(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
2023年6月29日(29.06.2023)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2023/120464 A1

(51) 国際特許分類:
C08L 23/10 (2006.01) *C08K 7/14* (2006.01)
C08K 3/04 (2006.01) *C08L 91/06* (2006.01)
C08K 3/30 (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2022/046629

(22) 国際出願日： 2022年12月19日(19.12.2022)

(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 2021-207321 2021年12月21日(21.12.2021) JP

(71) 出願人: 株式会社プライムポリマー(**PRIME POLYMER CO., LTD.**) [JP/JP]; 〒1057122 東京都港区東新橋一丁目５番２号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 岡本 義生 (**OKAMOTO Yoshio**); 〒2990265 千葉県袖ケ浦市長浦５８０－３０ 株式会社プライムポリマー内 Chiba (JP). 田中 幸昌(**TANAKA Yukimasa**); 〒2990265 千葉県袖ケ浦市長浦５８０－３０ 株式会社プライムポリマー内 Chiba (JP). 平野 一之介(**HIRANO Ichinosuke**); 〒2990265 千葉県袖ケ浦市長浦５８０－３０ 株式会社プライムポリマー内 Chiba (JP).

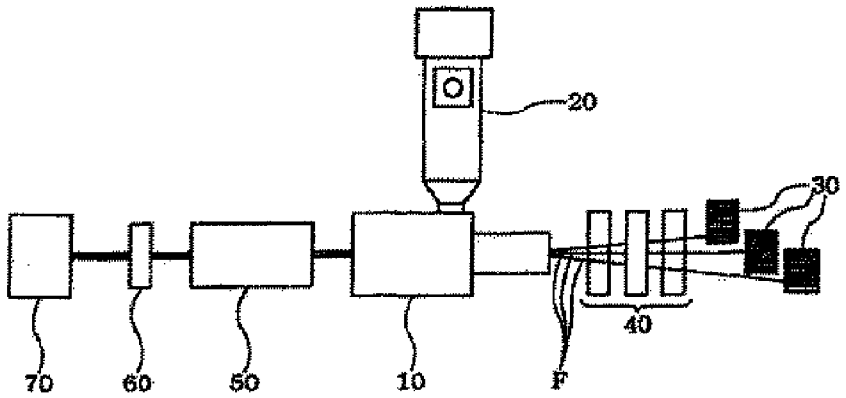
(74) 代理人: 弁理士法人エスエス国際特許事務所(**SSINPAT PATENT FIRM**); 〒1410031 東京都品川区西五反田七丁目１３番６号 五反田山崎ビル６階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP,

(54) **Title:** GLASS FIBER-REINFORCED PROPYLENE-BASED RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称： ガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物

[図1]



(57) **Abstract:** [Problem] To provide a material suitable for the production of a glass fiber-reinforced molded article which has excellent mechanical properties, and in which adjustment of color tone is easy and occurrence of white blurring is suppressed. [Solution] This glass fiber-reinforced propylene-based resin composition contains: 10-50 parts by mass of glass fibers; 50-90 parts by mass of a propylene-based resin (when the total of the glass fiber and the propylene-based resin is defined as 100 parts by mass); 0.12 parts by mass or more of carbon black; a polyolefin wax having an average particle diameter of 1-40 μm, in an amount where the mass ratio of the polyolefin wax with respect to the carbon black is 0.75-2.0; and more than 0 parts by mass but not more than 1.3 parts by mass of zinc sulfide.

WO 2023/120464 A1

［続葉有］

KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, 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, CV, 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, ME, 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:

一　国際調査報告（条約第21条(3)）

(57) 要約：［課題］白モヤの発生が抑制され、色調の調整が容易であり、かつ機械物性に優れたガラス繊維強化成形体の製造に適した材料を提供すること。［解決手段］ガラス繊維を１０～５０質量部、プロピレン系樹脂を５０～９０質量部（ただし、ガラス繊維およびプロピレン系樹脂の合計を１００質量部とする。）、カーボンブラックを０．１２質量部以上、平均粒径が１～４０μmのポリオレフィンワックスを、前記カーボンブラックに対する前記ポリオレフィンワックスの質量比が０．７５～２．０となる量で、および硫化亜鉛を、０質量部を超えて１．３質量部以下含有する、ガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物。

明　細　書

発明の名称 ： ガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物

技術分野

[0001] 本発明はガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物に関する。

背景技術

[0002] 繊維強化樹脂成形体は軽量であり、かつ剛性および耐熱性に優れているので、電気機器、自動車、住宅設備、医療器具など多様な分野で利用されている。

[0003] 繊維強化樹脂成形体としては、例えば、ガラス繊維等の強化繊維と、ポリアミド、ポリプロピレン等の熱可塑性樹脂を用いた成形体が知られている。このような繊維強化樹脂成形体は、自動車分野において、エンジンルーム内のファンシュラウドやプロペラファン等の高剛性および耐熱性が要求される部材に利用されている。

[0004] たとえば特許文献１には、ガラス長繊維強化ポリオレフィン樹脂ペレット、ポリオレフィン樹脂、酸化防止剤、光安定剤、および紫外線吸収剤を含有するガラス長繊維強化ポリオレフィン組成物から形成された車輌外装部品が記載され、この組成物にさらにカーボンブラック、ワックス等を添加できることが記載されている。また特許文献２には、ガラス長繊維強化ポリオレフィン樹脂ペレット、ポリオレフィン樹脂、および硫化亜鉛を有する顔料を含有するガラス長繊維強化ポリオレフィン組成物が記載され、この組成物にさらにカーボンブラック、ワックス等を添加できることが記載されている。

[0005] 特許文献３には、オレフィン系樹脂、カーボンブラック、およびガラス繊維を含む着色剤組成物が記載され、この組成物にさらに分散剤、滑剤としてのポリエチレンワックスを添加できることが記載されている。

[0006] 特許文献４には、ポリマー樹脂、および前記ポリマー樹脂中に配置された、水性サイジング組成物でコーティングされたガラス繊維を含むガラス繊維ストランドを含む複合材料が記載され、サイジング組成物がカーボンブラッ

ク、ポリプロピレンワックス等を含んでもよいことが記載されている。

[0007] 一方、特許文献５には、密度、融点および融解熱が所定の範囲にあるエチレン系重合体が配合された長繊維強化プロピレン系樹脂組成物が記載され、この組成物から、成形体表面に白いモヤがかかったような外観不良（以下「白モヤの発生」とも記載する。）の発生が抑制され、かつ機械的特性に優れた成形体を形成できることが記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0008] 特許文献1：特開平９－２０７２３３号公報

