

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表2009-534226

(P2009-534226A)

(43) 公表日 平成21年9月24日 (2009.9.24)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
B 2 9 C 45/18 (2006.01)	B 2 9 C 45/18	4 F 2 0 6
B 2 9 C 45/20 (2006.01)	B 2 9 C 45/20	

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 28 頁)

(21) 出願番号	特願2009-506718 (P2009-506718)	(71) 出願人	502141050 ダウ グローバル テクノロジーズ イン コーポレイティド アメリカ合衆国 ミシガン州 48674 、ミッドランド、ダウ センター 204 O
(86) (22) 出願日	平成19年4月17日 (2007.4.17)	(74) 代理人	100099759 弁理士 青木 篤
(85) 翻訳文提出日	平成20年12月16日 (2008.12.16)	(74) 代理人	100077517 弁理士 石田 敬
(86) 国際出願番号	PCT/US2007/066778	(74) 代理人	100087413 弁理士 古賀 哲次
(87) 国際公開番号	W02007/124303	(74) 代理人	100111903 弁理士 永坂 友康
(87) 国際公開日	平成19年11月1日 (2007.11.1)		
(31) 優先権主張番号	60/745, 116		
(32) 優先日	平成18年4月19日 (2006.4.19)		
(33) 優先権主張国	米国 (US)		

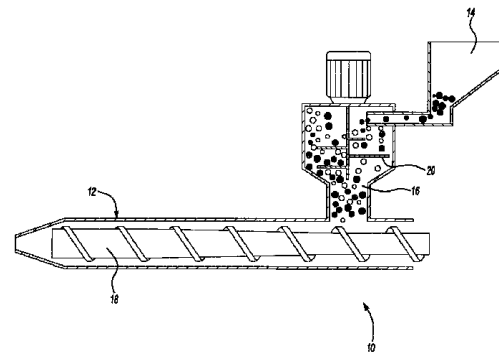
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 熱可塑性物質およびその改良製法

(57) 【要約】

本発明は、改善されたプラスチック物品の作製方法及びこの方法により作製された物品に関する。広い局面では、本発明は、熱可塑性ポリオレフィンを含む第一の原料、粒子状充填剤と第二の熱可塑性ポリオレフィンとの混合物を含む第二の原料、およびエラストマーを含む第三の原料を、別々の原料として供給する工程、原料を混合し熔融混合物を形成するために原料を高温にした状態で、第一、第二および第三の原料にせん断力をかける工程、熔融混合物を成形および熔融混合物を固化させる工程を含む改善されたプラスチック物品の作製方法及びこの方法により作製された物品に関する。

【選択図】 図 1



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

射出成形機にポリオレフィンを含有する第一の原料を供給する工程、射出成形機に粒子状の充填剤と第二のポリオレフィンとの混合物を含有する第二の原料を供給する工程、射出成形機にエラストマーを含有する第三の原料を供給する工程、射出成形機の内部において第一、第二および第三の原料を混合して混合物を形成する工程、そして混合物を成型型に射出する工程からなる射出成形品を製造する方法であって、該方法は混合工程に先立って第一、第二および第三の原料を調合する工程を実質的に含まないことを特徴とする方法。

【請求項 2】

射出成形機がスクリー・バレル部材の上流に位置するホッパーを含み、供給工程が第一、第二および第三の原料をホッパーへ供給することを含むことを特徴とする請求項 1 記載の方法。

【請求項 3】

混合工程をスクリー・バレル部材内部で行い、スクリー・バレル部材が約 15 / 1 より大きい長さ / 直径比を有することを特徴とする請求項 2 記載の方法。

【請求項 4】

混合工程中に、少なくとも約 100 p s i の背圧を第一、第二および第三の原料にかけることを特徴とする請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 5】

混合工程中に、約 25 ~ 250 r p m のスクリー速度を採用することを特徴とする請求項 3 又は 4 記載の方法。

【請求項 6】

混合工程を約 180 ~ 約 270 の温度で行うことを特徴とする請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 7】

射出工程が、混合物を静的混合機に通過させることを含むことを特徴とする請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 8】

射出工程が、吹込成形、二段式射出成形あるいはそれらの組み合わせから選ばれる複数の操作工程の一部であることを特徴とする請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 9】

射出成形機のスクリーが複数の流れ内チャンネルおよび流れ外チャンネルの両方を含むことを特徴とする請求項 1 ~ 8 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 10】

射出成形機が、分散混合を与えるための少なくとも 1 つの溝、分配混合を与えるための少なくとも 1 つのバイパスチャンネル、あるいはその両方を有する混合フライトを含むことを特徴とする請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 11】

混合が分散混合および分配混合を含むことを特徴とする請求項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 12】

第一の原料のポリオレフィンが、約 70 g / 10 分 (230 、 2 . 16 k g) 未満のメルトフローレート、(第一の原料の) 約 8 重量 % より多い量のエチレンを含有すること、結晶化度が約 40 % より多いこと、あるいはそれらの任意の組み合わせによって特徴づけられる純ポリプロピレン単独重合体、純ポリプロピレン耐衝撃性共重合体であることを特徴とする請求項 1 ~ 11 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 13】

粒子状の充填剤がタルクであることを特徴とする請求項 1 ~ 12 のいずれか 1 項に記載の方法。

10

20

30

40

50

【請求項 14】

第二のポリオレフィンが約 70 g / 10 分 (230 、 2.16 kg) 未満のメルトフローレート、(第一の原料の) 約 8 重量%より多い量のエチレンを含有すること、結晶化度が約 40 %より多いこと、あるいはそれらの組み合わせによって特徴づけられる純ポリプロピレン単独重合体、純ポリプロピレン耐衝撃性共重合体であることを特徴とする請求項 1 ~ 13 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 15】

第三の原料のエラストマーが - オレフィン共単量体を含み、そして約 0.9 未満の密度、約 0.5 ~ 約 30 g / 10 分 (190 、 2.16 kg) のメルトフローレート、約 - 30 未満のガラス転移温度、あるいはそれらの任意の組み合わせを有することを特徴とする請求項 1 ~ 14 のいずれか 1 項に記載の方法。

10

【請求項 16】

第一、第二および第三の原料の相対的な量は、第一の原料が約 30 ~ 90 重量部、所望により第二の原料が約 30 重量部以下、および第三の原料が約 3 ~ 40 重量部の範囲であることを特徴とする請求項 1 ~ 15 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 17】

粘性率が約 0.2 ~ 7であることを特徴とする請求項 1 ~ 16 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 18】

生成した物品が、ラメラ形態、約 0.1 μm ~ 約 5 μm のゴム領域サイズを有する液体粒子状形態、あるいはそれらの組み合わせを示すことを特徴とする請求項 1 ~ 17 のいずれか 1 項に記載の方法。

20

【請求項 19】

生成した物品が、次の性質、すなわち、密度が約 0.85 ~ 約 1.05 g / cm^3 、曲げ弾性率が約 600 ~ 約 2500 MPa、引張強度 (降伏点) が少なくとも約 8 MPa、装置化落槌衝撃試験における延性破断モード (- 40 、 - 30 あるいは 0) が試験サンプルの約 90 %超、の少なくとも 2 つの任意の組み合わせを示すことを特徴とする請求項 1 ~ 18 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 20】

請求項 1 ~ 19 のいずれか 1 項に記載の方法によって製造された物品。

30

【請求項 21】

本質的に熱可塑性ポリオレフィンからなる第一の原料、粒子状充填剤と第二の熱可塑性ポリオレフィンとの混合物を含有する第二の原料、および本質的にエラストマーからなる第三の原料を含む、成形されたプラスチック物品を製造するためのキット。

【請求項 22】

第一の原料の熱可塑性ポリオレフィンが、約 70 g / 10 分 (230 、 2.16 kg) 未満のメルトフローレート、(第一の原料の) 約 8 重量%より多い量のエチレンを含有すること、結晶化度が約 40 %より多いこと、あるいはそれらの任意の組み合わせによって特徴づけられる純ポリプロピレン単独重合体、純ポリプロピレン耐衝撃性共重合体であることを特徴とする請求項 21 に記載のキット。

40

【請求項 23】

粒子状充填剤がタルクであることを特徴とする請求項 21 又は 22 に記載のキット。

【請求項 24】

第二の熱可塑性ポリオレフィンが、約 70 g / 10 分 (230 、 2.16 kg) 未満のメルトフローレート、(第一の原料の) 約 8 重量%より多い量のエチレンを含有すること、結晶化度が約 40 %より多いこと、あるいはそれらの任意の組み合わせによって特徴づけられる純ポリプロピレン単独重合体、純ポリプロピレン耐衝撃性共重合体であることを特徴とする請求項 21 ~ 23 のいずれか 1 項に記載のキット。

