

(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  
2021年9月10日(10.09.2021)



(10) 国際公開番号

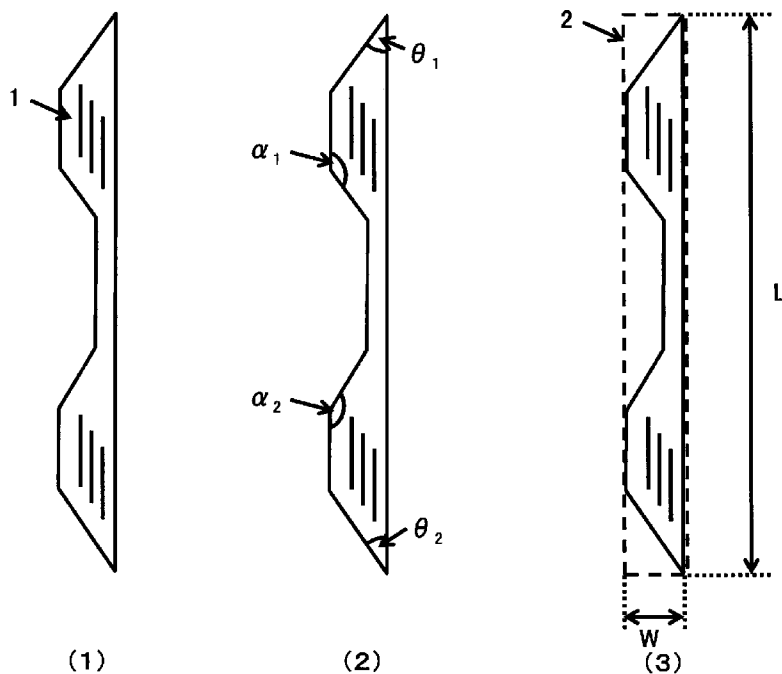
WO 2021/177215 A1

- (51) 国際特許分類:  
*B29B 11/16* (2006.01) *C08J 5/04* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2021/007642
- (22) 国際出願日: 2021年3月1日(01.03.2021)
- (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 2020-034762 2020年3月2日(02.03.2020) JP
- (71) 出願人: 東レ株式会社 (TORAY INDUSTRIES, INC.) [JP/JP]; 〒1038666 東京都中央区日本橋室町2丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 三好且洋 (MIYOSHI, Katsuhiko); 〒4558502 愛知県名古屋市港区大江町9番地の1 東レ株式会社 名古屋事業場内 Aichi (JP). 渡辺惟史 (WATANABE, Tadashi); 〒4558502 愛知県名古屋市港区大江町9番地の1 東レ株式会社 名古屋事業場内 Aichi (JP). 大野泰和 (ONO, Yasukazu); 〒4558502 愛知県名古屋市港区大江町9番地の1 東レ株式会社 名古屋事業場内 Aichi (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, JP, KE, KG, KH,

(54) Title: REINFORCING-FIBER COMPOSITE MATERIAL

(54) 発明の名称: 強化繊維複合材料

【図1】



(57) Abstract: The present invention is an excellent reinforcing-fiber composite material that is capable of having both high mechanical properties and high fluidity during molding at high levels not achievable by conventional reinforcing-fiber composite materials containing discontinuous reinforcing fibers and a matrix resin, and that enables suppression of flow of the discontinuous reinforcing-fibers due to flow of a resin when a sheet-shaped base material is impregnated with a matrix resin by pressure application during a step for producing a sheet-shaped molded material such as a stampable sheet



WO 2021/177215 A1

KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY,  
 MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ,  
 NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT,  
 QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL,  
 ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG,  
 US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

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

添付公開書類：

- 一 国際調査報告（条約第21条(3)）

and an SMC which is a precursor. A reinforcing-fiber composite material comprising not less than 20 wt% but less than 70 wt% of discontinuous reinforcing fibers, and a matrix resin, wherein at least a portion of the discontinuous reinforcing fibers forms a fiber aggregation, and at least one bundle of the fiber aggregation has a surface that, when projected onto a two-dimensional plane, has at least one region where the number of monofilaments constituting the aggregation is reduced, at opposite ends in a longitudinal direction of a minimum circumscribed rectangle of the projected surface, and at portions other than the opposite ends.

(57) 要約：本発明は、従来の不連続強化繊維とマトリックス樹脂からなる強化繊維複合材料では達成できなかった、成形の際の高流動性と高い機械特性を高いレベルで両立させることが可能であり、かつ前駆体であるSMCやスタンパブルシートのようなシート状成形材料の製造工程において、マトリックス樹脂をシート状基材に加圧含浸させる際に、樹脂の流動による不連続強化繊維の流動を抑制できる、優れた強化繊維複合材料である。不連続強化繊維を20wt%以上70wt%未満と、マトリックス樹脂とを含み、前記不連続強化繊維の少なくとも一部は繊維集合体をなし、前記繊維集合体の少なくとも1束は、ある面を2次元平面上に投影した際に、投影面の最小外接矩形長手方向における両端部と、両端部以外のそれぞれに、前記集合体を構成する単糸本数が減少する領域が1ヵ所以上存在する強化繊維複合材料である。

## 明 細 書

発明の名称：強化繊維複合材料

### 技術分野

[0001] 本発明は、不連続強化繊維とマトリックス樹脂からなる強化繊維複合材料に関する。

### 背景技術

[0002] 強化繊維とマトリックス樹脂からなる強化繊維複合材料は、高い機械特性が得られることから、種々の成形品の製造に用いられ、様々な分野で需要は年々増加している。

[0003] 特に高機能特性を有する強化繊維複合材料は強化繊維に炭素繊維を用い、炭素繊維複合材料の成形方法としては、プリプレグと称される連続した炭素繊維にマトリックス樹脂を含浸せしめた半硬化状態の中間基材を積層し、高温高压釜で加熱加圧することによりマトリックス樹脂を硬化させた連続繊維強化複合材料を成形するオートクレーブ成形が最も一般的に行われている。また、近年では生産効率の向上を目的として、あらかじめ部材形状に賦形した連続繊維基材にマトリックス樹脂を含浸および硬化させるRTM（レジントランスファーモールドディング）成形等も行われている。これらの成形法により得られた炭素繊維複合材料は、連続繊維である所以優れた力学物性を有する。また、連続繊維は規則的な配列であるため、基材の配置により必要とする力学物性に設計することが可能であり、力学物性のバラツキも小さい。しかしながら、一方で連続繊維である所以3次元形状等の複雑な形状を形成することは難しく、主として平面形状に近い部材に限られる。

[0004] 3次元形状等の複雑な形状に適した成形方法として、SMC（シートモールドディングコンパウンド）やスタンパブルシートを用いた成形等がある。SMC成形品は、強化繊維のストランドを例えば繊維長が25mm程度になるように繊維直交方向に切断し、このチョップドストランドに熱硬化性樹脂であるマトリックス樹脂を含浸せしめ半硬化状態としたシート状基材（SMC

)を、加熱型プレス機を用いて加熱加圧することにより得られる。スタンパブルシート成形品は、例えば25mm程度に切断したチョップドストランドや不連続の強化繊維よりなる不織布マット等に熱可塑性樹脂を含浸させたシート状基材(スタンパブルシート)を一度赤外線ヒーター等で熱可塑性樹脂の融点以上に加熱し、所定の温度の金型にて冷却加圧することにより得られる。

[0005] 多くの場合、加圧前にSMCやスタンパブルシートを成形体の形状より小さく切断して成形型上に配置し、加圧により成形体の形状に引き伸ばして(流動させて)成形を行う。そのため、その流動により3次元形状等の複雑な形状にも追従可能となる。しかしながら、SMCやスタンパブルシートはそのシート化工程において、チョップドストランドや不織布マットの分布ムラ、配向ムラが必然的に生じてしまうため、力学物性が低下し、あるいはその値のバラツキが大きくなってしまう。さらには、その分布ムラ、配向ムラにより、特に薄物の部材ではソリ、ヒケ等が発生しやすくなる。

[0006] 上述のような材料の欠点を埋めるべく、例えば特許文献1はチョップド繊維束に対して、束内の繊維配向方向の両端を開始点としてチョップド繊維束の中央に向かって、強化繊維の配向方向に強化繊維の本数が増加する区間を有するチョップド繊維束および成形材料が提案されている。

[0007] また、特許文献2は不連続繊維束長が各々異なり、不連続繊維束長が長い程2次元平面上に投影した際の不連続強化繊維束の端部の鋭角をなす先端角度が小さくなることを特徴とする不連続繊維強化複合材料が提案されている。

## 先行技術文献

### 特許文献

[0008] 特許文献1：国際公開第2008/149615号

特許文献2：国際公開第2017/145884号

### 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

- [0009] 一般に、不連続強化繊維を用いた複合材料は、マトリックス樹脂中に不連続強化繊維が入ると、成形の際に複合材料の流動性が低下するが、その流動性の低下は不連続強化繊維が集合体形態である不連続強化繊維の配合量を増やすことで抑制できる。しかし、不連続強化繊維束が2次元平面に投影した際に形状が短冊形状であると、強化繊維複合材料にした際に繊維束同士が重なった部分および繊維束端部の周辺に破壊の起点となる構造的な欠陥が生じやすく、力学特性に劣る傾向がある。
- [0010] また、不連続強化繊維の繊維長が長い程、強化繊維複合材料にした際に力学特性に優れるが、繊維同士の交絡が増加し、流動性に劣る。逆に、不連続強化繊維の繊維長が短い程、強化繊維複合材料にした際に流動性に優れるが、力学特性に劣る傾向がある。すなわち、良好な流動性を重視した強化繊維複合材料の最適な形態と、力学特性を重視した強化繊維複合材料の最適な形態とは、必ずしも同じ形態とはならない。
- [0011] 更に、不連続強化繊維の繊維長が短い程、強化繊維複合材料にした際に流動性に優れるが、不連続強化繊維複合材料の前駆体であるSMCやスタンパブルシートのようなシート状基材の製造工程において、マトリックス樹脂をシート状成形材料に加圧含浸させる際に、不連続強化繊維同士の拘束力が弱く、樹脂の流動に伴い、不連続強化繊維が意図せず流動し、不連続強化繊維複合材料になった際の機械特性の異方性やばらつきの原因となる。
- [0012] ここで、上述の特許文献1記載の発明では、チョップド繊維束長に任意の分布を持たすことや、チョップド繊維束の両端部を除く中央部については十分な検討がなされていない。
- [0013] また、特許文献2記載の発明では、不連続繊維束長と構成比率の適切な範囲や不連続強化繊維束の両端部を除く中央部については十分な検討がなされていない。
- [0014] そこで本発明の課題は、従来の不連続強化繊維とマトリックス樹脂からなる強化繊維複合材料では達成できなかった、成形の際の高流動性と高い機械特性を高いレベルで両立させることが可能であり、かつ不連続強化繊維複合

