



(12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 103649186 A

(43) 申请公布日 2014. 03. 19

(21) 申请号 201280034272. 2

(74) 专利代理机构 北京市金杜律师事务所  
11256

(22) 申请日 2012. 07. 05

代理人 杨宏军

(30) 优先权数据

2011-152825 2011. 07. 11 JP

(51) Int. Cl.

C08J 5/24 (2006. 01)

(85) PCT国际申请进入国家阶段日

2014. 01. 10

(86) PCT国际申请的申请数据

PCT/JP2012/067204 2012. 07. 05

(87) PCT国际申请的公布数据

W02013/008720 JA 2013. 01. 17

(71) 申请人 东丽株式会社

地址 日本东京都

(72) 发明人 江藤理那子 和田原英辅

佐佐木健 森原理圭 堀内俊辅

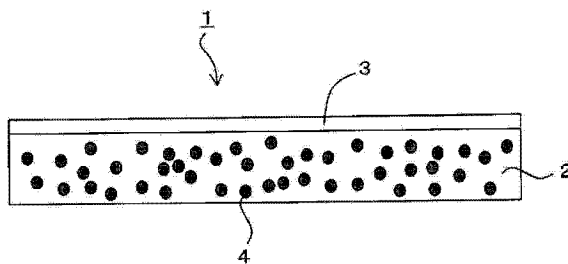
权利要求书4页 说明书10页 附图3页

(54) 发明名称

热塑性树脂预浸料坯、使用其的预成型体及复合成型体、以及它们的制造方法

(57) 摘要

本发明涉及一种热塑性树脂预浸料坯、使用其的预成型体及复合成型体、以及它们的制造方法,所述热塑性树脂预浸料坯的特征在于,至少由以下构成要素(I)~(III)构成:构成要素(I):具有直链状或支链状的高分子结构的热塑性树脂(A)20~60重量份,构成要素(II):集中存在于表面部位、具有低于该热塑性树脂(A)的熔点的热塑性树脂(B)2~10重量份,构成要素(III):增强纤维30~78重量份。将热塑性树脂预浸料坯彼此层合、或使用热塑性预浸料坯进行嵌件成型时,能够效率良好地提高预浸料坯表面的粘合性而不会发生机械特性的下降,能够确保预成型体或复合成型体成型时的期望的粘合性。



1. 一种热塑性树脂预浸料坯,其特征在于,至少由以下构成要素(I)~(III)构成,  
构成要素(I):具有直链状或支链状的高分子结构的热塑性树脂(A) 20~60 重量份,  
构成要素(II):集中存在于表面部位、具有低于所述热塑性树脂(A)的熔点的热塑性树脂(B) 2~10 重量份,

构成要素(III):增强纤维 30~78 重量份。

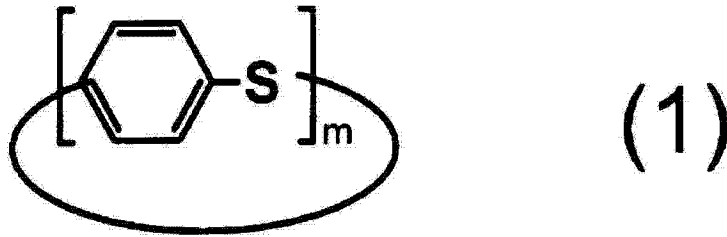
2. 如权利要求 1 所述的热塑性树脂预浸料坯,其中,所述热塑性树脂(A)和热塑性树脂(B)除分子结构以外由同种的树脂形成。

3. 如权利要求 1 或 2 所述的热塑性树脂预浸料坯,其中,所述热塑性树脂(A)由均聚物树脂形成,所述热塑性树脂(B)由共聚聚合物树脂、或无规聚合物树脂形成。

4. 如权利要求 1 或 2 所述的热塑性树脂预浸料坯,其中,所述热塑性树脂(A)由聚酰胺 6 树脂、聚酰胺 66 树脂、聚酰胺 46 树脂、或聚酰胺 9T 树脂形成,所述热塑性树脂(B)由共聚聚酰胺树脂、聚酰胺 11 树脂、聚酰胺 12 树脂、或聚酰胺 610 树脂形成。

5. 如权利要求 1 或 2 所述的热塑性树脂预浸料坯,其中,所述热塑性树脂(A)具有直链状或支链状的高分子结构,所述热塑性树脂(B)具有环状分子结构。

6. 如权利要求 1、2 及 5 中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯,其中,所述热塑性树脂(A)由重均分子量为 10,000 以上的高分子量聚苯硫醚形成,所述热塑性树脂(B)由以通式(1)表示的环状聚苯硫醚作为主要成分的树脂组合物形成,



其中,m 为 4~20 的整数,m 可以为 4~20 的混合物。

7. 如权利要求 1、2 及 5 中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯,其中,所述热塑性树脂(A)由重均分子量为 10,000 以上的高分子量聚醚醚酮形成,所述热塑性树脂(B)由以环状聚醚醚酮作为主要成分的树脂组合物形成。

8. 如权利要求 1 所述的热塑性树脂预浸料坯,其中,所述热塑性树脂(A)和热塑性树脂(B)由不同种类的树脂形成。

9. 如权利要求 1 或 6 所述的热塑性树脂预浸料坯,其中,所述热塑性树脂(A)由聚苯硫醚树脂、聚酰胺树脂、或聚烯烃树脂形成,所述热塑性树脂(B)由以实质上不含固化剂的环氧树脂作为主要成分的树脂组合物形成。

10. 如权利要求 1~9 中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯,其中,所述热塑性树脂(B)以层状存在于所述热塑性树脂(A)的全部表面。

11. 如权利要求 1~9 中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯,其中,所述热塑性树脂(B)以粒状或纤维状存在于所述热塑性树脂(A)的表面。

12. 如权利要求 1~11 中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯,其中,构成为片状。

13. 如权利要求 1~12 中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯,其中,所述增强纤维的至少一部分具有连续增强纤维单向并行排列的单向增强纤维基材的形态。

14. 如权利要求 1 ~ 13 中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯,其中,所述增强纤维的至少一部分具有增强纤维织物的形态。

15. 如权利要求 1 ~ 14 中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯,其中,所述增强纤维包含碳纤维。

16. 一种预成型体,是将权利要求 1 ~ 15 中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯层合多个并加热加压,借助介于热塑性树脂预浸料坯彼此之间的热塑性树脂(B)进行一体化而得到的。

17. 一种预成型体,是将权利要求 1 ~ 15 中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯与热塑性树脂片材层合并加热加压,借助集中存在于热塑性树脂预浸料坯的表面部位的热塑性树脂(B)进行一体化而得到的。

18. 如权利要求 16 或 17 所述的预成型体,其中,作为所述预成型体的侧面,具有凹型形状、或阶梯形状的侧面。

19. 一种复合成型体,是权利要求 1 ~ 15 中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯、或权利要求 16 ~ 18 中任一项所述的预成型体通过以下构成要素(IV)或(V)进行嵌件成型而得到的,

