

(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
2017年3月30日(30.03.2017)



(10) 国際公開番号

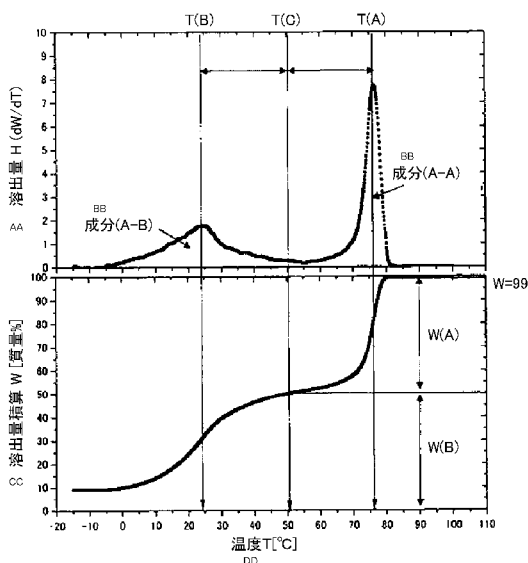
WO 2017/051778 A1

- (51) 国際特許分類:
C08J 5/04 (2006.01) C08L 23/20 (2006.01)
C08K 5/20 (2006.01) C08L 23/26 (2006.01)
C08K 7/14 (2006.01) C08L 53/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/077452
- (22) 国際出願日: 2016年9月16日(16.09.2016)
- (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 2015-186848 2015年9月24日(24.09.2015) JP
- (71) 出願人: マツダ株式会社(MAZDA MOTOR CORPORATION) [JP/JP]; 〒7308670 広島県安芸郡府中町新地3番1号 Hiroshima (JP).
- (72) 発明者: 岡田 泰史(OKADA, Yasushi); 〒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). 一原 洋平(ICHIHARA, Yohei); 〒7308670 広島県安芸郡府中町新地3番1号 マツダ株式会社内 Hiroshima (JP). 朝倉 悠典(ASAKURA, Yusuke); 〒7308670 広島県安芸郡府中町新地3番1号 マツダ株式会社内 Hiroshima (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人前田特許事務所(MAEDA & PARTNERS); 〒5300004 大阪府大阪市北区堂島浜1丁目2番1号 新ダイビル23階 Osaka (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, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ユーロッパ (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).

[続葉有]

(54) Title: FIBER-REINFORCED POLYPROPYLENE RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称: 繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物



(57) Abstract: A fiber-reinforced polypropylene resin composition, the fiber-reinforced polypropylene resin composition characterized in containing 53-74.5 mass% of a component (A) that satisfies specific conditions, 10-20 mass% of a component (B), 15-25 mass% of a component (C), and 0.5-2 mass% of a component (D) (where the total of component (A), component (B), component (C), and component (D) is 100 mass%) and also contains 0.05-0.15 parts by mass of a component (E) that satisfies specific conditions per 100 total parts by mass of component (A), component (B), component (C), and component (D).

(57) 要約: 繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物であって、特定の条件を満足する成分(A) 53質量%~74.5質量%と、成分(B) 10質量%~20質量%と、成分(C) 15~25質量%と、成分(D) 0.5~2質量% (但し、成分(A)と成分(B)と成分(C)と成分(D)との合計量は100質量%である)とを含有し、更に、成分(A)と成分(B)と成分(C)と成分(D)との合計量100質量部に対して特定の条件を満足する成分(E) 0.05~0.15質量部を含有することを特徴とする繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物。

AA Amount eluted H(dW/dT)
BB Component
CC Integrated amount eluted W [mass%]
DD Temperature [°C]

WO 2017/051778 A1

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称： 繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物

技術分野

[0001] 本開示は、繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物に関し、さらに詳しくは、シボ面において低光沢で耐熱性および耐傷付性にすぐれた繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物に関する。

背景技術

[0002] ポリプロピレン系樹脂組成物は、物性、成形性、リサイクル性及び経済性などに優れた樹脂材料としてその使用分野が広がっている。中でもインストルメントパネル、ピラーなどの自動車部品、テレビ、掃除機などの電気機器部品の分野などでは、ポリプロピレン系樹脂や、ポリプロピレン系樹脂にガラス繊維やタルクなどのフィラーやエラストマー（ゴム）を複合強化した複合ポリプロピレン系樹脂などのポリプロピレン系樹脂組成物が、成形性、物性バランス、リサイクル性や経済性などに優れるため、その成形体を含めて、様々な分野で広く用いられている。

[0003] これらの分野においては、ポリプロピレン系樹脂組成物の成形体の高機能化、大型化、用途の多様・複雑化など、とりわけ自動車内装部品分野などにおける高品質化が益々進んでいる。そして、このような高品質化に対応するなどのため、ポリプロピレン系樹脂組成物やその成形体の成形性、物性バランスなどのほか、前記組成物や成形体の質感の優劣に大きな影響を及ぼす低光沢、耐熱性、耐傷付性の向上が求められている。

[0004] ポリプロピレン系樹脂組成物及びその成形体に、ガラス繊維やタルクなどのフィラーを含有させて、該樹脂組成物及びその成形体の剛性（強度）を向上させることは広く行われている。例えば、特許文献1には、ガラス繊維で強化されたポリアミド系樹脂に匹敵する機械的強度を有する高強度・高剛性のポリオレフィン系樹脂組成物が開示されている。すなわち、特許文献1では、そのようなポリオレフィン系樹脂組成物として、（A）2段以上の逐次

重合により得られるポリプロピレンを主体とした混合物であり、該混合物中のプロピレンーエチレン系共重合体ゴムの平均分散粒径が $2\mu\text{m}$ 以下であるポリプロピレン系樹脂混合物と、(B)ポリオレフィン系樹脂と、(C)平均の直径が $0.01\sim1000\mu\text{m}$ であり且つ平均のアスペクト比(長さ/直径)が $5\sim2500$ のフィラーとからなる高強度・高剛性ポリオレフィン系熱可塑性樹脂組成物が開示されている。該組成物の成形品は、高い引張強度・曲げ強度・アイゾット衝撃強度・落錘衝撃強度や曲げ弾性率を有していることが記載されている。しかしながら、該成形品の低光沢、耐熱性、耐傷付性については何ら検討されておらず、その性能は不十分であると予想される。

[0005] また、特許文献2には、指触感の優れた表面特性(べたつきやぬるつきが無く、汚れにくく、傷が付きにくい)を有し、有害ガスを発生する要因となる元素を含まず、加工性が良好な熱可塑性エラストマー組成物が開示されている。すなわち、特許文献2には、そのような熱可塑性エラストマー組成物として、水添ジエン系共重合体80～50重量部にプロピレンーエチレン共重合体20～50重量部を配合したプロピレンーエチレン共重合体・水添ジエン系共重合体混合組成物100重量部に対して、高級脂肪酸アミドを $0.2\sim5.0$ 重量部を配合すると共に、この混合組成物100重量部に対して界面活性剤 $0.05\sim5.0$ 重量部を配合した組成物が開示されている。該組成物は、優れた指触感(べたつき感が無い)を有していることが記載されている。しかしながら、例えば自動車内装部品用途の様なより高い剛性・強度を必要とする分野には、当該特性を示すことが期待できない為適用が困難で、またその耐熱性には課題があると予想される。

[0006] 一方、物性と触感の両方の向上を図る組成物も提案されている。例えば、特許文献3には、良好な剛性、高い引っ掻き抵抗性、及び極めて心地よい柔らかい触感を有する成形品を製造するのに好適であるポリマー成形組成物が開示されている。すなわち、特許文献3では、そのようなポリマー成形組成物として、少なくとも、5～90重量%の軟質材料と、充填剤として5～6

0重量%のガラス材料及び3～70重量%の熱可塑性ポリマーとの組み合わせを含むポリマー成形組成物が開示されている。該組成物及び成形品は、良好な剛性、低い表面硬度、高い引っ掻き抵抗性、及び心地よい柔らかな触感を有することが記載されている。しかしながら、その光沢および耐熱性や曲げ弾性率については何ら検討されておらず、その性能は不十分であると予想される。

[0007] また、特許文献4および5には、低収縮で、シボ転写性、耐傷付性に優れた繊維強化プロピレン系樹脂組成物が開示されている。メタロセン触媒によるプロピレン系樹脂組成物とエラストマーおよび充填材としてガラス材料およびカーボンファイバーを組合わせた繊維強化プロピレン系樹脂組成物である。該組成物は高転写性、低収縮、および高い荷重たわみ性、傷つき性を有する事が記載されている。しかしながら、その耐熱後の光沢変化については何ら検討されておらず、不十分であると予想される。

[0008] 以上の様に、ポリプロピレン系樹脂組成物及びその成形体において、高剛性を図るには、フィラーを含有させることが必要な場合が多いため、その光沢、傷つき性が損なわれ易くなる。一方、衝撃性の向上を図るには、エラストマーや軟質系ポリオレフィンなどを含有させることが必要な場合が多いため、剛性や耐熱性が損なわれ易くなる。ゆえに、これらの特性を同時に向上させることは困難であった。

先行技術文献

特許文献

- [0009] 特許文献1：特開2002-3691号公報
特許文献2：特開平7-292212号公報
特許文献3：特表2009-506177号公報
特許文献4：特開2013-67789号公報
特許文献5：特開2014-132073号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0010] 本開示の目的は、上記従来技術の問題点等に鑑み、低光沢でかつ耐熱光沢変化が少なく、耐傷付性にすぐれ、耐熱特性にすぐれた高剛性・高耐熱性の繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0011] 本開示者らは、上記課題を解決するため、鋭意研究を重ねた結果、特定のプロピレンーエチレンブロック共重合体に、ガラス繊維、特定の熱可塑性エラストマー、エルカ酸アミド及び特定の変性ポリオレフィン、特定の割合で含有してなる繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物が、上記の課題を解決できることを見出し、これらの知見に基き本開示を完成するに至った。

[0012] すなわち、本開示の第1の開示技術によれば、繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物であって、

下記の条件を満足する

成分(A) 53質量%～74.5質量%と、

成分(B) 10質量%～20質量%と、

成分(C) 15～25質量%と、

成分(D) 0.5～2質量%

(但し、成分(A)と成分(B)と成分(C)と成分(D)との合計量は100質量%である)と

を含有し、

更に、成分(A)と成分(B)と成分(C)と成分(D)との合計量100質量部に対して

下記の条件を満足する成分(E) 0.05～0.15質量部

を含有することを特徴とする繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物が提供される。

[0013] 成分(A)：次の(A-i)～(A-iv)に規定する要件を有する。

[0014] (A-i)：成分(A)はメタロセン系触媒を用いて、第1工程でプロピレン単独またはエチレン含有量7質量%以下のプロピレンーエチレンラン

ダム共重合体成分（A-A）を30質量%～95質量%、第2工程で成分（A-A）よりも3質量%～20質量%多くのエチレンを含有するプロピレン-エチレンランダム共重合体成分（A-B）を70質量%～5質量%逐次重合することで得られたプロピレン-エチレンブロック共重合体である。

[0015] (A-i i) : DSC法により測定された融解ピーク温度（ T_m ）が110℃～150℃である。

[0016] (A-i i i) : 固体粘弾性測定により得られる温度-損失正接曲線において、 $\tan \delta$ 曲線が0℃以下に単一のピークを有する。

[0017] (A-i v) : メルトフローレート（MFR : 230℃、2.16 kg 荷重）が0.5 g / 10分～200 g / 10分である。

[0018] 成分（B） : 次の（B-i）に規定する要件を有する。

[0019] (B-i) : 成分（B）が、ガラス繊維である。

[0020] 成分（C） : 次の（C-i）及び（C-i i）に規定する要件を有する。

[0021] (C-i) : 密度が0.85 g / cm^3 ～0.87 g / cm^3 のエチレン-オクテン共重合体である。

[0022] (C-i i) : メルトフローレート（230℃、2.16 kg 荷重）が0.5 g / 10分～1.1 g / 10分である。

[0023] 成分（D） : 次の（D-i）に規定する要件を有する。

[0024] (D-i) : 成分（D）が、酸変性ポリオレフィンおよび／またはヒドロキシ変性ポリオレフィンである。

[0025] 成分（E） : 次の（E-i）に規定する要件を有する。

[0026] (E-i) : 成分（E）が、エルカ酸アミドである。

[0027] また、本開示の第2の開示技術によれば、第1の開示技術において、成分（B）の長さが、0.2 mm以上10 mm以下であることを特徴とする繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物が提供される。