【請求項 25】

第三の原料のエラストマーが - オレフィン共単量体を含み、そして約 0.9 g / cm

50

³ 未満の密度、約 0.5 ~ 約 30 g / 10 分 (190、2.16 kg) のメルトフローレート、約 - 30 未満のガラス転移温度、あるいはそれらの任意の組み合わせを有することを特徴とする請求項 21 ~ 24 のいずれか 1 項に記載のキット。

【請求項 26】

第一、第二および第三の原料の相対的な量は、第一の原料が約 30 ~ 90 重量部、第二の原料が約 10 ~ 30 重量部、および第三の原料が約 3 ~ 40 重量部の範囲であることを特徴とする請求項 21 ~ 25 のいずれか 1 項に記載のキット。

【請求項 27】

別々の原料として、熱可塑性ポリオレフィンを含む第一の原料、粒子状充填剤と第二の熱可塑性ポリオレフィンとの混合物を含む第二の原料、およびエラストマーを含む第三の原料を供給する工程、原料を混合し熔融混合物を形成するために原料を高温にした状態で、第一、第二および第三の原料にせん断力をかける工程、熔融混合物を成形および熔融混合物を固化させる工程からなる、成形品を製造する方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、成形された熱可塑性物品およびその製法、および特定の態様においては、射出成形機中にて混合され、射出成形されたポリオレフィン物品に関する。

【背景技術】

【0002】

プラスチックの分野では、良好な機械的性質を有し、相対的に安価で、製造しやすい物質が継続して求められている。近年の原料物質の価格や原料を加工するためのエネルギー費の高騰により、現在市販されている多くのプラスチックが必要とする物理的、機械的ニーズを満足する魅力的な代替原料系を探る研究が激化してきた。たとえば、熱可塑性ポリオレフィンの分野では、加工前の調合 (compounding) 工程、特に出発原料への熱履歴 (heat history) や操作に要するエネルギー消費、あるいはその両方への依存を少なくする効果的な原料系の入手が魅力的である。

【0003】

この分野における原料の製造方法に関する文献の例としては、米国特許出願公開第 2004/0048967 号明細書、米国特許出願公開第 2005/0070673 号、米国特許出願公開第 2005/0250890 号明細書、米国特許出願公開第 2005/0049346 号明細書、米国特許第 4,732,926 号明細書、米国特許第 5,130,076 号明細書、および米国特許第 6,441,081 号明細書、欧州特許出願公開第 0987091 号明細書、特開 2004-168876 号公報、Verbraak, C. ら, "Screw Design in Injection Molding", Polym. Eng. & Sci., 1989 年, 第 29 巻, 第 7 号, p. 479 - 487、および Han, C. D. ら, "Morphology and Mechanical Properties of Injection Molded Specimens of Two-Phase Polymer Blends", Journal of Applied Polymer Science, 1977 年, 第 21 巻, p. 353 - 370 がある。"EXACT Plastomers - High Performance Solutions for TPO Applications", ExxonMobil Technical Bulletin, 2005 年 5 月は、エラストマー / PP の粘性率の延性・脆性遷移温度に及ぼす影響についての研究している。これらは全て引用によってここに明白に取り込まれる。

【発明の開示】

【課題を解決するための手段】

【0004】

本発明はプラスチック物品を製造するための改良された製法およびその製法から製造された物品に関する。概括的には、本発明は、個別の原料として、ポリオレフィン (たとえ

10

20

30

40

50

ば、熱可塑性ポリオレフィン)を含有あるいは本質的にそれらからなる第一の原料、粒子状充填剤と第二の熱可塑性ポリオレフィンとの混合物を含有する任意的な第二の原料、およびエラストマーを含有あるいは本質的にそれらからなる第三の原料を供給する工程、原料を混合し、熔融混合物を形成するために、原料を高温にした状態で、第一、第二および第三の原料にせん断力をかける工程、熔融混合物を成形しおよび熔融混合物を固化させる工程を含む改良された製法、とその製法から製造された物品に関する。

【0005】

さらに具体的な態様においては、本製法は、射出成形機に本質的に熱可塑性ポリオレフィンあるいはポリプロピレン単独重合体からなる第一の原料を供給する工程、所望により、射出成形機に粒子状充填剤と第二の熱可塑性ポリオレフィンあるいはポリプロピレン単独重合体との混合物を含有する第二の原料を供給する工程、射出成形機に本質的にエラストマーからなる第三の原料を供給する工程、射出成形機の内部において第一、第二および第三の原料を混合して混合物を形成する工程、そして混合物を成形型に射出する工程からなる工程を含み、該製法は混合工程に先立って第一、第二および第三の原料を調合する工程を実質的に含まない。

10

【発明を実施するための最良の形態】

【0006】

本発明はプラスチック物品を製造するための改良された製法およびその製法から製造された物品に関する。概括的な態様において、本発明は、個別の原料として、第一の純ポリオレフィン(たとえば、熱可塑性ポリオレフィンあるいはポリプロピレン単独重合体)、粒子状充填剤と第二のポリオレフィン(たとえば、第一の純ポリオレフィンと同一あるいは異なる熱可塑性ポリオレフィンあるいはポリプロピレン単独重合体)との混合物を含有する第二の原料、および純エラストマーを供給する工程、原料を混合し、熔融混合物を形成するために三つの原料を高温にした状態で、原料にせん断力をかける工程、熔融混合物を成形し、熔融混合物を固化させる工程を含む改良された製法とその製法から製造された物品に関する。望ましくは、本製法は、混合工程に先立って三原料を調合する工程を含まず、特に、熔融混合工程を含む事前調合工程を含まない。

20

【0007】

上記から解るように、熔融混合物を成形する工程は、成形品をつくるために開示されている数多くの技術の何れか1つ、あるいはそれらの組み合わせによって実施することができる。例示すれば、成形は吹込成形、射出成形、あるいはそれらの組み合わせによって行うことができる。一般には、そのような工程は適切な装置を用いて、特に熔融混合物が得られるよう高温で供給原料にせん断力を与えるのが有利である。図1を参照して例示すれば、典型的な実施方法は、スクリュー・パレル部材12を有する装置10を採用し、供給原料は、たとえば、貯蔵容器(たとえば濃縮物用コンテナ14)から直接導入により、混合ホッパー16を経て、スクリュー・パレル部材12に供給される。原料は、スクリュー・パレル部材12の内部をスクリュー18に沿って進むときに、分散混合、分配混合、あるいはその両方により混合される。乾式混合のために、混合アーム20を採用してもよい。適当な供給装置を用いることができ、たとえば重量計を備えるもの(たとえば、マグワイヤ社(Maguire)から入手可能)のような重力式フィーダーがその例である。たとえば、少なくとも1つの重量計を有する重量式フィーダーは、混合ホッパーに原料供給が可能である。ブレンダーも、重量式フィーダー、混合ホッパーあるいは両方に組み込むなどして採用可能である。

30

40

【0008】

原料は、分散混合のための少なくとも1つの溝(undercut)、分配混合のために少なくとも1つのバイパスチャンネル、あるいはその両方を有する混合フライトにて処理することができる。所望の混合物が得られたら、混合原料は、所望により混合ノズルを通して装置から排出され、所望の物品の形状の装置壁(非表示)と接触させられる。

【0009】

ここで用いられるスクリュー・パレル部材は、所望の結果が得られるどのような寸法の

50

ものでもよい。混合工程がスクリー・バレル部材内部で行われる 1 つの方法では、スクリー・バレル部材の直径に対する長さの比は約 5 / 1 より大で、さらに具体的には約 10 / 1 より大、また、さらに具体的には約 15 / 1 より大である（たとえば、約 15 / 1 ~ 25 / 1）。

【0010】

本教示によれば、スクリー・バレル部材内で混合を行う際に考慮しなければならないもう 1 つのことは、適当な背圧（すなわち、スクリー復帰（screw recovery）時にブラスチックにかかる圧力）、スクリーの圧縮比、あるいはその両方の選択である。例示にて一側面を説明すれば、混合工程を通して、少なくとも約 100 p s i、さらに具体的には少なくとも約 150 p s i、またあるいは少なくとも約 200 p s i（たとえば、約 250 p s i）の背圧が第一、第二および第三の原料にかけられ、スクリーの圧縮比は約 1 / 1 より大（さらに具体的には、少なくとも約 2 / 1、たとえば約 2 / 1 ~ 3 . 5 / 1 あるいはそれより大（たとえば、約 2 . 4 / 1））、あるいはそれらを組み合わせにて採用される。

