

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2008年2月14日 (14.02.2008)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2008/018404 A1

- (51) 国際特許分類:
B29B 9/06 (2006.01) B65D 85/00 (2006.01)
B29B 9/12 (2006.01) C08J 3/12 (2006.01)
 - (21) 国際出願番号: PCT/JP2007/065348
 - (22) 国際出願日: 2007年8月6日 (06.08.2007)
 - (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2006-220649 2006年8月11日 (11.08.2006) JP
 - (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三井化学株式会社 (MITSUI CHEMICALS, INC.) [JP/JP]; 〒1057117 東京都港区東新橋一丁目5番2号 Tokyo (JP).
 - (72) 発明者; および
 - (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 小宮 幹 (KOMIYA, Kan) [JP/JP]; 〒2990108 千葉県市原市千種海岸3 三井化学株式会社内 Chiba (JP). 中村 哲也 (NAKAMURA, Tetsuya) [JP/JP]; 〒2990108 千葉県市原市千種海岸3 三井化学株式会社内 Chiba (JP).
 - (74) 代理人: 鈴木 俊一郎 (SUZUKI, Shunichiro); 〒1410031 東京都品川区西五反田七丁目1 3番6号 五反田山崎ビル6階 鈴木国際特許事務所 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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, 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, IS, JP, KE, KG, KM, 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, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書

(54) Title: PELLETS COMPRISING POLYMER AND PACKAGE

(54) 発明の名称: 重合体を含んでなるペレットの集合体および包装体

(57) Abstract: First pellets characterized by satisfying all of the following (Z), (1), (2), and (3): (Z) the pellets comprise a polymer (A) having a tensile modulus of 100 MPa or lower; (1) the average weight of 30 of the pellets is 0.8-2.0 g; (2) the value of weight proportion of a fraction which is highest in weight proportion, which is an index to the particle size distribution of the pellets obtained by sieving, is in the range of 90-100%; and (3) the pellets have an L_{ave}/D_{ave} of 1.00-1.70. Also provided are second pellets characterized by satisfying (Z) above and the following (4): (4) when the pellets are kept at 35°C under a load for 24 hours, subsequently held at -10°C for 7 days, and then examined for blocking force, the blocking force is 35 N or lower.

(57) 要約: 本発明に係る第一のペレットの集合体は、以下の (Z)、(1)、(2)、(3) をいずれも満たすことを特徴とする; (Z) 該ペレットが、引っ張り弾性率が100MPa以下である重合体(A)を含んでなること。(1) 該ペレットの集合体の平均30粒重量が、0.8~2.0gであること。(2) ふるいわけ法により得られる該ペレットの集合体の粒度分布の指標であって、最大の重量分率を示す画分における重量分率の値が、90~100%の範囲にあること。(3) 該ペレットの集合体において、 L_{ave}/D_{ave} の値が1.00~1.70の範囲にあること。本発明に係る第二のペレットの集合体は、前記(Z)および下記(4)を満たすことを特徴とする; (4) 該ペレットの集合体について、35°Cで荷重をかけ、24時間経過後、-10°Cとして7日間経過後に測定したブロッキング力が35N以下であること。

WO 2008/018404 A1

明 細 書

重合体を含んでなるペレットの集合体および包装体

技術分野

- [0001] 本発明は、ペレットの集合体であって該ペレットが引っ張り弾性率 (ASTM D-638-03の方法により測定される初期弾性率) が100MPa以下である重合体 (A) を含んでなるものに関する。より詳しくは、本発明は、耐ブロッキング性に優れた、ペレットの集合体であって、該ペレットが引っ張り弾性率が100MPa以下である重合体 (A) を含んでなるものに関する。

背景技術

- [0002] エチレン・プロピレン共重合体ゴム、エチレン・プロピレン・ジエン共重合体ゴムなどのオレフィン系共重合体ゴムは、ペレットの形態で市場に供給されるようになってきたが、オレフィン系共重合体ゴムは粘着性を有するため、ペレット状に成形しても、保管中にブロック状に凝結するという問題があった。また、常温で比較的粘着性の少ないエチレン・ α -オレフィン系共重合体エラストマーにおいても、積み上げられて、荷重がかかった状態に保たれた場合や、夏場のように温度が高い環境下に置かれた場合には、ペレット同士が凝結するという問題があった。
- [0003] これに対して、ステアリン酸カルシウム、タルクなどの粉体およびシリコーンオイルなどの液体を軟質樹脂ペレットに付着させて、ペレットの取り扱いを向上させる試みがされている (特許文献1参照)。

特許文献1: 国際公開2002-085979号パンフレット

発明の開示

発明が解決しようとする課題

- [0004] しかしながら、上記粉体および液体を付着した軟質樹脂ペレットであっても、耐ブロッキング性を改善する余地があった。
- [0005] さらに、比較的高温下で保管しておいたペレットを寒冷地に搬送し、そこで成形体に加工しようとする、ペレットがさらに凝結しているという問題もあった。
- [0006] したがって、本発明の目的は、上記課題を解決しようとするものであって、ペレットの

集合物をペレット包装体などとして高温、荷重下で保管した後、これを寒冷地で保管、使用する際も、凝結が起こらないようなペレットの集合物を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明者らは、鋭意研究を行った結果、特定の特徴を有するペレットの集合物によれば上記課題を解決できることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0008] すなわち、本発明に係る第一のペレットの集合物は、以下の(Z)、(1)、(2)、(3)をいずれも満たすことを特徴とする；

(Z) 該ペレットが引っ張り弾性率(ASTM-D638-03記載の方法により測定される初期弾性率)が100MPa以下である重合体(A)を含んでなること。

[0009] (1) 該ペレットの集合物の平均30粒重量が、0.8～2.0gであること。

[0010] (2) ふるいわけ法により得られる該ペレットの集合物の粒度分布の指標であって、最大の重量分率を示す画分における重量分率の値が、90～100%の範囲にあること。

[0011] (3) 該ペレットの集合物において、ペレットの長さ L と直径 D とのうち、大きい方の値を L 、小さい方の値を D とし、無作為に抽出した20粒のペレットについて得た、平均値 L_{ave} と D_{ave} とから求められる L_{ave}/D_{ave} の値が、1.00～1.70の範囲にあること。

[0012] 上記重合体は、 α -オレフィン由来の構成単位を有する重合体であることが好ましい。

[0013] 上記 α -オレフィン由来の構成単位を有する重合体は、2種以上の α -オレフィン由来の構成単位を有する共重合体であることが好ましい。

[0014] 上記2種以上の α -オレフィン由来の構成単位を有する共重合体は、(A-i)エチレン由来の構成単位と炭素数3以上の α -オレフィン由来の構成単位とを有する共重合体であることが好ましい。

[0015] 上記2種以上の α -オレフィン由来の構成単位を有する共重合体は、(A-ii)プロピレン由来の構成単位とプロピレン以外の炭素数2以上の α -オレフィン由来の構成単位とを有する共重合体であることが好ましい。

[0016] 本発明に係る第一のペレットの集合物は、上記ペレットの表面に粉体および/または液体が付着していることが好ましい。

- [0017] 本発明に係る第一の包装体は、上記ペレットの集合物が、15～1500kgの量で容器に充填されてなることを特徴とする。
- [0018] 本発明の第2のペレットの集合物は、以下の(Z)、(4)を満たすことを特徴とする；
(Z)該ペレットが、引っ張り弾性率(ASTM D-638-03記載の方法による初期弾性率)が100MPa以下である重合体(A)を含んでなること。
- [0019] (4)該ペレットの集合物について、35°Cで荷重をかけ、24時間経過後、-10°Cとして7日間経過した後にブロッキング力を測定する試験において、測定したブロッキング力が35N以下であること。
- [0020] 本発明の第2のペレットの集合物は、前記ペレットの表面に粉体および／または液体が付着していることが好ましい。
- [0021] 本発明の第2の包装体は、前記第2のペレットの集合物が、15～1500kgの量で容器に充填されてなることを特徴とする。

発明の効果

- [0022] 本発明によれば、ペレットの集合物を包装体などとして高温、荷重下で保管した後、これを寒冷地で保管、使用する際も、凝結が起らないようなペレットの集合物が得られる。

図面の簡単な説明

- [0023] [図1]図1は、ペレットのLおよびDの測定箇所について説明するための図である。
[図2]図2は、ブロッキング力測定方法を説明するための図である。

発明を実施するための最良の形態

- [0024] 以下、本発明について具体的に説明する。

- [0025] <重合体(A)>

本発明の第1および第2のペレットの集合物で用いられる重合体(A)は、引っ張り弾性率(YM; ASTM D-638-03の方法により測定される初期弾性率)が100MPa以下、好ましくは0.1～100MPa、より好ましくは0.1～40MPaである。引っ張り弾性率が上記範囲にあると本発明の効果がより顕著に現れる点で好ましい。また引張弾性率の特に好ましい下限値は1MPa以上である。なお引っ張り弾性率を測定するための試験片はプレス成形により得られ、成形温度は重合体が溶融して流動する温

度以上であって、かつ280度以下の温度から選択される。

[0026] 上記重合体に使用される単量体に特に制限はなく、例えば炭素数2~20の α -オレフィン、エチレンおよび任意の α -オレフィンが包含される。適当なモノマーとしては、例えばエチレンおよび、3個以上、好ましくは3~20個、より好ましくは3~12個、さらに好ましくは3~8個の炭素原子を含む α -オレフィンを包含する。特に適当なものは、エチレンまたは、プロピレン、ブテン-1、4-メチル-1-ペンテン、ヘキセン-1およびオクテン-1から選択される1種以上の α -オレフィンである。また1種以上の α -オレフィンと共に、共役ポリエン、非共役ポリエン、環状オレフィン、極性基含有ビニル単量体を含んでいても良い。1種以上の α -オレフィン由来の構成単位を含み、これと共に、必要に応じて共役ポリエン、非共役ポリエン、環状オレフィン、極性基含有ビニル単量体のいずれかに由来の構成単位を含んでいてもよい重合体のことを α -オレフィン由来の構成単位を有する重合体と呼ぶことがある。また例えば芳香族ビニル化合物と、共役ポリエン、極性基含有ビニル化合物から選ばれる単量体との組み合わせであっても良い。

[0027] 上記重合体(A)としては、具体的には、エチレン由来の構成単位と炭素数3~20の α -オレフィン由来の構成単位とを有する共重合体(A-i)、プロピレン由来の構成単位とプロピレン以外の炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位とを有する共重合体(A-ii)、エチレン由来の構成単位と炭素数3~20の α -オレフィン由来の構成単位と、共役ポリエンおよび/又は非共役ポリエン由来の構成単位とを有する共重合体(A-iii)、エチレン由来の構成単位と酢酸ビニル由来の構成単位とを有する共重合体(A-iv)、芳香族ビニル化合物由来の構成単位と共役ジエン由来の構成単位とを有する共重合ゴムおよびその水素化物(A-v)などが挙げられるがこれらに限られるものではない。これらの重合体は、単独で用いても、2種以上組み合わせ用いても、重合体(A)全体として前記引っ張り弾性率の範囲を満たしていればよい。上記重合体としては、 α -オレフィン由来の構成単位を含む重合体が特に好ましい。

[0028] 以下、例示として挙げた重合体(A-i)~(A-v)について説明する。

[0029] [エチレン由来の構成単位と炭素数3~20の α -オレフィン由来の構成単位とを有

する共重合体(A-i)]

本発明で用いられるエチレン由来の構成単位と炭素数3~20の α -オレフィン由来の構成単位とを有する共重合体(A-i) (以下共重合体(A-1)と呼ぶことがある) は、例えばエチレンと、炭素原子数3~20の α -オレフィンとを共重合させて得られるエチレン・ α -オレフィン共重合体(A-i-a)、または、エチレン・ α -オレフィン共重合体(例えば共重合体(A-i-a))に不飽和カルボン酸またはその誘導体をグラフトした変性エチレン・ α -オレフィン共重合体(A-i-b)であって、前記引っ張り弾性率(YM; ASTM D-638-03)が上記範囲にある。

[0030] エチレンと共重合させる炭素原子数3~20の α -オレフィンとしては、具体的には、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、1-ウンデセン、1-ドデセン、1-ヘキサデセン、1-オクタデセン、1-ノナデセン、1-エイコセン、4-メチル-1-ペンテンなどが挙げられる。これらの α -オレフィンは、単独で、あるいは2種以上組み合わせて用いられる。

[0031] エチレン・ α -オレフィン共重合体(A-i-a)は、エチレンから導かれる構成単位を50~96モル%の量で、炭素原子数3~20の α -オレフィンから導かれる構成単位を4~50モル%の量(ここでエチレン由来の構成単位と炭素数3~20の α -オレフィン由来の構成単位との合計を100モル%とする)で含有していることが望ましい。

[0032] エチレン・ α -オレフィン共重合体(A-i-a)の組成は、通常10mm ϕ の試料管中で約200mgのエチレン・ α -オレフィン共重合体を1mlのヘキサクロロブタジエンに均一に溶解させた試料の ^{13}C -NMRスペクトルを、測定温度120°C、測定周波数25.05MHz、スペクトル幅1500Hz、パルス繰返し時間4.2sec.、パルス幅6 μ sec.の条件下で測定して決定される。

[0033] 本発明で用いられるエチレン・ α -オレフィン共重合体(A-i-a)は、密度(ASTM D 1505)が好ましくは0.850~0.915g/cm³、より好ましくは0.850~0.885g/cm³であって、さらに好ましくは0.850~0.868g/cm³であることが望ましい。密度がこの範囲にあると、本発明によって得られるブロッキング抑制効果が顕著である。

