いることができる。バイアス構造とＵＤ基材を組

み合わせた織物は、ＵＤ構造により塗布・含浸工程での引っ張りでの織物の変形を抑制するだけでなく、バイアス構造による擬似等方性も併せ持っており、好ましい形態である。また、多重織物では織物上面／下面、また織物内部の構造・特性をそれぞれ設計できる利点がある。編物では塗布・含浸工程での形態安定性を考慮すると経編が好ましいが、筒状編み物であるブレードを用いることもできる。

[0033] 強化繊維ファブリックの厚みは、本発明の効果が得られる範囲であれば特に制限は無く、必要とされるＦＲＰ性能と塗布工程の安定性を勘案して決めればよい。狭窄部の通過性を考慮すると、１ｍｍ以下であることが好ましく、より好ましくは０．３ｍｍ以下である。

[0034] 強化繊維ファブリックは目的に応じた適切なものを市場から入手、作製可能であるが、その一例を下記する。織物としては、例えば、東レ（株）製“トレカ（登録商標）”クロスのＣ０６１４２、Ｃ０６３４７Ｂ、Ｃ０５６４２等、ＨＥＸＣＥＬ社製“ＨｅｘＦｏｒｃｅ（登録商標）”Ｆａｂｒｉｃｓや“ＰｒｉｍｅＴｅｘ（登録商標）”の８４、Ｇ０８０１、ＸＡＧＰ２８２Ｐ、４３１９５、Ｇ０９３９、Ｇ０８０３、４３３６４、ＸＳＧＰ１９６Ｐ、ＳＧＰ２０３ＣＳ、ＸＣ１４００、４８２００、４８２８７、４６１５０、“Ｉｎｊｅｔｅｘ（登録商標）”ＦａｂｒｉｃｓのＧＢ２０１、Ｇ０９８６、Ｇ０９２６等、炭素繊維とガラス繊維のハイブリッド織物であるＧ１０８８、Ｇ０８７４、Ｇ０９７３、４３７４３等、アラミド繊維織物である２０７９６、２１２６３、Ｑｕａｒｔｚ織物である６１０、５９３等、が挙げられる。不織布・マット・紙としては、例えば、東レ（株）製“トレカ（登録商標）”マットＢ０３０、Ｂ０５０、ＢＶ０３等やオリベスト社製“カーボライト（登録商標）”のＣＥＯ－０３０、ＣＢＰ－０３０、ＺＸ－０２０等が挙げられる。

[0035] ＜強化繊維シートの平滑化＞

本発明においては、強化繊維シートの表面平滑性を高くすることで、塗布部での塗布量の均一性を向上させることができる。このため、強化繊維シー

トを平滑化処理した後、液溜り部に導くことが好ましい。平滑化処理法は特に制限は無いが、対向ロールなどで物理的に押しつける方法や空気流を用いて強化繊維を動かす方法などを例示できる。物理的に押しつける方法は簡便かつ、強化繊維の配列を乱しにくいため好ましい。より具体的にはカレンダー加工などを用いることができる。空気流を用いる方法は擦過が起こりにくいだけでなく、強化繊維シートを拡幅する効果もあり好ましい。

[0036] ＜強化繊維シートの拡幅＞

また、本発明において、強化繊維シートを拡幅処理した後、液溜り部に導くことも、薄いプリプレグを効率的に製造できる観点から好ましい。拡幅処理方法は特に制限は無いが、機械的に振動を付与する方法、空気流により強化繊維束を拡げる方法などを例示できる。機械的に振動を付与する方法としては、例えば特開２０１５－２２７９９号公報記載のように、振動するロールに強化繊維シートを接触させる方法がある。振動方向としては、強化繊維シートの進行方向をＸ軸とすると、Ｙ軸方向（水平方向）、Ｚ軸方向（垂直方向）の振動を与えることが好ましく、水平方向振動ロールと垂直方向振動ロールを組み合わせて用いることも好ましい。また振動ロール表面は複数の突起を設けておくと、ロールでの強化繊維の擦過を抑制でき、好ましい。空気流を用いる方法としては、例えば、ＳＥＮ－Ｉ　ＧＡＫＫＡＩＳＨＩ，ｖｏｌ．６４，Ｐ－２６２－２６７（２００８）．記載の方法を用いることができる。

[0037] ＜強化繊維シートの予熱＞

また、本発明において、強化繊維シートを加熱した後、液溜り部に導くと、マトリックス樹脂の温度低下を抑制し、マトリックス樹脂の粘度均一性を向上させられるため好ましい。強化繊維シートはマトリックス樹脂温度近傍まで加熱されることが好ましいが、このための加熱手段としては、空気加熱、赤外線加熱、遠赤外線加熱、レーザー加熱、接触加熱、熱媒加熱（スチームなど）など多様な手段を用いることができる。中でも赤外線加熱は装置が簡便であり、また強化繊維シートを直接加熱できるため、走行速度が速くて

も所望の温度まで効率よく加熱が可能であり、好ましい。

[0038] ＜マトリックス樹脂＞

本発明で用いるマトリックス樹脂は、後述する各種樹脂や粒子、硬化剤、更に各種添加剤を含む、樹脂組成物として用いることができる。本発明により得られるプリプレグは、強化繊維シートにマトリックス樹脂が含浸した状態となり、そのままシート状プリプレグとして積層、成形してＦＲＰからなる部材を得ることができる。含浸度は、塗布部の設計や、塗布以降の追含浸により制御することができる。マトリックス樹脂としては、用途に応じ適宜選択可能であるが、熱可塑性樹脂や熱硬化性樹脂を用いることが一般的である。マトリックス樹脂は、加熱し溶融させた溶融樹脂でも室温でマトリックス樹脂のものでも良い。また、溶媒を用いて溶液やワニス化したものでも良い。

[0039] マトリックス樹脂としては、熱可塑性樹脂や熱硬化性樹脂、光硬化性樹脂などＦＲＰに一般的に使用されるものを用いることができる。また、これらは室温で液体であればそのまま用いても良いし、室温で固体や粘稠液体であれば、加温して低粘度化する、あるいは溶融し融液として用いても良いし、溶媒に溶解し溶液やワニス化して用いても良い。

[0040] 熱可塑性樹脂としては、主鎖に、炭素・炭素結合、アミド結合、イミド結合、エステル結合、エーテル結合、カーボネート結合、ウレタン結合、尿素結合、チオエーテル結合、スルホン結合、イミダゾール結合、カルボニル結合から選ばれる結合を有するポリマーを用いることができる。具体的には、ポリアクリレート、ポリオレフィン、ポリアミド（ＰＡ）、アラミド、ポリエステル、ポリカーボネート（ＰＣ）、ポリフェニレンスルフィド（ＰＰＳ）、ポリベンゾイミダゾール（ＰＢＩ）、ポリイミド（ＰＩ）、ポリエーテルイミド（ＰＥＩ）、ポリスルホン（ＰＳＵ）、ポリエーテルスルホン（ＰＥＳ）、ポリエーテルケトン（ＰＥＫ）、ポリエーテルエーテルケトン（ＰＥＥＫ）、ポリエーテルケトンケトン（ＰＥＫＫ）、ポリアリールエーテルケトン（ＰＡＥＫ）、ポリアミドイミド（ＰＡＩ）などを例示できる。航空

機用途などの耐熱性が要求される分野では、ＰＰＳ、ＰＥＳ、ＰＩ、ＰＥＩ、ＰＳＵ、ＰＥＥＫ、ＰＥＫＫ、ＰＡＥＫなどが好適である。一方、産業用途や自動車用途などでは、成形効率を上げるため、ポリプロピレン（ＰＰ）などのポリオレフィンやＰＡ、ポリエステル、ＰＰＳなどが好適である。これらはポリマーでも良いし、低粘度、低温塗布のため、オリゴマーやモノマーを用いても良い。もちろん、これらは目的に応じ、共重合されていても良いし、各種を混合しポリマーブレンド・アロイとして用いることもできる。

[0041] 熱硬化性樹脂としては、エポキシ樹脂、マレイミド樹脂、ポリイミド樹脂、アセチレン末端を有する樹脂、ビニル末端を有する樹脂、アリル末端を有する樹脂、ナジック酸末端を有する樹脂、シアン酸エステル末端を有する樹脂があげられる。これらは、一般に硬化剤や硬化触媒と組合せて用いることができる。また、適宜、これらの熱硬化性樹脂を混合して用いることも可能である。

[0042] 本発明に適した熱硬化性樹脂として、耐熱性、耐薬品性、力学特性に優れていることからエポキシ樹脂が好適に用いられる。特に、アミン類、フェノール類、炭素・炭素二重結合を有する化合物を前駆体とするエポキシ樹脂が好ましい。具体的には、アミン類を前駆体とするエポキシ樹脂として、テトラグリシジルジアミノジフェニルメタン、トリグリシジル－ｐ－アミノフェノール、トリグリシジル－ｍ－アミノフェノール、トリグリシジルアミノクレゾールの各種異性体、フェノール類を前駆体とするエポキシ樹脂として、ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＦ型エポキシ樹脂、ビスフェノールＳ型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、炭素・炭素二重結合を有する化合物を前駆体とするエポキシ樹脂としては脂環式エポキシ樹脂等があげられるが、これに限定されない。またこれらのエポキシ樹脂をブロモ化したブロモ化エポキシ樹脂も用いられる。テトラグリシジルジアミノジフェニルメタンに代表される芳香族アミンを前駆体とするエポキシ樹脂は耐熱性が良好で強化繊維との接着性が良好なため本発明に最も適している。

[0043] 熱硬化性樹脂は硬化剤と組合せて、好ましく用いられる。例えばエポキシ樹脂の場合には、硬化剤はエポキシ基と反応しうる活性基を有する化合物であればこれを用いることができる。好ましくは、アミノ基、酸無水物基、アジド基を有する化合物が適している。具体的には、ジシアンジアミド、ジアミノジフェニルスルホンの各種異性体、アミノ安息香酸エステル類が適している。具体的に説明すると、ジシアンジアミドはプリプレグの保存性に優れるため好んで用いられる。またジアミノジフェニルスルホンの各種異性体は、耐熱性の良好な硬化物を与えるため本発明には最も適している。アミノ安息香酸エステル類としては、トリメチレングリコールジ－ｐ－アミノベンゾエートやネオペンチルグリコールジ－ｐ－アミノベンゾエートが好んで用いられ、ジアミノジフェニルスルホンに比較して、耐熱性に劣るものの、引張強度に優れるため、用途に応じて選択して用いられる。また、もちろん必要に応じ硬化触媒を用いることも可能である。また、マトリックス樹脂のポットライフを向上させる意味から、硬化剤や硬化触媒と錯体形成可能な錯化剤を併用することも可能である。

[0044] また本発明では、熱硬化性樹脂に熱可塑性樹脂を混合して用いることも好適である。熱硬化性樹脂と熱可塑性樹脂の混合物は、熱硬化性樹脂を単独で用いた場合より良好な結果を与える。これは、熱硬化性樹脂が、一般に脆い欠点を有しながらオートクレーブによる低圧成形が可能であるのに対して、熱可塑性樹脂が、一般に強靭である利点を有しながらオートクレーブによる低圧成形が困難であるという二律背反した特性を示すため、これらを混合して用いることで物性と成形性のバランスをとることができるためである。混合して用いる場合は、プリプレグを硬化させてなるＦＲＰの力学特性の観点から熱硬化性樹脂を５０質量％より多く含むことが好ましい。

[0045] ＜ポリマー粒子＞

また、本発明では、ポリマー粒子を含んだマトリックス樹脂を用いると、得られるＣＦＲＰの靭性や耐衝撃性を向上させることができ、好ましい。この時、ポリマー粒子のガラス転移温度（Ｔｇ）または融点（Ｔｍ）はマトリ

ックス樹脂温度よりも２０℃以上高くすると、マトリックス樹脂中でポリマー粒子の形態を保持し易く、好ましい。ポリマー粒子のＴｇは温度変調ＤＳＣを用い、以下の条件で測定することができる。温度変調ＤＳＣ装置としては、ＴＡ　Ｉｎｓｔｒｍｅｎｔｓ社製　Ｑ１０００などが好適であり、窒素雰囲気下、高純度インジウムで校正して用いることができる。測定条件は、昇温速度は２℃／分、温度変調条件は周期６０秒、振幅１℃とすることができる。これで得られた全熱流から可逆成分を分離し、階段状シグナルの中点の温度をＴｇとすることができる。

[0046] また、Ｔｍは通常のＤＳＣで昇温速度１０℃／分で測定し、融解に相当するピーク状シグナルのピークトップ温度をＴｍとすることができる。

[0047] また、ポリマー粒子としては、マトリックス樹脂に溶けないことが好ましく、このようなポリマー粒子としては、例えば、ＷＯ２００９／１４２２３１パンフレット記載などを参照し、適切なものを用いることができる。より、具体的には、ポリアミドやポリイミドを好ましく用いることができ、優れた靭性のため耐衝撃性を大きく向上できる、ポリアミドは最も好ましい。ポリアミドとしてはポリアミド１２、ポリアミド１１、ポリアミド６、ポリアミド６６やポリアミド６／１２共重合体、特開平１－１０４６２４号公報の実施例１記載のエポキシ化合物にてセミＩＰＮ（高分子相互侵入網目構造）化されたポリアミド（セミＩＰＮポリアミド）などを好適に用いることができる。この熱可塑性樹脂粒子の形状としては、球状粒子でも非球状粒子でも、また多孔質粒子でもよいが、球状の方が樹脂の流動特性を低下させないため、本発明の製造法では特に好ましい。また、球状であれば応力集中の起点がなく、高い耐衝撃性を与えるという点でも好ましい態様である。

[0048] ポリアミド粒子の市販品としては、ＳＰ－５００、ＳＰ－１０、ＴＲ－１、ＴＲ－２、８４２Ｐ－４８、８４２Ｐ－８０（以上、東レ（株）製）、“オルガソール（登録商標）”１００２Ｄ、２００１ＵＤ、２００１ＥＸＤ、２００２Ｄ、３２０２Ｄ、３５０１Ｄ，３５０２Ｄ、（以上、アルケマ（株）製）、“グリルアミド（登録商標）”ＴＲ９０（エムザベルケ（株）社製

）、“ＴＲＯＧＡＭＩＤ（登録商標）”ＣＸ７３２３、ＣＸ９７０１、ＣＸ９７０４、（デグサ（株）社製）等を使用することができる。これらのポリアミド粒子は、単独で使用しても複数を併用してもよい。

[0049] また、ＣＦＲＰの層間樹脂層を高靭性化するためには、ポリマー粒子を層間樹脂層に留めておくことが好ましい。そのため、ポリマー粒子の数平均粒径は５～５０μｍの範囲であることが好ましく、より好ましくは７～４０μｍの範囲、さらに好ましくは１０～３０μｍの範囲である。数平均粒径を５μｍ以上とすることで、粒子が強化繊維の束の中に侵入せず、得られる繊維強化複合材料の層間樹脂層に留まることができる。数平均粒径を５０μｍ以下とすることで、プリプレグ表面のマトリックス樹脂層の厚みを適正化し、ひいては得られるＣＦＲＰにおいて、繊維質量含有率を適正化することができる。

[0050] ＜塗布時のマトリックス樹脂粘度＞

本発明で用いるマトリックス樹脂としては、工程通過性・安定性の観点から最適な粘度を選択することが好ましい。具体的には、塗布時のマトリックス樹脂の粘度を１～６０Ｐａ・ｓの範囲とすると、狭窄部出口での液垂れを抑制するとともに強化繊維シートの高速走行性、安定走行性を向上させることができ、好ましい。ここで、粘度は歪み速度３．１４s^{-1}で液溜り部でのマトリックス樹脂温度で測定したものを言う。測定装置としては平行円盤型やコーン型などの粘弾性測定装置を用いることができる。

[0051] ＜塗布工程＞

強化繊維シートとしてＵＤ基材を用いた場合について図１を参照して説明すると、塗工装置１００におけるマトリックス樹脂２を強化繊維シート１ａに付与する方法は、クリール１１から巻き出された複数本の強化繊維１を、配列装置１２によって一方向（紙面奥行き方向）に配列して強化繊維シート１ａを得た後、強化繊維シート１ａを塗布部２０に実質的に鉛直方向下向きＺに通過させて、強化繊維シート１ａの両面にマトリックス樹脂２を付与するものである。これにより、マトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂを得

ることができる。なお、強化繊維ファブリックを用いる場合は、図１のクリール１１を強化繊維ファブリックの巻出し装置に置き換え、図１の配列装置１２をニップロールに置き換えることによって引き出せばよい。さらに、第１および第２の製造方法では、マトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂを追含浸装置に通すことで、第３の製造方法では塗布部を通すことでプリプレグ１ｃを得ることができる。巻取り装置１７でプリプレグ１ｃと離型シート３を同時に巻き取ってもよい。特に、マトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂに付与されたマトリックス樹脂２が搬送ロール１４に至っても、マトリックス樹脂２の一部または全部がマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂ表面に存在し、かつ流動性や粘着性が高い場合には、離型シート３により、マトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂ表面のマトリックス樹脂２の一部が搬送ロール１４に転写されるのを防ぐことができる。さらに、マトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂ同士の接着も防ぐことができ、後工程での取り扱いが容易になる。離型シートとしては、前記効果を奏するものであれば特に制限は無いが、例えば、離型紙の他、有機ポリマーフィルム表面に離型剤を塗布したもの等を挙げることができる。

[0052] 次に図４～６により、強化繊維シート１ａへのマトリックス樹脂２の付与工程について詳述する。図４は、図１、２ａにおける塗布部２０を拡大した詳細横断面図である。塗布部２０は、所定の隙間Ｄを開けて対向する壁面部材２１ａ、２１ｂを備え、壁面部材２１ａ、２１ｂの間には、鉛直方向下向きＺ（すなわち強化繊維シートの走行方向）に断面積が連続的に減少する液溜り部２２と、液溜り部２２の下方（強化繊維シート１ａの搬出側）に位置し、液溜り部２２の上面（強化繊維シート１ａの導入側）の断面積よりも小さい断面積を有するスリット状の狭窄部２３が形成されている。図４において、強化繊維シート１ａは、紙面の奥行き方向に配列されている。

[0053] 塗布部２０において、液溜り部２２に導入された強化繊維シート１ａは、その周囲のマトリックス樹脂２を随伴しながら、鉛直方向下向きＺに走行する。その際、液溜り部２２の断面積は鉛直方向下向きＺ（強化繊維シート１

ａの走行方向）に向かって減少するため、随伴するマトリックス樹脂２は徐々に圧縮され、液溜り部２２の下部に向かうにつれてマトリックス樹脂２の圧力が増大する。液溜り部２２の下部の圧力が高くなると、前記随伴液流がそれ以上は下部に流動し難くなり、壁面部材２１ａ、２１ｂ方向に流れ、その後、壁面部材２１ａ、２１ｂに阻まれ、上方へ流れるようになる。結果、液溜り部２２内では強化繊維シート１ａの平面と、壁面部材２１ａ、２１ｂ壁面に沿った循環流Ｔを形成する。これにより、仮にシート状強化繊維１ａが毛羽を液溜り部２２に持ち込んだとしても毛羽は循環流Ｔに沿って運動し、液圧の大きな液溜り部２２下部や狭窄部２３に近づくことができない。さらに下で述べるとおり、気泡が毛羽に付着することにより毛羽が循環流Ｔから上方に移動し、液溜り部２２の上部液面付近を通過する。そのため、毛羽が液溜り部２２の下部および狭窄部２３に詰まることが防止されるだけでなく、滞留する毛羽は液溜り部２２の上部液面から容易に回収することも可能となる。さらに、強化繊維シート１ａを高速で走行させた場合、前記の液圧はさらに増大するため、毛羽の排除効果がより高くなる。その結果、強化繊維シート１ａにより高速でマトリックス樹脂２を付与することが可能となり、生産性が大きく向上する。

[0054] また、前記の増大した液圧により、マトリックス樹脂２が強化繊維シート１ａの内部に含浸しやすくなる効果がある。これは、強化繊維束のような多孔質体にマトリックス樹脂が含浸される際、その含浸度がマトリックス樹脂の圧力で増大する性質（ダルシーの法則）に基づく。これについても、強化繊維シート１ａをより高速で走行させた場合、液圧がより増大することから、含浸効果をより高めることができる。なお、マトリックス樹脂２は強化繊維シート１ａの内部に残留する気泡と気／液置換で含浸されるが、気泡は前記の液圧と浮力により強化繊維シート１ａの内部の隙間を通って、繊維の配向方向（鉛直方向上向き）に排出される。このとき、気泡は含浸してくるマトリックス樹脂２を押しのけずに排出されるため、含浸を阻害しない効果もある。また、気泡の一部は強化繊維シート１ａの表面から面外方向（法線方

向）に排出されるが、この気泡も前記の液圧と浮力により速やかに鉛直方向上向きに排除されるため、含浸効果の高い液溜り部２２の下部に留まらず、効率よく気泡の排出が進む効果もある。これらの効果により、強化繊維シート１ａにマトリックス樹脂２を効率よく含浸させることが可能となり、その結果、マトリックス樹脂２が均一に含浸された高品質のプリプレグ１ｂを得ることが可能となる。

[0055] さらに、前記の増大した液圧により、強化繊維シート１ａが隙間Ｄの中央に自動的に調心され、強化繊維シート１ａが液溜り部２２や狭窄部２３の壁面に直接擦過せず、ここでの毛羽発生を抑制する効果もある。これは、外乱などにより強化繊維シート１ａが隙間Ｄのどちらかに接近した場合、接近した側ではより狭い隙間にマトリックス樹脂２が押し込まれて圧縮されるため、接近した側で液圧がより増大し、強化繊維シート１ａを隙間Ｄの中央に押し戻すためである。

[0056] 狭窄部２３は、液溜り部２２の上面よりも断面積が小さく設計される。図４や図６ａから理解されるとおり専ら強化繊維シートによる疑似平面の垂線方向の長さが小さい、すなわち壁面部材間の間隔が狭い、ことで断面積は小さくなる。これは、前記のように狭窄部で液圧を高くすることで、含浸効果や自動調心効果を得るためである。また、狭窄部２３の最上部の面の断面形状は、液溜り部２２の最下部の面の断面形状と一致させることが、強化繊維シート１ａの走行性やマトリックス樹脂２の流れ制御の観点から好ましいが、必要に応じ狭窄部２３の方を若干大きな形状としてもよい。

[0057] ここで、図４の塗布部２０では、強化繊維シート１ａが完全に鉛直方向下向きＺ（水平面から９０度）に走行しているが、これに限定されず、前記の毛羽回収、気泡の排出効果が得られ、強化繊維シート１ａが安定して連続走行可能な範囲で、実質的に鉛直方向下向きであればよい。

[0058] また、強化繊維シート１ａに付与されるマトリックス樹脂２の総量は、狭窄部２３の隙間Ｄで制御可能であり、例えば、強化繊維シート１ａに付与するマトリックス樹脂２の総量を多くしたい（目付けを大きくしたい）場合は

、隙間Ｄが広くなるよう、壁面部材２１ａ、２１ｂを設置すればよい。

[0059] 図５は、塗布部２０を、図４のＡの方向から見た下面図である。塗布部２０には、強化繊維シート１ａの配列方向両端からマトリックス樹脂２が漏れるのを防ぐための側壁部材２４ａ、２４ｂが設けられており、壁面部材２１ａ、２１ｂと側壁部材２４ａ、２４ｂに囲われた空間に狭窄部２３の出口２５が形成されている。ここで、出口２５はスリット状をしており、断面アスペクト比（図３のＹ／Ｄ）はマトリックス樹脂２を付与したい強化繊維シート１ａの形状に合わせて設定すればよい。

[0060] 図６ａは塗布部２０を、Ｂの方向から見た場合の塗布部内部の構造を説明する断面図である。なお、図を見やすくするため壁面部材２１ｂは省略してあるほか、強化繊維シート１ａは強化繊維１を、隙間を開けて配列しているように描画しているが、実際には強化繊維１を隙間無く配列することが、シート状プリプレグの品位、ＦＲＰの力学特性の観点から好ましい。

[0061] 図６ｂは隙間２６でのマトリックス樹脂２の流れを示している。隙間２６が大きいとマトリックス樹脂２には、Ｒの向きに渦流れが発生する。この渦流れＲは、液溜り部２２の下部では外側に向かう流れ（Ｒａ）となるため、強化繊維シートを引き裂いてしまう（シート状繊維束の割れが発生する）場合や強化繊維間の間隔を拡げてしまい、そのために強化繊維シートプリプレグとしたときに強化繊維の配列ムラを発生する可能性がある。一方、液溜り部２２の上部では、内側に向かう流れ（Ｒｂ）となるため、強化繊維シート１ａが幅方向に圧縮され、その端部が折れてしまう場合がある。特許文献２（特許第３２５２２７８号公報）に代表されるような、一体物のシート状基材（特にフィルム）にマトリックス樹脂を両面塗布する装置ではこのような隙間２６での渦流れが発生しても品質への影響が少ないため、注意がされていなかった。

[0062] そこで、本発明においては、隙間２６を小さくする幅規制を行い、端部での渦流れの発生を抑制することが好ましい。具体的には、液溜り部２２の幅Ｌ、すなわち、側板部材２４ａと２４ｂの間隔Ｌは、狭窄部２３の直下で測

定した強化繊維シートの幅Wと以下の関係を満たすよう構成することが好ましい。

Ｌ≦Ｗ＋１０（ｍｍ）。

[0063] これにより、端部での渦流れ発生が抑制され、強化繊維シート１ａの割れや端部折れを抑制でき、プリプレグ１ｂの全幅（Ｗ）にわたって均一に強化繊維１が配列された、高品位で安定性の高いプリプレグ１ｂを得ることができる。さらに、この技術をプリプレグに適用した場合には、プリプレグの品位、品質を向上させるのみならず、これを用いて得られるＦＲＰの力学特性や品質を向上させることができる。ＬとＷの関係はより好ましくは、Ｌ≦Ｗ＋２（ｍｍ）とすると、さらに強化繊維シートの割れや端部折れを抑制することができる。

[0064] また、Ｌの下限は、Ｗ－５（ｍｍ）以上となるよう調整することが、プリプレグ１ｂの幅方向寸法の均一性を向上させる観点から好ましい。

[0065] なお、この幅規制は、液溜り部２２下部の高い液圧による渦流れＲ発生を抑制する観点から、少なくとも液溜り部２２の下部（図６ａのＧの位置）で行うことが好ましい。さらに、この幅規制はより好ましくは、液溜り部２２の全域で行うと、渦流れＲの発生をほぼ完全に抑制することができ、その結果、強化繊維シートの割れや端部折れをほぼ完全に抑制することが可能となる。

[0066] また、前記幅規制は、前記隙間２６の渦流れ抑制の観点からは、液溜り部２２だけでもよいが、狭窄部２３も同様に行うとプリプレグ１ｂの側面に過剰なマトリックス樹脂２が付与されることを抑制する観点から好ましい。

[0067] 本発明の第３の製造方法においても、前記した塗布工程は第１、第２の製造方法と基本的に同じであるが、第３の製造方法では、塗布部内に１本以上のバーが設置されており、これにより含浸を進めることが特徴である。それを以下に詳述する。

[0068] 図３を参照して説明すると、塗布部２０の内部で、強化繊維シート１ａを紙面の奥行き方向に延びるバー群３５に接触させることで、強化繊維シート

１ａの内部に含まれる気泡を絞り出して排出し、強化繊維シート１ａの内部により効率よくマトリックス樹脂を含浸させることが可能となる。さらに、必要に応じ、第１、第２の製造方法と同じく、プリプレグ１ｃに離型シート３を付与し、巻き取ることができる。

