

(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
2024年9月19日(19.09.2024)



(10) 国際公開番号

WO 2024/190657 A1

(51) 国際特許分類:
C08L 23/04 (2006.01) C08L 53/00 (2006.01)
C08L 23/10 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2024/009016

(22) 国際出願日: 2024年3月8日(08.03.2024)

(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 2023-038877 2023年3月13日(13.03.2023) JP

(71) 出願人: 株式会社プライムポリマー (PRIME POLYMER CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1040028 東京都中央区八重洲二丁目2番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 我妻 樹 (AGATSUMA Tatsuki); 〒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). 福島 博之 (FUKUSHIMA Hiroyuki); 〒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). 板倉 啓太 (ITAKURA Keita); 〒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). 古田 貴憲 (FURUTA Takanori); 〒5928501 大阪府高石市高砂1-

6 株式会社プライムポリマー内 Osaka (JP). 永井 一輝 (NAGAI Kazuki); 〒5928501 大阪府高石市高砂1-6 株式会社プライムポリマー内 Osaka (JP). 近藤 大貴 (KONDO Hiroki); 〒5928501 大阪府高石市高砂1-6 株式会社プライムポリマー内 Osaka (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, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, 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,

(54) Title: POLYMER COMPOSITION AND MOLDED ARTICLE

(54) 発明の名称: 重合体組成物および成形体

(57) Abstract: [Problem] To provide a composition that comprises an ethylene-based polymer, a propylene-based polymer and a compatibilizing material and has excellent impact resistance performance and tensile elongation performance. [Solution] Provided is a polymer composition comprising 40 to 99 parts by mass of an ethylene-based polymer (A), 1 to 60 parts by mass of a propylene-based polymer (B), and 1 to 30 parts by mass of a propylene-ethylene block copolymer (C) satisfying requirements (1) to (4) (wherein the total amount of the components (A) and (B) is 100 parts by mass). Requirement (1): the MFR (230°C, 2.16 kgf) is 0.05 to 5 g/10 min. Requirement (2): the amount of a 23°C-n-decane-soluble fraction is 30 to 55% by mass. Requirement (3): the ethylene content in the 23 ° C-n-decane-soluble fraction is 25 to 55 mol%. Requirement (4): the limiting viscosity $[\eta]$ (135 ° C, tetralin) of the 23 ° C-n-decane-soluble fraction is 6.5 to 10.0 dl/g.

(57) 要約: [課題] 耐衝撃性能および引張伸び性能に優れた、エチレン系重合体、プロピレン系重合体および相溶化材を含む組成物を提供すること。[解決手段] エチレン系重合体 (A) を40~99質量部、プロピレン系重合体 (B) を1~60質量部、および下記要件 (1) ~ (4) を満たすプロピレン・エチレンブロック共重合体 (C) 1~30質量部 ((A) と (B) との合計量を100質量部とする。) 含む重合体組成物。要件 (1): MFR (230°C、2.16 kgf) が0.05~5 g/10分である。要件 (2): 23°C n-デカン可溶量が30~55質量%である。要件 (3): 23°C n-デカン可溶部のエチレン含有量が25~55モル%である。要件 (4): 23°C n-デカン可溶部の極限粘度 $[\eta]$ (135°C、テトラリン) が6.5~10.0 dl/gである。

MW, MZ, NA, RW, SC, 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)）

明 細 書

発明の名称：重合体組成物および成形体

技術分野

[0001] 本発明は重合体組成物に関し、より詳細にはエチレン系重合体およびプロピレン系重合体を含む組成物、ならびにその成形体に関する。

背景技術

[0002] ポリエチレン（以下「PE」とも記載する。）、ポリプロピレン（以下「PP」とも記載する。）等のポリオレフィン、日用雑貨、台所用品、包装用フィルム、家電製品、機械部品、電気部品、自動車部品など、種々の分野で利用されている。ポリオレフィンは、生産に係るエネルギーが小さく、軽量かつリサイクル性にも優れることから、各産業界における、循環型社会を形成するためのいわゆる3R（ごみの量を減らすこと：Reduce、ごみにせず再使用すること：Reuse、使い終わったものを資源に戻して新たに製品とすること：Recycle）への取り組みのなかで、更に注目が高まっている。

[0003] 汎用プラスチック系廃棄物のリサイクルを推進する上で難しいとされている技術として、ポリオレフィン系材料の分別技術、および混合・複合化技術が挙げられ、PEとPPとの混合リサイクル技術は重要な位置付けにある。しかしPEとPPとは非相溶であり、リサイクルPE／PPペレットから調製された材料は一般に力学的強度が劣る傾向にあるため、相溶化技術による機械的特性の向上が重要であると考えられている（非特許文献1）。

[0004] 特許文献1には、ポリプロピレンおよびポリエチレンのブレンドを75～90重量%、および異相ポリオレフィン組成物である相溶化材を10～25重量%を含み、異相ポリオレフィン組成物が55～90重量%のポリプロピレンと、45～10重量%の、極限粘度 $[\eta]$ が少なくとも 3.0 dl/g のエチレン系共重合体とを含むポリプロピレンーポリエチレンのブレンドが開示されている。さらに、異相ポリオレフィン組成物の具体例として、冷キ

シレン可溶部量が24.5重量%、冷キシレン可溶部量の極限粘度が6.3 dl/gの異相プロピレン・エチレン共重合体などが開示されている。

[0005] また特許文献2には、異相プロピレン共重合体(a)を20~48重量%、プロピレンホモポリマー(b)を2~30重量%、およびポリプロピレンおよびポリエチレンを含むリサイクルプラスチック材料(c)を40~60重量%含むポリオレフィン組成物が開示され、異相プロピレン共重合体(a)の態様として、溶剤可溶部の量が10.0~25.0重量%であること、溶剤可溶部の極限粘度が4.5 dl/g以下であることなどが記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：国際公開第2015/169690号

特許文献2：国際公開第2022/162042号

非特許文献

[0007] 非特許文献1：環境資源工学, 2007, Vol. 54, No. 4, p.167-174

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0008] しかしながら、エチレン系重合体、プロピレン系重合体および相溶化材を含む従来のリサイクル材料は、耐衝撃性能および引張伸び性能の向上の観点からさらなる改善の余地があった。

[0009] そこで本発明は、エチレン系重合体およびプロピレン系重合体（たとえば、リサイクル材料であるエチレン系重合体およびプロピレン系重合体）ならびに相溶化材を含む組成物の耐衝撃性能および引張伸び性能の向上を目的とする。

課題を解決するための手段

[0010] 本発明は、たとえば以下の[1]~[6]に関する。

[0011] [1]

エチレン含有量が80モル%以上であり、密度が $890 \sim 980 \text{ kg/m}^3$ であるエチレン系重合体（A）を40～99質量部、

23℃n-デカン不溶部量が45質量%以上であり、23℃n-デカン可溶部の、135℃テトラリン中で測定される極限粘度 $[\eta]$ が 6.5 dl/g 未満であるプロピレン系重合体（B）を1～60質量部、および

下記要件（1）～（4）を満たすプロピレン・エチレンブロック共重合体（C）1～30質量部（ただし、エチレン系重合体（A）とプロピレン系重合体（B）との合計量を100質量部とする。）含む重合体組成物。

要件（1）：温度230℃、荷重2.16kgで測定されたメルトフローレート（MFR）が $0.05 \sim 5 \text{ g/10分}$ である。

要件（2）：23℃n-デカン可溶部量が30～55質量%である。

要件（3）：23℃n-デカン可溶部のエチレン含有量が25～55モル%である。

要件（4）：23℃n-デカン可溶部の、135℃テトラリン中で測定される極限粘度 $[\eta]$ が $6.5 \sim 10.0 \text{ dl/g}$ である。

[0012] [2]

前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）の要件（3）における、23℃n-デカン可溶部のエチレン含有量が25～50モル%である、前記[1]の重合体組成物。