构成要素(IV):由与所述热塑性树脂(A)相同或同种的树脂形成的热塑性树脂(C),

构成要素(V):具有所述热塑性树脂(A)的熔点以下的熔点的热塑性树脂(D)。

20. 如权利要求 19 所述的复合成型体,其中,所述复合成型体如下进行嵌件成型:将所述预成型体配置在模内,将所述热塑性树脂(C)或(D)注射成型。

21. 如权利要求 19 或 20 所述的复合成型体,其中,所述热塑性树脂(C)或(D)由包含增强纤维的纤维增强树脂形成。

22. 如权利要求 21 所述的复合成型体,其中,所述热塑性树脂(C)或(D)由包含纤维长度 1mm 以下的增强纤维的纤维增强树脂形成。

23. 如权利要求 19 ~ 22 中任一项所述的复合成型体,其中,热塑性树脂预浸料坯与热塑性树脂片材层合,所述热塑性树脂片材由所述热塑性树脂(A)或(C)构成。

24. 一种复合成型体,是对权利要求 1 ~ 15 中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯层合多个所得的热塑性树脂预浸料坯彼此、或权利要求 16 ~ 18 所述的预成型体进行加压成型而得到的。

25. 权利要求 1 ~ 15 中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯的制造方法,其特征在于,至少经过以下工序:

工序(1):至少将构成要素(III)的基材拉出的拉出工序;

工序(2):使熔融了的构成要素(I)含浸在拉出工序(1)中被拉出的构成要素(III)的基材中的树脂含浸工序;

工序(3):仅在树脂含浸工序(2)中得到的树脂含浸物的表面粘合构成要素(II)的树脂粘合工序;

工序(4):将树脂粘合工序(3)中得到的热塑性树脂预浸料坯冷却并取回的取回工序。

26. 如权利要求 25 所述的热塑性树脂预浸料坯的制造方法,其中,在所述树脂含浸工序(2)中,使所述拉出工序(1)中被拉出的构成要素(III)的基材通过供给有熔融了的构成要素(I)的模具中,在所述模具中使熔融了的构成要素(I)含浸于基材。

27. 如权利要求 25 所述的热塑性树脂预浸料坯的制造方法,其中,在所述树脂含浸工序(2)中,在所述拉出工序(1)中被拉出的构成要素(III)的基材中配置粉末状的构成要素(I),接着使粉末状的构成要素(I)熔融并含浸。

28. 如权利要求 25 所述的热塑性树脂预浸料坯的制造方法,其中,在所述树脂含浸工序(2)中,在将所述拉出工序(1)中被拉出的构成要素(III)的基材和片状的构成要素(I)层合的同时、或在层合之后,使片状的构成要素(I)熔融并含浸。

29. 如权利要求 25 所述的热塑性树脂预浸料坯的制造方法,其中,在所述树脂含浸工序(2)中,在将所述拉出工序(1)中被拉出的构成要素(III)的基材和纤维状的构成要素(I)混纤的同时、或在混纤之后,使纤维状的构成要素(I)熔融并含浸。

30. 如权利要求 25 ~ 29 中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯的制造方法,其中,在所述树脂粘合工序(3)中,仅对经过了所述树脂含浸工序(2)的树脂含浸物的表面赋予片状的构成要素(II)。

31. 如权利要求 25 ~ 30 中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯的制造方法,其中,在所述树脂粘合工序(3)中,在经过了所述树脂含浸工序(2)的树脂含浸物的单侧表面或全部表面以层状粘合熔融了的构成要素(II)。

32. 如权利要求 25 ~ 31 中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯的制造方法,其中,在所述树脂粘合工序(3)中,在经过了所述树脂含浸工序(2)的树脂含浸物的表面粘合粒状或纤维状的构成要素(II)。

33. 一种预成型体的制造方法,将权利要求 1 ~ 15 中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯层合多个并加热加压,借助介于热塑性树脂预浸料坯彼此之间的热塑性树脂(B)进行一体化。

34. 如权利要求 33 所述的预成型体的制造方法,其中,使用自动层合装置进行所述热塑性树脂预浸料坯的层合。

35. 一种预成型体的制造方法,将权利要求 1 ~ 15 中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯和热塑性树脂片材层合并加热加压,借助集中存在于热塑性树脂预浸料坯的表面部位的热塑性树脂(B)进行一体化。

36. 一种复合成型体的制造方法,将权利要求 1 ~ 15 中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯、或权利要求 16 ~ 18 所述的预成型体配置在模内,向所述热塑性树脂预浸料坯或所述预成型体周围供给以下构成要素(IV)或(V),利用热塑性树脂(C)或(D)将所述热塑性树脂预浸料坯或所述预成型体嵌件成型,

构成要素(IV):由与所述热塑性树脂(A)相同或同种的树脂形成的热塑性树脂(C),

构成要素(V):具有所述热塑性树脂(A)的熔点以下的熔点的热塑性树脂(D)。

37. 如权利要求 36 所述的复合成型体的制造方法,其中,所述复合成型体通过将所述预成型体配置在模内、将所述热塑性树脂(C)或(D)注射成型从而被嵌件成型。

38. 如权利要求 36 或 37 所述的复合成型体的制造方法,其中,将热塑性树脂预浸料坯和热塑性树脂片材层合得到的预成型体配置在模内,使所述热塑性树脂预浸料坯部分被配置在包括应被成型的复合成型体的厚度方向中心的位置,并且使所述热塑性树脂片材部分被配置在应被成型的复合成型体的外表面侧的位置,利用所述热塑性树脂(C)或(D)进行嵌件成型。

39. 一种复合成型体的制造方法,其中,将层合多个权利要求1~15中任一项所述的热塑性树脂预浸料坯得到的产物、或权利要求16~18中任一项所述的预成型体加压成型。

## 热塑性树脂预浸料坯、使用其的预成型体及复合成型体、以及它们的制造方法

### 技术领域

[0001] 本发明涉及例如将热塑性树脂预浸料坯彼此层合、或使用热塑性预浸料坯进行嵌件(或注塑)成型时显示优异的粘合性的热塑性树脂预浸料坯、使用其的预成型体及复合成型体、以及它们的制造方法。

### 背景技术

[0002] 由增强纤维和热塑性基体树脂形成的现有的热塑性树脂预浸料坯在将预浸料坯彼此重叠的加压成型、将预浸料坯嵌件(或注塑)的注射成型、注射加压成型等中,预浸料坯间的粘合性低。因此,存在在充分发挥被成型的复合成型体本身的机械特性之前热塑性树脂预浸料坯剥离的问题。

[0003] 对于该问题,为了改善粘合性,有热塑性树脂预浸料坯的基体树脂本身使用熔点低、流动性高的树脂的方法(例如专利文献1),但熔点低的低分子量的树脂存在机械强度差的问题。

