

(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
2015年8月20日(20.08.2015)



(10) 国際公開番号
WO 2015/122366 A1

- (51) 国際特許分類:
B29B 11/16 (2006.01) C08L 101/00 (2006.01)
B29B 15/08 (2006.01) B29K 101/12 (2006.01)
C08K 7/06 (2006.01) B29K 105/06 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2015/053353
- (22) 国際出願日: 2015年2月6日(06.02.2015)
- (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 2014-026968 2014年2月14日(14.02.2014) JP
- (71) 出願人: 帝人株式会社(TEIJIN LIMITED) [JP/JP];
〒5410054 大阪府大阪市中央区南本町1丁目6番7号 Osaka (JP).
- (72) 発明者: 鈴木 秀平(SUZUKI Shuhei); 〒5410054 大阪府大阪市中央区南本町1丁目6番7号 帝人株式会社内 Osaka (JP). 藤井 嵩也(FUJII Takaya);
〒5410054 大阪府大阪市中央区南本町1丁目6番7号 帝人株式会社内 Osaka (JP). 横溝 穂高

(YOKOMIZO Hodaka); 〒5410054 大阪府大阪市中央区南本町1丁目6番7号 帝人株式会社内 Osaka (JP). 青木 秀憲(AOKI Hidenori); 〒5410054 大阪府大阪市中央区南本町1丁目6番7号 帝人株式会社内 Osaka (JP).

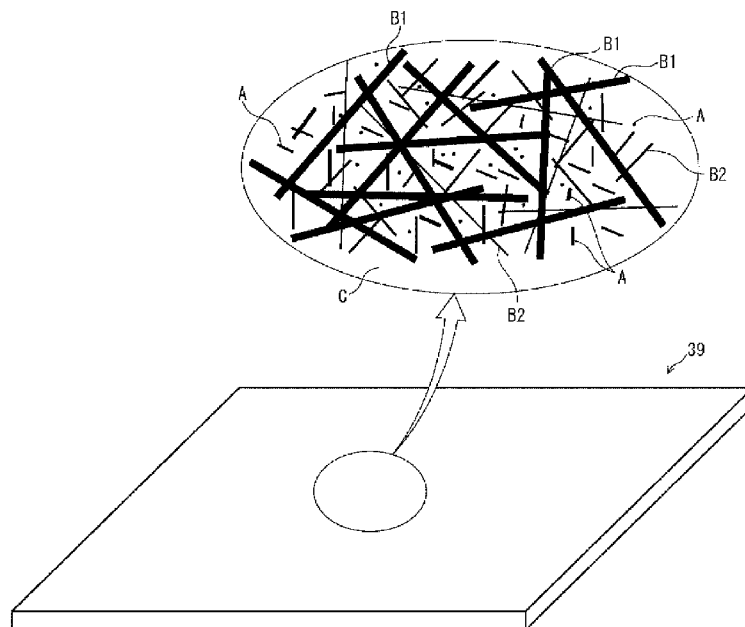
(74) 代理人: 高松 猛, 外(TAKAMATSU Takeshi et al.);
〒1050003 東京都港区西新橋一丁目7番13号 虎ノ門イーストビルディング9階 航栄特許事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, 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.

[続葉有]

(54) Title: CARBON FIBER REINFORCED MOLDING MATERIAL AND MOLDED BODY

(54) 発明の名称: 炭素繊維強化成形材料及び成形体



(57) Abstract: A plate-shaped carbon fiber reinforced molding material including a thermoplastic resin, carbon fibers (A), and carbon fibers (B). i) The carbon fibers (A) have a fiber length of at least 0.01 mm but less than 3 mm. ii) The carbon fibers (B) have a fiber length of at least 3 mm but less than 100 mm. iii) $1.0 < Lw_A / Ln_A < 3$, when the weight-average fiber length of the carbon fibers (A) is Lw_A , and the number-average fiber length is Ln_A . iv) The carbon fibers (B) are randomly arranged in a two-dimensional direction.

(57) 要約: 熱可塑性樹脂と、炭素繊維(A)と、炭素繊維(B)とを含む板状の炭素繊維強化成形材料であって、 i) 炭素繊維(A)は繊維長が0.01mm以上3mm未満であり、 ii) 炭素繊維(B)は繊維長が3mm以上100mm未満であり、 iii) 炭素繊維(A)の重量平均繊維長を Lw_A 、数平均繊維長を Ln_A とそれぞれしたときに、 $1.0 < Lw_A / Ln_A < 3$ であり、 iv) 炭素繊維(B)が2次元方向にランダム配向された、炭素繊維強化成形材料。

WO 2015/122366 A1



(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:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：炭素繊維強化成形材料及び成形体

技術分野

[0001] 本発明は、炭素繊維強化成形材料及びその成形体に関するものである。

背景技術

[0002] 炭素繊維で強化された複合材料は、その高い比強度・比弾性率を利用して、航空機や自動車などの構造材料や、テニスラケット、ゴルフシャフト、釣竿などの一般産業やスポーツ用途等に広く利用されてきた。これらに用いられる炭素繊維の形態としては、連続繊維を用いて作られる織物や、1方向に繊維が引き揃えられたUDシート、カットした繊維を用いて作られるランダムシート、不織布等がある。

[0003] 近年、従来の熱硬化性樹脂に代わり、熱可塑性樹脂をマトリックスに用いたコンポジットが注目されているが、そのほとんどは射出成形により成形体を製造するものであり（例えば特許文献1）、溶融混練する際に繊維長が短くなってしまい、機械強度に劣るものであった。

[0004] さらに、不連続長繊維からなるマットに熱可塑性樹脂を含浸させた成形用基材を熱可塑性樹脂の融点以上に加熱し、融点以下もしくはガラス転移温度以下に調整された金型に投入後、型締めにて賦形する成形方法が開発されている。

強化繊維複合材料においては、特許文献2にあるように、不連続長繊維を不織布状にXY方向（平面方向）に分散させたマット状基材を成形して得られる成形品は機械的強度に優れることが公知である。

[0005] 特許文献3には、長さ20mm以上の炭素繊維に対して、炭素微細繊維であるカーボンナノチューブやカーボンナノファイバーを添加したハイブリッド炭素繊維強化熱可塑性樹脂複合材が記載されており、高い曲げ強度や繊維軸に対して横方向に高い強度を有するプリプレグが提供されている。この理由として、微細炭素繊維が母相をなす熱可塑性樹脂の圧縮弾性率を高めるた

め、曲げ応力を受けた場合、圧縮側の変形を抑制し、炭素繊維の座屈を抑制することで、圧縮破壊モードを防止することにより炭素繊維の高い引張強度を有効にすることと、微細炭素繊維が炭素繊維の軸方向に対して、配向性が低く、炭素繊維の補強効果が期待できない軸方向に対して横方向の強化作用を有するためと考察されている。

[0006] また、特許文献4及び5には、長さの異なる2種の強化繊維と、熱可塑性樹脂を用いた繊維強化材料が記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：日本国特開2011-57811号公報

特許文献2：国際公開第2013/094706号

特許文献3：日本国特開2011-213797号公報

特許文献4：日本国特開平10-323829号公報

特許文献5：日本国特開2011-157524号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] しかしながら上記特許文献2では、長繊維成分の一部を流動性が良好である短繊維成分に置き換えることにより繊維強化複合材料の流動性を向上させているが、流動性の向上に伴い、本来長繊維成分が有する優れた機械的強度が低減している。特に、高い機械的物性が要求される用途においては、高い強化繊維含有率が要求されるが、流動性を維持したまま機械的特性を向上させる手法について解決されていない。

特許文献3のように、カーボンナノチューブやカーボンナノファイバーを使用した場合、繊維長が短すぎて熱可塑性樹脂の増粘やゲル化を引き起こしやすく、成形時に流動させることが難しかった。

また、特許文献4及び5のように、長さの異なる2種の強化繊維を用いた場合であっても、特に、短い方の強化繊維の繊維長が一定の場合は、成形し

た際の外観、特にボスやリブへの強化繊維の充填性に劣ることが分かった。

[0009] 本発明の目的は、炭素繊維と熱可塑性樹脂とを含む成形材料であって、機械的強度に優れ、かつ流動性にも優れる成形材料を提供すること、及び、この成形材料を成形して得られる機械的強度に優れる成形体を提供することにある。

[0010] 本発明者らは上記課題を解決すべく鋭意検討した結果、不連続長繊維マットの有する機械的強度を大きく損なうことなく、流動性を向上させることが可能となり、上記課題を達成することができた。

課題を解決するための手段

[0011] 本発明者らは鋭意検討した結果、以下に示す手段により、上記課題を解決できることを見出し、本発明に到達した。

[0012] <1>

熱可塑性樹脂と、炭素繊維（A）と、炭素繊維（B）とを含む板状の炭素繊維強化成形材料であって、

i) 炭素繊維（A）は繊維長が0.01mm以上3mm未満であり、

i i) 炭素繊維（B）は繊維長が3mm以上100mm未満であり、

i i i) 炭素繊維（A）の重量平均繊維長を Lw_A 、数平均繊維長を Ln_A とそれぞれしたときに、 $1.0 < Lw_A / Ln_A < 3$ であり、

i v) 炭素繊維（B）が2次元方向にランダム配向された、炭素繊維強化成形材料。

<2>

前記炭素繊維（A）が3次元方向にランダム配向された<1>に記載の炭素繊維強化成形材料。

<3>

前記炭素繊維（B）の重量平均繊維長を Lw_B 、数平均繊維長を Ln_B とそれぞれしたときに、

$1.0 \leq Lw_B / Ln_B < 1.2$

である、<1>又は<2>に記載の炭素繊維強化成形材料。

<4>

前記炭素繊維（A）と前記炭素繊維（B）の重量割合（%）が、

5 : 95 ~ 95 : 5

である、<1>~<3>のいずれか1項に記載の炭素繊維強化成形材料。

<5>

1) 炭素繊維（B）は下記式（1）で定義される臨界単糸数未満の繊維束及び単糸と、臨界単糸数以上で構成される炭素繊維束（B1）とを含んでなり、

2) 炭素繊維強化成形材料に含まれる炭素繊維（B）全量に対する炭素繊維束（B1）の割合が、5 Vol %以上95 Vol %未満であり、

3) 炭素繊維束（B1）中の平均繊維数（ N_B ）が下記式（2）を満たす、<1>~<4>いずれか1項に記載の炭素繊維強化成形材料。

$$\text{臨界単糸数} = 600 / D_B \quad (1)$$

$$0.43 \times 10^4 / D_B^2 < N_B < 6 \times 10^5 / D_B^2 \quad (2)$$

（ここで D_B は炭素繊維（B）の平均繊維径（ μm ）である）

<6>

曲げ強度 S が、 $q S_a + (1 - q) S_b$ の0.8倍以上である、<1>~<5>いずれか1項に記載の炭素繊維強化成形材料。

ただし、

S_a : 炭素繊維（A）と熱可塑性樹脂とからなる成形材料（A）の曲げ強度

S_b : 炭素繊維（B）と熱可塑性樹脂とからなる成形材料（B）の曲げ強度

q : 炭素繊維（A）と炭素繊維（B）との全量に対する炭素繊維（A）の重量含有割合

<7>

<1>~<6>のいずれか1項に記載の炭素繊維強化成形材料を用いて成形した成形体であり、

成形体の板厚が最小の部分の板厚を最小板厚 T (mm) としたとき、

(a) 炭素繊維 (A) の数平均繊維長 L_{nA} が $T/2$ (mm) 未満であり、

(b) 炭素繊維 (B) の数平均繊維長 L_{nB} が T (mm) 以上である、

成形体。

< 8 >

前記最小板厚 T (mm) が、1 mm 以上である < 7 > に記載の成形体。

< 9 >

< 1 > ~ < 6 > のいずれか 1 項に記載の炭素繊維強化成形材料を用いて成形した成形体であり、

成形体の板厚方向の断面を観察した際、以下で定義される炭素繊維束 (A1) の面積割合が、炭素繊維 (A) 全体の面積に対して 0 % 超 50 % 以下である成形体。

ここで、炭素繊維束 (A1) は、炭素繊維 (A) に属し、繊維束中の繊維の数が $35/D_A$ 以上で観察される炭素繊維束 (ここで D_A は炭素繊維 (A) の平均繊維径 (μm) である。) である。

発明の効果

[0013] 本発明によれば、炭素繊維と熱可塑性樹脂とを含む成形材料であって、機械的強度に優れ、かつ流動性にも優れる成形材料を提供すること、及び、この成形材料を成形して得られる機械的強度に優れる成形体を提供することができる。

本発明における成形材料は、繊維長が 0.01 mm 以上 3 mm 未満の炭素繊維 (A) と、繊維長が 3 mm 以上 100 mm 未満の炭素繊維 (B) とを含むが、比較的長い炭素繊維 (B) を含んでいても、成形時の流動性を阻害することなく、容易に機械的物性を向上させたものであるため、高い剛性・強度及び意匠性が要求される部品への適用が可能である。

特に、炭素繊維 (A) の繊維長分布をブロードな範囲に分布させることにより、高い剛性・強度を維持したまま、流動性の向上を両立することができる。

本発明の成形体は、薄肉化や等方化が可能であるので、各種構成部材、例えば自動車の内板、外板、構造部材、また、各種電気製品、機械のフレームや筐体等に用いることができる。

図面の簡単な説明

[0014] [図1]成形材料の成形方法の一例を示す一部の工程を示す概略図である。

[図2]カット工程の概略図である。

[図3]成形材料を用いた成形体の一例を示す模式図である。

[図4]成形材料の一例とその表面観察時の概略図である。

[図5]成形材料の一例を示す概略図である。

[図6]炭素繊維（A）と炭素繊維（B）の合計量に対する炭素繊維（A）の割合と機械強度との関係を示す模式図である。

[図7]炭素繊維（A）と炭素繊維（B）の合計量に対する炭素繊維（A）の割合と曲げ強度との関係を、実施例と比較例よりグラフにした図である。

[図8]炭素繊維（A）が一定長である成形材料 11-1 と、炭素繊維（A）の繊維長分布がブロードな成形材料 11-2 とを示す概略図である。

発明を実施するための形態

[0015] <概要>

《成形材料》

本発明の一態様である成形材料は、熱可塑性樹脂と、炭素繊維（A）と、炭素繊維（B）とを含む板状の炭素繊維強化成形材料であって、

i) 炭素繊維（A）は繊維長が0.01mm以上3mm未満であり、

i i) 炭素繊維（B）は繊維長が3mm以上100mm未満であり、

i i i) 炭素繊維（A）の重量平均繊維長を L_{wA} 、数平均繊維長を L_{nA} とそれぞれしたときに、 $1.0 < L_{wA} / L_{nA} < 3$ であり、

i v) 炭素繊維（B）が2次元方向にランダム配向された、

炭素繊維強化成形材料（炭素繊維強化熱可塑性樹脂成形材料）である。

[0016] 本発明の炭素繊維強化成形材料（単に「成形材料」ともいう）は、同一の板状の熱可塑性樹脂中に炭素繊維（A）と炭素繊維（B）とが含まれるもの

であり、好ましくは、成形材料を面に平行に切った断面に、炭素繊維（A）と炭素繊維（B）とが含まれるものである。例えば、熱可塑性樹脂中に炭素繊維（A）を含んだ層と、これとは別の熱可塑性樹脂中に炭素繊維（B）を含んだ層とが積層されたような成形材料は含まない。

但し、1つの板状の熱可塑性樹脂中に炭素繊維（A）と炭素繊維（B）とが含まれるものを複数枚積層したものは本発明の一態様である成形材料に含まれる。

[0017] 〔炭素繊維（A）〕

（種類）

炭素繊維（A）としては、一般的にポリアクリロニトリル（PAN）系炭素繊維、石油・石炭ピッチ系炭素繊維、レーヨン系炭素繊維、セルロース系炭素繊維、リグニン系炭素繊維、フェノール系炭素繊維、気相成長系炭素繊維などが知られているが、これらのいずれの炭素繊維であっても好適に用いることができる。

なかでも、ポリアクリロニトリル（PAN）系炭素繊維を用いることが好ましく、引張弾性率は100GPa以上600GPa以下の範囲内であることが好ましく、200GPa以上500GPa以下の範囲内であることがより好ましく、230GPa以上450GPa以下の範囲内であることがさらに好ましい。また、引張強度は2000MPa以上10000MPa以下の範囲内であることが好ましく、3000MPa以上8000MPa以下の範囲内であることがより好ましい。

[0018] （成形材料に含まれる炭素繊維（A）の繊維長）

成形材料に含まれる炭素繊維のうち、繊維長が0.01mm以上3mm未満のものを炭素繊維（A）と定義する。なお、繊維長が3mm以上100mm未満のものは炭素繊維（B）に分類される。