[0013] [3]

前記エチレン系重合体（A）が、温度190℃、荷重2.16kgで測定されたメルトフローレート（MFR）が $0.1 \sim 50 \text{ g/10分}$ のエチレン系重合体である、前記[1]または[2]の重合体組成物。

[0014] [4]

前記プロピレン系重合体（B）が、

温度230℃、荷重2.16kgで測定されたメルトフローレート（MFR）が $0.1 \sim 50 \text{ g/10分}$ のプロピレン単独重合体、

温度230℃、荷重2.16kgで測定されたメルトフローレート（MF

R) が 0.1 ～ 50 g / 10 分、23℃ n-デカン可溶部量が 5 ～ 20 質量 %、23℃ n-デカン可溶部のエチレン含有量が 25 ～ 50 モル % であるプロピレン・エチレンブロック共重合体、および

温度 230℃、荷重 2.16 kg で測定されたメルトフローレート (MFR) が 0.1 ～ 50 g / 10 分であり、プロピレンから導かれる構成単位 95 質量 % 以上 100 質量 % 未満と α -オレフィン (ただし、プロピレンを除く。) から導かれる構成単位 5 質量 % 以下とを含むプロピレン・ α -オレフィンランダム共重合体からなる群から選ばれる少なくとも 1 種のプロピレン系重合体である、前記 [1] ～ [3] の重合体組成物。

[0015] [5]

前記エチレン系重合体 (A) および前記プロピレン系重合体 (B) が、それぞれリサイクルにより得られたエチレン系重合体およびプロピレン系重合体であるか、またはリサイクルにより得られた、エチレン系重合体およびプロピレン系重合体の混合物である、前記 [1] ～ [4] のいずれかの重合体組成物。

[0016] [6]

前記 [1] ～ [5] のいずれかの重合体組成物から形成された成形体。

発明の効果

[0017] 本発明によれば、エチレン系重合体およびプロピレン系重合体 (たとえば、リサイクル材料であるエチレン系重合体およびプロピレン系重合体) ならびに相溶化材を含む組成物の耐衝撃性能および引張伸び性能の向上が達成される。

図面の簡単な説明

[0018] [図1] 図 1 は、実施例 3 および 9 ～ 12 ならびに比較例 2、6 および 8 の組成物の引張破断伸びとシャルピー衝撃強度を示す。

[図2] 図 2 は、実施例 4 ならびに比較例 3、7 および 9 の組成物の引張破断伸びとシャルピー衝撃強度を示す。

[図3] 図 3 は、実施例 7 および 8 ならびに比較例 12 および 13 の組成物の引

張破断伸びとシャルピー衝撃強度を示す。

[図4]図4は、実施例5および6ならびに比較例10および11の組成物の引張破断伸びとシャルピー衝撃強度を示す。

[図5]図5は、実施例3ならびに比較例2、4および5の組成物の引張破断伸びとシャルピー衝撃強度を示す。

発明を実施するための形態

[0019] 以下、本発明をさらに詳細に説明する。

[0020] 〔重合体組成物〕

本発明に係る重合体組成物は、エチレン系重合体（A）40～99質量部と、プロピレン系重合体（B）1～60質量部と、プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）1～30質量部（ただし、エチレン系重合体（A）とプロピレン系重合体（B）との合計を100質量部とする）とを含むことを特徴としている。

[0021] エチレン系重合体（A）：

前記エチレン系重合体（A）の例としては、高密度ポリエチレン（HDPE）、直鎖状低密度ポリエチレン（LLDPE）、および分岐状低密度ポリエチレン（LDPE）が挙げられる。

[0022] また、前記エチレン系重合体（A）のエチレン含有量、すなわちエチレンから導かれる構成単位の含有量は、通常80モル%以上（ただし、前記エチレン系重合体（A）中の構成単位の全量を100モル%とする。）である。モノマー組成に着目すると、前記エチレン系重合体（A）（以下「成分（A）」とも記載する。）の例としては、エチレン単独重合体、およびエチレンと炭素原子数3以上の α -オレフィンとの共重合体が挙げられる。

[0023] 炭素原子数3以上の α -オレフィンとしては、好ましくは炭素原子数が3～20の α -オレフィンが挙げられ、その具体例としてはプロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、3-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、1-ヘキセン、1-オクテン、1-デセン、1-ドデセン、1-テトラデセン、1-ヘキサデセン、1-オクタデセン

、１－エイコセンが挙げられる。これらの中でも、１－ヘキセン、１－オクテンが好ましく、１－ヘキセンがより好ましい。前記炭素原子数３以上の α －オレフィンは、１種であっても２種以上であってもよい。

[0024] 前記エチレンと炭素原子数３以上の α －オレフィンとの共重合体における α －オレフィンから導かれる構成単位の含有量は、通常２０モル％以下、好ましくは５モル％以下、より好ましくは２モル％以下（ただし、前記エチレン系重合体（Ａ）中の構成単位の全量を１００モル％とする。）である。

[0025] 前記エチレン系重合体（Ａ）の、ＪＩＳ Ｋ７２１０に準拠し、温度１９０℃、荷重２．１６ｋｇの条件下で測定されるメルトフローレート（ＭＦＲ）は、好ましくは０．１～５０ｇ／１０分、より好ましくは０．１～２５ｇ／１０分、さらに好ましくは０．１～１５ｇ／１０分である。

[0026] 前記エチレン系重合体（Ａ）の、ＪＩＳ Ｋ７１１２に準拠して測定される密度は、通常８９０～９８０ｋｇ／ｍ³であり、好ましくは９００～９７０ｋｇ／ｍ³である。

[0027] 前記密度は、ＭＦＲ測定時に得られるストランドを１００℃で１時間熱処理し、更に室温で１時間放置した後に密度勾配管法で測定される。

[0028] 前記エチレン系重合体（Ａ）の製造方法としては、特に限定はなく、高圧法、チーグラ－・ナッタ触媒、メタロセン系触媒等の周知の触媒を用いた周知の製造方法が挙げられる。

[0029] 前記エチレン系重合体（Ａ）は、バージン材、リサイクル材または両者の混合物であってもよい。

[0030] リサイクル材、すなわち再生されたエチレン系重合体の例としては、エチレン系重合体からなる各種製品の製造において発生した不良品、および使用済みで廃棄されるエチレン系重合体からなる各種製品から再生された再生エチレン系重合体が挙げられる。

[0031] プロピレン系重合体（Ｂ）：

前記プロピレン系重合体（Ｂ）の例としては、プロピレン単独重合体、およびプロピレンと α －オレフィン（プロピレンを除く。）との共重合体が挙

げられる。

- [0032] 前記プロピレンと α -オレフィンとの共重合体は、ランダム共重合体であっても、ブロック共重合体であってもよい。
- [0033] プロピレン系重合体（B）の、後述する実施例で採用された方法により測定される、23℃におけるn-デカンに不溶な部分（以下「23℃n-デカン不溶部」とも記載する。）の量は、45質量%以上であり、後述する実施例で採用された方法により測定される、23℃におけるn-デカンに可溶な部分（以下「23℃n-デカン可溶部」とも記載する。）の、135℃テトラリン中で測定される極限粘度 $[\eta]$ は、6.5dl/g未満である。
- [0034] 前記プロピレン系重合体（B）の、JIS K7210に準拠し、温度230℃、荷重2.16kgの条件下で測定されるメルトフローレート（MFR）は、好ましくは0.1～50g/10分、より好ましくは0.25～40g/10分、さらに好ましくは0.5～30g/10分である。
- [0035] 前記ランダム共重合体の例としては、プロピレンと、炭素原子数2～8の少なくとも1種の α -オレフィン（プロピレンを除く。）とのランダム共重合体が挙げられる。前記 α -オレフィンの具体例としては、エチレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-オクテン、3-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、3-エチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ヘキセン、4,4-ジメチル-1-ヘキセン、4,4-ジメチル-1-ペンテン、4-エチル-1-ヘキセン、3-エチル-1-ヘキセン等が挙げられる。前記 α -オレフィンは、1種であっても2種以上であってもよい。
- [0036] 前記ランダム共重合体のプロピレン含有量、すなわちプロピレンから導かれる構成単位の含有量は、好ましくは95質量%以上100質量%未満、より好ましくは97質量%以上100質量%未満であり、 α -オレフィン含有量、すなわち α -オレフィンから導かれる構成単位の含有量は、好ましくは5質量%以下、より好ましくは3質量%以下（ただし、プロピレン含有量および α -オレフィン含有量の合計を100質量%とする。）である。