[0034] また、エチレン・ α -オレフィン共重合体(A-i-a)は、メルトフローレート(MFR; ASTM D 1238, 190°C、荷重2.16kg)が好ましくは0.01~200g/10分、より好ましく

は0.1～40g/10分の範囲内にあることが望ましい。

[0035] また、エチレン・ α -オレフィン共重合体(A-i-a)について、DSC(示差熱重量分析)で測定した融点(T_m)は特に制限はないが、DSCで測定した融点(T_m)が100°C以下であるかまたは融点が観測されないものがより好ましく、上記融点(T_m)が70°C以下であるかまたは融点が観測されないものがより好ましく、上記融点が観測されないものが特に好ましい。融点(T_m)に関して上記性質を満たすと、本発明によって得られるブロッキング抑制効果が顕著である。融点(T_m)は、DSCの吸熱曲線を求め、最大ピーク位置の温度とする。融点が観測されないとは、-150～200°Cの範囲において、結晶融解熱量が1J/g以上の結晶融解ピークが観測されないことをいう。測定は、試料をアルミパンに詰め、(1)10°C/分で200°Cまで昇温し、200°Cで5分間保持したのち、(2)20°C/分で-150°Cまで降温し、次いで(3)10°C/分で200°Cまで昇温する際、(3)における吸熱曲線より求めた。

[0036] エチレン・ α -オレフィン共重合体(A-i-a)としては、具体的には、エチレン・プロピレンランダム共重合体、エチレン・1-ブテンランダム共重合体、エチレン・プロピレン・1-ブテンランダム共重合体、エチレン・1-ヘキセンランダム共重合体、エチレン・1-ブテン・1-ヘキセンランダム共重合体、エチレン・1-オクテンランダム共重合体などが挙げられる。これらの共重合体は、2種以上併用してもよい。

[0037] 上記のようなエチレン・ α -オレフィン共重合体(A-i-a)は、バナジウム系触媒、チタン系触媒またはメタロセン系触媒などを用いる従来公知の方法により製造することができる。

[0038] また、変性エチレン・ α -オレフィン共重合体(A-i-b)は、エチレン・ α -オレフィン共重合体(例えばエチレン・ α -オレフィン共重合体(A-i-a))に不飽和カルボン酸またはその誘導体(以下、不飽和カルボン酸等と称する)をグラフトした重合体であって前記引っ張り弾性率の値を満足するものである。

[0039] 変性エチレン・ α -オレフィン共重合体における不飽和カルボン酸等のグラフト量は、グラフト変性前のエチレン・ α -オレフィン共重合体100重量%に対して、0.01～30重量%、好ましくは0.01～10重量%、さらに好ましくは0.1～2重量%の範囲である。

- [0040] 上記不飽和カルボン酸としては、具体的には、アクリル酸、マレイン酸、フマル酸、テトラヒドロフタル酸、イタコン酸、シトラコン酸、クロトン酸、イソクロトン酸、ナジック酸TM(エンドシス-ビスクロ[2,2,1]ヘプト-5-エン-2,3-ジカルボン酸などが挙げられる。
- [0041] また、不飽和カルボン酸の誘導体としては、たとえば上記のような不飽和カルボン酸の酸ハライド化合物、アミド化合物、イミド化合物、酸無水物、エステル化合物などが挙げられる。具体的には、塩化マレイル、マレイミド、無水マレイン酸、無水シトラコン酸、マレイン酸モノメチル、マレイン酸ジメチル、グリシジルマレエートなどが挙げられる。これらの中では、不飽和ジカルボン酸またはその酸無水物が好ましく、特にマレイン酸、ナジック酸TMまたはこれらの酸無水物が好ましい。
- [0042] なお、エチレン・ α -オレフィン共重合体(例えばエチレン・ α -オレフィン共重合体(A-i-a))にグラフトされる不飽和カルボン酸等のグラフト位置は、特に限定されことはなく、不飽和カルボン酸等は、エチレン・ α -オレフィン共重合体の任意の炭素原子に結合していればよい。
- [0043] 上記エチレン・ α -オレフィン共重合体の不飽和カルボン酸等によるグラフト変性は、従来公知のグラフト重合方法を用いて行なうことができる。たとえば上記エチレン・ α -オレフィン共重合体を溶融させて不飽和カルボン酸等を添加してグラフト重合を行なう方法、上記エチレン・ α -オレフィン共重合体を溶媒に溶解させて不飽和カルボン酸等を添加してグラフト重合を行なう方法がある。
- [0044] これらの方法において、ラジカル開始剤の存在下にグラフト重合を行なうと、上記不飽和カルボン酸等のグラフトモノマーを効率よくグラフト重合させることができる。この場合、ラジカル開始剤は、上記エチレン・ α -オレフィン共重合体100重量部に対して、通常は0.001~2重量部の量で用いられる。
- [0045] このようなラジカル開始剤としては、有機ペルオキシド、アゾ化合物などが用いられる。このようなラジカル開始剤としては、具体的には、
ベンゾイルペルオキシド、ジクロルベンゾイルペルオキシド、ジクミルペルオキシド、ジ-*t*-ブチルペルオキシド、2,5-ジメチル-2,5-ジ(ペルオキシドベンゾエート)ヘキシン-3,1,4-ビス(*t*-ブチルペルオキシイソプロピル)ベンゼン、ラウロイルペルオキシド

、*t*-ブチルペルアセテート、2,5-ジメチル-2,5-ジ-(*t*-ブチルペルオキシド)ヘキシン-3、2,5-ジメチル-2,5-ジ(*t*-ブチルペルオキシド)ヘキサン、*t*-ブチルペルベンゾエート、*t*-ブチルペルフェニルアセテート、*t*-ブチルペルイソブチレート、*t*-ブチルペル-*sec*-オクトエート、*t*-ブチルペルピバレート、クミルペルピバレート、*t*-ブチルペルジエチルアセテート;アゾビスイソブチロニトリル、ジメチルアゾイソブチレートなどが挙げられる。

[0046] これらのうちでは、ジクミルペルオキシド、ジ-*t*-ブチルペルオキシド、2,5-ジメチル-2,5-ジ(*t*-ブチルペルオキシ)ヘキシン-3、2,5-ジメチル-2,5-ジ(*t*-ブチルペルオキシ)ヘキサン、1,4-ビス(*t*-ブチルペルオキシイソプロピル)ベンゼンなどのジアルキルペルオキシドが好ましく用いられる。

[0047] 上記のようなラジカル開始剤を使用したグラフト重合反応、あるいはラジカル開始剤を使用せずに行なうグラフト重合反応の反応温度は、通常60~350°C、好ましくは150~300°Cの範囲内に設定される。

[0048] このような共重合体(A-i)の引っ張り弾性率は、重合体(A)について述べたとおりであるが、0.1~40MPa、好ましくは1~40MPaである場合にはより効果が顕著である。

[0049] [プロピレン由来の構成単位とプロピレン以外の炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位とを有する共重合体(A-ii)]

本発明で用いられるプロピレン由来の構成単位とプロピレン以外の炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位とを有する共重合体(A-ii)(以下共重合体(A-ii))と呼ぶことがある)は、プロピレンとプロピレン以外の炭素原子数2~20の α -オレフィンとを共重合させて得られるプロピレン・ α -オレフィン共重合体(A-ii-a)、または、プロピレン・ α -オレフィン共重合体(例えば共重合体(A-ii-a))に不飽和カルボン酸またはその誘導体をグラフトした変性プロピレン・ α -オレフィン共重合体(A-ii-b)であって、前記引っ張り弾性率(YM;ASTM D-638)が上記範囲にある。

[0050] プロピレンと共重合させるプロピレン以外の炭素原子数2~20の α -オレフィンとしては、具体的には、エチレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オ

クテン、1-ノネン、1-デセン、1-ウンデセン、1-ドデセン、1-ヘキサデセン、1-オクタデセン、1-ノナデセン、1-エイコセン、4-メチル-1-ペンテンなどが挙げられる。これらの α -オレフィンは、単独で、あるいは2種以上組み合わせて用いられる。

- [0051] プロピレン・ α -オレフィン共重合体(A-ii-a)は、プロピレンから導かれる構成単位を50~95モル%の量で、プロピレン以外の炭素原子数2~20の α -オレフィンから導かれる構成単位を5~50モル%の量(ここでプロピレン由来の構成単位とプロピレン以外の炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位との合計を100モル%とする)で含有していることが望ましい。
- [0052] プロピレン・ α -オレフィン共重合体(A-ii-a)の組成は、通常10mm ϕ の試料管中で約200mgのプロピレン・ α -オレフィン共重合体を1mlのヘキサクロボタジエンに均一に溶解させた試料の ^{13}C -NMRスペクトルを、測定温度120°C、測定周波数25.05MHz、スペクトル幅1500Hz、パルス繰返し時間4.2sec.、パルス幅6 μsec .の条件下で測定して決定される。
- [0053] 本発明で用いられるプロピレン・ α -オレフィン共重合体(A-ii-a)は、密度(ASTM D 1505)が好ましくは0.850~0.905g/cm³、より好ましくは0.850~0.885g/cm³であることが望ましい。また、プロピレン・ α -オレフィン共重合体(ii-a)は、メルトフローレート(MFR; ASTM D 1238, 230°C、荷重2.16kg)が好ましくは0.01~400g/10分、より好ましくは0.01~200g/10分、さらに好ましくは0.1~70g/10分の範囲内にあることが望ましい。
- [0054] また、プロピレン・ α -オレフィン共重合体(A-ii-a)について、DSC(示差熱重量分析)で測定した融点(T_m)は特に制限はないが、DSCで測定した融点(T_m)が100°C以下であるかまたは融点が観測されないものがより好ましく、上記融点(T_m)が70°C以下であるかまたは融点が観測されないものがより好ましく、上記融点が観測されないものが特に好ましい。融点(T_m)に関して上記性質を満たすと、本発明によって得られるブロッキング抑制効果が顕著である。融点(T_m)は、DSCの吸熱曲線を求め、最大ピーク位置の温度とする。融点が観測されないことの定義およびDSCの吸熱曲線の測定方法は、エチレン・ α -オレフィン共重合体(A-i-a)の場合と同じである。

- [0055] さらに、ポリプロピレンの立体規則性は、シンジオタクティック、アイソタクティック、アタクティックのいずれでもよい。
- [0056] プロピレン・ α -オレフィン共重合体(A-ii-a)としては、具体的には、プロピレン・エチレン共重合体、プロピレン・1-ブテン共重合体、プロピレン・エチレン・1-ブテン共重合体、プロピレン・エチレン・1-オクテン共重合体などが挙げられる。これらの共重合体は、2種以上併用してもよい。
- [0057] 上記のようなプロピレン・ α -オレフィン共重合体(A-ii-a)は、バナジウム系触媒、チタン系触媒またはメタロセン系触媒などを用いる従来公知の方法により製造することができる。
- [0058] また、変性プロピレン・ α -オレフィン共重合体(A-ii-b)は、プロピレン・ α -オレフィン共重合体(例えばプロピレン・ α -オレフィン共重合体(A-ii-a))に不飽和カルボン酸またはその誘導体(以下、不飽和カルボン酸等と称する)をグラフトした重合体である。
- [0059] この変性プロピレン・ α -オレフィン共重合体(A-ii-b)の製造の際に用いられる不飽和カルボン酸等は、変性エチレン・ α -オレフィン共重合体(A-i-b)の製造の際に用いられる不飽和カルボン酸等と同じ化合物である。
- [0060] 変性プロピレン・ α -オレフィン共重合体(A-ii-b)における不飽和カルボン酸等のグラフト量は、グラフト変性前のプロピレン・ α -オレフィン共重合体100重量%に対して、0.01~30重量%、好ましくは0.01~10重量%、さらに好ましくは0.1~2重量%の範囲である。
- [0061] なお、プロピレン・ α -オレフィン共重合体にグラフトされる不飽和カルボン酸等のグラフト位置は、特に限定されことなく、不飽和カルボン酸等は、プロピレン・ α -オレフィン共重合体の任意の炭素原子に結合していればよい。
- [0062] 上記プロピレン・ α -オレフィン共重合体の不飽和カルボン酸等によるグラフト変性は、前記(A-i-b)の製造方法と同様にして行うことができる。
- [0063] このような共重合体(A-ii)の引っ張り弾性率は、重合体(A)について述べたとおりであるが、0.1~40MPaである場合が好ましく、0.1~20MPaであることが更に好ましく、特に0.1~10MPaであることが好ましく、中でも1~10MPaであることが好

ましい。この範囲にある場合にはより本発明の効果が顕著である。

[0064] [エチレン由来の構成単位と炭素数3~20の α オレフィン由来の構成単位と、共役ポリエンおよび/又は非共役ポリエン由来の構成単位とを有する共重合体(A-iii)]
本発明で用いられるエチレン由来の構成単位と炭素数3~20の α オレフィン由来の構成単位と、共役ポリエンおよび/又は非共役ポリエン由来の構成単位とを有する共重合体(A-iii) (以下共重合体(A-iii)と呼ぶことがある)は、エチレンと、炭素原子数3~20の α -オレフィンと、共役ジエン単量体および/または非共役ポリエン単量体とをランダム共重合させて得られる共重合体(A-iii-a)、または、エチレンと、炭素原子数3~20の α -オレフィンと、共役ジエン単量体および/または非共役ポリエン単量体とをランダム共重合させて得られる共重合体(例えば共重合体(A-iii-a)に不飽和カルボン酸またはその誘導体をグラフトした共重合体(A-iii-b) (以下変性共重合体(A-iii-b)と呼ぶことがある)であって、引っ張り弾性率(YM;ASTM D-638)が上記範囲にある。