[0019] 1. 重量平均繊維長 L_{wA} の範囲

炭素繊維（A）の重量平均繊維長 L_{wA} に特に限定はないが、下限は0.05mm以上が好ましく、0.1mm以上がより好ましく、0.2mm以上が

更に好ましい。炭素繊維（A）の重量平均繊維長 L_w が0.05 mm以上であると、機械強度が担保される。

一方、炭素繊維（A）の重量平均繊維長 L_w の上限は2 mm未満が好ましく、1 mm未満がより好ましく、0.5 mm未満が更に好ましい。なお、炭素繊維（A）の重量平均繊維長 L_w は、後述の式（3）、（4）により求められる。

[0020] 2. 数平均繊維長 L_n

一般に、個々の炭素繊維の繊維長を L_i とすると、成形材料中の数平均繊維長 L_n と重量平均繊維長 L_w は、以下の式（3）、（4）により求められる。なお、数平均繊維長 L_n と重量平均繊維長 L_w の単位は、mmである。

$$L_n = \sum L_i / I \quad (3)$$

$$L_w = (\sum L_i^2) / (\sum L_i) \quad (4)$$

ここで、「I」は、測定した炭素繊維の数を示す。

[0021] 3. 重量平均繊維長 L_w と数平均繊維長 L_n の比

一般に、炭素繊維の重量平均繊維長 L_w と数平均繊維長 L_n の比である L_w/L_n は、炭素繊維の繊維長の分布幅を示す尺度である。例えば、全ての炭素繊維の繊維長が同じであれば、 L_w/L_n は1となり、繊維長の分布が広い程 L_w/L_n は大きくなる。

炭素繊維（A）について、 L_w/L_n の範囲は、1.0超3未満であり、より好ましくは1.3以上2.8未満であり、さらに好ましくは1.6以上2.4未満である。

炭素繊維（A）は繊維長分布に幅がある（所謂、ブロードである）ことが好ましい。炭素繊維（A）の繊維長が分布を持って存在することにより、成形材料の層間せん断強度が上がるという効果が期待できる。明確な理由は不明であるが、繊維長分布がブロードであること（つまり、 L_w/L_n が、1.0超3未満であること）により、炭素繊維（A）間の隙間のうち、大きい隙間には繊維長の長い炭素繊維（A）が、小さい隙間には繊維長の短い炭素繊維（A）が、それぞれ選択的に適宜入り込みやすいためだと想定している

。すなわち、炭素繊維（A）の繊維長分布がブロードになっていると、狭い空間内には、細かい炭素繊維（A）が入りこみ、充填率が上がる為だと想定している。

図8に、炭素繊維（A）が一定長である成形材料11-1と、炭素繊維（A）の繊維長分布がブロードな成形材料11-2とを模式的に示した。成形材料11-2が本発明の成形材料の一例として挙げられる。

[0022] 4. 数平均繊維長 L_{nA} と成形体の板厚の関係

本発明の成形材料を用いて成形した成形体において、成形体の板厚が最小の部分の板厚を最小板厚 T （mm）としたとき、炭素繊維（A）の数平均繊維長 L_{nA} は、 $T/2$ （mm）未満であることが好ましい。成形材料中の数平均繊維長 L_{nA} も、成形体としたときに炭素繊維（A）の数平均繊維長 L_{nA} が $T/2$ （mm）未満になるように、存在するのが好ましい。

[0023] 5. 3次元方向のランダム配向

炭素繊維（A）は3次元方向にランダムに配向されていることが好ましい。3次元方向へのランダム配向とは、互いに直交する特定の3次元方向への炭素繊維の配向が、他の方向への配向に比べて差が少ないことを意味している。つまり、互いに直交する任意の3次元方向に同じような割合で炭素繊維（A）が向いており、成形材料内において、面内方向、板厚方向において、任意のすべての方向におおよそ均一に炭素繊維（A）が分散していることを意味する。

評価は、互いに3次的に直交する各面において観察される炭素繊維（A）の断面数で行っている。詳細な評価方法は後述する。また、炭素繊維（A）が3次元方向にランダム配向していることにより、機械強度、なかでも曲げ強度に優れる。

[0024] 6. 形態

炭素繊維（A）の形態は特に限定されるものではない。

「炭素繊維」は、形態として、単糸状のものも、複数の単糸が集合した束状のものも含むものであるが、一般的に市販されている炭素繊維としては、

1000本以上10万本以下（好ましくは数千本以上数万本以下）の単糸が集合した繊維束状となっているものが多い。

このような炭素繊維をそのまま使用すると、繊維束の交絡部が局部的に厚くなり、薄肉の成形材料を得ることが困難になる場合がある。これを避けるために、例えば、炭素繊維の繊維束を拡幅したり、繊維束を開繊したりして使用することが多い。

したがって、炭素繊維（A）の形態は、単糸状でも繊維束状であってもよく、さらに両者が混在していてもよいが、成形材料の流動性向上の観点からは、単糸状のものを多く含んだものを用いることが好ましい。

[0025] （1）炭素繊維束（A1）

炭素繊維（A）には、特定本数以上の炭素繊維からなる炭素繊維束（A1）が含まれていることが好ましい。この炭素繊維束（A1）は、炭素繊維（A）に属し、繊維束中の繊維の数が $35/D_A$ 以上の炭素繊維束である。

D_A は炭素繊維（A）の平均繊維径であり、単位は μm である。

[0026] （2）炭素繊維束（A1）の面積割合

成形材料は、その成形材料を用いて成形された成形体において、板厚方向（例えば、図5のZ方向である）の断面を観察した際、上述した炭素繊維束（A1）の面積割合が炭素繊維（A）全体に対して0%超50%以下の範囲になるように、炭素繊維束（A1）を有することが好ましい。なお、「板厚方向の断面」とは、板厚方向と直交する面と同一面内にある断面をいう。図5において、板厚方向（Z方向）の断面とは、XZ平面、及びYZ平面である。

[0027] 炭素繊維束（A1）の面積割合が、炭素繊維（A）全体の面積に対して50%以下であると、単糸状の炭素繊維が多く存在することになり、機械強度、特に曲げ強度を、維持しやすくなる。

炭素繊維束（A1）の面積割合は、炭素繊維（A）全体に対して0%超、30%以下の範囲内であることが好ましく、0%超15%以下の範囲内であることがより好ましい。

特定本数以上の炭素繊維からなる炭素繊維束（A1）と、それ以外の開繊された炭素繊維又は炭素繊維束を特定の比率で共存させることで、成形材料や成形体中の炭素繊維（A）の存在量、すなわち炭素繊維（A）の繊維体積含有率 V_f （単位は、 V_o %である。）を高めることが可能となる。

炭素繊維（A）に単糸状のものを多く含み、成形体としたときに、炭素繊維束（A1）の面積割合が炭素繊維（A）全体の面積に対して0%超50%以下にする方法に特に限定はないが、例えば、空気開繊や、水分散による抄紙方法が挙げられる。また、後述の粒材（R）を熔融混練することで、炭素繊維（A）に単糸を多く含ませることができる。

[0028] 7. 炭素繊維（A）の入手方法

炭素繊維（A）の製法について特に限定はなく、例えば、以下の例のような方法がある。

成形材料に炭素繊維（A）を用いるに当たり、市販されている炭素繊維含有樹脂ペレットや、炭素繊維強化熱可塑性樹脂複合材料（成形材料及び成形体を含む。）の製造過程で得られた端材などを用いてもよい。

炭素繊維含有樹脂ペレットの例としては、株式会社ダイセル 長繊維強化樹脂プラストロン（登録商標）等がある。端材を用いる例としては、特開2011-178891号公報及び特開2011-178890号公報等に記載の二次元等方の複合材料並びに特開2012-236897号公報に記載の一方向材複合材料等を市販のプラスチック粉砕機で粉砕してなる粉砕材（以下、単に「粉砕材」と称することがある）等がある。本明細書において、市販されている炭素繊維樹脂ペレットや粉砕材等を総称して、粒材（R）と記載する。

粒材（R）を熱可塑性樹脂等と熔融混練して作成した樹脂ペレットとして炭素繊維（A）を準備する場合、混練時のせん断力により、単糸状の繊維を多く含む炭素繊維（A）を得ることができる。

複合材料を製造又は成形する際に出る端材から粒材（R）を準備すれば、製造コストを低減でき省資源や地球環境保全に貢献することができる。

当然のことではあるが、予め作成した炭素繊維強化熱可塑性樹脂複合材料に含まれる炭素繊維の形態が単糸状であった場合、これを粉砕した粉砕材には単糸状の炭素繊維が含まれているため、例えば、後述する樹脂パウダー（P）を製造する際に用いる溶融混練工程を設ける必要はない。

例えば、国際公開番号WO 2007/097436、国際公開番号WO 2010/013645、国際公開番号WO 2013/099741などに記載の成形体や複合材料を粉砕して炭素繊維（A）を準備する場合、成形体や該複合材料には単糸状の炭素繊維が分散されており、これを粉砕した粉砕材には炭素繊維が単糸状で存在するので、上述の溶融混練工程を設けることなく、粉砕材をそのまま次の工程に用いることができる。

なお、単糸状の炭素繊維（A）を含んだ上述の樹脂ペレットや、粉砕材を利用して成形材料を製造する場合、その方法に特に限定はないが、炭素繊維（A）と炭素繊維（B）と熱可塑性樹脂とを板状に形成するためには樹脂ペレットや粉砕材をパウダー状にして（このパウダー状のものを「樹脂パウダー（P）」とする。）後述する炭素繊維（B）の炭素繊維マットに混ぜ込む方法が一例としてある。

炭素繊維（A）を成形材料用の熱可塑性樹脂に混入する方法に特に限定はないが、粒材（R）を溶融混練して得られた樹脂ペレットを更に粉砕した熱可塑性樹脂パウダー（以下、単に「樹脂パウダー（P）」と記載する場合がある）を利用できる。

樹脂パウダー（P）の形状に特に限定はないが、例えば粒子状とすることができる。炭素繊維（A）が樹脂パウダー（P）に存在しているのに加えて、粒子状とすることで、炭素繊維（B）と混合させやすくなり、炭素繊維（A）を成形材料中でより均一に3次元方向へ配向させることができる。また、一度溶融混練することにより、単糸状の炭素繊維（A）を増加させることができる。

[0029] （2）数平均繊維長 L_{nA} が1 mm超の場合

炭素繊維（A）の数平均繊維長 L_{nA} が1 mm超の場合、メルトインデック

ス測定機の2 mm ϕ のオリフセスにて閉塞が発生する為、射出成形機を用いた流動長測定方法が好ましい。炭素繊維（A）と熱可塑性樹脂のみからなる成形材料（A）の流動性は、樹脂圧力50 MPaにて流動長30 mm以上が好ましく、40 mm以上がより好ましい。

[0030] 〔炭素繊維（B）〕

（種類）

炭素繊維（B）としては、一般的にポリアクリロニトリル（PAN）系炭素繊維、石油・石炭ピッチ系炭素繊維、レーヨン系炭素繊維、セルロース系炭素繊維、リグニン系炭素繊維、フェノール系炭素繊維、気相成長系炭素繊維などが知られているが、これらのいずれの炭素繊維であっても好適に用いることができる。

なかでも、ポリアクリロニトリル（PAN）系炭素繊維を用いることが好ましく、引張弾性率は100 GPa以上600 GPa以下の範囲内であることが好ましく、200 GPa以上500 GPa以下の範囲内であることがより好ましく、230 GPa以上450 GPa以下の範囲内であることがさらに好ましい。また、引張強度は2000 MPa以上10000 MPa以下の範囲内であることが好ましく、3000 MPa以上8000 MPa以下の範囲内であることがより好ましい。

[0031] （成形材料に含まれる炭素繊維（B）の繊維長）

成形材料に含まれる炭素繊維のうち、繊維長が3 mm以上100 mm未満のものを炭素繊維（B）と定義する。

炭素繊維（B）は、炭素繊維（A）に比べて繊維長が長いこと機械的物性（特に長期的な疲労強度）を担保することができるが、繊維長が100 mm以上であると流動性を阻害する。

[0032] 1. 重量平均繊維長 L_{wB} の範囲

炭素繊維（B）の重量平均繊維長 L_{wB} に特に限定はないが、下限は5 mm以上が好ましく、10 mm以上がより好ましく、15 mm以上が更に好ましい。成形時の流動性の観点から、炭素繊維（B）の重量平均繊維長 L_{wB} の上

限は 80 mm 以下が好ましく、50 mm 以下がより好ましく、30 mm 以下がより一層好ましい。

すなわち、炭素繊維（B）の繊維長の分布が少なくとも 1 つのピークを有し、該ピークが 10 mm 以上 30 mm 以下であることが好ましい。なお、炭素繊維（B）の重量平均繊維長 L_{wB} は、上述した式（4）により求められる。

[0033] 2. 数平均繊維長 L_{nB} の範囲

炭素繊維（B）の数平均繊維長 L_{nB} に特に限定はないが、好ましくは、成形体の最小板厚を T (mm) としたとき成形体の数平均繊維長 L_{nB} が T (mm) 以上であることが好ましい。なお、炭素繊維（B）の数平均繊維長 L_{nB} は、上述した式（3）により求められる。

繊維長は、繊維強化の効果を発現させる目的において、数平均繊維長 L_n が長い方が望ましいが、数平均繊維長 L_{nB} が T (mm) 以上であれば、成形する際の流動時に成形品の板厚方向への炭素繊維の配向が発生しにくいため、流動性の低下を抑制でき、好ましい。

ここで、成形材料中の炭素繊維の特性は、成形体中でもほとんど維持される。従って、数平均繊維長 L_{nB} は、成形材料の最小板厚を T (mm) としたとき、数平均繊維長 L_{nB} が T (mm) 以上であることが好ましい。数平均繊維長 L_{nB} は、好ましくは成形材料の最小板厚 T (mm) の 2 倍以上、より好ましくは 5 倍以上あることがより好ましい。

数平均繊維長 L_{nB} の上限に特に限定はないが、流動性保持の観点から、50 mm 以下が好ましく、20 mm 以下がより好ましい。

[0034] 3. 重量平均繊維長 L_{wB} と数平均繊維長 L_{nB} の比

炭素繊維（B）の繊維長は上記範囲であれば特に限定はないが、好ましい繊維長を得るために、後述するロータリーカッターを例えば使用できる。この場合、製造安定性の観点から、炭素繊維（B）の繊維長分布を狭めるのが好ましい。

したがって、炭素繊維（B）の重量平均繊維長 L_{wB} と数平均繊維長 L_{nB}

との比である $L w_B / L n_B$ の範囲は、好ましくは 1.0 以上 1.2 未満であり、より好ましくは 1.0 以上 1.1 未満である。

$L w_B / L n_B$ は、炭素繊維（A）の項目で説明したように、炭素繊維の繊維長の分布幅を示す尺度である。

[0035] 4. 2次元方向のランダム配向

成形材料中、炭素繊維（B）は2次元方向にランダムに配向されている。2次元方向へのランダムとは、面内における特定の方向への炭素繊維の配向が、他の方向への配向に比べて差が少ないことを意味している。

ここでは、2次元方向のランダム配向の評価は、板状の成形材料において、互いに直交する二方向の引張弾性率の比を求めることで、定量的に行われる。

具体的には、成形材料における2次元方向の弾性率の値のうち大きいものを小さいもので割った比が3以下であるときに、炭素繊維（B）は2次元方向にランダム配向であるとしている。特に、この比が2以下のときは2次元方向へのランダム配向に優れているとし、1.3以下がより優れている。

炭素繊維（B）を2次元にランダムに配向する方法に特に限定はないが、好ましくは炭素繊維（B）をマット状とすることで、炭素繊維（B）を特定の方向に配向しておらず、無作為な方向に分散して配置することができる。炭素繊維（B）を炭素繊維マットとすると、成形材料は面内等方性に優れた材料とすることができ、成形材料の等方性は、成形体にしたときにも維持される。

[0036] 5. 形態

炭素繊維（B）の形態は特に限定されるものではない。単糸状でも繊維束状であってもよく、さらに両者が混在していてもよい。繊維束状のものを用いる場合、各繊維束を構成する単糸の数は、各繊維束においてほぼ均一であってもよく、あるいは異なってもよい。

特に、炭素繊維束を含む場合、炭素繊維（B）は炭素繊維マットであることが好ましい。成形材料中に含まれる炭素繊維（B）は、以下の条件を満た

すことが好ましい。

1) 炭素繊維 (B) は下記式 (1) で定義される臨界単糸数未満の繊維束及び単糸と、臨界単糸数以上で構成される炭素繊維束 (B 1) とを含んでなり、

2) 炭素繊維束 (B 1) について、成形材料に含まれる炭素繊維 (B) 全量に対する割合が、 $5 \times 10^{-1} \%$ 以上 $9.5 \times 10^{-1} \%$ 未満であり、