[0037] 前記ブロック共重合体の例としては、 23°C n-デカン可溶部の量が5～20質量%、好ましくは10～20質量%、 23°C n-デカン可溶部のエチレンから導かれる構成単位の含有量、すなわちエチレン含有量が25～50モル%、好ましくは30～45モル%であり、 23°C n-デカン可溶部の、後述する実施例で採用された方法により測定される極限粘度 $[\eta]$ が 6.5 dl/g 未満、好ましくは 2.0 以上 6.5 dl/g 未満であるプロピレン・エチレンブロック共重合体が挙げられる。

[0038] 前記プロピレン系重合体（B）の製造方法としては、特に限定はなく、高压法、チーグラ-ナッタ触媒、メタロセン系触媒等の周知の触媒を用いた周知の製造方法が挙げられる。公知のオレフィン重合用触媒の存在下で、プロピレンを単独重合、または必要に応じて α -オレフィンと共に重合する製造方法が挙げられる。オレフィン重合用触媒の例としては、チタン系触媒およびメタロセン系触媒が挙げられる。

[0039] 前記プロピレン系重合体（B）としては、バージン材、リサイクル材または両者の混合物であってもよい。

[0040] リサイクル材、すなわち再生されたプロピレン系重合体の例としては、プロピレン系重合体からなる各種製品の製造において発生した不良品、および使用済みで廃棄されるプロピレン系重合体からなる各種製品から再生された再生プロピレン系重合体が挙げられる。

[0041] プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）：

前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）（以下「成分（C）」とも記載する。）は、以下に説明する要件（1）～（4）を満たすプロピレン・エチレンブロック共重合体である。

[0042] 前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）は、 23°C n-デカン可溶部および 23°C n-デカン不溶部からなる。

[0043] 前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）において、 23°C n-デカン可溶部とは、通常、主にプロピレンおよびエチレン由来の構成単位からなる成分である。 23°C n-デカン可溶部は結晶性を示さないか、もしくは

は結晶性が低い成分であり、ガラス転移温度が低く、耐衝撃性を発現し、および他の重合体と混合する際には他の重合体との相溶性を発現すると考えられる。これはゴム成分と言われることもある。

[0044] 一方、前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）において、23℃ n-デカン不溶部とは、通常、主にプロピレン由来の構成単位からなる成分であり、結晶性を有し、高い剛性を示すと考えられる。

[0045] 要件（1）：

要件（1）は、前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）の、温度230℃、荷重2.16kgで測定されたメルトフローレート（MFR）が0.05～5g/10分である、というものである。前記MFRは、好ましくは0.05～4g/10分、より好ましくは0.05～3g/10分である。

[0046] 前記MFRが前記範囲よりも過大または過小であると、前記成分（A）、前記成分（B）および前記プロピレン・エチレンブロック共重合体を含む組成物は、引張伸び性能または耐衝撃性に劣る。

[0047] 要件（2）：

要件（2）は、前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）中の、23℃ n-デカン可溶部の量が30～55質量%である、というものである。

[0048] 前記23℃ n-デカン可溶部量は、好ましくは30～50質量%、より好ましくは30～45質量%である。

[0049] 前記23℃ n-デカン可溶部量が前記範囲にあることから、本発明の組成物は耐衝撃性に優れている。

[0050] 一方、前記23℃ n-デカン可溶部量が前記下限値よりも過小であると、前記成分（A）、前記成分（B）および前記プロピレン・エチレンブロック共重合体を含む組成物は、耐衝撃性に劣る。

[0051] 要件（3）：

要件（3）は、前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）中の2

3℃ n-デカン可溶部のエチレン含有量が25～55モル%である、というものである。

[0052] 前記エチレン含有量は、好ましくは25～50モル%、より好ましくは30～50モル%、さらに好ましくは35～45モル%である。

[0053] 前記エチレン含有量が前記範囲にあることから、本発明の組成物は耐衝撃性に優れている。

[0054] 要件（４）：

要件（４）は、前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）中の23℃ n-デカン可溶部の、後述する実施例で採用された条件で測定される極限粘度 $[\eta]$ が6.5～10.0 dl/gである、というものである。

[0055] 前記極限粘度 $[\eta]$ は、好ましくは7.0～10.0 dl/g、より好ましくは7.0～9.5 dl/gである。

[0056] 前記極限粘度 $[\eta]$ が前記範囲にあることから、本発明の組成物は引張伸び性能および耐衝撃性に優れている。

[0057] 一方、前記極限粘度 $[\eta]$ が前記下限値よりも過小であると、前記成分（A）、前記成分（B）および前記プロピレン・エチレンブロック共重合体を含む組成物は、耐衝撃性に劣る。

[0058] 前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）は、好ましくは、さらに以下に説明する要件（５）を満たす。

[0059] 要件（５）：

要件（５）は、前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）の、後述する実施例で採用された条件で測定される極限粘度 $[\eta]$ が1.0～6.0 dl/g、好ましくは3.0～6.0 dl/gである、というものである。

[0060] 前記極限粘度 $[\eta]$ が前記範囲にあると、耐衝撃性が向上する場合がある。

[0061] 前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）は、種々公知の製造方法、例えば、上記物性を満たすように、プロピレン単独重合体およびプロピ

レン・エチレン共重合体を重合した後、プロピレン単独重合体とプロピレン・エチレン共重合体とを混合、あるいは溶融混練して前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）を得る方法、あるいは、上記物性を満たすように、プロピレン単独重合体およびプロピレン・エチレン共重合体を一つの重合系あるいは二つ以上の重合系で重合する方法等を例示できる。また、前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）として、市販品を使用してもよい。

[0062] また、前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）中の23℃ η ヘキサン不溶部の極限粘度 $[\eta]$ は、通常0.5～4.0 dl/g、好ましくは1.0～3.0 dl/gである。

[0063] 前記エチレン系重合体（A）、前記プロピレン系重合体（B）、または前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）は、それぞれ1種以上のバイオマス由来モノマー（エチレン、プロピレン等）に由来する構成単位を含んでいてもよい。重合体を構成するモノマーがバイオマス由来モノマーのみでもよいし、化石燃料由来モノマーのみでもよいし、バイオマス由来モノマーと化石燃料由来モノマーの両方を含んでもよい。バイオマス由来モノマーとは、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モノマーで、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。バイオマス由来モノマーは、たとえば従来知られている方法により得られる。

[0064] 前記エチレン系重合体（A）、前記プロピレン系重合体（B）、または前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）がバイオマス由来モノマーに由来する構成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、原料モノマーがバイオマス由来モノマーを含んでいても、 ^{14}C 同位体を $1 \times 10^{-12} \sim 1 \times 10^{-14}$ 程度の割合で含むこと以外の分子構

造は、化石燃料由来モノマーからなるエチレン系重合体、プロピレン系重合体、またはプロピレン・エチレンブロック共重合体と同等である。従って、性能も変わらないとされる。