[0004] 进而,为了提高热塑性树脂预浸料坯的粘合性,例如若提高温度、压力进行加压成型,则存在加压成型时增强纤维与流动性高的树脂一同流动、导致取向混乱的倾向,复合成型体的机械强度、翘曲、外观的控制困难,成型条件受到限制,另外复合成型体的薄型化困难。

[0005] 专利文献1:日本特开2008-231292号公报

### 发明内容

[0006] 因此,鉴于上述现状,本发明的课题在于提供一种热塑性树脂预浸料坯、使用其的预成型体及复合成型体、以及它们的制造方法,所述热塑性树脂预浸料坯例如在将热塑性树脂预浸料坯彼此层合、或使用热塑性预浸料坯进行嵌件(或注塑)成型时,能够效率良好地提高预浸料坯表面的粘合性,而不会发生由热塑性树脂预浸料坯的基体树脂本身的种类导致的机械特性的下降,能够确保使用其的预成型体及/或复合成型体的成型时的期望的粘合性。

[0007] 为了解决上述课题,本发明的热塑性树脂预浸料坯的特征在于,至少由以下构成要素(I)~(III)构成。

[0008] 构成要素(I):具有直链状或支链状的高分子结构的热塑性树脂(A)20~60重量份

[0009] 构成要素(II):集中存在于表面部位、具有低于该热塑性树脂(A)的熔点的热塑性树脂(B)2~10重量份

[0010] 构成要素(III):增强纤维30~78重量份

[0011] 在上述本发明的热塑性树脂预浸料坯中,由集中存在于表面部位的熔点较低的热塑性树脂(B)形成的构成要素(II)显示高粘合性,该高粘合性专门仅在预浸料坯的表面部

位发挥。另一方面,预浸料坯的内层部由基体树脂和构成要素(III)构成,所述基体树脂由具有直链状或支链状的高分子结构的、熔点较高的热塑性树脂(A)的构成要素(I)形成,所述构成要素(III)由增强纤维形成,因此,在成型后,能够显示与通常的FRP(纤维增强塑料)同等的高机械特性,防止使用熔点低的热塑性树脂作为基体树脂时的机械特性的下降。因此,通过使用所述本发明的热塑性树脂预浸料坯,在将预浸料坯彼此重叠进行层合的加压成型、将预浸料坯进行嵌件的注射成型、注射加压成型等中,能够获得基材间的优异的粘合性,防止基材的剥离,同时实现成型体的高机械特性。

[0012] 在如上所述的本发明的热塑性树脂预浸料坯中,例如上述热塑性树脂(A)和热塑性树脂(B)的构成可以为:除分子结构以外由同种的树脂形成。如果为同种的树脂,则相互亲和性高,因此也容易避免热塑性树脂(A)和热塑性树脂(B)的层发生层间剥离那样的事态。

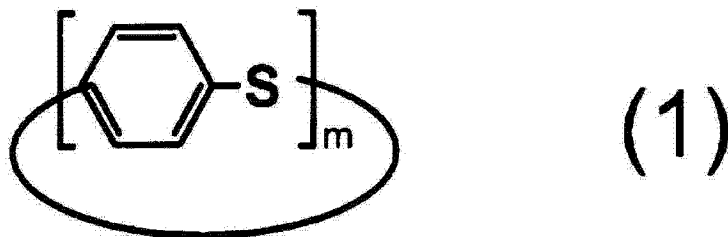
[0013] 更具体而言,例如本发明的热塑性树脂预浸料坯中,上述热塑性树脂(A)由均聚物树脂形成,上述热塑性树脂(B)由共聚聚合物树脂或无规聚合物树脂形成,由此可实现。通过使共聚聚合物树脂、或无规聚合物树脂为热塑性树脂(B),可实现较低的熔点,在预浸料坯的表面部位可实现期望的优异的粘合性。

[0014] 或者,本发明的热塑性树脂预浸料坯中,上述热塑性树脂(A)由聚酰胺6树脂、聚酰胺66树脂、聚酰胺46树脂、或聚酰胺9T树脂形成,上述热塑性树脂(B)由共聚聚酰胺树脂、聚酰胺11树脂、聚酰胺12树脂、或聚酰胺610树脂形成,由此可实现。通过使共聚聚酰胺树脂、聚酰胺11树脂、聚酰胺12树脂、或聚酰胺610树脂为热塑性树脂(B),可实现较低的熔点,在预浸料坯的表面部位可实现期望的优异的粘合性。

[0015] 另外,本发明的热塑性树脂预浸料坯中,上述热塑性树脂(A)具有直链状或支链状的高分子结构,上述热塑性树脂(B)具有环状分子结构,由此可实现。通过为具有环状分子结构的热塑性树脂(B),可实现较低的熔点,在预浸料坯的表面部位可实现期望的优异的粘合性。

[0016] 更具体而言,例如可以举出以下构成:上述热塑性树脂(A)由重均分子量为10,000以上的高分子量聚苯硫醚形成,上述热塑性树脂(B)由以下述通式(1)表示的环状聚苯硫醚作为主要成分的树脂组合物形成。需要说明的是,此处,以环状聚苯硫醚作为主要成分的树脂组合物是指含有50wt%以上环状聚苯硫醚的树脂组合物,例如50wt%环状聚苯硫醚和50wt%直链状或支链状的高分子量聚苯硫醚的混合物也包含在本发明的热塑性树脂(B)中。当然,环状聚苯硫醚可以为100wt%。

[0017]



[0018] (其中,m为4~20的整数,m可以为4~20的混合物。)

[0019] 另外,同样也可以举出下述构成作为优选的方案:上述热塑性树脂(A)由重均分子量为10,000以上的高分子量聚醚醚酮形成,上述热塑性树脂(B)由以环状聚醚醚酮作为

主要成分的树脂组合物形成。除此之外,也可以举出高分子量聚对苯二甲酸丁二醇酯和环状聚对苯二甲酸丁二醇酯的组合、高分子量聚碳酸酯和环状聚碳酸酯的组合作为例子。

[0020] 另外,本发明的热塑性树脂预浸料坯中,上述热塑性树脂(A)和热塑性树脂(B)的构成也可以为由不同种类的树脂形成。即使为不同种类的树脂,只要不发生层间剥离、能够满足热塑性树脂(A)和热塑性树脂(B)各自所要求的特性,就能够得到与上述同种树脂的情况同等的性能。

[0021] 更具体而言,例如可以举出下述构成:上述热塑性树脂(A)由聚苯硫醚树脂、聚酰胺树脂或聚烯烃树脂形成,上述热塑性树脂(B)由以实质上不含固化剂的环氧树脂作为主要成分的树脂组合物形成。实质上不含固化剂的环氧树脂由于疑似与热塑性树脂同样显示由热产生的可塑性,所以不含固化剂的树脂组合物的情况可以作为热塑性树脂处理。此处,所谓实质上不含固化剂是指即使一部分环氧树脂固化、作为整体也显示由热产生的可塑性的范围。当然,含有固化剂可作为树脂固化的环氧树脂不显示由热产生的可塑性,所以为热固性树脂。

