

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2009年5月14日 (14.05.2009)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2009/060738 A1

(51) 国際特許分類:

C08L 53/00 (2006.01) C08L 23/08 (2006.01)
C08K 3/00 (2006.01) C08L 23/12 (2006.01)

株式会社プライムポリマー内 Chiba (JP). 藤山 則昭 (FUJIYAMA, Noriaki) [JP/JP]; 〒2990265 千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 株式会社プライムポリマー内 Chiba (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP2008/069414

(22) 国際出願日: 2008年10月27日 (27.10.2008)

(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13番6号 五反田山崎ビル6階 鈴木国際特許事務所 Tokyo (JP).

(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2007-291908 2007年11月9日 (09.11.2007) 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, 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, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社プライムポリマー (PRIME POLYMER CO., LTD.) [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): 塚原 義暁 (TSUKAHARA, Yoshiaki) [JP/JP]; 〒2990265 千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 株式会社プライムポリマー内 Chiba (JP). 酒井 郁典 (SAKAI, Ikunori) [JP/JP]; 〒2990265 千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 株式会社プライムポリマー内 Chiba (JP). 杉本 吉男 (SUGIMOTO, Yoshio) [JP/JP]; 〒2990265 千葉県袖ヶ浦市長浦580-32 株式会社プライムポリマー内 Chiba (JP). 清水 聡子 (SHIMIZU, Satoko) [JP/JP]; 〒2990265 千葉県袖ヶ浦市長浦580-32

(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, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, NO, 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: POLYPROPYLENE RESIN COMPOSITION FOR AUTOMOTIVE MATERIAL

(54) 発明の名称: 自動車材用ポリプロピレン系樹脂組成物

(57) Abstract: A resin composition which comprises: (A-1) 14-39 wt.% propylene block copolymer which has an MFR of 1-200 g/10 min and comprises 70-95 wt.% room-temperature n-decane insolubles ($D_{\text{insol}}(1)$) and 5-30 wt.% room-temperature n-decane solubles ($D_{\text{sol}}(1)$), the $D_{\text{insol}}(1)$ having an mmmm pentad content of 97% or higher and the $D_{\text{sol}}(1)$ having a $[\eta]$ of 4-10 dL/g; (A-2) 20-60 wt.% propylene block copolymer which has an MFR of 1-200 g/10 min and comprises 70-95 wt.% room-temperature n-decane insolubles ($D_{\text{insol}}(2)$) and 5-30 wt.% room-temperature n-decane solubles ($D_{\text{sol}}(2)$), the $D_{\text{insol}}(2)$ having an mmmm pentad content of 97% or higher and the $D_{\text{sol}}(2)$ having a $[\eta]$ of 1.5-4 dL/g; (B) 5-30 wt.% ethylene/ α -olefin copolymer rubber; and (C) 10-30 wt.% inorganic filler. The polypropylene resin composition for automotive materials can give an injection-molded article which is excellent in rigidity and impact resistance, is reduced in weld and flow marks, and has an excellent appearance.

(57) 要約: (A-1) MFRが1~200 g/10分であるプロピレン系ブロック共重合体であって、室温n-デカン不溶分 ($D_{\text{insol}}(1)$) 70~95重量%と、室温n-デカン可溶分 ($D_{\text{sol}}(1)$) 5~30重量%とからなり、前記 $D_{\text{insol}}(1)$ の mmmm 分率が97%以上であり、前記 $D_{\text{sol}}(1)$ の $[\eta]$ が4~10 dL/gであるプロピレン系ブロック共重合体 14~39重量%、(A-2) MFRが1~200 g/10分であるプロピレン系ブロック共重合体であって、室温n-デカン不溶分 ($D_{\text{insol}}(2)$) 70~95重量%と、室温n-デカン可溶分 ($D_{\text{sol}}(2)$) 5~30重量%とからなり、前記 $D_{\text{insol}}(2)$ の mmmm 分率が97%以上であり、前記 $D_{\text{sol}}(2)$ の $[\eta]$ が1.5~4 dL/gであるプロピレン系ブロック共重合体 20~60重量%、(B) エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム 5~30重量%、(C) 無機充填剤 10~30重量%からなる樹脂組成物。本発明によれば、剛性、耐衝撃性に優れ、ウエルド、フローマークが少なく外観に優れた射出成形品が得られる自動車材用ポリプロピレン系樹脂組成物が提供される。

WO 2009/060738 A1

明 細 書

自動車材用ポリプロピレン系樹脂組成物

技術分野

- [0001] 本発明は、特定のポリプロピレン系樹脂組成物からなる自動車材用ポリプロピレン系樹脂組成物に関する。さらに詳しくは、剛性、耐衝撃性に優れ、ウェルドおよびフローマークの発生が少なく、外観に優れる射出成形品が得られる自動車材用の射出成形品に好適な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、剛性、耐熱性に優れる材料として広い用途を有しており、バンパー、インストルメンタルパネル(ダッシュボード)、ドアトリム、ピラーなどの自動車材用部品の素材としても広く用いられている。自動車材用部品として用いられる場合には、剛性、耐熱性、耐光性などの一般的特性に優れるとともに、耐衝撃性を向上させる必要があり、製造工程においてエチレン・プロピレンランダム共重合体を形成してブロック共重合体としたり、後添としてエチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムを添加したりすることにより、耐衝撃性を改良している。とりわけ自動車部品に利用される成形体は比較的大型で、かつ形状も複雑な部品が多い。このような大型で形状が複雑な成形体を射出成形する際、ゲート数が少ないとゲートから末端までの流動長が長くなり、流動末端付近ではフローマークと呼ばれる縞模様の外観不具合が発生しやすくなる。一方、多点ゲートを有する金型を用いて射出成形する場合は、一つのゲートからの流動長が短くなるため、フローマークの発生は軽減されるが、ウェルドと呼ばれる樹脂流動の境界線が多数発生し、これもまた成形体の外観不具合になる。

