(19)日本国特許庁(JP)　(12)公表特許公報(A)　(11)公表番号
特表2024-515094
(P2024-515094A)
(43)公表日　令和6年4月4日(2024.4.4)

(51)国際特許分類			FI			テーマコード（参考）
Ｂ２９Ｃ	*70/34*	*(2006.01)*	Ｂ２９Ｃ	70/34		４Ｆ２０４
Ｂ２９Ｃ	*43/34*	*(2006.01)*	Ｂ２９Ｃ	43/34		４Ｆ２０５

審査請求　未請求　予備審査請求　未請求　（全18頁）

(21)出願番号　特願2023-564102(P2023-564102)
(86)(22)出願日　令和4年4月21日(2022.4.21)
(85)翻訳文提出日　令和5年12月14日(2023.12.14)
(86)国際出願番号　PCT/EP2022/060621
(87)国際公開番号　WO2022/223733
(87)国際公開日　令和4年10月27日(2022.10.27)
(31)優先権主張番号　21170320.2
(32)優先日　令和3年4月23日(2021.4.23)
(33)優先権主張国・地域又は機関
欧州特許庁(EP)
(81)指定国・地域　AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,
最終頁に続く

(71)出願人　591001248
ソルヴェイ（ソシエテ アノニム）
ベルギー・Ｂ－１１２０・ブリュッセル・リュ・ドゥ・ランスベーク・３１０
(74)代理人　110002077
園田・小林弁理士法人
(72)発明者　キー， ロス エー.
イギリス国 エヌジー１０ １ジェーダブリュ ノッティンガム ダービーシャー，ロング イートン， オックスフォード ストリート， バートン コート フラット ２３
(72)発明者　ゴファン， アンヌ－リーズ
ベルギー国 ７８０４ ルベ， シュマン ドゥ ラ ポテュリ ５
最終頁に続く

(54)【発明の名称】　複合材料の成形方法における離型フィルムとしてのポリメチルペンテンフィルムの使用

(57)【要約】
本発明は、複合材料を成形するための方法における離型フィルムとしての単層ポリメチルペンテンフィルムの使用に関する。
【選択図】なし

10

20

【特許請求の範囲】
【請求項１】
複合材料を成形するための方法における離型フィルムとしての単層ポリメチルペンテンフィルムの使用であって、前記方法が、
（ａ）フィルム間に複合材料を収容するポケットを形成することにより、上側ポリメチルペンテンフィルムと下側ポリメチルペンテンフィルムとの間に実質的に平面状の複合材料を配置すること；
（ｂ）前記上側ポリメチルペンテンフィルム及び前記下側ポリメチルペンテンフィルムを前記複合材料と密接に接触させ、それにより層状構造体を形成し、前記層状構造体に熱又は力が加えられるまで前記複合材料が前記上側ポリメチルペンテンフィルムと前記下側ポリメチルペンテンフィルムとの間で動かない状態で保持されること；
（ｃ）任意選択的に、前記複合材料の粘度を下げるか、又は前記フィルムを柔らかくするのに十分な温度で、加熱装置内で前記層状構造体を予熱すること；
（ｄ）隙間により隔てられた、雄型と対応する雌型とを含むプレスツール内に前記層状構造体を配置することであって、前記雄型及び前記雌型がそれぞれ独立して非平面状の成形面を有すること；
（ｅ）前記雄型と前記雌型との間の隙間を閉じることにより、前記雄型と前記雌型との間の層状構造体を圧縮すること；並びに
（ｆ）前記層状構造体の粘度が成形形状を維持するのに十分なレベルに達するまで、前記雄型及び前記雌型を閉位置で維持すること；
を含む、使用。
【請求項２】
前記ポリメチルペンテンフィルムが、
・約２０５℃以上、好ましくは２１０℃以上の溶融温度（Ｔｍｅｌｔ）、
・約１０ミクロン～約２００ミクロン、特には約２０ミクロン～約１５０ミクロン、特には約３０ミクロン～約８０ミクロンの範囲の厚さ（ｔ）、
・約４００～約９００ＭＰａ、好ましくは約５５０～約８５０ＭＰａの範囲の弾性率（Ｅ）、
・約１０～約５０ＭＰａ、好ましくは約１５～約３０ＭＰａの範囲の引張強さ（σ）、及び
・周囲条件で約８ｍｍ／秒の速度で縦方向又は横方向のいずれかに、約５０～約５５０％、好ましくは１１０～約５００％、特には約１５０～約４５０％の範囲の破断伸び（ε）、
を有する、請求項１に記載の使用。
【請求項３】
工程（ｅ）が、前記鋳型の間により小さな隙間が形成されるように、前記雄型と前記雌型との間の前記隙間を部分的に閉じることを含み、このより小さな隙間がその後特定の時間又は粘度に到達した後に閉じられる、請求項１又は２に記載の使用。
【請求項４】
前記雄型及び前記雌型が周囲温度よりも高い温度で維持される、請求項１～３のいずれか１項に記載の使用。
【請求項５】
前記雄型及び前記雌型が１００℃より高い温度に維持される、請求項４に記載の使用。
【請求項６】
前記雄型及び前記雌型が約１２０℃～約１６０℃の温度に維持される、請求項４に記載の使用。
【請求項７】
前記雄型及び前記雌型が約１５０℃及び約１９０℃の温度に維持される、請求項４に記載の使用。
【請求項８】

前記ポリメチルペンテンフィルムがリサイクルフィルムである、請求項１～７のいずれか一項に記載の使用。
【請求項９】
工程（ｅ）が、前記雄型及び前記雌型を前記複合材料の軟化点よりも高い温度に維持しながら前記雄型と前記雌型との間の前記隙間を約０．７ｍｍ／秒～約４００ｍｍ／秒の速度で閉じることを含む、請求項１～８のいずれか一項に記載の使用。
【請求項１０】
工程（ｂ）が、前記上側フィルムと前記下側フィルムとの間に少なくとも約６７０ｍｂａｒの真空圧力を加えることを含む、請求項１～９のいずれか一項に記載の使用。
【請求項１１】
前記雄型及び前記雌型が、約１分間～約６０分間閉位置で維持される、請求項１～１０のいずれか一項に記載の使用。
【請求項１２】
前記上側フィルム及び前記下側フィルムが、上部フレーム、中央フレーム、及び底部フレームを含む構造フレームによって一体に保持され、この中で、
前記下側フィルムは、前記底部フレームと前記中央フレームとの間に保持されており、
前記上側フィルムは、前記中央フレームと前記上部フレームとの間に保持されている、請求項１～１１のいずれか一項に記載の使用。
【請求項１３】
前記中央フレームがアセンブリに真空源を供給する、請求項１２に記載の使用。
【請求項１４】
前記上側フィルム及び前記下側フィルムが、上部フレーム及び底部フレームを含む構造フレームによって一体に保持され、前記下側フィルム及び前記上側フィルムの両方が前記底部フレームと前記上部フレームとの間に保持される、請求項１～１１のいずれか一項に記載の使用。
【請求項１５】
前記層状構造体が、自動化された手段によって前記プレスツール及び任意選択的な加熱装置の中に配置される、請求項１～１４のいずれか一項に記載の使用。
【請求項１６】
前記複合材料が、アラミド、高弾性ポリエチレン（ＰＥ）、ポリエステル、ポリ－ｐ－フェニレン－ベンゾビスオキサゾール（ＰＢＯ）、炭素、ガラス、石英、アルミナ、ジルコニア、炭化ケイ素、玄武岩、天然繊維、及びこれらの組み合わせから選択される材料の構造繊維を含む、請求項１～１５のいずれか一項に記載の使用。
【請求項１７】
前記複合材料が、熱可塑性ポリマー、熱硬化性樹脂、及びそれらの組み合わせから選択されるバインダー又はマトリックス材料を含む、請求項１～１６のいずれか一項に記載の使用。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
繊維強化ポリマー複合材料は、多くの産業（航空宇宙、自動車、船舶、工業、建設、及び多様な消費者製品を含む）で広く使用されており、軽量でありながらも特に過酷な環境での高い強度及び耐食性を示すため、選ばれることが多い。繊維強化ポリマー複合材料は、典型的には、予め含浸された材料又は樹脂注入プロセスのいずれかから製造される。
【０００２】
予め含浸された材料、又は「プリプレグ」は、一般的には硬化性マトリックス樹脂（エポキシなど）で含浸された繊維（炭素繊維など）を指す。プリプレグ中の樹脂の含有率は比較的高く、典型的には４０体積％～６５体積％である。プリプレグの複数のプライは積層するための大きさに切断され、その後引き続き組み立てられて成形ツールで成形され得る。プリプレグを成形ツールの形状に合わせることが簡単にはできない場合には、成形面

