(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
2018年11月1日(01.11.2018)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2018/199154 A1

(51) 国際特許分類:
B29B 11/16 (2006.01) *B29K 105/08* (2006.01)
B29C 70/06 (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2018/016779

(22) 国際出願日： 2018年4月25日(25.04.2018)

(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 2017-085860 2017年4月25日(25.04.2017) JP

(71) 出願人: 三菱ケミカル株式会社(**MITSUBISHI CHEMICAL CORPORATION**) [JP/JP]; 〒1008251 東京都千代田区丸の内一丁目１番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 小並 諭吉 (**KONAMI Yukichi**); 〒1008251 東京都千代田区丸の内一丁目１番１号 三菱ケミカル株式会社内 Tokyo (JP).

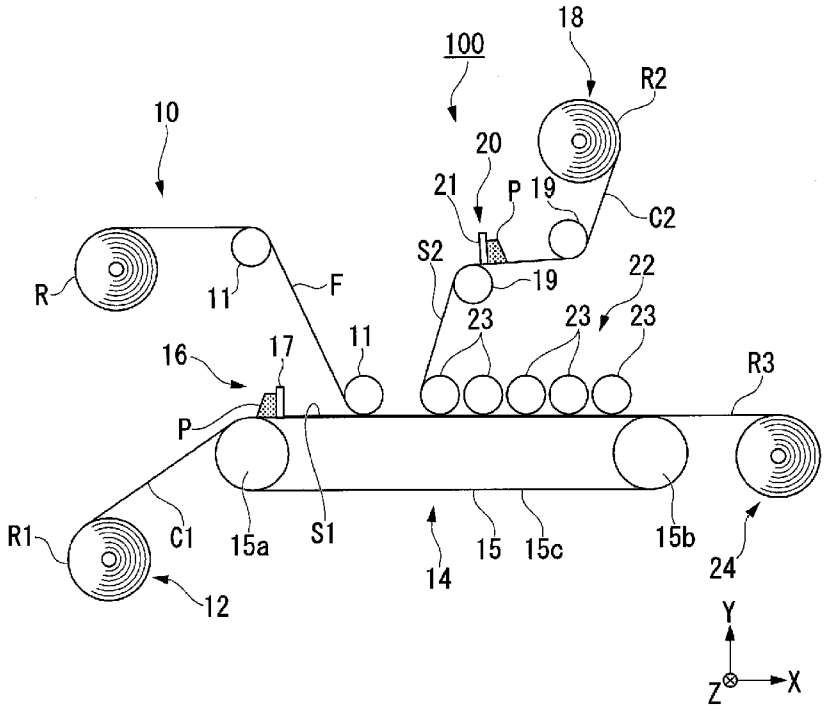
(74) 代理人: 田▲崎▼ 聡, 外 (**TAZAKI Akira** et al.); 〒1006620 東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 Tokyo (JP).

(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,

WO 2018/199154 A1

(54) **Title:** FIBER-REINFORCED RESIN MOLDING MATERIAL AND METHOD FOR MANUFACTURING SAME, AND FIBER-REINFORCED RESIN MOLDED ARTICLE

(54) 発明の名称： 繊維強化樹脂成形材料及びその製造方法、並びに繊維強化樹脂成形品



(57) **Abstract:** The purpose of the present invention is to provide a fiber-reinforced resin molding material with which a lightweight and high intensity fiber-reinforced resin molded article can be easily obtained, and a method for manufacturing a fiber-reinforced resin molding material. The fiber-reinforced resin molding material comprises a reinforced fiber sheet having a basis weight of 200 g/m^2 or more and 3,000 g/m^2 or less, the reinforced fiber

[続葉有]

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, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, 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:

— 国際調査報告(条約第21条(3))

sheet being impregnated with 25 vol.% or more and 55 vol.% or less of a resin composition. When it is assumed that a total amount of the resin composition contained in the fiber-reinforced resin molding material is 100 mass%, that a thickness from a first surface in a thickness direction of the fiber-reinforced resin molding material to a position occupied by 10 mass% of the resin composition is d1 (μm), and that a thickness from a second surface on a side opposite to the first surface to a position occupied by 10 mass% of the resin composition is d2 (μm), an absolute value (|d1 − d2|) of a difference between d1 and d2 is 50 μm or less. Also, the method for manufacturing a fiber-reinforced resin molding material comprises: impregnating a reinforced fiber sheet with a resin composition of which the initial viscosity is 1 Pa·s or less and of which the viscosity after left for 7 days at 25°C is 5,000 Pa·s or more and 150,000 Pa·s or less.

(57) 要約:軽量かつ高強度な繊維強化樹脂成形品を簡便に得ることができる繊維強化樹脂成形材料、及び、繊維強化樹脂成形材料の製造方法を提供することを目的とする。目付が２００ｇ／ｍ^{2}以上３，０００ｇ／ｍ^{2}以下の強化繊維シートに樹脂組成物が２５体積％以上５５体積％以下含浸された繊維強化樹脂成形材料であって、繊維強化樹脂成形材料に含まれる樹脂組成物の総量を１００質量％としたとき、繊維強化樹脂成形材料の厚さ方向の第１面から１０質量％の樹脂組成物が占める位置までの厚さをｄ１（μｍ）とし、第１面と反対側の第２面から１０質量％の樹脂組成物が占める位置までの厚さをｄ２（μｍ）としたとき、ｄ１とｄ２の差の絶対値（｜ｄ１－ｄ２｜）が５０μｍ以下である、繊維強化樹脂成形材料。また、強化繊維シートに、初期粘度が１Ｐａ・ｓ以下であり、２５℃で７日間静置した後の粘度が５，０００Ｐａ・ｓ以上１５０，０００Ｐａ・ｓ以下である樹脂組成物を含浸させる、繊維強化樹脂成形材料の製造方法。

明　細　書

発明の名称 ：

繊維強化樹脂成形材料及びその製造方法、並びに繊維強化樹脂成形品

技術分野

[0001] 本発明は、繊維強化樹脂成形材料及びその製造方法、並びに繊維強化樹脂成形品に関する。

本願は、２０１７年４月２５日に、日本出願された特願２０１７－０８５８６０号に基づき優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] 航空機、車両、船舶、建造物等の構造材料、ゴルフシャフト、釣竿、テニスラケット等のスポーツ用具等においては、軽量で高強度であるため、繊維強化樹脂成形品が広く用いられている。

[0003] 繊維強化樹脂成形品の製造に用いる繊維強化樹脂成形材料としては、強化繊維からなる連続繊維（長繊維）で形成された強化繊維シートに樹脂組成物が含浸されたプリプレグが広く用いられている。例えば、複数枚のプリプレグを成形型内に積層した後、前記成形型により加熱、加圧することにより繊維強化樹脂成形品が得られる。プリプレグにおける樹脂組成物としては、多くの場合、熱硬化性樹脂組成物が用いられ、機械特性が良好である点から、エポキシ樹脂組成物がよく用いられる（特許文献１、２）。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開２０１２－１６７２２９号公報

特許文献2：特開２０１５－２０９５４９号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 引用文献１、２のような従来のプリプレグを用いた繊維強化樹脂成形品よりも軽量で、より高強度な繊維強化樹脂成形品を得ることができれば、様々

な分野において有用である。また、従来のプリプレグを用いる場合、特に肉厚な繊維強化樹脂成形品を製造する際に、プリプレグの積層枚数が多くなりやすく、また積層するプリプレグがずれた場合に積層し直す作業が困難であり、製造が煩雑である。

[0006] 本発明は、軽量かつ高強度な繊維強化樹脂成形品を簡便に得ることができる繊維強化樹脂成形材料、及び前記繊維強化樹脂成形材料の製造方法、並びに前記繊維強化樹脂成形材料を用いた繊維強化樹脂成形品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] 本発明は、以下の構成を有する。