- [0003] ウェルドやフローマークは、成形体の大きさや形状あるいはゲート数だけでなく、ポリプロピレン樹脂組成物の特性とも関係が深い現象である。特開2003-041088号公報(特許文献1)では、大型成形品に対応するという観点から、ウェルドおよびフローマークなどの外観性能に優れる材料が開発されているが、ウェルドとフローマークとの外観バランスについて明確な記載が無く、十分な外観バランスが確保できるとは

言えない。

- [0004] 本発明者らは上記の課題を検討した結果、特定のポリプロピレン樹脂組成物において、射出成形した成形品のウエルドとフローマークとがともに良好である成形体を得られ、かつ、自動車材用部品として満足する機械物性、耐熱性、耐光性を達成できることを見出し、本発明に到達した。

特許文献1:特開2003-041088号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

- [0005] 本発明は、剛性、耐衝撃性に優れ、特に射出成形品のウエルドおよびフローマークの発生が少なく外観に優れ、特に自動車材用の射出成形品として良好なポリプロピレン系樹脂組成物を提供することを目的としている。

課題を解決するための手段

- [0006] 本発明に係るポリプロピレン系樹脂組成物は、
- (A-1)メルトフローレート(MFR)(230°C、2.16kg荷重)が1~200g/10分であるプロピレン系ブロック共重合体であって、プロピレン単独重合体部を主成分とする室温n-デカン不溶分(D_{insol} (1))70~95重量%と、エチレン・プロピレンランダム共重合体部を主成分とする室温n-デカン可溶分(D_{sol} (1))5~30重量%とからなり、前記 D_{insol} (1)を ^{13}C -NMRで測定したときのアイソタクチックペンタッド分率(mmmm)が97%以上であり、前記 D_{sol} (1)を135°Cデカリン溶液中で測定したときの極限粘度 $[\eta]$ が4~10dl/gであるプロピレン系ブロック共重合体 14~39重量%、
- (A-2)メルトフローレート(MFR)(230°C、2.16kg荷重)が1~200g/10分であるプロピレン系ブロック共重合体であって、プロピレン単独重合体部を主成分とする室温n-デカン不溶分(D_{insol} (2))70~95重量%と、エチレン・プロピレンランダム共重合体部を主成分とする室温n-デカン可溶分(D_{sol} (2))5~30重量%とからなり、前記 D_{insol} (2)を ^{13}C -NMRで測定したときのアイソタクチックペンタッド分率(mmmm)が97%以上であり、前記 D_{sol} (2)を135°Cデカリン溶液中で測定したときの極限粘度 $[\eta]$ が1.5~4dl/gであるプロピレン系ブロック共重合体 20~60重量%、
- (B)エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム 5~30重量%、

(C)無機充填剤 10～30重量%、

(ただし、(A-1)、(A-2)、(B)、(C)の合計は100重量%)を含む。

[0007] さらに、本発明の別の態様は、

(A-3)¹³C-NMRで測定したアイソタクチックペンタッド分率(mmmm)が97%以上、かつメルトフローレート(MFR)(230℃、2.16kg荷重)が5～500g/10分であるプロピレン単独重合体 0.1～20重量%(ただし、(A-1)、(A-2)、(A-3)、(B)、(C)の合計は100重量%)を、さらに含むポリプロピレン系樹脂組成物である。

[0008] また、本発明のポリプロピレン系樹脂組成物は、長さ350mm、幅100mm、厚み3mmの平板が成形可能で、幅方向の中央部にゲートを持ち、ゲートから流動方向直下50mmの位置にその点を中心とする直径40mm、厚み3mmの樹脂の流動を妨げる堰を設けてなる射出成形用金型を用いて射出成形をしたとき、前記の堰以降に発生するウエルドの長さを測定したウエルド長さ(a)から式(I)によって求められるウエルド消失率(α)と、フローマーク発生開始点までの長さを測定したフローマーク長さ(b)から式(II)によって求められるフローマーク発生率(β)が、式(III)の関係を満たすことが好ましい。

[0009] $\alpha = 100 - (a / 280 \times 100) \quad \dots (I)$

$$\beta = 100 - (b / 350 \times 100) \quad \dots (II)$$

$$500 \leq \alpha \times \beta \leq 2000 \quad \dots (III)$$

また、本発明の射出成形体は、前記のポリプロピレン系樹脂組成物を射出成形することにより得られ、自動車用部品として好ましく使用できる。

発明の効果

[0010] 本発明のポリプロピレン系樹脂組成物を用いることにより、射出成形においてウエルドやフローマークの発生が少なく外観に優れ、かつ機械物性の良好な射出成形体を得られる。

図面の簡単な説明

[0011] [図1]図1は、ウエルド長さおよびフローマーク長さの評価方法を説明する概念図である。

発明を実施するための最良の形態

[0012] 以下、本発明に係るポリプロピレン系樹脂組成物の各成分について説明する。

(A-1)プロピレン系ブロック共重合体

本発明に係る(A-1)プロピレン系ブロック共重合体は、プロピレン単独重合体部とエチレン・プロピレンランダム共重合体部とからなり、そのメルトフローレート(MFR) (230°C、2.16kg荷重)が1~200g/10分、好ましくは20~150g/10分、より好ましくは50~140g/10分、さらに好ましくは70~120g/10分である。

[0013] 本発明に係る(A-1)プロピレン系ブロック共重合体を、プロピレン単独重合体部を主成分とする室温n-デカン不溶分(D_{insol}(1))と、エチレン・プロピレンランダム共重合体部を主成分とする室温n-デカン可溶分(D_{sol}(1))とに分別したとき、前記D_{insol}(1)の割合は70~95重量%、好ましくは75~95重量%、さらに好ましくは82~92重量%であり、前記D_{sol}(1)の割合は5~30重量%、好ましくは5~25重量%、さらに好ましくは8~18重量%である。

[0014] 前記D_{insol}(1)は、¹³C-NMRで測定したときのアイソタクチックペンタッド分率(mmm)が97%以上である。

アイソタクチックペンタッド分率(mmmm)とは、¹³C-NMRを使用して測定されるプロピレン単独重合体分子鎖中のペンタッド単位でのアイソタクチック連鎖の割合を示す。具体的には、プロピレンモノマー単位で5個連続してメソ結合した連鎖の中心にあるプロピレンモノマー単位のメチル基の¹³C-NMRスペクトル吸収強度の、メチル炭素領域の全吸収強度に対する割合として求められる。