[0069] 次に、図７を用いて、塗布部での含浸機構を説明する。塗布部４０において、液溜り部２２に導入された強化繊維シート１ａは、マトリックス樹脂２の内部でバー３５ａ、３５ｂ、３５ｃの順に接触しながら、鉛直方向下向きＺに走行する。その際、強化繊維シート１ａはバーに押し付けられ、強化繊維シート１ａとバーの隙間に巻き込まれたマトリックス樹脂２が強化繊維シート１ａの内部に含浸すると同時に、強化繊維シート１ａの内部に含まれていた気泡はバーに絞り出されるように、バーが接触する面とは反対側の面から、強化繊維シート１ａの外部に排出される。これにより、強化繊維シート１ａの内部にまでマトリックス樹脂２を均一に含浸させることが可能となる。また、強化繊維シート１ａの外部に排出された気泡は、浮力により上方へ移動し、液溜り部２２の外部へさらに排出されるため、バー群３５の周辺に気泡が蓄積することもない。さらにバー群３５を通過した強化繊維シート１ａは、その周囲のマトリックス樹脂２を随伴しながら、鉛直方向下向きＺに走行する。その際、液溜り部２２の断面積は鉛直方向下向きＺ（強化繊維シート１ａの走行方向）に向かって減少するため、随伴するマトリックス樹脂２は徐々に圧縮され、液溜り部２２の下部に向かうにつれてマトリックス樹脂２の圧力が増大する。液溜り部２２の下部の圧力が高くなると、前記随伴液流がそれ以上は下部に流動し難くなり、壁面部材２１ａ、２１ｂ方向に流れ、その後、壁面部材２１ａ、２１ｂに阻まれ、上方へ流れるようになる。結果、液溜り部２２内では強化繊維シート１ａの平面と、壁面部材２１ａ、２１ｂ壁面に沿った循環流Ｔを形成する。これにより、仮に強化繊維シート１ａが毛羽を液溜り部２２に持ち込んだり、強化繊維シート１ａとバー群３５の接触により毛羽が発生したりしても、毛羽は循環流Ｔに沿って運動し、液圧の大きな液溜り部２２下部や狭窄部２３に近づくことができない。さら

に下で述べるとおり、気泡が毛羽に付着することにより毛羽が循環流Ｔから上方に移動し、液溜り部２２の上部液面付近を通過する。そのため、毛羽が液溜り部２２の下部および狭窄部２３に詰まることが防止されるだけでなく、滞留する毛羽は液溜り部２２の上部液面から容易に回収することも可能となる。さらに、強化繊維シート１ａを高速で走行させた場合、前記の液圧はさらに増大するため、毛羽の排除効果がより高くなる。その結果、強化繊維シート１ａにより高速でマトリックス樹脂２を付与することが可能となり、生産性が大きく向上する。

[0070] また、前記の増大した液圧により、マトリックス樹脂２が強化繊維シート１ａの内部に含浸する効果もある。これは、強化繊維束のような多孔質体にマトリックス樹脂が含浸される際、その含浸度がマトリックス樹脂の圧力で増大する性質（ダルシーの法則）に基づく。仮に、バー群３５で強化繊維シート１ａへのマトリックス樹脂２の含浸が不十分であっても、液溜り部２２の下部で再びマトリックス樹脂２が含浸するため、より含浸度の高いプリプレグ１ｂを得ることができる。また、これについても、強化繊維シート１ａをより高速で走行させた場合、液圧がより増大することから、含浸効果をより高めることができる。

[0071] さらに、前記の増大した液圧により、強化繊維シート１ａが隙間Ｄの中央に自動的に調心され、強化繊維シート１ａが液溜り部２２や狭窄部２３の壁面に直接擦過せず、ここでの毛羽発生を抑制する効果もある。これは、外乱などにより強化繊維シート１ａが隙間Ｄのどちらかに接近した場合、接近した側ではより狭い隙間にマトリックス樹脂２が押し込まれて圧縮されるため、接近した側で液圧がより増大し、強化繊維シート１ａを隙間Ｄの中央に押し戻すためである。

[0072] また、強化繊維シート１ａに付与されるマトリックス樹脂２の総量は、狭窄部２３の隙間Ｄで制御可能であり、例えば、強化繊維シート１ａに付与するマトリックス樹脂２の総量を多くしたい（目付けを大きくしたい）場合は、隙間Ｄが広くなるよう、壁面部材２１ａ、２１ｂを設置すればよい。

[0073] ここで、図７の塗布部４０では、強化繊維シート１ａが完全に鉛直方向下向きＺ（水平面から９０度）に走行している部分もあるが、これに限定されず、前記の毛羽回収、気泡の排出効果が得られ、強化繊維シート１ａが安定して連続走行可能な範囲で、実質的に鉛直方向下向きであればよい。またバー群３５に接触する際、強化繊維シート１ａの走行方向が変化するが、これについても強化繊維シート１ａから排出された気泡がバー群３５の周辺に蓄積しない範囲で、実質的に鉛直方向下向きであればよい。

[0074] 次に、バーの配置と形状について詳述する。図７の塗布部４０では、バー群３５が３本のバー３５ａ、３５ｂ、３５ｃで構成されている例を示したが、これに限定されず、バーの本数は１本以上であればよい。また、図７の塗布部４０ではすべてのバーがマトリックス樹脂２の内部に沈むように配置されているが、これに限定されず、少なくとも１本以上のバーがマトリックス樹脂２の内部に沈むように配置されていればよい。ただしマトリックス樹脂２の内部で強化繊維シート１ａと接触するバーの本数が多いほど、前記のマトリックス樹脂含浸効果が高くなることから、複数のバーをマトリックス樹脂２の内部に沈むように配置することが好ましい。

[0075] 図８はマトリックス樹脂２の内部でバー３５に接触する強化繊維シート１ａの詳細横断面図である。強化繊維シート１ａとバー３５は、抱き角αで接触している。ここで抱き角αとは、強化繊維シート１ａがバー３５と接触する点Ｐ１と、強化繊維シート１ａがバー３５から離れる点Ｐ２を結ぶ弧が、バー３５の中心点Ｐｃとなす角度である。ここで、抱き角αが大きいほど強化繊維シート１ａとバー３５が接触する距離が長くなり、強化繊維シート１ａとバー３５の隙間に巻き込まれたマトリックス樹脂２が強化繊維シート１ａの内部に含浸しやすくなるが、同時に強化繊維シート１ａがバー３５と擦過して毛羽が発生する可能性が高まる。特に、強化繊維シート１ａとバー３５の隙間に巻き込まれたマトリックス樹脂２が強化繊維シート１ａの内部に完全に含浸して枯渇すると、強化繊維シート１ａとバー３５とが直接擦過するため、毛羽の発生する可能性が急激に高まる。強化繊維シート１ａとバー

３５の接触面で毛羽が発生し堆積すると、強化繊維シート１ａの走行が乱れ、均一なプリプレグ１ｂを得られなくなることから、強化繊維シート１ａとバー３５がなす抱き角αは毛羽が堆積しない程度に小さくすることが好ましい。具体的には、強化繊維シート１ａとバー３５がなす抱き角αは４０°以下にすることが好ましく、より好ましくは、２０°以下である。一方、十分なマトリックス樹脂の含浸を得るためには、抱き角αは１０°以上とする必要がある。

[0076] ここで図７の塗布部４０では、バー３５の断面形状が円形の例を示したが、これに限定されず、バーの断面形状は円形以外でもよい。例えば、図９（Ａ）のように角を丸めた矩形や、図９（Ｂ）のように楕円形でもよい。ただし、毛羽を抑制する観点から、強化繊維シート１ａと接触する面は鋭利な角部がなく、滑らかな曲線で構成されていることが好ましい。

[0077] またバー３５は内部が稠密である必要はなく、例えば内部が空洞のパイプでもよい。またバー３５の断面の直径（または代表長さ）は特に規定しないが、バー３５の直径が大きくなると強化繊維シート１ａとバー３５が接触する長さが長くなり、前記のとおり毛羽の発生する可能性が高まることから、バー３５が強化繊維シート１ａの張力で変形しない程度に、直径を小さくすることが好ましい。またバー３５の変形を抑制する観点から、バーの材質はステンレスなどの剛性の高い金属であることが好ましい。

[0078] さらに、バー３５の表面は滑らかに仕上げることが好ましい。これは強化繊維シート１ａがバー３５に接触した際に毛羽を発生させにくくするためである。

[0079] ここで、バー３５として塗布部４０の中で回転するロールを用いても前記のマトリックス樹脂含浸効果を得られるが、塗布部４０の中で回転するロールに強化繊維シート１ａを接触させると、マトリックス樹脂２の粘性によって強化繊維シート１ａの一部がロールに巻き付き、強化繊維シート１ａが走行不能になる場合があるため、バー３５は回転しない固定の部材であることが好ましい。

[0080] また図３に示すように、塗布部４０の鉛直方向上側にガイドロール（搬送ロール）１３を備え、水平方向に走行する強化繊維シート１ａをガイドロール１３に接触させて走行方向を鉛直方向下向きに変えた後で塗布部２０に案内すると、塗工装置１００の鉛直方向高さを低く抑えることが可能となり、塗工装置１００を設置する建屋の建設費を削減する観点から好ましい。

[0081] このとき、バー群３５の最上段に位置するバー３５ａは、ガイドロール１３と接触する強化繊維シート１ａの面とは反対側の面で、強化繊維シート１ａと接触することが好ましい。これは、ガイドロール１３上を走行する強化繊維シート１ａには、周長差によりその厚み方向に僅かに速度差が生じているが、バー３５ａがガイドロール１３と同じ側の面で強化繊維シート１ａと接触すると、上記の速度差がさらに蓄積し、塗布部４０の内部で強化繊維シート１ａに弛みが生じるためである。

[0082] ＜幅規制機構＞

第１の製造方法、第２の製造方法では、前記に幅規制を側壁部材２４ａ、２４ｂが担う場合を示したが、図１０に示すように、側壁部材２４ａ、２４ｂ間に幅規制機構２７ａ、２７ｂを設け、かかる機構で幅規制を行うこともできる。これにより、幅規制機構によって規制される幅を自在に変更可能とすることで一つの塗布部により、種々の幅のマトリックス樹脂含浸強化繊維シートを製造できる観点から好ましい。ここで、狭窄部の直下におけるマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの幅（Ｗ）と該幅規制機構下端において幅規制機構により規制される幅（Ｌ２）との関係はＬ２≦Ｗ＋１０（ｍｍ）とすることが好ましく、より好ましくは、Ｌ２≦Ｗ＋２（ｍｍ）である。また、Ｌ２の下限は、Ｗ－５（ｍｍ）以上、さらに好ましくはＷ（ｍｍ）以上となるよう調整することが、マトリックス樹脂含浸強化繊維シートプリプレグ１ｂの幅方向寸法の均一性を向上させる観点から好ましい。幅規制機構の形状および材質に特に制限は無いが、板形状ブッシュであると簡便であり、好ましい。また、上部、すなわち液面に近い場所では壁面部材２１ａ、２１ｂとの間隔よりも小さい幅（図１０参照。「Ｚ方向からみた図」中、幅規制機

構の上下方向の長さを指す）を有することで、マトリックス樹脂の水平方向の流れを妨げないようにでき、好ましい。一方、幅規制機構の中間部から下部にかけては塗布部の内部形状に沿った形状とすることが液溜り部でのマトリックス樹脂の滞留を抑制でき、マトリックス樹脂の劣化を抑制できることから好ましい。この意味から、幅規制機構は狭窄部２３まで挿入されることが好ましい。図１０は、幅規制機構として板状ブッシュ２７の例を示しているが、ブッシュの中間より下部が液溜り部２２のテーパー形状に沿い、狭窄部２３まで挿入される例を示している。図１０にはＬ２が液面から出口まで一定の例を示しているが、幅規制機構の目的を達成する範囲で部位によって規制する幅を変更してもよい。幅規制機構は任意の方法で塗布部２０に固定することができるが、板形状ブッシュ２７の場合には、上下方向で複数の部位で固定することで、高液圧による板形状ブッシュ２７の変形による規制幅の変動を抑制することができる。例えば、上部はステーを用い、下部は塗布部に差し込むようにすると、幅規制機構による幅の規制が容易であり、好ましい。

[0083] また、第３の製造方法では幅規制を次のようにして行うこともできる。図１１は図７の塗布部４０をＢの方向から見た場合の、詳細断面図である。説明のため、壁面部材２１ｂは省略している。図１１のバー群３５は、いずれも一様な断面を有する円柱形状である。図１１の塗布部４０において、強化繊維シート１ａをバー３５に接触させながら鉛直方向下向きＺに走行させると、強化繊維シート１ａとバー３５の隙間に巻き込まれたマトリックス樹脂２は、強化繊維シート１ａの内部に含浸するだけでなく、強化繊維シート１ａの両端部から図１１のＥの方向に流れ、逃げようとする。強化繊維シート１として強化繊維１を一方向に配列させた一方向材（ＵＤ基材）を用いる場合、この流れに乗って、強化繊維シート１ａの両端部の繊維も図１１のＥの方向に広がると、強化繊維シート１ａの幅が変化したり、強化繊維シート１ａの両端部の繊維の密度が低下したりして、均一な品質のプリプレグ１ｂを得られなくなる。また、強化繊維シート１ａとして強化繊維ファブリックを

用いる場合も、前記のマトリックス樹脂２の流れによって強化繊維ファブリックの両端部が引っ張られ、幅が変化する恐れがある。また、最悪の場合は強化繊維シート１ａの両端部がバー群３５から脱落し、走行不能となる可能性がある。

[0084] 図１２は図１１とは異なる実施形態の塗布部４１の詳細断面図である。図１２の塗布部４１では、一様な断面を有するバー群３５の代わりに、両端部に幅規制部材を有するバー群３６が具備されている。図１２の塗布部４１では、強化繊維シート１ａをバー群３６に接触させながら鉛直方向下向きＺに走行させても、強化繊維シート１ａは図１２のＥの方向への広がりが抑制され、強化繊維シート１ａの繊維の密度を均一に維持することができる。また、バー群３６から強化繊維シート１ａの両端部が脱落することもない。幅規制部材としては、図１３に示すようにそれぞれのバーの両端に直径の大きな円板状の部材を設けてもよいし、図１４に示すように複数のバーを２枚の平行な板で挟み込んでもよい。また、図１５のように液溜り部の側板部材２４とバー群３６を接触させ、側板部材２４を幅規制部材としてもよい。なお、図１３に示す幅規制部材を用いる場合、バーの両端の円板状の部材の直径ｄ２は、ｄ２≧ｄ１＋１（ｍｍ）の関係を満たすことが好ましい。これは、強化繊維シート１ａがバーの両端から脱落するのを防ぐためである。また、円板状の部材の厚みＷ３は、円板状の部材が強化繊維シート１ａに押されて変形しない程度に大きければ良い。具体的には、Ｗ３は１ｍｍ以上とすることが好ましい。

[0085] また図１２の塗布部４１において、バー群３６の幅規制部材の内側の間隔Ｗ２は、スリット状出口の幅Ｗ１以下であることが好ましい。これは、バー群３６の幅規制部材の内側の間隔Ｗ２がスリット状出口の幅Ｗ１よりも広いと、バー群３６で幅の広がった強化繊維シート１ａが幅の狭いスリット状出口を通過するため、強化繊維シート１ａの両端部がスリット状出口で擦過し、毛羽が発生する虞があるためである。また、バー群３６の幅規制部材の内側の間隔Ｗ２がスリット状出口の幅Ｗ１に対して狭すぎると、バー群３６を

通過した幅の狭い強化繊維シート１ａが、スリット状出口で急激に幅が広げられ、強化繊維シート１ａの両端部で繊維の配列が乱れる場合がある。具体的には、バー群３６の幅規制部材の内側の間隔Ｗ２とスリット状出口の幅Ｗ１の差が１０ｍｍを超えると、強化繊維シート１ａの両端部で繊維の配列が乱れる場合がある。これらのことから、バー群３６の幅規制部材の内側の間隔Ｗ２とスリット状出口の幅Ｗ１は、０≦Ｗ１－Ｗ２≦１０（ｍｍ）の関係を満たすことが好ましい。より好ましくは０≦Ｗ１－Ｗ２≦５（ｍｍ）、さらに好ましくはＷ１－Ｗ２＝０（Ｗ１＝Ｗ２）である。

[0086] ＜液溜り部の形状＞

前記で詳述したように、本発明においては、液溜り部２２で強化繊維シートの走行方向に断面積が連続的に減少することで、強化繊維シートの走行方向に液圧を増大させることが重要であるが、ここで強化繊維シートの走行方向に断面積が連続的に減少するとは、走行方向に連続的に液圧を増大可能であれば、その形状には特に制限は無い。液溜り部の横断面図において、テーパー状（直線状）であったり、ラッパ状などのように曲線的な形態を示してもよい。また、断面積減少部は液溜り部全長にわたって連続してもよいし、本発明の目的、効果が得られる範囲であれば、一部に断面積が減少しない部分や逆に拡大する部分を含んでいてもよい。これらについて、以下に図１６～１９で例を挙げて詳述する。

[0087] 図１６は、図４とは別の実施形態の塗布部２０ｂの詳細横断面図である。液溜り部２２を構成する壁面部材２１ｃ、２１ｄの形状が異なる以外は、図４の塗布部２０と同じである。図１６の塗布部２０ｂのように、液溜り部２２が、鉛直方向下向きＺに断面積が連続的に減少する領域２２ａと、断面積が減少しない領域２２ｂに分かれていてもよい。このとき、断面積が連続的に減少する鉛直方向高さＨは１０ｍｍ以上であることが好ましい。さらに好ましい断面積が連続的に減少する鉛直方向高さＨは５０ｍｍ以上である。これにより、強化繊維シート１ａによって随伴されたマトリックス樹脂２が、液溜まり部２２の断面積が連続的に減少する領域２２ａで圧縮される距離が

確保され、液溜り部２２の下部で発生する液圧を十分に増大させることができる。その結果、液圧により毛羽が狭窄部２３に詰まるのを防止し、また液圧によりマトリックス樹脂２が強化繊維シート１ａに含浸する効果を得ることができる。

[0088] ここで、図４の塗布部２０や図１６の塗布部２０ｂのように、液溜り部２２の断面積が連続的に減少する領域２２ａをテーパー状とする場合、テーパーの開き角度θは小さい方が好ましく、具体的には鋭角（９０°以下）にすることが好ましい。これにより、液溜り部２２の断面積が連続的に減少する領域２２ａ（テーパー部）でマトリックス樹脂２の圧縮効果を高め、高い液圧を得やすくすることができる。

[0089] 図１７は、図１６とは別の実施形態の塗布部２０ｃの詳細横断面図である。液溜り部２２を構成する壁面部材２１ｅ、２１ｆの形状が２段テーパー状となっている以外は、図１６の塗布部２０ｂと同じである。このように、液溜り部２２の断面積が連続的に減少する領域２２ａを２段以上の多段テーパー部で構成してもよい。このとき、狭窄部２３に最も近いテーパー部の開き角度θを鋭角にするのが、前記の圧縮効果を高める観点から好ましい。またこの場合も、液溜り部２２の断面積が連続的に減少する領域２２ａの高さＨを１０ｍｍ以上にすることが好ましい。さらに好ましい断面積が連続的に減少する鉛直方向高さＨは５０ｍｍ以上である。図１７のように液溜り部２２の断面積が連続的に減少する領域２２ａを多段のテーパー部にすることで、液溜り部２２に貯留できるマトリックス樹脂２の体積を維持しつつ、狭窄部２３に最も近いテーパー部の角度θをより小さくすることができる。これにより液溜り部２２の下部で発生する液圧がより高くなり、毛羽の排除効果やマトリックス樹脂２の含浸効果をさらに高めることが可能となる。

[0090] 図１８は、図１６とは別の実施形態の塗布部２０ｄの詳細横断面図である。液溜り部２２を構成する壁面部材２１ｇ、２１ｈの形状が階段状となっている以外は、図１６の塗布部２０ｂと同じである。このように、液溜り部２２の最下部に断面積が連続的に減少する領域２２ａがあれば、本発明の目的

である液圧の増大効果は得られるため、液溜り部２２の他の部分に断面積が断続的に減少する領域２２ｃを含んでいてもよい。液溜り部２２を図２１のような形状にすることで、断面積が連続的に減少する領域２２ａの形状を維持しつつ、液溜り部２２の奥行きＢを拡大して貯留できるマトリックス樹脂２の体積を大きくすることができる。その結果、塗布部２０ｄにマトリックス樹脂２を連続して供給できない場合でも、長時間強化繊維シート１ａにマトリックス樹脂２を付与し続けることが可能となり、強化繊維シートプリプレグ１ｂの生産性がより向上する。

[0091] 図１９は、図１６とは別の実施形態の塗布部２０ｅの詳細横断面図である。液溜り部２２を構成する壁面部材２１ｉ、２１ｊの形状がラッパ状（曲線状）となっている以外は、図１６の塗布部２０ｂと同じである。図１６の塗布部２０ｂでは、液溜り部２２の断面積が連続的に減少する領域２２ａはテーパー状（直線状）だが、これに限定されず、例えば図１９のようにラッパ状（曲線状）でもよい。ただし、液溜り部２２の下部と、狭窄部２３の上部は滑らかに接続することが好ましい。これは、液溜り部２２の下部と、狭窄部２３の上部の境界に段差があると、強化繊維シート１ａが段差に引っ掛かり、この部分で毛羽が発生する懸念があるためである。また、このように液溜り部２２の断面積が連続的に減少する領域をラッパ状とする場合は、液溜り部２２の断面積が連続的に減少する領域２２ａの最下部における仮想接線の開き角度θを鋭角にするのが好ましい。

[0092] なお、上記は滑らかに断面積が減少する例をあげて説明したが、本発明の目的を損なわない限り、本発明において液溜まり部の断面積は必ずしも滑らかに減少しなくともよい。

[0093] 図２０は本発明とは別の実施形態の塗布部３０の詳細横断面図である。本発明の実施形態とは異なり、図２０の液溜り部３２は鉛直方向下向きＺに断面積が連続的に減少する領域を含まず、狭窄部２３との境界３３で断面積が不連続で急激に減少する構成である。このため、強化繊維シート１ａが狭窄部で詰まり易い。

[0094] ＜走行機構＞

強化繊維シートや本発明のプリプレグを搬送するための走行機構としては、公知のローラー等を好適に用いることができる。本発明では強化繊維シートが鉛直下向きに搬送されるため、塗布部を挟んで上下にローラーを配置することが好ましい。

[0095] また、本発明では、強化繊維の配列乱れや毛羽立ちを抑制するため、強化繊維シートの走行経路はなるべく直線状であることが好ましい。また、プリプレグと離型シートの積層体であるシート状一体物の搬送工程において、屈曲部を有すると、内層と外層の周長差による皺が発生する場合が有るため、シート状一体物の走行経路もなるべく直線状であることが好ましい。この観点からは、シート状一体物の走行経路中では、ニップロールを用いる方が好ましい。

[0096] Ｓ字ロールとニップロールのどちらを用いるかは、製造条件や製造物の特性に応じ、適宜選択することが可能である。

[0097] ＜追含浸＞

本発明においては塗布部で含浸が進むが、その後、更に含浸を進めるために追含浸を行うことができる。

[0098] 本発明において、特にマトリックス樹脂２を室温よりも高い温度に加熱して強化繊維シート１ａに塗布する場合、塗布部２０直下のマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂの温度は室温よりも高い状態である。そのため、塗布部を出てすぐ追含浸を行うと、室温まで冷却されずマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂを再昇温するための熱板などの加熱装置を省略あるいは簡略化することが可能となる。本発明では、塗布部直下に追含浸装置１９を具備し、追含浸することで所望の含浸度に調整したプリプレグ１ｃを得ることができる。このため、塗布部出口から追含浸開始点までの距離Ｎが１ｍ以内である。Ｎは好ましくは０．５ｍ以下である。

[0099] 第１の製造方法では、図１に示すように追含浸装置として非接触の加熱装置を配置し、非接触での加熱による追含浸を行うことができる。このときは

、マトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂに含有されるマトリックス樹脂の温度を高めることで低粘度化し、毛細管現象により含浸を進めることができる。このためには、加熱終了点でのマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度をＰ２（℃）、塗布部の内部に貯留されたマトリックス樹脂温度をＭ（℃）としたとき、式１を充足することが重要である。

Ｍ≦Ｐ２　（式１）。

[0100] Ｐ２（℃）は好ましくはＭ＋３０（℃）以上であると、より含浸が進み易く、好ましい。また、この時、塗布部出口から追含浸開始点までの距離は、塗布部出口から非接触式の加熱装置による加熱開始点までの距離Ｎ２とする（図２６参照）。

[0101] 非接触加熱の手段としては、赤外線、遠赤外線、レーザー、熱媒（例えばスチームなど）などを用いることができるが、赤外線が最も簡便であり、好ましい。加熱距離については、所望の温度までマトリックス樹脂含浸強化繊維シートまで昇温できれば特に制限はないが、装置を簡略にする意味から１ｍ以下とすることが好ましい。加熱距離は好ましくは０．５ｍ以下である。

[0102] また、非接触の加熱装置を用いることで、マトリックス樹脂含浸強化繊維シートに対しての加圧を行わないため、マトリックス樹脂の表面張力などにより、強化繊維層が乱れる場合がある。このため、非接触加熱による追含浸を行った後、加圧することでプリプレグの形状や強化繊維層の形状や配置を整えることも好ましい、加圧手段としては、ニップロールやＳ字ロールなどを用いることができる。

[0103] 次に、第２の製造方法では、図２ｂや図２ｃに示すように、追含浸装置として加圧手段を備えた物を使用することができる。第２の製造方法では、塗布部出口から追含浸の加圧開始点までの距離Ｎが１ｍ以下であり、追含浸前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度Ｐ（℃）が塗布部の内部に貯留されるマトリックス樹脂温度Ｍ（℃）に対し式２の関係を満たすことで、装置をコンパクト化、あるいは加熱装置を簡略化しながらも、所望の含浸度が得られる。

Ｍ－３０　≦　Ｐ　（式２）。

[0104] 塗布部２０の内部に貯留されるマトリックス樹脂温度Ｍ（℃）は熱電対により測定することができる。追含浸前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度Ｐ（℃）は放射温度計で測定することができる。なお、測定対象により放射率が異なるが、放射率は一律０．９５として測定するものとする。マトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂの表面温度Ｐ（℃）の測定位置は追含浸の加圧開始点を起点として塗布部２０側へ１０ｃｍの距離の場所で測定を行う。塗布部出口から追含浸の加圧開始点までの距離Ｎが１０ｃｍ未満の場合は、取り回し上測定が難しい場合があるが、可能な限り加圧開始点に近い場所のマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂの表面温度Ｐ（℃）を測定する。なお、測定点はマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂの幅方向中央部とする。測定に用いる温度計の一例としては、赤外線放射温度計ＡＤ－５６１１Ａ（（株）エー・アンド・デイ製、放射率０．９５固定）を用い測定することができる。

[0105] なお、第１の製造方法、第２の製造方法において、塗布部での含浸と区別するために、塗布部２０直下でマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂをさらに含浸することを追含浸、追含浸し得られたシートをプリプレグ１ｃと称する。

