

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B1)

(11)特許番号
特許第7380945号
(P7380945)

(45)発行日 令和5年11月15日(2023.11.15)

(24)登録日 令和5年11月7日(2023.11.7)

(51)国際特許分類	F I
B 2 9 C 43/58 (2006.01)	B 2 9 C 43/58
B 2 9 C 43/20 (2006.01)	B 2 9 C 43/20
B 2 9 C 70/34 (2006.01)	B 2 9 C 70/34
B 2 9 C 70/68 (2006.01)	B 2 9 C 70/68
B 3 2 B 5/00 (2006.01)	B 3 2 B 5/00
	A
請求項の数 17 (全22頁) 最終頁に続く	

(21)出願番号	特願2023-507661(P2023-507661)	(73)特許権者	000003159 東レ株式会社 東京都中央区日本橋室町2丁目1番1号
(86)(22)出願日	令和5年1月31日(2023.1.31)	(72)発明者	鈴木 祐哉 愛媛県伊予郡松前町大字筒井1515番地 東レ株式会社愛媛工場内
(86)国際出願番号	PCT/JP2023/003030	(72)発明者	中山 義文 愛媛県伊予郡松前町大字筒井1515番地 東レ株式会社愛媛工場内
審査請求日	令和5年7月24日(2023.7.24)	(72)発明者	本間 雅登 愛媛県伊予郡松前町大字筒井1515番地 東レ株式会社愛媛工場内
(31)優先権主張番号	特願2022-48040(P2022-48040)	審査官	清水 研吾
(32)優先日	令和4年3月24日(2022.3.24)		
(33)優先権主張国・地域又は機関	日本国(JP)		
早期審査対象出願			

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 繊維強化樹脂構造体および繊維強化樹脂構造体の製造方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

強化繊維(A1)と熱可塑性樹脂(B1)からなる空隙体(I)と、強化繊維(A2)と熱可塑性樹脂(B2)からなる表皮層(II)が一体化した繊維強化樹脂構造体であって、熱可塑性樹脂(B1)の融点Tc()と熱可塑性樹脂(B2)の融点Ts()がともに230 以上であり、Tc()とTs()の差Ts - TcまたはTc - Tsが20 以上であり、前記熱可塑性樹脂(B1)および熱可塑性樹脂(B2)のガラス転移温度が120 以上である、繊維強化樹脂構造体。

【請求項2】

J I S B 0 6 0 1 (2 0 0 1) に準拠して測定される前記表皮層(II)の平均表面粗さRaが10 μm以下である、請求項1に記載の繊維強化樹脂構造体。

【請求項3】

前記融点 Tc()と融点 Ts()のいずれか一方が270 以上、330 以下の範囲である、請求項1に記載の繊維強化樹脂構造体。

【請求項4】

前記熱可塑性樹脂(B1)および熱可塑性樹脂(B2)がともにポリアリールエーテルケトンまたはポリアリールエーテルケトン共重合体である、請求項1に記載の繊維強化樹脂構造体。

【請求項5】

表皮層(II)を構成する熱可塑性樹脂(B2)と空隙体(I)を構成する熱可塑性樹脂

10

20

(B 1) が境界面を持つ、請求項 1 に記載の繊維強化樹脂構造体。

【請求項 6】

前記空隙体 (I) の厚み H_c と前記表皮層 (I I) の厚み H_s の比 H_c / H_s が 5 以上である、請求項 1 に記載の繊維強化樹脂構造体。

【請求項 7】

前記空隙体 (I) の空隙率が 10 体積% 以上 90 体積% 以下である、請求項 1 に記載の繊維強化樹脂構造体。

【請求項 8】

前記強化繊維 (A 1) が繊維長 1 mm 以上 15 mm 以下の不連続繊維である、請求項 1 に記載の繊維強化樹脂構造体。

10

【請求項 9】

前記強化繊維 (A 1) が略モノフィラメント状、且つランダムに分散している、請求項 1 に記載の繊維強化樹脂構造体。

【請求項 10】

前記強化繊維 (A 1) と強化繊維 (A 2) がともに炭素繊維である、請求項 1 に記載の繊維強化樹脂構造体。

【請求項 11】

前記強化繊維 (A 2) が一方向連続繊維である、請求項 1 に記載の繊維強化樹脂構造体。

【請求項 12】

空隙体 (I) の両面に表皮層 (I I) を配置したサンドイッチ構造を有する、請求項 1 に記載の繊維強化樹脂構造体。

20

【請求項 13】

前記表皮層 (I I) が少なくとも一つの屈曲部を有する、請求項 1 に記載の繊維強化樹脂構造体。

【請求項 14】

請求項 1 に記載の繊維強化樹脂構造体からなる、航空機、人工衛星、UAM (Urban air mobility)、およびドローンからなる群より選択される航空部材。

【請求項 15】

強化繊維 (A 1) と熱可塑性樹脂 (B 1) からなる空隙体 (I) と、強化繊維 (A 2) と熱可塑性樹脂 (B 2) からなる表皮層 (I I) が一体化した繊維強化樹脂構造体であって、熱可塑性樹脂 (B 1) の融点 T_c () と熱可塑性樹脂 (B 2) の融点 T_s () がともに 230 以上であり、 T_c () と T_s () の差 $T_s - T_c$ が 20 () 以上である繊維強化樹脂構造体の製造方法であって、

30

強化繊維 (A 1) の不織布と熱可塑性樹脂 (B 1) を含む空隙体 (I) の前駆体 (i)

強化繊維 (A 2) および熱可塑性樹脂 (B 2) からなるプリプレグ

を積層して成形金型に配置する第 1 ステップ；

T_s よりも高い温度に加熱して熱可塑性樹脂 (B 1) および熱可塑性樹脂 (B 2) をともに溶解し、空隙体 (I) の前駆体 (i) および表皮層 (I I) を接合するとともに賦形する第 2 ステップ；

T_c より高く、 T_s より低い温度にまで降温し、表皮層 (I I) を固化する第 3 ステップ；

40

T_c より高く、 T_s より低い温度を維持したまま、圧力を開放して空隙体 (I) の前駆体 (i) を膨張させる第 4 ステップ；

T_c より低い温度にまで降温し、空隙体 (I) を固化させる第 5 ステップ；

をこの順に有する繊維強化樹脂構造体の製造方法。

【請求項 16】

強化繊維 (A 1) と熱可塑性樹脂 (B 1) からなる空隙体 (I) と、強化繊維 (A 2) と熱可塑性樹脂 (B 2) からなる表皮層 (I I) が一体化した繊維強化樹脂構造体であって、熱可塑性樹脂 (B 1) の融点 T_c () と熱可塑性樹脂 (B 2) の融点 T_s () がともに 230 以上であり、 T_c () と T_s () の差 $T_c - T_s$ が 20 () 以上である繊維強化樹脂構造体の製造方法であって、

50

強化繊維（A 1）の不織布と熱可塑性樹脂（B 1）を含む空隙体（I）の前駆体（i）
 強化繊維（A 2）および熱可塑性樹脂（B 2）からなるプリプレグ
 を積層して成形金型に配置する第 1 ステップ；
 T c よりも高い温度に加熱して熱可塑性樹脂（B 1）および熱可塑性樹脂（B 2）をと
 もに溶解し、空隙体（I）の前駆体（i）および表皮層（I I）を接合する第 2 ステップ；
 T c よりも高い温度を維持したまま、圧力を解放し、空隙体（I）の前駆体（i）を膨張
 させる第 3 ステップ；
 T s より高く、T c より低い温度にまで降温し、膨張した空隙体（I）を固化させる第 4
 ステップ；
 T s より高く、T c より低い温度を維持したまま、圧力を加えて表皮層（I I）を流動さ
 せる第 5 ステップ；
 T c より低い温度にまで降温し、表皮層（I I）を固化させる第 6 ステップ；
 をこの順に有する繊維強化樹脂構造体の製造方法。

10

【請求項 17】

強化繊維（A 1）と熱可塑性樹脂（B 1）からなる空隙体（I）と、強化繊維（A 2）と
 熱可塑性樹脂（B 2）からなる表皮層（I I）が一体化した繊維強化樹脂構造体であって
 、熱可塑性樹脂（B 1）の融点 T c（ ）と熱可塑性樹脂（B 2）の融点 T s（ ）がと
 もに 230 以上であり、
 T c（ ）と T s（ ）の差 T c - T s が 20（ ）以上である繊維強化樹脂構造体の製
 造方法であって、

20

強化繊維（A 1）と熱可塑性樹脂（B 1）を含む空隙体（I）
 強化繊維（A 2）および熱可塑性樹脂（B 2）からなるプリプレグ
 を積層してオートクレーブ内に配置する工程を有するとともに、
 成形温度が熱可塑性樹脂（B 1）の融点 T c を超えることがない、繊維強化樹脂構造体の
 製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、強化繊維に熱可塑性樹脂を含浸せしめた基材を用いて作製される繊維強化樹
 脂構造体、および繊維強化樹脂構造体の製造方法に関する。

30

【背景技術】

【0002】

近年、自動車、航空機、スポーツ製品、電子機器等の産業用製品について、軽量性に対
 する市場要求が年々高まっている。このような要求に応えるべく、優れた軽量性と優れた
 力学特性とを有する多孔質構造体が、各種産業用途に幅広く利用されている。一方で多孔
 質構造体のみであると市場に求められる、曲げ剛性及び圧縮強度等の特性を十分に満たす
 ことができないため、多孔質構造体に表皮層を積層して補強・補剛する技術が盛んに検討
 されている。例えば、特許文献 1 および特許文献 2 には多孔質構造体をコア材として、表
 面にスキン層を配置したサンドイッチ構造体が開示されている。