[0015] また、前記D_{insol}(1)は、メルトフローレート(MFR) (230°C、2.16kg荷重)が、好ましくは2~1000g/10分であり、より好ましくは20~400g/10分、更に好ましくは50~300g/10分、特に好ましくは80~250g/10分である。

[0016] 前記D_{sol}(1)は、135°Cデカリン溶液中で測定したときの極限粘度[η]が4~10dl/g、好ましくは5~9dl/gである。

また、¹³C-NMR測定から求められる前記D_{sol}(1)中の、エチレン由来の構造単位の含有率は、通常20~60モル%、好ましくは30~50モル%である。

[0017] 本発明の前記D_{sol}(1)には、本発明の目的を損なわない範囲でブテン、ヘキセンなどの公知のオレフィンや1,7-オクタジエンなどのジエン、スチレンなどのビニル化合

物由来の構造単位が含まれていてもよい。これらの中でもブテンが好ましい例として挙げられる。上記の必要に応じて用いられる、オレフィンなどの化合物由来の構造単位の含有率は、0～5モル%、好ましくは0～2モル%である。また前記D_{insol}(1)にもエチレンの他、上記化合物由来の構造単位が含まれることがある。これらの構造単位の含有率は、好ましくは0～2モル%、より好ましくは0～1モル%である。

- [0018] メルトフローレートや極限粘度が前記範囲より小さいブロック共重合体を使用すると、得られる樹脂組成物からの成形品表面にフローマークやウェルドが発生し易くなる。

(A-2)プロピレン系ブロック共重合体

本発明に係る(A-2)プロピレン系ブロック共重合体は、プロピレン単独重合体部とエチレン・プロピレンランダム共重合体部とからなり、そのメルトフローレート(MFR)(230°C、2.16kg荷重)が1～200g/10分、好ましくは20～140g/10分、より好ましくは30～140g/10分である。

- [0019] 本発明に係る(A-2)プロピレン系ブロック共重合体を、プロピレン単独重合体部を主成分とする室温n-デカン不溶分(D_{insol}(2))と、エチレン・プロピレンランダム共重合体部を主成分とする室温n-デカン可溶分(D_{sol}(2))とに分別したとき、前記D_{insol}(2)の割合は70～95重量%、好ましくは75～90重量%であり、前記D_{sol}(2)の割合は5～30重量%、好ましくは10～25重量%である。

- [0020] また、前記D_{insol}(2)は、メルトフローレート(MFR)(230°C、2.16kg荷重)が、好ましくは1～600g/10分であり、より好ましくは10～300g/10分、さらに好ましくは20～130g/10分、特に好ましくは30～100g/10分である。

- [0021] 前記D_{insol}(2)は、¹³C-NMRで測定したときのアイソタクチックペンタッド分率(mmm)が97%以上である。

前記D_{sol}(2)は、135°Cデカリン溶液中で測定したときの極限粘度[η]が1.5～4dl/g、好ましくは2～3.5dl/gである。

- [0022] また、¹³C-NMR測定から求められる前記D_{sol}(2)中のエチレン含量は、通常20～60モル%、好ましくは30～50モル%である。

本発明の前記D_{sol}(2)には、本発明の目的を損なわない範囲でブテン、ヘキセンな

どの公知のオレフィンや1, 7-オクタジエンなどのジエン、スチレンなどのビニル化合物由来の構造単位が含まれていてもよい。これらの中でもブテンが好ましい例として挙げられる。上記の必要に応じて用いられる、オレフィンなどの化合物由来の構造単位の含有率は、0～5モル%、好ましくは0～2モル%である。また、前記D_{insol} (2)にもエチレンの他、上記化合物由来の構造単位が含まれることがある。これらの構造単位の含有率は、好ましくは0～2モル%、より好ましくは0～1モル%である。

- [0023] MFRや極限粘度が前記範囲より小さいブロック共重合体を使用すると、得られる樹脂組成物からの成形品表面にフローマークやウエルドが発生し易くなる。

(A-3)プロピレン単独重合体

本発明に係る(A-3)プロピレン単独重合体は、¹³C-NMRで測定されるアイソタクチックペンタッド分率(mmmm)が97%以上であり、メルトフローレート(MFR) (230°C、2.16kg荷重)が、5～500g/10分、好ましくは15～300g/10分、より好ましくは30～200g/10分である。

- [0024] 成分(A-1)～(A-3)の製法

本発明に係る各成分(A-1)～(A-3)は、公知のチタン触媒を用いて製造することができる。チタン触媒の好ましい例としては、チタン、マグネシウム、ハロゲンの各原子を含む固体状チタン触媒成分およびアルミニウム化合物を主たる成分とする重合用固体触媒が挙げられる。

- [0025] 本発明で用いるプロピレン系ブロック共重合体(A-1)および(A-2)を製造する方法として、たとえば、特開平11-107975号公報や特開2004-262993号公報に記載されている方法に準じて、高立体規則性ポリプロピレン製造用触媒の存在下に、多段重合により製造する方法が挙げられる。すなわち、プロピレン系ブロック共重合体は、(i)マグネシウム、チタン、ハロゲンおよび電子供与体を含む固体状チタン触媒成分と、(ii)有機金属化合物触媒成分と、(iii)ドナー成分とから形成される高立体規則性ポリプロピレン製造用の重合用触媒の存在下に、第1段で実質的に水素の存在下もしくは非存在下でプロピレンを重合させるプロピレン単独重合体部を、最終的に得られるプロピレン系ブロック共重合体全体の75～95重量%製造する段と、エチレンおよびプロピレンを共重合させてエチレン・プロピレンランダム共重合体部を

、最終的に得られるプロピレン系ブロック共重合体全体の5～25重量%製造する段とを含む2段以上の多段重合により製造することができる。プロピレン系ブロック共重合体(A-1)および(A-2)のMFRおよび極限粘度 $[\eta]$ は、重合条件などを調節することで適宜調整することができ、特に制限されないが、分子量調整剤として水素を使用する方法が好ましい。