発明の効果

[0028] 本開示の繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物は、低光沢で耐傷付性に優れ、耐熱特性に優れさらに高剛性である。

[0029] そのため、インストルメントパネル、グローブボックス、コンソールボックス、ドアトリム、肘掛け、グリップノブ、各種トリム類、天井部品、ハウジング類などの自動車用内装用部品をはじめ、テレビ・掃除機などの電気電子機器部品、各種工業部品、便座などの住宅設備機器部品、建材部品などの用途に、好適に用いることができる。

図面の簡単な説明

[0030] [図1]図1は、温度昇温溶離分別（T R E F）による溶出量及び溶出量積算を示す図である。

発明を実施するための形態

[0031] 本実施の形態は、特定のプロピレンーエチレンブロック共重合体（A）、ガラス繊維（B）、特定の熱可塑性エラストマー（C）、特定の変性ポリオレフィン（D）及びエルカ酸アミド（E）を特定の割合で含有する繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物に関する。

[0032] 以下、本実施の形態において用いられる各成分、得られる繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物について、詳細に説明する。

[0033] 1. 成分（A）

本実施の形態に用いられる成分（A）は、要件（A－i）～（A－iv）を満足する。

[0034] （A－i）：成分（A）はメタロセン系触媒を用いて、第1工程でプロピレン単独またはエチレン含有量7質量%以下のプロピレンーエチレンランダム共重合体成分（A－A）を30質量%～95質量%、第2工程で成分（A－A）よりも3質量%～20質量%多くのエチレンを含有するプロピレンーエチレンランダム共重合体成分（A－B）を70質量%～5質量%逐次重合することで得られたプロピレンーエチレンブロック共重合体である。

[0035] （A－ii）：DSC法により測定された融解ピーク温度（ T_m ）が110℃～150℃である。

[0036] （A－iii）：固体粘弾性測定により得られる温度－損失正接曲線において、 $\tan \delta$ 曲線が0℃以下に単一のピークを有する。

[0037] (A-i v) : メルトフローレート (MFR : 230℃、2.16 kg 荷重) が 0.5 g / 10 分 ~ 200 g / 10 分である。

[0038] (1) 各要件

要件 (A-i)

本実施の形態の成分 (A) は、プロピレン-エチレンブロック共重合体である。プロピレン-エチレンブロック共重合体は、低結晶性成分を含んでいるため、本実施の形態の繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物 (以下、単に「樹脂組成物」ともいう。) において、低光沢性、耐傷付性などの機能を付与するという特徴を有する。

[0039] 本実施の形態に用いられるプロピレン-エチレンブロック共重合体 (A) は、要件 (A-i) を満足する。即ち、メタロセン系触媒を用いて、第 1 工程で、プロピレン単独またはエチレン含有量 7 質量%以下、好ましくは 5 質量%以下、より好ましくは 3 質量%以下のプロピレン-エチレンランダム共重合体成分 (A-A) (以下、成分 (A-A) ともいう。) を 30~95 質量%、第 2 工程で、成分 (A-A) よりも 3~20 質量%多くのエチレンを、好ましくは 6~18 質量%多くのエチレンを、より好ましくは 8~16 質量%多くのエチレンを、含有するプロピレン-エチレンランダム共重合体成分 (A-B) (以下、成分 (A-B) ともいう。) を 70 質量%~5 質量% 逐次重合して製造する。このような特性 (A-i) を満足することにより、本実施の形態の樹脂組成物を成形体とした時に成形体表面を低光沢にすることが可能であり、当該成形体を工業規模で生産可能であるという特徴を有する。例えば、第 2 工程成分 (A-B) と、第 1 工程成分 (A-A) のエチレン含有量の差異が 3 質量%未満であると、得られる樹脂組成物を成形体とした時の表面の光沢が高くなる (低光沢性が悪化する) 場合がある。一方、20 質量%を超えると、成分 (A-A) と成分 (A-B) との相溶性が低下し、得られる樹脂組成物を成形体とした時の表面の光沢が高くなる (低光沢性が悪化する) 場合があるばかりでなく、反応器へ反応生成物が付着する等の製造上の問題が発生する場合があり、工業規模での製造が困難となる恐れが

ある。

[0040] すなわち、プロピレンーエチレンブロック共重合体（A）において、第1工程と第2工程でエチレン含有量が所定の範囲で異なる成分を逐次重合することにより、樹脂組成物及びその成形体において、より良好な低光沢を発現することが可能となる。また、反応器への反応生成物の付着などの製造上の問題を防止するなどのために、成分（A－A）を重合した後で、成分（A－B）を重合する方法を用いることが重要である。

[0041] （i）メタロセン系触媒

本実施の形態に用いられるプロピレンーエチレンブロック共重合体（A）の製造は、メタロセン系触媒を用いることを必須とする。

[0042] メタロセン系触媒としては、本実施の形態に用いられるプロピレンーエチレンブロック共重合体（A）を製造できる限りは、特に限定はされるものではない。なお、本実施の形態の要件を満たすために、例えば、下記に示す様な成分（a）、（b）、および必要に応じて使用する成分（c）からなるメタロセン系触媒を用いることが好ましい。

[0043] 成分（a）：下記の一般式（1）で表される遷移金属化合物から選ばれる少なくとも1種のメタロセン遷移金属化合物。

[0044] 成分（b）：下記（b－1）～（b－4）から選ばれる少なくとも1種の固体成分。

[0045] （b－1）：有機アルミオキシ化合物が担持された微粒子状担体。

[0046] （b－2）：成分（a）と反応して成分（a）をカチオンに変換することが可能なイオン性化合物またはルイス酸が担持された微粒子状担体。

[0047] （b－3）：固体酸微粒子。

[0048] （b－4）：イオン交換性層状珪酸塩。

[0049] 成分（c）：有機アルミニウム化合物。

[0050] 成分（a）としては、下記一般式（1）で表される遷移金属化合物から選ばれる少なくとも1種のメタロセン遷移金属化合物を使用することができる。



ここで、Qは2つの共役五員環配位子を架橋する2価の結合性基を表す。Qとしては、例えば、2価の炭化水素基、シリレン基ないしオリゴシリレン基、炭化水素基を置換基として有するシリレン基あるいはオリゴシリレン基、または炭化水素基を置換基として有するゲルミレン基などが例示される。この中でも好ましいものは2価の炭化水素基と炭化水素基を置換基として有するシリレン基である。

[0052] XおよびYは、水素原子、ハロゲン原子、炭化水素基、アルコキシ基、アミノ基、窒素含有炭化水素基、リン含有炭化水素基またはケイ素含有炭化水素基を示し、このうちで好ましいものとしては、水素、塩素、メチル、イソブチル、フェニル、ジメチルアミド、ジエチルアミド基などを例示することができる。XおよびYは、それぞれ独立に、すなわち同一でも異なってもよい。

[0053] R_{1a} と R_{2b} は、水素、炭化水素基、ハロゲン化炭化水素基、ケイ素含有炭化水素基、窒素含有炭化水素基、酸素含有炭化水素基、ホウ素含有炭化水素基、または、リン含有炭化水素基を表す。炭化水素基としては、具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基、オクチル基、フェニル基、ナフチル基、ブテニル基、ブタジエニル基などが例示される。また、ハロゲン化炭化水素基、ケイ素含有炭化水素基、窒素含有炭化水素基、酸素含有炭化水素基、ホウ素含有炭化水素基、または、リン含有炭化水素基としては、メトキシ基、エトキシ基、フェノキシ基、トリメチルシリル基、ジエチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ピラゾリル基、インドリル基、ジメチルフォスフィノ基、ジフェニルフォスフィノ基、ジフェニルホウ素基、ジメトキシホウ素基などを典型的な例として例示できる。これらの中で、炭素数1～20の炭化水素基であることが好ましく、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基であることが特に好ましい。ところで、隣接した R_{1a} と R_{2b} は、結合して環を形成してもよく、この環上に炭化水素基、ハロゲン化炭化水素基、ケイ素含有炭化水素基、窒素含有炭化水素基、酸素含有炭化

水素基、ホウ素含有炭化水素基、または、リン含有炭化水素基からなる置換基を有していてもよい。

[0054] M_e は、チタン、ジルコニウム、ハフニウムの中から選ばれる金属原子であり、好ましくはジルコニウム、ハフニウムである。

[0055] なお、 a および b は、置換基の数である。

[0056] 以上において記載した成分（ a ）の中で、本実施の形態に用いられるプロピレンーエチレンブロック共重合体（ A ）の製造に好ましいものは、炭化水素置換基を有するシリレン基、ゲルミレン基あるいはアルキレン基で架橋された置換シクロペンタジエニル基、置換インデニル基、置換フルオレニル基、置換アズレニル基を有する配位子からなる遷移金属化合物であり、特に好ましくは、炭化水素置換基を有するシリレン基、あるいはゲルミレン基で架橋された2，4－位置換インデニル基、2，4－位置換アズレニル基を有する配位子からなる遷移金属化合物である。

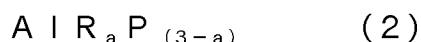
[0057] 非限定的な具体例としては、ジメチルシリレンビス（2－メチル－4－フェニルインデニル）ジルコニウムジクロリド、ジフェニルシリレンビス（2－メチル－4－フェニルインデニル）ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレンビス（2－メチルベンゾインデニル）ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレンビス {2－イソプロピル－4－（3，5－ジイソプロピルフェニル）インデニル} ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレンビス（2－プロピル－4－フェナントリルインデニル）ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレンビス（2－メチル－4－フェニルアズレニル）ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレンビス {2－メチル－4－（4－クロロフェニル）アズレニル} ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレンビス（2－エチル－4－フェニルアズレニル）ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレンビス（2－イソプロピル－4－フェニルアズレニル）ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレンビス {2－エチル－4－（2－フルオロビフェニル）アズレニル} ジルコニウムジクロリド、ジメチルシリレンビス {2－エチル－4－（4－ t －ブチル－3－クロロフェニル）アズレニル} ジルコニウム

ジクロリドなどがあげられる。これらの具体例の化合物のシリレン基をゲルミレン基に、ジルコニウムをハフニウムに置き換えた化合物も好適な化合物として例示される。なお、触媒成分は本実施の形態の重要要素ではないので、煩雑な列記を避け、代表的な例示に限定しているが、これにより本開示の有効範囲が制限されることが無いのは自明のことである。

[0058] 成分（b）としては、前記した成分（b-1）～成分（b-4）から選ばれる少なくとも1種の固体成分を使用する。これらの各成分は、公知のものであり、公知技術の中から適宜選択して使用することができる。その具体的な例示や製造方法については、特開2002-284808号公報、特開2002-53609号公報、特開2002-69116号公報、特開2003-105015号公報などに詳細な例示がある。

[0059] 前記成分（b）の中で、特に好ましいものは、成分（b-4）のイオン交換性層状珪酸塩であり、さらに好ましいものは、酸処理、アルカリ処理、塩処理、有機物処理などの化学処理が施されたイオン交換性層状珪酸塩である。

[0060] 必要に応じて成分（c）として用いられる有機アルミニウム化合物の例は、下記一般式（2）



（式中、Rは、炭素数1～20の炭化水素基、Pは、水素、ハロゲンまたはアルコキシ基、aは、 $0 < a \leq 3$ の数を表わす。）

で示されるトリメチルアルミニウム、トリエチルアルミニウム、トリプロピルアルミニウム、トリイソブチルアルミニウムなどのトリアルキルアルミニウムまたはジエチルアルミニウムモノクロライド、ジエチルアルミニウムモノメトキシドなどのハロゲンもしくはアルコキシ含有アルキルアルミニウムである。またこの他に、メチルアルミノキサンなどのアルミノキサン類なども使用できる。これらのうち特にトリアルキルアルミニウムが好ましい。

