(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
2024年4月4日(04.04.2024)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2024/071064 A1

(51) 国際特許分類:
*D06M 15/227* (2006.01)
*B29B 11/16* (2006.01)
*C08C 19/28* (2006.01)
*C08F 210/02* (2006.01)
*C08K 9/08* (2006.01)
*C08L 9/00* (2006.01)
*C08L 23/08* (2006.01)
*C08L 23/26* (2006.01)
*C08L 33/04* (2006.01)
*C08L 75/04* (2006.01)
*C08L 101/00* (2006.01)
*D06M 15/263* (2006.01)
*D06M 15/564* (2006.01)
*D06M 15/693* (2006.01)
*D06M 101/40* (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2023/034807

(22) 国際出願日： 2023年9月26日(26.09.2023)

(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 2022-155348 2022年9月28日(28.09.2022) JP

(71) 出願人: 三井化学株式会社 (**MITSUI CHEMICALS, INC.**) [JP/JP]; 〒1040028 東京都中央区八重洲二丁目２番１号 Tokyo (JP). フォルモサ プラスティクス コーポレーション(**FORMOSA PLASTICS CORPORATION**); タイペイ ツン ファ ノース ロード２０１ Taipei (TW).

(72) 発明者: 水野 舜也(**MIZUNO, Shunya**). 伊東 祐一(**ITOU, Yuichi**). 矢野 雅裕(**YANO, Masahiro**). 林 盛勳 (**LIN, Sheng-Hsun**). 周 政均 (**CHOU, Cheng-Chun**). 李 育昇(**LI, Yu-Sheng**).

(74) 代理人: 弁理士法人鷲田国際特許事務所 (**WASHIDA & ASSOCIATES**); 〒1600023 東京都新宿区西新宿１－２３－７ 新宿ファーストウェスト８階 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, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, 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,

(54) **Title:** WATER DISPERSION, CARBON FIBER BUNDLE, AND UNIDIRECTIONAL MATERIAL

(54) 発明の名称： 水分散体、炭素繊維束および一方向材

(57) **Abstract:** Provided is a water dispersion which comprises a resin component that suppresses fuzz generated from a cut end surface of a carbon fiber bundle, that can improve the bundling properties of carbon fibers and the ILSS of laminated bodies laminated by fusing UD sheets, and that can be used as a carbon fiber bundle sizing agent to be used in a unidirectional material. The water dispersion has a resin component that: includes an ethylene・α-olefin copolymer (A) or an acid modified product (B) thereof satisfying all of requirements (a1) to (a3); has a storage elastic modulus at 25 °C of 100 MPa or more and 100,000 MPa or less; and is present in a ratio of 0.01 mass% or more and 50 mass% or less. Requirements: (a1) the kinematic viscosity at 100°C is10 $mm^2/s$ to 5,000 $mm^2/s$; (a2) the content ratio of structural units derived from ethylene is 30 mol% to 85 mol%; and (a3) the molecular weight distribution (Mw/Mn) of molecular weight obtained by polystyrene conversion measured by gel permeation chromatography (GPC) is 2.5 or less.

(57) 要約：炭素繊維束の切断端面からの毛羽の発生を抑制し、ＵＤシートを融着させて積層した積層体のＩＬＳＳや、炭素繊維の集束性も良好にすることができる、一方向材に用いる炭素繊維束の集束剤として使用可能な樹脂成分を含む水分散体を提供する。前記水分散体は、樹脂成分が、下記要件（ａ１）～（ａ３）のすべてを満たすエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）を含み、２５℃における貯蔵弾性率が１００ＭＰａ以上１００，０００ＭＰａ以下であり、割合が０．０１質量％以上５０質量％以下である。（ａ１）１００℃における動粘度が１０$mm^2$／ｓ以上５，０００$mm^2$／ｓ以下である（ａ２）エチレンから導かれる構造単位の含有率が３０ｍｏｌ％以上８５ｍｏｌ％以下である（ａ３）ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定し、ポリスチレン換算により得られた分子量の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が、２.５以下である



WO 2024/071064 A1

SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, 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, ME, 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))

# 明　細　書

## 発明の名称 ： 水分散体、炭素繊維束および一方向材

## 技術分野

[0001] 本発明は、水分散体、炭素繊維束および一方向材に関する。

## 背景技術

[0002] 炭素繊維は、軽量、高強度、高剛性であることから、幅広い分野で強化材等として使用されている。炭素繊維は、熱可塑性樹脂と複合させた繊維強化樹脂として使用されることもある。この繊維強化樹脂は、力学特性や寸法安定性に優れるという特性を有するため、同様に幅広い分野で使用されている。

[0003] 一方で、ポリオレフィン系樹脂は、一般的に安価であり、加工性や耐薬品性に優れ、焼却しても有害ガスを発生させ難く、リサイクル性に優れる等の優れた特性を持つため、やはり幅広い分野で使用されている。たとえば、特許文献１には、特定の要件を満たすエチレン・α－オレフィン共重合体を含むマスターバッチ用樹脂組成物が記載されている。

[0004] ポリオレフィン系樹脂は、繊維強化樹脂のマトリクス樹脂として使用されることもある。上記マトリクス樹脂としては、ポリオレフィン系樹脂のうちポリプロピレン系樹脂が使用されている。また、近年、炭素繊維の処理剤としてポリオレフィン系樹脂を使用することも検討されている。たとえば、特許文献２には、レーザー融着法を用いたテープワインディング成形法に適した繊維強化樹脂組成物において、特定のプロピレン系樹脂を含む繊維処理剤により処理された炭素繊維束を使用することが記載されている。特許文献２には、この炭素繊維束は、擦れたときに毛羽が生じにくいと記載されている。

## 先行技術文献

## 特許文献

[0005] 特許文献1：国際公開第２０１９／１７２３５５号

特許文献2：国際公開第２０１７／１８３６７２号

## 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

[0006] 特許文献２には、特定のプロピレン系樹脂を含む繊維処理剤によって炭素繊維束を処理することにより、擦れたときの毛羽の発生が抑制されると記載されている。一方で、本発明者らの知見によれば、炭素繊維束や、炭素繊維束を含む繊維強化樹脂組成物の成形体は、切断加工されたり、何らかの理由により引き裂かれたりしたときにも、切断端面から炭素繊維が飛び出して、毛羽が発生することがある。特に、炭素繊維が一方向に配向されてなる繊維強化樹脂（一方向材）は、テープ状に切断して使用することが多いので、切断端面からの毛羽の発生が問題になりやすい。

[0007] そこで、本発明者らは、切断端面からの毛羽の発生をより効率的に抑制する方法を種々検討したところ、炭化水素系合成油を使用すると、毛羽の発生を特許文献２と同等あるいはそれ以上に抑制し得ることを見出した。しかし、炭化水素系合成油を使用したときには、ＵＤシートを積層して融着させたときに層間せん断強度(InterLayer share strength：ＩＬＳＳ)が低下したり、炭素繊維の集束が低下して加工性が低下したりすることがあった。

[0008] 本発明は、上記課題に鑑みなされたものであり、炭素繊維束を切断したときの切断端面からの毛羽の発生を抑制し、かつ、ＵＤシートを積層して融着させたときのＩＬＳＳや、炭素繊維の集束性も良好にすることができる、一方向材に用いる炭素繊維束の集束剤として使用可能な樹脂成分を含む水分散体、当該水分散体を用いて炭素繊維を処理して得られる、一方向材に用いる炭素繊維束、および一方向材を提供することを、その目的とする。

### 課題を解決するための手段

[0009] 上記課題を解決するための本発明の一態様は、下記［１］～［７］の水分散体に関する。

［１］一方向に配向された炭素繊維に樹脂が含浸してなる一方向材の製造に用いられる前記炭素繊維を集束するために用いられる、樹脂成分が水に分

散された水分散体であって、

前記樹脂成分は、下記要件（ａ１）～（ａ３）のすべてを満たすエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）を含み、

前記樹脂成分の、２５℃における貯蔵弾性率は、１００ＭＰａ以上１００，０００ＭＰａ以下であり、

前記水分散体の全質量に対する、前記樹脂成分の全質量が占める割合は、０．０１質量％以上５０質量％以下である、

水分散体。

（ａ１）１００℃における動粘度が１０ｍｍ$^2$／ｓ以上５，０００ｍｍ$^2$／ｓ以下である

（ａ２）エチレンから導かれる構造単位の含有率が３０ｍｏｌ％以上８５ｍｏｌ％以下である

（ａ３）ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定し、ポリスチレン換算により得られた分子量の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が、２．５以下である

［２］一方向に配向された炭素繊維に樹脂が含浸してなる一方向材の製造に用いられる前記炭素繊維を集束するために用いられる、樹脂成分が水に分散された水分散体であって、

前記樹脂成分は、

下記要件（ａ１）～（ａ３）のすべてを満たすエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）である、第１の樹脂成分と、

アクリル系樹脂（Ｃ）、ウレタン系樹脂（Ｄ）およびジエン系ゴム（Ｅ）からなる群から選択される少なくとも１種の樹脂である、第２の樹脂成分と、を含み、

前記水分散体の全質量に対する、前記樹脂成分の全質量が占める割合は、０．０１質量％以上５０質量％以下である、

水分散体。

（ａ１）１００℃における動粘度が１０ｍｍ$^2$／ｓ以上５，０００ｍｍ$^2$／ｓ

以下である

（ａ２）エチレンから導かれる構造単位の含有率が３０ｍｏｌ％以上８５ｍｏｌ％以下である

（ａ３）ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定し、ポリスチレン換算により得られる分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が、２．５以下である

［３］前記要件（ａ１）～（ａ３）のすべてを満たすエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）である、第１の樹脂成分と、

アクリル系樹脂（Ｃ）、ウレタン系樹脂（Ｄ）およびジエン系ゴム（Ｅ）からなる群から選択される少なくとも１種の樹脂である、第２の樹脂成分と、を含む、

［１］または［２］に記載の水分散体。

［４］前記第２の樹脂成分は、前記第１の樹脂成分と相溶可能である、［２］または［３］に記載の水分散体。

［５］前記共重合体（Ａ）は、下記要件（ａ４）～（ａ７）のうち少なくとも１つの要件を満たす、［１］～［４］のいずれかに記載の水分散体。

（ａ４）ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定し、ポリスチレン換算により得られる重量平均分子量（Ｍｗ）が、１，０００以上５０，０００以下である

（ａ５）下記式［１］で表されるＢ値が、１．１以上である

[数1]

$$B = \frac{P_{OE}}{2P_O \cdot P_E} \quad \cdots [1]$$

［式［１］中、$P_E$はエチレンから導かれる構造単位の含有率（ｍｏｌ％）を示し、$P_O$はα－オレフィンから導かれる構造単位の含有率（ｍｏｌ％）

を示し、$P_{OE}$は全ｄｙａｄ連鎖のエチレン－α－オレフィン連鎖の含有率（ｍｏｌ％）を示す。］

（ａ６）$^{1}$Ｈ－ＮＭＲにより測定した不飽和結合量が、炭素原子１０００個あたり０．５個未満である

（ａ７）融点が、観測されない

［６］前記酸変性体（Ｂ）は、下記要件（ｂ１）～（ｂ４）のうち少なくとも１つの要件を満たす、［１］～［５］のいずれかに記載の水分散体。

（ｂ１）酸価が、１ｍｇＫＯＨ／ｇ以上３００ｍｇＫＯＨ／ｇ以下である

（ｂ２）１５０℃における見かけ粘度が、１ｃＰｓ以上１，０００ｃＰｓ以下である

（ｂ３）ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定し、ポリスチレン換算により得られる重量平均分子量（Ｍｗ）が、１，０００以上５０，０００以下である

（ｂ４）ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定し、ポリスチレン換算により得られる分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が、２．５以下である

［７］前記酸変性体（Ｂ）は、前記共重合体（Ａ）の、マレイン酸または無水マレイン酸による酸変性体である、［１］～［６］のいずれかに記載の水分散体。

[0010] 上記課題を解決するための本発明の他の態様は、下記［８］～［１２］の炭素繊維束に関する。

［８］一方向に配向された炭素繊維に樹脂が含浸してなる一方向材の製造に用いられる前記炭素繊維が集束されてなる炭素繊維束であって、

前記炭素繊維は、前記炭素繊維に付着した集束剤により集束されており、

前記集束剤は、下記要件（ａ１）～（ａ３）のすべてを満たすエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）を含み、

前記エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）を含む前記集束剤の樹脂成分の、２５℃における貯蔵弾性率が１００ＭＰａ

以上１００，０００ＭＰａ以下である、

炭素繊維束。

（ａ１）１００℃における動粘度が１０ｍｍ$^2$／ｓ以上５，０００ｍｍ$^2$／ｓ以下である

（ａ２）エチレンから導かれる構造単位の含有率が３０ｍｏｌ％以上８５ｍｏｌ％以下である

（ａ３）ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定し、ポリスチレン換算により得られた分子量の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が、２．５以下である

［９］一方向に配向された炭素繊維に樹脂が含浸してなる一方向材の製造に用いられる前記炭素繊維が集束されてなる炭素繊維束であって、

前記炭素繊維は、前記炭素繊維に付着した集束剤により集束されており、

前記集束剤は、下記要件（ａ１）～（ａ３）のすべてを満たすエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）である、第１の樹脂成分と、

アクリル系樹脂（Ｃ）、ウレタン系樹脂（Ｄ）およびジエン系ゴム（Ｅ）からなる群から選択される少なくとも１種の樹脂である、第２の樹脂成分と、を含む、

炭素繊維束。

（ａ１）１００℃における動粘度が１０ｍｍ$^2$／ｓ以上５，０００ｍｍ$^2$／ｓ以下である

（ａ２）エチレンから導かれる構造単位の含有率が３０ｍｏｌ％以上８５ｍｏｌ％以下である

（ａ３）ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定し、ポリスチレン換算により得られた分子量の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が、２．５以下である