[0026] 各段の重合は、連続的に行うこともできるし、バッチ式あるいは半連続式に行うこともできるが、連続的に行うのが好ましい。また重合は、気相重合法、あるいは溶液重合、スラリー重合、バルク重合などの液相重合法など、公知の方法で行うことができる。第2段目以降の重合は、前段の重合に引き続いて、連続的に行うのが好ましい。バッチ式で行う場合、1器の重合器を用いて多段重合することもできる。

[0027] 重合媒体として、不活性炭化水素類を用いてもよく、また液状のプロピレンを重合媒体としてもよい。また、各段の重合条件は、重合温度が約 $-50\sim+200^{\circ}\text{C}$ 、好ましくは約 $20\sim100^{\circ}\text{C}$ の範囲で、また重合圧力は、常圧 $\sim 9.8\text{MPa}$ (ゲージ圧)、好ましくは約 $0.2\sim4.9\text{MPa}$ (ゲージ圧)の範囲内で適宜選択される。

[0028] また、本発明で用いるプロピレン単独重合体(A-3)は、上記の(A-1)および(A-2)を製造する方法に準じて、プロピレンのみを重合させて単段または2段以上の多段で製造することができる。

[0029] (B)エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴム

本発明に係る(B)エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムとしては、エチレン・ α -オレフィン共重合体またはエチレン・ α -オレフィン・非共役ジエン共重合体を挙げることができる。

[0030] 前記 α -オレフィンとしては、炭素数3～10の α -オレフィンが挙げられ、具体的には、たとえばプロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-オクテンなどが好ましい。また非共役ジエンとしては、5-エチリデン-2-ノルボルネン、5-プロピリデン-2-ノルボルネン、ジシクロペンタジエン、5-ビニル-2-ノルボルネン、5-メチレン-2-ノルボルネン、5-イソプロピリデン-2-ノルボルネン、ノルボルナジエンなどの環状非共役ジエン; 1,4-ヘキサジエン、4-メチル-1,4-ヘキサジエン、5-メチル-1,4-ヘキサジエン、5-メチル-1,5-ヘプタジエン、6-メチル-1,5-ヘプ

タジエン、6-メチル-1, 7-オクタジエン、7-メチル-1, 6オクタジエンなどの鎖状の非共役ジエンなどが挙げられる。

[0031] (B)エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムとしては、エチレン・プロピレン共重合体またはエチレン・ブテン共重合体が好ましく、共重合体中のプロピレンまたはブテンの含有量は、5～80重量%、好ましくは10～60重量%、より好ましくは15～50重量%である。

[0032] (B)エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムは、従来公知の方法で製造することもできるが、種々の市販品を用いることもできる。市販品としては、三井化学製タフマーAシリーズ・Hシリーズ、ダウ製Engageシリーズ、Exxon製Exactシリーズなどを好ましく使用することができる。

[0033] (C)無機充填剤

無機充填剤としては、タルク、クレー、炭酸カルシウム、マイカ、ケイ酸塩類、炭酸塩類、ガラス繊維などが挙げられるが、これらのうちタルクを用いることが好ましい。タルクとしては、レーザー解析法で測定した平均粒径が、1～10 μ m、好ましくは2～6 μ mのものが望ましい。

[0034] ポリプロピレン系樹脂組成物

本発明に係るポリプロピレン系樹脂組成物は、前記(A-1)、(A-2)、(B)、(C)成分、および必要により配合する(A-3)成分を含んでなる。本発明のポリプロピレン系樹脂組成物を構成するそれぞれの成分は、前記の組成や物性値を満たすものの中から選択するが、1つの成分として2種以上を組み合わせることもできる。たとえば、(A-1)プロピレン系ブロック共重合体として、前記の条件を満たすものを2種またはそれ以上組み合わせることもできる。

[0035] 本発明のポリプロピレン系樹脂組成物中の、前記各成分の配合割合は、(A-1)、(A-2)、(B)、(C)の合計量を100重量%としたとき、(A-1)プロピレン系ブロック共重合体の含有量が、14～39重量%、好ましくは20～35重量%であり、(A-2)プロピレン系ブロック共重合体の含有量が、20～60重量%、好ましくは30～50重量%であり、(B)エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムの含有量が、5～30重量%、好ましくは10～20重量%であり、(C)無機充填剤の含有量が、10～30重量%、好まし

くは15～25重量%である。

[0036] また、本発明のポリプロピレン系樹脂組成物に(A-3)プロピレン単独重合体をさらに用いる場合は、(A-1)、(A-2)、(A-3)、(B)、(C)の合計量を100重量%としたとき、(A-1)、(A-2)、(B)、(C)の含有量は、前記の通りであり、ポリプロピレン系樹脂組成物中の(A-3)プロピレン単独重合体の含有量は、0.1～20重量%、好ましくは0.1～10重量%である。

[0037] 本発明のポリプロピレン系樹脂組成物は、(C)無機充填剤を除いた樹脂部分のメルトフローレート(MFR)(230℃、2.16kg荷重)が、通常、1～200g/10分、好ましくは20～140g/10分、より好ましくは40～130g/10分の範囲にある。

[0038] 本発明のポリプロピレン系樹脂組成物の、樹脂部分のMFRを測定するために(C)無機充填剤を除去する方法としては、たとえば、ろ紙によって包み込んだ成分(C)を含むポリプロピレン系樹脂組成物を、さらに円筒ろ紙中に入れ、パラキシレン溶媒にて6時間ソックスレー抽出することにより、パラキシレン溶媒に不溶な成分(C)を除去し、得られた樹脂溶液からパラキシレン溶媒を除去して樹脂部分を得る方法が挙げられる。

[0039] 本発明のポリプロピレン系樹脂組成物は、以下に規定される評価方法に従って測定したとき、ウエルド長さ(a)から式(I)によって求められるウエルド消失率(α)と、フローマーク長さ(b)から式(II)によって求められるフローマーク発生率(β)が、式(III)の関係を満たす。