[0061] 触媒の形成方法としては、前記の成分（a）と成分（b）及び必要に応じて成分（c）を接触させて触媒とする。なお、その接触方法は触媒を形成す

ることができる方法であれば特に限定されず、公知の方法を用いることができる。

[0062] また、成分（a）と（b）及び（c）の使用量は、任意である。例えば、成分（b）に対する成分（a）の使用量は、成分（b）1 gに対して、好ましくは0.1～1,000 μmol 、特に好ましくは0.5～500 μmol の範囲である。成分（b）に対する成分（c）の使用量は、成分（b）1 gに対し、好ましくは遷移金属の量が0.001～100 μmol 、特に好ましくは0.005～50 μmol の範囲である。

[0063] さらに、本実施の形態にて使用される触媒は、予めオレフィンを接触させて少量重合されることからなる予備重合処理に付すことが好ましい。

[0064] メタロセン触媒を用いて重合されたプロピレンーエチレンブロック共重合体（A）は、市販品を使用することもでき、例えば、日本ポリプロ社製ウェルネクスシリーズ等を好適に使用できる。

[0065] （i i）逐次重合

本実施の形態に用いられるプロピレンーエチレンブロック共重合体（A）の製造に際しては、成分（A-A）と成分（A-B）を逐次重合することが必要である。

[0066] 逐次重合を行う際には、バッチ法と連続法のいずれを用いることも可能であるが、一般的には生産性の観点から連続法を用いることが望ましい。

[0067] バッチ法の場合には、時間と共に重合条件を変化させることにより、単一の反応器を用いても成分（A-A）と成分（A-B）を重合することが可能である。本実施の形態の効果を阻害しない限り、複数の反応器を並列に接続して用いてもよい。

[0068] 連続法の場合には、成分（A-A）と成分（A-B）を個別に重合する必要から2個以上の反応器を直列に接続した製造設備を用いる必要がある。なお、本実施の形態の効果を阻害しない限り、成分（A-A）と成分（A-B）の夫々について複数の反応器を直列及び／または並列に接続して用いてもよい。

[0069] (i i i) 重合プロセス

プロピレンーエチレンブロック共重合体 (A) の重合形式としては、スラリー法、バルク法、気相法など任意の重合方法が可能である。また、これらの重合形式を組み合わせて行うことも可能である。バルク法と気相法の間隔的な条件として、超臨界条件を用いることも可能であるが、実質的には気相法と同等であるため、特に区別することなく気相法に含める。

[0070] 成分 (A-A) の製造に対しては、どのプロセスを用いても特に問題はない。なお、比較的結晶性の低い成分 (A-A) を製造する場合には、反応器への生成物の付着などの問題を避けるために気相法を用いることが好ましい。

[0071] 成分 (A-B) は、炭化水素などの有機溶媒や液化プロピレンに溶けやすいため、成分 (A-B) の製造に際しては気相法を用いることが好ましい。

[0072] 従って、連続法を用いて、先ず成分 (A-A) をバルク法もしくは気相法にて重合し、引き続き成分 (A-B) を気相法にて重合することが最も好ましい。

[0073] (i v) その他の重合条件

重合温度は、通常用いられている温度範囲であれば、特に問題なく用いることができる。具体的には、0℃～200℃、より好ましくは40℃～100℃の範囲を用いることができる。

[0074] 重合圧力は、選択するプロセスによって最適な圧力には差異が生じるが、通常用いられている圧力範囲であれば、特に問題なく用いることができる。具体的には、大気圧に対する相対圧力で0MPaより大きく200MPaまで、より好ましくは0.1MPa～50MPaの範囲を用いることができる。この際窒素などの不活性ガスを共存させてもよい。

[0075] 第1工程で成分 (A-A)、第2工程で成分 (A-B) の逐次重合を行う場合、第2工程にて系中に重合抑制剤を添加することが望ましい。第2工程のエチレンープロピレンランダム共重合を行う反応器に重合抑制剤を添加すると、得られるパウダーの粒子性状（流動性など）やゲルなどの製品品質を

改良することができる。この手法については、各種技術検討がなされており、一例として、特公昭63-54296号、特開平7-25960号、特開2003-2939号などの公報に記載の方法を例示することができる。本実施の形態にも当該手法を適用することが望ましい。

[0076] 本実施の形態に用いられるプロピレンーエチレンブロック共重合体（A）は、低結晶性成分を含み、特に成分（A-B）により成形過程における冷却固化の進行が遅延される。このため、プロピレンーエチレンブロック共重合体（A）は、樹脂組成物及びその成形体において、低光沢の機能を付与する特徴を有する。

[0077] なお、本明細書でのプロピレンーエチレンブロック共重合体（A）とは、（A-i）に規定するように、プロピレン単独またはプロピレンーエチレンランダム共重合体成分と、プロピレンーエチレンランダム共重合体成分を逐次重合することで得られる、通称でのブロック共重合体である。そして、プロピレンーエチレンブロック共重合体（A）は、必ずしも成分（A-A）と成分（A-B）とが完全にブロック状に結合されたものでなくてもよい。

[0078] また、プロピレンーエチレンブロック共重合体（A）は、二種以上を併用することもできる。

[0079] なお、成分（A-A）及び成分（A-B）のエチレン含有量は、以下の方法により決定される。

（i）温度昇温溶離分別（TREF）とT（C）の算出：

プロピレンーエチレンブロック共重合体（A）の結晶性分布を、温度昇温溶離分別（以下、単にTREFともいう。）により評価する手法は、当該業者によく知られるものであり、例えば、次の文献などで詳細な測定法が示されている。

[0080] G. G l o c k n e r, J. A p p l. P o l y m. S c i. : A p p l. P o l y m. S y m p. ; 4 5, 1-24 (1990)

L. W i l d, A d v. P o l y m. S c i. ; 98, 1-47 (1990)

J. B. P. Soares, A. E. Hamielec, Polymer ; 36, 8, 1639-1654 (1995)

本実施の形態の成分(A-A)及び成分(A-B)などの特定は、TREFによる。

[0081] 具体的な方法を、図1のTREFによる溶出量及び溶出量積算を示す図を用いて説明する。TREF溶出曲線(温度に対する溶出量のプロット)において、成分(A-A)と(A-B)は結晶性の違いにより各々T(A)とT(B)にその溶出ピークを示す。そのT(A)とT(B)の差は十分大きいので、中間の温度T(C) ($= \{T(A) + T(B)\} / 2$) において、ほぼ分離が可能である。

[0082] また、TREF測定温度の下限は、本測定に用いた装置では -15°C である。なお、成分(A-B)の結晶性が非常に低いあるいは非晶性成分の場合には、本測定方法において、測定温度範囲内にピークを示さない場合がある(この場合には、測定温度下限(すなわち -15°C)において溶媒に溶解した成分(A-B)の濃度は検出される。)。

[0083] このとき、T(B)は、測定温度下限以下に存在するものと考えられるが、その値を測定することが出来ないため、このような場合にはT(B)を測定温度下限である -15°C と定義する。

[0084] ここで、T(C)までに溶出する成分の積算量をW(B)質量%、T(C)以上で溶出する部分の積算量をW(A)質量%と定義すると、W(B)は結晶性が低いあるいは非晶性の成分(A-B)の量とほとんど対応しており、T(C)以上で溶出する成分の積算量W(A)は結晶性が比較的高い成分(A-A)の量とほぼ対応している。TREFによって得られる溶出量曲線と、そこから求められる上記の各種の温度や量の算出の方法は図1に例示するように行う。

[0085] (TREF測定方法)

本実施の形態においては、TREFの測定は具体的には以下のように測定を行う。試料を 140°C でオルトジクロルベンゼン(ODCB)(0.5mg

／mL BHT入り)) に溶解し溶液とする。これを 140℃ の TREF カラムに導入した後 8℃／分の降温速度で 100℃ まで冷却し、引き続き 4℃／分の降温速度で -15℃ まで冷却し、60 分間保持する。その後、溶媒である ODCB (0.5 mg／mL BHT 入り) を 1 mL／分の流速でカラムに流し、TREF カラム中で -15℃ の ODCB に溶解している成分を 10 分間溶出させる。そして、昇温速度 100℃／時間にてカラムを 140℃ までリニアに昇温し、溶出曲線を得る。

[0086] 本実施の形態で用いた装置などの概要は、下記の通りであり、同等の装置等を用いて決定することも可能である。

[0087] TREF カラム：4.3 mm ϕ × 150 mm ステンレスカラム

カラム充填材：100 μ m 表面不活性処理ガラスビーズ

加熱方式：アルミヒートブロック

冷却方式：ペルチェ素子（ペルチェ素子の冷却は水冷）

温度分布：±0.5℃

温調器：（株）チノー デジタルプログラム調節計 KP1000（バルブオープン）

加熱方式：空気浴式オープン

測定時温度：140℃

温度分布：±1℃

バルブ：6 方バルブ 4 方バルブ

注入方式：ループ注入方式

検出器：波長固定型赤外検出器 FOXBORO 社製 MIRAN 1A

検出波長：3.42 μ m

高温フローセル：LC-IR 用マイクロフローセル 光路長 1.5 mm 窓形状 2 ϕ × 4 mm 長丸 合成サファイア窓板

試料濃度：5 mg／mL

試料注入量：0.1 mL

（i i）成分（A-A）と成分（A-B）の分離：

先のT R E Fにより求めたT (C)を基に、分取型分別装置を用い、昇温カラム分別法により、T (C)における可溶成分(A-B)とT (C)における不溶成分(A-A)とに分別する。そして、NMRにより各成分のエチレン含有量を求める。

[0088] 昇温カラム分別法とは、例えば、次の文献などで詳細な測定法が示されている。

[0089] *Macromolecules*; 21, 314-319 (1988)

具体的には、本実施の形態において以下の方法を用いる。

[0090] (分別条件)

直径50mm、高さ500mmの円筒状カラムにガラスビーズ担体(80~100メッシュ)を充填し、140℃に保持する。

[0091] 次に、140℃で溶解したサンプルのODCB溶液(10mg/mL)200mLを前記カラムに導入する。その後、該カラムの温度を0℃まで10℃/時間の降温速度で冷却する。0℃で1時間保持後、10℃/時間の昇温速度でカラム温度をT (C)まで加熱し、1時間保持する。なお、一連の操作を通じてのカラムの温度制御精度は±1℃とする。

[0092] 次いで、カラム温度をT (C)に保持したまま、T (C)のODCBを20mL/分の流速で800mL流すことにより、カラム内に存在するT (C)で可溶な成分を溶出させ回収する。

[0093] 次いで10℃/分の昇温速度で当該カラム温度を140℃まで上げ、140℃で1時間保持後、140℃の溶媒(ODCB)を20mL/分の流速で800mL流すことにより、T (C)で不溶な成分を溶出させ回収する。

[0094] 分別によって得られたポリマーを含む溶液は、エバポレーターを用いて20mLまで濃縮された後、5倍量のメタノール中に析出される。析出ポリマーをろ過して回収後、真空乾燥器により一晩乾燥する。

[0095] (iii) ^{13}C -NMRによるエチレン含有量の測定:

前記分別により得られた成分(A-A)と成分(A-B)それぞれについてのエチレン含有量は、プロトン完全デカップリング法により測定した ^{13}C

—NMRスペクトルを解析することにより求める。代表例として、本実施の形態で用いた方法を以下に説明する。

[0096] 機種：日本電子（株）製GSX-400（炭素核共鳴周波数400MHz）

溶媒：ODCB／重ベンゼン＝4／1（体積比）

濃度：100mg/mL

温度：130℃

パルス角：90°

パルス間隔：15秒

積算回数：5,000回以上

スペクトルの帰属は、例えば以下の文献などを参考に行えばよい。

[0097] *Macromolecules*; 17, 1950 (1984)