の形状に徐々に変形させるためにプリプレグに熱がかけられる場合がある。繊維強化ポリマー複合材料は、樹脂注入技術を含む液体成形プロセスによって製造することもできる。典型的な樹脂注入プロセスでは、バインダーで結合した乾燥繊維がプリフォームとして鋳型内に配置され、その後液体マトリックス樹脂がその場で直接注入（ｉｎｊｅｃｔｉｏｎ、又はｉｎｆｕｓｉｏｎ）される。注入（ｉｎｊｅｃｔｉｏｎ、又はｉｎｆｕｓｉｏｎ）後、樹脂が注入されたプリフォームが硬化されることで、完成した複合物品が得られる。

【０００３】

両方のタイプの材料に関して、複合材料の三次元成形（ｓｈａｐｉｎｇ）（又は成形（ｍｏｌｄｉｎｇ））のプロセスは、最終的に成形された製品の外観、特性、及び性能に重要である。プリフォームはハンドレイアッププロセスを使用して精緻な形状へと成形されることが依然として一般的であり、これには時間がかかり、パーツごとのばらつきが大きくなることが多い。複合材料を成形するための、他のそれほど手作業ではない方法も存在するものの（パーツ形成を助けるためにピン、ロボット、及び／又はアクチュエータを使用する場合もある真空形成法など）、そのような方法は独自の欠点及び短所を有している。加えて、そのような方法は時間がかかることが多く、複合材料のレオロジー挙動及び硬化特性が考慮に入れられていない。更に、そのようなプロセスの製品は、依然として皺及びその他の欠陥を有する傾向がある。

【０００４】

処理時間、部品ごとのばらつき、及び製品汚染を含む複合材料処理の潜在的な欠点を考慮して、より速く、改善された、より信頼性の高いアセンブリ及び方法を開発する必要性が依然として存在する。レオロジー挙動及び硬化特性を考慮し、可能であれば、既存の装置（例えば金属スタンプ又はプレス）を最大限に活用できる方法を提供することも望ましい。

【０００５】

二重ダイヤフラム機械的熱成形プロセスを実行する複合材料の成形方法は、環境汚染物質から複合材料を隔離するためのアセンブリと、当該技術分野で公知の他の方法の欠点や欠陥に対処するだけでなく複合材料のレオロジー挙動及び硬化特性も考慮し、更に既存のインフラ及び装置を使用する可能性も可能にする成形プロセスとを提供することを目標として、開発に成功した。この方法は、複雑な三次元複合構造体を自動化された方法で製造するための効果的且つ効率的な手段を提供する。したがって、三次元複合構造体は、迅速に、繰り返し、そして大規模で製造することができる。

【０００６】

例えば、このようにしてこの二重ダイヤフラム成形技術は急速に進化してきており、本格的な自動車製造への使用が可能になった。

【０００７】

様々な部品の軽量化の必要性がますます高まっているため、一連の自動車市場における複合材料の量は増加し続けている。同様に、航空宇宙市場とアーバンエアモビリティ（ＵＡＭ）市場における複合材料の量は、今後１０年間で大幅に増加すると予測されている。この需要の高まりに応えるためには、部品の製造速度を高める必要がある。したがって、相手先商標製品製造業者（ＯＥＭ）は、将来の速度目標を達成するために、圧縮成形など速度に対応可能な製造技術にますます注目してきている。

【０００８】

しかしながら、自動車、ＵＡＭ、及び航空宇宙の市場では、技術的な特殊性、並びに具体的な速度及び性能の要件が必ずしも同じであるとは限らない。特に、航空宇宙及びＵＡＭの市場では、硬化温度Ｔｃｕｒｅが通常約１５０～約１９０℃に含まれる、より高温硬化／高性能の樹脂化学物質が求められている。

【０００９】

二重ダイヤフラム機械的プロセスを使用する方法は、ダイヤフラムを備える。この文脈では、「ダイヤフラム」という用語は、２つの異なる物理的領域を分割又は分離する任意の障壁を指す。また、外部空間及び隔離された内部空間（例えば封入ポケット内の領域と

封入ポケットの外側の領域）を画定する１つ以上のダイヤフラムのアセンブリを指す「ダイヤフラム構造体」という用語も使用される。一般に、ダイヤフラムを製造するために使用される材料は特に限定されず、例えば、ゴム、シリコーン、プラスチック、熱可塑性プラスチック、又は同様の材料であってよく、或いはプラスチック層若しくは弾性層から選択されるフィルムを含むことができる。ダイヤフラムは、単一の材料から構成されていてもよく、或いは例えば層状に配置された複数の材料を含んでいてもよい。

【００１０】

ダイヤフラムとして使用されるフィルムが存在し、これは１つ以上の層を含む。しかしながら、これらのフィルムは、特に航空宇宙及びＵＡＭの市場での使用を妨げる可能性のある大きな制約や低い性能を有する場合がある。特に、これらの市場で使用するには溶融温度が低すぎて達成可能な硬化温度範囲（＜１５０℃）が制限され、これらは熱的能力と機械的性能に限界がある。特に、これは、約１５０℃～約２００℃に含まれる所定のＴｃｕｒｅで複合材料部品を形成する際にフィルムの溶融及び／又は破損を引き起こす可能性がある。