【0011】

スクリー速度は、約 20 ~ 100 r p m、さらに具体的には約 30 ~ 約 80、またさらに具体的には約 40 ~ 約 60 r p m を、混合工程を通して採用することが望ましい。

【0012】

混合工程は、使用された特定の機械の任意の適当な溶融設定温度にて行うことができる。たとえば、約 200 ~ 約 270、さらに具体的には約 210 ~ 約 255、またさらに具体的には約 220 ~ 約 240 の機械の溶融設定温度にて行うことができる。

【0013】

所望により、射出工程は、混合物を混合ノズル（たとえば、界面形成混合ノズル（interfacial surface generating mixing nozzle）のような静的混合装置を通過させることを含む。

【0014】

公知の様々なスクリーデザインを用いて良好な混合ができるが、高性能のデザインのものを用いることが殊に好ましい。高性能デザインの一つの特徴は、スクリーの長さに沿って寸法が可変である 2 あるいはそれ以上のチャンネルを有していることである。チャンネルの寸法が可変であることは、原料がチャンネルの間を流れることを強制し、改善された混合を与えることができる。たとえば、分散混合は、重合体溶融物の流れをカット、重ね合わせるにより行われるのに対し、分配混合は、重合体溶融物の流れを制限的チャンネルを通すことにより行われる。いくつかの高性能スクリーを例示すれば、エネルギー伝達スクリー（Energy Transfer (ET) screw）、二重波スクリー（double wave screw）、S t r a t a b l e n d TM スクリュー、および U n i M i x TM スクリューなどであるが、これらに限定されるものではない。二次的混合装置を採用して混合を改善することもできる。二次的混合装置はスクリーデザインに組み入れたり（動的混合装置）、スクリーの下流に組み入れてもよい（静的混合装置）。動的混合装置の例は、一あるいはそれ以上の M a d d o c k 型混合機、ブリストー混合機（Blister mixers）、らせんだ混合機（spiral dam mixers）、ピン混合機（pin mixers）、および混合リング（mixing ring）よりなるが、これらに限定されるものではない。静的混合装置の例は、K e n i c s TM 混合機、界面形成（I S G）混合機（Interfacial surface generator (ISG) mixers）、および K o c h TM 混合機よりなるが、これらに限定されるものではない。射出成形の場合は、静的混合装置のようなデザインがノズルに組み込むことができ、これらは混合ノズルと呼ばれる。

【0015】

上述の説明から明らかなように、出発原料の溶融混合を含む調合操作は、装置への原料の供給に先立って行ってもよいが、特に好ましい実施方法は、そのような工程を省くことである。このように、本製法は、混合工程に先立って第一、第二および第三の原料を調合する工程を実質的に含んでいない。驚くべきことに、上述の操作条件の一部あるいはすべ

10

20

30

40

50

てを採用することによりこのことが可能となる。有利に、生成物質の性質を改善するためには、第一、第二および第三の原料の選択もまた重要な判断事項となる。

【0016】

第一の原料については、一般的には、ポリオレフィンを含み、特に熱可塑性ポリオレフィン（すなわち、ポリプロピレンと、ポリエチレンのような可撓化成分を含むポリオレフィンアロイ）がよい。望ましくは、本製法にてここで採用されているように、第一の原料は純ポリオレフィンで、たとえば、約70g/10分（230、2.16kg）未満のメルトフローレート（たとえば、約1～約55g/10分、さらに具体的には約5～約45g/10分、またさらに具体的には約20g/10分～約35g/10分）、約8重量%（第一の原料の重量の）より多くのエチレン（たとえば、約12重量%より多くのエチレン）を含有すること、約40%より多くの（たとえば、約50%より多くの）結晶化度を有すること、あるいはそれらの組み合わせで特徴づけられるポリプロピレン耐衝撃性共重合体の如きである。最終的な全原料において、第一の原料は、通常、最終産物の約20重量%より多くの量、特に約35重量%より多くの量で、さらに具体的には約40～約90重量%、またさらに具体的には約50～約75重量%で存在する。純ポリプロピレン単独重合体を、純ポリプロピレン耐衝撃性共重合体の代わりあるいはその添加物として用いることができる。当然のことながら、ここにおいて使用する重合体は、純粋な状態の重合体を用いることが好ましい。勿論、本教示は、本重合体に、公知の適当な添加物、たとえば透明剤/造核剤、潤滑剤、スリッパ剤、安定剤（たとえば、熱安定剤）およびこれらの組み合わせなどを含有させることも意図している。

10

20

【0017】

次に、第二の原料について、用いる場合は、第二の原料は、通常、粒子状充填剤と第二の熱可塑性物質、特にポリオレフィン（たとえば、熱可塑性ポリオレフィンあるいはポリプロピレン単独重合体）を含むか、あるいは（さらに具体的側面では）本質的にこれらからなる混合物を含む。公知の数多くの代替可能な充填剤（たとえば、雲母、炭酸カルシウム、シリカ、粘土、木材、二酸化チタン）が使用できるが、好ましい充填剤は、タルク（たとえば、本質的に $3\text{MgO} \cdot 4\text{SiO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ からなるもの）である。充填剤は、任意の適当な中央粒子サイズ、たとえば約10 μm あるいはそれより小さい（たとえば、約7 μm もしくはそれより小さいか、あるいは約5 μm もしくはそれより小さくてもよい、あるいは、多分、約3 μm 未満ですらよく（たとえば、約1 μm より小さい））オーダーでよい。充填剤は、任意の適当な最大粒径でよく、たとえば約50 μm あるいはそれより小さいオーダー（たとえば、約30 μm 未満、さらに具体的には約15 μm より小さい）でよい。

30

【0018】

第二の原料とともに、充填剤は事前に（たとえば、熔融混合工程により）第二の熱可塑性物質と調合しておくことが好ましい。充填剤は、一般には、第二の原料全体に均一に分配するように混合することが好ましい。同時に、他でも記載されているように、第二の原料に1種あるいはそれ以上の添加物を混合、含有させることもできる。また、この段階において、着色剤あるいは色素を添加することも可能である。1つの実施方法として、第二の熱可塑性物質に加えて、たとえばポリエチレン（たとえば、LLDPE）のような別の重合体を添加することも、また望ましい。このように、自明のことながら、第二の熱可塑性原料は、第一の原料と同じタイプの重合体、あるいは別の重合体もしくは複数の重合体の組み合わせを用いることも可能である。本教示による特定の例においては、第二の熱可塑性物質は、純ポリプロピレン耐衝撃性共重合体であり、たとえば、約80g/10分（230、2.16kg）未満のメルトフローレート（たとえば、約1～約55g/10分、具体的には約5～約45g/10分、またさらに具体的には約20g/10分～約35g/10分）、約8重量%（第一の原料の重量の）より多くのエチレン（たとえば、約12重量%より多くのエチレン）を含有すること、約40%より多くの（たとえば、50重量%より多くの）結晶化度を有すること、あるいはそれらの組み合わせで特徴づけられるものの如きである。

40

50

【 0 0 1 9 】

すでにお分かりのように、第二の原料は、効果的にマスターバッチとして、即ち、特定の例において「濃縮物」と看做される。このように、別の観点から、濃縮物中の充填剤（たとえば、タルク）の量は、通常、濃縮物の約 50 重量%より多い量、たとえば約 50 ~ 約 85 重量%、さらに具体的には約 60 ~ 約 75 重量%である。たとえば、それぞれの原料の量は、充填剤が最終物質中に約 40 重量%未満、さらに具体的には約 30 重量%未満、またさらに具体的には約 20 重量%未満で存在するように選択して使用する。さらに、上記のように、ポリプロピレン単独重合体を、第二の原料中の純ポリプロピレン耐衝撃性共重合体の代わり、あるいは添加して使用することができる。さらには、最終物質中に 1 種あるいはそれ以上の添加物が望まれる場合には、そのような添加物は濃縮物に包含させることができる。

10

【 0 0 2 0 】

本教示は、ここでは、一般的に、濃縮物あるいはマスターバッチを採用することを意図しているけれども、本教示は、そのような濃縮物あるいはマスターバッチを使用しなくても所望の性質を付与することができる。従って、本発明は、充填剤を実質的に含まない（たとえば、タルクを実質的に含まない）物質をつくる製法あるいは系をも意図している。

【 0 0 2 1 】

第一の原料、第二の原料あるいは両方に用いられるポリオレフィン、プロピレン - エチレン共重合体（ゴム変性していてもよい）を含み得る。ポリオレフィンを含むか、あるいは本質的にポリオレフィンからなる適切な原料の例は、ダウ・ケミカル社（The Dow Chemical Company）から C 7 0 5 - 4 4 N A あるいは C 7 1 5 - 1 2 N H P の商品番号で入手可能である。