［１］ 目付が２００ｇ／ｍ^{2}以上３，０００ｇ／ｍ^{2}以下の強化繊維シートに樹脂組成物が２５体積％以上５５体積％以下含浸された繊維強化樹脂成形材料であって、

繊維強化樹脂成形材料に含まれる樹脂組成物の総量を１００質量％としたとき、

繊維強化樹脂成形材料の厚さ方向の第１面から１０質量％の樹脂組成物が占める位置までの厚さをｄ１（μｍ）とし、

第１面と反対側の第２面から１０質量％の樹脂組成物が占める位置までの厚さをｄ２（μｍ）としたとき、

ｄ１とｄ２の差の絶対値（｜ｄ１－ｄ２｜）が５０μｍ以下である、繊維強化樹脂成形材料。

［２］ 前記強化繊維シートが、複数本の連続繊維が一方向に引き揃えられた一方向シート、連続繊維が製織された織物、及び連続繊維を含むノンクリンプファブリックからなる群から選ばれる少なくとも１種からなる、［１］に記載の繊維強化樹脂成形材料。

［３］ 前記強化繊維シートがノンクリンプファブリックである、［２］に記載の繊維強化樹脂成形材料。

［４］ 前記強化繊維シートの目付に対する、前記ｄ１とｄ２の和の比率

であるＲが０．２以上０．５以下である、［１］～［３］のいずれかに記載の繊維強化樹脂成形材料。

［５］　前記ｄ１又はｄ２の少なくとも一方が５μｍ以上７５０μｍ以下の範囲である、［１］～［４］のいずれかに記載の繊維強化樹脂成形材料。

［６］　前記強化繊維シートの目付が４００ｇ／ｍ^{2}以上である、［１］～［５］のいずれかに記載の繊維強化樹脂成形材料。

［７］　前記樹脂組成物が、ビニルエステル樹脂を含有する、［１］～［６］のいずれかに記載の繊維強化樹脂成形材料。

［８］　［１］～［７］のいずれかに記載の繊維強化樹脂成形材料を成形してなる繊維強化樹脂成形品。

［９］　複数本の連続繊維が一方向に引き揃えられた一方向シート、連続繊維が製織された織物、及び連続繊維を含むノンクリンプファブリックからなる群から選ばれる少なくとも１種からなる強化繊維シートに、

初期粘度が１Ｐａ・ｓ以下であり、２５℃で７日間静置した後の粘度が５，０００Ｐａ・ｓ以上１５０，０００Ｐａ・ｓ以下である樹脂組成物を含浸させる、繊維強化樹脂成形材料の製造方法。

発明の効果

[0008] 本発明の繊維強化樹脂成形材料を用いれば、軽量かつ高強度な繊維強化樹脂成形品を簡便に得ることができる。

本発明の繊維強化樹脂成形材料の製造方法によれば、軽量かつ高強度な繊維強化樹脂成形品を簡便に得ることができる繊維強化樹脂成形材料を製造できる。

本発明の繊維強化樹脂成形品は、簡便に製造でき、軽量かつ高強度である。

図面の簡単な説明

[0009] [図1]本発明の繊維強化樹脂成形材料の製造に用いる製造装置の一例を示した概略構成図である。

発明を実施するための形態

[0010] ［繊維強化樹脂成形材料］

本発明の繊維強化樹脂成形材料は、強化繊維シートに樹脂組成物が含浸された繊維強化樹脂成形材料である。

[0011] 強化繊維シートは、複数本の連続繊維が一方向に引き揃えられた一方向シート（ＵＤシート）、連続繊維が製織された織物（クロス材）、及び連続繊維を含むノンクリンプファブリック（ＮＣＦ）からなる群から選ばれる少なくとも１種である。

本発明において、連続繊維とは、少なくとも一方向に７５ｍｍ以上の長さにわたり連続した強化繊維を意味し、好ましくは５００，０００ｍｍ以下、より好ましくは１００ｍｍ以上１０，０００ｍｍ以下の長さにわたり連続した強化繊維を意味する。なお、前記長さの範囲の上限は、強化繊維シートの原料となる炭素繊維の１ボビン当たりの巻量であってもよい。

[0012] 強化繊維シートとしては、一方向シート、織物又はノンクリンプファブリックのいずれか１つを単独で使用してもよく、一方向シート、織物及びノンクリンプファブリックのうちの２種以上を組み合わせて使用してもよい。強化繊維シートとしては、強度の点から、織物、ノンクリンプファブリックが好ましく、連続繊維のクリンプが小さく、機械特性に優れる強化繊維複合成形品が得られることから、ノンクリンプファブリックがより好ましい。

[0013] 織物の織り方としては、特に限定されず、例えば、平織、綾織、朱子織、簾織り、三軸織等が挙げられる。

[0014] ノンクリンプファブリックは、複数本の連続繊維が互いを交錯させない状態で経編組織を形成する補助繊維糸により一体化されたシート状の基材である。ノンクリンプファブリックとしては、公知の態様を採用でき、例えば、複数本の連続繊維が一方向に層状に並列した層を１層又は２層以上を有する形態が挙げられる。ノンクリンプファブリックが有する層が２層以上である場合、各層の連続繊維の繊維軸方向は平行になっていてもよく、交差していてもよい。

[0015] 補助繊維糸としては、特に限定されず、例えば、ポリエステル、ポリアミ

ド、ポリエチレン、ポリ乳酸等からなるモノフィラメント糸もしくはマルチフィラメント糸、アラミド繊維、綿糸、絹糸等が挙げられる。

[0016] 連続繊維としては、特に限定されず、例えば、無機繊維、有機繊維、金属繊維、又はこれらを組み合わせたハイブリッド構成の強化繊維が挙げられる。

無機繊維としては、炭素繊維、黒鉛繊維、炭化珪素繊維、アルミナ繊維、タングステンカーバイド繊維、ボロン繊維、ガラス繊維等が挙げられる。有機繊維としては、アラミド繊維、高密度ポリエチレン繊維、その他一般のナイロン繊維、ポリエステル繊維等が挙げられる。金属繊維としては、ステンレス、鉄等の繊維が挙げられ、また金属を被覆した炭素繊維でもよい。連続繊維としては、１種を単独で使用してもよく、２種以上を併用してもよい。

連続繊維の平均繊維直径は、１μｍ以上５０μｍ以下が好ましく、５μｍ以上２０μｍ以下がより好ましい。

[0017] 連続繊維としては、繊維強化樹脂成形品の強度等の機械物性の点から、炭素繊維が好ましい。

炭素繊維としては、ＪＩＳ　Ｒ　７６０１：１９８６に準じて測定したストランド引張強度が１．０ＧＰａ以上９．０ＧＰａ以下のものが好ましく、１．５ＧＰａ以上９．０ＧＰａ以下のものがより好ましい。

炭素繊維としては、ＪＩＳ　Ｒ　７６０１：１９８６に準じて測定したストランド引張弾性率が１５０ＧＰａ以上１０００ＧＰａ以下のものが好ましく、２００ＧＰａ以上１０００ＧＰａ以下のものがより好ましい。

[0018] 強化繊維シートの目付は、２００ｇ／ｍ^{2}以上３，０００ｇ／ｍ^{2}以下であり、３００ｇ／ｍ^{2}以上２，５００ｇ／ｍ^{2}以下が好ましく、４００ｇ／ｍ^{2}以上２，０００ｇ／ｍ^{2}以下がより好ましい。強化繊維シートの目付が２００ｇ／ｍ^{2}以上、好ましくは３００ｇ／ｍ^{2}以上、より好ましくは４００ｇ／ｍ^{2}以上であれば、肉厚な繊維強化樹脂成形品を製造する場合でも強化繊維シートの積層枚数を少なくでき、作業性に優れるため、繊維強化樹脂成形品の製造が容易になる。また、高強度な繊維強化樹脂成形品が得られるうえ、得られ