[0040] $\alpha = 100 - (a/280 \times 100) \quad \dots (I)$

$$\beta = 100 - (b/350 \times 100) \quad \dots (II)$$

$$500 \leq \alpha \times \beta \leq 2000 \quad \dots (III)$$

<ウエルドおよびフローマークの評価方法>

長さ350mm、幅100mm、厚み3mmの平板が成形可能で、幅方向の中央部(50mm)にゲートを持ち、ゲートから流動方向直下50mmの位置にその点を中心とする直径40mm、厚み3mmの樹脂の流動を妨げる堰を設けてなる射出成形用金型(図1参照)を用いて射出成形し、得られた平板を目視により観察し、前記の堰以降に発生するウエルドの長さ(a)とフローマーク発生開始点までのフローマーク長さ(b)を測

定する。

[0041] なお、射出成形は、M200射出成形機(名機製作所製)を用い、下記の条件で行った。

シリンダー温度:210℃

型締圧力:200ton

金型温度:20℃

射出圧力:8. 2MPa

冷却時間:20秒

ウエルド消失率(α)は、値が大きいほど外観性能が良好であり、フローマーク発生率(β)は、値が小さいほど外観性能が良好であることを示す指標である。これらの値が上記式(III)の関係を満たすことが好ましく、このような範囲の成形体は、ウエルドおよびフローマーク外観に優れた成形体であるといえる。

[0042] 従来のポリプロピレン系樹脂組成物は、(α)が大きいものは(β)も大きく、(α)が小さいものは(β)も小さい、すなわちウエルドが発生し難いものは、フローマークが発生し易く、フローマークが発生し難いものは、ウエルドが発生し易いものであった。

[0043] これに対し、前記の組成範囲で前記の各成分を配合した本発明のポリプロピレン系樹脂組成物は、 $\alpha \times \beta$ の値が上記範囲内に入るため、ウエルドとフローマークとの外観バランスに優れる成形品を得ることができる。

[0044] 前記 α および β の値は、ポリプロピレン系樹脂組成物を構成する各成分の物性値や配合量を調節することで制御することが可能である。これらの調節要素のうち、プロピレン系ブロック共重合体(A-1)および(A-2)のエチレン・プロピレンランダム共重合体部を主成分とする室温n-デカン可溶分(D_{sol})の極限粘度 $[\eta]$ が最も大きく影響する。すなわち、エチレン・プロピレンランダム共重合体部を主成分とする室温n-デカン可溶分(D_{sol})の $[\eta]$ が小さいプロピレン系ブロック共重合体を用いると α 、 β 共に大きくなる傾向にあり、逆にエチレン・プロピレンランダム共重合体部を主成分とする室温n-デカン可溶分(D_{sol})の $[\eta]$ が大きいプロピレン系ブロック共重合体を用いると α 、 β 共に小さくなる傾向にある。

[0045] 本発明においては、エチレン・プロピレンランダム共重合体部を主成分とする室温n

ーデカン可溶分(D_{sol})の $[\eta]$ の大きいプロピレン系ブロック共重合体(A-1)と、エチレン・プロピレンランダム共重合体部を主成分とする室温n-デカン可溶分(D_{sol})の $[\eta]$ の小さいプロピレン系ブロック共重合体(A-2)とを、前記比率で組み合わせる用いることにより、従来不可能であったウエルドとフローマークとの外観バランス向上が達成できたのである。

[0046] また、前記配合割合で(B)エチレン・ α -オレフィン系共重合体ゴムおよび(C)無機充填剤を用いることにより、前記の外観特性のみならず、機械的強度特性のバランスにも優れたポリプロピレン系樹脂組成物が得られる。

[0047] 本発明に係るポリプロピレン系樹脂組成物は、前記(A-1)、(A-2)、(B)、(C)成分、および必要により配合する(A-3)成分を、バンバリーミキサー、単軸押出機、2軸押出機、高速2軸押出機などの混合装置により混合または熔融混練することにより得ることができる。この際、(A-1)～(A-3)、(B)、(C)の各成分以外に、必要に応じて、耐熱安定剤、帯電防止剤、耐候安定剤、耐光安定剤、老化防止剤、酸化防止剤、脂肪酸金属塩、軟化剤、分散剤、充填剤、着色剤、滑剤、顔料などの他の添加剤を、本発明の目的を損なわない範囲で配合することができる。配合する添加剤などの混合順序は任意であり、同時に混合してもよいし、一部成分を混合した後に他の成分を混合するというような多段階の混合方法を採用することもできる。

[0048] 射出成形体

本発明の射出成形体は、前記のポリプロピレン系樹脂組成物を射出成形して得られるものであり、従来公知の射出成形装置および成形条件を採用して、種々の形状の成形品に成形して利用することができる。本発明の射出成形体は、通常200～250℃の樹脂温度で、また、得られる射出成形体の形状にもよるが、通常800～1400kg/cm²の射出圧で成形される。

[0049] 本発明のポリプロピレン系樹脂組成物は、射出成形時の流動性などの成形性に優れており、フローマークやウエルドの目立ちにくい、外観に優れた射出成形体を得ることができる。本発明の射出成形体は、特に自動車用部品として好適に使用され得る。自動車部品としては、バンパー、インストルメンタルパネル(ダッシュボード)、サイドデッキ、コンソールボックス、サイドモール、ドアトリム、ピラートリム、ステアリングコラ

ムカバーなどが挙げられる。

実施例

[0050] 次に、本発明を実施例により説明するが、本発明は、これらの実施例によって何ら限定されるものではない。

本発明における成形・各物性の測定は、次の方法にて行った。

[0051] 物性測定方法

(1) メルトフローレート(MFR)

ASTM D1238(230°C、荷重2.16kg)に従って測定した。

(2) 極限粘度 $[\eta]$

デカリン溶媒を用いて、135°Cにて測定した。すなわち、サンプル約20mgをデカリン15mlに溶解し、135°Cのオイルバス中で比粘度 η_{sp} を測定した。このデカリン溶液にデカリン溶媒を5ml追加して希釈後、同様にして比粘度 η_{sp} を測定した。この希釈操作をさらに2回繰り返し、濃度(C)を0に外挿した時の η_{sp}/C の値を極限粘度として求めた。

[0052] $[\eta] = \lim(\eta_{sp}/C) (C \rightarrow 0)$ 。

(3) 室温n-デカン可溶部量(D_{sol})

