

(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  
2023年12月21日(21.12.2023)



(10) 国際公開番号

WO 2023/243532 A1

(51) 国際特許分類:

C08J 5/04 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2023/021355

(22) 国際出願日: 2023年6月8日(08.06.2023)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:

特願 2022-095041 2022年6月13日(13.06.2022) JP

(71) 出願人: 株式会社アイ. エス. テイ (I. S. T CORPORATION) [JP/JP]; 〒5202153 滋賀県大津市一里山五丁目13番13号 Shiga (JP).

(72) 発明者: 大庭 圭一朗 (ONIWA Keiichiro); 〒5202153 滋賀県大津市一里山五丁目13番13号 株式会社アイ. エス. テイ内 Shiga (JP).

(74) 代理人: 北原 宏修, 外 (KITAHARA Hiroyoshi et al.); 〒5300003 大阪府大阪市北区堂島二丁目1番27号 桜橋千代田ビル10階 アラタナ国際特許事務所 Osaka (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY,

MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

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

添付公開書類:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: FIBER-REINFORCED RESIN MOLDED BODY

(54) 発明の名称: 繊維強化樹脂成形体

(57) Abstract: [Problem] The present invention addresses the problem of providing a fiber-reinforced resin molded body having excellent dielectric properties, light weight, and high strength. [Solution] A fiber-reinforced resin molded body according to the present invention comprises polyimide fibers and a resin. The fiber-reinforced resin molded body has a dielectric constant of 4.0 or less at a frequency in a range of 5-80 GHz, and has a dielectric loss tangent of 0.02 or less at the same frequency. Note that the fiber-reinforced resin molded body preferably has a tensile strength in the range of 0.5-2.5 GPa, and preferably has a tensile modulus in the range of 25-120 GPa.

(57) 要約: 【課題】本発明の課題は、誘電特性に優れ、軽量且つ高強度を有する繊維強化樹脂成形体を提供することにある。【解決手段】本発明に係る繊維強化樹脂成形体は、ポリイミド繊維および樹脂を備える。この繊維強化樹脂成形体は、5GHz以上80GHz以下の範囲内の周波数における誘電率が4.0以下であり、同周波数における誘電正接が0.02以下である。なお、この繊維強化樹脂成形体は、引張強度が0.5GPa以上2.5GPaの範囲内であることが好ましく、引張弾性率が25GPa以上120GPa以下の範囲内であることが好ましい。



WO 2023/243532 A1

## 明 細 書

発明の名称： 繊維強化樹脂成形体

### 技術分野

[0001] 本発明は、優れた誘電特性を有する繊維強化樹脂成形体に関する。

### 背景技術

[0002] 近年の半導体素子や移動体通信機器等の電子機器の更なる高機能化・高速化・小型化に伴い、電気信号送受信の高速化や高密度配線化が進められている。この結果、半導体基板、印刷回路基板、EMC (Epoxy Molding Compound) などのような電子部品および情報通信機器における電気信号の帯域が高くなる傾向にある。電気信号の伝送損失は、絶縁材料の誘電正接および電気信号の周波数に比例する。したがって、電気信号の周波数が高いほど伝送損失が大きくなって電気信号の減衰をもたらし、電気信号の伝送信頼性の低下が生じる。また、伝送損失の熱への変換による発熱の問題が発生することがある。そこで、高周波領域では、誘電正接が非常に小さい絶縁材料が求められている。

[0003] 例えば特開2016-166347号公報には、誘電特性に優れた高周波回路基板を提供することを課題として、織布および／または不織布と、その織布および／または不織布に充填されると共にその表面を被覆する、エポキシ樹脂、硬化剤およびフッ素樹脂フィラーを含む樹脂組成物の半硬化物を有するプリプレグが提案されている。

### 先行技術文献

#### 特許文献

[0004] 特許文献1：特開2016-166347号公報

### 発明の概要

#### 発明が解決しようとする課題

[0005] しかし、近年では電気信号の伝送速度をさらに速くすることが求められており、低誘電率のみならず、伝送損失を減少させるための誘電正接を有する

樹脂成形体が求められている。

[0006] 本発明は上記背景に鑑みてなされたものであり、誘電特性に優れると共に、強度が高く、しかも軽量である繊維強化樹脂成形体を提供することを目的とする。

### 課題を解決するための手段

[0007] 本発明の第1局面に係る繊維強化樹脂成形体は、ポリイミド繊維および樹脂を備える。この繊維強化樹脂成形体は、5 GHz以上80 GHz以下の周波数帯における誘電率が4.0以下であり、同周波数帯における誘電正接が0.02以下である。