る繊維強化樹脂成形品の性能変動も小さい。強化繊維シートの目付が３，０００ｇ／ｍ^{2}以下、好ましくは２，５００ｇ／ｍ^{2}以下、より好ましくは２，０００ｇ／ｍ^{2}以下であれば、強化繊維シートへの樹脂組成物の含浸性が優れる。

[0019] 本発明の繊維強化樹脂成形材料における樹脂組成物の含有量は、繊維強化樹脂成形材料の総体積に対して、２５体積％以上５５体積％以下であり、３０体積％以上５０体積％以下が好ましく、３５体積％以上４５体積％以下がより好ましい。樹脂組成物の含有量が５５体積％以下、好ましくは５０体積％以下、より好ましくは４５体積％以下であれば、軽量な繊維強化樹脂成形品を得ることができ、また連続繊維の割合が相対的に高くなることで繊維強化樹脂成形品が高強度となる。また、繊維強化樹脂成形材料の表面のタック性が高くなりすぎることを抑制できる。そのため、例えば複数の繊維強化樹脂成形材料を積層する際に位置がずれ、一旦積層した繊維強化樹脂成形材料の積層をやり直す場合でも、繊維強化樹脂成形材料同士が密着して作業が困難になることを抑制できる。樹脂組成物の含有量が２５体積％以上、好ましくは３０体積％以上、より好ましくは３５体積％以上であれば、樹脂枯れが生じて繊維強化樹脂成形品の外観が劣ることを抑制できる。

[0020] 繊維強化樹脂成形材料に含まれる樹脂組成物の総量を１００質量％としたとき、繊維強化樹脂成形材料の厚さ方向の第１面から１０質量％の樹脂組成物が占める位置までの厚さをｄ１（μｍ）とし、第１面と反対側の第２面から１０質量％の樹脂組成物が占める位置までの厚さをｄ２（μｍ）とする。このとき、ｄ１とｄ２の差の絶対値（｜ｄ１－ｄ２｜）は、５０μｍ以下であり、２０μｍ以下が好ましく、１５μｍ以下がさらに好ましい。ｄ１とｄ２の差の絶対値が前記範囲の上限値以下であれば、繊維強化樹脂成形材料の表面のタック性が過度に高くなることを抑制しやすい。そのため、例えば複数の繊維強化樹脂成形材料を積層する際に位置がずれ、一旦積層した繊維強化樹脂成形材料の積層をやり直す場合でも、繊維強化樹脂成形材料同士がより密着しにくく作業が容易になる。

また、ｄ１とｄ２の和が、１０μｍ以上１５００μｍ以下であるのが好ましい。より好ましくは１５μｍ以上１２００μｍ以下であり、さらに好ましくは２０μｍ以上１０００μｍ以下であり、特に好ましくは３０μｍ以上８００μｍ以下である。ｄ１とｄ２の和が１０μｍ以上、より好ましくは１５μｍ以上、さらに好ましくは２０μｍ以上、特に好ましくは３０μｍ以上であることによって、繊維強化樹脂成形材料のタック性が過度に高くなることを抑制しやすい。そのため、例えば複数の繊維強化樹脂成形材料を積層する際に位置がずれ、一旦積層した繊維強化樹脂成形材料の積層をやり直す場合でも、繊維強化樹脂成形材料同士がより密着しにくく作業が容易になる。また、ｄ１とｄ２の和が１５００μｍ以下、より好ましくは１２００μｍ以下、さらに好ましくは１０００μｍ以下、特に好ましくは８００μｍ以下であることによって、繊維強化樹脂成形材料のタック性が充分となるため、積層した繊維強化樹脂成形材料がずれにくくなる。

尚、本発明における厚さ方向の第１面とは、繊維強化樹脂成形材料の製造時における下側（重力の方向）の面であり、繊維強化樹脂成形材料を図１に例示される製造装置１００にて製造する場合においては、キャリアフィルム搬送部１４に接する面であり、反対側の第２面とは、前記第１面の反対側に位置する面の事である。

さらに、本発明の繊維強化樹脂成形材料においては、前記強化繊維シートの目付（ｇ／ｍ^2）に対する、前記ｄ１とｄ２の和（μｍ）の比率Ｒ（（ｄ１＋ｄ２）／（目付））が、０．２以上０．５以下の範囲であるのが好ましい。より好ましくは、０．２以上０．４以下であり、さらに好ましくは０．２５以上０．３以下である。

これは、Ｒの値が、０．２以上、より好ましくは０．２５以上であることによって、繊維強化樹脂成形材料のタック性が過度に高くなることを抑制しやすい傾向にあるためである。また、Ｒの値が、０．５以下、より好ましくは０．４以下、さらに好ましくは０．３以下であることによって、繊維強化樹脂成形材料のタック性が充分となるため、積層した繊維強化樹脂成形材料

がずれにくくなる傾向にあるためである。

[0021] 厚さｄ１は、５μｍ以上７５０μｍ以下が好ましく、７μｍ以上６００μｍ以下が好ましく、１０μｍ以上５００μｍ以下がさらに好ましく、１５μｍ以上４００μｍ以下が特に好ましい。厚さｄ１が５μｍ以上、より好ましくは７μｍ以上、さらに好ましくは１０μｍ以上、特に好ましくは１５μｍ以上であれば、繊維強化樹脂成形材料の第１面のタック性が過度に高くなることを抑制しやすい。そのため、例えば複数の繊維強化樹脂成形材料を積層する際に位置がずれ、一旦積層した繊維強化樹脂成形材料の積層をやり直す場合でも、繊維強化樹脂成形材料同士がより密着しにくく作業が容易になる。厚さｄ１が７５０μｍ以下、より好ましくは６００μｍ以下、さらに好ましくは５００μｍ以下、特に好ましくは４００μｍ以下であれば、繊維強化樹脂成形材料の第１面のタック性が充分となるため、積層した繊維強化樹脂成形材料がずれにくくなる。

厚さｄ２の好ましい範囲は、厚さｄ１と同様の第２面におけるタック性の理由から、５μｍ以上７５０μｍ以下が好ましく、７μｍ以上６００μｍ以下がより好ましく、１０μｍ以上５００μｍ以下が好ましく、１５μｍ以上４００μｍ以下が特に好ましい。

[0022] 本発明の繊維強化樹脂成形材料の繊維体積含有率（Ｖｆ）は、４５体積％以上７５体積％以下が好ましく、５０体積％以上７０体積％以下がより好ましく、５５体積％以上６５体積％以下がさらに好ましい。繊維体積含有率（Ｖｆ）が４５体積％以上、より好ましくは５０体積％以上、さらに好ましくは５５体積％以上であれば、高強度な繊維強化樹脂成形品が得られやすい。繊維体積含有率（Ｖｆ）が７５体積％以下、より好ましくは７０体積％以下、さらに好ましくは６５体積％以下であれば、含浸性に優れ、樹脂枯れを抑制しやすく、外観に優れた繊維強化樹脂成形品が得られやすい。

なお、繊維体積含有率（Ｖｆ）は、ＪＩＳ　Ｋ７０７５に準拠する測定方法で得られる値である。

[0023] 樹脂組成物は、熱硬化性樹脂を含むことが好ましい。熱硬化性樹脂として

は、例えば、エポキシ樹脂、ビニルエステル樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、ポリイミド樹脂、マレイミド樹脂、フェノール樹脂等が挙げられる。熱硬化性樹脂としては、１種を単独で使用してもよく、２種以上を併用してもよい。