【0003】

40

特許文献 1 には、コア材及びスキン層を強化繊維からなるマットおよび熱可塑性樹脂か
 らなるシート状中間基材から形成することが記載されている。また、コア材に用いるシー
 ト状中間基材が加熱膨張性を有していることにより、成形によって多孔質構造が形成され
 ることが記載されている。特許文献 1 ではコア材およびスキン層に用いる熱可塑性樹脂の
 可使温度領域が重複していることで、コア材およびスキン材の熱可塑性樹脂を同時に流動
 させ、界面にアンカリング構造を形成し、コア材とスキン材の接合強度を高める効果を謳
 っている。

【0004】

特許文献 2 では、コア材はランダムに分散した非連続繊維が熱可塑性樹脂によって接着
 された複合体であって、スキン層が連続強化繊維に熱可塑性樹脂が含浸した複合体である

50

ことが記載されている。また、コア材が加熱により膨張して多孔質構造が形成されることが記載されている。特許文献2ではコア材とスキン層を形成する熱可塑性樹脂が互いに相溶であり、コア材とスキン層の熱可塑性樹脂を同時に熔融し、相溶させることによってコア材とスキン層が剥離せず、接合されることを謳っている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0005】

【文献】国際公開第2014/162873号

【文献】国際公開第2018/199091号

【発明の概要】

10

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

一方で、特許文献1および特許文献2で開示されているサンドイッチ構造体においては、コア材の膨張によって生じる応力によってスキン層が流動するため、スキン層の表面にキズやカスレが発生しやすいという課題があった。

【0007】

したがって、本発明は上記課題に鑑みてなされたものであって、その目的は、軽量で力学特性に優れた繊維強化樹脂構造体において、その表面品位を良好に保つことにある。

【課題を解決するための手段】

【0008】

20

上記課題を解決するための本発明は、以下の態様で構成されうる。

強化繊維(A1)と熱可塑性樹脂(B1)からなる空隙体(I)と、強化繊維(A2)と熱可塑性樹脂(B2)からなる表皮層(II)が一体化した繊維強化樹脂構造体であって、熱可塑性樹脂(B1)の融点 T_c ()と熱可塑性樹脂(B2)の融点 T_s ()がともに230以上であり、 T_c ()と T_s ()の差 $T_s - T_c$ または $T_c - T_s$ が20以上である、繊維強化樹脂構造体。

【0009】

つまり、

[態様1]

強化繊維(A1)と熱可塑性樹脂(B1)からなる空隙体(I)と、強化繊維(A2)と熱可塑性樹脂(B2)からなる表皮層(II)が一体化した繊維強化樹脂構造体であって、熱可塑性樹脂(B1)の融点 T_c ()と熱可塑性樹脂(B2)の融点 T_s ()がともに230以上であり、 T_c ()と T_s ()の差 $T_s - T_c$ が20以上である、繊維強化樹脂構造体。

30

【0010】

[態様2]

強化繊維(A1)と熱可塑性樹脂(B1)からなる空隙体(I)と、強化繊維(A2)と熱可塑性樹脂(B2)からなる表皮層(II)が一体化した繊維強化樹脂構造体であって、熱可塑性樹脂(B1)の融点 T_c ()と熱可塑性樹脂(B2)の融点 T_s ()がともに230以上であり、 T_c ()と T_s ()の差 $T_c - T_s$ が20以上である、繊維強化樹脂構造体。

40

【発明の効果】

【0011】

本発明によれば、軽量で力学特性に優れるとともに、表面品位が良好な繊維強化樹脂構造体を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【0012】

【図1】(a)本発明の一実施形態における繊維強化樹脂構造体を示す模式図、(b)本発明の一実施形態における空隙体(I)の断面構造を示す模式図

【図2】 $T_s - T_c \geq 20$ ()の場合の製造方法における成形温度および成形圧力の推移を

50

示す図

【図3】Tc - Ts 20 () の場合の製造方法における成形温度および成形圧力の推移を示す図

【図4】Tc - Ts 20 () の場合のオートクレーブ成形時の製造方法における成形温度および成形圧力の推移を示す図

【図5】本発明の、屈曲部を有する繊維強化樹脂構造体の一実施形態を示す模式図

【図6】本発明の一実施形態における金型および得られる成形体の形状を示す模式図

【図7】本発明の他の実施形態における金型および得られる成形体の形状を示す模式図

【発明を実施するための形態】

【0013】

本発明者らは、空隙体(I)に用いる熱可塑性樹脂と表皮層(II)に用いる熱可塑性樹脂の融点の関係を規定することにより上記課題を解決し得ることを見出し、本発明に到達した。以下、本発明を詳細に説明する。

【0014】

本発明の、繊維強化樹脂構造体(以下、単に「構造体」という場合がある)は、強化繊維(A1)と熱可塑性樹脂(B1)からなる空隙体(I)と、強化繊維(A2)と熱可塑性樹脂(B2)からなる表皮層(II)とが、一体化した構造体である。すなわち、空隙体(I)は強化繊維(A1)、熱可塑性樹脂(B1)を含み、表皮層(II)は、強化繊維(A2)と熱可塑性樹脂(B2)を含んでいる。

【0015】

表皮層(II)は空隙体(I)の少なくとも片側表面に存在していればよいが、空隙体(I)の両側表面に表皮層(II)が存在するいわゆるサンドイッチ構造体としてもよい。サンドイッチ構造体とすることで、繊維強化樹脂構造体の弾性率や強度をより高めることができるとともに、対称構造となることによって成形時に熱収縮によるソリの発生が低減できる。

【0016】

本発明の構造体において、空隙体(I)は空隙を有する。図1は本発明の一実施形態における繊維強化樹脂構造体示す模式図である。図1(b)は空隙体(I)の部分構造を示す断面模式図である。本発明における空隙とは、典型的には、熱可塑性樹脂(B1)により被覆された強化繊維(A1)が柱状の支持体となり、それが重なり合い、又は、交差することにより形成された、強化繊維(A1)も熱可塑性樹脂(B1)も存在しない空間のことを指す。例えば強化繊維(A1)に熱可塑性樹脂(B1)が予め含浸された空隙体(I)の前駆体(i)を加熱して空隙体(I)を得る場合、加熱に伴う熱可塑性樹脂(B1)の溶融ないしは軟化により、強化繊維(A1)が起毛することで空隙が形成される。これは、空隙体(I)の前駆体(i)において、加圧により圧縮状態とされていた内部の強化繊維(A1)が、その弾性に由来する起毛力によって起毛する性質に基づく。このとき強化繊維(A1)の厚み方向の配向角が1°以上であることが膨張率の観点から好ましく、3°以上であることがさらに好ましい。

【0017】

空隙体(I)は、空隙率が10体積%以上90体積%以下であることが好ましい。空隙率が10体積%以上であることにより、空隙体(I)の密度が低くなるため、軽量性を満足できるため好ましい。一方、空隙率が90体積%以下の場合には、強化繊維(A1)の周囲に被覆された熱可塑性樹脂(B1)の厚みが十分なものとなることから、空隙体(I)中における強化繊維(A1)同士の補強を十分に行うことができ、力学特性が高くなるので好ましい。

【0018】

本発明において、空隙体(I)で用いられる強化繊維(A1)は、典型的には不連続繊維である。ここで、本発明における不連続繊維とは、繊維長が1mm以上15mm以下である強化繊維が好ましい。強化繊維(A1)が不連続繊維であることで、前述のような起毛による空隙の形成を容易に行うことができる。強化繊維(A1)の繊維長が1mm未満

10

20

30

40

50

である場合、空隙を効率よく形成できないことがあり、好ましくない。強化繊維の繊維長を測定する方法としては、例えば、強化繊維群から直接強化繊維を摘出して顕微鏡観察により測定する方法がある。強化繊維群に樹脂が付着している場合には、強化繊維群から、それに含まれる樹脂のみを溶解する溶剤を用いて樹脂を溶解させ、残った強化繊維を濾別して顕微鏡観察により測定する方法（溶解法）や、樹脂を溶解する溶剤がない場合には、強化繊維が酸化減量しない温度範囲において樹脂のみを焼き飛ばし、強化繊維を分別して顕微鏡観察により測定する方法（焼き飛ばし法）などがある。また強化繊維（A1）は、空隙体（I）中において、略モノフィラメント状、且つ、ランダムに分散していることが好ましい。ここで、略モノフィラメント状とは、強化繊維単糸が500本未満の細繊維度ストランドにて存在することを指す。さらに望ましくは、モノフィラメント状、つまり単糸として分散していることである。略モノフィラメント状とすることで、繊維束として存在する強化繊維（A1）が少なくなるため、強化繊維（A1）の繊維束端における弱部を極小化でき、優れた補強効率及び信頼性に加えて、等方性も付与される。ランダムに分散していることで、さらに等方性を付与できる。

【0019】

一方、表皮層（II）に用いられる強化繊維（A2）は、特に限定されるものではないが、連続繊維であることが好ましい。ここで、連続繊維とは、少なくとも一方向に、100mm以上の長さで連続している強化繊維である。連続繊維からなる形態としては、多数本の連続繊維からなる強化繊維束から構成された繊維織物、多数本の連続繊維が一方向に配列された一方向連続繊維などである。中でも、成形体の補強効果を高める観点からは一方向連続繊維であることが好ましく、成形体に複雑形状を持たせる場合は、賦形性に優れた繊維織物であることが好ましい。

