

(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
2014 年 10 月 2 日(02.10.2014)



(10) 国際公開番号

WO 2014/157391 A1

- (51) 国際特許分類:
C08L 23/10 (2006.01) C08K 7/14 (2006.01)
C08J 5/08 (2006.01) C08L 23/26 (2006.01)
C08K 5/20 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2014/058644
- (22) 国際出願日: 2014 年 3 月 26 日(26.03.2014)
- (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 2013-071190 2013 年 3 月 29 日(29.03.2013) JP
- (71) 出願人: 日本ポリプロ株式会社 (JAPAN POLYPROPYLENE 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: 清水 久志(SHIMIZU Hisashi); 〒5100848 三重県四日市市東邦町 1 番地 日本ポリプロ株式会社内 Mie (JP). 鈴木 章寛(SUZUKI Akihiro); 〒5100848 三重県四日市市東邦町 1 番地 日本ポリプロ株式会社内 Mie (JP).
- (74) 代理人: 濱田 百合子, 外(HAMADA Yuriko et al.); 〒1050003 東京都港区西新橋一丁目 7 番 1 3 号

虎ノ門イーストビルディング 10 階 栄光特許事務所 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, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, 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, 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))

(54) Title: GLASS FIBER-REINFORCED POLYPROPYLENE RESIN COMPOSITION AND MOLDED BODY OF SAME

(54) 発明の名称: ガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物及びその成形体

(57) Abstract: The present invention provides: a glass fiber-reinforced polypropylene resin composition which exhibits high rigidity and high impact strength, while having excellent mold contamination resistance and mold releasability during molding, and which provides a molded body having excellent appearance, metal corrosion resistance and high-temperature bleeding resistance; and a molded body of the glass fiber-reinforced polypropylene resin composition. The present invention relates to: a glass fiber-reinforced polypropylene resin composition which is characterized by containing 35-98.99 parts by weight of a component (A), 1-50 parts by weight of a component (B) and 0.01-15 parts by weight of a component (C) (with the total of the component (A), component (B) and component (C) being 100 parts by weight), and also containing 0.15-0.4 part by weight of a component (D) and 0.01-0.4 part by weight of a component (E) per 100 parts by weight of the total of the component (A), component (B) and component (C); and a molded body and the like of the glass fiber-reinforced polypropylene resin composition. Component A: a polypropylene resin Component B: a glass fiber Component C: a modified polyolefin Component D: an oxamide-based metal deactivation agent having an ester bond Component E: a fatty acid amide

(57) 要約: 本発明は、成形時の耐金型汚染性、離型性及び成形外観ならびに成形体の耐金属腐蝕性および耐高温ブリード性に優れ、高剛性・高衝撃強度である、ガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物及びその成形体を提供する。本発明は、成分 A を 35～98.99 重量部と、成分 B を 1～50 重量部と、成分 C を 0.01～15 重量部と (但し、成分 A と成分 B と成分 C との合計を 100 重量部とする)、及び、成分 A と成分 B と成分 C との合計量 100 重量部に対して、成分 D を 0.15～0.4 重量部と、成分 E を 0.01～0.4 重量部とを、含有することを特徴とするガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物、及びその成形体などに関する。成分 A: ポリプロピレン系樹脂 成分 B: ガラス繊維 成分 C: 変性ポリオレフィン 成分 D: エステル結合を有するオキサミド系金属不活性化剤 成分 E: 脂肪酸アミド

WO 2014/157391 A1

明 細 書

発明の名称：

ガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物及びその成形体

技術分野

[0001] 本発明は、ガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物及びその成形体に関し、さらに詳しくは、成形性、具体的には成形時の耐金型汚染性及び離型性と、成形体の耐金属腐食並びに耐高温ブリード性に優れ、高剛性・高衝撃強度であるガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物及びその成形体に関する。

背景技術

[0002] ガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物は、主としてポリプロピレン系樹脂、変性ポリプロピレン及びガラス繊維からなり、必要に応じて、着色剤、酸化防止剤、耐光安定剤、金属不活性化剤又は滑剤などが添加されて製造され、高剛性・高衝撃強度などの物性、耐久性及び耐クリープ性などに優れるため、自動車部品などの各種工業部品分野などに広く用いられている。

[0003] 該ガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物は、多くの場合、射出成形などにより成形体を得ているが、その成形条件などによっては、成形時に揮発成分などが生成し、その揮発成分などが金型に付着する金型汚染、成形体の金型への過大な密着などによる離型（性）不良、成形体表面の虎縞模様の目立ち又は不均一感を呈するなどの成形外観不良を夫々生じる場合があるという問題がある。

[0004] さらに、その成形体は、その用途に多く想定される使用環境下、例えば100℃を超える様な高温に曝された場合、該成形体表面にブリード現象（滲出成分が成形体表面に滲み出して表面外観を損なう現象）を生ずる場合があるという問題もある。

[0005] この金型汚染、離型（性）不良や成形外観不良、さらに成形体の高温ブリードを防止するための種々の方法がポリプロピレン系樹脂組成物以外の場合

を含め提案されている。

[0006] 例えば特許文献1には、自動車のホイールキャップ用材料などに有用なポリプロピレン樹脂組成物として、エチレン成分3～12質量%、重量平均分子量が1000～50000の低分子量成分0.3～3.5質量%及びメルトフローレート（以下、MFRと記載することもある。）が20～100g/10分である結晶性エチレン-プロピレンブロック共重合体45～83質量%と、不飽和カルボン酸もしくはその誘導体で変性された変性ポリプロピレン樹脂2～20質量%と、ガラス繊維15～35質量%とよりなることを特徴とするガラス繊維強化樹脂組成物が記載されている。

[0007] このガラス繊維強化樹脂組成物は、良好な成形外観と高い剛性・衝撃強度を有することが記載されているが、射出成形時の耐金型汚染性、離型性、成形体の耐金属腐食性及び耐高温ブリード性については何ら考慮されておらず、実際に使用する場合にはこれらの問題が生じ、製造上の問題点となることが懸念される。

[0008] また、特許文献2には、機械強度、耐熱性、剛性、耐衝撃性及び成形性等に優れた無機フィラー強化樹脂組成物を提供することを目的として、（a）特定のポリプロピレン重合体20～96.5質量%と、（b）変性ポリオレフィン0.5～20質量%と、（c）平均繊維径が11μm以下であるガラス繊維3.0～60質量%と、（d）57質量%以下の無機フィラーとの合計100重量部に対し、（e）フェノール系、リン系及び／又はイオウ系の酸化防止剤0.1～3.0重量部と、（f）金属不活性化剤0.02～1.5重量部と、（g）少なくとも1種の耐光安定剤0.1～3.0重量部と、（h）滑剤0.02～2.5重量部とからなる無機フィラー強化樹脂組成物が記載されている。

[0009] この無機フィラー強化樹脂組成物（実施例では、（f）金属不活性化剤として、N,N'-ビス[3-（3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル）プロピオニル]ヒドラジン；デカメチレンジカルボン酸ジサリチロイルヒドラジド；2,2'-オキサミド-ビス-〔エチル-3-（3,5-

ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]; 3-(N-サリチロイル)アミノ-1, 2, 4-トリアゾール; Mark ZS-90 (旭電化工業(株)製); Mark ZS-27 (旭電化工業(株)製); のそれぞれを用いている。)は、高い剛性・衝撃強度、良好な成形性(離型性・添加剤ブリードの有無)、耐熱性、耐候性及び耐銅害性(耐金属腐食性)を有することが記載されている。

[0010] しかしながら、前記成形性(添加剤ブリードの有無)に対する金属不活性化剤の構造による影響(例えば、エステル結合を有するオキサミド系金属不活性化剤とそれに該当しない金属不活性化剤との比較結果や、射出成形時の耐金型汚染性、成形外観及び成形体の耐高温ブリード性等)については何ら考慮されておらず、実際に使用する場合には、これらの影響が製造上の問題点となることが懸念される。

[0011] また、特許文献3には、成形時の金型汚染が少なく、帯電防止性、耐光安定性、成形加工性に優れ、且つ、高い剛性と高い耐衝撃性の良好なバランスを有し、成形体にした場合、フローマークとウエルド外観に優れた成形体を得ることができるポリプロピレン系樹脂組成物及びそれからなる成形体を提供することを課題として、所定のポリプロピレン樹脂(A)98~50重量部と、所定のエチレン- α -オレフィン共重合体ゴム(B)1~25重量部と、無機充填剤(C)1~25重量部と、所定の要件を満足するヒンダードアミン系光安定剤(D)0.02~1重量部と、非イオン系帯電防止剤(E)0.05~1重量部とを含有するポリプロピレン系樹脂組成物が記載されている。

[0012] このポリプロピレン系樹脂組成物は、無機充填剤としてタルクを含有した場合において、良好な帯電防止性及び耐候性と、良好な耐金型汚染性を有することが記載されている。

[0013] しかし、より高い剛性や耐衝撃性を得るために、無機充填剤としてガラス繊維を充填しようとした場合における、耐金型汚染性、離型性、成形外観、成形体の耐高温ブリード性、剛性・衝撃強度などの具体的水準及び各種物性

のバランスについては記載が無く、あきらかでない。

[0014] また、同じく耐金型汚染性を改良するために、特許文献4には、機械的物性及びカーボンブラックの高分散性を損なうことなく、成形時に発生する揮発成分の発生量が少ない導電性樹脂組成物の提供することを課題として、ポリアルキレンフタレート樹脂と、カーボンブラックと、ヒンダードフェノール系酸化防止剤と、金属不活性化剤とを含有してなる導電性樹脂組成物が記載されている。この導電性樹脂組成物（実施例では、金属不活性化剤として、2', 3-ビス[3-[3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル]プロピオニル]プロピオノヒドラジド（ヒドラジド系金属不活性化剤）及び3-N-サリチロイルアミノ-1, 2, 4-トリアゾール（サリチル酸系金属不活性化剤）のそれぞれを用いている。）は、良好な揮発成分の抑制効果を有することが記載されている。

[0015] しかし、金属不活性化剤の構造による影響（例えば、エステル結合を有するオキサミド系金属不活性化剤を用いた場合の前記効果の有無等）並びに、より高い剛性及び耐衝撃性を得るためにガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物とした場合における同手法の効果、耐金型汚染性、離型性、成形外観及び成形体の耐高温ブリード性については何ら考慮されておらず、実際に使用する場合には、これらの物性バランスに偏りが生ずることが懸念される。

[0016] 一方、ガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物は、例えば、冷却ファンに代表される自動車エンジンルーム内部品などのように、直接・間接に、金属と接触する部品などに適用される場合には、熱酸化劣化などが促進され易くなることがあるため、それに伴う強度や耐久性の低下など（耐金属腐食性の不足）を生ずる場合があるという問題を有する。

[0017] このため、この強度や耐久性の低下などを防止する、すなわち耐金属腐食性（所謂「銅害防止」と呼ばれる効果）を向上するための方法、例えば、金属不活性化剤を含有する方法が提案されている（特許文献5参照。）。特許文献5には、金属接触環境下における耐久性が向上した長繊維強化ポリオレ

フィン樹脂組成物成形体及びその樹脂組成物成形体から得られる成形品を提供することを課題として、成分（Ａ）：ポリオレフィン樹脂、成分（Ｂ）：繊維、及び成分（Ｃ）：重金属不活性化剤を含有し、成分（Ａ）の重量と成分（Ｂ）の重量の比（成分（Ａ）／成分（Ｂ））が $20/80 \sim 95/5$ であり、成分（Ｃ）の重量と、成分（Ａ）及び成分（Ｂ）との合計重量の比（成分（Ｃ）／〔成分（Ａ）＋成分（Ｂ）〕）が $0.001/100 \sim 5/100$ である長繊維強化ポリオレフィン樹脂組成物成形体であって、前記成形体中において、実質上、全ての成分（Ｂ）の長さが 2 mm 以上である長繊維強化ポリオレフィン樹脂組成物成形体が記載されている。