[0024] 熱硬化性樹脂としては、炭素繊維との接着性の点から、エポキシ樹脂、ビニルエステル樹脂が好ましく、軽量かつ高強度な繊維強化樹脂成形品を製造できる繊維強化樹脂成形材料が得られやすい点から、ビニルエステル樹脂がより好ましい。

[0025] ビニルエステル樹脂としては、分子内にエポキシ基を２個以上有するエポキシ化合物と、（メタ）アクリル酸と、必要に応じて多塩基酸又はその無水物とを付加反応させて得られる樹脂が好ましい。

[0026] エポキシ化合物としては、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、水素化ビスフェノール型エポキシ樹脂、フェノール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等のエポキシ樹脂；ネオペンチルグリコールジグリシジルエーテル、ポリプロピレングリコールジグリシジルエーテル、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテル等の多価アルコールのグリシジルエーテル；フタル酸ジグリシジルエーテル、ダイマー酸ジグリシジルエーテル等の多塩基酸のグリシジルエステル等が挙げられる。エポキシ化合物としては、１種を単独で使用してもよく、２種以上を併用してもよい。

[0027] 多塩基酸又はその無水物としては、例えば、マレイン酸、無水マレイン酸、フマル酸、イタコン酸等のα，β－不飽和二塩基酸；シュウ酸、マロン酸、コハク酸等の飽和二塩基；ピロメリット酸；トリメリット酸；トリマー酸；カルボキシル基を有するポリブタジエン；カルボキシル基を有するブタジエン－アクリルニトリル共重合体；α，β－不飽和二塩基酸及び／又は飽和二塩基酸と多価アルコールのエステル化により得られる末端にカルボキシル基を有する化合物等が挙げられる。多塩基酸又はその無水物としては、１種を単独で使用してもよく、２種以上を併用してもよい。

[0028] 樹脂組成物中の熱硬化性樹脂の含有量は、樹脂組成物の総体積に対して、３０体積％以上５０体積％以下が好ましく、３５体積％以上４５体積％以下がより好ましい。熱硬化性樹脂の含有量が前記範囲の下限値以上であれば、高強度な繊維強化樹脂成形品が得られやすい。熱硬化性樹脂の含有量が前記範囲の上限値以下であれば、含浸性に優れ、樹脂枯れを抑制しやすく、外観に優れた繊維強化樹脂成形品が得られやすい。

[0029] なお、樹脂組成物は、ポリアミド樹脂、ポリオレフィン樹脂等の熱可塑性樹脂を含むものであってもよい。

樹脂組成物は、繊維強化樹脂材料成形品の要求物性に応じて、硬化剤、難燃剤、耐候性改良剤、酸化防止剤、熱安定剤、紫外線吸収剤、可塑剤、滑剤、着色剤、相溶化剤、導電性フィラー等の添加剤を含んでいてもよい。これら添加剤としては、１種を単独で使用してもよく、２種以上を併用してもよい。

[0030] 硬化剤としては、使用する樹脂組成物に適した公知のものを使用できる。例えばビニルエステル樹脂、不飽和ポリエステル樹脂を用いる場合には一般的な有機過酸化物が好ましい。エポキシ樹脂の場合はアミン系や酸無水物系の硬化剤が好ましい。

[0031] 以上説明したように、本発明の繊維強化樹脂成形材料においては、前記した一方向シート、織物、及びノンクリンプファブリックから選ばれる少なくとも１種からなり、目付が２００ｇ／ｍ^{2}以上３，０００ｇ／ｍ^{2}以下の強化繊維シートに、含有量が２５体積％以上５５体積％以下となるように樹脂組成物が含浸されている。強化繊維シートが前記範囲を満たすような高目付であることで、肉厚な繊維強化樹脂成形品を製造する場合でも、繊維強化樹脂成形材料の積層枚数を少なくすることができる。また、樹脂組成物の含有量が前記範囲を満たすような少ない量であるため、繊維強化樹脂成形材料の表面のタック性が過度に高くなることを抑制できる。そのため、例えば複数の繊維強化樹脂成形材料を積層する際に位置がずれ、一旦積層した繊維強化樹脂成形材料の積層をやり直す場合でも、繊維強化樹脂成形材料同士がより密

着しにくく作業が容易になる。これらのことから、本発明の繊維強化樹脂成形材料を用いることで、繊維強化樹脂成形品を簡便に製造することができる。

また、樹脂組成物の含有量が少ないことで、繊維強化樹脂成形品を軽量化できるうえ、連続繊維の含有量が相対的に高くなることで高強度な繊維強化樹脂成形品が得られる。

[0032] ［繊維強化樹脂成形材料の製造方法］

本発明の繊維強化樹脂成形材料の製造方法は、前記した本発明の繊維強化樹脂成形材料を製造する方法である。繊維強化樹脂成形材料の製造方法では、複数本の連続繊維が一方向に引き揃えられた一方向シート、連続繊維が製織された織物、及び連続繊維を含むノンクリンプファブリックからなる群から選ばれる少なくとも１種からなり、目付が２００ｇ／ｍ^{2}以上３，０００ｇ／ｍ^{2}以下の強化繊維シートに樹脂組成物を含浸させ、樹脂組成物の含有量が２５体積％以上５５体積％以下である繊維強化樹脂成形材料を得る。

[0033] 以下、繊維強化樹脂成形材料の製造方法の一例について、図１に基づいて説明する。

なお、以下の説明において例示される図の寸法等は一例であって、本発明はそれらに必ずしも限定されるものではなく、その要旨を変更しない範囲で適宜変更して実施することが可能である。

[0034] 本実施形態では、図１に例示した繊維強化樹脂成形材料の製造装置１００（以下、単に「製造装置１００」という。）を用いる。以下の説明においては、ＸＹＺ直交座標系を設定し、必要に応じてこのＸＹＺ直交座標系を参照しつつ各部材の位置関係について説明する。

[0035] 製造装置１００は、強化繊維シート供給部１０と、第１巻出機１２と、キャリアフィルム搬送部１４と、第１塗工部１６と、第２巻出機１８と、第２塗工部２０と、含浸部２２と、巻取機２４と、を備えている。

[0036] 第１巻出機１２には、長尺の第１キャリアフィルムＣ１が巻かれた第１原反ロールＲ１が設置されている。第１巻出機１２により、第１原反ロールＲ

１から長尺の第１キャリアフィルムＣ１が巻き出され、キャリアフィルム搬送部１４へと供給される。

[0037] キャリアフィルム搬送部１４は、一対のプーリ１５ａ，１５ｂの間に無端ベルト１５ｃを掛け合わせたコンベア１５を備えている。コンベア１５では、一対のプーリ１５ａ，１５ｂを同一方向に回転させることによって無端ベルト１５ｃを周回させ、無端ベルト１５ｃの面上において第１キャリアフィルムＣ１をＸ軸方向の右側に向けて搬送する。無端ベルト１５ｃとしては、例えば、メッシュベルトを使用することができる。

[0038] 第１塗工部１６は、キャリアフィルム搬送部１４におけるプーリ１５ａ側の直上に位置しており、樹脂組成物Ｐを塗工するドクターブレード１７を備えている。第１キャリアフィルムＣ１が第１塗工部１６を通過することで、ドクターブレード１７により第１キャリアフィルムＣ１の面上に樹脂組成物Ｐが所定の厚みで塗工され、第１樹脂シートＳ１が形成される。第１樹脂シートＳ１は、第１キャリアフィルムＣ１の搬送に伴って走行する。