【0020】

強化繊維（A1）および強化繊維（A2）の種類には特に制限はなく、例えば、アルミニウム繊維、黄銅繊維、ステンレス繊維などの金属繊維、ポリアクリロニトリル（PAN）系炭素繊維、レーヨン系炭素繊維、リグニン系炭素繊維、ピッチ系炭素繊維などの炭素繊維（黒鉛繊維を含む）、ガラス繊維などの絶縁性繊維、アラミド繊維、ポリパラフェニレンベンズオキサゾール（PBO）繊維、ポリフェニレンスルフィド繊維、ポリエステル繊維、アクリル繊維、ナイロン繊維、ポリエチレン繊維などの有機繊維、シリコンカーバイト繊維、シリコンナイトライド繊維などの無機繊維が挙げられる。また、これらの繊維に表面処理が施されているものであってもよい。表面処理としては、導電体である金属の被着処理のほかに、カップリング剤による処理、サイジング剤による処理、結束剤による処理、添加剤の付着処理などがある。また、これらの強化繊維は1種類を単独で用いてもよいし、2種類以上を併用してもよい。

【0021】

中でも、軽量化効果の観点から、比強度、比剛性に優れるPAN系炭素繊維、ピッチ系炭素繊維、レーヨン系炭素繊維などの炭素繊維が好ましく用いられ、強度と弾性率などの力学的特性に優れるPAN系炭素繊維が特に好ましく用いられる。また、得られる成形品の経済性を高める観点からは、ガラス繊維が好ましく用いられ、とりわけ力学特性と経済性のバランスから炭素繊維とガラス繊維を併用することが好ましい。さらに、得られる成形品の衝撃吸収性や賦形性を高める観点からは、アラミド繊維が好ましく用いられ、とりわけ力学特性と衝撃吸収性のバランスから炭素繊維とアラミド繊維を併用することが好ましい。また、得られる成形品の導電性を高める観点からは、ニッケル、銅、イッテルビウムなどの金属を被覆した強化繊維を用いることもできる。

【0022】

また炭素繊維は、炭素繊維及びマトリックス樹脂を含有する炭素繊維強化プラスチックをリサイクルして得られるリサイクル炭素繊維であってもよい。リサイクルの方法としては、例えば、常圧溶解法、亜臨界分解法、超臨界分解法、電解法、熱分解法、過熱水蒸気法等の処理方法によりマトリックス樹脂を除去することが行われる。

【0023】

10

20

30

40

50

空隙体 (I) に含まれる強化繊維 (A 1) としては、その引張弾性率が、繊維強化樹脂構造体の剛性の点から、好ましくは 2 0 0 G P a 以上 1 0 0 0 G P a 以下、より好ましくは 2 2 0 G P a 以上 5 0 0 G P a 以下の範囲内であるものが使用できる。強化繊維の引張弾性率が、2 0 0 G P a よりも小さい場合は、繊維強化樹脂構造体の剛性が劣ることがあり、1 0 0 0 G P a よりも大きい場合は、強化繊維の結晶性を高める必要があり、そのような強化繊維を製造するのが困難となる。不連続の強化繊維の引張弾性率が、前記範囲内であると繊維強化樹脂構造体の剛性、強化繊維の製造性の点で好ましい。なお、強化繊維の引張弾性率は、J I S R 7 6 0 1 - 1 9 8 6 に記載のストランド引張試験により測定することができる。

【 0 0 2 4 】

本発明において、熱可塑性樹脂 (B 1) の融点 T_c と、熱可塑性樹脂 (B 2) の融点 T_s は、共に 2 3 0 以上である。このような融点を有する結晶性の熱可塑性樹脂としては、例えば、「ポリアミド (P A)、ポリフェニレンスルフィド (P P S)、ポリエーテルケトン (P E K)、ポリエーテルエーテルケトン (P E E K)、ポリエーテルケトンケトン (P E K K) 等のポリアリールエーテルケトン (P A E K)」が挙げられる。中でも連続使用温度の観点から熱可塑性樹脂 (B 1) および熱可塑性樹脂 (B 2) のガラス転移温度は 1 2 0 以上であることが好ましく、このようなガラス転移温度を有する熱可塑性樹脂として、ポリアリールエーテルケトンまたはポリアリールエーテルケトンの共重合体が好ましく、さらにはポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルケトンケトンから選択される化合物が好ましい。さらには T_c および T_s は、好ましくはいずれか一方の融点が 2 7 0 以上であり、3 3 0 以下である。前記融点の範囲であることによって、高耐熱でかつ成形温度が高すぎず成形が容易な繊維強化樹脂構造体を得ることができる。高融点の熱可塑性樹脂を用いる場合、成形金型の昇温能力の観点から、熱可塑性樹脂の融点近傍の温度で成形が行われる場合が多い。そのため、高溶融粘度の状態での成形が不可避となる場合が多く、成形体全体が流動すると、表面品位が劣悪になりやすかった。本発明では、空隙体 (I) と表皮層 (I I) とを別々に流動できるため、高融点の樹脂を用いる場合により表面品位向上の効果が顕著に得られる。また、高融点の熱可塑性樹脂を用いることで、得られる構造体は高温下での使用により優れたものとなる。これらの熱可塑性樹脂 (B 1) および熱可塑性樹脂 (B 2) には、本発明の目的を損なわない範囲で、エラストマーあるいはゴム成分などの耐衝撃性向上剤、他の充填材や添加剤を含有してもよい。

【 0 0 2 5 】

さらに、本発明においては、 T_c () と T_s () の差は 2 0 以上である。これを満足する繊維強化樹脂構造体においては、製造時に空隙体 (I) と表皮層 (I I) のどちらかを固化し、もう一方を軟化して成形することができ、構造体全体が流動しないため、表面外観の優れた構造体を製造することが可能となる。本発明における熱可塑性樹脂の融点は J I S K 7 1 2 0 (1 9 8 7) を準拠して測定した融点を用いる。樹脂の融点は添加剤や分子量分布によって異なるため、一律に規定できるものではないが、上記融点の関係を満たす設計とするために好適な樹脂種の組み合わせとしては、ポリアミドとポリフェニレンスルフィド、ポリアミドとポリエーテルケトンケトン、ポリアミドとポリエーテルエーテルケトン、ポリフェニレンスルフィドとポリエーテルケトンケトン、ポリフェニレンスルフィドとポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルケトンケトンとポリエーテルエーテルケトン等が挙げられる。

【 0 0 2 6 】

このような熱可塑性樹脂 (B 1) と熱可塑性樹脂 (B 2) の組み合わせを用いることにより、空隙体 (I) または表皮層 (I I) のいずれかを固化し、もう一方が溶融または軟化している状態で溶融または軟化している部分のみを成形することができる。そのため、

10

20

30

40

50

本発明の構造体は、成形後の後加工なしでも表皮層（ II ）の表面品位が良好になり、 $JIS\ B\ 0601(2001)$ に準拠して測定される前記表皮層（ II ）の平均表面粗さ Ra を $10\ \mu m$ 以下に抑えることが可能となる。平均表面粗さは、表面品位の観点から、より好ましくは $5\ \mu m$ 以下であり、さらに好ましくは $1\ \mu m$ 以下である。

【0027】

また、ここで、空隙体（ I ）または表皮層（ II ）のいずれかのみを成形するため、空隙体（ I ）中の熱可塑性樹脂（ $B1$ ）と表皮層（ II ）中の熱可塑性樹脂（ $B2$ ）は好ましくは互いに相溶している状態とならずに境界面を形成することが好ましい。

【0028】

空隙体（ I ）と表皮層（ II ）の厚みについて、空隙体（ I ）の厚みを Hc 、表皮層（ II ）の厚みを Hs としたとき、 Hc/Hs は5以上であることが好ましい。繊維強化樹脂構造体中の空隙体（ I ）の比率を高くすることで、軽量な成形体を得ることができる。

【0029】

上記繊維強化樹脂構造体の製造方法として、空隙体（ I ）を構成する熱可塑性樹脂（ $B1$ ）の融点 Tc が表皮層（ II ）を構成する熱可塑性樹脂（ $B2$ ）の融点 Ts よりも20以上低い場合（ $Ts - Tc > 20$ （ $^{\circ}C$ ）の場合）は、図2に成形温度および成形圧力の推移を示すように、

- ・強化繊維（ $A1$ ）の不織布と熱可塑性樹脂（ $B1$ ）を含む空隙体（ I ）の前駆体（ i ）
- ・強化繊維（ $A2$ ）および熱可塑性樹脂（ $B2$ ）からなるプリプレグ

を積層して成形金型に配置する第1ステップ；

Ts よりも高い温度に加熱して熱可塑性樹脂（ $B1$ ）および熱可塑性樹脂（ $B2$ ）をともに溶解し、空隙体（ I ）の前駆体（ i ）および表皮層（ II ）を接合するとともに賦形する第2ステップ；

Tc より高く、 Ts より低い温度にまで降温し、表皮層（ II ）を固化する第3ステップ；

Tc より高く、 Ts より低い温度を維持したまま、圧力を開放して空隙体（ I ）の前駆体（ i ）を膨張させる第4ステップ；

Tc より低い温度にまで降温し、空隙体（ I ）を固化させる第5ステップ；

を有する製造方法により、本発明の繊維強化樹脂構造体を製造することができる。このような方法によれば、第3ステップで既に表皮層（ II ）が硬化した状態で、第4ステップにおいて空隙体（ I ）の前駆体が膨張するため、膨張中の熱可塑性樹脂（ $B1$ ）の流動による表皮層（ II ）のカスレ等の表面品位の低下を抑制することができる。