[0065] 前記エチレン系重合体（A）、前記プロピレン系重合体（B）、または前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）は、1種以上のケミカルリサイクル由来モノマー（エチレン、プロピレン等）に由来する構成単位を含んでいてもよい。重合体を構成するモノマーがケミカルリサイクル由来モノマーのみでもよいし、ケミカルリサイクル由来モノマーと化石燃料由来モノマーおよび／またはバイオマス由来モノマーとを含んでもよい。ケミカルリサイクル由来モノマーは、たとえば従来知られている方法により得られる。

[0066] 前記エチレン系重合体（A）、前記プロピレン系重合体（B）、または前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）がケミカルリサイクル由来モノマーに由来する構成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んでいても、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、熱分解等でエチ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エチレン系重合体、プロピレン系重合体、またはプロピレン・エチレンブロック共重合体と同等である。従って、性能も変わらないとされる。

[0067] 任意成分：

本発明に係る重合体組成物は、本発明の効果を損なわない範囲で前記エチレン系重合体（A）、前記プロピレン系重合体（B）および前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）以外の成分（以下「任意成分」とも記載する。）を含んでもよく、含んでいなくてもよい。

[0068] 前記任意成分としては、例えば耐熱安定剤、耐候安定剤、耐光安定剤、老化防止剤、酸化防止剤、脂肪酸金属塩、軟化剤、分散剤、着色剤、顔料紫外

線吸収剤、核剤などの添加剤、樹脂、エラストマー、無機充填剤が挙げられる。

[0069] 前記任意成分は、前記エチレン系重合体（A）、前記プロピレン系重合体（B）および前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）と共に混合してもよく、これらの成分を混合する前に、各成分に配合されていてもよい。

[0070] （重合体組成物）

本発明に係る重合体組成物は、40～99質量部の前記エチレン系重合体（A）、1～60質量部の前記プロピレン系重合体（B）、および1～30質量部（ただし、エチレン系重合体（A）およびプロピレン系重合体（B）の合計量を100質量部とする。）の前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）を含むことを特徴としている。

[0071] 本発明によれば、相溶化材として用いられるプロピレン・エチレンブロック共重合体（C）が、従来品と比べ、23℃*n*-デカン可溶部を多く含み、かつ23℃*n*-デカン可溶部の極限粘度 $[\eta]$ が大きいことから、前記エチレン系重合体（A）および前記プロピレン系重合体（B）と混合した際に、プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）の分散粒子のマイクロボイドを形成し易くなり、そのため組成物の耐衝撃性能および引張伸び性能が向上するものと、本発明者らは推察している。

[0072] また、後述する実施例3と比較例4および5との対比から示されるように、本発明によれば、前記成分（A）および前記成分（B）に前記ゴム成分を前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）の形態で加えることにより、前記成分（A）および前記成分（B）に前記ゴム成分を単独で加えた場合よりも、組成物の耐衝撃性能および引張伸び性能を向上させることができる。

[0073] 本発明に係る重合体組成物における前記エチレン系重合体（A）の含有量は、40～99質量部、好ましくは45～85質量部、より好ましくは45～80質量部、さらに好ましくは65～80質量部である。

[0074] 本発明に係る重合体組成物における前記プロピレン系重合体（B）の含有量は、1～60質量部、好ましくは15～55質量部、より好ましくは20～55質量部、さらに好ましくは20～35質量部である。

[0075] 本発明に係る重合体組成物における前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）の含有量は、1～30質量部、好ましくは5～30質量部、より好ましくは10～30質量部、さらに好ましくは15～30質量部である。

[0076] 前記エチレン系重合体（A）および前記プロピレン系重合体（B）がリサイクルされたエチレン系重合体およびプロピレン系重合体の混合物である場合に、特許文献2に開示された技術では、相溶化材である異相プロピレン共重合体（プロピレンブロック共重合体）と共にプロピレンホモポリマーを加える必要があったのに対し、本発明においては、相溶化材であるプロピレン・エチレンブロック共重合体（C）と共にプロピレンホモポリマーを加える必要はない。このためリサイクルされた混合物をより簡便なプロセスで改質できる可能性がある。

[0077] （重合体組成物の製造方法）

本発明の重合体組成物は、前記エチレン系重合体（A）、前記プロピレン系重合体（B）および前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）、ならびに必要に応じて前記任意成分をドライブレンド、ヘンシェルミキサー、バンバリーミキサーなどで混合することにより、あるいは混合後にさらに単軸押出機、2軸押出機、高速2軸押出機などで熔融混練することにより、製造することができる。

[0078] 前記エチレン系重合体（A）、前記プロピレン系重合体（B）および前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）、ならびに必要に応じて前記任意成分を一度に混合してもよく、あるいは前記エチレン系重合体（A）および前記プロピレン系重合体（B）を混合した後、得られた混合物、前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）、および必要に応じて前記任意成分を混合してもよい。後者の方法において、前記エチレン系重合体（A）

および前記プロピレン系重合体（B）を混合して得られた混合物は、ペレットまたはパウダーであってもよく、混合物から形成された成形体の破砕物であってもよい。

[0079] <成形体>

本発明の成形体は、本発明の重合体組成物から形成されている。

[0080] 本発明の成形体の具体例としては、射出成形体、発泡成形体、射出発泡成形体、押出成形体、中空成形体、真空・圧空成形体、カレンダー成形体、延伸フィルムおよびインフレーションフィルムが挙げられる。成形方法としては、特に制限はなく、公知の成形方法を採用できる。

実施例

[0081] 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、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[0082] [測定方法ないし評価方法]

後述する重合体および組成物について、以下のとおり測定ないし評価を行った。

[0083] （１）重合体または重合体組成物：

[メルトフローレート（MFR）]

ASTM D-1238に従って、2.16kg荷重でメルトフローレート（MFR）を測定した。測定温度は、エチレン系重合体では190℃とし、プロピレン系重合体、プロピレン・エチレンブロック共重合体および重合体組成物では230℃とした。

[0084] [極限粘度 $[\eta]$]

試料約25mgをテトラリン25mlに溶解し、135℃のオイルバス中で比粘度 η_{sp} を測定した。このテトラリン溶液にテトラリン溶媒を5ml追加して希釈後、同様にして比粘度 η_{sp} を測定した。この希釈操作をさらに2回繰り返し、濃度（C）を0に外挿した時の η_{sp}/C の値を極限粘度として求め、この値を極限粘度 $[\eta]$ とした。

[0085] [エチレン由来の構成単位の割合]

測定試料について、下記条件にて ^{13}C -NMRの測定を行った。 $(^{13}\text{C}$ -NMR測定条件)

測定装置：日本電子製LA400型核磁気共鳴装置

測定モード：BCM (Bi level Complete decoupling)

観測周波数：100.4 MHz

観測範囲：17006.8 Hz

パルス幅：C核 45° (7.8 μ 秒)

パルス繰り返し時間：5秒

試料管：5 mm ϕ

試料管回転数：12 Hz

積算回数：20000回

測定温度：125 $^\circ\text{C}$

溶媒：1,2,4-トリクロロベンゼン：0.35 ml / 重ベンゼン：0.2 ml

試料量：約40 mg

測定で得られたスペクトルより、下記文献(1)に準じて、モノマー連鎖分布(トリアッド(3連子)分布)の比率を決定し、測定試料中のエチレン由来の構成単位のマール分率(mol%) (以下E(mol%)と記す)およびプロピレン由来の構成単位のマール分率(mol%) (以下P(mol%)と記す)を算出した。求められたE(mol%)およびP(mol%)から下記(式1)に従い、測定試料中のエチレン由来の構成単位の割合(質量%) (以下E(質量%)と記す。)を算出した。

[0086] 文献(1) : Kakugo, M.; Naito, Y.; Mizunuma, K.; Miyatake, T., Carbon-13 NMR determination of monomer sequence distribution in ethylene-propylene copolymers prepared with delta-titanium trichloride-diethylaluminum chloride. *Macromolecules* 1982, 15, (4), 1150-1152

$$E(\text{質量}\%) = E(\text{mol}\%) \times 28 \times 100 / [P(\text{mol}\%) \times$$

