

(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
2020年10月29日(29.10.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/217829 A1

- (51) 国際特許分類:
C08L 23/08 (2006.01) C08L 53/00 (2006.01)
C08L 23/10 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2020/013266
- (22) 国際出願日: 2020年3月25日(25.03.2020)
- (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 2019-083127 2019年4月24日(24.04.2019) JP
- (71) 出願人: 住友化学株式会社
(SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1048260 東京都中央区新川二丁目27番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 袋田 裕史 (FUKURODA, Hiroshi);
〒2990195 千葉県市原市姉崎海岸5番1号住友化学株式会社内 Chiba (JP). 真田敏春 (SANADA, Toshiharu); 〒1048260 東京都中央区新川二丁目27番1号住友化学株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 中山 亨, 外 (NAKAYAMA, Tohru et al.);
〒5418550 大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号住友化学株式会社内 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, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: PROPYLENE RESIN COMPOSITION AND MOLDED BODY

(54) 発明の名称: プロピレン樹脂組成物及び成形体

(57) Abstract: Provided is a propylene resin composition containing: (A) 30-65 parts by weight of a propylene-based polymer; (B) 10-40 parts by weight of an ethylene- α -olefin random copolymer; (C) 10-40 parts by weight of a filler; and (D) 0.1-10 parts by weight of an ethylene- α -olefin block copolymer. The total content of the components A-D is 100 parts by weight, the component D contains at most 70 weight% of a xylene soluble component at 20 °C, and the density of the component D is 0.865-0.867 g/cm³.

(57) 要約: (A) 30~65重量部のプロピレン系重合体; (B) 10~40重量部のエチレン- α -オレフィンランダム共重合体; (C) 10~40重量部の充填材; 及び (D) 0.1~10重量部のエチレン- α -オレフィンブロック共重合体、を含むプロピレン樹脂組成物であって、成分A~Dの含有量の合計が100重量部であり、20°Cにおける成分Dのキシレン可溶成分が70重量%以下であり、成分Dの密度が0.865~0.867 g/cm³である、プロピレン樹脂組成物。



WO 2020/217829 A1

明 細 書

発明の名称：プロピレン樹脂組成物及び成形体

技術分野

[0001] 本発明は、プロピレン樹脂組成物及び成形体に関する。

背景技術

[0002] プロピレン樹脂組成物からなる成形体は、自動車材料、家電材料等に用いられており、例えば、特許文献1には、結晶性ポリプロピレン、長鎖分岐型プロピレン系重合体、熱可塑性エラストマー、及び無機フィラーを含むポリプロピレン樹脂組成物が記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2011-88955号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 近年、自動車材料等に用いられる成形体は、高い寸法安定性が求められている。

[0005] そこで、本発明は、寸法安定性に優れる成形体を製造できるプロピレン樹脂組成物を提供することを目的とする。本発明はまた、寸法安定性に優れる成形体を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明は以下に関するが、それに限定されない。

[発明1]

- (A) 30～65重量部のプロピレン系重合体；
- (B) 10～40重量部のエチレン- α -オレフィンランダム共重合体；
- (C) 10～40重量部の充填材；及び
- (D) 0.1～10重量部のエチレン- α -オレフィンブロック共重合体を含むプロピレン樹脂組成物であって、

成分A～Dの含有量の合計が100重量部であり、
20℃における成分Dのキシレン可溶成分が70重量%以下であり、
成分Dの密度が0.865～0.867 g/cm³である、
プロピレン樹脂組成物。

[発明2]

成分Dのメルトフローレート（190℃、2.16kg荷重）が0.5～10g/10分である、発明1に記載のプロピレン樹脂組成物。

[発明3]

さらに成分E：

(E) 0.1～5重量部の、せん断速度61sec⁻¹におけるダイスウェル比とせん断速度6080sec⁻¹におけるダイスウェル比との差の絶対値が0.35以下であるプロピレン系重合体

を含む発明1又は2に記載のプロピレン樹脂組成物。

[発明4]

135℃における成分Eの結晶化時間が150sec以下である、発明3に記載のプロピレン樹脂組成物。

[発明5]

発明1～4のいずれか一項に記載のプロピレン樹脂組成物を含む成形体。

発明の効果

[0007] 本発明によれば、寸法安定性—具体的には線膨張係数の小さい成形体を製造できるプロピレン樹脂組成物を提供できる。本発明によればまた、寸法安定性に優れる成形体を提供できる。

図面の簡単な説明

[0008] [図1]線膨張係数評価用の射出成形体の概略図である。

[図2]耐ウエルドヒンジ性評価用の射出成形体の概略図である。

発明を実施するための形態

[0009] 定義

本明細書において、用語「プロピレン樹脂組成物」は、プロピレン系重合

体を含有する組成物を意味する。後で詳細に説明する。

本明細書において、用語「プロピレン系重合体」については後で詳細に説明する。

本明細書において、用語「 α -オレフィン」は、 α 位に炭素-炭素不飽和二重結合を有する脂肪族不飽和炭化水素を意味する。

本明細書において、用語「エチレン- α -オレフィンランダム共重合体」は、エチレンに由来する単量体単位と、C4以上（炭素原子数4以上を意味する。他の類似の表現についても同様である）の α -オレフィンに由来する単量体単位とを含有するランダム共重合体であり、プロピレンに由来する単量体単位を実質的に含まないものを意味する。後で詳細に説明する。

本明細書において、用語「ヘテロファジックプロピレン重合材料」は、プロピレンに由来する単量体単位を80重量%以上含有する重合体I（ただし、該重合体Iの全重量を100重量%とする。）と、エチレン及びC4~12の α -オレフィンからなる群より選択される少なくとも一種の α -オレフィンに由来する単量体単位とプロピレンに由来する単量体単位とを含有する重合体IIとを含む混合物を意味する。

本明細書において、用語「キシレン不溶成分（「CXIS成分」ともいう）」は、重合体に含まれるp-キシレンに不溶な成分であって、下記方法により得られる固形物を意味する：

重合体約2gを、沸騰しているp-キシレン中で2時間溶解して溶液を得、次いで、該溶液を20℃まで冷却することにより、固形物を析出させる方法。

本明細書において、用語「キシレン可溶成分（「CXS成分」ともいう）」は、重合体中の「CXIS成分」以外の成分を意味する。

本明細書において、用語「充填材」については後で詳細に説明する。

本明細書において、用語「エチレン- α -オレフィンブロック共重合体」は、エチレンに由来する単量体単位と、C4以上の α -オレフィンに由来する単量体単位とを含有するブロック共重合体であり、プロピレンに由来する

単量体単位を実質的に含まないものを意味する。後で詳細に説明する。

[0010] 本明細書において開示されている全ての数は、「約」または「概ね」という単語がそれと関連して使用されようとなかろうと、近似値である。それらは、1パーセント、2パーセント、5パーセント、または時には10～20パーセントで変動してもよい。下限 R^L および上限 R^U を伴う数値の範囲が開示されている場合はいつも、範囲に含まれる任意の数が特に開示される。特に、範囲内の下記の数が特に開示される。 $R = R^L + k * (R^U - R^L)$ （式中、 k は、1パーセントずつ増加する1パーセント～100パーセントの範囲の変数であり、すなわち、 k は、1パーセント、2パーセント、3パーセント、4パーセント、5パーセント、. . .、50パーセント、51パーセント、52パーセント、. . .、95パーセント、96パーセント、97パーセント、98パーセント、99パーセント、または100パーセントである）。さらに、上記に記載の2つの R の数によって定義される任意の数値の範囲もまた、特に開示される。

[0011] 以下、本発明のいくつかの実施形態について詳細に説明する。ただし、本発明は以下の実施形態に限定されるものではない。なお、本明細書において、数値範囲を表す「下限～上限」の記載は、「下限以上、上限以下」を表し、「上限～下限」の記載は、「上限以下、下限以上」を表す。すなわち、これらの記載は、下限及び上限を含む数値範囲を表す。

[0012] プロピレン樹脂組成物

本発明において、「プロピレン樹脂組成物（以下、単に樹脂組成物ともいう）」は、プロピレン系重合体（A）、エチレン- α -オレフィンランダム共重合体（B）、充填材（C）、及びエチレン- α -オレフィンブロック共重合体（D）とを含み、ここで成分A～Dの含有量の合計100重量部に対して、成分A～Dはそれぞれ30～65重量部、10～40重量部、10～40重量部、及び0.1～10重量部含まれる。このようなプロピレン樹脂組成物を成形することにより、寸法安定性に優れた成形体を製造できる。また、本発明のプロピレン樹脂組成物を用いれば、自動車用成形品の製造等で

一般的に採用されている射出成形のような、簡便な方法により成形体を製造できる。

[0013] 「プロピレン系重合体（A）」等以示される各成分をそれぞれ、単に「成分A」等ともいう。

[0014] 以下、各成分について説明する。

[0015] プロピレン系重合体（A）

成分Aは、プロピレンに由来する単量体単位を50重量%以上有する重合体である。ただし、成分Aの、せん断速度 61 sec^{-1} におけるダイスウェル比とせん断速度 6080 sec^{-1} におけるダイスウェル比との差の絶対値は0.35より大きい。成分Aとしては、例えば、プロピレン単独重合体、プロピレンとプロピレン以外の単量体とのランダム共重合体、及びヘテロファジックプロピレン重合材料が挙げられる。本発明のプロピレン樹脂組成物は、成分Aを1種のみ含有してもよく、2種以上含有してもよい。成分Aは、成形体の剛性と耐衝撃性との観点から、プロピレン単独重合体及びヘテロファジックプロピレン重合材料からなる群より選ばれる少なくとも一種を含むことが好ましい。

[0016] プロピレン単独重合体

成分Aがプロピレン単独重合体を含む場合、当該プロピレン単独重合体の極限粘度数（ $[\eta]$ ）は、樹脂組成物の溶融時の流動性と成形体の靱性との観点から、 $0.10\sim 2.00\text{ dL/g}$ であることが好ましく、 $0.50\sim 1.50\text{ dL/g}$ であることがより好ましく、 $0.70\sim 1.40\text{ dL/g}$ であることが更に好ましい。

[0017] 本明細書において、極限粘度数（単位： dL/g ）は、以下の方法によって、テトラリンを溶媒として用いて、温度 135°C で測定される値である。

[0018] ウベローデ型粘度計を用いて濃度 0.1 g/dL 、 0.2 g/dL 及び 0.5 g/dL の3点について還元粘度を測定する。還元粘度を濃度に対しプロットし、濃度をゼロに外挿する外挿法により、極限粘度数を求める。外挿法による極限粘度数の計算方法は、例えば、「高分子溶液、高分子実験学1

1」(1982年共立出版株式会社刊)第491頁に記載されている。

[0019] 上記プロピレン単独重合体の分子量分布(M_w/M_n)は、3.0以上であることが好ましく、4.0以上であることがより好ましい。成分Aの分子量分布は、30.0以下であってよく、25.0以下であってよい。成分Aの分子量分布は、3.0~30.0であることが好ましく、4.0~25.0であることがより好ましい。

[0020] 本明細書において、分子量分布は、下記条件のゲル・パーミエーション・クロマトグラフィー(GPC)で測定される重量平均分子量(M_w)及び数平均分子量(M_n)を用いて算出される、数平均分子量(M_n)に対する重量平均分子量(M_w)の比(M_w/M_n)をいう。