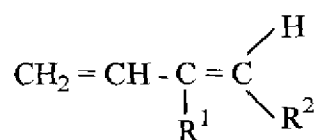
[0065] 上記 α -オレフィンとしては、炭素原子数が3~20の範囲にあれば特に限定されず、直鎖状であっても、分岐を有していてもよい。

[0066] このような α -オレフィンとしては、具体的には、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、3-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、3-エチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ヘキセン、4,4-ジメチル-1-ヘキセン、4,4-ジメチル-1-ペンテン、4-エチル-1-ヘキセン、3-エチル-1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、1-ウンデセン、1-ドデセン、1-テトラデセン、1-ペンタデセン、1-ヘキサデセン、1-ヘプタデセン、1-オクタデセン、1-ノナデセン、1-エイコセン、9-メチル-1-デセン、11-メチル-1-ドデセン、12-エチル-1-テトラデセンなどが挙げられる。これら中でも、プロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-オクテン、1-デセンが好ましく用いられる。

[0067] これらの α -オレフィンは、単独で、あるいは2種以上み合わせて用いることができる。

[0068] 上記共役ジエン単量体は、下記の式で表わされる。

[0069] [化1]



[0070] 上記式において、 R^1 、 R^2 は、それぞれ独立に水素原子、炭素原子数が1～8のアルキル基あるいはアール基であり、 R^1 と R^2 の少なくとも一方は水素原子である。

[0071] このような共役ジエン単量体としては、具体的には、1,3-ブタジエン、1,3-ペンタジエン、1,3-ヘキサジエン、1,3-ヘプタジエン、1,3-オクタジエン、1-フェニル-1,3-ブタジエン、1-フェニル-2,4-ペンタジエン、イソプレン、2-エチル-1,3-ブタジエン、2-プロピル-1,3-ブタジエン、2-ブチル-1,3-ブタジエン、2-ペンチル-1,3-ブタジエン、2-ヘキシル-1,3-ブタジエン、2-ヘプチル-1,3-ブタジエン、2-オクチル-1,3-ブタジエン、2-フェニル-1,3-ブタジエン等が挙げられる。これらのうちでは、1,3-ブタジエン、イソプレンが共重合性に優れる点で特に好ましい。共役ジエン単量体は、単独であるいは2種以上み合わせて用いることができる。

[0072] また、上記非共役ポリエン単量体としては、具体的には、ジシクロペンタジエン、1,4-ヘキサジエン、シクロオクタジエン、メチレンノルボルネン、エチリデンノルボルネン、4,8-ジメチル-1,4,8-デカトリエン、4,8-ジメチル-1,4,9-デカトリエン、4,9-ジメチル-1,4,9-デカトリエン、5,8-ジメチル-1,4,9-デカトリエン、5,9-ジメチル-1,4,9-デカトリエン、5-ビニル-1,6-オクタジエンなどが挙げられる。好ましい非共役ポリエン単量体としては、脂肪族ポリエン化合物が挙げられる。

[0073] 共重合体(A-iii-a)は、エチレンから導かれる構成単位と、炭素原子数が3～20の α -オレフィンから導かれる構成単位と、(非)共役ポリエン単量体から導かれる構成単位とが、それぞれランダムに配列して結合し、(非)共役ポリエン単量体に起因する2重結合構造を有するとともに、主鎖は、実質的に線状構造となっている。

[0074] この共重合体(A-iii-a)が実質的に線状構造を有しており実質的にゲル状架橋重合体を含むことは、この共重合体が有機溶媒に溶解し、不溶分を実質的に含まないことにより確認することができる。たとえば極限粘度 $[\eta]$ を測定する際に、該共重合体が135°Cのデカリンに完全に溶解することにより確認することができる。

[0075] 本発明で用いられる共重合体(A-iii-a)は、エチレンから導かれる構成単位と、

炭素原子数3~20の α -オレフィンから導かれる構成単位とのモル比(エチレン/ α -オレフィン)が好ましくは99/1~40/60、より好ましくは95/5~50/50、さらに好ましくは90/10~55/45の範囲にある。また、エチレンから導かれる構成単位と α -オレフィンから導かれる構成単位と共役ジエンおよび/または非共役ポリエンから導かれる構成単位との合計を100モル%とした場合に、共役ジエンと非共役ポリエンから導かれる構成単位の合計が好ましくは0.1~30モル%、より好ましくは0.2~20モル%である。

[0076] 本発明で用いられる共重合体(A-iii-a)は、密度(ASTM D 1505)が好ましくは0.855~0.880g/cm³、より好ましくは0.855~0.875g/cm³であって、ムーニー粘度(ML₁₊₄(100°C))が好ましくは1~150、より好ましくは5~130の範囲内にあることが望ましい。

[0077] 共重合体(A-iii-a)は、135°Cデカリン中で測定した極限粘度[η]が通常0.1~10dl/g、好ましくは1.0~7.0dl/gの範囲にあることが望ましい。極限粘度[η]は、不飽和性オレフィン系共重合体(iii)の分子量の尺度である。

[0078] また、共重合体(A-iii-a)について、DSC(示差熱重量分析)で測定した融点(T_m)は特に制限はないが、DSCで測定した融点(T_m)が100°C以下であるかまたは融点が観測されないものがより好ましく、上記融点(T_m)が70°C以下であるかまたは融点が観測されないものがより好ましく、上記融点が観測されないものが特に好ましい。融点(T_m)に関して上記性質を満たすと、本発明によって得られるブロッキング抑制効果が顕著である。融点(T_m)は、DSCの吸熱曲線を求め、最大ピーク位置の温度とする。融点が観測されないことの定義およびDSCの吸熱曲線の測定方法は、エチレン・ α -オレフィン共重合体(A-i-a)の場合と同じである。

[0079] さらに、ポリプロピレンの立体規則性は、シンジオタクティック、アイソタクティック、アタクティックのいずれでもよい。

[0080] また共重合体(A-iii-a)は、ヨウ素価が通常1~50、好ましくは3~50、より好ましくは5~40の範囲にあることが望ましい。

[0081] 本発明では、共重合体(A-iii-a)は、各構成単位のモル比、極限粘度[η]およびヨウ素価のうち、少なくとも1つが上記範囲内にあることが好ましく、2つ以上が上記

範囲内にあることがより好ましく、各構成単位の実モル比、極限粘度 $[\eta]$ およびヨウ素価のすべてが上記範囲内にあることが特に好ましい。

[0082] さらに、GPCにより測定した M_w/M_n の値は、3以下であることが好ましい。

[0083] 共重合体(A-iii-a)の M_w/M_n は、GPC(ゲルパーミエーションクロマトグラフィ)を用い、オルトジクロロベンゼン溶媒で、140°Cで測定した。

[0084] 本発明で用いられる共重合体(A-iii-a)は、いわゆる油展ゴム、すなわち従来公知の鉱物油系軟化剤等の軟化剤を油展したゴムであってもよい。

[0085] 本発明で用いられる共重合体(A-iii-a)としては、具体的には、エチレン・プロピレン・1,3-ブタジエン共重合体、エチレン・プロピレン・イソプレン共重合体、エチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネン共重合体ゴム等のEPDM、油展エチレン・プロピレン・1,3-ブタジエン共重合体、油展エチレン・プロピレン・イソプレン共重合体、油展エチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネン共重合体ゴム等の油展EPDMなどが挙げられる。

[0086] 上記のような共重合体(A-iii-a)は、エチレンと炭素原子数3~20の α -オレフィンと上記一般式で表わされる共役ジエン単量体および/または非共役ポリエンとを、従来公知のバナジウム系またはメタロセン系触媒の存在下に共重合、好ましくはランダム共重合させて得られる。

[0087] 本発明で用いられる共重合体(A-iii-a)の製造方法およびその製造方法で用いられるメタロセン系触媒の詳細は、特開平11-228743号公報に記載されている。

[0088] また、変性共重合体(A-iii-b)は、エチレンと、炭素原子数3~20の α -オレフィンと、共役ジエン単量体および/または非共役ポリエン単量体とをランダム共重合させて得られる共重合体(例えば共重合体(A-iii-a))に不飽和カルボン酸またはその誘導体(以下、不飽和カルボン酸等と称する)をグラフトした重合体である。

[0089] この変性共重合体(A-iii-b)を製造する際に用いられる不飽和カルボン酸等は、変性エチレン・ α -オレフィン共重合体(A-i-b)の製造の際に用いられる不飽和カルボン酸等と同じ化合物である。

[0090] 変性共重合体(A-iii-b)における不飽和カルボン酸等のグラフト量は、グラフト変性前の不飽和性オレフィン系共重合体(iii-a)100重量%に対して、0.01~30重

量%、好ましく0.01~10重量%、さらに好ましくは0.1~2重量%の範囲である。

[0091] なお、エチレンと、炭素原子数3~20の α -オレフィンと、共役ジエン単量体および/または非共役ポリエン単量体とをランダム共重合させて得られる共重合体にグラフトされる不飽和カルボン酸等のグラフト位置は、特に限定されことはなく、不飽和カルボン酸等は、エチレンと、炭素原子数3~20の α -オレフィンと、共役ジエン単量体および/または非共役ポリエン単量体とをランダム共重合させて得られる共重合体の任意の炭素原子に結合していればよい。

[0092] 上記不飽和カルボン酸等によるグラフト変性は、前記(i-b)の製造方法と同様の方法にて製造することができる。

[0093] このような共重合体(A-iii)の引っ張り弾性率は、重合体(A)について述べたとおりであるが、0.1~40MPaである場合がより好ましく、さらに1~40MPaが好ましい。この場合にはより効果が顕著である。

[0094] [エチレン由来の構成単位と酢酸ビニル由来の構成単位とを有する共重合体(A-iv)]

本発明で用いられるエチレン由来の構成単位と酢酸ビニル由来の構成単位とを有する共重合体(A-iv) (以下共重合体(A-iv)と言うことがある)は、エチレンと酢酸ビニルとを共重合させて得られるエチレン・酢酸ビニル共重合体(A-iv-a)、または、エチレン・酢酸ビニル共重合体(例えば共重合体(A-iv-a))に不飽和カルボン酸またはその誘導体をグラフトした変性エチレン・酢酸ビニル共重合体(A-iv-b)であって、引っ張り弾性率(YM; ASTM D-638-03に記載の方法により測定される初期弾性率)が上記範囲にある。

[0095] 本発明で用いられるエチレン・酢酸ビニル共重合体(A-iv-a)は、酢酸ビニル含有量が好ましくは5~40重量%、より好ましくは10~35重量%の範囲にあることが望ましい。

[0096] また、エチレン・酢酸ビニル共重合体(A-iv-a)は、DSCで測定した融点(T_m)が好ましくは100°C以下であるかまたは融点が観測されないものが好ましく、より好ましくは63°C以下であるかまたは融点が観測されないものである。融点(T_m)に関して上記性質を満たすと、本発明によって得られるブロッキング抑制効果が顕著である。

融点(T_m)は、DSCの吸熱曲線を求め、最大ピーク位置の温度とする。融点が観測されないことの定義、およびDSC吸熱曲線の測定方法は、(A-i-a)の場合と同じである。

[0097] また、このエチレン・酢酸ビニル共重合体(A-iv-a)は、一般に、メルトフローレート(ASTM D 1238, 190°C、荷重2.16kg)が通常0.1~50g/10分、好ましくは0.3~30g/10分の範囲内にある。

[0098] また、変性エチレン・酢酸ビニル共重合体(A-iv-b)は、エチレン・酢酸ビニル共重合体(例えばエチレン・酢酸ビニル共重合体(A-iv-a))に不飽和カルボン酸またはその誘導体(以下、不飽和カルボン酸等と称する)をグラフトした重合体である。

[0099] この変性エチレン・酢酸ビニル共重合体(A-iv-b)の製造の際に用いられる不飽和カルボン酸等は、変性エチレン・ α -オレフィン共重合体(A-i-b)の製造の際に用いられる不飽和カルボン酸等と同じ化合物である。

[0100] 変性エチレン・酢酸ビニル共重合体(A-iv-b)における不飽和カルボン酸等のグラフト量は、グラフト変性前のエチレン・酢酸ビニル共重合体(例えばエチレン・酢酸ビニル共重合体(A-iv-a))100重量%に対して、0.01~30重量%、好ましくは0.1~10重量%、さらに好ましくは0.1~2重量%の範囲である。

[0101] なお、エチレン・酢酸ビニル共重合体にグラフトされる不飽和カルボン酸等のグラフト位置は、特に限定されことはなく、不飽和カルボン酸等は、エチレン・酢酸ビニル共重合体の任意の炭素原子に結合していればよい。

[0102] 上記エチレン・酢酸ビニル共重合体の不飽和カルボン酸等によるグラフト変性は、前記(A-i-b)の製造方法と同様の方法により製造することができる。

[0103] このような共重合体(A-iv)の引っ張り弾性率は、重合体(A)について述べたとおりであるが、0.1~40MPaである場合が好ましく、0.1~20MPaであることがより好ましく、0.1~10MPaであることがさらに好ましく、中でも1~10MPaであることがより好ましい。引っ張り弾性率がこの範囲にある場合にはより効果が顕著である。

[0104] [芳香族ビニル化合物由来の構成単位と共役ジエン由来の構成単位とを有する共重合ゴム(ただし構成単位の一部または全部が水素化されていても良い)(A-v)]
芳香族ビニル化合物由来の構成単位と共役ジエン由来の構成単位とを有する共

