

(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4月2日(02.04.2020)



(10) 国際公開番号

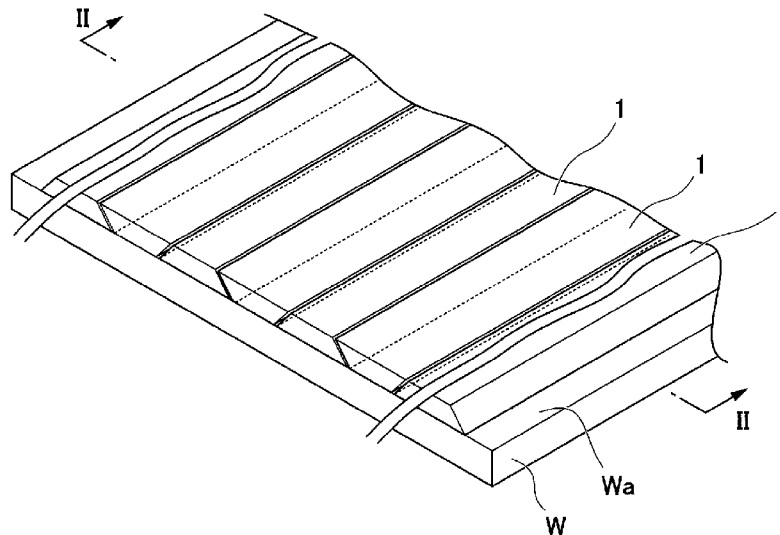
**WO 2020/067478 A1**

- (51) 国際特許分類:  
*C08J 5/24* (2006.01)      *C08J 5/04* (2006.01)  
*B29B 11/16* (2006.01)      *B29K 105/10* (2006.01)  
*B29C 70/20* (2006.01)
- (21) 国際出願番号:                      PCT/JP2019/038269
- (22) 国際出願日:                      2019年9月27日(27.09.2019)
- (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 2018-182019    2018年9月27日(27.09.2018) JP
- (71) 出願人: 三菱ケミカル株式会社(MITSUBISHI CHEMICAL CORPORATION)
- [JP/JP]; 〒1008251 東京都千代田区丸の内一丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 野原 敦(NOHARA Atsushi); 〒1008251 東京都千代田区丸の内一丁目1番1号 三菱ケミカル株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 田 ▲ 崎 ▼ 聡, 外 (TAZAKI Akira et al.); 〒1006620 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 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, 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,

(54) Title: TAPE PREPREG, TAPE PREPREG DISPOSITION METHOD, FIBER-REINFORCEMENT COMPOSITE MATERIAL, FIBER-REINFORCEMENT COMPOSITE MATERIAL MANUFACTURING METHOD

(54) 発明の名称: テーププリプレグ、テーププリプレグの配置方法、繊維強化複合材料及び繊維強化複合材料の製造方法

[図1]



(57) Abstract: Provided is a tape prepreg formed by impregnating, with resin, a reinforcement fiber bundle in which reinforcement fibers are aligned in one direction, wherein: a cross-section perpendicular to the alignment direction of the reinforcement fiber bundle includes a region where the thickness continuously increases from one end and the other end



WO 2020/067478 A1

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))

---

in the width direction towards the center in the width direction; and any one boundary line in the thickness direction of such perpendicular cross-section and a boundary line in the width direction thereof are configured so that all of the angles formed by such boundary lines are acute angles.

(57) 要約 : 強化繊維を一方方向に引き揃えた強化繊維束に樹脂が含浸したテーププリプレグであって、前記強化繊維束の配向方向の垂直断面が、幅方向の一方の端部及び他方の端部から幅方向の中心にむかって連続的に厚みが増加する部位を有し、前記垂直断面の厚さ方向におけるいずれか一方の境界線と幅方向における境界線のなす角がいずれも鋭角である、テーププリプレグ。

## 明 細 書

発明の名称：

テーププリプレグ、テーププリプレグの配置方法、繊維強化複合材料及び  
繊維強化複合材料の製造方法

### 技術分野

[0001] 本発明は、テーププリプレグ、テーププリプレグの配置方法、繊維強化複合材料及び繊維強化複合材料の製造方法に関する。

### 背景技術

[0002] 強化繊維とマトリックス樹脂とからなる繊維強化複合材料は、軽量で優れた機械特性を有するため、航空宇宙用途、自動車用途、スポーツ用途、その他各種産業用途等に広く用いられている。繊維強化複合材料は、主に中間材料である繊維強化複合材料用プリプレグを加熱成型することによって得られる。

[0003] プリプレグは、強化繊維に熱硬化性樹脂又は熱可塑性樹脂を含浸させたものである。プリプレグ用の樹脂としては、繊維強化複合材料の耐熱性、強度の点から、主として熱硬化性樹脂が用いられ、中でも耐熱性、弾性率、低硬化収縮性、耐薬品性等に優れた繊維強化複合材料が得られる点から、エポキシ樹脂が最もよく用いられる。

[0004] 特に航空宇宙用途においては、大型で三次元形状を有する強度部材を効率よく成形するために、特許文献1に開示されたテーププリプレグと呼ばれるプリプレグが多く用いられる。これは、プリプレグの巻物を長手方向に裁断してアスペクト比を大きくしたプリプレグである。テーププリプレグは、通常1/4インチ(6.4mm)から6インチ(152mm)の幅に裁断されて、オートレイアップ装置と呼ばれる積層装置にセットされる。積層装置では、所望の形状を有する型表面に、複数のテーププリプレグが幅方向に隣接するように敷き詰められて、所望の繊維方向で、所望の厚みとなるように積層されて圧着された積層体を製作する。その後、積層体はオートクレーブや

オープン等を用いて加熱硬化され、目的の繊維強化複合材料が得られる。

[0005] この一連の作業において、テーププリプレグを型表面上に並べる際、テーププリプレグの幅精度に起因するギャップ（隙間）が発生し、その箇所は加熱硬化後も繊維や樹脂が不足した状態で残ってしまう。特許文献2には、断面が実質的に長方形であり、幅のバラつきが少ないテーププリプレグが提案されている。しかし、断面が長方形であっても幅のバラつきを完全にゼロとすることは現実的に難しく、完全に隙間無く敷き詰めることは実際には困難である。そのため、強化繊維や樹脂の欠落の無い良好な外観や、計算上の強度を発現することは難しいという課題があった。また、繊維の欠落が生じやすいという課題があった。

### 先行技術文献

### 特許文献

[0006] 特許文献1：特開2004-43653号公報  
特許文献2：特表2013-538264号公報

### 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

[0007] 幅精度のバラつきを有するテーププリプレグを隙間なく敷き詰めるため、敢えて端部を幅精度のバラつきを加味した分だけオーバーラップさせる方法が考えられる。

しかしながら、上述した方法ではオーバーラップさせた箇所だけ厚みが厚くなり、積層体を均一な厚みに仕上げるのが困難になるという問題点がある。

[0008] 本発明は、繊維の欠落が低減され、機械特性に優れ、厚みの寸法精度にも優れる繊維強化複合材料を与えることのできるテーププリプレグ、及び前記テーププリプレグを用いた繊維強化複合材料とその製造方法を提供する。

### 課題を解決するための手段

[0009] 本発明の発明者らは、前記課題を解決すべく、鋭意検討した結果、テープ

プリプレグの幅方向の断面の端部を中央部分より薄くして、薄い端部同士をオーバーラップさせてプレースメントして、成形することにより、十分な外観や強度を有する繊維強化複合材料を得ることができることを見出し、本発明を完成させるに至った。すなわち本発明の要旨は以下の通りである。

[0010] [1] 強化繊維を一方向に引き揃えた強化繊維束に樹脂が含浸したテーププリプレグであって、

前記強化繊維束の配向方向の垂直断面が、幅方向の一方の端部及び他方の端部から幅方向の中心にむかって連続的に厚みが増加する部位を有し、前記垂直断面の厚さ方向におけるいずれか一方の境界線と幅方向における境界線のなす角がいずれも鋭角である、テーププリプレグ。

[2] 前記垂直断面の厚さ方向における境界線である上辺と下辺の少なくとも一部が互いに平行な直線部分を有し、前記鋭角が $40^{\circ} \sim 85^{\circ}$ である、[1]に記載のテーププリプレグ。

[3] 前記樹脂の粘度が $30000 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以上である、[1]又は[2]に記載のテーププリプレグ。

[4] 前記垂直断面が台形形状又はドーム形状である、[1]に記載のテーププリプレグ。

[5] 前記強化繊維束が炭素繊維束である、[1]又は[2]に記載のテーププリプレグ。

[6] 前記樹脂がエポキシ樹脂を含む、[1]～[3]のいずれか1つに記載のテーププリプレグ。

[7] [1]～[4]のいずれか1つに記載のテーププリプレグが加熱されて硬化した、繊維強化複合材料。

[8] [1]～[4]のいずれか1つに記載のテーププリプレグの複数、前記強化繊維束の配向方向を揃えて互いに隣接するように配置し、加熱及び加圧することを含む、繊維強化複合材料の製造方法であって、

前記配置の際、第一のテーププリプレグの幅方向の端部と、第二のテーププリプレグの幅方向の端部とが、厚み方向に見て互いに重なるように配置す

る、繊維強化複合材料の製造方法。

[ 9 ] 強化繊維を一方向に引き揃えた強化繊維束に樹脂が含浸したテーププリプレグであって、前記強化繊維束の配向方向の垂直断面が、幅方向の一方の端部及び他方の端部から幅方向の中心にむかって連続的に厚みが増加する部位を有し、前記テーププリプレグが離型シートを含む、テーププリプレグ。

[ 1 0 ] 前記垂直断面の上辺と下辺の長さが異なっており、短い方の辺側のテーププリプレグ表面に前記離型シートが配置されている、[ 9 ] に記載のテーププリプレグ。