20

【 0 0 2 2 】

本教示に従い使用できる重合体の追加の具体例は、国際公開第 0 3 / 0 4 0 2 0 1 号パンフレット、米国特許出願公開第 2 0 0 3 / 0 2 0 4 0 1 7 号明細書、および米国特許第 6 , 5 2 5 , 1 5 7 号明細書に開示されたものを含み、これらは全て引用によって取り込まれる。メタロセン触媒を用いて作られた重合体も、また、第一の原料、第二の原料あるいはその両方において使用することができる。

【 0 0 2 3 】

最後に第三の原料について、すでに示したように、第三の原料は、エラストマー、特に熱可塑性エラストマーで、たとえば、 α -オレフィン共単量体（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）を含み、その密度が約 0.9 g / cm^3 未満、そのメルトフローレートが約 $0.1 \sim 30 \text{ g / 10 分 (190}^\circ\text{C)}$ 、 2.16 kg ）、さらに具体的には約 $0.5 \sim 25 \text{ g / 10 分 (190}^\circ\text{C)}$ 、 2.16 kg ）、そのガラス転移温度が約 -30°C 未満あるいはそれらの組み合わせを有する純熱可塑性共重合体である。ここで使用する原料は、所望により、実質的に EPDM ゴムを含まなくすることもできる。最終生産物全体において、第三の原料は、通常、最終物質の約 60 重量%未満、特に約 50 重量%未満、さらに具体的には約 2 ~ 45 重量%（たとえば、約 15 ~ 45 重量%）の量にて存在する。たとえば、共重合体の代わりにポリプロピレン単独重合体を用いるときなど、場合によっては、より多くの量のエラストマーを用いることができる。エラストマーを含む、あるいは本質的にエラストマーからなる適切な原料の例は、ダウ・ケミカル社から AffinityTM（たとえば、EG - 8 1 0 0 あるいは EG - 8 2 0 0 を含む）の商品番号で市場から入手可能である。

30

40

【 0 0 2 4 】

第一、第二および第三の原料の相対的な量は、約 30 ~ 90 重量部の第一の原料、所望により用いる約 30 重量部までの第二の原料、および約 3 ~ 40 重量部の第三の原料の範囲で変化する。たとえば、第三の原料のエラストマーは、最終生産物中にゴムの含有を生じさせることができ、その含量は、約 2 ~ 約 40 重量%にわたって変化する。第一の原料および第三の原料へのゴムの添加は、出発原料の少なくとも 2 重量%の量であることが一般に意図される。

50

【 0 0 2 5 】

お分かりのように、「第一」、「第二」および「第三」という原料の呼び名は、便宜的なものである。特に記載しない限り、これら用語の使用によって、他の原料が排除されると解釈されるべきではなく、また、工程のいかなる特別な順序の必要性を示唆する、とも解釈するべきではない。上記の第一、第二および第三の原料に追加して、他の成分を採用してもよく、1種あるいはそれ以上の充填剤、強化剤、光安定剤、着色剤、難燃剤、熱安定剤、造核剤などの公知の材料を含むが、それらに限定されるものではない。

【 0 0 2 6 】

2種あるいはそれ以上の第一、第二および第三の原料を、たとえば1つあるいはそれ以上の適当な容器に入れて、キットとして一緒に供給してもよいと考えられる。従って、そのようなキットも、それぞれ独立した成分原料と同様、本発明の範囲に包含される。

10

【 0 0 2 7 】

ここの教示によって製造される物質は、次の性質の少なくとも2つの（さらに具体的には、少なくとも3つ、4つあるいはすべての）、任意の組み合わせを有する。すなわち、密度が約0.85～約1.05 g/cm³、さらに具体的には約0.9～約1.0、曲げ弾性率が約600～約2500 MPa、さらに具体的に約700～約1700 MPa、またさらに具体的には約900～約1300 MPa、引張強度（降伏点）が少なくとも約8 MPa、さらに具体的に少なくとも約10 MPa、またさらに具体的には約12 MPa、延性破断モード（たとえば多軸落槍衝撃試験（装置化落槍衝撃試験））が試験サンプルの約90%より大、さらに具体的には約100%（-40、-30あるいは0で）、あるいは収縮が1%未満、さらに具体的には約0.7%未満。

20

【 0 0 2 8 】

さらに具体的には、ここの教示によって製造される物質は、試験サンプルの約90%超、さらに具体的にはおおよそ100%（-40、-30あるいは0で）の延性破断モード（たとえば、多軸落槍衝撃試験（装置化落槍衝撃試験））および少なくとも約3（たとえば、約5あるいはそれより大）ft-lbs/inのノッチ付きアイゾット衝撃強度の任意の組み合わせ、および、所望により次の性質、すなわち、密度が約0.85～約1.05、さらに具体的には約0.9～約1.0 g/cm³、曲げ弾性率が約600～約2500 MPa、さらに具体的に約700～約1700 MPa、またさらに具体的には約900～約1300 MPa、引張強度（降伏点）が少なくとも約8 MPa、さらに具体的に少なくとも約10 MPa、またさらに具体的には少なくとも約12 MPa、あるいは所望により収縮が1%未満、さらに具体的には約0.7%未満、の少なくとも1つを有する。

30

【 0 0 2 9 】

特に記載しない限り、ここにおける「メルトフローレート」および「メルトインデックス」は、ASTM D1238にて測定される。ポリプロピレンについては、230、2.16 kg重量で試験される。エラストマーについては、190、2.16 kgで試験される。粘度は、Kayenes細管レオメーターを用いて、ASTM D3835-96（ダイ直径0.762 mm、ダイの長さ25.4 mmおよびL/D33.3を採用）に従い測定する。多軸あるいは装置化落槍衝撃（IDI）エネルギー（Instrumented Dart Impact (IDI) Energy）測定は、ASTM D3763に従う。例示で説明すれば、多軸落槍衝撃試験（装置化落槍衝撃試験）は、MTS 810高速機器にて2000ポンドロードセルを用いて行われる。全試料は直径4インチ、厚さ0.125インチのディスクである。約13 mmのチップを用いて、ディスクを6.7メートル/秒で激突させる。3インチの試験領域を残し、外側の0.5インチはネジで固定している。延性破断（ここでは、記号「D」で表示）は、プラスチック部の中心を通り抜ける無傷の穴を残してその穴を描き出し、放射上に伸びる亀裂がないことは裸眼で観察される。

40

【 0 0 3 0 】

密度の測定は、ISO 1183（A法）による。ノッチ付きアイゾット衝撃測定はASTM D256に従う。結晶度パーセントは、ASTM D3417に従い、示差走査

50

熱量測定法にて測定する。ミリグラム量の重合体サンプルをアルミニウム D S C 皿に封入する。サンプルを、1 分あたり 25 cm^3 の窒素パージを伴う D S C セルに入れて、 -100 に冷却する。標準的な熱履歴は、サンプルを 10 / 分で 225 まで加熱して確立する。然る後、サンプルを -100 まで (10 / 分で) 冷却し、 10 / 分で 225 まで再加熱する。二回目のスキャン時に観察された融解熱を記録する ($H_{\text{観察}}$)。観察された融解熱は、ポリプロピレンサンプルの重量を基準として、次の式によって重量 % の結晶化度に関係する。結晶化度 % = $H_{\text{観察}} / H_{\text{イソタクチックPP}} \times 100$ 。ここで、イソタクチックポリプロピレンの融解熱は、ビー・ワンデルリッヒ (B. Wunderlich), 高分子物理 (Macromolecular Physics), 第 3 巻, 結晶融解 (Crystal Melting), アカデミック・プレス (Academic Press), ニュー・ヨーク (New York), 1980 年, p. 48 にて報告されているように重合体 g あたり 165 ジュールである。

10

【0031】

ガラス転移温度 (T_g) は、圧縮成形エラストマーのサンプルにて測定され、Rheometric社製の動的機械分光計 (Dynamic Mechanical Spectrometer) を用いて、温度傾斜を実施する。ガラス転移温度は、 \tan ピークでの温度であると定義される。固相状態試験は、液体窒素環境下、ねじれ固定具 (torsion fixture) を用いて動的モードにおいて行われる。温度傾斜率は 3 / 分、 1 ラジアン / 秒の振動数で、初期歪は 0.1 である。平均サンプル寸法は、長さ 45.0 mm 、幅 12.6 mm 、厚さ 3.2 mm である。