[0008] なお、本発明の第1局面に係る繊維強化樹脂成形体において、引張強度が0.5 GPa以上2.5 GPaの範囲内であり、引張弾性率が25 GPa以上120 GPa以下の範囲内であることが好ましい。

[0009] また、本発明の第1局面に係る繊維強化樹脂成形体において、ポリイミド繊維は、芳香族テトラカルボン酸二無水物と芳香族ジアミンの重合反応により得られることが好ましい。なお、ここで、芳香族テトラカルボン酸二無水物は、ピロメリット酸二無水物および3,3',4,4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物の少なくとも一方であり、芳香族ジアミンは4,4'-ジアミノジフェニルエーテルおよびパラフェニレンジアミンの少なくとも一方である。

[0010] また、本発明の第1局面に係る繊維強化樹脂成形体において、ポリイミド繊維の引張弾性率は100 GPa以上170 GPa以下の範囲内であることが好ましい。

[0011] 本発明の第2局面に係るプリプレグは、上述の繊維強化樹脂成形体を製造するために使用される。そして、このプリプレグは、ポリイミド繊維と、樹脂もしくは樹脂前駆体を備える。なお、ここにいう「樹脂前駆体」とは、硬化前の単量体組成物（架橋剤などを含む場合がある。）や、ポリマー前駆体などである。

### 発明の効果

[0012] 本発明によれば、誘電特性に優れると共に、強度が高く、しかも軽量である繊維強化樹脂成形体を提供することができる。

### 発明を実施するための形態

[0013] <本発明の実施の形態に係る繊維強化樹脂成形体の構成>

本発明の実施の形態に係る繊維強化樹脂成形体は、主に、ポリイミド繊維および樹脂から成っている。

[0014] 上述のポリイミド繊維は、芳香族テトラカルボン酸二無水物と芳香族ジアミンの重合反応により得られることが好ましい。芳香族テトラカルボン酸二無水物は、ピロメリット酸二無水物および3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物の少なくとも一方であることが好ましい。芳香族ジアミンは、4, 4'-ジアミノジフェニルエーテルおよびパラフェニレンジアミンの少なくとも一方であることが好ましい。

[0015] なお、ポリイミド繊維は、本発明の主旨を損なわない範囲で、ガラス繊維、アラミド繊維、(液晶)ポリエステル繊維、ポリアクリル繊維、炭素繊維等と組み合わせられて用いられてもよい。ただし、繊維強化樹脂成形体における誘電率や誘電正接等の誘電特性の観点から、ポリイミド繊維のみが用いられるのが好ましい。

[0016] 上述のポリイミド繊維は、引張弾性率が100GPa以上170GPa以下の範囲内であることが好ましく、110GPa以上150GPa以下の範囲内であることがより好ましい。

[0017] また、本発明の実施の形態に係る繊維強化樹脂成形体の強度を高めるために、ポリイミド繊維の繊維直径は10 $\mu$ m以上18 $\mu$ m以下の範囲内とすることが好ましい。ポリイミド繊維の繊維直径をこの範囲内とすることによりポリイミド繊維の製造性を良好に維持すると共に、ポリイミド繊維の剛性を良好なものとすることができ延いてはその取り扱い性を維持することができ、好ましい。また、繊維強化樹脂成形体におけるポリイミド繊維の体積含有率は、40体積%以上70体積%以下の範囲内であることが好ましい。ポリイミド繊維の体積含有率をこの範囲内とすることにより、繊維強化樹脂成形

体においてポリイミド繊維の高強度高弾性が発現することができると共に、樹脂と繊維の接着性能を良好に維持することができ延いてはボイドを少なくすることができ、好ましい。なお、ポリイミド繊維の体積含有率は、45体積%以上65体積%以下の範囲内であることがより好ましい。

[0018] 上述の樹脂としては、エポキシ系樹脂、フェノール系樹脂、ポリイミド系樹脂、不飽和ポリエステル系樹脂、ポリフェニレンエーテル系樹脂等の熱硬化性樹脂や、ポリイミド系樹脂、ポリフェニレンエーテル系樹脂、ポリスルホン系樹脂、ポリテトラフルオロエチレン樹脂やペルフルオロアルコキシフッ素樹脂などのフッ素系樹脂等の熱可塑性樹脂が挙げられる。これらの樹脂の中でもエポキシ系樹脂やポリイミド系樹脂は、電気特性および接着性のバランスが良好であり、より好ましい。