[ 1 1 ] 強化繊維を一方向に引き揃えた強化繊維束に樹脂が含浸したテーププリプレグの配置方法であって、

前記テーププリプレグの前記強化繊維束の配向方向における垂直断面が、幅方向の一方の端部及び他方の端部から幅方向の中心にむかって連続的に厚みが増加する部位を有し、前記テーププリプレグを加熱して型に配置する、テーププリプレグの配置方法。

[ 1 2 ] 前記テーププリプレグの複数、前記強化繊維束の配向方向を揃えて互いに隣接するように配置し、前記配置の際、第一のテーププリプレグの少なくとも一部と、第二のテーププリプレグの少なくとも一部とが、重なるように配置する、[ 1 1 ] に記載のテーププリプレグの配置方法。

[ 1 3 ] 前記第一のテーププリプレグの前記連続的に厚みが増加する部位の少なくとも一部と、第二のテーププリプレグの前記連続的に厚みが増加する部位の少なくとも一部とが、重なるように配置する、[ 1 2 ] に記載のテーププリプレグの配置方法。

[ 1 4 ] 強化繊維を一方向に引き揃えた強化繊維束に樹脂が含浸したテーププリプレグを用いる繊維強化複合材料の製造方法であって、

前記テーププリプレグの前記強化繊維束の配向方向における垂直断面が、幅方向の一方の端部及び他方の端部から幅方向の中心にむかって連続的に厚みが増加する部位を有し、前記テーププリプレグを加熱して型に配置する、

繊維強化複合材料の製造方法。

## 発明の効果

[0011] 本発明によれば、繊維や樹脂の欠落が低減され、機械特性に優れ、厚みの寸法精度にも優れる繊維強化複合材料を与えることのできるテーププリプレグ、及び前記テーププリプレグを用いた繊維強化複合材料とその製造方法を提供できる。

## 図面の簡単な説明

[0012] [図1]図1は、平板状の金型Wの上面Waに、複数のテーププリプレグ1を、長手方向を揃えて、互いに隣接するように配置した斜視図である。

[図2]図2は、図1のI-I線でテーププリプレグ1の厚み方向に切断した断面図である。

[図3]図3は、図1の金型Wの上面Waに配置された複数のテーププリプレグ1の上面図である。

[図4]図4は、平板状の金型Wの上面Waに、複数のテーププリプレグ2を、長手方向を揃えて、互いに隣接するように配置した斜視図である。

[図5]図5は、図4のV-V線でテーププリプレグ2の厚み方向に切断した断面図である。

[図6]図6は、図4の金型Wの上面Waに配置された複数のテーププリプレグ2の上面図である。

[図7]図7は、断面が台形状の溝部4を備えた溝ロール5の断面図である。

[図8]図8は、第一実施形態のテーププリプレグ1の変形例の垂直断面図である。

[図9]図9は、第一実施形態のテーププリプレグ1の別の変形例の垂直断面図である。

[図10]図10は、第二実施形態のテーププリプレグ2の変形例の垂直断面図である。

[図11]図11は、第二実施形態のテーププリプレグ2の別の変形例の垂直断面図である。

[図12]図12は、本発明のテーププリプレグの上辺又は下辺と斜辺とがなす角の大きさの測定方法を説明する模式図である。

### 発明を実施するための形態

#### [0013] [用語の定義]

以下の用語の定義は、本明細書及び特許請求の範囲にわたって適用される。

「長方形」とは、四つの内角が全て等しく直角である四角形をいう。

「マトリックス樹脂」とは、繊維強化複合材料において、強化繊維の周囲に存在し形状を保持するための樹脂成分をいう。熱硬化性、熱可塑性、又はそれらの混合物がある。

「繊維強化複合材料用プリプレグ」とは、強化繊維を複数本引き揃え、マトリックス樹脂を含浸させてシート状に整えた材料をいう。

「テーププリプレグ」とは、テープ状の繊維強化複合材料用プリプレグをいう。

「スリットテーププリプレグ」とは、繊維強化複合材料用プリプレグを繊維の長手方向に沿って裁断し、元の繊維強化複合材料用プリプレグより細い幅となるよう加工した材料をいう。

「繊維強化複合材料」とは、複数のテーププリプレグを幅方向に隣接して配置してなるシート、又は前記シートの複数枚を積層した積層シートを、加熱硬化して得た材料をいう。

#### [0014] [テーププリプレグ]

本発明のテーププリプレグは、強化繊維を一方向に引き揃えた強化繊維束に樹脂が含浸したテープである。前記強化繊維束の配向方向の垂直断面は、幅方向の一方の端部及び他方の端部から幅方向の中心にむかって連続的に厚みが増加する部位を有し、前記垂直断面の厚さ方向におけるいずれか一方の境界線と幅方向における境界線のなす角がいずれも鋭角であることが好ましい。

テーププリプレグを型に配置した際に型との間に空間が形成されず平滑な

表面を有する成形体を得られることから、前記垂直断面の厚さ方向における境界線である上辺（テーププリプレグの一方の面を構成する辺）と下辺（テーププリプレグの他方の面を構成する辺）の少なくとも一部が、互いに平行な直線部分を有していることが好ましい。

前記直線部分は前記中心を含むことが好ましい。

- [0015] テーププリプレグの端部を重ね合わせて配置する場合に、重ね合わせた部分の隆起が少なくなるため、前記上辺及び前記下辺のうちいずれか一方の辺と幅方向における境界線である斜辺とがなす角（前記鋭角）が、いずれも  $40 \sim 85^\circ$  であることが好ましく、いずれも  $45 \sim 80^\circ$  であることがより好ましい。

前記上辺及び前記下辺のうちいずれか一方の辺と境界線である斜辺とがなす角は、作製したテーププリプレグを巻出し、2 cmの長さにカットして凍結させてスライスしたスライス面を上面にした状態で下面部分を粘土に埋め込み、100倍の倍率で端部を観察する。同機器の角度計測モードを利用し、断面の各辺に凹凸がある場合には、図12に示すように、最端部と、前記最端部から  $1500 \mu\text{m}$  の範囲内に存在する厚さ方向における境界線及び幅方向における境界線の凹凸のうち最もプリプレグ中心と反対方向に突出した凸部の頂点と、をそれぞれ結ぶ直線がなす角度を計測する。すなわち、最端部とプリプレグ厚さ方向における境界線の凹凸のうち最もプリプレグ中心と反対方向に突出した凸部の頂点とを結ぶ直線T2と、最端部とプリプレグ幅方向における境界線の凹凸のうち最もプリプレグ中心と反対方向に突出した凸部の頂点とを結ぶ直線T1とがなす角 $\alpha$ の大きさを計測する。

- [0016] また、テーププリプレグが離型シートを含んでいてもよい。前記強化繊維束の配向方向の垂直断面の上辺と下辺の長さが異なっている場合、短い方の辺側のテーププリプレグ表面に前記離型シートを配置すると、接着面積が大きい面を型に接着できることから成形体に空隙ができにくい。一方、長い方の辺側のテーププリプレグ表面に前記離型シートを配置すると、テーププリプレグ側面部を露出させることができるため、プリプレグ同士を重ねて貼り

合わせる際に隙間なく並べることができる。短い方の辺側のテーププリプレグ表面に前記離型シートを配置したものと、長い方の辺側のテーププリプレグ表面に前記離型シートを配置したものの両方を交互にプレースメントするよう装置に装着することが好ましい。これにより、隣り合うテーププリプレグ同士を隙間無く並ばせることができ、隣り合うテーププリプレグ間の隙間ができてしまうことを抑制したり、またオーバーラップした場合にも空隙の発生や高さ方向の盛り上がりを抑制したりすることができる。離型シートは、配置する際の工程数を減らす観点から、片面のみに配置することが好ましい。

テーププリプレグは、形状を調整しやすいことからスリットテーププリプレグであることが好ましい。

[0017] 以下、本発明のテーププリプレグの実施形態を、適宜、図面を参照しながら説明する。

[0018] <第一実施形態>

図1は、平板状の金型Wの上面Waに、複数のテーププリプレグ1を、長手方向を揃えて、互いに隣接するように配置した斜視図である。

図2は、図1の| | - | |線でテーププリプレグ1の厚み方向に切断した断面図である。

図3は、図1の金型Wの上面Waに配置された複数のテーププリプレグ1の上面図である。

[0019] 図1に示すように、テーププリプレグ1の強化繊維束を構成する強化繊維の配向方向は、テーププリプレグ1の長手方向に沿うように一方向に揃えられている。

図2に示すように、この配向方向に対して直交する、テーププリプレグ1の垂直断面の形状は台形である。ここでは説明の便宜のために、前記垂直断面の厚さ方向における境界線を台形の底辺とした場合に、台形の最も長い底辺を下辺1a（下底）といい、下辺1aに対向する台形の底辺を上辺1b（上底）という。下辺1aと上辺1bは互いに平行な直線部分を有する。下辺

1 a と上辺 1 b を結ぶ幅方向における境界線である 2 本の斜辺（台形の脚）は、金型 W の上面 W a に対して傾斜している。

[0020] 図 2 のテーププリプレグ 1 の幅方向に見て、下辺 1 a の一方の端部から他方の端部までの中点が、幅方向の中心である。下辺 1 a の前記中点から上辺 1 b へ向かう垂線と、上辺 1 b との交点が存在する。つまり、上辺 1 b と下辺 1 a は互いに平行な直線部分を有し、この直線部分のうち、下辺 1 a の直線部分が前記中心を有し、上辺 1 b の直線部分が前記中心から下ろした垂線に交わる直線部分を有する。

[0021] 図 2 において、第一のテーププリプレグ 1 の垂直断面が表す台形の下辺 1 a は、金型 W の上面 W a の反対側に位置し、上方へ露出している。一方、これに隣接する第二のテーププリプレグ 1 の垂直断面が表す台形の下辺 1 a は、金型 W の上面 W a に接している。このように、各テーププリプレグ 1 の表側（下辺 1 a 側の面）と裏側（上辺 1 b 側の面）が互い違いで隣接することにより、第一のテーププリプレグ 1 の下辺 1 a の端部が、第二のテーププリプレグ 1 の下辺 1 a の端部に対して、厚み方向に見て重なる。

