(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2020年10月1日(01.10.2020)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2020/195828 A1

(51) 国際特許分類:
B29C 44/12 (2006.01) *B29K 105/04* (2006.01)
B29C 44/32 (2006.01) *B29L 9/00* (2006.01)
B32B 5/24 (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2020/010531

(22) 国際出願日： 2020年3月11日(11.03.2020)

(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 2019-061684 2019年3月27日(27.03.2019) JP

(71) 出願人: 倉敷紡績株式会社 (KURASHIKI BOSEKI KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒7100054 岡山県倉敷市本町７番１号 Okayama (JP).

(72) 発明者: 田中 忠玄 (TANAKA, Tadaharu); 〒5418581 大阪府大阪市中央区久太郎町２丁目４番３１号 倉敷紡績株式会社 大阪本社内 Osaka (JP). 平石 陽一 (HIRAISHI, Yoichi); 〒5720823 大阪府寝屋川市下木田町１４番５号 倉敷紡績株式会社 寝屋川工場内 Osaka (JP). 中村 崇 (NAKAMURA, Takashi); 〒5418581 大阪府大阪市中央区久太郎町２丁目４番３１号 倉敷紡績株式会社 大阪本社内 Osaka (JP). 中明 裕太 (NAKAME, Yuta); 〒5418581 大阪府大阪市中央区久太郎町２丁目４番３１号 倉敷紡績株式会社 大阪本社内 Osaka (JP). 駒井 優貴 (KOMAI, Yuki); 〒5418581 大阪府大阪市中央区久太郎町２丁目４番３１号 倉敷紡績株式会社 大阪本社内 Osaka (JP).

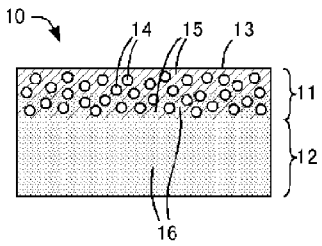
(74) 代理人: 河原 哲郎 (KAWAHARA, Tetsuro); 〒6048156 京都府京都市中京区室町通蛸薬師下る山伏山町５５８ 三洋室町ビル３０５ 河原特許事務所 Kyoto (JP).

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

(54) **Title:** FIBER-REINFORCED RESIN COMPLEX, AND METHOD FOR PRODUCING FIBER-REINFORCED RESIN COMPLEX

(54) 発明の名称： 繊維強化樹脂複合体、および繊維強化樹脂複合体の製造方法



(57) **Abstract:** [Problem] To provide a fiber-reinforced resin complex demonstrating high peeling strength between a fiber-reinforced resin and a resin foam. [Solution] A fiber-reinforced resin complex (10) having a surface skin (11) and a resin foam (12), said fiber-reinforced resin complex (10) characterized in that: the resin foam is made of a foamed resin (16); and the surface skin includes a fiber sheet (14), a thermoplastic matrix resin (15), and the foamed resin (16) that is continuous from the resin foam and is impregnated into the surface skin.

(57) 要約： ［課題］繊維強化樹脂と樹脂発泡体の間の剥離強度が高い繊維強化樹脂複合体を提供する。 ［解決手段］表皮（１１）と樹脂発泡体（１２）とを有する繊維強化樹脂複合体（１０）であって、前記樹脂発泡体が発泡樹脂（１６）からなり、前記表皮が繊維シート（１４）、熱可塑性のマトリクス樹脂（１５）、および前記樹脂発泡体から連続して該表皮中に含浸した前記発泡樹脂（１６）を含むことを特徴とする繊維強化樹脂複合体（１０）。

WO 2020/195828 A1

添付公開書類：

一　国際調査報告（条約第21条(3)）

明　細　書

発明の名称 ：

繊維強化樹脂複合体、および繊維強化樹脂複合体の製造方法

技術分野

[0001]　本発明は、繊維強化樹脂と樹脂発泡体が一体化された複合体に関する。

背景技術

[0002]　炭素繊維などで樹脂を強化した繊維強化樹脂（ＦＲＰ）が、軽量で高い機械的強度を有する材料として知られている。一般に、マトリクスとなる樹脂に熱硬化性樹脂を用いるものは比強度に優れることが多く、マトリクスとなる樹脂に熱可塑性樹脂を用いるものは靭性や耐衝撃性に優れることが多い。最近では、高靭性を求めて、後者の開発が盛んに行われている。なお、マトリクス樹脂に熱可塑性樹脂を用いるものは、熱硬化性樹脂を用いるものと区別して、特に繊維強化熱可塑性樹脂（ＦＲＴＰ）と呼ばれることがある。

[0003]　また、強度に優れる繊維強化樹脂を表皮とし、より軽量な樹脂発泡体を芯材として、両者を一体化した複合体が様々な用途に使用されている。しかし、かかる複合体には、繊維強化樹脂と樹脂発泡体の接着性に問題があり、繊維強化樹脂と樹脂発泡体の界面で剥離する懸念があった。