材料の前駆体であるSMCやスタンパブルシートのようなシート状成形材料の製造工程において、マトリックス樹脂をシート状基材に加圧含浸させる際に、樹脂の流動による不連続強化繊維の流動を抑制でき、かつ力学特性がバランスよく両立された優れた強化繊維複合材料を提供することにある。

### 課題を解決するための手段

[0015] 上記課題を解決するために、本発明の強化繊維複合材料は、次のような特徴を有するものである。

[1] 不連続強化繊維を20wt%以上70wt%未満と、マトリックス樹脂とを含み、前記不連続強化繊維の少なくとも一部は繊維集合体をなし、前記繊維集合体の少なくとも1束は、ある面を2次元平面上に投影した際に、投影面の最小外接矩形長手方向における両端部と、両端部以外のそれぞれに、前記繊維集合体を構成する単糸本数が減少する領域が1ヵ所以上存在する（以下、弓形状不連続強化繊維集合体（A）という）、不連続強化繊維複合材料。

[2] 前記不連続強化繊維集合体のうち、前記最小外接矩形の長辺長さが30mm以上あるものを不連続強化繊維集合体（1）としたとき、不連続強化繊維全体における2wt%以上15wt%以下が不連続強化繊維集合体（1）を形成する、[1]に記載の不連続強化繊維複合材料。

[3] 前記不連続強化繊維集合体（1）の少なくとも1束は弓形状不連続強化繊維集合体（A）である、[2]に記載の不連続強化繊維複合材料。

[4] 前記繊維集合体のうち、前記最小外接矩形の長辺長さが30mm未満であるものを不連続強化繊維集合体（2）としたとき、不連続強化繊維集合体（2）は、「数平均最小外接矩形の長辺長さ：数平均繊維長」の比が、「1.5：1.0」～「2.0：1.0」である、[1]～[3]に記載の不連続強化繊維複合材料。

[5] 前記不連続強化繊維集合体（1）は、ある面を2次元平面上に投影した際の投影面の長手方向に対する前記長手方向上の先端部鋭角の数平均角度が、5°以上30°以下である、[2]～[4]に記載の不連続強化繊維複

合材料。

[6] 前記不連続強化繊維集合体(2)は、ある面を2次元平面上に投影した際の投影面の長手方向に対する前記長手方向上の先端部鋭角の数平均角度が $5^{\circ}$ 以上 $30^{\circ}$ 以下である、[4]～[5]に記載の不連続強化繊維複合材料。

[7] 弓形状不連続強化繊維集合体(A)の前記投影面の最小外接矩形長手方向に対し、両端部以外の位置に存在する前記単糸本数が減少する領域の勾配がなす数平均鈍角角度が $135^{\circ}$ 以上 $175^{\circ}$ 以下である、[1]～[7]に記載の不連続強化繊維複合材料。

[8] 前記不連続強化繊維は、数平均繊維長の長さが3mm以上100mm未満である、[1]～[8]に記載の不連続強化繊維複合材料。

### 発明の効果

[0016] このように、本発明によれば、不連続繊維を用いた複合材料であって、成形時の優れた流動性と成形品の高い機械特性、2次元等方性、全てを両立でき、しかもその機械特性のばらつきも少ない優れた複合材料を提供することができる。

### 図面の簡単な説明

[0017] [図1](1) 本発明で用いられる弓形状不連続強化繊維集合体(A)の一例である。(2) 弓形状不連続強化繊維集合体(A)の先端角度 $\theta$ と鈍角角度 $\alpha$ の一例である。(3) 弓形状不連続強化繊維集合体(A)の最小外接矩形の一例である。

[図2] 本発明で用いられる弓形状不連続強化繊維集合体(A)を2次元投影した際の形態例である。

[図3] 本発明で用いられる不連続強化繊維複合材料の前駆体である成形材料を得る工程の一例である。

[図4] (1) 本発明で用いられる円盤刃式切断機の一例である。(2) 繊維集合体が円盤刃式切断機によって切断される状態を示す図の一例である。

[図5] (1) 弓形状ではない不連続強化繊維集合体(2)の一例である。(2)

) 上記不連続強化繊維集合体 (2) の先端角度  $\theta$  を得る一例である。

[図6] (1) 弓形状不連続強化繊維集合体 (A) の一例である。(2) 弓形状不連続強化繊維集合体 (A) の角度  $\alpha$  を得る一例である。

### 発明を実施するための形態

[0018] 以下に、本発明について、実施例、比較例とともに詳細に説明する。

[0019] 本発明では、不連続強化繊維は強化繊維複合材料中に 20 wt % 以上 70 wt % 未満含まれる。より好ましくは 30 wt % 以上 65 wt % 以下であり、更に好ましくは 40 wt % 以上 60 wt % 以下である。高い機械特性を発現するために、不連続強化繊維は複合材料中に 20 wt % 以上含まれ、高い流動性および成形性を発現するために 70 wt % 未満含まれる。不連続強化繊維が 70 wt % 以上含まれると、流動性および成形性が悪化すると同時に強化繊維複合材料中にポイド等の欠陥が含まれやすくなる。

[0020] 本発明では、不連続強化繊維が繊維集合体を構成している。ただし、必ずしも、全ての不連続強化繊維が繊維集合体を形成する必要はない。かかる繊維集合体の少なくとも 1 束は、そのある面を 2 次元平面上に投影した際の投影面が、その最小外接矩形長手方向における両端部と、両端部以外の位置のそれぞれに、繊維集合体を構成する単糸本数が減少する領域（以下、単糸が減少する領域ということがある。）が 1 ヶ所以上存在する。繊維集合体は、両端部では端部に行くほど繊維数が減少する、また、両端部以外に端部から中央へ行くほど繊維数が減少する領域が 1 ヶ所以上存在する。以下、このような繊維集合体を弓形状不連続強化繊維集合体 (A) という。繊維集合体が弓形状をなすことにより、上記単糸が減少する領域における繊維束厚みが薄くなり、不連続強化繊維束端部の周囲および不連続強化繊維束同士が重なった部分にできる、破壊の起点となる構造的な欠陥が生じ難くなるため好ましい。

[0021] 弓形状不連続強化繊維集合体 (A) は、ある面を 2 次元平面に投影した投影面の形状が、図 2 に示すような形状およびこれらを組み合わせた形状であることが好ましい。弓形状不連続強化繊維集合体 (A) がこれらの形状であ

ることで、不連続強化繊維束端部の周囲および不連続強化繊維束同士が重なった部分にできる構造的な欠陥が生じ難くなるため好ましい。

[0022] 本発明において、不連続強化繊維は、全てが弓形状不連続強化繊維集合体（A）を形成しなくてもよく、それ以外に、不連続強化繊維シートを作成する際にできた単糸レベルまで開織した不連続強化繊維や、ストランドをそのままカットしたチョップドストランド、チョップドストランドが幅方向に分割された分織チョップドストランド、弓形状不連続強化繊維集合体（A）形状を満たさないチョップドストランド、チョップドストランド全体が拡幅された拡幅チョップドストランド、チョップドストランド全体が拡幅され、分割された拡幅分割ストランドなどを含んでもよい。

[0023] 本発明において、ある面を2次元平面上に投影した投影面について、最小外接矩形の長辺長さが30mm以上ある不連続強化繊維集合体（1）が、不連続強化繊維全体のうち2wt%以上、15wt%以下含まれることが好ましい。不連続強化繊維集合体（1）が2wt%以上含まれることで、強化繊維複合材料の前駆体であるSMCやスタンパブルシートのようなシート状成形材料の製造工程において、マトリックス樹脂をシート状基材に加圧含浸させる際に、不連続強化繊維同士の拘束力を強く出来る。それで、樹脂の流動に伴う、不連続強化繊維の意図しない流動を抑制でき、不連続強化繊維複合材料になった際の機械特性の異方性やばらつきを低減できる。不連続強化繊維集合体（1）が15wt%以下であることで、不連続強化繊維複合材料の流動性の低下を抑制できるため好ましい。

[0024] 不連続強化繊維集合体（1）は弓形状不連続強化繊維集合体（A）を少なくとも1束以上含むことが好ましい。不連続強化繊維集合体（1）は2次元平面上に投影した際の、最小外接矩形の長辺長さが比較的長いことから、不連続強化繊維束端部の周囲および不連続強化繊維束同士が重なった部分に破壊の起点となる構造的な欠陥が生じることはあり得るが、むしろ不連続強化繊維集合体（1）に弓形状のものが少なくとも1束以上含まれることで、破壊の起点となる構造的な欠陥が生じ難くなる。

- [0025] 破壊の起点となる構造的な欠陥が生じ難くなるように、弓形状不連続強化繊維集合体（A）は不連続強化繊維全体のうち1wt%以上15wt%以下含まれることがさらに好ましい。
- [0026] 不連続強化繊維に含まれる不連続強化繊維集合体は、2次元平面上に投影した際の、最小外接矩形の長辺長さが、30mm未満である不連続強化繊維集合体（2）を含み、その「数平均最小外接矩形の長辺長さ：数平均繊維長」の比が、「1.5：1.0」～「2.0：1.0」であることが好ましい。数平均最小外接矩形の長辺長さが、数平均繊維長に対して1.5倍以上あることで、不連続強化繊維束端部の周囲に破壊の起点となる構造的な欠陥が生じ難くなるため好ましい。数平均最小外接矩形の長辺長さが、数平均繊維長に対して2.0倍以下となることで、不連続強化繊維複合材料の流動性の低下を抑制できるため好ましい。
- [0027] 不連続強化繊維集合体（1）、（2）ともに、2次元平面上に投影した際の長手方向に対する先端部鋭角 $\theta$ の数平均角度が、 $5^\circ$ 以上 $30^\circ$ 以下であることが好ましい。先端部鋭角 $\theta$ の数平均角度が $5^\circ$ 以上となることで、不連続強化繊維複合材料の流動性の低下を抑制できる。先端部鋭角 $\theta$ の数平均角度が $30^\circ$ 以下となることで、不連続強化繊維束端部の周囲に破壊の起点となる構造的な欠陥が生じ難くなるため好ましい。
- [0028] 弓形状不連続強化繊維集合体（A）は、2次元平面に投影した際に、上記投影面における最小外接矩形長手方向に対し、両端部以外の位置に存在する単糸が減少する領域の勾配がなす鈍角 $\alpha$ の数平均角度が、 $135^\circ$ 以上 $175^\circ$ 以下であることが好ましい。鈍角 $\alpha$ の数平均角度が $135^\circ$ 以上 $175^\circ$ 以下の範囲内にあることで、不連続強化繊維束同士が重なった際に繊維束厚みが薄くなりやすく、破壊の起点となる構造的な欠陥が生じ難くなるため好ましい。
- [0029] 不連続強化繊維は数平均繊維長の長さが3mm以上100mm未満であることが好ましい。数平均繊維長の長さが3mm以上100mm未満の範囲内にあることで、良好な流動性と力学特性とバランス良く両立できることから