重合ゴム(ただし構成単位の一部または全部が水素化されていても良い)(A-v)(以下共重合ゴム(A-v)と呼ぶことがある)は、芳香族ビニル化合物(例えばスチレンが挙げられる。以下において同じ。)・ブタジエン共重合体ブロックセグメントからなる水添ジエン系重合体、ポリイソプレンブロックセグメントと芳香族ビニル化合物・イソプレン共重合体ブロックセグメントとからなる水添ジエン系重合体、芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックと共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックとからなるブロック共重合体、芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックと共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックとからなるブロック共重合体の水素添加物、および芳香族ビニル化合物と共役ジエン化合物とのランダム共重合体の水素添加物(以下これらを総称して共重合体(A-v-a)と呼ぶことがある)等の芳香族ビニル化合物・共役ジエン共重合体またはその水素添加物であるか、または、

前記したような構成単位を有する共重合体(例えば共重合体(A-v-a))に不飽和カルボン酸またはその誘導体をグラフトした変性芳香族ビニル化合物・共役ジエン共重合ゴム及びその水素化物(A-v-b)(以下変性共重合体(A-v-b)と呼ぶことがある)等の公知のものであって、引っ張り弾性率(YM;ASTM D-638-03に記載の方法により測定される初期弾性率)が上記範囲にある。このような共重合体(A-v)は、単独で用いても、2種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0105] また、芳香族ビニル化合物由来の構成単位と共役ジエン由来の構成単位とを有する共重合ゴム(ただし構成単位の一部または全部が水素化されていても良い)(A-v)は、ビカット軟化点(ASTM D1525)が110°C以下、より好ましくは63°C以下であるか、または、ビカット軟化点が観測されないものが望ましい。

[0106] 本発明で用いられる芳香族ビニル化合物・共役ジエン共重合ゴム及びその水素化物(A-v-a)(共重合体A-v-a)は、芳香族ビニル化合物(例えばスチレン)含有量が好ましくは5~80重量%、より好ましくは10~50重量%の範囲にあることが望ましい。また、この共重合体(A-v-a)は、一般に、メルトフローレート(ASTM D 1238, 230°C、荷重2.16kg)が通常0.1~200g/10分、好ましくは0.5~70g/10分の範囲内にある。

[0107] また、変性芳香族ビニル化合物・共役ジエン共重合ゴム及びその水素化物(A-v

−b)は、芳香族ビニル化合物・共役ジエン共重合ゴム及びその水素化物(例えば共重合体(A−v−a)に不飽和カルボン酸またはその誘導體(以下、不飽和カルボン酸等と称する)をグラフトした重合体である。

[0108] この芳香族ビニル化合物・共役ジエン共重合ゴム及びその水素化物(A−v−b)の製造の際に用いられる不飽和カルボン酸等は、変性エチレン・ α −オレフィン共重合体(A−i−b)の製造の際に用いられる不飽和カルボン酸等と同じ化合物であり、前記(A−i−b)の製造方法と同様の方法により製造することができる。

[0109] このような共重合体(A−v)の引っ張り弾性率は、重合体(A)について述べたとおりであるが、0.1~40MPaである場合が好ましく、0.1~20MPaであることがより好ましく、0.1~10MPaであることがさらに好ましく、中でも1~10MPaであることがより好ましい。引っ張り弾性率がこの範囲にある場合にはより効果が顕著である。

[0110] これらの重合体(A−i)~(A−v)のうちで、本発明によって得られるブロッキング抑制効果が顕著であるため、2種以上の炭素数2~20の α −オレフィン由来の構成単位を含む共重合体が好ましく、具体的には、上記共重合体(A−i)および(A−ii)が特に好適に用いられ、共重合体(A−i)が特に好ましい。

[0111] 本発明のペレットに含まれる重合体としては上記のように引っ張り弾性率(ASTM−D−638−03記載の方法により測定される初期弾性率)が100MPa以下の重合体(A)のみであってもよい。また、引張弾性率(ASTM−D−638−03記載の方法により測定される初期弾性率)が重合体(A)の要件よりも大きい値を示す熱可塑性樹脂、好ましくは引っ張り弾性率が100MPaよりも大きく、より好ましくは150MPaよりも大きく、1700MPa以下である熱可塑性樹脂(x)を、ペレットに含まれる(A)+(x)の合計100重量%に対して35重量%以下、好ましくは30重量%以下、より好ましくは20重量%以下の量ブレンドした組成物であっても良い。

[0112] (x)としては、特に制限はないが例えばポリオレフィンを好ましく挙げることができる。ポリオレフィンとしては炭素数2~20の α −オレフィンの重合体または共重合体を挙げることができ、好ましくはエチレン単独重合体、エチレンと炭素数3~20の α −オレフィンとの共重合体、プロピレンとプロピレン以外の炭素数2~20の α −オレフィンとの共重合体である。この場合(x)のDSCで測定した融点には特に限定はないが、融

点が80°C以上、好ましくは81°C～180°C、より好ましくは121°C～170°Cである。なお融点の測定は、前記した(A)成分の融点の測定と同じ方法で行うことができる。

[0113] またペレットには、上記重合体(A)、任意成分である熱可塑性樹脂(x)以外に、必要に応じて結晶核剤、透明化剤、耐熱安定剤、紫外線安定剤、耐候性安定剤、発泡剤、防曇剤、防錆剤、イオンラップ剤、難燃剤、難燃助剤、無機充填剤、有機顔料、無機顔料等の通常用いられる添加剤を、通常量添加することができる。特に添加量に制限はないが、例えば好ましくは重合体(A)、任意成分である熱可塑性樹脂(x)の合計100重量部に対し、10重量部以下、好ましくは5重量部以下、特に好ましくは1重量部以下である。添加剤を使用する際の下限は特に無いが、例えば0.0001重量部以上である。

[0114] またさらに重合体(A)と任意に熱可塑性樹脂(x)および添加剤が含まれていても良いペレットについて、粉体や液体を付着させない状態でプレス成形して測定したときの引っ張り弾性率(ASTM-D-638-03記載の方法により測定される初期弾性率)YMは好ましくは100MPa以下、より好ましくは0.1～100MPa、さらに好ましくは0.1～40MPa、特に好ましくは0.1～20MPa、とりわけ好ましくは0.1～10MPaであり、引っ張り弾性率の下限は、1MPa以上であることが特に好ましい。

[0115] <第一のペレットの集合物>

本発明に係る第一のペレットの集合物は、上記のような重合体を含むペレットの集合物であって、さらに下記(1)～(3)を満たすことを特徴とする。すなわち、上記第一のペレットの集合物は、(Z)引っ張り弾性率(ASTM D-638-03記載の方法による初期弾性率)が100MPa以下である重合体(A)を含んでなるペレットの集合物であって、さらに下記(1)～(3)を満たすことを特徴とする。ペレットの集合物とは、複数のペレットの集合物ということができる。その集合物に属するペレットの量には、特に制限はないが、例えば、後述のブロッキング性試験ができる量以上である、95g以上である。上限は特にない。後述するように便宜上、包装等する都合から、例えば1500kg以下ずつつわけることができる。

[0116] (1)該ペレットの集合物において、平均30粒重量が、0.80～2.00gであり、好ましくは、0.90～1.80g、より好ましくは0.95～1.80、さらに好ましくは1.00～1.8

0gである。すなわち、ペレットの集合物から、無作為に取ったペレット30粒の合計重量の平均値が上記範囲にある。

[0117] 平均30粒重量が上記範囲にあると、特に低温での耐ブロッキング性に優れる。

[0118] この平均30粒重量は具体的には以下のようにして求める。ペレットの集合物から、無作為に取った30粒のペレットの合計重量を、小数点以下4桁以上の精度で測定可能な電子天秤にて測定する。このような、無作為に30粒のペレットを取り合計重量を測定するという操作を合計3回行い、3回の測定値の平均値を得る。ここで、小数点以下3桁目を四捨五入する。なお本測定は、実施例記載の方法によりペレットの集合物を洗浄した後にその集合物から無作為にペレットを取って行う。

[0119] (2)ふるいわけ法により得られる該ペレットの集合物の粒度分布の指標であって、最大の重量分率を示す画分における重量分率の値が、90～100%、好ましくは、97～100%の範囲にある。

[0120] 最大の重量分率を示す画分における重量分率の値が上記範囲にあると、特に低温での耐ブロッキング性に優れる。

[0121] 具体的には、下記のふるいわけ法によって、最大の重量分率を示す画分における重量分率の値を求める。JIS Z8801に規定する、内径200mmφ、深さ45mmの標準篩であって、目開きがそれぞれ11.2mm、9.5mm、8.00mm、6.70mm、5.60mm、4.75mm、4.00mm、3.35mm、2.80mm、2.36mm、2.00mm、1.70mmである篩を、上からこの順序で、全自動ロータップ式篩分け試験機「GRADEX2000」に取り付ける。次いで、最上段に取り付けた目開き11.2mm篩の上に、ペレットの集合物から無作為に取った50gのペレットを置き、30秒間左回りに篩を回し、次いで30秒間右回りに篩を回す操作を合計10分間繰り返す。「篩いを回す」とは、篩う操作をするために、上述したように縦に並べて取り付けられた篩を一斉に水平方向に回転運動させることである。回す際の回転半径は3cmで、回転速度は60rpmとする。その後、各篩上に分けられたペレット重量を測定し、各篩上のペレットの割合を100分率で表す。これらのうち、最大の値が、最大の重量分率を示す画分における重量分率の値である。なお本測定は、実施例記載の方法によりペレットの集合物を洗浄した後にその集合物から無作為にペレットを取って行う。なお、測定しようとするペレット同士が、目視によりブロッキ

ングしていると認められる場合は、ブロッキングしたペレットを予め手でほぐして、目視でブロッキングしているペレットが認められない状態にした後、該ペレットを最上段に取り付けた目開き11.2mm篩の上に置いて篩い操作を開始する。

[0122] (3)該ペレットの集合物において、ペレットの長さ L と直径 D のうち、大きい方の値を L 、小さい方の値を D として、無作為に抽出した20粒のペレットについて得た平均値 L_{ave} および D_{ave} から求められる L_{ave}/D_{ave} の値が1.00~1.70、好ましくは1.0~1.5の範囲にある。なお本測定は、実施例記載の方法によりペレットの集合物を洗浄した後、その集合物から無作為にペレットを取って行う。

[0123] L_{ave}/D_{ave} が上記範囲にあると、低温での耐ブロッキング性が優れる。

[0124] この L_{ave}/D_{ave} は具体的には以下のようにして求める。

[0125] ペレットの集合物から、無作為にペレット20粒を取る。ペレット1粒をピンセットで軽く抑えてから、JIS B 7507 一級品ノギスにより、ペレットの長さおよび直径を、0.05mm単位で、ペレットが変形しないように測定し、小数点第1位までの数値となるように四捨五入する。

[0126] 例えばペレットを目視で観察し、ペレットが図1の上段に示すような楕円球の形であるか、これに近いと判断する場合は、該ペレットを楕円球とみなし以下のように測定する。(1)当該図のような L と記載した矢印方向(楕円球の長径方向)において、寸法が最も大きくなるように測定箇所を選び、当該箇所の寸法を「長さ」とする。(2)当該図のような方向(楕円球の長径方向)と垂直な断面において、寸法(直径)が最も大きくなるように測定箇所を選び、当該箇所の寸法を本発明でいう「直径」とする。なお、(2)で、本発明でいう「直径」を求めるにあたっては、長径方向に測定箇所をずらしたり、断面内で測定箇所をずらしたりすると、寸法の測定値が変わりうることを考慮し、最も寸法が大きい部分を探す。

[0127] (1)で測定される値を L 、(2)で測定される値を D とする。

[0128] またペレットを目視で観察し、ペレットが図1の下段に示すような円柱形であるか、これに近いと判断する場合は、該ペレットを円柱とみなし以下のように測定する。なお、円柱形かどうかについては、円柱の底面に相当する部分があるかどうかの一つの判断基準である。

(1) 当該図のような高さ方向において、寸法が最も大きくなるように測定箇所を選び、当該箇所の寸法を「長さ」とする。

(2) 当該図のような高さ方向と垂直な断面において、寸法(直径)が最も大きくなるように測定箇所を選び、当該箇所の寸法を本発明でいう「直径」とする。

なお、(2)で、本発明でいう「直径」を求めるにあたっては、高さ方向に測定箇所をずらしたり、断面内で測定箇所をずらしたりすると、寸法の測定値が変わりうることを考慮し、最も寸法が大きい部分を探す。

[0129] (1)および(2)で測定される値のうち、大きい方を当該ペレットのL、小さい方を当該ペレットのDとする。

[0130] 図1下段には、円柱とみなせる典型的な2つの場合について、L、Dの測定箇所を示す。

[0131] また、楕円球または円柱とみなせないときは、一般に、1個のペレット表面の2点を、その間の直線距離が最も大きくなるようにとり、その直線距離を長さとする。この長さ方向に垂直な断面において、最も寸法が大きい部分を探し、その寸法を測定し、これを直径とする。この際にも、直径を求めるにあたっては、長径方向に測定箇所をずらしたり、断面内で測定箇所をずらしたりすると、寸法の測定値が変わりうることを考慮し、最も寸法が大きい部分を探す。

[0132] この場合は、長さをLとし、直径をDとする。

[0133] なお、ペレットとしては、円形のダイ穴から押出され、製造されたものが好ましい。

[0134] このようにして、20粒すべてについてLおよびDを測定し、Lの平均値 L_{ave} およびDの平均値 D_{ave} をそれぞれ求める。次いでこの比 L_{ave} / D_{ave} を計算する。

[0135] 上記(1)～(3)を満たすと、ペレットの集合物は、包装体などとして高温、荷重下で保管した後、これを寒冷地で保管、使用する際も、凝結が起りにくく、耐ブロッキング性に優れる。