上記条件により測定されたスペクトルの帰属は表1の通りである。表中 S_{α} などの記号は以下の文献の表記法に従い、Pはメチル炭素、Sはメチレン炭素、Tはメチン炭素をそれぞれ表わす。

[0098] *Carman, Macromolecules*; 10, 536 (1977)

[0099] [表1]

化学シフト (ppm)	帰属
45～48	$S_{\alpha\alpha}$
37.8～37.9	$S_{\alpha\gamma}$
37.4～37.5	$S_{\alpha\delta}$
33.1	$T_{\delta\delta}$
30.9	$T_{\beta\delta}$
30.6	$S_{\gamma\gamma}$
30.2	$S_{\gamma\delta}$
29.8	$S_{\delta\delta}$
28.7	$T_{\beta\beta}$
27.4～27.6	$S_{\beta\delta}$
24.4～24.7	$S_{\beta\beta}$
19.1～22.0	P

[0100] 以下、「P」を共重合体連鎖中のプロピレン単位、「E」をエチレン単位とすると、連鎖中にはPPP、PPE、EPE、PEP、PEE、及びEEEの6種類のトリアドが存在し得る。Macromolecules, 15 1150 (1982)などに記されているように、これらトリアドの濃度と、スペクトルのピーク強度とは、以下の<1>~<6>の関係式で結び付けられる。

$$\begin{aligned}
 [0101] \quad & [PPP] = k \times I(T_{\beta\beta}) <1> \\
 & [PPE] = k \times I(T_{\beta\delta}) <2> \\
 & [EPE] = k \times I(T_{\delta\delta}) <3> \\
 & [PEP] = k \times I(S_{\beta\beta}) <4> \\
 & [PEE] = k \times I(S_{\beta\delta}) <5> \\
 & [EEE] = k \times [I(S_{\delta\delta}) / 2 + I(S_{\gamma\delta}) / 4] <6>
 \end{aligned}$$

ここで[]はトリアドの分率を示し、例えば、[PPP]は、全トリアド中のPPPトリアドの分率である。

[0102] 従って、

$$[PPP] + [PPE] + [EPE] + [PEP] + [PEE] + [EEE] = 1 \quad <7>$$

である。

[0103] また、kは定数であり、Iはスペクトル強度を示し、例えばI(T_{ββ})はT_{ββ}に帰属される28.7 ppmのピークの強度を意味する。

[0104] 上記<1>~<7>の関係式を用いることにより、各トリアドの分率が求まり、さらに下式によりエチレン含有量が求まる。

$$[0105] \quad \text{エチレン含有量 (モル\%)} = ([PEP] + [PEE] + [EEE]) \times 100$$

なお、プロピレンランダム共重合体には、少量のプロピレン異種結合(2, 1-結合及び/または1, 3-結合)が含まれ、それにより、以下の微小なピークを生じる。

[0106]

[表2]

化学シフト (ppm)	帰属
42.0	S _{αα}
38.2	T _{αγ}
37.1	S _{αδ}
34.1~35.6	S _{αβ}
33.7	T _{γγ}
33.3	T _{γδ}
30.8~31.2	T _{βγ}
30.5	T _{βδ}
30.3	S _{αβ}
27.3	S _{βγ}

[0107] 正確なエチレン含有量を求めるには、これら異種結合に由来するピークも考慮して計算に含める必要がある。しかしながら、異種結合由来のピークの完全な分離・同定が困難であり、また異種結合量が少量であることから、本実施の形態におけるエチレン含有量は、実質的に異種結合を含まないチーグラ－・ナッタ触媒で製造された共重合体の解析と同じく、＜1＞～＜7＞の関係式を用いて求めることとする。

[0108] エチレン含有量のモル%から質量%への換算は以下の式を用いて行う。

[0109] エチレン含有量 (質量%) = $(28 \times X / 100) / \{28 \times X / 100 + 42 \times (1 - X / 100)\} \times 100$

ここでXは、モル%表示でのエチレン含有量である。また、プロピレンーエチレンブロック共重合体全体のエチレン含有量 [E] Wは、上記より測定された成分 (アーA) と成分 (アーB) それぞれのエチレン含有量 [E] A と [E] B 及びTREFより算出される各成分の質量比率W (A) とW (B) 質量%から以下の式により算出される。

[0110] $[E] W = \{ [E] A \times W (A) + [E] B \times W (B) \} / 100$ (質量%)

(A-i) 融解ピーク温度 (T_m)

本実施の形態に用いられるプロピレンーエチレンブロック共重合体 (A)

のDSC（示差走査熱量計）法により測定された融解ピーク温度（ T_m ）（以下、 T_m と略記することがある）は、 $110^{\circ}\text{C}\sim 150^{\circ}\text{C}$ であり、好ましくは $115^{\circ}\text{C}\sim 148^{\circ}\text{C}$ 、より好ましくは $120^{\circ}\text{C}\sim 145^{\circ}\text{C}$ 、さらに好ましくは $125\sim 145^{\circ}\text{C}$ である。

[0111] 融解ピーク温度（ T_m ）をこの様な範囲とすることにより、本実施の形態の樹脂組成物を成形体とした時に、十分な剛性が得られると共に、成形体表面を低光沢にすることが可能になるという特徴を有する。即ち、 T_m が 110°C 未満であると、樹脂組成物及びその成形体の剛性が低下するおそれがある。一方、 150°C を超えると、得られる樹脂組成物を成形体とした時の表面の光沢が高くなる（低光沢性が悪化する）おそれがある。 T_m は、使用する触媒やプロピレンと共重合するエチレンの含有量を調節することにより制御することができる。

[0112] T_m の測定は、示差走査熱量計（例えば、本願ではセイコー・インスツルメンツ社製DSC6200型）を用い、サンプル 5.0mg を採り、 200°C で5分間保持後、 40°C まで $10^{\circ}\text{C}/\text{分}$ の降温スピードで結晶化させ、さらに $10^{\circ}\text{C}/\text{分}$ の昇温スピードで融解させたときのピーク温度で評価する。

[0113] (A-i-i-i) : $\tan\delta$ 曲線

本実施の形態に用いられるプロピレンーエチレンブロック共重合体（A）の固体粘弾性測定により得られる温度－損失正接曲線において、 $\tan\delta$ 曲線が単一のピークを 0°C 以下に有する。

[0114] すなわち、本実施の形態においては、樹脂組成物を成形体とした時に成形体表面を低光沢にするために、プロピレンーエチレンブロック共重合体（A）における、成分（A-A）と成分（A-B）とが相分離していないことが必要である。そして、相分離していない場合、 $\tan\delta$ 曲線は単一のピークを 0°C 以下に示す。

[0115] 成分（A-A）と成分（A-B）とが相分離構造にある場合、成分（A-A）に含まれる非晶部のガラス転移温度と成分（A-B）に含まれる非晶部のガラス転移温度が各々異なるため、 $\tan\delta$ 曲線は複数のピークを示す。

- [0116] 固体粘弾性測定（DMA）は、短冊状の試料片に特定周波数の正弦歪みを与え、発生する応力を検知することで行う。ここでは、周波数は1 Hzを用い、測定温度は−60℃から段階状に昇温し、サンプルが融解して測定不能になるまで行う。
- [0117] また、歪みの大きさは0.1%～0.5%程度が推奨される。得られた応力から、公知の方法によって貯蔵弾性率 G' と損失弾性率 G'' を求め、これの比で定義される損失正接（＝損失弾性率／貯蔵弾性率）を温度に対してプロットする。プロピレンーエチレンブロック共重合体（A）の成形体では、0℃以下の温度領域で鋭いピークを示す。なお、一般に0℃以下での $\tan \delta$ 曲線のピークは、非晶部のガラス転移を観測するものである。
- [0118] 本実施の形態で用いた固体粘弾性測定（DMA）は、具体的には、下記の通りであり、同等の装置等を用いて測定も可能である。
- [0119] 試料は下記条件により射出成形した厚さ2 mmのシートから、10 mm幅×18 mm長×2 mm厚の短冊状に切り出したものを用いる。
- [0120] 装置はレオメトリック・サイエンティフィック社製のARESを用いる。
- [0121] 規格番号：JIS-7152（ISO294-1）
周波数：1 Hz
測定温度：−60℃から段階状に昇温し、試料が融解するまで。
- [0122] 歪：0.1～0.5%の範囲
・成形機＝東芝機械社製EC20型射出成形機。
・金型＝物性評価用短冊状試験片（60×80×2 t（mm））。
・成形条件＝成形温度220℃、金型温度40℃、射出圧力50 MPa、射出時間5秒、冷却時間20秒。
- [0123] （A-i v）メルトフローレート（MFR）
本実施の形態に用いられるプロピレンーエチレンブロック共重合体（A）のメルトフローレート（230℃、2.16 kg荷重）（以下、MFRと略記することがある）は、0.5～200 g／10分であり、好ましくは1～150 g／10分、より好ましくは5～100 g／10分である。

[0124] MFRをこの様な範囲とすることにより、本実施の形態の樹脂組成物を成形体とした時に、十分な耐衝撃性能を備えた成形体を、工業規模で生産可能であるという特徴を有する。即ち、MFRが $0.5\text{ g}/10\text{ 分}$ 未満であると、例えば射出成形時に充填不足になる等、工業規模での生産時に適応が困難となる場合がある。一方、MFRが $200\text{ g}/10\text{ 分}$ を超えると、耐衝撃性能が低下するおそれがある。MFRは、重合条件（重合温度、水素添加量等）を調整したり、分子量降下剤を用いるなどして制御することができる。

[0125] なお、MFRは、JIS K7210に準拠し、試験温度＝ 230°C 、荷重＝ 2.16 kg で測定した値である。

[0126] (2) Q値

本実施の形態のプロピレンーエチレンブロック共重合体(A)は、Q値が好ましくは2～5であり、より好ましくは、 $2.3\sim 4.8$ 、さらに好ましくは、 $2.5\sim 4.5$ である。Q値をこの様な範囲とすることにより、本実施の形態の樹脂組成物を成形体とした時の成形体表面の各種性能が、実用レベルを十分に満足し得るという特徴を有する。即ち、Q値が2未満では、得られる樹脂組成物を成形体とした時の表面の面品質が低下したりするおそれがある。一方、Q値が5を超えると、得られる樹脂組成物を成形体とした時の表面の初期光沢が高くなる（低光沢性が悪化する）場合がある。Q値は、触媒および重合条件の調節、さらには分子量降下剤の添加量により制御することができる。

[0127] Q値とは、ゲル浸透クロマトグラフィー(GPC)で測定した質量平均分子量(M_w)と数平均分子量(M_n)との比(M_w/M_n)で定義される。なお、本願におけるGPC測定の詳細は下記の通りであり、同等の装置等を用いても測定は可能である。

[0128] 装置：ウオーターズ社製GPC 150C型

検出器：MIRAN社製 1A赤外分光光度計（測定波長、 $3.42\text{ }\mu\text{m}$ ）

カラム：昭和電工社製AD806M/S 3本（カラムの校正は東ソー社

製単分散ポリスチレン（A500, A2500, F1, F2, F4, F10, F20, F40, F288の各0.5mg/ml溶液）の測定を行い、溶出体積と分子量の対数値を2次式で近似した。また、試料の分子量はポリスチレンとポリプロピレンの粘度式を用いてポリプロピレンに換算した。ここでポリスチレンの粘度式の係数は $\alpha = 0.723$ 、 $\log K = -3.967$ であり、ポリプロピレンは $\alpha = 0.707$ 、 $\log K = -3.616$ である。）