【0032】

20

曲げ弾性率は I S O 178 により測定する。引張強度 (降伏点) は、I S O 527-1 / 2 により測定する。収縮は、I S O 294 により測定する。

【0033】

マトリックスの見掛け粘度に対する分散相の見掛け粘度の比は、せん断速度の関数として (たとえば、 $55 \sim 5500\text{ sec}^{-1}$ のせん断速度範囲に亘り) プロットし、「粘度比」と呼称される。粘度比は、望ましくは、約 $0.2 \sim 1.0$ の範囲で変化し、さらに具体的には約 5 未満である。相対的に低い粘度比 (たとえば、 2 未満) にすると、多分、ラメラ形態のものになるが、そのようなこともできる。

【0034】

本教示によって製造される物質は、一般には、マトリックス中に分散するゴム相を呈する。1 つの通常の構造は、第一および第二の原料に由来するポリオレフィンおよび成分よりなるマトリックス相中に分散する、複数の、一般には均一に分散した分散ゴム液体粒子 (droplets) (たとえば、第三の原料に由来) を含む。生成物質は、また、約 $0.1\text{ }\mu\text{m}$ ~ 約 $5\text{ }\mu\text{m}$ 、さらに具体的には約 $0.3 \sim 2.5\text{ }\mu\text{m}$ の体積平均ゴム領域サイズ (volume average rubber domain size) を示す。ゴム領域サイズの解析には、画像解析を有する原子間力顕微鏡法 (A F M) あるいは透過電子顕微鏡法 (T E M) が用いられる。たとえば、A F M は、ゴムの形態画像を描出するために使うことができ、射出成形したバーをサンプリングして、流れ方向に沿ってバーの中心を観察する。粒子サイズのデータは、Wavemetrics社のソフト Igor Pro ($5.0.2.0$ 版) を用い、Veeco Instruments社の Nanoscope ソフト ($5.12r3$ 版) によって作成された画像をまず、バイナリ (白黒画像) にする。一度、バイナリに変換されると、それは Leica社の Qwin ソフトにより処理され粒子サイズ分析が行われる。ラメラ構造についても、検討した。

30

40

【0035】

本発明による物質については、数多くの応用が発見されている。それらの中には、ポリオレフィン性の物質、特に熱可塑性ポリオレフィンを用いた応用例がある。たとえば、この教示により製造された物質は、輸送車両におけるダッシュボード、内装トリムパネル、ひざボルスター、計器パネル、ハンドル等の内外装部品として魅力的に応用される。これらの物品は、成形ができ、この教示による物質によって本質的に構成されている。また、アセンブリーの一部であってもよい。たとえば、本教示により製造された成形品は、

50

溶接、接着ボンド、ファスナーあるいはそれらの任意の組み合わせなどによって他の構造物にラミネートすることもできる。その物品は、また、外側被覆 (overmolded) あるいは共射出成形されたアセンブリーの一部とすることもできる。

【0036】

ここで適切に使用される接着剤系の例としては、限定されるものではないが、シアンアクリレート、(メタ)アクリル樹脂、ポリウレタン樹脂、シリコン樹脂、エポキシ樹脂等である。1つの特に魅力的な接着剤としては、米国特許第6,710,145号明細書、米国特許第6,713,579号明細書、米国特許第6,713,578号明細書、米国特許第6,730,759号明細書、米国特許第6,949,603号明細書、米国特許第6,806,330号明細書、および米国特許出願公開第2005/0004332号明細書および米国特許出願公開第2005/0137370号明細書(これらは、すべて引用によりこの明細書に明白に組み込まれる。)に記載されているような有機ホウ素/アミン錯体が挙げられる。

10

【0037】

この物品は、同様に、二次的工程で適切に処理してその性質を改良することもできる。例示すると、限定されるものではないが、被覆、あるいはその他の方法で表面処理することなどである。たとえば、1つの態様において、ある物体の表面を、他の物体へ装着する前に、所望により、予備的に処理することができる。この任意的処理としては、洗浄、脱脂、プラズマ被覆、コロナ放電処理、他の表面処理による被覆、接着剤での被覆、あるいはそれらの組み合わせを挙げることができる。1つの態様においては、物体を、たとえば、米国特許第5,298,587号明細書、米国特許第5,320,875号明細書、米国特許第5,433,786号明細書および米国特許第5,494,712号明細書(すべて引用によりこの明細書に組み込まれる。)に記載されたカーボン・シリカ系プラズマ析出コーティング(carbon-silica based deposited coating)をすることができる。他の表面処理、たとえば、米国特許第5,837,958号明細書(引用によってこの明細書に組み込まれる。)に記載されているような公知の技術によるプラズマ表面処理も、また、採用することができる。金型内装飾(In-mold decoration)も、また、採用できる。

20

【0038】

次の実施例は、本発明の種々の側面を説明するものである。示された値は、概略値であり、本発明を限定するものと看做されるべきではない。本明細書中に開示したように、処理パラメーターの変更も可能である。さらに、示された結果も、同様に変化してもよい(たとえば、記載された値の $\pm 10\%$ あるいはそれ以上)。

30

【実施例】

【0039】

約44g/10分のメルトフローレートをもつ純ポリプロピレンペレット(ダウ・ケミカル社からC705-44NAの商品番号で入手可能なポリプロピレン)約54.3重量%、マスターバッチペレット(本質的に約60重量%のタルク、約38重量%の同じ純ポリプロピレンおよび約2重量%の添加剤からなる。)約16.7重量%、およびメルトフローレート約10g/10分以下の純エラストマー(たとえば、ダウ・ケミカル社からAffinityTMEG 8200の商品番号で入手可能なエラストマー)29重量%を、乾式混合することによって配合物を作る。このペレット混合物を、射出成形機を用いて溶融温度、スクリー速度、および背圧を種々組み合わせて処理する(下記の表1参照)。生成した物品は、約10%のタルクを含有する。延性は、多軸落撃衝撃抵抗を-10~-30の範囲で、およびノッチ付きアイゾット衝撃強度を0および23で試験することにより測定した。

40

【0040】

第二の配合物を、約12g/10分のメルトフローレートをもつ純ポリプロピレンペレット(ダウ・ケミカル社からC715-12NHPの商品番号で入手可能なポリプロピレン)約71.9重量%、マスターバッチペレット(本質的に約65重量%のタルク、約12.9重量%の純ポリプロピレン(たとえば、C715-12NHP)、約21.7重

50

量%のLLDPEおよび約0.004重量%の添加剤からなる。)約23.1重量%、および約1g/10分以下のメルトフローレートを有する純エラストマー(たとえば、ダウ・ケミカル社からAffinityTMEG 8150の商品番号で入手可能なエラストマー)約5%を、乾式混合することにより作る。このペレット混合物を、その後、射出成形機を用いて、熔融温度、スクリー速度、および背圧を種々組み合わせて処理する(下記の表2参照)。生成した物品は、約15%のタルクを含有する。延性は、多軸落槍衝撃抵抗を-30で、ノッチ付きアイゾット衝撃強度を23で試験して測定した。

【0041】

上記の第一、第二の配合物それぞれについて、4 Farrel連続混合機、15番ローター使用、約60~65%のタルク充填で、すでに公知の製法にてマスターバッチを製造した。本教示に従って作成されたサンプルおよび純タルクから調合されたサンプルの顕微鏡検査は、類似するタルク分布を示し、顕著な凝集塊を認められない。タルクがよく分布していることは、全般的成功にとって重要なことである。タルクは、細粒サイズのタルクJetfil 7C(本質的に3MgO・4SiO₂・H₂Oからなる)(Luzenac社より入手可能)である。

【0042】

純エラストマーおよび純ポリプロピレン基礎原料の粘度は、細管レオメーターを用いて220で測定する。粘性率を計算し、せん断力に対してプロットする。サンプルは、良好な大きさ、一般的にはラメラ状および/または液体粒子状の(droplet)形態で、良好な衝撃特性を示すか、あるいはそれらの組み合わせである。粘性率が約2未満のとき、約30%のゴム充填にて、ラメラ形態にすることもできる。

【0043】

ここの他の実施態様でのように、用いるスクリーは、好ましくは混合スクリーとして機能するもので、特に分散混合、あるいは分散混合と分配混合の両方を行うことができるものである。このスクリーは、ウエストランド社(Westland Corp)から供給されているEagle混合スクリーである。このスクリーの原料供給および移行(transition)部は、通常目的のスクリーのようにデザインされている。スクリーのメタリング部は、2つのらせん状の流れ内(in-flow)チャンネルおよび2つのらせん状の流れ外(out-flow)チャンネルよりなる混合部を有する。混合フライトは、ある程度の分散混合を与える溝(undercut)を有する。この混合フライトは、また、ある程度の分配混合を与えるバイパスチャンネルを含んでいる。いくつかの例では、ニッカーソン・マシーナリー社(Nickerson Machinery)によって供給されている5要素(element)よりなる界面形成(interfacial surface generating)(ISG)混合ノズル(たとえば、E型IsoMixノズル)の使用により分配混合の量がさらに増える。