【0030】

なお、空隙体（ I ）の前駆体としては、強化繊維（ $A1$ ）の不織布と熱可塑性樹脂（ $B1$ ）からなるシートの積層物か、あるいは強化繊維（ $A1$ ）の不織布に熱可塑性樹脂（ $B1$ ）を含浸させた基材のいずれかを用いることができる。空隙体（ I ）の前駆体として強化繊維（ $A1$ ）の不織布と熱可塑性樹脂（ $B1$ ）からなるシートの積層物を用いた場合、第4ステップよりも前のいずれかのステップ、好ましくは第3ステップの後で加圧により強化繊維（ $A1$ ）に熱可塑性樹脂（ $B1$ ）を含浸させる含浸操作を実施することが好ましい。

【0031】

一方、空隙体（ I ）を構成する熱可塑性樹脂（ $B1$ ）の融点 Tc が表皮層（ II ）を構成する熱可塑性樹脂（ $B2$ ）の融点 Ts よりも20以上高い場合（ $Tc - Ts > 20$ （ $^{\circ}C$ ）の場合）は、図3に成形温度および成形圧力の推移を示すように、前述の第1ステップの後に、

Tc よりも高い温度に加熱して熱可塑性樹脂（ $B1$ ）および熱可塑性樹脂（ $B2$ ）をともに溶解し、空隙体（ I ）の前駆体（ i ）および表皮層（ II ）を接合する第2ステップ；

Tc よりも高い温度を維持したまま、圧力を解放し、空隙体（ I ）の前駆体（ i ）を膨張させる第3ステップ；

Ts より高く、 Tc より低い温度にまで降温し、膨張した空隙体（ I ）を固化させる第4ステップ；

10

20

30

40

50

T_s より高く、 T_c より低い温度を維持したまま、圧力を加えて表皮層(II)を流動させる第5ステップ；

T_s より低い温度にまで降温し、表皮層(II)を固化させる第6ステップ；

を有する製造方法により、本発明の繊維強化樹脂構造体を製造することができる。なお第5ステップにおいては固化した空隙体(I)の圧縮強度未満の圧力を加えることが、空隙体(I)の構造が破壊されないため好ましい。このような方法によれば、第3ステップにおいて空隙体(I)を膨張させた時点では、表皮層(II)の表面は空隙体(I)の膨張によって引きずられて粗い状態であるが、後に、第5ステップにおいて表皮層(II)を流動させる際に空隙体(I)が流動しないため、表皮層(II)が安定して流動できる状態で表面を平滑化することができ、カスレ等の表面品位の低下を抑制することができる。

10

【0032】

また、空隙体(I)を構成する熱可塑性樹脂(B1)の融点 T_c が表皮層(II)を構成する熱可塑性樹脂(B2)の融点 T_s よりも20以上高い場合($T_c - T_s > 20$ (°C)の場合)、空隙体(I)と表皮層(II)を積層し、図4に成形温度および成形圧力の推移を示すように、オートクレーブ内にて T_c よりも低く、 T_s よりも高い温度で加熱加圧する製造方法により、本発明の繊維強化樹脂構造体を製造することができる。空隙体(I)が熔融しないため、表皮層(II)が安定して流動できる状態で表面を平滑化することができ、カスレ等の表面品位の低下を抑制することができる。

【0033】

また、表皮層(II)は屈曲部を有していてもよい。図5は、表皮層(II)が屈曲部を有する繊維強化樹脂構造体の一実施形態を示した模式図である。本実施形態において、表皮層(II)2および空隙体(I)1からなる構造体は、一定の厚みを有する板状体であり、当該板状体が2箇所の屈曲部によって屈曲形状に賦形されている。表皮層(II)は当該屈曲形状に追従するために約90°屈曲した2箇所の屈曲部3を有している。ここで本発明における屈曲部とは、湾曲面を有する形状であり、例えば成形体の断面形状が円や楕円の一部である形状等が含まれる。屈曲部において、成形圧力が集中しやすいため、スキン層の表面にキズやカスレが発生しやすく、本発明のスキン層の表面にキズやカスレが発生しにくい効果がより顕著に現れる。

20

【実施例】

【0034】

以下、実施例より本発明をさらに詳細に説明する。

30

【0035】

<各種物性の測定方法>

(1)熱可塑性樹脂(B1、B2)の融点

繊維強化樹脂構造体に含浸される熱可塑性樹脂(B1)および熱可塑性樹脂(B2)の融点およびガラス転移温度を次のように評価した。JIS K 7121(1987)に規定される「プラスチックの転移温度測定方法」に準拠して融点およびガラス転移温度を測定した。繊維強化樹脂構造体の作製に用いたシートないし不織布を、炉内温度50°Cで制御された真空乾燥機中で24時間以上乾燥させた後、細かく裁断して試料を準備した。この試料について、示差走査熱量測定装置(NETZSCH社製、DSC 200F3 Maia)を用いて、前記規格による融点を得た。

40

【0036】

(2)繊維強化樹脂構造体の空隙率の測定

繊維強化樹脂構造体の平面部から縦10mm、横10mmに試験片を切り出し、断面を走査型電子顕微鏡(SEM)((株)日立ハイテクノロジーズ製S-4800型)により観察し、構造体の表面から、等間隔に10箇所を1000倍の倍率で撮影した。それぞれの画像について、画像内の空隙の面積を求めた。さらに、空隙の面積を画像全体の面積で除算することにより空隙率を算出した。構造体の空隙の体積含有率は、5枚の試験片でそれぞれ10箇所ずつ撮影した合計50箇所の空隙率から算術平均により求めた。

【0037】

50

(3) 繊維強化樹脂構造体中の空隙体と表皮層の境界面と空隙体厚みと表皮層厚みの測定
繊維強化樹脂構造体の平面部から縦10mm、横10mmに試験片を切り出し、断面を走査型電子顕微鏡(SEM)((株)日立ハイテクノロジーズ製S-4800型)により観察し、樹脂界面の観察と厚みの測定を行った。厚みはランダムに選んだ点5か所における厚みの算術平均により求めた。

【0038】

(4) 繊維強化樹脂構造体の曲げ強度の測定

繊維強化樹脂構造体の平面部から縦10mm、横100mmに試験片を切り出し、JIS K 7017(1999)に準拠して4点曲げ試験を実施し、曲げ強度を測定した。

【0039】

(5) 表皮層(II)の平均表面粗さRa

表面粗さ計を用いて、JIS-B-0601(2001)に基づき、カットオフ値および基準長さを選定し、表皮層における屈曲部の表面粗さRaを求めた。

【0040】

<材料>

[炭素繊維]

ポリアクリロニトリルを主成分とする重合体から紡糸、焼成処理を行い、総フィラメント数12000本の連続炭素繊維を得た。さらに該連続炭素繊維を電解表面処理し、120の加熱空気中で乾燥して強化繊維Iを得た。この炭素繊維の特性は次に示す通りであった。

密度: 1.80g/cm³

単繊維径: 7μm

引張強度: 4.9GPa

引張弾性率: 230GPa。

【0041】

[6mmマット]

強化繊維をカートリッジカッターで6mmにカットし、チョップド強化繊維を得た。水と界面活性剤(ナカライテスク(株)製、ポリオキシエチレンラウリルエーテル(商品名))からなる濃度0.1重量%の分散媒を40リットル作製し、斯かる分散媒を抄造装置に投入した。抄造装置は、回転翼付き攪拌機を備えた上部の抄造槽(容量30リットル)と、下部の貯水槽(容量10リットル)からなり、抄造槽と貯水槽の間には多孔支持体を設けてある。まず、かかる分散媒を攪拌機にて空気の微小気泡が発生するまで攪拌した。その後、所望の目付となるように、重量を調整したチョップド強化繊維を、空気の微小気泡が分散した分散媒中に投入して攪拌することにより、強化繊維が分散したスラリーを得た。次いで、貯水層からスラリーを吸引し、多孔支持体を介して脱水して強化繊維抄造体とした。前記抄造体を熱風乾燥機にて150、2時間の条件下で乾燥させ、強化繊維マットを得た。

【0042】

[PA66シート]

ナイロン66樹脂(東レ(株)製、“アミラン”(登録商標)CM3006)を用いて、目付100g/m²のシートを作製した。

【0043】

[PPSシート]

ポリフェニレンサルファイド樹脂(東レ(株)製、“トレリナ”(登録商標)M2888)を用いて、目付100g/m²のシートを作製した。

【0044】

[PEKKシート()]

ポリエーテルケトンケトン樹脂(アルケマ(株)製、“Kepstan”(登録商標)6003)を用いて、目付100g/m²のシートを作製した。

【0045】

10

20

30

40

50

[P E K Kシート ()]

ポリエーテルケトン樹脂 (アルケマ (株) 製、 “ K e p s t a n ” (登録商標) 8 0 0 3) を用いて、目付 100 g/m^2 のシートを作製した。

【 0 0 4 6 】

[P E E Kシート]

ポリエーテルエーテルケトン樹脂 (ヴィクトレックスジャパン (株) 製、 “ P E E K ” 3 8 1 G) を用いて、目付 100 g/m^2 のシートを作製した。

【 0 0 4 7 】

[P A 6 6 プリプレグ]