[0106] また、図２ｃに示すように本発明では離型シート３を付与することで、製造工程中にマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂやプリプレグ１ｃに接触するロールや装置のマトリックス樹脂による汚染が防止でき、マトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂやプリプレグ１ｃの走行性が向上するため、マトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂを追含浸する前に離型シート３を付与することもできる。本発明で付与する離型シート３は、マトリックス樹脂２を室温よりも高い温度に加熱して強化繊維シート１ａに塗布する場合、マトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂに離型シート３を付与する前に離型シートの加熱を行ってもよい。離型シート３を付与する前に加熱することで、接触するマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂの表面温度が大幅に

低下し含浸度が低下することを抑制できるので好ましい。この離型シート３を付与前に加熱することで、追含浸装置中の加熱装置を省略あるいは簡略化できる。マトリックス樹脂含浸強化繊維シートに付与する前の離型シート表面温度Ｔ（℃）は、離型シートを付与する前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂの表面温度Ｋ（℃）よりも低すぎると装置の省略あるいは簡略化の効果が小さく、逆にマトリックス樹脂含浸強化繊維シートに接触する前の離型シートの表面温度Ｔ（℃）が高すぎると追含浸時にマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂからマトリックス樹脂がはみ出し、追含浸の継続が困難になる。そのため、以下の式３を満たす範囲にＴとＫを設定することで高い含浸度が得られ、さらにマトリックス樹脂のはみ出しを抑制でき好ましい。

Ｋ－１０　≦　Ｔ　≦　Ｋ＋５０　（式３）。

[0107] 離型シート３の加熱を行う際の加熱装置は特に制限なく、加熱手段としては、空気加熱、赤外線加熱、遠赤外線加熱、レーザー加熱、接触加熱、熱媒加熱（スチームなど）など多様な手段を用いることができる。

[0108] なお、追含浸前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂの表面温度Ｐ（℃）、マトリックス樹脂含浸強化繊維シートに付与する前の離型シートの表面温度Ｔ（℃）、離型シートを付与する前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度Ｋ（℃）は放射温度計で測定することができる。測定対象により放射率が異なるが、放射率は一律０．９５として測定するものとする。一例としては、赤外線放射温度計ＡＤ－５６１１Ａ（（株）エー・アンド・デイ製、放射率０．９５固定）を用い測定することができる。追含浸前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂの表面温度Ｐ（℃）は離型シート３が付与されている場合は、直接測定ができないため、付与した離型シートの表面温度を測定しＰ（℃）とする。Ｐの測定位置は追含浸の加圧開始点を起点として塗布部２０側へ１０ｃｍの距離で測定を行う。塗布部出口から追含浸の加圧開始点までの距離Ｎが１０ｃｍ未満の場合や追含浸の加圧開始点からマトリックス樹脂含浸強化繊維シートと離型シートの接する場所まで

の距離が１０ｃｍ未満の場合は、取り回し上測定が難しい場合があるが、可能な限り加圧開始点に近い場所を測定することとする。離型シート３の表面温度Ｔ（℃）の測定位置は離型シート３とマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂとが接する場所を起点とし、離型シート供給装置１８側に１０ｃｍの距離の場所で測定を行う。なお、測定点は離型シート３の幅方向中央部とする。離型シートを付与する前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂの表面温度Ｋ（℃）の測定位置は離型シート３と接する場所を起点として塗布部２０側へ１０ｃｍの距離の場所で測定を行う。塗布部出口からマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂと離型シート３とが接する場所までの距離が１０ｃｍ未満の場合、可能な限りマトリックス樹脂含浸シートと離型シートが接する場所に近い場所で測定する。なお、測定点はマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂの幅方向中央部とする。なお、第１の製造方法における熱終了点でのマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度Ｐ２（℃）も同様に放射温度計で測定が可能である。測定位置は非接触加熱装置から１０ｃｍ下流のプリプレグの表面温度を測定するものとする。

[0109] 第２の製造方法において、追含浸装置１９の加圧方式としては特に制限はない。ロール径や設定圧力、プリプレグとロールの接触長を減じることができ装置を小型化できるニップロール方式や、加圧面積を広く取ることで、含浸とともに引き取り能力も得られるＳ字ロール方式を好ましく例示できる。加圧方式がニップロールの場合、ニップロールにかかる力をプリプレグ幅で割り返した含浸荷重は０．１Ｎ／ｍｍ～４０Ｎ／ｍｍ以下であることが好ましい。低すぎる場合含浸度が低く、高すぎる場合マトリックス樹脂が幅方向にはみ出したり、プリプレグの幅が過多に広がったりしてしまい、狙いとする目付のプリプレグが得られないことがある。

[0110] また、マトリックス樹脂２を室温よりも高い温度に加熱して強化繊維シート１ａに塗布する場合であって、追含浸時加圧にロールを用いる場合、ロールには加熱機構があることが好ましい。これによりマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂの表面温度の低下を抑制でき、高い含浸性が得られる。ま

た、追含浸装置には加圧前に加熱装置があってもよい。加圧前にマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂを加熱することで、マトリックス樹脂の温度が高まり、マトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂにおけるマトリックス樹脂の粘度が低下し、高い含浸性が得られるが、装置が大掛かりになることに注意が必要である。含浸性を高めるには追含浸加圧前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂにおけるマトリックス樹脂の粘度が低ければよい。そのため加圧前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂにおけるマトリックス樹脂の粘度は歪み速度３．１４ｓ$^{-1}$で測定したとき８０Ｐａ・ｓ以下であることが好ましい。なお、加圧前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シート１ｂにおけるマトリックス樹脂の粘度を直接測定することが困難であるため、先に記載の追含浸進入前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シート表面温度Ｐ（℃）における、歪み速度３．１４$^{-1}$で測定したマトリックス樹脂粘度が８０Ｐａ・ｓ以下であることが好ましい。

[0111] その他追含浸装置としては以下に例示する装置を適宜選択することもできる。例えば、特開２０１１－１３２３８９号公報やＷＯ２０１５／０６０２９９パンフレット記載のように、シート状炭素繊維束と樹脂の積層体を、熱板で予熱しシート状炭素繊維束上の樹脂を十分軟化させた後、やはり加熱されたニップロールで加圧する装置を用いることで含浸を進めることができる。予熱のための熱板温度やニップロール表面温度、ニップロールの線圧、ニップロールの直径・数は所望の含浸度になるように適宜選択することができる。また、ＷＯ２０１０／１５００２２パンフレット記載のようなプリプレグシートがＳ字型に走行する“Ｓ－ラップロール”を用いることも可能である。本発明では“Ｓ－ラップロール”を単に“Ｓ字ロール”と称することとする。ＷＯ２０１０／１５００２２パンフレット図１ではプリプレグシートがＳ字型に走行する例が記載されているが、含浸が可能であれば、Ｕ字型や、Ｖ型またはΛ型のようにシートとロールの接触長を調整してもよい。また、含浸圧を高め含浸度を上げる場合には、対向するコンタクトロールを付加することも可能である。さらにＷＯ２０１５／０７６９８１パンフレット図

４記載のように、“Ｓ－ラップロール”に対向してコンベヤーベルトを配することで含浸効率を向上させ、プリプレグの製造速度の高速化をはかることも可能である。また、ＷＯ２０１７／０６８１５９パンフレットや特開２０１６－２０３３９７号公報などに記載のように、含浸前にプリプレグに超音波を付与し、プリプレグを急速昇温することで、含浸効率を向上させることも可能である。また、特開２０１７－１５４３３０号公報記載のように、超音波発生装置で複数の“しごき刃”振動させる含浸装置を用いることも可能である。また、特開２０１３－２２８６８号公報記載のようにプリプレグを折り畳んで含浸することも可能である。

[0112] ＜含浸度＞

本発明の製造方法で得られるプリプレグにおいてマトリックス樹脂の含浸の様子は、採取したプリプレグを裂き、内部を目視することで含浸の有無を確認することができ、より定量的には例えば剥離法で評価することが可能である。剥離法によるマトリックス樹脂の含浸率は以下のようにして測定することができる。すなわち、採取したプリプレグを粘着テープで挟み、これを剥離し、マトリックス樹脂が付着した強化繊維とマトリックス樹脂が付着していない強化繊維を分離する。そして、投入した強化繊維シート全体の質量に対するマトリックス樹脂が付着した強化繊維の質量の比率を剥離法によるマトリックス樹脂の含浸率とすることができる。剥離法による含浸度が８０％以上であるとき、プリプレグの取り扱いの観点から好ましい。

[0113] ＜高張力引き取り装置＞

本発明では、塗布部からプリプレグを引き出すための高張力引き取り装置を塗布部より工程下流に配置することが好ましい。これは、塗布部で、強化繊維シートとマトリックス樹脂の間で高い摩擦力、せん断応力が発生するため、それに打ち勝ってプリプレグを引き出すためには、工程下流で高い引き取り張力を発生させることが好ましいためである。高張力引き取り装置としては、ニップロールやＳ字ロールなどを用いることができるが、いずれもロールとプリプレグの間の摩擦力を高めることで、スリップを防止し、安定し

た走行を可能とすることができる。このためには、摩擦係数の高い材料をロール表面に配したり、ニップ圧力やＳ字ロールへのプリプレグの押し付け圧を高くすることが好ましい。スリップを防止する観点からは、Ｓ字ロールの方がロール径や接触長などで容易に摩擦力を制御でき、好ましい。

[0114] ＜離型シート供給装置、ワインダー＞

本発明を用いてのプリプレグやＦＲＰの製造においては適宜離型シート供給装置やワインダーを用いることができ、そのようなものとしては公知のものを使用することができるが、いずれも巻き出し、あるいは巻き取り張力を巻き出しあるいは巻き取り速度にフィードバックできる機構を備えていることがシートの安定走行の観点から好ましい。

[0115] ＜プリプレグ幅＞

ＦＲＰの前駆体の一種であるプリプレグは本発明で得られる強化繊維シートの一形態であるため、本発明をＦＲＰ用途に適用する場合として、強化繊維シートをプリプレグと称して以下説明する。

[0116] プリプレグの幅には、特に制限は無く、幅が数十ｃｍ～２ｍ程度の広幅でも良いし、幅数ｍｍ～数十ｍｍのテープ状でも良く、用途に応じ幅を選択することができる。近年では、プリプレグの積層工程を効率化するため、細幅プリプレグやプリプレグテープを自動積層していくＡＴＬ（Automated Tape Laying）やＡＦＰ（Automated Fiber Placement）と呼ばれる装置が広く用いられるようになってきており、これに適合した幅とすることも好ましい。ＡＴＬでは幅が約７．５ｃｍ、約１５ｃｍ、約３０ｃｍ程度の細幅プリプレグが用いられることが多く、ＡＦＰでは約３ｍｍ～約２５ｍｍ程度のプリプレグテープが用いられることが多い。

[0117] 所望の幅のプリプレグを得る方法には特に制限は無く、幅１ｍ～２ｍ程度の広幅プリプレグを細幅にスリットする方法を用いることができる。また、スリット工程を簡略化あるいは省略するため、最初から所望の幅となるよう本発明で用いる塗布部の幅を調整することもできる。例えば、ＡＴＬ用に３０ｃｍ幅の細幅プリプレグを製造する場合には、塗布部出口の幅をそれに応

じて調整すればよい。また、これを効率的に製造するためには、製品幅を３０ｃｍとして製造することが好ましく、係る製造装置を複数個並列させると、同一の走行装置・搬送装置、各種ロール、ワインダーを用いて複数ラインのプリプレグを製造することができる。

[0118] また、プリプレグテープの場合には、テープ状の強化繊維束が１糸条～３糸状程度で強化繊維シートを形成させ、これを所望のテープ幅が得られるように幅を調整した塗布部に通すことで得ることもできる。プリプレグテープの場合はテープ同士の横方向の重なりを制御する観点から、特にテープ幅の精度が求められる場合が多い。このため、塗布部出口幅をより厳密に管理することが好ましく、この場合には、前記のＬ、Ｌ２およびＷが、Ｌ≦Ｗ＋１ｍｍおよび／またはＬ２≦Ｗ＋１ｍｍ、の関係を満たすようすることが好ましい。

[0119] ＜スリット＞

プリプレグのスリット方法にも特に制限は無く、公知のスリット装置を用いることができる。プリプレグを一旦巻き取った後、改めてスリット装置に設置し、スリットを行っても良いし、効率化のため、プリプレグ一旦巻き取ることなくプリプレグ作製工程から連続してスリット工程を配置しても良い。また、スリット工程は１ｍ以上の広幅プリプレグを直接、所望の幅にスリットしても良いし、一旦、３０ｃｍ程度の細幅プリプレグにカット・小分けした後、これを改めて所望の幅にスリットしても良い。

[0120] なお、上記の細幅プリプレグ、プリプレグテープを複数の塗布部を並列させた場合には、それぞれ独立に離型シートを供給しても良いし、１枚の広幅離型シートを供給し、これに複数枚のプリプレグを積層させても良い。このようにして得られるプリプレグの幅方向の端部を切り落とし、ＡＴＬやＡＦＰの装置に供給することができる。この場合には切り落とす端部の大部分が離型シートとなるため、スリットカッター刃に付着するマトリックス樹脂成分（ＣＦＲＰの場合には樹脂成分）を減じることができ、スリットカッター刃の清掃周期を延長できるというメリットもある。

[0121] ＜マトリックス樹脂供給機構＞

本発明において塗布部内にマトリックス樹脂は貯留されているが、塗工が進行するのでマトリックス樹脂を適宜補給することが好ましい。マトリックス樹脂を塗布部に供給する機構には特に制限は無く、公知の装置を使用することができる。マトリックス樹脂は連続的に塗布部に供給することが、塗布部の上部液面を乱さず、強化繊維シートの走行を安定化でき、好ましい。例えば、マトリックス樹脂を貯留する槽から自重を駆動力として供給したり、ポンプなどを用いて連続的に供給することができる。ポンプとしては、ギヤポンプやチューブポンプ、圧力ポンプなどマトリックス樹脂の性質に応じ適宜使用することができる。また、マトリックス樹脂が室温で固体の場合には、貯留層上部にメルターを備えておくことが好ましい。また、連続押し出し機などを用いることもできる。また、マトリックス樹脂供給量はマトリックス樹脂の塗布部上部の液面がなるべく一定となるよう、塗布量に応じ連続供給できる機構を備えることが好ましい。このためには、例えば液面高さや塗布部重量などをモニタリングし、それを供給装置にフィードバックするような機構が考えられる。

[0122] ＜オンラインモニタリング＞

また、塗布量のモニタリングのために、塗布量をオンラインモニタリングできる機構を備えることが好ましい。オンラインモニタリング方法についても特に制限は無く、公知のものを使用可能である。例えば、厚みを計測する装置として、例えばベータ線計などを用いることができる。この場合は、強化繊維シート厚みとプリプレグの厚みを計測し、その差分を解析することで塗布量を見積もることが可能である。オンラインモニタリングされた塗布量は、直ぐに塗布部にフィードバックされ、塗布部の温度や狭窄部２３の隙間Ｄ（図２参照）の調整に利用することができる。塗布量モニタリングは、もちろん欠点モニタリングとしても使用可能である。厚み計測位置としては、例えば図１２で言えば、方向転換ロール４１９近傍で強化繊維シート４１６の厚みを測定し、高張力引取装置４４４近傍でプリプレグの厚みを計測する

ことができる。また、赤外線、近赤外線、カメラ（画像解析）などを用いたオンライン欠点モニタリングを行うことも好ましい。

[0123] 本発明のプリプレグ製造装置は、強化繊維シートを実質的に鉛直方向下向きに走行させる走行機構と、強化繊維シートにマトリックス樹脂を付与してマトリックス樹脂含浸強化繊維シートを得る塗布機構と、マトリックス樹脂含浸強化繊維シートを少なくとも加圧する追含浸機構と、マトリックス樹脂含浸シートに追含浸を行う前に、マトリックス樹脂含浸シートの少なくとも片面に離型シートを付与するために離型シートを供給する離型シート供給機構と、離型シートを加熱する加熱機構を有するプリプレグ製造装置であって、前記塗布機構はその内部に塗液を貯留可能であり、さらに互いに連通された液溜り部と狭窄部を備えており、前記液溜り部は、シート状強化繊維束の走行方向に沿って断面積が連続的に減少する部分を有し、前記狭窄部は、スリット状の断面を有し、かつ液溜り部上面よりも小さい断面積を有し、前記追含浸機構は追含浸の加圧開始点が塗布機構から１ｍ以内となるよう配置され、離型シート供給機構と含浸機構の間に離型シート加熱機構を有するプリプレグ製造装置である。

[0124] 以下、当該プリプレグ製造装置塗工装置を用いたプリプレグの製造例を具体的に挙げて本発明をより詳細に説明する。なお、以下は例示であり、本発明は以下に説明される態様に限定して解釈されるものではない。

[0125] 図２１は、本発明の第１の製造方法の製造工程・装置の一例を示す概略図である。複数個の強化繊維ボビン４１２はクリール４１１に掛けられている。そして、クリールに付与されたブレーキ機構により一定張力で強化繊維束４１４を引き出すことができる。引き出された複数本の強化繊維束４１４は強化繊維配列装置４１５により整然と配列され、強化繊維シート４１６が形成される。なお、図２１では強化繊維束は３糸条しか描画されていないが、実際には、１糸条～数百糸条とすることができ、所望のプリプレグ幅、繊維目付けとするよう調整可能である。その後、拡幅装置４１７、平滑化装置４１８を経て、方向転換ロール４１９を経て、搬送される。図２１では、強化

繊維配列装置４１５～方向転換ロール４１９まで強化繊維シート４１６は装置間を直線状に搬送される。なお、拡幅装置４１７、平滑化装置４１８は、目的に応じ、適宜スキップすることもできるし、装置を配置しないこともできる。また、強化繊維配列装置４１５、拡幅装置４１７、平滑化装置４１８の配列順序は目的に応じ適宜変更することもできる。強化繊維シート４１６は方向転換ロール４１９から鉛直下向きに走行し、強化繊維予熱装置４２０、塗布部４３０を通り、マトリックス樹脂含浸強化繊維シート４２１が得られる。そして、塗布部４３０直下、距離Ｎに設置された非接触加熱装置４２３にトリックス樹脂含浸強化繊維シート４２１を通し含浸を進める。さらに、方向転換ロール４４５上で離型シートを付与し、シート状一体物は冷却装置４６１で冷却された後、引き取り装置４６２で引き取られ、上側の離型シート４４６を剥がした後、ワインダー４６４で巻き取り、製品となるプリプレグ／離型シートからなるシート状一体物４７２を得ることができる。なお、図２１では、マトリックス樹脂の供給装置、オンラインモニタリング装置の描画は省略してある。図２２は、本発明の第２の製造方法の製造工程・装置の一例を示す概略図である。複数個の強化繊維ボビン４１２はクリール４１１に掛けられ、方向転換ガイド４１３を経て、上方に引き出される。この時、クリールに付与されたブレーキ機構により一定張力で強化繊維束４１４を引き出すことができる。引き出された複数本の強化繊維束４１４は強化繊維配列装置４１５により整然と配列され、強化繊維シート４１６が形成される。なお、図２２では強化繊維束は３糸条しか描画されていないが、実際には、１糸条～数百糸条とすることができ、所望のプリプレグ幅、繊維目付けとするよう調整可能である。その後、拡幅装置４１７、平滑化装置４１８を経て、方向転換ロール４１９を経て、鉛直下向きに搬送される。図２２では、強化繊維配列装置４１５～方向転換ロール４１９まで強化繊維シート４１６は装置間を直線状に搬送される。なお、拡幅装置４１７、平滑化装置４１８は、目的に応じ、適宜スキップすることもできるし、装置を配置しないこともできる。また、強化繊維配列装置４１５、拡幅装置４１７、平滑化装置

４１８の配列順序は目的に応じ適宜変更することもできる。強化繊維シート４１６は方向転換ロール４１９から鉛直下向きに走行し、強化繊維予熱装置４２０、塗布部４３０を通り、マトリックス樹脂含浸強化繊維シート４２１が得られる。塗布後のマトリックス樹脂含浸強化繊維シート４２１に対し離型シート供給装置４４２から巻き出され、離型シート４４６を両面に付与し、追含浸装置４４０を経て高張力引き取り装置４４４に到達する。図２２では離型シート４４６を両面から付与しているが、付与しなくてもよいし、片面のみ付与でも良い。なお離型シート４４６は離型シート加熱装置４２２で加熱してもよい。塗布部４３０は本発明の目的を達成する範囲で任意の塗布部形状を採用することができる。例えば、図４、図１６～図１９のような形状が挙げられる。また、必要に応じ図１０のようにブッシュ２７を備えることもできる。さらに、図７のように、塗布部内にバーを備えることもできる。追含浸装置は本発明の目的を達成する範囲で、任意の装置構成を採用することができる。図２２では、追含浸装置４４０として、加熱ニップロール４５２を具備する追含浸装置を描画した。追含浸装置を通すことで、含浸度の高いプリプレグ／離型シート（シート状一体物）４７２が得られる。図１２では、加圧方式の一例として加熱ニップロール４５２を描画しているが、目的によっては、もちろん小型の加熱Ｓ字ロールでも良い。

[0126] その後、シート状一体物は冷却装置４６１で冷却された後、引き取り装置４６２で引き取られ、上側の離型シート４４６を剥がした後、ワインダー４６４で巻き取り、製品となるプリプレグ／離型シートからなるシート状一体物４７２を得ることができる。

なお、図２２では、マトリックス樹脂供給装置、オンラインモニタリング装置の描画は省略してある。

[0127] 図２３は第２の製造方法を用いたプリプレグの製造工程・装置の別の例の概略図である。図２３では、クリール４１１から強化繊維束４１４を引き出し、そのまま強化繊維配列装置４１５で強化繊維シート４１６を形成し、その後、拡幅装置４１７、平滑化装置４１８まで直線状に搬送され、その後、

強化繊維シート４１６を上方に導く点が図２３とは異なる。このような構成とすることで、上方に装置を設置することが不要となり、足場などの設置を大幅に簡略化することができる。

[0128] 図２４は本発明を用いたプリプレグの製造工程・装置の別の例の概略図である。図２４では、階上にクリール４１１を設置し、強化繊維シート４１６の走行経路を更に直線化している。

[0129] 図２５は本発明を用いたプリプレグの製造工程・装置の別の例の概略図である。この例では加熱Ｓ字ロール４５５を高張力引き取り装置と兼用する例を示している。プリプレグ製造装置全体を非常にコンパクトにすることができるメリットがある。含浸度を高めるためコンタクトロール４５６の配置を例示しているが、配置しなくてもよい。

[0130] なお、本発明の第１の製造方法、第２の製造方法、第３の製造方法は適宜組み合わせて使用することも可能である。

実施例

[0131] 本実施例の項では、実施例１～３が第１の製造方法、実施例４～５が第２の製造方法、実施例６～１５が第３の製造方法に対応する実施例である。

[0132] ＜プリプレグ製造装置＞

プリプレグ製造装置として第１の製造方法は図２６、第２の製造方法は図２２、第３の製造方法は図３記載の構成の装置（マトリックス樹脂の供給部は描画を省略）を用いた。なお、拡幅装置、平滑化装置、冷却装置は用いなかった。

[0133] ＜塗布部＞

第１の製造方法、第２の製造方法では、塗布部として、図１７の形態の塗布部２０ｃタイプの塗布部を用い、塗布部はステンレスで作製し、さらにマトリックス樹脂を加温するため、塗布部外周にリボンヒーターを巻きつけ、熱電対で温度測定を行いながら、マトリックス樹脂の温度および粘度を調整できるようにした。また、液溜り部での強化繊維シートの走行方向は鉛直方向下向き、液溜り部は２段テーパー状であるが、１段目テーパーは開き角度

１７°、テーパー高さ（すなわちＨ）は１００ｍｍ、２段目テーパーは開き角度７°とした。また、幅規制機構として、図１０記載のような塗布部内部形状に合わせた板形状ブッシュ２７を備えており、Ｌ２を２０ｍｍとし、狭窄部の隙間Ｄは０．２ｍｍとした。また、狭窄部出口からマトリックス樹脂が漏れないように、狭窄部出口面においてブッシュより外側は塞いだ。

[0134] 第３の製造方法では、図７のような左右対称な形状のブロックの塗布部を用いた。液溜り部２２は連続的に断面積が減少するテーパー状の流路であり、液溜り部２２の高さＨは１００ｍｍ、テーパー部の開き角度θは３０°、狭窄部２３の隙間Ｄは０．２ｍｍ（スリット状、アスペクト比は１００）とした。液溜り部２２および狭窄部２３を形成する壁面部材２１ａ、２１ｂにはステンレス製のブロックを用いた。また側板部材２４にはステンレス製のプレートを用いた。さらにエポキシ樹脂を溶融するため、壁面部材２１および側板部材２４の外周にリボンヒータを巻きつけ、熱電対で温度計測を行いながら、マトリックス樹脂であるエポキシ樹脂の温度を９０℃に調整した。

[0135] ＜離型シート＞

離型シートとしては幅１００ｍｍの離型紙を用いた。離型シート加熱装置は実施例５、比較例５において使用した。離型シートの加熱装置としてはヒートガンを用いた。ヒートガンはマトリックス樹脂含浸強化繊維シートと離型シートが接する場所から離型シート供給装置側に３０ｃｍの場所に設置し離型シートを加熱した。離型シートにヒートガンを当てる距離を調整し、マトリックス樹脂含浸強化繊維シートと離型シートとが接する場所から離型シート供給装置側１０ｃｍの場所において離型シートの幅方向中央部の温度が９０℃となるようにした。なお、離型シートのマトリックス樹脂含浸強化繊維シートへ接する場所は塗布部出口から３０ｃｍ高張力引取り装置側の場所になるようにした。

[0136] ＜追含浸装置＞

第１の製造方法では、赤外線ヒーターによる非接触加熱装置を用いた。加熱区間の長さは０．５ｍとした。

[0137] 第２の製造方法では、追含浸の加圧には、図２２に示すように、２本の加熱ニップロールを用いた。なお、塗布部側に近いニップロールは塗布部出口から追含浸装置の加圧開始点までの距離Ｎが０．５ｍとなるように設置し、高張力引取り装置側に近いニップロールは塗布部側に近いニップロールの加圧開始点との距離が１００ｍｍとなるよう設置した。ニップロールの直径は５０ｍｍとした。ニップロール内にはヒーターがあり、表面温度が１００℃になるよう加熱した。加圧時のニップロールのニップ力は４００Ｎとした。

[0138] ＜強化繊維シート＞

プリプレグの作製は、強化繊維として炭素繊維（東レ製、“トレカ（登録商標）”Ｔ８００Ｓ（２４Ｋ））を３糸条用いた。

[0139] ＜マトリックス樹脂＞

マトリックス樹脂Ａ（熱硬化性エポキシ樹脂組成物）：

エポキシ樹脂（芳香族アミン型エポキシ樹脂＋ビスフェノール型エポキシ樹脂の混合物）、硬化剤（ジアミノジフェニルスルホン）、ポリエーテルスルホンの混合物である。この熱硬化性エポキシ樹脂１の粘度をＴＡ Ｉｎｓｔｒｕｍｅｎｔｓ社製ＡＲＥＳ－Ｇ２を用いて、測定周波数０．５Ｈｚ、昇温速度１．５℃／分で測定したところ、４０℃で３６７５Ｐａ・ｓ、５０℃で８５５Ｐａ・ｓ、７０℃で８０Ｐａ・ｓ、７５℃で５１Ｐａ・ｓ、９０℃で１５Ｐａ・ｓであった。

[0140] ＜含浸度の評価＞

採取したプリプレグを粘着テープで挟み、これを剥離し、マトリックス樹脂が付着した強化繊維とマトリックス樹脂が付着していない強化繊維を分離した。そして、投入した強化繊維シート全体の質量に対するマトリックス樹脂が付着した強化繊維の質量の比率を剥離法によるマトリックス樹脂の含浸度とした。