[0019] 上述のエポキシ樹脂としては、例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂、ビスフェノールS型エポキシ樹脂、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、ビスフェノールAノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ジアミノジフェニルメタン型エポキシ樹脂、およびこれらのエポキシ樹脂構造体中の水素原子の一部をハロゲン化することにより難燃化したエポキシ樹脂等が挙げられる。また、このエポキシ樹脂の硬化剤としては、例えば、ジシアンジアミドや脂肪族ポリアミド等のアミド系硬化剤、ジアミノジフェニルメタンやトリエチレンジアミン等のアミン系硬化剤、フェノールノボラック樹脂やビスフェノールA型ノボラック樹脂等のフェノール系硬化剤、酸無水物系化合物、メルカプタン系化合物、フェノール樹脂、アミノ樹脂類等が挙げられる。

[0020] また、上述のポリイミド樹脂としては、例えば、芳香族テトラカルボン酸二無水物と芳香族ジアミンからなるポリイミド樹脂が挙げられる。芳香族テトラカルボン酸二無水物としては、ピロメリット酸二無水物、1, 2, 5, 6-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、1, 4, 5, 8-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、2, 3, 6, 7-ナフタレンテトラカルボン酸二無水物、2, 2', 3, 3'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、2,

3, 3', 4' -ビフェニルテトラカルボン酸二無水物、3, 3', 4, 4' -ビフェニルテトラカルボン酸二無水物 (BPDA)、2, 2', 3, 3' -ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、2, 3, 3', 4' -ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物、3, 3', 4, 4' -ベンゾフェノンテトラカルボン酸二無水物 (BTDA)、ビス (3, 4-ジカルボキシフェニル) スルホン二無水物、ビス (2, 3-ジカルボキシフェニル) メタン二無水物、ビス (3, 4-ジカルボキシフェニル) メタン二無水物、1, 1-ビス (2, 3-ジカルボキシフェニル) エタン二無水物、1, 1-ビス (3, 4-ジカルボキシフェニル) エタン二無水物、2, 2-ビス [3, 4-(ジカルボキシフェノキシ) フェニル] プロパン二無水物 (BPADA)、4, 4' - (ヘキサフルオロイソプロピリデン) ジフタル酸無水物、オキシジフタル酸無水物 (ODPA)、ビス (3, 4-ジカルボキシフェニル) スルホン二無水物、ビス (3, 4-ジカルボキシフェニル) スルホキッド二無水物、チオジフタル酸二無水物、3, 4, 9, 10-ペリレンテトラカルボン酸二無水物、2, 3, 6, 7-アントラセンテトラカルボン酸二無水物、1, 2, 7, 8-フェナントレンテトラカルボン酸二無水物、9, 9-ビス (3, 4-ジカルボキシフェニル) フルオレン二無水物や9, 9-ビス [4-(3, 4'-ジカルボキシフェノキシ) フェニル] フルオレン二無水物等の芳香族テトラカルボン酸二無水物、シクロブタンテトラカルボン酸二無水物、1, 2, 3, 4-シクロペンタンテトラカルボン酸二無水物、2, 3, 4, 5-テトラヒドロフランテトラカルボン酸二無水物、1, 2, 4, 5-シクロヘキサンテトラカルボン酸二無水物、3, 4-ジカルボキシ-1-シクロヘキシルコハク酸二無水物、3, 4-ジカルボキシ-1, 2, 3, 4-テトラヒドロ-1-ナフタレンコハク酸二無水物等が挙げられる。芳香族ジアミンとしては、例えば、4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル、パラフェニレンジアミン (PPD)、メタフェニレンジアミン (MPDA)、2, 5-ジアミノトルエン、2, 6-ジアミノトルエン、4, 4'-ジアミノビフェニル、3, 3'-ジメチル-4, 4'-ジアミノビフェニル、3, 3'-

ジメトキシ-4, 4'-ジアミノビフェニル、2, 2-ビス(トリフルオロメチル)-4, 4'-ジアミノビフェニル、3, 3'-ジアミノジフェニルメタン、4, 4'-ジアミノジフェニルメタン(MDA)、2, 2-ビス(4-アミノフェニル)プロパン、3, 3'-ジアミノジフェニルスルホン(33DDS)、4, 4'-ジアミノジフェニルスルホン(44DDS)、3, 3'-ジアミノジフェニルスルフィド、4, 4'-ジアミノジフェニルスルフィド、3, 3'-ジアミノジフェニルエーテル、3, 4'-ジアミノジフェニルエーテル(34ODA)、1, 5-ジアミノナフタレン、4, 4'-ジアミノジフェニルジエチルシラン、4, 4'-ジアミノジフェニルシラン、4, 4'-ジアミノジフェニルエチルホスフィンオキシド、1, 3-ビス(3-アミノフェノキシ)ベンゼン(133APB)、1, 3-ビス(4-アミノフェノキシ)ベンゼン(134APB)、1, 4-ビス(4-アミノフェノキシ)ベンゼン、ビス[4-(3-アミノフェノキシ)フェニル]スルホン(BAPSM)、ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]スルホン(BAPS)、2, 2-ビス[4-(4-アミノフェノキシ)フェニル]プロパン(BAPP)、2, 2-ビス(3-アミノフェニル)1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロプロパン、2, 2-ビス(4-アミノフェニル)1, 1, 1, 3, 3, 3-ヘキサフルオロプロパン、9, 9-ビス(4-アミノフェニル)フルオレン等が挙げられる。