特許文献2：特開平９－１８３８６９号公報

特許文献3：特開２００２－５３７１１号公報

特許文献4：特表２０１４－５１２３２３号公報

特許文献5：国際公開第２０２０／０９１０５１号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] 従来のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物から得られた成形体には、白モヤの発生を抑制する観点から、さらなる改善の余地があった。

[0010] 本発明者らは、ガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物にカーボンブラックおよびポリオレフィンワックスを配合することにより、白モヤを抑制できることを見出したが、カーボンブラックの配合により、成形品の色調が過度に黒くなってしまいその調整が困難になること、およびこの色調の問題を解決しようと白色顔料を配合すると成形体の機械物性が低下することがあった。また、成形体が大型化すると白モヤの発生を必ずしも十分に抑制できないことがあった。

[0011] したがって本発明は、白モヤの発生が抑制され、色調の調整が容易であり、かつ機械物性に優れたガラス繊維強化成形体の製造に適した材料を提供することを目的とする。また本発明は、成形体が大型化した場合であっても白

モヤの発生を十分に抑制するのに適した材料を提供することをさらなる目的とする。

課題を解決するための手段

[0012] 本発明の要旨は以下のとおりである。

[0013] ［１］

ガラス繊維を１０～５０質量部、

プロピレン系樹脂を５０～９０質量部（ただし、ガラス繊維およびプロピレン系樹脂の合計を１００質量部とする。）、

カーボンブラックを０．１２質量部以上、

平均粒径が１～４０μｍのポリオレフィンワックスを、前記カーボンブラックに対する前記ポリオレフィンワックスの質量比が０．７５～２．０となる量で、および

硫化亜鉛を、０質量部を超えて１．３質量部以下含有する、

ガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物。

[0014] ［２］

前記ガラス繊維の含有量が２５～５０質量部である前記［１］のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物。

[0015] ［３］

前記ポリオレフィンワックスがポリプロピレンワックスである前記［１］または［２］のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物。

発明の効果

[0016] 本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物により、白モヤの発生が抑制され、色調の調整が容易であり、かつ機械物性に優れたガラス繊維強化成形体を製造することができる。また本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物により、成形体が大型化した場合であっても白モヤの発生を十分に抑制するのに適した材料を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0017] [図1]ペレット製造装置の模式図である。

発明を実施するための形態

[0018] 本発明をさらに詳細に説明する。

[0019] ［ガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物］

本発明に係るガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物は、ガラス繊維、プロピレン系樹脂、カーボンブラック、ポリオレフィンワックスおよび硫化亜鉛を含有することを特徴としている。

[0020] 《ガラス繊維》

本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物は、ガラス繊維を含む。

[0021] ガラス繊維としては、Ｅガラス（Electrical glass）、Ｃガラス（Chemical glass）、Ａガラス（Alkali glass）、Ｓガラス（High strength glass）および耐アルカリガラスなどのガラスを溶融紡糸してフィラメント状の繊維にしたものを挙げることができる。

[0022] 本発明ではガラス繊維としては、通常、ガラス長繊維が使用される。ガラス長繊維の原料としては、通常、連続状ガラス繊維束が用いられ、これはガラスロービングとして市販されている。その平均繊維径は、通常３～３０μｍ、好ましくは１３～２０μｍ、さらに好ましくは１６～１８μｍであり、フィラメント集束本数は、通常４００～１０，０００本、好ましくは１，０００～６，０００本、さらに好ましくは３，０００～５，０００本である。

[0023] また、特開平６－１１４８３０号公報に記載されているように、複数の繊維束を束ねて使用することもできる。

[0024] ガラス繊維の表面には、電解処理または収束剤処理などの様々な表面処理方法で官能基が導入されていてもよい。表面処理には、収束剤を用いることが好ましく、カップリング剤を含む収束剤を用いることが特に好ましい。表面処理されたガラス繊維を用いると、ガラス繊維と樹脂成分との接着性が向上し、強度および外観の良好な成形体が得られる。

[0025] 収束剤の例としては、特開２００３－２５３５６３号公報に記載されたカップリング剤を含むものが挙げられる。

[0026] カップリング剤としては、たとえば、アミノシラン、エポキシシラン等の

シラン系カップリング剤、およびチタン系カップリング剤が挙げられる。

[0027] また、収束剤としては、カップリング剤の他に、取り扱いを容易にするために樹脂エマルジョンを含むものも好ましい。

[0028] 収束剤に含まれる樹脂エマルジョンとしては、たとえば、ウレタン系、オレフィン系、アクリル系、ナイロン系、ブタジエン系またはエポキシ系のものが挙げられ、これらのうち、ウレタン系またはオレフィン系のものが好ましい。

[0029] 《プロピレン系樹脂》

本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物は、プロピレン系樹脂を含む。

[0030] 前記プロピレン系樹脂は、プロピレン由来の構造単位を主たる構造単位として含む重合体であり、その例として、プロピレン単独重合体、プロピレン・α－オレフィンランダム共重合体、およびプロピレン系ブロック共重合体（以下、これらをまとめて「未変性プロピレン系樹脂」とも記載する。）、ならびに変性ポリプロピレンが挙げられる。

[0031] 前記プロピレン・α－オレフィンランダム共重合体としては、プロピレンとエチレンおよび炭素数４～８のα－オレフィンから選ばれる少なくとも１種のオレフィンとのランダム共重合体が挙げられる。前記α－オレフィンの例としては、エチレン、１－ブテン、１－ペンテン、１－ヘキセン、４－メチル－１－ペンテン、３－メチル－１－ペンテン、１－ヘプテンおよび１－オクテンが挙げられ、好ましくはエチレンおよび１－ブテンが挙げられ、特に好ましくはエチレンが挙げられる。前記ランダム共重合体中の全構造単位に占めるプロピレン由来の構造単位の割合は、好ましくは９０モル％以上、より好ましくは９５モル％以上である。

[0032] 前記プロピレン系ブロック共重合体は、好ましくはプロピレン単独重合体部分とプロピレン・α－オレフィンランダム共重合体部分とから構成される。プロピレン・α－オレフィンランダム共重合体部分の具体的な態様は、前記プロピレン・α－オレフィンランダム共重合体の具体的な態様と同様であ

る。

[0033] 前記プロピレン系ブロック共重合体は、ｎ－デカン溶剤分別した場合、２３℃のｎ－デカンに可溶な成分（以下「デカン可溶部」とも記載する。）と２３℃のｎ－デカンに不溶な成分（以下「デカン不溶部」とも記載する。）とに分別される。デカン可溶部の含有量は、通常は５～３０質量％、好ましくは５～２５質量％、より好ましくは８～１８質量％であり、デカン不溶部の含有量は、通常は７０～９５質量％、好ましくは７５～９５質量％、より好ましくは８２～９２質量％である。

