

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 3 部門第 3 区分

【発行日】平成 26 年 12 月 11 日 (2014.12.11)

【公表番号】特表 2013-543035 (P2013-543035A)

【公表日】平成 25 年 11 月 28 日 (2013.11.28)

【年通号数】公開・登録公報 2013-064

【出願番号】特願 2013-537913 (P2013-537913)

【国際特許分類】

C 08 L 63/00 (2006.01)

C 08 J 5/24 (2006.01)

B 32 B 27/38 (2006.01)

【F I】

C 08 L 63/00 Z

C 08 J 5/24 C F C

B 32 B 27/38

【手続補正書】

【提出日】平成 26 年 10 月 21 日 (2014.10.21)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

成分 (A)、(B)、(C) および (D) を含むエポキシ樹脂組成物であって、エポキシ樹脂組成物は、 $1 \times 10^3 \sim 1 \times 10^4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ の 40 における粘度、 $90 \sim 110$ の硬化開始温度、および硬化開始温度で $2 \sim 20 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ の最低粘度を有し、成分 (A)、(B)、(C) および (D) は：

(A) 100 重量部のエポキシ樹脂配合物に対して 60 重量部以上のテトラグリシジルアミン型エポキシ樹脂

(B) ジシアンジアミド；

(C) ジアミノジフェニルスルホン、および

(D) 2, 4 - トルエンビスジメチル尿素を含む尿素化合物

を含む、エポキシ樹脂組成物。

【請求項 2】

成分 (A) 中のテトラグリシジルアミン型エポキシ樹脂の量が 100 重量部のエポキシ樹脂配合物に対して $60 \sim 95$ 重量部であり；成分 (A) が、 $5 \sim 40$ 重量部のテトラグリシジルアミン型エポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂をさらに含む、請求項 1 に記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 3】

テトラグリシジルアミン型エポキシ樹脂以外のエポキシ樹脂が、ビスフェノール型エポキシ樹脂、グリシジルアニリン型エポキシ樹脂、アミノフェノール型エポキシ樹脂、ノボラック型エポキシ樹脂およびこれらの組合せからなる群より選択される少なくとも 1 種類のエポキシ樹脂である、請求項 2 に記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 4】

成分 (C) の量が 100 重量部のエポキシ樹脂配合物に対して $5 \sim 30$ 重量部である、請求項 1 に記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 5】

成分(D)の量が100重量部のエポキシ樹脂配合物に対して3～8重量部である、請求項1に記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項6】

エポキシ樹脂組成物を130 で2時間硬化させることにより得られる硬化樹脂の25における曲げ弾性率Eが3.5～4.5 GPaである、請求項1～5のいずれか1項に記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項7】

硬化樹脂を沸騰水中に24時間浸漬させた後にエポキシ樹脂組成物を130 で2時間硬化させることにより得られる硬化樹脂のガラス転移温度が120 以上である、請求項1～6のいずれか1項に記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項8】

強化繊維および請求項1～7のいずれか1項に記載のエポキシ樹脂組成物を含むプリプレグ。

【請求項9】

プリプレグの一方の面だけがエポキシ樹脂組成物によって実質的に被覆されている、請求項8に記載のプリプレグ。

【請求項10】

プリプレグにおけるエポキシ樹脂組成物の含浸率が30%～95%である、請求項8または9に記載のプリプレグ。

【請求項11】

未硬化プリプレグを硬化させることによって作製された熱硬化プリプレグを含む繊維強化複合材料であって、未硬化プリプレグが請求項8～10のいずれか1項に記載のプリプレグを含むものである繊維強化複合材料。

【請求項12】

請求項8～10のいずれか1項に記載のプリプレグを積層すること；20～50 の温度および0.09 MPa以上の真空度で脱気すること；ならびに真空度を0.09 MPa以上に維持しながら温度を最終硬化温度まで昇温させることを含む製造方法。

【請求項13】

プリプレグのエポキシ樹脂組成物を60～120 の温度に維持し、エポキシ樹脂組成物がゲル化した後、最終硬化温度まで上げるステップキュアを行なう、請求項12に記載の製造方法。