【００１１】

更に、多層フィルムは使用しにくい。特に、不均衡な多層組成を有する特定の既存のフィルムは、組み立て中にフィルムのカールも引き起こし、プロセスの堅牢性と使いやすさを制限する。加えて、多層フィルムの使用は、これらのフィルムのリサイクルの可能性を制限し、或いは少なくともより複雑で費用が掛かるプロセスを構成する必要がある。

【００１２】

したがって、最終的な部品の熱的及び機械的性能を損なうことなしに、視覚的に良好な表面仕上げを示し、且つプロセスのタクトタイムを大幅に短縮する、複雑な構造の複合材料部品を形成するための高温二重ダイヤフラム機械的プロセスで使用される、拡張された温度範囲を示すフィルムが依然として必要とされている。

【００１３】

これらの要件に加えて、これらのフィルムに望まれる特性の１つは、自己剥離能力である。しかしながら、高温では、フィルムが複合材料部品に貼り付く欠点を有する場合があり、これは特に表面仕上げの低下をもたらす可能性がある。

【００１４】

本開示は、これらの欠点に対処するために、（個別に及びまとめて）複合材料を成形するための二重ダイヤフラム機械的熱成形プロセスを使用する方法における特定のフィルムの使用を提供する。

【００１５】

出願人は、高温二重ダイヤフラム成形（ＤＤＦ）用の離型フィルムとして、単一のポリマー、すなわち単層のポリメチルペンテン（ＰＭＰ）フィルムを使用すると、複雑な構造の複合材料部品を得ることが可能になり、それが幅広い温度範囲にわたって使用することができ、そのため自動車市場と航空宇宙市場の両方でダイヤフラムとして使用できることを見出した。更に、このポリメチルペンテンフィルムは、表面の空隙や織りの歪みの兆候なく、及びフィルムの破損なしに、或いはフィルムの完全性を維持しながら、硬化後に硬化した複合材料部品の視覚的に優れた表面仕上げを提供する。

【００１６】

加えて、このＰＭＰフィルムは、自己剥離が容易であるという利点を有しており、これにより、硬化後の複合材料からフィルムへ、及び／又はフィルムから複合材料への転写及び／又は汚染がないようにすることができる。

【００１７】

したがって、本発明は、複合材料を成形するための方法における離型フィルムとしての単層ポリメチルペンテンフィルムの使用に関し、前記方法は、

（ａ）フィルム間に複合材料を収容するポケットを形成することにより、上側ポリメチルペンテンフィルムと下側ポリメチルペンテンフィルムとの間に実質的に平面状の複合材料を配置すること；

（ｂ）上側ポリメチルペンテンフィルム及び下側ポリメチルペンテンフィルムを複合材料と密接に接触させ、それにより層状構造体を形成し、層状構造体に熱又は力が加えられるまで複合材料が上側ポリメチルペンテンフィルムと下側ポリメチルペンテンフィルムとの間で動かない状態で保持されること；
（ｃ）任意選択的に、複合材料の粘度を下げるか、又はフィルムを柔らかくするのに十分な温度で、加熱装置内で層状構造体を予熱すること；
（ｄ）隙間により隔てられた、雄型と対応する雌型とを含むプレスツール内に層状構造体を配置することであって、雄型及び雌型がそれぞれ独立して非平面状の成形面を有すること；
（ｅ）雄型と雌型との間の隙間を閉じることにより、雄型と雌型との間の層状構造体を圧縮すること；並びに
（ｆ）層状構造体の粘度が成形形状を維持するのに十分なレベルに達するまで、雄型及び雌型を閉位置で維持すること；
を含む。

【００１８】

本発明によれば、ポリメチルペンテンフィルムは自己剥離性である。すなわち、フィルムを最終的に成形された複合材料部品から容易に剥がすことができ、及び／又は成形されたアセンブリを工具から容易に剥がすことができる。これにより、工具の摩耗を低減し、成形の合間にモールドシーラー又は離型剤を塗布する必要がなくなるなど、工具を保護する上で明白な利点がもたらされ、タッチ作業及び最終部品のコストが削減され、したがって本格的な複合構造体の製造が容易になる。

【００１９】

典型的には、本発明で使用されるポリメチルペンテンフィルムは、少なくとも約９９重量％、特には少なくとも９９．２５重量％のポリ（４－メチル－１－ペンテン）を含む。ポリメチルペンテンフィルムは、熱安定剤、加工安定剤、帯電防止剤、潤滑剤などのポリマー添加剤も含み得る。

【００２０】

本発明によれば、ポリメチルペンテンフィルムは、プレスを使用する複雑な複合構造体の高温二重ダイヤフラム成形（ＤＤＦ）に使用される。このフィルムは、広い硬化温度範囲にわたって、すなわち硬化温度Ｔ$_{cure}$が約１２０～約２００℃の範囲で使用できるという利点を有しており、そのため、自動車市場の仕様に対応する約１２０～約１７０℃、特に約１２０～約１５０℃の範囲と、航空宇宙及びＵＡＭの市場の仕様に対応する約１５０～約１９０℃、特に約１６０～約１９０℃の範囲の両方を網羅することができる。

【００２１】

このように、本発明において離型フィルムとして使用されるポリメチルペンテンフィルムは、特有の特性を示す。

【００２２】

約１２０～約２００℃に含まれる所定の硬化温度Ｔ$_{cure}$において、フィルムは、複合材料部品の形成中の溶融及び／又は破損を確実になくすこと、及び十分な剥離性能を確保することができる。したがって、いくつかの実施形態では、ポリメチルペンテンフィルムは、約２０５℃以上、好ましくは２１０℃以上の溶融温度を有する。

【００２３】

いくつかの実施形態では、ポリメチルペンテンフィルムの厚さ（ｔ）は、複合材料部品の形状に依存し、約１０ミクロン～約２００ミクロン、特には約２０ミクロン～約１５０ミクロン、例えば２５ミクロン～約１００ミクロンの範囲である。好ましくは、フィルムは、約３０ミクロン～約８０ミクロンの厚さを有する。この厚さにより、フィルムの望ましい機械的性能を得ることができ、予熱中のフィルムの皺や複合材料部品の形成中の破損を防ぐことができる。

【００２４】

いくつかの実施形態では、ポリメチルペンテンフィルムは、約４００～約９００ＭＰａ

、好ましくは約５５０～約８５０ＭＰａの範囲の弾性率（Ｅ）を有し、約１０～約５０ＭＰａ、好ましくは約１５～約３０ＭＰａの範囲の引張強さ（σ）を有する。このことは、複合材料部品を形成する際のフィルム破損の防止に役立ち得る。

【００２５】

約１２０～約２００℃に含まれる所定のＴ$_{cure}$での形成中にフィルムが破損せずに望まれる部品形状を確実に達成できるようにするために、本発明で使用されるフィルムは特定の破断伸び（ε）を有する。いくつかの実施形態では、ポリメチルペンテンフィルムは、周囲条件で約８ｍｍ／秒の速度で縦方向又は横方向のいずれかに、約５０～約５５０％、好ましくは１１０～約５００％、特には約１５０～約４５０％の範囲の破断伸び（ε）を示し、ここでの周囲温度Ｔ$_{ambient}$は、典型的には約２０～約２５℃である。