[0004]　繊維強化樹脂と樹脂発泡体を一体化することに関し、特許文献１には、炭素繊維からなる綾織の織物等に未硬化のエポキシ樹脂または熱可塑性樹脂であるポリアミド６樹脂等を含浸させたプリプレグの間にポリアミド６等の発泡シートを挟んで加熱圧着した樹脂複合体が記載されている。特許文献２には、炭素繊維からなる綾織の織物等に未硬化のエポキシ樹脂を含浸させたプリプレグの間にアクリル樹脂等の発泡シートを挟んで加熱圧着した樹脂複合体が記載されている。特許文献３には、一方向引き揃え炭素繊維にエポキシ樹脂を含浸したプリプレグの間にポリプロピレン発泡体を挟んで加熱圧着することにより、繊維強化樹脂製サンドイッチパネルを製造する方法が記載されている。特許文献１～３はいずれも、マトリクスとなる樹脂として熱可塑

性樹脂または熱硬化性樹脂を用いることができ、好ましくは熱硬化性樹脂を用いるとする。特許文献２および３の実施例はすべて、マトリクスとなる樹脂として熱硬化性樹脂を用いている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：再公表特許２０１６－５２６４５号

特許文献2：特開２０１４－２０８４１８号公報

特許文献3：特開２０１２－７６４６４号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 特許文献１～３に記載された複合体によれば、プリプレグと樹脂発泡体とを加熱圧着することにより、繊維強化樹脂と樹脂発泡体の剥離強度は改善すると考えられる。しかし、成形された樹脂発泡体を出発材料として用いる限り、繊維強化樹脂と樹脂発泡体の間には明瞭な界面が残り、剥離強度に懸念があった。

[0007] また、繊維強化樹脂のマトリクスに熱可塑性樹脂を採用する場合は、プリプレグが硬く、プリプレグを変形させた状態に保つことが難しいため、曲面を有する複合体の成形が難しかった。

[0008] 本発明は、上記を考慮してなされたものであり、繊維強化樹脂と樹脂発泡体の剥離強度が高い繊維強化樹脂複合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

[0009] 本発明の繊維強化樹脂複合体は、表皮と樹脂発泡体とを有する繊維強化樹脂複合体であって、前記樹脂発泡体が発泡樹脂からなり、前記表皮が繊維シートと、熱可塑性のマトリクス樹脂と、前記樹脂発泡体から連続して該表皮中に含浸した前記発泡樹脂とを含むことを特徴とする。この構成によって、表皮と樹脂発泡体が強く一体化され、表皮と樹脂発泡体の間に高い剥離強度が得られる。

[0010] 好ましくは、前記繊維シートが連続繊維を一方向に引き揃えたシートまたは織布である。この構成によって、繊維強化樹脂複合体の製造が容易になる。

[0011] 好ましくは、前記繊維シートが炭素繊維からなる。この構成によって、より軽量で、より高い強度が得られる。

[0012] 好ましくは、前記マトリクス樹脂が、フェノキシ樹脂、ポリアミド６、ポリアミド１２、ポリプロピレン、ポリカーボネートからなる群から選択される樹脂である。

[0013] 好ましくは、前記発泡樹脂がウレタン樹脂であり、前記樹脂発泡体が硬質ウレタンフォームである。この構成によって、樹脂発泡体の硬度、反発性等に関する設計の自由度が広がる。

[0014] 本発明の他の繊維強化樹脂複合体は、連続繊維からなる繊維シートに熱可塑性のマトリクス樹脂を部分含浸した基材と、発泡樹脂からなる樹脂発泡体とを一体化させた繊維強化樹脂複合体である。ここで、繊維シートに熱可塑性のマトリクス樹脂を部分含浸した基材とは、マトリクス樹脂が繊維シートの全体に含浸するのではなく、繊維シート中に空隙を残した状態にあるものをいう。この構成によって、繊維シートを含む表皮部分と樹脂発泡体とが強く一体化され、表皮部分と樹脂発泡体の間に高い剥離強度が得られる。

[0015] 本発明のさらに他の繊維強化樹脂複合体は、連続繊維からなる繊維シートの表面に熱可塑性のマトリクス樹脂を融着した基材と、発泡樹脂からなる樹脂発泡体とを一体化させた繊維強化樹脂複合体である。ここで、繊維シートの表面に熱可塑性のマトリクス樹脂を融着した基材とは、マトリクス樹脂が繊維シートを構成する繊維間に侵入するには至らず、繊維シートの外面に留まっているものをいう。この構成によって、繊維シートを含む表皮部分と樹脂発泡体とが強く一体化され、表皮部分と樹脂発泡体の間に高い剥離強度が得られる。

[0016] 本発明の繊維強化樹脂複合体の製造方法は、繊維シートに熱可塑性のマトリクス樹脂を部分含浸した基材、または繊維シートの表面に熱可塑性のマト

リクス樹脂を融着した基材を準備する工程と、前記基材の片面に発泡樹脂の原料組成物を供給する工程と、前記原料組成物を発泡させて、前記発泡樹脂からなる樹脂発泡体を形成しながら該発泡樹脂を前記繊維シートの一部に含浸させて、該樹脂発泡体と前記基材とを一体化させる工程とを有する。

[0017] この方法によって、基材と樹脂発泡体とが強く一体化され、繊維シートを含む表皮部分と樹脂発泡体の間に高い剥離強度が得られる。

[0018] 上記製造方法において、好ましくは、前記原料組成物を供給する工程が、金型のキャビティ面に前記基材を配置し、前記原料組成物を前記金型のキャビティ内に投入する工程である。これにより、平板状の繊維強化樹脂複合体を製造することもできるし、金型のキャビティ面を曲面に形成すれば、曲面を有する板状の繊維強化樹脂複合体を製造することもできる。