好ましい。

[0030] 本発明で用いられる強化繊維は、アラミド繊維、ポリエチレン繊維、ポリパラフェニレンベンズオキサドール（PBO）繊維などの有機繊維、ガラス繊維、炭素繊維、炭化ケイ素繊維、アルミナ繊維、チラノ繊維、玄武岩繊維、セラミックス繊維などの無機繊維、ステンレス繊維やスチール繊維などの金属繊維、ボロン繊維、天然繊維、変性した天然繊維などを用いた強化繊維束が好ましく挙げられる。その中でも炭素繊維（特にポリアクリロニトリル（PAN）系炭素繊維）は、これら強化繊維の中でも軽量であり、しかも比強度および比弾性率において特に優れた性質を有しており、さらに耐熱性や耐薬品性にも優れていることから、好ましい。

[0031] 炭素繊維は、特に限定されないが、高強度、高弾性率炭素繊維が使用でき、これらは1種または2種以上を併用してもよい。中でも、PAN系、ピッチ系、レーヨン系などの炭素繊維が挙げられる。得られる成形品の強度と弾性率とのバランスの観点から、PAN系炭素繊維が好ましい。炭素繊維の密度は、 $1.65 \sim 1.95 \text{ g/cm}^3$ のものが好ましく、さらには $1.70 \sim 1.85 \text{ g/cm}^3$ のものがより好ましい。密度が大きすぎるものは得られる炭素繊維複合材料の軽量性能に劣り、小さすぎるものは、得られる炭素繊維複合材料の機械特性が低くなる場合がある。

[0032] また、本発明で用いられる炭素繊維は、生産性の観点から単糸を収束させた炭素繊維ストランドであることが好ましく、炭素繊維ストランド中の単糸本数が多いものが好ましい。炭素繊維ストランドとした場合の単糸本数は、 $1,000 \sim 100,000$ 本の範囲内で使用することが好ましく、特に $10,000 \sim 70,000$ 本の範囲内で使用することが好ましい。炭素繊維は、必要に応じて炭素繊維ストランドにストランド分繊用スリッター等を用いて所望のストランド数に分割した分繊炭素繊維ストランドや、部分的に分繊処理した部分分繊炭素繊維ストランドを所定の長さにカットして用いてもよい。ストランドを所望のストランド数に分繊することで、未処理のストランドに比べ炭素繊維複合材料にした際の均一性が向上し、機械特性に優れる

ため、好ましく例示される。

[0033] ここで、部分的な分繊処理とは、拡幅処理と部分分繊処理からなり、拡幅処理としては、例えば、振動ロールに強化繊維ストランドを通過させ、各開繊バーによる加熱、擦過、揺動などにより繊維束が幅方向に拡幅される振動拡幅法、強化繊維束に圧縮した空気を吹き付けるエア拡幅法などが挙げられる。前記強化繊維ストランドの拡幅幅について、拡幅の割合を300~1,200%とすることが好ましい例として挙げられる。

[0034] 部分分繊処理としては、例えば、前記拡幅処理を行った拡幅強化繊維ストランドを長手方向（繊維走行方向）に沿って走行させながら、複数の突出部を具備する回転分繊手段（例えば、分繊処理用鉄製プレート）を拡幅強化繊維ストランドに突き入れ分繊処理部を生成するとともに、少なくとも1つの分繊処理部における突出部との接触部において単糸が交絡する絡合部を形成する。その後に分繊手段を拡幅強化繊維ストランドから抜き取り、絡合部を含む絡合蓄積部を経過した後、再度分繊手段を拡幅強化繊維ストランドに突き入れる手法が好ましく例示される。

[0035] 本発明で用いられるマトリックス樹脂としては、熱可塑性樹脂または／および熱硬化性樹脂が用いられる。熱可塑性樹脂としては特に制限は無く、成形品としての機械特性を大きく低下させない範囲で適宜選択することができる。例えば、ポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂等のポリオレフィン系樹脂、ナイロン6樹脂、ナイロン6,6樹脂等のポリアミド系樹脂、ポリエチレンテレフタレート樹脂、ポリブチレンテレフタレート樹脂等のポリエステル系樹脂、ポリフェニレンサルファイド樹脂、ポリエーテルケトン樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、芳香族ポリアミド樹脂等を用いることができる。中でも、ポリアミド樹脂、ポリプロピレン樹脂、ポリフェニレンサルファイド樹脂のいずれかが好ましい。

[0036] 熱硬化性樹脂としても特に制限は無く、成形品としての機械特性を大きく低下させない範囲で適宜選択することができる。例えば、エポキシ樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ビニルエステル樹脂、フェノール樹脂、エポキシア

クリレート樹脂、ウレタンアクリレート樹脂、フェノシキ樹脂、アルキド樹脂、ウレタン樹脂、マレイミド樹脂、シアネート樹脂などを用いることができる。中でも、エポキシ樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ビニルエステル樹脂、フェノール樹脂のいずれか、もしくはこれらの混合物が好ましい。熱硬化性樹脂の混合物を用いる際には、混合する熱硬化性樹脂同士は相溶性を有するか、あるいは、親和性の高い方が好ましい。

[0037] 本発明で用いられる熱硬化性樹脂の粘度は、特に制限はないが常温（25℃）における樹脂粘度が100～100,000 mPa・sであることが好ましい。

[0038] 本発明で用いられるマトリックス樹脂には、本発明の目的が達成できる範囲であればその用途に応じて、熱可塑性樹脂または／および熱硬化性樹脂に、各種の添加剤を加えることもできる。

例えば、マイカ、タルク、カオリン、ハイドロタルサイト、セリサイト、ベントナイト、ゾノライト、セピオライト、スメクタイト、モンモリロナイト、ワラストナイト、シリカ、炭酸カルシウム、ガラスビーズ、ガラスフレーク、ガラスマイクロバルーン、クレイ、二硫化モリブデン、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化アンチモン、ポリリン酸カルシウム、グラファイト、硫酸バリウム、硫酸マグネシウム、ホウ酸亜鉛、ホウ酸亜カルシウム、ホウ酸アルミニウムウイスカ、チタン酸カリウムウイスカおよび高分子化合物などの充填材、

金属系、金属酸化物系、カーボンブラックおよびグラファイト粉末などの導電性付与材、

臭素化樹脂などのハロゲン系難燃剤、三酸化アンチモンや五酸化アンチモンなどのアンチモン系難燃剤、ポリリン酸アンモニウム、芳香族ホスフェートおよび赤燐などのリン系難燃剤、有ホウ酸金属塩、カルボン酸金属塩および芳香族スルホンイミド金属塩などの有機酸金属塩系難燃剤、硼酸亜鉛、亜鉛、酸化亜鉛およびジルコニウム化合物などの無機系難燃剤、シアヌル酸、イソシアヌル酸、メラミン、メラミンシアヌレート、メラミンホスフェートお

よび窒素化グアニジンなどの窒素系難燃剤、PTFEなどのフッ素系難燃剤、ポリオルガノシロキサンなどのシリコン系難燃剤、水酸化アルミニウムや水酸化マグネシウムなどの金属水酸化物系難燃剤、その他の難燃剤、酸化カドミウム、酸化亜鉛、酸化第一銅、酸化第二銅、酸化第一鉄、酸化第二鉄、酸化コバルト、酸化マンガン、酸化モリブデン、酸化スズおよび酸化チタンなどの難燃助剤、顔料、染料、滑剤、離型剤、相溶化剤、分散剤、マイカ、タルクおよびカオリンなどの結晶核剤、リン酸エステルなどの可塑剤、熱安定剤、酸化防止剤、着色防止剤、紫外線吸収剤、流動性改質剤、発泡剤、抗菌剤、制振剤、防臭剤、摺動性改質剤、およびポリエーテルエステルアミドなどの帯電防止剤等を添加しても良い。

[0039] また、マトリックス樹脂として熱硬化性樹脂を使用する場合は、本発明の目的が達成できる範囲であれば、低収縮化剤等の添加物を含ませることができる。

[0040] 本発明の強化繊維複合材料の前駆体である成形材料を得る工程としては、本発明の目的が達成できる範囲であれば特に制限がない。例えば、SMCの場合、図3に示すように、第1シートロール11から第1キャリアシートを引き出してコンベヤ12へと供給し、第1樹脂バス13によりドクターブレードによりマトリックス樹脂のペーストを所定の厚みで塗布して第1樹脂シート14を形成する。第1樹脂シート14はコンベヤ12により定速で走行している。

[0041] ボビン21から連続強化繊維ストランド22を引き出し、切断機23において所定の長さとなるように連続的に切断した後、分散器（ディストリビューター）24に衝突させて、複数の不連続強化繊維集合体を含む不連続強化繊維を生成させ、第1樹脂シート14の上に散布する。これにより、走行する第1樹脂シート14上に、不連続強化繊維集合体を含む不連続強化繊維がランダムに散布された集合体31が連続的に形成される。

[0042] 次に、集合体31が連続的に形成される下流側において、第2シートロール15から長尺の第2キャリアシートを引き出し、第2樹脂バス16により

第2キャリアシート面上にマトリックス樹脂のペーストを所定の厚みで塗布した第2樹脂シート17が形成される。第2樹脂シート17はコンベヤ12により定速で走行しており、集合体31の上面とマトリックス樹脂のペーストが塗布された面とが接するように第2樹脂シート17を貼り合わせて積層する。この積層工程により、不連続強化繊維集合体を含む不連続強化繊維がランダムに散布された集合体31の内部に、第1樹脂シート14及び第2樹脂シート17に塗布されたマトリックス樹脂が部分的に含浸した集合体32が連続的に形成される。

[0043] 次に、加圧機構33により、集合体32を両面もしくは片面から加圧し、マトリックス樹脂を不連続強化繊維に含浸させ（含浸工程）、第1キャリアシートと第2キャリアシートの間の不連続強化繊維複合材料の前駆体である成形材料34が形成される。成形材料34は、第1キャリアシート14と第2キャリアシート17とともにロール状に巻き取られる工程が例として挙げられる。