［１０］前記要件（ａ１）～（ａ３）のすべてを満たすエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）である、第１の樹脂成分

と、

アクリル系樹脂（Ｃ）、ウレタン系樹脂（Ｄ）およびジエン系ゴム（Ｅ）からなる群から選択される少なくとも１種の樹脂である、第２の樹脂成分と、を含む、

［８］または［９］に記載の水分散体。

［１１］前記酸変性体（Ｂ）は、前記共重合体（Ａ）の、マレイン酸または無水マレイン酸による酸変性体である、［８］～［１０］のいずれかに記載の炭素繊維束。

［１２］前記炭素繊維束の全質量に対する、樹脂成分の全質量が占める割合は、０．１質量％以上５．０質量％以下である、［８］～［１１］のいずれかに記載の炭素繊維束。

[0011] 上記課題を解決するための本発明の他の態様は、下記［１３］～［１５］の炭素繊維束に関する。

［１３］一方向に配向された、［８］～［１２］のいずれかに記載の炭素繊維束と、

前記炭素繊維束に含浸された、熱可塑性樹脂であるマトリクス樹脂と、を含み、

前記炭素繊維束の全質量と前記マトリクス樹脂の全質量との合計量を１００質量部としたとき

前記炭素繊維束の含有量は１質量部以上８０質量部以下であり、

前記マトリクス樹脂の含有量は２０質量部以上９９質量部以下である、

一方向材。

［１４］薄膜状の形状を有する、［１３］に記載の一方向材。

［１５］ペレット状の形状を有する、［１３］に記載の一方向材。

## 発明の効果

[0012] 本発明によれば、炭素繊維束を切断したときの切断端面からの毛羽の発生を抑制し、かつ、ＵＤシートを積層して融着させたときのＩＬＳＳや、炭素繊維の集束性も良好にすることができる、一方向材に用いる炭素繊維束の集

束剤として使用可能な樹脂成分を含む水分散体、当該水分散体を用いて炭素繊維を処理して得られる、一方向材に用いる炭素繊維束、および一方向が提供される。

## 発明を実施するための形態

[0013] １．水分散体

本発明の一実施形態は、一方向材の製造の製造に用いられる炭素繊維を集束するために用いられる、樹脂成分が水に分散された水分散体に関する。

[0014] 上記水分散体は、樹脂成分と、分散媒としての水とを含む。

[0015] １－１．樹脂成分

上記樹脂成分は、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）を含む。

[0016] １－１－１．エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）

（エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ））

エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）は、下記要件（ａ１）～（ａ３）のすべてを満たす。

（ａ１）１００℃における動粘度が１０ｍｍ$^2$／ｓ以上５，０００ｍｍ$^2$／ｓ以下である

（ａ２）エチレンから導かれる構造単位の含有率が３０ｍｏｌ％以上８５ｍｏｌ％以下である

（ａ３）ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定し、ポリスチレン換算により得られた分子量の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が、２．５以下である

[0017] 要件（ａ１）であるエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の動粘度は、ＪＩＳ　Ｋ２２８３（２０００年）に記載の方法により測定される値である。エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の動粘度は、１０ｍｍ$^2$／ｓ以上５，０００ｍｍ$^2$／ｓ以下であり、１０ｍｍ$^2$／ｓ以上２，５００ｍｍ$^2$／ｓ以下であることが好ましく、１５ｍｍ$^2$／ｓ以上２，５００ｍｍ$^2$／ｓ以下である

ことがより好ましく、１５ｍｍ$^2$／ｓ以上５００ｍｍ$^2$／ｓ以下であることがさらに好ましい。エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の動粘度が１０ｍｍ$^2$／ｓ以上であると、易揮発成分が少なくなり、引火しにくくなり、保存性が向上する傾向にあり、さらに揮発による水分散体の減量が少なくなる傾向にある。エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の動粘度が５，０００ｍｍ$^2$／ｓ以下であると、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）が柔軟かつ粘稠な油状となるため、炭素繊維の表面に付着して毛羽の発生を抑制しやすくなり、また、樹脂成分が水中でより均一に分散しやすくなる。

[0018] 要件（ａ２）であるエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）のエチレンから導かれる構造単位の含有率（全モノマー単位の含有率の合計１００ｍｏｌ％基準）は「高分子分析ハンドブック」（朝倉書店　２００８年発行　初版　Ｐ１８４～２１１）に記載の方法に従って、$^{13}$Ｃ－ＮＭＲで測定して得られた値とする。あるいは、この方法により求めた試料を既知試料として、フーリエ変換赤外分光（ＦＴ－ＩＲ）を用いて測定して得られた価であってもよい。エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）のエチレンから導かれる構造単位の含有率は、３０ｍｏｌ％以上８５ｍｏｌ％以下であり、４０ｍｏｌ％以上７０ｍｏｌ％以下であることが好ましく、４５ｍｏｌ％以上６５ｍｏｌ％以下であることがより好ましい。エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）のエチレンから導かれる構造単位の含有率が８５ｍｏｌ％以下であると、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の結晶が生じにくく、その結果として共重合体の粘度が上昇しにくく、毛羽の発生を抑制しやすくなる。また、固体状になりにくく、樹脂成分が水中でより均一に分散しやすくなる。

[0019] 要件（ａ３）であるエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、より具体的には、上記ＧＰＣにより測定された重量平均分子量（Ｍｗ）と数平均分子量（Ｍｎ）との比である。エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は２．５以下であり、２．３以下であることが好ましく、２．０以下であることがより好ましい。一般に、重合体の分布分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が大きいほど、重合体には多く

の低分子量成分および高分子量成分が含まれる。エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が２．５以下であると、低分子量成分が少なくなるので、易揮発成分が少なくなり、引火しにくくなり、保存性が向上する傾向にあり、さらに揮発による水分散体の減量が少なくなる傾向にある。また、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が２．５以下であると、高分子量成分が少なくなるので、樹脂成分が水中でより均一に分散しやすくなる。分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）の下限は特に限定されないが、通常は１．０以上である。

[0020] エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）は、上記要件（ａ１）～（ａ３）に加えて、下記要件（ａ４）～（ａ７）のうち少なくとも１つの要件を満たすことが好ましい。

（ａ４）ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定し、ポリスチレン換算により得られる重量平均分子量（Ｍｗ）が、１，０００以上５０，０００以下である

（ａ５）下記式［１］で表されるＢ値が、１．１以上である

[0021] [数2]

$$B = \frac{P_{OE}}{2P_O \cdot P_E} \quad \cdots [1]$$

[0022] ［式［１］中、$P_E$はエチレンから導かれる構造単位の含有率（ｍｏｌ％）を示し、$P_O$はα－オレフィンから導かれる構造単位の含有率（ｍｏｌ％）を示し、$P_{OE}$は全ｄｙａｄ連鎖のエチレン－α－オレフィン連鎖の含有率（ｍｏｌ％）を示す。］

（ａ６）$^1$Ｈ－ＮＭＲにより測定した不飽和結合量が、炭素原子１０００個あたり０．５個未満である

（ａ７）融点が、観測されない

[0023] エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）は、上記要件（ａ４）～（ａ７

）のうち、少なくとも２つの要件を満たすことがより好ましく、いずれか３つの要件を満たすことがさらに好ましく、すべての要件を満たすことが特に好ましい。

[0024] 要件（ａ４）であるエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の重量平均分子量（Ｍｗ）は、上記ＧＰＣにより測定される重量平均分子量（Ｍｗ）である。エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の重量平均分子量（Ｍｗ）は、１，０００以上５０，０００以下であることが好ましく、１，５００以上３０，０００以下であることがより好ましく、１，５００以上２０，０００以下であることがさらに好ましく、１，５００以上７，０００以下であることが特に好ましい。エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の重量平均分子量（Ｍｗ）が１，０００以上であると、易揮発成分が少なくなり、引火しにくくなり、保存性が向上する傾向にあり、さらに揮発による水分散体の減量が少なくなる傾向にある。エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の重量平均分子量（Ｍｗ）が５０，０００以下であると、樹脂成分が水中でより均一に分散しやすくなる。

[0025] 要件（ａ５）であるエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）のＢ値は、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の分子鎖中における共重合モノマー連鎖分布のランダム性を示す指標である。式［１］中の$P_E$、$P_O$及び$P_{OE}$は、$^{13}$Ｃ－ＮＭＲスペクトルを測定し、Ｊ．Ｃ．Ｒａｎｄａｌｌ［Ｍａｃｒｏｍｏｌｅｃｕｌｅｓ，１５，３５３（１９８２）］、Ｊ．Ｒａｙ［Ｍａｃｒｏｍｏｌｅｃｕｌｅｓ，１０，７７３（１９７７）］らの報告、「高分子分析ハンドブック」（朝倉書店　２００８年発行　初版　Ｐ１８４～２１１）等の公知文献に基づいて求めることができる。

[0026] エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）のＢ値は、１．１以上であることが好ましく、１．２以上であることがより好ましい。エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）のＢ値の上限値は特に限定されないが、通常は２．０以下である。一般に、Ｂ値が大きいほど、各構成単位（エチレンに由来する構成単位、または他のα－オレフィンに由来する構成単位）の連鎖構造が少なく、

これらの構成単位の分布が一様であり、共重合体の組成分布が狭くなる。エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）のＢ値が１．１以上であると、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の結晶が生じにくく、その結果として共重合体の粘度が上昇しにくく、毛羽の発生を抑制しやすくなる。また、固体状になりにくく、樹脂成分が水中でより均一に分散しやすくなる。

[0027] 要件（ａ６）であるエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の不飽和結合量は、$^{1}$Ｈ－ＮＭＲにより測定される、炭素原子１０００個あたりの不飽和結合の個数である。不飽和結合の例には、ビニル化合物、ビニリデン化合物、二置換オレフィン化合物、および三置換オレフィン化合物等に由来する二重結合が含まれる。エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の上記不飽和結合量は、０．５個未満であることが好ましく、０．３個未満であることがより好ましく、０．２個未満であることがさらに好ましく、０．１個未満であることが特に好ましい。エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の上記不飽和結合量が０．５個未満であると、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の酸化安定性および耐熱性が向上し、収束剤の耐熱性も向上する傾向にある。

[0028] 要件（ａ７）であるエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の融点が観測されないとは、示差走査型熱量測定（ＤＳＣ）で測定される融解熱量（ΔＨ）（単位：Ｊ／ｇ）が実質的に計測されないこと、つまりは示差走査型熱量測定（ＤＳＣ）において、下記測定範囲内にピークが観測されないか、あるいは観測された融解熱量が１Ｊ／ｇ以下であることを意味する。融点（Ｔｍ）および融解熱量（ΔＨ）は、示差走査型熱量測定（ＤＳＣ）により、－１００℃に冷却したエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）を昇温速度１０℃／分で１５０℃まで昇温したときに得られるＤＳＣ曲線を、ＪＩＳ　Ｋ７１２１（２０１２年）に基づいて解析し求められる。エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）が、融点（Ｔｍ）が観測されない重合体であると、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の結晶が生じにくく、その結果として共重合体の粘度が上昇しにくく、毛羽の発生を抑制しやすくなる。また、

固体状になりにくく、樹脂成分が水中でより均一に分散しやすくなる。

[0029] 上記要件（ａ１）～（ａ７）は、当業者に公知の方法で調整することができる。たとえば、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の１００℃における動粘度（要件（ａ１））は、分子量により調整することができ、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）を高分子量とすれば高粘度とし、低分子量とすれば低粘度とすることができる。また、減圧蒸留等の公知の方法によって低分子量成分を除去することで、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）（要件（ａ３））を調整することもできる。さらには、公知の方法によって水素添加を行うことで、不飽和結合量（要件（ａ６））を低減することもできる。

[0030] エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）は、エチレンと、エチレン以外のα－オレフィンと、の共重合体である。上記α－オレフィンの例には、プロピレン、１－ブテン、１－ペンテン、３－メチル－１－ブテン、１－ヘキセン、４－メチル－１－ペンテン、３－メチル－１－ペンテン、１－オクテン、１－デセン、１－ドデセン、１－テトラデセン、１－ヘキサデセン、１－オクタデセン、および１－エイコセンなどの炭素原子数が３以上２０以下、かつ直鎖状または分岐状の、α－オレフィンが含まれる。これらのうち、炭素原子数が３以上１０以下の、直鎖状または分岐状のα－オレフィンが好ましく、プロピレン、１－ブテン、１－ヘキセンおよび１－オクテンがより好ましい。さらに、水分散体の流動性をより高める観点から、プロピレンが好ましい。

[0031] これらのα－オレフィンは１種単独で、または２種以上を組み合わせて用いることができる。また、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）は、極性基含有モノマー、芳香族ビニル化合物、脂環族ビニル化合物および環状オレフィンなどのα－オレフィン以外のモノマーに由来する構成単位を含んでいてもよい。上記α－オレフィン以外のモノマーに由来する構成単位の含有量は、エチレンおよびα－オレフィンに由来する構成単位の合計量１００質量部に対して、２０質量部以下であることが好ましく、１０質量部以下であ

ることがより好ましい。

[0032] また、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）は、１種単独で、または２種以上を組み合わせて用いることができる。たとえば、α－オレフィンの種類が異なる２種以上のエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）を併用してもよい。このときの上記要件（ａ１）～（ａ７）は、複数種のエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の合計から得られる値とする。

[0033] （酸変性体（Ｂ））

酸変性体（Ｂ）は、上述のエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）を酸変性して得られる酸変性体である。酸変性体（Ｂ）は、上述のエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）に比べ、水分散体としたときの水分散体の安定性を向上することができる傾向があることが知られている。このことは例えば、特開２０１６－１０２１５７号公報に開示されている。