[0022] 另外,本发明的热塑性树脂预浸料坯中,作为集中存在于表面部位的上述热塑性树脂(B)的存在形态没有特别限定,例如可以采用以下形态:热塑性树脂(B)以层状存在于上述热塑性树脂(A)的全部表面的形态;热塑性树脂(B)以粒状或纤维状存在于热塑性树脂(A)的表面的形态。进而,热塑性树脂(B)也可以以海岛状(或反海岛状)的形态存在于热塑性树脂(A)的表面。

[0023] 另外,本发明的热塑性树脂预浸料坯整体的形态也没有特别限定,如果为构成为片状的热塑性树脂预浸料坯,则层合容易,并且也能够使其容易地沿着比较复杂的模内面,因此对加压成型或嵌件成型来说可以说是优选的形态。

[0024] 另外,上述增强纤维的形态也没有特别限定,增强纤维的至少一部分具有连续增强纤维单向并行排列的单向增强纤维基材的形态时,能够使增强纤维在特定的方向上效率良好地取向,特别是能容易提高特定方向的机械特性。另外,上述增强纤维的至少一部分具有增强纤维织物的形态时,可容易获得准各向同性的机械特性。

[0025] 另外,上述增强纤维的种类也没有特别限定,可以应用碳纤维、玻璃纤维、芳族聚酰胺纤维、或将它们中的任意一种进行组合的混合形态的增强纤维等,增强纤维为包含碳纤维的构成时,可容易获得高机械特性(强度、弹性模量)。

[0026] 本发明也提供一种预成型体,所述预成型体是将多个如上所述的热塑性树脂预浸料坯层合并加热加压,借助介于热塑性树脂预浸料坯彼此之间的热塑性树脂(B)进行一体化而得到的。在上述预成型体中,预浸料坯彼此借助具有优异粘合性的热塑性树脂(B)进行一体化,因此,即使在严苛的成型条件下,也能对预浸料坯容易剥离的情况进行抑制。另外,使用热塑性树脂预浸料坯将上述预成型体或后述的复成型体成型时,例如有时在成型前将预浸料坯彼此临时粘合(临时固定、临时粘结)。这种情况下,也可借助上述热塑性树脂(B)进行临时粘合。通过所述临时粘合,在成型前,例如不仅能够赋予使预浸料坯彼此的层合体可稳定地进行搬运的适度的粘性,而且也能够表现防止预浸料坯的错位、能维持正确的取向角度等的形态稳定效果,可赋予优异的操作性。进而,由于为临时粘合(临时固定、临时粘结),所以产生不良情况时,例如也可以加热至超过热塑性树脂(B)的熔点、低于热塑性树脂(A)的熔点,剥下临时粘合,重新粘合。



[0027] 或者,本发明中,也可以将如上所述的热塑性树脂预浸料坯与热塑性树脂片材层合并加热加压,制成借助集中存在于热塑性树脂预浸料坯的表面部位的热塑性树脂(B)进行一体化的预成型体。将上述热塑性树脂预浸料坯配置在模内,向模内的热塑性树脂预浸料坯的周围供给熔融树脂,将上述热塑性树脂预浸料坯进行嵌件成型得到复合成型体时,通过层合上述热塑性树脂片材,热塑性树脂片材发挥垫片的作用,可以将热塑性树脂预浸料坯配置在包括热塑性树脂预浸料坯应被成型的复合成型体的厚度方向中心的位置。即,由于集中存在于热塑性树脂预浸料坯的表面部位的热塑性树脂(B)被预先配置,所以可容易地形成预成型体,并且,以上述热塑性树脂片材与模的内面抵接的方式将预成型体配置在模内,仅通过这样就可以不使用特别的夹具等、非常容易地使嵌件成型时的热塑性树脂预浸料坯位于应被成型的复合成型体的厚度方向中央部。特别是,通过将热塑性树脂片材的厚度事先设定为相对于应被成型的复合成型体的总厚度、热塑性树脂预浸料坯的厚度为适当的厚度,能够非常容易地将热塑性树脂预浸料坯配置在包括应被成型的复合成型体的厚度方向中心的位置。在上述预成型体的配置状态下,进行使用熔融树脂的嵌件成型,在嵌件成型中、嵌件成型后,热塑性树脂预浸料坯被保持为经配置的配置在应被成型的复合成型体的厚度方向中央部(特别是包括应被成型的复合成型体的厚度方向中心的位置)的状态,因此,能够防止或在较大程度上抑制由热塑性树脂预浸料坯的基体树脂与熔融树脂的收缩率之差引起的复合成型体的翘曲的发生。另外,由于作为嵌件成型本身,只是热塑性树脂预浸料坯代替上述预成型体,可没有问题地应用通常的嵌件成型方法,所以也完全没有必要使用例如日本特开 2001 - 293746 号公报所示的特别的定位保持具,因此容易确保优异的成型性、优异的生产率。进而,将上述树脂片材以配置在应被成型的复合成型体的外表面侧的位置的方式配置在模内时,能够容易得到具有优异的外观的复合成型体,能够得到生产率、外观也优异的复合成型体。

[0028] 在如上所述的本发明的预成型体中,作为预成型体的侧面,可以采用具有凹型形状、或阶梯形状的侧面的构成。在上述构成中,熔融了的树脂流入预成型体的侧面的凹型形状、或阶梯形状中,例如用熔融了的树脂将预成型体进行嵌件成型时的、预成型体的侧面部分,其结果能够确保预成型体和液化了的树脂的良好的粘合性。特别在凹型形状且阶梯形状的情况下,复合成型体的表面的熔融了的树脂的未填充也被抑制在最小限度,因此,也能防止得到的复合成型体的外观的品质的下降。

[0029] 另外,在如上所述的预成型体中,作为预成型体的侧面,也可以为具有下述侧面的构成:具有凹型形状、或阶梯形状,并且至少一部分具有根切(under cut)形状。在上述构成中,进行如上所述的嵌件成型时,预成型体形成极难从液化了的树脂侧脱落的形态,可以实现两者间的接合强度非常高的复合成型体。

[0030] 另外,本发明还提供一种复合成型体,所述复合成型体是如上所述的热塑性树脂预浸料坯、或如上所述的预成型体通过以下构成要素(IV)或(V)进行嵌件(或注塑)成型而得到的。

[0031] 构成要素(IV):由与上述热塑性树脂(A)相同或同种的树脂形成的热塑性树脂(C)

[0032] 构成要素(V):具有上述热塑性树脂(A)的熔点以下的熔点的热塑性树脂(D)

[0033] 在上述复合成型体中,嵌件(或注塑)成型中使用的构成要素(IV)或(V)由由与热

塑性树脂(A)相同或同种的树脂形成的热塑性树脂(C)或具有热塑性树脂(A)的熔点以下的熔点的热塑性树脂(D)形成,因此,热塑性树脂预浸料坯、预成型体中使用的热塑性树脂(B)相对于热塑性树脂(C)、(D)能够发挥优异的粘合性,表现嵌件(或注塑)成型中所要求的树脂之间足够高的粘合性。