3) 炭素繊維束 (B 1) 中の平均繊維数 N_B が下記式 (2) を満たす。

$$\text{臨界単糸数} = 600 / D_B \quad (1)$$

$$0.43 \times 10^4 / D_B^2 < N_B < 6 \times 10^5 / D_B^2 \quad (2)$$

なお、ここで D_B は炭素繊維 (B) の平均繊維径 (単位は μm である。) である。

式 (2) は下記式 (2') であることが好ましい。

$$0.6 \times 10^4 / D_B^2 < N_B < 6 \times 10^5 / D_B^2 \quad (2')$$

[0037] 6. 開繊程度

(1) 開繊

炭素繊維 (B) が繊維束状である場合、各繊維束を構成する単糸の数は特に限定されるものではないが、通常、1000本以上10万本以下の範囲内とされる。

一般的に、炭素繊維は、数千本以上数万本以下の単糸 (フィラメント) が集合した繊維束状となっている。炭素繊維がこの繊維束状のままで使用されると、繊維束の交絡部が局部的に厚くなり、薄肉の成形材料を得ることが困難になる場合がある。これを避けるために、例えば、炭素繊維の繊維束を拡幅したり、又は繊維束を開繊したりして使用することが多い。

繊維束を開繊して用いる場合、開繊後の繊維束の開繊程度は特に限定されるものではないが、繊維束の開繊程度を制御し、特定本数以上の単糸からなる炭素繊維束と、特定本数未満の炭素繊維束又は単糸を含むことが好ましい。

具体的には、炭素繊維 (B) は、上記式 (1) で定義される臨界単糸数以上

上で構成される炭素繊維束（B 1）と、それ以外の開繊された炭素繊維（すなわち単糸又は臨界単糸数未満で構成される繊維束のいずれかである。）とからなることが好ましい。

なお、炭素繊維（B）中の上記炭素繊維束（B 1）以外の炭素繊維を、単糸等（B 2）と称する。

[0038] （２）炭素繊維束（B 1）の割合

成形材料中の炭素繊維（B）に対する炭素繊維束（B 1）の割合が $5 \text{ Vol} \% \sim 100 \text{ Vol} \%$ 超 $95 \text{ Vol} \% \sim 100 \text{ Vol} \%$ 未満であることが好ましく、 $10 \text{ Vol} \% \sim 100 \text{ Vol} \%$ 超 $90 \text{ Vol} \% \sim 100 \text{ Vol} \%$ 未満であることがより好ましく、 $20 \text{ Vol} \% \sim 100 \text{ Vol} \%$ 以上 $90 \text{ Vol} \% \sim 100 \text{ Vol} \%$ 未満であることがさらに好ましく、 $30 \text{ Vol} \% \sim 100 \text{ Vol} \%$ 以上 $90 \text{ Vol} \% \sim 100 \text{ Vol} \%$ 未満であることが一層好ましく、 $50 \text{ Vol} \% \sim 100 \text{ Vol} \%$ 以上 $90 \text{ Vol} \% \sim 100 \text{ Vol} \%$ 未満であることがより一層好ましい。

このように特定本数以上の炭素繊維（B）からなる炭素繊維束（B 1）と、それ以外の開繊された炭素繊維（B）の単糸等（B 2）を特定の比率で共存させることで、成形材料中の炭素繊維（B）の存在量、すなわち炭素繊維（B）の繊維体積含有率 V_f を高めることが可能となる。

炭素繊維（B）全量に対する炭素繊維束（B 1）の割合が増加すると、成形体を成形した際に、機械物性に優れた成形体を得やすくなるだけでなく、単糸状のものが減少するため、繊維同士の交絡が少なくなり、流動性が向上する。

炭素繊維束（B 1）の割合が $95 \text{ Vol} \% \sim 100 \text{ Vol} \%$ 未満であれば、繊維の交絡が局部的に厚くならず、薄肉のものが得られやすくなる。

[0039] （３）炭素繊維束（B 1）の平均繊維数（ N_B ）

炭素繊維束（B 1）中の平均繊維数（ N_B ）は、炭素繊維束（B 1）の機能を損なわない範囲で適宜決定することができるものであり、特に限定されるものではない。

使用する炭素繊維によっては、炭素繊維束（B 1）の平均繊維数 N_B は通常 $1 < N_B < 12000$ の範囲内とされるが、上記式（２）を満たすことがよ

り好ましい。なかでも平均繊維数 (N_B) は、 $3 \times 10^5 / D_B^2$ 未満であることが好ましく、 $6 \times 10^4 / D_B^2$ 未満であることがより好ましい。また、下限は $0.6 \times 10^4 / D_B^2$ 以上であることが好ましく、 $0.7 \times 10^4 / D_B^2$ 以上であることが更に好ましい。

[0040] (4) 開繊方法

炭素繊維 (B) の開繊方法は、特に限定されるものではない。開繊方法としては、例えば、空気開繊や、水分散による抄紙方法が挙げられる。

炭素繊維 (B) の開繊程度は、繊維束の開繊条件を調整することにより目的の範囲内とすることができる。例えば、開繊前の炭素繊維に空気を吹き付けて繊維束を開繊 (空気開繊である。) する場合は、繊維束に吹き付ける空気の圧力等をコントロールすることにより開繊程度を調整することができる。

この場合、空気の圧力を強くすることにより開繊程度が高く (各繊維束を構成する繊維数が少なく) なり、空気の圧力を弱くすることにより開繊程度が低く (各繊維束を構成する繊維数が多く) なる傾向がある。

あるいは、炭素繊維を所定長さに切断するカット工程に供する繊維束の大きさ、例えば束の幅や幅当たりの繊維数を調整することでコントロールすることもできる。具体的には開繊するなどして繊維束の幅を広げてカット工程に供したり、カット工程の前に炭素繊維に縦スリット (繊維が延伸する方向と平行なスリット) を形成するスリット工程を設けたりする方法が挙げられる。なお、後述するように、カットと同時に繊維束をスリットしてもよい。

具体的には炭素繊維 (B) の平均繊維径が $5 \mu\text{m}$ 以上 $7 \mu\text{m}$ 以下の場合、臨界単糸数は 86 本超 120 本未満となり、炭素繊維 (B) の平均繊維径が $5 \mu\text{m}$ の場合、繊維束中の平均繊維数は 172 本超 24000 本未満の範囲となるが、なかでも 280 本超 12000 本未満であることが好ましく、280 本超 4000 本未満であることがより好ましく、600 本超 2500 本未満であることが更に好ましく、600 本超 1600 本未満であることがより一層好ましい。

炭素繊維の平均繊維径が $7\ \mu\text{m}$ の場合、繊維束中の平均繊維数は 88 本超 12245 本未満の範囲となるが、なかでも 122 本超 12245 本未満が好ましく、142 本超 6122 本未満であることがよりこのましく、300 本超 1500 本未満であることが更に好ましく、300 本超 800 本未満がより一層好ましい。

[0041] [炭素繊維 (A) と炭素繊維 (B) との関係]

(重量割合)

炭素繊維 (A) と炭素繊維 (B) の重量割合に特に限定はないが、5 : 95 ~ 95 : 5 であることが好ましい (炭素繊維 (A) : 炭素繊維 (B))。

すなわち、炭素繊維 (A) と炭素繊維 (B) の合計量に対する炭素繊維 (A) の重量割合は、好ましくは 5 重量%以上 95 重量%以下であり、より好ましくは 5 重量%以上 50 重量%以下であり、更に好ましくは 10 重量%以上 30 重量%以下である。炭素繊維 (A) の重量割合が、5 重量%以上では機械的強度の増加効果が認められ、95 重量%以下では炭素繊維 (A) を含んだ熱可塑性樹脂自体の流動性が向上するためである。

一方、炭素繊維 (A) と炭素繊維 (B) の合計量に対する炭素繊維 (B) は、好ましくは 95 重量%以下 5 重量%以上であり、より好ましくは 95 重量%以下 50 重量%以上であり、更に好ましくは 90 重量%以下 70 重量%以上である。炭素繊維 (B) の重量割合が、5 重量%以上では繊維強化の効果が大きく、95 重量%以下では流動性が向上するためである。

[0042] [成形材料]

(形状)

成形材料は、板状である。板状とは、縦、横の長さに比べて板厚方向の長さ (つまり、板厚である。) が相対的に短いものであり、板厚方向に平行な方向から見た形状は任意の形状、例えば、正方形、長方形のみならず、三角形、四角形、五角形等の多角形、円形、半円形、円弧形等であってよい。

成形材料の横方向、縦方向のうち最大長さを L_{max} 、最小値 L_{min} を平均の板厚を D としたときに、 $L_{\text{max}}/D \geq 3$ 、 $L_{\text{min}}/D \geq 2$ である

ことが好ましい。また、横方向、縦方向の何れかにおいて、一端から他端に向かって移ったときに、その板厚が、直線的に変化するような板形状だけでなく、途中で増減するような板形状であってもよいし、1以上の曲率で湾曲するような板形状であってもよい。

成形材料の板厚に特に限定はなく、各種の板厚とすることが可能であるが、0.2 mm以上5 mm以下の範囲にあってもよいし、3 mm以下の薄肉であってよい。

[0043] (目付)

成形材料に含まれる炭素繊維全量に関する目付量は、特に限定されるものではないが、通常、 25 g/m^2 以上 10000 g/m^2 以下とされる。炭素繊維(A)と炭素繊維(B)とを合わせた炭素繊維の目付けは 25 g/m^2 以上 3000 g/m^2 以下であることが好ましく、より好ましくは 25 g/m^2 以上 500 g/m^2 以下である。

[0044] (炭素繊維(A)と炭素繊維(B)との繊維長比率)

炭素繊維(A)の重量平均繊維長 L_{wA} と炭素繊維(B)の重量平均繊維長 L_{wB} の関係は、 L_{wA}/L_{wB} が、0.005以上0.5未満であることが好ましく、0.01以上0.1未満の範囲であることがより好ましく、0.01以上0.05未満の範囲にあることが更に好ましい。

該範囲であれば、炭素繊維(B)に対して、炭素繊維(A)がマトリクスである熱可塑性樹脂と同様の挙動をもたらす対象とみなすことができ、炭素繊維(B)の隙間に炭素繊維(A)が入り込むことが容易となる。

[0045] (理論加成則に関して)

成形材料は、機械強度の一つである曲げ強度 S が、 $q S_a + (1 - q) S_b$ の0.8倍以上であることが成立する範囲であることが好ましい。

ここで、

S_a : 炭素繊維(A)と熱可塑性樹脂からなる成形材料(A)の曲げ強度

S_b : 炭素繊維(B)と熱可塑性樹脂からなる成形材料(B)の曲げ強度

q : 炭素繊維(A)と炭素繊維(B)との全量に対する炭素繊維(A)の

重量含有割合

である。

好ましい曲げ強度 S の範囲は、 $q S_a + (1 - q) S_b$ の 0.9 倍以上がより好ましく、1.0 倍以上が更に好ましく、1.0 倍超（すなわち $S > q S_a + (1 - q) S_b$ ）がより一層好ましい。

一般的に、2 種類の炭素繊維を混入させた場合、相対的に長い繊維の炭素繊維（B）のみ機械強度が発現し、相対的に短い繊維の炭素繊維（A）の機械強度の発現率は低くなり、理論加成則上の値を発現できない。図 6 は、成形材料に含まれる全体の繊維体積割合は一定の下、長い繊維である炭素繊維（B）の割合が減少し、炭素繊維（A）の割合が増加するにつれ、機械強度がどのように変化するかを示した図である。

理論加成則とは、 $S = q S_a + (1 - q) S_b$ で表され、例えば図 6 に示すような破線で示した直線状のグラフを指す。しかしながら、通常、機械強度がこの破線で示したグラフ線上に載ることはなく、機械強度は理論加成則よりも低下する。成形材料の機械強度の一つである曲げ強度において、この理論加成則を上回る領域が存在する。

正確な理由は不明であるが、炭素繊維（A）と熱可塑性樹脂が、強化マトリクス樹脂として挙動し、繊維束と単糸を有する炭素繊維（B）の隙間に、均一に混ざり込んでいるためと推定する。このため、炭素繊維（B）の含有量を減少させても、理論加成則の 0.8 倍以上、又は同等以上の曲げ強度を有する範囲が存在する。これは従来考えられていた成形材料の一般的挙動を逸脱する効果を有するものであった。

また、本発明者らの推測によれば、成形材料に含まれている炭素繊維（B）に未含浸部分がある場合、全体の炭素繊維体積割合は一定であるものの、比較的短い炭素繊維（A）を添加し、比較的長い繊維である炭素繊維（B）の割合を減少させる事で、炭素繊維（B）への熱可塑性樹脂の含浸性が向上する事により、理論加成則を 0.8 倍以上超える物性を発現する事ができると考えている。

なお、図 7 では理論加成則を 1.0 倍以上超える範囲で描かれているが、炭素繊維 (A) の割合をより多くした場合、図 7 では理論加成則よりもやや下回ってくる範囲が存在すると想定される。

特に、炭素繊維 (B) が部分開繊状態にあって、束内部にまで熱可塑性樹脂が含浸しにくいものの、炭素繊維 (A) の割合が増加することにより、見かけ上、熱可塑性樹脂の割合が増加するように疑似でき、熱可塑性樹脂への含浸が進むような繊維形態である場合、この効果は顕著に発揮される。

反対に、炭素繊維 (B) 全量に対する炭素繊維束 (B1) の割合が 100% である場合、炭素繊維 (A) の割合を増加させても炭素繊維束 (B1) の内部にまで熱可塑性樹脂の含浸を飛躍的に向上させることは難しく、理論加成則の 80% 未満になると考えられる。

S を $q S_a + (1 - q) S_b$ の 0.8 倍以上にするという観点からは、

1) 炭素繊維 (B) は下記式 (1) で定義される臨界単糸数未満の繊維束及び単糸と、臨界単糸数以上で構成される炭素繊維束 (B1) とを含んでなり、

2) 炭素繊維強化成形材料に含まれる炭素繊維 (B) 全量に対する炭素繊維束 (B1) の割合が、5 Vol% 以上 95 Vol% 未満であり、

3) 炭素繊維束 (B1) 中の平均繊維数 (N_B) が下記式 (2) を満たす、ことが好ましい。

$$\text{臨界単糸数} = 600 / D_B \quad (1)$$

$$0.43 \times 10^4 / D_B^2 < N_B < 6 \times 10^5 / D_B^2 \quad (2)$$

(ここで D_B は炭素繊維 (B) の平均繊維径 (μm) である)

[0046] この理論加成側は、成形体についても同様に適用できる。

つまり、成形体は、機械強度の一つである曲げ強度 S が、 $q S_a + (1 - q) S_b$ の 0.8 倍以上であることが成立する範囲であることが好ましい。

ここで、

S_a : 炭素繊維 (A) と熱可塑性樹脂からなる成形体 (A) の曲げ強度

S_b : 炭素繊維 (B) と熱可塑性樹脂からなる成形体 (B) の曲げ強度
 q : 炭素繊維 (A) と炭素繊維 (B) との全量に対する炭素繊維 (A) の重量含有割合
である。

好ましい曲げ強度 S の範囲は、 $q S_a + (1 - q) S_b$ の 0.9 倍以上がより好ましく、1.0 倍以上が更に好ましく、1.0 倍超 (すなわち $S > q S_a + (1 - q) S_b$) がより一層好ましい。

[0047] [その他の強化繊維]

本発明の目的を損なわない範囲で、炭素繊維 (A) と炭素繊維 (B) 以外のガラス繊維、アラミド繊維、炭素繊維等の強化繊維を成形材料に加えてもよい。具体的には、成形材料に含まれる強化繊維全体に対して、0 wt % 以上 49 wt % 以下の重量割合であれば、繊維長、開繊度を問わず含んでいてもよい。

[0048] [熱可塑性樹脂]

成形材料に使用される熱可塑性樹脂としては、ポリオレフィン樹脂、ポリスチレン樹脂、熱可塑性ポリアミド樹脂、ポリエステル樹脂、ポリアセタール樹脂 (ポリオキシメチレン樹脂)、ポリカーボネート樹脂、(メタ) アクリル樹脂、ポリアリレート樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリイミド樹脂、ポリエーテルニトリル樹脂、フェノキシ樹脂、ポリフェニレンスルフィド樹脂、ポリスルホン樹脂、ポリケトン樹脂、ポリエーテルケトン樹脂、熱可塑性ウレタン樹脂、フッ素系樹脂、熱可塑性ポリベンゾイミダゾール樹脂等を挙げることができる。

上記ポリオレフィン樹脂としては、例えば、ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂、ポリブタジエン樹脂、ポリメチルペンテン樹脂、塩化ビニル樹脂、塩化ビニリデン樹脂、酢酸ビニル樹脂、ポリビニルアルコール樹脂等を挙げることができる。

上記ポリスチレン樹脂としては、例えば、ポリスチレン樹脂、アクリロニトリルースチレン樹脂 (AS 樹脂)、アクリロニトリルブタジエンスチ

レン樹脂（ABS樹脂）等を挙げることができる。

上記ポリアミド樹脂としては、例えば、ポリアミド6樹脂（ナイロン6）、ポリアミド11樹脂（ナイロン11）、ポリアミド12樹脂（ナイロン12）、ポリアミド46樹脂（ナイロン46）、ポリアミド66樹脂（ナイロン66）、ポリアミド610樹脂（ナイロン610）等を挙げることができる。