[0034] 酸変性体（Ｂ）は、例えば、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）がグラフト成分でグラフト変性された重合体とすることができある。なお、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の不飽和結合量が少ないとき（たとえば先に説明した要件（ａ６）を満たすとき）は、グラフト成分はエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の主鎖骨格にランダムにグラフト結合すると推察される。

[0035] 上記グラフト成分の例には、炭素原子数３以上１０以下（好ましくは３以上８以下）の不飽和カルボン酸、および上記不飽和カルボン酸の誘導体などが含まれる。上記不飽和カルボン酸の誘導体の例には、不飽和カルボン酸の、酸無水物、エステル化物、アミド化物およびイミド化物などが含まれる。上記不飽和カルボン酸の例には、アクリル酸およびメタクリル酸などの一塩基酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、シトラコン酸、および５－ノルボルネン－２，３－ジカルボン酸などの二塩基酸などが含まれる。上記不飽和カルボン酸の酸無水物の例には、マレイン酸、イタコン酸、シトラコン酸、および５－ノルボルネン－２，３－ジカルボン酸などの二塩基酸の酸無水物が含まれる。上記不飽和カルボン酸のエステル化物の例には、アクリル酸メチ

ル、メタクリル酸メチル、アクリル酸エチル、メタクリル酸エチル、アクリル酸グリシジル、マレイン酸モノエチルエステル、マレイン酸ジエチルエステル、フマル酸モノメチルエステル、フマル酸ジメチルエステル、イタコン酸モノメチルエステル、およびイタコン酸ジエチルエステルなどのエステルまたはハーフエステルが含まれる。上記不飽和カルボン酸のアミド化物の例には、アクリルアミド、メタクリルアミド、マレイン酸モノアミド、マレイン酸ジアミド、マレイン酸－Ｎ－モノエチルアミド、マレイン酸－Ｎ,Ｎ－ジエチルアミド、マレイン酸－Ｎ－モノブチルアミド、マレイン酸－Ｎ,Ｎ－ジブチルアミド、フマル酸モノアミド、フマル酸ジアミド、フマル酸－Ｎ－モノブチルアミド、およびフマル酸－Ｎ,Ｎ－ジブチルアミドなどが含まれる。上記不飽和カルボン酸のイミド化物の例には、マレイミド、Ｎ－ブチルマレイミド、およびＮ－フェニルマレイミドなどが含まれる。これらのうち、一つのモノマーとしての極性が高く、かつパーオキサイドを用いる変性反応においてホモポリマー等の副生物が生成しにくいことから、マレイン酸および無水マレイン酸が好ましい。これらのグラフト成分は１種単独で、または２種以上を組み合わせて用いることができる。

[0036] 酸変性体（Ｂ）は、下記要件（ｂ１）～（ｂ４）のうち少なくとも１つの要件を満たすことが好ましい。

（ｂ１）酸価が、１ｍｇＫＯＨ／ｇ以上３００ｍｇＫＯＨ／ｇ以下である

（ｂ２）１５０℃における見かけ粘度が、１ｃＰｓ以上１，０００ｃＰｓ以下である

（ｂ３）ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定し、ポリスチレン換算により得られる重量平均分子量（Ｍｗ）が、１，０００以上５０，０００以下である

（ｂ４）ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定し、ポリスチレン換算により得られる分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が、２．５以下である

[0037] 酸変性体（Ｂ）は、上記要件（ｂ１）～（ｂ４）のうち、少なくとも２つ

の要件を満たすことがより好ましく、いずれか３つの要件を満たすことがさらに好ましく、すべての要件を満たすことが特に好ましい。

[0038] 要件（ｂ１）である酸変性体（Ｂ）の酸価は、１ｇの酸変性体（Ｂ）に含まれる酸を中和するのに要する水酸化カリウムのミリグラム数を示す値であり、グラフト成分のグラフト量の指標となる。この酸価は、ＪＩＳ　Ｋ００７０（１９９２年）に準拠した方法で測定される値である。酸変性体（Ｂ）の酸価は、１ｍｇＫＯＨ／ｇ以上３００ｍｇＫＯＨ／ｇ以下であることが好ましく、５ｍｇＫＯＨ／ｇ以上２００ｍｇＫＯＨ／ｇ以下であることより好ましく、１０ｍｇＫＯＨ／ｇ以上１５０ｍｇＫＯＨ／ｇ以下であることがさらに好ましい。酸変性体（Ｂ）の酸化が１ｍｇＫＯＨ／ｇ以上であると、酸変性体（Ｂ）の極性が高くなるため、水分散体の安定性が向上する傾向にある。酸変性体（Ｂ）の酸化が３００ｍｇＫＯＨ／ｇ以下であると、グラフト成分同士の水素結合が抑制されて、酸変性体（Ｂ）の粘度増加が抑制され、樹脂成分が水中でより均一に分散する傾向にある。酸変性体（Ｂ）の酸価は、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）に対するグラフト成分のグラフト量によって調整できる。たとえば、グラフト量を多くすることで、酸変性体（Ｂ）の酸価を高めることができる。

[0039] 要件（ｂ２）である酸変性体（Ｂ）の１５０℃における見かけ粘度（ブルックフィールド粘度）は、ＪＩＳ　Ｋ７１１７－１（１９９９年）に記載の方法により測定されるブルックフィールド粘度である。酸変性体（Ｂ）の１５０℃における見かけ粘度は、１ｃＰｓ以上１，０００ｃＰｓ以下であることが好ましく、５ｃＰｓ以上８００ｃＰｓ以下であることがより好ましく、５ｃＰｓ以上５０ｃＰｓ以下であることがさらに好ましい。酸変性体（Ｂ）の１５０℃における見かけ粘度が上記範囲内であると、酸変性体（Ｂ）の低揮発性と、ハンドリング性や水中への分散性と、のバランスが優れる傾向にある。

[0040] 要件（ｂ３）である酸変性体（Ｂ）の重量平均分子量（Ｍｗ）は、１，０００以上５０，０００以下であることが好ましく、１，０００以上３０，０００以

下であることがより好ましく、１，５００以上３０，０００以下であることがさらに好ましく、２，０００以上１０，０００以下であることが特に好ましい。酸変性体（Ｂ）の重量平均分子量（Ｍｗ）が１，０００以上であると、易揮発成分が少なくなり、引火しにくくなり、保存性が向上する傾向にあり、さらに揮発による水分散体の減量が少なくなる傾向にある。酸変性体（Ｂ）の重量平均分子量（Ｍｗ）が５０，０００以下であると、樹脂成分が水中で均一に分散する傾向にある。

[0041] 要件（ｂ４）である酸変性体（Ｂ）の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、２．５以下であることが好ましく、２．３以下であることがより好ましく、２．０以下であることがさらに好ましい。酸変性体（Ｂ）の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が２．５以であると、低分子量成分が少なくなるので、易揮発成分が少なくなり、引火しにくくなり、保存性が向上する傾向にあり、さらに揮発による水分散体の減量が少なくなる傾向にある。また、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が２．５以下であると、高分子量成分が少なくなるので、樹脂成分が水中でより均一に分散しやすくなる。分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）の下限は特に限定されないが、通常は１．０以上である。

[0042] なお、酸変性体（Ｂ）は、上記要件（ｂ１）～（ｂ４）のうち少なくとも１つの要件に加えて、さらに下記要件（ｂ５）を満たすことが好ましい。

（ｂ５）融点が観測されない

[0043] 酸変性体（Ｂ）は、融点（Ｔｍ）が観測されない重合体であることが好ましい。酸変性体（Ｂ）の融点（Ｔｍ）の測定方法、および融点（Ｔｍ）が観測されないことの定義は、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の要件（ａ７）で説明した通りである。酸変性体（Ｂ）が、融点（Ｔｍ）が観測されない重合体であると、酸変性体（Ｂ）の結晶が生じにくく、その結果として共重合体の粘度が上昇しにくく、固体状になりにくく、樹脂成分が水中でより均一に分散しやすくなる。

[0044] 酸変性体（Ｂ）は、１種単独で、または２種以上を組み合わせて用いるこ

とができる。たとえば、α－オレフィンの種類が異なる２種以上の酸変性体（Ｂ）を併用してもよい。このときの上記要件（ｂ１）～（ｂ５）は、複数種の酸変性体（Ｂ）の合計から得られる値とする。

[0045] １－１－２．樹脂成分の物性・その他の材料

本発明者らの知見によれば、上記エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）を用いると、集束された炭素繊維の、切断端面からの毛羽の発生をより効率的に抑制することができる。そして、本発明者らのさらなる知見によれば、上記エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）を含む樹脂成分が、さらに以下の要件（Ｉ）または（ＩＩ）を満たすと、集束された炭素繊維を用いて作製したＵＤシートを融着させて積層した積層体のＩＬＳＳを高め、かつ、炭素繊維の集束性もより良好にすることができる。

（Ｉ）２５℃における貯蔵弾性率が１００ＭＰａ以上１００，０００ＭＰａ以下である

（ＩＩ）アクリル系樹脂（Ｃ）、ウレタン系樹脂（Ｄ）およびジエン系ゴム（Ｅ）をさらに含む

[0046] 樹脂成分は、上記要件（Ｉ）および（ＩＩ）のうち、少なくともいずれか一方を満たせばよいが、双方を満たすことが好ましい。

[0047] なお、樹脂成分が要件（ＩＩ）を満たすとき、上述したエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）を単に「第１の樹脂成分」ともいい、上記アクリル系樹脂（Ｃ）、ウレタン系樹脂（Ｄ）およびジエン系ゴム（Ｅ）を単に「第２の樹脂成分」ともいう。

[0048] １－１－２－１．要件（Ｉ）について

樹脂成分の２５℃における貯蔵弾性率を１００ＭＰａ以上とすることで、集束された炭素繊維を用いて作製したＵＤシートを融着させて積層した積層体のＩＬＳＳを高め、かつ、炭素繊維の集束性もより良好にすることができる。

[0049] 本発明者らの知見によれば、上記エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ

）またはその酸変性体（Ｂ）を集束材として用いると、毛羽の発生は従来よりも抑制されるものの、ＩＬＳＳの向上および集束性の向上を両立させることは難しかった。つまり、これらの樹脂成分の炭素繊維への付着量が少ないと、炭素繊維の集束性を向上させにくく、一方でこれらの樹脂成分の付着量を多くすると、炭素繊維を用いたＵＤシートを融着させて積層した積層体のＩＬＳＳが高まりにくかった。

[0050] これに対し、上記エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）を集束材として用いつつ樹脂成分の２５℃における貯蔵弾性率を１００ＭＰａ以上とすることで、炭素繊維への樹脂成分の付着量にかかわらず、炭素繊維の集束性を良好にすることができる。そして、集束性を良好としたことにより、切断端面からの毛羽の発生もより効率的に抑制することができると考えられる。また、上記エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）を集束材として用いつつ樹脂成分の２５℃における貯蔵弾性率を１００ＭＰａ以上とすることで、積層体としたときの凝集力が向上し、炭素繊維を用いたＵＤシートを融着させて積層した積層体のＩＬＳＳを高めることができる。

[0051] 一方で、上記エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）を集束材として用いつつ樹脂成分の２５℃における貯蔵弾性率を１００，０００ＭＰａ以下とすることで、上記エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）による毛羽立ちの抑制効果が十分に発揮され、切断端面からの毛羽の発生を十分に抑制することができる。また、炭素繊維を用いたＵＤシートを融着させて積層した積層体に対して層間を引きはがす方向へのせん断応力が発生した際の、樹脂部分に生じる亀裂およびその亀裂の伝播を抑制でき、当該積層体のＩＬＳＳを高めることができる。

[0052] 上記観点から、樹脂成分の２５℃における貯蔵弾性率は、１，０００ＭＰａ以上１００，０００ＭＰａ以下であることが好ましく、１０，０００ＭＰａ以上１００，０００ＭＰａ以下であることがより好ましい。

[0053] 樹脂成分の２５℃における貯蔵弾性率は、上述したエチレン・α－オレフ

ィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）と、より高い貯蔵弾性率を有する他の樹脂とを併用することで、上記範囲に調整することができる。上記他の樹脂は、要件（ＩＩ）について説明する第２の樹脂成分であってもよいし、エポキシ樹脂、オレフィン樹脂（ただし、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）及びその酸変性体（Ｂ）を除く）等の他の樹脂成分であってもよい。

[0054] １－１－２－２．要件（ＩＩ）について

アクリル系樹脂（Ｃ）、ウレタン系樹脂（Ｄ）またはジエン系ゴム（Ｅ）（第２の樹脂成分）を樹脂成分に含ませることで、集束された炭素繊維を用いて作製したＵＤシートを融着させて積層した積層体のＩＬＳＳを高め、かつ、炭素繊維の集束性もより良好にすることができる。これらのうち、ＩＬＳＳおよび収束性を高め、かつ毛羽の抑制効果も高める観点から、ウレタン系樹脂（Ｄ）が好ましい。

[0055] これらの第２の樹脂成分は、１種のみを用いてもよいし、２種以上を併用してもよい。

[0056] （アクリル系樹脂（Ｃ））

アクリル系樹脂（Ｃ）は、（メタ）アクリロイル基を有するモノマーに由来する構成単位を、すべての構成単位の合計量に対して４０質量％以上含む、高分子化合物である。ただし、本明細書では、ジエン系ゴム（Ｅ）に該当する高分子化合物は、アクリル系樹脂（Ｃ）には含めない。

[0057] 本明細書において、（メタ）アクリロイルはアクリロイルおよびメタクリロイルを。（メタ）アクリルはアクリルおよびメタクリルを、（メタ）アクリレートはアクリレートおよびメタクリレートを、（メタ）アクリロはアクリロおよびメタクリロを、それぞれ意味する。

