

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第3882274号

(P3882274)

(45) 発行日 平成19年2月14日(2007.2.14)

(24) 登録日 平成18年11月24日(2006.11.24)

(51) Int. Cl.

F I

DO3D	15/00	(2006.01)	DO3D	15/00	E
B29B	11/16	(2006.01)	B29B	11/16	
B29C	51/14	(2006.01)	B29C	51/14	
B32B	5/00	(2006.01)	B32B	5/00	A
B32B	5/28	(2006.01)	B32B	5/28	A

請求項の数 4 (全 7 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平9-167861
 (22) 出願日 平成9年6月11日(1997.6.11)
 (65) 公開番号 特開平11-1841
 (43) 公開日 平成11年1月6日(1999.1.6)
 審査請求日 平成16年4月7日(2004.4.7)

(73) 特許権者 000003975
 日東紡績株式会社
 福島県福島市郷野目字東1番地
 (72) 発明者 菅野 直人
 福島県福島市笹木野字由添26-2山野井
 ハイツ201
 (72) 発明者 藤井 幹也
 福島県福島市鎌田字月の輪山5-80
 (72) 発明者 河西 新
 福島県福島市蓬萊町3-2-17

審査官 佐藤 健史

(56) 参考文献 特開平08-336879 (JP, A)
 特開平08-312534 (JP, A)
 最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 繊維強化熱可塑性樹脂コンポジット用の成形材料

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

補強繊維束の表面を熱可塑性樹脂で被覆し、該補強繊維束の表面に被覆樹脂層を形成した熱可塑性樹脂被覆補強繊維束からなるクロス又は組布の形態の繊維補強材であって、前記補強繊維束は間隔をおいて切断されており、前記被覆樹脂層は切断されていないことを特徴とする繊維強化熱可塑性樹脂コンポジット用の繊維補強材。

【請求項2】

前記補強繊維束の補強繊維がガラス繊維又は炭素繊維である請求項1に記載の繊維補強材。

【請求項3】

請求項1又は請求項2に記載の繊維補強材を加熱加圧し、前記熱可塑性樹脂を前記補強繊維束に含浸させる、繊維強化熱可塑性樹脂コンポジット用の樹脂含浸シートの製造方法。

【請求項4】

熱可塑性樹脂押出し機の先端に付けたコーティングダイスの中央部より補強繊維束を供給し、該補強繊維束を取巻くように該熱可塑性樹脂をチューブ状に押出し、該補強繊維束の表面を該熱可塑性樹脂で被覆し、該補強繊維束の表面に被覆樹脂層を形成した熱可塑性樹脂被覆補強繊維束を得て、

次いで、前記熱可塑性樹脂被覆補強繊維束からなるクロス又は組布を得て、

次いで、前記クロス又は前記組布を、台又はロールと、刃物の間に挟み、押圧することに

10

20

より、前記被覆樹脂層を切断せず、前記補強繊維束を間隔をおいて切断することを特徴とする繊維強化熱可塑性樹脂コンポジット用の繊維補強材の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、繊維強化熱可塑性樹脂コンポジットの成形材料に関し、特に深絞り成形する必要がある型や複雑形状の型を使用して成形体を製造するための樹脂含浸シート、及びその原料であるクロス又は組布の形態の繊維補強材に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

補強繊維と熱可塑性樹脂が組合わされた繊維強化熱可塑性樹脂コンポジット用の成形材料には、繊維補強材がクロス又は組布の形態であるものと、チョップドストランドの形態のものとの2種類に大別される。そして、繊維補強材と熱可塑性樹脂を同時に金型に入れ加熱し、溶融含浸する成形する方法があるが、溶融含浸に時間がかかるため、予め補強繊維のクロス若しくは組布又はチョップドストランドマットに熱可塑性樹脂を含浸させた樹脂含浸シートを加熱軟化させ、金型でプレス成形する方法が一般的に行われている。それらの繊維補強材を用いて樹脂含浸シート材料を製造する方法には、(1)補強繊維からなるクロス又は組布を熱可塑性樹脂フィルムとともに積層し加熱プレスする方法、(2)熱可塑性樹脂繊維と補強繊維とを交織又は混織したものを、加熱プレスする方法、(3)補強繊維のチョップをマット形態にしたものを熱可塑性樹脂フィルムと積層し加熱含浸したものを加熱プレスする方法、(4)熱可塑性樹脂繊維のチョップを補強繊維のチョップといっしょに散布しマット形態にしたものを加熱プレスする方法、に大別できる。これらの樹脂含浸シートを用いて成形体を作製するには、樹脂含浸シートを加熱炉で樹脂の軟化点以上に加熱し軟化させ、型に入れてプレスし、望む形状に成形する。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