[0021] 本発明の実施の形態に係る繊維強化樹脂成形体は、5GHz以上80GHz以下の周波数帯において、誘電率が4.0以下であり、誘電正接が0.02以下である。なお、誘電率は1.0以上4.0以下の範囲内であることが好ましく、誘電正接は0以上0.02以下の範囲内であることが好ましい。また、誘電率は1.0以上3.5以下の範囲内であることがより好ましく、誘電正接は0以上0.015以下の範囲内であることがより好ましい。これにより伝送速度を高速化することができるからである。

[0022] 本発明の実施の形態に係る繊維強化樹脂成形体は、5GHz以上80GHz以下と広い周波数帯であっても誘電率や誘電正接が周波数に対する依存性

がないため、衛星携帯電話や次世代携帯電話（1.0 GHz～2.5 GHz）の筐体または部品、ネットワーク対応端末（パソコン、携帯電話、携帯ゲーム、タブレット、携帯音楽プレーヤー）の筐体または部品、無線LAN（5 GHz～60 GHz）の筐体または部品、無線通信：AWA（22 GHz～45 GHz）の筐体または部品などの分野において誘電率等を調整する必要がなく、好適に使用することができる。

[0023] また、本発明の実施の形態に係る繊維強化樹脂成形体の引張強度や引張弾性率は、繊維強化樹脂成形体に含まれる繊維方向や繊維体積含有率に依存する。このため、繊維強化樹脂成形体の引張強度や引張弾性率を調整するためには、繊維強化樹脂成形体に含まれる繊維方向や繊維体積含有率を適宜調整する必要がある。例えば、繊維強化樹脂成形体における繊維の配向方向が全て同一方向であるとすると、繊維方向（繊維の長手方向）の繊維強化樹脂成形体の引張強度は0.5 GPa以上2.5 GPa以下の範囲内であることが好ましく、0.75 GPa以上2.5 GPa以下の範囲内であることがより好ましく、1.0 GPa以上2.5 GPa以下の範囲内であることがさらに好ましい。同一の条件において、繊維強化樹脂成形体の引張弾性率は25 GPa以上120 GPa以下の範囲内であることが好ましく、30 GPa以上120 GPa以下の範囲内であることがより好ましく、35 GPa以上120 GPa以下の範囲内であることがさらに好ましい。

[0024] <本発明の実施の形態に係る繊維強化樹脂成形体の製造方法>

本発明の実施の形態に係る繊維強化樹脂成形体は、プリプレグを経由する方法、プリプレグを経由しない方法のいずれでも成形することができる。ポリイミド繊維は、長繊維であってもよいし、任意の長さにカットされた短繊維であってもよい。プリプレグを経由する方法としては、例えば、上述の繊維から成る繊維基材に樹脂を含侵させたプリプレグを複数積層した後、積層体を加熱加圧して硬化させる方法等が挙げられる。かかる方法では、繊維基材の形態として、繊維を一方向に配列させたいわゆるUDシートや、長繊維フィラメント糸を製織または製編したものを好ましく用いることができる。

織物としては、例えば、二方向織物、三軸織物等の多軸織物等が挙げられる。編物としては、丸編機等のよこ編機、トリコット編機、ラッセル編機、ミラニーズ編機等のたて編機で製編したものが挙げられる。プリプレグを經由しない方法としては、例えば、上述の樹脂を有するワニス調製し、同ワニスを繊維基材に含浸させた後、加熱及び加圧して硬化させる方法、具体的には、ハンドレイアップ法、フィラメントワインディング法、プルトルージョン法等が挙げられる。

[0025] <実施例および比較例>

以下、具体的に実施例および比較例について説明するが、本発明は、これら実施例によって限定されるものではない。

### 実施例 1

[0026] 1. ポリイミド繊維の作製

136gのパラフェニレンジアミン（PPD）と、N-メチルピロリドン2, 224gとを反応容器に投入し、PPDをN-メチルピロリドンに溶解させた。次に、259.0gの3, 3', 4, 4'-ビフェニルテトラカルボン酸二無水物（BPDA）と、82.30gのピロメリット酸二無水物（PMDA）とを上述の反応容器に投入して、室温でPMDAとPPDを重合させた。その結果、濃度が17.7重量%のポリイミド前駆体溶液が得られた。次に、このポリイミド前駆体溶液に、1, 3-ジアゾール21.41gをN-メチルピロリドン40.41gに溶解させた溶液を加え、紡糸用ポリイミド前駆体溶液を調製した。次いで、紡糸用吐出機を用いて、この紡糸用ポリイミド前駆体溶液を、水を主成分として含む凝固浴中に吐出させてポリイミド前駆体繊維を得た。続いてこのポリイミド前駆体繊維を水洗した後に延伸、加熱してポリイミド繊維を得た。