[0141] 含浸度が９０％以上をＥｘｃｅｌｌｅｎｔ、７０％以上９０％未満をＧｏｏｄ、７０％未満をＢａｄとした。

[0142] ＜プリプレグ品位の評価＞

採取したプリプレグを積層・硬化しコンポジット板を得、これの断面観察を行い、強化繊維層の乱れを観察した。

[0143] ＜表面温度の測定＞

加熱終了点でのマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度Ｐ２（℃）、追含浸前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シート表面温度Ｐ（℃）、離型シートの表面温度Ｔ（℃）、離型シートを付与する前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シート表面温度Ｋ（℃）は赤外線放射温度計ＡＤ－５６１１Ａ（（株）エー・アンド・デイ製、放射率０．９５固定）で測定した。測定は赤外線温度計を対象物から５５ｃｍ離して測定した。第１の製造方法のＰ２は非接触加熱装置の下流１０ｃｍでのマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの中央部の温度を測定した。第２の製造方法の実施例４と比較例６の追含浸前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シート表面温度Ｐ（℃）は塗布部側に近いニップロールの加圧開始点から塗布部側に１０ｃｍの距離の場所の幅方向中央部の表面温度を測定した。実施例５、比較例２、比較例５の追含浸前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シート表面温度Ｐ（℃）は離型シートを付与しているため、塗布部側に近いニップロールの加圧開始点から塗布部側に１０ｃｍの距離の場所の幅方向中央部の離型シート表面温度をＰとして測定した。さらに離型シートを用いた実施例５、比較例４、比較例５のマトリックス樹脂含浸強化繊維シートに接触する前の離型シートの表面温度Ｔ（℃）は離型シートとマトリックス樹脂含浸強化繊維シートが接する場所から離型シート供給装置側に１０ｃｍの距離の地点の幅方向中央部の表面温度を測定した。離型シートを付与する前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度Ｋ（℃）は離型シートとマトリックス樹脂含浸シートとが接する場所から塗布部側に１０ｃｍの距離の地点の幅方向中央部の表面温度を測定した。

[0144] ［実施例１］

クリールに掛けられた強化繊維ボビンから強化繊維を引き出し、強化繊維配列装置で強化繊維３糸条を幅方向に配列させ、強化繊維シートを形成させた後、９０℃となるよう加熱したマトリックス樹脂Ａを貯留する塗布部に導

き、マトリックス樹脂Ａを塗布した。その後、塗布部からマトリックス樹脂含浸強化繊維シートを引き出し、塗布部出口から非接触加熱装置までの距離Ｎ２が０．５ｍとなるよう設置し、Ｐ２が１３０℃、すなわちＰ２－Ｍ＝４０（℃）となるように赤外線加熱した後、離型紙を付与してワインダーで巻き取った。強化繊維シート、プリプレグの走行速度は１０ｍ／分とした。得られたプリプレグの含浸度の評価を行ったところ、９２％でＧｏｏｄであった。また、積層・硬化後のコンポジット断面を観察したところ、炭素繊維層の乱れは見られず、プリプレグ品位も良好であった。

[0145] ［実施例２、３］

Ｐ２温度を１１５℃（Ｐ２－Ｍ＝２５（℃）。実施例２）、９５℃（Ｐ２－Ｍ＝５（℃）。実施例３）として実施例１と同様にプリプレグを得た後、含浸度の評価を行ったところ、それぞれ８３％、７５％といずれもＧｏｏｄであった。また、積層・硬化後のコンポジット断面を観察したところ、炭素繊維層の乱れは見られず、プリプレグ品位も良好であった。

[0146] ［比較例１］

Ｐ２温度を８５℃（Ｐ２－Ｍ＝－５（℃））として実施例１と同様にプリプレグを得た後、含浸度の評価を行ったところ、６５％とＢａｄであった。

[0147] ［比較例２］

塗布部出口から非接触加熱装置までの距離Ｎ２が１．３ｍとなるように非接触加熱装置を設置し、プリプレグの走行速度を１０ｍ／分としたところ、非接触加熱装置に導入される前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度が低下したため、再加熱のための非接触加熱装置の赤外線ヒーター能力が足りずＰ２温度を９０℃まで上昇させることができなかった。このため、含浸度は７０％未満でＢａｄであった。

[0148] ［比較例３］

塗布部出口から非接触加熱装置までの距離Ｎ２が１．３ｍ、プリプレグの走行速度を０．５ｍ／分として比較例２と同様に実験を行ったところ、再加熱時間を長くとれるためＰ２温度を９０℃まで上昇させることが可能となっ

たが、積層・硬化後のコンポジット断面を観察したところ、炭素繊維層の乱れが見られ、プリプレグ品位が不良であった。

[0149]

[表1]

【表1】

		実施例1	実施例2	実施例3	比較例1	比較例2	比較例3
条件	N2	0.5m			0.5m	1.3m	
	P2	M+40℃	M+25℃	M+5℃	M-5℃	M℃未満	M℃
	走行速度	10m/分					0.5m/分
評価項目	含浸率	92%	83%	75%	65%	70%未満	—
	品位	良好	良好	良好	—	—	不良

[0150] ［実施例４］

クリールに掛けられた強化繊維ボビンから強化繊維を引き出し、強化繊維配列装置で強化繊維３糸条を幅方向に配列させ、強化繊維シートを形成させた後、９０℃となるよう加熱したマトリックス樹脂Ａを貯留する塗布部に導き、マトリックス樹脂Ａを塗布した。その後、塗布部からマトリックス樹脂含浸強化繊維シートを引き出し、塗布部出口から追含浸装置の加圧開始点までの距離Ｎが０．５ｍとなるよう設置し、１００℃に設定した２本の加熱ニップロールをニップ圧４００Ｎにして加圧し、マトリックス樹脂含浸強化繊維シートを追含浸装置を通すことでプリプレグを得てワインダーで巻き取った。強化繊維シート、プリプレグの走行速度は２０ｍ／分とした。得られたプリプレグの含浸度の評価を行ったところ、８０％以上とＧｏｏｄであった。なお、追含浸装置進入前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度Ｐは７０℃であった。

[0151] ［実施例５］

追含浸装置進入前に表面温度が９０℃となるよう加熱した離型シートを付与した以外は実施例４と同様にして、離型シート（上）巻取装置４６３を用い上記離型紙を剥がし、シート状一体物が得られた。得られたプリプレグの含浸度の評価を行ったところ、８０％以上とＧｏｏｄであった。なお、離型シート上から測定した追含浸装置進入前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度Ｐは７５℃、離型シートの表面温度Ｔは９０℃、離型シートを付与する前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度Ｋは８０℃であった。

[0152] なお、実施例４、実施例５で得られたプリプレグをスリットし、幅７ｍｍのプリプレグテープを得た。これらのプリプレグテープは含浸が十分進んでいるため、スリッターのカッター刃への樹脂の付着は少ないものであった。

[0153] ［比較例４］

離型シートの加熱装置を用いなかった以外は実施例５と同様にして、離型シート（上）巻取装置４６３を用い上記離型紙を剥がし、シート状一体物が

得られた。得られたプリプレグの含浸度の評価を行ったところ、７０％未満とＢａｄであった。なお、離型シート上から測定した追含浸装置進入前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度Ｐは３５℃、離型シートの表面温度Ｔは２３℃、離型シートを付与する前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度Ｋは８０℃であった。

[0154] 実施例５と比較例４より、離型シートを加熱することで、マトリックス樹脂含浸強化繊維シートの冷却を抑制し、所望の含浸度のプリプレグが得られることを確認した。

[0155] ［比較例５］

ニップロールによる加圧をしない以外は実施例５と同様にマトリックス樹脂強化繊維シートを得た。得られたマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの含浸度の評価を行ったところ、７０％未満とＢａｄであった。

[0156] 実施例５と比較例５より、第２の製造方法において、所望の含浸度を得るには加圧が必要であることを確認した。

[0157] ［比較例６］

塗布部出口から追含浸の加圧開始点までの距離Ｎが１．５ｍとなるように追含浸装置を設置した以外は、実施例４と同様にプリプレグを作製した。得られたプリプレグの含浸度の評価を行ったところ、７０％未満とＢａｄであった。なお、追含浸前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度Ｐは５０℃であった。

[0158] 実施例４と比較例６より塗布部出口から追含浸の加圧開始点までの距離Ｎが１ｍを超えるとマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度が低く、所望の含浸度のプリプレグが得られないことが分かった。

[0159]

[表2]

【表2】

		実施例4	実施例5	比較例4	比較例5	比較例6
条件	N	0.5m		0.5m		1.5m
	P	M-20℃	M-15℃	M-55℃	M-15℃	M-40℃
	T	—	K+10℃	K-57℃	K+10℃	—
	加圧	有り		有り	無し	有り
評価項目	含浸率	80%以上	80%以上	70%未満	70%未満	70%未満

[0160] [実施例６]

本発明に係る図７の実施形態の塗布部２０を用いて、炭素繊維シートに溶融エポキシ樹脂を付与した。バー群３５には直径１０ｍｍ、長さ４０ｍｍのス

テンレス製のみがき棒３本を用いた。炭素繊維シートとバー３５ａ、３５ｂ、３５ｃの抱き角はそれぞれ１０°、２０°、１０°とし、すべてのバーはマトリックス樹脂２の中に沈んでいる。また最上段に位置するバー３５ａは、ガイドロール１３と接触する炭素繊維シートの面と反対の面で、炭素繊維シートと接触している。バー群３５は図１１のように長さ方向に均一な断面とし、幅規制部材は備えていない。またスリット状出口の幅Ｗ１は２０ｍｍとした。得られたプリプレグは、剥離法により含浸度を定量的に評価した。剥離法による塗液の含浸度は以下のようにして測定することができる。すなわち、採取した塗液含浸強化繊維シートを粘着テープで挟み、これを剥離し、塗液が付着した強化繊維と塗液が付着していない強化繊維を分離する。そして、投入した強化繊維シート全体の質量に対する塗液が付着した強化繊維の質量の比率を剥離法による塗液の含浸度とすることができる。実施例７で得られたプリプレグの含浸度は７３％であった。

[0161] ［比較例７］

次に図７の実施形態の塗布部２０からバー群３５をすべて取り除き、本発明の要件を満たさない塗布部を用いて、炭素繊維シートに溶融エポキシ樹脂を付与した。得られたシート状プリプレグの含浸度を剥離法で測定したところ、含浸度は５０％であった。

[0162] ［実施例７］

次に本発明に係る図２７の実施形態の塗布部４３を用いて、炭素繊維シートに溶融エポキシ樹脂を付与した。図７の実施形態の塗布部４０とは異なり、バー３５には直径１０ｍｍ、長さ４０ｍｍのみがき棒を１本だけ用いた。炭素繊維シートとバー３５の抱き角は２０°とした。またバー３５は塗液２の中に沈んでいる。得られたシート状プリプレグの含浸度を剥離法で測定したところ、含浸度は６０％であった。含浸度の絶対値は低いものの比較例７との比較からバーの効果は認められる。

[0163]

[表3]

【表3】

		実施例6	比較例7	実施例7
実施条件	バーの数	3本	なし	1本
評価項目	含浸率（質量%）	73%	50%	60%

[0164] 次に表４は本発明に係る図１２の実施形態の塗布部４１を用いて、炭素繊維シートに溶融エポキシ樹脂を付与し、シート状プリプレグを製作した実験結果をまとめた表である。なお、いずれの実施例も炭素繊維シートの走行速度は２０ｍ／分とした。以下で詳細を説明する。

[0165] ［実施例８］

本発明に係る図１２に示す塗布部４１を用いて、炭素繊維シートに溶融エポキシ樹脂を付与した。バー群３６には図１３に示すように両端に直径の大きな円板状の幅規制部材を備えるステンレス製のバーを用いた。バー群３６の直径ｄ１は１０ｍｍ、幅規制部材の直径ｄ２は１４ｍｍ、幅規制部材の内側の間隔Ｗ２は２０ｍｍ、幅規制部材の厚みＷ３は２ｍｍであり、１本のみがき棒から削り出して製作した一体物を用いた。バー群３６の配置は図７の実施形態の塗布部４０（実施例７）と同じであり、炭素繊維シートとバー３６ａ、３６ｂ、３６ｃのなす抱き角はそれぞれ１０°、２０°、１０°である。またスリット状出口の幅Ｗ１は２０ｍｍであり、０≦Ｗ１－Ｗ２≦１０の関係を満たしている（Ｗ１＝Ｗ２）。次に、得られたシート状プリプレグは剥離法で含浸度を測定した。また得られたプリプレグの品質を評価するため、プリプレグを目視確認し、全幅（２０ｍｍ）にわたって炭素繊維が均一な厚みでかつ隙間なく配列しているものを「Ｅｘｃｅｌｌｅｎｔ」、一部厚みが均一でない（表面に凹凸がある）が全幅にわたって炭素繊維が隙間なく存在するものを「Ｇｏｏｄ」、一部の炭素繊維間に隙間がありエポキシ樹脂だけの部分が存在するものや表面が毛羽立っているものを「Ｆａｉｒ」とし

た。実施例９で得られたプリプレグの含浸度は７３％で、全幅にわたって炭素繊維が均一な厚みでかつ隙間なく配列していた（品質「Ｅｘｃｅｌｌｅｎｔ」）。

[0166] ここで、実施例７で得られたプリプレグには一部の炭素繊維間に隙間があり、エポキシ樹脂だけの部分が走行方向に連続的に存在していたほか、プリプレグの幅方向両端部に毛羽立ちが確認できた（品質「Ｆａｉｒ」）。

[0167] ［実施例９］

次に実施例８におけるスリット状出口の幅Ｗ１を３０ｍｍに変更して、炭素繊維シートに溶融エポキシ樹脂を付与した。本実施例も０≦Ｗ１－Ｗ２≦１０の関係を満たしている。実施例９で得られたプリプレグの含浸度は７１％で、一部厚みが均一でない（表面に凹凸がある）が、全幅にわたって炭素繊維が隙間なく存在していた（品質「Ｇｏｏｄ」）。

[0168] ［実施例１０］

次に実施例８におけるスリット状出口の幅Ｗ１を４０ｍｍに変更して、炭素繊維シートに溶融エポキシ樹脂を付与した。本実施例は０≦Ｗ１－Ｗ２≦１０の関係を満たしていない。実施例１０で得られたシート状プリプレグの含浸度は７２％で、一部の炭素繊維間に隙間があり、エポキシ樹脂だけの部分が走行方向に連続的に存在していた（品質「Ｆａｉｒ」）。

[0169]

[表4]

【表4】

		実施例6	実施例8	実施例9	実施例10
実施条件	幅規制	なし	あり	あり	あり
	W1-W2	-	0mm	10mm	20mm
評価項目	含浸率（質量%）	73%	73%	71%	72%
	品質	Fair	Excellent	Good	Fair

[0170] 次に表５は本発明に係る図１２の実施形態の塗布部４１を用いて、炭素繊維シートに溶融エポキシ樹脂を付与し、プリプレグを製作した実験結果をま

とめた表である。いずれの場合も共通の実施条件として、炭素繊維シートの走行速度は２０ｍ／分、バー群３６には実施例８と同じ形状の幅規制部材を備えるバーを用いており、スリット状出口の幅Ｗ１は２０ｍｍで、０≦Ｗ１－Ｗ２≦１０の関係を満たしている。以下で詳細を説明する。

[0171] ［実施例１１］

炭素繊維シートとバー３６ａ、３６ｂ、３６ｃの抱き角がそれぞれ２０°、４０°、２０°となるよう、バー群３６の位置を調整して炭素繊維シートに溶融エポキシ樹脂を付与した。走行中、液溜り部２２の上部液面付近で炭素繊維シートが時折ひるがえっている様子が確認できた。得られたプリプレグの含浸度を剥離法で測定したところ、含浸度は８２％であった。また得られたシート状プリプレグを目視確認し品質を確認したところ、一部厚みが均一でない（表面に凹凸がある）が、全幅にわたって炭素繊維が隙間なく存在していた（品質「Ｇｏｏｄ」）。

[0172] ［実施例１２］

次に炭素繊維シートとバー３６ａ、３６ｂ、３６ｃの抱き角がそれぞれ４０°、８０°、４０°となるよう、バー群３６の位置を調整して炭素繊維シートに溶融エポキシ樹脂を付与した。走行中、液溜り部２２の上部液面付近で炭素繊維シートが大きくひるがえっている様子が確認できた。得られたプリプレグの含浸度を剥離法で測定したところ、含浸度は９０％以上であった。また得られたプリプレグを目視確認し品質を確認したところ、一部の炭素繊維間に隙間があり、エポキシ樹脂だけの部分が走行方向に連続的に存在していたほか、プリプレグの表面全体に毛羽立ちが確認できた（品質「Ｆａｉｒ」）。

[0173] ［実施例１３］

バー群３６の直径ｄ１を２０ｍｍに変更して、炭素繊維シートに溶融エポキシ樹脂を付与した。幅規制部材の直径ｄ２は２４ｍｍとした。また炭素繊維シートとバー３６ａ、３６ｂ、３６ｃの抱き角はそれぞれ１０°、２０°、１０°となるよう、バー群３６の位置を調整した。得られたプリプレグの

含浸度を剥離法で測定したところ、含浸度は８４％であった。また得られたシート状プリプレグを目視確認し品質を確認したところ、一部厚みが均一でない（表面に凹凸がある）が、全幅にわたって炭素繊維が隙間なく存在していた（品質「Ｇｏｏｄ」）。

[0174] [表5]

【表5】

実施条件		実施例8	実施例11	実施例12	実施例13
	バー直径 d1	10mm	10mm	10mm	20mm
	最大抱き角	20°	40°	80°	20°
評価項目	含浸率（質量%）	73%	82%	>90%	84%
	品質	Excellent	Good	Fair	Good

[0175] ［実施例１４］

次に本発明に係る図２８の塗布部４４を用いて、炭素繊維シートに溶融エポキシ樹脂を付与した。炭素繊維シートの走行速度は２０ｍ／分とした。本実施例はバー群３６と炭素繊維シートが接触する面が実施例８と反対になっている以外は、実施例８の実施条件と同じである。本実施例では最上段に位置するバー３６ａは、ガイドロール１３と接触する炭素繊維シートの面と同じ面で、炭素繊維シートと接触している。走行中、液溜り部２２の上部液面付近で炭素繊維シート１ａが時折ひるがえっている様子が確認できた。得られたシート状プリプレグの含浸度を剥離法で測定したところ、含浸度は７０％であった。また得られたシート状プリプレグを目視確認し品質を確認したところ、一部厚みが均一でない（表面に凹凸がある）が、全幅にわたって炭素繊維が隙間なく存在していた（品質「Ｇｏｏｄ」）。

[0176] [表6]

【表6】

		実施例8	実施例14
実施条件	最上段バーの接触面	ガイドロールと反対	ガイドロールと同じ
評価項目	含浸率（質量%）	73%	70%
	品質	Excellent	Good

[0177] ［実施例１５］

本発明に係る図１２の実施形態の塗布部４１を用いて、炭素繊維シートに溶融エポキシ樹脂を付与した。炭素繊維シートの走行速度を５ｍ／分とした以外は、実施例９の実施条件と同じである。得られたプリプレグは剥離法で含浸度を測定したほか、得られたプリプレグの品質を評価するため、プリプレグを目視確認し、全幅（２０ｍｍ）にわたって炭素繊維が均一な厚みでかつ隙間なく配列しているものを「Ｅｘｃｅｌｌｅｎｔ」、一部厚みが均一でない（表面に凹凸がある）が全幅にわたって炭素繊維が隙間なく存在するものを「Ｇｏｏｄ」、一部の炭素繊維間に隙間がありエポキシ樹脂だけの部分が存在するものや表面が毛羽立っているものを「Ｆａｉｒ」とした。実施例

９で得られたシート状プリプレグの含浸度は９０％以上で、全幅にわたって炭素繊維が均一な厚みでかつ隙間なく配列していた（品質「Ｅｘｃｅｌｌｅｎｔ」）。

[0178] [表7]

【表7】

		実施例8	実施例15
実施条件	走行速度	20m/分	5m/分
評価項目	含浸率（質量%）	73%	>90%
	品質	Excellent	Excellent

産業上の利用可能性

[0179] 本発明の製造方法で得られるプリプレグは、ＣＦＲＰに代表されるＦＲＰとして、航空・宇宙用途や自動車・列車・船舶などの構造材や内装材、圧力容器、産業資材用途、スポーツ材料用途、医療機器用途、筐体用途、土木・建築用途など広く適用することができる。

符号の説明

[0180] １　強化繊維
１ａ　強化繊維シート
１ｂ　マトリックス樹脂含浸強化繊維シート
１ｃ　プリプレグ
２　マトリックス樹脂
３　離型シート
１１　クリール
１２　配列装置
１３、１４、１５、１６　搬送ロール
１７　巻取り装置
１８　離型シート供給装置
１８ａ　離型シート加熱装置

１９　追含浸装置

２０　塗布部

２０ｂ　別の実施形態の塗布部

２０ｃ　別の実施形態の塗布部

２０ｄ　別の実施形態の塗布部

２０ｅ　別の実施形態の塗布部

２１ａ、２１ｂ　壁面部材

２１ｃ、２１ｄ　別の形状の壁面部材

２１ｅ、２１ｆ　別の形状の壁面部材

２１ｇ、２１ｈ　別の形状の壁面部材

２１ｉ、２１ｊ　別の形状の壁面部材

２２　液溜り部

２２ａ　液溜り部のうち断面積が連続的に減少する領域

２２ｂ　液溜り部のうち断面積が減少しない領域

２２ｃ　液溜り部のうち断面積が断続的に減少する領域

２３　狭窄部

２４、２４ａ、２４ｂ　側板部材

２５　出口

２６　隙間

２７　板形状ブッシュ

２７ａ、２７ｂ　幅規制機構

３０　塗布部

３１ａ、３１ｂ　壁面部材

３２　液溜り部

３３　液溜り部のうち断面積が断続的に減少する領域

３５ａ、３５ｂ、３５ｃ　バー

３６ａ、３６ｂ、３７ｃ　別の実施形態のバー

４０　別の実施形態の塗布部

４１　別の実施形態の塗布部

４３　別の実施形態の塗布部

４４　別の実施形態の塗布部

１００　塗工装置

１０１　塗工装置

Ｂ　液溜り部２２の奥行き

Ｃ　液溜り部２２の上部液面までの高さ

Ｄ　狭窄部の隙間

Ｅ　液溜り部の幅方向

Ｇ　幅規制を行う位置

Ｈ　液溜り部２２の断面積が連続的に減少する鉛直方向高さ

Ｌ　液溜り部２２の幅

Ｎ　塗布部出口から追含浸の加圧開始点までの距離

Ｎ２　塗布部出口から非接触式の加熱装置による加熱開始点までの距離

Ｒ、Ｒａ、Ｒｂ　渦流れ

Ｔ　循環流

Ｗ　狭窄部２３の直下で測定した強化繊維シートプリプレグ１ｂの幅

Ｙ　狭窄部２３の幅

Ｚ　強化繊維シート１ａの走行方向（鉛直方向下向き）

θ　テーパー部の開き角度

４１１　クリール

４１２　強化繊維ボビン

４１３　方向転換ガイド

４１４　強化繊維束

４１５　強化繊維配列装置

４１６　強化繊維シート

４１７　拡幅装置

４１８　平滑化装置

４１９　方向転換ロール

４２０　強化繊維予熱装置

４２１　マトリックス樹脂含浸強化繊維シート

４２２　離型シート加熱装置

４２３　非接触加熱装置

４３０　塗布部

４４０　追含浸装置

４４２　離型シート供給装置

４４４　高張力引取り装置

４４５　方向転換ロール

４４６　離型シート

４５２　加熱ニップロール

４５５　加熱Ｓ字ロール

４５６　コンタクトロール

４６１　冷却装置

４６２　引き取り装置

４６３　離型シート（上）巻取装置

４６４　ワインダー

４７１　プリプレグ（強化繊維シートプリプレグ）

４７２　プリプレグ／離型シート（シート状一体物）

請求の範囲

[請求項1] マトリックス樹脂が貯留された塗布部の内部に強化繊維シートを実質的に鉛直方向下向きに通過させ、強化繊維シートにマトリックス樹脂を付与してマトリックス樹脂含浸強化繊維シートを得る工程、該マトリックス樹脂含浸強化繊維シートに非接触で加熱を行う工程を含むプリプレグの製造方法であって、

前記塗布部は互いに連通された液溜り部と狭窄部を備え、前記液溜り部は強化繊維シートの走行方向に沿って断面積が連続的に減少する部分を有し、前記狭窄部はスリット状の断面を有し、かつ、液溜り部上面の面積よりも小さい断面積を有し、

前記非接触の加熱は、前記狭窄部の開口部からマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの走行方向に向かって１ｍ以内の領域で開始され、かつ、加熱終了点でのマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度をＰ２（℃）、前記塗布部の内部に貯留されたマトリックス樹脂の温度をＭ（℃）としたとき、下式１を満たす、プリプレグの製造方法。

Ｍ　≦　Ｐ２　（式１）

[請求項2] 非接触で加熱を行う工程の後に、更にマトリックス樹脂含浸強化繊維シートを加圧する工程を有する請求項１記載のプリプレグの製造方法。

[請求項3] 強化繊維シートを実質的に鉛直方向下向きに走行させる走行機構と、強化繊維シートにマトリックス樹脂を付与してマトリックス樹脂含浸強化繊維シートを得る塗布機構と、マトリックス樹脂含浸強化繊維シートを加熱する加熱機構と、を有するプリプレグ製造装置であって、

前記塗布機構はその内部に塗液を貯留可能であり、かつ、互いに連通された液溜り部と狭窄部を備えており、前記液溜り部は、シート状強化繊維束の走行方向に沿って断面積が連続的に減少する部分を有し、

前記狭窄部は、マトリックス樹脂含浸強化繊維シートの導出に用いうるスリット状の開口部を有し、かつ該開口部の面積は液溜り部上面の

面積よりも小さく、

前記加熱機構は、非接触の加熱手段であるとともに、前記狭窄部の開口部からマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの走行方向に向かって１ｍ以内の領域で開始されるよう配置されているプリプレグ製造装置。

[請求項4] マトリックス樹脂が貯留された塗布部の内部に強化繊維シートを実質的に鉛直方向下向きに通過させることで、マトリックス樹脂が強化繊維シートに付与されたマトリックス樹脂含浸強化繊維シートを得た後、マトリックス樹脂含浸強化繊維シートを少なくとも加圧する追含浸を行うプリプレグの製造方法であって、前記塗布部は互いに連通された液溜り部と狭窄部を備え、前記液溜り部は強化繊維シートの走行方向に沿って断面積が連続的に減少する部分を有し、前記狭窄部はスリット状の断面を有し、かつ液溜り部上面よりも小さい断面積を有し、塗布部出口から追含浸の加圧開始点までの距離Ｎが１ｍ以下であり、追含浸前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度Ｐ（℃）が塗布部の内部に貯留されるマトリックス樹脂温度Ｍ（℃）に対し式２の関係を満たすプリプレグの製造方法。

Ｍ－３０　≦　Ｐ　（式２）

[請求項5] 前記追含浸を行う前に、マトリックス樹脂含浸シートの少なくとも片面に、離型シートを加熱する加熱機構により加熱された離型シートを付与する請求項４に記載のプリプレグの製造方法であって、離型シートを付与する前のマトリックス樹脂含浸強化繊維シートの表面温度Ｋ（℃）とマトリックス樹脂含浸強化繊維シートに接触する前の離型シート表面温度Ｔ（℃）が式３の関係を満たすプリプレグの製造方法。