[0022] つまり、図 3 に示すように、上方から透視すると、各テーププリプレグ 1 の垂直断面が表す台形の下辺 1 a の端部が、これに隣接するテーププリプレグ 1 の垂直断面が表す台形の下辺 1 a の端部と重なる。このような重なり配置であると、各テーププリプレグ 1 の幅が、長手方向に沿って少し変化したとしても、その変化が隣接するテーププリプレグ 1 との重なり範囲内であれば、上方から見て、テーププリプレグ 1 が存在しない箇所（隣接するテーププリプレグ 1 同士の間隙）が発生し難い。

[0023] 図 3 に示すように上方から見て、隣接するテーププリプレグ 1 同士の重なりの幅 S 1 は、0.01~2 mm が好ましく、0.05~1.5 mm がより好ましく、0.1~1 mm がさらに好ましい。

前記幅 S 1 がこの範囲内であると、隣接するテーププリプレグ 1 の端部同士が組み合わさって適度に重なり合い、各テーププリプレグ 1 同士を隙間なく隣接するように配置することが容易である。

[0024] テーププリプレグ1の垂直断面の形状が台形である場合、(台形の下辺1 aの長さ/台形の上辺1 bの長さ)で表わされる長さ比Rは、1.003~2.67が好ましく、1.02~1.88がより好ましく、1.03~1.45がさらに好ましい。

前記長さ比Rがこの範囲内であると、隣接するテーププリプレグ1の端部同士が組み合わさって適度に重なり合い、各テーププリプレグ1同士を隙間なく隣接するように配置することが容易である。

[0025] テーププリプレグ1の垂直断面の形状が台形である場合、前記台形の下辺1 aの長さは、1~26 mmが好ましく、3~20 mmがより好ましく、6~13 mmがさらに好ましい。

また、前記台形の上辺1 bの長さは、2~12.98 mmが好ましく、3~12.9 mmがより好ましく、4~12.8 mmがさらに好ましい。

また、前記台形の厚み(下辺1 aと上辺1 bの距離)は、10~1000  $\mu$ mが好ましく、100~750  $\mu$ mがより好ましく、200~500  $\mu$ mがさらに好ましい。

前記台形の下辺1 aの長さ、台形の上辺1 bの長さ及び台形の厚みがいずれもこの範囲内であると、隣接するテーププリプレグ1の端部同士が組み合わさって適度に重なり合い、各テーププリプレグ1同士を隙間なく隣接するように配置することが容易である。

[0026] テーププリプレグ1の垂直断面の形状が台形である場合、台形の下辺1 aの midpoint と上辺1 bの midpoint は、厚み方向に見て重なることが好ましい。また、台形の下辺1 aの midpoint と上辺1 bの midpoint を結んだ線で折り返した際に、台形の左右が重なるように線対称の断面形状であることが好ましい。

また、金型Wの上面W aに配置された各テーププリプレグ1の垂直断面の形状は、互いに略同一であることが好ましい。

[0027] 以上で説明した第一実施形態のテーププリプレグ1の垂直断面の形状は、等脚台形であるが、この台形を基本として変形した形態であってもよい。例えば、テーププリプレグ1の垂直断面は、図8に示すような、台形の上辺(

上底)と脚とがなす鈍角の頂点が丸められたドーム形状、又は図9に示すような、台形の下辺(下底)と脚とがなす鋭角の頂点部分が切り落とされた六角形状であってもよい。いずれの変形形態であっても、テーププリプレグ1の垂直断面が、幅方向の一方の端部及び他方の端部から幅方向の中心にむかって連続的に厚みが増加する部位を有し、前記垂直断面の上辺と下辺の少なくとも一部が互いに平行な直線部分を有する。

[0028] <第二実施形態>

図4は、平板状の金型Wの上面Waに、複数のテーププリプレグ2を、長手方向を揃えて、互いに隣接するように配置した斜視図である。

図5は、図4のV-V線でテーププリプレグ2の厚み方向に切断した断面図である。

図6は、図4の金型Wの上面Waに配置された複数のテーププリプレグ2の上面図である。

[0029] テーププリプレグ2の強化繊維束を構成する強化繊維の配向方向は、テーププリプレグ2の長手方向に沿うように一方向に揃えられている。図4に示すように、この配向方向に対して直交する、テーププリプレグ2の垂直断面の形状は平行四辺形である。平行四辺形は、その対辺の長さが等しく、対角の大きさが等しく、対角線が他の対角線の中点を通るものである。本発明において、対角が90度である長方形及び正方形は、平行四辺形に含まない。

以下、説明の便宜のために、平行四辺形の最も長い底辺を下辺2aといい、下辺2aに対向する辺を上辺2bという。下辺2aと上辺2bは互いに平行な直線部分を有する。下辺2aと上辺2bを結ぶ2本の斜辺は、金型Wの上面Waに対して傾斜している。

[0030] 図4のテーププリプレグ2の幅方向に見て、下辺2aの一方の端部から他方の端部までの中点、幅方向の中心である。下辺2aの前記中点から上辺2bへ向かう垂線と、上辺2bとの交点が存在する。つまり、上辺2bと下辺2aは互いに平行な直線部分を有し、この直線部分のうち、下辺2aの直線部分が前記中心を有し、上辺2bの直線部分が前記中心から下ろした垂線

に交わる直線部分を有する。

[0031] 図5の断面図において、第一のテーププリプレグ2の下辺2aは、金型Wの上面Waに接しており、上辺2bは、金型Wの上面Waの反対側に位置し、上方へ露出している。これに隣接する第二のテーププリプレグ2の下辺2a及び上辺2bも、第一のテーププリプレグ1と同様である。第一のテーププリプレグ2の下辺2aの端部が、第二のテーププリプレグ2の上辺2bの端部に対して、厚み方向に見て重なる。

[0032] つまり、図6に示すように、上方から透視すると、各テーププリプレグ2の下辺2aの端部が、これに隣接するテーププリプレグ2の上辺2bの端部と重なる。このような重なり配置であると、各テーププリプレグ2の幅が、長手方向に沿って少し変化したとしても、隣接するテーププリプレグ2との重なり範囲内であれば、上方から見て、テーププリプレグ2が存在しない箇所（隣接するテーププリプレグ2同士の間隙）が発生し難い。

[0033] 図6に示すように上方から見て、隣接するテーププリプレグ2同士の重なり幅S2は、0.01~2mmが好ましく、0.05~1.5mmがより好ましく、0.1~1mmがさらに好ましい。

前記幅S2がこの範囲内であると、隣接するテーププリプレグ2の端部同士が組み合わさって適度に重なり合い、各テーププリプレグ2同士を隙間なく隣接するように配置することが容易である。

[0034] テーププリプレグ2の垂直断面の形状が平行四辺形である場合、内角のうち鋭角の大きさは、40~85°が好ましく、50~80°がより好ましく、60~75°がさらに好ましい。

前記鋭角の大きさがこの範囲内であると、隣接するテーププリプレグ2の端部同士が組み合わさって適度に重なり合い、各テーププリプレグ2同士を隙間なく隣接するように配置することが容易である。

[0035] テーププリプレグ2の垂直断面の形状が平行四辺形である場合、前記平行四辺形の下辺2a及び上辺2bの長さは、1~26mmが好ましく、3~20mmがより好ましく、6~13mmがさらに好ましい。

また、前記平行四辺形の厚み（下辺1 aと上辺1 bの距離）は、10～1000  $\mu\text{m}$ が好ましく、100～750  $\mu\text{m}$ がより好ましく、200～500  $\mu\text{m}$ がさらに好ましい。

前記平行四辺形の下辺2 a及び上辺2 bの長さ並びに行四辺形の厚みがいずれもこの範囲内であると、隣接するテーププリプレグ2の端部同士が組み合わさって適度に重なり合い、各テーププリプレグ2同士を隙間なく隣接するように配置することが容易である。

[0036] また、金型Wの上面Waに配置された各テーププリプレグ2の垂直断面の形状は、互いに略同一であることが好ましい。

[0037] 以上で説明した第二実施形態のテーププリプレグ2の垂直断面の形状は、平行四辺形であるが、この平行四辺形を基本として変形した形態であってもよい。例えば、テーププリプレグ2の垂直断面は、図10に示すような、平行四辺形の上辺の両端の角が丸められたドーム形状、又は図11に示すような、平行四辺形の鋭角の頂点部分が切り落とされた六角形状であってもよい。いずれの変形形態であっても、垂直断面が、幅方向の一方の端部及び他方の端部から幅方向の中心に向かって連続的に厚みが増加する部位を有し、前記垂直断面の上辺と下辺の少なくとも一部が互いに平行な直線部分を有する。

[0038] 以上で説明したテーププリプレグは、強化繊維を一方向に引き揃えた強化繊維束に樹脂（マトリックス樹脂）が含浸したものである。

次に、本発明のテーププリプレグの材料の例を説明する。

[0039] （強化繊維）

強化繊維としては、例えば、炭素繊維、アラミド繊維、ナイロン繊維、高強度ポリエステル繊維、ガラス繊維、ポロン繊維、アルミナ繊維及び窒化珪素繊維等が挙げられる。これらの中でも、難燃性に優れる点から、炭素繊維、アラミド繊維、ガラス繊維、ポロン繊維、アルミナ繊維、窒化珪素繊維が好ましく、比強度及び比弾性に優れる点から、炭素繊維が特に好ましい。繊維の径及び長さは従来と同様でよい。

[0040] (マトリックス樹脂)