[0027] 得られたポリイミド繊維の繊維径および引張物性を以下の方法で測定した。

[0028] (1) 繊維径

サーチ社製のオートバイプロ式繊維度測定器DC21を用いて、上述の通り

にして得られたポリイミド繊維の織度を測定した。測定された織度とポリイミド繊維の比重からポリイミド繊維の繊維径を求めたところその値は $14\ \mu\text{m}$ であった。

[0029] (2) 引張物性

「JIS R 7606」に準拠した方法で、上述の通りにして得られたポリイミド繊維の引張弾性率 ( $\text{cN/dtex}$ ) および引張強度 ( $\text{cN/dtex}$ ) を測定した。そして、弾性率 ( $\text{cN/dtex}$ )  $\times$  比重  $\div 10$  の換算式より、同ポリイミド繊維の引張弾性率 ( $\text{GPa}$ ) を求めた。一方、強度 ( $\text{cN/dtex}$ )  $\times$  比重  $\div 10$  の換算式より、同ポリイミド繊維の引張強度 ( $\text{GPa}$ ) を求めた。その結果、ポリイミド繊維の引張弾性率は $137\ \text{GPa}$ であり、引張強度は $3.1\ \text{GPa}$ であった。

[0030] 2. 繊維強化樹脂成形体の作製

上述の通りにして得られたポリイミド繊維を繊維目付 $56\ \text{g/m}^2$ となるように一定方向に引き揃えた後、その引き揃えられたポリイミド繊維に、エポキシ主剤（三菱ケミカル株式会社製のJER 828） $100$ 重量%と硬化剤（株式会社ADEKA製のADEKAハードナーEH-3636AS） $8$ 重量%を混合したエポキシ樹脂組成物を含浸させ、その組成物含浸ポリイミド繊維を恒温槽にて $120^\circ\text{C}$ で $30$ 分加熱することでUDプリプレグを作製した。次に、得られたUDプリプレグをプレート状金型に挟んでバギングした後に、そのUDプリプレグをオートクレーブにおいて $130^\circ\text{C}$ で $90$ 分、 $6$ 気圧で加熱加圧することで繊維強化樹脂成形体を得た。なお、この際、オートクレーブの昇降温速度は $2^\circ\text{C/分}$ であった。得られた繊維強化樹脂成形体の厚みは $65\ \mu\text{m}$ であり、ポリイミド繊維の体積含有率は $56\%$ であった。

[0031] なお、ポリイミド繊維の体積含有率  $V_f$  は下式 (1) により求めた。

$$V_f = Faw / \rho / T \times 100 \dots (1)$$

なお、ここで、 $Faw$  はポリイミド繊維の目付 ( $\text{g/m}^2$ ) であり、 $\rho$  はポリイミド繊維の密度 ( $\text{g/cm}^3$ ) であり、 $T$  は繊維強化樹脂成形体の厚み ( $\mu\text{m}$ ) である。ここで、ポリイミド繊維の密度は $1.5\ \text{g/cm}^3$ である。

[0032] 得られた繊維強化樹脂成形体の誘電率および誘電正接ならびに引張物性を以下の方法で測定した。

[0033] (1) 5 GHz～80 GHzにおける誘電率および誘電正接の測定

ベクトルネットワークアナライザ（キーサイト・テクノロジー社製のベクトルネットワークアナライザN5290A）、スプリットポスト共振器（キーサイト・テクノロジー社製）およびスプリットシリンダ共振器（EMラボ株式会社製）を用いて、5 GHz～80 GHzの周波数帯における繊維強化樹脂成形体の誘電率（ $\epsilon$ ）および誘電正接を測定したところ、5 GHzの周波数における誘電率は3.35であり、10 GHzの周波数における誘電率は3.38であり、20 GHzの周波数における誘電率は3.42であり、28 GHzの周波数における誘電率は3.38であり、40 GHzの周波数における誘電率は3.36であり、60 GHzの周波数における誘電率は3.33であり、80 GHzの周波数における誘電率は3.30であった。また、5 GHzの周波数における誘電正接は0.0123であり、10 GHzの周波数における誘電正接は0.0130であり、20 GHzの周波数における誘電正接は0.0143であり、28 GHzの周波数における誘電正接は0.0137であり、40 GHzの周波数における誘電正接は0.0140であり、60 GHzの周波数における誘電正接は0.0139であり、80 GHzの周波数における誘電正接は0.0132であった。