[0019] あるいは、上記製造方法において、好ましくは、前記原料組成物を供給する工程が、ダブルベルト成形機の第１コンベアベルトおよび／または第２コンベアベルトに沿って前記基材を供給しながら、前記原料組成物を前記第１コンベアベルトと前記第２コンベアベルトの間に投入する工程である。これにより、平板状の複合体を効率良く製造できる。

発明の効果

[0020] 本発明のいずれかの繊維強化樹脂複合体によれば、繊維シートを含む表皮と樹脂発泡体との間に明瞭な界面がなく、発泡樹脂が樹脂発泡体から連続して繊維シート中に侵入している。この発泡樹脂によるアンカー効果によって、表皮と樹脂発泡体とが強く一体化され、表皮と樹脂発泡体の間に高い剥離強度が得られる。

[0021] 本発明の繊維強化樹脂複合体の製造方法によれば、繊維シートに熱可塑性のマトリクス樹脂が部分含浸した基材、または繊維シートの表面に熱可塑性のマトリクス樹脂が融着した基材を用いるので、原料組成物を発泡させる工程において、発泡樹脂が樹脂発泡体を形成すると同時に繊維シート中に侵入する。その結果、発泡樹脂によるアンカー効果によって、繊維シートを含む表皮部分と基材と樹脂発泡体とが強く一体化され、繊維シートを含む表皮部

分と樹脂発泡体の間の剥離強度の高い繊維強化樹脂複合体が得られる。

図面の簡単な説明

[0022] [図1]一実施形態の繊維強化樹脂複合体の断面構造を示す図である。

[図2]一実施形態の繊維強化樹脂複合体のダブルベルト成形法を説明するための図である。

発明を実施するための形態

[0023] 図１を参照して、本実施形態の繊維強化樹脂複合体１０は、表皮１１と、樹脂発泡体１２とからなる。

[0024] 樹脂発泡体１２は、発泡した発泡樹脂１６からなる。樹脂発泡体１２の厚さは、要求される性能に応じて決定すればよく、特に限定されない。樹脂発泡体１２の厚さは典型的には５～２００ｍｍである。

[0025] 樹脂発泡体１２を構成する発泡樹脂１６としては、例えば、ウレタン樹脂、ＡＢＳ樹脂、オレフィン系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリスチレン樹脂、アクリル系樹脂を用いることができる。発泡樹脂１６は、好ましくはウレタン樹脂である。ウレタン樹脂の発泡体は、原料成分の配合を変えることで、硬度、弾性、反発性、吸音性等の特性を広く調整できるので、繊維強化樹脂複合体１０の製品設計の自由度が広がるからである。また、樹脂発泡体１２は好ましくは独立気泡構造を有する硬質ウレタンフォームである。これにより、硬度に優れた表皮１１が得られるからである。硬質ウレタンフォームの独立気泡率は、好ましくは８０％以上、より好ましくは９０％以上である。また、樹脂発泡体１２の発泡倍率は好ましくは２５倍以上である。

[0026] 表皮１１は、繊維シート１４と熱可塑性樹脂であるマトリクス樹脂１５と発泡樹脂１６を含む繊維強化樹脂である。表皮１１は繊維強化樹脂複合体１０の一表面１３を構成している。発泡樹脂１６は表皮１１の樹脂発泡体１２との界面近傍を含む一部または全体に含浸している。発泡樹脂１６が表皮１１全体に含浸している場合には、発泡樹脂が表面１３にまで到達していてもよい。発泡樹脂１６は樹脂発泡体１２から連続して繊維シート１４中に含浸している。言い換えると、発泡樹脂１６が繊維シート１４中に含浸した部分

と樹脂発泡体１２とは、一体として同時に形成されている。

[0027] 表皮１１は、図１に示したように繊維強化樹脂複合体１０の片面に形成されていてもよいし、繊維強化樹脂複合体１０の両面に形成されていてもよい。

[0028] 表皮１１の厚さは、要求される性能に応じて決定すればよく、特に限定されない。表皮１１の厚さとは、マトリクス樹脂１５の存在する部分の厚さである。表皮１１の厚さは典型的には０．０５～１ｍｍである。

[0029] 表皮１１に含まれる繊維シート１４は、例えば、炭素繊維、ガラス繊維、アルミナ繊維などのセラミクス繊維、スチール繊維などの金属繊維から構成される。繊維シート１４は、好ましくは炭素繊維からなる。より軽量で、より高い強度が得られるからである。

[0030] 繊維シート１４は、好ましくは連続繊維からなる。表皮１１の強度を高くできるからである。繊維シート１４が連続繊維からなる場合、繊維シート１４は不織布であってもよいが、好ましくは連続繊維を一方向に引き揃えたシートまたは織布である。繊維強化樹脂複合体１０を製造する際に発泡樹脂１６が繊維シート１４に含浸しやすい。繊維シート１４が連続繊維を一方向に引き揃えたシートである場合、繊維の長さ方向が交差するように、複数の繊維シートを重ね合わせて用いてもよい。

[0031] 表皮１１のマトリクス樹脂１５は熱可塑性樹脂である。マトリクス樹脂１５としては、オレフィン系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリアミド系樹脂、アクリル系樹脂、フェノキシ樹脂、サルファイド系樹脂、ポリカーボネート系樹脂、ポリプロピレン系樹脂などの熱可塑性樹脂を単独で、または複数混合して用いることができる。マトリクス樹脂１５は、好ましくは、フェノキシ樹脂、ポリアミド６、ポリアミド１２、ポリプロピレン、ポリカーボネートからなる群から選択される樹脂である。