【００２６】

複合材料部品のサイズを制限しないために、このようなフィルムは十分に大きな幅を有する。いくつかの実施形態では、ポリメチルペンテンフィルムの製品幅は約１．２ｍ以上である。好ましくは、この製品幅は約１．５ｍ以上である。

【００２７】

したがって、好ましい実施形態では、本発明に従って使用されるポリメチルペンテンフィルムは、

・約２０５℃以上、好ましくは約２１０℃以上の溶融温度（Ｔ$_{melt}$）、
・約１０ミクロン～約２００ミクロン、特には約２０ミクロン～約１５０ミクロン、特には約３０ミクロン～約８０ミクロンの範囲の厚さ（ｔ）、
・約４００～約９００ＭＰａ、好ましくは約５５０～約８５０ＭＰａの範囲の弾性率（Ｅ）、
・約１０～約５０ＭＰａ、好ましくは約１５～約３０ＭＰａの範囲の引張強さ（σ）、及び
・周囲条件で約８ｍｍ／秒の速度で縦方向又は横方向のいずれかに、約５０～約５５０％、好ましくは１１０～約５００％、特には約１５０～約４５０％の範囲の破断伸び（ε）、

を有する。

【００２８】

溶融温度を含むフィルムの熱特性は、例えばＴＡ Ｉｎｓｔｒｕｍｅｎｔｓ Ｑ２００００などの示差走査熱量計を使用することによって、ＡＳＴＭ Ｄ３４１８に準拠した示差走査熱量測定（ＤＳＣ）を使用して決定することができる。

【００２９】

引張強さ、引張弾性率、及び破断伸びなどのフィルムの機械的特性は、例えばＺｗｉｃｋ Ｚ２５０試験機を使用することによって、ＡＳＴＭ Ｄ８８２－０９に準拠した薄膜引張強さ及び伸び試験（ＺＭ４５）を使用して決定することができる。典型的には、ポリメチルペンテンは、ポリプロピレン及びポリエチレン用の汎用装置によって得ることができる熱可塑性ポリオレフィンである。例えば、ポリメチルペンテンは、射出成形、圧縮成形、ブロー成形、回転成形、押出、及びワイヤーコーティングなどの標準的な熱可塑性加工方法を使用して加工することができる。更に、ポリメチルペンテンフィルムは、ブロー成形又は押出ラミネート技術によって得ることができる。そのようなプロセスは当業者に公知である。

【００３０】

本発明の一実施形態によれば、ポリメチルペンテンフィルムは、本発明の特許請求される複合材料の成形方法においてリサイクルして再利用することができる。例えば、使用済みのポリメチルペンテンフィルムが最終的な複合材料から剥離された後、このフィルムが顆粒化され、その後、典型的には当該技術分野で公知の押出機を用いて押し出され、複合材料の成形方法、特に上述した方法において使用され得る新たなフィルムを得ることができる。

【００３１】

本明細書において使用される「実質的に平面」という用語は、他の２つの平面よりも明らかに大きい（例えば少なくとも２、３、４、又は５倍、又はそれ以上大きい）１つの平面を有する材料を指す。いくつかの実施形態では、実質的に平面の材料は、最も大きい平面に沿って厚さの変動を有する。例えば、複合材料は、パッドアップ（すなわちプライの量の局所的な増加）又はプライドロップ（すなわちプライの量の局所的な減少）、材料の変化、及び／又は複合材料が例えば生地へ移行する領域などの強化材料を含んでいてもよい。別の実施形態では、実質的に平面の材料は、複合材料の領域に沿って最小限しか厚さの変動を示さない。例えば、実質的に平面という用語は、複合材料が、面積の９０％超で＋／－１５％以下の全体の厚さの変動を有することを意味し得る。いくつかの実施形態では、厚さの変動は、面積の９０％超で±１０％以下である。実質的に平面は、完全に平らな材料を示すことを意図しておらず、凹状及び／又は凸状にわずかな変動を有する材料も含まれる。

【００３２】

本発明との関係において、複合材料を成形する方法は、フレーム付きアセンブリ又はフレームレスアセンブリのいずれかを使用することができる。いくつかの実施形態では、この方法は、フレーム付きアセンブリの使用を含む。上側フィルム及び下側フィルムは、上部フレームと、中央フレームと、底部フレームとを含む構造フレームによって一体に保持され、この中で、

下側フィルムは、底部フレームと中央フレームとの間に保持されており、

上側フィルムは、中央フレームと上部フレームとの間に保持されている。

【００３３】

好ましい実施形態では、この方法はフレーム付きアセンブリの使用を含む。

【００３４】

特定の実施形態では、複合材料を収容するポケットは、フィルム間に保持された複合材料を収容する構造フレームによって画定される。特定の実施形態では、実質的に平面状の複合材料は、上部フィルムと下部フィルムとの間に配置される。これによって、フィルム間に複合材料を収容するポケットが形成される。例えば、上面と下面とを有する下側フィルムは、その下面が底部フレームの周囲の上に接触するように配置することができる。その後、複合材料を下側フィルムの上に敷き、次いで中央フレームを下側フィルムの上面に配置し、続いて上側フィルムを配置し、最後に上側フィルムに対して上部フレームを配置することができる。この配置は、複合材料層を収容する下側フィルムと上側フィルムとの間のポケットを形成する。いくつかの実施形態では、中央フレームは除かれてもよい。そのような上部、中央（存在する場合）、及び底部のフレームは、例えばクランプ又は他の固定手段を周囲に所定の間隔で配置することによって、ポリメチルペンテンフィルムの形状を維持する周囲を画定する。そのような上部、中央、及び底部のフレームは、成形される複合材料のサイズ及び形状に基づいて製造することができる。任意選択的には、従来の金属又は複合プレスツール（例えばＬａｎｇｚａｕｎｅｒ又はＳｃｈｕｂｅｒｔなどの製造業者からのもの）で使用するための予め製造された構造支持フレームが当該技術分野で公知である。

【００３５】

いくつかの実施形態では、中央フレームは、空気を除去するための手段、例えば真空口又は他のバルブを含んでいてもよい。真空口（存在する場合）は、真空源（例えば真空ポンプ）に接続される。いくつかの実施形態では、複合材料を収容するポケットは、封入ポケット、例えば気密封入ポケットであってもよく、それによって構造フレームは複合材料の周囲全体に配置され、空気又は汚染物質がポケットに入ることを妨げる。

【００３６】

上側フィルムと下側フィルムは複合材料と密着して層状構造を形成する。これは、例えば上側フィルムと下側フィルムとの間に真空圧力を加えることにより達成することができる。別の実施形態では、これは、空気を除去するために、上側及び／又は下側のフィルムに物理的に圧力を加えることによって（例えば手で又は機械的手段によって）達成するこ