[0018] 前記長繊維強化ポリオレフィン樹脂組成物の成形体（実施例では、重金属不活性化剤（Ｃ）として、 $3-(N\text{-サリチロイル})\text{アミノ}-1, 2, 4\text{-トリアゾール}; 2'$ 、 $3\text{-ビス}[[3-[3, 5\text{-ジ-}t\text{-ブチル-4-ヒドロキシフェニル}] \text{プロピオニル}]] \text{プロピオノヒドラジド}; 2, 2'\text{-オキサミドビス}[\text{エチル}3-(3, 5\text{-}t\text{-ブチル-4-ヒドロキシフェニル}) \text{プロピオネート};$ をそれぞれ用いている。）は、良好な銅板接触下での耐熱老化性を有することが記載されているが、射出成形時の耐金型汚染性、離型性、成形外観や成形体の耐高温ブリード性、さらには剛性・衝撃強度などについては何ら考慮されておらず、実際に使用する場合には、何らかの製造上の問題が生ずることが懸念される。

[0019] こうした状況の下、従来のガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物の問題点を解消し、成形性、具体的には、成形時の耐金型汚染性、離型性及び成形体の耐金属腐食性並びに耐高温ブリード性に優れ、高剛性・高衝撃強度であるガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物及びその成形体が求められている。

先行技術文献

特許文献

[0020] 特許文献1：日本国特公平6-74365号公報

特許文献2：日本国特開平8-199015号公報

特許文献3：日本国特開2009-167406号公報

特許文献4：日本国特開2005-171183号公報

特許文献5：日本国特開2004-211051号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0021] 本発明の目的は、上記した従来技術の問題点に鑑み、成形性、具体的には、成形時の耐金型汚染性及び離型性並びに、成形体の耐金属腐食性及び耐高温ブリード性に優れ、高剛性・高衝撃強度であるガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物及びその成形体を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0022] 本発明者らは、上記課題を解決すべく鋭意検討した結果、ポリプロピレン系樹脂（成分A）に、ガラス繊維（成分B）、変性ポリオレフィン（成分C）、エステル結合を有するオキサミド系金属不活性化剤（成分D）、脂肪酸アミド（成分E）、及び必要に応じ、ガラス繊維以外のフィラー（成分F）を特定の割合で配合してなる樹脂組成物を調製したところ、成形性、具体的には、成形時の耐金型汚染性及び離型性並びに成形体の耐金属腐食性及び耐高温ブリード性に優れ、高剛性・高衝撃強度であるガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物及びその成形体を形成できることを見出し、これらの知見に基づき、本発明を完成するに至った。

[0023] すなわち、本発明は以下のとおりである。

1. 下記の成分A～成分Eを含有するガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物であって、成分Aを35～98.99重量部と、成分Bを1～50重量部と、成分Cを0.01～15重量部と（但し、成分Aと成分Bと成分Cとの合計を100重量部とする）、及び、成分Aと成分Bと成分Cとの合計量100重量部に対して、成分Dを0.15～0.4重量部と、成分Eを0.01～0.4重量部とを、含有することを特徴とするガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物。

成分A：ポリプロピレン系樹脂

成分B：ガラス繊維

成分C：変性ポリオレフィン

成分D：エステル結合を有するオキサミド系金属不活性化剤

成分E：脂肪酸アミド

2. 前記成分Dは、分子量が500以上である前項1に記載のガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物。

3. 前記成分Aは、少なくともその一部に、下記特性(1)～(5)を満たすプロピレン・エチレンブロック共重合体(成分Aa)を含有する前項1または2に記載のガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物。

特性(1)：結晶性プロピレン重合体成分(a)65～97質量%と、プロピレン・エチレン共重合体成分(b)3～35質量%とからなる。

特性(2)：結晶性プロピレン重合体成分(a)のメルトフローレート(230℃、2.16kg荷重)は、30～650g/10分である。

特性(3)：プロピレン・エチレン共重合体成分(b)のエチレン含量は、20～70質量%である。

特性(4)：プロピレン・エチレン共重合体成分(b)の重量平均分子量は、80万以上である。

特性(5)：成分Aa全体のメルトフローレート(230℃、2.16kg荷重)は、20～300g/10分である。

4. 前項1～3のいずれか1項に記載のガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物の製造方法であって、前記成分A～前記成分Eを混練した際に、樹脂組成物ペレット中または成形体中に存在する前記成分Bの平均長さが0.3mm以上であるガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物の製造方法。

5. 前項1～3のいずれか1項に記載のガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物を成形した成形体。

6. 前項4に記載の製造方法によって製造されたガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物を成形した成形体。

7. 自動車部品である前項5または6に記載の成形体。

発明の効果

[0024] 本発明のガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物及びその成形体は、成形性、具体的には、成形時の耐金型汚染性及び離型性並びに成形体の耐金属腐食性及び耐高温ブリード性に優れ、高剛性・高衝撃強度である。

[0025] そのため、冷却ファン及びファンシュ라우드などの自動車エンジンルーム内部品並びにホイールキャップ、自動車用エアコン部品及びハウジング類などの自動車内外装部品をはじめ、テレビ・掃除機などの家電機器の各種部品、住宅設備機器部品、各種工業部品及び建材部品などの用途（とりわけ自動車エンジンルーム内部品用途）に、好適に用いることができる。

発明を実施するための形態

[0026] 以下、本発明のガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物及びその成形体について、項目毎に、詳細に説明する。

[0027] Ⅰ．ガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物

本発明のガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物（以下、単にガラス繊維強化樹脂組成物ともいう。）は、以下に示す成分A～成分Eを含有するガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物であって、成分Aを35～98.99重量部と、成分Bを1～50重量部と、成分Cを0.01～15重量部と（但し、成分Aと成分Bと成分Cとの合計を100重量部とする）、及び、成分Aと成分Bと成分Cとの合計量100重量部に対して、成分Dを0.15～0.4重量部と、成分Eを0.01～0.4重量部とを、含有することを特徴とする。

成分A：ポリプロピレン系樹脂

成分B：ガラス繊維

成分C：変性ポリオレフィン

成分D：エステル結合を有するオキサミド系金属不活性化剤

成分E：脂肪酸アミド

[0028] Ⅰ．成分A：ポリプロピレン系樹脂（A）

本発明に用いられるポリプロピレン系樹脂（以下、単に成分Aともいう。

) は、種類を特に制限されず、使用することができる。

成分 A は、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体において、良好な成形性（離型性）及び機械的強度（高剛性・高衝撃強度）などを発現することに寄与する特徴を有する。

[0029] 本発明で用いられる成分 A としては、プロピレン単独重合体、プロピレン・エチレン共重合体（ブロック共重合体及びランダム共重合体を含む）及びプロピレン・ α -オレフィン共重合体（ブロック共重合体及びランダム共重合体を含む）からなる群から選ばれる 1 種以上の結晶性ポリプロピレン、又は該結晶性ポリプロピレン及びプロピレン以外の α -オレフィンの単独重合体もしくは共重合体との混合物が好ましい。

[0030] 前記共重合体としては、耐衝撃性プロピレン系ブロック共重合体、例えば、プロピレン・エチレンブロック共重合体が挙げられる。これらの成分 A は、2 種以上併用してもよい。特に高い耐衝撃性が求められる場合には、プロピレン系ブロック共重合体を用いるのが好ましく、特に高い剛性が求められる場合には、プロピレン単独重合体を用いるのが好ましい。

[0031] (1) 成分 A の製造

成分 A の製造方法は、特に限定されるものではなく、公知の方法、例えば、チーグラ系触媒及びメタロセン系触媒などの高立体規則性触媒を用いてスラリー重合、気相重合又は液相塊状重合により成分 A を製造することができる。また、重合方法としては、従来公知の方法を用いることができ、バッチ重合又は連続重合のどちらの方式も、採用することができる。

[0032] また、成分 A がプロピレン・エチレン共重合体（ブロック共重合体及びランダム共重合体を含む）及びプロピレン・ α -オレフィン共重合体（ブロック共重合体及びランダム共重合体を含む）からなる群から選ばれる 1 種以上の共重合体である場合、共重合成分はエチレン、 α -オレフィンとしては炭素数 4～20 の α -オレフィンが挙げられ、例えば、エチレン、ブテン-1、ヘキセン-1 及びオクテン-1などを例示できる。

[0033] また、成分 A がプロピレン及びビニル化合物との共重合体である場合、ビ

ニル化合物としては、例えば、スチレン、ビニルシクロペンテン及びビニルシクロヘキサンなどを例示できる。

[0034] さらに、成分Aがプロピレン及びビニルエステルとの共重合体である場合、ビニルエステルとしては、例えば、酢酸ビニルなどを例示できる。

また、プロピレンと不飽和有機酸又はその誘導体との共重合体である場合は、不飽和有機酸又はその誘導体としては、例えば、無水マレイン酸などを例示できる。

プロピレンと共重合される上記 α -オレフィンやビニル化合物などは、1種類でも、2種類以上を用いてもよい。このうちエチレン及びブテン-1が好ましい。

[0035] (2) プロピレン・エチレンブロック共重合体(成分A a)の含有

成分Aは、本発明の効果をより高めるなどの理由により、少なくともその一部に、成分A全体100質量%に対して、好ましくは20~100質量%、より好ましくは40~100質量%の、下記特性(1)~(5)を満たすプロピレン・エチレンブロック共重合体(以下、単に成分A aともいう。)を含有することが好ましい。

特性(1): 結晶性プロピレン重合体成分(a) 65~97質量%、及びプロピレン・エチレン共重合体成分(b) 3~35質量%からなる。

特性(2): 結晶性プロピレン重合体成分(a)のメルトフローレート(MFR)(230℃、2.16kg荷重)は、30~650g/10分である。

特性(3): プロピレン・エチレン共重合体成分(b)のエチレン含量は、20~70質量%である。

特性(4): プロピレン・エチレン共重合体成分(b)の重量平均分子量は、80万以上である。

特性(5): 成分全体のMFR(230℃、2.16kg荷重)は、20~300g/10分である。

なお、本発明におけるメルトフローレート(以下MFRと略記することが

有る)は、注釈が無い限り、J I S K 7 2 1 0 に準拠して測定された値である。

[0036] (3) 成分 A a の特性

(i) 特性 (1) :

成分 A a は、結晶性プロピレン重合体成分 (a) 65~97 質量%、好ましくは 70~96 質量%、より好ましくは 80~95 質量%と、プロピレン・エチレン共重合体成分 (b) 3~35 質量%、好ましくは 4~30 質量%、より好ましくは 5~20 質量%とからなる。結晶性プロピレン重合体成分 (a) 及びプロピレン・エチレン共重合体成分 (b) をこの様な範囲とすることにより、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の衝撃強度若しくは剛性といった機械物性または離型性を良好にすることができる。

[0037] すなわち、プロピレン・エチレン共重合体成分 (b) が 3 質量%以上である (すなわち、結晶性プロピレン重合体成分 (a) が 97 質量%以下である) ことで、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物並びにその成形体の衝撃強度及び離型性が低下することを回避できる。一方、プロピレン・エチレン共重合体成分 (b) の割合が 35 質量%以下である (すなわち、結晶性プロピレン重合体成分 (a) が 65 質量%以上である) ことで、剛性が低下することを回避できる。

[0038] (ii) 特性 (2) :

結晶性プロピレン重合体成分 (a) の MFR (230℃、2.16 kg 荷重) は、30~650 g/10 分、好ましくは 50~630 g/10 分、より好ましくは 80~600 g/10 分である。結晶性プロピレン重合体成分 (a) の MFR をこの様な範囲とすることにより、衝撃強度や離型性が良好な本発明の成形体を得ることができる。

[0039] 即ち、結晶性プロピレン重合体成分 (a) の MFR (230℃、2.16 kg 荷重) が 30 g/10 分以上であることで、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物の成形流動性が低下することを回避でき、成形自体が困難となることはなく、成形性に優れているため、本発明の成形体を得ることができる。

一方、MFRが650g/10分以下であることで、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の衝撃強度や離型性が低下することを回避できる。

[0040] (iii) 特性(3) :