[0136] また、ペレットの集合物の D_{ave} は、好ましくは3.0mm以上、より好ましくは3.1mm～10mm、特に好ましくは3.3mm～6.0mmである。この範囲であると耐ブロッキング性にさらに優れる。

[0137] ペレットの集合物の L_{ave} は、好ましくは3.1mm～11mm、より好ましくは3.3mm～

7. 0mm、特に好ましくは3. 3mm～6. 0mmである。ここで定義より $L_{ave} \geq D_{ave}$ である。

- [0138] 上記特性を有する第一のペレットの集合物は、熔融状態にある上記重合体を押出機の先端に備えられたダイスに形成された孔から押出し、該ダイスの前面に備えられたカッター刃を回転させて、押出された上記重合体を切断して製造される。また、上記特性を有するペレットの集合物を得るためには、アンダーウォーターカット方式で切断することが好ましい。
- [0139] また、上記(1)については、ダイス孔径、ダイス孔数および押出量の3つから主に決まるダイス孔内での重合体の流速、及びカッター回転数から決まるカッターの周速を変化させることで調節できる。また、ダイスの前面に備えられたカッター刃の枚数を変化させることで調節してもよい。
- [0140] ダイス孔径は、好ましくはは3-5mm、より好ましくは3-3.5mmである。適切なダイス孔径及びダイス穴数は、目標とする押出量のときにダイス孔内での重合体の流速が0.4 m/s以下となるように設定する。また、カッター枚数及びカッター回転数は、カッター周速が5～15m/sの範囲内であり、かつ目標とする押出量のときに、ペレット30粒平均重量が上記範囲になるようにダイス孔径・ダイス穴数から計算される数値にそれぞれ設定する。
- [0141] 上記(2)について、粒度分布を狭くする(すなわち、最大の重量分率を示す画分における重量分率の値を大きくする)ためには、ダイスとして、ダイス各孔間の温度ムラをなくすことが出来るヒートチャンネルダイを用いればよい。
- [0142] さらに粒度分布を狭くするためには、ヒートチャンネルダイを用いるとともに、カッター刃の周速を5～15m/s、ダイス孔内での重合体の流速を0. 4m/s以下の範囲内で調節することが好ましい。例えば後述する実施例1において、カッター周速を15 m/sに近づければ、上記重量分率の値はより低くなりまた、実施例1においてダイス孔内流速が0. 4m/sに近づけば、上記重量分率の値はより低くなる。
- [0143] 上記(3)については、重合体の熔融粘度に応じて、カッター刃の周速を5～15m/s、ダイス孔内での重合体の流速を0. 4m/s以下の範囲内で調節することが好ましい。また、たとえば同じ重合体の流速の場合には、カッター刃の周速を大きくすれば

、L/Dの平均値を1から遠ざけることができ、カッター刃の周速を小さくすれば、1に近づけることができる。

[0144] D_{ave} については、(1)と同様にして制御でき、例えば実施例1において、カッター刃の枚数を減らせば、 D_{ave} を大きくできる。

[0145] また、上記ペレットの表面に粉体および／または液体が付着していることも好ましい。すなわち、本発明に係る第一のペレットの集合物は、上記ペレットの表面に粉体および／または液体を付着させて、上記ペレットの表面に粉体および／または液体が付着したペレットの集合物とすることも好ましい。このように粉体および／または液体が付着しているペレットまたはその集合物を、それぞれ粉体等付着ペレットまたはその集合物ともいう。

[0146] 以下、本発明に用いられる粉体および液体について説明する。

[0147] [粉体]

本発明で用いられる粉体は、平均粒径が通常 $50\ \mu\text{m}$ 以下、好ましくは $0.1\sim 50\ \mu\text{m}$ 、より好ましくは $1\sim 30\ \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $1\sim 25\ \mu\text{m}$ の範囲内にある。平均粒径は、レーザー回折法により求めることができ、例えば島津粒度分布測定器SALS-2000A型で測定可能である。

[0148] 本発明で好ましく用いられる粉体は、具体的には、無機粉末、有機粉末、脂肪酸もしくは脂肪酸誘導体である。

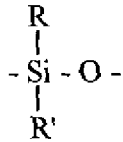
[0149] 無機粉末としては、具体的には、シリカ、シリカアルミナ、ケイ藻土、アルミナ、炭酸カルシウム、酸化チタン、酸化マグネシウム、軽石粉、軽石バルーン、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、水酸化ホウ素、塩基性炭酸マグネシウム、ドロマイト、硫酸カルシウム、チタン酸カリウム、炭酸バリウム、硫酸バリウム、亜硫酸カルシウム、タルク、クレー、マイカ、アスベスト、ケイ酸カルシウム、モンモリロナイト、ベントナイト、グラファイト、アルミニウム粉、硫化モリブデンなどを挙げることができる。これらの無機粉末は、単独で、または2種以上組み合わせて用いることができる。

[0150] 有機粉末としては、具体的には、結晶性ポリオレフィンの粉末を挙げることが出来、例えばポリエチレン、ポリプロピレンなどを好ましく挙げることができる。これらの有機粉末は、単独で、または2種以上組み合わせて用いることができる。

- [0151] 本発明で好ましく用いられる脂肪酸は、通常、炭素原子数12～30の飽和または不飽和の高級脂肪酸であり、具体的には、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、マルガリン酸、ステアリン酸、ベヘニン酸、オレイン酸、リノレン酸、 α -エレオステアリン酸、 β -エレオステアリン酸、 α -リノレン酸などが挙げられる。中でも、ステアリン酸が好ましい。
- [0152] また、本発明で好ましく用いられる脂肪酸誘導体としては、上記高級脂肪酸の塩、具体的には、上記高級脂肪酸の金属塩、例えばナトリウム塩、カリウム塩、マグネシウム塩、カルシウム塩、亜鉛塩、アルミニウム塩、鉄塩、リチウム塩などが挙げられる。中でも、ステアリン酸塩が好ましい。また、高級脂肪酸誘導体として、高級脂肪酸アマイド、エステル等も挙げられる。中でも、ステアリン酸、エルカ酸、オレイン酸、イタコン酸、モンタン酸のアマイド、エステルが好ましい。
- [0153] 上記のような脂肪酸または脂肪酸誘導体は、単独で、あるいは2種以上組み合わせ混合物として用いることができる。
- [0154] これらのうちでも、無機粉末、脂肪酸、脂肪酸誘導体が好ましく、シリカ、タルク、炭酸カルシウム、雲母、脂肪酸、脂肪酸誘導体がより好ましく、タルク、脂肪酸金属塩がさらに好ましい。
- [0155] [液体]
本発明で用いられる液体は、25°Cにおける動粘度(JIS K-2283)が通常0.5～10,000cSt、好ましくは100～5,000cSt、より好ましくは200～1,000cStである。動粘度は、JIS K2283に規定されるキャノン・フェンスケ型粘度管No.400を用いて25°Cでの動粘度を測定できる。
- [0156] このような液体としては、具体的には、ポリエーテルポリオール、脂肪族炭化水素油、7～18個の炭素原子を有し、任意的にOH、CO₂Hまたはエステルで置換されているアルカン、7～18個の炭素原子を有し、任意的にOH、CO₂Hまたはエステルで置換されているアルケン、天然油、ナフテン油、パラフィン油、芳香族油、シリコーン油から選ばれる1つ以上であることが好ましく、シリコーン油、炭素数2～20のポリエーテルポリオール(エチレングリコールなど)、鉱油、炭素数7～18のアルコールが特に好ましい。より好ましくはシリコーン油である。炭素数7～18のアルコールとしては、例えば

ラウリルアルコール、ミリスチルアルコール、セチルアルコール、ステアリルアルコール等が挙げられる。シリコン油としては、具体的には、下記式で表わされる繰り返し単位を有するポリシロキサン類などが挙げられる。

[0157] [化2]



[0158] 上記式において、RおよびR'は、それぞれ独立に、アルキル基、アリール基、またはこれらの基の水素原子がハロゲン原子等により置換された基を表わす。RとR'は、同じ基であってもよく、異なってもよい。また、R、R'の一部が水酸基、アルコキシ基で置換されていてもよい。

[0159] 上記アルキル基としては、具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基などが挙げられる。

[0160] 上記アリール基としては、具体的には、フェニル基、トリル基などが挙げられる。

[0161] 上記ハロゲン原子としては、具体的には、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素の原子が挙げられる。

[0162] 上記アルコキシ基としては、具体的には、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基などが挙げられる。

[0163] このようなポリシロキサン類のうち、特にジメチルポリシロキサンが好ましく用いられる。

[0164] 本発明では、上記のような液体を単独で、あるいは2種以上組み合わせ混合液として用いることができる。

[0165] また、ペレット表面に付着している粉体の量(以下、単に粉体の付着量ともいう)は、ペレット100重量部(粉体付着前の重量)に対して、通常0.005重量部~3重量部、好ましくは0.005重量部~2重量部であることが望ましい。

[0166] ペレット表面に付着している液体の量(以下、単に液体の付着量ともいう)は、ペレット100重量部(液体付着前の重量)に対して、通常0.005重量部~2重量部、好ましくは0.01重量部~2重量部、より好ましくは0.01重量部~1重量部、さらに好ましく

は0.01重量部から0.5重量部であることが望ましい。

[0167] 例えば、粉体は用いるが、液体は用いないと言う場合、粉体の付着量は、ペレット100重量部に対して、0.01重量部～2重量部であることが好ましい。

[0168] 例えば粉体と液体とを用いる場合、粉体の付着量は、ペレット100重量部(液体と粉体とのいずれも付着していない状態の重量)に対して、0.01重量部～0.5重量部の量であることがさらに好ましく、0.01重量部～0.3重量部の量付着していることが特に好ましい。このとき、液体の付着量は、ペレット100重量部に対して、0.01重量部～0.5重量部の量付着していることがより好ましく、0.01重量部～0.03重量部であることが特に好ましい。この範囲であれば、耐ブロッキング性に優れており、しかも、ペレットを成形体などに使用する際に物性に影響を与えることが少ないと考えられる。

[0169] 例えば、上記液体のみを用いる場合には、ペレット100重量部に対して、通常0.005重量部～2重量部、好ましくは0.01重量部～2重量部、より好ましくは0.01重量部～1重量部、さらに好ましくは0.01重量部から0.5重量部であることが望ましい。

[0170] 液体(C)の付着量は、例えばシリコンオイルの場合、予め検量線を作成した上で、蛍光X線でSiを検出することで定量化できる。粉体(B)の付着量は、タルクなどの無機化合物の場合、600℃で有機物を焼くことで付着量を定量化可能できる。またステアリン酸カルシウムの場合、予め検量線を作成した上で、蛍光X線でCaを検出することで定量化できる。

[0171] 上記ペレット表面に、上記粉体および／または上記液体を付着させる方法としては、ペレットの集合物と粉体および／または液体とを機械的に混合してペレット表面に粉体および／または液体を付着させることが好ましい。また、粉体および液体を付着させる方法としては、具体的には、

(1) 上記ペレットの集合物と上記液体とを通常の方法によって機械的に混合してペレット表面に上記液体を付着させ、次いで、そのペレット表面に上記粉体をまぶして、上記ペレット表面に、上記粉体および上記液体を付着させる方法、あるいは

(2) いわゆるアンダーウォーターカット方式のペレタイザー付き押出機を用いてペレット集合物を製造するにあたり、上記液体および従来公知の界面活性剤(たとえば石

けん)を添加し上記液体を微分散させた水中に、押出機で熔融状態となった上記重合体を押し出してペレット化することにより、そのペレット表面に上記液体を付着させ、次いで、そのペレット表面に、上記粉体をまぶして、上記ペレット表面に、上記粉体および上記液体を付着させる方法がある。

[0172] このようにして、ペレットの表面を、粉体と液体とで被覆する。

[0173] [耐ブロッキング性]

上記第一のペレットの集合物(特に上記粉体等付着ペレットの集合物である場合)は、35°Cで荷重をかけ、24時間経過後、-10°Cとして7日間経過した後にブロッキング力を測定する試験において、以下の方法によりブロッキング力を測定した場合、35N以下の値が得られる。この数値が小さいほど、ペレット同士が凝結しておらず、耐ブロッキング性に優れることを表す。

[0174] 上記ブロッキング力測定方法は以下のとおりである。縦210mm、横100mmの6号規格ポリ袋に95gのペレットを入れ、縦方向の長さが90mmとなるようにポリ袋入口を折り曲げて、セロハンテープで固定する。このようにペレットを入れたサンプル袋を3袋用意する。予め35°Cの環境温度としておいた試験室へ、コの字状の支柱(コの字支持板)を置いておく。このコの字支持板の内側に、袋を縦×横の面が床面に接するようにして置き、その上に2袋を重ねて置く(図2参照)。サンプル袋の上に厚み7mmの木板を乗せ、その上に10kgの錘を載せる。この錘によりかかる力は、25kg入りのペレットの包装体(ペレットが包装された状態で縦70cm、横48cm、高さ14cm)を、縦×横の面を床面に接するようにして11~13個垂直方向(高さ方向)に重ね置きした際に、最下段の包装体にかかる力に該当する。この状態は、計算によれば0.11kg/cm²の荷重がかかっている。錘をサンプル袋の上に乗せるとバランスが悪く倒れてしまうため、コの字支柱で錘を支えるようにする。24時間後にサンプル袋、木板、錘、コの字支持板の試験器具一式を、そのまま予め-10°Cの環境温度としておいた別の試験室に移設する。移設してから1週間経過後、サンプル袋の上の木板と錘を取り除き、ポリ袋を試験室から出す。サンプル袋の3辺をカッターで切り開け、ポリ袋を剥いてから、サンプル中央部にプッシュプルゲージ(日本電産シンポ(株)製FGC-5B型)に押しアダプタφ12を取り付けたもの)を押し当て、ペレットブロッキングを壊すのに