[0034] 在上述复合成型体中,特别是可以为下述构成:将上述预成型体配置在模内、将上述热塑性树脂(C)或(D)进行注射成型,由此进行嵌件成型。通过注射成型,成型变得容易,同时也可容易地应对批量生产。

[0035] 另外,在上述复合成型体中,上述热塑性树脂(C)或(D)的构成可以为由包含增强纤维的纤维增强树脂形成。通过使热塑性树脂(C)或(D)为纤维增强树脂,作为复合成型体整体的强度、刚性的提高成为可能。

[0036] 这种情况下,上述热塑性树脂(C)或(D)由包含纤维长度 1mm 以下的增强纤维的纤维增强树脂形成时,能够得到由增强纤维产生的高增强效果。

[0037] 另外,在上述复合成型体中,也可以为下述形态:热塑性树脂预浸料坯与热塑性树脂片材层合,该热塑性树脂片材由上述热塑性树脂(A)或(C)构成。将上述热塑性树脂预浸料坯配置在模内,向模内的热塑性树脂预浸料坯的周围供给熔融树脂,将上述热塑性树脂预浸料坯进行嵌件成型得到复合成型体时,在上述形态的复合成型体中,熔融树脂和上述热塑性树脂片材能够效率良好地粘合·一体化,能够生产率高地得到具有优异外观的复合成型体。

[0038] 进而,本发明还提供一种复合成型体,所述复合成型体是将层合多个如上所述的热塑性树脂预浸料坯得到的热塑性树脂预浸料坯彼此、或如上所述的预成型体加压成型而得到。在上述复合成型体中,加压成型中集中存在于热塑性树脂预浸料坯的表面部位的热塑性树脂(B)发挥优异的粘合性,能够容易地进行良好的加压成型。另外,预浸料坯彼此的加压成型中,在预浸料坯中使用的基体树脂(构成要素(I))不熔融的低温下借助热塑性树脂(B)的粘合成为可能。因此,可以在不打乱基体树脂中的增强纤维的排列的情况下容易地得到期望的层合体。

[0039] 本发明的热塑性树脂预浸料坯的制造方法为如上所述的热塑性树脂预浸料坯的制造方法,包括特征在于至少经过以下工序的方法。

[0040] 工序(1):至少将构成要素(III)的基材拉出的拉出工序

[0041] 工序(2):使熔融了的构成要素(I)含浸在拉出工序(1)中被拉出的构成要素(III)的基材中的树脂含浸工序

[0042] 工序(3):仅在树脂含浸工序(2)中得到的树脂含浸物的表面粘合构成要素(II)的树脂粘合工序

[0043] 工序(4):将树脂粘合工序(3)中得到的热塑性树脂预浸料坯冷却并取回的取回工序

[0044] 上述本发明的热塑性树脂预浸料坯的制造方法中,通过使熔融了的构成要素(I)含浸在拉出工序(1)中被拉出的构成要素(III)的基材中,形成由增强纤维和基体树脂形成的预浸料坯形态,例如紧接其后,在构成要素(I)没有完全冷却的期间,通过树脂粘合工序(3)仅在树脂含浸工序(2)中得到的树脂含浸物的表面粘合构成要素(II),使构成要素(II)集中存在于表面部位,然后,通过取回工序(4)将树脂粘合工序(3)中得到的热塑性树

脂预浸料坯冷却并取回。通过上述一系列工序,能够效率良好地连续制造上述热塑性树脂预浸料坯。

[0045] 更具体而言,也如下述的实施方式所示,在上述树脂含浸工序(2)中,可以使上述拉出工序(1)中被拉出的构成要素(III)的基材通过供给有熔融了的构成要素(I)的模具中,在该模具中使熔融了的构成要素(I)含浸于基材。

[0046] 另外,上述树脂含浸工序(2)中,也可以在上述拉出工序(1)中被拉出的构成要素(III)的基材中配置粉末状的构成要素(I),接着使粉末状的构成要素(I)熔融并含浸。

[0047] 另外,在上述树脂含浸工序(2)中,也可以在将上述拉出工序(1)中被拉出的构成要素(III)的基材和片状的构成要素(I)层合的同时、或在层合之后,使片状的构成要素(I)熔融并含浸。

[0048] 另外,上述树脂含浸工序(2)中,也可以在将上述拉出工序(1)中被拉出的构成要素(III)的基材和纤维状的构成要素(I)混纤的同时、或在混纤之后,使纤维状的构成要素(I)熔融并含浸。

[0049] 另外,在上述树脂粘合工序(3)中,可以仅对刚经过了上述树脂含浸工序(2)之后的树脂含浸物的表面赋予构成要素(II)。例如,在上述树脂粘合工序(3)中,可以在经过了上述树脂含浸工序(2)的树脂含浸物的单侧表面或全部表面以层状粘合熔融了的构成要素(II)。这种情况下,除了涂布熔融树脂的方法之外,也可以采用粘合片状的构成要素(II)的方法。另外,在上述树脂粘合工序(3)中,也可以在经过了上述树脂含浸工序(2)的树脂含浸物的表面粘合粒状或纤维状的构成要素(II)。

[0050] 另外,本发明的预成型体的制造方法包括下述方法:层合多个如上所述的热塑性树脂预浸料坯并加热加压,借助介于热塑性树脂预浸料坯彼此之间的热塑性树脂(B)进行一体化。由于借助热塑性树脂(B)将热塑性树脂预浸料坯彼此一体化,所以在成型时能够防止预成型体的任意一个预浸料坯层剥离,能容易地得到作为期望的层合体的预成型体。对于热塑性树脂预浸料坯的层合,优选使用自动层合装置进行上述热塑性树脂预浸料坯的层合。作为自动层合装置,例如可以举出自动纤维铺放装置(AFP、自动纤维层合装置)、自动胶带敷层装置(ATL、自动胶带层合装置)等。借助本发明的热塑性预浸料坯中的热塑性树脂(B)可以将预浸料坯彼此粘合,因此能够在更低的温度、更低的压力下容易地进行一体化。利用所述自动层合装置层合时,不仅能正确地进行加热加压,而且也能容易地追随复杂的形状,进而层合的效率也能够提高。需要说明的是,对于自动纤维层合装置、自动胶带层合装置,例如在“<http://www.compositesworld.com/articles/afpatl-design-to-manufacture-bridging-the-gap.aspx>”、“<http://www.compositesworld.com/articles/atl-and-afp-defining-the-megatrends-in-composite-aerostructures>”、“<http://www.compositesworld.com/articles/atl-and-afp-signs-of-evolution-in-machine-process-control>”中有讲解,可以适当选择这些装置使用。