[0034] 前記変性ポリプロピレンは、ポリプロピレンを酸変性することにより得られる。その変性方法としては、従来公知の方法、例えばグラフト変性および共重合化が挙げられる。変性されるポリプロピレンとしては、前記未変性プロピレン系樹脂が挙げられる。

[0035] 変性に用いる変性剤としては、例えば、不飽和カルボン酸およびその誘導体が挙げられる。不飽和カルボン酸の例としては、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、ナジック酸、フマル酸、イタコン酸、クロトン酸、シトラコン酸、ソルビン酸、メサコン酸、アンゲリカ酸、およびフタル酸が挙げられる。また、その誘導体の例としては、酸無水物、エステル、アミド、イミド、および金属塩等が挙げられ、具体例としては、無水マレイン酸、無水イタコン酸、無水シトラコン酸、無水ナジック酸、無水フタル酸、アクリル酸メチル、メタクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸ブチル、マレイン酸モノエチルエステル、アクリルアミド、マレイン酸モノアミド、マレイミド、Ｎ－ブチルマレイミド、アクリル酸ナトリウム、メタクリル酸ナトリウム等が挙げられる。これらの中でも、不飽和ジカルボン酸およびその誘導体が好ましく、無水マレイン酸および無水フタル酸がより好ましい。

[0036] 変性ポリプロピレンの酸付加量、換言すると変性ポリプロピレン中の前記酸に由来する構造の割合は、好ましくは０．１～１４重量％であり、より好ましくは０．３～８重量％である。酸付加量は、樹脂のＩＲスペクトルを測定し、１，６７０ｃｍ$^{-1}$～１，８１０ｃｍ$^{-1}$のピークの面積から決定される。

[0037] 前記ガラス繊維および前記プロピレン系樹脂が後述するガラス繊維強化樹脂ペレットを形成する場合には、ポリプロピレンの変性は、ガラス繊維強化樹脂ペレットの製造に先立って行ってもよく、ガラス繊維強化樹脂ペレット製造の際の溶融混練過程において行ってもよい。

[0038] 変性ポリプロピレンに、変性剤またはこれに由来する揮発性の成分（以下、これらをまとめて「揮発成分」とも記載する。）が残存していると、ガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物から形成された成形体の表面に、曇りが発生する場合がある。このため、前記揮発成分が少ないことが好ましく、国際公開第２０２０／０９１０５１号の［００３９］に記載の式で定義される、変性ポリプロピレン中の揮発成分含有量は、好ましくは９０００ｐｐｍ以下、より好ましくは７０００ｐｐｍ以下である。揮発成分の量は、変性ポリプロピレンを真空乾燥させることなどにより、低減させることができる。

[0039] 変性ポリプロピレンとしては、ガラス繊維と前記未変性プロピレン系重合体との親和性を改良し、製造される成形体の強度または耐熱性を向上させる観点から、無水脂肪酸変性ポリプロピレンが好ましく、特に無水マレイン酸変性ポリプロピレンが好ましい。

[0040] 変性ポリプロピレンのメルトフローレート（ＩＳＯ　１１３３－１に準拠、２３０℃、２．１６ｋｇ荷重。）は、好ましくは５０ｇ／１０分以上、より好ましくは８０ｇ／１０分以上であり、その上限値は、たとえば１０００ｇ／１０分であってもよい。変性ポリプロピレンのメルトフローレートがこの範囲にあると、本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物は、射出成形に適した流動性を有する。

[0041] また、前記プロピレン系樹脂全体としてのメルトフローレート（ＩＳＯ　１１３３－１に準拠、２３０℃、２．１６ｋｇ荷重。）は、機械的特性に優れた成形体を良好な加工性で射出成形する観点から、好ましくは２５～５００ｇ／１０分、より好ましくは５０～４００ｇ／１０分である。

前記プロピレン系樹脂は、バイオマス由来プロピレンに由来する構造単位を含んでいてもよい。重合体を構成するプロピレンがバイオマス由来プロピ

レンのみでもよいし、化石燃料由来プロピレンのみでもよいし、バイオマス由来プロピレンと化石燃料由来プロピレンの両方を含んでもよい。バイオマス由来プロピレンとは、菌類、酵母、藻類および細菌類を含む、植物由来または動物由来などの、あらゆる再生可能な天然原料およびその残渣を原料としてなるプロピレンで、炭素として^{14}Ｃ同位体を１×１０$^{-12}$程度の割合で含有し、ＡＳＴＭ Ｄ ６８６６に準拠して測定したバイオマス炭素濃度（ｐＭＣ）が１００（ｐＭＣ）程度である。バイオマス由来プロピレンは、例えば、従来から知られている方法により得られる。

[0042] 前記プロピレン系樹脂がバイオマス由来プロピレンに由来する構造単位を含むことは環境負荷低減（主に温室効果ガス削減）の観点から好ましい。重合用触媒、重合プロセス、重合温度、などの重合体製造条件が同等であれば、原料プロピレンがバイオマス由来プロピレンを含むプロピレン系重合体であっても、^{14}Ｃ同位体を１×１０$^{-12}$程度の割合で含む以外の分子構造は化石燃料由来プロピレンからなるプロピレン単独重合体と同等である。従って、性能も変わらないとされる。

前記プロピレン系樹脂は、ケミカルリサイクル由来プロピレンに由来する構造単位を含んでいてもよい。重合体を構成するプロピレンがケミカルリサイクル由来プロピレンのみでもよいし、ケミカルリサイクル由来プロピレンと化石燃料由来プロピレンおよび／またはバイオマス由来プロピレンを含んでもよい。ケミカルリサイクル由来プロピレンは、例えば、従来から知られている方法により得られる。

[0043] 前記プロピレン系樹脂がケミカルリサイクル由来プロピレンに由来する構造単位を含むことは環境負荷低減（主に廃棄物削減）の観点から好ましい。原料モノマーがケミカルリサイクル由来モノマーを含むプロピレン系重合体であっても、ケミカルリサイクル由来モノマーは廃プラスチックなどの重合体を解重合、熱分解等でプロピレンなどのモノマー単位にまで戻したモノマー、ならびに該モノマーを原料にして製造したモノマーであるので、重合用触媒、重合プロセス、重合温度などの重合体製造条件が同等であれば、分子

構造は化石燃料由来モノマーからなるプロピレン単独重合体と同等である。従って、性能も変わらないとされる。

（ガラス繊維強化樹脂ペレット）

本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物において、前記プロピレン系樹脂の一部または全部（以下「プロピレン系樹脂（Ｐ１）」とも記載する。）、および前記ガラス繊維は、ペレット（以下「ガラス繊維強化樹脂ペレット」とも記載する。）を形成していてもよい。