[0039] 強化繊維シート供給部１０は、長尺の強化繊維シートＦを供給する部分である。この例の強化繊維シート供給部１０では、強化繊維シートＦがボビンに巻かれた原反ロールＲがクリールによって回転自在に保持された状態になっている。強化繊維シート供給部１０により供給される強化繊維シートＦは、ガイドロール１１によって第１キャリアフィルムＣ１の搬送に伴って走行する第１樹脂シートＳ１上に連続的に積層されるようになっている。

[0040] 第２巻出機１８には、長尺の第２キャリアフィルムＣ２が巻かれた第２原反ロールＲ２が設置されている。第２巻出機１８により、第２原反ロールＲ２から長尺の第２キャリアフィルムＣ２が巻き出され、複数のガイドロール１９により、キャリアフィルム搬送部１４上における強化繊維シートＦが供給される位置よりも下流側に供給される。第２巻出機１８から巻き出された第２キャリアフィルムＣ２は、第１キャリアフィルムＣ１の搬送方向とは反対方向（Ｘ軸方向の左側）に搬送された後、搬送方向が複数のガイドロール１９によって第１キャリアフィルムＣ１と同じ方向に反転される。

[0041] 第２塗工部２０は、第１キャリアフィルムＣ１の搬送方向と反対方向に搬送されている第２キャリアフィルムＣ２の直上に位置し、樹脂組成物Ｐを塗工するドクターブレード２１を備えている。第２キャリアフィルムＣ２が第２塗工部２０を通過することで、ドクターブレード２１により第２キャリアフィルムＣ２の面上に樹脂組成物Ｐが所定の厚みで塗工され、第２樹脂シートＳ２が形成される。第２樹脂シートＳ２は、第２キャリアフィルムＣ２の搬送に伴って走行する。

[0042] 含浸部２２は、強化繊維シートＦ上に第２樹脂シートＳ２を貼り合せて加圧し、強化繊維シートＦに樹脂組成物Ｐを含浸させて繊維強化樹脂成形材料とする部分である。含浸部２２は、キャリアフィルム搬送部１４上における強化繊維シートＦが供給される位置よりも下流側に位置している。含浸部２２は、複数の加圧ロール２３を備えている。複数の加圧ロール２３は、第１キャリアフィルムＣ１と同じ方向に反転された第２キャリアフィルムＣ２の背面、すなわち第２樹脂シートＳ２と反対側の面に接するように配置されている。

[0043] 含浸部２２では、第１キャリアフィルムＣ１と第２キャリアフィルムＣ２とが、その間に第１樹脂シートＳ１、強化繊維シートＦ及び第２樹脂シートＳ２を挟み込んだ状態で重ね合わされ、複数の加圧ロール２３で加圧されながら搬送される。これにより、第１樹脂シートＳ１及び第２樹脂シートＳ２の樹脂組成物Ｐが強化繊維シートＦに含浸されて繊維強化樹脂成形材料の原反Ｒ３が得られる。

[0044] 原反Ｒ３は、巻取機２４に巻き取られるようになっている。原反Ｒ３は、所定の長さに切断して成形に使用することができる。なお、第１キャリアフィルムＣ１及び第２キャリアフィルムＣ２は、成形前に繊維強化樹脂成形材料から剥離される。

[0045] 製造装置１００を用いる繊維強化樹脂成形材料の製造方法では、第１巻出機１２により第１原反ロールＲ１から長尺の第１キャリアフィルムＣ１を巻き出し、キャリアフィルム搬送部１４へと供給する。そして、第１塗工部１

６により、第１キャリアフィルムＣ１の面上に樹脂組成物Ｐを所定の厚みで塗工して第１樹脂シートＳ１を形成する。キャリアフィルム搬送部１４によって第１キャリアフィルムＣ１を搬送することにより、第１キャリアフィルムＣ１上の第１樹脂シートＳ１を走行させる。

[0046] 樹脂組成物Ｐとしては、初期粘度が１Ｐａ・ｓ以下であり、調製後に２５℃で７日間静置した後の粘度が５，０００Ｐａ・ｓ以上１５０，０００Ｐａ・ｓ以下である樹脂組成物を用いることが好ましい。前記樹脂組成物を用いることにより、高目付で樹脂含有量が低い繊維強化樹脂成形材料を容易に製造することができる。

なお、樹脂組成物の初期粘度は、樹脂組成物の調製直後に、ＪＩＳ ８８０３に従い、Ｂ型粘度計を用いて２５℃で測定した粘度である。

[0047] 樹脂組成物の初期粘度は、０．０５Ｐａ・ｓ以上１Ｐａ・ｓ以下が好ましく、０．０７５Ｐａ・ｓ以上０．７５Ｐａ・ｓ以下がより好ましく、０．１Ｐａ・ｓ以上０．５５Ｐａ・ｓ以下がさらに好ましい。樹脂組成物の初期粘度が１Ｐａ・ｓ以下、より好ましくは０．７５Ｐａ・ｓ以下、さらに好ましくは０．５５Ｐａ・ｓ以下であれば、強化繊維シートへの樹脂組成物の含浸性がより優れたものとなり、強化繊維シートの厚さ方向の内部まで充分に樹脂組成物が含浸されやすい。樹脂組成物の初期粘度が０．０５Ｐａ・ｓ以上、より好ましくは０．０７５Ｐａ・ｓ以上、さらに好ましくは０．１Ｐａ・ｓ以上であれば、高強度な繊維強化樹脂成形品が得られやすい。

[0048] 調製後に２５℃で７日間静置した後の樹脂組成物の粘度は、５，０００Ｐａ・ｓ以上１５０，０００Ｐａ・ｓ以下が好ましく、７，５００Ｐａ・ｓ以上１５０，０００Ｐａ・ｓ以下がより好ましく、１０，０００Ｐａ・ｓ以上１５０，０００Ｐａ・ｓ以下がさらに好ましい。静置後の樹脂組成物の粘度が５，０００Ｐａ・ｓ以上、より好ましくは７，５００Ｐａ・ｓ以上、さらに好ましくは１０，０００Ｐａ・ｓ以上であれば、高強度な繊維強化樹脂成形品が得られやすい。静置後の樹脂組成物の粘度が１５０，０００Ｐａ・ｓ以下であれば、強化繊維シートへの樹脂組成物の含浸性がより優れたものと

なり、強化繊維シートの厚さ方向の内部まで充分に樹脂組成物が含浸されやすい。

なお、前記の静置後の樹脂組成物の粘度は、調製した樹脂組成物を２５℃で７日間静置した後、ＪＩＳ　８８０３に従い、ブルックフィールド社製デジタル粘度計ＨＢＤＶ－Ｉ＋Ｐｒｉｍｅを用いて２５℃で測定した粘度である。

[0049] また、強化繊維シート供給部１０により、原反ロールＲから強化繊維シートＦを巻き出し、ガイドロール１１によって第１樹脂シートＳ１上に連続的に供給して積層する。強化繊維シートＦとしては、複数本の連続繊維が一方向に引き揃えられた一方向シート、連続繊維が製織された織物、及び連続繊維を含むノンクリンプファブリックからなる群から選ばれる少なくとも１種からなり、目付が２００ｇ／ｍ^{2}以上３，０００ｇ／ｍ^{2}以下の強化繊維シートを用いる。

[0050] 第２巻出機１８により第２原反ロールＲ２から長尺の第２キャリアフィルムＣ２を巻き出し、第２塗工部２０により第２キャリアフィルムＣ２の面上に樹脂組成物Ｐを所定の厚みで塗工し、第２樹脂シートＳ２を形成する。