Ｋ－１０　≦　Ｔ　≦　Ｋ＋５０　（式３）。

[請求項6] ニップロール方式で追含浸を行う請求項４または５の何れかに記載のプリプレグの製造方法。

[請求項7] Ｓ字ロール方式で追含浸を行う請求項４または５の何れかに記載のプリプレグの製造方法。

[請求項8] 強化繊維シートを実質的に鉛直方向下向きに走行させる走行機構と、強化繊維シートにマトリックス樹脂を付与してマトリックス樹脂含浸強化繊維シートを得る塗布機構と、マトリックス樹脂含浸強化繊維シートを少なくとも加圧する追含浸機構と、マトリックス樹脂含浸シートに追含浸を行う前に、マトリックス樹脂含浸シートの少なくとも片面に離型シートを付与するために離型シートを供給する離型シート供給機構と、離型シートを加熱する加熱機構を有するプリプレグ製造装置であって、前記塗布機構はその内部に塗液を貯留可能であり、さらに互いに連通された液溜り部と狭窄部を備えており、前記液溜り部は、シート状強化繊維束の走行方向に沿って断面積が連続的に減少する部分を有し、前記狭窄部は、スリット状の断面を有し、かつ液溜り部上面よりも小さい断面積を有し、前記追含浸機構は追含浸の加圧開始点が塗布機構から１ｍ以内となるよう配置され、離型シート供給機構と含浸機構の間に離型シート加熱機構を有するプリプレグ製造装置。

[請求項9] マトリックス樹脂が貯留され、かつ鉛直方向下向きに断面積が連続的に減少する部分を有する液溜り部と、前記液溜り部の下端に連通するスリット状出口を有する狭窄部と、前記液溜り部の内部に設けられ、前記スリット状出口の長手方向に延びる１本以上のバーと、を備える塗布部に、強化繊維シートを鉛直方向下向きに通過させてマトリックス樹脂を付与するプリプレグの製造方法であって、

前記バーと強化繊維シートにより形成される抱き角が全て１０°以上４０°以下となるように、前記強化繊維シートを前記バーに接触させながら、狭窄部から引き取る、

プリプレグの製造方法。

[請求項10] 前記バーの長手方向両端部に幅規制部材を備える、請求項９に記載の

プリプレグの製造方法。

[請求項11] 前記塗布部の鉛直方向上側にガイドロールを備え、強化繊維シートを前記ガイドロールに接触させた後で前記塗布部に案内する、請求項９または１０のいずれかに記載のプリプレグの製造方法。

[請求項12] 前記バーのうち最上段に位置するバーが、前記ガイドロールと接触する強化繊維シートの面と反対の面で、強化繊維シートと接触する、請求項１１に記載のプリプレグの製造方法。

[請求項13] 強化繊維シートにマトリックス樹脂を付与するプリプレグ製造装置であって、強化繊維シートを鉛直方向下向きに走行させる走行機構と、マトリックス樹脂が貯留され、かつ鉛直方向下向きに断面積が連続的に減少する部分を有する液溜り部と、前記液溜り部の下端に連通するスリット状出口を有する狭窄部と、前記液溜り部の内部に設けられ、前記スリット状出口の長手方向に延びる１本以上のバーを有する、プリプレグ製造装置。

[請求項14] 強化繊維の配列方向における液溜り部の下部の幅Ｌと、狭窄部の直下における強化繊維シートの幅Ｗが、Ｌ≦Ｗ＋１０（ｍｍ）を満たす、請求項１～２、４～７および９～１２のいずれかに記載のプリプレグの製造方法。

[請求項15] 液溜り部内に強化繊維シートの幅を規制するための幅規制機構を備え、狭窄部の直下における強化繊維シートの幅（Ｗ）と該幅規制機構下端において幅規制機構により規制される幅（Ｌ２）との関係が、Ｌ２≦Ｗ＋１０（ｍｍ）を満たす、請求項１～２、４～７、９～１２、１４のいずれかにの何れかに記載のプリプレグの製造方法。

[請求項16] 液溜り部における断面積が連続的に減少する部分の鉛直方向高さが１０ｍｍ以上である、請求項１～２、４～７、９～１２、１４～１５のいずれかにの何れかに記載のプリプレグの製造方法。

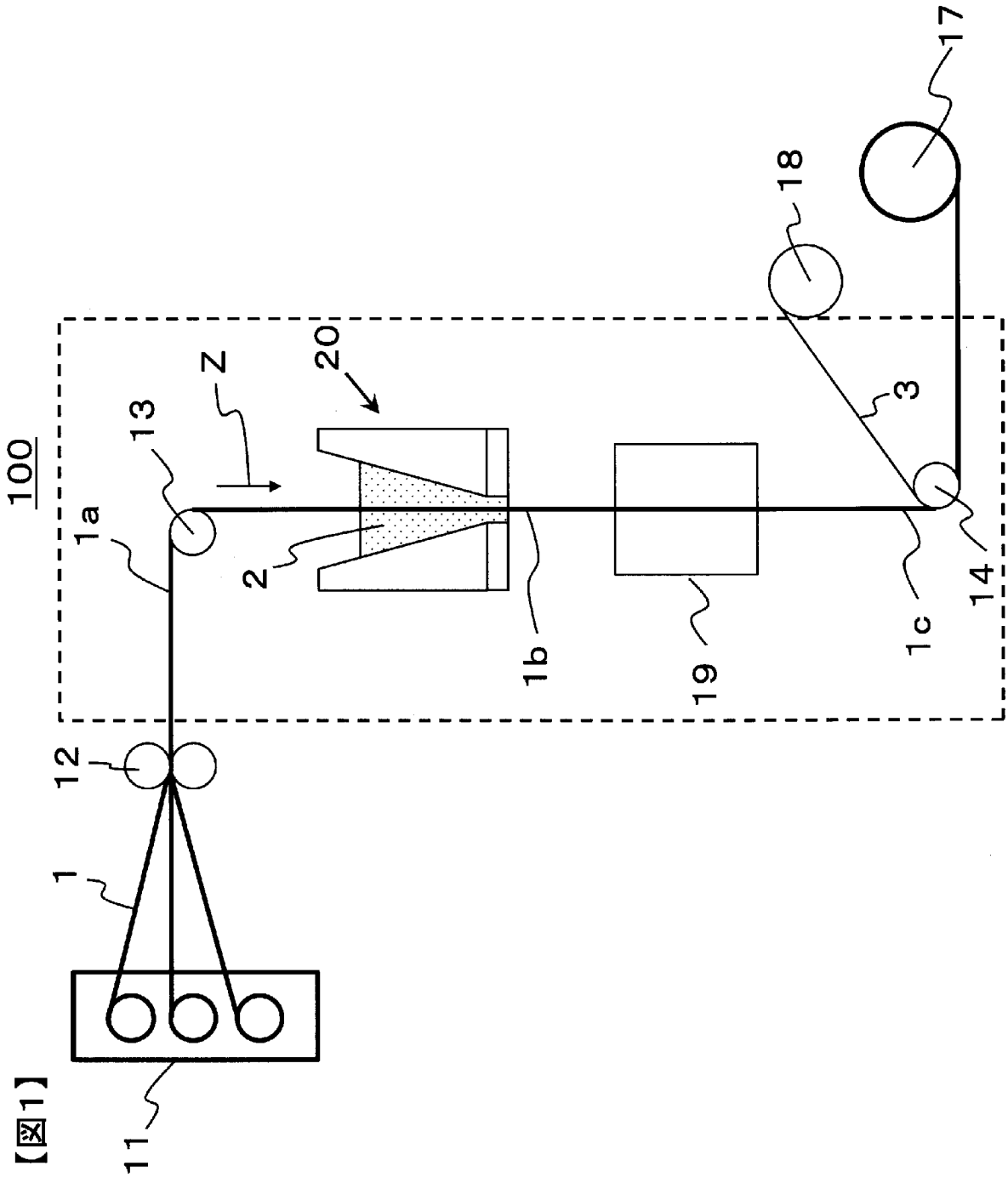
[請求項17] 得られたプリプレグの剥離法による含浸度が７０％以上である請求項１～２、４～７、９～１２、１４～１６のいずれかにの何れかに記

載のプリプレグの製造方法。

[請求項18] 請求項１～２、４～７、９～１２、１４～１７の何れかに記載のプリプレグの製造方法または請求項３、８、１３により得られたプリプレグをスリットするプリプレグテープの製造方法。

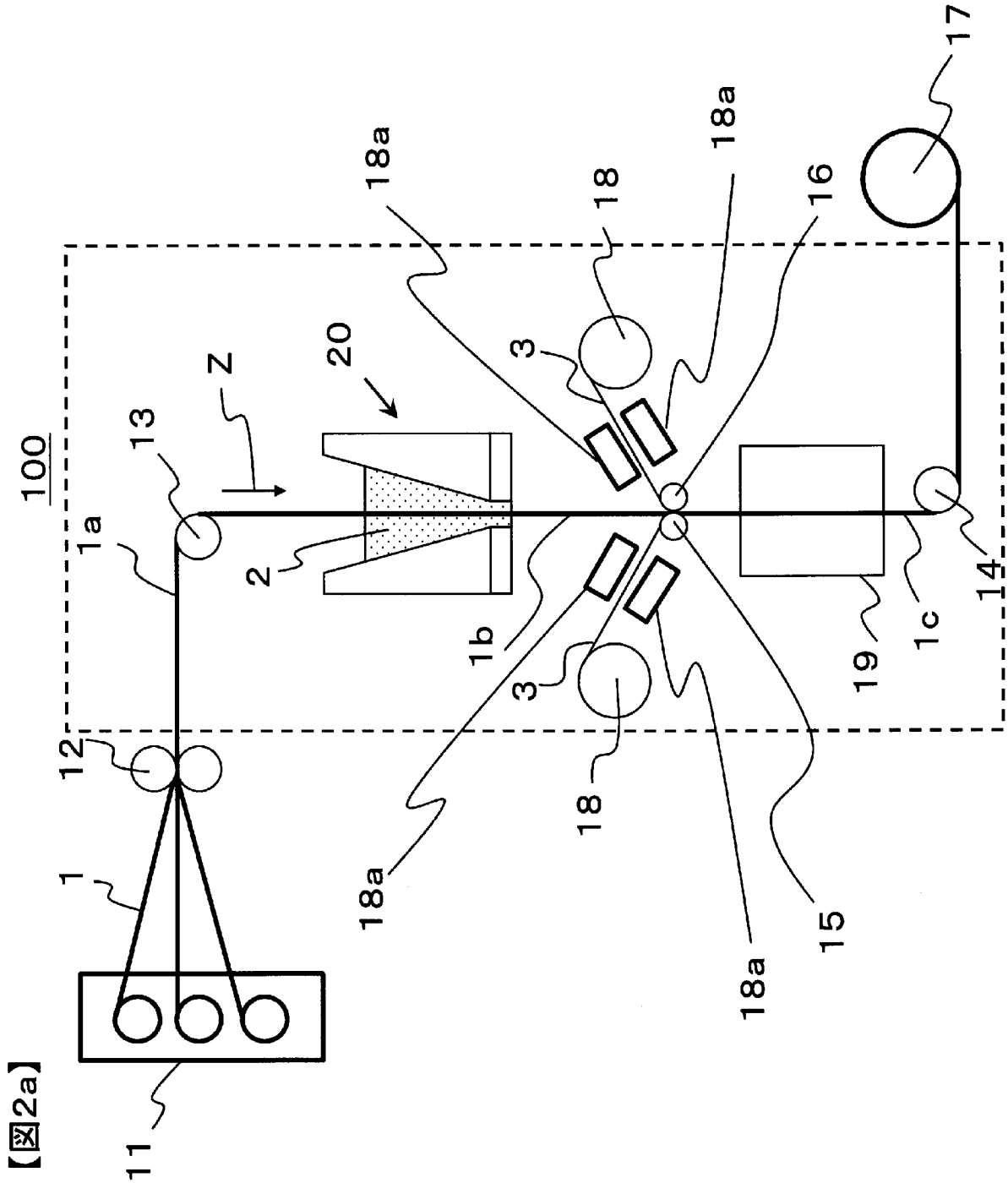
[請求項19] 請求項１～２、４～７、９～１２および１４～１７の何れかに記載のプリプレグの製造方法または請求項３、８、１３により得られたプリプレグまたは請求項１８に記載のプリプレグテープの製造方法により得られたプリプレグテープを硬化させる繊維強化複合材料の製造方法。

[図1]



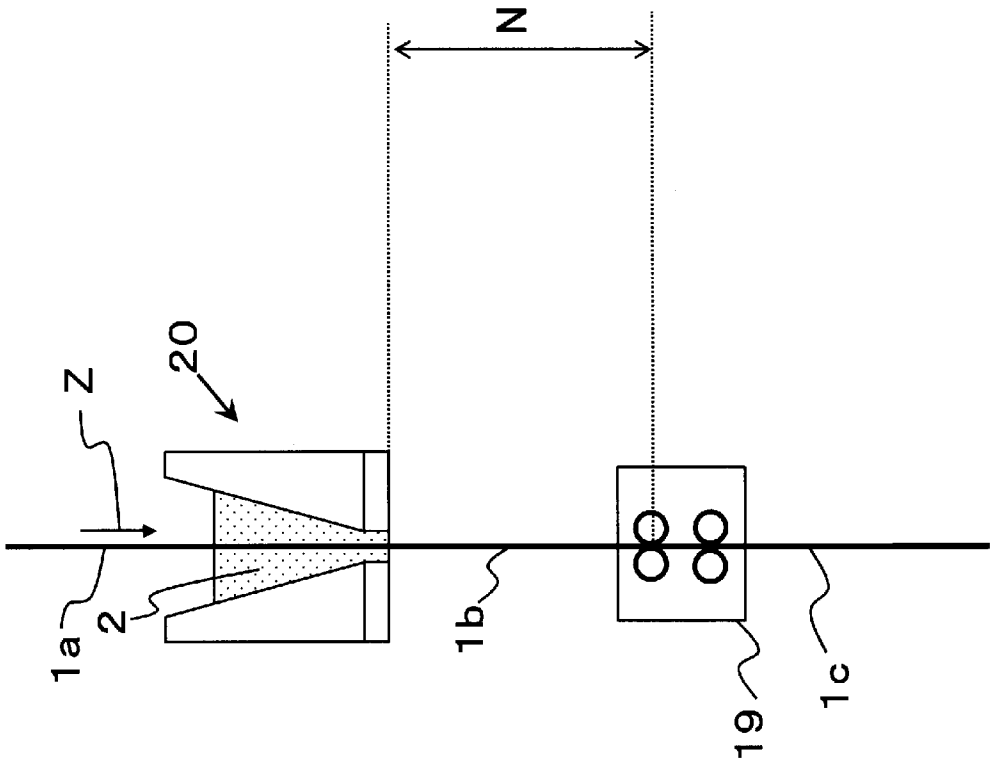
【図1】

[図2a]



【図2a】

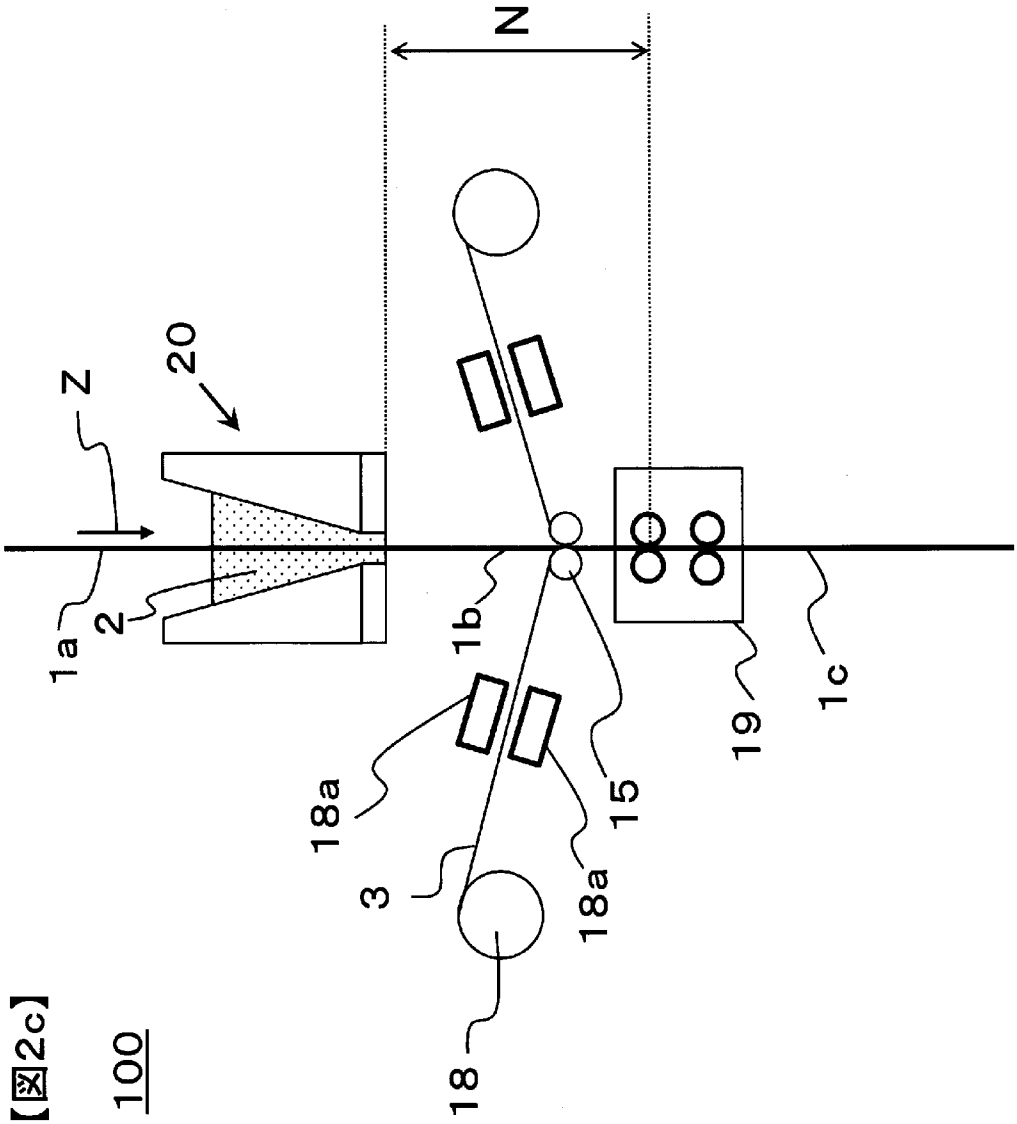
[図2b]



【図2b】

100

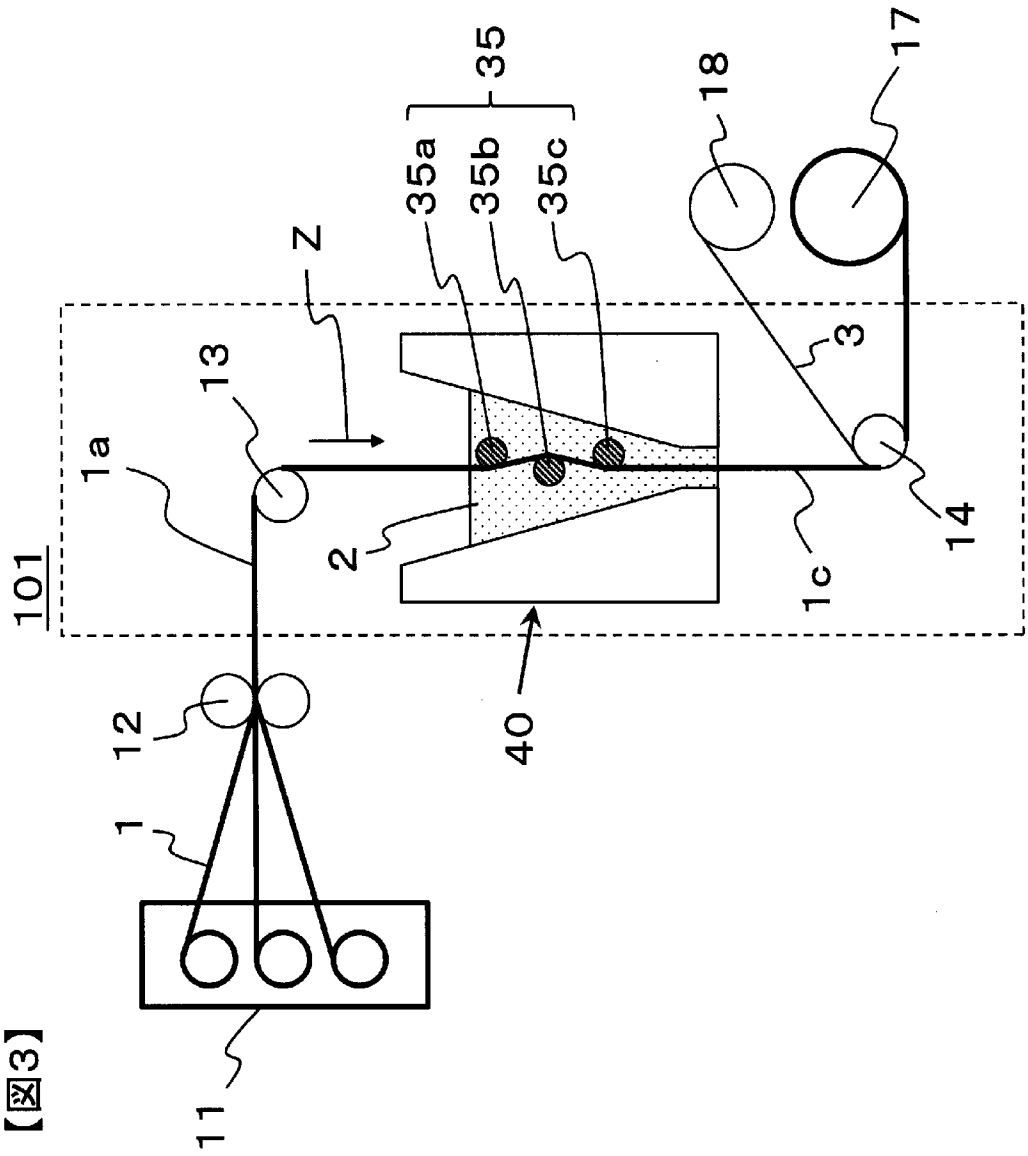
[図2c]



【図2c】

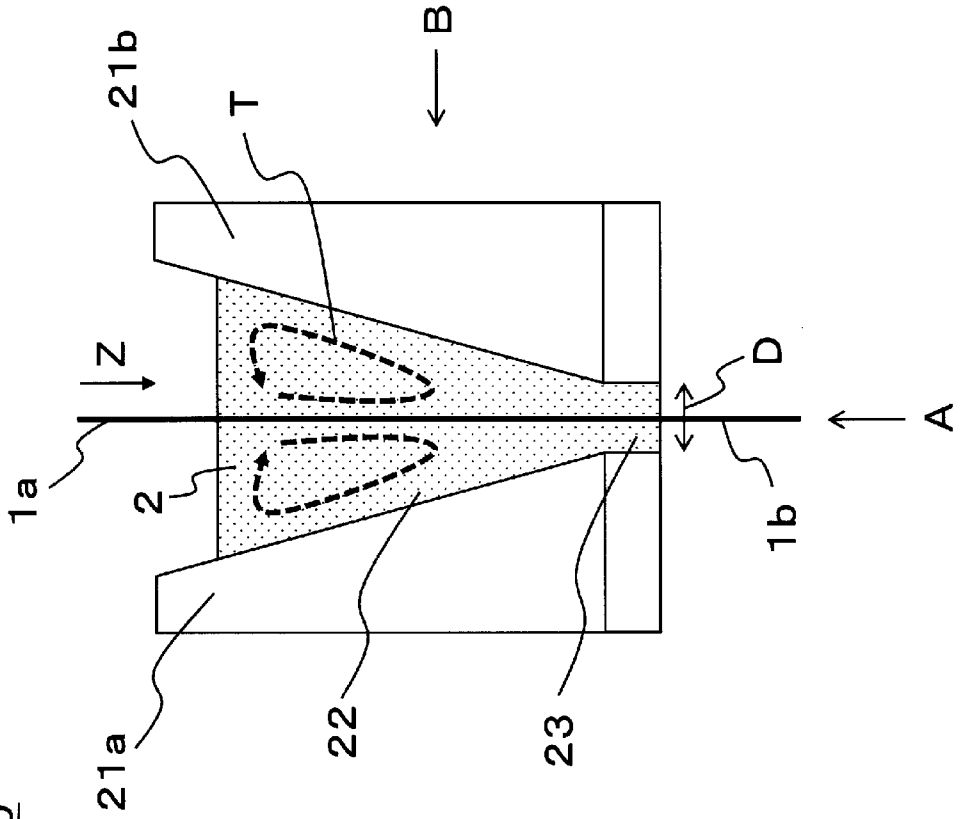
100

[図3]



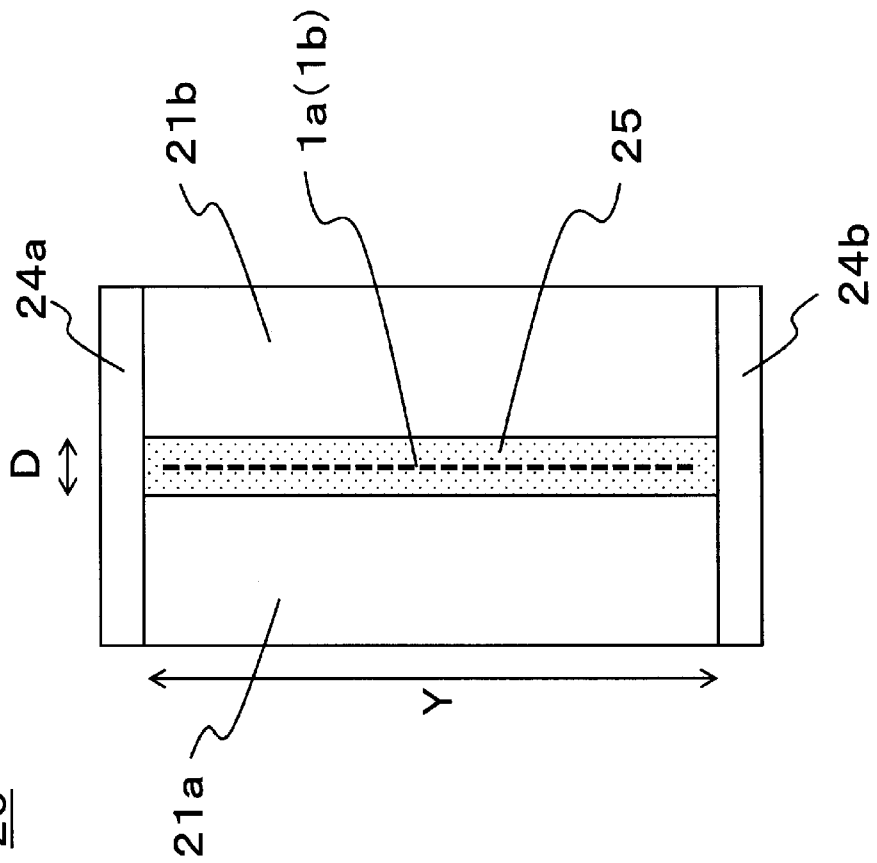
【図3】

[図4]