これらの成形用の樹脂含浸シート材料には、補強繊維がクロスの形態で入っているものは成形品中に含まれる繊維の含有量を高くすることが出来るので強度が強く、特に繊維方向の強度は優れている。しかしながら、補強繊維のみからなるクロスと熱可塑性樹脂フィルムを用いて溶融含浸した樹脂含浸シートは織物の経糸と緯糸の重なる織り目部分への樹脂含浸が不十分になりやすい。また、織物の性質上、織り目のずれが許される狭い範囲しか糸が移動することが出来ない。そのため、樹脂含浸シートを加熱しマトリックス樹脂を軟化させ立体形状に成形するには限度があり、深絞りや複雑形状のものはしわが出来たり、型になじまないため所望の形状が得られないという問題がある。

【0004】

一方補強繊維が短く切断されたチョップドストランドの形態で使用しているタイプの樹脂含浸シートは加熱してマトリックス樹脂を軟化させ立体形状に成形する場合、軟化した樹脂含浸シート中のチョップドストランドは繊維長が数mm - 数10mm程度で比較的短いので成型プレスの加圧による樹脂の流れに従って移動することが出来るので、深絞りや複雑形状の成形に適している。しかしこのタイプの樹脂含浸シートは成形品中の補強繊維の含有量を通常50重量%以上に増加させることができないため、強度の必要な成形品には使用出来なかった。

【0005】

そのため、材料中の繊維の含有量を高くすることが出来るので成形体の強度を上げる事ができるというクロスタイプの繊維補強材を使用した成形材料の特徴と、成形材料中の繊維が成形中に樹脂の流れと共に移動することができるため深絞りが出来るというチョップドストランドタイプの繊維補強材を使用した成形材料の特徴を合せ持った繊維強化熱可塑性樹脂成形用の樹脂含浸シートの開発が望まれていた。この課題を解決するため、特願平8-94690号に熱可塑性樹脂被覆補強繊維束の補強繊維の一部を切断したものを使用して、製織あるいは製紐した材料が出願されている。しかしながら、この熱可塑性樹脂で

10

20

30

40

50

被覆し補強繊維束のみを部分的に切断した熱可塑性樹脂被覆補強繊維束は補強繊維束を切断した部分の剛性がなく、その部分で折れ曲りやすく、織機で製織するときトラブルが起きやすくなっていた。

【0006】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、種々検討の結果、熱可塑性樹脂被覆補強繊維束（以後、被覆繊維束という）をクロス又は組布の形態にした後、このクロス又は組布の樹脂の被覆は残し補強繊維束のみを切断することによって、この課題を解決したものである。

すなわち、本発明における繊維強化熱可塑性樹脂コンポジット用成形材料としての繊維補強材は、補強繊維束の表面を熱可塑性樹脂で被覆し、この補強繊維束の表面に被覆樹脂層を形成した熱可塑性樹脂被覆補強繊維束からなるクロス又は組布の形態の繊維補強材であって、この補強繊維束は間隔をおいて切断されており、この被覆樹脂層は切断されていないことを特徴とする。なお、補強繊維束の補強繊維はガラス繊維又は炭素繊維であることが好ましい。この繊維補強材は、熱可塑性樹脂押出し機の先端に付けたコーティングダイスの中央部より補強繊維束を供給し、補強繊維束を取巻くように熱可塑性樹脂をチューブ状に押し出し、補強繊維束表面を熱可塑性樹脂で被覆し、補強繊維束表面に被覆樹脂層を形成した熱可塑性樹脂被覆補強繊維束を得て、次いで、熱可塑性樹脂被覆補強繊維束からなるクロス又は組布を得て、次いで、このクロス又は組布を、台又はロールと、刃物の間に挟み、押圧することにより、被覆樹脂層を切断せず、補強繊維束を間隔をおいて切断することによって得ることができる。また、本発明の繊維強化熱可塑性樹脂コンポジット用成形材料としての樹脂含浸シートは、上述の繊維補強材を加熱加圧し、熱可塑性樹脂を補強繊維束に含浸させ得ることができる。