とができる。真空圧力は、例えば、成形性能を妨げる可能性のある残留空気の大部分を抜き取り、その結果複合材料（又はその構成要素）又はフィルムの変形又は皺を最小限に抑えるために、特定の場合では望ましいことがある。また、真空は、フィルムの皺も防止し、アセンブリ全体の安定性も高める。真空圧力の使用は、繊維の整列の維持を支援すること、処理中及び成形中の材料を支持すること、並びに／又は高温において望まれる厚さを維持することも補助することができる。本明細書で使用される「真空圧力」という用語は、１気圧未満（又は１０１３ｍｂａｒ未満）の真空圧力を指す。いくつかの実施形態では、フィルム間の真空圧力は、約１気圧未満、約８００ｍｂａｒ未満、約７００ｍｂａｒ未満、又は約６００ｍｂａｒ未満に設定される。いくつかの実施形態では、フィルム間の真空圧力は約６７０ｍｂａｒに設定される。この時点で、真空によってであるか例えば機械的手段などの他の手段によってであるかに関わらず、複合材料はフィルム間にしっかりと保持され、その結果熱又は力が加えられるまで動かない状態にされる。そのような動かない状態の層状構造体は、例えば層状構造体内に保持された複合材料がＸ軸及びＹ軸を横切って十分な張力を有するその位置で動かない状態で維持されるだけでなく、インデックス付けもされるため、有利な場合がある。すなわち、複合材料は、動かない状態の層状構造体内のフィルム間の特定の位置に（例えば自動化された手段によって）配置されてもよい。その後、このインデックス付けされた動かない状態の層状構造体は、プレスツールが複合材料の所定の領域に一貫してはめ込まれるように、プレスツール（本明細書の以下でより詳細に説明される）の特定の位置に（例えば自動化された手段により）配置することができる。そのため、各複合材料の隙間を個別にインデックス付けする必要なく成形製品の複数のコピーを製造するために、動かない状態の層状構造体を信頼性高く使用することができる。

【００３７】

いくつかの実施形態では、複合材料は工程（ａ）の前にパターンに応じて機械加工されてもよい。

【００３８】

層状構造体は、場合によっては加熱装置内で予熱されてもよい。層状構造体は、手作業で、又は例えば自動化されたシャトルを使用するなどの自動化された手段によって、加熱装置内に配置することができる。この加熱装置は、金属又は複合材料製品の形成又は成形に使用できる任意のヒーター、例えば接触式ヒーター又は非接触式ヒーター（すなわちセラミック又は赤外線（ＩＲ）ヒーター）であってもよい。場合によっては、この予熱により、上側フィルム及び下側フィルムが軟化し、例えばその結果最終的に成形された製品の形成中にこれらがより柔軟になる。場合によっては、この予熱によって層状構造内に保持された複合材料が望まれる粘度又は温度になり、平坦な最初のレイアップから複雑な形状を形成できるようになる。予熱は、約７５℃、１００℃、１２５℃、１５０℃、１７５℃、１９０℃を超える温度に加熱された加熱装置内で行うことができる。この温度は、例えば複合材料中の成分が何であるかに応じて調整することができる。そのような予熱は、例えば、プレスツールの加熱を最小化すること、及び／又は層状構造体がプレスツール内にある時間を最小化することが望まれる場合に有利である。

【００３９】

最終成形製品を形成するために、層状構造体はプレスツール内に配置される。いくつかの実施形態では、プレスツールのどの部分にも真空圧力は加えられない。別の実施形態では、例えば層状構造体とツールとの間に閉じ込められている空気を除去するために、ツール表面が局所的に真空にされる。しかしながら、そのような実施形態では、真空は典型的には最終的に成形された製品の形状を形成するための力としては使用されない。層状構造体は、手作業で、又は例えば自動化されたシャトルを使用するなどの自動化された手段によって、プレスツールに配置することができる。このプレスツールは、通常雄型と雌型とを含み、これらは隙間によって隔てられている。各鋳型は、非平面状の成形面を有する。いくつかの実施形態では、雄型、雌型、又はその両方に離型剤が添加され得る。そのような離型剤は、例えば、まだ周囲温度を超える温度にある間に成形されたパーツを鋳型から

取り出すのに有用な場合がある。いくつかの実施形態では、離型剤は必要とされない。成形面は固定されている。すなわち、これは再構成可能ではない。成形面も典型的には一致している。すなわち、雄型は雌型の逆にほぼ対応しており、いくつかの実施形態では完全に一致することができる。しかしながら、いくつかの実施形態では、雄型及び雌型は、閉じた際にこれらの間の厚さが変化するようにされている。特定の実施形態では、層状構造体は、雄型と雌型との間が特定の所定の距離で隙間に配置される。

【００４０】

その後、層状構造体は、鋳型の間の隙間を閉じることによって、雄型と雌型との間で圧縮される（工程（ｅ））。いくつかの実施形態では、これは、雄型と雌型との間の隙間を部分的に閉じて、鋳型の間により小さい隙間を形成することによって達成される。このより小さい隙間は、その後特定の時間又は粘度に達した後に閉じられる。「隙間を閉じる」は、Ｚ軸に沿って所定の最終キャビティ厚が鋳型間で得られるように鋳型を圧縮することを意味すると理解される。最終キャビティ厚は、例えば鋳型が互いに対して停止する場所を制御することによって調整することができ、厚さの選択は鋳型を操作する者が行うことができ、これは最終的に成形された製品の性質に依存する。いくつかの実施形態では、最終的な空洞の厚さは実質的に均一である。すなわち、プロセスにより、厚さが５％未満しか変化しない両面が成形された最終製品が製造される。いくつかの実施形態では、プロセスにより、約４％未満、例えば、約３％未満、約２％未満、更には約１％未満で変動する厚さを有する最終的に成形された製品が製造される。別の実施形態では、雄及び雌のツールは、Ｘ軸及びＹ軸を横切って意図的に変化するキャビティ厚を与えるように構成されていてもよい。

【００４１】

特定の実施形態では、雄型及び雌型は周囲温度よりも高い温度で維持される。例えば、それらは、約７５℃、１００℃、１２５℃、１５０℃、１７５℃、２００℃、更にはそれ以上の温度、特に例えば約１２０℃～２００℃の温度に維持され得る。この温度は、複合材料内の成分が何であるか（並びに粘度及び反応性）に応じて調整することができる。鋳型は、例えば複合材料で使用されるバインダー又はマトリックス材料の軟化点を超える温度で維持することができる。いくつかの実施形態では、複合材料は熱硬化性材料を含み、鋳型は約１００℃～２００℃の温度に維持される。複合材料中のバインダー又はマトリックス材料は、周囲温度（２０℃～２５℃）では固相であるが、加熱すると軟化する。この軟化により、プレスツール内で複合材料を成形し、平坦なプリフォームを最終的な部品の形状に一致させることができる。

【００４２】

いくつかの実施形態では、特に自動車市場向けの硬化複合材料部品については、鋳型は約１２０℃～１６０℃の温度に維持される。いくつかの別の実施形態では、特にＵＡＭ及び航空宇宙の市場向けの硬化複合材料については、鋳型は約１５０℃～約１９０℃の温度に維持される。