[0044] ペレットに含まれるプロピレン系樹脂（Ｐ１）のうち、前記未変性プロピレン系樹脂のメルトフローレート（ＩＳＯ　１１３３－１に準拠、２３０℃、２．１６ｋｇ荷重）は、好ましくは２０ｇ／１０分以上、より好ましくは３０ｇ／１０分以上、さらに好ましくは４０ｇ／１０分以上であり、その上限は、たとえば３００ｇ／１０分であってもよい。メルトフローレートがこの範囲にあると、本発明の組成物は射出成形に適した流動性を有する。

[0045] ガラス繊維強化樹脂ペレット中のガラス繊維の繊維長は、通常４～１０ｍｍ、好ましくは５～８ｍｍであり、繊維径は、通常１０～２０μｍ、好ましくは１３～１８μｍである。

[0046] ガラス繊維強化樹脂ペレット中で、ガラス繊維はペレットの長手方向に略平行に配列しており、ガラス繊維の繊維長は、通常、ペレットの粒子長（すなわち、ペレットの長手方向の長さ）と実質的に同一である。

[0047] ガラス繊維強化樹脂ペレット中のガラス繊維の含有量は、ガラス繊維強化樹脂ペレット１００質量％に対し、好ましくは４０～７０質量％、より好ましくは４５～６０質量％である。ガラス繊維の含有量が前記下限値以上であると、良好な生産性でガラス繊維強化樹脂ペレットを製造することができる。ガラス繊維の含有量が前記上限値以下であると、ガラス繊維の繊維束に樹脂を充分に含浸させることができる。

[0048] ガラス繊維強化樹脂ペレット中の変性ポリプロピレンの量は、ガラス繊維強化樹脂ペレット１００質量％に対し、好ましくは１～５質量％であり、より好ましくは２～５質量％である。変性ポリプロピレンの量が前記下限値以

上であると、ガラス繊維と樹脂成分との接着性が良好である。変性ポリプロピレンの量が前記上限値以下であると、変性ポリプロピレンの分子量が低くなり過ぎないことから、本発明の組成物から製造される成形体の強度が良好である。

[0049] ガラス繊維強化樹脂ペレットの形状は、通常、柱状である。

[0050] ガラス繊維強化樹脂ペレットの粒子長（長手方向の長さ）は通常４～１０ｍｍであり、好ましくは５～８ｍｍである。ガラス繊維強化樹脂ペレットの粒子長が前記下限値以上であると、本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物から製造される成形体は機械的特性に優れる。また、ガラス繊維強化樹脂ペレットの粒子長が前記上限値以下であると、本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物は成形性に優れる。

[0051] ガラス繊維強化樹脂ペレット中では、通常、ガラス繊維がペレットの長手方向に略平行に配列している。

[0052] ガラス繊維強化樹脂ペレット中でのガラス繊維のアスペクト比が大きいために、前記ガラス繊維強化樹脂ペレットを含む本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物から形成された成形体は機械的強度に優れる。

[0053] ガラス繊維強化樹脂ペレットは、引き抜き法など、公知の成形方法で製造することができ、具体的には、数千本からなるガラス繊維のロービングを含浸ダイスに導き、プロピレン系樹脂を溶融したもの（以下単に「溶融樹脂」ともいう。）をフィラメント間に均一に含浸させた後、必要な長さに切断することにより容易に得ることができる。

[0054] この方法では、例えば、押出機先端に設けられた含浸ダイス中に、押出機より溶融樹脂を供給する一方、連続状ガラス繊維束を通過させ、このガラス繊維束に溶融樹脂を含浸させた後、ノズルを通して引き抜き、必要な長さにペレタイズする方法がとられる。

[0055] また、未変性プロピレン系重合体、不飽和カルボン酸またはその無水物を、有機過酸化物と共にドライブレンドして押出機のホッパーに投入し、変性を同時に行いながら供給する方法もとり得る。

[0056] ガラス繊維のロービングに溶融樹脂を含浸させるための方法としては、特に制限はなく、例えば国際公開２０１０／１３７３０５の［００３６］に記載された方法が挙げられる。

[0057] 樹脂を溶融する過程において、フィード部を２つ以上有する押出機を使用し、トップフィードから分解剤を投入し、サイドフィードから別の樹脂を投入してもよい。分解剤としては、有機過酸化物が好ましい。また、２台以上の押出機（押出し部）を使用し、そのうち少なくとも１台に分解剤を投入してもよい。さらに、押出機の少なくとも１個所に樹脂、不飽和カルボン酸またはその誘導体ならびに分解剤を投入してもよい。

[0058] （ガラス繊維強化樹脂ペレットとは別に添加されてもよいプロピレン系樹脂）

前記ガラス繊維強化樹脂ペレットに含まれるプロピレン系樹脂（Ｐ１）が前記プロピレン系樹脂の一部である場合には、本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物は、プロピレン系樹脂（Ｐ１）とは別に残部のプロピレン系樹脂（以下「プロピレン系樹脂（Ｐ２）」とも記載する。）を含有する。

[0059] 前記プロピレン系樹脂（Ｐ２）は、プロピレン由来の構造単位を主たる構造単位として含む重合体であり、その例として、プロピレン単独重合体、プロピレン・α－オレフィンランダム共重合体、およびプロピレン系ブロック共重合体が挙げられる。

[0060] 前記プロピレン・α－オレフィンランダム共重合体、および前記プロピレン系ブロック共重合体の詳細は、上述のとおりである。

[0061] プロピレン系樹脂（Ｐ２）のメルトフローレート（ＩＳＯ　１１３３－１に準拠、２３０℃、２．１６ｋｇ荷重）は、好ましくは１０～３００ｇ／１０分、より好ましくは２０～２５０ｇ／１０分、さらに好ましくは２０～２００ｇ／１０分である。プロピレン系樹脂（Ｐ２）のメルトフローレートがこの範囲にあると、本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物から形成される成形体は、機械的特性に優れる。

[0062] プロピレン系樹脂（Ｐ２）の形状の例としては、粉末およびペレットが挙げられる。

[0063] 《カーボンブラック》

本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物は、カーボンブラックを含む。

[0064] 本発明の組成物中のカーボンブラックの含有量は、前記ガラス繊維および前記プロピレン系樹脂の合計１００質量部に対して０．１２質量部以上であり、好ましくは０．１５～１．０質量部である。カーボンブラックの含有量が上記範囲にあると、ガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物から製造される強化繊維成形体は、白モヤの発生が抑制され、大型の成形体であっても白モヤの発生が抑制される。一方、含有量が０．１２質量部を下回ると白モヤの発生を抑制できない恐れがある。また、含有量が前記上限値以下であると、ガラス強化繊維とプロピレン系樹脂との界面接着が良好である。