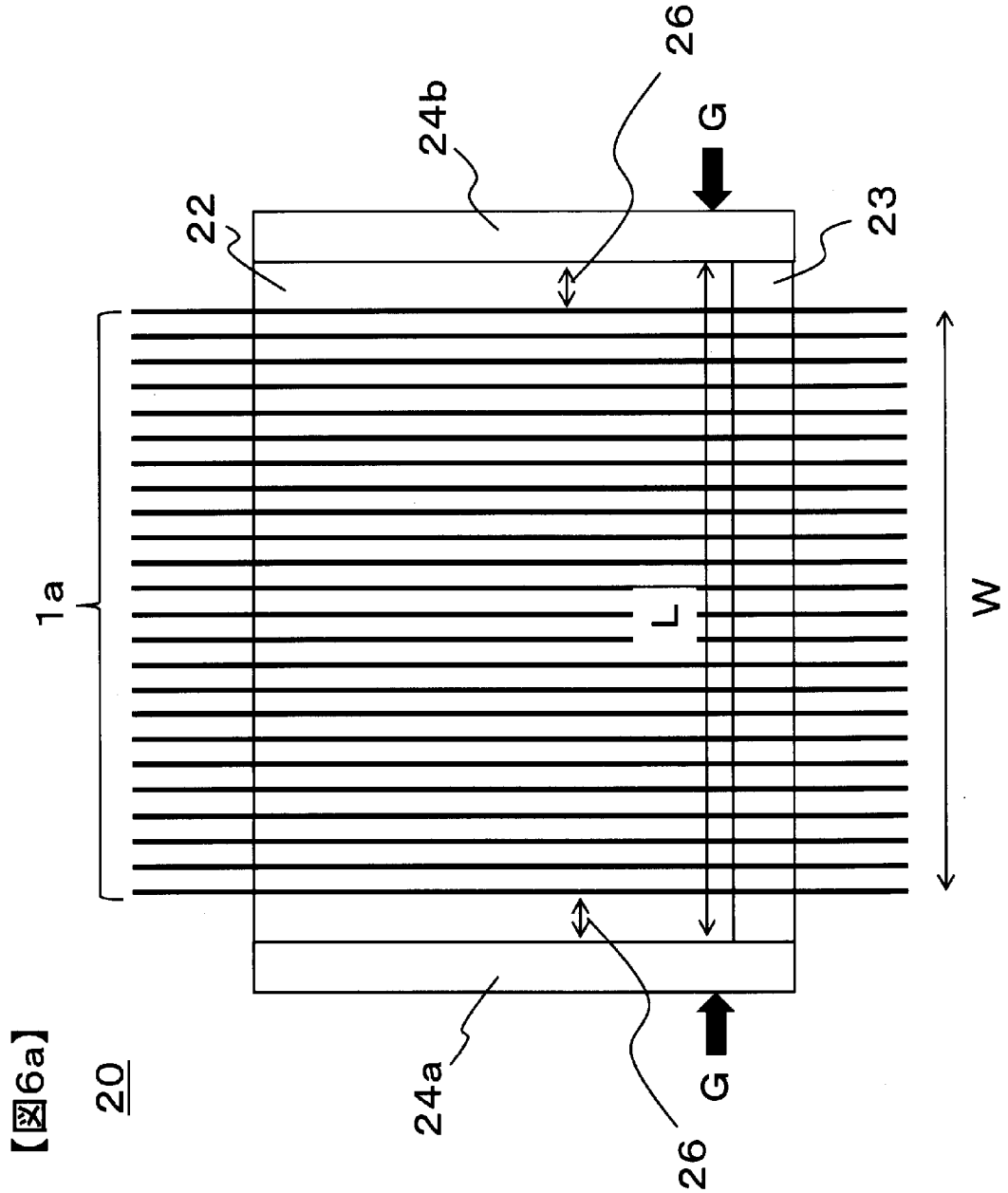
【図4】

[図5]



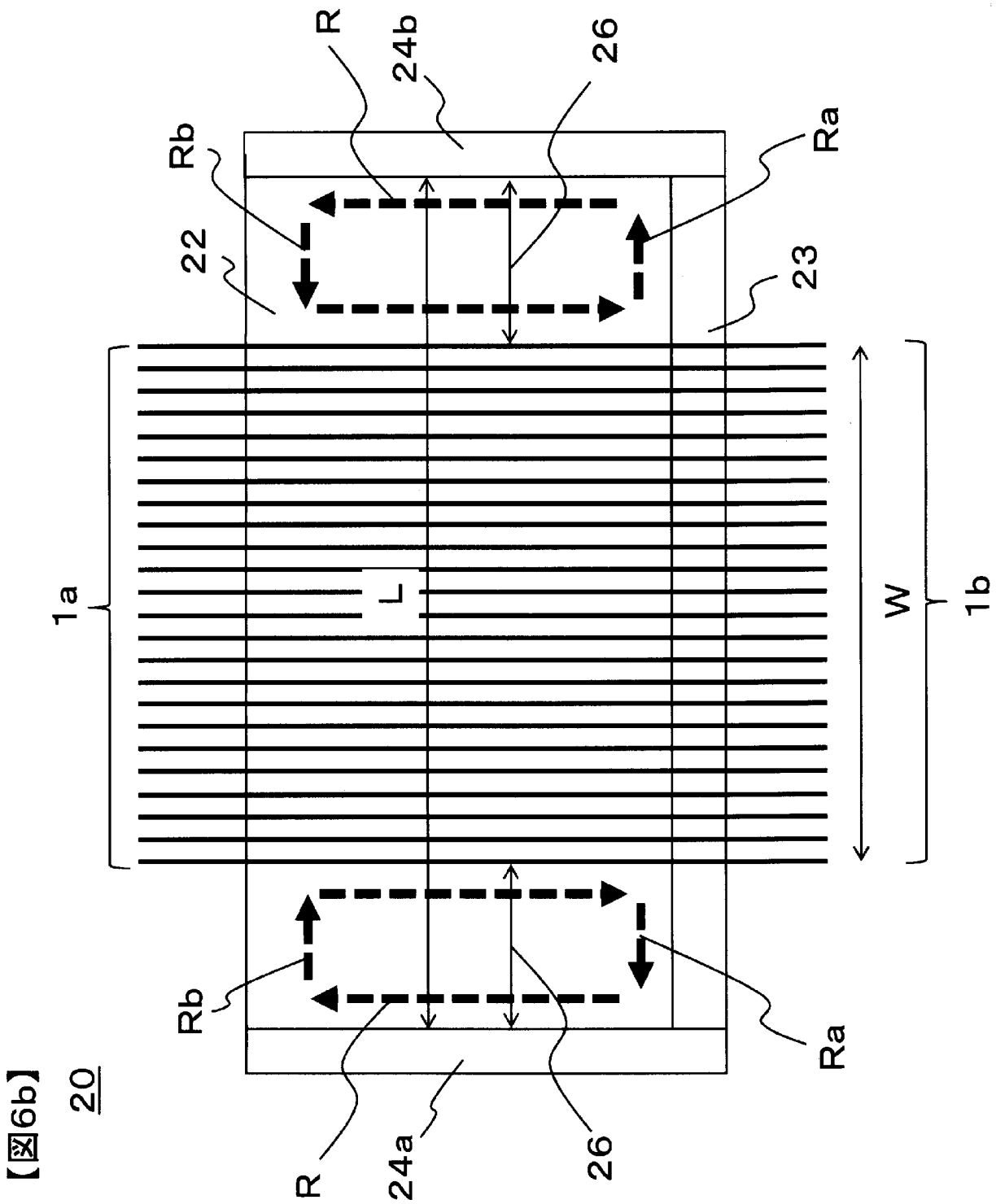
【図5】

[図6a]



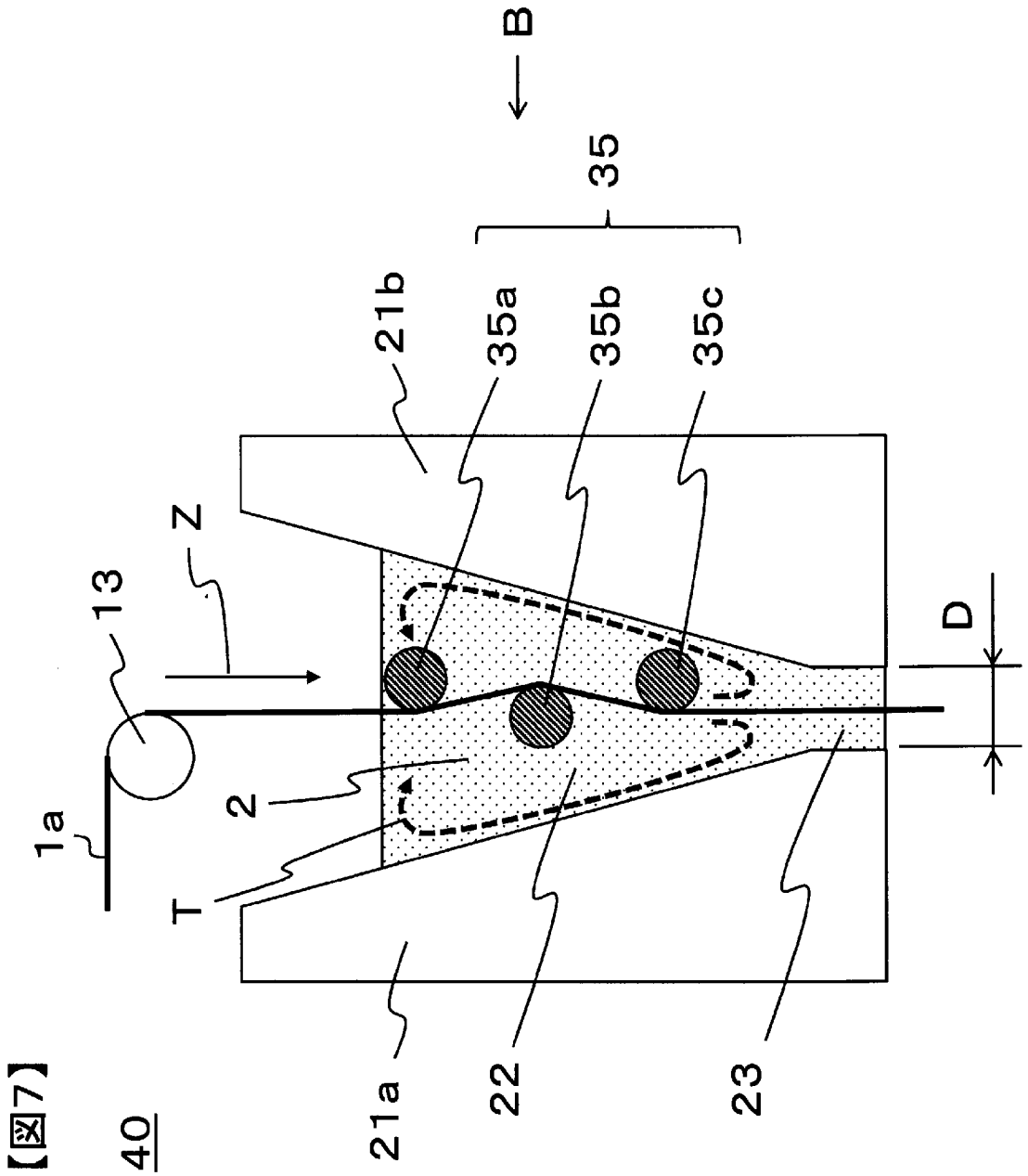
【図6a】

[図6b]



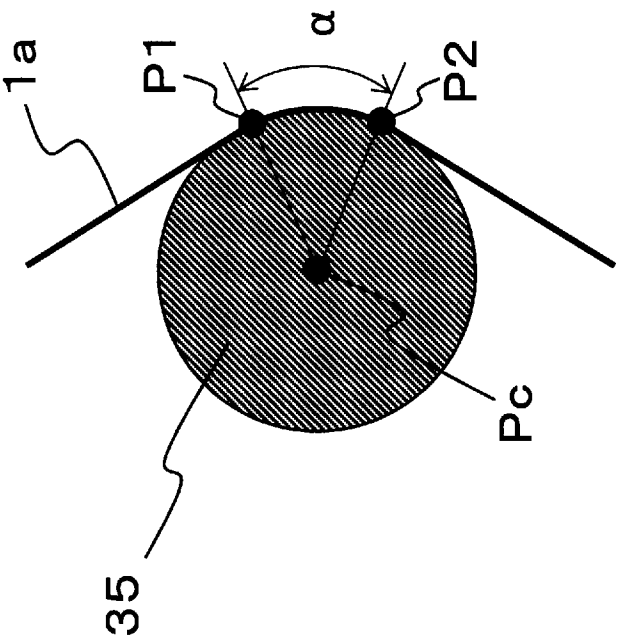
【図6b】

[図7]



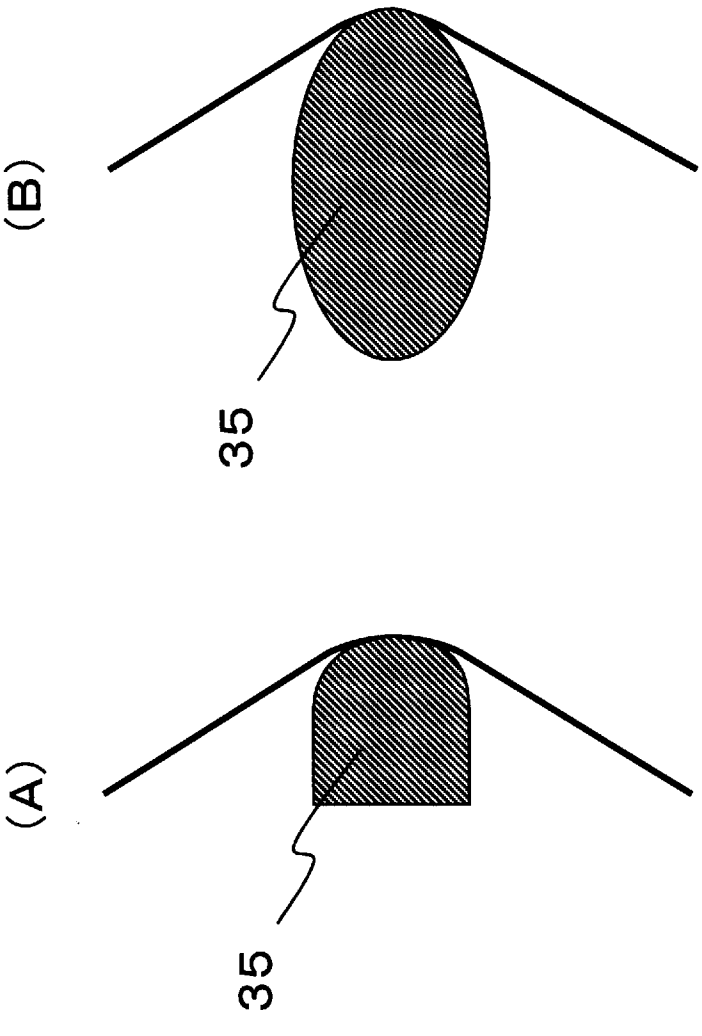
【図7】

[図8]



【図8】

[図9]



【図9】

[図10]

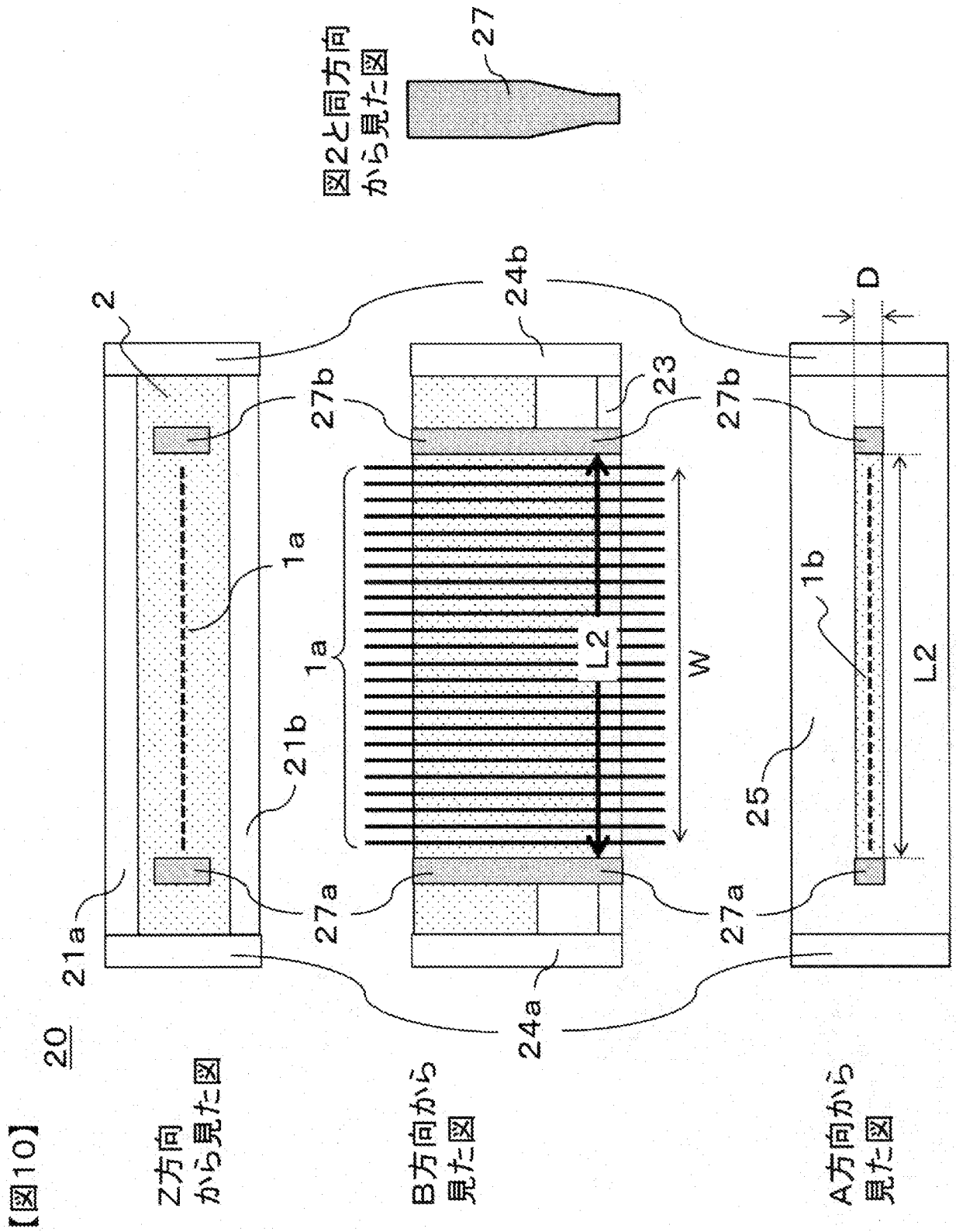
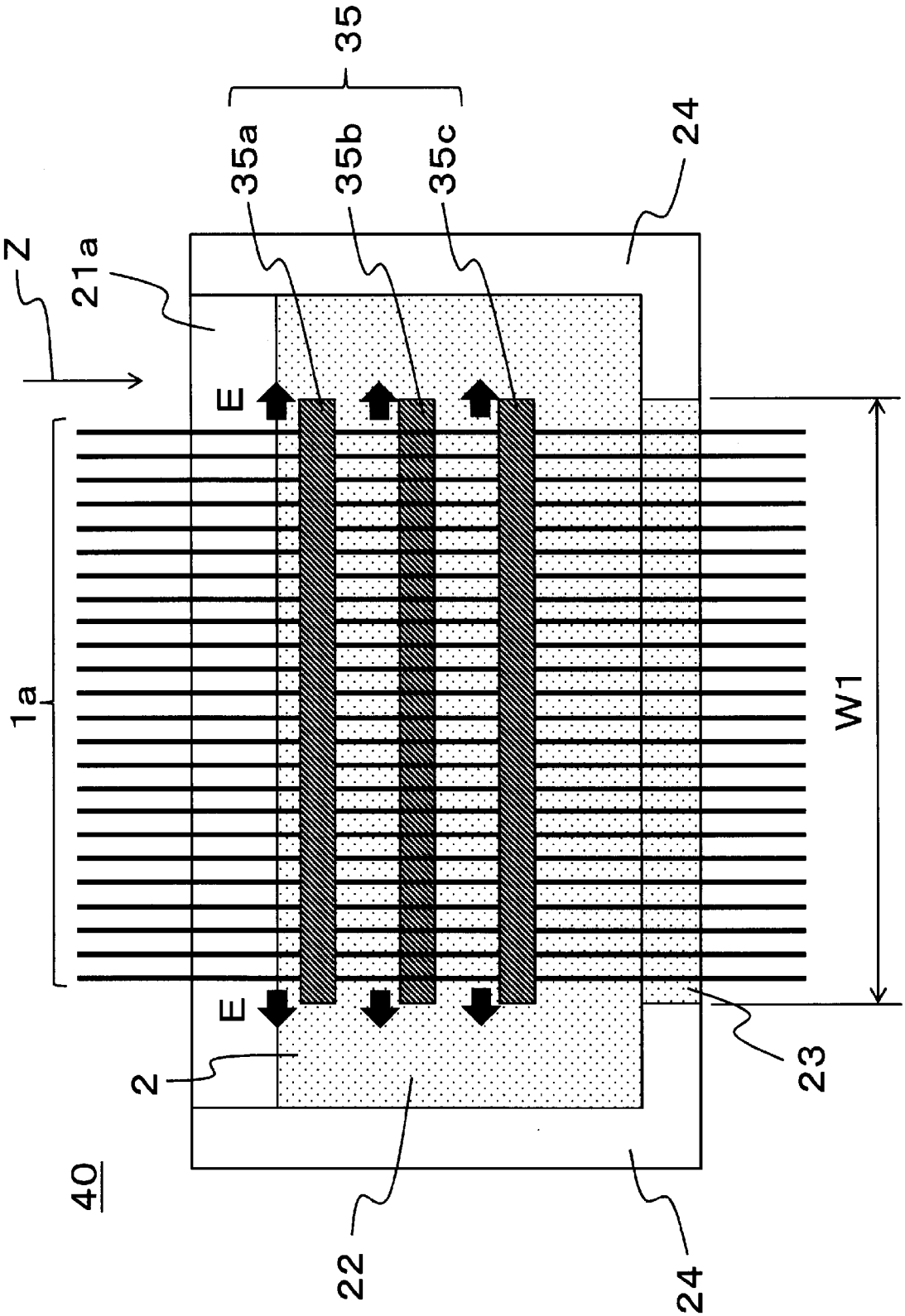


図2と同方向
から見た図
27
24b
D
2
27b
23
27b
1a
1a
L2
W
1b
L2
21b
25
21a
27a
27a
24a
20
Z方向
から見た図
B方向から
見た図
A方向から
見た図

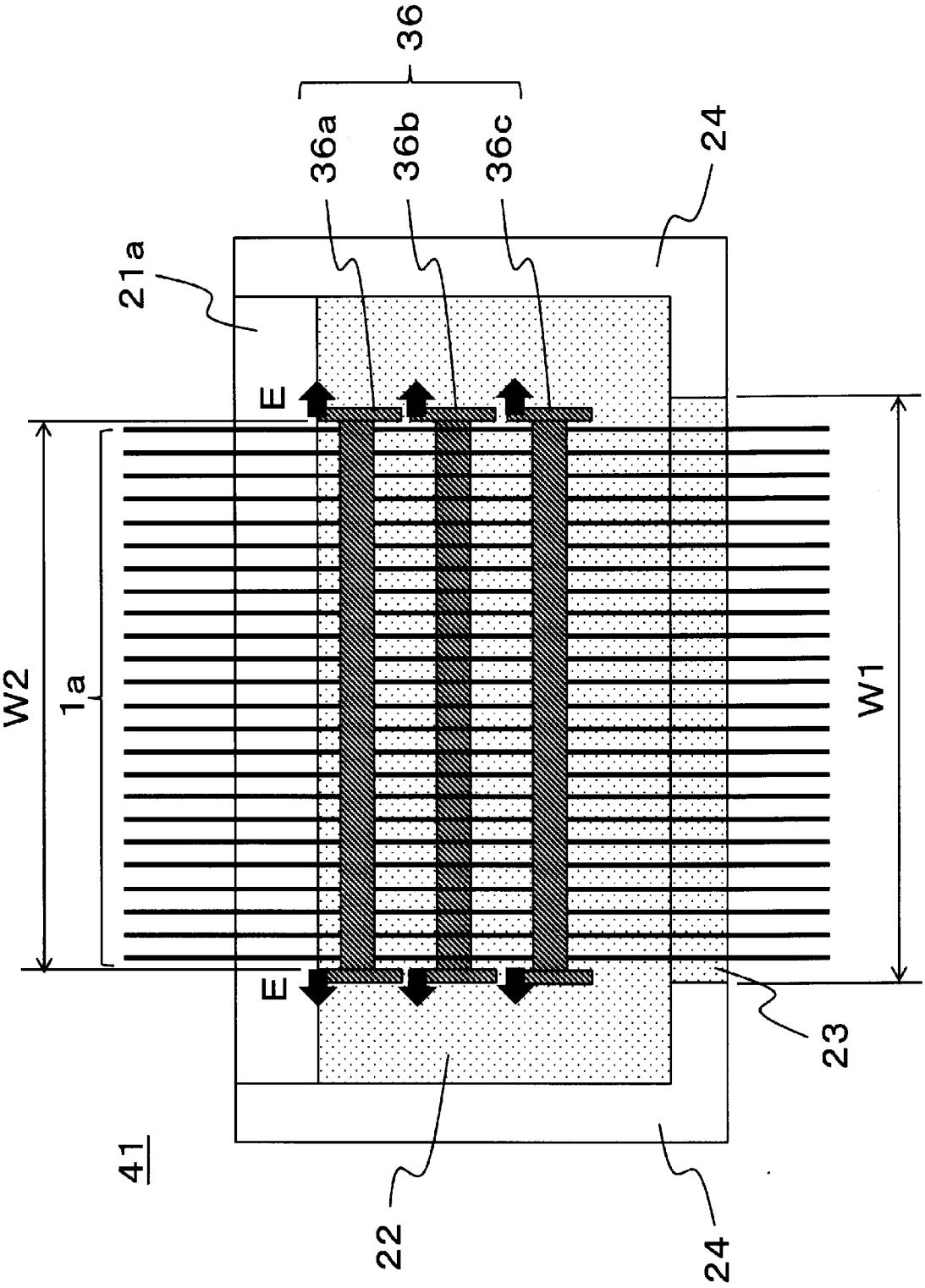
【図10】

[図11]