マトリックス樹脂としては、熱可塑性樹脂又は熱硬化性樹脂が好ましい。熱硬化性樹脂としては、例えば、エポキシ樹脂、ビニルエステル樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ポリイミド等が挙げられる。材料の価格、粘度調整のしやすさ、硬化物の機械特性のバランス等に優れるエポキシ樹脂が好ましい。マトリックス樹脂に含まれる樹脂の種類は1種類単独でもよく、2種類以上でもよい。樹脂の粘度は、テープの幅方向の中心にむかって連続的に厚みが増加する部位を有する形状保持の観点から、 $20000\text{ Pa}\cdot\text{s}$ 以上が好ましく、 $30000\text{ Pa}\cdot\text{s}$ 以上がより好ましい。取扱い性の観点から、 $100000\text{ Pa}\cdot\text{s}$ 以下が好ましく、 $50000\text{ Pa}\cdot\text{s}$ 以下がより好ましい。

[0041] (エポキシ樹脂)

エポキシ樹脂としては、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が挙げられる。テトラグリシジルジアミノジフェニルメタンは航空機構造材向けの繊維強化複合材料用樹脂として耐熱性に優れるため好ましい。

フェノール類を前駆体とするエポキシ樹脂としては、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、レゾルシノール型エポキシ樹脂が挙げられる。液状のビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂は低粘度であるために、一般的に高粘度、固形エポキシ樹脂や添加剤と組み合わせ粘度を調整される。粘度が低すぎるとプリプレグのタックが過剰になるとともに、スリットプリプレグのポピン解舒性が悪くなることや、積層時にテープ同士が粘着する等の傾向にある。逆に、固形エポキシ樹脂を使用するとプリプレ

グのタックを低くすることができるのでプリプレグ同士の粘着を防止する効果があるが、粘度が高すぎるとタックやドレープ性が損なわれる、バックイングフィルムとの密着性が悪くなるという傾向にある。

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挙げられる。

これらのエポキシ樹脂は、1種を単独で用いてもよいし、2種以上を適宜配合して用いてもよい。グリシジルアミン型エポキシ樹脂とグリシジルエーテル型エポキシ樹脂の組み合わせは、耐熱性、靱性を併せ持つため特に好ましい。

[0042] エポキシ樹脂の市販品としては、三菱ケミカル社製 JER（登録商標）828、827、807、604、630、1001、1002、1004、4004、4007、1032H60、DIC社製 EPICLON（登録商標）830、850、N673、N675、N770、N775、HP4032、HP4700、HP4770、EXA-1514、HUNTSMAN ADVANCED MATERIALS社製の TACTIX（登録商標）742、556等が挙げられるが、これらに限定されない。

[0043] （熱可塑性樹脂）

マトリックス樹脂には、必要に応じて熱可塑性樹脂を配合してもよい。マトリックス樹脂の主剤としてエポキシ樹脂を用いる場合、熱可塑性樹脂を混合すると、エポキシ樹脂組成物の硬化物に高い靱性を付与する他、エポキシ樹脂組成物のべたつきを抑えて、プリプレグのタックを適正レベルに調整したり、高温時、硬化直前の樹脂フローを抑制したりする効果を有する。

熱可塑性樹脂としては、例えば、ポリエーテルスルホン、ポリビニルホルマール、フェノキシ樹脂、ポリアミド、アクリル系のブロック共重合物等が挙げられる。

これらの熱可塑性樹脂は、1種を単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0044] 熱可塑性樹脂を層間補強粒子として使用する場合には、前記テーププリプレ

レグの表面に熱可塑性樹脂粒子層を設けることが好ましい。離型シートを有する態様の場合には、離型シートとプリプレグとの接着性の観点から、離型シートを有さないプリプレグ表面に熱可塑性樹脂粒子層を設けることが好ましい。スリットテーププリプレグの態様の場合には、熱可塑性樹脂粒子層を設けた後スリットしてもよいし、熱可塑性樹脂粒子層をスリット後に積層してもよい。熱可塑性樹脂粒子層をスリット後に積層する、熱可塑性樹脂粒子層が露出するようにスリットする等の方法により、スリット断面（側面）にも熱可塑性樹脂粒子が存在させることでテープ同士の接着性を向上させることができる。熱可塑性樹脂粒子は、プリプレグのマトリックス樹脂に可溶であるものまたは不溶であるものを使用できる。また、熱可塑性樹脂粒子層と繊維層の間にしわ抑制のための樹脂層を設けてもよい。前記樹脂層の樹脂は、プリプレグのマトリックス樹脂と相溶性の高い樹脂であることが好ましく、樹脂層の樹脂およびマトリックス樹脂はいずれもエポキシ樹脂であることが好ましい。また、熱可塑性樹脂粒子はポリアミド粒子であることが好ましい。

[0045] （その他の添加剤）

マトリックス樹脂には、公知の添加剤（固形ゴム、充填材、希釈剤、溶剤、顔料、可塑剤、酸化防止剤、安定化剤等）等を必要に応じて添加することができる。例えば、顔料としてカーボンブラックやグラフェン等が挙げられる。カーボンブラックやグラフェンは、エポキシ樹脂を黒色に着色し、後述する繊維強化複合材料を成形した際の樹脂の色目を隠し、特にスポーツ製品に適用した際に高品位な外観を付与する効果を有すると共に、紫外線吸収能力や、放熱機能も併せ持つ。

[0046] （マトリックス樹脂含有率）

本発明のテーププリプレグの総質量に対する、マトリックス樹脂の含有率は、15～50質量%が好ましく、20～45質量%がより好ましい。

前記範囲の下限値以上であると、強化繊維同士を十分に結合させて、強化繊維の欠落を十分に抑制することができる。

前記範囲の上限値以下であると、強化繊維が有する機械特性を十分に発揮させることができる。

[0047] <離型シート（バックグフィルム）>

テーププリプレグ同士の粘着を防止し、ポビンからの解舒性を良好にするため、テーププリプレグにはバックグフィルム（カバーフィルム）を貼付しておくことが好ましい。前記バックグフィルムはスリットする前に貼付してもよいし、スリットしてから貼付してもよい。

バックグフィルムの材質としては、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエステル等が挙げられる。

バックグフィルムの厚みは、10～80 $\mu$ mが好ましい。バックグフィルムの幅は、テーププリプレグの幅と同じか、より幅広いと、テーププリプレグ同士の粘着を確実に防止して、ポビンからの解舒性が良好となる。

[0048] <テーププリプレグの製造方法>

本発明のテーププリプレグは、部分的には公知の製法を適用することができる。すなわち、例えば特許文献1～2に記載されているように、公知方法により強化繊維を一方向に引き揃えた強化繊維束を含むプリプレグを作製し、次いでプリプレグを裁断するスリッターに通すことにより、所望の幅のテーププリプレグを得る。

プリプレグを裁断する際には、上述した垂直断面の形状となるように、スリッターにおいてプリプレグの表面に対して斜めに刃を当てることにより、第二実施形態のような垂直断面が平行四辺形又は台形であるものが得られる。また、図7に示すような、断面が台形の溝部4を有する溝ロール5をプリプレグに押し当てながら強化繊維の繊維方向に沿って転がすことにより、第一実施形態のような垂直断面が台形であるものが得られる。或いは、スリッターを用いてスリッティングして得たテーププリプレグを、さらに所望の形状のダイスに通して、不要な部分を削ぎ落とすことにより、垂直断面が所望の形状のテーププリプレグを得ることもできる。

[0049] <テーププリプレグの配置方法>

強化繊維を一方向に引き揃えた強化繊維束に樹脂が含浸した本発明のテーププリプレグは、前記テーププリプレグの前記強化繊維束の配向方向における垂直断面が、幅方向の一方の端部及び他方の端部から幅方向の中心にむかって連続的に厚みが増加する部位を有する。

本発明のテーププリプレグの配置方法は、本発明のテーププリプレグを加熱して型に配置することが好ましい。

また、本発明のテーププリプレグの配置方法は、本発明のテーププリプレグの複数個を、前記強化繊維束の配向方向を揃えて互いに隣接するように配置し、前記配置の際、第一のテーププリプレグの少なくとも一部と、第二のテーププリプレグの少なくとも一部とが、重なるように配置することがより好ましい。

この場合において、前記第一のテーププリプレグの前記連続的に厚みが増加する部位の少なくとも一部と、第二のテーププリプレグの前記連続的に厚みが増加する部位の少なくとも一部とが、重なるように配置することがより好ましい。

#### [0050] <自動積層装置>

自動積層する装置（オートテーププレースメント装置）としては公知の装置を用いることができる。自動積層装置としては、例えば特開平4?6 2 1 4 2号公報や特開平5?2 0 0 8 9 8号公報に示されるように、供給装置から引き出されたテーププリプレグを積層ロールに巻きかけ、型に押圧しつつ型に沿って積層ロールを転動させることによって積層することができる。また、積層部を加熱可能な加熱部を有することで、テーププリプレグを加熱し粘着性を持たせて積層することができる。離型シートを使用する場合には、離型シートを配置したテーププリプレグを輩出する巻出し部、プリプレグテープより離型シートを剥離させて巻取る巻取り部、に設けたロールを型に対して相対的に移動させつつ押圧する積層ヘッドを備える積層装置を使用することで離型シートを有する態様に適用できる。

#### [0051] [繊維強化複合材料]

本発明の繊維強化複合材料は、本発明のテーププリプレグが加熱されて硬化したものである。複数のテーププリプレグが組み合わさって硬化したものでよいし、単一のテーププリプレグを硬化したものでよい。

[0052] 繊維強化複合材料を構成する複数のテーププリプレグは、互いの幅方向に隣接するように配置されていることが好ましい。幅方向に配置するテーププリプレグの本数は、繊維強化複合材料の形状によって適宜決定され、例えば、10本～100本程度が挙げられる。本発明のテーププリプレグを複数用いることにより、テーププリプレグ同士の間隙を生じることなく敷き詰めることができる。

[0053] 繊維強化複合材料を構成する複数のテーププリプレグは、互いの幅方向に隣接するように配置されるだけでなく、さらに厚み方向に積層されていてもよい。積層数としては、例えば、2～20層程度が挙げられる。

[0054] [繊維強化複合材料の製造方法]