必要な最大の力(ブロッキング力)を測定する。3袋それぞれについてブロッキング力を測定し、これらの平均値を求める。本発明のペレットの集合物においては、上記ブロッキング試験により測定したブロッキング力は、好ましくは25N~1Nであり、さらに好ましくは15N~1Nである。

[0175] <第一の包装体>

本発明に係る包装体は、上記第一のペレットの集合物が、15~1500kgの量で、容器に充填されてなる。上記容器は、プラスチック容器、プラスチック袋、紙袋、ダンボール容器またはフレキシブルコンテナであることが好ましい。

<第2のペレットの集合物>

本発明の第2のペレットの集合物は、以下の(Z)、(4)を満たすことを特徴とする；
(Z)該ペレットが、引っ張り弾性率(ASTM D-638-03記載の方法による初期弾性率)が100MPa以下である重合体(A)を含んでなること。

[0176] (4)該ペレットの集合物について、35°Cで荷重をかけ、24時間経過後、-10°Cとして7日間経過した後にブロッキング力を測定する試験において、測定したブロッキング力が35N以下であること。

[0177] 本発明の第2のペレットの集合物に用いられる重合体(A)およびその好ましい態様は、前記第1のペレットの集合物に用いられる重合体(A)と同じである。また任意成分である熱可塑性樹脂(x)や、必要に応じて用いられる添加剤などの、種類、存在量比、好ましい態様なども全て前記第1のペレットの集合物と同じである。

[0178] 上記重合体(A)は、 α -オレフィン由来の構成単位を有する重合体であることが好ましい。

[0179] 上記 α -オレフィン由来の構成単位を有する重合体は、2種以上の α -オレフィン由来の構成単位を有する共重合体であることが好ましい。

[0180] 上記2種以上の α -オレフィン由来の構成単位を有する共重合体は、(A-i)エチレン由来の構成単位と炭素数3以上の α -オレフィン由来の構成単位とを有する共重合体であることが好ましい。

[0181] 上記2種以上の α -オレフィン由来の構成単位を有する共重合体は、(A-ii)プロピレン由来の構成単位とプロピレン以外の炭素数2以上の α -オレフィン由来の構

成単位とを有する共重合体であることが好ましい。

- [0182] 本発明の第2のペレットの集合物において、(4)該ペレットの集合物について、35℃で荷重をかけ、24時間経過後、−10℃として7日間経過した後にブロッキング力を測定する試験において、測定したブロッキング力が35N以下である。好ましくは25N~1Nであり、さらに好ましくは15N~1Nである。この数値が小さいほど、ペレット同士が凝結しておらず、耐ブロッキング性に優れることを表す。この範囲であれば特に、高温、荷重下で保管した後、これを寒冷地で保管、使用する際も、凝結が起こりにくい。
- [0183] 本発明の第2のペレットの集合物は、前記ペレットの表面に粉体および／または液体が付着していることが好ましい。第二のペレットの集合物において、粉体および液体については、第一のペレットの集合物において記載した粉体および液体の説明（たとえば、物性、種類、付着量、付着方法など）と同じであるため、記載を省略する。
- [0184] また本発明の第2のペレットの集合物としては前記(Z)、(4)を満たせば特に制限はないが、例えば前記第1のペレットの集合物において説明した、(1)または(2)のいずれかを満たすことがさらに好ましく、(1)および(2)を満たすことが特に好ましい。
- [0185] (1)該ペレットの集合物において、平均30粒重量が、0.8~2.0gであり、好ましくは、0.9~1.8g、より好ましくは0.95~1.8、さらに好ましくは1.0~1.8gである。すなわち、ペレットの集合物から、無作為に取ったペレット30粒の合計重量の平均値が上記範囲にある。
- [0186] 平均30粒重量については、前記第一のペレット集合物の上記要件(1)の項にて説明したと同じ方法で測定できる。
- [0187] (2)ふるいわけ法により得られる該ペレットの集合物の粒度分布の指標であって、最大の重量分率を示す画分における重量分率の値が、90~100%、好ましくは、97~100%の範囲にある。
- [0188] この重量分率の値については、前記第一のペレット集合物の上記要件(2)の項にて説明したと同じ方法で測定できる。
- [0189] さらに、必要であれば(1)および(2)に加え、前記第1のペレットの集合物における要件(3)を満たすことも好ましい態様の一つである。

[0190] 本発明の第2のペレットの集合物の製造方法としては、前記第1のペレットの集合物の製造方法と同様の製造方法をあげることができる。

[0191] 本発明の要件(4)は、例えばペレットの集合物において前記(1)の平均30粒重量を0.8~2.0gの範囲内でより大きい値とすること、前記(2)の粒度分布の指標を100%に近づけることでより低い値とすることができる。さらに必要であれば前記(3)の L_{ave}/D_{ave} の値を1.00に近づけることも有効である。

<第二の包装体>

本発明に係る第二の包装体は、上記第二のペレットの集合物が、15~1500kgの量で、容器に充填されてなる。上記容器は、プラスチック容器、プラスチック袋、紙袋、ダンボール容器またはフレキシブルコンテナーであることが好ましい。

[0192] <ペレットの集合物の用途>

上記第一または第二のペレットの集合物は、該ペレットの集合物の一部に荷重がかかった状態で、24時間以上、例えば72時間以上静置した後にも好適に用いられる。具体的には、成形機などに供給されて使用される。

[0193] このとき、温度は20~45℃で静置されることが通常である。このような静置を経たペレットの集合物であってもペレットどうしのブロッキングがほとんどみられない。特に、静置の後、低温で保管、使用される際にもペレットどうしのブロッキングがほとんどみられない。このように、上記ペレットの集合物は耐ブロッキング性に優れる。

[0194] なお、上記第一または第二のペレットの集合物は、具体的には包装体として上記条件で静置されてもよく、この場合も優れた耐ブロッキング性を示す。

[0195] 本発明の第一または第二のペレットの集合物を使用して、直接成形体を製造することが可能である。その際には、成形機への供給時に、ペレットの集合物を手や、硬い治具等でほぐすなどの操作が激減するため、操作性、安全性に優れる。成形体の製造にあたっては、射出成形、シート押出成形、インフレーション成形、真空成形、中空成形、プレス成形、異形押出成形、発泡成形などの各種成形法に適応し種々の成形品を得ることができる。

[0196] また、本発明の第一または第二のペレットの集合物においては、任意成分である粉体および/または液体成分の使用においても、少量で耐ブロッキング性を発現する

ことができるため、後述するような熱可塑性樹脂組成物にした際に、物性の低下を抑えられる。このような組成物からなる成形体を塗装した場合には、塗装と成形体との接着強度が高く、はがれることが少ない。

[0197] <熱可塑性樹脂組成物>

上記第一または第二のペレットの集合物と他の熱可塑性樹脂とを熔融混練すれば、熱可塑性樹脂組成物が製造できる。

[0198] 上述のように、本発明の第一のペレットの集合物は上記(1)～(3)を満たすため、より少ない粉体および／または液体の付着量で、さらに優れた耐ブロッキング性を得られる。したがって、上記粉体等付着ペレットの集合物を用いて上記熱可塑性樹脂組成物を製造し、この組成物から成形体を製造する場合、混合している粉体および／または液体による成形体の物性の低下が抑えられる。

[0199] また、本発明の第二のペレットの集合物は上記(4)を満たすため、より少ない粉体および／または液体の付着量で、さらに優れた耐ブロッキング性を得られる。したがって、上記粉体等付着ペレットの集合物を用いて上記熱可塑性樹脂組成物を製造し、この組成物から成形体を製造する場合、混合している粉体および／または液体による成形体の物性の低下が抑えられる。

[0200] 上記他の熱可塑性樹脂としては、特に制限はなく、例えばDSCで測定した融点が80°C以上、好ましくは81°C以上180°C以下、好ましくは121°C以上170°C以下であるポリオレフィンが挙げられる。ポリオレフィンとしては炭素数2～20の α -オレフィンの単独重合体または共重合体を挙げられる。ポリオレフィンの中でも好ましくはエチレン単独重合体、エチレンと炭素数3～20の α -オレフィンとの共重合体、プロピレン単独重合体、またはプロピレンとプロピレン以外の炭素数2～20の α -オレフィンとの共重合体が好ましい。DSCの測定においては、重合体(A)の融点を測定する場合と同じ方法を用いることができる。

[0201] このうちエチレンと炭素数3～20の α -オレフィンとの共重合体については、例えばエチレン由来の構成単位と炭素数3～20の α -オレフィン由来の構成単位との合計を100モル%とした場合、エチレン由来の構成単位を60～99モル%、好ましくは78～85モル%含むものを例示できる。エチレン単独重合体またはエチレンと炭素数

3~20の α -オレフィンとの共重合体の190°C、2.16Kg荷重で測定したMFRについては特に制限はないが例えば0.01~200g/10分のもを挙げることができる。また、プロピレンとプロピレン以外の炭素数2~20の α -オレフィンとの共重合体については、例えばプロピレン由来の構成単位とプロピレン以外の炭素数2~20の α -オレフィン由来の構成単位との合計を100モル%とした場合、プロピレン由来の構成単位を60~99モル%、好ましくは70~85モル%含むものを例示できる。プロピレン単独重合体またはプロピレンとプロピレン以外の炭素数2~20の α -オレフィンとの共重合体の190°C、2.16Kg荷重で測定したMFRについては特に制限はないが例えば0.01~400g/10分のもを挙げることができる。

[0202] 上記熱可塑性樹脂組成物の製造においては、上記第一または第二のペレットの集合物と他の熱可塑性樹脂とを1/99~99/1(質量比)の割合で用いることが好ましい。

[0203] また、射出成形、シート押出成形、インフレーション成形、真空成形、中空成形、プレス成形、異形押出成形、発泡成形などの各種成形法によって、上記熱可塑性樹脂組成物から種々の成形体を得ることができる。

[0204] また、上記成形体の少なくとも一部に加飾層が積層されていてもよい。この加飾層は塗装により得られたものであってもよい。上記熱可塑性樹脂組成物を用いると、成形体を塗装した場合、塗装と成形体との接着強度が高く、剥がれにくい。

[0205] [実施例1]

[ペレットの集合物の製造]

密度864kg/m³、MFR3.6g/10分(190°C、2.16kg荷重)、引っ張り弾性率(ASTM-D-638-03記載の方法により測定される初期弾性率)5MPa、Tm46°Cのエチレン・ブテン共重合体を、ヒートチャンネルダイ、およびダイス面と接触しつつ回転するカッター刃を備え、スクリー径=65mm、L/D=42、同方向回転型である二軸押出機に供給し、熔融混練した。ヒートチャンネルダイのダイス直径(孔の開いている部分)=150mm、ダイス孔径=3.5mm、ダイス孔数=30個、カッター刃の枚数=2枚であった。熔融混練したエチレン・ブテン共重合体をダイス入口樹脂温度=200°Cでヒートチャンネルダイを通じて押出し、カッター刃により切断してペレットの集合物を得

た。ダイス内での重合体の線速=0.18m/s、ダイス温度=150°Cであった。また運転時のカッター回転数=1250rpm、カッター刃の周速=10m/sであった。得られたペレットの集合物は水中にて冷却した後、乾燥した。

[0206] [ペレットの集合物の洗浄]

次いで、得られたペレットの集合物5kgを10Lバケツ(φ265mm、深さ240mm)に入れ、水で満たした。その中に家庭用洗剤((株)ライオン製「ママレモン」)を10cc入れ、10分間攪拌した。網の付いたボウルに攪拌洗浄したペレットの集合物を入れて洗浄水を切り、別の10Lバケツに洗浄水を切ったペレットの集合物を移した。上水(上水道の水)をそのバケツに入れて5分間攪拌し、網の付いたボウルにペレットの集合物を移して水を切った。上記濯ぎ操作(上水を入れて攪拌し、ボウルにペレットの集合物を移して水を切る)を合計3回繰り返し、底部に0.5mmの穴を10箇所以上開けたポリ袋に移し、1週間、乾燥エアーを袋内に導入して完全に乾燥させた。尚、乾燥期間の間は1日に1回以上ポリ袋内のペレットを流動させた。

[0207] また、このペレットの集合物について、上述した方法によって求められる、平均30粒重量、最大の重量分率を示す画分における重量分率の値、および L_{ave}/D_{ave} を表1に示す。ここで得られたペレットの形を目視した結果、楕円球の形に近かったため、楕円球とみなして L_{ave}/D_{ave} を測定した。

[0208] [粉体の付着]

洗浄したペレットの集合物10kgを三井鉱山(株)製75Lヘンシェルミキサーに入れ、次いで0.25wt%のステアリン酸カルシウム粉(日本油脂(株)製、平均粒径4μm)を入れた。回転数100rpmにて10分間両者を十分に攪拌し、ペレット表面にステアリン酸カルシウム粉を付着したペレットの集合物を得た。

[0209] その後、上述した試験方法で耐ブロッキング性を評価した。結果を表1に示す。

[0210] なお洗浄の有無でブロッキング試験の結果に差は無かった。

[0211] [実施例2]

[ペレットの集合物の洗浄]までは、実施例1と同様に行った。

[0212] 洗浄したペレットの集合物10kgを三井鉱山(株)製75Lヘンシェルミキサーに入れた。次いで0.02wt%のシリコンオイル(東レダウコーニング社製SH200)を入れ、回