$4.2 + E \text{ (m o l \%)} \times 2.8] \quad \cdots \text{ (式 1)}$

[23℃ n-デカン不溶部量と23℃ n-デカン可溶部量]

23℃ n-デカン不溶部量と23℃ n-デカン可溶部量は以下の方法により求めた。

[0087] 試料5 gにn-デカン200 mlを加え、145℃で、30分間加熱溶解を行い、溶液(1)を得た。

[0088] 次に約2時間かけて、溶液(1)を23℃まで冷却し、23℃で30分間放置し、析出物(α)を含む溶液(2)を得た。その後、溶液(2)から析出物(α)を目開き約15 μm の濾布でろ別し、析出物(α)を乾燥させた後、析出物(α)の質量を測定した。析出物(α)の質量をサンプル質量(5 g)で除したものを、23℃ n-デカン不溶部量とした。

[0089] また、析出物(α)をろ別した溶液(2)を、溶液(2)の約3倍量のアセトン中に入れ、n-デカン中に溶解していた成分を析出させ、析出物(β)を得た。その後、析出物(β)をガラスフィルター(G2、目開き約100～160 μm)でろ別し、乾燥させた後、析出物(β)の質量を測定した。析出物(β)の質量をサンプル質量(5 g)で除したものを、23℃ n-デカン可溶部量とした。

[0090] (2) 成形体の評価:

[引張破断伸び]

JIS K7161に準拠して、実施例および比較例で得た重合体組成物からそれぞれ試験片を作製し、下記の条件で引張破断伸びを測定した。

[0091] (測定条件)

試験片形状: ISO-1A ダンベル

引張速度: 50 mm/分

[シャルピー衝撃強さ]

JIS K7111に準拠して、実施例および比較例で得た重合体組成物からそれぞれ試験片を作製し、下記の条件でノッチ付きシャルピー衝撃強さを測定した。

[0092] (測定条件)

温度：23℃

試験片形状：10mm（幅）×80mm（長さ）×4mm（厚さ）

ノッチは機械加工である。

[0093] [製造例1]

<固体状チタン（a-1）の調製>

内容積2リットルの高速攪拌装置（特殊機化工業製）を充分窒素置換した後、該装置に精製灯油700ml、塩化マグネシウム10g、エタノール24.2gおよびソルビタンジステアレート（花王アトラス（株）製「エマゾール320」）3gを装入した。この系を攪拌下で昇温し、120℃および800rpmの条件で30分間攪拌した。高速攪拌下、内径5mmのテフロン（登録商標）製チューブを用いて、予め-10℃に冷却された精製灯油1リットルを張り込んである2リットルのガラスフラスコ（攪拌機付）に移液した。得られた固体を濾過し、精製n-ヘキサンで充分洗浄することにより、塩化マグネシウム1モルに対してエタノールが2.8モル配位した固体状付加物を得た。

[0094] 次いで、前記固体状付加物（マグネシウム原子に換算して45ミリモル）をデカン20mlに懸濁させた後、-20℃に保持した四塩化チタン195ml中に、攪拌下で全量導入した。得られた混合液を5時間かけて80℃に昇温し、ジイソブチルフタレート1.8ml（6.2ミリモル）を添加した。引き続き110℃まで昇温して1.5時間攪拌した。

[0095] 1.5時間の反応終了後、熱濾過にて固体部を採取し、100℃のデカンおよび室温のヘキサンによって、ろ液中にチタンが検出されなくなるまで洗浄した。このようにして、チタン3.8重量%、マグネシウム16重量%、ジイソブチルフタレート18.2重量%、エタノール残基1.1重量%を含有する固体状チタン（a-1）を得た。

[0096] <固体状チタン触媒成分（i-1）の調製>

充分に窒素置換された200mlのガラス製反応器に、得られた固体状チ

タン（a-1）6.8 g、パラキシレン113 ml、デカン11 ml、四塩化チタン2.5 ml（23ミリモル）及びジイソブチルフタレート0.34 ml（1.2ミリモル）を入れた。反応器内の温度を130℃に昇温し、その温度で1時間攪拌して接触処理した後、熱ろ過により固体部を採取した。この固体部を101 mlのパラキシレンに再懸濁させ、さらに四塩化チタン1.7 ml（15ミリモル）及びジイソブチルフタレート0.22 ml（0.8ミリモル）を添加した。

[0097] 次に、130℃に昇温し、該温度を保持しながら1時間攪拌して反応させた。反応終了後、再び熱ろ過にて固液分離を行い、得られた固体部を100℃のデカン及び室温のヘキサンによって触媒成分（i-1）中のパラキシレンが1重量%以下となるまで洗浄した。このようにして、チタン1.3重量%、マグネシウム20重量%、ジイソブチルフタレート13.8重量%、ジエチルフタレート0.8重量%を含有する固体状チタン触媒成分（i-1）を得た。

[0098] なお、本発明者らは、固体状チタン触媒成分（i-1）中に検出されたジエチルフタレートは、おそらく、固体状チタン触媒成分の製造過程で、ジイソブチルフタレートと、上記固体状チタン（a-1）を製造するのに用いたエタノールとのエステル交換が随伴したことに起因するのではないかと推測している。

[0099] <予備重合触媒（b-1）の製造>

上記固体触媒成分（i-1）112.4 g、トリエチルアルミニウム71.1 mL、ジエチルアミノトリエトキシシラン20.2 mL、およびヘプタン10 Lを内容量20 Lの攪拌機付きオートクレーブに挿入し、内温15～20℃に保ちプロピレンを576 g挿入し、120分間攪拌しながら反応させた。重合終了後、固体成分を沈降させ、上澄み液の除去及びヘプタンによる洗浄を2回行った。得られた予備重合触媒（b-1）を精製ヘプタンに再懸濁して、固体触媒成分（i-1）換算で、0.7 g/Lとなるよう、ヘプタンによる調整を行った。この予備重合触媒（b-1）は、固体触媒成分（

i-1) 1 g 当たりポリプロピレンを 6 g 含んでいた。

[0100] [プロピレン・エチレンブロック共重合体の製造]

[製造例 2]

[プロピレン・エチレンブロック共重合体 (C-1) の製造]

内容量 58 L の管状重合器に、プロピレンを 43 kg/時間、水素を 155 NL/時間、製造例 1 で得られた予備重合触媒 (b-1) を固体触媒成分 (i-1) 換算で 0.41 g/時間、トリエチルアルミニウムを 2.29 mL/時間、ジエチルアミノトリエトキシシランを 1.73 mL/時間の割合で連続的に供給し、気相の存在しない満液の状態にてプロピレンを重合した。管状重合器の温度は 63℃であり、圧力は 3.1 MPa/G であった。得られたスラリーは内容量 70 L の攪拌機付きベッセル重合器へ送り、更に重合を行った。重合器へは、プロピレンを 45 kg/時間、水素を気相部の水素濃度が 7.1 mol% になるように供給した。重合温度 62℃、圧力 2.7 MPa/G で重合を行い、ホモプロピレン重合体 (H-1) のスラリーを得た。

[0101] 得られたスラリーを内容量 2.4 L の移液管に移送し、当該スラリーをガス化させ、気固分離を行った後、内容量 480 L の気相重合器にホモプロピレン重合体 (H-1) パウダーを送り、エチレン/プロピレンブロック共重合を行った。気相重合器内のガス組成が、エチレン/(エチレン+プロピレン)=0.2651 (モル比)、水素/エチレン=0.0040 (モル比) になるようにプロピレン、エチレン、水素を連続的に供給した。重合温度 75℃、圧力 1.6 MPa/G で重合を行った。