第２樹脂シートＳ２を形成する樹脂組成物Ｐとしては、第１樹脂シートＳ１を形成する樹脂組成物Ｐと同じものが好ましい。

[0051] 第２キャリアフィルムＣ２を搬送することで第２樹脂シートＳ２を走行させ、強化繊維シートＦ上に第２樹脂シートＳ２を貼り合わせて、含浸部２２において複数の加圧ロール２３で加圧し、第１樹脂シートＳ１及び第２樹脂シートＳ２の樹脂組成物Ｐを強化繊維シートＦに含浸させる。これにより、強化繊維シートＦに樹脂組成物Ｐが含浸された繊維強化樹脂成形材料が第１のキャリアフィルムＣ１と第２のキャリアフィルムＣ２で挟持された原反Ｒ３が得られる。原反Ｒ３は巻取機２４に巻き取る。

[0052] 以上説明した本発明の繊維強化樹脂成形材料の製造方法によれば、軽量かつ高強度な繊維強化樹脂成形品を簡便に得ることができる繊維強化樹脂成形材料を製造することができる。

なお、本発明の繊維強化樹脂成形材料の製造方法は、前記した製造装置１００を用いる方法には限定されない。

[0053] ［繊維強化樹脂成形品］

本発明の繊維強化樹脂成形品は、本発明の繊維強化樹脂成形材料を加熱加圧してなる繊維強化樹脂成形品である。本発明の繊維強化樹脂成形品は、例えば、本発明の繊維強化樹脂成形材料を複数枚積層した後、圧力を付与しながらその積層体を加熱し、熱硬化樹脂を硬化させることで得られる。

[0054] 成形方法としては、特に限定されず、プレス成形法、オートクレーブ成形法、バギング成形法等が挙げられる。

本発明の繊維強化樹脂成形品の用途は、特に限定されず、例えば、スポーツ用途；自動車、船舶、及び鉄道車両等の構造材等の一般産業用途；航空宇宙用途等が挙げられる。

[0055] 以上説明した本発明の繊維強化樹脂成形品は、本発明の繊維強化樹脂成形材料を用いているため、簡便に製造できるうえ、軽量かつ高強度である。

実施例

[0056] 以下、実施例によって本発明を具体的に説明するが、本発明は以下の記載によっては限定されない。

［粘度の測定］

樹脂組成物の初期粘度は、調製直後の樹脂組成物について、ＪＩＳ　８８０３に従い、Ｂ型粘度計を用いて２５℃で測定した。

樹脂組成物の静置後の粘度は、調製した樹脂組成物を２５℃で７日間静置した後、ＪＩＳ　８８０３に従い、ブルックフィールド社製デジタル粘度計ＨＢＤＶ－Ｉ＋Ｐｒｉｍｅを用いて２５℃で測定した粘度である。

［ｄ１及びｄ２の測定］

各例で得た繊維強化樹脂成形材料の断面の最も厚い部分の異なる３ヵ所をマイクロスコープ／キーエンス製ＶＨＸ－５００を用いて測定し、それぞれの測定結果の平均値をｄ１及びｄ２の値とした。

[0057] ［強化繊維シート］

Ｆ－１：炭素繊維からなる連続繊維を含むノンクリンプファブリック（製品名「ＴＫＩ６００Ｂ」、ＴＫ　Ｉｎｄｕｓｔｒｉｅｓ社製、目付：６００ｇ／ｍ^2）。

Ｆ－２：炭素繊維からなる連続繊維を含むノンクリンプファブリック（製品名「ＴＫＩ３００ＵＤ」、ＴＫ　Ｉｎｄｕｓｔｒｉｅｓ社製、目付：３００ｇ／ｍ^2）。

Ｆ－３：炭素繊維からなる連続繊維を平織した織物（製品名「ＴＲ３１１０」、三菱ケミカル社製、目付：２００ｇ／ｍ^2）。

Ｆ－４：アラミド繊維からなる連続繊維を含むファブリック（製品名「Ｓｔｙｌｅ　１３５６」、Ｃ．Ｃｒａｍｅｒ社製、目付：４７０ｇ／ｍ^2）。

Ｆ－５：ガラス繊維からなる連続繊維を含むノンクリンプファブリック（製品名「ガラスクラマスＵＤ６００」、倉敷紡績社製、目付：６２５ｇ／ｍ^2）。

[0058] ［樹脂組成物］

Ｐ－１：ビニルエステル樹脂（初期粘度：０．３Ｐａ・ｓ、静置後の粘度：２０，０００ｍＰａ・ｓ）

[0059] ［リプレース性］

各例で得た繊維強化樹脂成形材料を１枚用い、前記繊維強化樹脂成形材料をプレス機に載置した後、前記繊維強化樹脂成形材料をプレス機から剥がし取り、再度載置し直す作業を行った。この作業における作業性（リプレース性）を以下の評価基準に従って評価した。

＜評価基準＞

Ａ：適度なタックで、リプレースが可能である。

Ｂ：ややタック（べたつき）を感じるが、リプレースが可能である。

Ｃ：タックが殆ど無く、リプレースがスムーズにできる。

Ｄ：タックが非常に強く、プリプレグの形状を維持したままのリプレースが不可能である、又はタックが無く、積層した繊維強化樹脂成形材料が容易にずれる。

[0060] ［含浸性］

各例で得た繊維強化樹脂成形材料について、強化繊維シート中央部の断面の指触を行い、以下の評価基準で含浸性を評価した。

＜評価基準＞

Ａ：強化繊維シートへの樹脂組成物の含浸が断面方向において不均である。

Ｂ：強化繊維シートへの樹脂組成物の含浸が断面方向において不均一である。

[0061] ［成形性］

各例の繊維強化樹脂成形品の製造における成形性を以下の評価基準で評価した。

＜評価基準＞

Ａ：繊維強化樹脂成形品にバリが見られず、外観が良好である。

Ｂ：繊維強化樹脂成形品にバリや膨れや凹凸が生じるか、又は樹脂枯れによる外観不良が生じる。

[0062] ［実施例１］

樹脂組成物Ｐ－１をドクターブレードを用いてポリエチレン製フィルム（キャリアフィルム）上に目付が２３５ｇ／ｍ^{2}になるように塗布した樹脂シートの樹脂面に強化繊維シートＦ－１を貼り合わせ、さらに、強化繊維シートＦ－１側の面に、別の樹脂シートを上記と同様に貼り合わせ、それらを複数の加圧ロールで加圧して、縦６００ｍｍ×横６００ｍｍの繊維強化樹脂成形材料を得た。得られた繊維強化樹脂成形材料の目付は１，０７０ｇ／ｍ^{2}であり、樹脂組成物の含有量は４４質量％であり、繊維体積含有率は４６体積％であった。

得られた繊維強化樹脂成形材料を４枚積層し、プレス機により、温度１４０℃、圧力８ＭＰａの条件で加熱加圧して、板状の繊維強化樹脂成形品を得た。

[0063] ［実施例２～６、実施例８］

用いる強化繊維シートの種類、及び樹脂シートの目付を表１に示す通りに変更した以外は、実施例１と同様にして繊維強化樹脂成形材料を製造した。また、前記繊維強化樹脂成形材料を用いる以外は、実施例１と同様にして板状の繊維強化樹脂成形品を製造した。

[0064] ［実施例７］

樹脂組成物Ｐ－１をドクターブレードを用いてポリエチレン製フィルム（キャリアフィルム）上に目付が３２２ｇ／ｍ^{2}となるように塗布した樹脂シートの樹脂面に強化繊維シートＦ－１を貼り合わせ、さらに、強化繊維シートＦ－１側の面に、樹脂が塗布されていないキャリアフィルムを積層したものを用いる以外は実施例６と同様にして繊維強化樹脂成形材料を製造し、実施例１と同様にして板状の繊維強化樹脂成形品を製造した。