[0051] 另外,本发明的预成型体的制造方法包括下述方法:将如上所述的热塑性树脂预浸料坯和热塑性树脂片材层合并加热加压,借助集中存在于热塑性树脂预浸料坯的表面的热塑性树脂(B)进行一体化。在上述方法中,集中存在于热塑性树脂预浸料坯的表面部位的热塑性树脂(B)被预先配置,因此,能够容易地将上述热塑性树脂片材一体化、形成预成型体。

[0052] 另外,本发明的复合成型体的制造方法包括下述方法:将如上所述的热塑性树脂预浸料坯、或预成型体配置在模内,向该热塑性树脂预浸料坯或该预成型体周围供给以下构成要素(IV)或(V),利用热塑性树脂(C)或(D)将该热塑性树脂预浸料坯或该预成型体进行嵌件成型。

[0053] 构成要素(IV):由与上述热塑性树脂(A)相同或同种的树脂形成的热塑性树脂(C)

[0054] 构成要素(V):具有上述热塑性树脂(A)的熔点以下的熔点的热塑性树脂(D)

[0055] 在上述方法中,由于热塑性树脂预浸料坯或该预成型体在表面部位具有粘合性优异的热塑性树脂(B),所以借助该热塑性树脂(B)具有高粘合性、利用热塑性树脂(C)或(D)进行嵌件成型。

[0056] 另外,在如上所述的复合成型体的制造方法中,将上述复合成型体、上述预成型体配置在模内,将上述热塑性树脂(C)或(D)进行注射成型,由此可进行嵌件成型。

[0057] 另外,在如上所述的复合成型体的制造方法中,也可以将热塑性树脂预浸料坯和热塑性树脂片材层合得到的预成型体配置在模内,以使热塑性树脂预浸料坯部分被配置在包括应被成型的复合成型体的厚度方向中心的位置,并且使热塑性树脂片材部分被配置在应被成型的复合成型体的外表面侧的位置,利用上述热塑性树脂(C)或(D)进行嵌件成型。

[0058] 进而,本发明的复合成型体的制造方法包括下述方法:将层合了多个如上所述的热塑性树脂预浸料坯得到的产物、或如上所述的预成型体加压成型。在加压成型时,集中存在于热塑性树脂预浸料坯或该预成型体的表面部位的热塑性树脂(B)表现优异的粘合性,因此,可容易地进行期望的加压成型。另外,如上所述,预浸料坯彼此的加压成型中,在预浸料坯中使用的基体树脂(构成要素(I))不熔融的低温下借助热塑性树脂(B)的粘合成为可能,能够在不打乱基体树脂中的增强纤维的排列的情况下容易地获得期望的层合体。

[0059] 如上所述,根据本发明的热塑性树脂预浸料坯及其制造方法,能够得到内部保持期望的增强纤维和基体树脂的形态、并且显著提高了表面部位的粘合性的热塑性树脂预浸料坯,通过使用该热塑性树脂预浸料坯进行成型,可容易且生产率良好地制造能以期望的增强纤维排列形态表现目标机械特性的成型品。

[0060] 另外,根据使用上述热塑性树脂预浸料坯的本发明的预成型体及复合成型体以及它们的制造方法,能够有效利用集中存在于该热塑性树脂预浸料坯的表面部位的热塑性树脂(B)的优异的粘合性,容易地制造期望的预成型体及复合成型体。

## 附图说明

[0061] [图 1]为本发明的一个实施方式的热塑性树脂预浸料坯的截面简图。

[0062] [图 2]为表示本发明的一个实施方式的热塑性树脂预浸料坯的制造方法的构成简图。

[0063] [图 3]为表示本发明的另一个实施方式的热塑性树脂预浸料坯的制造方法的构成简图。

[0064] [图 4]为表示本发明的另一个实施方式的热塑性树脂预浸料坯的制造方法的构成简图。

[0065] [图 5]为表示本发明的一个实施方式的复合成型体的制造方法的构成简图。

## 具体实施方式

[0066] 以下,一边参照附图一边说明本发明的优选实施方式。

[0067] 图 1 表示本发明的一个实施方式的热塑性树脂预浸料坯的简要截面。图 1 中,1 表示形成为片状的热塑性树脂预浸料坯,热塑性树脂预浸料坯 1 至少由以下构成要素(I)~(III)构成。

[0068] 构成要素(I):具有直链状或支链状的高分子结构的热塑性树脂(A) 20 ~ 60 重量份(图 1 中的 2)

[0069] 构成要素(II):集中存在于表面部位、具有低于该热塑性树脂(A)的熔点的热塑性树脂(B) 2 ~ 10 重量份(图 1 中的 3)

[0070] 构成要素(III):增强纤维 30 ~ 78 重量份(图 1 中的 4)

[0071] 特别地,本实施方式中,作为优选的形态,上述热塑性树脂(A) (2) 具有直链状或支链状的高分子结构,上述热塑性树脂(B) (3) 具有环状分子结构。而且,热塑性树脂(A) (2) 和热塑性树脂(B) (3) 除分子结构以外由同种的树脂形成。若更具体地给出优选的树脂种类,则热塑性树脂(A) (2) 由重均分子量为 10,000 以上的高分子量聚苯硫醚形成,热塑性树脂(B) (3) 由上述通式(1)表示的环状聚苯硫醚形成。

[0072] 上述热塑性树脂预浸料坯 1 例如可以利用图 2、图 3、图 4 所示的方法进行制造。在图 2 所示的方法中,例如连续增强纤维(例如碳纤维)在单向上被并拢的带状且片状的增强纤维基材 11 在拉出工序中被拉出。使拉出工序中被拉出的增强纤维基材 11 通过供给有熔融了的热塑性树脂(A) (例如重均分子量为 10,000 以上的高分子量聚苯硫醚)的模具 13 中。模具 13 中,熔融了的热塑性树脂(A)含浸于增强纤维基材 11。对于热塑性树脂(A),例如颗粒状的热塑性树脂(A) 15 被投入到供给装置 16 的进料斗 17,用挤出机 18 使其熔融后被供给至模具 13 中。

[0073] 经过了上述树脂含浸工序的树脂含浸物 19 (即含浸有熔融了的热塑性树脂(A)的增强纤维基材 11) 中,实质上树脂含浸物 19 从模具 13 中出来后,在树脂粘合工序中,在其表面部位以层状被涂布、粘合熔融了的热塑性树脂(B) 20 (例如用上述通式(1)表示的环状聚苯硫醚)。关于熔融了的热塑性树脂(B) 20,例如颗粒状的热塑性树脂(B) 21 被投入到涂布装置 22 的进料斗 23,用挤出机 24 使其熔融后从前端部的喷嘴 25 喷出,被涂布、粘合在树脂含浸物 19 的表面。

[0074] 上述树脂粘合工序中得到的热塑性树脂预浸料坯 26 例如具有如图 1 所示的截面形态,将其冷却并取回。对于该取回工序,省略图示,可以采用卷绕方法、保持片状切成适当的尺寸并堆叠起来的方法等适合的公知方法。