[0102] その後、気固分離を行い、80℃で真空乾燥を行った。これにより、ポリプロピレン部とプロピレン・エチレン共重合体部とを有する、プロピレン・エチレンブロック共重合体 (C-1) を得た。得られたホモプロピレン重合体 (H-1) 及びプロピレン・エチレンブロック共重合体 (C-1) の特性を表 1 に示す。

[0103] [製造例 3]

[プロピレン・エチレンブロック共重合体 (C-2) の製造]

内容量 58 L の管状重合器に、プロピレンを 45 kg / 時間、水素を 153.8 NL / 時間、製造例 1 で得られた予備重合触媒 (b-1) を固体触媒成分 (i-1) 換算で 0.47 g / 時間、トリエチルアルミニウムを 2.22 mL / 時間、ジエチルアミノトリエトキシシランを 1.26 mL / 時間の割合で連続的に供給し、気相の存在しない満液の状態にてプロピレンを重合した。管状重合器の温度は 70 °C であり、圧力は 3.6 MPa / G であった。

[0104] 得られたスラリーは内容量 70 L の攪拌機付きベッセル重合器へ送り、更に重合を行った。重合器へは、プロピレンを 15 kg / 時間、水素を気相部の水素濃度が 5.5 mol % になるように供給した。重合温度 70 °C、圧力 3.1 MPa / G で重合を行い、ホモプロピレン重合体 (H-2) を得た。

[0105] 得られたスラリーを内容量 2.4 L の移液管に移送し、当該スラリーをガス化させ、気固分離を行った後、内容量 480 L の気相重合器にホモプロピレン重合体 (H-2) パウダーを送り、エチレン / プロピレンブロック共重合を行った。気相重合器内のガス組成が、エチレン / (エチレン + プロピレン) = 0.1583 (モル比)、水素 / エチレン = 0.1026 (モル比) になるようにプロピレン、エチレン、水素を連続的に供給した。重合温度 70 °C、圧力 1.3 MPa / G で重合を行った。

[0106] その後、気固分離を行い、80 °C で真空乾燥を行った。これにより、ポリプロピレン部とプロピレン・エチレン共重合体部とを有する、プロピレン・エチレンブロック共重合体 (C-2) を得た。得られたホモプロピレン重合体 (H-2) 及びプロピレン・エチレンブロック共重合体 (C-2) の特性を表 1 に示す。

[0107] [製造例 4]

[プロピレン・エチレンブロック共重合体 (C-3) の製造]

内容量 58 L の管状重合器に、プロピレンを 40 kg / 時間、水素を 140.8 NL / 時間、製造例 1 で得られた予備重合触媒 (b-1) を固体触媒

成分 (i-1) 換算で 0.47 g/時間、トリエチルアルミニウムを 2.22 mL/時間、ジエチルアミノトリエトキシシランを 1.26 mL/時間の割合で連続的に供給し、気相の存在しない満液の状態にてプロピレンを重合した。管状重合器の温度は 70℃であり、圧力は 3.4 MPa/G であった。

[0108] 得られたスラリーは内容量 70 L の攪拌機付きベッセル重合器へ送り、更に重合を行った。重合器へは、プロピレンを 15 kg/時間、水素を気相部の水素濃度が 4.7 mol% になるように供給した。重合温度 70℃、圧力 3.0 MPa/G で重合を行い、ホモプロピレン重合体 (H-3) を得た。

[0109] 得られたスラリーを内容量 2.4 L の移液管に移送し、当該スラリーをガス化させ、気固分離を行った後、内容量 480 L の気相重合器にホモプロピレン重合体 (H-3) パウダーを送り、エチレン/プロピレンブロック共重合を行った。気相重合器内のガス組成が、エチレン/(エチレン+プロピレン)=0.1711 (モル比)、水素/エチレン=0.0039 (モル比) になるようにプロピレン、エチレン、水素を連続的に供給した。重合温度 70℃、圧力 1.9 MPa/G で重合を行った。

[0110] その後、気固分離を行い、80℃で真空乾燥を行った。これにより、ポリプロピレン部とプロピレン・エチレン共重合体部とを有する、プロピレン・エチレンブロック共重合体 (C-3) を得た。得られたホモプロピレン重合体 (H-3) 及びプロピレン・エチレンブロック共重合体 (C-3) の特性を表 1 に示す。

[0111] [製造例 5]

[プロピレン・エチレンブロック共重合体 (C-4) の製造]

内容量 58 L の管状重合器に、プロピレンを 43 kg/時間、水素を 230.3 NL/時間、製造例 1 で得られた予備重合触媒 (b-1) を固体触媒成分 (i-1) 換算で 0.65 g/時間、トリエチルアルミニウムを 3.09 mL/時間、ジエチルアミノトリエトキシシランを 1.75 mL/時間の割合で連続的に供給し、気相の存在しない満液の状態にてプロピレンを重合

した。管状重合器の温度は63℃であり、圧力は3.1 MPa/Gであった。

[0112] 得られたスラリーは内容量70Lの攪拌機付きベッセル重合器へ送り、更に重合を行った。重合器へは、プロピレンを45kg/時間、水素を気相部の水素濃度が7.2mol%になるように供給した。重合温度62℃、圧力2.7 MPa/Gで重合を行い、ホモプロピレン重合体(H-4)を得た。

[0113] 得られたスラリーを内容量2.4Lの移液管に移送し、当該スラリーをガス化させ、気固分離を行った後、内容量480Lの気相重合器にホモプロピレン重合体(H-4)パウダーを送り、エチレン/プロピレンブロック共重合を行った。気相重合器内のガス組成が、エチレン/(エチレン+プロピレン)=0.1496(モル比)、水素/エチレン=0.0017(モル比)になるようにプロピレン、エチレン、水素を連続的に供給した。重合温度75℃、圧力1.6 MPa/Gで重合を行った。

[0114] その後、気固分離を行い、80℃で真空乾燥を行った。これにより、ポリプロピレン部とプロピレン・エチレン共重合体部とを有する、プロピレン・エチレンブロック共重合体(C-4)を得た。得られたホモプロピレン重合体(H-4)及びプロピレン・エチレンブロック共重合体(C-4)の特性を表1に示す。

[0115] [製造例6]

[プロピレン・エチレンブロック共重合体(C-5)の製造]

内容量58Lの管状重合器に、プロピレンを43kg/時間、水素を230.3NL/時間、製造例1で得られた予備重合触媒(b-1)を固体触媒成分(i-1)換算で0.49g/時間、トリエチルアルミニウムを2.32mL/時間、ジエチルアミノトリエトキシシランを1.32mL/時間の割合で連続的に供給し、気相の存在しない満液の状態にてプロピレンを重合した。管状重合器の温度は63℃であり、圧力は3.1 MPa/Gであった。

[0116] 得られたスラリーは内容量70Lの攪拌機付きベッセル重合器へ送り、更

に重合を行った。重合器へは、プロピレンを45kg/時間、水素を気相部の水素濃度が7.2mol%になるように供給した。重合温度62℃、圧力2.7MPa/Gで重合を行い、ホモプロピレン重合体(H-5)を得た。

[0117] 得られたスラリーを内容量2.4Lの移液管に移送し、当該スラリーをガス化させ、気固分離を行った後、内容量480Lの気相重合器にホモプロピレン重合体(H-5)パウダーを送り、エチレン/プロピレンブロック共重合を行った。気相重合器内のガス組成が、エチレン/(エチレン+プロピレン)=0.0909(モル比)、水素/エチレン=0.0022(モル比)になるようにプロピレン、エチレン、水素を連続的に供給した。重合温度75℃、圧力1.9MPa/Gで重合を行った。

[0118] その後、気固分離を行い、80℃で真空乾燥を行った。これにより、ポリプロピレン部とプロピレン・エチレン共重合体部とを有する、プロピレン・エチレンブロック共重合体(C-5)を得た。得られたホモプロピレン重合体(H-5)及びプロピレン・エチレンブロック共重合体(C-5)の特性を表1に示す。