【００４３】

いくつかの実施形態では、雄型及び雌型は、成形された構造体を形成するために、所定の時間、閉位置で維持される。例えば、いくつかの実施形態では、鋳型は加熱され、望まれる粘度又は温度に到達するまで閉位置で維持される。いくつかの実施形態では、複合材料の粘度が約
1.0×10^{8}ｍＰａ未満になるまで鋳型は閉位置で維持される。いくつかの実施形態では、鋳型は加熱され、バインダー又はマトリックス材料の架橋が開始するまで閉位置で維持される。別の実施形態では、鋳型は加熱されないが、材料が成形された形状を維持するのに十分な時間閉位置で維持される。鋳型は、例えば約１分間～約６０分間、例えば約５分間～約２０分間、又は例えば約１分間～約１０分間、閉位置に維持することができる。鋳型が閉位置で維持される時間の長さは、複合材料の素材が何であるか、及び鋳型の温度などの多くの因子に依存する。

【００４４】

特定の実施形態では、雄型は層状構造体を通って動かされ、雌型は動かないままである。別の特定の実施形態では、雌型は層状構造体を通って動かされ、雄型は動かないままである。別の実施形態では、雌型は動かないままではなく、雄型よりも遅い速度で移動する（雄型が依然として主に形成面として機能するように）。また別の実施形態では、両方の鋳型がほぼ同じ速度で移動して、鋳型間の隙間を閉じる。鋳型は、複合材料を望みの形状に変形／成形するのに十分な速度及び最終圧力で動かされる。例えば、鋳型は、約０．４ｍｍ／秒～約５００ｍｍ／秒、特に約０．７ｍｍ／秒～約４００ｍｍ／秒、特に約１ｍｍ／秒～約３５０ｍｍ／秒、例えば約５ｍｍ／秒～３５０ｍｍ／秒又は約５０ｍｍ／秒～３００ｍｍ／秒の速度で動かされてもよい。更に、鋳型は、約３０ｐｓｉ～約１０００ｐｓｉ、特に約１００ｐｓｉ～約８００ｐｓｉ、又は約２５０ｐｓｉ～約７５０ｐｓｉの最終圧力まで動かされてもよい。いくつかの実施形態では、鋳型は、皺の形成及び構造繊維の歪みを回避しながら最終的に成形された製品の厚さを制御するために選択された速度及び最終圧力で動かされる。更に、鋳型は、最終的に成形されたパーツの迅速な形成を可能にするために選択された速度及び最終圧力まで動かされてもよい。

【００４５】

その後、雄型と雌型の間の隙間が開かれる。成形された構造体がプレスツール上に残っている間、成形された構造体は、バインダー又はマトリックス材料のガラス転移温度未満まで冷却することができる。しかしながら、いくつかの実施形態では、成形された構造体は、バインダー又はマトリックス材料のガラス転移温度未満に冷却される前にプレスツールから取り出される。本発明のポリメチルペンテン離型フィルムの使用のため、成形された構造体はプレスツールからいっそう容易に除去される。バインダー又はマトリックス材料がガラス転移温度未満に冷却されると、バインダー又はマトリックス材料は固相に戻り、複合材料は新しく形成された形状を保持する。複合材料がプリフォームの場合、そのようなプリフォームは、その後の樹脂注入のためにその望ましい形状を保持する。

【００４６】

成形された構造体が得られた後、クリップ及び／又は留め具が外され、様々なフレームがフィルムから取り外される。その後、フィルム及び硬化複合材料部品が取り出され、フィルムが硬化複合材料部品から剥離される。

【００４７】

本発明によれば、ポリメチルペンテンフィルムは自己剥離性である。したがって、フィルムを最終成形部品から容易に剥離することで、表面の空隙や織りの歪みの兆候なしに、硬化後の成形された複合材料部品の視覚的に優れた表面仕上げを得ることができる。その一方で、フィルムはリサイクルして、二重ダイヤフラム機械的熱成形プロセスのその後のサイクルで再利用することができる。

【００４８】

更に、必要に応じて、最終的に成形された製品上にフィルムが一時的に保持されてもよい。例えば、更なる処理、すなわち仕上げ／塗装などの前に、例えば汚染などの環境から部品を保護するために、一時的なフィルムが望まれる場合がある。

【００４９】

本明細書で使用される「複合材料」という用語は、構造繊維とバインダー又はマトリックス材料との集合体を指す。構造繊維は、有機繊維、無機繊維、又はそれらの混合物であってもよく、例えば、炭素繊維、ガラス繊維、アラミド繊維（例えばケブラー）、高弾性ポリエチレン（ＰＥ）繊維、ポリエステル繊維、ポリｐ－フェニレン－ベンゾビスオキサゾール（ＰＢＯ）繊維、石英繊維、アルミナ繊維、ジルコニア繊維、炭化ケイ素繊維、他のセラミック繊維、玄武岩、天然繊維、及びこれらの混合物などの市販の構造繊維が挙げられる。なお、高強度複合構造体を必要とする最終用途では、典型的には高い引張強さ（例えば≧３５００ＭＰａ又は≧５００ｋｓｉ）を有する繊維が用いられるであろう。そのような構造繊維は、例えば、一方向テープ（ユニテープ）ウェブ、不織マット又はベール、織り生地、編み生地、ノンクリンプ生地、繊維トウ、及びこれらの組み合わせを含む、任意の従来の構成における繊維材料の１つ以上の層を含んでいてもよい。構造繊維は、複

合材料の全体若しくは一部にわたる１つ若しくは複数のプライとして、又はパッドアップ若しくはプライドロップの形で、局所的な厚さの増加／減少を伴って含まれる場合があることに留意すべきである。

【００５０】

繊維質材料は、バインダー又はマトリックス材料によって所定の位置で保持及び安定化され、その結果繊維質材料の配列が維持され、ほころび、ほつれ、引き裂け、座屈、皺、又はその他の繊維質材料の完全性の低下なしに、安定化された材料の保管、輸送、及び取り扱い（例えば成形又は他の変形）を行うことができる。少量のバインダー（例えば典型的には約１０重量％未満）によって保持された繊維質材料は、典型的には繊維質プリフォームと呼ばれる。そのようなプリフォームは、ＲＴＭなどの樹脂注入用途に適しているであろう。繊維質材料は多量のマトリックス材料によって保持されていてもよく（マトリックスを含浸させた繊維を指す場合、一般には「プリプレグ」と呼ばれる）、そのため樹脂を更に添加せずに最終製品を形成するのに適しているであろう。特定の実施形態では、バインダー又はマトリックス材料は、少なくとも約３０％、少なくとも約４５％、少なくとも約４０％、又は少なくとも約４５％の量で複合材料中に存在する。

【００５１】

バインダー又はマトリックス材料は、通常、熱可塑性ポリマー、熱硬化性樹脂、及びそれらの組み合わせから選択される。プリフォームを形成するために使用される場合、そのような熱可塑性ポリマー及び熱硬化性樹脂は、粉末、スプレー、液体、ペースト、フィルム、繊維、及び不織ベールなどの様々な形態で導入することができる。これらの様々な形態を利用するための手段は、一般的に当該技術分野で公知である。