装置：東ソー株式会社製 HLC-8121 GPC/HT

分離カラム：東ソー株式会社製 GMHHR-H(S)HT 3本

測定温度：140℃

キャリア：オルトジクロロベンゼン

流量：1.0 mL/分

試料濃度：約1 mg/mL

試料注入量：400 μ L

検出器：示差屈折

検量線作成方法：標準ポリスチレンを使用

[0021] プロピレン単独重合体は、例えば、重合触媒を用いて、プロピレンを重合することにより製造できる。

[0022] 重合触媒としては、例えば、チーグラ型触媒；チーグラ型触媒；シクロペンタジエニル環を有する周期表第4族の遷移金属の化合物とアルキルアルミノキサンとからなる触媒；シクロペンタジエニル環を有する周期表第4族の遷移金属の化合物、当該遷移金属化合物と反応してイオン性の錯体を形成する化合物及び有機アルミニウム化合物からなる触媒；並びに無機粒子(シリカ、粘土鉱物等)に、触媒成分(シクロペンタジエニル環を有する周期表第4族の遷移金属の化合物、イオン性の錯体を形成する化合物、

有機アルミニウム化合物等)を担持して、変性させた触媒が挙げられる。

[0023] 上記重合触媒としては、例えば、特開昭61-218606号公報、特開平5-194685号公報、特開平7-216017号公報、特開平9-316147号公報、特開平10-212319号公報、特開2004-182981号公報等に記載の触媒を用いてもよい。

[0024] また、上記重合触媒の存在下でプロピレンを予備重合させて得られた重合体を、重合触媒として用いることもできる。

[0025] 重合方法としては、例えば、バルク重合、溶液重合、及び気相重合が挙げられる。ここで、バルク重合とは、重合温度において液状のオレフィンを媒体として重合を行う方法をいい、溶液重合とは、プロパン、ブタン、イソブタン、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン等の不活性炭化水素溶媒中で重合を行う方法をいう。また気相重合とは、気体状態の単量体を媒体として、その媒体中で気体状態の単量体を重合する方法をいう。

[0026] 重合方式としては、例えば、バッチ式、連続式及びこれらの組み合わせが挙げられる。

重合方式は、複数の重合反応槽を直列に連結させた多段式であってもよい。

[0027] 工業的及び経済的に優れる観点から、連続式の気相重合法又はバルク重合法と気相重合法とを連続的に行うバルク-気相重合法が好ましい。

[0028] 重合工程における各種条件(重合温度、重合圧力、単量体濃度、触媒投入量、重合時間等)は、目的とする重合体の分子構造に応じて、適宜決定すればよい。

[0029] 重合工程の後、重合体中に含まれる残留溶媒、製造時に副生する超低分子量のオリゴマー等を除去するために、必要に応じて重合体を、重合体が融解する温度以下の温度で乾燥してもよい。乾燥方法としては、例えば、特開昭55-75410号公報、特許第2565753号公報等に記載の方法が挙げられる。

[0030] プロピレンとプロピレン以外の単量体とのランダム共重合体

プロピレンとプロピレン以外の単量体とのランダム共重合体は、プロピレ

ンに由来する単量体単位とプロピレン以外の単量体に由来する単量体単位とを含有するものである。前記ランダム共重合体は、前記ランダム共重合体の重量を基準として、プロピレン以外の単量体に由来する単量体単位を0.01～20重量%含有することが好ましい。

[0031] プロピレン以外の単量体としては、例えば、エチレン及びC4～12の α -オレフィンが挙げられる。中でも、エチレン及びC4～10の α -オレフィンからなる群より選択される少なくとも一種が好ましく、エチレン、1-ブテン、1-ヘキセン及び1-オクテンからなる群より選択される少なくとも一種がより好ましく、エチレン及び1-ブテンからなる群より選択される少なくとも一種が更に好ましい。

[0032] 前記ランダム共重合体としては、例えば、プロピレン-エチレンランダム共重合体、プロピレン-1-ブテンランダム共重合体、プロピレン-1-ヘキセンランダム共重合体、プロピレン-1-オクテンランダム共重合体、プロピレン-エチレン-1-ブテンランダム共重合体、プロピレン-エチレン-1-ヘキセンランダム共重合体及びプロピレン-エチレン-1-オクテンランダム共重合体が挙げられる。

[0033] 成分Aがプロピレンとプロピレン以外の単量体とのランダム共重合体を含む場合、前記ランダム共重合体の極限粘度数（ $[\eta]$ ）は、樹脂組成物の溶解時の流動性の観点から、0.10～2.00 dL/gであることが好ましく、0.50～1.50 dL/gであることがより好ましく、0.70～1.40 dL/gであることが更に好ましい。

[0034] 前記ランダム重合体の分子量分布（ M_w/M_n ）は、3.0以上であることが好ましく、4.0以上であることがより好ましい。前記ランダム重合体の分子量分布は、30.0以下であってよく、25.0以下であってよい。前記ランダム重合体の分子量分布は、3.0～30.0であることが好ましく、4.0～25.0であることがより好ましい。

[0035] 前記ランダム共重合体は例えば、前記プロピレン単独重合体の製造において使用できる重合触媒、重合方法、重合方式に従って、プロピレン及びプロ

ピレン以外の単量体を重合することにより製造できる。

[0036] ヘテロファジックプロピレン重合材料

ヘテロファジックプロピレン重合材料は、例えば、重合体Ⅰを形成する第1の重合工程と、重合体ⅠⅠを形成する第2の重合工程を実施することにより製造することができる。

これらの重合工程において採用される、重合触媒、重合方法及び重合方式の例示は、上記と同様である。

ヘテロファジックプロピレン重合材料においては、ヘテロファジックプロピレン重合材料の全重量を100重量%として、ヘテロファジックプロピレン重合材料に含まれる重合体Ⅰと重合体ⅠⅠとの合計が100重量%であってよい。

[0037] 上述したように、重合体Ⅰはプロピレンに由来する単量体単位を80重量%以上含有する。重合体Ⅰは、例えば、プロピレン単独重合体であってもよく、プロピレン以外の単量体に由来する単量体単位を含んでいてもよい。重合体Ⅰが、プロピレン以外の単量体に由来する単量体単位を含む場合、この含有量は、重合体Ⅰの全重量を基準として、例えば、0.01重量%以上20重量%未満であってもよい。

[0038] プロピレン以外の単量体としては、例えば、エチレン及びC4以上の α -オレフィンが挙げられる。中でも、エチレン及びC4~10の α -オレフィンからなる群より選択される少なくとも一種が好ましく、エチレン、1-ブテン、1-ヘキセン及び1-オクテンからなる群より選択される少なくとも一種がより好ましく、エチレン及び1-ブテンからなる群より選択される少なくとも一種が更に好ましい。

[0039] プロピレン以外の単量体に由来する単量体単位を含む共重合体としては、例えば、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-1-ヘキセン共重合体、プロピレン-1-オクテン共重合体、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-ヘキセン共重合体及びプロピレン-エチレン-1-オクテン共重合体が挙

げられる。

- [0040] 重合体 I は、成形体の寸法安定性の観点から、プロピレン単独重合体、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-ブテン共重合体が好ましく、プロピレン単独重合体がより好ましい。
- [0041] 重合体 I の含有量は、ヘテロファジックプロピレン重合材料の全重量を基準として、50~99重量%であることが好ましく、60~95重量%であることがより好ましい。
- [0042] 上述したように、重合体 II はエチレン及びC4~12の α -オレフィンからなる群より選択される少なくとも一種の α -オレフィンに由来する単量体単位とプロピレンに由来する単量体単位とを含有する。好ましくは、重合体 II は、エチレン及びC4~12の α -オレフィンからなる群より選択される少なくとも一種の α -オレフィンに由来する単量体単位を30重量%以上含有し、かつ、プロピレンに由来する単量体単位を含有する。
- [0043] 重合体 II において、エチレン及びC4~12の α -オレフィンからなる群より選択される少なくとも一種の α -オレフィンに由来する単量体単位の含有量は、30~70重量%であってよく、35~60重量%であってもよい。
- [0044] 重合体 II において、エチレン及びC4~12の α -オレフィンからなる群より選択される少なくとも一種の α -オレフィンとしては、エチレン及びC4~10の α -オレフィンからなる群より選択される少なくとも一種が好ましく、エチレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-オクテン及び1-デセンからなる群より選択される少なくとも一種がより好ましく、エチレン及び1-ブテンからなる群より選択される少なくとも一種が更に好ましい。
- [0045] 重合体 II としては、例えば、プロピレン-エチレン共重合体、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-ヘキセン共重合体、プロピレン-エチレン-1-オクテン共重合体、プロピレン-エチレン-1-デセン共重合体、プロピレン-1-ブテン共重合体、プロピレ

ン-1-ヘキセン共重合体、プロピレン-1-オクテン共重合体及びプロピレン-1-デセン共重合体が挙げられる。中でも、プロピレン-エチレン共重合体、プロピレン-1-ブテン共重合体及びプロピレン-エチレン-1-ブテン共重合体が好ましく、プロピレン-エチレン共重合体がより好ましい。

[0046] 重合体Ⅰの含有量は、ヘテロファジックプロピレン重合材料の全重量を基準として、1~50重量%であることが好ましく、5~40重量%であることがより好ましい。

[0047] ヘテロファジックプロピレン重合材料中のキシレン不溶成分(CXIS成分)の含有量は、ヘテロファジックプロピレン重合材料の全重量を基準として、50~99重量%であることが好ましく、60~95重量%であることがより好ましい。

[0048] ヘテロファジックプロピレン重合材料中のキシレン可溶成分(CXS成分)の含有量は、ヘテロファジックプロピレン重合材料の全重量を基準として、1~50重量%であることが好ましく、5~40重量%であることがより好ましい。

[0049] 本発明において、ヘテロファジックプロピレン重合材料中のCXIS成分は、主として重合体Ⅰから構成され、ヘテロファジックプロピレン重合材料中のCXS成分は、主として重合体Ⅰから構成されると考えられる。

[0050] ヘテロファジックプロピレン重合材料としては、例えば、(プロピレン)-(プロピレン-エチレン)重合材料、(プロピレン)-(プロピレン-エチレン-1-ブテン)重合材料、(プロピレン)-(プロピレン-エチレン-1-ヘキセン)重合材料、(プロピレン)-(プロピレン-エチレン-1-オクテン)重合材料、(プロピレン)-(プロピレン-1-ブテン)重合材料、(プロピレン)-(プロピレン-1-ヘキセン)重合材料、(プロピレン)-(プロピレン-1-オクテン)重合材料、(プロピレン)-(プロピレン-1-デセン)重合材料、(プロピレン-エチレン)-(プロピレン-エチレン)重合材料、(プロピレン-エチレン)-(プロピレン-エチレ