サンプル5gにn-デカン200mlを加え、145°Cにて30分間加熱し溶解した。約3時間かけて、20°Cまで冷却し、30分間放置した。その後、析出物(以下、n-デカン不溶部: D_{insol})を濾別した。濾液を約3倍量のアセトン中に入れ、n-デカン中に溶解していた成分を析出させた(析出物(A))。析出物(A)をアセトンから濾別し、析出物を乾燥した。なお、濾液側を濃縮乾固しても残渣は認められなかった。

[0053] n-デカン可溶部量は、以下の式によって求めた。

n-デカン可溶部量(wt%) = [析出物(A)重量 / サンプル重量] × 100。

(4) エチレン含量

D_{sol} 中のエチレンに由来する骨格濃度(エチレン含量)を測定するために、サンプル20~30mgを1, 2, 4-トリクロロベンゼン/重ベンゼン(2:1)溶液0.6mlに溶解後、炭素核磁気共鳴分析(^{13}C -NMR)にて測定を行った。プロピレン、エチレンの定量は、各種メチレン炭素の定量より求めた。すなわち、以下の式

[0054] [数1]

$$PP = S_{\alpha\alpha}, EP = S_{\alpha\gamma} + S_{\alpha\beta}, EE = 1/2(S_{\beta\delta} + S_{\delta\delta}) + 1/4S_{\gamma\delta}$$

を用い、以下の計算式(Eq-1)および(Eq-2)により求めた。

[0055] [数2]

$$\text{プロピレン (mol\%)} = (PP + 1/2EP) \times 100 / [(PP + 1/2EP) + (1/2EP + EE)] \quad \text{--- (Eq-1)}$$

$$\text{エチレン (mol\%)} = (1/2EP + EE) \times 100 / [(PP + 1/2EP) + (1/2EP + EE)] \quad \text{--- (Eq-2)}$$

(5) アイソタクチックペンタッド分率(mmmm)

アイソタクチックペンタッド分率(mmmm)は、 ^{13}C -NMRを使用して測定されるプロピレン単独重合体分子鎖中のペンタッド単位でのアイソタクチック連鎖の割合を示す。具体的には、サンプル20~30mgを1, 2, 4-トリクロロベンゼン/重ベンゼン(2:1)溶液0.6mlに溶解後、 ^{13}C -NMRを測定し、計算式(Eq-3)に従って計算した。

[0056] [数3]

$$\text{アイソタクチックペンタッド分率(mmmm)} = \frac{P_{\text{mmmm}}}{P_w} \quad \text{---- (Eq-3)}$$

上記式(Eq-3)において、 P_{mmmm} はプロピレンモノマー単位が5個連続してメソ結合した連鎖における第3単位目のメチル基に由来する吸収強度を示し、 P_w はプロピレン単位の全てのメチル基に由来する吸収強度を示す。なお、ピーク帰属は、Polymer, 1993, Vol34, No14, 3129-3131に従って行った。

[0057] 上記(4)、(5)のNMR測定値は、日本電子(株)製ECA500型核磁気共鳴測定装置を用い、フーリエ変換法で測定温度120°にて、45°パルス照射し、待ち時間5.5秒の条件で5,000~10,000回の測定の積算を行って得られた値である。

(6) 曲げ弾性率(FM)

ASTM D790に準拠した条件で測定した。

(7) 引張降伏点強度(TS)

ASTM D638に準拠した条件で測定した。

(8) Izod衝撃強度 (IZ) (23°C)

ASTM D256に準拠した条件で測定した。なお、試験片は、射出成形品から採取し、ノッチ付きである。

(9) ウエルド、フローマーク長さ

上述した方法で測定し、評価した。

[0058] 各成分の組成および物性値

実施例に用いたポリプロピレン系樹脂組成物の各成分は、以下に示すものである。

なお、下記(1)～(4)のプロピレン系ブロック共重合体、および(5)、(6)のプロピレン系ホモ重合体は、いずれも特開平11-107975号公報および特開2004-262993号公報に記載の方法に準じて調製したものである。

(1) プロピレン系ブロック共重合体(A-1-1)

- D_{insol} (1)量(プロピレン単独重合体部): 91重量%
- D_{sol} (1)量(プロピレン・エチレンランダム共重合体部): 9重量%
- D_{insol} (1)のアイソタクチックペンタッド分率(mmmm): 98.0
- D_{sol} (1)の極限粘度 $[\eta]$: 8dl/g
- D_{sol} (1)中のエチレン含量: 38モル%
- ブロック共重合体のMFR: 95g/10分

(2) プロピレン系ブロック共重合体(A-1-2)

- D_{insol} (1)量(プロピレン単独重合体部): 90重量%
- D_{sol} (1)量(プロピレン・エチレンランダム共重合体部): 10重量%
- D_{insol} (1)のアイソタクチックペンタッド分率(mmmm): 97.6
- D_{sol} (1)の極限粘度 $[\eta]$: 5.5dl/g
- D_{sol} (1)中のエチレン含量: 40モル%
- ブロック共重合体のMFR: 55g/10分

(3) プロピレン系ブロック共重合体(A-2-1)

- D_{insol} (2)量(プロピレン単独重合体部): 93重量%
- D_{sol} (2)量(プロピレン・エチレンランダム共重合体部): 7重量%
- D_{insol} (2)のアイソタクチックペンタッド分率(mmmm): 97.5

- D_{sol} (2)の極限粘度 $[\eta]$: 3.5dl/g
- D_{sol} (2)中のエチレン含量: 35モル%
- ブロック共重合体のMFR: 135g/10分

(4)プロピレン系ブロック共重合体(A-2-2)

- D_{insol} (2)量(プロピレン単独重合体部): 77重量%
- D_{sol} (2)量(プロピレン・エチレンランダム共重合体部): 23重量%
- D_{insol} (2)のアイソタクチックペンタッド分率(mmmm): 97.9
- D_{sol} (2)の極限粘度 $[\eta]$: 2.5dl/g
- D_{sol} (2)中のエチレン含量: 40モル%
- ブロック共重合体のMFR: 30g/10分