[0034] (2) 引張物性

精密万能試験機（株式会社島津製作所製、AGS-10kNG）を用いて、得られた繊維強化樹脂成形体を、繊維強化樹脂成形体の繊維方向（繊維の長手方向）に引張速度2 mm/分で引っ張って、その繊維強化樹脂成形体の引張弾性率や引張強度を測定したところ、その繊維強化樹脂成形体の引張強度は1.45 GPaであり、引張弾性率は41.8 GPaであった。

## 実施例 2

[0035] ポリイミド繊維の体積含有率が60%となるように繊維強化樹脂成形体を製造した以外は、実施例1に記載される方法と同様の方法で繊維強化樹脂成

形体を得た。

[0036] 得られた繊維強化樹脂成形体の厚みは62  $\mu\text{m}$ であった。また、5 GHz ~ 80 GHzの周波数帯における繊維強化樹脂成形体の誘電率および誘電正接ならびに繊維強化樹脂成形体の引張物性を実施例1に記載される方法と同様の方法で測定したところ、5 GHzの周波数における誘電率は3.48であり、10 GHzの周波数における誘電率は3.48であり、20 GHzの周波数における誘電率は3.46であり、28 GHzの周波数における誘電率は3.47であり、40 GHzの周波数における誘電率は3.42であり、60 GHzの周波数における誘電率は3.39であり、80 GHzの周波数における誘電率は3.38であった。また、5 GHzの周波数における誘電正接は0.0120であり、10 GHzの周波数における誘電正接は0.0127であり、20 GHzの周波数における誘電正接は0.0129であり、28 GHzの周波数における誘電正接は0.0125であり、40 GHzの周波数における誘電正接は0.0124であり、60 GHzの周波数における誘電正接は0.0127であり、80 GHzの周波数における誘電正接は0.0114であった。また、繊維強化樹脂成形体の引張強度は1.55 GPaであり、引張弾性率は44.8 GPaであった。

### 実施例 3

[0037] ポリイミド繊維の体積含有率が40%となるように繊維強化樹脂成形体を製造した以外は、実施例1に記載される方法と同様の方法で繊維強化樹脂成形体を得た。

[0038] 得られた繊維強化樹脂成形体の厚みは93  $\mu\text{m}$ であった。また、5 GHz ~ 80 GHzの周波数帯における繊維強化樹脂成形体の誘電率および誘電正接ならびに繊維強化樹脂成形体の引張物性を実施例1に記載される方法と同様の方法で測定したところ、5 GHz誘電率は3.32であり、10 GHzの周波数における誘電率は3.34であり、20 GHzの周波数における誘電率は3.31であり、28 GHzの周波数における誘電率は3.18であり、40 GHzの周波数における誘電率は3.22であり、60 GHzの周

波数における誘電率は3.20であり、80GHzの周波数における誘電率は3.12であった。また、5GHzの周波数における誘電正接は0.0198であり、10GHzの周波数における誘電正接は0.0189であり、20GHzの周波数における誘電正接は0.0197であり、28GHzの周波数における誘電正接は0.0194であり、40GHzの周波数における誘電正接は0.0174であり、60GHzの周波数における誘電正接は0.0165であり、80GHzの周波数における誘電正接は0.0194であった。また、繊維強化樹脂成形体の引張強度は0.60GPaであり、引張弾性率は29.8GPaであった。

#### 実施例 4

[0039] ポリイミド繊維の体積含有率が58%となるように繊維強化樹脂成形体を製造した以外は、実施例1に記載される方法と同様の方法で繊維強化樹脂成形体を得た。

[0040] 得られた繊維強化樹脂成形体の厚みは64 $\mu$ mであった。また、5GHz～80GHzの周波数帯における繊維強化樹脂成形体の誘電率および誘電正接ならびに繊維強化樹脂成形体の引張物性を実施例1に記載される方法と同様の方法で測定したところ、5GHzの周波数における誘電率は3.47であり、10GHzの周波数における誘電率は3.46であり、20GHzの周波数における誘電率は3.45であり、28GHzの周波数における誘電率は3.45であり、40GHzの周波数における誘電率は3.43であり、60GHzの周波数における誘電率は3.40であり、80GHzの周波数における誘電率は3.39であった。また、5GHzの周波数における誘電正接は0.0137であり、10GHzの周波数における誘電正接は0.0138であり、20GHzの周波数における誘電正接は0.0138であり、28GHzの周波数における誘電正接は0.0134であり、40GHzの周波数における誘電正接は0.0137であり、60GHzの周波数における誘電正接は0.0155であり、80GHzの周波数における誘電正接は0.0133であった。また、繊維強化樹脂成形体の引張強度は1.5