転数100rpmにて5分間攪拌した。次いで0.15wt%のステアリン酸カルシウム粉(日本油脂(株)製、平均粒径4 μ m)を入れ、回転数100rpmにて10分間両者を十分に攪拌し、ペレット表面にステアリン酸カルシウム粉およびシリコンオイルを付着したペレットの集合物を得た。耐ブロッキング性の試験結果を表1に示す。

[0213] [実施例3]

ダイス穴数を20個に変更した以外は、実施例1〔ペレットの集合物の製造〕および〔ペレットの集合物の洗浄〕と同様にして、ペレットの集合物を製造し、洗浄した。また、このペレットの集合物について、上述した方法によって求められる、平均30粒重量、最大の重量分率を示す画分における重量分率の値、および L_{ave}/D_{ave} を表1に示す。ここで得られたペレットの形を目視した結果、楕円球の形に近かったため、楕円球とみなして L_{ave}/D_{ave} を測定した。

[0214] 次いで、実施例1〔粉体の付着〕と同様にして、ペレット表面にステアリン酸カルシウム粉が付着したペレットの集合物を得た。耐ブロッキング性の試験結果を表1に示す。

[0215] [比較例1]

カッターの刃数を2枚から4枚に変更した以外は、実施例1〔ペレットの集合物の製造〕および〔ペレットの集合物の洗浄〕と同様にして、ペレットの集合物を製造し、洗浄した。また、このペレットの集合物について、上述した方法によって求められる、平均30粒重量、最大の重量分率を示す画分における重量分率の値、および L_{ave}/D_{ave} を表1に示す。ここで得られたペレットの形を目視した結果、楕円球の形に近かったため、楕円球とみなして L_{ave}/D_{ave} を測定した。

[0216] 次いで、実施例1〔粉体の付着〕と同様にして、ペレット表面にステアリン酸カルシウム粉が付着したペレットの集合物を得た。耐ブロッキング性の試験結果を表1に示す。

[0217] [比較例2]

〔ペレットの集合物の洗浄〕

エチレン-オクテン共重合体からなるペレットの集合物〔Dow社製ENGAGE8842、MFR2.16kg、190°C:1.0g/10分、密度:857kg/m³〕5kgを10Lバケツ(φ265mm、深さ24

0mm)に入れ、水で満たした。その中に家庭用洗剤((株)ライオン製「ママレモン」)を10cc入れ、10分間攪拌した。網の付いたボウルに攪拌洗浄したペレットの集合物を入れて洗浄水を切り、別の10Lバケツに洗浄水を切ったペレットの集合物を移した。上水(上水道の水)をそのバケツに入れて5分間攪拌し、網の付いたボウルにペレットの集合物を移して水を切った。上記濯ぎ操作(上水を入れて攪拌し、ボウルにペレットの集合物を移して水を切る)を合計3回繰り返し、底部に0.5mmの穴を10箇所以上開けたポリ袋に移し、1週間、乾燥エアーを袋内に導入して完全に乾燥させた。尚、乾燥期間の間は1日に1回以上ポリ袋内のペレットを流動させた。

[0218] また、このペレットの集合物について、上述した方法によって求められる、平均30粒重量、最大の重量分率を示す画分における重量分率の値、および L_{ave}/D_{ave} を表1に示す。ここでペレットの形を目視した結果から、楕円球とみなして L_{ave}/D_{ave} を測定した。

[0219] [粉体の付着]

洗浄したペレットの集合物10kgを三井鉱山(株)製75Lヘンシェルミキサーに入れ、次いで0.25wt%のステアリン酸カルシウム粉(日本油脂(株)製、平均粒径 $4\mu\text{m}$)を入れた。回転数100rpmにて10分間両者を十分に攪拌し、ペレット表面にステアリン酸カルシウム粉を付着したペレットの集合物を得た。耐ブロッキング性の試験結果を表1に示す。

[0220] [比較例3]

比較例2の共重合体の代わりに、エチレン-ブテン共重合体からなるペレットの集合物[Dow社製ENR7467、MFR2.16kg、 190°C :1.0g/10分、密度: $863\text{kg}/\text{m}^3$]を用いた以外は、比較例2[ペレットの集合物の洗浄]と同様にして、ペレットの集合物の洗浄を行った。また、洗浄したペレットの集合物について、上述した方法によって求められる、平均30粒重量、最大の重量分率を示す画分における重量分率の値、および L_{ave}/D_{ave} を表1に示す。ここでペレットの形を目視した結果、円柱形のうちでも、図1の下段右側(Lが直径でDが高さ)の形に近かったため、図1の下段右側の円柱とみなして L_{ave}/D_{ave} を測定した。

[0221] 次いで、比較例2[粉体の付着]と同様にして、ペレット表面にステアリン酸カルシウ

ム粉を付着したペレットの集合物を得た。耐ブロッキング性の試験結果を表1に示す

。

[0222] [表1]

[表 1]

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1	比較例 2	比較例 3
重合体	エチレン/ブテン共重合体	エチレン/ブテン共重合体	エチレン/ブテン共重合体	エチレン/ブテン共重合体	エチレン/ブテン共重合体	エチレン/ブテン共重合体
銘柄名	—	—	—	—	EG8842	ENR7467
密度	864	864	864	864	857	863
30粒重量	1.00	1.00	1.45	0.51	1.03	1.07
最大の重量分率を示す 画分における重量分率	98.7	98.7	97.6	98.4	83.1	97.9
L_{ave} の値/ D_{ave} の値	4.5/3.3	4.5/3.3	5.0/4.1	4.3/2.7	4.6/2.9	4.0/2.1
L_{ave}/D_{ave}	1.36	1.36	1.21	1.59	1.58	1.90
粉体・液体の 付着量	スチレン/ブテン共重合体 0.25wt%	St/Et/ブテン共重合体 =0.02/0.15wt%	スチレン/ブテン共重合体 0.25wt%	スチレン/ブテン共重合体 0.25wt%	スチレン/ブテン共重合体 0.25wt%	スチレン/ブテン共重合体 0.25wt%
ブローキエガ力	11	10	3	61	70	70

請求の範囲

- [1] 以下の(Z)、(1)、(2)、(3)をいずれも満たすことを特徴とするペレットの集合物；
(Z)該ペレットが、引っ張り弾性率(ASTM D-638-03記載の方法による初期弾性率)が100MPa以下である重合体(A)を含んでなること。
(1)該ペレットの集合物の平均30粒重量が、0.80～2.00gであること。
(2)ふるいわけ法により得られる該ペレットの集合物の粒度分布の指標であって、最大の重量分率を示す画分における重量分率の値が、90～100%の範囲にあること。
(3)該ペレットの集合物において、ペレットの長さ L と直径 D とのうち、大きい方の値を L 、小さい方の値を D として、無作為に抽出した20粒のペレットについて得た、平均値 L_{ave} および D_{ave} から求められる L_{ave} / D_{ave} の値が、1.00～1.70の範囲にあること。
- [2] 前記重合体(A)が、 α -オレフィン由来の構成単位を有する重合体であることを特徴とする請求項1に記載のペレットの集合物。
- [3] 前記 α -オレフィン由来の構成単位を有する重合体が、2種以上の α -オレフィン由来の構成単位を有する共重合体であることを特徴とする請求項2に記載のペレットの集合物。
- [4] 前記2種以上の α -オレフィン由来の構成単位を有する共重合体が、(A-i)エチレン由来の構成単位と炭素数3以上の α -オレフィン由来の構成単位とを有する共重合体であることを特徴とする請求項3に記載のペレットの集合物。
- [5] 前記2種以上の α -オレフィン由来の構成単位を有する共重合体が、(A-ii)プロピレン由来の構成単位とプロピレン以外の炭素数2以上の α -オレフィン由来の構成単位とを有する共重合体であることを特徴とする請求項3に記載のペレットの集合物。
- [6] 前記ペレットの表面に粉体および／または液体が付着していることを特徴とする請求項1～5のいずれかに記載のペレットの集合物。
- [7] 前記1～6のいずれかに記載のペレットの集合物が、15～1500kgの量で容器に充填されてなることを特徴とする包装体。
- [8] 以下の(Z)、(4)を満たすことを特徴とするペレットの集合物；

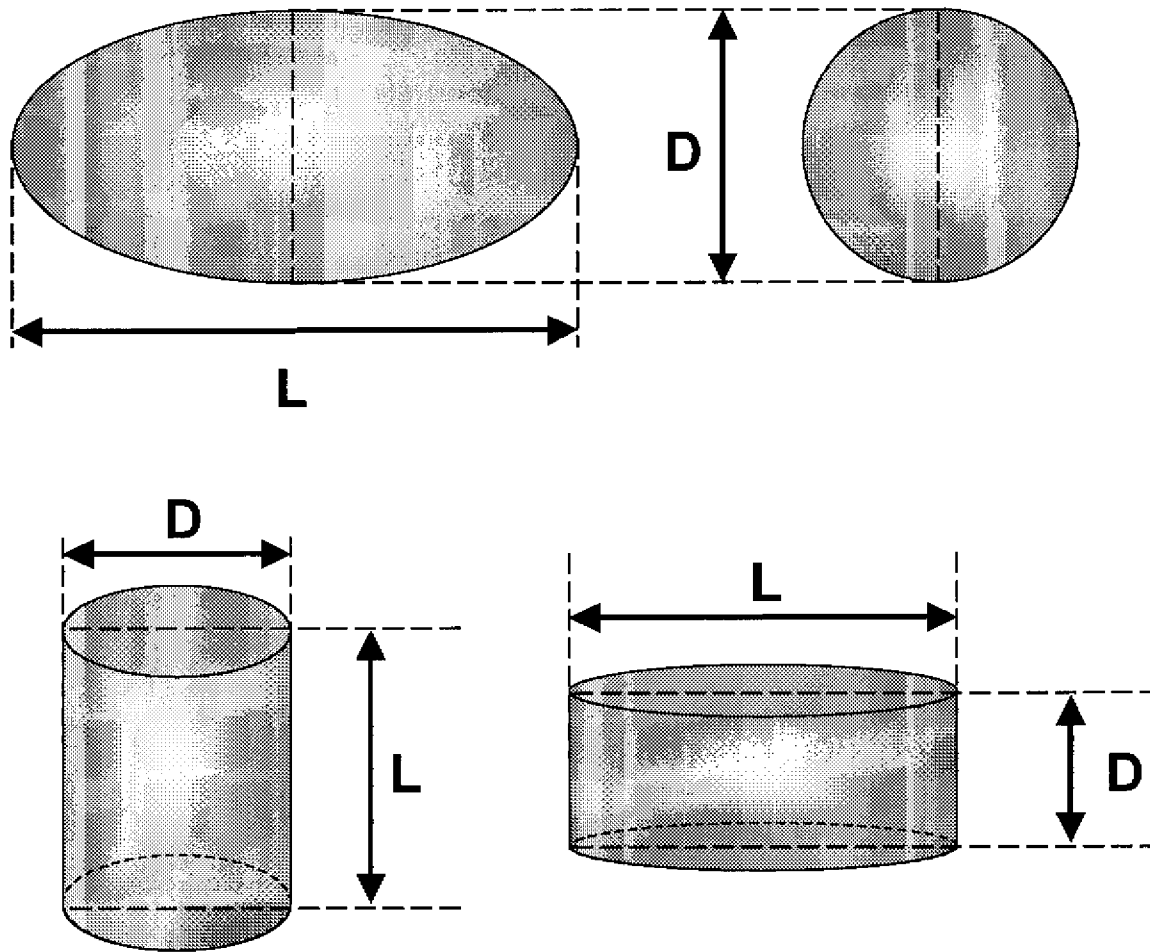
(Z)該ペレットが、引っ張り弾性率(ASTM D-638-03記載の方法による初期弾性率)が100MPa以下である重合体(A)を含んでなること。

(4)該ペレットの集合物について、35°Cで荷重をかけ、24時間経過後、-10°Cとして7日間経過した後にブロッキング力を測定する試験において、測定したブロッキング力が35N以下であること。

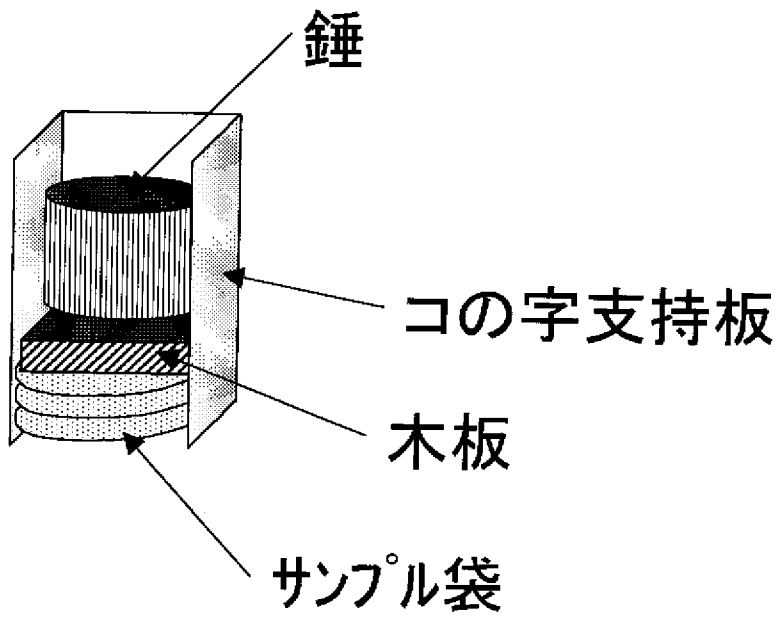
[9] 前記ペレットの表面に粉体および/または液体が付着していることを特徴とする請求項8に記載のペレットの集合物。

[10] 前記請求項8または9に記載のペレットの集合物が、15~1500kgの量で容器に充填されてなることを特徴とする包装体。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/065348