[0044] ここで、切断機23としては、本発明の課題を阻害しないかぎり、特に制限がなく、ギロチン刃式や円盤刃式が例示される。円盤刃式とは図4に示すように、ロール表面40に円盤刃の刃部42が所定の間隔で突出した形状を有するカッターロール41とカッターロールに対して隣接もしくは接触するように、カッターロールの回転軸方向と略平行に設置され、平坦な表面形状を有するニップロール50、強化繊維ストランド22がカッターロール41に投入される際に、強化繊維ストランド22を左右へ往復させながら導くトラバースガイド51からなる。ニップロール50はカッターロール41に対してまな板の役割を果たすために、ロール表面の材質はゴム、ウレタン等の弾力性のある材質を用いることが好ましい。

[0045] 円盤刃式の場合、本発明における弓形状不連続強化繊維集合体（A）を得るためには、例えば、強化繊維ストランド22を左右へ往復させながら導くトラバースガイド51が右から左もしくはその逆へ折り返す際に、少なくとも強化繊維ストランド22が投入される周囲のカッターロール表面40に突

出した円盤刃の刃部42の間隔が、カッターロールへ投入される強化繊維ストランド幅よりも狭いことが好ましい例として例示できる。更に好ましくは、カッターロール表面に突出した円盤刃の刃部42の間隔と強化繊維ストランド幅の関係が0.1:1.0~0.9:1.0であることが好ましい例として例示できる。他の例として、強化繊維ストランドを左右へ往復させながら導くトラバースガイドが右から左もしくはその逆へ折り返す際の加速度を1G（重力加速度）以上にすることが好ましい例として例示できる。

### 実施例

[0046] 次に、本発明の実施例、比較例について説明する。

[0047] 先ず、実施例、比較例で用いた特性、測定方法について説明する。

[0048] (1) 不連続強化繊維集合体の最小外接矩形長手方向長さの測定

不連続強化繊維複合材料もしくは前駆体である成形材料から150mm×150mmとなるサンプルを切り出し、その切り出したサンプルを500~600℃に加熱した電気炉の中で1~2時間程度加熱し、マトリックス樹脂等の有機物を焼き飛ばし、そのサンプルから不連続強化繊維シートを取り出した。ピンセット等を用いて、不連続強化繊維シートから不連続強化繊維を集合体単位で全て形が崩れないように慎重に抽出した。この際に、150mm×150mmとなるようにサンプルを切り出した切断面にかかる不連続強化繊維は測定対象から除外する。抽出した不連続強化繊維集合体について、平らな台の上に置き、カメラ等を用いて2次元平面上に投影し、得られた形状に対して、最小外接矩形を求め、最小外接矩形の長辺Lと短辺Wの長さを記録する。

[0049] 最小外接矩形の短辺長さWが0.5mm未満の不連続強化繊維集合体について、単糸レベルまで開織した不連続強化繊維集合体(3)としてまとめ、最小外接矩形の短辺長さWが0.5mm以上の不連続強化繊維集合体について、長辺長さLが30mm以上の不連続強化繊維集合体に対しては不連続強化繊維集合体(1)としてまとめ、長辺長さLが30mm未満の不連続強化繊維集合体には、不連続強化繊維集合体(2)としてまとめた。

[0050] 不連続強化繊維複合材料から不連続強化繊維シートがうまく取り出せない場合は、マトリックス樹脂を含浸していない、不連続強化繊維シートから同様に測定してもよい。

[0051] (2) 不連続強化繊維集合体(1)～(3)の重量比率測定

1/10, 000gまで測定が可能な天秤を用いて、前記不連続強化繊維集合体(1)、不連続強化繊維集合体(2)、不連続強化繊維集合体(3)の全ての重量を測定し、下記式を用いて、不連続強化繊維全体重量に対する不連続強化繊維集合体(1)の重量比率 $W_a$ 、不連続強化繊維集合体(2)の重量比率 $W_b$ 、不連続強化繊維集合体(3)の重量比率 $W_c$ を求める。

$$W_a = W_1 / (W_1 + W_2 + W_3) \times 100 (\%)$$

$$W_b = W_2 / (W_1 + W_2 + W_3) \times 100 (\%)$$

$$W_c = W_3 / (W_1 + W_2 + W_3) \times 100 (\%)$$

$W_1$  : 不連続強化繊維集合体(1)総重量

$W_2$  : 不連続強化繊維集合体(2)総重量

$W_3$  : 不連続強化繊維集合体(3)総重量。

[0052] (3) 不連続強化繊維集合体の数平均先端角度 $\theta$ の測定方法

デジタルマイクロスコープ(キーエンス社製)を用いて、前記不連続強化繊維集合体(1)、不連続強化繊維集合体(2)に対して、個々に2次元平面上に投影した際に、図5に示すように、不連続強化繊維集合体の長手方向に対する端部鋭角頂点と端部鋭角頂点を中心として、半径2mmの円を描いた際に円と辺が交わる点を直線で結んだ際のなす角の角度を不連続強化繊維集合体の片側先端角度 $\theta_1$ とし、対となる端部に対しても同様の測定を行い、2つの先端角度( $\theta_1$ 、 $\theta_2$ )の平均値を不連続強化繊維集合体の個々の先端角度 $\theta_i$ とした。ただし、先端形状が明らかに崩れている等の測定が困難な場合は片側のみを用いてもよく、両側とも測定が困難な場合は、測定対象から除外する。

[0053] 得られた個々の先端角度 $\theta_i$ を用いて、下記式から数平均先端角度 $\theta$ を求める。

数平均先端角度  $\theta = \Sigma \theta_i / n$

$\theta_i$  : 不連続強化繊維集合体 (1)、(2) の個々の先端角度

$n$  : 不連続強化繊維集合体 (1)、(2) の個々の先端角度を求めた繊維集合体本数。

[0054] (4) 弓形状不連続強化繊維集合体 (A) の重量比率および数平均鈍角角度  $\alpha$  の測定方法

前記不連続強化繊維集合体 (1)、不連続強化繊維集合体 (2) に対して、目視にて図 2 に示す弓形状不連続強化繊維集合体 (A) に該当する束を全て抽出し、1/10, 000 g まで測定が可能な天秤を用いて、弓形状不連続強化繊維集合体 (A) の全ての重量を測定し、下記式を用いて、弓形状不連続強化繊維集合体 (A) の重量比率  $W_y$  を求める。

このとき不連続強化繊維集合体 (1) に少なくとも 1 束以上、弓形状不連続強化繊維集合体 (A) が含まれていれば (Yes)、1 束も含まれていなければ (No) とした。

$$W_y = W_4 / (W_1 + W_2 + W_3) \times 100 (\%)$$

$W_4$  : 不連続強化繊維集合体 (1)、不連続強化繊維集合体 (2) 中に存在する弓形状不連続強化繊維集合体 (A) 総重量。

[0055] 次に、デジタルマイクロスコープ (キーエンス社製) を用いて、弓形状不連続強化繊維集合体 (A) に対して、個々に図 6 に示すように 2 次元平面上に投影した際の、単糸本数が減少し始める領域の鈍角頂点と鈍角頂点を中心として半径 0.5 mm の円を描いた際に円と辺が交わる点を直線で結んだ際のなす角の角度を弓形状不連続強化繊維集合体 (A) の片側鈍角  $\alpha_1$  とし、対となる鈍角が存在する場合は、同様の測定を行い、鈍角が 1 つの場合そのままの数値を用い、鈍角が 2 つ存在する場合は、2 つの鈍角角度の平均値を弓形状不連続強化繊維集合体 (A) の個々の鈍角角度  $\alpha_i$  とした。ただし、単糸本数が減少し始める領域の鈍角頂点が不明瞭な場合は、各辺に接線を引き、接線の延長線が交差する点を鈍角頂点、接線の延長線のなす角を鈍角としてもよく、端辺形状が明らかに崩れている等の測定が困難な場合は片側の

みを用いてもよく、両側が明らかに崩れている場合は、測定対象から除外する。

[0056] 得られた個々の鈍角角度  $\alpha_i$  を用いて、下記式から数平均鈍角角度  $\alpha$  を求める。

$$\text{数平均鈍角角度 } \alpha = \sum \alpha_i / m$$

$\alpha_i$  : 弓形状不連続強化繊維集合体 (A) の個々の鈍角角度

$m$  : 弓形状不連続強化繊維集合体 (A) の個々の鈍角角度を求めた繊維集合体本数。

[0057] (5) 不連続強化繊維集合体 (2) の数平均繊維長  $l$  の測定方法

デジタルマイクロスコープ (キーエンス社製) を用いて、前記不連続強化繊維集合体 (2) に対して、個々に2次元平面上に投影した際に、不連続強化繊維集合体中の繊維配向方向に平行な2端辺を0.1mm単位まで測定し、平均値を不連続強化繊維集合体 (2) の個々の繊維長  $l_i$  とした。ただし、端辺形状が明らかに崩れている等の測定が困難な場合は片側のみを用いてもよく、両側が明らかに崩れている場合は、測定対象から除外する。

[0058] 得られた個々の繊維長  $l_i$  を用いて、下記式から数平均繊維長  $l$  を求める。

$$\text{数平均繊維長 } l = \sum l_i / p$$

$l_i$  : 不連続強化繊維集合体 (2) の個々の繊維長

$p$  : 不連続強化繊維集合体 (2) の個々の繊維長を求めた繊維集合体本数。

[0059] (6)  $W_f$  (不連続強化繊維の含有率)

強化繊維複合材料から150mm×150mmとなるサンプルを切り出し、その重量を測定した。その後、サンプルを500~600℃に加熱した電気炉の中で1~2時間程度加熱してマトリックス樹脂等の有機物を焼き飛ばし、室温まで冷却してから、残った不連続強化繊維の重量を測定した。マトリックス樹脂等の有機物を焼き飛ばす前のサンプルの重量に対する不連続強化繊維の重量の比率を測定し、不連続強化繊維の含有率とした。

[0060] (7) 曲げ強度、曲げ弾性率

JIS-K7171:2016に準拠して曲げ強度を測定した。曲げ強度については曲げ強度のCV値（変動係数 [%]）も算出し、CV値が10%以下をばらつきが小さい（OK）と判定し、10%超をばらつきが大きい（NG）とした。また、曲げ試験を行うサンプルは2次元平面の任意の方向（0°方向）と0°方向に対して90°方向に対して測定を行い、0°方向の平均値/90°方向の平均値が1.2~0.83の範囲に入る場合は等方性（OK）と判定し、それ以外を異方性（NG）と判定した。