【００５２】

熱可塑性材料としては、例えばポリエステル、ポリアミド、ポリイミド、ポリカーボネート、ポリ（メチルメタクリレート）、ポリ芳香族、ポリエステルアミド、ポリアミドイミド、ポリエーテルイミド、ポリアラミド、ポリアリーレート、ポリアリールエーテルケトン、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルケトンケトン、ポリアクリレート、ポリ（エステル）カーボネート、ポリ（メチルメタクリレート／ブチルアクリレート）、ポリスルホン、ポリアリールスルホン、これらのコポリマー及びこれらの組み合わせが挙げられる。いくつかの実施形態では、熱可塑性材料は、エポキシド又は硬化剤に対する反応性を有するアミン又はヒドロキシル基などの１つ以上の反応性末端基も含んでいてもよい。

【００５３】

熱硬化性材料としては、例えばエポキシ樹脂、ビスマレイミド樹脂、ホルムアルデヒド縮合樹脂（ホルムアルデヒド－フェノール樹脂を含む）、シアネート樹脂、イソシアネート樹脂、フェノール樹脂、及びこれらの混合物が挙げられる。エポキシ樹脂は、芳香族ジアミン、芳香族一級モノアミン、アミノフェノール、多価フェノール、多価アルコール、及びポリカルボン酸からなる群から選択される１種以上の化合物のモノ又はポリグリシジル誘導体であってもよい。エポキシ樹脂は、多官能性（例えば二官能性、三官能性、及び四官能性エポキシ）であってもよい。

【００５４】

いくつかの実施形態では、熱可塑性ポリマーと熱硬化性樹脂との組み合わせが複合材料に使用される。例えば、特定の組み合わせは、流動制御と可撓性に関して相乗効果で作用し得る。このような組み合わせでは、熱可塑性ポリマーはブレンドに対して流動制御と可撓性を付与し、典型的には低粘度で脆い熱硬化性樹脂を支配する。

【００５５】

上述した特定のポリメチルペンテンフィルムの使用は、例えば、そのＸ軸及びＹ軸を横切る十分な張力で複合材料を固定位置に維持することにより、複合材料の成形を支援するだけでなく、重要な追加の機能的利点も与える。例えば、この配置は、空気中又は工具機械上の不純物などの環境汚染物質から複合材料ブランクを保護する。この保護により、二次元のプリフォームを三次元の複雑な形状に加工するために、（保護がなければ扱うこと

ができない）従来のプレスツールを使用できるようになり、真空成形又は再構成可能なツール技術よりも大幅に複雑な三次元の形状が可能になる。更に、二重ダイヤフラム配置を使用すると、プロセス全体から離型プロセスを排除することができる。

【００５６】

したがって、本明細書に記載の二重ダイヤフラム機械的熱成形プロセスは、自動化された方法で二次元の平らなプリフォームから複雑な三次元複合構造体を製造するための効果的且つ効率的な手段を提供し、これは、広い温度範囲にわたって採用することができる離型フィルムとして単層ポリメチルペンテン（ＰＭＰ）フィルムを使用することによって、自動車、ＵＡＭ、及び航空宇宙の市場の両方に対して、表面の空隙や織りの歪みの兆候なしに、硬化後の硬化複合材料部品の視覚的に優れた表面仕上げを提供することが可能である。三次元複合構造体は、大規模で迅速に繰り返し製造することができる。例えば、三次元複合構造体は、望まれる部品及び複合材料の素材が何であるかに応じて、１～１０分サイクル、又は５～２０分サイクル、又は１０～３０分サイクル、又は２０～６０分サイクルで、実質的に平面状の複合材料ブランクから形成することができる。そのような迅速で繰り返し可能なプロセスは、ボンネット、トランク、ドアパネル、フェンダー、及びホイールウェルなどの自動車部品及びパネルの製造、並びにフレーム、リブ、スパー、及びドアなどの航空宇宙／ＵＡＭの部品の製造に適している。

【実施例】

【００５７】

以下の実施例は、例示を目的としているにすぎず、添付の請求項の範囲を限定するものと解釈されるべきではない。

【００５８】

実施例１：本発明による高温ＰＭＰフィルム及びエポキシプリプレグを使用する、フレーム付き二重ダイヤフラム機械的熱成形

７６ミクロンのポリメチルペンテン（ＰＭＰ）フィルム製の下側可撓性ダイヤフラムを、底部フレームを保持するベッド上に配置した。このフィルムは、表１で報告されている特徴を示す。

【００５９】

【表１】

温度耐性(°C)	>205
溶融温度 (°C)	227
弾性率 (E) (MPa)	602 (MD) 614 (TD)
引張強さ (σ) (MPa)	23.7 (MD) 17.3 (TD)
破断点伸び (ε) (%)	288 (MD) 121 (TD)
厚さ (t) (μm)	76