本発明の繊維強化複合材料の製造方法は、本発明のテーププリプレグの複数本を、前記強化繊維束の配向方向を揃えて互いに隣接するように配置し、加熱及び加圧することを含む、繊維強化複合材料の製造方法である。前記配置の際、第一のテーププリプレグの幅方向の端部と、第二のテーププリプレグの幅方向の端部とが、厚み方向に見て互いに重なるように配置する。

[0055] 上述の第一実施形態のテーププリプレグ1を用いる場合、図1～3に例示するように配置することが好ましい。隣接するテーププリプレグ1の幅方向の端部同士の重なり幅（図3のS1）は、0.01～2mmが好ましく、0.05～1.5mmがより好ましく、0.1～1mmがさらに好ましい。

前記幅が0.01mm以上であると、テーププリプレグ1の幅方向の寸法精度が少し低くとも、重なり幅の範囲内に収めることがより容易になる。また、前記幅が2mm以下であると、第一のテーププリプレグ1と第二のテーププリプレグ1の幅方向の端部を互いに重ねて配置することがより容易になる。

[0056] 上述の第二実施形態のテーププリプレグ2を用いる場合、図4～6に例示

するように配置することが好ましい。隣接するテーププリプレグ2の幅方向の端部同士の重なり幅（図6のS2）は、0.01~2mmが好ましく、0.05~1.5mmがより好ましく、0.1~1mmがさらに好ましい。

前記幅が0.01mm以上であると、テーププリプレグ2の幅方向の寸法精度が少し低くとも、重なり幅の範囲内に収めることがより容易になる。また、前記幅が2mm以下であると、第一のテーププリプレグ2と第二のテーププリプレグ2の幅方向の端部を互いに重ねて配置することがより容易になる。

[0057] 前記のように、第一のテーププリプレグと第二のテーププリプレグの幅方向の端部を互いに重ねて配置するとともに、各テーププリプレグの下面が、隣接するテーププリプレグの端部の斜面上に乗り上げないように配置することにより、形成する繊維強化複合材料の厚みを均一にすることができる。

[0058] 繊維強化複合材料を形成するためにテーププリプレグの幅方向に配置する、テーププリプレグの本数は、繊維強化複合材料の形状によって適宜決定され、例えば、10~100本程度が挙げられる。

繊維強化複合材料を形成するために、テーププリプレグの幅方向に配置するだけでなく、テーププリプレグの厚み方向に、テーププリプレグを積層してもよい。積層数としては、例えば、2~20層程度が挙げられる。

[0059] 本発明の繊維強化複合材料の製造方法は、本発明のテーププリプレグを用いて、所定の方法で配置すること以外は、公知の方法で製造することができる。例えば、平面又は曲面等の所望の表面形状を有する成型型に自動積層装置（オートレイアップ装置）を用いてテーププリプレグを敷き詰め、これを真空パックした後、加熱することにより、所望の形状で硬化した繊維強化複合材料を得る方法が挙げられる。

[0060] テーププリプレグを加熱する温度及び時間としては、含浸したマトリックス樹脂が硬化反応する温度及び時間であれば特に限定されず、例えば、100~200℃で1~3時間程度の加熱条件が挙げられる。

テーププリプレグを加熱する際には、同時に加圧することが好ましい。加

える圧力としては、テーププリプレグ同士が所望の形態で十分に密着する圧力であればよく、100kPa以下に保ちながら加熱することが好ましい。加圧する方法としては、例えば、複数のテーププリプレグを敷き詰めた状態で樹脂シート又は樹脂製袋内に密封して、内部空間を真空引きする方法が挙げられる。

[0061] (作用効果)

本発明のテーププリプレグは、強化繊維束の配向方向の垂直断面が、幅方向の端部から幅方向の中心方向にむかって連続的に厚みが増加する部位を有し、前記垂直断面の上辺と下辺が平行な直線部分を有するため、自動積層装置を用いて端部をオーバーラップさせて積層した際に重なり部分が厚くならず、均一な厚みに仕上げることができる。また、本発明のテーププリプレグから得られる繊維強化複合材料は、繊維の欠落が無いため機械特性に優れ、また寸法精度に優れる。

### 実施例

[0062] 以下、本発明を実施例により具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0063] <実施例1>

(マトリックス樹脂の調製)

テトラグリシジルジアミノジフェニルメタン(三菱ケミカル株式会社製jER604)15部、液状ビスフェノールA型エポキシ樹脂(三菱ケミカル株式会社製jER828)50部、オキサゾリドン環変性エポキシ樹脂(DIC株式会社製TSR-400)35部、ポリエーテルスルホン(住友化学株式会社製スミカエクセル5003MP)2部を樹脂調製釜に混合し、150℃×2時間攪拌し、溶解混合した。この樹脂混合物を60℃まで冷却した後、4,4'-ジアミノジフェニルスルホン(和歌山精化工業株式会社製セイカキュアS)40部を投入し、さらに混練し、エポキシ樹脂組成物を得た。これをシリコン系離型剤でコーティングされた離型紙上に均一に塗布し、72g/m<sup>2</sup>の樹脂フィルムを作製した。

[0064] (繊維強化複合材料用プリプレグの作製)

一方向に引き揃えた高強度炭素繊維（三菱ケミカル株式会社製TR50S-15K）に、作製した $72\text{ g/m}^2$ の樹脂フィルムを上下から貼り合わせ、熱と圧力により前記繊維に前記樹脂を含浸させ、繊維目付 $268\text{ g/m}^2$ 、樹脂含有率 $35\text{ wt}\%$ 、幅 $1000\text{ mm}$ の繊維強化複合材料用プリプレグの巻物を得た。

[0065] (繊維強化複合材料用テーププリプレグの作製)

得られた繊維強化複合材料用プリプレグを専用のスリットマシンにセットし、一定の張力で巻き出したまま、幅を $6.4\text{ mm}$ に設定したスコアカッターに挿入し、炭素繊維の長手方向にスリットした。その後、離型紙を剥がし、後工程に据え付けた、断面が台形状の溝部を彫刻した溝ロール（図7参照）に、テーププリプレグを連続的に押し当て、断面が台形状になるように成形した。その後、厚さ $25\text{ }\mu\text{m}$ のポリエチレンフィルムを台形断面のテーププリプレグの下面（長辺の方）に貼り合わせ、ポリエチレンフィルムが巻き取り時に下面になるように、径3インチの紙管に、らせん状に全長 $100\text{ m}$ 分巻き取った。このテーププリプレグを20本作製した。

[0066] <測定・評価>

(幅の測定)

作製したテーププリプレグを巻出し、発光部と受光部を備えた赤外線幅測定装置の間に通し、長手方向に $20\text{ cm}$ ごとに合計 $100$ 点の幅を測定し、最大幅、最小幅、平均幅を求めた。この測定結果を表1に示す。いずれのテーププリプレグも、最大幅と平均幅の差、及び最小幅と平均幅の差が $0.2\text{ mm}$ 以内なので、実用上問題ない事を確認した。

[0067] (厚みの測定)

作製したテーププリプレグを巻出し、ノギスを用いて、幅方向の中心部の厚みを10箇所測定し、その平均を中心部の厚みとした。

また、テーププリプレグの端部から $0.1\text{ mm}$ の位置の厚みをノギスを用いて10箇所測定し、その平均を端部の厚みとした。

[0068] (境界線がなす角の測定)

作製したテーププリプレグを巻出し、2 cmの長さにカットして冷凍庫内で1時間凍結させた。これを冷凍庫内でフェザー剃刀を用いて1 cmの部分で断面形状が崩れないよう注意しながらゆっくりスライスする。スライス面を上面にした状態で下面部分を粘土に埋め込み、キーエンス製VHX-5000及びZS20レンズ用い、100倍の倍率で端部を観察した。得られた画像のうちプリプレグの最端部と、前記最端部から1500 μmの範囲内に存在する厚さ方向における境界線及び幅方向における境界線の凹凸のうち最もプリプレグ中心と反対方向に突出した凸部の頂点と、をそれぞれ結ぶ直線がなす角度を計測した。

[0069] (繊維強化複合材料の作製)

テーププレースメント装置(BAコンポジット社製STAXX COMPACT1700)に、作製したテーププリプレグを16本セットし、ステンレス製平面型に6.2 mm×16本の幅でプレースメントを施した。このプレースメントを幅方向に3回、厚み方向に8層繰り返し、幅300 mm、厚み2 mmのプリプレグスタックを得た。プレースメントの幅を6.2 mmに設定したので、実施例においてはテーププリプレグの端部同士が重なった状態で隙間無くプレースメントできた。

このプリプレグスタックを厚み20 mmのアルミプレートに移し、上面に厚み1 mmのステンレス板を載せ、ナイロン製フィルムとシーラントで密封カバーした後、5 kPa以下になるまで脱気した。これをオートクレーブに移し、600 kPaの圧力環境下、180℃×2時間(昇温レート2℃/分)の温度条件にて加熱硬化を行った。

[0070] (繊維強化複合材料の評価)

得られた繊維強化複合材料からなる平板の厚みをマイクロメータで5か所測定し、その平均、及び最大と最小の厚み差を算出した。次に前記平板の表面状態を目視で観察し、強化繊維や樹脂の欠落の有無を判別した。さらには前記平板から、繊維方向が長手方向となるように127 mm×幅12.7 m

mの寸法で試験片を6本切り出し、5 k Nロードセルを設置した万能試験機を用い、ASTM D 7 9 0に従って三点曲げ試験を実施した。これらの測定結果を表1に示す。

[0071] <実施例2>

スコアカッターの位置を繊維強化複合材料用プリプレグの断面の底辺（底面）に対し斜め60°に設定してスリットした後、溝ロールを使用しなかった以外は実施例1と同様の手順にて、断面が平行四辺形に近い台形状のテーププリプレグを作製した。この幅、厚みを測定した後、テーププレースメント、オートクレーブ成形を経て、実施例1と同様に、繊維強化複合材料の評価を行った。この測定結果を表1に示す。