[0032] 表皮１１は、繊維シート１４、マトリクス樹脂１５および発泡樹脂１６からなる。繊維シート１４の繊維の間はマトリクス樹脂１５および発泡樹脂１６によって埋められている。表皮１１に占める繊維シート１４の割合（繊維

体積含有率）、すなわち、繊維／（繊維＋マトリクス樹脂＋発泡樹脂）は、好ましくは１５～４５体積％であり、より好ましくは２０～４０体積％である。

[0033] 表皮１１中で、発泡樹脂１６が繊維シート１４に含浸した部分の厚さ（以下、「発泡樹脂の侵入厚さ」という）は、繊維間に存在する樹脂成分に占める発泡樹脂１６の割合、すなわち、発泡樹脂／（マトリクス樹脂＋発泡樹脂）が４０体積％以上である部分の厚さと定義できる。発泡樹脂の侵入厚さは、好ましくは０．１ｍｍ以上または繊維シート１４の厚さの半分以上である。発泡樹脂の侵入厚さが大きいほど、表皮１１と樹脂発泡体１２の間の剥離強度を高められるからである。一方、発泡樹脂の侵入厚さは、好ましくは１．０ｍｍ以下である。発泡樹脂の侵入厚さをこれ以上厚くしても剥離強度のさらなる向上が得られないからである。

[0034] 表皮１１中の成分の構成比や発泡樹脂１６の侵入厚さは、製造に用いる基材（セミプレグ）によって変化する。本実施形態の繊維強化樹脂複合体１０は、連続繊維からなる繊維シート１４に熱可塑性のマトリクス樹脂１５を部分含浸した基材と、発泡樹脂１６からなる樹脂発泡体１２とを一体化させたものとすることができる。あるいは、繊維強化樹脂複合体１０は、連続繊維からなる繊維シート１４の表面に熱可塑性のマトリクス樹脂１５を融着した基材と、発泡樹脂１６からなる樹脂発泡体１２とを一体化させたものとすることができる。基材の詳細は後述する。

[0035] 次に、本実施形態の繊維強化樹脂複合体１０の製造方法を説明する。

[0036] 本実施形態の製造方法は、繊維シート１４と熱可塑性のマトリクス樹脂１５を含む基材を準備する工程と、基材の片面に発泡樹脂１６の原料組成物を供給する工程と、原料組成物を発泡させる工程からなる。

[0037] 繊維シート１４と熱可塑性のマトリクス樹脂１５を含む基材としては、例えば、繊維シート１４に熱可塑性のマトリクス樹脂１５を部分含浸した基材を用いることができる。繊維シートにマトリクス樹脂が部分含浸した基材とは、マトリクス樹脂１５が繊維シート１４の全体に含浸するのではなく、繊

維シート１４中に空隙を残した状態で存在する基材をいう。このような基材は、マトリクス樹脂が繊維シートに完全に含浸したプリプレグに対して、セミプレグと呼ばれる。繊維シートにマトリクス樹脂が部分含浸した基材を以下において「部分含浸セミプレグ」という。

[0038] 部分含浸セミプレグは、マトリクス樹脂１５の粉末を繊維シート１４の片面または両面に付着させ、加熱により軟化または融解させて繊維シート１４に部分的に含浸させることによって製造できる。あるいは、マトリクス樹脂１５のフィルムを繊維シート１４の片面または両面に貼り付け、加熱により軟化または融解させて繊維シートに部分的に含浸させることによって製造してもよい。このとき、マトリクス樹脂１５が繊維シート１４の全体に含浸するのではなく、繊維シート１４中に空隙を残した状態となるように製造される。繊維間に残された空隙により、発泡樹脂１６を発泡させる工程で、発泡樹脂１６が繊維シート１４中に含浸できる。繊維シート１４とマトリクス樹脂１５の体積比は、好ましくは４０：６０～６０：４０である。

[0039] また、繊維シート１４と熱可塑性のマトリクス樹脂１５を含む基材として、繊維シート１４の片側または両側の表面に熱可塑性のマトリクス樹脂１５を融着した基材を用いてもよい。繊維シートの表面に熱可塑性のマトリクス樹脂を融着した基材とは、マトリクス樹脂１５が繊維シート１４を構成する繊維間に侵入するには至らず、繊維シート１４の外面に留まっているものをいう。したがって、繊維シート１４の内部は空隙が完全に残された状態にある。このような基材もセミプレグと呼ばれる。繊維シートの表面にマトリクス樹脂を融着した基材を以下において「表面融着セミプレグ」という。

[0040] 表面融着セミプレグは、部分含浸セミプレグと同様の方法で製造できる。ただし、マトリクス樹脂１５をより低温で、繊維シート１４を構成する繊維間には侵入しない程度に軟化させて、繊維シート１４の表面に融着させる。繊維シート１４とマトリクス樹脂１５の体積比は、好ましくは４０：６０～６０：４０である。