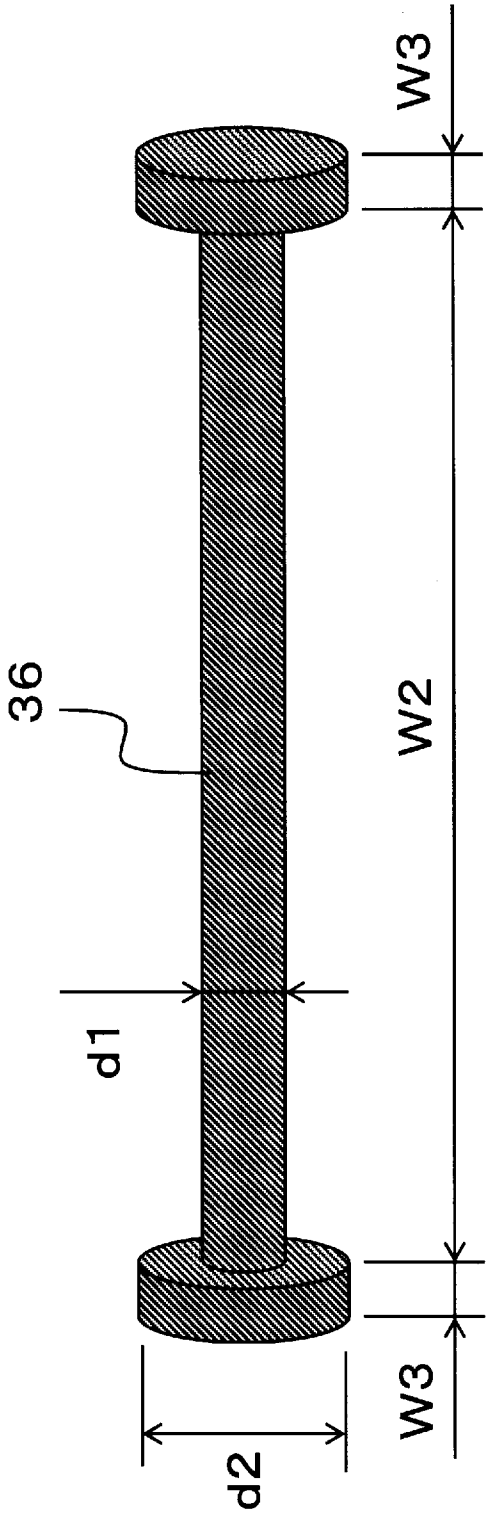
【図11】

[図12]



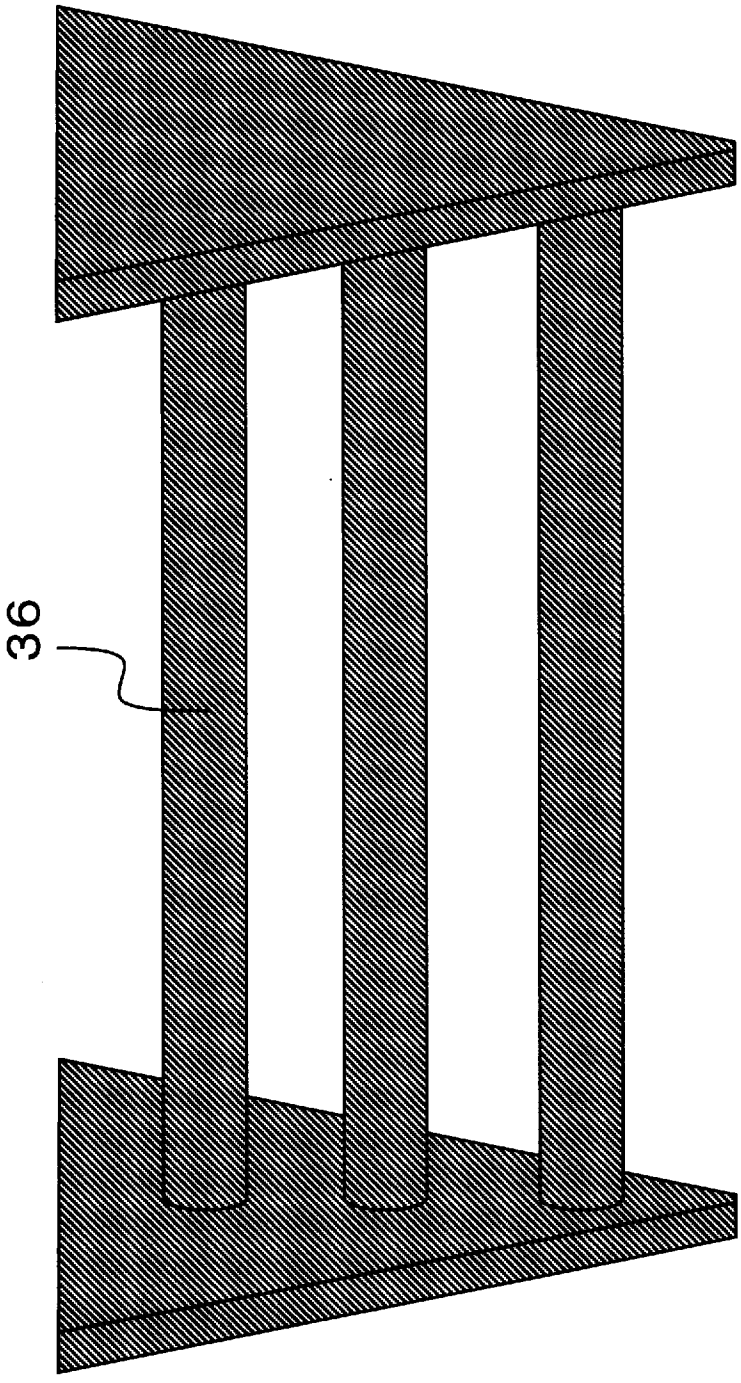
【図12】

[図13]



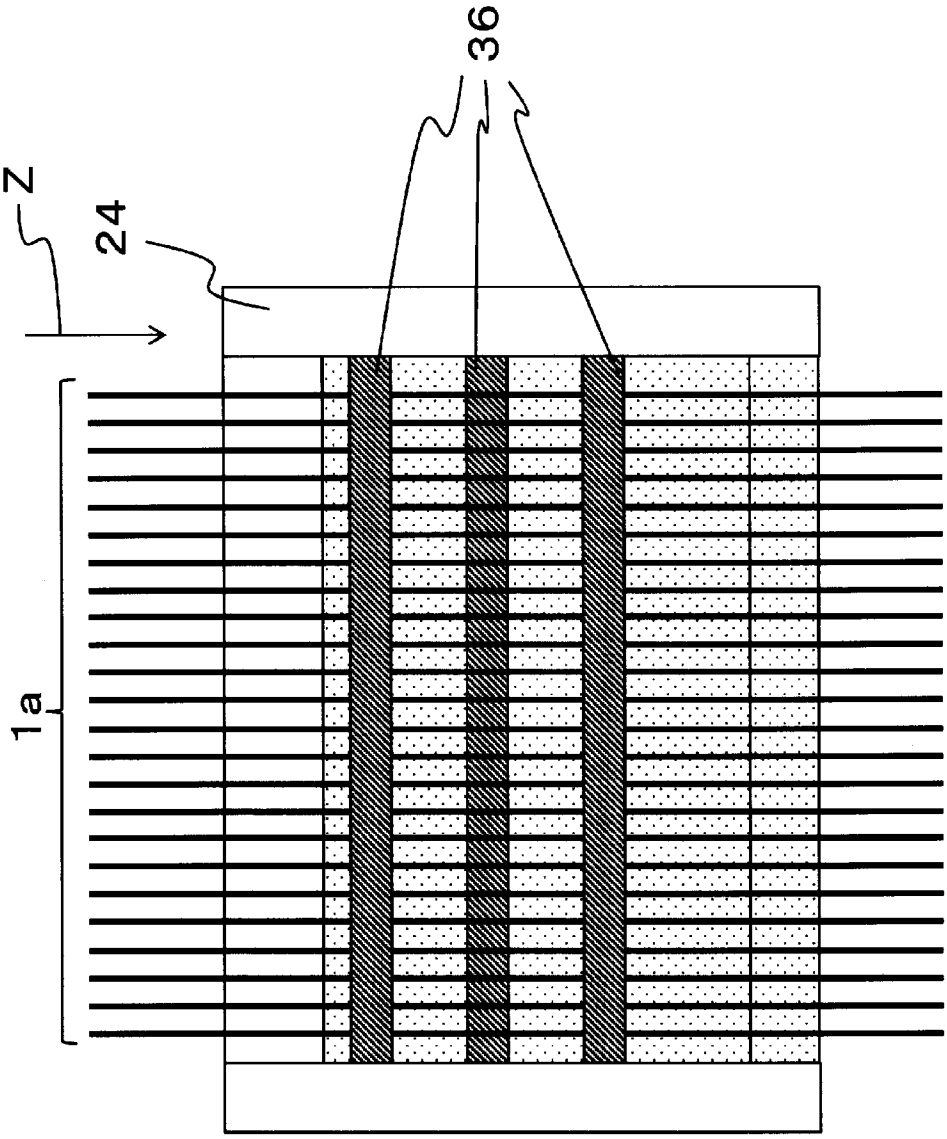
【図13】

[図14]



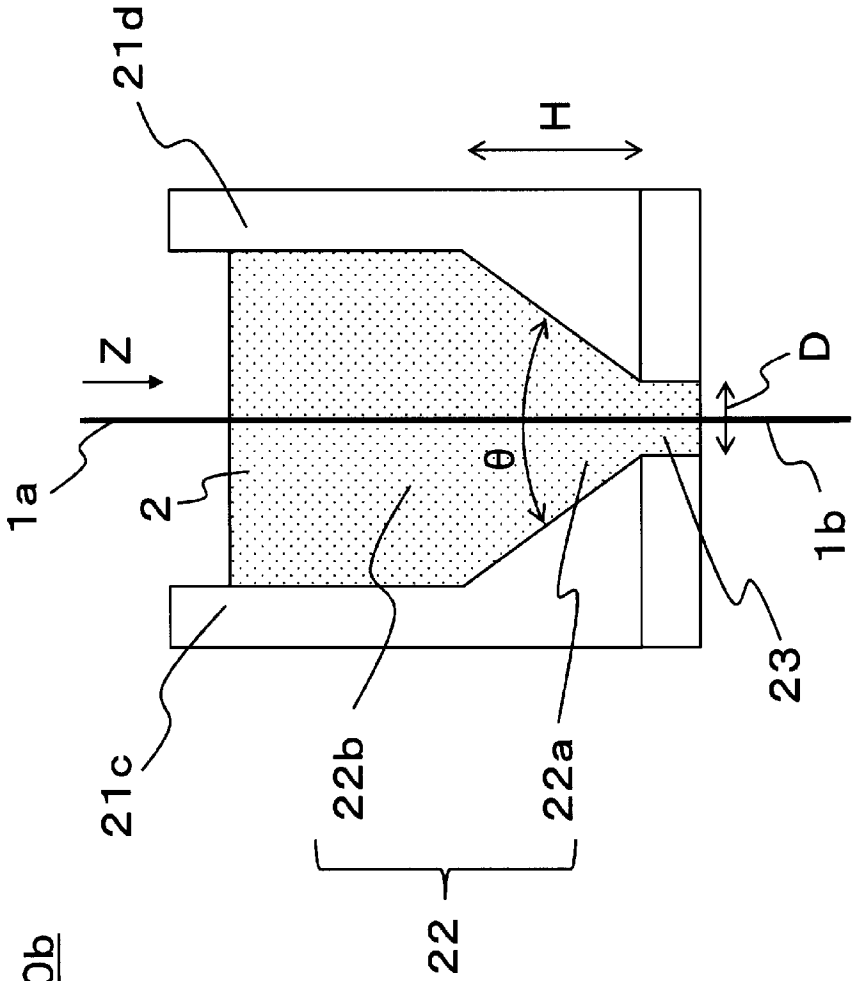
【図14】

[図15]



【図15】

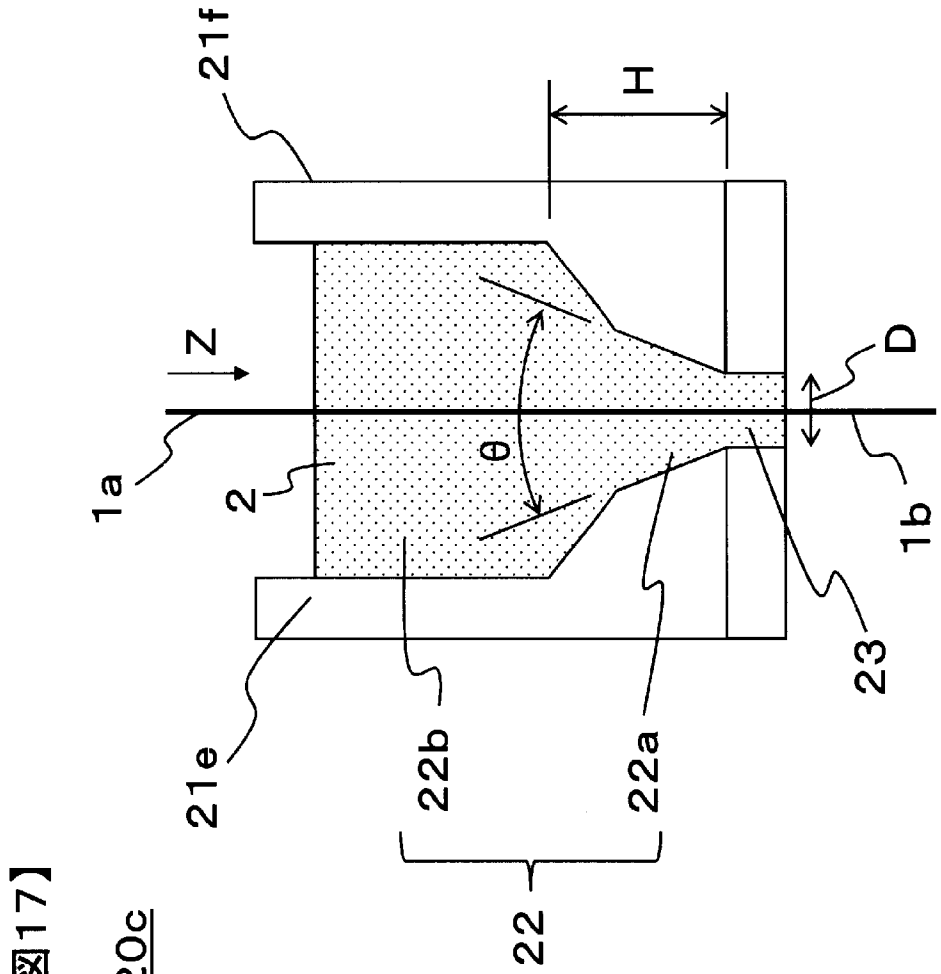
[図16]



【図16】

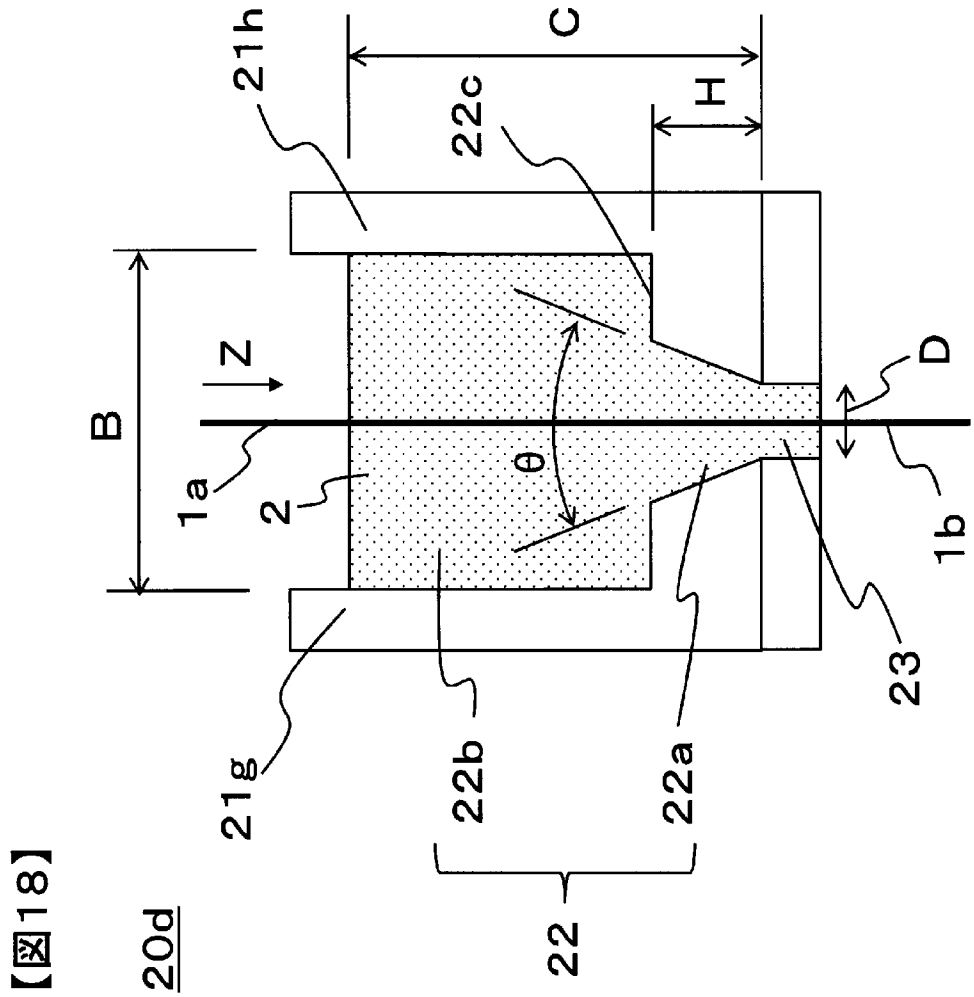
20b

[図17]



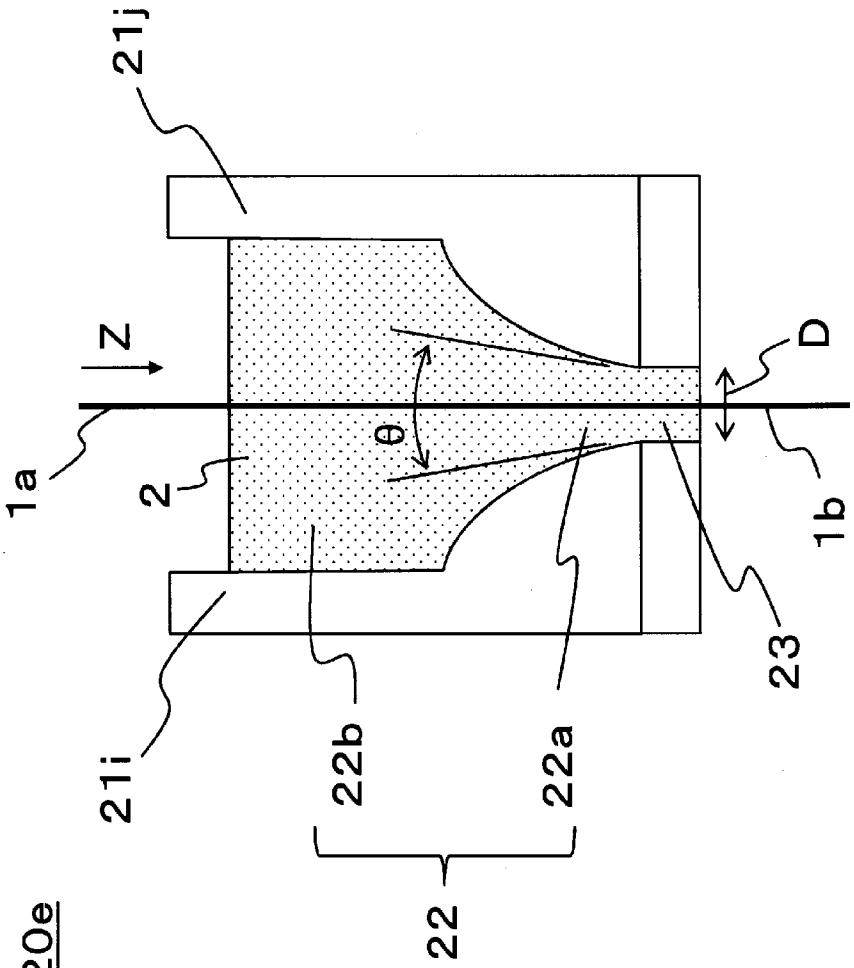
【図17】

[図18]



【図18】

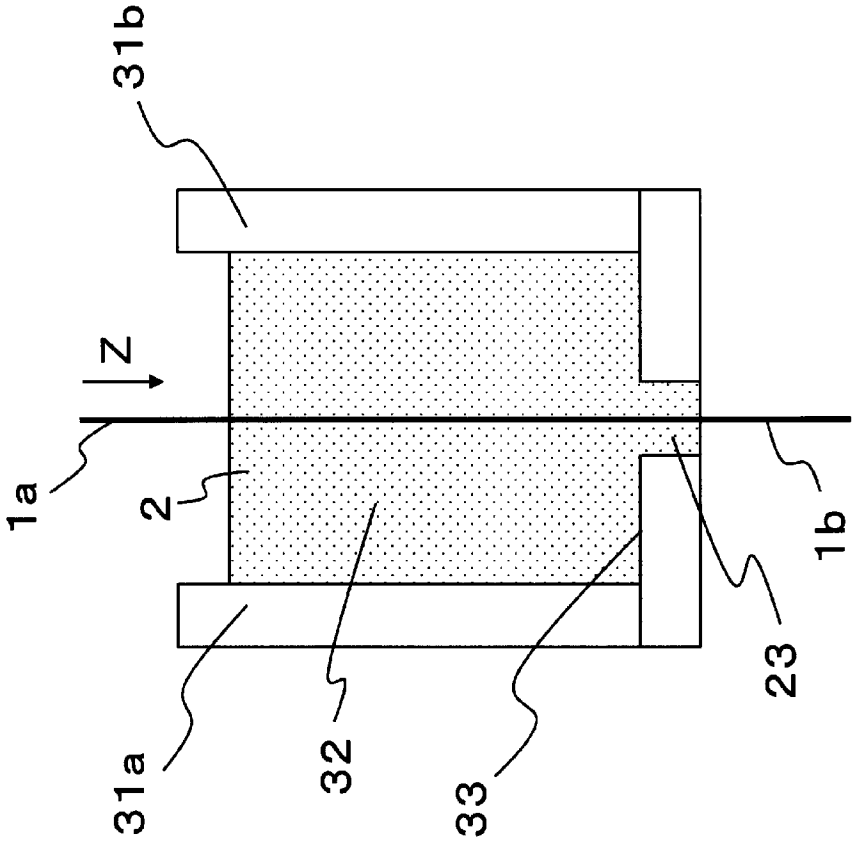
[図19]



【図19】

20e

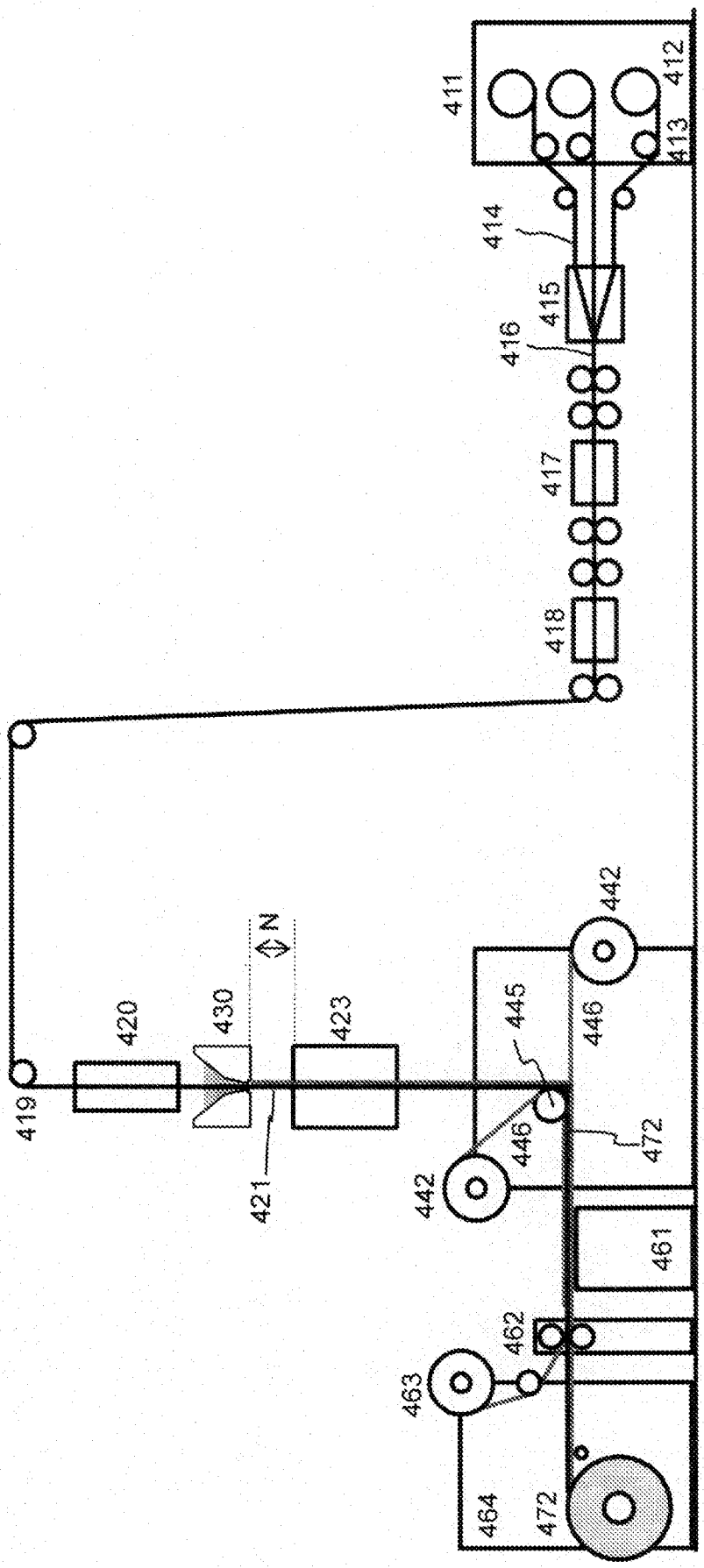
[図20]



【図20】

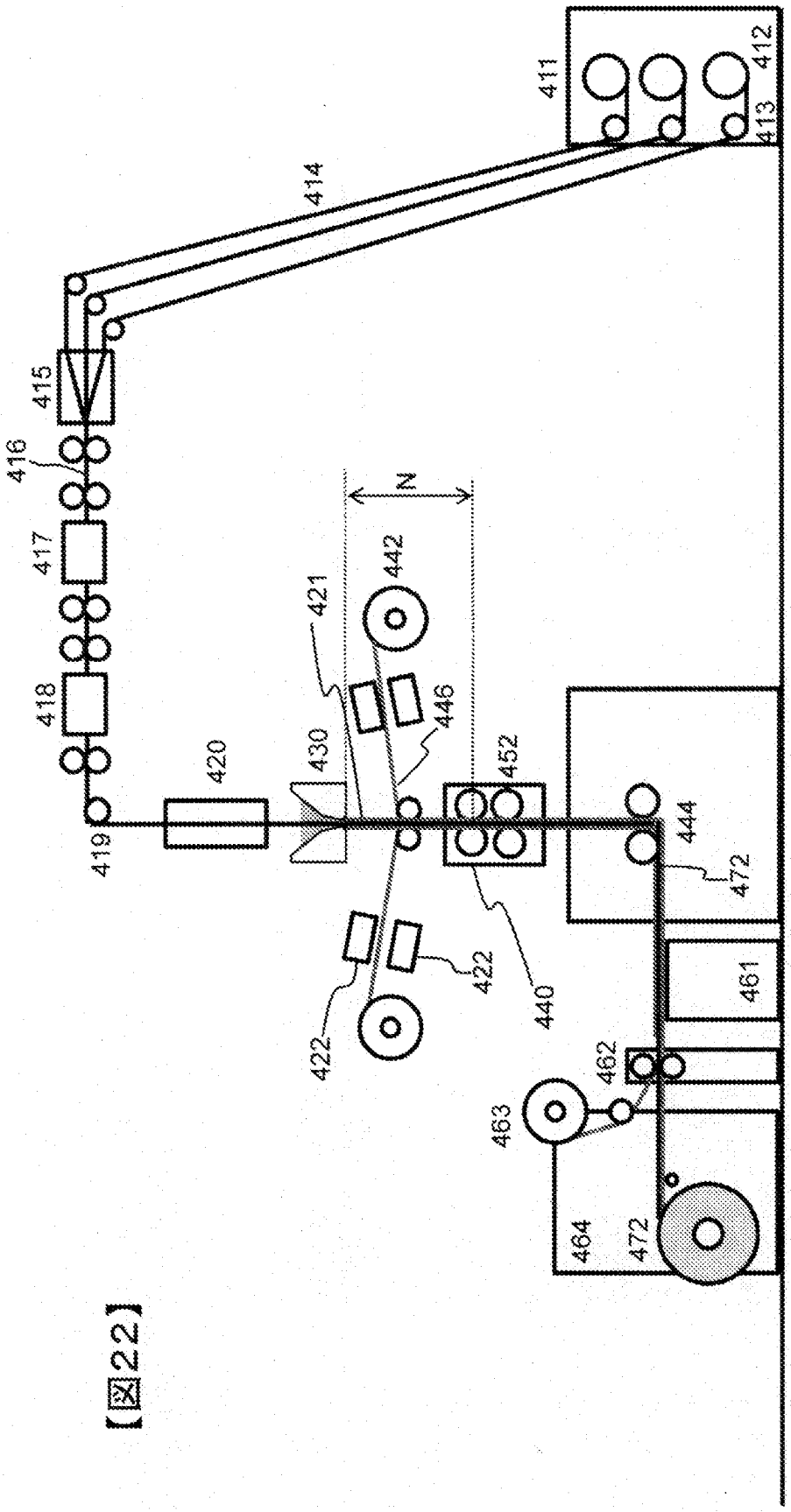
30

[図21]