上記ポリエステル樹脂としては、例えば、ポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリエチレンナフタレート樹脂、ポリブチレンテレフタレート樹脂、ポリトリメチレンテレフタレート樹脂、液晶ポリエステル等を挙げることができる。

上記（メタ）アクリル樹脂としては、例えば、ポリメチルメタクリレート等を挙げることができる。

上記変性ポリフェニレンエーテル樹脂としては、例えば、変性ポリフェニレンエーテル等を挙げることができる。

上記熱可塑性ポリイミド樹脂としては、例えば、熱可塑性ポリイミド、ポリアミドイミド樹脂、ポリエーテルイミド樹脂等を挙げることができる。

上記ポリスルホン樹脂としては、例えば、変性ポリスルホン樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂等を挙げることができる。

上記ポリエーテルケトン樹脂としては、例えば、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、ポリエーテルケトンケトン樹脂上記フッ素系樹脂としては、例えば、ポリテトラフルオロエチレン等を挙げることができる。

成形材料に用いられる熱可塑性樹脂は1種類のみであってもよく、2種類以上であってもよい。2種類以上の熱可塑性樹脂を併用する態様としては、例えば、相互に軟化点又は融点異なる熱可塑性樹脂を併用する態様や、相互に平均分子量異なる熱可塑性樹脂を併用する態様等を挙げることができるが、この限りではない。

成形材料中には、本発明の目的を損なわない範囲で、ガラス繊維や有機繊維等の各種繊維状又は非繊維状フィラー、難燃剤、耐UV剤、顔料、離型剤、軟化剤、可塑剤、界面活性剤の添加剤を含んでいてもよい。

[0050] 《成形体》

本発明の一態様である成形体は、炭素繊維強化成形材料を用いて成形した成形体であって、前記炭素繊維強化成形材料は、上記の炭素繊維強化成形材料であり、成形体の板厚が最小の部分の板厚を最小板厚 T (mm) としたとき、

(a) 炭素繊維 (A) の数平均繊維長 L_{nA} が $T/2$ (mm) 未満であり、

(b) 炭素繊維 (B) の数平均繊維長 L_{nB} が T (mm) 以上である。

なお、ここでの最小板厚 T は、成形材料を成形して生じるバリについては、成形体の一部とみなさず、最小板厚の対象ではない。

[0051] また、本発明の一態様である成形体は、炭素繊維強化成形材料を用いて成形した成形体であって、前記炭素繊維強化成形材料は、上記の炭素繊維強化成形材料であり、板厚方向の断面を観察した際、以下で定義される炭素繊維束 (A1) の面積割合が、炭素繊維 (A) 全体に対して0%超50%以下である。なお、炭素繊維束 (A1) は、炭素繊維 (A) 由来であって、繊維束の数が $35/D_A$ 以上で観察される炭素繊維 (ここで D_A は炭素繊維 (A) の平均繊維径 (μm)) である。

[0052] [特性]

上記の成形材料を用いて成形した成形体は、成形材料に含まれる炭素繊維 (A) と炭素繊維 (B) の繊維長や繊維束などの繊維特性が略そのまま維持される。一般的には、板状の成形材料は、そのまま使用されて板状の成形体に成形される。なお、ここでの板状の成形体には、平板部を有するような形状であり、リブやボズ等が形成されていてもよいし、形成されていなくてもよい。

板状の成形材料は、通常、例えば特開2011-57811号公報に記載の樹脂ペレットのように、スクリーンを用いた熔融混練工程を設けて成形体

を作成するように使用されるわけではない。本発明における板状の成形材料は主にプレス成形用に用いられ、この場合は炭素繊維（A）と炭素繊維（B）の繊維特性に変化はない。なお、好ましい板状の成形材料はX Y方向が50 mm×50 mm以上である。

[0053] [成形体の最小板厚]

上記の成形材料を用いて成形した成形体は、用途に合わせて各種の板厚とすることが可能である。成形体の板厚は、成形材料の板厚と略同じであってもよいし、成形材料の板厚よりも薄くてもよい。板厚は、成形時に使用する金型が密閉型の場合は成形材料と同じ板厚になり、開放型の場合は成形材料によりも薄くなる。なお、成形性材料は、密閉型の金型での圧縮成形に適している。

成形体の板厚は、0.2 mm以上5 mm以下の範囲程度であればよく、3 mm以下の薄肉にも好適に得ることができる。

また、上記の成形材料を用いて成形した成形体の最小板厚に特に限定はないが、1 mm以上であることが好ましい。これは成形時の流動性を担保する観点であり、最小板厚が1 mm以上であれば、成形時の流動性が良好となる。

[0054] [数平均繊維長 L_{nA} と板厚の関係]

成形体の最小板厚を T (mm) としたとき、炭素繊維（A）の数平均繊維長 L_{nA} は、 $T/2$ (mm) 未満であることが好ましい。繊維長は、繊維強化の効果を発現させる目的で長い方が望ましいが、数平均繊維長 L_{nA} が $T/2$ (mm) 未満であれば、成形流動過程において、炭素繊維（A）が流動を妨げる要因となりにくいからである。炭素繊維（A）の好ましい数平均繊維長 L_{nA} は $T/3$ (mm) 未満である。

[0055] [炭素繊維束（A1）の面積割合]

成形体は、板厚方向（例えば、図5のZ方向である）の断面を観察した際、上記定義される炭素繊維束（A1）の面積割合が、炭素繊維（A）全体に対して0%超50%以下の範囲であることが好ましい。

炭素繊維束（A 1）の面積割合が、炭素繊維（A）全体に対して50%以下であると、単糸状の炭素繊維（A）が多く存在することになり、機械強度、特に曲げ強度が維持されやすくなる。炭素繊維束（A 1）の面積割合は、炭素繊維（A）全体に対して0%超、30%以下の範囲内であることが好ましく、0%超15%以下の範囲内であることがより好ましい。

特定本数以上の炭素繊維からなる炭素繊維束（A 1）と、それ以外の開繊された炭素繊維又は炭素繊維束を特定の比率で共存させることで、成形体中の炭素繊維（A）の存在量、すなわち炭素繊維（A）の繊維体積含有率 V_f （単位は、 V_o 1%である。）を高めることが可能となる。

[0056] [数平均繊維長 L_n]

成形体における炭素繊維（B）の数平均繊維長 L_n に特に限定はないが、好ましくは、成形体の最小板厚を T （mm）としたとき、数平均繊維長 L_n が T （mm）以上であるのが好ましい。繊維長は、繊維強化の効果を発現させる目的で数平均繊維長 L_n が長い方が望ましいが、数平均繊維長 L_n が T （mm）以下となると、成形流動時に成形品の板厚方向への炭素繊維の配向が発生するため、流動性を低下させる要因となる。好ましい数平均繊維長 L_n は成形体の最小板厚 T （mm）の2倍以上、より好ましくは5倍以上である。

数平均繊維長 L_n の上限に特に限定はないが、流動性保持の観点から、50mm以下が好ましく、20mm以下がより好ましい。

[0057] 《成形材料の製造方法》

成形材料の製造方法は特に限定される訳ではないが、例えば、以下の工程1～5により好ましく製造される。

図1は、以下の工程2～工程4を示す概略図である。

工程1．炭素繊維（A）を含む樹脂パウダー（P）を準備する工程

工程2．炭素繊維をカットして炭素繊維（B）を得る工程

工程3．カットされた炭素繊維（B）を開繊する工程

工程4．開繊させた炭素繊維（B）と、工程1で得られた樹脂パウダー（

P)とを散布して成形材料用の前駆体（以下、単に、「前駆体」とする。）を得る工程

工程 5. 前駆体を加熱圧縮して成形材料を得る工程

なお、図 1 に示すように、工程 2 以降に供される炭素繊維を符号「1」で示し、工程 2 では例えばカット装置 3 が、工程 3 では例えば開繊装置 5 が、工程 4 では例えば散布装置 7 がそれぞれ用いられて行われる。

以下、各工程について詳細に述べる。

[0058] [工程 1]

上述した構成の炭素繊維（A）を準備するために、樹脂パウダー（P）を準備するのが好ましい。つまり、単糸状の繊維を多く含み、板厚方向に対して垂直な断面を観察した際、繊維束を構成する繊維数が $35/D_A$ 以上で観察される炭素繊維束（A1）の面積割合が、全体に対して 0% 超 50% 以下の範囲である成形体になるような炭素繊維（A）を含んだ樹脂パウダー（P）を準備することが好ましい。

最初に、粒材（R）を、熱可塑性樹脂（ニートレジン）と混合させて熔融混練し、押出し機に投入して樹脂ペレットを得る。

ここでの粒材（R）は、上述したように、市販されている炭素繊維樹脂ペレットや粉碎材等を利用することが好ましい。

粒材（R）と熱可塑性樹脂（ニートレジン）の混合割合に特に限定はないが、後述する炭素繊維（B）と混合させて適切な炭素繊維の繊維体積含有率 V_f の成形材料を製造する観点において、樹脂ペレットの繊維体積含有率 V_f を 1% 以上 70% 以下に調整するように、粒材（R）と熱可塑性樹脂（ニートレジン）の混合割合を調節することが好ましい。より好ましい樹脂ペレットの繊維体積含有率 V_f は 1% 以上 40% 以下の範囲であり、1% 以上 20% 以下の範囲内が更に好ましい。

得られた樹脂ペレットを粉碎機で粉碎すると、パウダー状の樹脂パウダー（P）や塊状の樹脂塊を得ることができる。樹脂パウダー（P）や樹脂塊の大きさに特に限定はないが、機械物性の観点から、好ましい大きさとしては

、1 mm角以上が好ましく、2 mm角以上であれば、より好ましい。樹脂パウダー（P）や樹脂塊の上限としては、後述するフィーダーの大きさにも依存するが、4 mm角以下が好ましく、3 mm角以下がより好ましい。樹脂パウダー（P）や樹脂塊の形状は、粉碎工程で、通常不定形状となる。なお、樹脂パウダー（P）と樹脂塊との区別は、一般的に明確ではないが、概ね、樹脂パウダー（P）の方が樹脂塊よりも小さい。

[0059] [工程2]

この工程は、炭素繊維をカットする工程である。炭素繊維1をカットして炭素繊維（B）を得る工程は、炭素繊維（A）や炭素繊維（B）の構成比率に影響を及ぼさない範囲内で、成形材料に含める場合には、カット装置を複数用意し、各々のカット装置で切断した繊維を、開繊装置により各々を混合することができる。

さらに、成形材料に含まれる炭素繊維（B）の Lw_B / Ln_B を、1.0以上1.2未満の範囲内で分布を持たせる場合は、例えば、刃のピッチが連続的に変化しているロータリーカッターを用いることで連続的に繊維長を変化させて炭素繊維を切断することもできるし、刃のピッチが段階的に変化しているロータリーカッターを用いることで断続的に繊維長を変化させて炭素繊維を切断することもできる。

[0060] [工程3]

工程3は、工程2でカットされた炭素繊維（B）を開繊させる開繊工程である。開繊工程は、例えば、カットされた炭素繊維（B）を管21内に導入し、繊維束を開繊させる工程である。空気を繊維に吹き付けることにより適宜開繊させることができる。開繊の度合い、炭素繊維束（B1）の存在量及び炭素繊維束（B1）中の平均繊維数（ N_B ）については、空気の圧力等により適宜コントロールすることができる。

[0061] [工程4]

工程4は、開繊された炭素繊維（B）と樹脂パウダー（P）とから成形材料用の前駆体を形成する前駆体形成工程である。前駆体形成工程は、例えば

、カットし開繊させた炭素繊維（Ｂ）を空气中に拡散させると同時に、工程１で得られた樹脂パウダー（Ｐ）を供給し、炭素繊維（Ｂ）を樹脂パウダー（Ｐ）とともに、支持体３１上に散布し、マット状の成形材料用の前駆体３３を形成する。

図１では、炭素繊維（Ｂ）を符号「Ｂ」で、樹脂パウダー（Ｐ）を符号「Ｐ」でそれぞれ示している。なお、樹脂パウダー（Ｐ）は、例えば図１のパウダー供給装置３５により行われる。

ここでは、支持体３１として通気性を有するものを使用し、支持体３１上に散布された炭素繊維（Ｂ）と樹脂パウダー（Ｐ）とを支持体３１の下方から吸引して、支持体３１上に堆積・定着させる。

この工程では、空気（気体）で開繊した炭素繊維（Ｂ）と別経路から供給される樹脂パウダー（Ｐ）を同時に支持体３１上に向けて散布し、両者がほぼ均一に混ざり合った状態で支持体３１上へマット状に堆積させ、その状態で定着させることができる。この際、例えばネットからなるコンベア等で支持体３１を構成し、当該支持体３１を一方向に連続的に移動させつつ、その上に炭素繊維（Ｂ）と樹脂パウダー（Ｐ）とを堆積させるようにすれば、連続的に前駆体３３を形成することができる。なお、支持体３１を前後左右に移動させることにより、均一な炭素繊維（Ｂ）と樹脂パウダー（Ｐ）との堆積が実現されるようにしてもよい。

ここで、炭素繊維（Ｂ）は、２次元方向にランダム配向するように散布される。開繊した繊維を２次元方向にランダム配向させながら散布するためには、下流側に拡大した円錐形等のテーパ管３７を用いることが好ましい。このテーパ管３７内では、開繊目的で炭素繊維に吹付けた気体が拡散し、管内の流速が減速するので、このとき炭素繊維には回転力が与えられる。このベンチュリ効果を利用することで、開繊した炭素繊維（Ｂ）を、樹脂パウダー（Ｐ）とともに均等に斑無く支持体３１上に散布することができる。この工程において、炭素繊維（Ａ）が３次元方向にランダム配向されるように樹脂パウダー（Ｐ）が散布されることが好ましい。

樹脂パウダー（P）の供給量は、炭素繊維（B）100重量部に対し、10重量部以上1000重量部以下であることが好ましく、50重量部以上400重量部以下であることがより好ましく、更に好ましくは80重量部以上150重量部以下である。また、樹脂パウダー（P）とは別途で、熱可塑性樹脂（ニートレジン）を同時に供給してもよい。

[0062] [工程5]

この工程は、上記工程4で得た前駆体33を加熱及び加圧することにより成形材料を得る工程である。なお、成形材料は、言うまでもなく、熱可塑性樹脂と炭素繊維（A）と炭素繊維（B）とを含む。

成形材料の一例を図4に模式的に示す。図4において、成形材料39は、熱可塑性樹脂と炭素繊維（A）と炭素繊維（B）とを含み、熱可塑性樹脂は符号「C」で、炭素繊維（A）は符号「A」で、炭素繊維（B）のうち、炭素繊維束（B1）を符号「B1」で、単糸等（B2）を符号「B2」で、それぞれ表されている。

ここで、加熱及び加圧する方法としては、加熱と加圧を別々に行っても良く、プレス成形及び／又は熱成形などの方法により加熱及び加圧することが好ましい。

上記の前駆体33は、炭素繊維（B）間に樹脂パウダー（P）が均一して散布されるため、熱可塑性樹脂を容易に含浸しやすい特徴を持ち、ホットプレス成形などの方法により成形材料を効率よく得ることができる。

成形材料を得る際の前駆体33への加圧条件としては、10MPa未満であると好ましく、8MPa以下であるとより好ましく、5MPa以下であると更に好ましい。圧力が10MPa未満であると、より安価又は一般的な成形装置（プレス装置）を使用でき、大型の前駆体を得る場合でも、設備投資や維持費を抑制でき好ましい。

前駆体33を成形材料とするために加熱する際の温度としては、前駆体33に含まれる熱可塑性樹脂が結晶性の場合は融点以上分解温度未満であると好ましく、非晶性の場合はガラス転移温度以上分解温度未満であると好まし

い。なお、熱可塑性樹脂の分解温度としては、空気中の熱分解温度であると好ましい。

なお、上記工程により得られた成形材料は、リブやボス等の突出部等を有するような立体成形用として、なかでもプレス成形用として有用である。

[0063] 《成形材料の成形方法》

成形材料を成形する場合、種々の成形方法を利用できるが、加熱・加圧して行われるのが好ましい。

成形方法としては、所謂、コールドプレス法やホットプレス法等の圧縮成形法が好ましく利用される。

[0064] [コールドプレス法]

コールドプレス法は、例えば、第1の所定温度に加熱した成形材料を第2の所定温度に設定された金型内に投入した後、加圧・冷却を行う。

具体的には、成形材料を構成する熱可塑性樹脂が結晶性である場合、第1の所定温度は融点以上であり、第2の設定温度は融点未満である。熱可塑性樹脂が非晶性である場合、第1の所定温度はガラス転移温度以上であり、第2の設定温度はガラス転移温度未満である。