[0058] アクリル系樹脂（Ｃ）は、分子内に１つの不飽和ビニル基を有するモノマーに由来する構成単位を含む。なお、所望の貯蔵弾性率を得る観点から、分子内に２つ以上の不飽和ビニル基を有するモノマーに由来する構成単位を含んでもよい。

[0059] 分子内に１つの不飽和ビニル基を有するモノマーの例には、（メタ）アクリル酸エステル単量体、芳香族ビニル単量体、ビニルエステル単量体、ビニルシアン化合物単量体、ハロゲン化単量体、オレフィン単量体、ジエン単量体、その他のビニル単量体、不飽和カルボン酸、およびアクリルアミドなどが含まれる。これらのうち、アクリル酸エステル単量体、メタクリル酸エステル単量体、芳香族ビニル単量体、ビニルエステル単量体、ビニルシアン化合物単量体、不飽和カルボン酸、アクリルアミド、および水酸基含有単量体が好ましい。

[0060] （メタ）アクリル酸エステル単量体の例には、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、イソプロピル（メタ）アクリレート、ｎ－ブチル（メタ）アクリレート、イソブチル（メタ）アクリレート、ｎ－アミル（メタ）アクリレート、イソアミル（メタ）アクリレート、ｎ－ヘキシル（メタ）アクリレート、２－エチルヘキシル（メタ）アクリレート、オクチル（メタ）アクリレート、デシル（メタ）アクリレート、ドデシル（メタ）アクリレート、オクタデシル（メタ）アクリレート、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、フェニル（メタ）アクリレート、ベンジル（メタ）アクリレート、およびグリシジル（メタ）アクリレートなどが含まれる。

[0061] （メタ）アクリル酸エステル単量体は、水酸基を有するモノマーであってもよい。水酸基を有するモノマーの例には、２－ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、および２－ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレートなどが含まれる。

[0062] 芳香族ビニル単量体の例には、スチレン、ｐ－メチルスチレン、α－メチルスチレン、２－メチルスチレン、ビニルトルエン、ｔ－ブチルスチレン、クロルスチレン、ビニルキシレン、ビニルナフタレン、ビニルアントラセン、ビニルアニソール、およびジビニルベンゼンなどが含まれる。

[0063] ビニルエステル単量体の例には、酢酸ビニルなどが含まれる。ビニルシアン化合物の例には、（メタ）アクリロニトリルなどが含まれる。ハロゲン化単量体の例には、塩化ビニリデン、および塩化ビニルなどが含まれる。オレ

フィン単量体の例には、エチレン、およびプロピレンなどが含まれる。ジエン単量体の例には、ブタジエン、およびクロロプレンなどが含まれる。その他のビニル単量体の例には、ビニルエーテル、ビニルケトン、およびビニルピロリドンなどが含まれる。不飽和カルボン酸の例には、（メタ）アクリル酸、イタコン酸、フマル酸、およびマレイン酸などが含まれる。アクリルアミドの例には、（メタ）アクリルアミド、およびＮ，Ｎ’－ジメチル（メタ）アクリルアミドなどが含まれる。

[0064] 分子内に２つ以上の不飽和ビニル基を有するモノマーの例には、ジ（メタ）アクリレート、トリ（メタ）アクリレート、テトラ（メタ）アクリレート、ヘキサジ（メタ）アクリレート、ジビニルベンゼン、およびメチレンビス（メタ）アクリルアミドなどが含まれる。

[0065] 分子内に２つ以上の不飽和ビニル基を有するモノマーの具体例には、ポリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、トリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、１，３－ブチレングリコールジ（メタ）アクリレート、１，６－ブチレングリコールジ（メタ）アクリレート、１，６－ヘキサンジオールジ（メタ）アクリレート、ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート、１，９－ノナンジオールジ（メタ）アクリレート、ポリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、２，２’－ビス（４－（メタ）アクリロキシプロピロキシフェニル）プロパン、および２，２’－ビス（４－（メタ）アクリロキシジエトキシフェニル）プロパンなどを含むジ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、トリメチロールエタントリ（メタ）アクリレート、およびテトラメチロールメタントリ（メタ）アクリレートなどを含むトリ（メタ）アクリレート、ジトリメチロールテトラ（メタ）アクリレート、テトラメチロールメタンテトラ（メタ）アクリレート、およびペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレートなどを含むテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレートなどを含むヘキサ（メタ）アクリレート、メチレンビス（メタ）アクリルアミド、ならびにジビニルベンゼンなどが含まれる。

[0066] これらのモノマーは、１種のみを用いてもよいし、２種以上を併用してもよい。

[0067] 樹脂成分の水分散性を高め、炭素繊維の集束性をより高める観点から、アクリル系樹脂（Ｃ）は、乳化重合法で重合した水分散体や、末端を含む分子骨格中に親水基を有する自己乳化性の水分散体などの、水分散体の形状で配合されることが好ましい。

[0068] （ウレタン系樹脂（Ｄ））

ウレタン系樹脂（Ｄ）は、ウレタン結合を主鎖に有する高分子化合物であり、典型的にはポリイソシアネート、ポリオールおよび任意に用いられる鎖延長剤の結合によって得られる高分子化合物である。

[0069] ポリイソシアネートの例には、トリレンジイソシアネート、ジフェニルメタンジイソシアネート、ポリメリックジフェニルメタンジイソシアネート、トリジンジイソシアネート、ナフタレンジイソシアネート、キシリレンジイソシアネート、およびテトラメチルキシリレンジイソシアネートなどを含む芳香族イソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、トリメチルヘキサメチレンジイソシアネート、およびイソホロンジイソシアネートなどを含む脂肪族イソシアネート、ならびに脂環族イソシアネートなどが含まれる。

[0070] ポリオールの例には、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、およびポリテトラメチレングリコールなどを含むポリエーテル系ポリオール、ならびにポリヘキサメチレンカーボネートなどを含むポリカーボネート系ポリオールなどが含まれる。

[0071] 鎖延長剤の例には、エチレングリコールなどの低分子グリコール、ならびに、低分子ジアミン、および低分子アミノアルコールなどの活性水素原子を有する化合物が含まれる。

[0072] これらの化合物は、１種のみを用いてもよいし、２種以上を併用してもよい。

[0073] 樹脂成分の水分散性を高め、炭素繊維の集束性をより高める観点から、ウレタン系樹脂（Ｄ）は、末端を含む分子骨格中に親水基を有する自己乳化性

の水分散体などの、水分散体の形状で配合されることが好ましい。また、同様の観点から、ウレタン系樹脂（Ｄ）は、水分が蒸発することにより架橋構造を形成することができる自己架橋性であることが好ましい。

[0074] （ジエン系ゴム（Ｅ））

ジエン系ゴム（Ｅ）は、ジエン系単量体に由来する構成単位を主鎖に有する高分子ゴム化合物である。ジエン系ゴム（Ｅ）は、ジエン系単量体に由来する構成単位を、すべての構成単位の合計量に対して１０質量％以上含むことが好ましい。典型的には、ジエン系ゴム（Ｅ）は、ジエン系単量体、および任意にジエン系単量体と共重合可能な不飽和ビニル基を有するモノマーを重合させて得られる高分子化合物である。

[0075] ジエン系単量体の例には、ブタジエン、イソプレン、およびクロロプレンなどが含まれる。

[0076] ジエン系単量体と共重合可能な不飽和ビニル基を有するモノマーの例には、スチレン、エチレン、アクリロニトリル、アルキル（メタ）アクリレート等の単官能性単量体、ならびに、ジビニルベンゼン、エチレングリコールジメタクリレート、ブチレングリコールジアクリレート、トリアリルシアヌレート、トリアリルイソシアヌレート、トリメチロールプロパントリアクリレート、ペンタエリスリトールテトラアクリレート等の多官能性単量体などが含まれる。

[0077] 樹脂成分の水分散性を高め、炭素繊維の集束性をより高める観点から、ジエン系ゴム（Ｅ）は、水分散体の形状で配合されることが好ましい。たとえば、界面活性剤などの乳化剤成分を用いて、ジエン系ゴム（Ｅ）を水に分散させることができる。

[0078] （第１の樹脂成分と第２の樹脂成分との関係）

第２の樹脂成分は、第１の樹脂成分と相溶可能であることが好ましい。これらが装用可能であると、により、切断端面からの毛羽の発生をより効率的に抑制し、かつ、集束された炭素繊維を用いて作製したＵＤシートを融着させて積層した積層体のＩＬＳＳをより高めることができる。

[0079] 本明細書において、複数種類の樹脂成分が相溶可能であるとは、これらの樹脂成分を、すべての樹脂の融点（融点が観測されないときはガラス転移温度）よりも１０℃高い温度まで加熱して混合した後、２５℃まで冷却したときに、目視で単一相が形成されることを意味する。なお、これらの樹脂成分に、融点（またはガラス転移温度）が０℃以下のものが含まれるときは、これらの樹脂成分を１０℃で混合したときに、目視で単一相が形成されることを意味する。

[0080] 第１の樹脂成分と、第２の樹脂成分との比率は、質量基準で、（第１の樹脂成分／第２の樹脂成分）が１０／９０以上９０／１０以下であることが好ましく、２０／８０以上８５／１５以下であることがより好ましく、３０／７０以上８０／２０以下であることがさらに好ましい。第１の樹脂成分をより多くすることで、切断端面からの毛羽の発生をより効率的に抑制することができる。第２の樹脂成分をより多くすることで、集束性がより向上すると共に、集束された炭素繊維を用いて作製したＵＤシートを融着させて積層した積層体のＩＬＳＳをより高めることができる。

[0081] １－２．水分散体の組成

水分散体は、上述した樹脂成分が、水中に分散されてなる。

[0082] 水分散体の全質量に対する、上記樹脂成分の全質量が占める割合は、０．０１質量％以上５０質量％以下である。樹脂成分の割合をより多くすることで、水分散体の分散安定性をより高めることができる。樹脂成分の割合を過剰とはしないことで、炭素繊維への樹脂成分の付着の程度を制御しやすくすることができる。たとえば、水分散体を保存するときは、上記樹脂成分の割合は、１０質量％以上５０質量％以下とすることが好ましく、１５質量％以上４５質量％以上とすることがより好ましく、２０質量％以上４０質量％以下とすることがさらに好ましい。一方で、炭素繊維へ樹脂を付着性させるときには、水で希釈するようして、上記樹脂成分の割合を、０．０１質量％以上２０質量％以下とすることが好ましく、０．０５質量％以上１０質量％以下とすることがより好ましく、０．１質量％以上５質量％以下とすることが

さらに好ましい。

[0083] 水分散体の全質量に対する、水の全質量が占める割合は、５０質量％以上９９．９９質量％以下である。水分散体の保存時には、上記水の割合は、５０質量％以上９０質量％以下とすることが好ましく、５５質量％以上８５質量％以下とすることがより好ましく、６０質量％以上８０質量％以下とすることがさらに好ましい。炭素繊維に樹脂を付着させるときには、上記水の割合は、８０質量％以上９９．９９質量％以下とすることが好ましく、９０質量％以上９９．９５質量％以下とすることがより好ましく、９５質量％以上９９．９質量％以下とすることがさらに好ましい。

[0084] 水分散体は、水分散体の分散安定性の観点から、水および樹脂成分の合計の含有量が、水分散体の全質量に対して、６０質量％以上９９質量％以下であることが好ましく、７０質量％９５質量％以下であることがより好ましく、８０質量％以上９５質量％以下であることがさらに好ましい。

[0085] 水分散体は、樹脂成分および水以外に、界面活性剤、ｐＨ調整剤、有機溶媒などのその他の成分を含んでいてもよい。

[0086] 水分散体は、水分散体の分散安定性の観点から、上記その他の成分の含有量が、水分散体の全質量に対して１質量％以上４０質量％以下であることが好ましく、５質量％以上３０質量％以下がより好ましく、５質量％以上２０質量％以下がさらに好ましい。

[0087] 水分散体は、上記の各成分を混合して調製することができる。調製時には、あらかじめ水中で分散させた樹脂成分と、樹脂成分の割合が所定の範囲になる量の水と、を混合することが好ましい。

[0088] ２．炭素繊維束

本発明の他の実施形態は、上述の樹脂成分を集束剤として集束された炭素繊維束に関する。この炭素繊維束は、炭素繊維が一方向に配向されてなる繊維強化樹脂（一方向材）の作製に用いられる。

[0089] 具体的には、上記炭素繊維束は、複数本の炭素繊維が、炭素繊維に付着した樹脂成分である集束剤により集束されており、当該樹脂成分は、上述した

エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）を含む。そして、上記樹脂成分は、さらに上記説明した要件（Ｉ）または（ＩＩ）を満たす。

（Ｉ）２５℃における貯蔵弾性率が１００ＭＰａ以上１００，０００ＭＰａ以下である

（ＩＩ）アクリル系樹脂（Ｃ）、ウレタン系樹脂（Ｄ）およびジエン系ゴム（Ｅ）をさらに含む

[0090] 炭素繊維に対する樹脂成分の付着量は、炭素繊維の全質量に対して、０．１質量％以上５．０質量％以下であることが好ましく、０．２質量％以上３．０質量％以下であることがより好ましく、０．２質量％以上２．０質量％以下であることがさらに好ましく、０．５質量％以上１．５質量％以下であることが特に好ましい。付着量が０．１質量％以上であると、集束性がより向上する傾向にある。付着量が５．０質量％以下であると、集束された炭素繊維を用いて作製したＵＤシートを融着させて積層した積層体のＩＬＳＳをより高めることができる。

[0091] 炭素繊維の種類は特に制限されないが、一方向材の強度を高める観点から、高強度かつ高弾性率のものが好ましい。一方向材の力学特性の向上および軽量化の観点からは、ＰＡＮ系、ピッチ系およびレーヨン系の炭素繊維が好ましい。得られる成形品の強度と弾性率とをいずれも高める観点からは、ＰＡＮ系の炭素繊維が好ましい。