[0075] 在图 3 所示的方法中,至模具 13 的出口为止与图 1 所示的方法相同,实质上在树脂含浸物 19 刚从模具 13 出来之后,在树脂粘合工序中,在树脂含浸物 19 的表面部位散布粒状的热塑性树脂(B) 31 (例如用上述通式(1)表示的环状聚苯硫醚),被粘合在树脂含浸物 19 的表面上。散布的热塑性树脂(B) 31 由于熔点低,所以因高温状态的树脂含浸物 19 而或多或少熔融,在树脂含浸物 19 的表面上整面地或稀疏地以层状展开,形成热塑性树脂(B) 层 32。上述树脂粘合工序中得到的热塑性树脂预浸料坯 33 也具有例如与图 1 所示同样的截面形态(可存在热塑性树脂(B) 层 32 连续地展开的情况、和断续地展开的情况),将

其冷却并取回。对于该取回工序,省略图示,可采用卷绕方法、保持片状切成适当的尺寸并堆叠起来的方法等适合的公知方法。

[0076] 在图 4 所示的方法中,至模具 13 的出口为止与图 1 所示的方法相同,实质上在树脂含浸物 19 刚从模具 13 出来之后,在树脂粘合工序中,在树脂含浸物 19 的表面部位用夹持辊 12 将片状的无纺布(微观地观察时为纤维的集合体,因此可以称为纤维状)的热塑性树脂(B)14 (例如用上述通式(1)表示的环状聚苯硫醚)加热加压,粘合在树脂含浸物 19 的表面。散布的热塑性树脂(B)14 由于熔点低,所以因高温状态的树脂含浸物 19 而或多或少熔融,在树脂含浸物 19 的表面上整面地或稀疏地以层状展开,形成热塑性树脂(B)层 34。上述树脂粘合工序中得到的热塑性树脂预浸料坯 35 例如也具有与图 1 所示同样的截面形态(可存在热塑性树脂(B)层 32 连续地展开的情况、和断续地展开的情况),将其冷却并取回。对于该取回工序,省略图示,可采用卷绕方法、保持片状切成适当的尺寸并堆叠起来的方法等适合的公知方法。

[0077] 这样制造的热塑性树脂预浸料坯 26、33、35 如上所述由于集中存在于表面部位的热塑性树脂(B)而具有优异的粘合性。因为仅对表面部位赋予所述优异的粘合性,所以内层部的增强纤维和基体树脂(热塑性树脂(A))的期望的预浸料坯形态被维持原样,嵌件成型、加压成型中的粘合性提高,并且能够确保作为成型体的期望的机械特性。因此,对于使用了该热塑性树脂预浸料坯 26、33、35 的预成型体、复成型体,也能确保期望的成型特性、机械特性。

[0078] 图 5 表示本发明的一个实施方式的复成型体的制造方法。将用图 3 所示的方法得到的热塑性树脂预浸料坯 5a、和热塑性树脂片材 5c 借助集中存在于热塑性树脂预浸料坯的表面部位的热塑性树脂(B)5b 进行一体化,形成预成型体 5。将该预成型体 5 配置在模内,利用注射成型将熔融了的热塑性树脂(C)或(D)6 供给至模内,通过嵌件成型得到复成型体 7。通过层合上述热塑性树脂片材 5c,热塑性树脂预浸料坯 5a 可配置在包括热塑性树脂预浸料坯 5a 应被成型的复成型体 7 的厚度方向中心的位置。如上所述,能够非常容易地使嵌件成型时的热塑性树脂预浸料坯位于应被成型的复成型体的厚度方向中央部,并且对于得到的复成型体来说,也可以将翘曲的发生抑制在最小限度。

[0079] 另外,图 5 的预成型体 5 具有凹型形状、及阶梯形状中的任一种形状的侧面作为其侧面,因此利用注射成型供给熔融了的热塑性树脂(C)或(D)6 时,熔融树脂流入上述凹型形状及阶梯形状,能够确保良好的粘合性。图 5 的情况,复成型体的表面中熔融了的树脂的未填充也被抑制在最小限度,因此可以将得到的复成型体的外观品质的下降抑制在最小限度。

[0080] 产业上的可利用性

[0081] 本发明的热塑性树脂预浸料坯,例如在将热塑性树脂预浸料坯彼此层合、或使用热塑性预浸料坯进行嵌件(注塑)成型时,能够适用于要求优异的粘合性而不破坏机械特性的所有成型,特别适合于嵌件成型、加压成型。

[0082] 符号说明

[0083] 1、5a 热塑性树脂预浸料坯

[0084] 2 热塑性树脂(A)

[0085] 3、5b 热塑性树脂(B)

- [0086] 4 增强纤维
- [0087] 5 预成型体
- [0088] 5c 热塑性树脂片材
- [0089] 6 热塑性树脂(C)或(D)
- [0090] 7 复合成型体
- [0091] 11 增强纤维基材
- [0092] 12 夹持辊
- [0093] 13 模具
- [0094] 14 无纺布状的热塑性树脂(B)
- [0095] 15 颗粒状的热塑性树脂(A)
- [0096] 16 供给装置
- [0097] 17 进料斗
- [0098] 18 挤出机
- [0099] 19 树脂含浸物
- [0100] 20 熔融了的热塑性树脂(B)
- [0101] 21 颗粒状的热塑性树脂(B)
- [0102] 22 涂布装置
- [0103] 23 进料斗
- [0104] 24 挤出机
- [0105] 25 喷嘴
- [0106] 26、33、35 热塑性树脂预浸料坯
- [0107] 31 粒状的热塑性树脂(B)
- [0108] 32、34 热塑性树脂(B)层