【請求項14】

繊維強化複合材料を製造することをさらに含む、請求項12に記載の製造方法。

【請求項15】

強化繊維が複数の一方向に配列された繊維を構成している、請求項8に記載のプリプレグ。

【請求項16】

強化繊維が多軸織物、不織材料、マット、ニットまたは組み紐を構成している、請求項8に記載のプリプレグ。

【請求項17】

多軸織物が、プリプレグの透過性を増大させてプリプレグのガス発生時間を低減させるためにゼロパーセントより大きなウィンドウ領域を有する、請求項16に記載のプリプレグ。

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0011

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0011】

本発明の繊維強化複合材料用エポキシ樹脂組成物は、成分（Ａ）、（Ｂ）、（Ｃ）および（Ｄ）を含むエポキシ樹脂組成物であり、該エポキシ樹脂組成物は、 $1 \times 10^3 \sim 1 \times 10^4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ の４０における粘度、 $90 \sim 110$ の硬化開始温度、および硬化開始温度で $2 \sim 20 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ の最低粘度を有し、該成分（Ａ）、（Ｂ）、（Ｃ）および（Ｄ）は：

（Ａ）１００重量部のエポキシ樹脂配合物に対して ６０重量部以上のテトラグリシジルアミン型エポキシ樹脂

（Ｂ）ジシアンジアミド；

（Ｃ）ジアミノジフェニルスルホン、および

（Ｄ）２，４－トルエンビスジメチル尿素を含む尿素化合物を含む。

【手続補正３】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】００１３

【補正方法】変更

【補正の内容】

【００１３】

さらに、本発明の繊維強化複合材料の製造方法は、

プリプレグを $20 \sim 50$ の温度および 0.09 MPa 以上の真空度で脱気すること、かつ、プリプレグを積層すること；ならびに、温度を最終硬化温度まで昇温させるとともに真空度を 0.09 MPa 以上に維持することを含む製造方法である。

【手続補正４】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】００１４

【補正方法】変更

【補正の内容】

【００１４】

さらに、繊維強化複合材料の製造方法は、前述のプリプレグのエポキシ樹脂組成物を $60 \sim 120$ の温度に維持し、該エポキシ樹脂組成物がゲル化した後、最終硬化温度まで上げるステップキュアを行なう製造方法を含む。

【手続補正５】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】００１５

【補正方法】変更

【補正の内容】

【００１５】

本発明の繊維強化複合材料用エポキシ樹脂組成物は、成分（Ａ）、（Ｂ）、（Ｃ）および（Ｄ）を含むエポキシ樹脂組成物であり、該エポキシ樹脂組成物は、 $1 \times 10^3 \sim 1 \times 10^4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ の４０における粘度、 $90 \sim 110$ の硬化開始温度、および硬化開始温度で $2 \sim 20 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ の最低粘度を有し、該成分（Ａ）、（Ｂ）、（Ｃ）および（Ｄ）は：

（Ａ）１００重量部のエポキシ樹脂配合物に対して ６０重量部以上のテトラグリシジルアミン型エポキシ樹脂

（Ｂ）ジシアンジアミド；

（Ｃ）ジアミノジフェニルスルホン、および

（Ｄ）２，４－トルエンビスジメチル尿素を含む尿素化合物を含む。

【手続補正 6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0050

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0050】

本発明を、実施例を用いて以下にさらに詳細に説明する。以下の材料を用いて各実施例のプリプレグを得た。なお、実施例 6 は参考実施例である。

【手続補正 7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0066

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0066】

(実施例 2 ～ 8 および 12 ～ 17 ならびに比較例 1 ～ 4 および 6 ～ 9)

炭素繊維、エポキシ樹脂、熱可塑性樹脂、硬化剤および促進剤の種類および量を表 1 に示したように変更したこと以外は、実施例 1 と同様の様式でプリプレグを作製した。

【手続補正 8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0081

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0081】

(比較例 5)

炭素繊維、エポキシ樹脂、熱可塑性樹脂、硬化剤および促進剤の種類および量を表 1 に示したように変更したこと以外は、実施例 9 と同様の様式でプリプレグを作製した。作製した一方向プリプレグを使用し、プリプレグ中のエポキシ樹脂組成物の含浸率、繊維強化複合材料の圧縮強度、およびボイド率を測定した。得られた結果を表 1 に示す。