ン-1-ブテン) 重合材料、(プロピレン-エチレン) - (プロピレン-エチレン-1-ヘキセン) 重合材料、(プロピレン-エチレン) - (プロピレン-エチレン-1-オクテン) 重合材料、(プロピレン-エチレン) - (プロピレン-エチレン-1-デセン) 重合材料、(プロピレン-エチレン) - (プロピレン-1-ブテン) 重合材料、(プロピレン-エチレン) - (プロピレン-1-ヘキセン) 重合材料、(プロピレン-エチレン) - (プロピレン-1-オクテン) 重合材料、(プロピレン-エチレン) - (プロピレン-1-デセン) 重合材料、(プロピレン-1-ブテン) - (プロピレン-エチレン) 重合材料、(プロピレン-1-ブテン) - (プロピレン-エチレン-1-ブテン) 重合材料、(プロピレン-1-ブテン) - (プロピレン-エチレン-1-ヘキセン) 重合材料、(プロピレン-1-ブテン) - (プロピレン-エチレン-1-オクテン) 重合材料、(プロピレン-1-ブテン) - (プロピレン-エチレン-1-デセン) 重合材料、(プロピレン-1-ブテン) - (プロピレン-1-ブテン) 重合材料、(プロピレン-1-ブテン) - (プロピレン-1-ヘキセン) 重合材料、(プロピレン-1-ブテン) - (プロピレン-1-オクテン) 重合材料、(プロピレン-1-ブテン) - (プロピレン-1-デセン) 重合材料、(プロピレン-1-ヘキセン) - (プロピレン-1-ヘキセン) 重合材料、(プロピレン-1-ヘキセン) - (プロピレン-1-オクテン) 重合材料、(プロピレン-1-ヘキセン) - (プロピレン-1-デセン) 重合材料、(プロピレン-1-オクテン) - (プロピレン-1-オクテン) 重合材料、及び(プロピレン-1-オクテン) - (プロピレン-1-デセン) 重合材料が挙げられる。

[0051] ここで、「(プロピレン) - (プロピレン-エチレン) 重合材料」との記載は、「重合体Ⅰがプロピレン単独重合体であり、重合体Ⅱがプロピレン-エチレン共重合体であるヘテロファジックプロピレン重合材料」を意味する。他の類似の表現においても同様である。

[0052] ヘテロファジックプロピレン重合材料としては、(プロピレン) - (プロピレン-エチレン) 重合材料、(プロピレン) - (プロピレン-エチレン-

1-ブテン)重合材料、(プロピレン-エチレン) - (プロピレン-エチレン)重合材料、(プロピレン-エチレン) - (プロピレン-エチレン-1-ブテン)重合材料、又は(プロピレン-1-ブテン) - (プロピレン-1-ブテン)重合材料が好ましく、(プロピレン) - (プロピレン-エチレン)重合材料がより好ましい。

[0053] 重合体 I の極限粘度数 ($[\eta] I$) は、0.10~2.00 dL/g であることが好ましく、0.50~1.50 dL/g であることがより好ましく、0.70~1.40 dL/g であることがより好ましい。

[0054] 重合体 II の極限粘度数 ($[\eta] II$) は、1.00~10.00 dL/g であることが好ましく、2.00~10.00 dL/g であることがより好ましく、2.00~9.00 dL/g であることが更に好ましい。

[0055] また、重合体 I の極限粘度数 ($[\eta] I$) に対する重合体 II の極限粘度数 ($[\eta] II$) の比 ($[\eta] II / [\eta] I$) は、1~20 であることが好ましく、1~10 であることがより好ましい。

[0056] 重合体 I の極限粘度数 ($[\eta] I$) の測定方法としては、例えば、重合体 I を形成する反応器から形成された重合体 I を抜き出し、当該重合体の極限粘度数を測定する方法が挙げられる。

[0057] 重合体 II の極限粘度数 ($[\eta] II$) は、例えば、ヘテロファジックプロピレン重合材料の極限粘度数 ($[\eta] Total$)、重合体 I の極限粘度数 ($[\eta] I$) 並びに重合体 II 及び重合体 I の含有量を用いて、下記式 (6) により算出できる。

[0058] $[\eta] II = ([\eta] Total - [\eta] I \times X I) / X II \dots (6)$

$[\eta] Total$: ヘテロファジックプロピレン重合材料の極限粘度数 (dL/g)

$[\eta] I$: 重合体 I の極限粘度数 (dL/g)

$X I$: ヘテロファジックプロピレン重合材料の全重量に対する重合体 I の重量の比 (重合体 I の重量 / ヘテロファジックプロピレン重合材料の重量)

X₁₁ : ヘテロファジックプロピレン重合材料の全重量に対する重合体₁₁の重量の比 (重合体₁₁の重量 / ヘテロファジックプロピレン重合材料の重量)

[0059] ここで、X₁、X₁₁は、重合時の物質収支から求めることができる。

[0060] なお、X₁₁は、重合体₁の融解熱量及びヘテロファジックプロピレン重合材料の融解熱量を測定し、下記式を用いて算出してもよい。

$$X_{11} = 1 - (\Delta H_f)_T / (\Delta H_f)_P$$

(ΔH_f)_T : ヘテロファジックプロピレン重合材料の融解熱量 (J / g)

(ΔH_f)_P : 重合体₁の融解熱量 (J / g)

[0061] CX₁S成分の極限粘度数 ([η] CX₁S) は、0.10~2.00 dL / gであることが好ましく、0.50~1.50 dL / gであることがより好ましく、0.70~1.40 dL / gであることがより好ましい。

[0062] CX_S成分の極限粘度数 ([η] CX_S) は、1.00~10.00 dL / gであることが好ましく、2.00~10.00 dL / gであることがより好ましく、2.00~9.00 dL / gであることが更に好ましい。

[0063] CX₁S成分の極限粘度数 ([η] CX₁S) に対するCX_S成分の極限粘度数 ([η] CX_S) の比 ([η] CX_S / [η] CX₁S) は、1~20であることが好ましく、1~10であることがより好ましい。

[0064] 重合体₁の分子量分布 (M_w(₁) / M_n(₁)) は、3.0以上であることが好ましく、4.0以上であることがより好ましい。

[0065] CX₁S成分の分子量分布 (M_w(CX₁S) / M_n(CX₁S)) は、3.0以上であることが好ましく、4.0以上であることがより好ましい。

[0066] 成分Aのアイソタクチックペンタッド分率 (mmmm分率ともいう) は、樹脂組成物からなる成形体の剛性及び寸法安定性の観点から、0.950以上であることが好ましく、0.970以上であることがより好ましい。成分Aのアイソタクチックペンタッド分率は、例えば、1.000以下であってもよい。

[0067] アイソタクチックペンタッド分率は、ペンタッド単位での、アイソタクチ

ック分率を意味する。すなわち、アイソタクチックペンタッド分率は、ペンタッド単位でみたときに、プロピレンに由来する単量体単位が5個連続してメソ結合した構造の含有割合を示す。なお、対象の成分が共重合体である場合には、プロピレンに由来する単量体単位の連鎖について測定される値をいう。

[0068] 本明細書において、アイソタクチックペンタッド分率は、 ^{13}C -NMRスペクトルで測定される値をいう。具体的には、 ^{13}C -NMRスペクトルによって得られるメチル炭素領域の全吸収ピークの面積に対するmmmmピークの面積の比を、アイソタクチックペンタッド分率とする。なお、 ^{13}C -NMRスペクトルによるアイソタクチックペンタッド分率の測定方法は、例えば、A. ZambelliらによるMacromolecules, 6, 925 (1973)に記載されている。ただし、 ^{13}C -スペクトルによって得られる吸収ピークの帰属は、Macromolecules, 8, 687 (1975)の記載に基づくものとする。

[0069] 成分Aの温度230℃、荷重2.16kgfでのメルトフローレートは、樹脂組成物の成形加工性の観点から、5g/10分以上であることが好ましく、10~300g/10分であることがより好ましい。

[0070] 本明細書において、メルトフローレートは、JIS K7210に準拠して測定される値をいう。また、メルトフローレートを、以下、MFRと記すことがある。成分(A)、成分(B)、成分(E)およびプロピレン樹脂組成物のMFRの測定温度は230℃である。成分(D)のMFRの測定温度は190℃である。

[0071] エチレン- α -オレフィンランダム共重合体(B)

成分Bにおいては、成分Bの全重量を100重量%として、成分Bに含まれるエチレンに由来する単量体単位の含有量とC4以上の α -オレフィンに由来する単量体単位の含有量との合計が100重量%であってよい。

[0072] C4以上の α -オレフィンとしては、例えば、C4~12の α -オレフィンが挙げられる。C4~12の α -オレフィンとしては、例えば、1-ブテ

ン、1-ペンテン、1-ヘキセン、4-メチル-1-ペンテン、1-オクテン及び1-デセンが挙げられる。中でも、1-ブテン、1-ヘキセン、及び1-オクテンが好ましい。上記 α -オレフィン、ビニルシクロプロパン、ビニルシクロブタンなどの環状構造を有する α -オレフィンであってよい。

[0073] 成分Bとしては、例えば、エチレン-1-ブテン共重合体、エチレン-1-ヘキセン共重合体、エチレン-1-オクテン共重合体、エチレン-1-デセン共重合体、エチレン-(3-メチル-1-ブテン)共重合体、及びエチレンと環状構造を有する α -オレフィンとの共重合体が挙げられる。

[0074] 成分Bにおいて、C4以上の α -オレフィンに由来する単量体単位の含有量は、成分Bの全重量を基準として、1~49重量%であることが好ましく、5~49重量%であることがより好ましく、24~49重量%であることが更に好ましい。

[0075] 成分Bの温度230℃、荷重2.16kgfでのメルトフローレートは、0.1~80g/10分であることが好ましい。

[0076] 成分Bの密度は、成形体の耐衝撃性の観点から、0.85~0.89g/cm³であることが好ましく、0.85~0.88g/cm³であることがより好ましく、0.85~0.87g/cm³であることが更に好ましい。

[0077] 成分Bの製造方法

成分Bは、重合触媒を用いて、エチレン及びC4以上の α -オレフィンを重合することにより製造できる。

[0078] 重合触媒としては、例えば、メタロセン触媒に代表される均一系触媒、及びチーグラ-ナッタ型触媒が挙げられる。

[0079] 均一系触媒としては、例えば、シクロペンタジエニル環を有する周期表第4族の遷移金属の化合物とアルキルアルミノキサンとからなる触媒；シクロペンタジエニル環を有する周期表第4族の遷移金属の化合物、当該遷移金属化合物と反応してイオン性の錯体を形成する化合物及び有機アルミニウム化合物からなる触媒；並びに無機粒子（シリカ、粘土鉱物等）に、触媒成分（シクロペンタジエニル環を有する周期表第4族の遷移金属の化合物、イオン

性の錯体を形成する化合物、有機アルミニウム化合物等)を担持して変性させた触媒が挙げられる。

[0080] チーグラール・ナッタ型触媒としては、例えば、チタン含有固体状遷移金属成分と有機金属成分とを組み合わせた触媒が挙げられる。

[0081] 成分Bとしては、市販品を用いてもよい。市販の成分Bとしては、例えば、ダウ・ケミカル日本株式会社製エンゲージ(登録商標)、三井化学株式会社製タフマー(登録商標)、株式会社プライムポリマー製ネオゼックス(登録商標)、ウルトゼックス(登録商標)、住友化学株式会社製エクセレンF X(登録商標)、スミカセン(登録商標)、及びエスプレンスPO(登録商標)が挙げられる。

[0082] 充填材(C)

本発明のプロピレン樹脂組成物は、充填材(C)を更に含む。

[0083] 成分Cとしては、無機充填材及び有機充填材が挙げられる。本発明のプロピレン樹脂組成物は、成分Cを1種のみ含有してもよく、2種以上含有してもよい。

[0084] 無機充填材としては、ガラス、ケイ酸塩鉱物、アルミナ、シリカ、二酸化ケイ素、酸化チタン、酸化鉄、酸化アルミニウム、酸化マグネシウム、酸化アンチモン、バリウム・フェライト、ストロンチウム・フェライト、酸化ベリリウム、水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム、塩基性炭酸マグネシウム、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、炭酸塩鉱物、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、塩基性硫酸マグネシウム、亜硫酸カルシウム、カーボンブラック及び硫化カドミウムが挙げられる。