本発明において、クロスは経糸と緯糸からなる織物で織りあがったのち、ヒートセットしても良い。組布（そふ）とは被覆繊維束を経糸層及び緯糸層、経糸の層とこれに±60度の角度で交わる2層、又は経糸層及び緯糸層とこれに±45度の角度で交わる2層、に分け経緯積層機により積層し加熱し交点を融着させたものである。本発明において、被覆繊維束とは、補強用繊維束の表面を熱可塑性樹脂で被覆したものである。

【0007】

被覆とは、補強繊維束に熱可塑性樹脂が含浸すると剛性がでて取扱いに問題が起きるので、出来るだけ含浸しないよう、また出来るだけ締まった形状になるよう表面を覆ったものであり、エアジェットル-ム、ウオ-タ-ジェットル-ム、レピア織機、2軸、3軸、4軸組布を製造する経緯積層機で織ることが出来る程度の柔軟性を有する。この被覆繊維束の製造方法は、熱可塑性樹脂押出し機の先端に付けたコーティングダイス中央部より補強繊維束を供給しその繊維束を取巻くようにマトリックス樹脂である熱可塑性樹脂をチューブ状に押し出し補強繊維束を被覆するものである。

【0008】

樹脂の量は、被覆繊維束に完全含浸したときを基準として75-30体積%の範囲であることが望ましいが、成形体の用途に合わせて任意に選択することができる。樹脂の量が75体積%より大きくなると樹脂の含有率が多く、成形体の機械的強度が不十分となる。しかし、使用出来ないとか、成形できないということではなく成形体の強度が低く、使用する必要性が少ないということである。また成形品中に含まれる補強繊維の含有量が多いほどその機械的物性は優れたものになるが、樹脂の量が30体積%未満になると均一なコーティングが困難であると共に、形成された被膜が薄く、製織時に剥離などのトラブルが生じる恐れがある、また樹脂量が少ないので成形体の完全含浸が出来なくなり、強度、製品の均一性などに問題がおきるためである。

【0009】

被覆用の熱可塑性樹脂としては、ナイロン6、ナイロン12、ナイロン66、芳香族ナイロンなどのポリアミド樹脂、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレートなどのポリエステル樹脂、ポリプロピレン、ポリエチレン等のポリオレフィン系樹脂、ポリカーボネート樹脂、ポリフェニレンサルファイド樹脂、ポリエーテルスルホン樹脂、

10

20

30

40

50

ポリエーテルイミド樹脂、又はポリエーテルエーテルケトン樹脂等があげられるが、特に限定されるものではなく、被覆繊維束が織機にかけることが出来る程度の柔軟性を持てば良い。またこれら熱可塑性樹脂を2種類以上併用して用いても良い。補強繊維束とは、通常熱可塑性樹脂の補強に用いられるEガラス、Aガラス、Tガラス、Cガラスなどのガラス繊維、炭素繊維など被覆樹脂の伸びより小さい伸びの繊維が使用される。繊維束を構成する繊維はフィラメント数が100 - 15000本、好ましくは1000 - 12000本、繊維径が3 - 27 μm 、好ましくは7 - 20 μm の範囲のものが用いられる。また、上記補強繊維は、一種類の繊維のみを使用するもの、または、これらを組み合わせたもの、例えば、ガラス繊維でのE - ガラスとT - ガラスとの組み合わせや、Eガラスと炭素繊維の組み合わせ等複数種の補強繊維を組み合わせたものでもよい。このように強度、物性の違う繊維を別々の方向に揃えてクロス又は組布とすることにより強度に方向性を持たせることも可能である。クロスの織り方は必要に応じ平織り、朱子織りなど公知の織り組織を用途にあわせて選択する。

10

【0010】

このような、材料から製造したクロス又は組布を本発明の目的である成形時に繊維が移動することができるようにするには、成形する前に補強繊維を切断することが必要である。主として補強繊維束のみからなる従来のクロス又は組布は、繊維を図1のように20 - 50 mmに切断するとばらばらになり、切断したものは取扱い出来なかった。しかしながら、本発明によれば補強繊維は切断されるが被覆樹脂層は切断されていないので、クロス又は組布の形状を保ち取扱いが可能である。取扱いが可能となったため、補強繊維を切断したクロス又は組布でもそのまま型に入れて加熱しプレス成形することが出来るようになった。また、補強繊維を切断した複数のクロス若しくは組布、又はクロスと組布を組み合わせ積層したものを加熱プレスし、樹脂含浸シートとすることも出来るようになった。