プロピレン・エチレン共重合体成分(b)のエチレン含量は、20~70質量%、好ましくは23~60質量%、より好ましくは25~50質量%である。プロピレン・エチレン共重合体成分(b)のエチレン含量をこの様な範囲とすることにより、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の衝撃強度や離型性を良好にすることができる。

[0041] すなわち、プロピレン・エチレン共重合体成分(b)のエチレン含量が20質量%以上であることで、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の衝撃強度が低下することを回避できる。一方、エチレン含量が70質量%以下であることで、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の衝撃強度や離型性が低下することを回避できる。

[0042] (iv) 特性(4) :

プロピレン・エチレン共重合体成分(b)の重量平均分子量は、80万以上、好ましくは90万~400万、より好ましくは100万~200万である。プロピレン・エチレン共重合体成分(b)の重量平均分子量をこの様な範囲とすることにより、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の衝撃強度や離型性を良好にすることができる。すなわち、プロピレン・エチレン共重合体成分(b)の重量平均分子量が80万以上であることで、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物並びに成形体の衝撃強度及び離型性が低下することを回避できる。

[0043] (v) 特性(5) :

成分Aa全体のMFR(230℃、2.16kg荷重)は、20~300g/10分、好ましくは50~200g/10分、より好ましくは80~170g/10分である。成分Aa全体のMFRをこの様な範囲とすることにより、衝撃強度や離型性が良好な本発明の成形体を得ることができる。

[0044] 即ち、成分A a全体のMFR（230℃、2.16kg荷重）が20g／10分以上であることで、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物の流動性が低下することを回避でき、成形自体が困難となることはなく、成形性に優れているため、本発明の成形体を得ることができる。一方、MFRが300g／10分以下であることで、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物並びにその成形体の衝撃強度及び離型性が低下することを回避できる。

[0045] なお、上記MFRは、前述の通りJIS K7210に準拠して測定された値である。また、プロピレン・エチレン共重合体成分（b）の含量、プロピレン・エチレン共重合体成分（b）におけるエチレン含量及びプロピレン・エチレン共重合体成分（b）における重量平均分子量は、クロス分別装置、フーリエ変換型赤外線吸収スペクトル分析及びゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）で測定する。主な項目の測定条件などは、実施例において記述した通りであるが、同等の装置を用いて測定することも可能である。

[0046] （4）成分A aの製造

成分A aの製造法は、得られる成分A aが前記特性（1）～特性（5）を有している限り、特に限定されるものではなく、公知の方法、条件の中から適宜に選択される。

[0047] プロピレンの重合触媒としては、通常、高立体規則性触媒が用いられる。例えば、四塩化チタンを有機アルミニウム化合物で還元し、さらに各種の電子供与体及び電子受容体で処理して得られた三塩化チタン組成物と有機アルミニウム化合物及び芳香族カルボン酸エステルを組み合わせた触媒（例えば、日本国特開昭56-100806号公報、日本国特開昭56-120712号公報、日本国特開昭58-104907号公報の各公報参照。）、ならびに、ハロゲン化マグネシウムに四塩化チタンと各種の電子供与体を接触させた担持型触媒（例えば、日本国特開昭57-63310号公報、日本国特開昭63-43915号公報、日本国特開昭63-83116号公報の各公報参照。）など各公報に記載されたものを例示することができる。

[0048] 前記触媒の存在下、気相重合法、液相塊状重合法又はスラリー重合法などの製造プロセスを適用して、プロピレンを重合し、続いてプロピレンとエチレンをランダム重合することにより得られる。前記した熔融特性（MFR）などを有する成分Aaを得るためには、スラリー法又は気相流動床法にて、多段重合することが好ましい。

[0049] 結晶性プロピレン重合体成分（a）の重合は、プロピレンの一段重合であっても、多段重合であってもかまわないが、前記の特性を発現するためには、多段重合により得ることがより好ましい。

[0050] 結晶性プロピレン重合体成分（a）の多段重合法としては、以下に示す工程（1）と工程（2）による二段重合法を、例示することができる。

工程（1）：プロピレンを、分子量調節剤としての水素の存在下で重合する。分子量が大き過ぎる重合体の生成を抑制するためである。

[0051] 水素は、結晶性プロピレン重合体成分（a）のMFRが30g/10分以上になるように、添加される。水素濃度としては、全モノマー量に対して、通常0.1～40モル%の範囲から選択される。

[0052] また、重合温度は、通常40～90℃、圧力は、通常大気圧に対する相対圧力で0.1～5MPaの範囲から選択される。

[0053] この工程（1）で得られる重合体の量は、通常、全重合量の80～99質量%となるように調整される。工程（1）で製造される重合体の量が80質量%以上であることで、工程（2）で製造される高分子量のプロピレン重合体が多くなり過ぎることはなく、通常は、成形流動性を損ない、本発明の成形体を得られないという事態は生じない。

[0054] 工程（2）：工程（1）で生成した結晶性プロピレン重合体成分と比べ、高分子量のプロピレン重合体を重合するために、なるべく低濃度の水素雰囲気下又は、実質上水素の存在しない状態で重合することが好ましい。重合は、工程（1）で生成したプロピレン重合体及び触媒の存在下、引き続いて行われる。

[0055] 重合温度は、通常40～90℃、圧力は、通常大気圧に対する相対圧力で

0. 1～5 MPa の範囲から選択される。

この工程（２）で得られる重合体の量は、通常、全重合量の１～２０質量％となるように、調整される。工程（１）及び工程（２）を結合して、結果として得られる重合体全体の物性値を前記した範囲に調整できれば、いかなる組み合わせを採用してもよい。

[0056] 結晶性プロピレン重合体成分（a）は、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の剛性を高めるために、プロピレンの単独重合体であることが好ましいが、成形流動性及び物性バランスなどをさらに改良する目的で、結晶性を著しく損なわない範囲で、少量のコモノマーとの共重合体とすることもできる。

[0057] 具体的には、例えば、エチレン、１－ブテン、１－ペンテン、１－ヘキセン、３－メチル－１－ブテン及び４－メチル１－ペンテンなどの炭素数４～２０の α -オレフィン、スチレン、ビニルシクロペンテン、ビニルシクロヘキサン並びにビニルノルボルナンなどのビニル化合物などからなる群から選ばれる１以上のコモノマーに相応するコモノマー単位を、好ましくは５質量％以下の含量で含むことができる。

[0058] これらのコモノマーは、二種以上共重合されていてもよい。コモノマーは、エチレン及び／又は１－ブテンであるのが好ましく、最も好ましいのはエチレンである。ここで、コモノマー単位の含量は、赤外分光分析法（IR）にて求めた値である。

[0059] 結晶性プロピレン重合体成分（a）の重合に続いて、プロピレン・エチレン共重合体成分（b）の重合を行う。プロピレン・エチレン共重合体成分（b）は、高分子量のプロピレン・エチレン共重合体にすることが好ましい。

[0060] プロピレン・エチレン共重合体成分（b）の重合は、高分子量の重合体を重合するために、なるべく低濃度の水素雰囲気下又は、実質上水素の存在しない状態で重合することが好ましい。重合は、結晶性プロピレン重合体成分（a）の重合工程で生成したプロピレン重合体及び触媒の存在下、引き続いて行われる。重合温度は、通常４０～９０℃、圧力は、通常大気圧に対する

相対圧力で0.1～5 MPaの範囲から選択される。これらの条件や重量平均分子量を調節することができる。

[0061] また、エチレン含有量と重量平均分子量のバランスにより、プロピレン・エチレン共重合体成分（b）のMFRが決まるので、結晶性プロピレン重合体成分（a）のMFR、結晶性プロピレン重合体成分（a）及びプロピレン・エチレン共重合体成分（b）とのバランスから、成分Aa全体のMFRを調整することができる。

[0062] （5）成分Ab

本発明に用いられる成分Abは、前記成分Aのうち、前記成分Aaに該当しないポリプロピレン系樹脂である。具体的な成分Abとしては、例えば、プロピレン単独重合体、プロピレン・エチレンランダム共重合体、前記成分Aaに該当しないプロピレン・エチレンブロック共重合体、プロピレン及び炭素数4～20程度の α -オレフィンとの共重合体、プロピレン及びビニル化合物との共重合体、プロピレン及びビニルエステルとの共重合体、プロピレン及び不飽和有機酸又はその誘導体との共重合体、プロピレン及び共役ジエンとの共重合体、プロピレン及び非共役ポリエン類との共重合体並びにこれらの混合物などが挙げられる。

[0063] ここで、例えば、プロピレン・エチレンブロック共重合体の場合、該共重合体全体のMFR（230、2.16 kg荷重）が20 g／10分未満又は300 g／10分を超えるものは、成分Abに包含され、また、該共重合体全体のMFR（230、2.16 kg荷重）が20 g／10分～300 g／10分であっても、成分Aaの特性（1）、（2）、（3）及び（4）のいずれかを満たさない場合、成分Abに包含される。

[0064] また、該共重合体のプロピレン・エチレン共重合体成分の該共重合体全体に対する割合が3質量%未満又は35質量%を超えるものは、成分Abに包含され、また、該共重合体のプロピレン・エチレン共重合体成分の該共重合体全体に対する割合が3質量%～35質量%であっても、成分Aaの特性（2）、（3）、（4）及び（5）のいずれかを満たさない場合、成分Abに

包含される。

[0065] (6) 成分A bの製造

成分A bの製造法は、特に限定されるものではなく、公知の方法、条件の中から適宜に選択される。重合触媒としては、通常、高立体規則性触媒が用いられ、チーグラ系触媒及びメタロセン系触媒などを例示することができる。成分A bは、例えば、前記触媒の存在下、気相重合法、液相塊状重合法及びスラリー重合法などの製造プロセスを適用することにより得ることができる。

[0066] なお、成分Aとして用いるポリプロピレン系樹脂、成分A aに該当するポリプロピレン・エチレンブロック共重合体及び成分A bに該当するポリプロピレン系樹脂は、多くの会社から種々の製品が市販されており、所望の物性を有する製品を購入し、使用することもできる。

[0067] (7) 配合量

成分Aの配合量は、該成分A、成分B及び成分Cの合計量100重量部において、35～98.99重量部、好ましくは40～90重量部、より好ましくは50～80重量部である。成分Aをこのような範囲とすることにより、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の離型性、剛性及び衝撃強度を良好にすることができる。

[0068] 即ち、成分Aの配合量が35重量部以上であることで、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の離型性が低下することを回避でき、また、成形流動性が低下することを回避でき、成形自体が困難となることはなく、成形性に優れているため、本発明の成形体を得ることができる。また、配合量が98.99重量部以下であることで、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の剛性及び衝撃強度が低下することを回避できる。

[0069] 2. 成分B：ガラス繊維（B）

本発明に用いられるガラス繊維（以下、単に成分Bともいう。）は、特に限定されず使用できるものであり、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体において、高い機械的強度、具体的には高剛性・高衝撃強度に加

え、耐クリープ性などを発現することに寄与する特徴を有する。

[0070] (1) 種類、性状など

成分Bの種類としては、例えば、Eガラス、Sガラス、Cガラス及びAガラスなどを例示することができ、中でもEガラスが好ましい。成分Bの製造方法は、特に限定されたものではなく、公知の各種製造方法にて製造される。

[0071] 成分Bの繊維径は、特に限定されないが、 $3\sim 25\mu\text{m}$ のものが好ましく、 $6\sim 22\mu\text{m}$ のものがより好ましく、 $10\sim 20\mu\text{m}$ がさらに好ましく、 $12\sim 18\mu\text{m}$ が特に好ましい。この繊維径及び後述する繊維長は、例えば、使用するガラス繊維をそのまま、又は組成物となったペレット若しくは成形体を加熱、灰化した後その残渣であるガラス繊維を、顕微鏡又はノギスなどにより測定された値より求めることができる。

[0072] 繊維径をこの様な範囲とすることにより、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の剛性又は衝撃強度などを良好にすることができる。すなわち、繊維径が $3\mu\text{m}$ 以上であることで、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物並びにその成形体の製造及び成形時などにおいて、成分Bが折損することを回避でき、一方、繊維径が $25\mu\text{m}$ 以下であることで、繊維のアスペクト比が低下することに伴う本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の剛性・衝撃強度などの低下を回避できる。