[0072] <比較例1>

スコアカッターの代わりにシャーカッター方式のスリットマシンを用い、間隔は6.4 mmとなるよう調整し、断面形状が実質的に長方形のテーププリプレグを作製した。前記テーププリプレグの幅、厚みを測定した結果、最大幅と平均幅の差、及び最小幅と平均幅の差が0.2 mm以内なので、実用上問題ない事を確認した。この測定結果を表1に示す。次に、以下の方法で繊維強化複合材料の作製を行った。

[0073] （繊維強化複合材料の作製）

実施例と同様に、テーププレースメント装置（BAコンポジット社製STAXX COMPACT 1700）に、作製したテーププリプレグを16本セットし、ステンレス製平面型に6.2 mm×16本の幅でプレースメントを施した。これを幅方向に3回、厚み方向に8層繰り返して、幅300 mm、厚み2 mmのプリプレグスタックを得た。プレースメントの幅を6.2 mmに設定したので、比較例においてはテーププリプレグの端部同士が重なった状態で隙間無くプレースメントできた。しかし、端部の厚みが極端に厚くなり、表面に凹凸が生じ、平滑性が担保できなかったため、このプリプレグスタックを廃棄した。

改めて、プレースメントの幅を6.4 mmに設定し、再度プレースメント

を実施して、プリプレグスタックを得た。隣接するテーププリプレグ同士の重なりは無いので、プリプレグスタックの表面に凹凸は生じなかった。しかし、隣接するテーププリプレグ同士の形状は完全な同一形状ではないので、長手方向に見て形状が互いに密着しない部分が存在し、この部分に隙間が生じていた。このため、プリプレグスタックの表面を上方から見ると、複数の箇所隙間が存在することが目視で確認された。

このプリプレグスタックを厚み20mmのアルミプレートに移し、上面に厚み1mmのステンレス板を載せ、ナイロン製フィルムとシーラントで密封カバーした後、5kPa以下になるまで脱気した。これをオートクレーブに移し、600kPaの圧力環境下、180℃×2時間（昇温レート2℃/分）の温度条件にて加熱硬化を行った。

その後、実施例1と同様に、繊維強化複合材料の評価を行った。この測定結果を表1に示す。

[0074] [表1]

		実施例1	実施例2	比較例1
テープ プリプレグ	断面形状	台形	台形	長方形
	最大幅 [mm]	6.56	6.52	6.45
	最小幅 [mm]	6.39	6.33	6.38
	平均幅 [mm]	6.44	6.45	6.41
	中心部の厚み [mm]	0.24	0.26	0.26
	端部の厚み [mm]	0.17	0.14	0.26
	境界線がなす角	56° 124°	60° 120°	90° 90°
繊維強化 複合材料	平均厚み[mm]	1.99	2	1.97
	厚み差[mm]	0.06	0.08	0.43
	表面外観	均一な表面 (繊維と樹脂の 欠落なし)	均一な表面 (繊維と樹脂の 欠落なし)	繊維と樹脂の 欠落有り
	0° 曲げ強度 [GPa]	1,830	1,880	1,720
	0° 曲げ弾性率 [GPa]	128	129	125
	0° 曲げ伸度 [%]	1.53	1.6	1.54

[0075] <参考例1>

スコアカッターの位置を繊維強化複合材料用プリプレグの断面の底辺（底面）に対し斜め60°に設定してスリットした後、溝ロールを使用しない以外は実施例1と同様の手順にて、断面が平行四辺形のテーププリプレグを製作する。この幅、厚みを測定した後、テーププレースメント、オートクレーブ成形を経て、実施例1と同様に、繊維強化複合材料の評価を行う。想定される結果を表2に示す。

[0076] [表2]

		参考例1
テープ プリプレグ	断面形状	平行四辺形
	最大幅 [mm]	6.61
	最小幅 [mm]	6.27
	平均幅 [mm]	6.33
	中心部の厚み [mm]	0.25
	端部の厚み [mm]	0.16
	境界線がなす角	60° 120°
繊維強化 複合材料	平均厚み[mm]	2.05
	厚み差[mm]	0.51
	断面外観	空隙が 稀に見られる

[0077] 以上の結果から明らかなように、テーププリプレグの強化繊維束の配向方向の垂直断面が幅方向の端部から幅方向の中心方向にむかって連続的に厚みが増加する部位を有し、前記垂直断面の上辺と下辺が平行な直線部分を有し、前記直線部分が前記中心位置を含む実施例は、繊維強化複合材料の厚み精度、外観、機械強度に優れていた。

一方、前記垂直断面の形状が実質的に長方形である比較例1は、繊維強化複合材料の表面に繊維と樹脂の欠けた部分が見られ、その部分は窪みとなっていた。さらには機械強度も劣る結果となった。参考例1の平行四辺形の場合は、側面が型方向に露出している側（型とプリプレグとの接着面側において、プリプレグの底辺と斜辺が鈍角となる側）に第二のテープを重ねて配置し押圧が十分でない場合、内部に空隙ができる場合がある。

## 産業上の利用可能性

[0078] 本発明の繊維強化複合材料用テーププリプレグ、及び前記テーププリプレグから得られる繊維強化複合材料は、航空機部材、自動車部材、自転車部材、スポーツ用品部材、鉄道車両部材、船舶部材、建築部材、オイルライザ等に好適に用いられ、特に高い耐熱性や機械特性が要求される航空機部材、自動車部材、自転車部材に好適に用いられる。

## 符号の説明

- [0079] 1 テーププリプレグ
- 1 a 下辺（下辺を含む面）
  - 1 b 上辺（上辺を含む面）
- 2 テーププリプレグ
- 2 a 下辺（下辺を含む面）
  - 2 b 上辺（上辺を含む面）
- 4 溝部
- 5 溝ロール
- S 1 幅
- S 2 幅
- W 金型
- W a 上面
- T 1 最端部とプリプレグ幅方向における境界線の凹凸のうち最もプリプレグ中心と反対方向に突出した凸部の頂点とを結ぶ直線
- T 2 最端部とプリプレグ厚さ方向における境界線の凹凸のうち最もプリプレグ中心と反対方向に突出した凸部の頂点とを結ぶ直線

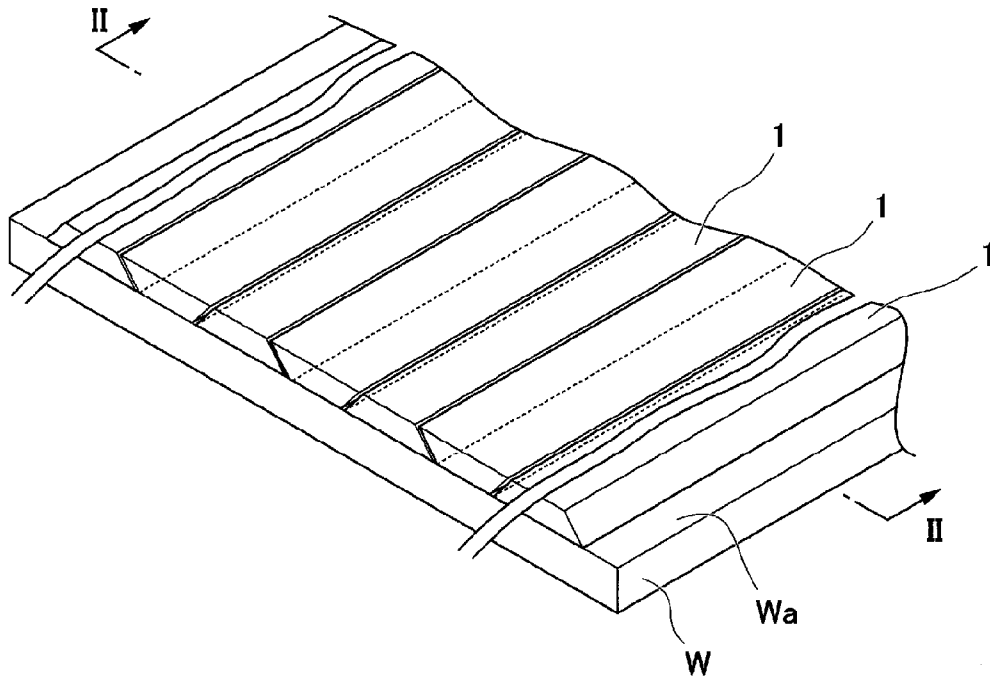
## 請求の範囲

- [請求項1] 強化繊維を一方向に引き揃えた強化繊維束に樹脂が含浸したテーププリプレグであって、
- 前記強化繊維束の配向方向の垂直断面が、幅方向の一方の端部及び他方の端部から幅方向の中心にむかって連続的に厚みが増加する部位を有し、前記垂直断面の厚さ方向におけるいずれか一方の境界線と幅方向における境界線のなす角がいずれも鋭角である、テーププリプレグ。
- [請求項2] 前記垂直断面の厚さ方向における境界線である上辺と下辺の少なくとも一部が互いに平行な直線部分を有し、前記鋭角が $40^{\circ} \sim 85^{\circ}$ である、請求項1に記載のテーププリプレグ。
- [請求項3] 前記樹脂の粘度が $30000 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ 以上である、請求項1又は2に記載のテーププリプレグ。
- [請求項4] 前記垂直断面が台形形状又はドーム形状である、請求項1に記載のテーププリプレグ。
- [請求項5] 前記強化繊維束が炭素繊維束である、請求項1又は2に記載のテーププリプレグ。
- [請求項6] 前記樹脂がエポキシ樹脂を含む、請求項1から3のいずれか1項に記載のテーププリプレグ。
- [請求項7] 請求項1から4のいずれか1項に記載のテーププリプレグが加熱されて硬化した、繊維強化複合材料。
- [請求項8] 請求項1から4のいずれか1項に記載のテーププリプレグの複数、前記強化繊維束の配向方向を揃えて互いに隣接するように配置し、加熱及び加圧することを含む、繊維強化複合材料の製造方法であって、
- 前記配置の際、第一のテーププリプレグの幅方向の端部と、第二のテーププリプレグの幅方向の端部とが、厚み方向に見て互いに重なるように配置する、繊維強化複合材料の製造方法。