20

【0011】

被覆繊維束の被覆樹脂層を切断しないで、補強繊維束のみを切断するには、(1) 平滑な台の上に被覆繊維束からなるクロス若しくは組布を置き、刃物を植えた平板で加圧することにより切断する方法、(2) 刃物を植えた平板の上に被覆繊維束からなるクロス若しくは組布を置き、鉄口 - ルの間を通すことにより切断する方法、(3) 被覆繊維束からなるクロス若しくは組布を多数の円盤状刃物で加圧しながら連続的に補強繊維を切断する方法、がある。

30

しかしながら、その製造条件は補強繊維の種類、構成するフィラメント数、被覆樹脂の種類若しくは厚みなどにより、又は刃物尖端の形状、刃にかける圧力、若しくは刃の当る下板の種類で変わるので基準となる範囲の限定は困難で、試行錯誤により適当な圧力や下板の弾力性を選定する必要がある。カットダイスタンプ法による一例をあげれば、鉄製の平滑な台の上に置いたロックウエル硬度120、厚さ2 mmのPET樹脂シートの下板の上にクロス又は組布を置き、刃物用炭素鋼の刃先の角度が43度の両刃の刃物で、先端部の鋭い刃をやや丸く研磨したものを使用し、カット時の圧力は刃物の線圧として0.05 - 3.0 kg/cm 、好ましくは0.1 - 2.0 kg/cm 程度の力がかかることにより補強繊維束を切断できる。このようにして、切断したクロス又は組布を順次位置をずらし補強繊維のみを切断する。また、賦形する形状に応じて変形量の多いことが要求される部分の繊維長を調節したり、変形する部分だけ補強繊維をカットするなど、カット刃の配列を変更して対応することも可能である。またカットするパターン形状も直線の千鳥配列、3角、4角、長方形、6角形、若しくはジグザグ形など、又はこれらの組み合わせの繰返しにより、クロス又は組布を構成する補強繊維束が通常10 - 100 mmぐらいの間隔で切断される。

40

【0012】

この様に補強繊維束が切断された材料を使用して、成形品にする方法は、従来から行われている公知の繊維強化熱可塑性樹脂の成形方法を使用することができる。たとえば、クロス又は組布を数枚重ね、加熱し樹脂を溶融して、プレスにより樹脂を補強繊維束の内部に含浸させた樹脂含浸シートにして、成形するときには、この樹脂含浸シートを再加熱し柔

50

軟にした後、プレス機の金型により望む形状に成形する方法や、加熱した金型に積層したクロス若しくは組布の形態の繊維補強材を予熱して入れ、金型によりプレス成形する方法、などがある。

【0013】

【作用】

被覆繊維束は、繊維束の周囲を熱可塑性樹脂で被覆しているため被覆繊維束を使用したクロスや組布を使用した成形体は、織交点の含浸不良による欠陥が少ない事が知られている。しかしながら、クロスは織り目により繊維束の移動が制約され従来のクロスを使用した樹脂含浸シート同様、半球程度の深絞りが限度であった。また組布は織り目が存在しないのでクロスよりはるかに複雑で深絞り成形のものに対応できる。しかしながら、構成する繊維束の周囲の熱可塑性樹脂が加熱により溶融したとき繊維束は自由に移動できるため移動量が大きいところと小さいところが集中して現れ、成形体の形状によっては強度むらが大きくなる事がある。また補強繊維束自体は伸びないので自ずから成形品の形状には制約があった。この被覆繊維束からなるクロスや組布の補強繊維束を部分的に切断することにより、加熱溶融しプレス成形するときクロスや組布を構成する繊維の移動が、小さいブロック単位で行われる。そのため、連続繊維のみからなるものに比べて、繊維束が切断部分から移動することができるので、深絞り成形、複雑形状の成形が可能になり、連続繊維の様に歪みが集中しないので、強度のむらも減少する。例えば波板状の成形体で、波板の溝に平行に1 - 3 cm幅に2 - 5 cmピッチで千鳥状に切断すると切断方向と直角方向のみに部分的に伸び全体の伸びを吸収するので、切断部分の強度低下が一か所に集中しない、また複数の材料を積層するため繊維の非連続部分も一か所に集中しないようにすることができるため全体の強度低下はほとんど無いという利点を持つことが容易に理解できる。また組布においては繊維束が切断されているため、繊維の移動量が分散し深絞りしたときの強度むらを最小限に押さえることができる。