すなわち、コールドプレス法は、少なくとも以下の工程A-1)～A-2)を含んでいる。

A-1) 成形材料を、熱可塑性樹脂が結晶性の場合には融点以上分解温度以下、非晶性の場合にはガラス転移温度以上分解温度以下に加温する工程。

A-2) 上記A-1)で加温された成形材料を、熱可塑性樹脂が結晶性の場合には融点未満、非晶性の場合にはガラス転移温度未満に温度調節された金型に配置し、加圧する工程。

これらの工程を行うことで、成形材料の成形を完結させることができる。

なお、金型に投入する際、成形材料は、対象の成形体の板厚に合わせて、単独(1枚で)又は複数枚用いられる。複数枚用いる場合、複数枚を予め積層して加熱してもよいし、加熱した成形材料を積層した後に金型内に投入してもよいし、加熱した成形材料を金型内に順次積層してもよい。なお、積層

した場合の最下層の成形材料と最上層の成形材料との温度差は少ない方が良く、この観点からは、金型に投入する前に積層した方が好ましい。

また、上記 A-1) における加圧は、例えば、金型やニップロー等を利用することができる。上記の各工程は、上記の順番で行う必要があるが、各工程間に他の工程を含んでもよい。他の工程とは、例えば、A-2) の前に、A-2) で利用される金型と別の賦形型を利用して、金型のキャビティの形状に予め賦形する賦形工程等がある。

[0065] [ホットプレス法]

ホットプレス法は、例えば、金型内に成形材料を投入し、金型の温度を第 1 の所定温度まで上昇させながら加圧し、第 2 の所定温度まで金型の冷却を行う。

具体的には、成形材料を構成する熱可塑性樹脂が結晶性である場合、第 1 の所定温度は融点以上であり、第 2 の所定温度は融点未満である。成形材料を構成する熱可塑性樹脂が非晶性である場合、第 1 の所定温度はガラス転移温度以上であり、第 2 の所定温度はガラス転移温度未満である。

ホットプレス法は、少なくとも以下の工程 B-1) ~ B-4) を含んでいくことが好ましい。

B-1) 成形材料を金型に配置する工程。

B-2) 熱可塑性樹脂が結晶性の場合は熱可塑性樹脂の融点以上熱分解温度以下の温度まで、非晶性の場合は熱可塑性樹脂のガラス転移温度以上熱分解温度以下の温度まで、金型を昇温しつつ、加圧する工程（第 1 プレス工程）。

B-3) 一段以上であり、最終段の圧力が第 1 プレス工程の圧力の 1.2 倍以上 100 倍以下となるように加圧する工程（第 2 プレス工程）。

B-4) 熱可塑性樹脂が結晶性の場合は融点未満、非晶性の場合はガラス転移温度未満に金型温度を調節する工程。

これらの工程を行うことで、成形材料の成形を完結させることができる。

[0066] [共通事項]

工程 A-2) 及び B-3) は、成形材料に圧力を加えて所望形状の成形体を得る工程であるが、このときの成形圧力については特に限定はしないが、金型キャビティ投影面積に対して 10 MPa 未満が好ましく、8 MPa 以下であるとより好ましく、5 MPa 以下であると更に好ましい。

成形圧力が 10 MPa 以上の場合は、特に大型成形体を成形するためには多額の設備投資や維持費が必要となるため、好ましくない。上述した成形材料は成形時の流動性が高いため、成形圧力を低くしても、安定してリブやボス設けることができる。

更に、上述の成形材料を用いれば、安定して成形するのが難しい大きなリブを設けたい場合であっても、容易にリブを設けることができる。成形材料の成形には上記の双方の圧縮成形法が適用可能であるが、成形時間をより短縮できる観点では、コールドプレス法がより好ましい。

また、当然のことであるが、圧縮成形時に種々の工程を上記の工程間に入れてもよく、例えば真空にしながら圧縮成形する真空圧縮成形を用いてもよい。

実施例

[0067] 以下に実施例を示すが、本発明はこれらに制限されるものではない。

実施例や比較例における物性値等の算出や評価方法について、以下説明する。

[0068] [成形材料又は成形体に含まれる炭素繊維の繊維長の測定方法]

後述する実施例においては、樹脂パウダー (P) に含まれる炭素繊維 (A) の繊維長を 0.01 mm 以上 3 mm 未満に、炭素繊維 (B) の繊維長を 3 mm 以上 100 mm 未満にそれぞれなるよう調整して、工程 2 においてロータリーカッターで炭素繊維をカットしている。

すなわち、本実施例においては、前駆体、成形材料及び成形体に含まれる炭素繊維 (A) の繊維長と繊維長分布は、樹脂パウダー (P) に含まれる炭素繊維 (A) の特性が維持される。

一方、成形材料及び成形体に含まれる炭素繊維 (B) の繊維長と繊維長分

布は、前駆体に含まれる炭素繊維（B）の特性が維持される。したがって、炭素繊維（A）の特性は樹脂パウダー（P）に含まれる炭素繊維を分析し、炭素繊維（B）の特性は前駆体に含まれる3 mm以上100 mm未満の炭素繊維を分析した。

具体的には、得られた樹脂パウダー（P）又は前駆体を切り出しルツボに入れ、550℃にて1.5時間有酸素雰囲気下で加熱し樹脂成分を燃焼除去した。残った炭素繊維を界面活性剤入りの水に投入し、超音波振動により十分に攪拌させた。攪拌された分散液を計量スプーンによりランダムに採取し評価用サンプルを得て、ニレコ社製画像解析装置Luzex APにて繊維数3000本の長さを計測した。

前駆体を分析する場合には、測定した全ての炭素繊維の長さ（ L_i ）から、繊維長0.01 mm以上3 mm未満の炭素繊維（A）と、繊維長3 mm以上100 mm未満の炭素繊維（B）に分けた。

抽出した炭素繊維については、前述の式（3）、（4）により数平均繊維長 L_n 、重量平均繊維長 L_w を炭素繊維（A）、炭素繊維（B）についてそれぞれ求め、繊維長の分布幅 L_w/L_n をそれぞれ求めた。

また、実施例、比較例において樹脂パウダー（P）を作成しない場合があるが、この場合は、樹脂パウダー（P）に代えて使用した、粉碎材に含まれる繊維特性を、上記と同様にして分析した。

[0069] [成形材料における炭素繊維束の分析]

上記分類した炭素繊維（A）と炭素繊維（B）の繊維束の分析は、以下のように行った。

[0070] 1. 炭素繊維（A）に含まれる繊維束の分析

板状の成形材料39を板厚方向（図5のZ方向）に、任意に10点における10 mm×10 mmの範囲に現れる炭素繊維断面を観察し、束となっているか、単糸となっているかを確認した。なお、ここいう板厚方向に現れる炭素繊維断面は、板厚方向と直交する面において現れる炭素繊維の断面をいい、例えば、図5におけるXY平面に平行な面であり、表側の主面（表面）や

裏側の主面（裏面）である。

炭素繊維束の分布は下記のような基準で評価している。

◎（Perfect）：炭素繊維束（A1）の面積割合が、炭素繊維（A）全体に対して0%以上～15%未満である

○（Excellent）：炭素繊維束（A1）の面積割合が、炭素繊維（A）全体に対して15%以上50%未満である

△（Good）：炭素繊維束（A1）の面積割合が、炭素繊維（A）全体に対して50%以上である

なお、上述したように、炭素繊維束（A1）は炭素繊維（A）に属し、繊維束中の繊維の数が $35/D_A$ 以上で観察される炭素繊維束（ここで D_A は炭素繊維（A）の平均繊維径）である。

[0071] 2. 炭素繊維（B）に含まれる繊維束の分析

繊維長3mm以上100mm未満の繊維束をピンセットで全て取り出し、炭素繊維束（B1）の束の数 I 及び各繊維束の長さ L_{Bi} とその質量 W_{Bi} を測定し、記録する。ピンセットにて取り出すことができない程度に繊維束が小さいものについては、まとめて最後に質量を測定する（この質量を W_{Bk} とする。）。

質量の測定には、 $1/100\text{mg}$ まで測定可能な天秤を用いる。成形材料39に含まれている炭素繊維（B）の平均繊維径 D_B より、上述の式（1）により臨界単系数を計算し、臨界単系数以上の炭素繊維束（B1）と、それ以外の単系等（B2）に分ける。

炭素繊維束（B1）の平均繊維数 N_B の求め方は以下の通りである。

各炭素繊維束中の繊維本数 N_{Bi} は使用している炭素繊維（B）の繊維度 F_B より、次式（5）により求められる。

$$N_{Bi} = W_{Bi} / (L_{Bi} \times F_B) \quad (5)$$

炭素繊維束（B1）中の平均繊維数 N_B は、炭素繊維束（B1）の束の数 I より、次式（6）により求められる。

$$N_B = \sum N_{Bi} / I \quad (6)$$

炭素繊維束（B 1）について、炭素繊維（B）の繊維全量に対する割合 V_{R_B} は、炭素繊維（B）の密度（ ρ_B ）を用いて次式（7）により求められる。

$$V_{R_B} = \sum (W_{B_i} / \rho_B) \times 100 / ((W_{B_k} + \sum W_{B_i}) / \rho_B) \quad (7)$$

[0072] 3. 成形材料における炭素繊維（A）の3次元配向の分析

実施例、比較例において、炭素繊維（A）の3次元方向へのランダム配向は、以下の手順で測定した。

（i）炭素繊維断面を観察しやすくするように、成形材料39を20mm（タテ）×20mm（ヨコ）×3mm（厚み）の直方体から、2mm（タテ）×2mm（ヨコ）×2mm（厚み）の立方体を10個切り出し、各立方体の各面について、10カ所ずつ観察し、観察される炭素繊維の断面数を数え、平均をとった。立方体を切り出す際、表面樹脂を除くため、板状の成形材料39の表面（6面）を機械加工にて約200μm削った。

（i i）3mm以上100mm未満の炭素繊維（B）のみで別途作成した成形材料（B）（後述する比較例3に該当）について、（i）と同じ様に上・底面及び側面の合計6面について、単位面積あたりに観察される炭素繊維（B）の断面数を数えた。

（i i i）各面で観察された断面数について、（i i）で観察された断面数から（i）で観察された断面数を引いた。

（i v）引いた後の断面数を、以下のように定義し、 $((X+Y)/2)/Z$ を算出し、以下の評価を行った。なお、以下の「○方向の側面」とは、○方向と直交する面と平行な状態にある面をいう。

X：図5に示すX方向の側面（YZ平面に平行な面）で観察された、単位面積（1mm×1mm）あたりの炭素繊維（A）の断面数

Y：図5に示すY方向の側面（XZ平面に平行な面）で観察された、単位面積（1mm×1mm）あたりの炭素繊維（A）の断面数

Z：板厚方向の面（図5に示すZ方向の側面であり、XY平面に平行な面）で観察された、単位面積あたりの炭素繊維（A）の断面数

なお、炭素繊維（A）の3次元方向のランダムにおける評価の指標は、以下の通りある。

◎（Excellent）： $1 \leq ((X+Y)/2)/Z < 2$

○（Good）： $2 \leq ((X+Y)/2)/Z < 10$

×（Bad）： $10 \leq ((X+Y)/2)/Z$

[0073] 4. 成形材料における炭素繊維（B）の2次元配向の分析

成形材料39から試験片を切出し、成形材料の任意の方向（0度方向）及びこれと直交する方向（90度方向）を基準とする引張弾性率を測定し、測定した引張弾性率の値のうち大きいものを小さいもので割った比 $E\delta$ を測定した。弾性率の比が1に近いほど、等方性に優れる材料である。本実施例では弾性率の比が1.3以下の場合、等方性であると評価する。なお、炭素繊維（B）の2次元方向ランダムにおける評価の指標は、以下の通りである。下記○の場合が、2次元方向にランダムに配向していることを表し、×の場合が2次元方向にランダムに配向していないことを表す。

○（Good）： $E\delta \leq 1.3$

×（Bad）： $1.3 < E\delta$

[0074] 5. 繊維体積含有率 V_f の分析

成形材料39より、100mm×100mmの角板を切り出し、その重量 w_0 （g）を測定した。次に、切り出した成形材料を、空气中で500℃×1時間加熱し、樹脂成分を焼き飛ばして残った炭素繊維の重量 w_1 （g）を測定した。測定結果を利用して、下式（8）を用いて、繊維重量分率 w_f を求めた。いずれの測定も $n=3$ で行い、その平均値を用いた。

$$\text{繊維重量分率 } w_f = (\text{炭素繊維の重量 } w_1 / \text{成形材料の重量 } w_0) \times 100 \quad (8)$$

次に、各成分の比重を用い、下式（9）により繊維体積含有率 V_f を算出した。なお、一般的に、繊維体積含有率 V_f と、繊維重量分率 w_f は、下記の式（9）が成立する。

$$1/V_f = 1 + \rho_f / \rho_m \quad (1/w_f - 1) \quad (9)$$

ここで、 ρ_f は繊維の密度、 ρ_m は樹脂の密度である。

[0075] [成形体における評価]

1. 物性評価

ウォータージェットを用いて成形体の水平部から試験片を切出し、JIS K 7074 を参考として、インストロン社製の曲げ試験機 5966 を用いて測定した。試験片の形状はA形試験片とした。評点間距離と板厚の比 (L/D) は40、試験速度は1%/minとした。

このように曲げ応力を測定することで、試験片の板厚の変動による、曲げ応力値への影響を無視できるようにした。なお、曲げ応力の評価結果は、比較例2を100として相対値で記載した。

また、同様に、ウォータージェットを用いて成形体から試験片を切出し、JIS K 7164 を参考として、インストロン社製の5982R4407 万能試験機を用いて、引張応力を測定した。試験片の形状はA形試験片とした。チャック間距離は115mm、試験速度は2mm/minとした。なお、引張試験結果は、2次元配向状態についての評価等に利用される。

[0076] 2. ボス及びリブへの充填性評価

成形材料39の流動性や成形性を評価する目的で、成形体41の外観、特にボス43やリブ45の端部を目視評価した。

評価では板状の成形材料39を加熱したものを150℃に設定した金型の水平部にチャージ率80%となる様に配置して、5MPaの圧力で60秒間コールドプレスし、図3に示す成形体41を得た。ボス43及びリブ45における熱可塑性樹脂の充填具合から評価した。評価指標は以下の通りである。

◎ (Perfect) : ボス、リブ双方とも、角部までしっかりと形成されていた。

○ (Excellent) : ボス、リブの形状は形成できていたが、角部にわずかながら欠けがあった。

△+ (Very good) : ボス、リブどちらか一方の形状は問題なく形

成できたが、もう片方の形状形成がやや不十分であった。

△ (G o o d) : ボス、リブ双方の形成がやや不十分であった。

△ - (P a s s e d) : ボス、リブ双方とも、完全体の半分位の形成具合であった。

× + (L e s s) : ボス、リブどちらか一方の形成が半分位までであり、もう片方の形状がほぼ不完全な形成であった。

× (B a d) : ボス、リブ双方とも、形成が不完全であった。

[0077] 3. 層間せん断強度に類する評価

ウォータージェットを用いて薄肉成形体の水平部から試験片を切出し、シマヅ製曲げ試験機島津万能試験機 A G S - X 5 K N を用いて測定した。尚、支点間距離 1 5 m m 試験速度 2 m m とし、下記式を用いて、比較例 2 を 1 0 0 とした相対値で記載した。

$$\tau = (3 P) / (4 h (t^2))$$

P : 層間せん断荷重 (N)

h : 試験片幅 (m m)

t : 試験片板厚 (m m)

[0078] [実施例・比較例共通]

本実施例や比較例で用いた炭素繊維及び熱可塑性樹脂は以下に示すものである。

- ・ P A N 系炭素繊維

- ・ ポリアミド 6 (P A 6) (融点 2 2 5 ° C 、 熱分解温度 (空气中) 3 0 0 ° C)

[0079] [実施例 1]

(工程 1)

炭素繊維として、東邦テナックス社製の炭素繊維 “テナックス” (登録商標) S T S 4 0 - 2 4 K S (繊維径 7 μ m 繊維幅 1 0 m m 引張強度 4 0 0 0 M P a) を使用し、炭素繊維を拡幅して 2 0 m m 幅として使用した。

以下の工程 1 は、図 1 で説明した前駆体の製造工程と、似た装置を使って

行うこともできるため、図1を参考にでき、図1を使って説明する。

カット装置3には、ロータリーカッターを用いた。刃15の間隔は12mmとした。開繊装置5として、小孔を有した管21を用意し、コンプレッサー23を用いて圧縮空気を送気した。この時、小孔からの風速は、60m/secであった。

この管21をロータリーカッターの直下に配置し、さらに、その下部にはテーパ管37を溶接した。テーパ管37の側面より、熱可塑性樹脂をパウダー供給装置35から供給する。この熱可塑性樹脂として、ユニチカ社製のナイロン6樹脂A1030を冷凍粉碎し、更に、20メッシュ、及び30メッシュにて分級したパウダーを用いた。このとき、平均粒径は約1mmであった。