[0085] 有機充填材としては、ポリエステル、芳香族ポリアミド、セルロース及びビニロンが挙げられる。

[0086] 充填材の形状は、板状であってよく、針状であってよく、繊維状であってよい。

[0087] 成分Cは、成形体の剛性、耐衝撃性及び寸法安定性の観点から、無機充填材が好ましく、板状ケイ酸塩鉱物であるタルクがより好ましい。

[0088] 成分Cの平均粒子径D50 [L] は、成形体の剛性、耐衝撃性及び寸法安定性の観点から、20.0 μm 以下であることが好ましく、15.0 μm 以下であることがより好ましい。成分Cの平均粒子径D50 [L] は、2.0 μm 以上であってよく、4.0 μm 以上であってよい。成分Cの平均粒子径D50 [L] は、2.0~20.0 μm が好ましく、4.0~15.0 μm がより好ましい。一態様として、成分Cの平均粒子径D50 [L] は、7.0~15.0 μm であってよい。

成分Cの平均粒子径D50 [S] は、成形体の剛性、耐衝撃性及び寸法安定性の観点から、5.0 μm 以下であることが好ましく、3.0 μm 以下であることがより好ましい。

成分Cの平均粒子径D50 [S] は、0.5 μm 以上であってよく、1.0 μm 以上であってよい。成分Cの平均粒子径D50 [S] は、0.5~5.0 μm が好ましく、1.0~3.0 μm がより好ましい。一態様として、成分Cの平均粒子径D50 [S] は、2.0~5.0 μm であってよい。

成分Cの平均粒子径D50 [L] と平均粒子径D50 [S] との比 (D50 [L] / D50 [S]) は、成形体の剛性、及び寸法安定性の観点から、1.5以上であってよく、2.5以上であってよい。D50 [L] / D50 [S] は、10以下であってよく、8以下であってよい。D50 [L] / D50 [S] は、1.5~10であってよく、1.5~8であってよく、2.5~10であってよく、2.5~8であってよい。一態様として、D50 [L] / D50 [S] は、3.0~8であってよい。

[0089] 「平均粒子径D50 [L] 」とは、JIS R1629に規定された方法に従い、レーザー回析法により測定された体積基準の粒子径分布測定データに基づいて決定されるものであり、該粒子径分布測定データにおいて、粒子径が小さい側からの粒子数の累積が50%に達したときの粒子径 (50%相当粒子径) を意味する。このように定義される粒子径は、一般に「50%相当粒子径」と称され、「D50」で表記される。

本明細書において、「平均粒子径D50 [S] 」とは、JIS R161

9に規定された方法に従い、遠心沈降法により測定された体積基準の粒子径分布測定データに基づいて決定されるものであり、該粒子径分布測定データにおいて、粒子径が小さい側からの粒子数の累積が50%に達したときの粒子径（50%相当粒子径）を意味する。

成分Cの平均粒子径D50 [L]と平均粒子径D50 [S]との比（D50 [L] / D50 [S]）が大きいほど、成形体の剛性と寸法安定性に優れる。

[0090] エチレン- α -オレフィンブロック共重合体（D）

本発明の成分Dは、キシレン可溶成分が70重量%以下であり（ただし、成分Dの全量を100重量%とする）、密度が0.865~0.867 g/cm³であるエチレン- α -オレフィンブロック共重合体である。通常、エチレン- α -オレフィンランダム共重合体のキシレン可溶成分は90重量%以上であるため、「キシレン可溶成分が70重量%以下であるエチレン- α -オレフィン共重合体」を、「エチレン- α -オレフィンブロック共重合体」とみなすことができる。

エチレン- α -オレフィンブロック共重合体は、半結晶質セグメント（「ハードセグメント」とも呼ばれる）と非晶質セグメント（「ソフトセグメント」とも呼ばれる）が共有結合しているブロックコポリマーである。セグメント中の α -オレフィンとエチレンの比を変更することによって、半結晶質セグメントと非晶質セグメントとを作り分けることができる。成分Dは、単一の重合反応器中で、異なるモノマー選択性を有する別個の2つの触媒間で成長鎖を移動させるチェーンシャトルリング剤を利用した触媒系を用いて生成される。成分Dは、INFUSEという商標で、The Dow Chemical Company, Midland, Michiganから入手可能である。

[0091] 成分Dは、2つ以上の化学的に別個の領域またはセグメント（「ブロック」とも呼ばれる）が線状、懸垂型、またはグラフト型で結合している。エチレン- α -オレフィンブロック共重合体は、マルチブロック共重合体でもよ

い。

「マルチブロックコポリマー」という用語は、線状に結合している2つ以上の化学的に別個の領域またはセグメント（「ブロック」とも呼ばれる）を含むポリマー、すなわち重合エチレン性官能基に対して、懸垂型でもグラフト型でもなくエンドツーエンドで結合している化学的に区別される単位を含むポリマーである。ブロックは、その中に組み込まれているモノマーの量またはタイプ、密度、結晶化度、このような組成物のポリマーに起因すると考えられるクリスタリットのサイズ、タクチシチーのタイプ（アイソタクチックまたはシンジオタクチック）または程度、位置規則性または位置不規則性、長鎖分岐または超分岐を含めて分岐の量、均質性、あるいは他の何らかの化学または物理的特性が異なる。マルチブロックコポリマーは、エチレン/ α -オレフィンマルチブロックコポリマーとすることができ、(a) 昇温溶出分別法（TREF）で分別したとき約40°Cから約130°Cの間で溶出する分子画分であって、少なくとも0.5および最高1のブロック指数および1.3を超える分子量分布（PDI、 M_w/M_n 、MWD）を有することを特徴とする画分、または(b) 0を超え1.0までの平均ブロック指数および1.3を超えるMWDを特徴とするものである。さらに、エチレンマルチブロックインターポリマーは典型的には、以下の特性の少なくとも1つを有する：(i) 1.3を超える分子量分布、(ii) 0.90 g/cc未満の密度、(iii) ASTM D-882-02で測定して、150メガパスカル（MPa）未満の2%割線モジュラス、(iv) 125°C未満の融点、(v) インターポリマーの重量に基づいて少なくとも10wt%で80wt%未満のオレフィン含有量、(vi) -35°C未満のTg、および(vii) 10分間当たり100グラム未満（g/10min）のメルトインデックス（MI）。マルチブロックコポリマーは、2006年3月15日出願の米国特許出願第11/376,835号に開示されており、その内容全体が、参照により本明細書に組み込まれる。プロピレン/ α -オレフィンマルチブロックコポリマーは、2007年3月15日出願の米国特許出願第1

1 / 6 8 6, 4 4 4 号に開示されており、その内容全体が、参照により本明細書に組み込まれる。

[0092] 他の実施形態では、ブロック共重合体は通常、異なるモノマー（複数可）を含む第3のタイプのブロックを有さない。また他の実施形態では、ハードセグメントおよびソフトセグメントの各々は、ブロック内に実質的にランダムに分布したモノマーまたはモノマーを有する。すなわち、ハードセグメントおよびソフトセグメントのどちらも、チップセグメントなどの、ブロックの他とは実質的に異なる組成物を有する、別々の組成の2つ以上のサブセグメント（またはサブブロック）を含まない。

[0093] マルチブロック重合体は典型的には、様々な量のハードセグメントおよびソフトセグメントを含む。ハードセグメントとは、エチレンがポリマーの重量に基づいて約95重量%超、好ましくは約98重量%超の量で存在する、重合ユニットのブロックを意味する。すなわち、ハードセグメント中のモノマー含量（エチレン以外のモノマーの含量）は、ポリマーの重量に基づいて約5重量%未満、好ましくは約2重量%未満である。いくつかの実施形態では、ハードセグメントは、全てのまたは実質的に全てのエチレンで構成される。他方、ソフトセグメントとは、モノマー含量（エチレン以外のモノマーの含量）がポリマーの重量に基づいて約5重量%超、好ましくは約8重量%超、約10重量%超、または約15重量%超である、重合ユニットのブロックを意味する。いくつかの実施形態では、ソフトセグメント中のモノマー含量は、約20重量%超、約25重量%超、約30重量%超、約35重量%超、約40重量%超、約45重量%超、約50重量%超、または約60重量%超であることができる。一態様において、成分Dはエチレン- α -オレフィンランダム共重合体のソフトセグメントを含む。

[0094] ソフトセグメントは、ブロック共重合体の総重量に対して約1重量%～約99重量%、好ましくはブロック共重合体の総重量に対して約5重量%～約95重量%、約10重量%～約90重量%、約15重量%～約85重量%、約20重量%～約80重量%、約25重量%～約75重量%、約30重量%

～約70重量%、約35重量%～約65重量%、約40重量%～約60重量%、または約45重量%～約55重量%でブロック共重合体中に存在することができる場合が多い。ハードセグメントもまた、同様の範囲で存在することができる。ソフトセグメント重量%およびハードセグメント重量%は、DSCまたはNMRから得たデータに基づいて計算することができる。このような方法および計算は、その開示の全体が参照により本明細書中に組み込まれているColin L. P. Shan、Lonnie Hazlittらの名前で2006年3月15日に出願され、The Dow Global Technologies Inc. に譲渡された、「Ethylene/ α -Olefin Block Interpolymers」という名称の同時に提出された米国特許出願第11/376,835号に開示されている。

[0095] 「結晶質」という用語は、用いられる場合、示差走査熱量測定（DSC）または同様の技術によって決定すると一次転移または結晶融点（ T_m ）を有するポリマーを意味する。

この用語は、「半結晶質」という用語と互換的に使用してもよい。「アモルファス」という用語は、示差走査熱量測定（DSC）または同様の技術によって決定すると結晶融点を欠くポリマーを意味する。

[0096] 一態様において、成分Dの密度は0.865～0.867 g/cm³であり、好ましくは0.866～0.867 g/cm³である。

[0097] 一態様において、成分Dの温度190℃、荷重2.16 kgfでのメルトフローレートは、0.5～10 g/10分であり、好ましくは1～8 g/10分である。

成分DのMFRは、樹脂組成物の成形性（流動性）の観点から0.5 g/10分以上が好ましく、得られる成形体の寸法安定性及びウエルド部の耐ヒンジ性の観点から10 g/10分以下が好ましい。

[0098] ウエルドとは、溶融された樹脂組成物が、2つのゲートから金型キャビティ内に流れ込んで溶融樹脂同士が合流する場合、あるいは金型キャビティ内

で分岐した熔融樹脂同士が合流する場合に、熔融樹脂同士が密着せずに樹脂間で発生する線状の痕である。熔融樹脂同士の密着が悪いとウエルド部の耐ヒンジ性が悪化し、割れやすくなる。

[0099] 特性 I を有するプロピレン系重合体 (E)

成分 E は、プロピレンに由来する単量体単位を 50 重量%以上有する重合体であって、せん断速度 61 sec^{-1} におけるダイスウェル比とせん断速度 6080 sec^{-1} におけるダイスウェル比との差の絶対値が 0.35 以下である (特性 I) 重合体である。本発明のプロピレン樹脂組成物は、寸法安定性またはウエルド部の耐ヒンジ性の観点から、成分 E を含むことが好ましい。