[0092] 炭素繊維の平均繊維径は特に制限されないが、得られる成形品の力学特性と表面外観とをいずれも高める観点からは、１μｍ以上２０μｍ以下であることが好ましく、３μｍ以上１５μｍ以下であることがより好ましい。

[0093] 炭素繊維束の単糸数は特に制限されないが、通常は１００～３５０，０００本、好ましくは１，０００～２５０，０００本、より好ましくは５，０００～２２０，０００本である。なお、上記の水分散体は、繊維数４０，０００以上の繊維束（ラージトウ）に使用したときにも優れた効果を示す。

[0094] 炭素繊維束は、上述の水分散体を炭素繊維に付与し、乾燥させて、作製す

ることができる。樹脂成分を均一に単繊維間に付着させる観点から、水分散体は、ローラー浸漬法、ローラー転写法、およびスプレー法などにより付与されることが好ましい。

[0095] ３．一方向材

本発明の他の実施形態は、上記炭素繊維束に樹脂が含浸されてなる一方向材に関する。

[0096] 一方向材は、薄膜状（ＵＤシート）であってもよいし、ペレット状であってもよい。

[0097] 上記樹脂（マトリクス樹脂）は、熱可塑性樹脂であってもよいし、熱硬化性樹脂であってもよい。また、上記樹脂は、結晶性樹脂であってもよいし、非結晶性樹脂であってもよい。

[0098] 上記熱可塑性樹脂の例には、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブテン、およびポリ４－メチル－１－ペンテンなどを含むポリオレフィン樹脂、ポリアミド樹脂、ポリエステル樹脂、ポリスチレン樹脂、熱可塑性ポリイミド樹脂、ポリアミドイミド樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリフェニレンスルファイド樹脂、ポリアセタール樹脂、アクリル系樹脂、ポリエーテルイミド樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリエーテルケトン樹脂、ポリエーテルエーテルケトン樹脂、ポリアリレート樹脂、ポリエーテルニトリル樹脂、塩化ビニル樹脂、ＡＢＳ樹脂、ならびにフッ素樹脂などが含まれる。

[0099] 上記熱硬化性樹脂の例には、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、メラミン樹脂、ユリア樹脂、ジアリルフタレート樹脂、シリコーン樹脂、ウレタン樹脂、フラン樹脂、ケトン樹脂、キシレン樹脂、熱硬化性ポリイミド樹脂、不飽和ポリエステル樹脂およびジアリルテレフタレート樹脂などが含まれる。

[0100] これらのうち、一方向材の成形性をより高める観点からは、熱可塑性樹脂が好ましい。また、熱可塑性樹脂のうち、ポリアミド樹脂およびポリオレフィン樹脂が好ましく、より低温での成形を可能にして生産効率をより高める観点からは、ポリオレフィン樹脂がより好ましく、軽量で剛性が高くし、か

つ吸水性を低くし、さらには耐薬品性、化学的安定性を高める観点からは、ポリプロピレンがさらに好ましい。

[0101] 上記樹脂は、添加剤を含む樹脂組成物であってもよい。上記添加剤の例には、公知の充填材（無機充填材、有機充填材）、顔料、染料、耐候性安定剤、耐熱安定剤、帯電防止剤、スリップ防止剤、酸化防止剤、防黴剤、抗菌剤、難燃剤、および軟化剤などが含まれる。たとえば、レーザーの照射によって一方向材を互いに、または他の部材に融着させるときは、上記樹脂は、照射する波長のレーザーを吸収する色素を含有する樹脂組成物であることが好ましい。上記色素は、３００ｎｍ以上３０００ｎｍ以下のいずれかの波長の光を吸収する色素であればよく、カーボンブラックであることが好ましい。

[0102] 炭素繊維束の全質量とマトリクス樹脂の全質量との合計量を１００質量部としたとき、炭素繊維束の含有量は、１質量部以上８０質量部以下であることが好ましく、３０質量部以上７５質量部以下であることがより好ましく、３０質量部以上６０質量部以下であることがさらに好ましく、３５質量部以上６０質量部以下であることが特に好ましい。

[0103] 炭素繊維束の全質量とマトリクス樹脂の全質量との合計量を１００質量部としたとき、マトリクス樹脂の含有量は、２０質量部以上９９質量部以下であることが好ましく、２５質量部以上７０質量部以下であることがより好ましく、３５質量部以上７０質量部以下であることがさらに好ましく、４０質量部以上６５質量部以下であることが特に好ましい。

[0104] 一方向材の厚さは、通常は１～５００μｍである。一方向材はたとえば、開繊された炭素繊維束を引き揃え、溶融等により流動可能な状態とされた上記樹脂と接触させて、作製することができる。

[0105] 一方向材は、そのまま使用することもできるし、複数積層して一体化した積層体として使用することもできる。一方向材の厚さは、好ましくは１～５００μｍ、より好ましくは５～４００μｍ、特に好ましくは１０～３００μｍ、最も好ましくは１０～２５０μｍである。シート状またはテープ状の一方向材を、プレス成形法、スタンプ成形法、テープワインディング成形法な

どの方法で積層して、一方向材の厚みを調整してもよい。

[0106] 本実施形態に関する一方向材は、切断してテープ状にしたときの、切断端面からの毛羽の発生を効率的に抑制することができる。そのため、テープ状にして使用することが好ましい。

[0107] テープ状の一方向材は、たとえば、テープワインディング成形用の材料として有用である。テープワインディング成形では、テープ状の一方向材を、マンドレルに接触させつつ、レーザー照射により一方向材（樹脂として熱可塑性樹脂を用いる）を融着させていく。なおレーザーではなく、加熱により融着してもよい。

[0108] 本実施形態に関する一方向材は、自動車部品、電気・電子部品、家庭・事務電気製品部品の用途に好適である。また、テープ状の一方向材は、パイプや圧力容器などの各種容器の外部補強部にも好適に用いることができる。

## 実施例

[0109] 本発明を実施例に基づき詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されない。

[0110] １．材料の用意

１－１．集束剤の材料の調製

以下の方法で、集束剤を調製した。

[0111] なお、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）および酸変性体（Ｂ）の物性は、下記方法で測定した。

[0112] （１）エチレンから導かれる構造単位の含有率（ｍｏｌ％）

日本分光社製フーリエ変換赤外分光光度計ＦＴ／ＩＲ－６１０又はＦＴ／ＩＲ－６１００を用い、長鎖メチレン基の横揺れ振動に基づく７２１ｃｍ$^{-1}$付近の吸収とプロピレンの骨格振動に基づく１１５５ｃｍ$^{-1}$付近の吸収との吸光度比（Ｄ１１５５ｃｍ$^{-1}$／Ｄ７２１ｃｍ$^{-1}$）を算出し、予め作成しておいた検量線（ＡＳＴＭ　Ｄ３９００での標準試料を使って作成）より、エチレンから導かれる構造単位の含有率（質量％）を求めた。次に、得られたエチレンから導かれる構造単位の含有率（質量％）を、下記式に従ってエチレ

ンから導かれる構造単位の含有率（ｍｏｌ％）に換算した。

[0113] [数3]

$$\text{エチレン単位の含有率(mol\%)} = \frac{[\text{エチレン単位の含有率(質量\%)} \div 28]}{[\text{エチレン単位の含有率(質量\%)} \div 28] + [\text{プロピレン単位の含有率(質量\%)} \div 42]}$$

[0114] （２）粘度特性

１００℃における動粘度は、ＪＩＳ Ｋ２２８３（２０００年）に準じて測定、算出した。１５０℃における見かけ粘度（ブルックフィールド粘度）は、ＪＩＳ Ｋ７１１７－１（１９９９年）に準じて測定、算出した。

[0115] （３）重量平均分子量（Ｍｗ）および分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）

重量平均分子量（Ｍｗ）および分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、東ソー株式会社製ＨＬＣ－８３２０ＧＰＣを用いて測定した。分離カラムとして、ＴＳＫｇｅｌ ＳｕｐｅｒＭｕｌｔｉｐｏｒｅ ＨＺ－Ｍ（４本）を用い、カラム温度を４０℃とし、移動相にはテトラヒドロフラン（和光純薬工業株式会社社製）を用い、展開速度を０．３５ｍｌ／分とし、試料濃度を５．５ｇ／Ｌとし、試料注入量を２０マイクロリットルとし、検出器として示差屈折計を用いた。標準ポリスチレンとしては、東ソー株式会社製ＰＳｔＱｕｉｃｋ ＭＰ－Ｍを用いた。汎用校正の手順に従い、ポリスチレン分子量換算として重量平均分子量（Ｍｗ）および数平均分子量（Ｍｎ）を算出し、これらの値から分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）を算出した。

[0116] （４）Ｂ値

ｏ－ジクロロベンゼン／ベンゼン－ｄ６（４／１［ｖｏｌ／ｖｏｌ％］）を測定溶媒とし、測定温度１２０℃、スペクトル幅２５０ｐｐｍ、パルス繰り返し時間５．５秒、パルス幅４．７・ｓｅｃ（４５°パルス）の測定条件下（１００ＭＨｚ、日本電子株式会社製ＥＣＸ４００Ｐ）、または測定温度１２０℃、スペクトル幅２５０ｐｐｍ、パルス繰り返し時間５．５秒、パルス幅５．０・ｓｅｃ（４５°パルス）の測定条件下（１２５ＭＨｚ、ブルカー・バイオスピンＡＶＡＮＣＥＩＩＩｃｒｙｏ－５００）にて$^{13}$Ｃ－ＮＭＲ

スペクトルを測定し、下記式［１］に基づきＢ値を算出した。ピークの帰属は前述の公知文献を参考にして行った。

[0117] [数4]

$$B=\frac{P_{OE}}{2P_O\cdot P_E} \quad \cdots[1]$$

式［１］中、ＰＥはエチレンから導かれる構造単位の含有率（ｍｏｌ％）を示し、ＰＯはα－オレフィン単位の含有率（ｍｏｌ％）を示し、ＰＯＥは全ｄｙａｄ連鎖のエチレン－α－オレフィン連鎖の含有率（ｍｏｌ％）を示す。

[0118] （５）不飽和結合量

ｏ－ジクロロベンゼン－ｄ４を測定溶媒とし、測定温度１２０℃、スペクトル幅２０ｐｐｍ、パルス繰り返し時間７．０秒、かつパルス幅６．１５μｓｅｃ（４５°パルス）の測定条件下にて、$^{1}$Ｈ－ＮＭＲスペクトル（４００ＭＨｚ、日本電子株式会社製ＥＣＸ４００Ｐ）を測定した。ケミカルシフト基準には、溶媒ピーク（オルトジクロロベンゼン７．１ｐｐｍ）を用い、０～３ｐｐｍに観測されるメインピークと、４～６ｐｐｍに観測される不飽和結合由来のピークとの積分値の比率より、炭素原子１０００個当たりの不飽和結合量（個／１０００Ｃ）を算出した。

[0119] （６）融点

セイコーインスツルメント社Ｘ－ＤＳＣ－７０００を用い、簡易密閉できるアルミサンプルパンに約８ｍｇの共重合体の試料を入れてＤＳＣセルに配置し、ＤＳＣセルを窒素雰囲気下にて室温から１５０℃まで１０℃／分で昇温し、次いで、１５０℃で５分間保持した後、１０℃／分で降温し、ＤＳＣセルを－１００℃まで冷却した（降温過程）。次いで、－１００℃で５分間保持した後、１０℃／分で１５０℃まで昇温し、昇温過程で得られるエンタルピー曲線が極大値を示す温度を融点（Ｔｍ）とし、融解に伴う吸熱量の総和を融解熱量（ΔＨ）とした。上記範囲においてピークが観測されないか、

融解熱量（ΔＨ）の値が１Ｊ／ｇ以下の場合、融点（Ｔｍ）は観測されないとみなした。融点（Ｔｍ）および融解熱量（ΔＨ）の求め方は、ＪＩＳ Ｋ７１２１（２０１２年）に準じて行った。

[0120] （７）酸価

混合キシレン：ｎ－ブタノール＝１：１質量比の混合溶媒に、精秤した試料を溶解させて試料溶液を得た。次いで、この試料溶液を、予め標定されたＮ／１０水酸化カリウムのアルコール溶液（特級水酸化カリウム７ｇにイオン交換水５ｇを添加し、１級エチルアルコールで１Ｌとし、Ｎ／１０塩酸と１％フェノールフタレイン溶液にて力価＝Ｆを標定したもの）で滴定し、その中和量から次式に従って算出した。

酸価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）

＝（Ｎ／１０ ＫＯＨ滴定量（ｍｌ）×Ｆ×５．６１）／（試料（ｇ）×０．０１）

[0121] １－１－１．エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）の合成

充分に窒素置換した内容積２Ｌのステンレス製オートクレーブに、ヘプタン７６０ｍＬおよびプロピレン１２０ｇを装入し、系内の温度を１５０℃に昇温した後、水素０．８５ＭＰａ、エチレン０．１９ＭＰａを供給することにより全圧を３ＭＰａＧとした。次に、トリイソブチルアルミニウム０．４ｍｍｏｌ、［メチルフェニルメチレン（η５－シクロペンタジエニル）（η５－２，７－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフルオレニル）］ジルコニウムジクロリド０．０００２ｍｍｏｌ、および、Ｎ，Ｎ－ジメチルアニリニウムテトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレート０．００２ｍｍｏｌを窒素で圧入し、撹拌回転数を４００ｒｐｍにすることで重合を開始した。その後、エチレンのみを連続的に供給することにより全圧を３ＭＰａＧに保ち、１５０℃で５分間重合を行った。少量のエタノールを系内に添加することで重合を停止した後、未反応のエチレン、プロピレン、水素をパージした。得られた重合溶液を、０．２ｍｏｌ／Ｌの塩酸１０００ｍＬで３回、次いで蒸留水１０００ｍＬで３回洗浄し、硫酸マグネシウムで乾燥後、溶媒を減圧留去し、粗エ