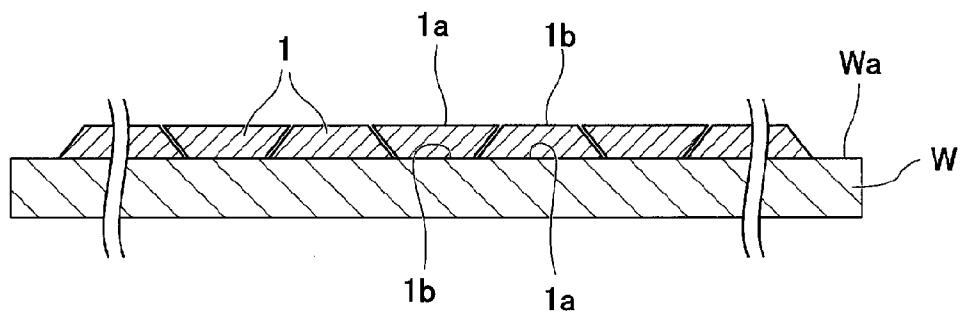
- [請求項9] 強化繊維を一方向に引き揃えた強化繊維束に樹脂が含浸したテーププリプレグであって、前記強化繊維束の配向方向の垂直断面が、幅方向の一方の端部及び他方の端部から幅方向の中心にむかって連続的に厚みが増加する部位を有し、前記テーププリプレグが離型シートを含む、テーププリプレグ。
- [請求項10] 前記垂直断面の上辺と下辺の長さが異なっており、短い方の辺側のテーププリプレグ表面に前記離型シートが配置されている、請求項9に記載のテーププリプレグ。
- [請求項11] 強化繊維を一方向に引き揃えた強化繊維束に樹脂が含浸したテーププリプレグの配置方法であって、  
前記テーププリプレグの前記強化繊維束の配向方向における垂直断面が、幅方向の一方の端部及び他方の端部から幅方向の中心にむかって連続的に厚みが増加する部位を有し、前記テーププリプレグを加熱して型に配置する、テーププリプレグの配置方法。
- [請求項12] 前記テーププリプレグの複数個を、前記強化繊維束の配向方向を揃えて互いに隣接するように配置し、前記配置の際、第一のテーププリプレグの少なくとも一部と、第二のテーププリプレグの少なくとも一部とが、重なるように配置する、請求項11に記載のテーププリプレグの配置方法。
- [請求項13] 前記第一のテーププリプレグの前記連続的に厚みが増加する部位の少なくとも一部と、第二のテーププリプレグの前記連続的に厚みが増加する部位の少なくとも一部とが、重なるように配置する、請求項12に記載のテーププリプレグの配置方法。
- [請求項14] 強化繊維を一方向に引き揃えた強化繊維束に樹脂が含浸したテーププリプレグを用いる繊維強化複合材料の製造方法であって、  
前記テーププリプレグの前記強化繊維束の配向方向における垂直断面が、幅方向の一方の端部及び他方の端部から幅方向の中心にむかって連続的に厚みが増加する部位を有し、前記テーププリプレグを加熱

して型に配置する、繊維強化複合材料の製造方法。

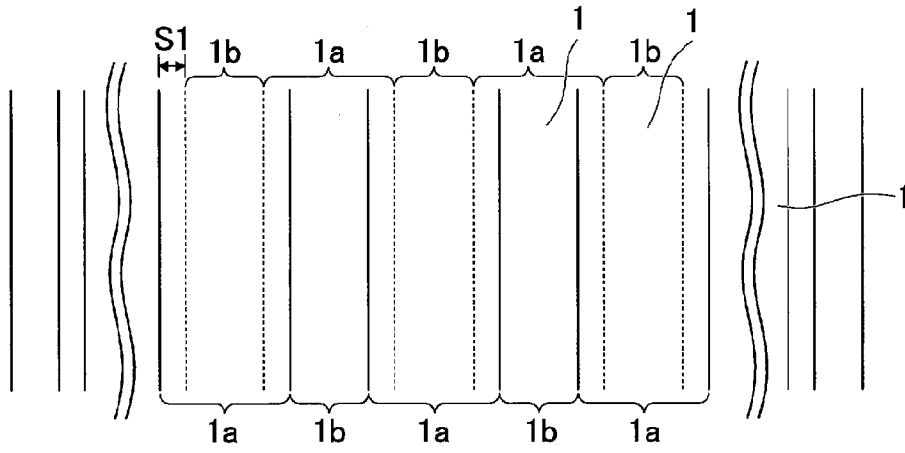
[図1]



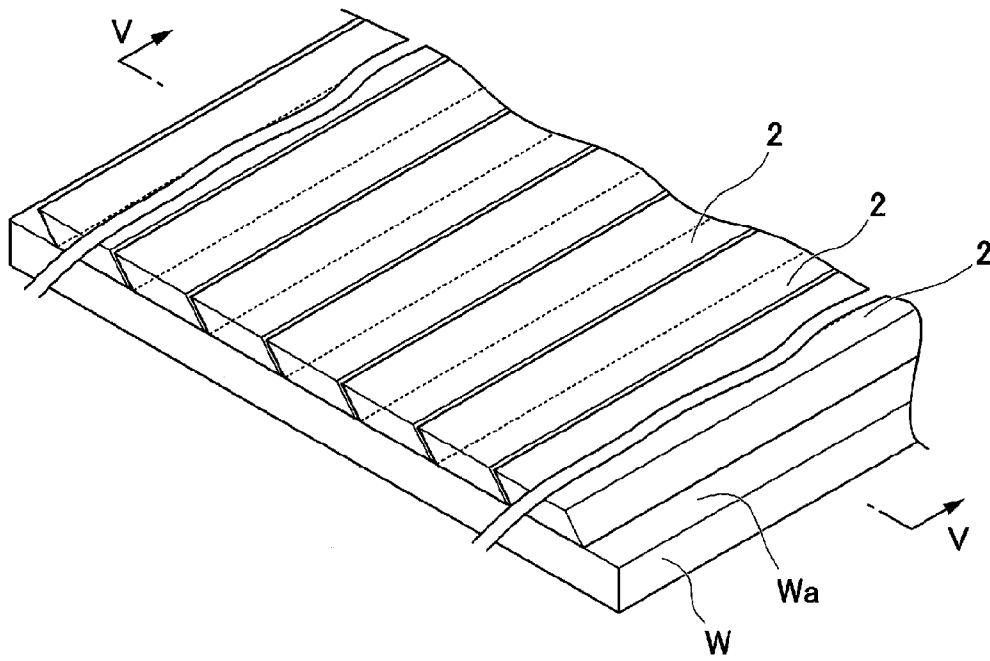
[図2]



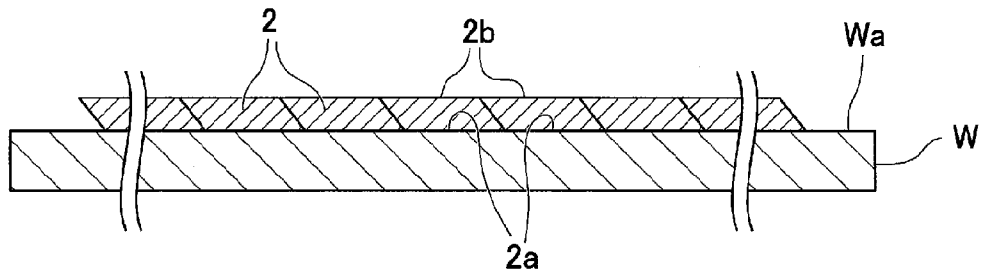
[図3]



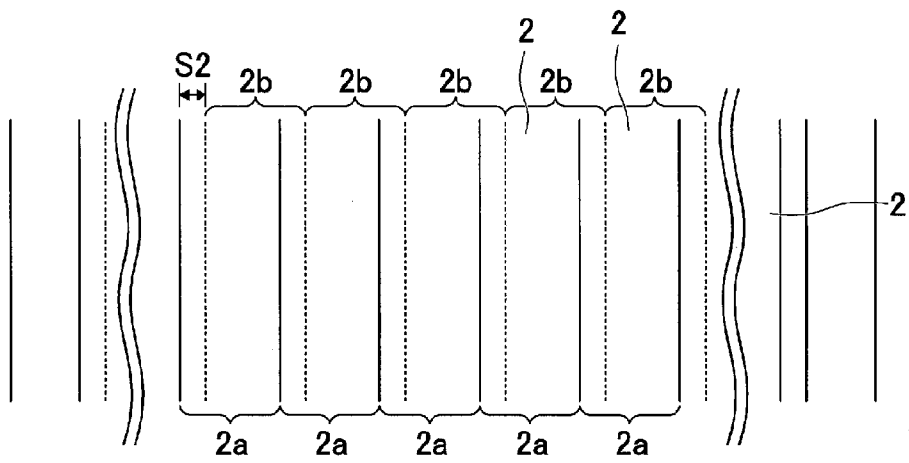
[図4]



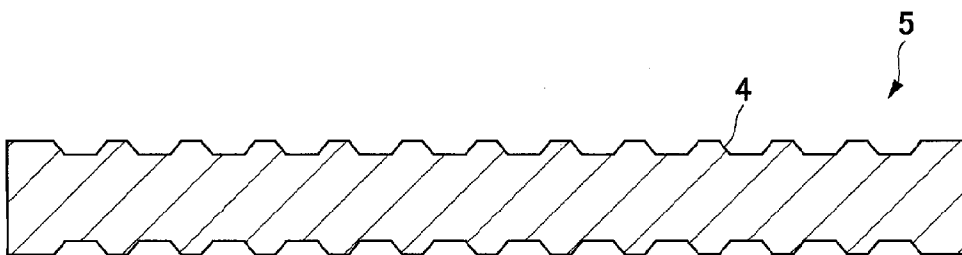
[図5]