[0061] [強化繊維、マトリックス樹脂]

本発明の実施例、比較例で用いた強化繊維、マトリックス樹脂について説明する。

[0062] 強化繊維ストランド（1）：

繊維径7 $\mu$ m、引張弾性率230GPa、フィラメント数12,000本、ストランド幅6mmの連続した炭素繊維ストランドを用いた。

[0063] 強化繊維ストランド（2）：

繊維径7.2 $\mu$ m、引張弾性率242GPa、フィラメント数50,000本、ストランド幅10mmの連続した炭素繊維ストランドを用いた。

[0064] マトリックス樹脂（1）：

ビニルエステル樹脂（VE）樹脂（ダウ・ケミカル（株）製、デラケン790）100質量部、tert-ブチルパーオキシベンゾエート（日本油脂（株）製、パーブチルZ）1質量部、ステアリン酸亜鉛（堺化学工業（株）製、SZ-2000）2質量部、酸化マグネシウム（協和化学工業（株）製、MgO#40）4質量部を混合した樹脂を用いた。

[0065] 実施例1：

図3に示すような装置を用いて不連続強化繊維複合材料の前駆体であるSMCシートを作成した。第1の原反ロール（第1シートロール）からポリプロピレン製の第1キャリアシートを引き出して第1コンベヤへと供給し、マトリックス樹脂ペーストをドクターブレードを用いて所定の厚みで塗布して第1樹脂シートを形成した。

- [0066] 強化繊維ストランド（1）を一定速度で引き出し、強化繊維ストランドを左右へ往復させながら導くトラバースガイド、ロール表面に円盤刃の刃部が所定の間隔で突出した形状を有するカッターロールとカッターロールに対して接触するように、カッターロールの回転軸方向と略平行に設置されたニップロールからなる円盤刃式切断機にて、強化繊維ストランド（1）がたるみなく所定の長さとなるように連続的に切断し、分散器（ディストリビューター）に衝突、分散させて、複数の不連続強化繊維集合体を含む不連続強化繊維がランダムに配向したシート状不連続強化繊維を連続的に生成し、第1樹脂シート上に落下させた。このとき引き出し速度とトラバース速度の比率は3.7 : 1.0であり、トラバースガイドの折り返し距離は100mm、円盤刃の刃部の間隔と強化繊維ストランド（1）の幅の比率は、0.4 : 1.0、ディストリビューターの回転速度は400rpmとした。
- [0067] 次に第2の原反ロール（第2シートロール）からポリプロピレン製の第2キャリアシートを引き出して第2コンベヤへと供給し、マトリックス樹脂ペーストをドクターブレードを用いて所定の厚みで塗工して第2樹脂シートを形成した。
- [0068] 不連続強化繊維集合体を含む第1樹脂シート上に第2キャリアシートとともに第2樹脂シートを貼り合わせて積層し、両面から加圧して、マトリックス樹脂を不連続強化繊維集合体からなるシートに含浸させ、不連続強化繊維複合材料の前駆体であるSMCシートを作製した。得られたSMCシートは、含浸工程でSMCシートが搬送方向に対して直角方向のシート幅方向に流動することなく、所定の幅のSMCシートを得ることができた。その後、作製したSMCシートを製造後から1週間、 $25 \pm 5^{\circ}\text{C}$ の温度で養生し、各評価を実施した。
- [0069] 得られたSMCシートを所定の大きさに切り出し、上下キャリアシートを剥がした後にマトリックス樹脂等の有機物を焼き飛ばし、Wfを測定したところ、55wt%であり、残った不連続強化繊維に対して各評価を行ったところ、弓形状不連続強化繊維集合体が不連続強化繊維中に6wt%含まれて

いた。評価の結果を表1に示す。

[0070] 次にSMCシートを265×265mmに切り出し、SMCシート製造装置での搬送方向（MD方向）を揃え、3枚重ね、300×300mmのキャビティを有する平板金型上の中央部に配置（チャージ率にして80%相当）した後、加熱型プレス成形機により、10MPaの加圧のもと、約140℃×5分間の条件により硬化せしめ、300×300mm×3mmの平板状の成形品を得た。

[0071] 得られた成形品を切断し、曲げ強度、曲げ弾性率を測定したところ、成形品の曲げ強度は450MPa、曲げ弾性率は33GPaであり、CV値は10%以下とばらつきが低く、等方性に優れる成形品であった。評価の結果を表1に示す。

[0072] 実施例2：

トラバースガイドの折り返し距離を160mmにし、複合材料の前駆体であるSMCシートを得た以外は実施例1と同様にして成形品を製造し、評価を実施した。結果を表1に示す。

[0073] 実施例3：

強化繊維ストランド（2）を用い、トラバースガイドの折り返し距離を160mmにし、円盤刃の刃部の間隔と強化繊維ストランド（2）の幅の比率を0.24：1.0とし、複合材料の前駆体であるSMCシートを得た以外は実施例1と同様にして成形品を製造し、評価を実施した。結果を表1に示す。

[0074] 実施例4：

強化繊維ストランド（2）をワインダーによって一定速度で巻出し、巻き出した強化繊維ストランド（2）を10Hzで軸方向に振動する振動拡幅ロールに通して強化繊維束を拡幅した後に、50mm幅に規制された幅規制ロールを通すことで50mmへ拡幅した拡幅強化繊維ストランド（2）を得た。次に厚み0.3mm、幅3mm、高さ20mmの突出形状を具備する分織処理用鉄製プレートを、拡幅強化繊維ストランド（2）の幅方向に対して、

3 mmの等間隔に並べた分繊処理手段を間欠的に抜き挿しした後に、10 mm幅に規制された幅規制ロールを通すことで10 mmへ幅を規制した部分分繊強化繊維ストランド(2)を作成した。

[0075] 得られた部分分繊強化繊維ストランド(2)を用い、トラバースガイドの折り返し距離を160 mmにし、円盤刃の刃部の間隔と部分分繊強化繊維ストランド(2)の幅の比率を0.24 : 1.0とし、強化繊維複合材料の前駆体であるSMCシートを得た以外は実施例1と同様にして成形品を製造し、評価を実施した。結果を表1に示す。

[0076] 実施例5 :

SMCシートにマトリックス樹脂等の有機物を焼き飛ばし、Wfを測定したところ、45 wt %となるようにキャリアシートを引き出す速度、ドクターブレードとキャリアシート間のクリアランスを調整し強化繊維複合材料の前駆体であるSMCシートを得た以外は実施例4と同様にして成形品を製造し、評価を実施した。結果を表1に示す。

[0077] 比較例1 :

最小外接矩形長さが60 mm、先端切断角度が15°となるように、ストランド搬送方向に対して1枚の刃が斜めにセットされた第1のギロチン式切断機と最小外接矩形長さが20 mm、先端切断角度が15°となるように、ストランド搬送方向に対して1枚の刃が斜めにセットされた第2のギロチン式切断機を用いて、強化繊維ストランド(2)を第1のギロチン式切断機と第2のギロチン式切断機に搬送する速度比が12 : 88となるように搬送し、強化繊維ストランド(2)がそれぞれのギロチン式切断機でたるみなく所定の長さとなるように連続的に切断し、分散器(ディストリビューター)に衝突、分散させて、複数の不連続強化繊維集合体を含む不連続強化繊維がランダムに配向したシート状不連続強化繊維を連続的に生成し、複合材料の前駆体であるSMCシートを得た以外は実施例3と同様にして成形品を製造し、評価を実施した。結果を表2に示す。

[0078] 得られた成形品は曲げ強度、曲げ弾性率に劣り、特に弓形状不連続強化繊維

維集合体を含まないことから、不連続強化繊維束同士が重なった部分にできる構造的な欠陥が生じやすくなったためか、CV値が10%を超え、ばらつきが大きい成形品であった。

[0079] 比較例2：

最小外接矩形長さが20mm、先端切断角度が15°となるように、ストランド搬送方向に対して1枚の刃が斜めにセットされた第2のギロチン式切断機のみを用いて、強化繊維ストランド(2)をギロチン式切断機でたるみなく所定の長さとなるように連続的に切断し、分散器(ディストリビューター)に衝突、分散させて、複数の不連続強化繊維集合体を含む不連続強化繊維がランダムに配向したシート状不連続強化繊維を連続的に生成し、複合材料の前駆体であるSMCシートを得た以外は実施例3と同様にして成形品を製造し、評価を実施した。結果を表2に示す。

[0080] 得られたSMCシートは、含浸工程で搬送方向に対して直角方向であるシート幅方向に流動し、所定の幅を超えるSMCシートとなった。

[0081] 成形品は曲げ強度、曲げ弾性率に劣り、特にSMCシートは含浸工程でシート幅方向に流動したためか、0°方向の平均値/90°方向の平均値が1.2~0.83の範囲を超え、異方性を有する成形品であった。

[0082]

[表1]

| 実施例           |                     | 1           | 2           | 3           | 4           | 5           |
|---------------|---------------------|-------------|-------------|-------------|-------------|-------------|
| 強化繊維          |                     | 炭素繊維(1)     | 炭素繊維(1)     | 炭素繊維(2)     | 炭素繊維(2)     | 炭素繊維(2)     |
| マトリックス樹脂      |                     | マトリックス樹脂(1) | マトリックス樹脂(1) | マトリックス樹脂(1) | マトリックス樹脂(1) | マトリックス樹脂(1) |
| 不連続強化繊維Wf     |                     | 55          | 55          | 55          | 55          | 45          |
|               | Wy比率                | wt%         | wt%         | wt%         | wt%         | wt%         |
|               | 鈍角角度 $\alpha$       | °           | °           | °           | °           | °           |
|               | Wa比率                | wt%         | wt%         | wt%         | wt%         | wt%         |
|               | 弓形状不連続強化繊維集合体(A)の有無 | Yes         | Yes         | Yes         | Yes         | Yes         |
| 不連続強化繊維集合体(1) | 先端角度 $\theta$       | °           | °           | °           | °           | °           |
|               | 最小外接矩形長さL           | mm          | mm          | mm          | mm          | mm          |
|               | Wb比率                | wt%         | wt%         | wt%         | wt%         | wt%         |
|               | 先端角度 $\theta$       | °           | °           | °           | °           | °           |
| 不連続強化繊維集合体(2) | 最小外接矩形長さL           | mm          | mm          | mm          | mm          | mm          |
|               | 繊維長                 | mm          | mm          | mm          | mm          | mm          |
| 不連続強化繊維集合体(3) | Wc比率                | wt%         | wt%         | wt%         | wt%         | wt%         |
|               | 曲げ強度                | MPa         | MPa         | MPa         | MPa         | MPa         |
|               | 曲げ弾性率               | GPa         | GPa         | GPa         | GPa         | GPa         |
|               | ばらつき CV値            | -           | -           | -           | -           | -           |
|               | 等方性/異方性             | OK          | OK          | OK          | OK          | OK          |