開織加工を施した炭素繊維を平行に引き揃え、 1.4 本 / cm の密度で一方向に配列してシート状の強化繊維群を形成した。前記強化繊維群の上に P A 6 6 シートを積層し、 280 に加熱されたプレス機にて 10 MPa の面圧を付与しながら含浸させ、 P P S プリプレグを得た。

10

【 0 0 4 8 】

[P P S プリプレグ]

開織加工を施した炭素繊維を平行に引き揃え、 1.4 本 / cm の密度で一方向に配列してシート状の強化繊維群を形成した。前記強化繊維群の上に P P S シートを積層し、 300 に加熱されたプレス機にて 10 MPa の面圧を付与しながら含浸させ、 P P S プリプレグを得た。

【 0 0 4 9 】

20

[P E K K プリプレグ ()]

開織加工を施した炭素繊維を平行に引き揃え、 1.4 本 / cm の密度で一方向に配列してシート状の強化繊維群を形成した。前記強化繊維群の上に P E K K シート () を積層し、 330 に加熱されたプレス機にて 10 MPa の面圧を付与しながら含浸させ、 P E K K プリプレグ () を得た。

【 0 0 5 0 】

[P E K K プリプレグ ()]

開織加工を施した炭素繊維を平行に引き揃え、 1.4 本 / cm の密度で一方向に配列してシート状の強化繊維群を形成した。前記強化繊維群の上に P E K K シート () を積層し、 380 に加熱されたプレス機にて 10 MPa の面圧を付与しながら含浸させ、 P E K K プリプレグ () を得た。

30

【 0 0 5 1 】

[P E E K プリプレグ]

開織加工を施した炭素繊維を平行に引き揃え、 1.4 本 / cm の密度で一方向に配列してシート状の強化繊維群を形成した。前記強化繊維群の上に P E E K シートを積層し、 360 に加熱されたプレス機にて 10 MPa の面圧を付与しながら含浸させ、 P E E K プリプレグを得た。

【 0 0 5 2 】

(実施例 1 : T s - T c 20 () の場合)

強化繊維 (A 1) として 6 mm マット、熱可塑性樹脂 (B 1) として P A 6 6 シート、表皮層 (I I) として P P S プリプレグを用いた。以下の成形条件を経ることにより繊維強化樹脂構造体を得た。図 6 (a) は用いた曲面部を有するプレス成形用金型の模式図であり、図 6 (b) は当該金型を用いて得られる形状 P の繊維強化樹脂構造体の概観図である。前記金型の寸法は縦 300 mm × 横 200 mm の平面部が付き合わされたものであり、金型表面の平均表面粗さは $0.2\text{ }\mu\text{ m}$ である。

40

(第 1 ステップ) [表皮層 (I I) / 熱可塑性樹脂 (B 1) / 強化繊維 (A 1) / 熱可塑性樹脂 (B 1) / 強化繊維 (A 1) / 熱可塑性樹脂 (B 1)] の順番に積層し、積層前駆体を作製する。前記積層前駆体を、 300 に予熱した屈曲部を有するプレス成形用金型キャビティ内に配置して金型を閉じる。

(第 2 ステップ) 次いで、 120 秒間保持する。

50

(第3ステップ) 280 に冷却し、5 MPaの圧力を付与してさらに60秒間保持する。
 (第4ステップ) 前記金型キャビティを解放し、その末端に金属スペーサーを挿入し、繊維強化樹脂構造体を得る際の膨張倍率が3倍となるように調整する。
 (第5ステップ) その後、再度前記金型キャビティを締結し、圧力を保持した状態でキャビティ温度を50 まで冷却した後、金型を開いて繊維強化樹脂構造体を取り出す。
 得られた繊維強化樹脂構造体の特性を表1に示す。

【0053】

(実施例2: $T_c - T_s = 20$ () の場合)

強化繊維(A1)として6mmマット、熱可塑性樹脂(B1)としてPPSシート、表皮層(II)としてPA66プリプレグを用いた。以下のプレス成形条件を経ることにより繊維強化樹脂構造体を得た。

(第1ステップ) [表皮層(II)/強化繊維(A1)/熱可塑性樹脂(B1)/強化繊維(A1)/熱可塑性樹脂(B1)/強化繊維(A1)]の順番に積層し、積層前駆体を作製する。前記積層前駆体を、300 に予熱したプレス成形用金型キャビティ内に配置して金型を閉じる。

(第2ステップ) 次いで、120秒間保持した後、300 のまま、10 MPaの圧力を付与してさらに60秒間保持する。

(第3ステップ) 金型キャビティを解放し、その末端に金属スペーサーを挿入し、繊維強化樹脂構造体を得る際の膨張倍率が3倍となるように調整する。

(第4ステップ) その後、再度金型キャビティを締結し、圧力を保持した状態でキャビティ温度を280 まで冷却する。

(第5ステップ) その後、0.5 MPaの圧力を付与して、0.2 mm繊維強化樹脂構造体を押し込む。

(第6ステップ) 50 まで冷却した後、金型を開いて繊維強化樹脂構造体を取り出す。
 得られた繊維強化樹脂構造体の特性を表1に示す。

【0054】

(実施例3: $T_s - T_c = 20$ () の場合)

強化繊維(A1)として6mmマット、熱可塑性樹脂(B1)としてPPSシート、表皮層(II)としてPEKKプリプレグを用いた。以下のプレス成形条件を経ることにより繊維強化樹脂構造体を得た。

(第1ステップ) [表皮層(II)/熱可塑性樹脂(B1)/強化繊維(A1)/熱可塑性樹脂(B1)/強化繊維(A1)/熱可塑性樹脂(B1)]の順番に積層し、積層前駆体を作製する。前記積層前駆体を、330 に予熱したプレス成形用金型キャビティ内に配置して金型を閉じる。

(第2ステップ) 次いで、120秒間保持する。

(第3ステップ) 300 に冷却し、8 MPaの圧力を付与してさらに60秒間保持する。

(第4ステップ) 金型キャビティを解放し、その末端に金属スペーサーを挿入し、繊維強化樹脂構造体を得る際の膨張倍率が3倍となるように調整する。

(第5ステップ) その後、再度金型キャビティを締結し、圧力を保持した状態でキャビティ温度を50 まで冷却した後、金型を開いて繊維強化樹脂構造体を取り出す。

得られた繊維強化樹脂構造体の特性を表1に示す。

【0055】

(実施例4: $T_s - T_c = 20$ () の場合)

強化繊維(A1)として6mmマット、熱可塑性樹脂(B1)としてPEKKシート、表皮層(II)としてPEEKプリプレグを用いた。以下のプレス成形条件を経ることにより繊維強化樹脂構造体を得た。

(第1ステップ) [表皮層(II)/熱可塑性樹脂(B1)/強化繊維(A1)/熱可塑性樹脂(B1)/強化繊維(A1)/熱可塑性樹脂(B1)]の順番に積層し、積層前駆体を作製する。前記積層前駆体を、380 に予熱したプレス成形用金型キャビティ内に配置して金型を閉じる。

10

20

30

40

50

(第2ステップ)次いで、120秒間保持する。

(第3ステップ)330 に冷却し、10MPaの圧力を付与してさらに60秒間保持する。

(第4ステップ)金型キャビティを解放し、その末端に金属スペーサーを挿入し、繊維強化樹脂構造体を得る際の膨張倍率が3倍となるように調整する。

(第5ステップ)その後、再度金型キャビティを締結し、圧力を保持した状態でキャビティ温度を50 まで冷却した後、金型を開いて繊維強化樹脂構造体を取り出す。

得られた繊維強化樹脂構造体の特性を表1に示す。

【0056】

(実施例5: $T_c - T_s = 20$ () の場合)

強化繊維(A1)として6mmマット、熱可塑性樹脂(B1)としてPEEKシート、表皮層(II)としてPEKKプリプレグを用いた。以下のプレス成形条件を経ることにより繊維強化樹脂構造体を得た。

(第1ステップ)[表皮層(II)/強化繊維(A1)/熱可塑性樹脂(B1)/強化繊維(A1)/熱可塑性樹脂(B1)/強化繊維(A1)]の順番に積層し、積層前駆体を作製する。前記積層前駆体を、380 に予熱したプレス成形用金型キャビティ内に配置して金型を閉じる。

(第2ステップ)次いで、120秒間保持した後、380 のまま、10MPaの圧力を付与してさらに60秒間保持する。

(第3ステップ)金型キャビティを解放し、その末端に金属スペーサーを挿入し、繊維強化樹脂構造体を得る際の膨張倍率が3倍となるように調整する。

(第4ステップ)その後、再度金型キャビティを締結し、圧力を保持した状態でキャビティ温度を330 まで冷却する。

(第5ステップ)その後、0.5MPaの圧力を付与して、0.2mm繊維強化樹脂構造体を押し込む。

(第6ステップ)50 まで冷却した後、金型を開いて繊維強化樹脂構造体を取り出す。得られた繊維強化樹脂構造体の特性を表1に示す。

【0057】

(実施例6: $T_c - T_s = 20$)

実施例5と同様に繊維強化樹脂構造体を作製した。

【0058】

空隙体の厚さ H_c と表皮層の厚さ H_s の比 H_c/H_s が3となるように、取り出した繊維強化樹脂構造体の空隙体側の表面を約0.4mm切削する。

【0059】

得られた繊維強化樹脂構造体の特性を表1に示す。

【0060】

(実施例7: $T_s - T_c = 20$ () の場合)

繊維強化樹脂構造体を得る際の膨張倍率が1.05倍となるように金属スペーサーを挿入すること以外は実施例1と同様に繊維強化樹脂構造体を作製した。得られた繊維強化樹脂構造体の特性を表1に示す。