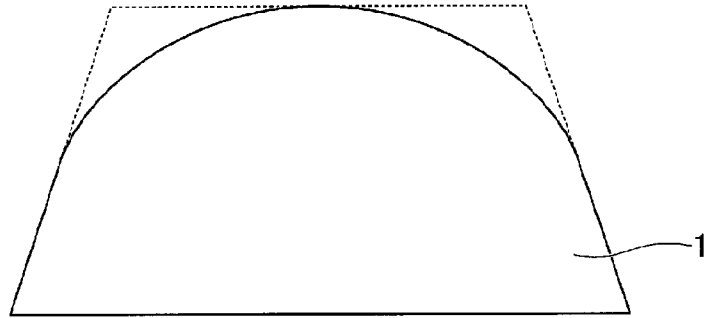
[図6]



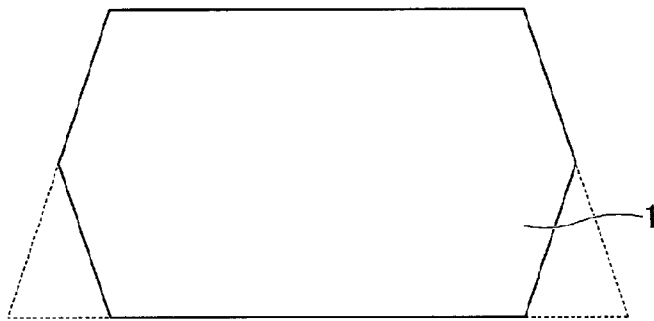
[図7]



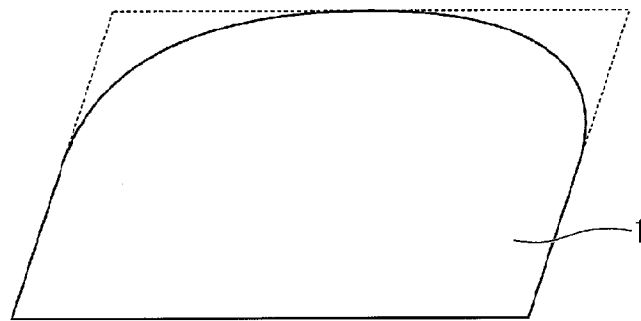
[図8]



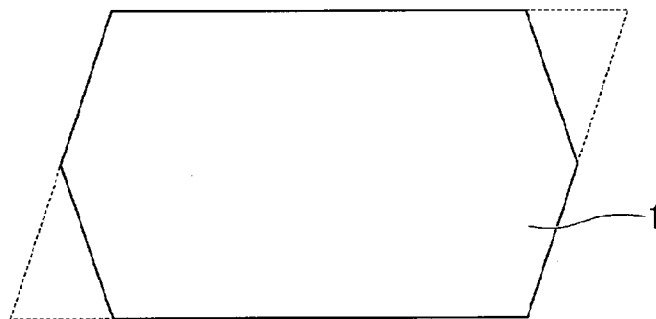
[図9]



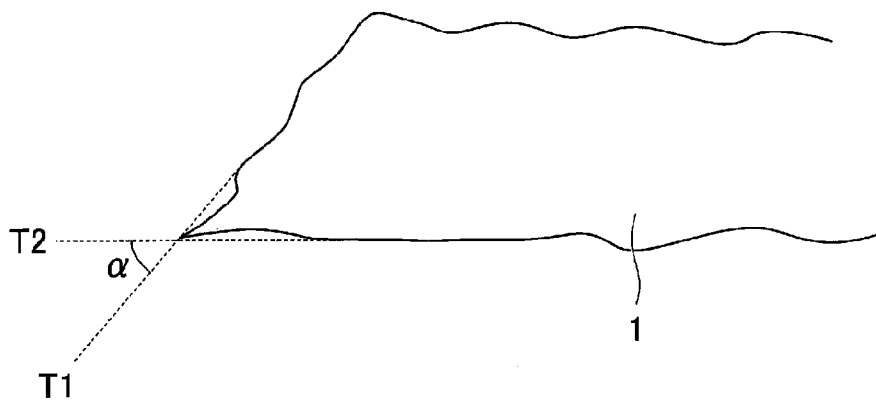
[図10]



[図11]



[図12]



**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2019/038269

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**

Int.Cl. C08J5/24 (2006.01) i, 829811/16 (2006.01) i, 829C70/20 (2006.01) i,  
C08J5/04 (2006.01) i, B29K105/10 (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. C08J5/04-C08J5/10, C08J5/24, 829811/15, 829815/08-829815/14,  
829C70/20, 829K105/10

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 Y	JP 2011-144840 A (TOYOTA MOTOR CORP.) 28 July 2011, claims, paragraphs [0011], [0016]-[0017], [0021]-[0022], [0025]-[0026], fig. 1-2, 4-6 (Family: none)	1-2, 5-8 3, 9, 11-14
X Y	JP 2012-140997 A (TOYOTA MOTOR CORP.) 26 July 2012, claims, paragraphs [0005]-[0006], [0009], [0021]-[0027], [0031]-[0032], fig. 8 (Family: none)	1-2, 5-8 3-4, 9-14

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

* Special categories of cited documents:	"I" 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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search 03 December 2019 (03.12.2019)	Date of mailing of the international search report 17 December 2019 (17.12.2019)
--	---

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/JP2019/038269

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2004-314550 A (TOYOTA INDUSTRIES CORPORATION)	1-2, 4-8
Y	11 November 2004, claims, paragraphs [0005]-[0006], [0027], [0030] -[0037], [0076], fig. 6 (Family: none)	3-4, 9-14
Y	WO 2017/104823 A1 (MITSUBISHI CHEMICAL CORPORATION) 22 June 2017, claims, paragraph [0034] & US 2018/0291165 A1, claims, paragraph [0053] & EP 3392297 A1 & CN 108368282 A	3
Y	JP 2003-147100 A (NITTO TECHNOS KK) 21 May 2003, paragraph [0002] (Family: none)	9-10
Y	JP 63-193811 A (JAPAN BICYCLE PROMOTION INSTITUTE) 11 August 1988, page 2, upper right column, lines 15-18 (Family: none)	11-14
Y	JP 2013-049795 A (TOYOBO CO., LTD.) 14 March 2013, paragraph [0024] (Family: none)	11-14

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2019/038269

**Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1.  Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2.  Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
  
3.  Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

(Invention 1) Claims 1-8

Claim 1 is not considered to have a special technical feature in light of documents 1-3. Claim 1 and claims 2-8 that are dependent thereon are classified as invention 1.

(Invention 2) Claims 9-10

Claim 9 and claim 10 referring to claim 9 do not share identical or corresponding special technical features with claim 1 classified as invention 1. Furthermore, claim 9 is not dependent on claim 1, and is not substantially identical or equivalent to any of the claims classified as invention 1. Thus, said claims are classified as invention 2.

(Invention 3) Claims 11-14

For the same reason as given for invention 2, claims 11-14 are classified as invention 3.

1.  As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2.  As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3.  As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
4.  No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

**Remark on Protest**

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C）） Int.Cl. C08J5/24(2006.01)i, B29B11/16(2006.01)i, B29C70/20(2006.01)i, C08J5/04(2006.01)i, B29K105/10(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（I P C）） Int.Cl. C08J5/04-C08J5/10, C08J5/24, B29B11/16, B29B15/08-B29B15/14, B29C70/20, B29K105/10		
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 Y	JP 2011-144840 A（トヨタ自動車株式会社） 2011.07.28, 特許請求の範囲, 段落[0011], [0016]-[0017], [0021]-[0022], [0025]-[0026], [図1]-[図2], [図4]-[図6] (ファミリーなし)	1-2, 5-8 3, 9, 11-14
X Y	JP 2012-140997 A（トヨタ自動車株式会社） 2012.07.26, 特許請求の範囲, 段落[0005]-[0006], [0009], [0021]-[0027], [0031]-[0032], [図8] (ファミリーなし)	1-2, 5-8 3-4, 9-14
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「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 03.12.2019	国際調査報告の発送日 17.12.2019	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（I S A / J P） 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 飛弾 浩一 電話番号 03-3581-1101 内線 3430	4F 5815

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
X	JP 2004-314550 A (株式会社豊田自動織機)	1-2, 4-8
Y	2004. 11. 11, 特許請求の範囲, 段落[0005]-[0006], [0027], [0030] -[0037], [0076], [図 6] (ファミリーなし)	3-4, 9-14
Y	WO 2017/104823 A1 (三菱ケミカル株式会社) 2017. 06. 22, 請求の範囲, 段落[0034] & US 2018/0291165 A1, 請求の範囲, 段落[0053] & EP 3392297 A1 & CN 108368282 A	3
Y	JP 2003-147100 A (日東テクノス株式会社) 2003. 05. 21, 段落[0002] (ファミリーなし)	9-10
Y	JP 63-193811 A (財団法人 自転車産業振興協会) 1988. 08. 11, 第 2 頁右上欄第 15-18 行 (ファミリーなし)	11-14
Y	JP 2013-049795 A (東洋紡株式会社) 2013. 03. 14, 段落[0024] (ファミリーなし)	11-14

## 第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1.  請求項 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
  
2.  請求項 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
  
3.  請求項 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるときの国際調査機関は認めた。

（発明1）請求項1－8

請求項1に係る発明は、文献1－3より、特別な技術的特徴を有するとはいえない。請求項1及び従属する請求項2－8に係る発明を発明1に区分する。

（発明2）請求項9－10

請求項9及び請求項9を引用する請求項10には、発明1に区分された請求項1との間には、同一の又は対応する特別な技術的特徴は存在せず、請求項9は、請求項1の従属請求項ではなく、請求項9は、発明1に区分されたいずれの請求項に対しても実質同一又はそれに準ずる関係にはないため、発明2に区分する。

（発明3）請求項11－14

請求項11－14に係る発明も発明2に記載したものと同様の判断から、発明3に区分する。

1.  出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求項について作成した。
2.  追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求項について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3.  出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求項のみについて作成した。
  
4.  出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求項について作成した。

## 追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。