411
412
413
414
415
416
417
418
419
420
421
423
430
442
445
446
461
462
463
464
472
N

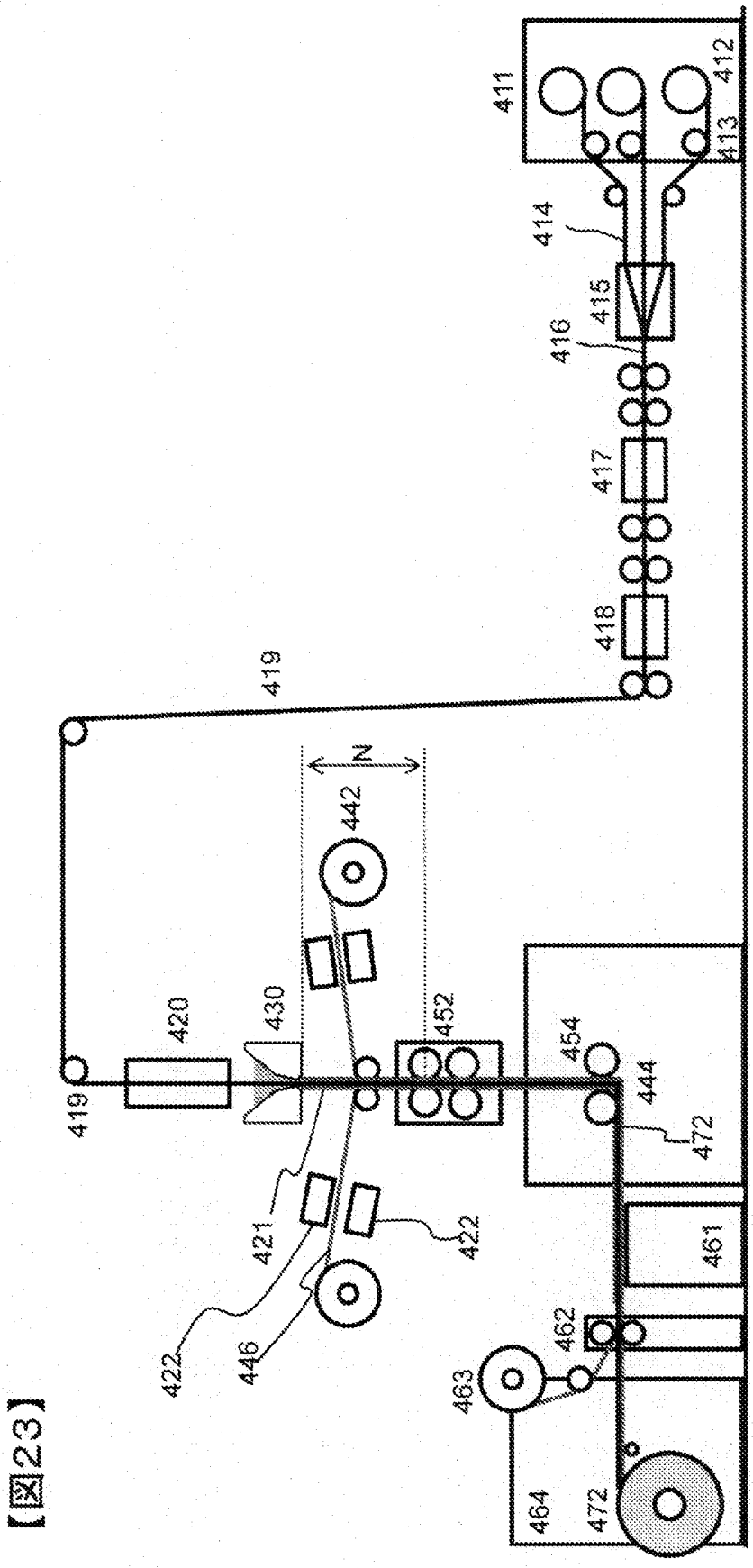
【図21】

[図22]


411
412
413
414
415
416
417
418
419
420
421
422
422
430
440
442
444
446
452
461
462
463
464
472
472
N

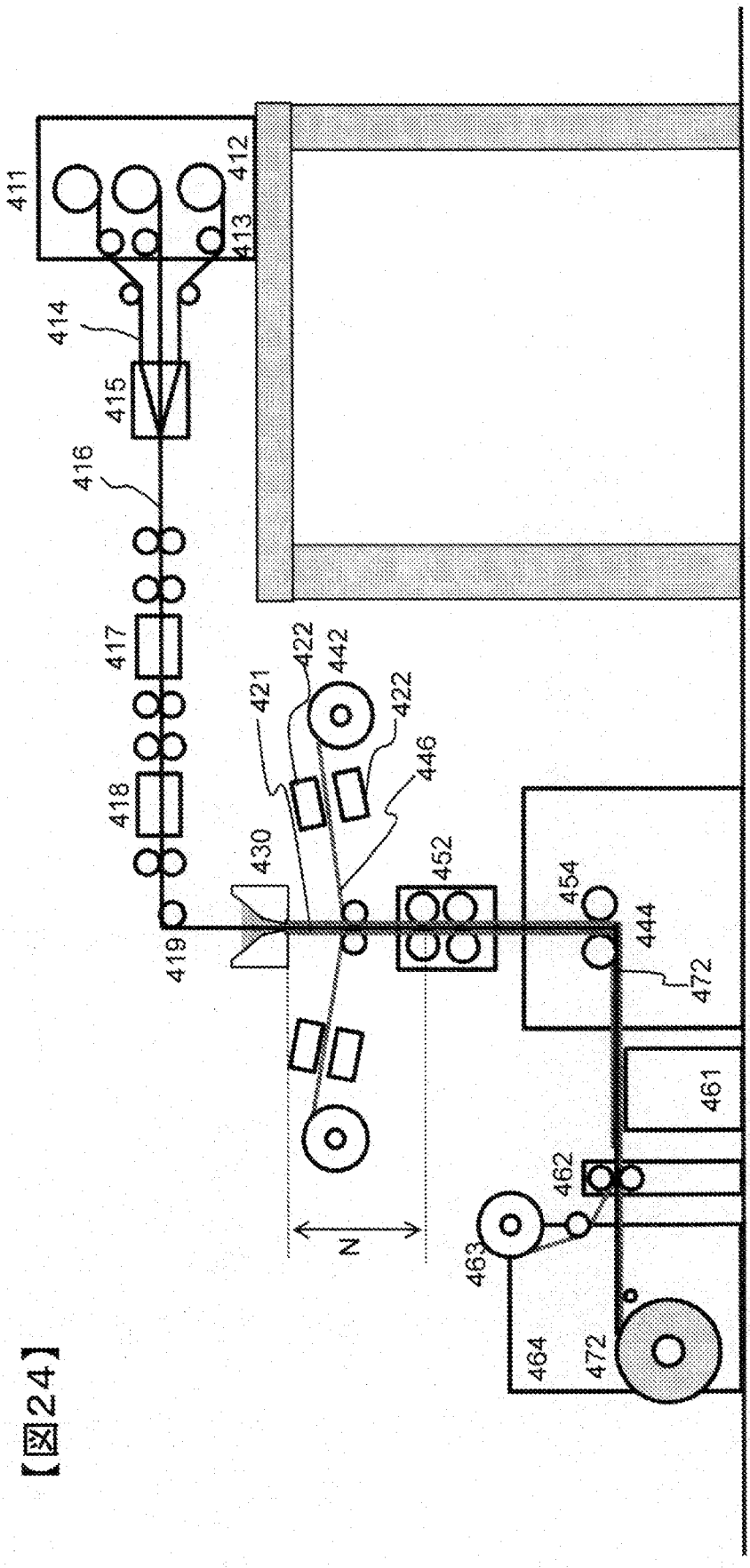
【図22】

[図23]


411
412
413
414
415
416
417
418
419
N
442
420
430
452
454
444
472
421
422
461
462
463
464
446

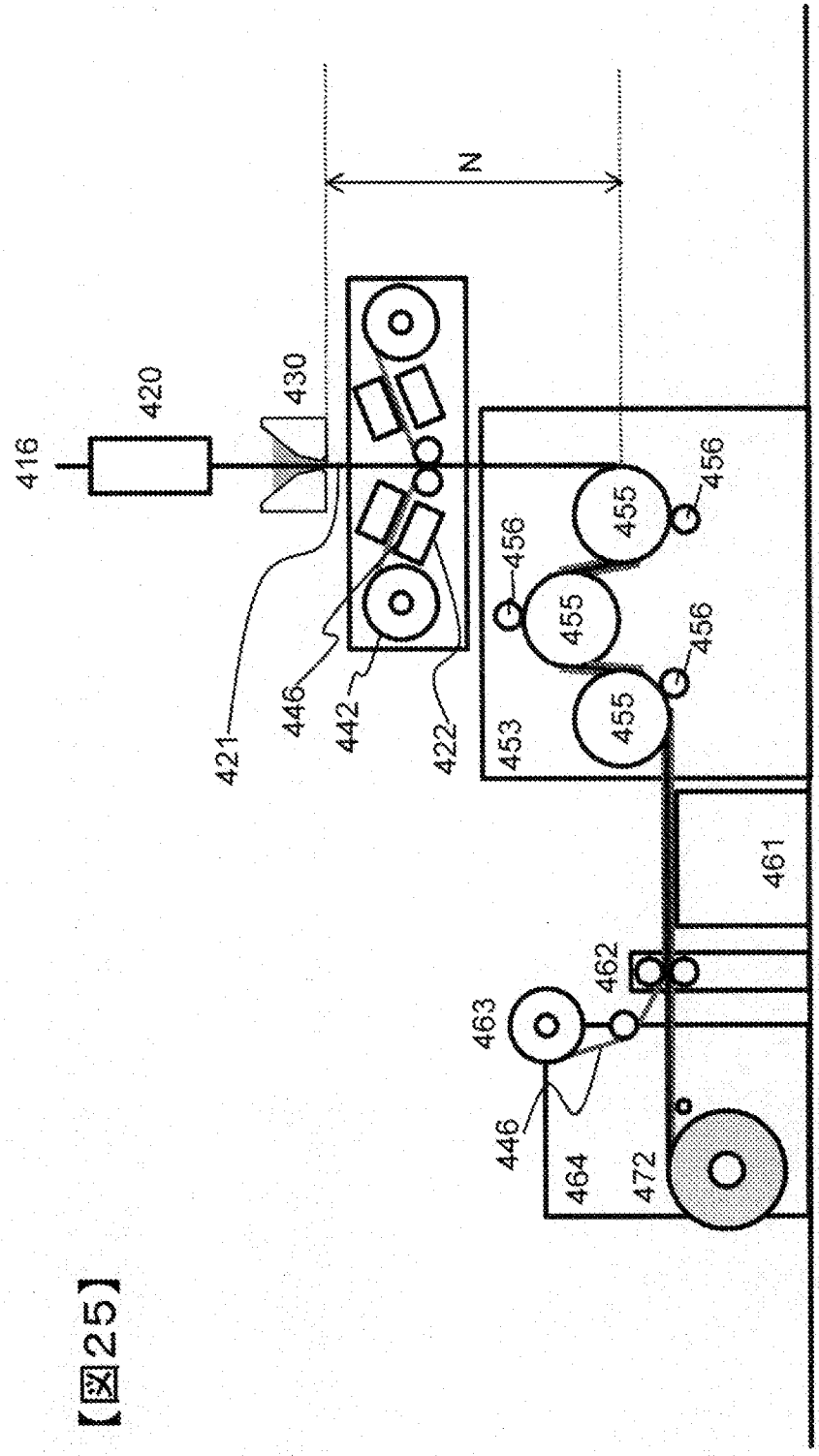
【図23】

[図24]


411
412
413
414
415
416
417
418
419
421
422
442
422
446
430
452
454
444
472
461
462
463
464
472
N

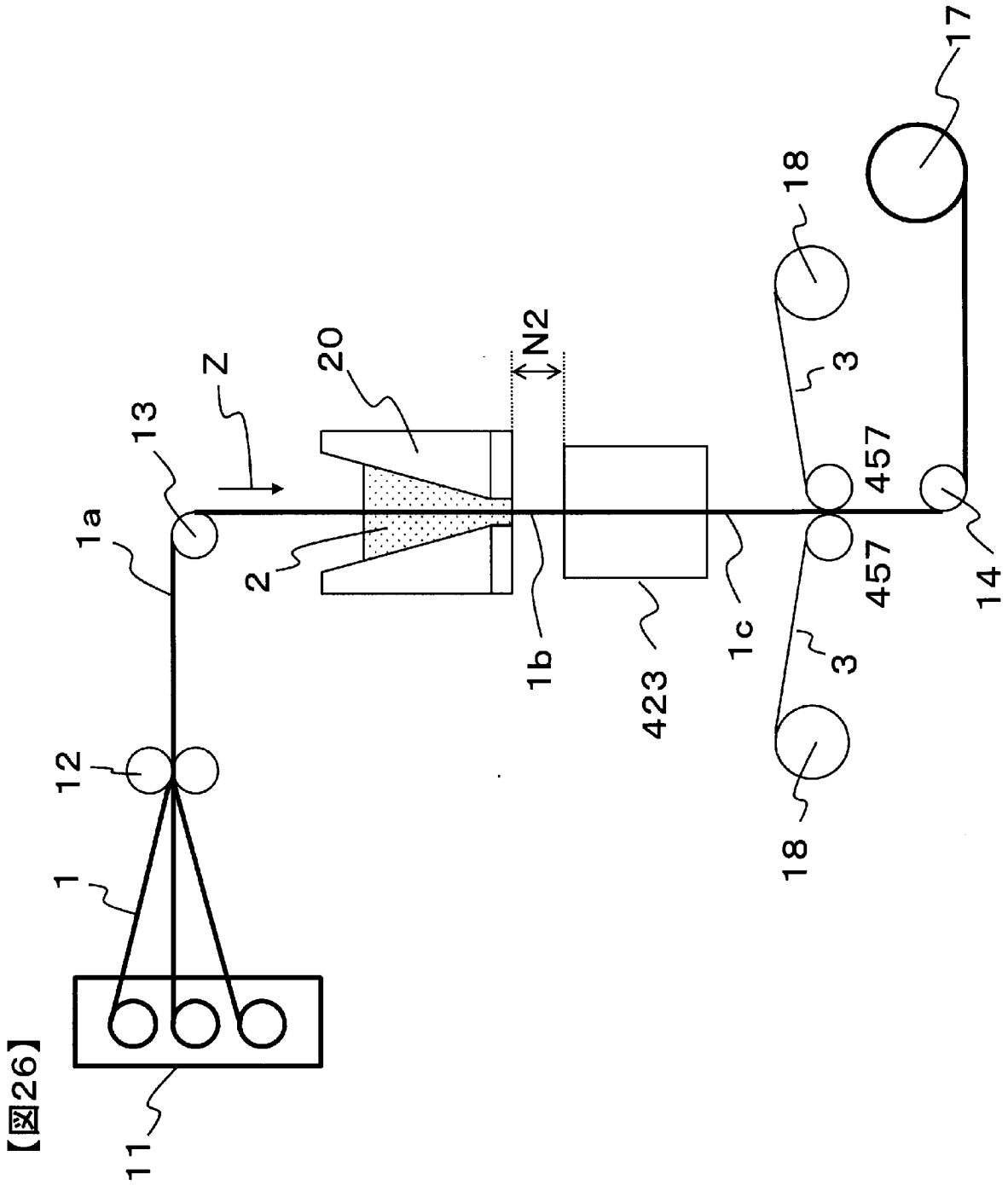
【図24】

[図25]



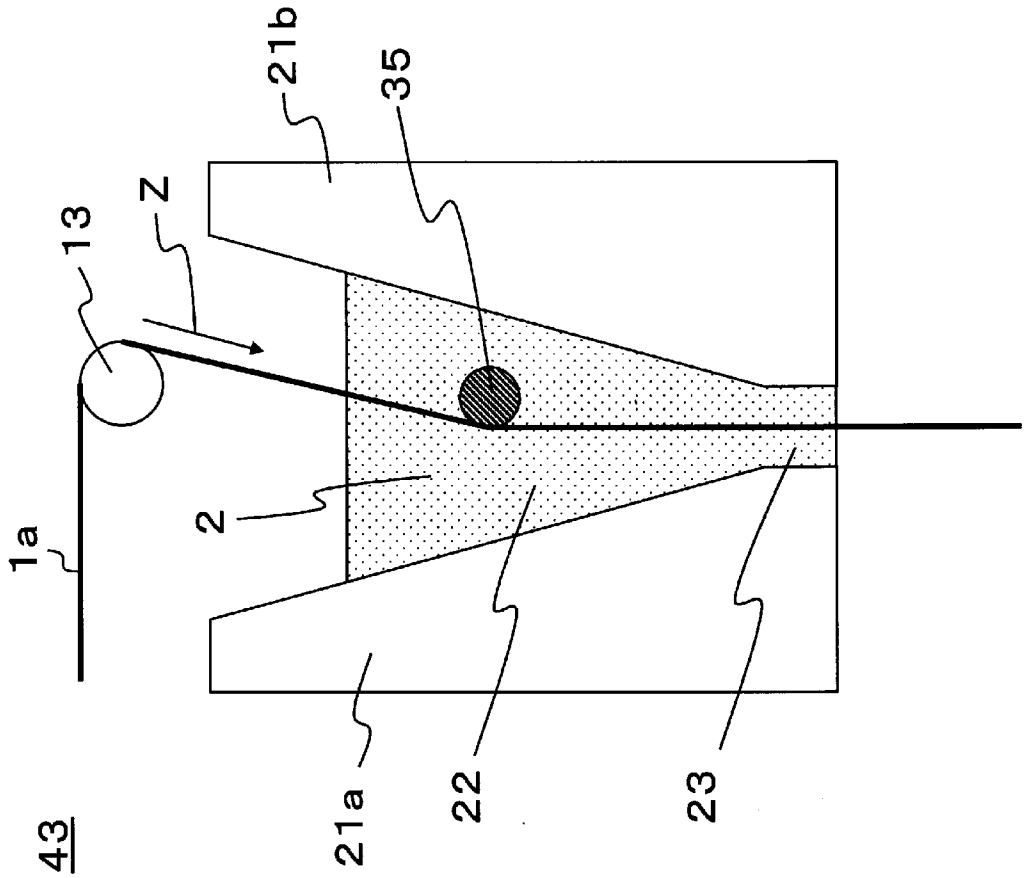
【図25】

[図26]



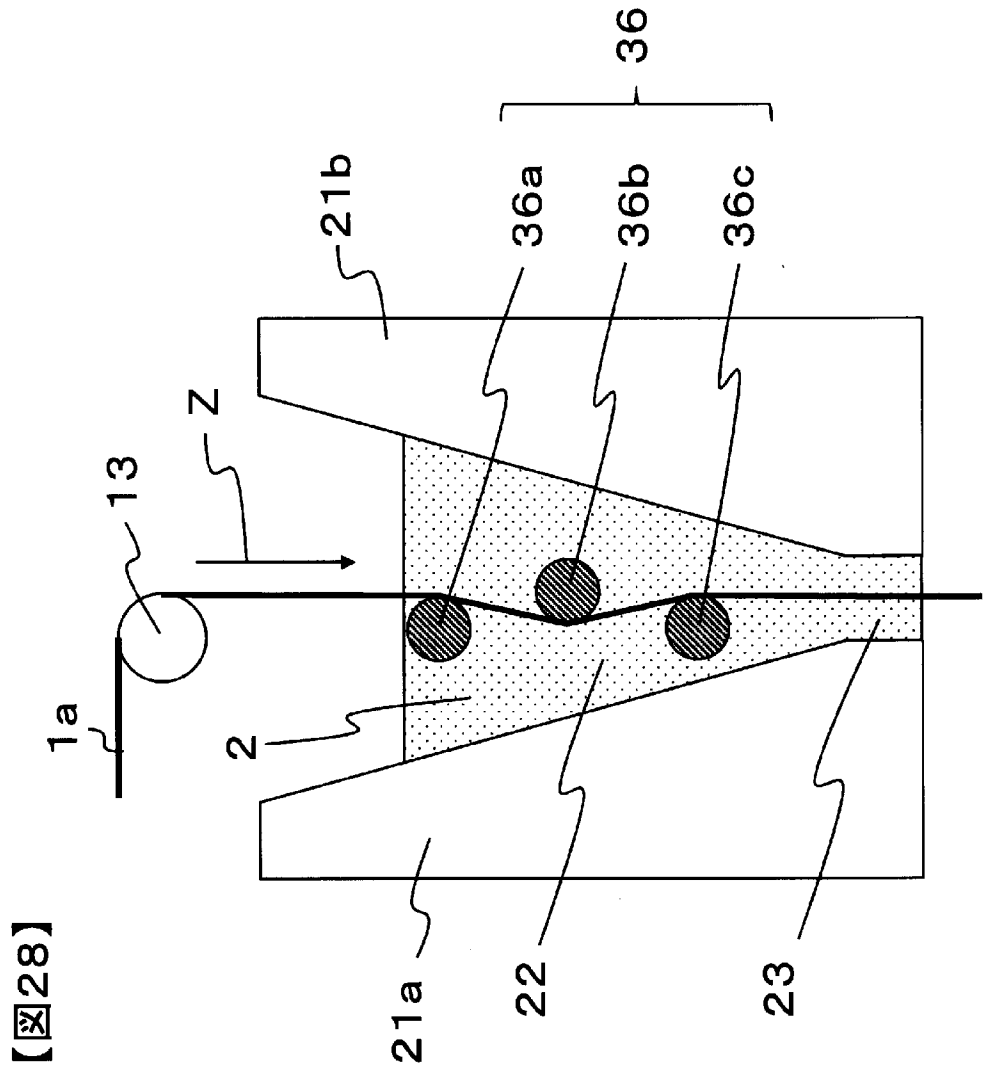
【図26】

[図27]



【図27】

[図28]



【図28】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2019/032496

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl. B29B11/16(2006.01)i, B29B15/12(2006.01)i, B29K101/10(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)
Int.Cl. B29B11/16;15/08-15/14, C08J5/04-5/10;5/24, B29C70/00-70/88, B32B1/00-43/00, B05D1/00-7/26, B05C1/00-3/20, B29K101/10

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

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2019
Registered utility model specifications of Japan	1996-2019
Published registered utility model applications of Japan	1994-2019

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 A	JP 1-016612 A (KOBE STEEL, LTD.) 20 January 1989, entire text, in particular, claims, page 2, lower right column to page 4, upper left column, fig. 1-3 & US 5529652 A, claims, column 4, line 14 to column 8, line 38, fig. 1-9 & EP 300321 A2 & DE 3888252 T	9-18 1-8, 19
A	JP 2017-154330 A (MITSUBISHI CHEMICAL CORPORATION) 07 September 2017, entire text, in particular, claims, paragraphs [0014]-[0021], fig. 1-4 (Family: none)	1-19

☒ 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 30 October 2019 (30.10.2019)	Date of mailing of the international search report 12 November 2019 (12.11.2019)
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2019/032496

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2013/038521 A1 (TOYOTA MOTOR CORP.) 21 March 2013, entire text, in particular, claims, paragraphs [0004], [0040]-[0075], [0081]-[0082], fig. 1-3, 6 & US 2014/0175694 A1, claims, paragraphs [0004], [0049]-[0084], example 1, fig. 1-3, 6 & EP 2756944 A1 & CN 103781619 A	1-19
A	JP 2012-016857 A (TORAY INDUSTRIES, INC.) 26 January 2012, entire text, in particular, claims, paragraphs [0002], [0017], [0035], fig. 2 (Family: none)	1-19
A	JP 7-252372 A (TORAY INDUSTRIES, INC.) 03 October 1995, entire text, in particular, paragraphs [0032], [0068]-[0097] (Family: none)	1-19
A	JP 49-030453 A (HITACHI ZOSEN CORP.) 18 March 1974, entire text, in particular, claims, page 2, upper left column, fig. 3 (Family: none)	1-19

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１９／０３２４９６

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　B29B11/16(2006.01)i, B29B15/12(2006.01)i, B29K101/10(2006.01)n

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　B29B11/16;15/08-15/14, C08J5/04-5/10;5/24, B29C70/00-70/88, B32B1/00-43/00, B05D1/00-7/26, B05C1/00-3/20, B29K101/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１９年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１９年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１９年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X A	JP 1-016612 A（株式会社神戸製鋼所）1989.01.20, 文献全体、特に特許請求の範囲、第２頁右下欄－第４頁左上欄、第１図－第３図 & US 5529652 A, 特許請求の範囲, 第４欄第14行－第８欄第38行, 図１－図９ & EP 300321 A2 & DE 3888252 T	９－１８ １－８，１９
A	JP 2017-154330 A（三菱ケミカル株式会社）2017.09.07, 文献全体、特に特許請求の範囲、段落【0014】－【0021】、【図１】－【図４】（ファミリーなし）	１－１９

☑　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。　　☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「Ｅ」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「Ｘ」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Ｙ」特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
３０．１０．２０１９	１２．１１．２０１９

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｆ　３９７３
大村　博一
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４３０

C（続き）．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	WO 2013/038521 A1（トヨタ自動車株式会社）2013.03.21, 文献全体、特に請求の範囲、段落[0004]、[0040]－[0075]、[0081]－[0082]、[図1]－[図3]、[図6] & US 2014/0175694 A1, Claims, paragraphs [0004], [0049]-[0084], Example 1, Fig.1-Fig.3, Fig.6 & EP 2756944 A1 & CN 103781619 A	１－１９
A	JP 2012-016857 A（東レ株式会社）2012.01.26, 文献全体、特に特許請求の範囲、段落【0002】、【0017】、【0035】、【図２】（ファミリーなし）	１－１９
A	JP 7-252372 A（東レ株式会社）1995.10.03, 文献全体、特に段落【0032】、【0068】－【0097】（ファミリーなし）	１－１９
A	JP 49-030453 A（日立造船株式会社）1974.03.18, 文献全体、特に特許請求の範囲、第２頁左上欄、第３図（ファミリーなし）	１－１９