測定温度：140℃

濃度：20mg/10ml

注入量：0.2ml

溶媒：オルソジクロロベンゼン

流速：1.0ml/分

（3）含有割合

本実施の形態に用いられるプロピレンーエチレンブロック共重合体（A）の含有割合は、53質量%～74.5質量%、好ましくは55～72質量%、より好ましくは58～70質量%、さらに好ましくは60～68質量%である（但し、成分（A）と成分（B）と成分（C）と成分（D）との合計量は100質量%である）。プロピレンーエチレンブロック共重合体（A）の含有割合をこの様な範囲とすることにより、本実施の形態の樹脂組成物を成形体とした時に、表面の初期光沢が更に良好（十分に低い）であると共に、更に良好な剛性を得ることができるという特徴が期待できる。即ち、プロピレンーエチレンランダム共重合体（A）の含有量が53質量%未満であると、本実施の形態の繊維強化組成物を成形体とした時の表面の初期光沢が高くなる（低光沢性が悪化する）傾向となる場合があることが懸念される。一方、プロピレンーエチレンランダム共重合体（A）の含有量が74.5質量%を超えると、剛性などが低下する傾向となる場合がある。

[0129] 2. 成分（B）

本実施の形態の成分（B）は要件（B-i）を満足する。

[0130] (B-i) : 成分(B)が、ガラス繊維である。

[0131] ガラス繊維は、引張弾性率および引張強度が高いため、樹脂組成物及びその成形体の剛性を高めることができる。また、本実施の形態の樹脂組成物を成形体とした時に、成形体表面の硬度が高くなるという効果を有するため、耐傷付性の向上などに寄与するという特徴を有する。また、ガラス繊維を用いることは、本実施の形態の樹脂組成物の製造のし易さ及び経済性などの観点からも好ましい。

[0132] また、ガラス繊維(B)は、2種以上を併用することもできる。さらに、予めプロピレンーエチレンブロック共重合体(A)などに、比較的高濃度にガラス繊維(B)を含有させた所謂マスターバッチとした形で使用することもできる。

[0133] また、ガラス繊維以外のタルク、マイカ、ガラスビーズ、ガラスバルーン、ウイスキー及び有機繊維などの各種無機又は有機のフィラーを本実施の形態の効果を著しく損なわない範囲内で併用することもできる。

[0134] 以下、本実施の形態に用いられるガラス繊維について、詳細に説明する。

[0135] ガラス繊維としては、特に限定されず用いることができ、繊維に用いられるガラスの種類としては、例えば、Eガラス、Cガラス、Aガラス、Sガラスなどが挙げることができ、中でもEガラスが好ましい。ガラス繊維の製造方法は、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。

[0136] なお、2種以上のガラス繊維を併用することもできる。

[0137] 繊維長は、好ましくは、2～20mmであり、より好ましくは、3～10mmである。繊維長をこの様な範囲とすることにより、本実施の形態の樹脂組成物を成形体とした時に、高い剛性を得ることができると共に、耐衝撃性の向上にも寄与するという効果を有する。即ち、ガラス繊維の長さが2mm未満であると、樹脂組成物及びその成形体の剛性などの物性を低下させるおそれがある。一方、ガラス繊維の長さが20mmを超えると、流動性が悪化する為に工業規模での成形体製造が困難な場合や、繊維により表面外観が悪

化する為に工業製品への適用が困難な場合が懸念される。

[0138] なお、本明細書で繊維長とは、通常のロービング状、ストランド状の繊維である場合、溶融混練する前の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。ただし、後述する溶融押出加工し、連続した多数本のガラス繊維を集約一体化したガラス繊維含有ペレットの場合は、繊維長は以下の通りとする。すなわち、ガラス繊維含有ペレットの場合は、ペレットの一辺（押出方向）の長さが実質的にペレット中の繊維の長さと同じであるため、ペレットの一辺（押出方向）の長さを、繊維長とする。

[0139] ここで「実質的に」とは、具体的には、ガラス繊維含有ペレット中の繊維の個数全体を基準として、50%以上、好ましくは90%以上の繊維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ガラス繊維の折損を殆ど受けないことを意味する。

[0140] なお、本明細書において、繊維長は、以下の手順で測定する。すなわち、樹脂組成物ペレットあるいは成形体をガラス繊維（B）が残存する様に燃焼または溶解などする。そして、残存したガラス繊維（B）をガラス板上に拡散するなどした後、デジタル顕微鏡を用いて測定する。該方法によって測定された100本以上の繊維の長さの値を用いて平均長さを算出した。

[0141] そのデジタル顕微鏡を用いた測定は、具体的には例えば、以下の方法による。すなわち、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させる。その後、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。

[0142] また、ガラス繊維の繊維径は3～25 μm のものが好ましく、6～20 μm のものがより好ましい。繊維径が3 μm 未満であると、樹脂組成物及びその成形体の製造、成形時などにおいて該ガラス繊維が折損し易くなるおそれがある。一方、繊維径が25 μm を超えると、ガラス繊維のアスペクト比が低下することに伴い、樹脂組成物及びその成形体の剛性などの各向上効果などが低下するおそれがある。

- [0143] 繊維径は、以下の方法により求める。すなわち、ガラス繊維を繊維長さ方向に垂直に裁断し、その断面を顕微鏡観察して直径を計測する。そして、100本以上の繊維の直径の平均値を算出する。
- [0144] 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。なお、ポリプロピレン系樹脂への分散性を向上させるなどのため、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、脂肪酸エステルなどによって表面処理されているものを用いることが好ましい。
- [0145] また、ガラス繊維は、集束剤で集束（表面）処理されたものを用いてもよい。集束剤の種類としては、エポキシ系集束剤、芳香族ウレタン系集束剤、脂肪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。
- [0146] 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。なお、ポリプロピレン系樹脂への分散性を向上させるなどのため、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、脂肪酸エステルなどによって表面処理されているものを用いることが好ましい。
- [0147] 表面処理に使用する有機シランカップリング剤としては、例えば、ビニルトリメトキシシラン、 γ -クロロプロピルトリメトキシシラン、 γ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、3-アクリロキシプロピルトリメトキシシランなどを挙げることができる。また、チタネートカップリング剤としては、例えばイソプロピルトリイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリ（ジオクチルパイロホスフェート）チタネート、イソプロピルトリ（N-アミノエチル）チタネート

などが挙げられる。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を挙げることができる。また、ジルコネートカップリング剤としては、例えば、テトラ（２，２－ジアリルオキシメチル）ブチル、ジ（トリデシル）ホスフィットジルコネート；ネオペンチル（ジアリル）オキシ、トリネオデカノイルジルコネートが挙げられる。また、前記シリコン化合物としては、シリコンオイル、シリコン樹脂などが挙げられる。

[0148] さらに、表面処理に使用する高級脂肪酸としては、例えば、オレイン酸、カプリン酸、ラウリル酸、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、ウンデセン酸などが挙げられる。また、高級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、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、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、モンタン酸ナトリウムが好適である。また、脂肪酸エステルとしては、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、ショ糖脂肪酸エステルなどが例示される。

[0149] 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、ガラス繊維１００質量部に対して０．０１質量部～５質量部が好ましく、０．１質量部～３質量部がより好ましい。

[0150] ガラス繊維は、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を用いることもできる。この中でも、樹脂組成物及びその成形体の低収縮性、剛性・衝撃強度などの観点から、ガラス繊維を収束したストランドを引き揃えて、２ｍｍ～２０ｍｍに切断して得られる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。

[0151] ガラス繊維は、種々の製品が多くのかから市販されており、具体例とし

ては、日本電気硝子社製（T480H）などを挙げることができる。

[0152] また、これらのガラス繊維は、「ガラス繊維含有ペレット」として用いることができる。「ガラス繊維含有ペレット」とは、予め任意の量の例えばプロピレンーエチレンブロック共重合体（A）などと、熔融押出加工して連続した多数本のガラス繊維を集合同体化したものである。「ガラス繊維含有ペレット」を用いることは、樹脂組成物及びその成形体のシボ転写性、剛性などの各向上効果などをより高める観点から好ましい。

[0153] このようなガラス繊維含有ペレットの場合、繊維長は、前述したように、ガラス繊維含有ペレットの長さ（押出方向）とし、2～20mmが好ましい。

[0154] このようなガラス繊維含有ペレットの製造方法は、特に制限されず、公知の方法を用いることができる。

[0155] また、ガラス繊維含有ペレットにおいて、ガラス繊維の含有量は、該ペレット全体100質量%を基準として、20質量%～70質量%であることが好ましい。

[0156] ガラス繊維の含有量が20質量%未満であるガラス繊維含有ペレットを本実施の形態において用いた場合、樹脂組成物及びその成形体に剛性などの物性を付与しようとする、該ペレットを大量に使用する必要があり、工業規模での製造には適用が困難な場合がある。一方、ガラス繊維の含有量が70質量%を超えるガラス繊維含有ペレットを用いた場合には、そもそもペレットとすることが困難であると懸念される。

[0157] 含有割合

本実施の形態に用いられるガラス繊維（B）の含有割合は、10質量%～20質量%、好ましくは10～18質量%、より好ましくは12～17質量%、さらに好ましくは13～16質量%である（但し、成分（A）と成分（B）と成分（C）と成分（D）との合計量は100質量%である）。ガラス繊維（B）の含有割合をこの様な範囲とすることにより、本実施の形態の樹脂組成物を成形体とした時に、良好な剛性や耐衝撃性を有する本実施の形態

の樹脂組成物を、工業規模で製造可能となる。即ち、ガラス繊維（B）の含有割合が10質量%未満であると、剛性、耐衝撃性などの物性低下のおそれがある。ガラス繊維（B）の含有割合が20質量%を超えると、そもそもペレットとすることが困難であると懸念される。

[0158] ここで、ガラス繊維（B）の含有割合は実量である。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ガラス繊維（B）の実含有量に基づき算出する。

[0159] 3. 成分（C）

本実施の形態に用いられる成分（C）は、下記要件（C-i）及び（C-ii）を満足する。

[0160] （C-i）：密度が $0.85 \sim 0.87 \text{ g/cm}^3$ のエチレン-オクテン共重合体である。

[0161] （C-ii）：メルトフローレート（ 230°C 、 2.16 kg 荷重）が $0.5 \sim 1.0 \text{ g/10分}$ である。

[0162] 本実施の形態に用いられる成分（C）であるエチレン-オクテン共重合体は、樹脂組成物及び成形体において、耐熱光沢変化が少なく、耐衝撃機能を付与するという特徴を有する。

[0163] なお、成分（C）は、上記の特性を満たす2種以上を併用することもできる。

[0164] （1）各要件

（C-i）密度

本実施の形態に用いられる成分（C）の密度は、 $0.85 \sim 0.87 \text{ g/cm}^3$ であり、好ましくは、 $0.855 \sim 0.865 \text{ g/cm}^3$ である。成分（C）の密度をこの様な範囲とすることにより、プロピレン-エチレンブロック共重合体（A）と成分（C）が良好な分散を示す。ゆえに、本実施の形態の樹脂組成物を成形体とした時に成形体表面の耐熱光沢変化が少なく、良好な耐衝撃性能と低い初期光沢を得ることが可能となる。即ち、密度が 0.85 g/cm^3 未満であると、樹脂組成物及びその成形体において、耐熱光沢変

化が大きくなる（悪化する）場合がある。密度が 0.87 g/cm^3 を超えると、耐衝撃性能および初期光沢が高くなる場合がある。

[0165] また、本実施の形態に用いられる成分（C）は、上記の密度を有するエチレンーオクテン共重合体である。成分（C）として、エチレンーオクテン共重合体を用いると、樹脂組成物及びその成形体において、耐熱光沢変化が少なく、衝撃強度などの性能がより優れ、経済性にも優れる傾向にあることなどの点から好ましい。

[0166] （C-i-i）メルトフローレート（MFR）

本実施の形態に用いられる成分（C）のMFR（ 230°C 、 2.16 kg 荷重）は、 $0.5\sim 1.1\text{ g/10分}$ の範囲であり、好ましくは $0.6\sim 1.05\text{ g/10分}$ 、さらに好ましくは $0.7\sim 1.0\text{ g/10分}$ の範囲内である。成分（C）のMFRをこのような範囲とすることにより、プロピレンーエチレンブロック共重合体（A）と成分（C）が良好な分散を示す。ゆえに、本実施の形態の樹脂組成物を成形体とした時に成形体表面の熱光沢変化が少なく、良好な耐衝撃性能と低い初期光沢を得ることが可能となる。即ち、MFRが 0.5 g/10分 未満であると、樹脂組成物及びその成形体の初期光沢が高くなるおそれがある。一方、MFRが 1.1 g/10分 を超えると、耐熱光沢変化が大きくなる（悪化する）おそれがある。