【0061】

(実施例8: $T_s - T_c = 20$ () の場合)

繊維強化樹脂構造体を得る際の膨張倍率が20倍となるように金属スペーサーを挿入すること以外は実施例1と同様に繊維強化樹脂構造体を作製した。得られた繊維強化樹脂構造体を表1に示す。

【0062】

(実施例9: $T_s - T_c = 20$ () の場合)

第1ステップにて[表皮層(II)/熱可塑性樹脂(B1)/強化繊維(A1)/熱可塑性樹脂(B1)/強化繊維(A1)/熱可塑性樹脂(B1)/表皮層(II)]の順番に積層し、積層前駆体を作製した以外は実施例1と同様に繊維強化樹脂構造体を作製した

10

20

30

40

50

。得られた繊維強化樹脂構造体を表 1 に示す。

【 0 0 6 3 】

(実施例 1 0 : $T_s - T_c = 20$ () の場合)

第 1 ステップにて [表皮層 (I I) / 熱可塑性樹脂 (B 1) / 強化繊維 (A 1) / 熱可塑性樹脂 (B 1) / 強化繊維 (A 1) / 熱可塑性樹脂 (B 1) / 表皮層 (I I)] の順番に積層し、積層前駆体を作製した以外は実施例 4 と同様に繊維強化樹脂構造体を作製した。得られた繊維強化樹脂構造体を表 1 に示す。

【 0 0 6 4 】

(実施例 1 1)

プレス成形用金型に屈曲部を形成するキャビティ有する金型を用いたこと以外は実施例 1 と同様に繊維強化樹脂構造体を作製した。図 7 (a) は用いたプレス成形用金型の模式図であり、図 7 (b) に当該金型を用いて得られる繊維強化樹脂構造体の形状 Q を示す。前記金型の寸法は縦 3 0 0 m m × 横 2 0 0 m m の平面部が付き合わされた曲率半径 1 2 m m の屈曲部を有するものであり、金型表面の平均表面粗さは 0 . 2 μ m である。得られた繊維強化樹脂構造体を表 1 に示す。ここで表面粗さは屈曲部において測定を行った。

【 0 0 6 5 】

(実施例 1 2)

強化繊維 (A 1) として 6 m m マット、熱可塑性樹脂 (B 1) として P E E K シート、表皮層 (I I) として P E K K プリプレグを用いた。以下の成形条件を経ることにより繊維強化樹脂構造体を得た。

(第 1 ステップ) [強化繊維 (A 1) / 熱可塑性樹脂 (B 1) / 強化繊維 (A 1) / 熱可塑性樹脂 (B 1) / 強化繊維 (A 1)] の順番に積層し、積層前駆体を作製する。前記積層前駆体を、3 8 0 に予熱したプレス成形用金型キャビティ内に配置して金型を閉じる。
(第 2 ステップ) 次いで、1 2 0 秒間保持した後、3 8 0 のまま、1 0 M P a の圧力を付与してさらに 6 0 秒間保持する。

(第 3 ステップ) 金型キャビティを解放し、その末端に金属スペーサーを挿入し、繊維強化樹脂構造体を得る際の膨張倍率が 3 倍となるように調整する。

(第 4 ステップ) その後、0 . 5 M P a の圧力を付与して、0 . 2 m m 繊維強化樹脂構造体を押し込む。

(第 5 ステップ) 5 0 まで冷却した後、金型を開いて空隙体 (I) を取り出す。

(第 6 ステップ) [空隙体 (I) / 表皮層 (I I)] の順番に積層し、オートクレーブ内にて 3 3 0 で加熱加圧する。

(第 7 ステップ) 5 0 まで冷却した後、金型を開いて繊維強化樹脂構造体を取り出す。得られた繊維強化樹脂構造体の特性を表 1 に示す。

【 0 0 6 6 】

(比較例 1)

強化繊維 (A 1) として 6 m m マット、熱可塑性樹脂 (B 1) として P P S シート、表皮層 (I I) として P P S プリプレグを用いた。以下のプレス成形条件を経ることにより繊維強化樹脂構造体を得た。

(第 1 ステップ) [表皮層 (I I) / 熱可塑性樹脂 (B 1) / 強化繊維 (A 1) / 熱可塑性樹脂 (B 1) / 強化繊維 (A 1) / 熱可塑性樹脂 (B 1)] の順番に積層し、積層前駆体を作製する。前記積層前駆体を、3 0 0 に予熱したプレス成形用金型キャビティ内に配置して金型を閉じる。

(第 2 ステップ) 次いで、1 2 0 秒間保持した後、3 0 0 のまま、8 M P a の圧力を付与してさらに 6 0 秒間保持する。

(第 3 ステップ) 金型キャビティを解放し、その末端に金属スペーサーを挿入し、繊維強化樹脂構造体を得る際の膨張倍率が 3 倍となるように調整する。

(第 4 ステップ) その後、再度金型キャビティを締結し、圧力を保持した状態でキャビティ温度を 5 0 まで冷却する。金型を開いて繊維強化樹脂構造体を取り出す。

得られた繊維強化樹脂構造体の特性を表 1 に示す。

10

20

30

40

50

【 0 0 6 7 】

(比較例 2)

強化繊維 (A 1) として 6 mm マット、熱可塑性樹脂 (B 1) として P E E K シート、表皮層 (I I) として P E K K プリプレグ () を用いた。以下のプレス成形条件を経ることにより繊維強化樹脂構造体を得た。

(第 1 ステップ) [表皮層 (I I) / 熱可塑性樹脂 (B 1) / 強化繊維 (A 1) / 熱可塑性樹脂 (B 1) / 強化繊維 (A 1) / 熱可塑性樹脂 (B 1)] の順番に積層し、積層前駆体を作製する。前記積層前駆体を、 3 8 0 に予熱したプレス成形用金型キャビティ内に配置して金型を閉じる。

(第 2 ステップ) 次いで、 1 2 0 秒間保持した後、 3 8 0 のまま、 1 0 M P a の圧力を付与してさらに 6 0 秒間保持する。 10

(第 3 ステップ) 3 5 0 に冷却し、 1 0 M P a の圧力を付与してさらに 6 0 秒間保持する。

(第 4 ステップ) 金型キャビティを解放し、その末端に金属スペーサーを挿入し、繊維強化樹脂構造体を得る際の膨張倍率が 3 倍となるように調整する。

(第 5 ステップ) その後、再度金型キャビティを締結し、圧力を保持した状態でキャビティ温度を 5 0 まで冷却した後金型を開いて繊維強化樹脂構造体を取り出す。

得られた繊維強化樹脂構造体の特性を表 1 に示す。

【 0 0 6 8 】

(比較例 3) 20

プレス成形用金型に屈曲部を形成するキャビティ有する金型を用いたこと以外は比較例 2 と同様に繊維強化樹脂構造体を作製した。図 7 (a) は用いたプレス成形用金型の模式図であり、図 7 (b) に当該金型を用いて得られる繊維強化樹脂構造体の形状 Q を示す。前記金型の寸法は縦 3 0 0 mm × 横 2 0 0 mm の平面部が付き合わされた曲率半径 1 2 mm の屈曲部を有するものであり、金型表面の平均表面粗さは 0 . 2 μ m である。得られた繊維強化樹脂構造体を表 1 に示す。ここで表面粗さは屈曲部において測定を行った。