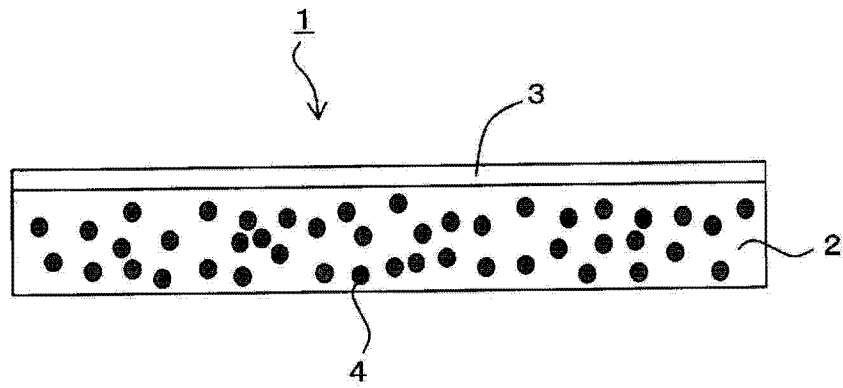


图 1

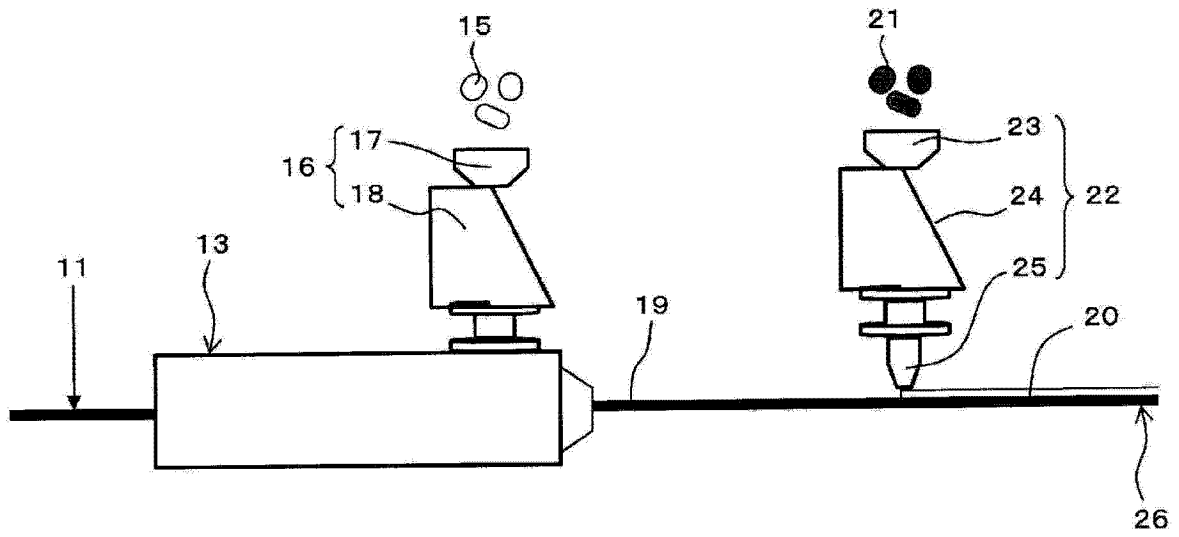


图 2



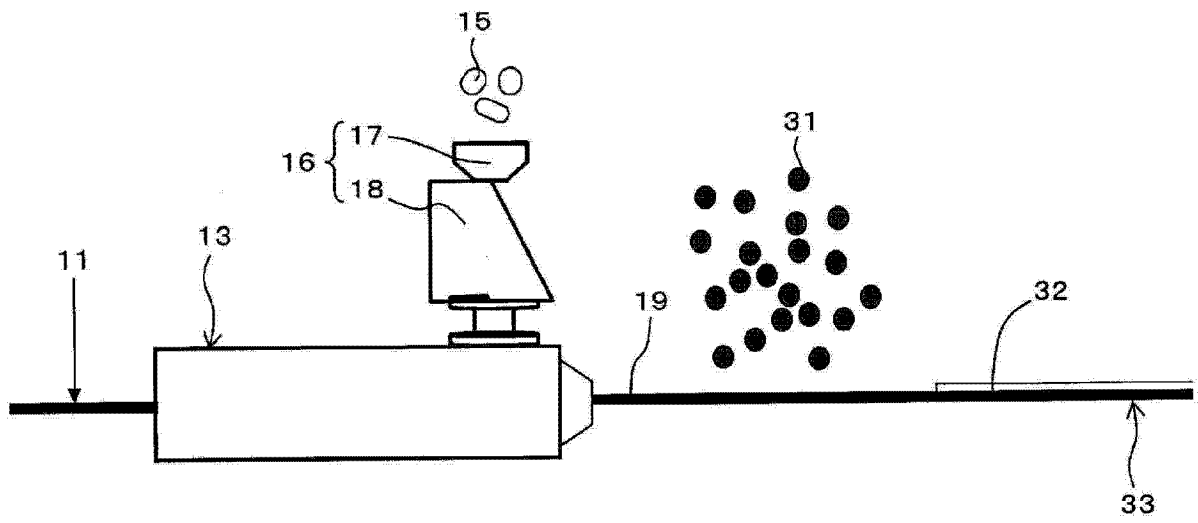


图 3

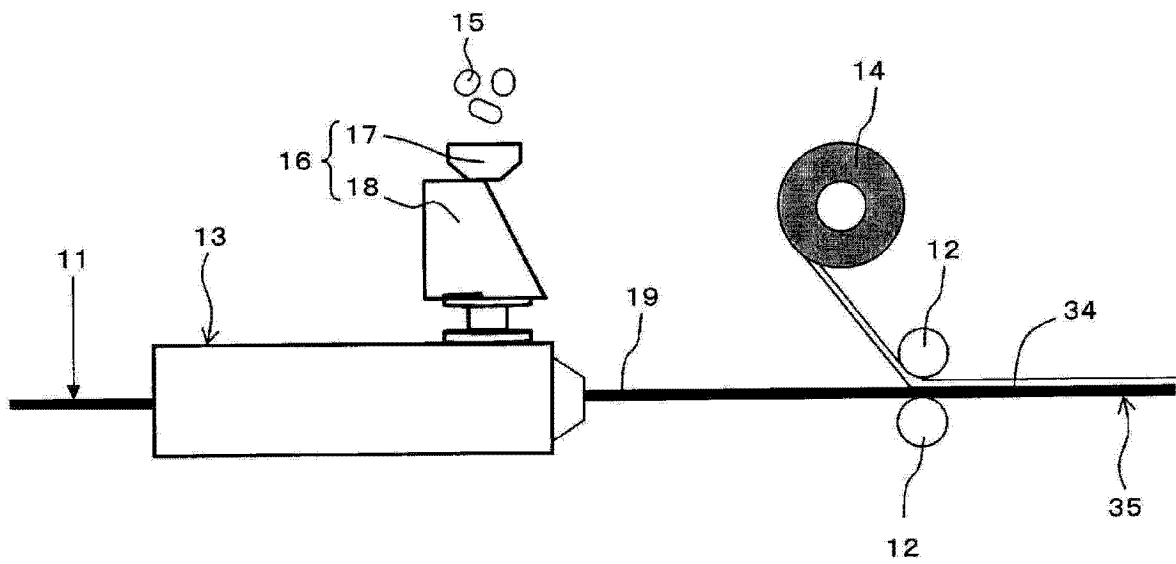


图 4

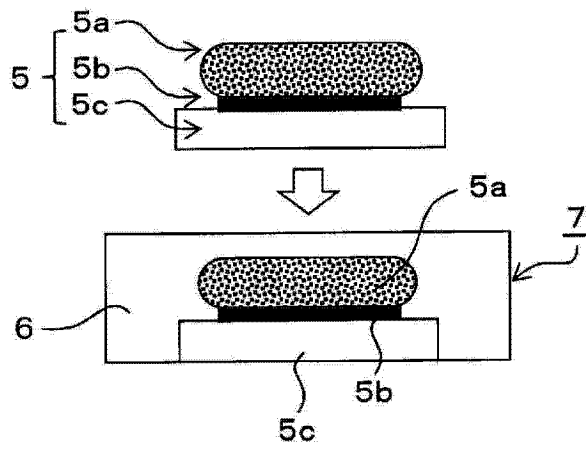


图 5