[0041] 上記各種のセミプレグのうち、好ましくは、表面にマトリクス樹脂の開口

が形成され、セミプレグを厚さ方向に貫通する連続した空隙が存在するものを用いる。具体的には、繊維シート１４の表面にマトリクス樹脂の粉末を付着させて製造したセミプレグを用いるのが好ましい。発泡樹脂１６を発泡させる工程で、ガスがセミプレグを透過することで、発泡樹脂１６が繊維シート１４中に含浸しやすいからである。また、部分含浸セミプレグと表面融着セミプレグを比較すると、表面融着セミプレグを用いるのが好ましい。繊維シート１４内部の空隙が多く、発泡樹脂１６を発泡させる工程で、発泡樹脂１６が繊維シート１４中に含浸しやすいからである。

[0042] 繊維シート１４としては、前述のとおり、連続繊維を一方向に引き揃えたシートまたは織布を用いることが好ましい。連続繊維を一方向に引き揃えたシートは、一方向連続繊維束を開繊することによって得られる。連続繊維を一方向に引き揃えたシートを用いた表面融着セミプレグでは、繊維シート１４がばらけやすいので、繊維シート１４の表面にかつ繊維シート１４を横切る方向にブリッジファイバーを配してもよい。ブリッジファイバーとしては、繊維シート１４本体と同じ繊維を用いることができる。ブリッジファイバーの密度は、好ましくは、繊維シート１４の面積１０ｍｍ^{2}あたり平均２５～１５０本である。

[0043] 発泡樹脂１６の原料組成物は公知のものを用いることができる。例えば、発泡樹脂１６がウレタン樹脂である場合は、原料組成物としてイソシアネートとポリオールの混合液を用いることができる。この原料組成物をセミプレグの片面に供給する。セミプレグの原料組成物を供給した側に樹脂発泡体１２が形成され、その反対側が製造される繊維強化樹脂複合体１０の表面１３となる。セミプレグを製造する際にマトリクス樹脂１５の粉末を付着させた面は、繊維に対するマトリクス樹脂１５の割合が高くなっているので、その面が繊維強化樹脂複合体１０の表面１３となるようにすれば、より緻密に表面１３が得られる。

[0044] 原料組成物を発泡させる工程において、発泡樹脂１６は樹脂発泡体１２を形成しながら、発泡圧によって隣接するセミプレグの繊維シート１４に含浸

する。繊維シート１４の繊維間がマトリクス樹脂１５および発泡樹脂１６で埋められて、硬い表皮１１が形成される。また、発泡樹脂１６が樹脂発泡体１２から連続して繊維シート１４中に含浸するので、表皮１１と樹脂発泡体１２とが強く一体化され、表皮１１と樹脂発泡体１２の間に高い剥離強度が得られる。

[0045] マトリクス樹脂１５の軟化温度が十分に低い場合には、外部からの加熱手段や、発泡が発熱反応である場合はその反応熱によってマトリクス樹脂１５が軟化温度以上に加熱されて軟化または融解して、繊維シート１４への含浸がさらに進行する。その場合、セミプレグの樹脂発泡体１２と反対側の表面部分では繊維シート１４にマトリクス樹脂１５が完全に含浸し、繊維シート１４とマトリクス樹脂１５のみからなる表面１３が得られる。

[0046] 原料組成物を発泡させる工程は、繊維強化樹脂の表皮１１と樹脂発泡体１２を一体化して、繊維強化樹脂複合体１０の全体を成形する工程でもある。この工程は、例えば、モールド成形法やダブルベルト成形法によって実施できる。

[0047] モールド成形法では、金型内で発泡樹脂１６を発泡させる。金型の下型のおよび上型のいずれか一方または両方のキャビティ面に沿わせて、セミプレグを固定する。金型のキャビティ内に発泡樹脂１６の原料組成物を投入し、金型を適当な温度に保持して、原料組成物を発泡させる。モールド成形法によれば、金型のキャビティ面を曲面に形成することにより、曲面を有する繊維強化樹脂複合体１０を製造できる。

[0048] ダブルベルト成形法では、一対のコンベアベルト間で樹脂を発泡させる。図２を参照して、ダブルベルト方式の成形機３０は、下コンベアベルト３１と上コンベアベルト３２を備え、それぞれのコンベアベルトに沿って面材３３、３４が供給される。このとき、面材３３、３４の一方または両方としてセミプレグを供給する。原料組成物が原料タンク３５から混合・撹拌ノズル３６を経て面材３３上に吐出されることにより、下コンベアベルト３１と上コンベアベルト３２の間に投入される。原料組成物はコンベアベルト３１、

３２の動きに従って図２の右方向へ移動しながら発泡し、コンベアベルト３１、３２に挟まれて、面材３３、３４と一体となって複合体に成形される。ダブルベルト成形法によれば、平板状の繊維強化樹脂複合体１０を効率良く製造できる。

[0049] 本実施形態の製造方法では、熱可塑性樹脂をマトリクス樹脂とするセミプレグを出発材料として用いる。セミプレグの繊維シート１４中には空隙が残されているため、発泡樹脂１６が繊維シート１４中に含浸できる。また、熱可塑性樹脂を繊維シートに完全に含浸させたプリプレグと異なり、セミプレグは柔軟性を有するため、モールド成形法において、金型の曲面に沿わせて固定することが容易で、曲面を有する繊維強化樹脂複合体１０の製造が容易である。