【0044】

比較のために、対照サンプルを、30mm二軸スクリー押出機(Werner & Pfleiderer ZSK-30)を用い、L/D比29.3にて、射出成形機に導入する前に調合した。スクリーデザインは、下流にタービン混合要素ブロック(block of turbin mixing elements)を設けるととともに、上流にも混練ブロック(kneading block)を設けた強力二段溶融/混合部(high intensity, dual stage melting/mixing section)を採用している。パレル温度の設定は、スクリー速度300RPMで、180~230の範囲である。対照例は、公知の技術に従って事前調合された物質であり、記載のように処理される。

【0045】

表1および2に、可能であると思われる種々の条件と結果を示す。表1は、全ゴム含量がより低い物質を示し、表2は全ゴム含量がより高い物質を示している。混合(特に、分配混合を増すための)が、特に、特定の処理パラメーターとの組み合わせることにより、物質の性能を改善する能力をもっていることが解る。

【0046】

表1の実施例は、1.25~1.4μmサイズの範囲にあるゴム粒子形態を製造してい

10

20

30

40

50

るものと思われる。明らかなように、処理パラメーターの変更は、得られる物質の最終的属性、特に、延性に関して影響を与えている。

【 0 0 4 7 】

表 2 の実施例に記載されたパラメーターに従い、条件を変えて処理を行い、ラメラ形態および延性破断モード (failure in ductile mode) を作成した。

【 0 0 4 8 】

【 表 1 】

表 1

サンプル	1A	2A	3A	4A	対照5A	6A
混合ノズル	無	無	有	有	無	有
溶融温度設定点 (°F)	440	440	440	440	405	405
背圧設定点 (psi)	0	225	0	225	225	225
スクリー速度 (RPM)	40	70	40	70	70	70
-22 °F IDMTS 全エネルギー	247	409	315	462	301	365
標準偏差	159	96	81	13	74	115
破断タイプ (5サンプル)	延性1 脆性4	延性4 脆性1				
73 °Fアイゾット (ASTM)	3.3	3.7	4.6	8.5	2.2	8.6
標準偏差	0.2	0.3	1.7	0.7	0.1	1.0
破断タイプ	部分的	部分的	部分的と 破断なしの 混合	破断なし	完全と 部分的 との混合	破断なし

10

20

30

【 0 0 4 9 】

【表 2】

表 2

サンプル	7A	8A	9A	10A	対照11A	12A
混合ノズル	無	無	有	有	無	有
溶融温度設定 点 (°F)	440	440	440	440	405	405
背圧設定 点 (psi)	0	225	0	225	225	225
スクリー速度 (RPM)	40	70	40	70	70	70
-22 °F IDMTS 全エネルギー	291	384	380	377	360	392
標準偏差	108	31	26	28	15	15
破断タイプ (5サンプル)	延性3 脆性2	脆性5	脆性5	脆性5	脆性5	脆性5
73 °Fアイゾット (ASTM)	11.8	12.0	12.6	12.7	11.6	13
標準偏差	0.3	0.2	0.1	0.2	0.4	0.1
破断タイプ	破断なし	破断なし	破断なし	破断なし	破断なし	破断なし

10

20

【0050】

表 3 および 4 は、ゴム充填量、ポリプロピレン (PP) のメルトフローレート、およびエラストマーのメルトインデックスを変化させることによって可能と思われる効果を示す。理論に制約されずとも、エラストマー成分のメルトインデックスを選択することにより望ましい粘性率を得ることができると思われる。特性の組み合わせが、通常、好ましい物質をつくり、ひとつの性質だけをよくしても最良の結果を与えるものではないことが解る。たとえば、良好な領域サイズであっても、ゴム相の整合性を多すぎる低分子量画分により損なったりすると、相対的に不都合な衝撃強度になる、ということが以下から解かる。以下において、「PP」は、第一の原料のためのポリプロピレン単独重合体を示す。これらの実施例では、濃縮物は使用していない。従って、これらの実施例におけるゴムはすべて添加されたエラストマーに由来する。

30

【0051】

【表 3】

表 3

	高ゴム充填 (30重量%)				低ゴム充填 (22重量%)		
サンプル	1B	2B	3B	4B	5B	6B	7B
PP MFR	5	20	35	75	5	20	35
粘性率	3	4~5	4.5~7	6~12	3	4~5	4.5~7
ゴム領域サイズ (μm)	0.34	1.25	1.25	2.41	0.39	1.08	2.25
ノッチ付き アイゾット@23°C (ft-lbs/in)	14.9	13.2	13.2	1.8	14.4	9.3	1.9
ノッチ付き アイゾット@0°C (ft-lbs/in)	15.3	12.0	2.0	1.1	10.6	1.5	1.1

エチレン-オクテンゴム、メルトインデックス1、密度0.87、 T_g -56°C

【0052】

【表 4】

表 4

	高ゴム充填 (30重量%) 形態タイプを変化			低ゴム充填 (22重量%) 形態タイプを変化		
サンプル	2B	8B	9B	6B	10B	11B
PP MFR	20	20	5	20	20	5
エラストマー* メルトイン デックス	1	5	5	1	5	5
粘性率 (VR)	4~5	2~3	1~2	4~5	2~3	1~2
形態タイプ	液体 粒子状	ラメラ	ラメラ	液体 粒子状	液体 粒子状	ラメラ
ゴム領域サイズ (μm)	1.25			1.08		
ノッチ付き アイゾット@23°C (ft-lbs/in)	13.2	11.1	14.4	9.3	5.1	14.5
ノッチ付き アイゾット@0°C (ft-lbs/in)	12.0	4	12.5	1.5	1.2	1.9

*エチレン-オクテンゴム、密度0.87、 T_g -56°C

【0053】

理論に制約されずに、多軸衝撃試験における延性および関連する延性・脆性遷移温度は、少なくともゴム相の体積に依存していると考えられ、一方、ノッチ付きアイゾット衝撃試験およびその延性・脆性遷移温度はゴム領域サイズ、粒子間の距離あるいはその両方の関数であると考えられている。混合条件は、部分部分にわたるゴム相の体積の調和に影響

を与えていると考えられる。これらの条件を、望ましいゴム領域サイズを設定するための適切な粘性率と組み合わせて考慮に入れることが、主な原料成分すべてを調合（および不必要な熱履歴にさらさすことをも）せずとも、ここで議論した望ましい属性の物質を与えることにつながる、と考えられる。

【0054】

さらに例示して説明すると、表5に、射出成形機内部で混合した本発明の物質と成形機に入れる前に調合したものを比較したときに、ゴム領域サイズ（ μm で表示）の粘性率を変化させた場合の期待効果を示す。所定のゴムサイズを与える粘性率は、事前混合を採用したときに別に必要とする粘性率と異なる、と考えられる。第1欄の物質は、一般的に表3の1Bの特定の物質、およびそれぞれ3Bおよび4Bの範囲内の物質に該当する。事前調合した物質（第2欄および第3欄）は、第1欄の物質におけるような混合物質を、対照物質について上に記載した方法に従い、同様に調合して作成した。混合ノズルの採用効果についても検討した。

10

【0055】

【表5】

表5

工程変数	1	2	3
混合ノズル	有	無	有
粘性率3	0.34	0.68	0.50
粘性率5.7	1.25	0.95	0.70
粘性率9	2.41	1.80	1.72

20

【0056】

前に議論したように、好ましくは、本発明の製法は、混合工程に先立つ第一、第二および第三の原料の調合工程を実質的に含まず、具体的には、3つの原料の熔融混合工程を含む調合工程である。わかりのように、そのような要求は、原料の熔融温度以下で乾燥混合する工程を採用することによって達成される。たとえば、原料物質をスクリー・バレル部材内に導入する前に原料物質を乾燥混合（たとえば、ホッパー内の混合アームにより）することができる。重量式供給装置のような適当な供給装置が所望により使用できる。

30

【0057】

上記からわかるように、使用原料から濃縮物を省略することができる。このように、1つの製法は、本質的に上記第一および第三の原料からなる混合物を乾燥混合することを含むことが可能である。