[0073] また、繊維長は、使用するガラス繊維にもよるが、 $2\sim 20\text{mm}$ とすることが好ましい。繊維長をこの様な範囲とすることにより、剛性や衝撃強度などが良好な本発明の成形体を得ることができる。

[0074] すなわち、繊維長が 2mm 以上であることで、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の剛性や衝撃強度などの低下を回避でき、一方、繊維長が 20mm 以下であることで、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の成形流動性が低下することを回避でき、本発明の成形体を得られない事態を回避できる。

[0075] なお、この場合の繊維長とは、ガラス繊維をそのまま原料として用いる場

合における長さを表す。但し、後記する溶融押出加工して連続した多数本のガラス繊維を集合同体化した、ガラス繊維含有ペレットの場合は、この限りではなく、通常ロービング状のものをを用いる。なお、ガラス繊維は、2種以上併用することもできる。

[0076] ガラス繊維は、表面処理されたものも、無処理のものも、いずれも用いることができるが、ポリプロピレン系樹脂などへの分散性及び密着性などを向上させるなどの理由で、有機シランカップリング剤、チタネートカップリング剤、アルミネートカップリング剤、ジルコネートカップリング剤、シリコン化合物、高級脂肪酸、脂肪酸金属塩又は脂肪酸エステルなどにより、表面処理されているものをを用いることが好ましい。

[0077] 有機シランカップリング剤としては、例えば、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリス（ β -メトキシエトキシ）シラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N- β -(アミノエチル)- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 β -(2, 4-エポキシシクロヘキシル)エトキシメトキシシラン及び γ -(2-アミノエチル)アミノプロピルトリメトキシシランなどが挙げられる。これらの中では、アミノ系シランカップリング剤が好ましい。

[0078] また、アルミネートカップリング剤としては、例えば、アセトアルコキシアルミニウムジイソプロピレートなどが挙げられる。また、ジルコネートカップリング剤としては、テトラ(2, 2-ジアリルオキシメチル)ブチル及びジ(トリデシル)ホスフィットジルコネートなどが挙げられる。また、前記シリコン化合物としては、例えば、シリコンオイル及びシリコン樹脂などが挙げられる。

[0079] さらに、高級脂肪酸としては、例えば、オレイン酸、カプリン酸、ラウリン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、モンタン酸、カレイン酸、リノール酸、ロジン酸、リノレン酸、ウンデカン酸及びウンデセン酸などが挙げられる。また、脂肪酸金属塩としては、炭素数9以上の脂肪酸、例えば、ステアリン酸及びモンタン酸などのナトリウム塩、リチウム塩、カルシウム塩、マグ

ネシウム塩、亜鉛塩並びにアルミニウム塩などが挙げられる。中でも、ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸アルミニウム、モンタン酸カルシウム又はモンタン酸ナトリウムが好ましい。

[0080] また、脂肪酸エステルとしては、例えば、グリセリン脂肪酸エステルなどの多価アルコール脂肪酸エステル、アルファスルホン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンソルビタン脂肪酸エステル、ソルビタン脂肪酸エステル、ポリエチレン脂肪酸エステル及びショ糖脂肪酸エステルなどが挙げられる。

[0081] 前記表面処理剤の使用量は、特に制限されるわけではないが、ポリプロピレン系樹脂などへの分散性及び密着性などを向上させる目的には、ガラス繊維100重量部に対して、0.01～5重量部が好ましく、0.1～3重量部がより好ましい。

[0082] また、成分Bは、集束剤で集束（表面）処理されたものを用いてもよく、集束剤の種類としては、例えば、脂肪族ウレタン系集束剤、エポキシ系集束剤、芳香族ウレタン系集束剤、アクリル系集束剤及び無水マレイン酸変性ポリオレフィン系集束剤などが挙げられる。これらの集束剤は、ポリプロピレン系樹脂との熔融混練において、融解する必要があるため、200℃以下で熔融するものであることが好ましい。

[0083] 成分Bは、繊維原糸を所望の長さに裁断した、所謂チョップドストランド状ガラス繊維として用いることもできる。本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の剛性及び強度の向上効果をより高めるなどの理由で、このチョップドストランド状ガラス繊維を用いることが好ましい。該成分Bは、通常、単体で用いられるが、予め、ポリプロピレン樹脂などとのマスターバッチなどの形で用いることもできる。ガラス繊維の具体例としては、例えば、日本電気硝子社製（T480）などを挙げることができる。

[0084] また、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の剛性及び衝撃強度などをより高める点などの点で、成分Bは、予め、任意の量の例えば成分A及び／又は成分Cと、熔融押出加工して連続した多数本のガラス繊維を集合一体化したペレットとし、且つ、該ペレット中におけるガラス繊維長さ

が実質的に、該ペレットの一辺（押出方向）の長さと同じである、「ガラス繊維含有ペレット」として用いてもよい。

[0085] この場合、「実質的に」とは、具体的には、ガラス繊維含有ペレット中の成分Bの個数全体を基準として、50%以上、好ましくは90%以上において、その長さがガラス繊維含有ペレットの長さ（押出方向）と同じであって、該ペレット調製の際に繊維の折損を殆ど受けないことを意味する。

[0086] こういったガラス繊維含有ペレットの製造方法は、特に制限されないが、例えば、樹脂押出機を用い、連続した多数本の成分Bを繊維ラックからクロスヘッドダイを通して引き抜きながら、任意の量の成分A及び／又は成分Cと、熔融状態で熔融押出加工（含浸）して多数本のガラス繊維を集約一体化する方法（引抜成形法）で製造すると、繊維の折損を殆ど受けないので好ましい。

[0087] 該ガラス繊維含有ペレットの長さ（押出方向）は、使用するガラス繊維にもよるが、2～20mmとすることが好ましい。繊維含有ペレットの長さをこの様な範囲とすることにより、ガラス繊維長を、前述の好ましい範囲とすることができる。

[0088] また、該ガラス繊維含有ペレットにおいて、成分Bの含有量は、該ペレット全体100質量%を基準として、20～70質量%であることが好ましい。該ガラス繊維含有ペレットにおいて、成分Bの含有量をこの様な範囲とすることにより、剛性や衝撃強度などが良好な本発明の成形体を得ることができる。すなわち、成分Bの含有量が20質量%未満であるガラス繊維含有ペレットを、本発明において用いた場合、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の剛性や衝撃強度が低下するおそれがあり、一方、成分Bの含有量が70質量%超であるものを用いた場合には、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物の成形流動性が低下し、本発明の成形体を得られない場合がある。

なお、ガラス繊維含有ペレットの具体例としては、日本ポリプロ社製・ファンクスターシリーズなどを挙げるができる。

[0089] (2) 配合量

成分Bの配合量は、成分Aと成分Bと成分Cとの合計量100重量部において、1～50重量部、好ましくは10～45重量部、より好ましくは15～40重量部、さらに好ましくは20～35重量部である。成分Bの配合量をこの様な範囲とすることにより、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の剛性や衝撃強度、離型性を良好にすることができる。

[0090] すなわち、成分Bの配合量が1重量部未満であると、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の剛性及び衝撃強度が低下するおそれがある。また、配合量が50重量部を超えると、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の離型性が悪化する恐れがあり、成形流動性が低下し、本発明の成形体を得られない場合がある。

ここで、成分Bの配合量は実量であり、例えば、前記ガラス繊維含有ペレットを用いる場合は、該ペレットに含有する成分Bの実含有量に基づき算出する。

[0091] 3. 成分C：変性ポリオレフィン（C）

本発明に用いられる変性ポリオレフィン（以下、単に成分Cともいう。）は、酸変性ポリオレフィン及びヒドロキシ変性ポリオレフィンからなる群から選ばれる少なくとも1種であり、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体において、剛性、衝撃強度及び離型性の向上に寄与すると共に、耐傷付性、耐熱性及び耐クリープ性などの向上にも寄与するという特徴を有する。これらの成分Cは、酸変性ポリオレフィン及びヒドロキシ変性ポリオレフィンの夫々個別においての場合も含め2種以上併用することもできる。

[0092] (1) 種類、製造

成分Cのうち、酸変性ポリオレフィンとしては、特に限定されずに用いることができる。具体的には、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン・ α -オレフィン共重合体、エチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン化合物共重合体（EPDMなど）及びエチレン・芳香族モノビニル化合物・共役ジエン化合物共重合ゴムなどのポリオレフィンを、例えば、マレイン酸

又は無水マレイン酸などの不飽和カルボン酸を用いてグラフト共重合し、変性したものである。

[0093] このグラフト共重合は、例えば、上記ポリオレフィンを適当な溶媒中において、ベンゾイルパーオキシドなどのラジカル発生剤を用いて、不飽和カルボン酸と反応させることにより行われる。また、不飽和カルボン酸又はその誘導体の成分は、ポリオレフィン用モノマーとのランダム又はブロック共重合によりポリマー鎖中に導入することもできる。

[0094] 変性のため使用される不飽和カルボン酸としては、例えば、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、アクリル酸及びメタクリル酸などのカルボキシル基並びに必要に応じてヒドロキシル基及びアミノ基などの官能基が導入された重合性二重結合を有する化合物が挙げられる。

[0095] また、不飽和カルボン酸の誘導体としては、例えば、これらの酸無水物、エステル、アミド、イミド及び金属塩などがある。その具体例としては、無水マレイン酸、無水イタコン酸、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸ブチル、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、マレイン酸モノエチルエステル、マレイン酸ジエチルエステル、フマル酸モノメチルエステル、フマル酸ジメチルエステル、アクリルアミド、メタクリルアミド、マレイン酸モノアミド、マレイン酸ジアミド、フマル酸モノアミド、マレイミド、N-ブチルマレイミド及びメタクリル酸ナトリウムなどを挙げることができる。好ましくは無水マレイン酸である。

[0096] グラフト反応条件としては、例えば、ジ-*t*-ブチルパーオキシド、*t*-ブチルクミルパーオキシド、ジクミルパーオキシド、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(*t*-ブチルパーオキシ)ヘキサン、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(*t*-ブチルパーオキシ)ヘキシン-3などのジアルキルパーオキシド類、*t*-ブチルパーオキシアセテート、*t*-ブチルパーオキシベンゾエート、*t*-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(ベンゾイルパーオキシ)ヘキサン、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(ベンゾイルパーオキシ)ヘキシン-3などのパーオキシエステル類、ベン

ゾイルパーオキシドなどのジアシルパーオキシド類、ジイソプロピルベンゼンヒドロパーオキシド及び2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(ヒドロパーオキシ)ヘキサンなどのヒドロパーオキシド類などの有機過酸化物を、前記ポリオレフィン100重量部に対して、0.001~10重量部程度用いて、80~300℃程度の温度で、熔融状態又は溶液状態で反応させる方法が挙げられる。

[0097] 該酸変性ポリオレフィンの酸変性量（グラフト率という場合がある。）は、特に限定されないが、好ましくは酸変性量が無水マレイン酸換算で、0.05~10質量%、より好ましくは0.07~5質量%である。好ましい酸変性ポリオレフィンとしては、本発明の効果の大きさなどの点から、無水マレイン酸変性ポリプロピレンが挙げられる。

[0098] また、成分Cのうち、ヒドロキシ変性ポリオレフィン、ヒドロキシル基を含有する変性ポリオレフィンである。該ヒドロキシ変性ポリオレフィンは、ヒドロキシル基を適当な部位、例えば、主鎖の末端や側鎖に有している。

[0099] ヒドロキシ変性ポリオレフィンを構成するポリオレフィン系樹脂としては、例えば、エチレン、プロピレン、ブテン、4-メチルペンテン-1、ヘキセン、オクテン、ノネン、デセン及びドデセンなどの α -オレフィンの単独又は共重合体並びに前記 α -オレフィンと共重合性単量体との共重合体などが例示できる。