実施例

[0050] 実施例１の繊維強化樹脂複合体を次の方法によって作製した。セミプレグとして、炭素繊維の一方向連続繊維束を開繊したシート（目付：５０ｇ／ｍ^2）の両面にフェノキシ樹脂（日鉄ケミカル＆マテリアル株式会社、ＹＤ－１０、Ｔｇ：８４℃）の粉体を塗布して、加熱して融着させた表面融着セミプレグを用いた。フェノキシ樹脂の割合は、繊維シートとフェノキシ樹脂の合計を１００％としたときの体積分率が５０％であった。発泡樹脂としてはウレタン樹脂を用いた。縦４００ｍｍ×横４００ｍｍ×キャビティ厚さ５０ｍｍの下型の底面にセミプレグをセットし、発泡樹脂の原料組成物として、イソシアネート（東ソー株式会社、ＭＲ－２００）と、ポリオール（旭硝子株式会社、ＥＬ－４５０ＥＤ：５０％、三洋化成工業株式会社、ＨＳ－２０９：５０％）の２液を混合して金型に注入した。ポリオールには難燃剤、発泡剤、整泡剤および触媒を配合した。蓋（上型）を閉じて、金型の温度を４０℃に保持して１０分間発泡させた後、脱型した。得られた樹脂発泡体は、密度４３ｋｇ／ｍ^3、発泡倍率３０倍、独立気泡構造を有する硬質ウレタンフォームであった。以上により、実施例１の繊維強化樹脂複合体が得られた。この繊維強化樹脂複合体は、平板状で、硬質ウレタンフォームの片面に繊維シ

ートとフェノキシ樹脂を含む表皮が一体化されたものである。

[0051] 比較例１の繊維強化樹脂複合体を次の方法によって作製した。実施例１で用いたセミプレグを加熱して、フェノキシ樹脂を繊維シートに完全に含浸したプリプレグを作製した。このプリプレグを用いて、以後は実施例１と同じ方法で、比較例１の繊維強化樹脂複合体を作製した。

[0052] 実施例１および比較例１の繊維強化樹脂複合体はいずれも、硬く、曲げ剛性の高い表面を有していた。実施例１の繊維強化樹脂複合体では、ウレタン樹脂が繊維シートを通過して表面に達していることが観察できた。

[0053] 実施例１および比較例１の繊維強化樹脂複合体について、表皮と樹脂発泡体の剥離強度を、接着剤に対するＪＩＳＫ６８５４－１に準拠して測定した。繊維強化樹脂複合体から幅２５ｍｍのサンプルを１０本切り出し、試験速度１００ｍｍ／分で、９０度剥離試験を行った。結果を表１に示す。表１中、凸最大点は試験中の剥離力のピークの最大値、凸点平均は同じくピークの平均値、平均は試験中の剥離力の平均値を意味する。

[0054] [表1]

実施例１	剥離力（N/25mm）			比較例１	剥離力（N/25mm）		
	凸最大点	凸点平均	平均		凸最大点	凸点平均	平均
1	9.48	6.53	5.72	1	7.96	4.36	3.36
2	8.33	5.70	4.53	2	6.26	3.39	2.64
3	9.73	6.68	5.53	3	6.54	3.90	2.88
4	7.53	4.85	3.03	4	5.80	3.15	2.44
5	10.00	5.54	3.61	5	5.60	3.15	2.66
6	9.78	5.16	3.33	6	7.50	3.75	2.87
7	10.86	5.52	3.45	7	7.42	3.33	2.68
8	11.54	5.69	4.55	8	6.90	3.45	2.92
9	9.40	6.63	5.76	9	6.05	4.22	2.99
10	9.52	6.09	5.32	10	7.27	4.61	3.81
平均	9.62	5.84	4.48	平均	6.73	3.73	2.92
標準偏差	1.13	0.63	1.07	標準偏差	0.80	0.52	0.40

[0055] 表１から、実施例１の方が比較例１より剥離強度が大きいことが確認できた。破壊状況は、実施例１では１０回の測定すべてで樹脂発泡体の母材が破

壊し、比較例１では１０回の測定すべてで表皮と樹脂発泡体の界面で剥離した。

[0056] 次に、実施例２の繊維強化樹脂複合体を次の方法によって作製した。実施例１と同じセミプレグ、発泡樹脂、原料組成物を用い、曲面に形成した上型および下型のキャビティ面にセミプレグを固定して、実施例１と同じ方法でウレタン樹脂を発泡させた。これにより、波板状で、硬質ウレタンフォームの両面に上記繊維シートとフェノキシ樹脂を含む表皮が一体化された、実施例２の繊維強化樹脂複合体が得られた。

[0057] この方法により、曲面を有する複合体が製造できることを確認した。実施例２の繊維強化樹脂複合体でも、実施例１と同様に、ウレタン樹脂が繊維シートを通過して表面に達していることが観察できた。