次に、テーパ管37出口の下方に、平面方向に移動可能であり且つ通気性を有する支持体31を設置し、支持体31の裏側よりブロフにて吸引を行った。装置を稼働し、炭素繊維目付1441g/m²、ナイロン樹脂目付1704g/m²である前駆体を得た。なお、この前駆体は、樹脂パウダー(P)用であって、図1で説明した成形材料用の前駆体とは異なる。

この前駆体を260℃に加熱したプレス装置にて、2.0MPaにて5分間加熱し、厚みt=2.3mmの複合材料を得た。ここで得られた複合材料は大型低速プラスチック粉碎機を用いて細かく粉碎して粒材(R)を得た。

得られた粒材(R)と、熱可塑性樹脂(ポリアミド6)とを、100:217の重量割合で混合させて、東芝機械製TEM26S2軸押し出し機に投入し、シリンダ温度280℃、スクリー回転数100rpmで熔融混練して炭素繊維の繊維体積含有率V_fが9.7%の樹脂ペレットを得た。この樹脂ペレットを、粉碎機で更に粉碎して樹脂パウダー(P)を得た。このとき、樹脂パウダー(P)の平均粒径は約1mmであり、形状は不定形状であった。

樹脂パウダー(P)に含まれる炭素繊維(A)の特性を、測定したところ、繊維長分布は、0.01mm以上1.1mm以下の範囲内であり、数平均

繊維長 L_{nA} は 0.11 mm、重量平均繊維長 L_{wA} は 0.22 mm であった ($L_{wA}/L_{nA} = 2$)。

[0080] (工程 2 ～ 5)

炭素繊維 (B) として、東邦テナックス社製の炭素繊維 “テナックス” (登録商標) S T S 4 0 - 2 4 K S (平均繊維径 $7 \mu\text{m}$ 、繊維幅 10 mm) を拡幅して、繊維幅 20 mm としたものを使用した。炭素繊維 (B) のカット装置 3 には、ロータリーカッターを用いた。刃 15 のピッチは 20 mm とし、炭素繊維を繊維長 20 mm にカットするようにした。

開繊装置 5 として、径の異なる SUS 304 製のニップルを溶接し、二重構造の管 21 を製作した。内側の管に小孔を設け、外側の管との間にコンプレッサー 23 を用いて圧縮空気を送気した。この時、小孔からの風速は、 450 m/sec であった。この管 21 をロータリーカッターの直下に配置し、さらに、その下部にはテーパ管 37 を溶接した。テーパ管 37 の側面からは、前記工程 1 で得られた樹脂パウダー (P) をパウダー供給装置 35 により供給した。

次に、テーパ管 37 出口の下方に、平面方向に移動可能な支持体 31 を設置し、支持体 31 の裏側よりブロワにて吸引を行った。装置を稼働し、前駆体 33 における炭素繊維全量の重量割合が 45.8 wt % (炭素繊維全量の目付が 1880 g/m^2 、ナイロン樹脂目付 2223 g/m^2)、また炭素繊維 (A) と炭素繊維 (B) の重量割合が 10 : 90 となるように調整して、炭素繊維 (B) と樹脂パウダー (P) とを混合し、前駆体 33 を得た。

得られた前駆体 33 に含まれる炭素繊維の繊維長を測定して、0.01 mm 以上 3 mm 未満の炭素繊維 (A) と 3 mm 以上 100 mm 未満の炭素繊維 (B) の重量割合を分析したところ 10 : 90 であり、炭素繊維 (B) の繊維長は 20 mm と一定長であった。

炭素繊維 (B) のカット方法を上述のようにロータリーカッターの刃のピッチを一定長としたために、前駆体 33 に含まれる炭素繊維 (B) の長さを固定長とすることができた。したがって、重量平均繊維長 L_{wB} 、数平均繊維

長 L_{n_B} はともに20mmであり、 L_{w_B}/L_{n_B} は1.0であった。

[0081] 得られた前駆体33について、炭素繊維束(B1)の割合と、平均繊維数(N_B)を調べたところ、式(1)で定義される臨界単糸数は86本であり、炭素繊維束(B1)について、炭素繊維(B)全量に対する割合は85Vol%、炭素繊維(B1)の束内平均繊維数(N_B)は、750本であった。

得られた前駆体33を260℃に加熱したプレス装置にて、3MPaにて20分間加熱し、板厚3.0mmの板状の成形材料39(図4参照)を得た。得られた成形材料について超音波探傷試験を行ったところ、未含浸部やボイドは確認されなかった。

得られた板状の成形材料39の0度及び90度方向の引張り弾性率を測定したところ、弾性率の比 E_{δ} は1.03であり、繊維配向の差は殆ど無く、2次元方向において等方性が維持された材料を得ることができた。

更に、この成形材料39を500℃×1時間程度炉内にて加熱し、樹脂を除去した後、炭素繊維(A)と炭素繊維(B)の割合、及び炭素繊維束(B1)の割合と、炭素繊維束(B1)に含まれる平均繊維数(N_B)を調べたところ、上記前駆体33の測定結果と差異は見られなかった。

上記成形材料39について、結果を表1に示す。また、機械物性は後述する比較例1との相対物性を示す。

また、成形材料39をNGKキルンテック製のIRオーブンをを用いて300℃に加熱したものを120℃に設定した金型の水平部にチャージ率80%となる様に配置して5MPaの圧力で60秒間コールドプレスし、図3に示すようなボス43及びリブ45を有する成形体41を得た。

[0082] [実施例2]

炭素繊維(A)と炭素繊維(B)の重量割合を20:80にしたこと以外は実施例1と同様に成形材料を作成した。結果を表1に示す。

[0083] [実施例3]

炭素繊維(A)と炭素繊維(B)の重量割合を30:70にしたこと以外は実施例1と同様に成形材料を作成した。結果を表1に示す。

[0084] [実施例 4]

炭素繊維（A）と炭素繊維（B）の重量割合を 40 : 60 にしたこと以外は実施例 1 と同様に成形材料を作成した。結果を表 1 に示す。

[0085] [実施例 5]

実施例の工程 1 において、得られた粒材（R）を熔融混練せず、樹脂パウダー（P）を得る工程を省いた。また、工程 2 以降では、樹脂パウダー（P）の代わりに粒材（R）を用いたこと以外は、実施例 2 と同様に成形材料を作成した。

粒材（R）に含まれる炭素繊維（A）の特性を測定したところ、繊維長分布は 0.01 以上 2.3 mm 以下の範囲内であり、数平均繊維長 L_{nA} は 0.22 mm、重量平均繊維長 L_{wA} は 0.55 mm であった（ $L_{wA}/L_{nA} = 2.5$ ）。

結果を表 1 に示す。

[0086] [実施例 6]

炭素繊維（A）と炭素繊維（B）の重量割合を 50 : 50 にしたこと以外は実施例 5 と同様に成形材料を作成した。結果を表 1 に示す。

[0087] [比較例 1]

実施例 1 において、炭素繊維（B）を用いず、炭素繊維（A）と炭素繊維（B）の含有割合を 100 : 0 になるように調整した以外は、実施例 1 と同様に成形材料を作成した。

この際、成形材料に含まれる炭素繊維全量は、実施例 1 と同じになるよう、炭素繊維（A）の含有割合は調整した。

炭素繊維（A）の特性及び得られた板状の成形材料の特性については実施例 1 と同様に評価した。結果を表 1 に示す。

[0088] [比較例 2]

実施例 1 の工程 1 を省き、工程 2 ~ 5 のみで前駆体を作成することで、炭素繊維（A）を含まない前駆体を作成した。この際、成形材料に含まれる炭素繊維全量は、実施例 1 と同じになるよう、炭素繊維（B）の含有割合は調

整した。

得られた前駆体に含まれる炭素繊維の繊維長を測定して、 0.01 mm 以上 3 mm 未満の炭素繊維（A）と 3 mm 以上 100 mm 未満の炭素繊維（B）の重量割合を分析したところ $0:100$ であり、炭素繊維（B）の繊維長は 20 mm と一定長であった。重量平均繊維長 L_{wB} 、数平均繊維長 L_{nB} はともに 20 mm であり、 L_{wB}/L_{nB} は 1.0 であった。

得られた前駆体について、炭素繊維束（B1）の割合と、平均繊維数（N）を調べたところ、式（1）で定義される臨界単系数は 86 本であり、炭素繊維束（B1）について、マットの繊維全量に対する割合は $86\text{ Vol}\%$ 、炭素繊維（B1）の束内平均繊維数は、 1500 本であった。

得られた前駆体は実施例1と同様にプレスして板厚 3.0 mm の板状の成形材料を得た。前駆体における炭素繊維（B）の繊維特性、及び成形材料の評価結果を表1に示す。

[0089] [比較例3]

炭素繊維全量の繊維体積割合を 28% に調整した以外は、比較例2と同様に成形材料を作成した。結果を表1に示す。炭素繊維（B）のみの繊維体積割合でみると、比較例3は実施例2と一致する。

[0090] [比較例4]

炭素繊維全量の繊維体積割合を 40% に調整した以外は、比較例2と同様に成形材料を作成した。結果を表1に示す。

[0091] [比較例5]

炭素繊維束（B1）の割合と平均繊維数 N_B を表1に示したように調整した以外は、比較例2と同様に成形材料を作成した。結果を表1に示す。

[0092] [実施例7]

炭素繊維（A）について、 L_{wA}/L_{nA} を表2に示したように調整したことで以外は実施例2と同様に成形材料を作成した。結果を表2に示す。

[0093] [実施例8]

炭素繊維（A）について、 L_{wA}/L_{nA} を表2に示したように調整したこ

と以外は実施例 2 と同様に成形材料を作成した。結果を表 2 に示す。

[0094] [実施例 9]

炭素繊維束 (B 1) の割合と平均繊維数 N_B を表 2 に示したように調整したこと以外は実施例 2 と同様に成形材料を作成した。結果を表 2 に示す。

[0095] [実施例 10]

炭素繊維束 (B 1) の割合と平均繊維数 N_B を表 2 に示したように調整したこと以外は実施例 2 と同様に成形材料を作成した。結果を表 2 に示す。

[0096] [実施例 11]

炭素繊維束 (B 1) の割合と平均繊維数 N_B を表 2 に示したように調整したこと以外は実施例 2 と同様に成形材料を作成した。結果を表 2 に示す。

[0097] [実施例 12]

炭素繊維束 (B 1) の割合と平均繊維数 N_B を表 2 に示したように調整したこと以外は実施例 2 と同様に成形材料を作成した。結果を表 2 に示す。

[0098] [実施例 13]

炭素繊維束 (B) について、 $L w_B$ と $L n_B$ を表 2 に示したように調整したこと以外は実施例 2 と同様に成形材料を作成した。結果を表 2 に示す。

[0099] [実施例 14]

炭素繊維束 (B) について、 $L w_B$ と $L n_B$ を表 2 に示したように調整したこと以外は実施例 2 と同様に成形材料を作成した。結果を表 2 に示す。

[0100] [実施例 15]

炭素繊維束 (B) について、 $L w_B$ と $L n_B$ と炭素繊維束 (B 1) の割合と平均繊維数 N_B を表 2 に示したように調整したこと以外は実施例 2 と同様に成形材料を作成した。結果を表 2 に示す。

[0101] [実施例 16]

炭素繊維束 (B) について、 $L w_B$ と $L n_B$ と炭素繊維束 (B 1) の割合と平均繊維数 N_B を表 2 に示したように調整したこと以外は実施例 2 と同様に成形材料を作成した。結果を表 2 に示す。

[0102] [実施例 17]

炭素繊維束（B）について、カット長を調整して、 Lw_B と Ln_B とを表2に示したように調整したこと以外は実施例2と同様に成形材料を作成した。結果を表2に示す。

[0103] [実施例18]

炭素繊維（A）と炭素繊維（B）の重量割合を表2に示したように調整したこと以外は実施例2と同様に成形材料を作成した。結果を表2に示す。

[0104] [実施例19]

炭素繊維（A）と炭素繊維（B）の重量割合を表2に示したように調整したこと以外は実施例2と同様に成形材料を作成した。結果を表2に示す。

[0105] [比較例6]

炭素繊維（A）について、 Lw_A と Ln_A を表3に示したように調整したこと以外は実施例2と同様に成形材料を作成した。結果を表3に示す。

[0106] [比較例7]

炭素繊維（A）について、 Lw_A と Ln_A を表3に示したように調整したこと以外は実施例2と同様に成形材料を作成した。結果を表3に示す。

[0107] [比較例8]

炭素繊維（A）について、 Lw_A と Ln_A と炭素繊維束（B1）の割合と平均繊維数 N_B を表3に示したように調整したこと以外は実施例2と同様に成形材料を作成した。結果を表3に示す。

[0108] [実施例20]

炭素繊維束（B1）の割合と平均繊維数 N_B を表3に示したように調整した以外は、実施例2と同様に成形材料を作成した。結果を表3に示す。

[0109] [比較例9]

Lw_A と Ln_A と炭素繊維束（B1）の割合と平均繊維数 N_B を表3に示したように調整した以外は、実施例2と同様に成形材料を作成した。結果を表3に示す。

[0110] [比較例10]

Lw_A と Ln_A と炭素繊維束（B1）の割合と平均繊維数 N_B を表3に示した

ように調整した以外は、実施例 2 と同様に成形材料を作成した。結果を表 3 に示す。

[0111] [比較例 1 1]

炭素繊維のかわりにガラス繊維（日東紡株式会社製、Eーガラス）を用い、ガラス繊維について、表 3 に示したように調整した以外は、実施例 2 と同様に成形材料を作成した。結果を表 3 に示す。

[0112] [比較例 1 2]

炭素繊維のかわりにガラス繊維（日東紡株式会社製、Eーガラス）を用い、ガラス繊維について、表 3 に示したように調整した以外は、実施例 2 と同様に成形材料を作成した。結果を表 3 に示す。

[0113] [理論加成則の確認計算]

比較例 1 と比較例 2 における曲げ強度をそれぞれ S_a 、 S_b とし、実施例における炭素繊維（A）の繊維全体に対する重量含有割合を q とし、 $q S_a + (1 - q) S_b$ を求めた。結果を表 4、グラフを図 7 に示す。

[0114]

[表1]

		種類										比較例5 炭素繊維	
		実施例1 炭素繊維	実施例2 炭素繊維	実施例3 炭素繊維	実施例4 炭素繊維	実施例5 炭素繊維	実施例6 炭素繊維	比較例1 炭素繊維	比較例2 炭素繊維	比較例3 炭素繊維	比較例4 炭素繊維		
繊維	炭素繊維 (A)	数平均繊維長 L _{NA} : mm	0.11	0.11	0.11	0.11	0.22	0.22	0.11	-	-	-	
		重量平均繊維長 L _{WA} : mm	0.22	0.22	0.22	0.22	0.55	0.55	0.22	-	-	-	
		L _{WA} /L _{NA}	2.0	2.0	2.0	2.0	2.5	2.5	2.0	-	-	-	
		3次元ランダムの状態	◎	◎	◎	◎	○	○	◎	-	-	-	
		炭素繊維束 (A1) の割合	Excellent	Excellent	Excellent	Excellent	Good	Good	Excellent	-	-	-	
		平均繊維数N _A	5Vol%	5Vol%	5Vol%	5Vol%	50Vol%	50Vol%	50Vol%	-	-	-	
	炭素繊維 (B)	炭素繊維束 (A1) の面積割合	100	100	100	100	400	400	400	-	-	-	
			5%	5%	5%	5%	70%	70%	5%	-	-	-	
			(Perfect)	(Perfect)	(Perfect)	(Perfect)	(good)	(good)	(Perfect)	-	-	-	
		数平均繊維長 L _{NB} : mm	20	20	20	20	20	20	-	20	20	20	
成形材料	炭素繊維 (B)	重量平均繊維長 L _{WB} : mm	20	20	20	20	20	20	-	20	20	20	
		2次元ランダムの状態	○	○	○	○	○	○	-	○	○	○	
		炭素繊維束 (B1) の割合	(Good)	(Good)	(Good)	(Good)	(Good)	(Good)	-	(Good)	(Good)	(Good)	
		炭素繊維束 (B1) の割合	85Vol%	85Vol%	85Vol%	85Vol%	85Vol%	85Vol%	-	85Vol%	85Vol%	85Vol%	
		平均繊維数N _B	750	750	750	750	750	750	-	750	750	750	
		L _{WB} /L _{NB}	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	-	1.0	1.0	1.0	
	炭素繊維 (A) : 炭素繊維 (B) 重量割合	熱可塑性樹脂	10 : 90	20:80	30:70	40:60	20:80	50:50	100:0	0:100	0:100	0:100	
		繊維体積含有率V _f : %	PA6	PA6	PA6	PA6	PA6	PA6	PA6	PA6	PA6	PA6	
		物性	35	35	35	35	35	35	35	35	28	40	35
		成形性	92	91	85	79	92	62	45	100	83	104	105
成形体	層間せん断 類似評価 (相対値)	充填性	△ good	○ Excellent	○ Excellent	◎ Perfect	◎ Perfect	◎ Perfect	△ good	○ Excellent	× bad	× bad	
			98	95	90	80	95	60	-	100	85	100	105