チレン・プロピレン共重合体を得た。

[0122] 内容積１Ｌのステンレス製オートクレーブに、Ｐｄ／アルミナ触媒のヘキサン溶液（濃度０．５質量％）１００ｍＬ、および、上記得られた粗エチレン・プロピレン共重合体のヘキサン溶液（濃度３０質量％）５００ｍＬを加え、オートクレーブを密閉した後、窒素置換を行なった。次いで、撹拌しながら１４０℃まで昇温し、系内を水素置換した後、水素で１．５ＭＰａまで昇圧して１５分間水素添加反応を行った。反応液をろ過して水添触媒をろ別した後、溶媒を減圧留去し、減圧下８０℃で２４時間乾燥することで、エチレン・プロピレン共重合体（Ａ）を得た。このエチレン・プロピレン共重合体（Ａ）のエチレンから導かれる構造単位の含有率は４８．５ｍｏｌ％、重量平均分子量（Ｍｗ）は５，１６５、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．７、Ｂ値は１．２、１００℃における動粘度は１５２ｍｍ$^2$／ｓであり、不飽和結合量は０．１個／１０００Ｃ未満、塩素含量は０．１ｐｐｍ未満、融点（融解ピーク）は観測されなかった。

[0123] １－１－２．酸変性体（Ｂ）の水分散体の調製

窒素吹込管、水冷コンデンサー、温度計および滴下ロート２個を装着した攪拌機付ガラス製２００ｍＬ反応器に、上記得られたエチレン・プロピレン共重合体（Ａ）１００ｇを仕込み、昇温後１２０℃にて窒素バブリングを開始して系内を１６０℃に保温した。その後、２個の滴下ロートに各々予め仕込んでおいた無水マレイン酸６．６ｇ（７０℃前後に加温して液状にしておいた）およびジ－ｔｅｒｔ－ブチルパーオキサイド１．３ｇを５時間かけて供給し、供給完了後１時間かけて反応させた。次に、系内を１７５℃に昇温し、系内脱圧後、真空ポンプにて徐々に窒素を通気しながら１時間減圧して不純物（未反応の無水マレイン酸およびジ－ｔｅｒｔ－ブチルパーオキサイドの分解物）を除去した。以上の操作によりエチレン・プロピレン共重合体の酸変性体（Ｂ）を得た。この酸変性体（Ｂ）の重量平均分子量（Ｍｗ）は７，１７０、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．８、１５０℃における見かけ粘度（ブルックフィールド粘度）は７１ｃＰｓ、酸価は６０ｍｇＫＯＨ／ｇ

であり、融点（融解ピーク）は観測されなかった。

[0124] 上記得られた酸変性体（Ｂ）１００質量部に対して界面活性剤(ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ＨＬＢ値は１３．５)を２５質量部添加し８０℃で混練した。次いで、この混合物にモルフォリン１０質量部、蒸留水２８０質量部を加え、ホモミキサーで８０℃、１２０００ｒｐｍで攪拌して、酸変性体（Ｂ）の水分散体を得た。得られた酸変性体（Ｂ）の固形分濃度は３０質量％であった。

[0125] １－１－３．ポリプロピレン系樹脂の水分散体の調製

プロピレン・ブテン共重合体９６質量部、無水マレイン酸４質量部、および重合開始剤（日油株式会社製、パーヘキシン２５Ｂ）０．４質量部を混合し、加熱温度１６０℃、２時間で変性を行って、プロピレン・ブテン共重合体の酸変性体を得た。この酸変性体の重量平均分子量（Ｍｗ）は２０，０００、酸価は４５ｍｇＫＯＨ／ｇ、無水マレイン酸含有率は４質量％、融点は１４０℃だった。

[0126] ショアＤ硬度が５２であり、重量平均分子量（Ｍｗ）が３５０，０００であるプロピレン・ブテン共重合体１００質量部と、上記得られた酸変性体１０質量部と、界面活性剤としてのオレイン酸カリウム３質量部とを混合した。この混合物を２軸スクリュー押出機（池貝鉄工株式会社製、ＰＣＭ－３０、Ｌ／Ｄ＝４０）のホッパーより３０００ｇ／時間の速度で供給し、押出機のベント部に設けた供給口より２０％の水酸化カリウム水溶液を９０ｇ／時間の割合で連続的に供給し、加熱温度２１０℃で連続的に押出した。押出した樹脂混合物を、押出機口に設置したジャケット付きスタティックミキサーで１１０℃まで冷却し、さらに８０℃の温水中に投入してポリプロピレン系樹脂の水分散体（エマルション）を得た。得られた水分散体の固形分濃度は４５質量％であった。

[0127] １－１－４．アクリル系樹脂（Ｃ）の水分散体の調製

イオン交換水４００ｇ、ドデシルジフェニルエーテルジスルホン酸ナトリウム３ｇにアクリルアミド２０ｇ、アクリロニトリル５０ｇ、ｎ－ブチルア

クリレート４５０ｇ、２－エチルヘキシルアクリレート４５０ｇ、メタクリル酸２０ｇ、およびジビニルベンゼン１０ｇを攪拌下で加えて乳化物を作成した。

[0128] 攪拌機、還流コンデンサー、滴下装置、および温度計を備えた反応容器に、イオン交換水５５０ｇおよびドデシルジフェニルエーテルジスルホン酸ナトリウム１ｇを仕込み、攪拌下で窒素置換しながら７２℃まで昇温した。内温を７２℃に保ち、重合開始剤として過硫酸カリウム５ｇを添加した。過硫酸カリウムの溶解後、内温を７２℃に保ったまま、上記乳化物を、反応溶液内に連続的に４時間かけて滴下した。滴下終了後、２時間の熟成を行った。得られた水性エマルジョンを常温まで冷却した後、イオン交換水とアンモニウム水溶液とを添加して固形分５０重量％、ｐＨ７．５に調整して、アクリル系樹脂（Ｃ１）の水分散体を得た。

[0129] 乳化物を作製する際に添加した各モノマーおよび連鎖移動剤としてのｔ－ドデシルメルカプタンの比率を表１に記載の比率に変更した以外はアクリル系樹脂（Ｃ１）の合成と同様にして、アクリル系樹脂（Ｃ２）～アクリル系樹脂（Ｃ５）を得た。なお、表１に記載の各モノマーの比率は、全モノマー量に対する質量比（質量％）を示す。

[0130]

[表1]

| アクリル系樹脂 No. | （Ｃ１） | （Ｃ２） | （Ｃ３） | （Ｃ４） | （Ｃ５） |
|---|---|---|---|---|---|
| スチレン | - | - | - | 51.0 | 10.0 |
| アクリロニトリル | 5.0 | - | - | - | 22.0 |
| メチルメタクリレート | - | 20.0 | 35.0 | - | 10.0 |
| エチルアクリレート | - | 10.0 | 10.0 | - | - |
| ブチルアクリレート | 45.0 | 62.0 | 48.0 | - | 50.9 |
| 2-エチルヘキシルアクリレート | 45.0 | - | - | 42.0 | - |
| メタクリル酸 | 2.0 | - | 2.0 | 2.0 | 3.0 |
| イタコン酸 | - | 2.0 | - | - | - |
| ヒドロキシエチルメタクリレート | - | 2.0 | 2.0 | 2.0 | 2.0 |
| アクリルアミド | 2.0 | 2.0 | 1.5 | 2.0 | 2.0 |
| ジビニルベンゼン | 1.0 | 2.0 | 1.5 | - | - |
| トリメチロールプロパントリメタクリレート | - | - | - | 1.0 | - |
| t-ドデシルメルカプタン | | - | - | - | 0.1 |
| 合計 | 100.0 | 100.0 | 100.0 | 100.0 | 100.0 |

[0131] １－１－５．ウレタン系樹脂（Ｄ）の水分散体の用意

以下のウレタン系樹脂（いずれも固形分濃度が３０質量％の水分散体）を用意した。

（Ｄ１）：三井化学株式会社製、タケラックＷＳ－６０２１

（Ｄ２）：三井化学株式会社製、タケラックＷ－６１１０

[0132] １－１－６．ジエン系ゴム（Ｅ）の水分散体の用意

以下のジエン系ゴム（Ｅ）（いずれも固形分濃度が５０質量％の水分散体）を用意した。

（Ｅ１）：日本エイアンドエル株式会社製、ナルスターＳＲ－１１６

（Ｅ２）：日本エイアンドエル株式会社製、ナルスターＭＲ－１７１

（Ｅ３）：日本エイアンドエル株式会社製、サイアテックスＮＡ－１０６

[0133] １－１－７．エポキシ系樹脂の水分散体の調製

攪拌機、温度計、還流冷却装置及び窒素導入管を備えた４つ口フラスコに、ジグライム６０．０ｇ、ビスフェノールＡ型エポキシ樹脂（三井化学株式会

社製、エポミックＲ３０２）１００ｇを加え、７０℃まで昇温しながら攪拌し、エポキシ樹脂が完全に溶解したことを確認した。この溶液に、モノエタノールアミン７．０ｇ（活性水素モル数（Ｂ）＝０．２３モル）（エポキシ基のモル数（Ａ）と多官能アミン中の活性水素のモル数（Ｂ）との比（Ａ）／（Ｂ）＝０．７０）を加え、１００℃で６時間反応した。続いて、７０℃まで冷却して、無水コハク酸１９．７ｇを添加し、再び９５℃まで昇温し１時間反応させ、多官能アミン変性エポキシ樹脂の側鎖にカルボキシル基を有するエポキシ樹脂のジグライム溶液を得た。この樹脂液を６０℃まで冷却し、２９％アンモニア水１１．５ｇを添加し、６０℃に保ちながら３０分混合攪拌した。その後、イオン交換水１７５．６ｇを３０分かけて滴下した。次いで、アニオン性界面活性剤（花王株式会社製、ペレックス（登録商標）ＯＴ－Ｐ、ジアルキルスルホコハク酸ナトリウム）を６．３質量部添加して混合し、エポキシ系樹脂の水分散体（エマルション）を得た。得られた水分散体の固形分濃度は２５質量％であった。

[0134] １－２．集束剤が付着していない炭素繊維束の用意

集束剤が付着した炭素繊維束（フォルモサ　プラスティクス　コーポレーション製、ＴＣ－３５Ｒ（１２Ｋ）、フィラメント数１２０００本）をアセトン中に浸漬し、10分間超音波を作用させ、その後炭素繊維束を引き上げさらに３回アセトンで洗浄し、室温で８時間乾燥することにより、付着しているサイジング剤を除去し、集束剤が付着していない炭素繊維束とした。

[0135] ２．集束剤が付着した炭素繊維束の作製

（実施例１～実施例１２、比較例１３～比較例１７）

上記各樹脂成分（酸変性体（Ｂ）、ポリプロピレン系樹脂、アクリル系樹脂（Ｃ）、ウレタン系樹脂（Ｄ）、ジエン系ゴム（Ｅ）およびエポキシ系樹脂）を、表２～表５に示す割合でイオン交換水に分散させ、水分散体１～水分散体１７を得た。

[0136] これらの水分散体を、ローラー含浸法を用いて上記集束剤が付着していない炭素繊維束に付着させた。次いで、オンラインで１３０℃、２分乾燥して

低沸点成分を除去し、集束剤が付着した炭素繊維束を得た。後述の方法で測定した炭素繊維束に対する集束剤の樹脂成分の付着量を表２～表５に示す。

[0137] ３．一方向材の作製

次いで、国際公開第２０２１／１７７１５８号の図２に記載された装置を用いて、炭素繊維束を開繊し引き揃えた後、含浸ローラーにコーティングされた溶融したマトリックス樹脂と接触させ、引き取ることにより、シート状の一方向材（ＵＤシート）を得た。具体的には、まずポリプロピレン（株式会社プライムポリマー製、商品名Ｊ１０８Ｍ、ＭＦＲ（ＡＳＴＭ　Ｄ　１２３８に準拠して測定、２３０℃、荷重２．１６ｋｇ）＝４５ｇ／１０分）および無水マレイン酸変性ポリプロピレン系樹脂（三井化学株式会社製、商品名アドマー　ＱＥ８００、ＭＦＲ（ＡＳＴＭ　Ｄ　１２３８に準拠して測定、２３０℃、荷重２．１６ｋｇ）＝９．１ｇ／１０分）を９０／１０の質量比でブレンドして、Ｔダイを有する押出機中で溶融混合した。そして、この樹脂をＴダイから回転する含侵ローラーの周面に押出供給した。この押出機及びＴダイの温度は２６０℃、含侵ローラーの温度も２６０℃に調整した。樹脂の供給量は、炭素繊維束と樹脂の質量比が６７／３３となるように調整した。

[0138] ４．評価

上記得られた集束剤、集束剤が付着した炭素繊維束、およびＵＤシートについて、以下の測定および評価を行った。

[0139] ４－１．炭素繊維束に対する集束剤の樹脂成分の付着量

集束剤を付着させた炭素繊維束を約５ｇ採取し、１２０℃で３時間乾燥し、その重量Ｗ１（ｇ）を測定した。次いで炭素繊維束を窒素雰囲気中で、４５０℃で１５分間加熱し、その後室温まで冷却し、その重量Ｗ２（ｇ）を測定した。Ｗ１（ｇ）およびＷ２（ｇ）から、次式により付着量を算出した。

付着量＝［（Ｗ１－Ｗ２）／Ｗ２］×１００　（質量％）

[0140] ４－２．集束剤の貯蔵弾性率Ｇ’