[0100] 好ましいヒドロキシ変性ポリオレフィンとしては、ヒドロキシ変性ポリエチレン（例えば、低密度、中密度又は高密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、超高分子量ポリエチレン、エチレン・（メタ）アクリル酸エステル共重合体、エチレン・酢酸ビニル共重合体など）、ヒドロキシ変性ポリプロピレン（例えば、ポリプロピレンホモポリマー、プロピレンと α -オレフィン（例えば、エチレン、ブテン及びヘキサンなど）とのランダム共重合体、プロピレン・ α -オレフィンプロック共重合体など）及びヒドロキシ変性ポリ（4-メチルペンテン-1）などが例示できる。前記反応性基を導入するための単量体としては、例えば、ヒドロキシル基を有する単量体（例え

ば、アリルアルコール、2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート及び2-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレートなどが例示できる。

[0101] ヒドロキシル基を有する単量体による変性量は、ポリオレフィン系樹脂に対して、好ましくは0.1～20質量%、より好ましくは0.5～10質量%である。ヒドロキシ変性ポリオレフィンの平均分子量は、特に限定されない。該ヒドロキシ変性ポリオレフィンは、例えば、低分子量系の場合、共役ジエンモノマーをアニオン重合などの公知の方法により重合させ、それを加水分解して得たポリマーを水素添加する方法で得ることができる。

[0102] これらの酸変性ポリオレフィン及びヒドロキシ変性ポリオレフィンは多くの会社から種々の製品が市販されており、所望の物性を有する製品を購入し、使用することができる。

[0103] (2) 配合量

成分Cの配合量は、前記成分Aと成分Bと成分Cとの合計量100重量部において、0.01～15重量部、好ましくは0.3～7重量部、より好ましくは0.5～5重量部である。成分Cをこのような範囲とすることにより、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の剛性や衝撃強度、離型性などを良好にすることができる。

[0104] すなわち、成分Cの配合量が0.01重量部未満であると、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の剛性、衝撃強度、及び離型性が低下するおそれがある。また、配合量が15重量部を超えると、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の衝撃強度が低下するおそれがあり、同時に経済性が低下する場合がある。

[0105] 4. 成分D：エステル結合を有するオキサミド系金属不活性化剤（D）

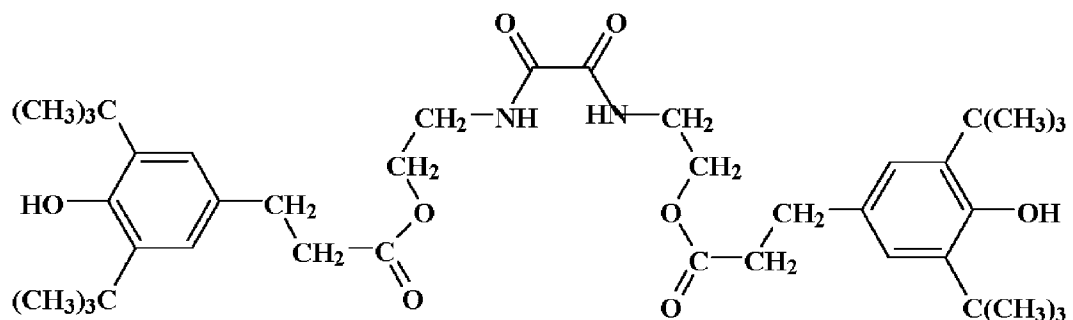
本発明に用いられるエステル結合を有するオキサミド系金属不活性化剤（以下、単に成分Dともいう。）は、オキサミド系化合物であり、その構造において、エステル結合を有するものである。該成分Dは、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体において、耐金属腐食性、耐金型汚染性及び耐高温ブリード性などの向上に寄与するという特徴を有する。

[0106] ここで、エステル結合を有しない、又はエステル結合以外の結合を有するオキサミド系金属不活性化剤は、前記の向上効果が不十分であり、好ましくない。その理由は定かではないが、本願発明において必須成分である成分Dがエステル結合を有する構造なので、成分D自身が酸性成分や塩基性成分と反応し、これらの酸性成分や塩基性成分の減少に寄与していると考えられる。それ故、本発明のガラス強化樹脂組成物全体の酸性又は塩基性を弱め、金属及び金型に対する腐食性等の影響が弱くなっていると考えられる。なお、該成分Dは、2種以上併用することもできる。

[0107] (1) 種類、性状

成分Dとしては、例えば、N, N' -ビス [2 - [2 - (3, 5 - ジー t - ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル) エチルカルボニルオキシ] エチル] オキサミド (分子量 = 697) 及び N, N' -ビス [2 - [3 - (3, 5 - ジー t - ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル) プロピルカルボニルオキシ] エチル] オキサミド (分子量 = 725) などが挙げられる。なお、前者は、N, N' -ビス {2 - [3 - (3, 5 - ジー t - ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル) プロピオニルオキシ] エチル} オキサミド、又は 2, 2' -オキサミドビス [エチル - 3 - (3, 5 - ジー t - ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル) プロピオネート] とともに表記される場合があり、具体的な商品名として、ユニロイヤル社の“ナウガード”XL-1などを挙げることができ、当該製品は下記の式で示される。

[0108] [化1]



[0109] これらの成分Dの分子量は、特に限定されないが、本発明のガラス繊維強

化樹脂組成物並びにその成形体の耐金属腐食性、耐金型汚染性及び耐高温ブリード性の向上効果などの点から、より大きいのが好ましく、500以上であるのがより好ましい。また、成分Dの分子量は、10000以下が好ましく、2000以下がより好ましく、1000以下が更に好ましい。

[0110] なお、上記の通り、成分Dに該当するエステル結合を有するオキサミド系金属不活性化剤は、多くの会社から種々の製品が市販されており、所望の物性を有する製品を購入し、使用することができる。

[0111] (2) 配合量

成分Dの配合量は、前記成分Aと成分Bと成分Cとの合計量100重量部に対して、0.15～0.4重量部、好ましくは0.18～0.35重量部、より好ましくは0.2～0.3重量部である。

成分Dをこの様な範囲とすることにより、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物並びにその成形体の耐金属腐食性、耐金型汚染性及び耐高温ブリード性を良好にすることができる。

[0112] すなわち、成分Dの配合量が0.15重量部未満であると、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体において、耐金属腐食性、耐金型汚染性及び耐高温ブリード性が低下するおそれがある。また、配合量が0.4重量部を超えると、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の耐高温ブリード性が悪化するおそれがあり、同時に経済性が低下する場合がある。

[0113] 5. 成分E：脂肪酸アミド（E）

本発明に用いられる脂肪酸アミド（以下、単に成分Eともいう。）は、一般に「滑剤」とも称される脂肪酸アミドである。該成分Eは、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体において、離型性の向上に寄与すると共に、耐傷付性及び成形性などの向上にも寄与する特徴を有する。なお、該成分Eは、2種以上併用することもできる。

[0114] (1) 種類、性状

成分Eは、前記のように、一般に滑剤とも称される脂肪酸アミドであるが

、好ましくは下記式（i）に表される脂肪酸アミドである。



[式（i）中、Rは、炭素数10～25の直鎖状脂肪族炭化水素基を表す。

]

[0115] 具体的に、その種類としては、例えば、ラウリン酸アミド、ミリスチン酸アミド、パルミチン酸アミド、ステアリン酸アミド及びベヘン酸アミドなどの飽和脂肪酸のアミドならびにオレイン酸アミド、リノール酸アミド、リノレン酸アミド、エルカ酸アミド、アラキドン酸アミド、エイコサペンタエン酸アミド及びドコサヘキサエン酸アミドなどの不飽和脂肪酸のアミドが挙げられる。

[0116] これらの中では、不飽和脂肪酸アミドが、前記効果がより高い点などから好ましく、中でもエルカ酸アミド及びオレイン酸アミドなどのモノ不飽和脂肪酸アミドがより好ましい。

[0117] なお、成分Dに該当する脂肪酸アミドは、多くの会社から種々の製品が市販されており、所望の物性を有する製品を購入し、使用することができる。

[0118] （2）配合量

成分Eの配合量は、前記成分Aと成分Bと成分Cとの合計量100重量部に対して、0.01～0.4重量部、好ましくは0.02～0.3重量部、より好ましくは0.05～0.2重量部である。成分Eをこの様な範囲とすることにより、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物並びにその成形体の離型性、耐傷付性、成形外観及び耐高温ブリード性を良好にすることができる。

[0119] 即ち、成分Eの配合量が0.01重量部未満であると、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体において、離型性、耐傷付性及び成形外観が低下するおそれがある。また、成分Eの配合量が0.4重量部を超えると、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の耐高温ブリード性及び経済性が低下するおそれがある。

[0120] （3）成分Dと成分Eとの配合量

成分Eに対する成分Dの配合量の質量比（成分D／成分E）は1以上8以

下であることが好ましい。成分Eに対する成分Dの配合量の質量比をこのような範囲とすることは、成分Eよりも成分Dの配合量が同じであるか、多いことを意味する。成分Eに対する成分Dの配合量の質量比をこのような範囲とすることにより、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体において、耐高温ブリード性及び耐金属腐食性と耐金型汚染性とを、全て良好に、バランスよく効率的に保つことが可能となる。

[0121] 6. 任意添加成分

本発明においては、前記した成分A～成分Eの他に、さらに必要に応じて、本発明の効果が著しく損なわれない範囲内で、例えば、本発明の効果を一段と向上したり、他の改良効果を付与するなどのため、任意添加成分が配合されてもよい。

[0122] 6-1. 成分F：成分B（ガラス繊維）以外のフィラー（F）

本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体において、必要に応じて用いられる前記成分B以外のフィラー（以下、単に成分Fともいう。）は、前記した本発明の効果に加え、寸法安定性（低線膨張係数の付与、型忠実性の向上又は異方性の抑制など）及び環境適応性などの向上に寄与するという特徴を有する。

[0123] （1）種類

該成分Fは、成分Bを除く無機又は有機の各種フィラーであり、その種類としては、例えば、タルク、マイカ、炭素繊維、塩基性硫酸マグネシウム繊維（マグネシウムオキシサルフェート繊維）、チタン酸カリウム繊維、シリカ、ガラスビーズ、ガラスバルーン（中空ガラス）、ケイ藻土、水酸化マグネシウム、炭酸カルシウム、クレイ、ワラストナイト、カーボンブラック、木粉、木綿・ジュートなどの天然繊維及びポリエステル繊維・ナイロン（ポリアミド）繊維などの合成繊維などが挙げられる。

[0124] これらの中で、タルク、マイカ、塩基性硫酸マグネシウム繊維（マグネシウムオキシサルフェート繊維）、ポリエステル繊維及び炭素繊維が好ましく、さらには、タルク（中でも平均粒径が $2\mu\text{m}$ ～ $8\mu\text{m}$ のもの）が本発明の

ガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の剛性・衝撃強度のさらなる向上効果並びに寸法安定性及び経済性の向上効果などの点などから、より好ましい。これらの成分Fは、2種以上を併用してもよい。また、これらの成分Fの製造法は、特に限定されるものではなく、公知の方法、条件の中から適宜選択される。

[0125] (2) 配合量

成分Fの配合量は、前記成分Aと成分Bと成分Cとの合計量100重量部に対して、好ましくは0～50重量部、より好ましくは1～50重量部、さらに好ましくは5～30重量部である。成分Fの配合量が50重量部以下であることで、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体において、衝撃強度及び離型性が低下することを回避でき、また、成形流動性が低下することなく本発明の成形体を得られない事態を回避できる。

[0126] 6-2. その他の任意添加成分

前記成分F以外の任意添加成分としては、例えば、着色するための着色剤、エラストマー（ゴム）、ヒンダードアミン系化合物などの光安定剤、紫外線吸収剤、耐熱安定性・加工安定性・耐熱老化性などの付与、向上などのためのフェノール系・イオウ系・リン系などの酸化防止剤、帯電防止剤、発泡剤、造核剤、分散剤、中和剤、難燃剤、前記成分D以外の金属不活性化剤、前記成分E以外の滑剤並びに前記成分A及び前記成分C以外の熱可塑性樹脂などが挙げられる。