0 G P aであり、引張弾性率は43.1 G P aであった。

## 実施例 5

[0041] ポリイミド繊維の体積含有率が45%となるように繊維強化樹脂成形体を製造した以外は、実施例1に記載される方法と同様の方法で繊維強化樹脂成形体を得た。

[0042] 得られた繊維強化樹脂成形体の厚みは83  $\mu$ mであった。また、5 G H z ~ 80 G H zの周波数帯における繊維強化樹脂成形体の誘電率および誘電正接ならびに繊維強化樹脂成形体の引張物性を実施例1に記載される方法と同様の方法で測定したところ、5 G H zの周波数における誘電率は3.34であり、10 G H zの周波数における誘電率は3.33であり、20 G H zの周波数における誘電率は3.35であり、28 G H zの周波数における誘電率は3.25であり、40 G H zの周波数における誘電率は3.27であり、60 G H zの周波数における誘電率は3.25であり、80 G H zの周波数における誘電率は3.19であった。また、5 G H zの周波数における誘電正接は0.0193であり、10 G H zの周波数における誘電正接は0.0195であり、20 G H zの周波数における誘電正接は0.0182であり、28 G H zの周波数における誘電正接は0.0179であり、40 G H zの周波数における誘電正接は0.0190であり、60 G H zの周波数における誘電正接は0.0154であり、80 G H zの周波数における誘電正接は0.0169であった。また、繊維強化樹脂成形体の引張強度は0.75 G P aであり、引張弾性率は32.1 G P aであった。

[0043] (比較例1)

ポリイミド繊維をアラミド繊維(東レデュポン株式会社製のケブラー(登録商標)49、繊維径:12  $\mu$ m、引張強度:3.0 G P a、引張弾性率:112 G P a)に代えると共に繊維目付を54 g/m<sup>2</sup>にした以外は、実施例1に記載される方法と同様の方法で繊維強化樹脂成形体を得た。

[0044] 得られた繊維強化樹脂成形体の厚みは62  $\mu$ mであり、アラミド繊維の体積含有率は56.3%であった。また、5 G H z ~ 80 G H zの周波数帯に

おける繊維強化樹脂成形体の誘電率および誘電正接ならびに繊維強化樹脂成形体の引張物性を実施例1に記載される方法と同様の方法で測定したところ、5GHzの周波数における誘電率は3.63であり、10GHzの周波数における誘電率は3.63であり、20GHzの周波数における誘電率は3.58であり、28GHzの周波数における誘電率は3.56であった。また、5GHzの周波数における誘電正接は0.0201であり、10GHzの周波数における誘電正接は0.0210であり、20GHzの周波数における誘電正接は0.0226であり、28GHzの周波数における誘電正接は0.0223であった。なお、40GHz以上の周波数帯における誘電率および誘電正接は、損失が大きいため測定することができなかった。また、繊維強化樹脂成形体の引張強度は1.53GPaであり、引張弾性率は54.1GPaであった。

[0045] (比較例2)

ポリイミド繊維をガラス繊維（日東紡績株式会社製のECG150 1/0）に代えた以外は、実施例1に記載される方法と同様の方法で繊維強化樹脂成形体を得た。

[0046] 得られた繊維強化樹脂成形体の厚みは70 $\mu$ mであり、ガラス繊維の体積含有率は55.7%であった。また、5GHz～80GHzの周波数帯における繊維強化樹脂成形体の誘電率および誘電正接ならびに繊維強化樹脂成形体の引張物性を実施例1に記載される方法と同様の方法で測定したところ、5GHzの周波数における誘電率は4.85であり、10GHzの周波数における誘電率は5.03であり、20GHzの周波数における誘電率は4.77であり、28GHzの周波数における誘電率は4.78であり、40GHzの周波数における誘電率は4.74であった。また、5GHzの周波数における誘電正接は0.0148であり、10GHzの周波数における誘電正接は0.0162であり、20GHzの周波数における誘電正接は0.0199であり、28GHzの周波数における誘電正接は0.0238であり、40GHzの周波数における誘電正接は0.0221であった。また、6

0 GHz 以上の周波数帯における誘電率および誘電正接は、損失が大きいため、測定することができなかった。また、繊維強化樹脂成形体の引張強度は 1.42 GPa であり、引張弾性率は 33.2 GPa であった。

[0047] (比較例 3)