【0014】

【実施例】

実施例1

GFローピング(E-GF)RS57PR481(日東紡績製)繊維径14 μ m、フィラメント本数1460本、570TEXを使用し、ポリアミド樹脂アミランCM1017(東レ製)を被覆樹脂として使用した。押出機先端に図2に示すダイスを取り付け、その中心にGFローピングを通し、ダイスの出口端部から樹脂を吐出し、樹脂で被覆した。押出機温度280 $^{\circ}$ Cで、GF体積含有率50体積%の被覆繊維束を巻き取った。巻き取られた被覆繊維束は約3mmの幅を持っていた。この被覆繊維束をレピア織機で製織し、織密度(25mm)タテ \times ヨコが8.0 \times 8.0本の平織りクロスを得た。次いで、25mm \times 25mmの格子状に刃を配列したダイスを用いて、圧力0.5kg/cm²で押圧し、ガラス繊維をカットしたが被覆樹脂は切断されていない。以上のようにして、本発明の熱可塑性樹脂被覆した不連続ガラス繊維クロス繊維補強材を得た。この繊維補強材を切断箇所が重ならないようずらして4枚重ね、温度270 $^{\circ}$ Cに加熱したプレスで20kg/cm²で加圧し、厚さ1.2mmのナイロン樹脂含浸シートを得た。この樹脂含浸シートを遠赤外線オーブンで280 $^{\circ}$ Cに加熱し、予め150 $^{\circ}$ Cに予熱した、高さ6cm、内径のR=60mm、波のピッチ122.4mmの波型の金型に入れてプレスし、厚さ1.2mmの成形体を製造した。含浸状態は良好で、外観、強度ともに問題はなかった。

【0015】

【比較例1】

実施例1において、被覆繊維束の補強繊維束を切断しないで、その他は実施例1と同様にして波型成形体を製造した。繊維が金型に沿って移動しにくいので、高さが5cmの成形体となり所定の形状に成形できなかった。

【0016】

【発明の効果】

本発明により、樹脂被覆繊維束のクロス又は組布の補強繊維束のみを切断することが出

10

20

30

40

50

来るようになったので、含浸性に優れ、しかも強度があり、複雑な形状や深絞りの必要な形状の成形体を製造することができる繊維強化熱可塑性樹脂コンポジットの成形材料を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

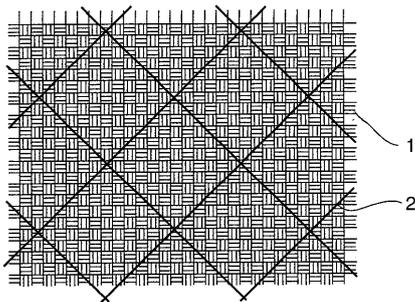
【図1】熱可塑性樹脂被覆繊維束からなるクросの切断例。

【図2】補強繊維束を被覆する装置の例。

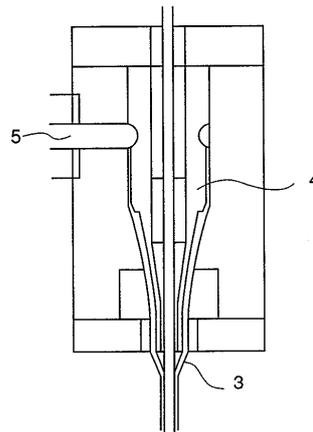
【符号の説明】

- 1、熱可塑性樹脂被覆補強繊維束
- 2、補強繊維束切断位置
- 3、被覆用熱可塑性樹脂
- 4、繊維束ガイド
- 5、押出機よりの樹脂入り口

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(51) Int.Cl.

D 0 3 D 15/12 (2006.01)

C 0 8 J 5/24 (2006.01)

F I

D 0 3 D 15/12

C 0 8 J 5/24

A

(58) 調査した分野(Int.Cl. , D B名)

D03D1/00 ~ 27/18