[0065] ［比較例１、２］

樹脂シートの目付を表１に示す通りに変更した以外は、実施例１と同様にして繊維強化樹脂成形材料を製造した。また、該繊維強化樹脂成形材料を用いる以外は、実施例１と同様にして板状の繊維強化樹脂成形品を製造した。

[0066] 実施例及び比較例の製造条件及び評価結果を表１に示す。なお、表１における「Ｆ－１＊２」とは、強化繊維シートＦ－１を２枚積層して使用したことを意味する。

[0067]

[表1]

			実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	比較例1	比較例2
強化繊維シート	種類	-	F-1	F-2	F-3	F-4	F-5	F-1	F-1	F-1*2	F-1	F-1
	目付	g/m^2	600	300	200	470	625	600	600	1,200	600	600
樹脂	種類	-	P-1	P-1	P-1	P-1	P-1	P-1	P-1	P-1	P-1	P-1
	初期粘度	Pa·s	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
	静置後粘度	Pa·s	20,000	20,000	20,000	20,000	20,000	20,000	20,000	20,000	20,000	20,000
樹脂シート	目付(合計)	g/m^2	470	192	46	256	164	322	322	930	500	124
繊維強化樹脂成形材料	目付	g/m^2	1,070	492	246	726	789	922	922	2,130	1,100	724
	樹脂組成物の含有量	質量%	44	39	19	35	21	35	35	44	45	17
		体積%	54	49	26	40	36	45	45	54	56	24
	繊維体積含有率	体積%	46	51	74	60	64	55	55	46	44	76
	d1	μm	61	36	49	62	82	70	61	121	60	90
	d2	μm	61	36	49	62	82	70	79	121	60	90
	|d1−d2|	μm	0	0	0	0	0	0	18	0	0	0
	R		0.20	0.24	0.49	0.26	0.26	0.23	0.23	0.20	0.20	0.30
リプレース性			B	B	C	A	A	A	B	B	D	D
含浸性			A	A	A	A	A	A	A	A	A	B
成形性			A	A	A	A	A	A	A	A	B	B

[0068] 表１に示すように、本発明の繊維強化樹脂成形材料を用いた実施例１～８

では、強化繊維シートへの樹脂組成物の含浸性が良好であり、繊維強化樹脂成形材料のリプレース性が良好であり、また成形性にも優れ、繊維強化樹脂成形品の外観が良好であった。

一方、樹脂組成物の含有量が多すぎる繊維強化樹脂成形材料を用いた比較例１では、繊維強化樹脂成形材料の表面のタック性が高すぎたため、繊維強化樹脂成形材料を積層し直す作業が困難であり、リプレース性が劣っていた。また、得られた繊維強化樹脂成形品にバリが生じており、成形性が劣っていた。樹脂組成物の含有量が少なすぎる繊維強化樹脂成形材料を用いた比較例２では、強化繊維シートへの樹脂組成物の含浸が不均一になっていることで、樹脂枯れが生じて繊維強化樹脂成形品の外観が劣っていた。また、表面のタック性が低すぎたため、積層した繊維強化樹脂成形材料が容易にずれ、積層作業性が劣っていた。

産業上の利用可能性

[0069] 本発明の繊維強化樹脂成形材料を用いれば、軽量かつ高強度な繊維強化樹脂成形品を提供することができる。また、軽量かつ高強度な繊維強化樹脂成形品を簡便に得ることができる繊維強化樹脂成形材料を製造できる繊維強化樹脂成形材料の製造方法を提供することができる。

符号の説明

[0070] １０…強化繊維シート供給部

１２…第１巻出機

１４…キャリアフィルム搬送部

１６…第１塗工部

１８…第２巻出機

２０…第２塗工部

２２…含浸部

２４…巻取機

１００…繊維強化樹脂成形材料の製造装置

Ｆ…強化繊維シート

Ｐ…樹脂組成物

Ｃ１…第１キャリアフィルム

Ｃ２…第２キャリアフィルム

Ｓ１…第１樹脂シート

Ｓ２…第２樹脂シート

請求の範囲

[請求項1] 目付が２００ｇ／ｍ²以上３，０００ｇ／ｍ²以下の強化繊維シートに樹脂組成物が２５体積%以上５５体積%以下含浸された繊維強化樹脂成形材料であって、

繊維強化樹脂成形材料に含まれる樹脂組成物の総量を１００質量%としたとき、

繊維強化樹脂成形材料の厚さ方向の第１面から１０質量%の樹脂組成物が占める位置までの厚さをｄ１（μｍ）とし、

第１面と反対側の第２面から１０質量%の樹脂組成物が占める位置までの厚さをｄ２（μｍ）としたとき、

ｄ１とｄ２の差の絶対値（｜ｄ１－ｄ２｜）が５０μｍ以下である、繊維強化樹脂成形材料。

[請求項2] 前記強化繊維シートが、複数本の連続繊維が一方向に引き揃えられた一方向シート、連続繊維が製織された織物、及び連続繊維を含むノンクリンプファブリックからなる群から選ばれる少なくとも１種からなる、請求項１に記載の繊維強化樹脂成形材料。

[請求項3] 前記強化繊維シートがノンクリンプファブリックである、請求項２に記載の繊維強化樹脂成形材料。

[請求項4] 前記強化繊維シートの目付に対する、前記ｄ１とｄ２の和の比率であるＲが０．２以上０．５以下である、請求項１～３のいずれか一項に記載の繊維強化樹脂成形材料。