符号の説明

[0058] １０ 繊維強化樹脂複合体

１１ 表皮（繊維強化樹脂）

１２ 樹脂発泡体

１３ 表面

１４ 繊維シート

１５ マトリクス樹脂

１６ 発泡樹脂

３０ コンベアベルト方式の成形機

３１ 下コンベアベルト（第１コンベアベルト）

３２ 上コンベアベルト（第２コンベアベルト）

３３、３４ 面材

３５ 原料タンク

３６ 混合・撹拌ノズル

請求の範囲

[請求項1] 表皮と樹脂発泡体とを有する繊維強化樹脂複合体であって、

前記樹脂発泡体が発泡樹脂からなり、

前記表皮が繊維シート、熱可塑性のマトリクス樹脂、および前記樹脂発泡体から連続して該表皮中に含浸した前記発泡樹脂を含むことを特徴とする、

繊維強化樹脂複合体。

[請求項2] 前記繊維シートが連続繊維を一方向に引き揃えたシートまたは織布である、

請求項１に記載の繊維強化樹脂複合体。

[請求項3] 前記繊維シートが炭素繊維からなる、

請求項１または２に記載の繊維強化樹脂複合体。

[請求項4] 前記マトリクス樹脂が、フェノキシ樹脂、ポリアミド６、ポリアミド１２、ポリプロピレン、ポリカーボネートからなる群から選択される樹脂である、

請求項１～３のいずれか一項に記載の繊維強化樹脂複合体。

[請求項5] 前記発泡樹脂がウレタン樹脂であり、前記樹脂発泡体が硬質ウレタンフォームである、

請求項１～４のいずれか一項に記載の繊維強化樹脂複合体。

[請求項6] 連続繊維からなる繊維シートに熱可塑性のマトリクス樹脂を部分含浸した基材と、発泡樹脂からなる樹脂発泡体とを一体化させた繊維強化樹脂複合体。

[請求項7] 連続繊維からなる繊維シートの表面に熱可塑性のマトリクス樹脂を融着した基材と、発泡樹脂からなる樹脂発泡体とを一体化させた繊維強化樹脂複合体。

[請求項8] 繊維シートに熱可塑性のマトリクス樹脂を部分含浸した基材、または繊維シートの表面に熱可塑性のマトリクス樹脂を融着した基材を準備する工程と、

前記基材の片面に発泡樹脂の原料組成物を供給する工程と、

前記原料組成物を発泡させて、前記発泡樹脂からなる樹脂発泡体を形成しながら該発泡樹脂を前記繊維シートの一部に含浸させて、該樹脂発泡体と前記基材とを一体化させる工程と、

を有する繊維強化樹脂複合体の製造方法。

[請求項9] 前記基材が、繊維シートに熱可塑性のマトリクス樹脂を部分含浸した基材である、

請求項８に記載の繊維強化樹脂複合体の製造方法。

[請求項10] 前記基材が、繊維シートの表面に熱可塑性のマトリクス樹脂を融着した基材である、

請求項８に記載の繊維強化樹脂複合体の製造方法。

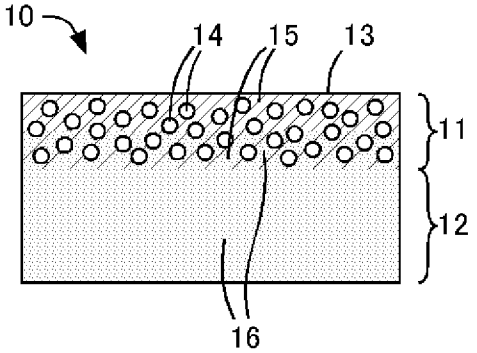
[請求項11] 前記原料組成物を供給する工程が、金型のキャビティ面に前記基材を配置し、前記原料組成物を前記金型のキャビティ内に投入する工程である、

請求項８～１０のいずれか一項に記載の繊維強化樹脂複合体の製造方法。

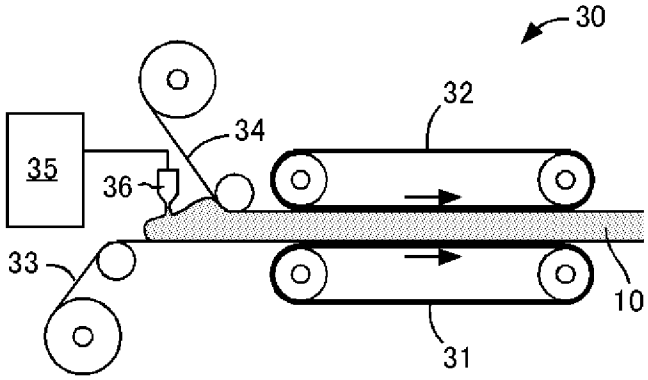
[請求項12] 前記原料組成物を供給する工程が、ダブルベルト成形機の第１コンベアベルトおよび／または第２コンベアベルトに沿って前記基材を供給しながら、前記原料組成物を前記第１コンベアベルトと前記第２コンベアベルトの間に投入する工程である、

請求項８～１０のいずれか一項に記載の繊維強化樹脂複合体の製造方法。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2020/010531

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
B29C 44/12(2006.01)i; B29C 44/32(2006.01)i; B32B 5/24(2006.01)i; B29K 105/04(2006.01)n; B29L 9/00(2006.01)n
FI: B29C44/12; B29C44/32; B32B5/24 101; B29K105:04; B29L9:00
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)
B29C44/00-44/60; B32B5/22-5/32

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	1971-2020
Registered utility model specifications of Japan	1996-2020
Published registered utility model applications of Japan	1994-2020