[0119] [製造例7]

[プロピレン・エチレンブロック共重合体(C-6)の製造]

内容量58Lの管状重合器に、プロピレンを43kg/時間、水素を202.1NL/時間、製造例1で得られた予備重合触媒(b-1)を固体触媒成分(i-1)換算で0.65g/時間、トリエチルアルミニウムを3.09mL/時間、ジエチルアミノトリエトキシシランを1.75mL/時間の割合で連続的に供給し、気相の存在しない満液の状態にてプロピレンを重合した。管状重合器の温度は63℃であり、圧力は3.1MPa/Gであった。

[0120] 得られたスラリーは内容量70Lの攪拌機付きベッセル重合器へ送り、更に重合を行った。重合器へは、プロピレンを45kg/時間、水素を気相部の水素濃度が5.9mol%になるように供給した。重合温度62℃、圧力2.7MPa/Gで重合を行い、ホモプロピレン重合体(H-6)を得た。

[0121] 得られたスラリーを内容量 2.4 L の移液管に移送し、当該スラリーをガス化させ、気固分離を行った後、内容量 480 L の気相重合器にホモプロピレン重合体 (H-6) パウダーを送り、エチレン／プロピレンブロック共重合を行った。気相重合器内のガス組成が、エチレン／(エチレン+プロピレン) = 0.2867 (モル比)、水素／エチレン = 0.0018 (モル比) になるようにプロピレン、エチレン、水素を連続的に供給した。重合温度 75℃、圧力 1.6 MPa / G で重合を行った。

[0122] その後、気固分離を行い、80℃で真空乾燥を行った。これにより、ポリプロピレン部とプロピレン・エチレン共重合体部とを有する、プロピレン・エチレンブロック共重合体 (C-6) を得た。得られたホモプロピレン重合体 (H-6) 及びプロピレン・エチレンブロック共重合体 (C-6) の特性を表 1 に示す。

[0123] [製造例 8]

[プロピレン・エチレンブロック共重合体 (B-2) の製造]

内容量 58 L の管状重合器に、プロピレンを 43 kg / 時間、水素を 40.5 NL / 時間、製造例 1 で得られた予備重合触媒 (b-1) を固体触媒成分 (i-1) 換算で 1.20 g / 時間、トリエチルアルミニウムを 5.66 mL / 時間、ジエチルアミノトリエトキシシランを 3.21 mL / 時間の割合で連続的に供給し、気相の存在しない満液の状態にてプロピレンを重合した。管状重合器の温度は 70℃であり、圧力は 3.3 MPa / G であった。

[0124] 得られたスラリーは内容量 70 L の攪拌機付きベッセル重合器へ送り、更に重合を行った。重合器へは、プロピレンを 45 kg / 時間、水素を気相部の水素濃度が 1.6 mol % になるように供給した。重合温度 70℃、圧力 2.9 MPa / G で重合を行い、プロピレン重合体 (H-7) を得た。

[0125] 得られたスラリーを内容量 2.4 L の移液管に移送し、当該スラリーをガス化させ、気固分離を行った後、内容量 480 L の気相重合器にホモプロピレン重合体 (H-7) パウダーを送り、エチレン／プロピレンブロック共重合を行った。気相重合器内のガス組成が、エチレン／(エチレン+プロピレン

) = 0.1986 (モル比)、水素／エチレン = 0.0500 (モル比) になるようにプロピレン、エチレン、水素を連続的に供給した。重合温度 70℃、圧力 1.6 MPa / G で重合を行った。

[0126] その後、気固分離を行い、80℃で真空乾燥を行った。これにより、ポリプロピレン部とプロピレン・エチレン共重合体部とを有する、プロピレン・エチレンブロック共重合体 (B-2) を得た。得られたホモプロピレン重合体 (H-7) 及プロピレン・エチレンブロック共重合体 (B-2) の特性を表 1 に示す。

[0127] [表1]

表1			ホモプロピレン重合体						
			(H-1)	(H-2)	(H-3)	(H-4)	(H-5)	(H-6)	(H-7)
極限粘度[η]		dl/g	0.74	0.78	0.80	0.70	0.70	0.75	1.35
MFR(2.16kgf, 230℃)		g/10分	250	200	175	330	330	250	15
			プロピレン・エチレンブロック共重合体						
			(C-1)	(C-2)	(C-3)	(C-4)	(C-5)	(C-6)	(B-2)
全体	極限粘度[η]	dl/g	3.2	1.2	2.5	3.9	5.5	4.2	1.6
	MFR(2.16kgf, 230℃)	g/10分	1.9	50	13	1.7	0.4	0.5	10
23°Cn-デカン 不溶部	量	質量%	67.5	76.8	77.0	68.9	45.3	61.6	88.0
	極限粘度[η]	dl/g	2.0	1.2	1.8	3.1	3.1	2.1	1.5
23°Cn-デカン 可溶部	量	質量%	32.5	23.2	23	31.1	54.7	38.4	12.0
	エチレン含有量	mol%	48	40	41	37	31	51	42
	極限粘度[η]	dl/g	7.2	2.6	7.2	8.4	8.0	8.3	3.3

[重合体組成物の製造]

実施例等で使用された重合体の物性は以下のとおりである。

・エチレン系重合体 (A-1) (ハイゼックス (登録商標) 2200 J、(株) プライムポリマー製)

密度 : 964 kg / m³、MFR (190℃、荷重 2.16 kg) : 5.2 g / 10分

・エチレン系重合体 (A-2) (ネオゼックス (登録商標) 45200、(株) プライムポリマー製)

密度 : 942 kg / m³、MFR (190℃、荷重 2.16 kg) : 20 g / 10分

・プロピレン系重合体 (B-1) (プライムポリプロ (登録商標) J105

G、(株)プライムポリマー製)

プロピレン単独重合体、MFR (230℃、荷重2.16kg) : 9.0 g/10分、

・プロピレン系重合体 (B-2)

プロピレン系重合体 (B-2) として、製造例8で製造したプロピレン・エチレンブロック共重合体 (B-2) を用いた。プロピレン・エチレンブロック共重合体 (B-2) の物性は表1に記載のとおりである。

[0128] なお、これらの製品を測定し、かつ表1を参照することにより、エチレン系重合体 (A-1) および (A-2) のエチレン含有量がいずれも80モル%であること、ならびにプロピレン系重合体 (B-1) および (B-2) の23℃n-デカン不溶部量がいずれも45質量%以上であること、および23℃n-デカン可溶部の、135℃テトラリン中で測定される極限粘度 [η] がいずれも6.5 dl/g未満であることを確認できる。

[0129] [実施例1]

エチレン系重合体 (A-1) を75質量部、プロピレン系重合体 (B-1) を25質量部、製造例2で得たプロピレン・エチレンブロック共重合体 (C-1) を10質量部、ステアリン酸カルシウム (日油 (株) 製) を0.1質量部、および酸化防止剤としてIRGANOX 1010 (商品名、BAS Fジャパン (株) 製) を0.1質量部、IRGAFOS 168 (商品名、BAS Fジャパン (株) 製) を0.1質量部配合してタンブラーミキサーにてドライブレンドした。その後、得られた混合物を二軸押出機 ((株) 日本製鋼所製、TEX (登録商標) 30 α) により、シリンダー温度180℃、スクリュウ回転750 rpm、押出し量60 kg/hの条件で熔融混練してペレット化した。このペレットを射出成形機にて試験片に成形し、前記評価を行った。結果を表2に示す。

[0130] [実施例2～8、実施例10～12]

重合体およびその配合比を表1の通りにした以外は実施例1と同様にして、重合体組成物のペレットおよび試験片を製造し、評価した。評価結果を表

2に示す。

[0131] [比較例1]

エチレン系重合体（A-1）100質量部を射出成形機にて試験片に成形し、前記評価を行った。結果を表3に示す。

[0132] [比較例2]