通常、プロピレン系重合体が長鎖分岐を有する場合、該プロピレン系重合体は特性 I を有する。

[0100] 長鎖分岐とは、主鎖の炭素原子数が数十個又はそれ以上である分子鎖による分岐構造を言う。1-ブテンなどの α -オレフィンと共重合を行うことにより形成される炭素数数個の短鎖分岐とは区別される。

[0101] 成分 E としては、長鎖分岐プロピレン重合体 (E1)、プロピレン重合体部分及びエチレン・プロピレンランダム共重合体部分からなる長鎖分岐プロピレン-エチレンブロック共重合体 (E2)、並びに長鎖分岐プロピレン-エチレンランダム共重合体 (E3) からなる群から選ばれる少なくとも一種の長鎖分岐プロピレン系重合体が挙げられる。

[0102] 特性 I

成分 E の、せん断速度 61 sec^{-1} におけるダイスウェル比とせん断速度 6080 sec^{-1} におけるダイスウェル比との差の絶対値が 0.35 以下であり、好ましくは 0.2 以下であり、より好ましくは 0.1 以下である。

[0103] 各せん断速度におけるダイスウェル比は次の方法により求められる。キャピラリーの直径 (D) 1 mm、キャピラリーの長さ (L) 40 mm、すなわち $L/D = 40$ のキャピラリーを備えたキャピラリーレオメーター (例えば株式会社東洋精機製作所製 Capilograph 1D) を用い、試験温

度220℃、せん断速度61sec⁻¹（ピストンの押し下げスピード5mm/min）にて、溶融させた試料をキャピラリーの出口から押し出し、ストランドを作製する。キャピラリーの出口から、鉛直方向下方に12mmの箇所のストランドの直径をレーザーにより測定する。ダイスウェル比は、下記式により表される。

ダイスウェル比＝ストランドの直径（mm）／キャピラリーの直径（mm）

同様に、試験温度220℃、せん断速度6080sec⁻¹（ピストンの押し下げスピード500mm/min）にて、溶融させた試料を押し出し、せん断速度6080sec⁻¹におけるダイスウェル比を求める。

[0104] 各せん断速度におけるダイスウェル比を求めた後、せん断速度61sec⁻¹におけるダイスウェル比とせん断速度6080sec⁻¹におけるダイスウェル比との差の絶対値を算出する。ダイスウェル比の差の絶対値Δは下記式により表される。

$$\Delta = | (\text{せん断速度}6080\text{sec}^{-1}\text{におけるダイスウェル比}) - (\text{せん断速度}61\text{sec}^{-1}\text{におけるダイスウェル比}) |$$

成分Eの、せん断速度61sec⁻¹におけるダイスウェル比は、好ましくは1.7以上であり、より好ましくは1.9以上である。

[0105] 好ましくは、成分Eは下記特性ⅠⅠ～ⅠⅠⅠの少なくとも1つを有する。

特性ⅠⅠ：メルトフローレート（MFR）（230℃、2.16kg荷重）が0.1～10g/10分である。

特性ⅠⅠⅠ：135℃における結晶化時間が150sec以下である。

[0106] 特性ⅠⅠ

成分EのMFR（230℃、2.16kg荷重）は、0.1～10g/10分であり、好ましくは0.1～9g/10分、より好ましくは1～9g/10分である。

樹脂組成物の流動性（成形性）の観点から、成分EのMFRは好ましくは0.1g/10分以上である。一方、糸引き防止性および物性バランス（衝撃強度）の観点から、成分EのMFRは好ましくは10g/10分以下であ

る。

[0107] 成分EのMFR値は、JIS K7210に記載の方法（測定温度：230℃、荷重：2.16kg）で測定される。

[0108] 特性III

成分Eの、135℃における結晶化時間が150sec以下であり、好ましくは145sec以下であり、より好ましくは140sec以下である。

プロピレン系重合体の長鎖分岐の数を多くすると、前記結晶化時間を短くすることができる。

[0109] 結晶化速度（結晶化時間、 $T1/2$ 、単位：秒）

示差走査熱量計（パーキンエルマー社製DSC V11型）を用いて測定した。測定条件は、あらかじめ試片10mgを窒素雰囲気下におき結晶化温度135℃の条件で10分間等温結晶化を行い、得られた吸熱カーブのピークの半値幅を結晶化時間として測定した。結晶化時間が短いほど、結晶化速度が速いことを示す。

[0110] 成分Eの製造方法

分岐は通常、特定の触媒すなわち特定のシングルサイト触媒を用いて、または化学修飾によって達成されうる。特定の触媒を用いて得られる分岐ポリプロピレンの調製に関しては、欧州特許第1892264号が参照される。化学修飾によって得られる分岐ポリプロピレンに関しては、欧州特許出願公開第0879830A1にゆだねられる。このような場合、分岐ポリプロピレンは高熔融強度ポリプロピレンとも呼称される。本発明による高熔融強度ポリプロピレン（HMS-PP）は、以下にさらに詳述するようにポリプロピレン（PP；polypropylene）の化学修飾により得られる。HMS-PPは、Borealis AGからDaploy（商標）や日本ポリプロ株式会社からWAYMAX（商標）の商品名で市販される。

[0111] 各成分の含有量

本発明のプロピレン樹脂組成物において、成分Aの含有量は、成形体の寸法安定性（線膨張係数）の観点から、成分A～Dの含有量の合計100重量

部に対して、30～65重量部であり、40～65重量部であってよく、40～60重量部であってもよい。

[0112] 本発明のプロピレン樹脂組成物において、成分Bの含有量は、成形体の寸法安定性（線膨張係数）の観点から、成分A～Dの含有量の合計100重量部に対して、10～40重量部であり、10～30重量部であってよく、10～25重量部であってもよい。

[0113] 本発明のプロピレン樹脂組成物において、成分Cの含有量は、成形体の寸法安定性（線膨張係数）の観点から、成分A～Dの含有量の合計100重量部に対して、10～40重量部であり、10～35重量部であってよく、15～25重量部であってもよい。一態様において、成分Cの含有量は、弾性率の観点から、成分A～Dの含有量の合計100重量部に対して、25～35重量部であってよく、30～35重量部であってもよい。

[0114] 本発明のプロピレン樹脂組成物において、成分Dの含有量は、成形体の寸法安定性（線膨張係数）及び耐ヒンジ性の観点から、成分A～Dの含有量の合計100重量部に対して、0.1～10重量部であり、1～10重量部であってよく、2～8重量部であってもよい。

[0115] 本発明のプロピレン樹脂組成物が成分Eを含む場合、耐ヒンジ性、成形性（流動性）及び寸法安定性（線膨張係数）のバランスの観点から、成分Eの含有量が、成分A～Dの含有量の合計100重量部に対して5重量部以下であることが好ましく、0.1～5重量部であってよく、0.5～4重量部であってもよく、1～3重量部であってもよい。

[0116] 本発明のプロピレン樹脂組成物の全重量を基準として、成分A～Dの含有量の合計又は成分A～Eの含有量の合計が50重量%以上であることが好ましい。

[0117] プロピレン樹脂組成物の製造方法

本発明のプロピレン樹脂組成物は、各原料成分を溶融混練することによって得ることができる。溶融混練時の温度は、180℃以上であってよく、180～300℃であってもよく、180～250℃であってもよい。

- [0118] 溶融混練には、バンバリーミキサー、単軸押出機、二軸同方向回転押出機等が使用できる。
- [0119] 各原料成分の混練順序は特に限定されるものではない。例えば、成分A～D（又は成分A～E）を一括に混練してもよく、成分A～D（又は成分A～E）のうち、一部の成分を混練した後、得られた混練物と他の成分とを混練してもよい。
- [0120] プロピレン樹脂組成物の形状に特に制限はないが、プロピレン樹脂組成物は、例えば、ストランド状、シート状、平板状又はペレット状の形態であってもよい。ペレット状の樹脂組成物は、例えば、ストランド状の樹脂組成物を形成した後、これを適当な長さに裁断することにより製造できる。
- [0121] 樹脂組成物の成形加工性、及び、成形体を製造する場合の生産安定性の観点から、成形体に成形加工する前の樹脂組成物の形状は、長さが1～50mm程度のペレット状であることが好ましい。
- [0122] 本発明のプロピレン樹脂組成物は、上記以外の成分を含んでいてよい。このような成分としては、例えば、中和剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、造核剤、滑剤、帯電防止剤、アンチブロッキング剤、加工助剤、有機系過酸化物、着色剤（無機顔料、有機顔料、顔料分散剤等）、発泡剤、発泡核剤、可塑剤、難燃剤、架橋剤、架橋助剤、高輝度化剤、抗菌剤及び光拡散剤が挙げられる。造核剤としては、例えば、リチウムベンゾエート、ナトリウムベンゾエート、アルミニウムベンゾエート、4-第三ブチル安息香酸アルミニウム塩、アジピン酸ナトリウム等のカルボン酸金属塩；ナトリウムビス（4-第三ブチルフェニル）ホスフェート、前記一般式（1）で表される化合物以外の酸性リン酸エステル金属塩；ジベンジリデンソルビトール、ビス（メチルベンジリデン）ソルビトール、ビス（ジメチルベンジリデン）ソルビトール等の多価アルコール誘導体等が挙げられる。これらの造核剤の中でも、寸法安定性の観点から、カルボン酸金属塩、ビス（ジメチルベンジリデン）ソルビトールであることが好ましい。本発明のプロピレン樹脂組成物は、これらの成分を1種のみ含有してもよく、2種以上含有してもよい。

本発明のプロピレン樹脂組成物が造核剤を含む場合、寸法安定性の観点から、造核剤の含有量が、成分A～Dの含有量の合計100重量部に対して、0.01～1.0重量部であってよく、0.05～0.5重量部であっててもよく、0.1～0.5重量部であっててもよい。

[0123] プロピレン樹脂組成物の性質

一態様において、本発明のプロピレン樹脂組成物のメルトフローレート（温度230℃、荷重2.16kgf）は、15～70g/10分であることが好ましく、25～65g/10分であってよく、35～60g/10分であっててもよい。成形加工性の観点から、プロピレン樹脂組成物のMFRは15g/10分以上が好ましい。得られる成形体の衝撃強度の観点から、プロピレン樹脂組成物のMFRは70g/10分以下が好ましい。

一態様において、本発明のプロピレン樹脂組成物のメルトフローレート（温度230℃、荷重2.16kgf）は、寸法安定性の観点から、15～50g/10分であることが好ましく、15～35g/10分であってよく、15～30g/10分であっててもよい。

[0124] 一態様において、本発明のプロピレン樹脂組成物の密度は、1.1g/cm³以下が好ましく、1.08g/cm³以下がより好ましく、1.06g/cm³以下がさらに好ましい。

一態様において、本発明のプロピレン樹脂組成物の密度は、寸法安定性の観点から、1.08～1.2g/cm³が好ましく、1.1～1.18g/cm³がより好ましい。

[0125] 本発明のプロピレン樹脂組成物の密度は、JIS K7112に記載のA法である水中置換法にて測定される。

[0126] 本発明のプロピレン樹脂組成物の曲げ弾性率は、JIS K7171に規定された方法に従って、測定した。上記射出成形体の製造（1）の方法により成形された、厚みが4.0mmである試験片を用いて、スパン長さが64mm、荷重速度は2.0mm/分で、測定温度は23℃で測定した。