[0167] （2）製造方法

本実施の形態に用いられる成分（C）のエチレンーオクテン共重合体は、エチレン及びオクテンの各モノマーを触媒の存在下、重合することにより製造される。

[0168] 触媒としては、例えばハロゲン化チタンの様なチタン化合物、アルキルアルミニウムーマグネシウム錯体の様な有機アルミニウムーマグネシウム錯体、アルキルアルミニウムまたはアルキルアルミニウムクロリドなどのいわゆるチーグラ型触媒、WO 91/04257号パンフレットなどに記載のメタロセン化合物触媒などを使用することができる。

[0169] 重合法としては、気相流動床法、溶液法、スラリー法などの製造プロセス

を適用して重合することができる。

[0170] また、これらのエチレンーオクテン共重合体は種々の製品が多くの中から市販されているので、所望の物性を有する製品を入手し、使用することもできる。

[0171] (3) 含有割合

本実施の形態に用いられる成分(C)の含有割合は、15～25質量%、好ましくは17～23質量%、より好ましくは18～22質量%である(但し、成分(A)と成分(B)と成分(C)と成分(D)との合計量は100質量%である)。成分(C)の含有割合をこのような範囲とすることにより、本実施の形態の樹脂組成物を成形体とした時に、熱光沢変化が少なく耐衝撃性能が良好になると共に、剛性が良好になるという効果を有する。即ち、成分(C)の含有割合が15質量%未満であると、耐衝撃性能、耐熱光沢変化が大きく(悪化する)なる場合がある。一方、成分(C)の含有割合が25質量%を超えると、本実施の形態の樹脂組成物及びその成形体の剛性が低下するおそれがある。

[0172] 4. 成分(D)

本実施の形態の成分(D)は要件(D-i)を満足する。

(D-i) : 成分(D)が、酸変性ポリオレフィンおよび／またはヒドロキシ変性ポリオレフィンである。

[0173] 成分(D)として、酸変性ポリオレフィン及び／またはヒドロキシ変性ポリオレフィンを用いることで、プロピレンーエチレンブロック共重合体(A)とガラス繊維(B)との界面強度が向上する。界面強度が向上すると、樹脂組成物及びその成形体において、剛性・衝撃強度などの物性などの向上などに有効である。

(1) (D-i) : 酸変性ポリオレフィンおよび／またはヒドロキシ変性ポリオレフィン

酸変性ポリオレフィンとしては、特に制限はなく、従来公知のものを用いることができる。酸変性ポリオレフィンは、ポリオレフィンを、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。上記ポリオレフィン、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）、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である。上記不飽和カルボン酸は、例えば、マレイン酸または無水マレイン酸などである。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、不飽和カルボン酸また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もしく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。

[0174] また、ヒドロキシ変性ポリオレフィンは、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てもよい。ヒドロキシ変性ポリオレフィン系樹脂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、ドデセンなどの α -オレフィンの単独または共重合体、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。ヒドロキシ変性ポリオレフィン系樹脂として、ヒドロキシ変性ポリエチレン（例えば、低密度、中密度また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、アイソタクチックポリプロピレンなどの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、ヘキサンなど）とのランダム共重合体、プロピレン- α -オレフィンブロック共重合体など）、ヒドロキシ変性ポリ（4-メチルペンテン-1）などを挙げることができる。

（2）含有割合

本実施の形態に用いられる成分（D）の含有割合は、0.5～2質量%、

好ましくは0.7～1.5質量%、より好ましくは0.8～1.2質量%、特に好ましくは0.9～1.1質量%である（但し、成分（A）と成分（B）と成分（C）と成分（D）との合計量は100質量%である）。成分（D）の含有割合をこの様な範囲とすることにより、本実施の形態の樹脂組成物を成形体とした時に、剛性や耐傷付性が良好となると共に、容易に成形体を得ることが可能になるという効果を有する。即ち、成分（D）の含有割合が0.5質量%未満であると剛性や耐傷付性が悪化する場合がある。一方、成分（D）の含有割合が2質量%を超えると、流動性が低下し、成形体の製造自体が困難となることが懸念される。

[0175] 5. 成分（E）

本実施の形態の成分（E）は要件（E-i）を満たす。

[0176] （E-i）：成分（E）が、エルカ酸アミドである。

[0177] エルカ酸アミドは、本実施の形態の樹脂組成物及びその成形体において、表面の摩擦を低減するなどして耐傷付性、成形性などをより向上させることに寄与する特徴を有する。

[0178] また、エルカ酸アミドは、本実施の形態の樹脂組成物から得られる成形体においても、その成形、流通及び使用時においても、外部との接触、衝突などにより発生し易い白化傷跡を低減する性能ももたらす。また、保管時ににおける埃付着を防止する効果ももたらす。

[0179] 含有割合

本実施の形態に用いられるエルカ酸アミドの含有割合は、成分（A）と成分（B）と成分（C）と成分（D）との合計量100質量部に対して、0.05～0.15質量部、好ましくは0.06～0.14質量部、より好ましくは0.08～0.12質量部、特に好ましくは0.09～0.11質量部である。エルカ酸アミドの含有割合をこの様な範囲とすることにより、本実施の形態の樹脂組成物を成形体とした時に、良好な耐傷付性を得ることができると共に、成形体表面の熱光沢変化が少なく、かつ低い初期光沢を得ることができるという効果を有する。即ち、エルカ酸アミドの含有割合が0.0

5質量部を超えると、本実施の形態の樹脂組成物を成形体とした時に、エルカ酸アミドが成形体表面にブリードアウトする為に、成形体表面の熱光沢変化が大きくなる（悪化する）ことや、初期光沢が高くなることが懸念される。また、エルカ酸アミドの含有割合が0.15質量部未満であると、耐傷付性が悪化する場合がある。

[0180] 6. 任意添加成分

本実施の形態の樹脂組成物は、任意添加成分として、本実施の形態の効果を著しく損なわない範囲で、分子量降下剤、酸化防止剤などの各種任意添加成分を含有することができる。

[0181] 任意添加成分は、2種以上を併用してもよい。また、任意添加成分は、樹脂組成物に添加してもよいし、プロピレンーエチレンブロック共重合体（A）などの前記の各成分に予め添加されていてもよく、それぞれの成分においても2種以上併用することもできる。本実施の形態において、任意添加成分の含有割合は特に限定されないが、通常、樹脂組成物100質量部において、0.01～0.5質量部程度であり、その目的に応じて適宜選択される。

[0182] （1）分子量降下剤

分子量降下剤は、成形性（流動性）などの付与、向上に有効である。

[0183] 分子量降下剤は、例えば、各種の有機過酸化物や、分解（酸化）促進剤と称されるものなどが使用でき、有機過酸化物が好適である。

[0184] 有機過酸化物としては、例えば、ベンゾイルパーオキシド、*t*-ブチルパーベンゾエート、*t*-ブチルパーアセテート、*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、*t*-ブチル-ジパーアジペート、*t*-ブチルパーオキシ-3,5,5-トリメチルヘキサノエート、メチル-エチルケトンパーオキシド、シクロヘキサノンパーオキシド、ジ-*t*-ブチルパーオキシド、ジキュミルパーオキシド、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*-

ーブチルパーオキシ)ヘキシノー3、1、3ービスー(tーブチルパーオキシイソプロピル)ベンゼン、tーブチルキュミルパーオキサイド、1、1ービスー(tーブチルパーオキシ)ー3、3、5ートリメチルシクロヘキサン、1、1ービスー(tーブチルパーオキシ)シクロヘキサン、2、2ービスーtーブチルパーオキシブタン、pーメンタンハイドロパーオキサイド、ジイソプロピルベンゼンハイドロパーオキサイド、キュメンハイドロパーオキサイド、tーブチルハイドロパーオキサイド、pーサイメンハイドロパーオキサイド、1、1、3、3ーテトラーメチルブチルハイドロパーオキサイド及び2、5ージメチルー2、5ージ(ハイドロパーオキシ)ヘキサンのグループから選ばれる1種または2種以上からなるものを挙げることができる。

[0185] (2) 酸化防止剤

酸化防止剤は、樹脂組成物及びその成形体の品質劣化の防止に有効である。

[0186] 酸化防止剤として、例えば、フェノール系、リン系やイオウ系の酸化防止剤などを挙げることができる。

[0187] (3) その他

また、本実施の形態の樹脂組成物は、本実施の形態の効果を著しく損なわない範囲で、前記の説明に挙げられた以外のポリオレフィン系樹脂、ポリアミド樹脂やポリステル樹脂などの熱可塑性樹脂、成分(C)のエチレンーオクテン共重合体以外のエラストマー(ゴム成分)などを含有することができる。

[0188] これらの任意成分は、種々の製品が多く会社から市販されており、その目的に応じて、所望の製品を入手し、使用することができる。

[0189] 7. 繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物の製造方法

本実施の形態の繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物は、以下の方法により製造することができる。すなわち、プロピレンーエチレンブロック共重合体(A)に、ガラス繊維(B)、エチレンーオクテン共重合体(C)、酸変

性ポリオレフィンおよび／またはヒドロキシ変性ポリオレフィン（D）及びエルカ酸アミド（E）を、必要に応じ任意添加成分を加え、前記含有割合で、従来公知の方法で配合する。そして、配合物を溶融混練する混練工程を経ることにより製造することができる。

[0190] 混合は、通常、タンブラー、Vブレンダー、リボンブレンダーなどの混合機器を用いて行う。そして、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、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。（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方法を採用することもできる。各成分を分割して混練する方法は、例えば、先ずプロピレンーエチレンブロック共重合体（A）の一部または全部と、ガラス繊維（B）の一部とを混練し、その後に残りの成分を混練・造粒する方法である。

[0191] 本実施の形態の樹脂組成物は、上記混練工程を経て得られた樹脂組成物ペレット中、あるいは成形体中に存在するガラス繊維（B）の平均長さが、0.3 mm以上、好ましくは0.4 mm以上2.5 mm以下となる様な複合化方法にて製造することが好ましい。

[0192] なお、本明細書において、樹脂組成物ペレット中、あるいは成形体中に存在するガラス繊維（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。その具体的な測定方法は、前述のガラス繊維（B）の測定方法と同様である。

[0193] また、樹脂組成物の好ましい製造方法としては、例えば以下の方法が挙げられる。すなわち、例えば2軸押出機による溶融混練において、例えばプロピレンーエチレンブロック共重合体（A）、エチレンーオクテン共重合体（C）、酸変性ポリオレフィンおよび／またはヒドロキシ変性ポリオレフィン（D）及びエルカ酸アミド（E）を十分に溶融混練する。その後、ガラス繊維（B）をサイドフィード法などによりフィードし、ガラス繊維の折損を最

小限に留めながら、集束繊維を分散させるなどの方法が挙げられる。

[0194] また、例えばプロピレンーエチレンブロック共重合体（A）および他の各成分を、ヘンシェルミキサー内で高速攪拌してこれらを半熔融状態とさせながら、当該混合物中にガラス繊維（B）を混練するいわゆる攪拌造粒方法も挙げられる。この攪拌造粒方法も、ガラス繊維の折損を最小限に留めながらガラス繊維を分散させ易いので、好ましい製造方法の一つである。

[0195] さらに、予めガラス繊維（B）を除く他の成分を押出機などで熔融混練してペレットと成し、該ペレットと前記のガラス繊維含有ペレットの所謂「ガラス繊維（B）含有ペレット」とを混合することにより繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物とする製造方法も挙げられる。この製造方法も、前記同様の理由などで、好ましい製造方法の一つである。