【0058】

本発明の特徴は、例証された実施態様の唯一の文脈において記載されたものかもしれないが、そのような特徴は、他の実施態様の1つまたはそれ以上の他の特徴と組み合わせて、種々応用することができる。ここにおける固有の構造物の加工とその操作は、また本発明による製法を構成するものであることも上記の記載から明白なことである。

40

【0059】

特に記載しない限り、ここで記載された種々の実施態様の寸法および形状は、本発明を制限するものではなく、他の寸法や形状が可能である。複数の構造成分あるいは工程は、単一の統合的な構造あるいは工程にしてもよい。また、逆に、単一の統合的工程は、別々の複数の構成要素あるいは工程に分けられてもよい。しかしながら、機能を単一の構成要素あるいは工程に統合することも可能である。さらに、「1つの」要素あるいは工程という記載は、追加的要素あるいは工程を排除することを意味するものではない。

【0060】

50

範囲に関する「約」および「おおよそ」の使用は、範囲の両端に適用される。したがって、「約 20 ~ 30」は、少なくとも特定された端の点を含んで「約 20 ~ 約 30」を意図するものである。

【0061】

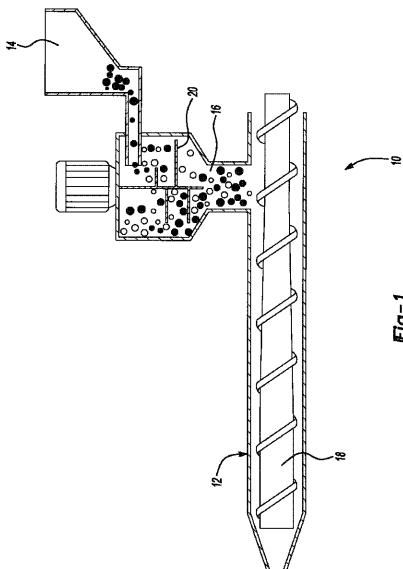
上記の記載は、例示説明を意図したものであり、制限的に解釈されるべきではない。記載された実施例に加えて、多くの応用、多くの実施態様が、上記説明を読む当業者にとっては明白であることであろう。従って、本発明の範囲は、上記の記載を参照して決定されるべきではなく、添付の特許請求の範囲に準拠して、特許請求の範囲が享受するすべての均等の範囲とともに決定されるべきである。特許出願および公開を含む全ての論文および文献の記載は、全ての目的のために引用によって組み込まれる。次の特許請求の範囲における、ここで開示された主題の如何なる側面についての不記載も、当該主題の権利放棄ではなく、また、発明者が当該主題を開示した発明の主題の一部と考えなかったと看做すべきものでもない。

【図面の簡単な説明】

【0062】

【図1】本明細書の教示による装置の概略図である。

【図1】



【手続補正書】

【提出日】平成20年6月5日(2008.6.5)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

射出成形品を製造する方法であって、該方法は、射出成形機にポリオレフィンを含有する第一の原料を供給する工程、射出成形機に粒子状の充填剤と第二のポリオレフィンとの混合物を含有する第二の原料を供給する工程、射出成形機にエラストマーを含有する第三の原料を供給する工程、射出成形機の内部において第一、第二および第三の原料を混合して混合物を形成する工程、そして混合物を成型型に射出する工程からなり、該方法は混合工程に先立って第一、第二および第三の原料を調合する工程を含まないことを特徴とする方法。

【請求項 2】

射出成形機がスクリー・バレル部材(12)の上流に位置するホッパーを含み、供給工程が第一、第二および第三の原料をホッパーへ供給することを含むことを特徴とする請求項 1 記載の方法。

【請求項 3】

混合工程をスクリー・バレル部材(12)内部で行い、スクリー・バレル部材が 15 / 1 より大きい長さ / 直径比を有することを特徴とする請求項 2 記載の方法。

【請求項 4】

混合工程中に、少なくとも約 0.689 MPa の背圧を第一、第二および第三の原料にかけることを特徴とする請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 5】

混合工程中に、25 ~ 250 rpm のスクリー速度を採用することを特徴とする請求項 3 又は 4 記載の方法。

【請求項 6】

混合工程を 180 ~ 270 の温度で行うことを特徴とする請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 7】

射出工程が、混合物を静的混合機に通過させることを含むことを特徴とする請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 8】

射出工程が、吹込成形、二段式射出成形あるいはそれらの組み合わせから選ばれる複数の操作工程の一部であることを特徴とする請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 9】

射出成形機のスクリー(18)が複数の流れ内チャンネルおよび流れ外チャンネルの両方を含むことを特徴とする請求項 1 ~ 8 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 10】

射出成形機が、分散混合を与えるための少なくとも 1 つの溝、分配混合を与えるための少なくとも 1 つのバイパスチャンネル、あるいはその両方を有する混合フライトを含むことを特徴とする請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 11】

混合が分散混合および分配混合を含むことを特徴とする請求項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 12】

第一の原料のポリオレフィンが、70 g / 10 分(230、2.16 kg)未満のメ

ルトフローレート、(第一の原料の) 8 重量%より多い量のエチレンを含有すること、結晶化度が 40 %より多いこと、あるいはそれらの任意の組み合わせによって特徴づけられる純ポリプロピレン単独重合体、純ポリプロピレン耐衝撃性共重合体であることを特徴とする請求項 1 ~ 11 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 13】

粒子状の充填剤がタルクであることを特徴とする請求項 1 ~ 12 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 14】

第二のポリオレフィンが 70 g / 10 分 (230 、 2.16 kg) 未満のメルトフローレート、(第一の原料の) 8 重量%より多い量のエチレンを含有すること、結晶化度が約 40 %より多いこと、あるいはそれらの組み合わせによって特徴づけられる純ポリプロピレン単独重合体、純ポリプロピレン耐衝撃性共重合体であることを特徴とする請求項 1 ~ 13 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 15】

第三の原料のエラストマーが - オレフィン共単量体を含み、そして約 0.9 未満の密度、0.5 ~ 30 g / 10 分 (190 、 2.16 kg) のメルトフローレート、-30 未満のガラス転移温度、あるいはそれらの任意の組み合わせを有することを特徴とする請求項 1 ~ 14 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 16】

第一、第二および第三の原料の相対的な量は、第一の原料が 30 ~ 90 重量部、所望により第二の原料が 30 重量部以下、および第三の原料が 3 ~ 40 重量部の範囲であることを特徴とする請求項 1 ~ 15 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 17】

粘性率が 0.2 ~ 7 であることを特徴とする請求項 1 ~ 16 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 18】

生成した物品が、ラメラ形態、0.1 μm ~ 5 μm のゴム領域サイズを有する液体粒子状形態、あるいはそれらの組み合わせを示すことを特徴とする請求項 1 ~ 17 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 19】

生成した物品が、次の性質、すなわち、密度が 0.85 ~ 1.05 g / cm³、曲げ弾性率が 600 ~ 2500 MPa、引張強度(降伏点)が少なくとも 8 MPa、装置化落槌衝撃試験における延性破断モード(-40 、 -30 あるいは 0)が試験サンプルの 90 %超、の少なくとも 2 つの任意の組み合わせを示すことを特徴とする請求項 1 ~ 18 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 20】

請求項 1 ~ 19 のいずれか 1 項に記載の方法によって製造された物品。

【請求項 21】

成形されたプラスチック物品を製造するためのキットであって、該キットは、本質的に熱可塑性ポリオレフィンからなる第一の原料、粒子状充填剤と第二の熱可塑性ポリオレフィンとの混合物を含有する第二の原料、および本質的にエラストマーからなる第三の原料を含むことを特徴とするキット。

【請求項 22】

第一の原料の熱可塑性ポリオレフィンが、70 g / 10 分 (230 、 2.16 kg) 未満のメルトフローレート、(第一の原料の) 8 重量%より多い量のエチレンを含有すること、結晶化度が 40 %より多いこと、あるいはそれらの任意の組み合わせによって特徴づけられる純ポリプロピレン単独重合体、純ポリプロピレン耐衝撃性共重合体であることを特徴とする請求項 21 に記載のキット。

【請求項 23】

粒子状充填剤がタルクであることを特徴とする請求項 21 又は 22 に記載のキット。

【請求項 24】

第二の熱可塑性ポリオレフィンが、70 g / 10 分 (230 、 2.16 kg) 未満のメルトフローレート、(第一の原料の) 8 重量 % より多い量のエチレンを含有すること、結晶化度が 40 % より多いこと、あるいはそれらの任意の組み合わせによって特徴づけられる純ポリプロピレン単独重合体、純ポリプロピレン耐衝撃性共重合体であることを特徴とする請求項 21 ~ 23 のいずれか 1 項に記載のキット。