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
Japio-CPC/FX

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 6-155599 A (SUMITOMO CHEMICAL INDUSTRY COMPANY LIMITED) 03.06.1994 (1994-06-03) claim 1,	1-3, 5-8, 10, 11
A	paragraphs [0005]-[0007], [0014]-[0015], [0022]	4, 9, 12
X	WO 2014/010106 A1 (INOAC CORP.) 16.01.2014 (2014-01-16) claims 1, 8, 20, paragraphs [0006], [0021], [0024]	1-4, 7
A		5, 6, 8-12
X	JP 2011-224873 A (MITSUBISHI PLASTICS INC.) 10.11.2011 (2011-11-10) claims 1, 3, 4, paragraphs [0040], [0050], [0071]	1, 3, 4
A		2, 5-12
X	JP 2015-003445 A (KUREHA LTD.) 08.01.2015 (2015-01-08) claim 7, paragraphs [0015], [0052]	1, 5, 8-12
A		2-4, 6, 7
A	JP 2010-284986 A (NAGOYA OILCHEMICAL CO., LTD.) 24.12.2010 (2010-12-24) paragraph [0016]	1, 8-10

☒ 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	Date of mailing of the international search report
08 June 2020 (08.06.2020)	16 June 2020 (16.06.2020)

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

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2020/010531

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2013-035247 A (TOYOTA MOTOR CORP.) 21.02.2013 (2013-02-21) claims	1-12
A	WO 2018/159597 A1 (UBE EXSYMO CO., LTD.) 07.09.2018 (2018-09-07) claims	1-12
A	JP 2018-510796 A (ROGERS CORPORATION) 19.04.2018 (2018-04-19) claims, abstract	1-12

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2020/010531

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 6-155599 A	03 Jun. 1994	(Family: none)	
WO 2014/010106 A1	16 Jan. 2014	JP 2014-31495 A US 2014/0199515 A1 claims 1, 8, 10, paragraphs [0020], [0058], [0065] EP 2735440 A1 CN 103648763 A TW 201402311 A KR 10-2014-0034796 A	
JP 2011-224873 A	10 Nov. 2011	(Family: none)	
JP 2015-003445 A	08 Jan. 2015	(Family: none)	
JP 2010-284986 A	24 Dec. 2010	(Family: none)	
JP 2013-035247 A	21 Feb. 2013	(Family: none)	
WO 2018/159597 A1	07 Sep. 2018	US 2019/0382548 A1 claims EP 3590675 A1 CN 110337352 A	
JP 2018-510796 A	19 Apr. 2018	US 2018/0111349 A1 claims, abstract GB 2551076 A WO 2016/149244 A1 CN 107428113 A KR 10-2017-0129202 A	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2020/010531

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

B29C 44/12(2006.01)i; B29C 44/32(2006.01)i; B32B 5/24(2006.01)i; B29K 105/04(2006.01)n; B29L 9/00(2006.01)n
FI: B29C44/12; B29C44/32; B32B5/24 101; B29K105:04; B29L9:00

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））

B29C44/00-44/60; B32B5/22-5/32

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	１９７１－２０２０年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２０年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２０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）

Japio-GPG/FX

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 6-155599 A (住友化学工業株式会社) 03.06.1994 (1994-06-03) 請求項1、[0005]-[0007]、[0014]-[0015]、[0022]	1-3,5-8,10,11
A		4,9,12
X	WO 2014/010106 A1 (株式会社イノアックコーポレーション) 16.01.2014 (2014-01-16) 請求項1, 8, 20、[0006]、[0021]、[0024]	1-4,7
A		5,6,8-12
X	JP 2011-224873 A (三菱樹脂株式会社) 10.11.2011 (2011-11-10) 請求項1, 3, 4、[0040]、[0050]、[0071]	1,3,4
A		2,5-12
X	JP 2015-003445 A (呉羽テック株式会社) 08.01.2015 (2015-01-08) 請求項7、[0015]、[0052]	1,5,8-12
A		2-4,6,7
A	JP 2010-284986 A (名古屋油化株式会社) 24.12.2010 (2010-12-24) [0016]	1,8-10

☑ 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	国際調査報告の発送日
08.06.2020	16.06.2020

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）
岩田　行剛 4S 2931
電話番号 03-3581-1101 内線 3430

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
A	JP 2013-035247 A (トヨタ自動車株式会社) 21.02.2013 (2013-02-21) 特許請求の範囲	1-12
A	WO 2018/159597 A1 (宇部エクシモ株式会社) 07.09.2018 (2018-09-07) 請求の範囲	1-12
A	JP 2018-510796 A (ロジャーズ　コーポレーション) 19.04.2018 (2018-04-19) 特許請求の範囲、要約	1-12

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/JP2020/010531

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 6-155599 A	03.06.1994	（ファミリーなし）	
WO 2014/010106 A1	16.01.2014	JP 2014-31495 A US 2014/0199515 A1 Claims1,8,10、[0020]、[0058]、[0065] EP 2735440 A1 CN 103648763 A TW 201402311 A KR 10-2014-0034796 A	
JP 2011-224873 A	10.11.2011	（ファミリーなし）	
JP 2015-003445 A	08.01.2015	（ファミリーなし）	
JP 2010-284986 A	24.12.2010	（ファミリーなし）	
JP 2013-035247 A	21.02.2013	（ファミリーなし）	
WO 2018/159597 A1	07.09.2018	US 2019/0382548 A1 Claims EP 3590675 A1 CN 110337352 A	
JP 2018-510796 A	19.04.2018	US 2018/0111349 A1 Claims, Abstract GB 2551076 A WO 2016/149244 A1 CN 107428113 A KR 10-2017-0129202 A	