[0083]

[表2]

| 比較例              |                     | 1           | 2           |
|------------------|---------------------|-------------|-------------|
| 強化繊維             |                     | 炭素繊維(2)     | 炭素繊維(2)     |
| マトリックス樹脂         |                     | マトリックス樹脂(1) | マトリックス樹脂(1) |
| 弓形状不連続強化繊維集合体(A) | 不連続強化繊維Wf           | wt%         | 55          |
|                  | Wy比率                | wt%         | 0           |
|                  | 鈍角角度 $\alpha$       | °           | -           |
| 不連続強化繊維集合体(1)    | Wa比率                | wt%         | 12          |
|                  | 弓形状不連続強化繊維集合体(A)の有無 | -           | No          |
|                  | 先端角度 $\theta$       | °           | 15          |
|                  | 最小外接矩形長さL           | mm          | 60          |
| 不連続強化繊維集合体(2)    | Wb比率                | wt%         | 88          |
|                  | 先端角度 $\theta$       | °           | 15          |
|                  | 最小外接矩形長さL           | mm          | 20          |
|                  | 繊維長l                | mm          | 12          |
| 不連続強化繊維集合体(3)    | Wc比率                | wt%         | 0           |
|                  | 曲げ強度                | MPa         | 390         |
|                  | 曲げ弾性率               | GPa         | 31          |
|                  | ばらつき CV値            | -           | NG          |
|                  | 等方性/異方性             | -           | OK          |

産業上の利用可能性

[0084] 本発明の強化繊維複合材料は、従来の不連続強化繊維とマトリックス樹脂からなる強化繊維複合材料では達成できなかった、成形の際の高流動性と高い機械特性を高いレベルで両立させることが可能であり、かつ複合材料の前駆体であるSMCシートやスタンパブルシートのようなシート状成形材料の製造工程において、マトリックス樹脂をシート状基材に加圧含浸させる際に、樹脂の流動による不連続強化繊維の流動を抑制できる。

### 符号の説明

- [0085] 1 弓形状不連続強化繊維集合体 (A) の形態一例
- 2 弓形状不連続強化繊維集合体 (A) の最小外接矩形の一例
- L 最小外接矩形の長辺長さの一例
- W 最小外接矩形の短辺長さの一例
- $\theta_1$ 、 $\theta_2$  不連続強化繊維集合体の先端鋭角角の一例
- $\alpha_1$ 、 $\alpha_2$  不連続強化繊維集合体の鈍角角の一例
- 1 1 第1シートロールの一例
- 1 2 コンベヤの一例
- 1 3 第1樹脂バスの一例
- 1 4 マトリックス樹脂のペーストを所定の厚みで塗布した第1樹脂シートの一例
- 1 5 第2シートロールの一例
- 1 6 第2樹脂バスの一例
- 1 7 マトリックス樹脂のペーストを所定の厚みで塗布した第2樹脂シートの一例
- 2 1 強化繊維ストランドボビンの一例
- 2 2 連続強化繊維ストランドの一例
- 2 3 切断機の一例
- 2 4 分散器 (ディストリビューター) の一例
- 3 1 第1樹脂シート上に、不連続強化繊維がランダムに散布された集合体の一例

- 3 2 第1樹脂シート及び第2樹脂シートに塗布されたマトリックス樹脂が部分的に含浸した集合体
- 3 3 加圧機構の一例
- 3 4 不連続強化繊維複合材料の前駆体である成形材料の一例
- 4 0 円盤刃式切断機の Cutterロール表面の一例
- 4 1 円盤刃式切断機の Cutterロールの一例
- 4 2 円盤刃の刃部の一例
- 5 0 円盤刃式切断機のニップロールの一例
- 5 1 円盤刃式切断機のトラバースガイドの一例
- 6 0 円盤刃式切断機で得られる不連続強化繊維集合体の一例
- 7 0 不連続強化繊維集合体 (2) の一例
- 1<sub>1</sub>、1<sub>2</sub> 不連続強化繊維集合体の繊維長の一例

## 請求の範囲

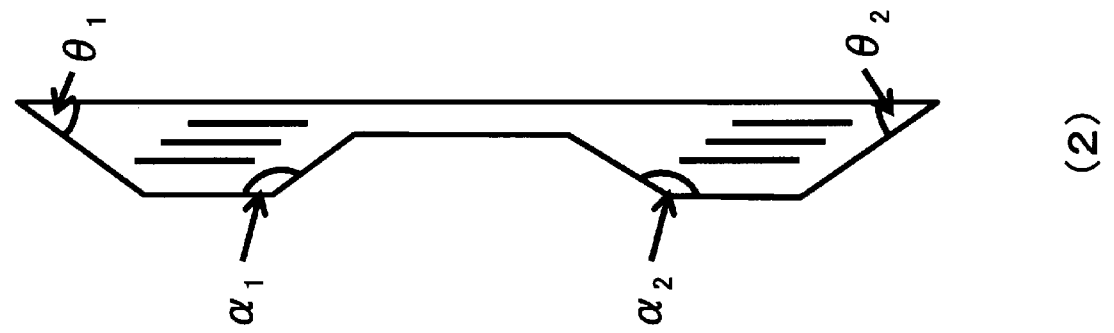
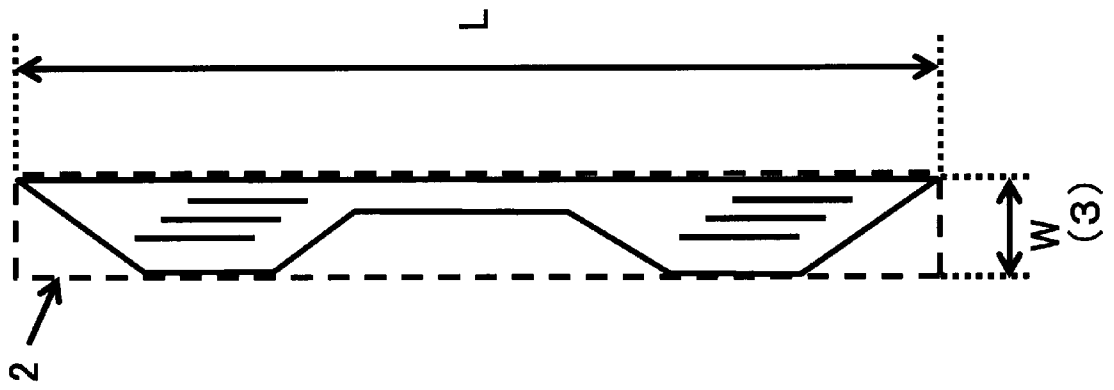
- [請求項1] 不連続強化繊維を20wt%以上70wt%未満と、マトリックス樹脂とを含み、前記不連続強化繊維の少なくとも一部は繊維集合体をなし、
- 前記繊維集合体の少なくとも1束は、ある面を2次元平面上に投影した際に、投影面の最小外接矩形長手方向における両端部と、両端部以外のそれぞれに、前記繊維集合体を構成する単糸本数が減少する領域が1ヵ所以上存在する（以下、弓形状不連続強化繊維集合体（A）という）、強化繊維複合材料。
- [請求項2] 前記繊維集合体のうち、前記最小外接矩形の長辺長さが30mm以上あるものを不連続強化繊維集合体（1）としたとき、
- 不連続強化繊維全体における2wt%以上15wt%以下が不連続強化繊維集合体（1）を形成する、請求項1に記載の強化繊維複合材料。
- [請求項3] 前記不連続強化繊維集合体（1）の少なくとも1束は弓形状不連続強化繊維集合体（A）である、請求項2に記載の強化繊維複合材料。
- [請求項4] 前記繊維集合体のうち、前記最小外接矩形の長辺長さが30mm未満であるものを不連続強化繊維集合体（2）としたとき、
- 不連続強化繊維集合体（2）は、「数平均最小外接矩形の長辺長さ：数平均繊維長」の比が、「1.5：1.0」～「2.0：1.0」である、請求項1～3のいずれかに記載の強化繊維複合材料。
- [請求項5] 前記不連続強化繊維集合体（1）は、ある面を2次元平面上に投影した際の投影面の長手方向に対する前記長手方向上の先端部鋭角の数平均角度が、5°以上30°以下である、請求項2～4のいずれかに記載の強化繊維複合材料。
- [請求項6] 前記不連続強化繊維集合体（2）は、ある面を2次元平面上に投影した際の投影面の長手方向に対する前記長手方向上の先端部鋭角の数平均角度が5°以上30°以下である、請求項4または5に記載の強

化繊維複合材料。

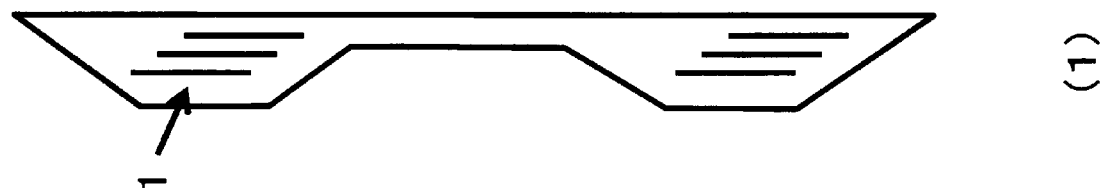
[請求項7] 弓形状不連続強化繊維集合体（A）の前記投影面の最小外接矩形長手方向に対し、両端部以外の位置に存在する前記単糸本数が減少する領域の勾配がなす数平均鈍角角度が $135^{\circ}$ 以上 $175^{\circ}$ 以下である、請求項1～6のいずれかに記載の強化繊維複合材料。