【請求項 25】

第三の原料のエラストマーが - オレフィン共単量体を含み、そして 0.9 g / cm³ 未満の密度、0.5 ~ 30 g / 10 分 (190 、 2.16 kg) のメルトフローレート、- 30 未満のガラス転移温度、あるいはそれらの任意の組み合わせを有することを特徴とする請求項 21 ~ 24 のいずれか 1 項に記載のキット。

【請求項 26】

第一、第二および第三の原料の相対的な量は、第一の原料が 30 ~ 90 重量部、第二の原料が 10 ~ 30 重量部、および第三の原料が 3 ~ 40 重量部 の範囲であることを特徴とする請求項 21 ~ 25 のいずれか 1 項に記載のキット。

【請求項 27】

成形品を製造する方法であって、該方法は、別々の原料として、熱可塑性ポリオレフィンを含有する第一の原料、粒子状充填剤と第二の熱可塑性ポリオレフィンとの混合物を含有する第二の原料、およびエラストマーを含有する第三の原料を供給する工程、原料を混合し溶融混合物を形成するために原料を高温にした状態で、第一、第二および第三の原料にせん断力をかける工程、溶融混合物を成形および溶融混合物を固化させる工程からなることを特徴とする方法。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/US2007/066778

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

INV. B29C47/10

ADD. B29C49/00 B29C45/00 B29C47/36

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)

B29C

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

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

EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2005/116390 A1 (WATSON KATHY L [US] ET AL) 2 June 2005 (2005-06-02) paragraphs [0004] - [0007], [0014] - [0016], [0018]	1,13,20
X	WO 02/43943 A (GEN ELECTRIC [US]) 6 June 2002 (2002-06-06) page 1, line 1 - page 2, line 4 page 2, line 17 - page 3, line 12 page 10, line 15 - page 11, line 8 page 12, line 15 - page 13, line 5 page 15, line 5 - line 8; claims 1,8,11,12 ----- -/-	1,13,20

☒ 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 document 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.

Z document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

31 March 2008

Date of mailing of the international search report

07. 04. 2008

Name and mailing address of the ISA/

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Ingelgård, Tomas

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/US2007/066778

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	US 4 663 103 A (MCCULLOUGH ROBERT W [US] ET AL) 5 May 1987 (1987-05-05) figure 1 column 1, line 1 - line 12 column 3, line 26 - line 55 column 5, line 34 - line 66 column 5, line 34 - line 66 column 6, line 44 - line 68 column 11, line 57 - column 12, line 1 column 13, line 4 - line 20 claim 14.	21,27 1-6, 9-11,20
X Y	US 2005/087906 A1 (CARETTA RENATO [IT] ET AL) 28 April 2005 (2005-04-28) figure 1 paragraphs [0001], [0003], [0005], [0014], [0019] - [0024], [0030], [0048], [0075] - [0079], [0106], [0107]; claim 26 paragraphs [0063] - [0065], [0105]	21,27 1-3,12, 14-16, 19,20
X Y	US 2004/171758 A1 (ELLUL MARIA D [US] ET AL) 2 September 2004 (2004-09-02) paragraphs [0001] - [0003], [0008], [0009], [0024], [0025], [0028], [0029], [0043], [0056] - [0059], paragraphs [0005], [0030], [0055], [0047]	27 1,7,8, 12-20
Y	US 2005/156352 A1 (BURKLE ERWIN [DE] ET AL) 21 July 2005 (2005-07-21) paragraphs [0010], [0011]; figure 2	1-20
Y	US 5 215 764 A (DAVIS MARTIN E [US] ET AL) 1 June 1993 (1993-06-01) column 1, line 1 - line 18 column 4, line 49 - column 5, line 28 column 6, line 48 - line 62; figures 1,2	9-11
A	WO 00/34027 A (GEN ELECTRIC [US]) 15 June 2000 (2000-06-15) page 1, paragraph 1 page 5, line 28 - page 6, line 15	9-11
Y	US 3 682 443 A (UPMEIER HARTMUT) 8 August 1972 (1972-08-08) column 1, line 1 - line 25 column 4, line 5 - line 19	7

-/--

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/US2007/066778

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages.	Relevant to claim No.
Y	EP 0 444 671 A (HIMONT INC [US]) 4 September 1991 (1991-09-04) page 1, line 1 - line 17 page 1, line 56 - page 2, line 20 -----	17
Y	JP 60 031514 A (DAICEL CHEM) 18 February 1985 (1985-02-18) abstract -----	18
X	WO 2005/105868 A (EXXONMOBIL CHEM PATENTS INC [US]; ABHARI RAMIN [US]; SIMS CHARLES L [U]) 10 November 2005 (2005-11-10) page 3, paragraph 2 page 5, paragraph 2 page 26, line 25 - page 27, line 26 page 29, line 12 - line 21; claims 1,52 -----	21-26

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/US2007/066778**Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

see additional sheet

1. ☒ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers allsearchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- ☒ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

FURTHER INFORMATION CONTINUED FROM PCT/ISA/ 210

This International Searching Authority found multiple (groups of) inventions in this international application, as follows:

1. claims: 1-6, 9-11, 20, 21, 27

Process where polyolefines, a filler and an elastomer are separately fed in a single pass without the need for substantial pre-compounding.

2. claims: 7, 8

Postprocessing of a compound.

3. claims: 12-19, 22-26

Possible material selections for elastomeric compounds.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/US2007/066778

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 2005116390	A1	02-06-2005	NONE	
WO 0243943	A	06-06-2002	AU 1662002 A CN 1478014 A EP 1339538 A1 JP 2004514574 T	11-06-2002 25-02-2004 03-09-2003 20-05-2004
US 4663103	A	05-05-1987	AU 3173584 A CA 1263209 A1 DE 3428817 A1 GB 2144676 A JP 3006916 U JP 60071222 A NL 8402440 A	14-02-1985 28-11-1989 21-02-1985 13-03-1985 23-01-1991 23-04-1985 01-03-1985
US 2005087906	A1	28-04-2005	NONE	
US 2004171758	A1	02-09-2004	US 2006052538 A1	09-03-2006
US 2005156352	A1	21-07-2005	NONE	
US 5215764	A	01-06-1993	NONE	
WO 0034027	A	15-06-2000	AT 363375 T DE 69936224 T2 DK 1137527 T3 EP 1137527 A1 ES 2288046 T3 JP 2002531298 T US 6132076 A	15-06-2007 24-01-2008 01-10-2007 04-10-2001 16-12-2007 24-09-2002 17-10-2000
US 3682443	A	08-08-1972	CH 512989 A FR 2049694 A5 GB 1292365 A	30-09-1971 26-03-1971 11-10-1972
EP 0444671	A	04-09-1991	AR 248095 A1 AT 121759 T AU 637869 B2 AU 7131591 A BR 9100793 A CA 2037264 A1 CN 1054428 A DE 69109156 D1 DE 69109156 T2 DK 444671 T3 ES 2071851 T3 FI 910953 A HU 56860 A2 IT 1240417 B JP 3100651 B2 JP 6025439 A MX 24715 A NO 910772 A PT 96878 A RU 2085560 C1 US 5286552 A ZA 9101288 A	30-06-1995 15-05-1995 10-06-1993 29-08-1991 05-11-1991 29-08-1991 11-09-1991 01-06-1995 26-10-1995 26-06-1995 01-07-1995 29-08-1991 28-10-1991 15-12-1993 16-10-2000 01-02-1994 28-02-1994 29-08-1991 31-10-1991 27-07-1997 15-02-1994 27-11-1991

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/US2007/066778

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
JP 60031514	A	18-02-1985	JP 1477360 C	27-01-1989
			JP 63024608 B	21-05-1988

WO 2005105868	A	10-11-2005	CN 1965004 A	16-05-2007
			EP 1756177 A1	28-02-2007
			JP 2007533796 T	22-11-2007

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, 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, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW

(74)代理人 100102990

弁理士 小林 良博

(74)代理人 100093665

弁理士 蛸谷 厚志

(72)発明者 ジョーンズ, メアリー アン

アメリカ合衆国, ミシガン 4 8 6 4 0, ミッドランド, サウス グリーンローン ドライブ 3
4

(72)発明者 コピー, カート

アメリカ合衆国, ミシガン 4 8 6 4 0, ミッドランド, ノーフォールド ストリート 3 0 2

(72)発明者 アンダーソン, ステファニー

アメリカ合衆国, ミシガン 4 8 6 4 0, ミッドランド, ウェスト ベーカー ストリート 9 0
9

F ターム(参考) 4F206 AA03 AA45 AB11 AL04 AL14 JA07 JF01 JF21 JM01 JN01

JQ53