[0065] カーボンブラックとしては、例えば、ファーネスブラック、アセチレンブラック、サーマルブラック、チャンネルブラックが挙げられる。

[0066] 《ポリオレフィンワックス》

本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物は、平均粒径が１～４０μｍのポリオレフィンワックスを含む。この平均粒径は、レーザー回折法により測定される体積基準の粒子径分布におけるD_{50}である。

[0067] ポリオレフィンワックスの平均粒径がこの範囲にあると、カーボンブラック粒子間にポリオレフィンワックスを効果的に配置してカーボンブラック粒子同士の凝集を防ぎ、樹脂成分中へのカーボンブラックの分散性を向上させることができ、以って成形体における白モヤの発生を抑制することができる。一方、平均粒径が前記下限値よりも過小であると、ポリオレフィンワックスの製造が困難な場合があり、平均粒径が前記上限値よりも過大であると、カーボンブラックの分散性が低下し、成形体における白モヤの発生を抑制できない場合がある。

[0068] ガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物からなる成形体の白モヤの発生を

エチレン系重合体の配合により抑制する技術においては、エチレン系重合体の量が増大するにつれて成形体の機械物性が低下する傾向が見られる場合があるが、本発明によれば、カーボンブラックおよびポリオレフィンワックスの配合によって白モヤの発生を抑制するので、上述のエチレン系重合体を配合する場合の懸念がないことが期待される。

[0069] ポリオレフィンワックスの、下記またはこれと同等の条件でゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定されるポリスチレン換算の数平均分子量（Ｍｎ）は、好ましくは２，０００～１０，０００、より好ましくは３，０００～４，０００である。

[0070] 装置：ゲル浸透クロマトグラフＡｌｌｉａｎｃｅ　ＧＰＣ２０００型（Ｗａｔｅｒｓ社製）

溶剤：ｏ－ジクロロベンゼン

カラム：ＴＳＫｇｅｌ　ＧＭＨ６－ＨＴ×２、ＴＳＫｇｅｌ　ＧＭＨ６－ＨＴＬカラム×２（何れも東ソー社製）

流速：１．０ｍｌ／分

試料：０．１５ｍｇ／ｍＬ　ｏ－ジクロロベンゼン溶液

温度：１４０℃

カーボンブラックに対するポリオレフィンワックスの質量比（ポリオレフィンワックスの質量／カーボンブラックの質量）は、０．７５～２．０、好ましくは０．８０～１．０である。質量比がこの範囲にあると、カーボンブラック粒子間にポリオレフィンワックスを効果的に配置してカーボンブラック粒子同士の凝集を防ぎ、樹脂成分中へのカーボンブラックの分散性を向上させることができ、以って成形体における白モヤの発生を抑制することができる。一方、質量比が前記下限値よりも過小であると、カーボンブラックの分散性が低く、成形体における白モヤの発生を抑制できない場合がある。

[0071] ポリオレフィンワックスとしては、ポリエチレンワックスおよびポリプロピレンワックスが好ましく、ポリプロピレンワックスがより好ましい。

[0072] ポリオレフィンワックスは、１種単独で用いてもよく、２種以上を併用し

てもよい。

[0073] 《硫化亜鉛》

本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物は、白色顔料として硫化亜鉛を含む。このため本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物から得られる成形体は、色調の調整が容易であり、かつ機械物性に優れている。一方、他の白色顔料、たとえば酸化チタンを用いた場合には成形体の機械物性が損なわれることがある。

[0074] 本発明の組成物中の硫化亜鉛の含有量は、前記ガラス繊維および前記プロピレン系樹脂の合計１００質量部に対して０質量部を超えて１．３質量部以下であり、好ましくは０．１～１．０質量部である。含有量が上記上限値を超えると、成形品中において残存繊維長が低下し、そのため十分に力学的強度が発現しない場合がある。また、残存繊維長が低下すると、短期的に力学的強度が発現したとしても、クリープ特性、振動疲労などの、長期的な特性が十分に発現しない恐れがある。一方、本発明の組成物が硫化亜鉛も他の白色顔料も含まない場合には、カーボンブラックを含むガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物から得られる成形体が過度に黒くなってしまう。

[0075] 《その他の成分》

本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物には、必要に応じて、上述した各成分以外の重合体が、本発明の効果を損なわない範囲で含まれていてもよい。このような重合体の例としてはエチレン系重合体が挙げられ、エチレン系重合体の例としては国際公開第２０２０／０９１０５１号の段落［００５４］～［００６０］に記載されているエチレン系重合体が挙げられる。

[0076] 本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物には、上記各成分以外に、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、銅害防止剤、脂肪酸金属塩、軟化剤、分散剤（前記ポリオレフィンワックスを除く。）、充填剤、着色剤、顔料、発泡剤などの添加剤が、本発明の効果を損なわない範囲で（たとえば、前記組成物１００質

量％に対し５質量％以下の割合で）配合されていてもよい。これらの成分はマスターバッチ化されていてもよい。

[0077] （ガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物）

本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物は、

前記ガラス繊維を１０～５０質量部、好ましくは１５～４５質量部、より好ましくは２０～４０質量部；

前記プロピレン系樹脂を５０～９０質量部、好ましくは５５～８５質量部、より好ましくは６０～８０質量部（ただし、ガラス繊維およびプロピレン系樹脂の合計を１００質量部とする。）；

前記カーボンブラックを０．１２質量部以上、好ましくは０．１５～１．０質量部；

前記ポリオレフィンワックスを、前記カーボンブラックに対する前記ポリオレフィンワックスの質量比が０．７５～２．０、好ましくは０．８０～１．０となる量で；および

硫化亜鉛を、０質量部を超えて１．３質量部以下、好ましくは０．１～１．０質量部含有する。

[0078] 各成分の含有量が上記範囲にあると、白モヤの発生が抑制された成形体を製造することができる。

[0079] （ガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物の製造方法）

本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物は、前記ガラス繊維と、前記プロピレン系樹脂と、前記カーボンブラックと、前記ポリオレフィンワックスと、前記硫化亜鉛と、任意に前記添加剤とを混合することにより、例えばドライブレンドすることにより製造することができる。