[請求項8] 前記不連続強化繊維は、数平均繊維長が3mm以上100mm未満である、請求項1～7のいずれかに記載の強化繊維複合材料。

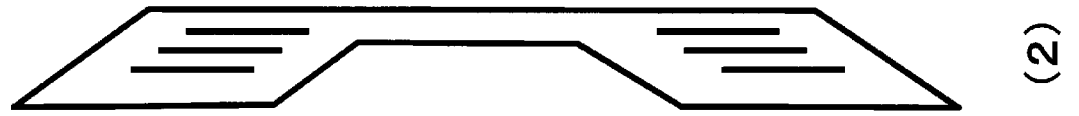
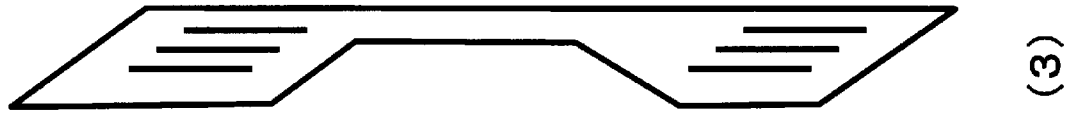
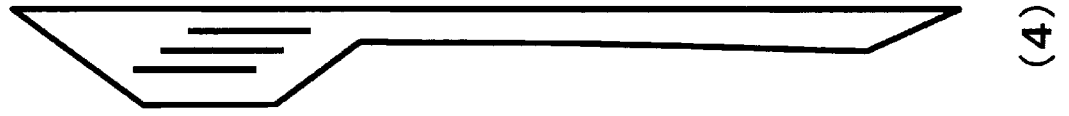
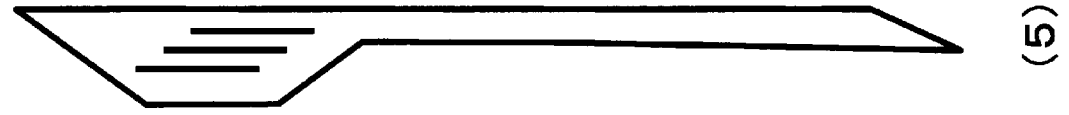
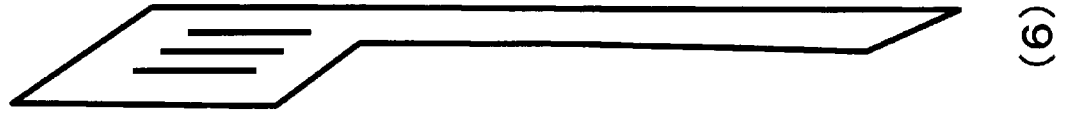
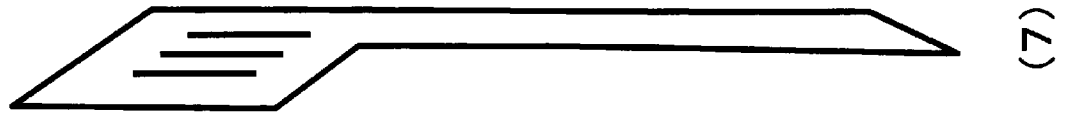
【図1】