それぞれの集束剤の水分散体を１５０℃で３０分乾燥させ、その後、冷却

して、集束剤の乾燥体を得た。乾燥体が固体の場合には、さらに、この乾燥体を１２０℃、５ＭＰａで３分間加圧圧縮し、その後加圧状態のまま直ちに冷却して、乾燥体のシートを作成した。乾燥体が液体の場合には、そのままシート状にして、粘弾性測定に用いた。

[0141] 液体状の乾燥体または乾燥体のシートの粘弾性を、粘弾性測定装置（ティー・エイ・インスツルメント社製、ＡＲＥＳ－Ｇ２）により、測定周波数１Ｈｚ、測定温度０℃～１５０℃（高温側から測定）、昇温速度３℃／ｍｉｎ、窒素下で測定し、２５℃における貯蔵弾性率Ｇ’を得た。

[0142] ４－３．相溶性

上記貯蔵弾性率の測定時に得た集束剤の乾燥体をアルミ皿に１ｇ秤量し、この乾燥体に含まれる２種類の樹脂の融点およびガラス転移温度のうち高い温度よりも１０℃高い温度まで加熱した。その後、３０分攪拌した後に室温まで冷却して、下記の評価基準に従って評価した。なお、各樹脂の融点およびガラス転移温度は、上述のＤＳＣによる方法で測定して求めた。

―評価基準―

〇：目視で相分離は観察されなかった

×：目視で相分離が観察された

[0143] ４－４．層間せん断応力（ＩＬＳＳ）

得られたＵＤシートを、炭素繊維の配向角度が同じになるようにして１５層積層し、これを平板の金型を装着したプレス装置（株式会社神藤金属工業所製、ＮＳＦ－３７ＨＨＣ）内に配置した。そして、１８０℃、５ＭＰａで３分間加圧圧縮し、その後加圧状態のまま直ちに冷却し、２．０ｍｍ厚のＵＤシート積層材を得た。

[0144] 得られたＵＤシート積層材を切り出して５つの試験片（２０ｍｍ×１０ｍｍ）を作製し、ショートスパン曲げ試験装置（株式会社島津製作所製、島津オートグラフＡＧ－５ＫＮＸ）を用い、ＡＳＴＭ　Ｄ２３４４に準拠して層間せん断応力（ＩＬＳＳ）を測定し、平均値を求めた。下記の評価基準に従って評価した。

―評価基準―

◎：ＩＬＳＳは２５ＭＰａ以上であった

○：ＩＬＳＳは２０ＭＰａ以上２５Ｍｐａ未満であった

×：ＩＬＳＳは２０ＭＰａ未満であった

[0145] ４－５．集束性

サイジング剤を付着させた炭素繊維束を長さ５ｃｍに切断した切断サンプルを１０個作製した。風合い試験機（大栄科学精器製作所製、ＨＡＮＤＬＥ－Ｏ－ＭＥＴＥＲ、型式ＨＯＭ－２、スリット幅１０ｍｍ）により、それぞれの切断サンプルの押し込み時に発生する抵抗量（ｇ）を測定し、平均値を求めた。なお、抵抗値（ｇ）が大きいほど、集束性が良好である。下記の評価基準に従って評価した。

―評価基準―

○：抵抗量は１０ｇ以上であった

×：抵抗量は１０ｇ未満であった

[0146] ４－６．毛羽

集束剤が付着した強化繊維束に、繊維方向に沿って端部から１０ｍｍの切り込みを入れ、強化繊維束を繊維方向に沿って手で引き裂いた。そして、引き裂く際の切り込みの先端部（すなわち端部から１０ｍｍの位置）からその先１５ｃｍ（すなわち端部から１６ｃｍ）の箇所までの目視で確認できる毛羽の数を数えた。この操作を３回繰り返し、確認された毛羽の数の平均値を、それぞれの強化繊維束の毛羽発生数とした。比較例１の毛羽発生数を基準とし、以下の基準で各実施例の毛羽発生数を評価した。

―評価基準―

◎：比較例１の毛羽発生数に対して１／５未満であった

○：比較例１の毛羽発生数に対して１／５以上１／２未満であった

×：比較例１の毛羽発生数に対して１／２以上であった

[0147]

[表2]

| | | | | | 実施例 | 実施例 | 実施例 | 実施例 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 実験No. | | | | | 1 | 2 | 3 | 4 |
| 集束剤 | 種別 | | 樹脂濃度 | 単位 | | | | |
| | 酸変性体(B)の水分散体 | | 30wt% | 質量部 | 1.7 | 3.3 | 0.8 | 0.8 |
| | ポリプロピレン系樹脂の水分散体 | | 45wt% | 質量部 | | | | |
| | アクリル系樹脂(C)の水分散体 | (C1) | 50wt% | 質量部 | | | | |
| | | (C2) | | 質量部 | | | | |
| | | (C3) | | 質量部 | | | | |
| | | (C4) | | 質量部 | | | | |
| | | (C5) | | 質量部 | | | | |
| | ウレタン系樹脂(D)の水分散体 | (D1) | 30wt% | 質量部 | 1.7 | 3.3 | 0.8 | |
| | | (D2) | | 質量部 | | | | 0.8 |
| | ジエン系ゴム(E)の水分散体 | (E1) | 50wt% | 質量部 | | | | |
| | | (E2) | | 質量部 | | | | |
| | | (E3) | | 質量部 | | | | |
| | エポキシ樹脂の水分散体 | | 25wt% | 質量部 | | | | |
| | イオン交換水 | | | 質量部 | 96.6 | 93.4 | 98.4 | 98.4 |
| | 集束剤中の樹脂成分の割合 | | | wt% | 1.0 | 2.0 | 0.5 | 0.5 |
| 測定・評価結果 | 集束剤乾燥体のG' | | | MPa | 17101 | 16854 | 17394 | 24821 |
| | 相溶性 | | | - | ○ | ○ | ○ | ○ |
| | 集束剤付着量 | | | wt% | 0.68 | 1.63 | 0.31 | 0.30 |
| | 集束性 | | | - | ○ | ○ | ○ | ○ |
| | 毛羽 | | | - | ◎ | ◎ | ○ | ◎ |
| | ILSS | | | MPa | ◎ | ○ | ◎ | ○ |

[0148] [表3]

| | | | | | 実施例 | 実施例 | 実施例 | 実施例 | 実施例 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 実験No. | | | | | 5 | 6 | 7 | 8 | 9 |
| 集束剤 | 種別 | | 樹脂濃度 | 単位 | | | | | |
| | 酸変性体(B)の水分散体 | | 30wt% | 質量部 | 0.8 | 0.8 | 0.8 | 0.8 | 0.8 |
| | ポリプロピレン系樹脂の水分散体 | | 45wt% | 質量部 | | | | | |
| | アクリル系樹脂(C)の水分散体 | (C1) | 50wt% | 質量部 | 0.5 | | | | |
| | | (C2) | | 質量部 | | 0.5 | | | |
| | | (C3) | | 質量部 | | | 0.5 | | |
| | | (C4) | | 質量部 | | | | 0.5 | |
| | | (C5) | | 質量部 | | | | | 0.5 |
| | ウレタン系樹脂(D)の水分散体 | (D1) | 30wt% | 質量部 | | | | | |
| | | (D2) | | 質量部 | | | | | |
| | ジエン系ゴム(E)の水分散体 | (E1) | 50wt% | 質量部 | | | | | |
| | | (E2) | | 質量部 | | | | | |
| | | (E3) | | 質量部 | | | | | |
| | エポキシ樹脂の水分散体 | | 25wt% | 質量部 | | | | | |
| | イオン交換水 | | | 質量部 | 98.7 | 98.7 | 98.7 | 98.7 | 98.7 |
| | 集束剤中の樹脂成分の割合 | | | wt% | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 |
| 測定・評価結果 | 集束剤乾燥体のG' | | | MPa | 3118 | 4264 | 18838 | 14660 | 1312 |
| | 相溶性 | | | - | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |
| | 集束剤付着量 | | | wt% | 0.34 | 0.34 | 0.56 | 0.56 | 0.45 |
| | 集束性 | | | - | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |
| | 毛羽 | | | - | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |
| | ILSS | | | MPa | ○ | ○ | ○ | ○ | ○ |

[0149]

[表4]

| | | | | | 実施例 | 実施例 | 実施例 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 実験Ｎｏ. | | | | | 10 | 11 | 12 |
| 集束剤 | 種別 | | 樹脂濃度 | 単位 | | | |
| | 酸変性体(B)の水分散体 | | 30wt% | 質量部 | 0.8 | 0.8 | 0.8 |
| | ポリプロピレン系樹脂の水分散体 | | 45wt% | 質量部 | | | |
| | アクリル系樹脂(C)の水分散体 | (C1) | 50wt% | 質量部 | | | |
| | | (C2) | | 質量部 | | | |
| | | (C3) | | 質量部 | | | |
| | | (C4) | | 質量部 | | | |
| | | (C5) | | 質量部 | | | |
| | ウレタン系樹脂(D)の水分散体 | (D1) | 30wt% | 質量部 | | | |
| | | (D2) | | 質量部 | | | |
| | ジエン系ゴム(E)の水分散体 | (E1) | 50wt% | 質量部 | 0.5 | | |
| | | (E2) | | 質量部 | | 0.5 | |
| | | (E3) | | 質量部 | | | 0.5 |
| | エポキシ樹脂の水分散体 | | 25wt% | 質量部 | | | |
| | イオン交換水 | | | 質量部 | 98.7 | 98.7 | 98.7 |
| | 集束剤中の樹脂成分の割合 | | | wt% | 0.5 | 0.5 | 0.5 |
| 測定・評価結果 | 集束剤乾燥体のG' | | | MPa | 8937 | 39413 | 18713 |
| | 相溶性 | | | - | ○ | ○ | ○ |
| | 集束剤付着量 | | | wt% | 0.26 | 0.51 | 0.42 |
| | 集束性 | | | - | ○ | ○ | ○ |
| | 毛羽 | | | - | ○ | ○ | ○ |
| | ILSS | | | MPa | ○ | ○ | ○ |

[0150] [表5]

| | | | | | 比較例 | 比較例 | 比較例 | 比較例 | 比較例 |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| 実験Ｎｏ. | | | | | 13 | 14 | 15 | 16 | 17 |
| 集束剤 | 種別 | | 樹脂濃度 | 単位 | | | | | |
| | 酸変性体(B)の水分散体 | | 30wt% | 質量部 | | 1.7 | 3.3 | 5 | 1.7 |
| | ポリプロピレン系樹脂の水分散体 | | 45wt% | 質量部 | 2.2 | | | | |
| | アクリル系樹脂(C)の水分散体 | (C1) | 50wt% | 質量部 | | | | | |
| | | (C2) | | 質量部 | | | | | |
| | | (C3) | | 質量部 | | | | | |
| | | (C4) | | 質量部 | | | | | |
| | | (C5) | | 質量部 | | | | | |
| | ウレタン系樹脂(D)の水分散体 | (D1) | 30wt% | 質量部 | | | | | |
| | | (D2) | | 質量部 | | | | | |
| | ジエン系ゴム(E)の水分散体 | (E1) | 50wt% | 質量部 | | | | | |
| | | (E2) | | 質量部 | | | | | |
| | | (E3) | | 質量部 | | | | | |
| | エポキシ樹脂の水分散体 | | 25wt% | 質量部 | | | | | 2 |
| | イオン交換水 | | | 質量部 | 97.8 | 98.3 | 96.7 | 95 | 96.3 |
| | 集束剤中の樹脂成分の割合 | | | wt% | 1.0 | 0.5 | 1.0 | 1.5 | 1.0 |
| 測定・評価結果 | 集束剤乾燥体のG' | | | MPa | 11312900 | 2.5 | 2.8 | 2.9 | 478331 |
| | 相溶性 | | | - | 評価せず | 評価せず | | | × |
| | 集束剤付着量 | | | wt% | 1.29 | 0.38 | 0.68 | 1.56 | 0.62 |
| | 集束性 | | | - | ○ | × | × | ○ | ○ |
| | 毛羽 | | | - | 基準 | ○ | ○ | ○ | × |
| | ILSS | | | MPa | ◎ | ○ | ○ | × | × |

[0151] 表２～表５から明らかなように、エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）を含み、下記要件（Ｉ）または（ＩＩ）を満た

す水分散体を用いて炭素繊維束を集束すると、毛羽の発生を抑制しつつ、集束された炭素繊維を用いて作製したＵＤシートを融着させて積層した積層体のＩＬＳＳを高め、かつ、炭素繊維の集束性もより良好にすることができた。

（Ｉ）２５℃における貯蔵弾性率が１００ＭＰａ以上１００，０００ＭＰａ以下である

（ＩＩ）アクリル系樹脂（Ｃ）、ウレタン系樹脂（Ｄ）およびジエン系ゴム（Ｅ）をさらに含む

[0152] 本出願は、２０２２年９月２８日出願の特願２０２２－１５５３４８号の優先権を主張する。当該出願の出願当初の明細書、および請求の範囲に記載された事項は、参照により本出願に援用される。

## 産業上の利用可能性

[0153] 本発明に関する水分散体は、一方向材の毛羽を抑制しつつ、ＩＬＳＳおよび収束性を高めることができる。そのため、本発明は、より多様な用途への一方向材の利用の可能性を開拓し、一方向材に関する各種分野の発展に寄与すると期待される。

# 請求の範囲

[請求項1] 一方向に配向された炭素繊維に樹脂が含浸してなる一方向材の製造に用いられる前記炭素繊維を集束するために用いられる、樹脂成分が水に分散された水分散体であって、

前記樹脂成分は、下記要件（ａ１）～（ａ３）のすべてを満たすエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）を含み、