UD プリプレグを、一方向材である炭素繊維プリプレグ (東レ株式会社製の P3252S-10) に代えた以外は、実施例 1 に記載される方法と同様の方法で繊維強化樹脂成形体を得た。

[0048] 得られた繊維強化樹脂成形体の厚みは 94  $\mu\text{m}$  であり、炭素繊維の体積含有率は 59% であった。また、5 GHz ~ 80 GHz の周波数帯における繊維強化樹脂成形体の誘電率および誘電正接を実施例 1 に記載される方法と同様の方法で測定しようと試みたが、繊維強化樹脂成形体が導電体であったため誘電率および誘電正接を測定することはできなかった。また、繊維強化樹脂成形体の引張物性を実施例 1 に記載される方法と同様の方法で測定したところ、引張強度は 2.46 GPa であり、引張弾性率は 117.2 GPa であった。

## 請求の範囲

- [請求項1]           ポリイミド繊維と、  
樹脂と  
を備え、  
5 GHz 以上 80 GHz 以下の周波数帯における誘電率が 4.0 以下であり、  
前記周波数帯における誘電正接が 0.02 以下である  
繊維強化樹脂成形体。
- [請求項2]           引張強度が 0.5 GPa 以上 2.5 GPa の範囲内であり、  
引張弾性率が 25 GPa 以上 120 GPa 以下の範囲内である  
請求項 1 に記載の繊維強化樹脂成形体。
- [請求項3]           前記ポリイミド繊維は、芳香族テトラカルボン酸二無水物と芳香族  
ジアミンの重合反応により得られ、  
前記芳香族テトラカルボン酸二無水物は、ピロメリット酸二無水物  
および 3, 3', 4, 4' -ビフェニルテトラカルボン酸二無水物の  
少なくとも一方であり、  
前記芳香族ジアミンは、4, 4' -ジアミノジフェニルエーテルお  
よびパラフェニレンジアミンの少なくとも一方である  
請求項 1 または 2 に記載の繊維強化樹脂成形体。
- [請求項4]           前記ポリイミド繊維の引張弾性率は 100 GPa 以上 170 GPa  
以下の範囲内である  
請求項 1 または 2 に記載の繊維強化樹脂成形体。
- [請求項5]           請求項 1 または 2 に記載の繊維強化樹脂成形体を製造するために使  
用される、ポリイミド繊維と、樹脂もしくは樹脂前駆体とを備えるプ  
リプレグ。

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/021355

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
C08J 5/04(2006.01)i FI: C08J5/04 CEZ		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C08J5/04		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2023 Registered utility model specifications of Japan 1996-2023 Published registered utility model applications of Japan 1994-2023		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2004-324007 A (UNITIKA LTD) 18 November 2004 (2004-11-18) claims, paragraphs [0056]-[0065], examples, table 2	1, 5
Y		1-5
X	JP 2017-186718 A (IST CORP) 12 October 2017 (2017-10-12) claims, paragraphs [0002]-[0003], [0037], [0039], [0070]-[0072], [0144], examples, table 2	1-5
Y		1-5
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
<p>* Special categories of cited documents:</p> <p>“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>“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)</p> <p>“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“&amp;” document member of the same patent family</p>		
Date of the actual completion of the international search <b>01 August 2023</b>		Date of mailing of the international search report <b>15 August 2023</b>
Name and mailing address of the ISA/JP <b>Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan</b>		Authorized officer  Telephone No.

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

International application No. <b>PCT/JP2023/021355</b>
---

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2004-324007	A 18 November 2004	(Family: none)	
JP 2017-186718	A 12 October 2017	US 2017/0283990 A1 claims, paragraphs [0002]- [0003], [0039], [0042], [0074]- [0076], examples, table 2	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08J 5/04(2006.01)i FI: C08J5/04 CEZ		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） C08J5/04 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2023年 日本国実用新案登録公報 1996-2023年 日本国登録実用新案公報 1994-2023年		
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2004-324007 A (ユニチカ株式会社) 18.11.2004 (2004-11-18) 請求の範囲,段落0056-0065,実施例,表2	1,5
Y		1-5
X	JP 2017-186718 A (株式会社アイ. エス. テイ) 12.10.2017 (2017-10-12) 請求の範囲,段落0002-0003, 0037, 0039, 0070-0072, 0144, 実施例, 表2	1-5
Y		1-5
<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 “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 01.08.2023	国際調査報告の発送日 15.08.2023	
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 加賀 直人 4F 9843 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/JP2023/021355

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2004-324007 A	18.11.2004	(ファミリーなし)	
JP 2017-186718 A	12.10.2017	US 2017/0283990 A1 請求の範囲, 段落 0002-0003, 0039, 0042, 0074-0076, 実施例, 表2	