【図1】



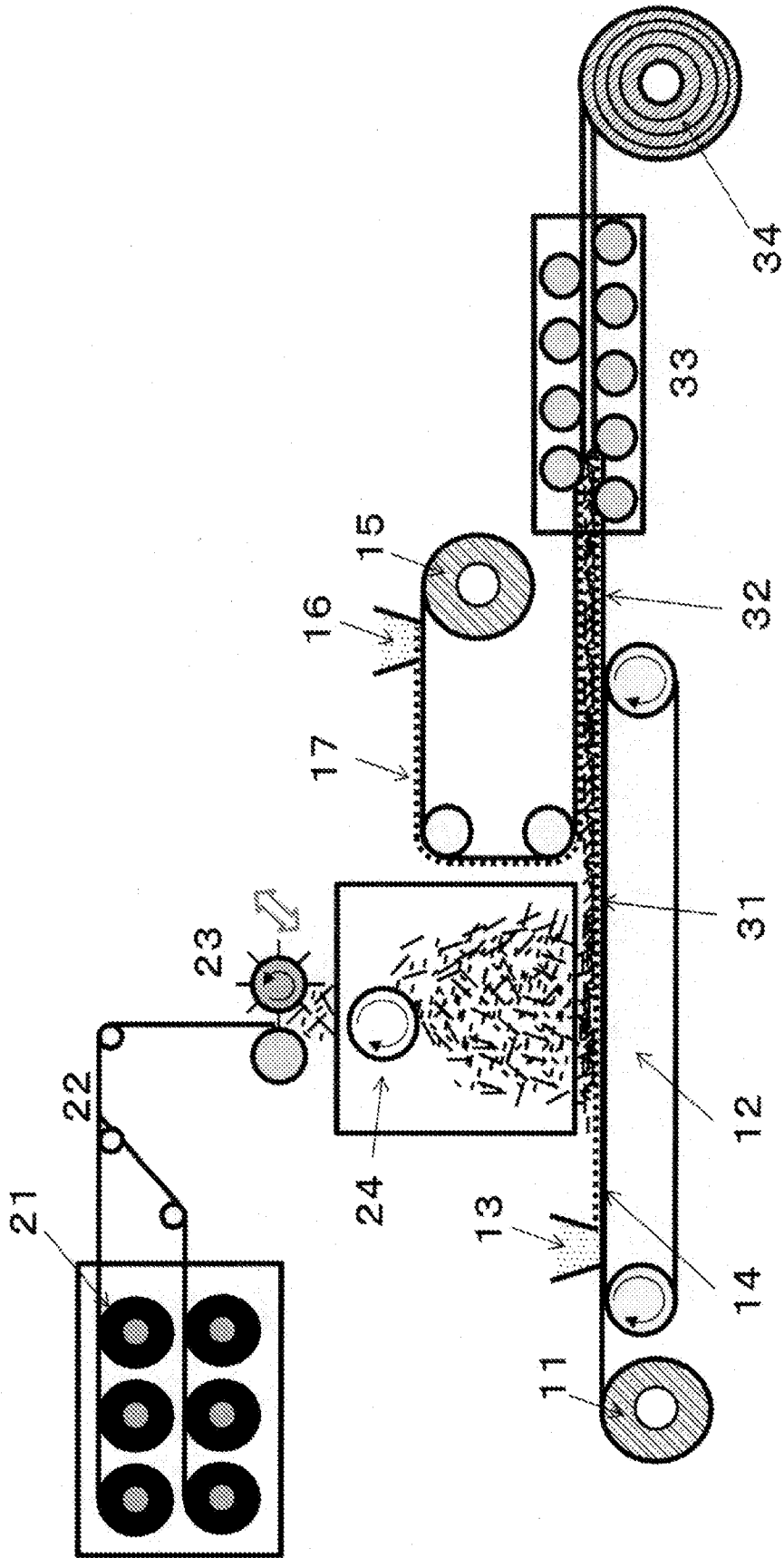
【図2】



【図2】

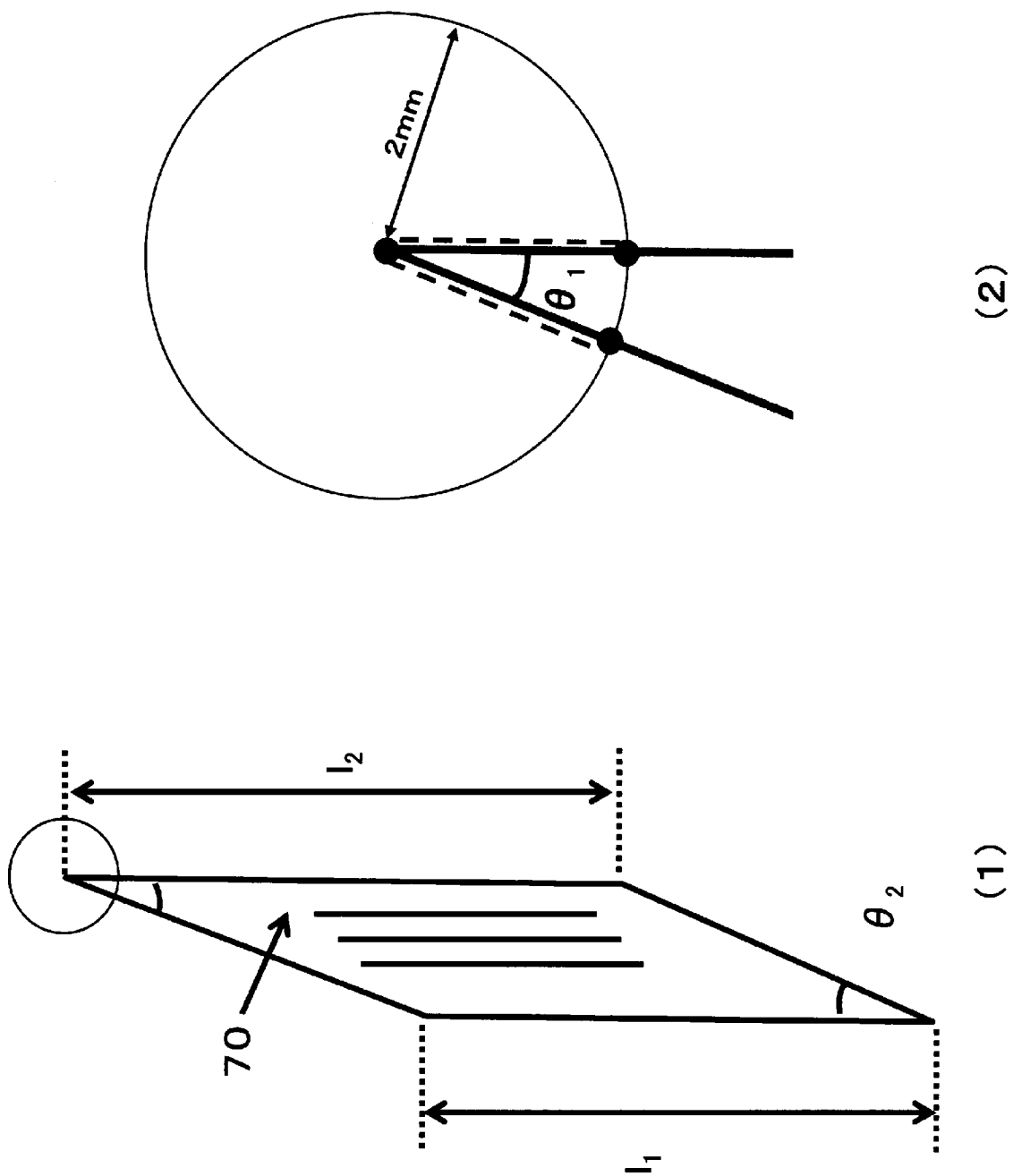
【図3】

【図3】



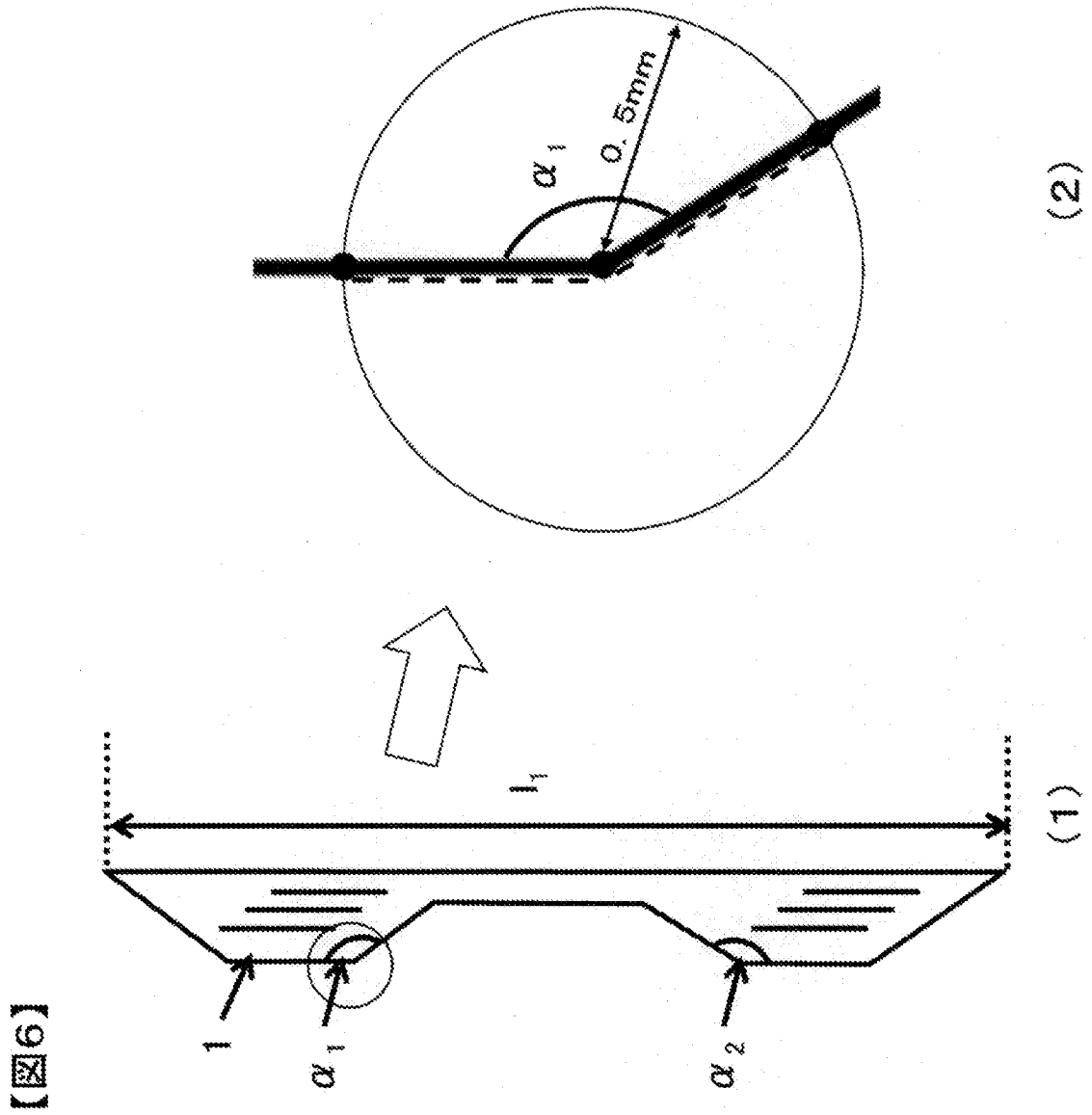


【図5】



【図5】

【図6】



**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2021/007642

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**

Int.Cl. B29B11/16(2006.01)i, C08J5/04(2006.01)i  
 FI: B29B11/16, C08J5/04CER

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
 Int.Cl. B29B11/16, 15/08-15/14, C08J5/04-5/10, 5/24

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

|  |           |
|--|-----------|
| Published examined utility model applications of Japan   | 1922-1996 |
| Published unexamined utility model applications of Japan | 1971-2021 |
| Registered utility model specifications of Japan         | 1996-2021 |
| Published registered utility model applications of Japan | 1994-2021 |

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

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------|
| A         | WO 2016/047412 A1 (TORAY INDUSTRIES, INC.) 31<br>March 2016 (2016-03-31)           | 1-8                   |
| A         | WO 2018/143067 A1 (TORAY INDUSTRIES, INC.) 09<br>August 2018 (2018-08-09)          | 1-8                   |
| A         | JP 2009-62474 A (TORAY INDUSTRIES, INC.) 26 March<br>2009 (2009-03-26)             | 1-8                   |
| A         | WO 2008/149615 A1 (TORAY INDUSTRIES, INC.) 11<br>December 2008 (2008-12-11)        | 1-8                   |
| A         | WO 2017/145884 A1 (TORAY INDUSTRIES, INC.) 31<br>August 2017 (2017-08-31)          | 1-8                   |
| P, A      | WO 2020/067058 A1 (TORAY INDUSTRIES, INC.) 02<br>April 2020 (2020-04-02)           | 1-8                   |

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

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

|  |   |
|--|---|
| Date of the actual completion of the international search<br>08 April 2021 | Date of mailing of the international search report<br>20 April 2021 |
|--|---|

|  |   |
|--|---|
| Name and mailing address of the ISA/<br>Japan Patent Office<br>3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,<br>Tokyo 100-8915, Japan | Authorized officer<br><br>Telephone No. |
|--|---|

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

International application No.

PCT/JP2021/007642

|                   |                  |                      |
|-------------------|------------------|----------------------|
| WO 2016/047412 A1 | 31 March 2016    | US 2017/0305074 A1   |
|                   |                  | EP 3199316 A1        |
|                   |                  | KR 10-2017-0063703 A |
|                   |                  | CN 107073753 A       |
| WO 2018/143067 A1 | 09 August 2018   | US 2019/0352474 A1   |
|                   |                  | EP 3578711 A1        |
|                   |                  | CN 110234805 A       |
|                   |                  | KR 10-2019-0107675 A |
| JP 2009-62474 A   | 26 March 2009    | (Family: none)       |
| WO 2008/149615 A1 | 11 December 2008 | US 2010/0178495 A1   |
|                   |                  | EP 2151418 A1        |
|                   |                  | CN 101711230 A       |
| WO 2017/145884 A1 | 31 August 2017   | US 2019/0054707 A1   |
|                   |                  | EP 3421208 A1        |
|                   |                  | KR 10-2018-0113992 A |
| WO 2020/067058 A1 | 02 April 2020    | (Family: none)       |

|   |  |                |
|---|--|----------------|
| A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））<br>B29B 11/16(2006.01)i; C08J 5/04(2006.01)i<br>FI: B29B11/16; C08J5/04 CER   |  |                |
| B. 調査を行った分野<br>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））<br>B29B11/16; 15/08-15/14; C08J5/04-5/10; 5/24<br>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<br>日本国実用新案公報 1922-1996年<br>日本国公開実用新案公報 1971-2021年<br>日本国実用新案登録公報 1996-2021年<br>日本国登録実用新案公報 1994-2021年          |  |                |
| 国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）  |  |                |
| C. 関連すると認められる文献   |  |                |
| 引用文献の<br>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<br>請求項の番号 |
| A   | WO 2016/047412 A1 (東レ株式会社) 31.03.2016 (2016-03-31)   | 1-8            |
| A   | WO 2018/143067 A1 (東レ株式会社) 09.08.2018 (2018-08-09)   | 1-8            |
| A   | JP 2009-62474 A (東レ株式会社) 26.03.2009 (2009-03-26)   | 1-8            |
| A   | WO 2008/149615 A1 (東レ株式会社) 11.12.2008 (2008-12-11)   | 1-8            |
| A   | WO 2017/145884 A1 (東レ株式会社) 31.08.2017 (2017-08-31)   | 1-8            |
| P, A  | WO 2020/067058 A1 (東レ株式会社) 02.04.2020 (2020-04-02)   | 1-8            |
| <input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。   |  |                |
| * 引用文献のカテゴリー<br>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの<br>“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<br>“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）<br>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献<br>“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 | “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの<br>“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<br>“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<br>“&” 同一パテントファミリー文献 |                |
| 国際調査を完了した日<br>08.04.2021  | 国際調査報告の発送日<br>20.04.2021   |                |
| 名称及びあて先<br>日本国特許庁(ISA/JP)<br>〒100-8915<br>日本国<br>東京都千代田区霞が関三丁目4番3号  | 権限のある職員（特許庁審査官）<br>千葉 直紀 4F 3434<br>電話番号 03-3581-1101 内線 3430  |                |

国際調査報告  
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2021/007642

| 引用文献  |             |    | 公表日        | パテントファミリー文献 |                 |    | 公表日 |
|-------|-------------|----|------------|-------------|-----------------|----|-----|
| WO    | 2016/047412 | A1 | 31.03.2016 | US          | 2017/0305074    | A1 |     |
|       |             |    |            | EP          | 3199316         | A1 |     |
|       |             |    |            | KR          | 10-2017-0063703 | A  |     |
|       |             |    |            | CN          | 107073753       | A  |     |
| ----- |             |    |            |             |                 |    |     |
| WO    | 2018/143067 | A1 | 09.08.2018 | US          | 2019/0352474    | A1 |     |
|       |             |    |            | EP          | 3578711         | A1 |     |
|       |             |    |            | CN          | 110234805       | A  |     |
|       |             |    |            | KR          | 10-2019-0107675 | A  |     |
| ----- |             |    |            |             |                 |    |     |
| JP    | 2009-62474  | A  | 26.03.2009 | (ファミリーなし)   |                 |    |     |
| ----- |             |    |            |             |                 |    |     |
| WO    | 2008/149615 | A1 | 11.12.2008 | US          | 2010/0178495    | A1 |     |
|       |             |    |            | EP          | 2151418         | A1 |     |
|       |             |    |            | CN          | 101711230       | A  |     |
| ----- |             |    |            |             |                 |    |     |
| WO    | 2017/145884 | A1 | 31.08.2017 | US          | 2019/0054707    | A1 |     |
|       |             |    |            | EP          | 3421208         | A1 |     |
|       |             |    |            | KR          | 10-2018-0113992 | A  |     |
| ----- |             |    |            |             |                 |    |     |
| WO    | 2020/067058 | A1 | 02.04.2020 | (ファミリーなし)   |                 |    |     |
| ----- |             |    |            |             |                 |    |     |