表 1 - 縦方向 (MD)及び横方向(TD)の機械的特性の測定値

【００６０】
炭素繊維強化エポキシ製の複合材料ブランク（Ｓｏｌｖａｙ、旧Ｃｙｔｅｃ　Ｉｎｄｕｓｔｒｉｅｓ、ＣＹＣＯＭ™　ＥＰ２７５０）を下側可撓性ダイヤフラムの上に置き、続いて真空口を有する中央フレームを置いた。その後、下側可撓性ダイヤフラムと同じフィルムで作られている上側可撓性ダイヤフラムを、中央フレーム及び複合材料ブランクを覆うように配置した。上側、中央、及び下側のフレームを一緒にクランプ固定し、それにより、真空気密シールと、下側可撓性ダイヤフラム、上側可撓性ダイヤフラム、及び中央フレームで囲まれた封入ポケットとを形成した。その後、真空圧力が最低６７０ｍｂａｒに到達するまで真空引きして、上側可撓性ダイヤフラムと下側可撓性ダイヤフラムとの間から空気を除去した。その時点で、複合材料ブランクは両方のダイヤフラムによってしっかりと支持され、動かない状態の層状構造体を形成した。
【００６１】
その後、層状構造体をセラミック非接触式加熱装置の中へシャトルで動かし、そこで１５０℃まで加熱した。外側のフィルムの温度が最低１３０℃に到達した後、自動車のＢピラー構造部品の形状に構成された、適合する雄型と雌型とを含むプレスツールの中にこれをシャトルで動かした。次いで、雌型を約４ｍｍ／秒（２５０ｍｍ／分）の速度で雄型に向かって動かした。雄型を動かないままにし、両方の鋳型を架橋が開始するまで１８０℃で保持した。成形された構造体をまだ熱いうちにプレスツールから取り外し、取り外し後に放冷した。複合材料ブランクを成形するプロセスは、開始から終了まで（すなわち下側可撓性ダイヤフラムの最初の配置から最終形状の形成まで）２５分であった。
【００６２】
長手方向ではフィルムの破損は観察されず、横方向では無視できる程度のフィルムの破損が観察された。更に、フィルムの皺は全く見られなかった。本発明によるＰＭＰフィルムの離型性能は、冷却時に若干の自己剥離が見られるものの、非常に良好であった。更に、複合材料部品の表面仕上げは改善され、表面仕上げは光沢を有しており、フィルムから複合材料部品へ、又は複合材料部品からフィルムへの転写は観察されなかった。
【００６３】
フィルムの熱特性は、示差走査熱量計ＴＡＱ２０００を使用することにより示差走査熱量測定（ＤＳＣ）を使用して決定した。加熱／冷却／加熱手順を適用し、－３０℃～３００℃の温度範囲を１０℃／分の冷却及び加熱速度でスクリーニングした。
【００６４】
フィルムの機械的特性は、Ｚｗｉｃｋ　Ｚ２５０試験機を使用してＡＳＴＭ　Ｄ８８２－０９に準拠して決定した。フィルムは、２３℃且つ相対湿度５０％の周囲条件で、約８ｍｍ／秒（５００ｍｍ／分）の試験速度で縦方向及び横方向の両方で試験した。
【００６５】
実施例２：比較例－高温ナイロンフィルム及びエポキシプリプレグを使用する、フレーム付き二重ダイヤフラム機械的熱成形
６５ミクロンのナイロン（ＰＡ６，６６）フィルム（Ａｅｒｏｖａｃ／Ｓｏｌｖａｙ、旧Ｃｙｔｅｃ　Ｉｎｄｕｓｔｒｉｅｓ、ＳＶ３０００）製の下側可撓性ダイヤフラムを、底部フレームを保持するベッド上に配置した。
【００６６】
炭素繊維強化エポキシ製の複合材料ブランク（Ｓｏｌｖａｙ、旧Ｃｙｔｅｃ　Ｉｎｄｕｓｔｒｉｅｓ、ＣＹＣＯＭ™ＥＰ２７５０）を下側可撓性ダイヤフラムの上に置き、続いて真空口を有する中央フレームを置いた。その後、下側可撓性ダイヤフラムと同じフィルムで作られている上側可撓性ダイヤフラムを、中央フレーム及び複合材料ブランクを覆うように配置した。上側、中央、及び下側のフレームを一緒にクランプ固定し、それにより、真空気密シールと、下側可撓性ダイヤフラム、上側可撓性ダイヤフラム、及び中央フレームで囲まれた封入ポケットとを形成した。その後、真空圧力が最低６７０ｍｂａｒに到達するまで真空引きして、上側可撓性ダイヤフラムと下側可撓性ダイヤフラムとの間から空気を除去した。その時点で、複合材料ブランクは両方のダイヤフラムによってしっか

りと支持され、動かない状態の層状構造体を形成した。

【００６７】

その後、層状構造体をセラミック非接触式加熱装置の中へシャトルで動かし、そこで１５０℃まで加熱した。外側のフィルムの温度が最低１３０℃に到達した後、自動車のＢピラー構造部品の形状に構成された、適合する雄型と雌型とを含むプレスツールの中にこれをシャトルで動かした。次いで、雌型を約４ｍｍ／秒の速度で雄型に向かって動かした。雄型を動かないままにし、両方の鋳型を架橋が開始するまで１８０℃で保持した。成形された構造体をまだ熱いうちにプレスツールから取り外し、取り外し後に放冷した。複合材料ブランクを成形するプロセスは、開始から終了まで（すなわち下側可撓性ダイヤフラムの最初の配置から最終形状の形成まで）２５分であった。

【００６８】

良好なフィルムの熱的及び機械的性能のため、フィルムの縦方向及び横方向の両方の向きで、フィルムの破損、溶融、及び／又は割れが無視できる程度であったことが観察できる。それでも、フィルムの引張強さが大きいことに起因して、部品表面に若干のフィルムの皺が見られた。しかしながら、ＤＤＦ処理後、フィルムが硬化した部品表面に強い化学的接着を示したため、剥離性能は非常に劣っていた。そのため、部品表面の品質を定量化することはできなかった。

【００６９】

実施例３：ＰＭＰフィルムのリサイクル

厚さ７５ミクロンのポリ（４－メチル１－ペンテン）（ＰＭＰ）フィルムを、３つの加熱ゾーンを備えた直径２０ｍｍのＣｏｌｌｉｎ単軸押出機（Ｌ／Ｄ＝２５／１）を通して造粒した。押出機の温度プロファイルは、ゾーン１～３について２３０、２５０、及び２６０℃に設定した。溶融温度は２６０℃であった。ロールを備えた冷却ロールに押出物を室温で通し、次いでＳｃｈｅｅｒ造粒機を使用して造粒した。次いで、回収した顆粒を、３つの加熱ゾーンを備えた直径３０ｍｍのＣｏｌｌｉｎ単軸押出機（Ｌ／Ｄ＝２５／１）を通して押し出す。押出機の温度プロファイルは、ゾーン１～３について２３０、２５０、及び２６０℃に設定した。溶融温度は２６０℃であった。押出物を、２６０℃に維持されたフィルムダイに通した後、５０℃に維持されたローラー上にキャストし、続いて室温に設定された冷却ロール上にキャストした。得られたフィルムの厚さは3ミル（７５μｍ）であった。

【００７０】

フィルムの熱特性は、示差走査熱量計ＴＡＱ２０００を使用することによって示差走査熱量測定（ＤＳＣ）を使用して決定した。加熱／冷却／加熱の手順を適用し、－３０℃～３００℃の温度範囲を１０℃／分の冷却及び加熱速度でスクリーニングした。

【００７１】

フィルムの機械的特性は、Ｚｗｉｃｋ　Ｚ２５０試験機を使用してＡＳＴＭ　Ｄ８８２－０９に準拠して決定した。フィルムは、２３℃且つ相対湿度５０％の周囲条件で、約８ｍｍ／秒（５００ｍｍ／分）の試験速度で縦方向及び横方向の両方で試験した。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2022/060621

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. B29C70/54 B29C33/68 B29C37/00
ADD.

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)
B29C

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

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP 0 017 452 A1 (STOREY BROTHERS & CO [GB]) 15 October 1980 (1980-10-15) page 7, lines 1-3; claim 1 page 6, lines 4-26	1-17
Y	JP 2012 218257 A (SUMITOMO BAKELITE CO) 12 November 2012 (2012-11-12) paragraphs [0006] - [0008], [0023] - [0025]; claim 1	1-17
A	US 3 042 574 A (JEROME HOCHBERG) 3 July 1962 (1962-07-03) figure 5; example 4	1-17

☐ 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
8 July 2022	04/08/2022

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Van Wallene, Allard

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (April 2005)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No
PCT/EP2022/060621

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0017452 A1	15-10-1980	EP 0017452 A1	15-10-1980
		GB 2051655 A	21-01-1981
JP 2012218257 A	12-11-2012	JP 5704449 B2	22-04-2015
		JP 2012218257 A	12-11-2012
US 3042574 A	03-07-1962	NONE	

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (April 2005)

フロントページの続き

MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,NE,SN,TD,TG),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,JM,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

Ｆターム（参考） 4F204 AC03 AD16 AJ03 FA01 FA15 FB01 FF06 FG09 FN11 FN15 FQ38
4F205 AC03 AD16 AJ03 HA08 HA25 HA37 HA45 HB01 HK03 HK04 HT20