(5)プロピレン系ホモ重合体(A-3-1)

- アイソタクチックペンタッド分率(mmmm): 97.4
- MFR: 30g/10分

(6)プロピレン系ホモ重合体(A-3-2)

- アイソタクチックペンタッド分率(mmmm): 97.6
- MFR: 200g/10分

(7)エチレン-1-オクテン共重合体エラストマー(B-1)

ダウ社製エチレン-1-オクテン共重合体エラストマー(銘柄名:EG8842)であり、以下の特性を有する。

- MFR: 2g/10分(190°C、荷重2.16kg)
- 1-オクテン含有量: 18モル%
- 密度: 0.857g/cm³

(8)エチレン-1-オクテン共重合体エラストマー(B-2)

ダウ社製エチレン-1-オクテン共重合体エラストマー(銘柄名:EG8100)であり、以下の特性を有する。

- MFR: 2g/10分(190°C、荷重2.16kg)
- 1-オクテン含有量: 15モル%
- 密度: 0.870g/cm³

(9) エチレン-1-ブテン共重合体エラストマー (B-3)

三井化学社製エチレン-1-ブテン共重合体エラストマー (銘柄名: A-0550S) であり、以下の特性を有する。

- MFR: 0.5g/10分 (190°C、荷重2.16kg)
- 1-ブテン含有量: 20モル%
- 密度: 0.860g/cm³

(10) 微粉末タルク (C)

富士タルク社製 (銘柄名: TP-A25) であり、以下の特性を有する。

- 平均粒径: 3.5 μ m

[実施例1~4および比較例1~4]

表1に示した配合割合で成分 (A-1) ~ (C) を、ヘンシェルミキサーでドライブレンドし、二軸混練機を用いて200°Cで熔融混合後、造粒して各組成物のペレットを得た。これらの組成物ペレットを用いて、所定の試験片および角板を成形した。

[0059] 一般機械物性については、通常成形でのテストピースにて評価を行った。各水準ともに自動車材部品用として満足する機械物性を得た。上述した方法で射出成形品のウエルドおよびフローマーク外観からウエルド消失率 (α)、フローマーク発生率 (β) を算出し $\alpha \times \beta$ を求めたところ、実施例1~4は $500 \leq \alpha \times \beta \leq 2000$ を満たし、外観性能が著しく改善されたポリプロピレン系樹脂組成物を得た。

[0060] これに対し、本発明の組成範囲から外れた比較例1~4では、ウエルド消失率 (α) が高いものは、フローマーク発生率 (β) も高く、逆にウエルド消失率 (α) が低いものは、フローマーク発生率 (β) も低く、 $\alpha \times \beta$ の値が上記範囲に入らず、外観特性のバランスが悪い。

[0061] [表1]

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
A-1-1	重量部	20	35	20	20		10	40	38
A-1-2	重量部			15					
A-2-1	重量部	15				30	25		
A-2-2	重量部	28	28	29	33.5	35	29	22.5	
A-3-1	重量部				10				
A-3-2	重量部								18
B-1	重量部	8	8			7	7.5	8.25	
B-2	重量部	8	8	5	7.5	7	7.5	8.25	12
B-3	重量部			10	7.5				12
C	重量部	21	21	21	21.5	21	21	21	20
合計	重量部	100	100	100	100	100	100	100	100
MFR		34	32	31	30	33	34	32	34
FM		1950	2020	2090	2040	1880	1950	2080	2100
TS		26	26	26	26	25	26	26	27
Iz		480	480	460	450	500	460	470	480
ウェルト消失率(α)		38	21	36	30	54	46	7	3
フローマーク発生率(β)		44	27	31	29	69	54	17	12
$\alpha \times \beta$		1661	580	1121	870	3677	2520	121	36

請求の範囲

- [1] (A-1)メルトフローレート(MFR) (230°C、2. 16kg荷重)が1～200g/10分であるプロピレン系ブロック共重合体であって、プロピレン単独重合体部を主成分とする室温n-デカン不溶分(D_{insol} (1)) 70～95重量%と、エチレン・プロピレンランダム共重合体部を主成分とする室温n-デカン可溶分(D_{sol} (1)) 5～30重量%とからなり、前記D_{insol} (1)を¹³C-NMRで測定したときのアイソタクチックペンタッド分率(mmmm)が97%以上であり、前記D_{sol} (1)を135°Cデカリン溶液中で測定したときの極限粘度[η]が4～10dl/gであるプロピレン系ブロック共重合体 14～39重量%、
- (A-2)メルトフローレート(MFR) (230°C、2. 16kg荷重)が1～200g/10分であるプロピレン系ブロック共重合体であって、プロピレン単独重合体部を主成分とする室温n-デカン不溶分(D_{insol} (2)) 70～95重量%と、エチレン・プロピレンランダム共重合体部を主成分とする室温n-デカン可溶分(D_{sol} (2)) 5～30重量%とからなり、前記D_{insol} (2)を¹³C-NMRで測定したときのアイソタクチックペンタッド分率(mmmm)が97%以上であり、前記D_{sol} (2)を135°Cデカリン溶液中で測定したときの極限粘度[η]が1. 5～4dl/gであるプロピレン系ブロック共重合体 20～60重量%、
- (B)エチレン・α-オレフィン系共重合体ゴム 5～30重量%、
- (C)無機充填剤 10～30重量%、
- (ただし、(A-1)、(A-2)、(B)、(C)の合計は100重量%)を含んでなることを特徴とするポリプロピレン系樹脂組成物。
- [2] 前記ポリプロピレン系樹脂組成物が、さらに
- (A-3)¹³C-NMRで測定したアイソタクチックペンタッド分率(mmmm)が97%以上、かつメルトフローレート(MFR) (230°C、2. 16kg荷重)が5～500g/10分であるプロピレン単独重合体 0. 1～20重量%、
- (ただし、(A-1)、(A-2)、(A-3)、(B)、(C)の合計は100重量%)を含むことを特徴とする請求項1に記載のポリプロピレン系樹脂組成物。
- [3] 前記プロピレン系ブロック共重合体(A-1)の、プロピレン単独重合体部を主成分とする室温n-デカン不溶分(D_{insol} (1))のメルトフローレート(MFR) (230°C、2. 16kg荷重)が、2～1000g/10分であることを特徴とする請求項1または2に記載のポリ