[0115] [表2]

繊維	種類	実施例7													実施例8													実施例9													実施例10													実施例11													実施例12													実施例13													実施例14													実施例15													実施例16													実施例17													実施例18													実施例19																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																		
		成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維				成系繊維		

[0116] [表3]

繊維	種類	比較例6	比較例7	比較例8	実施例20	比較例9	比較例10	比較例11	比較例12
		炭素繊維 数平均繊維長 L_{NA} : mm	炭素繊維 1	炭素繊維 2	炭素繊維 0.11	炭素繊維 1	炭素繊維 1	炭素繊維 3	炭素繊維 0.8
炭素繊維 (A)	重量平均繊維長 L_{WA} : mm	3	1	2	0.22	1	1	3	1.5
	L_{WA}/L_{NA}	1.0	1.0	1.0	2.0	1.0	1.0	1.0	1.9
	3次元ランダム状態	x bad 2次元ランダム	x bad 2次元ランダム	x bad 2次元ランダム	◎ Excellent	◎ Excellent	◎ Excellent	◎ Excellent	◎ Excellent
	炭素繊維束 (A1) の割合	20Vol%	20Vol%	20Vol%	5Vol%	5Vol%	5Vol%	100Vol%	5Vol%
	平均繊維数 N_A	200	200	200	100	100	100	60	60
	炭素繊維束 (A1) の面積割合	かなり多い (未測定)	かなり多い (未測定)	100% (good)	5% (Perfect)	5% (Perfect)	5% (Perfect)	100% (good)	5% (Perfect)
炭素繊維 (B)	数平均繊維長 L_{NB} : mm	20	20	20	20	20	20	20	20
	重量平均繊維長 L_{WB} : mm	20	20	20	20	20	20	20	20
	2次元ランダム状態	○ (Good)	○ (Good)	○ (Good)	○ (Good)	○ (Good)	○ (Good)	○ (Good)	○ (Good)
	炭素繊維束 (B1) の割合	85Vol%	85Vol%	100Vol%	100Vol%	100Vol%	5Vol%	100Vol%	5Vol%
	平均繊維数 N_B	750	750	1800	24000	24000	100	3000	60
	L_{WB}/L_{NB}	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
成形材料	炭素繊維 (A) : 炭素繊維 (B) 重量割合	20:80	20:80	20:80	20:80	20:80	20:80	20:80	20:80
	熱可塑性樹脂	PA6	PA6	PA6	PA6	PA6	PA6	PA6	PA6
	繊維体積含有率 V_f : %	35	35	35	35	35	35	50	50
成形体	物性	95	93	88	82	84	103	39	47
	成形性	x bad	△ good	x+ less	◎ Perfect	○ Excellent	x+ less	◎ Perfect	△ good
	層間せん断 類似評価 (相対値)	80	80	90	85	85	110	-	-

[0117] [表4]

炭素繊維 (A) 重量割合	比較例2	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	比較例 1
数平均繊維長 L_n : mm	0%	10%	20%	30%	40%	20%	100%
繊維束の面積割合	-	0.11	0.11	0.11	0.11	0.22	0.11
	-	5% (Perfect)	5% (Perfect)	5% (Perfect)	5% (Perfect)	70% (Good)	5% (Perfect)
炭素繊維 (A) Vf 体積割合	0	3.5%	7.0%	10.5%	14.0%	7.0%	100.0%
炭素繊維 (B) Vf 体積割合	35%	31.5%	28.0%	24.5%	21.0%	28.0%	0.0%
炭素繊維束 (B1) の体積割合	85%	85%	85%	85%	85%	85%	-
熱可塑性樹脂 体積割合	65%	65%	65%	65%	65%	65%	65%
理論加成即上の値 (相対値)	100	93	87	82	77	102	87
実測値 (相対値)	100	96	91	85	79	92	40
加成則 超え率	100.0%	103.2%	104.6%	103.7%	102.6%	90.2%	46.0%

産業上の利用可能性

[0118] 本発明の成形材料は、各種構成部材、例えば自動車の内板、外板、構成部材、また各種電気製品、機械のフレームや筐体等のプリフォームとして用いることができる。本発明を詳細にまた特定の実施態様を参照して説明したが、本発明の精神と範囲を逸脱することなく様々な変更や修正を加えることができることは当業者にとって明らかである。

[0119] 本発明を詳細にまた特定の実施態様を参照して説明したが、本発明の精神と範囲を逸脱することなく様々な変更や修正を加えることができることは当業者にとって明らかである。

本出願は、2014年2月14日出願の日本特許出願（特願2014-026968）に基づくものであり、その内容はここに参照として取り込まれる。

符号の説明

- [0120]
- 1 炭素繊維
 - 3 カット装置
 - 5 開繊装置
 - 7 散布装置
 - 12 ピンチローラー
 - 13 ゴムローラー
 - 14 ロータリーカッター
 - 15 刃
 - 16 切断後の炭素繊維
 - 17 繊維方向に平行な刃
 - 21 管
 - 23 コンプレッサー
 - 31 支持体
 - 33 成形材料用の前駆体
 - 35 パウダー供給装置

3 7 テーパ管

3 9 成形材料

4 1 成形体

4 3 ボス

4 5 リブ

A 炭素繊維（A）

B 炭素繊維（B）

C 熱可塑性樹脂

請求の範囲

- [請求項1] 熱可塑性樹脂と、炭素繊維（A）と、炭素繊維（B）とを含む板状の炭素繊維強化成形材料であって、
- i) 炭素繊維（A）は繊維長が0.01mm以上3mm未満であり、
 - ii) 炭素繊維（B）は繊維長が3mm以上100mm未満であり、
 - iii) 炭素繊維（A）の重量平均繊維長を L_{wA} 、数平均繊維長を L_{nA} とそれぞれしたときに、 $1.0 < L_{wA} / L_{nA} < 3$ であり、
 - iv) 炭素繊維（B）が2次元方向にランダム配向された、炭素繊維強化成形材料。
- [請求項2] 前記炭素繊維（A）が3次元方向にランダム配向された請求項1に記載の炭素繊維強化成形材料。
- [請求項3] 前記炭素繊維（B）の重量平均繊維長を L_{wB} 、数平均繊維長を L_{nB} とそれぞれしたときに、
- $$1.0 \leq L_{wB} / L_{nB} < 1.2$$
- である、請求項1又は2に記載の炭素繊維強化成形材料。
- [請求項4] 前記炭素繊維（A）と前記炭素繊維（B）の重量割合（%）が、
- $$5 : 95 \sim 95 : 5$$
- である、請求項1～3のいずれか1項に記載の炭素繊維強化成形材料。
- [請求項5] 1) 炭素繊維（B）は下記式（1）で定義される臨界単系数未満の繊維束及び単糸と、臨界単系数以上で構成される炭素繊維束（B1）とを含んでなり、
- 2) 炭素繊維強化成形材料に含まれる炭素繊維（B）全量に対する炭素繊維束（B1）の割合が、5vol%以上95vol%未満であり、
- 3) 炭素繊維束（B1）中の平均繊維数（ N_B ）が下記式（2）を

満たす、

請求項 1 ～ 4 いずれか 1 項に記載の炭素繊維強化成形材料。

$$\text{臨界単糸数} = 600 / D_B \quad (1)$$

$$0.43 \times 10^4 / D_B^2 < N_B < 6 \times 10^5 / D_B^2 \quad (2)$$

(ここで D_B は炭素繊維 (B) の平均繊維径 (μm) である)

[請求項6] 曲げ強度 S が、 $q S_a + (1 - q) S_b$ の 0.8 倍以上である、請求項 1 ～ 5 いずれか 1 項に記載の炭素繊維強化成形材料。

ただし、

S_a : 炭素繊維 (A) と熱可塑性樹脂とからなる成形材料 (A) の曲げ強度

S_b : 炭素繊維 (B) と熱可塑性樹脂とからなる成形材料 (B) の曲げ強度

q : 炭素繊維 (A) と炭素繊維 (B) との全量に対する炭素繊維 (A) の重量含有割合

[請求項7] 請求項 1 ～ 6 のいずれか 1 項に記載の炭素繊維強化成形材料を用いて成形した成形体であり、

成形体の板厚が最小の部分の板厚を最小板厚 T (mm) としたとき、

(a) 炭素繊維 (A) の数平均繊維長 L_{nA} が $T / 2$ (mm) 未満であり、

(b) 炭素繊維 (B) の数平均繊維長 L_{nB} が T (mm) 以上である、

成形体。

[請求項8] 前記最小板厚 T (mm) が、1 mm 以上である請求項 7 に記載の成形体。

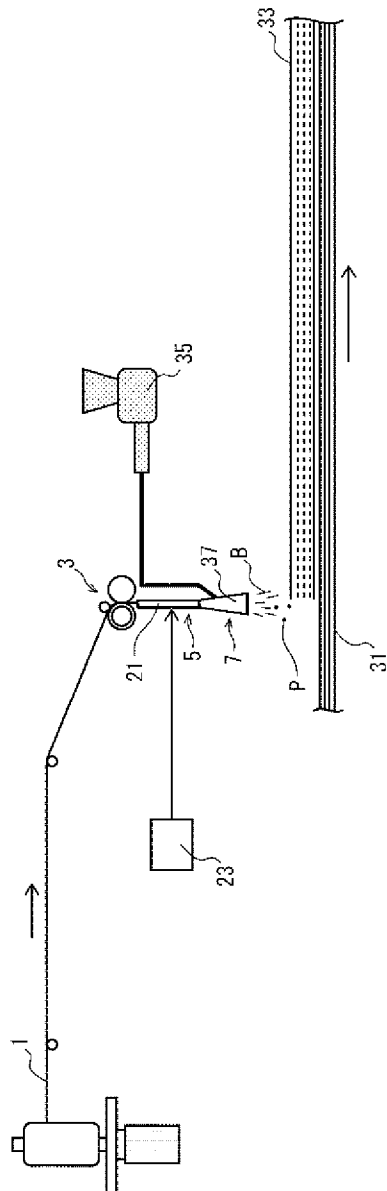
[請求項9] 請求項 1 ～ 6 のいずれか 1 項に記載の炭素繊維強化成形材料を用いて成形した成形体であり、

成形体の板厚方向の断面を観察した際、以下で定義される炭素繊維

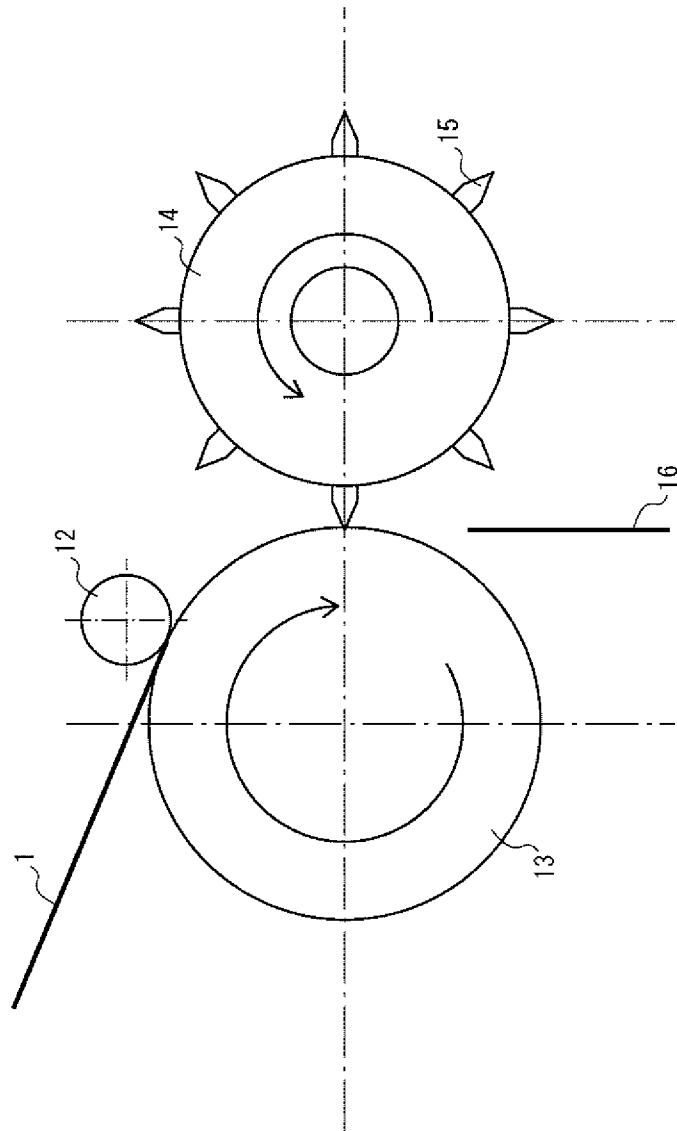
束（A 1）の面積割合が、炭素繊維（A）全体の面積に対して 0 % 超 5 0 % 以下である成形体。

ここで、炭素繊維束（A 1）は、炭素繊維（A）に属し、繊維束中の繊維の数が $35 / D_A$ 以上で観察される炭素繊維束（ここで D_A は炭素繊維（A）の平均繊維径（ μm ）である。）である。

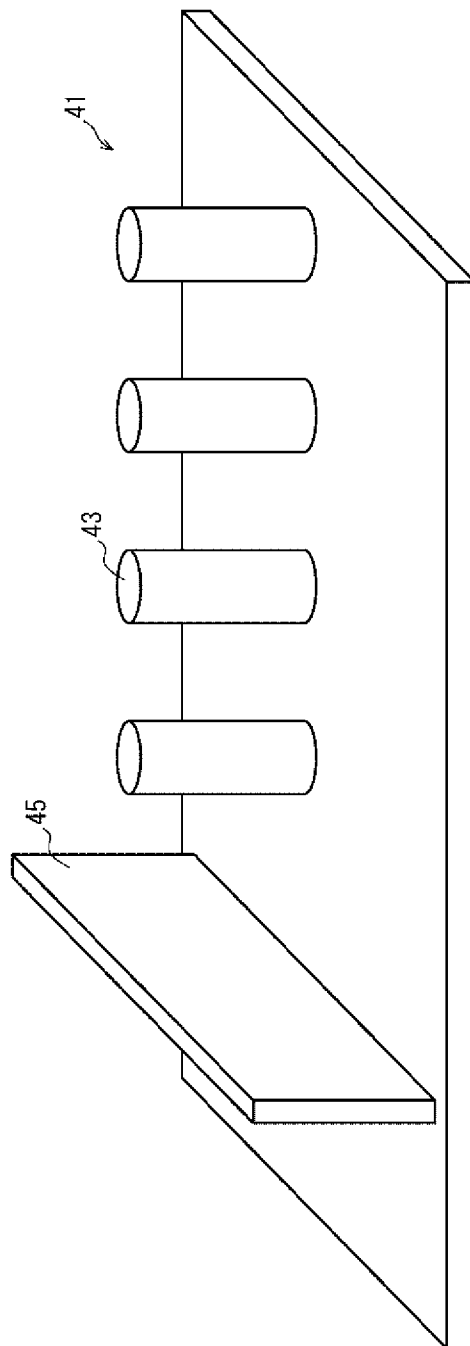
[図1]



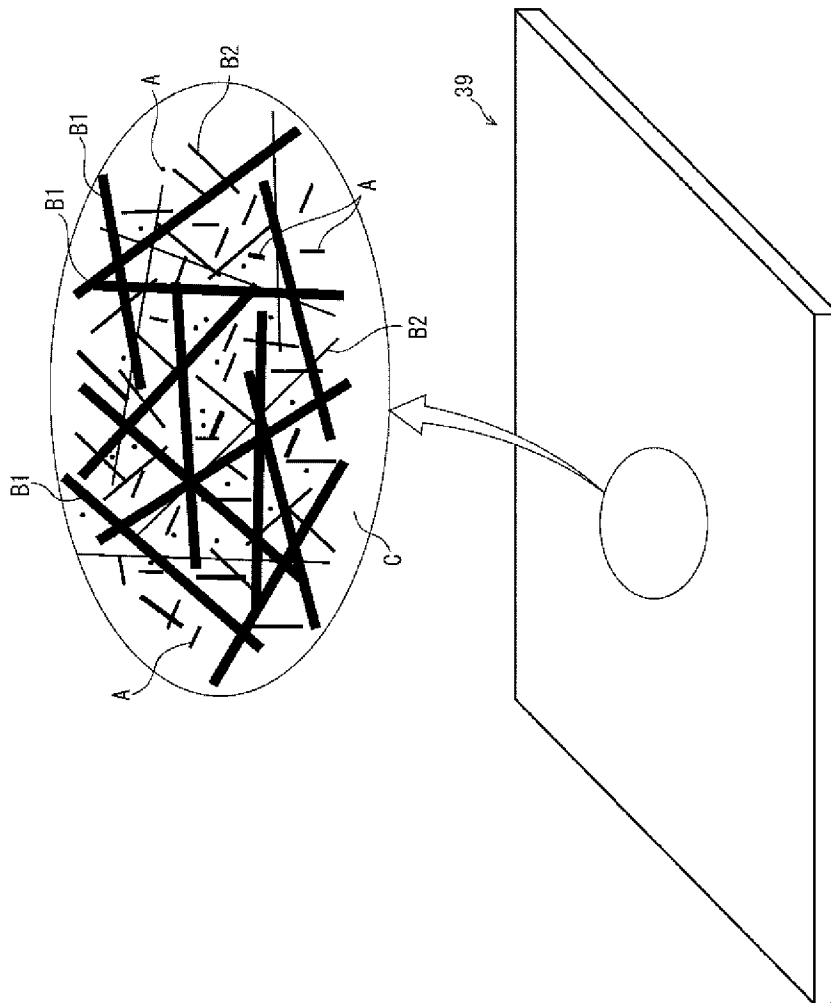
[図2]