【 0 0 6 9 】

30

40

50

【表 1 - 1】

【表1-1】

空隙体 【】	実施例1		実施例2		実施例3		実施例4	
	(A1)	強化繊維 6mmマット	6mmマット	6mmマット	6mmマット	6mmマット	6mmマット	6mmマット
空隙体 【】	(B1)	熱可塑性樹脂 PA66シート	PPSシート	PPSシート	PPSシート	PPSシート	PPSシート	PEEKシート(α)
	(B1)の融点Tc	260°C	285°C	285°C	285°C	285°C	285°C	306°C
空隙体 【】	(B1)のガラス転移温度	65°C	93°C	93°C	93°C	93°C	93°C	160°C
	空隙率	66%	66%	66%	66%	66%	66%	66%
表皮層 【】	(A2)	強化繊維	連続繊維	連続繊維	連続繊維	連続繊維	連続繊維	連続繊維
	(B2)	熱可塑性樹脂 PPS	PA66	PA66	PEEK	PEEK	PEEK	PEEK
表皮層 【】	(B2)の融点Ts	285°C	260°C	260°C	306°C	306°C	343°C	343°C
	(B2)のガラス転移温度	93°C	65°C	65°C	160°C	160°C	143°C	143°C
表皮層 【】	形態	PPSプリブレグ	PA66プリブレグ	PA66プリブレグ	PEKKプリブレグα	PEKKプリブレグα	PEEKプリブレグ	PEEKプリブレグ
	融点差 Ts-Tc	25°C	25°C	25°C	21°C	21°C	37°C	37°C
表皮層 【】	部材形状	P	P	P	P	P	P	P
	空隙体厚みと 表皮層厚みの比Hc/Hs	5	5	5	5	5	5	5
表皮層 【】	成形方法	プレス成形	プレス成形	プレス成形	プレス成形	プレス成形	プレス成形	プレス成形
	全体比重	0.38	0.34	0.38	0.38	0.38	0.38	0.38
表皮層 【】	曲げ強度	43MPa	31MPa	46MPa	46MPa	46MPa	48MPa	48MPa
	比強度	113MPa/(g/cm ³)	91MPa/(g/cm ³)	121MPa/(g/cm ³)	121MPa/(g/cm ³)	121MPa/(g/cm ³)	126MPa/(g/cm ³)	126MPa/(g/cm ³)
表皮層 【】	平均表面粗さ	0.42μm	0.63μm	0.37μm	0.37μm	0.37μm	0.24μm	0.24μm
	平均表面粗さ	0.42μm	0.63μm	0.37μm	0.37μm	0.37μm	0.24μm	0.24μm
空隙体 【】	(A1)	強化繊維	6mmマット	6mmマット	6mmマット	6mmマット	6mmマット	6mmマット
	(B1)	熱可塑性樹脂 PA66シート	PEKKシート	PEKKシート(α)	PA66シート	PA66シート	PEEKシート	PEEKシート
空隙体 【】	(B1)の融点Tc	260°C	306°C	306°C	260°C	260°C	343°C	343°C
	(B1)のガラス転移温度	65°C	160°C	160°C	65°C	65°C	143°C	143°C
空隙体 【】	空隙率	66%	66%	66%	66%	66%	66%	66%
	空隙率	66%	66%	66%	66%	66%	66%	66%
表皮層 【】	(A2)	強化繊維	連続繊維	連続繊維	連続繊維	連続繊維	連続繊維	連続繊維
	(B2)	熱可塑性樹脂 PPS	PEEK	PEEK	PPS	PPS	PEEK	PEEK
表皮層 【】	(B2)の融点Ts	285°C	343°C	343°C	285°C	285°C	306°C	306°C
	(B2)のガラス転移温度	93°C	143°C	143°C	93°C	93°C	160°C	160°C
表皮層 【】	形態	PPSプリブレグ	PEEKプリブレグ	PEEKプリブレグ	PPSプリブレグ	PPSプリブレグ	PEEKプリブレグα	PEEKプリブレグα
	融点差 Ts-Tc	25°C	37°C	37°C	25°C	25°C	37°C	37°C
表皮層 【】	部材形状	P	P	P	Q	Q	P	P
	部材形状	(サンドイッチ構造)	(サンドイッチ構造)	(サンドイッチ構造)	(屈曲部釜型)	(屈曲部釜型)	(屈曲部釜型)	(屈曲部釜型)
表皮層 【】	空隙体厚みと 表皮層厚みの比Hc/Hs	5	5	5	5	5	5	5
	空隙体厚みと 表皮層厚みの比Hc/Hs	5	5	5	5	5	5	5
表皮層 【】	成形方法	プレス成形	プレス成形	プレス成形	プレス成形	プレス成形	プレス成形	オートクレーブ
	成形方法	プレス成形	プレス成形	プレス成形	プレス成形	プレス成形	プレス成形	オートクレーブ
表皮層 【】	全体比重	0.38	0.38	0.38	0.38	0.38	0.39	0.39
	全体比重	0.38	0.38	0.38	0.38	0.38	0.39	0.39
表皮層 【】	曲げ強度	55MPa	62MPa	62MPa	43MPa	43MPa	46MPa	46MPa
	曲げ強度	55MPa	62MPa	62MPa	43MPa	43MPa	46MPa	46MPa
表皮層 【】	比強度	145MPa/(g/cm ³)	163MPa/(g/cm ³)	163MPa/(g/cm ³)	113MPa/(g/cm ³)	113MPa/(g/cm ³)	117MPa/(g/cm ³)	117MPa/(g/cm ³)
	比強度	145MPa/(g/cm ³)	163MPa/(g/cm ³)	163MPa/(g/cm ³)	113MPa/(g/cm ³)	113MPa/(g/cm ³)	117MPa/(g/cm ³)	117MPa/(g/cm ³)
表皮層 【】	平均表面粗さ	0.45μm	0.26μm	0.26μm	0.46μm	0.46μm	0.47μm	0.47μm
	平均表面粗さ	0.45μm	0.26μm	0.26μm	0.46μm	0.46μm	0.47μm	0.47μm

【0070】

【表 1 - 2】

【表1-2】		実施例5	実施例6	実施例7	実施例8
空隙体 【】	(A1) 強化繊維	6mmマット	6mmマット	6mmマット	6mmマット
	(B1) 熱可塑性樹脂 (B1)の融点Tc	PEEKシート 34.3°C	PEEKシート 34.3°C	PA66シート 26.0°C	PA66シート 26.0°C
	(B1)のガラス転移温度	14.3°C	14.3°C	6.5°C	6.5°C
	空隙率	66%	66%	5%	95%
表皮層 【(】	(A2) 強化繊維	連続繊維	連続繊維	連続繊維	連続繊維
	(B2) 熱可塑性樹脂 (B2)の融点Ts	PEEK 30.6°C	PEEK 30.6°C	PPS 28.5°C	PPS 28.5°C
	(B2)のガラス転移温度	16.0°C	16.0°C	9.3°C	9.3°C
	形態	PEKKプリブレグα	PEKKプリブレグα	PPSプリブレグ	PPSプリブレグ
積層 構造体	融点差 Ts - Tc	3.7°C	3.7°C	2.5°C	2.5°C
	部材形状	P	P	P	P
	空隙体厚みと 表皮層厚みの比Hc/Hs	5	3	5	5
	成形方法	プレス成形	プレス成形	プレス成形	プレス成形
積層 構造体	全体比重	0.39	0.49	1.1	0.11
	曲げ強度	46MPa	47MPa	50MPa	12MPa
	比強度	117MPa/(g/cm ³)	96MPa/(g/cm ³)	45MPa/(g/cm ³)	109MPa/(g/cm ³)
	平均表面粗さ	0.52μm	0.52μm	0.38μm	0.48μm
空隙体 【(】	(A1) 強化繊維	6mmマット	比較例1	比較例2	比較例3
	(B1) 熱可塑性樹脂 (B1)の融点Tc	PPSシート 2.8.5°C	6mmマット	PEEKシート 34.3°C	6mmマット
	(B1)のガラス転移温度	9.3°C	14.3°C	14.3°C	14.3°C
	空隙率	66%	66%	66%	66%
表皮層 【(】	(A2) 強化繊維	連続繊維	連続繊維	連続繊維	連続繊維
	(B2) 熱可塑性樹脂 (B2)の融点Ts	PPS 2.8.5°C	PEEK 3.5.8°C	PEEK 3.5.8°C	PEEK 3.5.8°C
	(B2)のガラス転移温度	9.3°C	16.5°C	16.5°C	16.5°C
	形態	PPSプリブレグ	PEKKプリブレグ(β)	PEKKプリブレグ(β)	PEKKプリブレグ(β)
積層 構造体	融点差 Ts - Tc	0°C	1.5°C	1.5°C	1.5°C
	部材形状	P	P	Q (屈曲部歪型)	Q (屈曲部歪型)
	空隙体厚みと 表皮層厚みの比Hc/Hs	5	5	5	5
	成形方法	プレス成形	プレス成形	プレス成形	プレス成形
積層 構造体	全体比重	0.38	0.38	0.38	0.38
	曲げ強度	45MPa	52MPa	52MPa	52MPa
	比強度	118MPa/(g/cm ³)	137MPa/(g/cm ³)	137MPa/(g/cm ³)	137MPa/(g/cm ³)
	平均表面粗さ	13.6μm	11.2μm	20.0μm	20.0μm

10

20

30

【0071】

いずれの実施例においても、空隙体と表皮層に用いられる熱可塑性樹脂の融点に20以上の差があるため、表皮層または空隙体の片方のみを溶融した状態で賦形することができた。結果、空隙体の前駆体の膨張によって表皮層が流動しなかったため、屈曲部の表面粗さが10μm以下の良好な表面品位を有する繊維強化樹脂構造体を得ることができた。また、実施例4、5では空隙体のガラス転移温度が120以上の熱可塑性樹脂を使用しており、高温下での連続使用において、実施例4、5の繊維強化樹脂構造体の実施例1、2の繊維強化樹脂構造体よりも優れていることは明らかである。実施例6では空隙体の厚みを表皮層の厚みに対して小さくした結果、密度が高くなり、厚み構成によって比強度の改善が可能であることが示唆された。実施例7および実施例8においては、表皮層を固化した状態で空隙体の前駆体を膨張させ、賦形できたため、良好な外観品位を有する繊維強化樹脂構造体を得られたが、空隙率により、比重および曲げ強度が改善可能であることが示唆された。実施例9および実施例10においては、表皮層を空隙体の両面に積層したため、さらに曲げ強度に優れた良好な表面品位を有する繊維強化樹脂構造体を得ることがで

40

50

きた。実施例 1 1 においては、屈曲部を有する形状に賦形したが、表皮層が固化した状態で空隙体の前駆体を膨張させ賦形できたため、屈曲部への荷重集中による表皮層の流動が起きずに屈曲部の表面粗さが $10 \mu\text{m}$ 以下の良好な表面品位を有する繊維強化樹脂構造体を得ることができた。実施例 1 2 においては、空隙体と表皮層の積層体をオートクレーブで成形したが、空隙体を固化した状態で表皮層の賦形ができたため、表面粗さが $10 \mu\text{m}$ 以下の良好な表面品位を有する繊維強化樹脂構造体を得ることができた。一方比較例 1 においては空隙体に用いられる熱可塑性樹脂の融点と表皮層に用いられる熱可塑性樹脂の融点と同じであったため、賦形時に空隙体と表皮層が同時に流動し、表皮層における表面粗さが $10 \mu\text{m}$ 以上となり、繊維強化樹脂構造体の表面品位が不十分である様子が伺えた。比較例 2 においては、熱可塑性樹脂の融点の差が 15 であったため、本発明の効果が十分に発揮されず、表面粗さが $10 \mu\text{m}$ より大きいものであった。比較例 3 においては、熱可塑性樹脂の融点の差が 15 であったため、本発明の効果が十分に発揮されず、さらに屈曲部に荷重集中し、比較例 2 からさらに表面粗さが大きいものとなった。