[0196] 以上の通り、本実施の形態の繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物の好ましい製造方法としては、混練工程において、ガラス繊維（B）以外の成分を混練した後に、ガラス繊維（B）を加える方法を挙げることができ、容易な製造方法により本実施の形態の樹脂組成物を製造することができる。

[0197] 8. 成形体の製造方法及び特性

前記方法で製造された本実施の形態の樹脂組成物は、各種の成形方法に適用し、成形体とすることが可能である。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、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、所望の成形体を得ることができる。この内、射出成形または射出圧縮成形にて成形体を得ることが好ましい。

[0198] 本実施の形態の樹脂組成物から得られる成形体は、シボ面における初期光沢が低く耐熱光沢変化が小さいという特徴を有する。さらに、本実施の形態の樹脂組成物から得られる成形体の大きな特徴は、高剛性かつ耐傷付性に優れていることである。

[0199] さらに、本実施の形態の樹脂組成物から得られる成形体は、入手が容易で

、経済的に有利な成分を使用し、容易な製造方法にて製造し、低コストで得られる。

[0200] そのため、インストルメントパネル、グローブボックス、コンソールボックス、ドアトリム、肘掛け、グリップノブ、各種トリム類、天井部品、ハウジング類、ピラー類、マッドガード、バンパー、フェンダー、バックドア、ファンシュラウドなどの自動車用内外装及びエンジンルーム内部品をはじめ、テレビ・掃除機などの電気電子機器部品、各種工業部品、便座などの住宅設備機器部品、建材部品などの用途に、好適に用いることができる。特に、低光沢で耐傷付性に優れることから、自動車部品、特に内装用部品に好適である。

実施例

[0201] 本実施の形態を実施例によりさらに詳細に説明するが、本実施の形態はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0202] なお、実施例で用いた評価法、分析の各法および材料は、以下の通りである。

[0203] 1. 評価方法及び分析方法

(1) 剛性（曲げ弾性率：F M）

J I S K 7 1 7 1 に準拠し、試験温度＝23℃にて測定した。試験片は以下の条件で製作した物性評価用試験片を用いた。

- ・成形機＝東芝機械社製E C 2 0型射出成形機。
- ・金型＝物性評価用短冊状試験片（10×80×4 t（mm））2個取り。
- ・成形条件＝成形温度220℃、金型温度40℃、射出圧力50MPa、射出時間5秒、冷却時間20秒。

[0204] (2) 衝撃強度（シャルピー衝撃強度（ノッチ付））：

J I S K 7 1 1 1 に準拠し、試験温度＝23℃にて測定した。試験片は上記剛性（曲げ弾性率）の測定と同様に製作した物性評価用試験片を用いた。

[0205] (3) 耐熱光沢変化

下記の評価用試験片を作成し、初期とオープン中で115℃にて10時間静置後の光沢およびその光沢変化率を測定した。

・試験片＝平板状：120×120×3 t (mm)。

・測定面（上記試験片の平面…下記デザイン）

シボ面＝自動車内装ナシ地シボ。シボ深さ＝30 μm。

・成形機＝東芝機械社製IS100GN型射出成形機。

・成形条件＝成形温度220℃、金型温度40℃、射出圧力50 MPa、射出時間10秒、冷却時間20秒。

・光沢計＝日本電色工業社製VG-2000型

なお、光沢の測定は、試験片平面から60°の角度から測定を行った。初期光沢が2.3以下、かつ初期光沢と10時間静置後の光沢の差が0.8以内のものが実用レベルに達していると判断される。

[0206] (4) 耐傷付性

試験片は上記光沢評価用の試験片と同様に製作したものを用いた。

・引掻試験機＝安田精機製作所社製

「自動クロスカット試験機」

・測定方法＝上記試験機にて、引掻針：先端曲率半径0.5 mmのサファイヤ針を用いて引掻速度＝1000 mm/分、荷重：200 gで引掻き、試験片表面の傷付き度合いを目視判定する。

[0207] ○：変化がわずかに認められる。

[0208] ×：変化が著しい。

[0209] (5) 融点ピーク温度 (T_m)

セイコー・インスツルメンツ社製DSC6200型を用い、サンプル5.0 mgを採り、200℃で5分間保持後、40℃まで10℃/分の降温スピードで結晶化させ、さらに10℃/分の昇温スピードで融解させて測定する。

[0210] (6) メルトフローレート (MFR)：成分 (A)

JIS K7210に準拠し、試験温度＝230℃、荷重＝2.16 kg

で測定した。

[0211] (7) Q値

試料20gを溶媒10mlに溶解し、以下の方法にて、ゲル浸透クロマトグラフィー(GPC)で測定した質量平均分子量(M_w)と数平均分子量(M_n)との比(M_w/M_n)から計算にて求めた。

[0212] 装置：ウオーターズ社製GPC 150C型

検出器：MIRAN社製 1A赤外分光光度計(測定波長、3.42 μ m)

カラム：昭和電工社製AD806M/S 3本(カラムの較正は東ソー社製単分散ポリスチレン(A500, A2500, F1, F2, F4, F10, F20, F40, F288の各0.5mg/ml溶液)の測定を行い、溶出体積と分子量の対数値を2次式で近似した。また、試料の分子量はポリスチレンとポリプロピレンの粘度式を用いてポリプロピレンに換算した。ここでポリスチレンの粘度式の係数は $\alpha=0.723$ 、 $\log K=-3.967$ であり、ポリプロピレンは $\alpha=0.707$ 、 $\log K=-3.616$ である。)

測定温度：140℃

濃度：20mg/10ml

注入量：0.2ml

溶媒：オルソジクロロベンゼン

流速：1.0ml/分

(8) 繊維の長さ

樹脂組成物ペレットあるいは成形体を成分(B)が残存する様に燃焼または溶解などする。そして、残存した成分(B)をガラス板上に拡散するなどした後、デジタル顕微鏡(キーエンス社製VHX-900型)を用いて測定する。該方法によって測定された100本以上の繊維の長さの値を用いて平均長さを算出した。

[0213] (9) エチレン含有量及び成分(A)における(A-A)及び(A-B)

の特定

本文に記載の方法及び特開 2013-067789 号公報に記載の方法に準じて測定を行った。

[0214] (10) 固体粘弾性測定における $\tan \delta$ 曲線のピーク

固体粘弾性測定により測定する。試料は下記条件により射出成形した厚さ 2 mm のシートから、10 mm 幅×18 mm 長×2 mm 厚の短冊状に切り出したものを用いる。

[0215] 装置はレオメトリック・サイエンティフィック社製の ARES を用いる。

[0216] 規格番号：JIS-7152 (ISO 294-1)

周波数：1 Hz

測定温度：-60℃から段階状に昇温し、試料が融解するまで。

[0217] 歪：0.1～0.5%の範囲

成形機：東芝機械社製 EC20 型射出成形機

・金型＝物性評価用短冊状試験片 (60×80×2 t (mm))。

・成形条件＝成形温度 220℃、金型温度 40℃、射出圧力 50 MPa、射出時間 5 秒、冷却時間 20 秒。

[0218] 2. 材料

(1) 成分 (A)

A-1：ウェルネクス (日本ポリプロ社製)

メタロセン系触媒を用いて製造されたプロピレン-エチレンブロック共重合体、MFR (230℃、2.16 kg 荷重) 55 g/10 分、エチレン含有量 3.8 質量%、Q 値=2.7、融解ピーク温度 (T_m) = 130℃。

[0219] また、第 1 工程のプロピレン-エチレンランダム共重合体 (A-A) のエチレン含有量 2.2 質量%、組成比 80 質量%、第 2 工程のプロピレン-エチレンランダム共重合体 (A-B) のエチレン含有量 10.5 質量%、組成比 20 質量%、 $\tan \delta$ 曲線が -11℃に単一のピークを有する。

A-2：ノバテック BC03HR (日本ポリプロ社製)

チーグラ系触媒を用いて製造されたプロピレン-エチレンブロック共重

合体、MFR（230℃、2.16kg荷重）27g/10分、エチレン含有量10.8質量%、Q値=6.5、融解ピーク温度（ T_m ）=161℃。

[0220] また、第1工程のプロピレン-エチレンランダム共重合体（A-A）のエチレン含有量0質量%（プロピレン単独重合体）、組成比73質量%、第2工程のプロピレン-エチレンランダム共重合体（A-B）のエチレン含有量40質量%、組成比27質量%、 $\tan \delta$ 曲線が2ヶ所（-1.8℃、-40℃）にピークを示す。

[0221] （2）成分（B）

B-1：T480H（日本電気硝子社製）

ガラス繊維、チョップドストランド（繊維径10 μ m、長さ8mm）。

B-2：タルク（富士タルク工業社製）

平均粒径=6.3 μ m（カタログ値）。

[0222] （3）成分（C）

以下に記載の密度は、各製品のカタログ値である。

C-1：エンゲージEG8150（ダウ・ケミカル社製）

エチレン-オクテン共重合エラストマー、MFR（230℃、2.16kg荷重）1g/10分、密度0.868g/cm³、形状=ペレット。

C-2：エンゲージEG8100（ダウ・ケミカル社製）

エチレン-オクテン共重合エラストマー、MFR（230℃、2.16kg荷重）2g/10分、密度0.870g/cm³、形状=ペレット。

[0223] （4）成分（D）

D-1：アルケマ社製の酸変性量（グラフト率）=0.8質量%の無水マレイン酸変性ポリプロピレン（OREVAC CA100）

（5）成分（E）

E-1：ニュートロン-S（日本精化社製エルカ酸アミド）

3. 実施例及び比較例

[実施例1及び比較例1、2]

（1）樹脂組成物の製造

前記成分（Ａ）～（Ｅ）を、下記の添加剤とともに表３に示す割合で配合し、下記の条件で混練、造粒し、樹脂ペレットを製造した。

[0224] この際、前記成分（Ａ）～（Ｅ）からなる組成物全体１００質量部当たり、ＢＡＳＦ社製ＩＲＧＡＮＯＸ１０１０を０．１質量部、ＢＡＳＦ社製ＩＲＧＡＦＯＳ１６８を０．０５質量部それぞれ配合した。

[0225] 混練装置：テクノベル社製「ＫＺＷ－１５－ＭＧ」型２軸押出機。

[0226] 混練条件：温度＝２００℃、スクリー回転数＝４００ｒｐｍ、吐出量＝３ｋｇ／時間。

[0227] なお、成分（Ｂ）のガラス繊維（Ｂ－１）は押出機中途からサイドフィードした。ここで、得られた各樹脂ペレット中のガラス繊維（Ｂ－１）の平均長さは０．４５ｍｍ～０．７ｍｍの範囲内であった。

（２）樹脂組成物の成形及び評価

得られた樹脂ペレットを用いて、前記の方法で成形及び評価を行った。結果を表３に示す。

[0228] [表３]

		単位	実施例 1	比較例 1	比較例 2
成分（Ａ）	A－１	質量％	64		64
	A－２	質量％		64	
成分（Ｂ）	B－１	質量％	15		15
	B－２	質量％		15	
成分（Ｃ）	C－１	質量％	20	20	
	C－２	質量％			20
成分（Ｄ）	D－１	質量％	1	1	1
成分（Ｅ）	E－１	質量部	0.1	0.1	0.1
引張弾性率		MPa	2100	1500	2100
衝撃強度		kJ/m ²	21	35	25
傷つき性			○	×	○
光沢変化	初期		○	×	○
	115℃×100 時間		○	○	×

[0229] ４．評価

表３に示す結果から、本実施の形態の樹脂組成物及びその成形体の実施形

態要件を満たしている実施例 1 は、高い剛性および衝撃性を示し、かつ初期光沢が低い上に耐熱光沢変化が小さく耐傷つき性が良好であるという特徴を有していることが分かる。

[0230] 一方、上記本実施の形態の特定事項を満たさない比較例において、比較例 1、2 に示す組成を持った樹脂組成物及びその成形体は、これらの性能バランスが不良で、実施例 1 のものに対して見劣りしている。