[0080] 前記プロピレン系樹脂の一部または全部と前記ガラス繊維とは、好ましくは上述したガラス繊維強化樹脂ペレットの状態で混合される。

[0081] 本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物の製造方法の例としては、さらに、

前記プロピレン系樹脂に、規定量の顔料（カーボンブラック、硫化亜鉛）

および顔料分散剤（ポリオレフィンワックス）を溶融混錬により練り込む工程（１）、および

工程（１）で得られた混合物とガラス繊維強化樹脂ペレットとをドライブレンドする工程（２）

を含む製造方法、ならびに

規定量の顔料（カーボンブラック、硫化亜鉛）および顔料分散剤（ポリオレフィンワックス）を練り込んだカラーマスターバッチを得る工程（１）、および

ガラス繊維強化樹脂ペレットと、プロピレン系樹脂と、工程（１）で得られたカラーマスターバッチとをドライブレンドする工程（２）

を含む製造方法

が挙げられる。

[0082] 工程（２）を溶融混錬ではなくドライブレンドにより実施することにより、ガラス繊維の折損を防止し、力学物性に優れた成形体を製造することができる。

[0083] ［ガラス繊維強化成形体］

本発明に係るガラス繊維強化成形体は、前記ガラス繊維と、前記プロピレン系樹脂と、前記カーボンブラックと、前記ポリオレフィンワックスと、前記硫化亜鉛と、任意に前記添加剤とを含有する組成物からなる。

[0084] 各成分の詳細は、特に断りのない限り上述のとおりである。また、前記組成物中の各成分の含有量およびその技術的意義も、特に断りのない限り、上述した本発明に係るガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物中の各成分の含有量およびその技術的意義と同様である。

[0085] 本発明の成形体の中でのガラス繊維の長さは、通常、本発明のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物の中でのガラス繊維の長さとは異なる。これは、成形中にガラス繊維が折損して短くなるためである。本発明に係るガラス繊維強化成形体中でのガラス繊維の長さは、成形体から所定本数（１０００本）のガラス繊維を抽出し、それらの各繊維長を測定して下記式に基づいて

算出される重量平均繊維長で表すと、通常０．５～５ｍｍ、好ましくは０．８～３ｍｍである。

[0086] 重量平均繊維長＝Σ（繊維長）^{2}／Σ繊維長

本発明に係るガラス繊維強化成形体は、前記ガラス繊維と、前記プロピレン系樹脂と、前記カーボンブラックと、前記ポリオレフィンワックスと、前記硫化亜鉛と、任意に前記添加剤とを含む樹脂組成物、例えば上述した本発明に係るガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物を、成形することにより製造できる。

[0087] 成形方法としては、射出成形法、押出成形法、中空成形法、圧縮成形法、射出圧縮成形法、ガス注入射出成形又は発泡射出成形等の公知の成形法を特に制限なく適用でき、これらの中でも特に射出成形法、圧縮成形法及び射出圧縮成形法が好ましく、外観に優れた（すなわち、白モヤの発生が抑制された）成形体を製造する観点からは、射出成形法が好ましい。

[0088] 本発明の成形体は、自動車内外装部品、家電部品などの種々の分野に好適に用いることができる。自動車内外装部品の例としては、バックドアのインナー材が挙げられる。

実施例

[0089] 以下、実施例に基づいて本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されない。

[0090] （測定方法）

各種物性の測定ないし評価方法は、以下のとおりである。

[0091] ［平均粒径］

分散剤の平均粒径としては、レーザー回折法により測定される体積基準の粒子径分布におけるD_{50}を採用した。

[0092] ［残存繊維長］

サンプルを、６００℃で十分灰化させた後、水中に分散させ、光学顕微鏡により繊維長の測定を行った。５００本以上のガラス繊維を測定し、平均の算出は長さ平均にて算出した。

[0093] ［成形体の外観］

実施例等で製造された成形体の外観を、以下の基準で評価した。

[0094] ○：白モヤがほぼ見えない状態

△：白モヤは見えるが、×に比べると見えにくい状態

×：白モヤが一目瞭然の状態

（使用原料）

実施例等で使用された原料は、以下のとおりである。

[0095] 《長繊維GF強化PPペレット》

［製造例１］

図１に示すペレット製造装置を用いて長繊維強化樹脂ペレットを製造した。

[0096] 図１中、１０はダイ、２０はダイ１０へ溶融樹脂を供給する押出機、３０は繊維束Ｆのロール、４０はダイ１０に引き込まれる繊維束Ｆに一定の張力を与えるテンションロール群、５０はダイ１０から引き出された溶融樹脂含浸繊維束を冷却するための冷却手段、６０は繊維束の引き出しロール、７０は引き出された溶融樹脂含浸繊維束をカットするペレタイザである。この装置では、３本のそれぞれ独立した繊維束Ｆに、溶融樹脂を同時に含浸させている。

[0097] 具体的な製造条件は、以下のとおりである。

[0098] ・ダイ：５０ｍφ押出機の先端に取り付け、含浸部に４本のロッドを直線上に配置

・繊維束：アミノシランで表面処理された繊維径１７μｍのガラス繊維を４０００本束ねたガラスロービング（日本電気硝子(株)製、商品名：Ｔ－４３１Ｎ）

・余熱温度：２００℃

・樹脂：プロピレン系重合体ＰＰ１と無水マレイン酸変性ポリプロピレンｍＰＰ１とを、ＰＰ１：ｍＰＰ１＝４８：２の質量比で混合したもの

・溶融温度：２８０℃

・ロッド：ロッド：四本６ｍｍ（直径）×３ｍｍ（長さ）

上記条件下で、テンションロール群で繊維束の量を調整しつつダイ内に送り込み含浸を行い、その後、ダイから引き出して冷却し、ペレタイザで粒子長が６ｍｍ、強化繊維の長さが６ｍｍ、強化繊維の含有量が５０質量％のガラス繊維強化樹脂ペレットを作製した。