[0127] 本発明のプロピレン樹脂組成物は、成形して成形体を形成させるための材料として用いることができる。本発明のプロピレン樹脂組成物は、射出成形用材料として用いることが好ましい。以下、本発明のプロピレン樹脂組成物を射出成形用材料として用いて製造される射出成形体の一例について説明する。

[0128] 成形体

本発明の成形体は、本発明のプロピレン樹脂組成物からなる。本発明の成形体は寸法安定性に優れる。成形体は射出成形体が好ましい。一態様において、本発明に係る射出成形体はウエルド部が割れにくく、耐ヒンジ性に優れる。

[0129] 上記射出成形体は、射出成形法により製造できる。射出成形法としては、例えば、一般的な射出成形法、射出発泡成形法、超臨界射出発泡成形法、超高速射出成形法、射出圧縮成形法、ガスアシスト射出成形法、サンドイッチ成形法、サンドイッチ発泡成形法、及びインサート・アウトサート成形法が挙げられる。射出成形体の形状に特に制限はない。

[0130] 本発明の射出成形体は、例えば、自動車材料用途、家電材料用途、及びコンテナ用途に好ましく用いることができ、中でも、自動車内外装用途に好適である。自動車内外装部品としては、例えば、ドアトリム、ピラー、インストルメントパネル及びバンパーが挙げられる。

実施例

[0131] 以下、実施例を挙げて本発明について更に具体的に説明する。ただし、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

[0132] 実施例及び比較例では、以下の原料を使用した。

[0133] [成分A：プロピレン系重合体]

成分Aとして下記プロピレン系重合体（BCPP1、BCPP2、BCPP3、BCPP4、HOMOPP1、HOMOPP2）を準備した。

[0134] BCPP1：（プロピレン）－（プロピレン－エチレン）重合材料
ブラスケム社製「C7100-50NA」

MFR (温度230℃、2.16kgf荷重で測定) : 52g/10分
極限粘度数 : ($[\eta]$ C X I S) 0.95 dL/g、($[\eta]$ C X S) 1
. 61 dL/g

アイソタクチックペンタッド分率 : 0.9615

C X I S 成分量 : 74.3 重量%

C X I S 成分のMw/Mn : 4.4

C X S 成分量 : 25.7 重量%

プロピレン-エチレンランダム共重合体中のエチレン含量 : 48.9 重量
%

せん断速度6080 sec⁻¹の時のダイスウェル比 : 1.35

せん断速度61 sec⁻¹の時のダイスウェル比 : 0.94

ダイスウェル比の差 : 0.41

[0135] B C P P 2 : (プロピレン) - (プロピレン-エチレン) 重合材料

特開2004-182981号公報の実施例1に記載の方法によって得られる重合触媒の存在下、気相重合法によって製造した。

MFR (温度230℃、2.16kgf荷重で測定) : 129g/10分

極限粘度数 : ($[\eta]$ C X I S) : 1.02 dL/g、($[\eta]$ C X S)
3.96 dL/g

アイソタクチックペンタッド分率 : 0.9842

C X I S 成分量 : 93.6 重量%

C X I S 成分のMw/Mn : 6.3

C X S 成分量 : 6.4 重量%

プロピレン-エチレンランダム共重合体中のエチレン含量 : 39.0 重量
%

せん断速度6080 sec⁻¹の時のダイスウェル比 : 1.80

せん断速度61 sec⁻¹の時のダイスウェル比 : 0.94

ダイスウェル比の差 : 0.86

[0136] B C P P 3 : (プロピレン) - (プロピレン-エチレン) 重合材料

特開2004-182981号公報の実施例1に記載の方法によって得られる重合触媒の存在下、気相重合法によって製造した。

MFR (温度230℃、2.16kgf荷重で測定) : 43g/10分

極限粘度数 : ([η] C X I S) 1.15 dL/g、([η] C X S) :
1.80 dL/g

アイソタクチックペンタッド分率 : 0.9843

C X I S 成分量 : 81.1 重量%

C X I S 成分のMw/Mn : 6.8

C X S 成分量 : 18.9 重量%

プロピレン-エチレンランダム共重合体中のエチレン含量 : 49.5 重量
%

せん断速度6080 sec⁻¹の時のダイスウェル比 : 1.98

せん断速度61 sec⁻¹の時のダイスウェル比 : 1.25

ダイスウェル比の差 : 0.73

[0137] B C P P 4 : (プロピレン) - (プロピレン-エチレン) 重合材料

特開2004-182981号公報の実施例1に記載の方法によって得られる重合触媒の存在下、気相重合法によって製造した。

MFR (温度230℃、2.16kgf荷重で測定) : 18g/10分

極限粘度数 : ([η] C X I S) : 1.15 dL/g、([η] C X S)
7.60 dL/g

アイソタクチックペンタッド分率 : 0.9832

C X I S 成分量 : 75.7 重量%

C X I S 成分のMw/Mn : 6.8

C X S 成分量 : 24.3 重量%

プロピレン-エチレンランダム共重合体中のエチレン含量 : 41.1 重量
%

せん断速度6080 sec⁻¹の時のダイスウェル比 : 2.17

せん断速度61 sec⁻¹の時のダイスウェル比 : 1.48

ダイスウェル比の差：0.69

[0138] HOMOPP1：プロピレン単独重合体

特開2004-182981号公報の実施例1に記載の方法によって得られる重合触媒の存在下、気相重合法によって製造した。

MFR（温度230℃、2.16kgf荷重で測定）：107g/10分

極限粘度数（ $[\eta]$ ）：0.92dL/g

アイソタクチックペンタッド分率：0.9811

M_w/M_n ：5.4

せん断速度6080 sec^{-1} の時のダイスウェル比：1.54

せん断速度61 sec^{-1} の時のダイスウェル比：0.83

ダイスウェル比の差：0.71

[0139] HOMOPP2：プロピレン単独重合体

特開2004-182981号公報の実施例1に記載の方法によって得られる重合触媒の存在下、気相重合法によって製造した。

MFR（温度230℃、2.16kgf荷重で測定）：139g/10分

極限粘度数（ $[\eta]$ ）：1.04dL/g

アイソタクチックペンタッド分率：0.9843

M_w/M_n ：7.0

せん断速度6080 sec^{-1} の時のダイスウェル比：2.22

せん断速度61 sec^{-1} の時のダイスウェル比：1.12

ダイスウェル比の差：1.10

[0140] BCPP1～4において、「プロピレン-エチレンランダム共重合体中のエチレン含量」は、重合体II中のエチレン含量（重合体IIの全重量を基準とした、エチレンに由来する単量体単位の含有量）を示す。

[0141] MFR、極限粘度数及びアイソタクチックペンタッド分率は上述した方法に従って測定し、CXIS成分及びCXS成分の含有量、重合体II中のエチレン含量及び分子量分布は、以下の方法により算出した。

[0142] CXIS成分及びCXS成分の含有量

ヘテロファジックプロピレン重合材料を2g秤量し（以下、「ヘテロファジックプロピレン重合材料の重量」を「a」とする）、沸騰キシレンで2時間加熱溶解した。次いで、20℃まで冷却した後、ろ紙を用いてろ別した。ろ別したろ液を、ロータリーエバポレーターで減圧濃縮して、CXS成分を得た。得られたCXS成分を秤量した（以下、「CXS成分の重量」を「b」とする）。ヘテロファジックプロピレン重合材料中のCXIS成分及びCXS成分の含有量は、数値a及びbを用いて下記式により算出した。また、ろ紙上に残った固形物を真空乾燥することにより、CXIS成分を得た。得られたCXIS成分は、分子量分布の評価に用いた。

$$\text{CXS成分量（重量％）} = (b/a) \times 100$$

$$\text{CXIS成分量（重量％）} = 100 - \text{CXS成分量（重量％）}$$

[0143] 重合体ⅠⅠ中のエチレン含量

重合体ⅠⅠ中のエチレン含量は、下記の条件で測定した¹³C-NMRスペクトルから、Kakugoらの報告（*Macromolecules*, 15, 1150-1152 (1982)）に基づいて求めた。¹³C-NMRスペクトルは、直径10mmの試験管中でヘテロファジックプロピレン重合材料約200mgを3mLのオルソジクロロベンゼンに均一に溶解させた試料を用い、下記条件で測定した。

測定温度：135℃

パルス繰り返し時間：10秒

パルス幅：45°

積算回数：2500回

[0144] 分子量分布

プロピレン単独重合体の分子量分布については、プロピレン単独重合体の重量平均分子量（ $M_w(A)$ ）及び数平均分子量（ $M_n(A)$ ）をGPCにより測定し、 M_n に対する M_w の比（ M_w/M_n ）を算出することにより求めた。CXIS成分の分子量分布については、上述の操作で得られたCXIS成分の重量平均分子量（ $M_w(A)$ ）及び数平均分子量（ $M_n(A)$ ）を

GPCにより測定し、Mnに対するMwの比(Mw/Mn)を算出することにより求めた。なお、GPCの測定条件は上述のとおりである。

[0145] 成分B：エチレン- α -オレフィンランダム共重合体

成分Bとして下記エチレン- α -オレフィンランダム共重合体(EBR及びEOR1)を準備した。なお、MFR並びにCXS成分及びCXS成分の含有量は上述した方法に従って測定した。

[0146] EBR：エチレン-1-ブテンランダム共重合体

ダウ・ケミカル社製「ENR7467」

密度：0.862 g/cm³

MFR (温度230℃、2.16 kgf 荷重で測定)：2.5 g/10分

CXS成分量：0.0重量%

CXS成分量：100.0重量%

[0147] EOR1：エチレン-1-オクテンランダム共重合体

ダウ・ケミカル社製「EG8842」

密度：0.857 g/cm³

MFR (温度230℃、2.16 kgf 荷重で測定)：2.7 g/10分

CXS成分量：1.4重量%

CXS成分量：98.6重量%

[0148] 成分C：充填材

成分Cとして下記充填材(TALC1及び2)を準備した。

[0149] TALC1：タルク

Imerys製「Jetfine 3CA」

平均粒子径D50 [L] (レーザー回析法、50%相当粒子径)：4.39 μ m

平均粒子径D50 [S] (遠心沈降法、50%相当粒子径)：1.73 μ m

[0150] TALC2：タルク

Imerys製「HAR T84」

平均粒子径D50 [L] (レーザー回折法、50%相当粒子径) : 12.60 μm

平均粒子径D50 [S] (遠心沈降法、50%相当粒子径) : 3.47 μm

[0151] ここで、タルクの平均粒子径D50 [L] は、日機装株式会社製 マイクロトラック粒度分析計MT-3300EXIIを用い、JIS R1629に規定された方法に従って、下記の条件にて粒子を分散させたのち、測定した。

[0152] 粒子の分散処理

分散媒 : エタノール

装置 : ホモジナイザー

出力 : 40W

処理時間 : 10分

[0153] また、D50 [S] は、株式会社島津製作所製 遠心沈降式粒度分布測定装置SA-CP3を用い、JIS R1619に規定された方法に従って、下記の条件にて粒子を分散させたのち、測定した。

[0154] 粒子の分散処理

分散媒 : エタノール

装置 : 本多電子株式会社製 W-113MkII

出力 : 110W 24kHz

処理時間 : 10分

[0155] 成分D : エチレン- α -オレフィンブロック共重合体

成分Dとして下記エチレン- α -オレフィンブロック共重合体(OBC1)を準備した。なお、MFR並びにCXIS成分及びCXS成分の含有量は上述した方法に従って測定した。