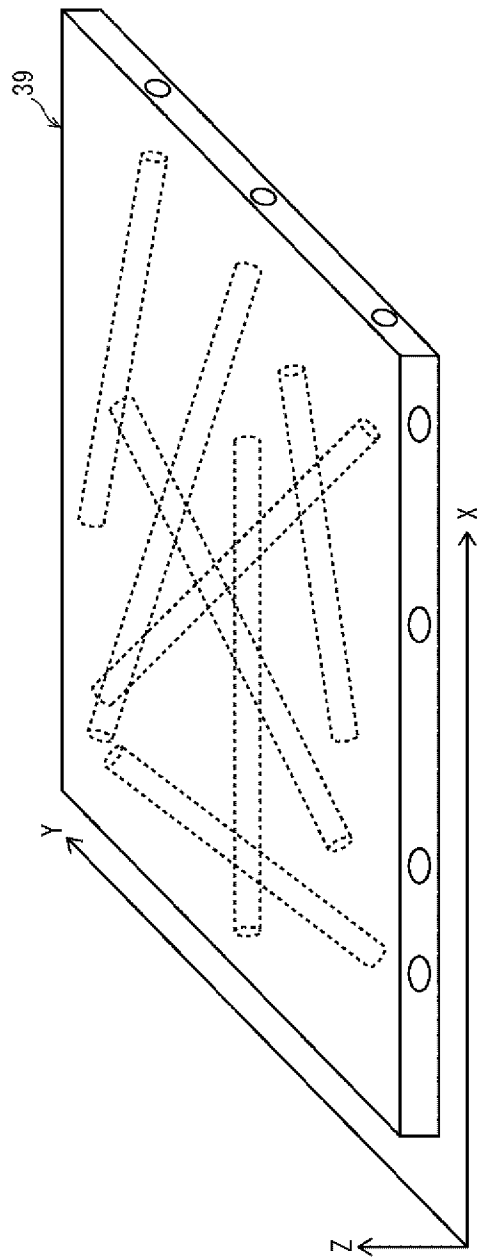
[図3]



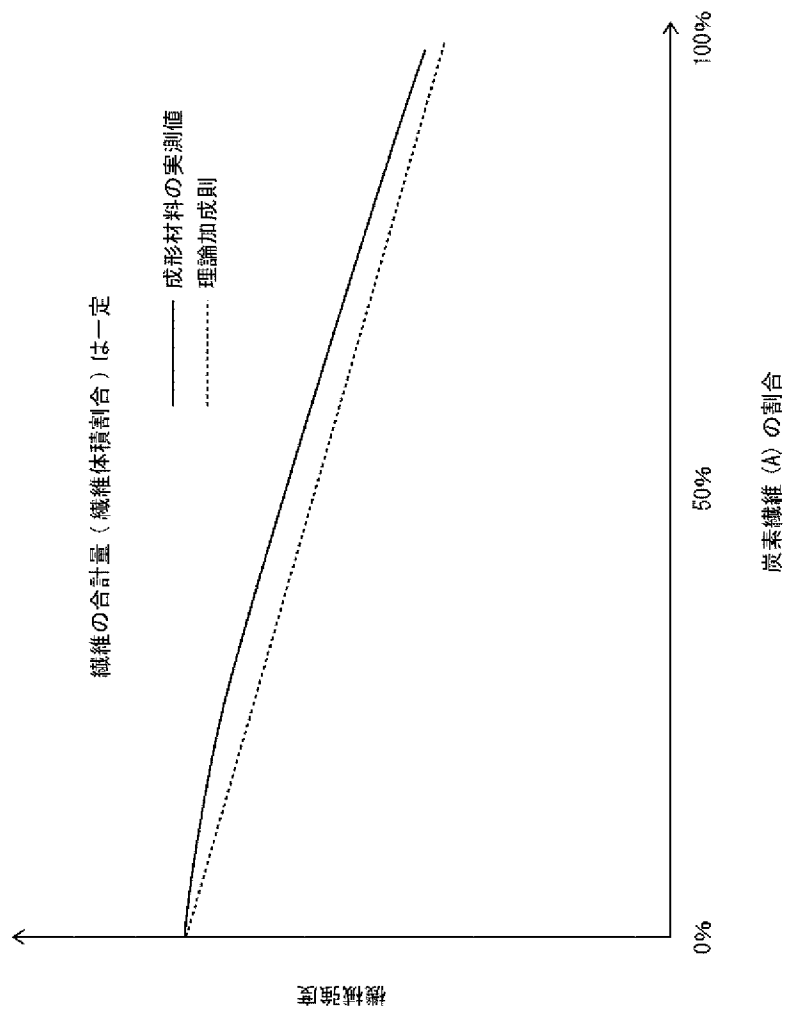
[図4]



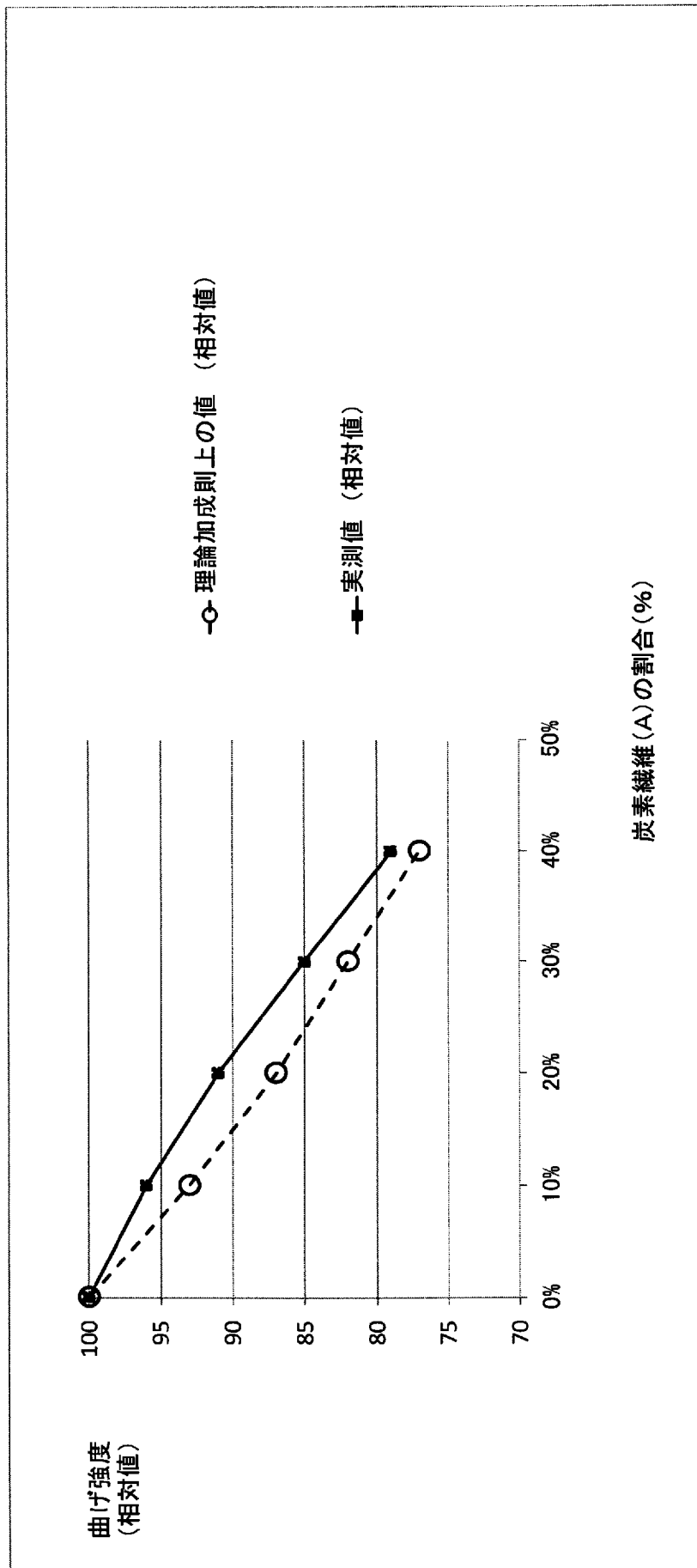
[図5]



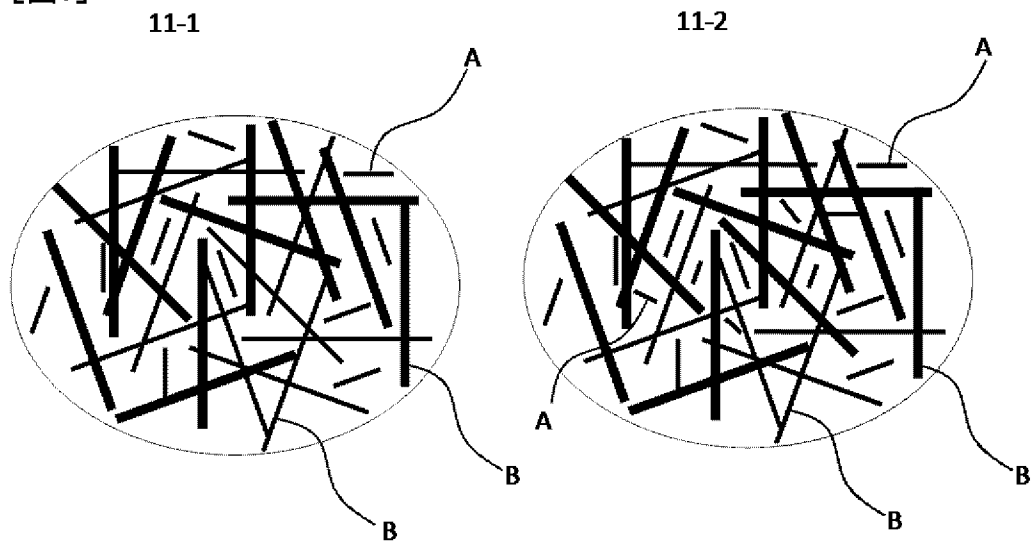
[図6]



[図7]



[図8]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/053353

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B29B11/16(2006.01)i, B29B15/08(2006.01)i, C08K7/06(2006.01)i, C08L101/00(2006.01)i, B29K101/12(2006.01)n, B29K105/06(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)

B29B11/16, B29B15/08, C08K7/06, C08L101/00, B29K101/12, B29K105/06

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

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

JSTPlus/JST7580 (JDreamIII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	JP 2014-189644 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 06 October 2014 (06.10.2014), entire text; particularly, claims; paragraphs [0090] to [0097] (Family: none)	1, 3, 4
Y A	JP 2011-157524 A (Toray Industries, Inc.), 18 August 2011 (18.08.2011), entire text; particularly, claims; paragraphs [0013] to [0017], [0026] to [0034] (Family: none)	1, 3-5, 7, 8 2, 6, 9
Y A	JP 2013-209446 A (Mitsubishi Rayon Co., Ltd.), 10 October 2013 (10.10.2013), entire text; particularly, claims; paragraphs [0016] to [0023] (Family: none)	1, 3-5, 7, 8 2, 6, 9

☒ 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
24 April 2015 (24.04.15)

Date of mailing of the international search report
12 May 2015 (12.05.15)

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/JP2015/053353

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2007-269308 A (Toray Industries, Inc.), 18 October 2007 (18.10.2007), entire text; particularly, claims; paragraphs [0031], [0091] to [0095] (Family: none)	1,3-5,7,8
Y	WO 2007/097436 A1 (Toray Industries, Inc.), 30 August 2007 (30.08.2007), entire text; particularly, claims & JP 5309563 B & US 2009/0004453 A1 & EP 1988118 A1 & CN 101421340 A & KR 10-2008-0114750 A & ES 2405946 T & TW 00I414543 B & KR 10-1409959 B	1,3-5,7,8
Y	WO 2013/175581 A1 (Toray Industries, Inc.), 28 November 2013 (28.11.2013), entire text; particularly, claims (Family: none)	1,3-5,7,8
Y	JP 2011-178891 A (Teijin Ltd.), 15 September 2011 (15.09.2011), entire text; particularly, claims; paragraphs [0015] to [0031], [0045] to [0047] (Family: none)	5
A	JP 3-261513 A (Osaka Gas Co., Ltd.), 21 November 1991 (21.11.1991), entire text; particularly, claims (Family: none)	1-9
A	JP 2013-049208 A (Teijin Ltd.), 14 March 2013 (14.03.2013), entire text; particularly, claims; fig. 1 (Family: none)	1-9
A	WO 2012/108446 A1 (Teijin Ltd.), 16 August 2012 (16.08.2012), entire text; particularly, claims; fig. 8 & US 2014/0004308 A1 & EP 2674447 A1 & CN 103347933 A & KR 10-2014-0038945 A	1-9
A	JP 2013-166923 A (Toray Industries, Inc.), 29 August 2013 (29.08.2013), entire text; particularly, claims & US 2014/0356612 A & WO 2013/108811 A & WO 2013/108811 A1 & EP 2805995 A1 & TW 201335263 A & CA 2859630 A & CN 104066783 A & KR 10-2014-0114342 A	1-9

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. B29B11/16(2006.01)i, B29B15/08(2006.01)i, C08K7/06(2006.01)i, C08L101/00(2006.01)i, B29K101/12(2006.01)n, B29K105/06(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. B29B11/16, B29B15/08, C08K7/06, C08L101/00, B29K101/12, B29K105/06

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 5 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 5 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 5 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）

JSTPlus/JST7580(JDreamIII)

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	JP 2014-189644 A（三菱化学株式会社）2014. 10. 06, 文献全体、特に特許請求の範囲、段落【0090】－【0097】（ファミリーなし）	1, 3, 4
Y A	JP 2011-157524 A（東レ株式会社）2011. 08. 18, 文献全体、特に特許請求の範囲、段落【0013】－【0017】、【0026】－【0034】（ファミリーなし）	1, 3-5, 7, 8 2, 6, 9
Y A	JP 2013-209446 A（三菱レイヨン株式会社）2013. 10. 10, 文献全体、特に特許請求の範囲、段落【0016】－【0023】（ファミリーなし）	1, 3-5, 7, 8 2, 6, 9

☒ C 欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

2 4 . 0 4 . 2 0 1 5

国際調査報告の発送日

1 2 . 0 5 . 2 0 1 5

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 1 0 0 - 8 9 1 5
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）

大村 博一

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 3 0

4 F

3 9 7 3

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
Y	JP 2007-269308 A (東レ株式会社) 2007. 10. 18, 文献全体、特に特許請求の範囲、段落【0031】、【0091】－【0095】 (ファミリーなし)	1, 3-5, 7, 8
Y	WO 2007/097436 A1 (東レ株式会社) 2007. 08. 30, 文献全体、特に請求の範囲 & JP 5309563 B & US 2009/0004453 A1 & EP 1988118 A1 & CN 101421340 A & KR 10-2008-0114750 A & ES 2405946 T & TW 001414543 B & KR 10-1409959 B	1, 3-5, 7, 8
Y	WO 2013/175581 A1 (東レ株式会社) 2013. 11. 28, 文献全体、特に請求の範囲 (ファミリーなし)	1, 3-5, 7, 8
Y	JP 2011-178891 A (帝人株式会社) 2011. 09. 15, 文献全体、特に特許請求の範囲、段落【0015】－【0031】、【0045】－【0047】 (ファミリーなし)	5
A	JP 3-261513 A (大阪瓦斯株式会社) 1991. 11. 21, 文献全体、特に特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 2013-049208 A (帝人株式会社) 2013. 03. 14, 文献全体、特に特許請求の範囲、【図 1】 (ファミリーなし)	1-9
A	WO 2012/108446 A1 (帝人株式会社) 2012. 08. 16, 文献全体、特に請求の範囲、[図 8] & US 2014/0004308 A1 & EP 2674447 A1 & CN 103347933 A & KR 10-2014-0038945 A	1-9
A	JP 2013-166923 A (東レ株式会社) 2013. 08. 29, 文献全体、特に特許請求の範囲 & US 2014/0356612 A & WO 2013/108811 A & WO 2013/108811 A1 & EP 2805995 A1 & TW 201335263 A & CA 2859630 A & CN 104066783 A & KR 10-2014-0114342 A	1-9