[0099] なお、使用された原料は以下のとおりである。

[0100] ・ＰＰ１（プロピレン単独重合体（ＭＦＲ（２３０℃、２．１６ｋｇ荷重）＝２００ｇ／１０分））

・ｍＰＰ１（変性ポリプロピレン　Adivant製、商品名：POLYBOND3200（ＭＦＲ（２３０℃、２．１６ｋｇ荷重）＝２００ｇ／１０分））

《プロピレン系樹脂》

・ＰＰ２（プロピレン単独重合体、ＭＦＲ（２３０℃、２．１６ｋｇ荷重）＝３０ｇ／１０分）

・ＰＰ３（プロピレン単独重合体、ＭＦＲ（２３０℃、２．１６ｋｇ荷重）＝６０ｇ／１０分）

《カーボンブラック》

・ＨＩＢＬＡＣＫ　８９０Ｂ（商品名）（オリオンエンジニアドカーボンズ製、平均一次粒子径＝１５ｎｍ）

・ＢＬＡＣＫ　ＰＥＡＲＬＳ　４８４０（商品名）（キャボット製、平均一次粒子径＝１８ｎｍ）

《分散剤》

・ＣＥＲＩＤＵＳＴ　６０５０Ｍ（商品名）（微粒子ポリオレフィンワックス、平均粒径＝１２μｍ、クラリアント製）

・ＮＰ５００（商品名）（ポリプロピレンワックス、三井化学製、平均粒径＝２６７μｍ）

・ＮＬ１００（商品名）（ポリエチレンワックス、三井化学製、平均粒径＝２７９μｍ））

・ＰＭ－１１（商品名）（ステアリン酸カルシウム、日油製）

《白色顔料》

・ＳＡＣＨＴＯＬＩＴＨ　ＨＤ－Ｓ（商品名）（硫化亜鉛、ＶＥＮＡＴＯＲ製）

・タイペークＣＲ－６３（商品名）（酸化チタン、石原産業製）

《その他》

・Ｖｙｎａｍｏｎ　Ｇｒｅｅｎ　６００７３４（商品名）（緑顔料、Ｈｅｕｂａｃｈ製）

・Ｉｒｇａｚｉｎ　Ｙｅｌｌｏｗ　Ｌ　１０３０（商品名）（黄顔料、ＢＡＳＦ製）

［実施例１］

４０質量部のPP2（プロピレン系樹脂）に対し、０．１６質量部のＢＰ４８４０（カーボンブラック）、０．１８質量部のＣＥＲＩＤＵＳＴ６０５０Ｍ（微粒子ポリオレフィンワックス）、０．５２質量部のＨＤ－Ｓ（硫化亜鉛）、および０．０４質量部のＩｒｇａｚｉｎ　Ｙｅｌｌｏｗ　Ｌ１０３０（有機黄）を溶融混練し、黒色のペレットを得た。これと６０質量部の製造例1により得られたガラス繊維強化樹脂ペレットをドライブレンドしてガラス繊維強化樹脂組成物を調製した。

[0101] 次に、このガラス繊維強化樹脂組成物から、射出成形機を用いて以下の条件で成形体を製造し、その外観を評価した。

[0102] 金型：３５０ｍｍ×１５０ｍｍ×２ｍｍ、深さ６０μｍの梨地シボ付き

成形温度：２１０℃

金型温度：４０℃

ゲート：サイドゲート（短辺側中央部）

評価結果を表１に示す。

[0103] ［実施例２～８、比較例１～１０］

組成物の原料および量を表１または表２に記載のとおり変更したこと以外は実施例１と同様にして、ガラス繊維強化樹脂組成物を調製し、成形体を製造した。

[0104] 評価結果を表１または表２に示す。

[0105] [表1]

表 1

			実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7	比較例8
組成物配合（質量部）	ガラス繊維強化樹脂ペレット														
	製造例1	長繊維GF強化PPペレット、GF50%含有	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60
	プロピレン系樹脂														
	PP2	プロピレン単独重合体、MFR(230℃、2.16kg荷重)＝30g/10分	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40
	カーボンブラック														
	BLACK PEARLS 4840	平均一次粒子径＝18nm	0.16	0.16	0.22	0.40	0.30	0.10	0.30	0.40	0.22	0.22	0.22	0.22	0.22
	分散剤														
	CERIDUST 6050M	微粒子ポリオレフィンワックス、平均粒径＝12μm	0.18	0.18	0.24	0.44	0.40	0.12	0.30	0.60	0.12	0	0.24	0	0
	NP500	ポリプロピレンワックス、平均粒径＝267μm	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0.24	0
	NL100	ポリエチレンワックス、平均粒径＝279μm	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0.24
	PM-11	ステアリン酸カルシウム	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0.24	0	0	0
	白色顔料														
	SACHTOLITH HD-S	硫化亜鉛	0.52	0.96	0.68	0.80	0.96	0.32	0	1.4	0.68	0.68	0	0.68	0.68
	タイペーク CR-63	酸化チタン	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0.28	0	0
	その他														
	Vynamon Green 600734	緑顔料	0	0	0	0	0	0	0	0.08	0	0	0	0	0
	Irgazin Yellow L 1030	黄顔料	0.04	0	0.04	0	0.04	0.04	0	0	0	0	0	0.04	0.04
成形体物性	曲げ強度	ISO 178	187	176	183	179	186	190	184	190	181	175	136	183	181
	曲げ弾性率	ISO 178	7,040	6,650	6,920	6,600	6,900	7,200	6,680	7,100	6,950	6,750	6,860	6,620	6,780
	シャルピー衝撃強度(23℃)	ISO 179	26	24	27	24	26	31	25	26	25	27	10	31	30
特性	残存繊維長	mm	2.0	2.3	1.9	2.1	1.6	2.0	2.4	1.4	2.3	2.2	1.1	2.1	2.2
成形品外観	白モヤの程度	目視	○	○	○	○	○	×	△	△	×	×	○	×	×

[0106] [表2]

表２

			実施例6	実施例7	実施例8	比較例9	比較例10
組成物配合（質量部）	ガラス繊維強化樹脂ペレット						
	製造例1	長繊維GF強化PPペレット、GF50%含有	80	80	80	80	80
	プロピレン系樹脂						
	PP2	プロピレン単独重合体、MFR(230℃、2.16kg荷重)＝30g/10分	20	20	20	0	20
	PP3	プロピレン単独重合体、MFR(230℃、2.16kg荷重)＝60g/10分	0	0	0	20	0
	カーボンブラック						
	HIBLACK 890B	平均一次粒子径＝15nm	0	0	0	0.10	0
	BLACK PEARLS 4840	平均一次粒子径＝18nm	0.20	0.39	0.20	0	0.20
	分散剤						
	CERIDUST 6050M	微粒子ポリオレフィンワックス、平均粒径＝12μm	0.26	0.52	0.40	0.09	0.22
	白色顔料						
	SACHTOLITH HD-S	硫化亜鉛	0.32	0.7	0.96	0.2	0
成形体物性	曲げ強度	ISO 178	213	215	217	213	209.8
	曲げ弾性率	ISO 178	8,940	9,010	9,050	8,460	8,820
	シャルピー衝撃強度(23℃)	ISO 179	32	31	32	32	27
特性	残存繊維長	mm	1.8	1.7	1.8	2.2	2.5
成形品外観	白モヤの程度	目視	○	○	○	×	△

実施例では、カーボンブラックの割合を増やすことにより成形体の明度が低くなり、硫化亜鉛の割合を増やすことで成形体の明度が高くなり、成形体の色調の調整が容易であった。