前記樹脂成分の、２５℃における貯蔵弾性率は、１００ＭＰａ以上１００，０００ＭＰａ以下であり、

前記水分散体の全質量に対する、前記樹脂成分の全質量が占める割合は、０．０１質量％以上５０質量％以下である、

水分散体。

（ａ１）１００℃における動粘度が１０ｍｍ$^2$／ｓ以上５，０００ｍｍ$^2$／ｓ以下である

（ａ２）エチレンから導かれる構造単位の含有率が３０ｍｏｌ％以上８５ｍｏｌ％以下である

（ａ３）ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定し、ポリスチレン換算により得られた分子量の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が、２．５以下である

[請求項2] 一方向に配向された炭素繊維に樹脂が含浸してなる一方向材の製造に用いられる前記炭素繊維を集束するために用いられる、樹脂成分が水に分散された水分散体であって、

前記樹脂成分は、

下記要件（ａ１）～（ａ３）のすべてを満たすエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）である、第１の樹脂成分と、

アクリル系樹脂（Ｃ）、ウレタン系樹脂（Ｄ）およびジエン系ゴム（Ｅ）からなる群から選択される少なくとも１種の樹脂である、第２

の樹脂成分と、を含み、

前記水分散体の全質量に対する、前記樹脂成分の全質量が占める割合は、０．０１質量％以上５０質量％以下である、

水分散体。

（ａ１）１００℃における動粘度が１０ｍｍ$^2$／ｓ以上５，０００ｍｍ$^2$／ｓ以下である

（ａ２）エチレンから導かれる構造単位の含有率が３０ｍｏｌ％以上８５ｍｏｌ％以下である

（ａ３）ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定し、ポリスチレン換算により得られる分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が、２．５以下である

[請求項3] 前記第２の樹脂成分は、前記第１の樹脂成分と相溶可能である、請求項２に記載の水分散体。

[請求項4] 前記共重合体（Ａ）は、下記要件（ａ４）～（ａ７）のうち少なくとも１つの要件を満たす、請求項１～３のいずれか１項に記載の水分散体。

（ａ４）ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定し、ポリスチレン換算により得られる重量平均分子量（Ｍｗ）が、１，０００以上５０，０００以下である

（ａ５）下記式［１］で表されるＢ値が、１．１以上である

[数1]

$$B = \frac{P_{OE}}{2P_O \cdot P_E} \quad \cdots [1]$$

［式［１］中、$P_E$はエチレンから導かれる構造単位の含有率（ｍｏｌ％）を示し、$P_O$はα－オレフィンから導かれる構造単位の含有

率（ｍｏｌ％）を示し、$P_{OE}$は全ｄｙａｄ連鎖のエチレン－α－オレフィン連鎖の含有率（ｍｏｌ％）を示す。］

（ａ６）$^{1}$Ｈ－ＮＭＲにより測定した不飽和結合量が、炭素原子１０００個あたり０．５個未満である

（ａ７）融点が、観測されない

［請求項5］ 前記酸変性体（Ｂ）は、下記要件（ｂ１）～（ｂ４）のうち少なくとも１つの要件を満たす、請求項１～４のいずれか１項に記載の水分散体。

（ｂ１）酸価が、１ｍｇＫＯＨ／ｇ以上３００ｍｇＫＯＨ／ｇ以下である

（ｂ２）１５０℃における見かけ粘度が、１ｃＰｓ以上１，０００ｃＰｓ以下である

（ｂ３）ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定し、ポリスチレン換算により得られる重量平均分子量（Ｍｗ）が、１，０００以上５０，０００以下である

（ｂ４）ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定し、ポリスチレン換算により得られる分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が、２．５以下である

［請求項6］ 前記酸変性体（Ｂ）は、前記共重合体（Ａ）の、マレイン酸または無水マレイン酸による酸変性体である、請求項１～５のいずれか１項に記載の水分散体。

［請求項7］ 一方向に配向された炭素繊維に樹脂が含浸してなる一方向材の製造に用いられる前記炭素繊維が集束されてなる炭素繊維束であって、

前記炭素繊維は、前記炭素繊維に付着した集束剤により集束されており、

前記集束剤は、下記要件（ａ１）～（ａ３）のすべてを満たすエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）を含み、

前記エチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）を含む前記集束剤の樹脂成分の、２５℃における貯蔵弾性率が１００ＭＰａ以上１００，０００ＭＰａ以下である、

炭素繊維束。

（ａ１）１００℃における動粘度が１０ｍｍ$^2$／ｓ以上５，０００ｍｍ$^2$／ｓ以下である

（ａ２）エチレンから導かれる構造単位の含有率が３０ｍｏｌ％以上８５ｍｏｌ％以下である

（ａ３）ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定し、ポリスチレン換算により得られた分子量の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が、２．５以下である

[請求項8] 一方向に配向された炭素繊維に樹脂が含浸してなる一方向材の製造に用いられる前記炭素繊維が集束されてなる炭素繊維束であって、

前記炭素繊維は、前記炭素繊維に付着した集束剤により集束されており、

前記集束剤は、下記要件（ａ１）～（ａ３）のすべてを満たすエチレン・α－オレフィン共重合体（Ａ）またはその酸変性体（Ｂ）である、第１の樹脂成分と、

アクリル系樹脂（Ｃ）、ウレタン系樹脂（Ｄ）およびジエン系ゴム（Ｅ）からなる群から選択される少なくとも１種の樹脂である、第２の樹脂成分と、を含む、

炭素繊維束。

（ａ１）１００℃における動粘度が１０ｍｍ$^2$／ｓ以上５，０００ｍｍ$^2$／ｓ以下である

（ａ２）エチレンから導かれる構造単位の含有率が３０ｍｏｌ％以上８５ｍｏｌ％以下である

（ａ３）ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定し、ポリスチレン換算により得られた分子量の分子量分布（Ｍ

ｗ／Ｍｎ）が、２．５以下である

[請求項9] 前記酸変性体（Ｂ）は、前記共重合体（Ａ）の、マレイン酸または無水マレイン酸による酸変性体である、請求項７または８に記載の炭素繊維束。

[請求項10] 前記炭素繊維束の全質量に対する、樹脂成分の全質量が占める割合は、０．１質量％以上５．０質量％以下である、請求項７～９のいずれか１項に記載の炭素繊維束。

[請求項11] 一方向に配向された、請求項７または８に記載の炭素繊維束と、

前記炭素繊維束に含浸された、熱可塑性樹脂であるマトリクス樹脂と、を含み、

前記炭素繊維束の全質量と前記マトリクス樹脂の全質量との合計量を１００質量部としたとき

前記炭素繊維束の含有量は１質量部以上８０質量部以下であり、

前記マトリクス樹脂の含有量は２０質量部以上９９質量部以下である、

一方向材。

[請求項12] 薄膜状の形状を有する、請求項１１に記載の一方向材。

[請求項13] ペレット状の形状を有する、請求項１１に記載の一方向材。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
**PCT/JP2023/034807**

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

***D06M 15/227***(2006.01)i; ***B29B 11/16***(2006.01)i; ***C08C 19/28***(2006.01)i; ***C08F 210/02***(2006.01)i; ***C08K 9/08***(2006.01)i; ***C08L 9/00***(2006.01)i; ***C08L 23/08***(2006.01)i; ***C08L 23/26***(2006.01)i; ***C08L 33/04***(2006.01)i; ***C08L 75/04***(2006.01)i; ***C08L 101/00***(2006.01)i; ***D06M 15/263***(2006.01)i; ***D06M 15/564***(2006.01)i; ***D06M 15/693***(2006.01)i; *D06M 101/40*(2006.01)n

FI: D06M15/227; B29B11/16; C08C19/28; C08F210/02; C08K9/08; C08L9/00; C08L23/08; C08L23/26; C08L33/04; C08L75/04; C08L101/00; D06M15/263; D06M15/564; D06M15/693; D06M101:40

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)

D06M15/227; B29B11/16; C08C19/28; C08F210/02; C08K9/08; C08L9/00; C08L23/08; C08L23/26; C08L33/04; C08L75/04; C08L101/00; D06M15/263; D06M15/564; D06M15/693; D06M101/40

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 1971-2023
Registered utility model specifications of Japan 1996-2023
Published registered utility model applications of Japan 1994-2023

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

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|---|---|---|
| A | JP 2022-88914 A (MITSUI CHEMICALS, INC.) 15 June 2022 (2022-06-15)<br>entire text | 1-13 |
| A | WO 2022/009796 A1 (TEIJIN LTD.) 13 January 2022 (2022-01-13)<br>entire text | 1-13 |
| A | WO 2010/074118 A1 (MITSUI CHEMICALS, INC.) 01 July 2010 (2010-07-01)<br>entire text | 1-13 |
| A | JP 2005-48343 A (MITSUBISHI RAYON CO., LTD.) 24 February 2005 (2005-02-24)<br>entire text | 1-13 |
| A | JP 2016-6245 A (UNITIKA LTD.) 14 January 2016 (2016-01-14)<br>entire text | 1-13 |

☑ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☑ See patent family annex.

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

| Date of the actual completion of the international search | Date of mailing of the international search report |
|---|---|
| **29 November 2023** | **12 December 2023** |
| Name and mailing address of the ISA/JP<br>**Japan Patent Office (ISA/JP)**<br>**3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915**<br>**Japan** | Authorized officer<br><br>Telephone No. |

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.
**PCT/JP2023/034807**

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|---|---|---|
| P, X | WO 2022/244879 A1 (MITSUI CHEMICALS, INC.) 24 November 2022 (2022-11-24)<br>example 11 | 1-13 |

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**
**Information on patent family members**

International application No.
**PCT/JP2023/034807**

| Patent document cited in search report | Publication date (day/month/year) | Patent family member(s) | Publication date (day/month/year) |
|---|---|---|---|
| JP 2022-88914 A | 15 June 2022 | (Family: none) | |
| WO 2022/009796 A1 | 13 January 2022 | EP 4180568 A1<br>entire text<br>CN 115777032 A | |
| WO 2010/074118 A1 | 01 July 2010 | US 2011/0257325 A1<br>entire text<br>EP 2372018 A1<br>CN 102257209 A<br>KR 10-2011-0104977 A<br>TW 201035411 A | |
| JP 2005-48343 A | 24 February 2005 | US 2006/0258810 A1<br>entire text<br>WO 2005/012604 A2<br>EP 1652997 A2<br>EP 2458084 A1<br>KR 10-2006-0054369 A | |
| JP 2016-6245 A | 14 January 2016 | (Family: none) | |
| WO 2022/244879 A1 | 24 November 2022 | (Family: none) | |

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2023/034807

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

D06M 15/227(2006.01)i; B29B 11/16(2006.01)i; C08C 19/28(2006.01)i; C08F 210/02(2006.01)i; C08K 9/08(2006.01)i; C08L 9/00(2006.01)i; C08L 23/08(2006.01)i; C08L 23/26(2006.01)i; C08L 33/04(2006.01)i; C08L 75/04(2006.01)i; C08L 101/00(2006.01)i; D06M 15/263(2006.01)i; D06M 15/564(2006.01)i; D06M 15/693(2006.01)i; D06M 101/40(2006.01)n
FI: D06M15/227; B29B11/16; C08C19/28; C08F210/02; C08K9/08; C08L9/00; C08L23/08; C08L23/26; C08L33/04; C08L75/04; C08L101/00; D06M15/263; D06M15/564; D06M15/693; D06M101:40

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））

D06M15/227; B29B11/16; C08C19/28; C08F210/02; C08K9/08; C08L9/00; C08L23/08; C08L23/26; C08L33/04; C08L75/04; C08L101/00; D06M15/263; D06M15/564; D06M15/693; D06M101/40

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 | １９７１－２０２３年 |
| 日本国実用新案登録公報 | １９９６－２０２３年 |
| 日本国登録実用新案公報 | １９９４－２０２３年 |

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

C. 関連すると認められる文献

| 引用文献のカテゴリー* | 引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する請求項の番号 |
|---|---|---|
| A | JP 2022-88914 A (三井化学株式会社) 15.06.2022 (2022-06-15)<br>全文 | 1-13 |
| A | WO 2022/009796 A1 (帝人株式会社) 13.01.2022 (2022-01-13)<br>全文 | 1-13 |
| A | WO 2010/074118 A1 (三井化学株式会社) 01.07.2010 (2010-07-01)<br>全文 | 1-13 |
| A | JP 2005-48343 A (三菱レイヨン株式会社) 24.02.2005 (2005-02-24)<br>全文 | 1-13 |
| A | JP 2016-6245 A (ユニチカ株式会社) 14.01.2016 (2016-01-14)<br>全文 | 1-13 |

☑ 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抵触するものではなく、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 |
|---|---|
| 29.11.2023 | 12.12.2023 |

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）
川口　裕美子 4S 9829

電話番号 03-3581-1101 内線 3474

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2023/034807

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 |
|---|---|---|
| P, X | WO 2022/244879 A1 (三井化学株式会社) 24.11.2022 (2022-11-24)<br>実施例11 | 1-13 |

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2023/034807

| 引用文献 | 公表日 | パテントファミリー文献 | 公表日 |
|---|---|---|---|
| JP 2022-88914 A | 15.06.2022 | （ファミリーなし） | |
| WO 2022/009796 A1 | 13.01.2022 | EP 4180568 A1<br>全文<br>CN 115777032 A | |
| WO 2010/074118 A1 | 01.07.2010 | US 2011/0257325 A1<br>全文<br>EP 2372018 A1<br>CN 102257209 A<br>KR 10-2011-0104977 A<br>TW 201035411 A | |
| JP 2005-48343 A | 24.02.2005 | US 2006/0258810 A1<br>全文<br>WO 2005/012604 A2<br>EP 1652997 A2<br>EP 2458084 A1<br>KR 10-2006-0054369 A | |
| JP 2016-6245 A | 14.01.2016 | （ファミリーなし） | |
| WO 2022/244879 A1 | 24.11.2022 | （ファミリーなし） | |