[0231] 例えば、比較例 1 では、成分 (B) としてタルクを使用しており、耐傷つき性が悪く、さらに光沢変化も実施例 1 に大きく劣るものである。衝撃が低く、また初期光沢が高く、耐熱試験後の光沢変化も大きい。比較例 3 では、熱可塑性エラストマー (C) が要件を満たさないため光沢の耐熱変化がおおきくなっている。

請求の範囲

[請求項1]

繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物であって、

下記の条件を満足する

成分(A) 53質量%～74.5質量%と、

成分(B) 10質量%～20質量%と、

成分(C) 15～25質量%と、

成分(D) 0.5～2質量%

(但し、成分(A)と成分(B)と成分(C)と成分(D)との合計量は100質量%である)と

を含有し、

更に、成分(A)と成分(B)と成分(C)と成分(D)との合計量100質量部に対して

下記の条件を満足する成分(E) 0.05～0.15質量部を含有することを特徴とする繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物。

成分(A)：次の(A-i)～(A-iv)に規定する要件を有する。

(A-i)：成分(A)はメタロセン系触媒を用いて、第1工程でプロピレン単独またはエチレン含有量7質量%以下のプロピレン-エチレンランダム共重合体成分(A-A)を30質量%～95質量%、第2工程で成分(A-A)よりも3質量%～20質量%多くのエチレンを含有するプロピレン-エチレンランダム共重合体成分(A-B)を70質量%～5質量%逐次重合することで得られたプロピレン-エチレンブロック共重合体である。

(A-ii)：DSC法により測定された融解ピーク温度(T_m)が110℃～150℃である。

(A-iii)：固体粘弾性測定により得られる温度-損失正接曲線において、 $\tan \delta$ 曲線が0℃以下に単一のピークを有する。

(A-iv)：メルトフローレート(MFR：230℃、2.1

6 kg 荷重) が 0.5 g / 10 分 ~ 200 g / 10 分である。

成分 (B) : 次の (B-i) に規定する要件を有する。

(B-i) : 成分 (B) が、ガラス繊維である。

成分 (C) : 次の (C-i) 及び (C-ii) に規定する要件を有する。

(C-i) : 密度が 0.85 g / cm³ ~ 0.87 g / cm³ のエチレン-オクテン共重合体である。

(C-ii) : メルトフローレート (230℃、2.16 kg 荷重) が 0.5 g / 10 分 ~ 1.1 g / 10 分である。

成分 (D) : 次の (D-i) に規定する要件を有する。

(D-i) : 成分 (D) が、酸変性ポリオレフィンおよび／またはヒドロキシ変性ポリオレフィンである。

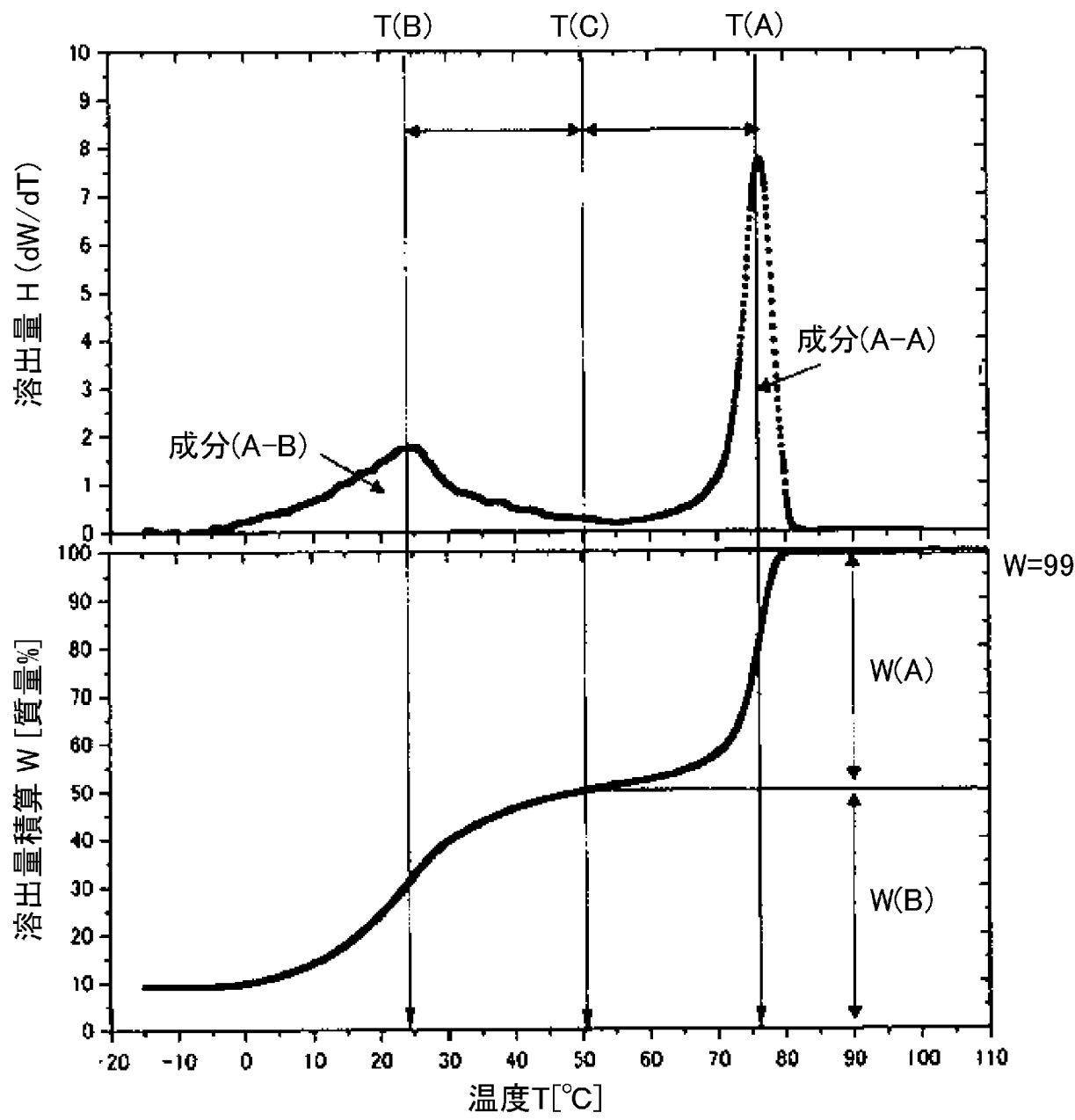
成分 (E) : 次の (E-i) に規定する要件を有する。

(E-i) : 成分 (E) が、エルカ酸アミドである。

[請求項2]

成分 (B) の長さが、0.2 mm 以上 10 mm 以下であることを特徴とする請求項 1 に記載の繊維強化ポリプロピレン系樹脂組成物。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/077452

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08J5/04(2006.01)i, C08K5/20(2006.01)i, C08K7/14(2006.01)i, C08L23/20(2006.01)i, C08L23/26(2006.01)i, C08L53/00(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)

C08J5/04, C08K5/20, C08K7/14, C08L23/20, C08L23/26, C08L53/00

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	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

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.
Y	JP 2014-172985 A (Japan Polypropylene Corp.), 22 September 2014 (22.09.2014), claims; examples (Family: none)	1, 2
Y	JP 2013-67789 A (Japan Polypropylene Corp.), 18 April 2013 (18.04.2013), claims; examples & US 2014/0242335 A1 claims; examples & WO 2013/035764 A1 & EP 2754691 A1 & CN 103917595 A	1, 2

☒ 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
07 December 2016 (07.12.16)

Date of mailing of the international search report
20 December 2016 (20.12.16)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/077452

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 2011-127058 A (Nissan Motor Co., Ltd., Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 30 June 2011 (30.06.2011), claims; paragraphs [0020] to [0022]; examples (Family: none)	1,2
Y	JP 2004-51769 A (Nissan Motor Co., Ltd., Sun Allomer Ltd.), 19 February 2004 (19.02.2004), claims; paragraph [0016]; examples & US 2004/0044107 A1 claims; paragraphs [0054] to [0057]; examples	1,2
Y	JP 7-53843 A (Mitsubishi Petrochemical Co., Ltd., Toyota Motor Corp.), 28 February 1995 (28.02.1995), claims; paragraphs [0009], [0010]; examples (Family: none)	1,2
Y	JP 2008-101090 A (Japan Polypropylene Corp.), 01 May 2008 (01.05.2008), claims; paragraphs [0054] to [0056]; examples (Family: none)	1,2
Y	JP 2000-26697 A (Japan Polychem Corp.), 25 January 2000 (25.01.2000), claims; paragraphs [0012], [0013]; examples & WO 2000/004093 A1	1,2
Y	JP 2013-234278 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 21 November 2013 (21.11.2013), claims; paragraphs [0033] to [0037]; examples (Family: none)	1,2
Y	JP 2009-173916 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 06 August 2009 (06.08.2009), claims; paragraphs [0025] to [0029]; examples (Family: none)	1,2
Y	JP 2008-19347 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 31 January 2008 (31.01.2008), claims; paragraphs [0040] to [0042]; examples (Family: none)	1,2
Y	JP 2010-150328 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 08 July 2010 (08.07.2010), claims; paragraphs [0018] to [0021]; examples (Family: none)	1,2

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C08J5/04(2006.01)i, C08K5/20(2006.01)i, C08K7/14(2006.01)i, C08L23/20(2006.01)i, C08L23/26(2006.01)i, C08L53/00(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. C08J5/04, C08K5/20, C08K7/14, C08L23/20, C08L23/26, C08L53/00

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	1971-2016年
日本国実用新案登録公報	1996-2016年
日本国登録実用新案公報	1994-2016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)

CPlus/REGISTRY (STN)

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
Y	JP 2014-172985 A (日本ポリプロ株式会社) 2014. 09. 22, [特許請求の範囲]、実施例 (ファミリーなし)	1, 2
Y	JP 2013-67789 A (日本ポリプロ株式会社) 2013. 04. 18, [特許請求の範囲]、実施例 & US 2014/0242335 A1, claims, examples & WO 2013/035764 A1 & EP 2754691 A1 & CN 103917595 A	1, 2

☑ 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	「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
「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	「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
「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)	「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
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」 同一パテントファミリー文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日

07. 12. 2016

国際調査報告の発送日

20. 12. 2016

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)

赤澤 高之

電話番号 03-3581-1101 内線 3430

4 F

4049

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
Y	JP 2011-127058 A (日産自動車株式会社、住友化学株式会社) 2011.06.30, [特許請求の範囲]、[0020] – [0022]、実施 例 (ファミリーなし)	1, 2
Y	JP 2004-51769 A (日産自動車株式会社、サンアロマー株式会社) 2004.02.19, [特許請求の範囲]、[0016]、実施例 & US 2004/0044107 A1, claims, [0054]–[0057], examples	1, 2
Y	JP 7-53843 A (三菱油化株式会社、トヨタ自動車株式会社) 1995.02.28, [特許請求の範囲]、[0009]、[0010]、実施例 (ファミリーなし)	1, 2
Y	JP 2008-101090 A (日本ポリプロ株式会社) 2008.05.01, [特許請 求の範囲]、[0054] – [0056]、実施例 (ファミリーなし)	1, 2
Y	JP 2000-26697 A (日本ポリケム株式会) 2000.01.25, [特許請求の 範囲]、[0012]、[0013]、実施例 & WO 2000/004093 A1	1, 2
Y	JP 2013-234278 A (住友化学株式会社) 2013.11.21, [特許請求の 範囲]、[0033] – [0037]、実施例 (ファミリーなし)	1, 2
Y	JP 2009-173916 A (住友化学株式会社) 2009.08.06, [特許請求の 範囲]、[0025] – [0029]、実施例 (ファミリーなし)	1, 2
Y	JP 2008-19347 A (住友化学株式会社) 2008.01.31, [特許請求の範 囲]、[0040] – [0042]、実施例 (ファミリーなし)	1, 2
Y	JP 2010-150328 A (住友化学株式会社) 2010.07.08, [特許請求の 範囲]、[0018] – [0021]、実施例 (ファミリーなし)	1, 2