[0127] これらの任意添加成分は、2種以上を併用してもよく、ガラス繊維強化樹脂組成物に添加してもよいし、前記成分A～成分Eの各成分に予め添加されていてもよく、また夫々の成分においても、2種以上を併用することもできる。上記着色剤は、無機系及び有機系などの着色剤であり、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の、成形（着色）外観、離型性、耐傷付性、見映え、風合い、商品価値、耐候性及び耐久性などの付与及び向上などに有効である。

[0128] 無機系着色剤としては、酸化チタン、酸化鉄（ベンガラなど）、クロム酸

(黄鉛など) 及びカーボンブラックなどが例示される。有機系着色剤としては、難溶性アゾレーキ・可溶性アゾレーキなどのアゾ系着色剤、フタロシアニンブルー・フタロシアニングリーンなどのフタロシアニン系着色剤、アントラキノン・ペリレンなどのスレン系着色剤、キナクリドン系着色剤及びイソインドリノン系着色剤などが挙げられる。

[0129] また、前記エラストマーは、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の衝撃強度、離型性及び寸法安定性などの向上などに有効である。エラストマーとしては、例えば、エチレン・ α -オレフィン共重合体エラストマー及びエチレン・ α -オレフィン・ジエン三元共重合体エラストマーなどのエチレン系エラストマー、並びにスチレン・ブタジエン共重合体及びスチレン・イソプレン共重合体又はこれらの水素添加物などのスチレン系エラストマーなどが挙げられる。

[0130] 具体例としては、エチレン・プロピレン共重合体エラストマー (E P R)、エチレン・ブテン共重合体エラストマー (E B R)、エチレン・ヘキセン共重合体エラストマー (E H R)、エチレン・オクテン共重合体エラストマー (E O R)、エチレン・プロピレン・ジエン共重合体エラストマー (E P D M)、スチレン-エチレン・ブチレン-スチレンブロック共重合体 (S E B S) 及びスチレン-エチレン・プロピレン-スチレンブロック共重合体 (S E P S) などが挙げられる。

[0131] また、前記光安定剤及び紫外線吸収剤は、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体の耐候性、耐久性及び耐金型汚染性などの付与及び向上などに有効である。さらに、該光安定剤と該紫外線吸収剤を併用する方法は、前記効果をより高める傾向があるなどの点で好ましい。

[0132] 光安定剤としては、例えば、ヒンダードアミン系化合物が挙げられる。具体的には、例えば、コハク酸ジメチルと1-(2-ヒドロキシエチル)-4-ヒドロキシ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジンとの縮合物; ポリ[[6-(1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル)イミノ-1, 3, 5-トリアジン-2, 4-ジイル][(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペ

リジル) イミノ] ヘキサメチレン [(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-
 ピペリジル) イミノ]] ; テトラキス (2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-
 ピペリジル) 1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボキシレート ; テトラキ
 ス (1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル) 1, 2, 3, 4-
 ブタンテトラカルボキシレート ; ビス (1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチ
 ル-4-ピペリジル) セバケート ; ビス-2, 2, 6, 6-テトラメチル-
 4-ピペリジルセバケートなどが挙げられる。

[0133] また、紫外線吸収剤としては、例えば、ベンゾトリアゾール系として、2-
 (2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-*t*-ブチルフェニル)-5-クロ
 ロベンゾトリアゾール ; 2-(2'-ヒドロキシ-3'-*t*-ブチル-5'-
 メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾールなどが例示され、ベン
 ゾフェノン系として、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン ; 2-
 ヒドロキシ-4-*n*-オクトキシベンゾフェノンなどが例示され、サリシレ
 ート系として、4-*t*-ブチルフェニルサリシレート ; 2, 4-ジ-*t*-ブ
 チルフェニル 3', 5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシベンゾエート
 などが挙げられる。

[0134] 11. ガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物の製造方法、成形体の製
 造方法及び用途

本発明のガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物は、前記成分A～成
 分Eと、必要に応じ、任意添加成分とを、前記配合割合で、従来公知の方法
 で配合・溶融混練することにより製造することができる。

[0135] 混合は、通常、タンブラー、Vブレンダー又はリボンブレンダーなどの混
 合機器を用いて行い、溶融混練は、通常、一軸押出機、二軸押出機、バンバ
 リーミキサー、ロールミキサー、ブラベンダープラストグラフ、ニーダー又
 は攪拌造粒器などの混練機器を用いて(半)溶融混練し、造粒する。

[0136] (半)溶融混練・造粒して製造する際には、前記各成分の配合物を同時に
 混練してもよく、また、性能向上をはかるべく各成分を分割して混練する、
 すなわち、例えば、先ず成分Aの一部又は全部と、成分Bの一部とを混練し

、その後に残りの成分を混練・造粒するといった方法を採用することもできる。

[0137] 本発明は、溶融混練の際、得られた樹脂組成物ペレット中、又は成形体中に存在する成分Bの平均長さが、好ましくは0.3mm以上となる様な複合化方法にて、製造するのが好ましい。なお、ガラス繊維強化樹脂組成物における成分Bの平均長さの上限は、当初使用される成分Bの好ましい上限である20mmである。

[0138] なお、本明細書において、ガラス繊維強化樹脂組成物中又は成形体中に存在するガラス繊維（成分B）の平均長さとは、デジタル顕微鏡によって測定された値を用いて平均を算出した値を意味する。その具体的な測定は、例えば、本発明のガラス繊維強化樹脂組成物ペレット又は成形体を燃焼し、灰化したガラス繊維を界面活性剤含有水に混合し、該混合水液を薄ガラス板上に滴下拡散した後、デジタル顕微鏡（例えば、キーエンス社製VHX-900型）を用いて100本以上のガラス繊維長さを測定しその平均値を算出する方法による。

[0139] また、具体的な製造方法として好ましいのは、例えば、2軸押出機による溶融混練において、前記成分A、前記成分C、前記成分D、前記成分E及び必要であれば任意添加成分を十分に溶融混練した後、該成分Bをサイドフィード法などによりフィードし、繊維の折損を最小限に留めながら、繊維を分散させるなどの方法が挙げられる。

[0140] また、例えば、前記成分A～前記成分E及び必要であれば任意添加成分を、ヘンシェルミキサー内で高速攪拌して、これらを半溶融状態とさせながら混合物中の成分Bを混練する、いわゆる攪拌造粒方法も、繊維の折損を最小限に留めながら繊維を分散させ易いので好ましい。

[0141] さらに、予め、前記成分Bを除く前記成分A～前記成分E及び必要であれば任意添加成分を押出機などで溶融混練してペレットとなし、該ペレットと前記の「ガラス繊維含有ペレット」とを混合することにより、ガラス繊維強化樹脂組成物とする製造方法も、前記と同様の理由などで好ましい。

[0142] 本発明の成形体は、前記方法で製造されたガラス繊維強化樹脂組成物を、例えば、射出成形（ガス射出成形、二色射出成形、コアバック射出成形及びサンドイッチ射出成形も含む）、射出圧縮成形（プレスインジェクション）、押出成形、シート成形及び中空成形などの周知の成形方法にて成形することによって得ることができる。射出成形又は射出圧縮成形にて得ることが好ましい。

[0143] 本発明のガラス繊維強化樹脂組成物及びその成形体は、成形性、具体的には成形時の耐金型汚染性及び離型性ならびに成形体の耐金属腐食性及び耐高温ブリード性に優れ、高剛性・高衝撃強度である。

[0144] そのため、これらの性能をバランスよく、より高度に必要とされる用途、例えば、冷却ファン、ファンシュラウドなどの自動車エンジンルーム内部品、ホイールキャップ、自動車用エアコン部品及びハウジング類などの自動車内外装部品をはじめ、テレビ・掃除機などの家電機器の各種部品、住宅設備機器部品、各種工業部品及び建材部品などの用途、特に自動車エンジンルーム内部品用途に、好適に用いることができる。

実施例

[0145] 以下に、実施例を用いて、本発明をさらに詳細に説明するが、本発明は、その趣旨を逸脱しない限り、これによって限定されるものではない。

なお、実施例及び比較例において使用した評価方法及び材料は、以下の通りである。

[0146] 1. 評価方法

（1）耐金型汚染性：

東芝機械製 I S 1 7 0 型射出成形機と、120 mm × 120 mm × 3 mm 厚の平板成形品の金型とを用いて評価を行った。評価に先立って、金型を清掃して汚れ及び曇りを十分に除去した後、金型にフル充填される条件で、試料を50ショット連続して成形した。成形条件は、樹脂温度240℃、金型温度40℃、射出圧力600 kg / cm²とした。その後、金型表面の汚染状況を目視で観察した。目視では汚れが確認できない場合は、「○（汚染なし

）」、若干の汚れが認められる場合があるが実用可能である場合は「△（実用可能）」、目視で汚れが認められ実用不可能である場合は、「×（汚染あり）」、と判定した。この場合、金型汚染が観察される場合は、頻繁に金型の清掃を行う必要があり、成形効率の低下を招くことを意味するのでその実用は困難である。

[0147] (2) 離型性：

東芝機械製 I S 2 2 0 型射出成形機で箱形（170 mm×100 mm×50 mm 高×2 mm 厚）の金型を用い試料を成形した。その際の突き出し時の離型抵抗を、突き出しセンサーを用いて測定した。成形条件は、樹脂温度 240℃、金型温度 40℃、射出圧力 800 kg/cm²とした。ここで、離型抵抗値は小さいほど、離型性は良好であることを表しており、具体的には、25 kg/cm²未満であれば離型性は良好であり「○」、25～30 kg/cm²であればやや良好であり「△」、30 kg/cm²を超えると不良であり「×」と判断される。

[0148] (3) 耐金属腐食性（耐銅害性）：

J I S K 7 1 5 2 - 1 で定める引張試験片を、25 mm×25 mm×0.3 mm 厚の銅板と接触（片側）させた形にして、クリップで挟み、ギヤー・オープン中に入れ、150℃で500時間循環加熱した。その後、該テストピースで引張試験を実施し、その引張強度保持率を測定した。その値が原点に対して90%以上のものを「○」、90%未満のものを「×」とした。

[0149] (4) 耐高温ブリード性：

東芝機械製 I S 1 7 0 型射出成形機にて、成形温度 240℃、金型温度 40℃、射出圧力 600 kg/cm²の条件で、120 mm×120 mm×3 mm 厚のテストピースを成形し、その後、該テストピースをギヤー・オープン中に入れ、100℃で循環加熱して24時間後にテストピースを取り出し、その表面を目視観察した。全くブリードが観察されず良好なものを「◎」、比較的表面にブリードがないものを「○」、若干ブリードが観察される場合があるが実用可能であるものを「△」、ブリードが発生しているものを「×

」とした。

[0150] (5) 曲げ弾性率：

JIS K 7171 に準拠し、測定雰囲気温度 23℃において、曲げ速度 2 mm/分で測定した。試験片は、10 mm×80 mm×4 mm厚の短冊状片から調製した後、23℃、湿度 50%の雰囲気中で 120 時間、状態調節したものである。前記短冊状片の成形は、東芝機械製 IS80G 型射出成形機にて成形温度 200℃、金型温度 40℃、射出圧力 600 kg/cm²の条件で行った。

[0151] (6) シャルピー衝撃試験（ノッチ付）：

JIS K 7111 に準拠して実施し、測定雰囲気温度は、23℃であった。試験片の調製、状態調節及び成形は、前記曲げ弾性率の場合と同一である。

[0152] (7) メルトフローレート（MFR）：

JIS K 7210 に準拠し、測定温度：230℃、荷重：2.16 kg で測定した。

(8) 総合評価

[0153] 上記評価に基づき、総合評価を行った。全ての評価に於いてバランスがとれたものが、良好と判断される。

×：以下の何れかに該当するもの。

・「耐金属腐食性」「耐高温ブリード性」「耐金型汚染性」「離型性」の何れかの評価で、一つでも「×」の評価となったもの。

・「耐金属腐食性」「耐高温ブリード性」「耐金型汚染性」「離型性」の評価では、「×」の評価は無いが、「曲げ弾性率（概ね 5000 MPa 以下）」や「シャルピー衝撃試験（概ね 10 kJ/m²以下）」で若干見劣りがするもの。