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B29B9/06(2006.01) i, B29B9/12(2006.01) i, B65D85/00(2006.01) i, C08J3/12(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)

B29B9/00-11/16, B01J2/00-2/30, B65D85/00-85/28, C08J3/00-3/28

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

<i>Jitsuyo Shinan Koho</i>	<i>1922-1996</i>	<i>Jitsuyo Shinan Toroku Koho</i>	<i>1996-2007</i>
<i>Kokai Jitsuyo Shinan Koho</i>	<i>1971-2007</i>	<i>Toroku Jitsuyo Shinan Koho</i>	<i>1994-2007</i>

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2002/085979 A1 (Mitsui Chemicals, Inc.), 31 October, 2002 (31.10.02), Page 8, line 9 to page 45, line 17 & EP 1403313 A1 Par. Nos. [0029] to [0181] & US 2003/0181553 A1 & KR 2003012886 A & CN 1436208 A	1-7
Y	JP 2000-43039 A (Nippon Zeon Co., Ltd.), 15 February, 2000 (15.02.00), Par. Nos. [0037] to [0038] (Family: none)	1-7
Y	JP 3-261512 A (Kobe Steel, Ltd.), 21 November, 1991 (21.11.91), Claim 1 (Family: none)	1-7

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search
15 October, 2007 (15.10.07)

Date of mailing of the international search report
23 October, 2007 (23.10.07)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/065348

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2001-96530 A (Kuraray Co., Ltd.), 10 April, 2001 (10.04.01), Par. Nos. [0087] to [0089], [0092] & EP 1072616 A2 Par. Nos. [0186] to [0189], [0193] & US 2004/0082690 A1 & KR 2001049861 A & CN 1287051 A	1-7
Y	JP 7-118394 A (Toray Industries, Inc.), 09 May, 1995 (09.05.95), Par. Nos. [0039] to [0041] (Family: none)	1-7
Y	JP 2001-179734 A (Kobe Steel, Ltd.), 03 July, 2001 (03.07.01), Par. Nos. [0001] to [0002] & US 2001/0005516 A1 Par. Nos. [0001] to [0004] & FR 2802850 A1 & DE 10064035 A1	1-7

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/065348

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.: 8-10
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:
See extra sheet.

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:
See extra sheet.

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 an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
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

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, 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.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/065348

Continuation of Box No.II-2 of continuation of first sheet (2)

<With respect to Box No.II>

(Conclusion)

The requirement "(4) when the pellets are kept at 35°C under a load for 24 hours, subsequently held at -10°C for 7 days, and then examined for blocking force, the blocking force is 35 N or lower," in claims 8-10 does not comply with the requirement in the meaning of Article 5 of the PCT and lacks a support in the meaning of Article 6 of the PCT.

(Reasons)

Specific production conditions for the satisfaction of the requirements (1)-(3) defined in claims 1-7 can be understood from the statements in [0139]-[0144] in the description of this international application.

However, even when the statements in [0184]-[0191] in the description of this international application are taken in account, the relationship between the requirements (1)-(3) defined in claims 1-7 and the requirement (4) defined therein is unclear.

When pellets satisfying the requirements (1)-(3) do not always satisfy the requirement (4), then the pellets should satisfy another requirement besides the requirements (1)-(3) in order to satisfy the requirement (4). However, the description of this international application includes no statement on that additional requirement. This case hence does not comply with the requirement in the meaning of Article 5 of the PCT and lacks a support in the meaning of Article 6 of the PCT.

There may be cases where pellets which satisfy the requirements (1)-(3) always satisfy the requirement (4). However, the description of this international application includes no statement at all on specific production conditions for the satisfaction of the requirement (4) in the case where the requirements (1)-(3) are not satisfied. This case also hence does not comply with the requirement in the meaning of Article 5 of the PCT and lacks a support in the meaning of Article 6 of the PCT.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/065348

Continuation of Box No. III of continuation of first sheet (2)

<With respect to Box. No. III>

(A) A matter common among claims 1-7 resides in "pellets characterized by satisfying all of the following (Z), (1), (2), and (3):

(Z) the pellets comprise a polymer (A) having a tensile modulus (initial modulus determined by the method described in ASTM D-638-03) of 100 MPa or lower;

(1) the average weight of 30 of the pellets is 0.80-2.00 g;

(2) the value of weight proportion of a fraction which is highest in weight proportion, which is an index to the particle size distribution of the pellets obtained by sieving, is in the range of 90-100%; and

(3) when the larger of the length and diameter of each of 20 pellets arbitrarily taken out of the pellets is expressed by L and the smaller of the length and diameter thereof is expressed by D, then the value of $Lave/Dave$ determined from the average values (Lave) and (Dave) is in the range of 1.00-1.70."

(B) A matter common among claims 8-10 resides in

"pellets characterized by satisfying the following (Z) and (4):

(Z) the pellets comprise a polymer (A) having a tensile modulus (initial modulus determined by the method described in ASTM D-638-03) of 100 MPa or lower; and

(4) when the pellets are kept at 35°C under a load for 24 hours, subsequently held at -10°C for 7 days, and then examined for blocking force, the blocking force is 35 N or lower."

With respect to the "first pellets," which have the feature (A) described above, and the "second pellets," which have the feature (B) described above, there is the following statement in [0184] in the description of this international application: "The second pellets of the invention are not particularly limited as long as they satisfy the (Z) and (4). However, the second pellets preferably further satisfy either of the (1) and (2) described with regard to, e.g., the first pellets, and more preferably satisfy both of the (1) and (2)." In view of this statement, neither the requirements (1)-(3) nor the requirement (4) is necessarily a common feature.

Therefore, the only matter common between (A) and (B) above is "the pellets comprise a polymer (A) having a tensile modulus (initial modulus as determined by the method described in ASTM D-638-03) of 100 MPa or lower."

An outline of the polymer (A) is given in [0025]-[0027] in the description of this international application and a propylene/ethylene copolymer is shown as an example of the polymer (A) in [0050] in the description of this international application. However, pellets of a propylene/ethylene copolymer are known as apparent from the fact that they are disclosed in the document JP 2003-26814 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 29 January, 2003 (29.01.03), claims 1 and 2.

Therefore, the matter common between (A) and (B) above (the pellets comprise a polymer (A) having a tensile modulus (initial modulus as determined by the method described in ASTM D-638-03) of 100 MPa or lower) is not regarded as a special technical feature in the meaning of the second sentence of Rule 13.2 of the Regulations under the PCT.

(continued to the next sheet)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/065348

Since neither the requirements (1)-(3) nor the requirement (4) is a common special technical feature as already stated above, any other common matter is not regarded as a special technical feature in the meaning of the second sentence of Rule 13.2 of the Regulations under the PCT.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. B29B9/06(2006.01)i, B29B9/12(2006.01)i, B65D85/00(2006.01)i, C08J3/12(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 (IPC)) Int.Cl. B29B9/00-11/16, B01J2/00-2/30, B65D85/00-85/28, C08J3/00-3/28			
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 1971-2007年 日本国実用新案登録公報 1996-2007年 日本国登録実用新案公報 1994-2007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. 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 請求の範囲の番号	
Y	WO 2002/085979 A1 (三井化学株式会社) 2002.10.31, 第8頁第9行 - 第45頁第17行 EP 1403313 A1, [0029]-[0181] & US 2003/0181553 A1 & KR 2003012886 A & CN 1436208 A	1-7	
Y	JP 2000-43039 A (日本ゼオン株式会社) 2000.02.15, 【0037】 - 【0038】 (ファミリーなし)	1-7	
Y	JP 3-261512 A (株式会社神戸製鋼所) 1991.11.21, 特許請求の範囲 第1項 (ファミリーなし)	1-7	
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。		<input type="checkbox"/> 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、一般的な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 15.10.2007		国際調査報告の発送日 23.10.2007	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 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) 山本 晋也	4 F 3341
		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 請求の範囲の番号
Y	JP 2001-96530 A (株式会社クラレ) 2001. 04. 10, 【0087】 - 【0089】、【0092】 & EP 1072616 A2, [0186] - [0189], [0193] & US 2004/0082690 A1 & KR 2001049861 A & CN 1287051 A	1 - 7
Y	JP 7-118394 A (東レ株式会社) 1995. 05. 09, 【0039】 - 【0041】 (ファミリーなし)	1 - 7
Y	JP 2001-179734 A (株式会社神戸製鋼所) 2001. 07. 03, 【0001】 - 【0002】 & US 2001/0005516 A1, [0001] - [0004] & FR 2802850 A1 & DE 10064035 A1	1 - 7

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. 請求の範囲 _____ 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. 請求の範囲8 - 10 _____ 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、
特別ページ参照のこと。

3. 請求の範囲 _____ 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ろの国際調査機関は認めた。
特別ページ参照のこと。

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の範囲について作成した。
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の範囲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の範囲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の範囲について作成した。

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。

<第 II 欄について>

(結論)

請求の範囲 8-10 に係る発明における要件「(4) 該ペレットの集合物について、35℃で荷重をかけ、24時間経過後、-10℃として7日間経過した後にブロッキング力を測定する試験において、測定したブロッキング力が35N以下であること。」について、PCT第5条の意味での開示要件を満足せず、かつ、PCT第6条の意味での裏づけを欠いている。

(理由)

請求の範囲 1-7 に係る発明で規定されているところの要件(1)-(3)を満足するための具体的な製造条件は、本国際出願の明細書の[0139]-[0144]の記載を参酌すれば、理解できる。

しかしながら、本国際出願の明細書の[0184]-[0191]の記載を参酌しても、請求の範囲 1-7 に係る発明で規定されているところの要件(1)-(3)と要件(4)との因果関係が不明である。

要件(1)-(3)を満足しても、要件(4)を満足するとは限らない場合、要件(4)を満足するためには、要件(1)-(3)に加えて、別の要件が必要となるが、当該別の要件が本国際出願の明細書には開示されていないから、当該場合はPCT第5条の意味での開示要件を満足せず、かつ、PCT第6条の意味での裏づけを欠いている。

また、要件(1)-(3)を満足すれば、必ず要件(4)を満足する場合でも、本国際出願の明細書には、要件(1)-(3)を満足しない場合において、要件(4)を満たすための具体的な製造条件が何ら開示されていないから、当該場合もPCT第5条の意味での開示要件を満足せず、かつ、PCT第6条の意味での裏づけを欠いている。

<第 III 欄について>

- (A) 請求の範囲 1-7 に係る発明は、
「以下の (Z)、(1)、(2)、(3) をいずれも満たすことを特徴とするペレットの集合物；
(Z) 該ペレットが、引っ張り弾性率 (ASTM D-638-03 記載の方法による初期弾性率) が 100MPa 以下である重合体 (A) を含んでなること。
(1) 該ペレットの集合物の平均 30 粒重量が、0.80~2.00g であること。
(2) ふるいわけ法により得られる該ペレットの集合物の粒度分布の指標であって、最大の重量分率を示す画分における重量分率の値が、90~100% の範囲にあること。
(3) 該ペレットの集合物において、ペレットの長さ と直径とのうち、大きい方の値を L、小さい方の値を D として、無作為に抽出した 20 粒のペレットについて得た、平均値 L_{ave} および D_{ave} から求められる L_{ave}/D_{ave} の値が、1.00~1.70 の範囲にあること。」、
という点で共通している。
- (B) 請求の範囲 8-10 に係る発明は、
「以下の (Z)、(4) を満たすことを特徴とするペレットの集合物；
(Z) 該ペレットが、引っ張り弾性率 (ASTM D-638-03 記載の方法による初期弾性率) が 100MPa 以下である重合体 (A) を含んでなること。
(4) 該ペレットの集合物について、35℃ で荷重をかけ、24 時間経過後、-10℃ として 7 日間経過した後にブロッキング力を測定する試験において、測定したブロッキング力が 35N 以下であること。」、
という点で共通している。

ここで、上記 (A) の特徴を有する「第 1 のペレットの集合物」と上記 (B) の特徴を有する「第 2 のペレットの集合物」について、本国際出願の明細書の [0184] の「本発明の第 2 のペレットの集合物としては前記 (Z)、(4) を満たせば特に制限はないが、例えば前記第 1 のペレットの集合物において説明した、(1) または (2) のいずれかを満たすことがさらに好ましく、(1) および (2) を満たすことが特に好ましい。」との記載を参酌すれば、上記要件 (1)-(3) と要件 (4) とは、必ずしも共通する特徴ではない。

したがって、上記 (A) 及び (B) は、「ペレットが、引っ張り弾性率 (ASTM D-638-03 記載の方法による初期弾性率) が 100MPa 以下である重合体 (A) を含んでなる」点でのみ共通している。

ここで、本国際出願の明細書の [0025] - [0027] には、上記重合体 (A) の概要が開示され、また、本国際出願の明細書の [0050] には、プロピレン-エチレン共重合体が重合体 (A) の一例として示されているところ、プロピレン-エチレン共重合体からなるペレットは、文献 JP 2003-26814 A (住友化学工業株式会社)、2003.01.29、請求項 1 及び 2 に開示されている通り公知のものである。

したがって、上記の (A) 及び (B) の共通する点 (ペレットが、引っ張り弾性率 (ASTM D-638-03 記載の方法による初期弾性率) が 100MPa 以下である重合体 (A) を含んでなる点) は、PCT 規則 13.2 の第 2 文の意味における、特別な技術的特徴ではない。

そして、要件 (1)-(3) と要件 (4) とは、共通する特別な技術的特徴ではないことは既に述べたとおりであるから、PCT 規則 13.2 の第 2 文の意味における特別の技術的特徴と考えられる他の共通事項は存在しない。