[請求項5] 前記ｄ１又はｄ２の少なくとも一方が５μｍ以上７５０μｍ以下の範囲である、請求項１～４のいずれか一項に記載の繊維強化樹脂成形材料。

[請求項6] 前記強化繊維シートの目付が４００ｇ／ｍ²以上である、請求項１～５のいずれか一項に記載の繊維強化樹脂成形材料。

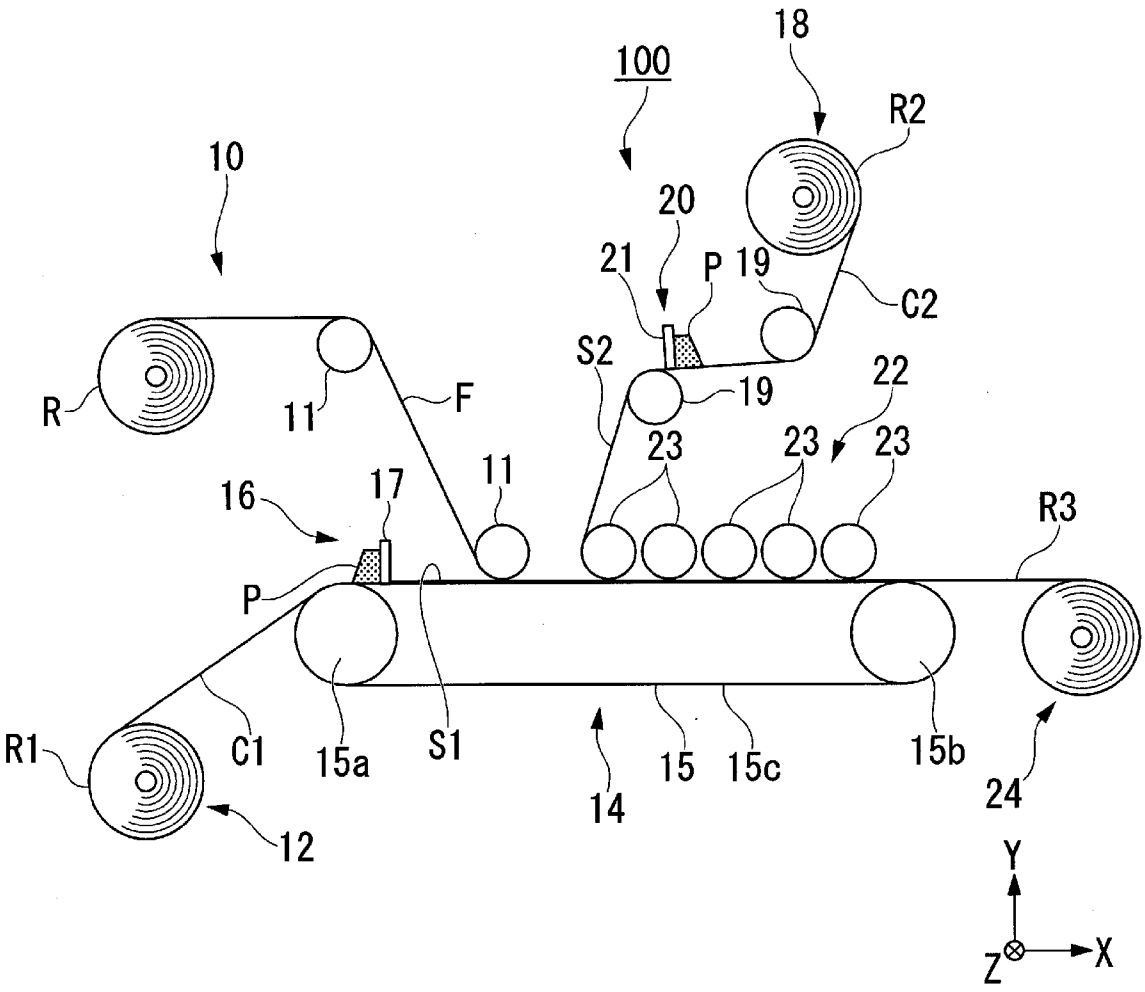
[請求項7] 前記樹脂組成物が、ビニルエステル樹脂を含有する、請求項１～６のいずれか一項に記載の繊維強化樹脂成形材料。

[請求項8] 請求項１～７のいずれか一項に記載の繊維強化樹脂成形材料を成形してなる繊維強化樹脂成形品。

[請求項9] 複数本の連続繊維が一方向に引き揃えられた一方向シート、連続繊維が製織された織物、及び連続繊維を含むノンクリンプファブリックからなる群から選ばれる少なくとも１種からなる強化繊維シートに、

初期粘度が１Ｐａ・ｓ以下であり、２５℃で７日間静置した後の粘度が５，０００Ｐａ・ｓ以上１５０，０００Ｐａ・ｓ以下である樹脂組成物を含浸させる、繊維強化樹脂成形材料の製造方法。

[図1]


100
18
R2
10
20
21
P
19
C2
S2
19
22
R
11
F
23
23
23
11
16
17
R3
P
R1
C1
15a
S1
14
15
15c
15b
24
12
Y
Z
X

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2018/016779

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl. B29B11/16(2006.01)i, B29C70/06(2006.01)i, B29K105/08(2006.01)n

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, B29C70/06, B29K105/08, C08J5/24

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	1971-2018
Registered utility model specifications of Japan	1996-2018
Published registered utility model applications of Japan	1994-2018

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y A	JP 2014-162858 A (TORAY INDUSTRIES, INC.) 08 September 2014, claims, paragraphs [0021]-[0022], [0026], [0036], examples, comparative examples (Family: none)	1, 2, 4-6, 8 9 3, 7
P, A	WO 2017/110616 A1 (TORAY INDUSTRIES, INC.) 29 June 2017, paragraphs [0045]-[0051] & TW 201730007 A	1-9
A	JP 2012-201067 A (TORAY INDUSTRIES, INC.) 22 October 2012, claims, examples (Family: none)	1-9

☒ 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
18 July 2018 (18.07.2018)	31 July 2018 (31.07.2018)
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2018/016779

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 2010-195844 A (TOHO TENAX CO., LTD.) 09 September 2010, claims (Family: none)	1-9
A	WO 2012/118208 A1 (MITSUBISHI RAYON CO., LTD.) 07 September 2012, claims, examples & US 2013/0327479 A1, claims, examples & EP 2682429 A1 & CN 103429658 A & KR 10-2013-0129268 A & TW 201245300 A	1-9
Y	JP 2015-003938 A (TORAY INDUSTRIES, INC.) 08 January 2015, paragraph [0049] (Family: none)	9

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2018/016779

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The invention group in claims 1-8 pertaining to a fiber-reinforced resin molding material, and the invention in claim 9 pertaining to a method for producing a fiber-reinforced resin molding material share the technical feature in which the reinforcing fiber sheet is impregnated with a resin composition. However, that this is not a special technical feature is so obvious that there is no need to adduce any evidence of this fact. In addition, claims 1-8 are characterized by the basis weight of the fiber-reinforced sheet or the state of impregnation of the resin composition, and claim 9 is characterized by the characteristics (viscosity) of the resin composition. Since claims 1-8, and claim 9 each have different technical features, these invention groups do not have unity.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.

☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.

☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１８／０１６７７９

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　B29B11/16(2006.01)i, B29C70/06(2006.01)i, B29K105/08(2006.01)n

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））

Int.Cl.　B29B11/16, B29C70/06, B29K105/08, C08J5/24

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	１９７１－２０１８年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１８年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１８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 Y A	JP 2014-162858 A（東レ株式会社）2014.09.08, 特許請求の範囲、[0021]-[0022]、[0026]、[0036]、実施例・比較例（ファミリーなし）	1,2,4-6,8 9 3,7
P,A	WO 2017/110616 A1（東レ株式会社）2017.06.29, [0045]-[0051] & TW 201730007 A	1-9
A	JP 2012-201067 A（東レ株式会社）2012.10.22, 特許請求の範囲、実施例（ファミリーなし）	1-9

☑　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矛盾するものではなく、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
１８．０７．２０１８	３１．０７．２０１８

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｆ　２９３１
岩田　行剛
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４３０

Ｃ（続き）．　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 2010-195844 A (東邦テナックス株式会社) 2010.09.09, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-9
A	WO 2012/118208 A1 (三菱レイヨン株式会社) 2012.09.07, 請求の範囲、実施例 & US 2013/0327479 A1, Claims,Examples & EP 2682429 A1 & CN 103429658 A & KR 10-2013-0129268 A & TW 201245300 A	1-9
Y	JP 2015-003938 A (東レ株式会社) 2015.01.08, [0049] (ファミリーなし)	9

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１８／０１６７７９

第Ⅱ欄　請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第１ページの２の続き）

法第8条第3項（ＰＣＴ17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

１．☐ 請求項＿＿＿＿＿＿＿＿は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。
つまり、

２．☐ 請求項＿＿＿＿＿＿＿＿は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、

３．☐ 請求項＿＿＿＿＿＿＿＿は、従属請求の範囲であってＰＣＴ規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅲ欄　発明の単一性が欠如しているときの意見（第１ページの３の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求項1-8に係る繊維強化樹脂成形材料の発明群と請求項9に係る繊維強化樹脂成形材料の製造方法の発明の共通する技術事項は、強化繊維シートに樹脂組成物が含浸されているという点であるが、これは証拠を挙げるまでもなく、特別な技術的特徴でない。そして、請求項1-8は、繊維強化シートの目付や樹脂組成物の含浸の状態に特徴を有し、請求項9は、樹脂組成物の特性（粘度）に特徴を有し、それぞれ異なる技術的特徴を有するものであるから、これらの発明群は単一性を有しない。

１．☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求項について作成した。

２．☑ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求項について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。

３．☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求項のみについて作成した。

４．☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求項について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

☐ 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。

☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。

☐ 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。