△：上記「×」には該当しないが、以下の何れかに該当するもの。

・「耐金属腐食性」「耐高温ブリード性」「耐金型汚染性」「離型性」の何れかの評価で、一つでも「△」の評価となったもの。

・「耐金属腐食性」「耐高温ブリード性」「耐金型汚染性」「離型性」の評価では「×」「△」の評価は無いが、「曲げ弾性率（概ね5000MPa以下）」や「シャルピー衝撃試験（概ね10kJ/m²以下）」で若干見劣りがあるもの。

○：上記「×」「△」の評価に該当せず、すべての評価に於いてバランスが取れた良好なもの

[0154] (9) 成分A中のプロピレン・エチレン共重合体成分の含有量、エチレン含量及び重量平均分子量：

・使用した分析装置

(i) クロス分別装置：

ダイヤインスツルメンツ社製CFC T-100（以下CFCと略す）

(ii) フーリエ変換型赤外線吸収スペクトル分析：

FT-IR、パーキンエルマー社製1760X

CFCの検出器として取り付けられていた波長固定型の赤外分光光度計を取り外して、代わりにFT-IRを接続し、このFT-IRを検出器として使用した。CFCから溶出した溶液の出口からFT-IRまでの間のトランスファーラインは1mの長さとし、測定の間を通じて、140℃に温度保持した。FT-IRに取り付けたフローセルは光路長1mm、光路幅5mmφのものをを用い、測定の間を通じて140℃に温度保持した。

(iii) ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）：

CFC後段部分のGPCカラムは、昭和電工社製AD806MSを3本直列に接続して使用した。

[0155] ・CFCの測定条件

(i) 溶媒：オルトジクロルベンゼン（ODCB）

(ii) サンプル濃度：4mg/mL

(iii) 注入量：0.4mL

(iv) 結晶化：140℃から40℃まで約40分かけて降温した。

(v) 分別方法：分別温度は、40、100、140℃とし、全部で3つの

フラクションに分別した。また、分別した各フラクションは、そのままF T-IR分析装置へ自動輸送された。

(v i) 溶出時溶媒流速：1 mL/分

[0156] ・F T-IRの測定条件

C F C後段のG P Cから試料溶液の溶出が開始した後、以下の条件でF T-IR測定を行い、上述した各フラクション1～3について、G P C-IRデータを採取した。

(i) 検出器：M C T

(i i) 分解能：8 c m⁻¹

(i i i) 測定間隔：0.2分(12秒)

(i v) 一測定当たりの積算回数：15回

[0157] ・プロピレン・エチレン共重合体成分の性状の算出法

分別温度は、40、100、140℃とし、全部で3つのフラクションに分別した。プロピレン・エチレン共重合体成分は、100℃フラクションのエチレン成分及び40℃フラクション成分とした。つまり、40、100、140℃フラクションの含量をそれぞれF 40、F 100、F 140 (F 40 + F 100 + F 140 = 100質量%)とした。

[0158] 100℃フラクションにおけるエチレン成分量をF 100E、それ以外の成分量をF 100F (F 100E + F 100F = F 100)とした。プロピレン・エチレン共重合体成分の含有量は、F 40 + F 100Eで表せる。

プロピレン・エチレン共重合体成分中のエチレン含量は、40℃及び100℃フラクション中のエチレン含量をプロピレン・エチレン共重合体成分量で除した値である。

[0159] つまり、40℃フラクションにおけるエチレン量をF 40E、それ以外の成分をF 40F (F 40E + F 40F = F 40)とすると、 $100 \times (F 40E + F 100E) / (F 40 + F 100E)$ の式で表される。

プロピレン・エチレン共重合体成分の重量平均分子量は、100℃フラクションのエチレン成分及び40℃フラクション成分の重量平均分子量である

。

[0160] 2. 材料

使用した成分 A～成分 E を以下に示す。

(1) 成分 A : ポリプロピレン系樹脂

A a - 1 : チーグラ系触媒で重合された、結晶性プロピレン重合体成分 (a) 92 質量%と、プロピレン・エチレン共重合体成分 (b) 8 質量%とからなり、該成分 (a) の MFR (230℃、2.16 kg 荷重) が 303 g / 10 分であり、該成分 (b) のエチレン含量が 37 質量%であり、該成分 (b) の重量平均分子量が 128 万であり、成分 A a - 1 全体の MFR (230℃、2.16 kg 荷重) が 102 g / 10 分である、プロピレン・エチレンブロック共重合体 (日本ポリプロ社製)。

A b - 1 : チーグラ系触媒で重合された、MFR (230℃、2.16 kg 荷重) が 10 g / 10 分のプロピレン単独重合体 (日本ポリプロ社製)

。

[0161] (2) 成分 B : ガラス繊維

B - 1 : 日本電気硝子社製 T 480 (チョップドストランド、繊維径 : 13 μ m)。

B - 2 : 日本ポリプロ社製ファンクスター L R 24 A (ガラス繊維含量 = 40 質量%、成分 A 該当ポリプロピレン含量 = 60 質量%のガラス繊維含有ペレット。押出方向のペレット長さ = 8 mm、繊維径 : 17 μ m)。該ペレットに含まれているガラス繊維長さは、ガラス繊維の個数全体を基準として、97%が、ペレット長と同じ 8 mm であった。つまり、該ペレットに含まれているガラス繊維の長さは、実質的に、ガラス繊維含有ペレットの長さと同じであった。ここで、前記ガラス繊維長さの測定は、前記ペレットを燃焼した後、残存したガラス繊維数を顕微鏡にて観察 (視野 100 本あたり) して、未折損のガラス繊維を求め、その割合から求めた (該ペレット全体に対する値として算出。))。

なお、本サンプル (B - 2) を使用する場合の配合量は、そのままの値を

表に記載している。

[0162] (3) 成分C：変性ポリオレフィン

C-1：アルケマ社製、OREVAC CA100（無水マレイン酸グラフト率＝0.8質量％）。

[0163] (4) 成分D：金属不活性化剤

D-1：N，N'-ビス〔2-〔2-（3，5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル）エチルカルボニルオキシ〕エチル〕オキサミド（分子量＝697）。

D-2：N，N'-ビス〔3-（3，5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル）プロピオニル〕ヒドラジン（分子量＝533）。

D-3：3-（N-サリチロイル）アミノ-1，2，4-トリアゾール（分子量＝204）。

なお、（D-2）及び（D-3）はエステル結合を有していないので、本願規定の成分Dには該当しない。

[0164] (5) 成分E：脂肪酸アミド

E-1：日本化成社製ダイヤミッド O-200（オレイン酸アミド）。

[0165] 3. 実施例及び比較例

[実施例1～18及び比較例1～18]

(1) ガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物の製造

前記の成分A～成分Eを、下記の添加剤とともに、表1に示す割合で配合し、下記の条件で混練造粒して製造した。

[0166] この際、成分Aと成分Bと成分Cとの合計量100重量部当たり、BASF社製IRGANOX1010を0.1重量部、BASF社製IRGAFOS168を0.05重量部、ビス-2，2，6，6-テトラメチル-4-ピペリジルセバケートを0.05重量部、2-（2'-ヒドロキシ-3'-*t*-ブチル-5'-メチルフェニル）-5-クロロベンゾトリアゾールを0.2重量部それぞれ配合した。

[0167] 混練装置：日本製鋼所社製「TEX30α」型2軸押出機。

混練条件：温度＝180℃、スクリー回転数＝300rpm、吐出量＝10kg／Hr。

[0168] なお、成分B－1は、押出機中途から、サイドフィードした。ここで、これら（実施例1、2、4～14）の樹脂ペレット中の成分B－1の平均長さは、0.35mm～0.5mmの範囲内であった。また、実施例3においては、該混練時に成分B－2を除いた配合で混練造粒した。

[0169]

[表1]

	配合											
	ポリプロピレン系樹脂 (成分A)				ガラス繊維 (成分B)		変性ポリオレフィン (成分C)		金属不活性化剤 (成分D)		脂肪酸アミド (成分E)	
	成分Aa		成分Ab									
	種類	重量部	種類	重量部	種類	重量部	種類	重量部	種類	重量部	種類	重量部
実施例1	－	－	Ab-1	75	B-1	23	C-1	2	D-1	0.2	E-1	0.2
実施例2	Aa-1	75	－	－	B-1	23	C-1	2	D-1	0.2	E-1	0.2
実施例3	－	－	Ab-1	40.5	B-2	57.5	C-1	2	D-1	0.2	E-1	0.2
実施例4	Aa-1	37.5	Ab-1	37.5	B-1	23	C-1	2	D-1	0.2	E-1	0.2
実施例5	Aa-1	68	－	－	B-1	30	C-1	2	D-1	0.2	E-1	0.2
実施例6	－	－	Ab-1	75	B-1	23	C-1	2	D-1	0.3	E-1	0.2
実施例7	－	－	Ab-1	72	B-1	23	C-1	5	D-1	0.2	E-1	0.2
実施例8	－	－	Ab-1	75	B-1	23	C-1	2	D-1	0.2	E-1	0.1
実施例9	－	－	Ab-1	76	B-1	23	C-1	1	D-1	0.2	E-1	0.2
実施例10	－	－	Ab-1	76.5	B-1	23	C-1	0.5	D-1	0.2	E-1	0.2
実施例11	－	－	Ab-1	68	B-1	23	C-1	9	D-1	0.2	E-1	0.2
実施例12	－	－	Ab-1	65	B-1	23	C-1	12	D-1	0.2	E-1	0.2
実施例13	－	－	Ab-1	83	B-1	15	C-1	2	D-1	0.2	E-1	0.2
実施例14	－	－	Ab-1	58	B-1	40	C-1	2	D-1	0.2	E-1	0.2
実施例15	－	－	Ab-1	75	B-1	23	C-1	2	D-1	0.2	E-1	0.05
実施例16	－	－	Ab-1	75	B-1	23	C-1	2	D-1	0.3	E-1	0.05
実施例17	－	－	Ab-1	67.5	B-1	30	C-1	2.5	D-1	0.2	E-1	0.05
実施例18	－	－	Ab-1	67.9	B-1	30	C-1	2.1	D-1	0.3	E-1	0.1
比較例1	－	－	Ab-1	75	B-1	23	C-1	2	－	－	E-1	0.2
比較例2	－	－	Ab-1	75	B-1	23	C-1	2	D-2	0.2	E-1	0.2
比較例3	－	－	Ab-1	75	B-1	23	C-1	2	D-3	0.2	E-1	0.2
比較例4	－	－	Ab-1	77	B-1	23	－	－	D-1	0.2	E-1	0.2
比較例5	－	－	Ab-1	75	B-1	23	C-1	2	D-1	0.2	－	－
比較例6	－	－	Ab-1	75	B-1	23	C-1	2	D-1	0.05	E-1	0.2
比較例7	－	－	Ab-1	75	B-1	23	C-1	2	D-1	1.1	E-1	0.5
比較例8	Aa-1	75	－	－	B-1	23	C-1	2	－	－	E-1	0.2
比較例9	Aa-1	75	－	－	B-1	23	C-1	2	D-1	0.2	－	－
比較例10	－	－	Ab-1	72	B-1	23	C-1	5	D-1	0.9	E-1	1.1
比較例11	－	－	Ab-1	72	B-1	23	C-1	5	D-1	0.1	E-1	0.2
比較例12	－	－	Ab-1	75	B-1	23	C-1	2	D-1	1.1	E-1	1.1
比較例13	－	－	Ab-1	75	B-1	23	C-1	2	D-1	0.15	E-1	0.5
比較例14	－	－	Ab-1	89.5	B-1	10	C-1	0.5	D-1	0.9	E-1	0.2
比較例15	－	－	Ab-1	75	B-1	23	C-1	2	D-1	0.5	E-1	0.2
比較例16	－	－	Ab-1	75	B-1	23	C-1	2	D-1	0.5	E-1	0.5
比較例17	－	－	Ab-1	75	B-1	23	C-1	2	D-1	0.9	E-1	0.2
比較例18	－	－	Ab-1	75	B-1	23	C-1	2	D-1	0.9	E-1	0.9