[0107] 硫化亜鉛も他の白色顔料も含まない比較例２，１０では、成形体が過度に

黒くなってしまった。

符号の説明

[0108] １０　ダイ

２０　押出機

３０　繊維束Ｆのロール

４０　テンションロール群

５０　冷却手段

６０　引き出しロール

７０　ペレタイザ

請求の範囲

[請求項1] ガラス繊維を１０～５０質量部、

プロピレン系樹脂を５０～９０質量部（ただし、ガラス繊維およびプロピレン系樹脂の合計を１００質量部とする。）、

カーボンブラックを０．１２質量部以上、

平均粒径が１～４０μｍのポリオレフィンワックスを、前記カーボンブラックに対する前記ポリオレフィンワックスの質量比が０．７５～２．０となる量で、および

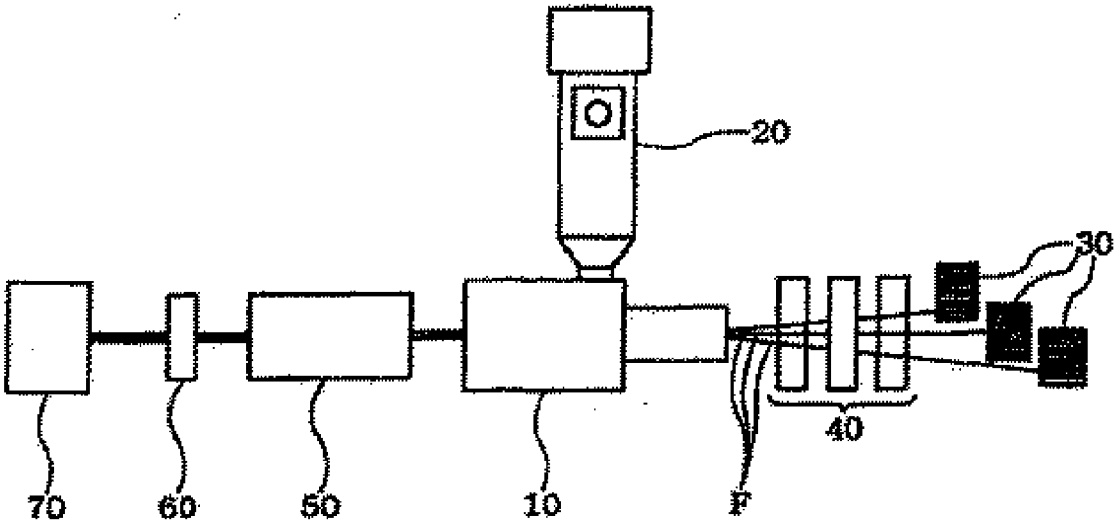
硫化亜鉛を、０質量部を超えて１．３質量部以下含有する、

ガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物。

[請求項2] 前記ガラス繊維の含有量が２５～５０質量部である請求項１に記載のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物。

[請求項3] 前記ポリオレフィンワックスがポリプロピレンワックスである、請求項１または２に記載のガラス繊維強化プロピレン系樹脂組成物。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2022/046629

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C08L 23/10(2006.01)i; ***C08K 3/04***(2006.01)i; ***C08K 3/30***(2006.01)i; ***C08K 7/14***(2006.01)i; ***C08L 91/06***(2006.01)i
FI: C08L23/10; C08K3/04; C08K3/30; C08K7/14; C08L91/06

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)

C08L23/10; C08K3/04; C08K3/30; C08K7/14; C08L91/06

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 1971-2023
Registered utility model specifications of Japan 1996-2023
Published registered utility model applications of Japan 1994-2023

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 2001-342305 A (TOYO INK MFG. CO., LTD.) 14 December 2001 (2001-12-14) claims, examples	1-3
A	JP 2004-123951 A (DAICEL CHEM. IND., LTD.) 22 April 2004 (2004-04-22) claims, examples	1-3
A	JP 2-150444 A (TOYODA GOSEI CO., LTD.) 08 June 1990 (1990-06-08) claims, examples	1-3
A	JP 60-69146 A (MITSUBISHI YUKA KK) 19 April 1985 (1985-04-19) claims, examples	1-3
A	WO 2021/095777 A1 (PRIME POLYMER CO., LTD.) 20 May 2021 (2021-05-20) claims, examples	1-3

☐ 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	Date of mailing of the international search report
07 February 2023	**21 February 2023**
Name and mailing address of the ISA/JP **Japan Patent Office (ISA/JP)** **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/JP2022/046629

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2001-342305 A	14 December 2001	(Family: none)	
JP 2004-123951 A	22 April 2004	(Family: none)	
JP 2-150444 A	08 June 1990	US 5079281 A claims, examples	
JP 60-69146 A	19 April 1985	(Family: none)	
WO 2021/095777 A1	20 May 2021	EP 4059683 A1 claims, examples CN 114651040 A	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2022/046629

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C08L 23/10(2006.01)i; C08K 3/04(2006.01)i; C08K 3/30(2006.01)i; C08K 7/14(2006.01)i; C08L 91/06(2006.01)i
FI: C08L23/10; C08K3/04; C08K3/30; C08K7/14; C08L91/06

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））

C08L23/10; C08K3/04; C08K3/30; C08K7/14; C08L91/06

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	１９７１－２０２３年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２３年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２３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 2001-342305 A (東洋インキ製造株式会社) 14.12.2001 (2001-12-14) 特許請求の範囲、実施例	1-3
A	JP 2004-123951 A (ダイセル化学工業株式会社) 22.04.2004 (2004-04-22) 特許請求の範囲、実施例	1-3
A	JP 2-150444 A (豊田合成株式会社) 08.06.1990 (1990-06-08) 特許請求の範囲、実施例	1-3
A	JP 60-69146 A (三菱油化株式会社) 19.04.1985 (1985-04-19) 特許請求の範囲、実施例	1-3
A	WO 2021/095777 A1 (株式会社プライムポリマー) 20.05.2021 (2021-05-20) 請求の範囲、実施例	1-3

☐ 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	国際調査報告の発送日
07.02.2023	21.02.2023

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）
谷合　正光 4J 2670

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/JP2022/046629

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2001-342305 A	14.12.2001	（ファミリーなし）	
JP 2004-123951 A	22.04.2004	（ファミリーなし）	
JP 2-150444 A	08.06.1990	US 5079281 A Claims, Examples	
JP 60-69146 A	19.04.1985	（ファミリーなし）	
WO 2021/095777 A1	20.05.2021	EP 4059683 A1 Claims, Examples CN 114651040 A	