10

【符号の説明】

【 0 0 7 2 】

- 1 . 空隙体
- 2 . 表皮層
- b . 空隙体の断面
- 3 . 強化繊維 (A 1)
- 4 . 空隙
- 5 . 熱可塑性樹脂 (B 1)
- 6 . 屈曲部
- 7 . 上型
- 8 . 下型
- 9 . 繊維強化樹脂成形体形状

20

30

40

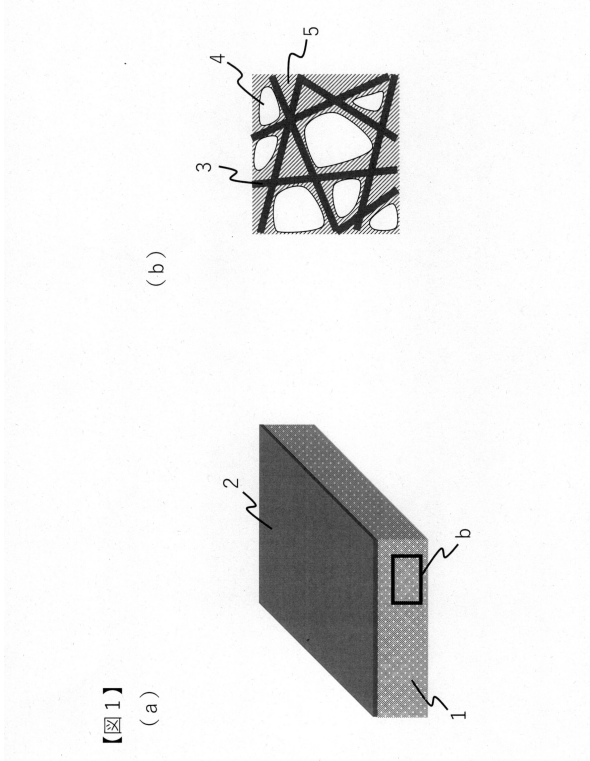
50

【要約】

軽量で力学特性に優れた繊維強化樹脂構造体において、その表面品位を良好に保つ。強化繊維（A 1）と熱可塑性樹脂（B 1）からなる空隙体（I）と、強化繊維（A 2）と熱可塑性樹脂（B 2）からなる表皮層（I I）が一体化した繊維強化樹脂構造体であって、熱可塑性樹脂（B 1）の融点 T_c （ ）と熱可塑性樹脂（B 2）の融点 T_s （ ）がともに 230 以上であり、 T_c （ ）と T_s （ ）が $T_c - T_s \geq 20$ （ ）または $T_s - T_c \geq 20$ （ ）のいずれかである、繊維強化樹脂構造体である。

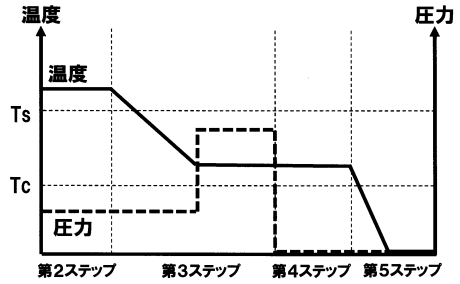
【図面】

【図 1】



【図 2】

【図 2】



10

20

30

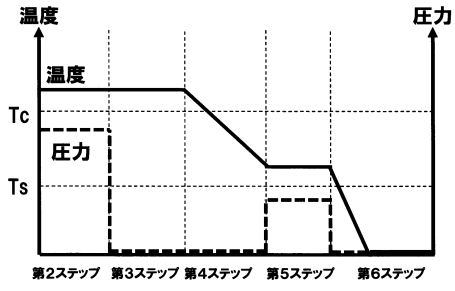
40

50

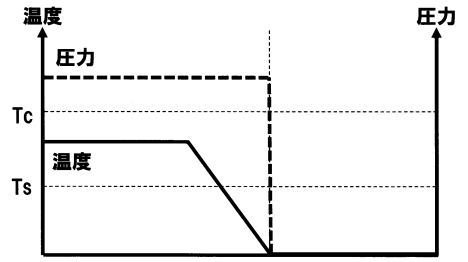
【図3】

【図4】

【図3】

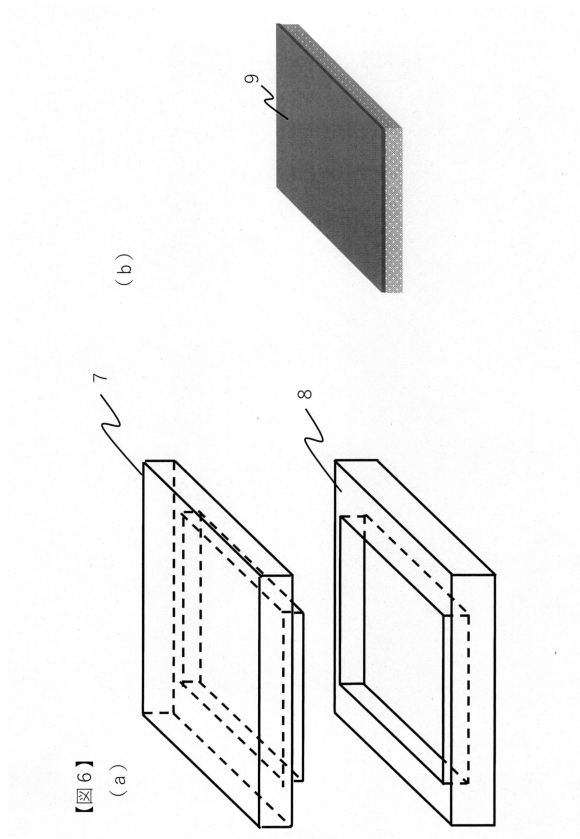
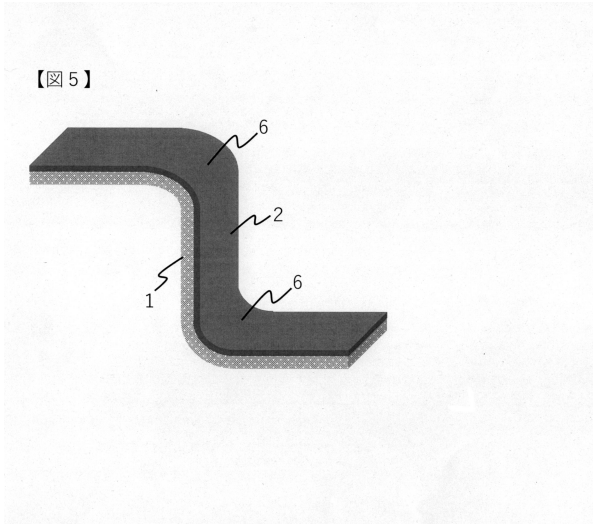


【図4】



【図5】

【図6】



10

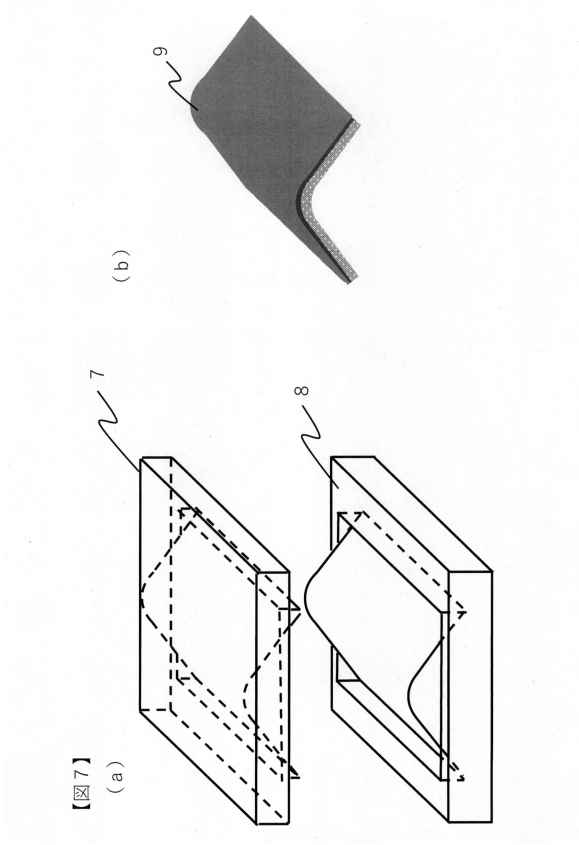
20

30

40

50

【図7】



10

20

30

40

50

フロントページの続き

- (51)国際特許分類
- | | | | |
|----------------|-----------------------|---------|--------|
| | F I | | |
| B 3 2 B | 7/027(2019.01) | B 3 2 B | 7/027 |
| B 2 9 K | 101/12 (2006.01) | B 2 9 K | 101:12 |
- (56)参考文献 特開 2 0 2 0 - 1 9 2 8 0 9 (J P , A)
特開 2 0 2 1 - 0 9 1 2 0 4 (J P , A)
特開 2 0 2 0 - 1 6 3 6 7 4 (J P , A)
- (58)調査した分野 (Int.Cl. , D B 名)
- B 2 9 C
B 3 2 B