[0170] (2) ガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物の成形

得られたペレットを用いて、前記条件で射出成形し、ガラス繊維強化樹脂組成物の各種試験片とした。この際、実施例3においては、成分B-2を、

成分Bの実量が23質量%（前記表1に示す57.5質量%の40質量%に相当、残りの34.5質量%は成分Aに該当する）になる様に混合した後、成形した。

[0171] （3）評価

得られた試験片を用いて、前記の方法により各種性能を評価した。評価結果を表2に示す。なお、比較例13及び比較例14は性能が不良であったため、一部の評価は実施しなかった。

[0172]

[表2]

	曲げ弾性率	シャルピー 衝撃試験	耐金属 腐食性	成形性			総合 判定
				耐高温 ブリッド性	耐金型 汚染性	離型性	
実施例1	5510	12	○	◎	○	○	○
実施例2	5090	12.6	○	○	○	○	○
実施例3	6030	15.6	○	○	○	○	○
実施例4	5280	12.8	○	○	○	○	○
実施例5	6540	16	○	○	○	○	○
実施例6	5210	12	○	△	○	○	△
実施例7	5680	11.9	○	◎	○	○	○
実施例8	5310	12.3	○	○	○	○	○
実施例9	5280	12.1	○	○	○	○	○
実施例10	5220	11.2	○	○	△	○	△
実施例11	5140	10.7	○	◎	○	○	○
実施例12	8960	11	○	◎	○	○	○
実施例13	4020	9.4	○	○	○	○	△
実施例14	9470	14.4	○	○	○	○	○
実施例15	5600	11.3	○	◎	○	○	○
実施例16	5640	11.3	○	○	○	○	○
実施例17	7020	10.3	○	○	○	○	○
実施例18	7130	10.7	○	△	○	○	△
比較例1	5480	12.2	×	○	○	○	×
比較例2	5510	11.8	○	×	○	○	×
比較例3	5500	12.1	○	○	×	○	×
比較例4	4530	9.3	○	△	○	△	×
比較例5	5520	11.5	○	○	○	×	×
比較例6	5310	12.3	×	◎	○	○	×
比較例7	5310	12.7	○	×	×	○	×
比較例8	5410	13.4	×	◎	△	○	×
比較例9	5350	13.3	○	◎	△	×	×
比較例10	5340	12.6	○	×	×	○	×
比較例11	5260	12.2	×	◎	○	○	×
比較例12	5300	12.2	○	×	×	○	×
比較例13	—	—	×	×	×	○	×
比較例14	—	—	○	×	×	○	×
比較例15	5330	18	○	×	△	○	×
比較例16	5290	12.7	○	×	×	○	×
比較例17	5440	12.7	○	×	△	○	×
比較例18	5240	12.4	○	×	×	○	×

[0173] 表 1 及び表 2 から明らかな様に、本発明の要件を満たす実施例 1 ～ 18 では、得られたガラス繊維強化樹脂組成物は、いずれも、耐金型汚染性、離型性、耐金属腐食性、耐高温ブリード性、剛性及び衝撃強度のいずれも改良されている。

一方、比較例 1 ～ 18 では、ガラス繊維強化樹脂組成物は、これらの性能バランスが不良で、見劣りしている。

[0174] 例えば、成分 D を配合しない比較例 1 では、耐金型汚染性、離型性、耐高温ブリード性、剛性及び衝撃強度は、良好であるが、耐金属腐食性が実施例 1 と著しい差異が生じた。これは、成分 D の含有有無により、耐金属腐食性が著しく異なり、成分 D が、本発明の要件を満たすことが必須であることを示している。

[0175] また、成分 D として、本願の規定に該当しない成分 D-2 を配合した比較例 2 では、耐金型汚染性、離型性、耐金属腐食性、剛性及び衝撃強度は、良好であるが、耐高温ブリード性が実施例 1 と著しい差異が生じた。これは、成分 D の性状により、耐高温ブリード性が著しく異なり、成分 D が、本発明の要件を満たすことが必須であることを示している。

[0176] さらに、成分 D として、本願の規定に該当しない成分 D-3 を配合した比較例 3 では、離型性、耐金属腐食性、耐高温ブリード性、剛性及び衝撃強度は、良好であるが、耐金型汚染性が実施例 1 と著しい差異が生じた。これは、成分 D の性状により、耐金型汚染性が著しく異なり、成分 D が、本発明の要件を満たすことが必須であることを示している。

[0177] また、成分 C を配合しない比較例 4 では、耐金型汚染性、離型性、耐高温ブリード性、及び耐金属腐食性は良好であるが、剛性及び衝撃強度が実施例 1 と著しい差異が生じた。これは、成分 C の含有有無により、剛性及び衝撃強度が著しく異なり、成分 C が、本発明の要件を満たすことが必須であることを示している。

[0178] さらに、成分 E を配合しない比較例 5 では、耐金型汚染性、耐金属腐食性、耐高温ブリード性、剛性及び衝撃強度は、良好であるが、離型性が実施例

1と著しい差異が生じた。これは、成分Eの含有有無により、離型性が著しく異なり、成分Eが、本発明の要件を満たすことが必須であることを示している。

[0179] 更に比較例6～18と各実施例を比較することにより、本願で規定している各成分を使用する範囲が適正な範囲であることが理解できる。

[0180] 本発明を特定の態様を用いて詳細に説明したが、本発明の意図と範囲を離れることなく様々な変更及び変形が可能であることは、当業者にとって明らかである。なお本出願は、2013年3月29日付で出願された日本特許出願（特願2013-071190）に基づいており、その全体が引用により援用される。

産業上の利用可能性

[0181] 本発明のガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物及びその成形体は、成形時の耐金型汚染性及び離型性並びに成形体の耐金属腐食性及び耐高温ブリード性に優れ、高剛性・高衝撃強度であるため、冷却ファン及びファンシールドなどの自動車エンジンルーム内部品、ホイールキャップ、自動車用エアコン部品及びハウジング類などの自動車内外装部品をはじめ、テレビ・掃除機などの家電機器の各種部品、住宅設備機器部品、各種工業部品及び建材部品などの用途（とりわけ自動車エンジンルーム内部品用途）に、好適に用いることができる。従って、本発明のガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物及びその成形体は、産業上大いに有用である。

請求の範囲

[請求項1] 下記の成分A～成分Eを含有するガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物であって、成分Aを35～98.99重量部と、成分Bを1～50重量部と、成分Cを0.01～1.5重量部と（但し、成分Aと成分Bと成分Cとの合計を100重量部とする）、及び、成分Aと成分Bと成分Cとの合計量100重量部に対して、成分Dを0.15～0.4重量部と、成分Eを0.01～0.4重量部とを、含有することを特徴とするガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物。

成分A：ポリプロピレン系樹脂

成分B：ガラス繊維

成分C：変性ポリオレフィン

成分D：エステル結合を有するオキサミド系金属不活性化剤

成分E：脂肪酸アミド

[請求項2] 前記成分Dは、分子量が500以上である請求項1に記載のガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物。

[請求項3] 前記成分Aは、少なくともその一部に、下記特性（1）～（5）を満たすプロピレン・エチレンブロック共重合体（成分Aa）を含有する請求項1または2に記載のガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物。

特性（1）：結晶性プロピレン重合体成分（a）65～97質量%と、プロピレン・エチレン共重合体成分（b）3～35質量%とからなる。

特性（2）：結晶性プロピレン重合体成分（a）のメルトフローレート（230℃、2.16kg荷重）は、30～650g/10分である。

特性（3）：プロピレン・エチレン共重合体成分（b）のエチレン含量は、20～70質量%である。

特性（4）：プロピレン・エチレン共重合体成分（b）の重量平均

分子量は、80万以上である。

特性（5）：成分A a全体のメルトフローレート（230℃、2.16kg荷重）は、20～300g／10分である。

[請求項4] 請求項1～3のいずれか1項に記載のガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物の製造方法であって、前記成分A～前記成分Eを混練した際に、樹脂組成物ペレット中または成形体中に存在する前記成分Bの平均長さが0.3mm以上であるガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物の製造方法。

[請求項5] 請求項1～3のいずれか1項に記載のガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物を成形した成形体。

[請求項6] 請求項4に記載の製造方法によって製造されたガラス繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物を成形した成形体。

[請求項7] 自動車部品である請求項5または6に記載の成形体。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/058644

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L23/10(2006.01)i, C08J5/08(2006.01)i, C08K5/20(2006.01)i, C08K7/14(2006.01)i, C08L23/26(2006.01)i

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)

C08L1/00-101/16, C08K3/00-13/08, C08J5/08

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CAPLUS/REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	CN 102010548 A (Panasonic Home Appliances Research & Development (Hangzhou) Co., Ltd.), 13 April 2011 (13.04.2011), claims 1, 7; paragraphs [0020], [0022], [0023]; example 3 (Family: none)	1, 2, 5, 7 3, 4, 6
X Y	JP 8-199015 A (Tonen Chemical Corp.), 06 August 1996 (06.08.1996), claim 1; paragraphs [0068], [0073], [0090]; paragraph [0094], examples 35, 37, 39 (Family: none)	1, 2, 5, 7 3, 4, 6

☒ 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
05 June, 2014 (05.06.14)

Date of mailing of the international search report
17 June, 2014 (17.06.14)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/058644

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2004-211051 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 29 July 2004 (29.07.2004), claims 1 to 7; paragraphs [0022], [0029], [0041], [0049] to [0050], [0057]; table 3, example 7; paragraph [0063] & US 2004/0005448 A1 & DE 10318663 A & CN 1453307 A	1, 2, 4-7 3, 4, 6
Y	JP 2010-260934 A (Japan Polypropylene Corp.), 18 November 2010 (18.11.2010), claims 1, 2, 7, 12, 13; paragraphs [0058], [0126], [0137] (Family: none)	3
A	JP 2006-124534 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 18 May 2006 (18.05.2006), entire text & DE 102005051791 A	1-7
A	JP 2004-1499 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 08 January 2004 (08.01.2004), entire text & US 2003/0236337 A1 & DE 10318606 A1	1-7
P, A	JP 2013-216798 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 24 October 2013 (24.10.2013), entire text (Family: none)	1-7

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C08L23/10(2006.01)i, C08J5/08(2006.01)i, C08K5/20(2006.01)i, C08K7/14(2006.01)i,
C08L23/26(2006.01)i

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（I P C））

Int.Cl. C08L1/00-101/16, C08K3/00-13/08, C08J5/08,

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 4 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 4 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 4 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）

C A p l u s / R E G I S T R Y (S T N)

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	CN 102010548 A（松下家電研究开发(杭州)有限公司）2011. 04. 13, 請求項 1, 7, [0020], [0022], [0023], 実施例 3 （ファミリーなし）	1, 2, 5, 7 3, 4, 6
X Y	JP 8-199015 A（東燃化学株式会社）1996. 08. 06, 請求項 1, [0068], [0073], [0090], [0094]の実施例 35, 37, 39 （ファミリーなし）	1, 2, 5, 7 3, 4, 6

☒ 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

0 5 . 0 6 . 2 0 1 4

国際調査報告の発送日

1 7 . 0 6 . 2 0 1 4

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
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）

武貞 亜弓

4 J

3 1 3 0

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 5 7

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
X Y	JP 2004-211051 A (住友化学工業株式会社) 2004. 07. 29, 請求項 1-7, [0022], [0029], [0041], [0049]-[0050], [0057], [表 3] の実施例 7, [0063] & US 2004/0005448 A1 & DE 10318663 A & CN 1453307 A	1, 2, 4-7 3, 4, 6
Y	JP 2010-260934 A (日本ポリプロ株式会社) 2010. 11. 18, 請求項 1, 2, 7, 12, 13, [0058], [0126], [0137] (ファミリーなし)	3
A	JP 2006-124534 A (住友化学株式会社) 2006. 05. 18, 全文 & DE 102005051791 A	1-7
A	JP 2004-1499 A (住友化学工業株式会社) 2004. 01. 08, 全文 & US 2003/0236337 A1 & DE 10318606 A1	1-7
PA	JP 2013-216798 A (住友化学株式会社) 2013. 10. 24, 全文 (ファミリーなし)	1-7