プロピレン系樹脂組成物。

- [4] 長さ350mm、幅100mm、厚み3mmの平板が成形可能で、幅方向の中央部にゲートを持ち、ゲートから流動方向直下50mmの位置にその点を中心とする直径40mm、厚み3mmの樹脂の流動を妨げる堰を設けてなる射出成形用金型を用いて射出成形をしたとき、前記の堰以降に発生するウエルドの長さを測定したウエルド長さ(a)から式(I)によって求められるウエルド消失率(α)と、フローマーク発生開始点までの長さを測定したフローマーク長さ(b)から式(II)によって求められるフローマーク発生率(β)が、式(III)の関係を満たすことを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載のポリプロピレン系樹脂組成物。

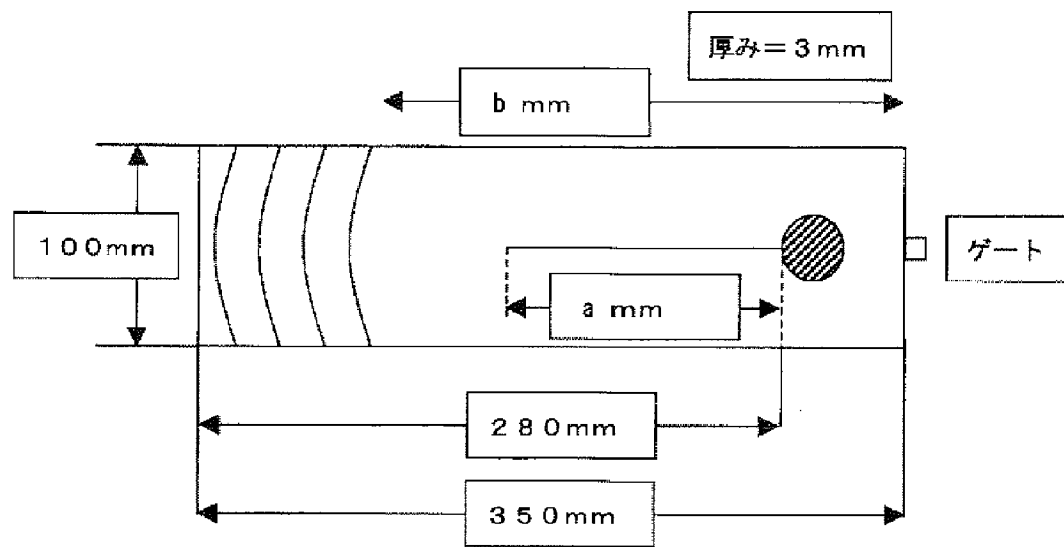
$$\alpha = 100 - (a / 280 \times 100) \quad \dots (I)$$

$$\beta = 100 - (b / 350 \times 100) \quad \dots (II)$$

$$500 \leq \alpha \times \beta \leq 2000 \quad \dots (III)$$

- [5] 請求項1～4のいずれかに記載のポリプロピレン系樹脂組成物を射出成形することにより得られる射出成形体。
- [6] 自動車用部品である、請求項5に記載の射出成形体。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/069414

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L53/00(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C08L23/08(2006.01)i, C08L23/12(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)

C08L53/00, C08K3/00, C08L23/00

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	1996-2008
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2008	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2008

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.
X Y	JP 2004-359877 A (Mitsui Chemicals, Inc.), 24 December, 2004 (24.12.04), Claim 1; Par. Nos. [0008] to [0010], [0012], [0017], [0023], [0037] & US 2007-0010622 A1	1, 3-6 2
Y	JP 2003-041088 A (Mitsui Chemicals, Inc., Toyota Motor Corp.), 13 February, 2003 (13.02.03), Claims & US 2003-0176554 A1 & EP 001400565 A1	2
Y	JP 2005-232413 A (Japan Polypropylene Corp.), 02 September, 2005 (02.09.05), Claims 2, 7, 8 & US 2005-0143510 A1 & EP 001548054 A1	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
13 January, 2009 (13.01.09)

Date of mailing of the international search report
27 January, 2009 (27.01.09)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/069414

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 2005-264017 A (Mitsui Chemicals, Inc., Toyota Motor Corp.), 29 September, 2005 (29.09.05), Claim 1; Par. No. [0047] (Family: none)	2
A	JP 2003-105163 A (Japan Polychem Corp., Toyota Motor Corp.), 09 April, 2003 (09.04.03), Claims (Family: none)	1-6

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C08L53/00(2006.01)i, C08K3/00(2006.01)i, C08L23/08(2006.01)i, C08L23/12(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 (I P C))

Int.Cl. C08L53/00, C08K3/00, C08L23/00

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 0 8 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 0 8 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 0 8 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
X Y	JP 2004-359877 A (三井化学株式会社) 2004. 12. 24, 【請求項 1】、 【0008】～【0010】、【0012】、【0017】、【0023】、 【0037】 & US 2007-0010622 A1	1, 3 - 6 2
Y	JP 2003-041088 A (三井化学株式会社、トヨタ自動車株式会社) 2003. 02. 13, 【特許請求の範囲】 & US 2003-0176554 A1 & EP 001400565 A1	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
「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

1 3 . 0 1 . 2 0 0 9

国際調査報告の発送日

2 7 . 0 1 . 2 0 0 9

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官 (権限のある職員)

川上 智昭

4 J

3 7 6 6

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

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 2005-232413 A (日本ポリプロ株式会社) 2005. 09. 02, 【請求項 2】、【請求項 7】、【請求項 8】 & US 2005-0143510 A1 & EP 001548054 A1	2
Y	JP 2005-264017 A (三井化学株式会社、トヨタ自動車株式会社) 2005. 09. 29, 【請求項 1】、【0 0 4 7】 (ファミリーなし)	2
A	JP 2003-105163 A (日本ポリケム株式会社、トヨタ自動車株式会社) 2003. 04. 09, 【特許請求の範囲】 (ファミリーなし)	1 - 6