[0156] OBC1 : エチレン1-オクテンブロック共重合体

ダウ・ケミカル社製「INFUSE D9507」

密度 : 0.866 g/cm³

MFR (温度190°C、2.16kgf荷重で測定) : 5g/10分

CXIS成分量 : 40.3重量%

CXS成分量 : 59.7重量%

[0157] OBC2 : エチレン1-オクテン-ブロック共重合体

ダウ・ケミカル社製「INFUSE D9100」

密度 : 0.877g/cm³

MFR (温度190°C、2.16kgf荷重で測定) : 1g/10分

CXIS成分量 : 82.8重量%

CXS成分量 : 17.2重量%

[0158] 成分E : 特性Iを有するプロピレン系重合体

成分Eとして下記プロピレン系重合体(HMS1)を準備した。なお、MFR及び分子量分布は上述した方法に従って測定した。結晶化時間及びダイスウェル比の差の絶対値は、以下の方法により測定した。

[0159] HMS1 : プロピレン単独重合体

ボレアリス製「WB140HMS」

MFR (温度230°C、2.16kgf荷重で測定) : 1.8g/10分

Mw/Mn : 4.7

せん断速度6080sec⁻¹の時のダイスウェル比 : 2.22

せん断速度61sec⁻¹の時のダイスウェル比 : 2.18

ダイスウェル比の差の絶対値 : 0.04

結晶化時間 : 132sec

[0160] HMS2 : プロピレン単独重合体

日本ポリプロ株式会社製「MFX8」

MFR (温度230°C、2.16kgf荷重で測定) : 1.0g/10分

Mw/Mn : 4.1

せん断速度6080sec⁻¹の時のダイスウェル比 : 2.15

せん断速度61sec⁻¹の時のダイスウェル比 : 2.24

ダイスウェル比の差の絶対値 : 0.09

結晶化時間：639 sec

[0161] HMS3：プロピレン単独重合体

日本ポリプロ株式会社製「MF X3」

MFR（温度230℃、2.16 kgf 荷重で測定）：8.9 g / 10分

Mw / Mn：3.4

せん断速度6080 sec⁻¹の時のダイスウェル比：2.10

せん断速度61 sec⁻¹の時のダイスウェル比：1.93

ダイスウェル比の差の絶対値：0.17

結晶化時間：848 sec

[0162] HMS4：（プロピレン）－（プロピレン－エチレン）重合材料

日本ポリプロ株式会社製「EX8000」

MFR（温度230℃、2.16 kgf 荷重で測定）：1.3 g / 10分

Mw / Mn：6.8

CXS成分量：94.5重量%

CXS成分量：5.5重量%

せん断速度6080 sec⁻¹の時のダイスウェル比：2.15

せん断速度61 sec⁻¹の時のダイスウェル比：1.97

ダイスウェル比の差：0.18

結晶化時間：481 sec

[0163] 結晶化時間（T1 / 2、単位：秒）

示差走査熱量計（パーキンエルマー社製DSC V11型）を用いて測定した。測定条件は、あらかじめ試験片10mgを窒素雰囲気下におき結晶化温度135℃の条件で10分間等温結晶化を行い、得られた吸熱カーブのピークの半値幅を結晶化時間として測定した。

[0164] ダイスウェル比の差の絶対値Δの測定法（単位：－）

キャピラリーの直径（D）1mm、キャピラリーの長さ（L）40mm、すなわちL / D = 40のキャピラリーを備えたキャピラリーレオメーター（株式会社東洋精機製作所製Capilograph 1D）を用い、試験温

度220℃、せん断速度61sec⁻¹（ピストンの押し下げスピード5mm/min）およびせん断速度6080sec⁻¹（ピストンの押し下げスピード500mm/min）にて、熔融させた組成物をキャピラリーの出口から押し出し、ストランドを作製した。キャピラリーの出口から、鉛直方向下方に12mmの箇所のストランドの直径をレーザーにより測定した。各せん断速度におけるダイスウェル比は、下記式により表される。

ダイスウェル比 = ストランドの直径 (mm) / キャピラリーの直径 (mm)

各せん断速度におけるダイスウェル比を求めた後、せん断速度61sec⁻¹におけるダイスウェル比と、せん断速度6080sec⁻¹におけるダイスウェル比との差の絶対値を算出した。

すなわちダイスウェル比の差の絶対値Δは下記式により表される。

$$\Delta = | (\text{せん断速度} 6080 \text{ sec}^{-1} \text{の時のダイスウェル比}) - (\text{せん断速度} 61 \text{ sec}^{-1} \text{の時のダイスウェル比}) |$$

[0165] その他成分として、本発明の実施例9及び実施例10は、造核剤である1, 2-シクロヘキサンジカルボン酸カルシウム塩（含有量66重量%）（ミリケン・ジャパン（株）製 Hyperform HPN-20E）を、プロピレン樹脂組成物100重量部に対して、0.2重量部含む。

[0166] 実施例1～10及び比較例1～4

[0167] プロピレン樹脂組成物の製造

プロピレン系重合体（BCPP1、BCPP2、BCPP3、BCPP4、HOMOPP1、HOMOPP2）、エチレン-α-オレフィンランダム共重合体（EBR、EOR1）、充填材（TALC1、TALC2）、エチレン-α-オレフィンブロック共重合体（OBC1、OBC2）、及び特性Iを有するプロピレン系重合体（HMS1、HMS2、HMS3、HMS4）を、表1に示す量で準備した。

[0168] 準備した各成分を、ヘンシェルミキサー又はタンブラーで均一に予備混合した後、二軸混練押出機（株式会社日本製鋼所製TEX44α11-49B

W-3V型)を用いて、押出量70kg/hr、200℃、スクリー回転数を300rpm、ベント吸引下で混練押出して、樹脂組成物を製造した。得られた樹脂組成物の物性を下記の表1に示す。

[0169] 密度、曲げ弾性率評価用射出成形体の製造

得られた樹脂組成物をJIS K7152に記載されている範囲の以下の条件で射出成形して、密度評価用の射出成形体を製造した。射出成形機で溶融された樹脂組成物は、ゲートから金型キャビティ内へ射出成形機により供給された。

射出成形機：株式会社名機製作所製M70（型締力70トン、シリンダー径32mm） 金型キャビティ形状：ISO金型 タイプA

シリンダー温度：197℃

金型温度：38℃

射出速度：20mm/秒

冷却時間：8秒

[0170] 線膨張係数評価用射出成形体の製造

得られた樹脂組成物を以下の条件で射出成形して、図1に示す評価用の射出成形体を製造した。射出成形機で溶融された樹脂組成物は、ゲートから金型キャビティ内へ射出成形機により供給された。

射出成形機：住友重機械工業株式会社製SE180D（型締力180トン、シリンダー径50mm）

金型キャビティ形状：100mm（幅）×400mm（長さ）×3mm（厚み）

ゲート：100mm側面の中央にファンゲート1点

シリンダー温度：220℃

金型温度：50℃

射出速度：23mm/秒

冷却時間：30秒

[0171] 図1は、評価用の射出成形体の概略図である。図1に示す射出成形体10

は、金型形状に対応する第1の樹脂部1とゲート形状に対応する第2の樹脂部2とを備える。第1の樹脂部1は、幅L1が100mm、長さL2が400mm、厚み（図示せず）が3mmの板状樹脂部である。また、本実施例及び比較例で形成した射出成形体において、第2の樹脂部2の各辺の長さL3、L4及びL5並びに厚み（図示せず）は、それぞれ15mm、5mm、4mm及び2mmであった。ここで、射出成形体の本体部は、第1の樹脂部1である（以下、「第1の樹脂部1」に対応する部分を「射出成形体」ともいう）。

[0172] 寸法安定性の評価

得られた射出成形体を用いて、線膨張係数を測定することにより寸法安定性を評価した。熱機械分析装置（SIIナノテクノロジー株式会社製 TMA/SS6100）を用い、以下の方法により線膨張係数を測定した。

[0173] 射出成形体の長手方向の中央部から5×10×3（mm）の試験片を切り出した。試験片を上記装置にセットして、5℃/分の昇温速度で-20℃から130℃まで昇温し、成形時の残留歪みを取り除いた。その後、装置に射出成形時のMD方向（樹脂の流れ方向。図1において、L2と平行の方向。）又はTD方向（MD方向に対して直交方向。図1において、L1と平行の方向。）の寸法変化が測定できるように、試験片を再びセットし、23℃における寸法を正確に測定した。5℃/分の昇温速度で-20℃から80℃に昇温し、その間のMD方向及びTD方向の寸法変化を測定した。単位長さ及び単位温度あたりの寸法変化を線膨張係数として求めた。線膨張係数の値が小さいほど寸法安定性が良好であることを示す。MD方向の線膨張係数とTD方向の線膨張係数との平均値（MD TD平均線膨張係数）を表1に示す。

[0174] ウェルド部の耐ヒンジ性の評価

後述する射出成形体の短手方向の中央部から30×150×3（mm）の試験片を切り出した。屈曲試験機（株式会社東洋精機製作所）を用いて、試験片両端の短手部を固定し、水平方向に屈曲させた後、直線状に戻し、次に

反対方向に屈曲させた後に直線状に戻す操作を行い、ウエルド部が破断するまでの回数を測定した。

[0175] ウエルド部耐ヒンジ性評価用射出成形体の製造

得られた樹脂組成物を以下の条件で射出成形して、図2に示す評価用の射出成形体を製造した。射出成形機で熔融された樹脂組成物は、2つのゲートから金型キャビティ内へ射出成形機により供給された。

射出成形機：住友重機械工業株式会社製SE130DU（型締力130トン、シリンダー径40mm）

金型キャビティ形状：90mm（幅）×150mm（長さ）×3mm（厚み）

ゲート：90mm側面の両側中央部にゲート2点

シリンダー温度：220℃

金型温度：50℃

射出速度：30mm/秒

冷却時間：30秒

[0176] 図2は、ウエルド部耐ヒンジ性評価用の射出成形体の概略図である。図2に示す射出成形体10は、金型形状に対応する第1の樹脂部1とゲート形状に対応する第2の樹脂部2と同じく反対側のゲート形状に対応する第3の樹脂部3を備える。第1の樹脂部1は、幅L1が90mm、長さL2が150mm、厚み（図示せず）が3mmの板状樹脂部である。また、本実施例及び比較例で形成した射出成形体において、第2の樹脂部2の各辺の長さL3、L4並びに厚み（図示せず）は、それぞれ5mm、2mm及び3mmであった。

第3の樹脂部3の各辺の長さは、第2の樹脂部2と同じである。ここで、射出成形体の本体部は、第1の樹脂部1である（以下、「第1の樹脂部1」に対応する部分を「射出成形体」ともいう）。

[0177]

[表1]

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 10	比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4
成分A	BOPP1	16	-	16	16	16	16	16	-	-	16	16	16	16
	BOPP2	15	-	15	15	15	15	15	-	-	15	15	15	15
	BOPP3	-	10.5	-	-	-	-	-	10.5	10.5	-	-	-	-
	BOPP4	-	4	-	-	-	-	-	4	4	-	-	-	-
成分B	HOMO1	25.5	-	27.5	25.5	25.5	25.5	25.5	-	-	32.5	30.5	27.5	40.5
	HOMO2	-	32.5	-	-	-	-	-	19	19	-	-	-	-
成分C	EBR	10	9	10	10	10	-	15	9	9	10	10	10	-
	EOR1	5	7.5	5	5	5	15	-	7.5	7.5	5	5	5	-
	EOR2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
成分D	TALC1	21.5	21.5	21.5	21.5	21.5	21.5	21.5	35	-	21.5	21.5	21.5	21.5
	TALC2	-	-	-	-	-	-	-	-	35	-	-	-	-
成分E	OBC1	5	5	5	5	5	5	5	5	5	-	-	-	5
	OBC2	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	5	-
	HMS1	2	2	-	-	-	2	2	2	2	-	2	-	2
	HMS2	-	-	-	2	-	-	-	-	-	-	-	-	-
その他	HMS3	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	HMS4	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	造核剤	-	-	-	-	-	-	-	0.2	0.2	-	-	-	-
	MFR	43	40	51	44	46	44	42	44	20	61	52	47	80
曲げ弾性率(MPa)	2224	2253	2215	2203	2152	2179	2256	2276	2606	2897	2605	2669	2320	3418
	1.05	1.05	1.05	1.05	1.04	1.05	1.04	1.05	1.17	1.17	1.05	1.05	1.05	1.06
MDTD平均線膨張係数 (10 ⁻⁶ /°C)	5.0	4.5	5.4	5.5	5.5	5.6	5.2	5.2	3.1	2.4	6.1	6.1	5.8	6.4
	60	50	57	73	50	89	55	50	51	45	17	32	19	8

[0178] 表 1 から、実施例に係る成形体は、M D T D 平均線膨張係数が低く、寸法安定性に優れることがわかる。すなわち、本発明のプロピレン樹脂組成物によれば、寸法安定性に優れる成形体を製造できること及び本発明の成形体は寸法安定性に優れることを確認した。また、実施例に係る成形体は、屈曲試験時にウエルド部が破断するまでの回数が多く、ウエルド部の耐ヒンジ性に優れることがわかる。

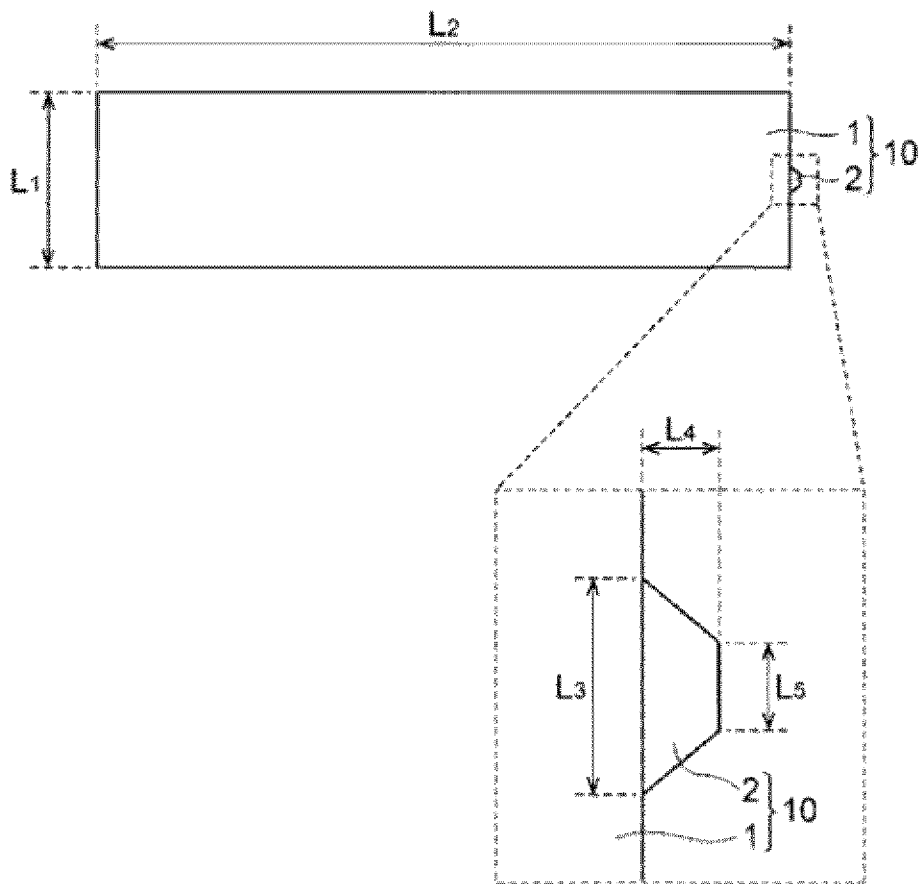
符号の説明

[0179] 1…第 1 の樹脂部、2…第 2 の樹脂部、10…射出成形体。

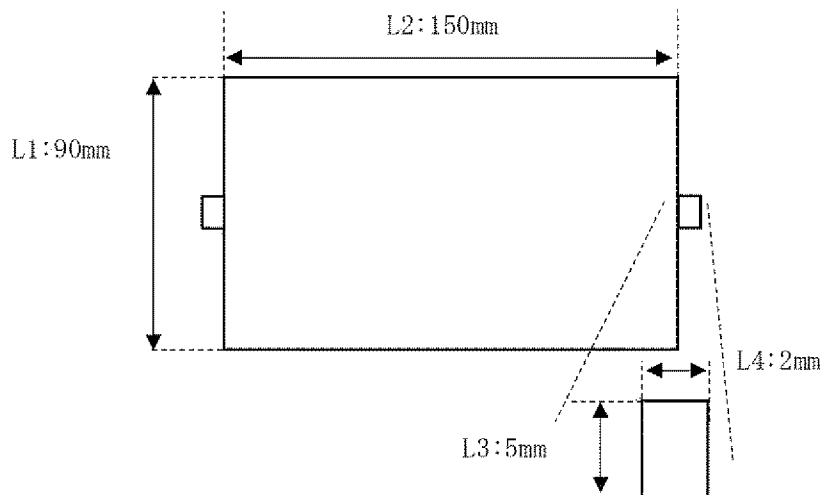
請求の範囲

- [請求項1] (A) 30～65重量部のプロピレン系重合体；
(B) 10～40重量部のエチレン- α -オレフィンランダム共重合体；
(C) 10～40重量部の充填材；及び
(D) 0.1～10重量部のエチレン- α -オレフィンブロック共重合体
を含むプロピレン樹脂組成物であって、
成分A～Dの含有量の合計が100重量部であり、
20℃における成分Dのキシレン可溶成分が70重量%以下であり、
成分Dの密度が0.865～0.867 g/cm³である、
プロピレン樹脂組成物。
- [請求項2] 成分Dのメルトフローレート（190℃、2.16 kg荷重）が0.5～10 g/10分である、請求項1に記載のプロピレン樹脂組成物。
- [請求項3] さらに成分E：
(E) 0.1～5重量部の、せん断速度61 sec⁻¹におけるダイスウェル比とせん断速度6080 sec⁻¹におけるダイスウェル比との差の絶対値が0.35以下であるプロピレン系重合体
を含む請求項1又は2に記載のプロピレン樹脂組成物。
- [請求項4] 135℃における成分Eの結晶化時間が150 sec以下である、
請求項3に記載のプロピレン樹脂組成物。
- [請求項5] 請求項1～4のいずれか一項に記載のプロピレン樹脂組成物を含む成形体。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/013266

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
 Int. Cl. C08L23/08 (2006.01) i, C08L23/10 (2006.01) i, C08L53/00 (2006.01) i
 FI: C08L23/10, C08L23/08, C08L53/00
 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)
 Int. Cl. C08L23/08, C08L23/10, C08L53/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
 Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2020
 Registered utility model specifications of Japan 1996-2020
 Published registered utility model applications of Japan 1994-2020

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.
A	JP 2015-86529 A (PRIME POLYMER CO., LTD.) 07 May 2015, entire document	1-5
A	WO 2017/213126 A1 (SUMITOMO CHEMICAL CO., LTD.) 14 December 2017, entire document	1-5
A	JP 2011-500946 A (DOW GLOBAL TECHNOLOGIES INC.) 06 January 2011, entire document	1-5
A	JP 2011-500945 A (DOW GLOBAL TECHNOLOGIES INC.) 06 January 2011, entire document	1-5
A	JP 2009-132893 A (SUMITOMO CHEMICAL CO., LTD.) 18 June 2009, entire document	1-5

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 25.05.2020	Date of mailing of the international search report 09.06.2020
---	--

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
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2020/013266

Patent Documents referred to in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2015-86529 A	07.05.2015	US 2016/0273255 A1 entire document	
WO 2017/213126 A1	14.12.2017	WO 2015/064001 A1 CN 105683475 A US 2019/0264016 A1 entire document	
JP 2011-500946 A	06.01.2011	EP 3467023 A1 CN 109312126 A US 2009/0105397 A1 entire document	
JP 2011-500945 A	06.01.2011	WO 2009/055486 A1 EP 2205674 A2 CN 101835837 A KR 10-2010-0095534 A US 2009/0105397 A1 entire document	
JP 2009-132893 A	18.06.2009	WO 2009/055482 A1 EP 2205674 A2 CN 101835837 A KR 10-2010-0095534 A US 2010/0298456 A1 entire document	
		WO 2009/057825 A1 CN 101842436 A	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C08L 23/08(2006.01)i; C08L 23/10(2006.01)i; C08L 53/00(2006.01)i FI: C08L23/10; C08L23/08; C08L53/00		
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）） C08L23/08; C08L23/10; 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 - 2020年 日本国実用新案登録公報 1996 - 2020年 日本国登録実用新案公報 1994 - 2020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 請求項の番号
A	JP 2015-86529 A (株式会社プライムポリマー) 07.05.2015 (2015 - 05 - 07) 文献全体	1-5
A	WO 2017/213126 A1 (住友化学株式会社) 14.12.2017 (2017 - 12 - 14) 文献全体	1-5
A	JP 2011-500946 A (ダウ グローバル テクノロジーズ インコーポレイティド) 06.01.2011 (2011 - 01 - 06) 文献全体	1-5
A	JP 2011-500945 A (ダウ グローバル テクノロジーズ インコーポレイティド) 06.01.2011 (2011 - 01 - 06) 文献全体	1-5
A	JP 2009-132893 A (住友化学株式会社) 18.06.2009 (2009 - 06 - 18) 文献全体	1-5
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" 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抵触するものではなく、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 25.05.2020	国際調査報告の発送日 09.06.2020	
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 堀 洋樹 4J 3034 電話番号 03-3581-1101 内線 3457	

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2020/013266

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	2015-86529	A	07.05.2015	US	2016/0273255	A1	
				文献全体			
				WO	2015/064001	A1	
				CN	105683475	A	
WO	2017/213126	A1	14.12.2017	US	2019/0264016	A1	
				文献全体			
				EP	3467023	A1	
				CN	109312126	A	
JP	2011-500946	A	06.01.2011	US	2009/0105397	A1	
				文献全体			
				WO	2009/055486	A1	
				EP	2205674	A2	
				CN	101835837	A	
				KR	10-2010-0095534	A	
JP	2011-500945	A	06.01.2011	US	2009/0105397	A1	
				文献全体			
				WO	2009/055482	A1	
				EP	2205674	A2	
				CN	101835837	A	
				KR	10-2010-0095534	A	
JP	2009-132893	A	18.06.2009	US	2010/0298456	A1	
				文献全体			
				WO	2009/057825	A1	
				CN	101842436	A	