エチレン系重合体（A-1）を75質量部、プロピレン系重合体（B-1）を25質量部、ステアリン酸カルシウム（日油（株）製）を0.1質量部、および酸化防止剤としてIRGANOX（登録商標）1010（商品名、BASFジャパン（株）製）を0.1質量部、IRGAFOS168（商品名、BASFジャパン（株）製）を0.1質量部配合してタンブラーミキサーにてドライブレンドした。その後、得られた混合物を二軸押出機（（株）日本製鋼所製、TEX（登録商標）30 α ）により、シリンダー温度180℃、スクリー回転750rpm、押出し量60kg/hの条件で熔融混練してペレット化した。このペレットを射出成形機にて試験片に成形し、前記評価を行った。結果を表3に示す。

[0133] [比較例3、比較例10～13]

重合体およびその配合比を表3の通りにした以外は、比較例2と同様にし、重合体組成物のペレットおよび試験片を製造し、評価した。評価結果を表3に示す。

[0134] [比較例4]

エチレン系重合体（A-1）を75質量部、プロピレン系重合体（B-1）を37.5質量部、エラストマー（D-1）（タフマーA-1050S、三井化学（株）製）を7.5質量部、ステアリン酸カルシウム（日油（株）製）を0.1質量部、および酸化防止剤としてIRGANOX1010（商品名、BASFジャパン（株）製）を0.1質量部、IRGAFOS168（商品名、BASFジャパン（株）製）を0.1質量部配合してタンブラーミキサーにてドライブレンドした。その後、得られた混合物を二軸押出機（（株）日本製鋼所製、TEX（登録商標）30 α ）により、シリンダー温度

180℃、スクリー回転750rpm、押出し量60kg/hの条件で熔融混練してペレット化した。このペレットを射出成形機にて試験片に成形し、前記評価を行った。結果を表3に示す。

[0135] [比較例5]

比較例4において、7.5質量部のエラストマー(D-1)を、7.5質量部のエラストマー(D-2)(VISTAMAX6102、Exxon Mobile Chemical Company製)に変更したこと以外は、比較例4と同様にして、重合体組成物のペレットおよび試験片を製造し、評価した。評価結果を表3に示す。

[0136] [比較例6]

エチレン系重合体(A-1)を75質量部、プロピレン系重合体(B-1)を25質量部、製造例3で得たプロピレン・エチレンブロック共重合体(C-2)を20質量部、ステアリン酸カルシウム(日油(株)製)を0.1質量部、および酸化防止剤としてIRGANOX1010(商品名、BAS Fジャパン(株)製)を0.1質量部、IRGAFOS168(商品名、BAS Fジャパン(株)製)を0.1質量部配合してタンブラーミキサーにてドライブレンドした。その後、得られた混合物を二軸押出機((株)日本製鋼所製、TEX(登録商標)30α)により、シリンダー温度180℃、スクリー回転750rpm、押出し量60kg/hの条件で熔融混練してペレット化した。このペレットを射出成形機にて試験片に成形し、前記評価を行った。結果を表3に示す。

[0137] [比較例7～9]

重合体およびその配合比を表3の通りにした以外は、比較例6と同様にして、重合体組成物のペレットおよび試験片を製造し、評価した。評価結果を表3に示す。

[0138] [実施例9]

比較例2において得られた射出成形試験片を粉砕してできたサンプルを100質量部、製造例2で得たプロピレン・エチレンブロック共重合体(C-1)を20質量部、ステアリン酸カルシウム(日油(株)製)を0.1質量部

、および酸化防止剤として I R G A N O X 1 0 1 0（商品名、B A S F ジャパン（株）製）を 0.1 質量部、I R G A F O S 1 6 8（商品名、B A S F ジャパン（株）製）を 0.1 質量部配合してタンブラーミキサーにてドライブレンドした。その後、二軸押出機（（株）日本製鋼所製、T E X（登録商標）30 α ）により、シリンダー温度 180℃、スクリー回転 750 r p m、押出し量 60 k g / h の条件で熔融混練してペレット化した。このペレットを射出成形機にて試験片に成形し、前記評価を行った。結果を表 2 に示す。

[0139]

[0140] [表3]

表3

	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	比較例9	比較例10	比較例11	比較例12	比較例13
エチレン系重合体(A-1)	100	75	50	75	75	75	50	75	50	75	50		
エチレン系重合体(A-2)												75	50
プロピレン系重合体(B-1)		25	50	37.5	37.5	25	50	25	50			25	50
プロピレン系重合体(B-2)										25	50		
プロピレン・エチレンブロック共重合体(C-1)													
プロピレン・エチレンブロック共重合体(C-2)						20	20						
プロピレン・エチレンブロック共重合体(C-3)								20	20				
エラストマー(D-1)				7.5									
エラストマー(D-2)					7.5								
組成物特性													
MFR(2.16kgf, 230℃)	9	9	10	9	9	9	10	9	10	9	10	28	20
引張破断伸び	>500	100	55	115	115	61	53	300	213	105	190	22	27
シャルピー衝撃強さ(23℃)	8	4	4	26	7	6	5	13	12	12	9	2	2

以下、実施例および比較例から、本発明の効果について説明する。

[0141] 下記（１）～（４）より、プロピレン・エチレンブロック共重合体（Ｃ）を用いることで、種々のＰＥ／ＰＰ混合系において優れた効果を示している。

[0142] （１）ＨＤＰＥとホモＰＰの相溶化

ＨＤＰＥとホモＰＰを７５質量部／２５～２６質量部で混合する系に、１９～２０質量部の相溶化材（プロピレン・エチレンブロック共重合体（Ｃ））を用いる実施例３，９～１２を、比較例２、比較例６，８と対比したプロットを図１に示す。プロピレン・エチレンブロック共重合体（Ｃ）を用いた実施例は、引張破断伸びおよびシャルピー衝撃強度のいずれもが優れ、特にシャルピー衝撃強度が著しく優れていることがわかる。

[0143] ｨＤＰＥとホモＰＰを５０質量部／５０質量部で混合する系に、２０質量部の相溶化材（プロピレン・エチレンブロック共重合体（Ｃ））を用いる実施例４を、比較例３，７，９と対比したプロットを図２に示す。プロピレン・エチレンブロック共重合体（Ｃ）を用いた実施例は、引張破断伸びおよびシャルピー衝撃強度のいずれもが優れ、特にシャルピー衝撃強度が著しく優れていることがわかる。

[0144] （２）ＬＬＤＰＥとホモＰＰの相溶化

ＬＬＤＰＥとホモＰＰを７５質量部／２５質量部あるいは５０質量部／５０質量部で混合する実施例７、実施例８と比較例１２、比較例１３のプロットを図３に示す。プロピレン・エチレンブロック共重合体（Ｃ）を用いた実施例は、引張破断伸びおよびシャルピー衝撃強度のいずれもが著しく優れていることがわかる。

[0145] （３）ＨＤＰＥとブロックＰＰの相溶化

ＨＤＰＥとブロックＰＰを７５質量部／２５質量部あるいは５０質量部／５０質量部で混合する実施例５、実施例１０と比較例１０、比較例１１のプロットを図４に示す。プロピレン・エチレンブロック共重合体（Ｃ）を用いた実施例は、引張破断伸びおよびシャルピー衝撃強度のいずれもが著しく優

れていることがわかる。

[0146] (4) オレフィン系ゴムとの比較

オレフィン系ゴム成分を用いた比較例4, 5を、実施例3と対比したプロットを図5に示す。オレフィン系ゴムの使用量7.5質量%は、実施例3における(C-1)20質量部のうちのデカン可溶部量に近い(20質量部×32.5%=6.5質量部)。プロピレン・エチレンブロック共重合体(C)を用いた実施例は、引張破断伸びおよびシャルピー衝撃強度のいずれもが著しく優れていることがわかる。

請求の範囲

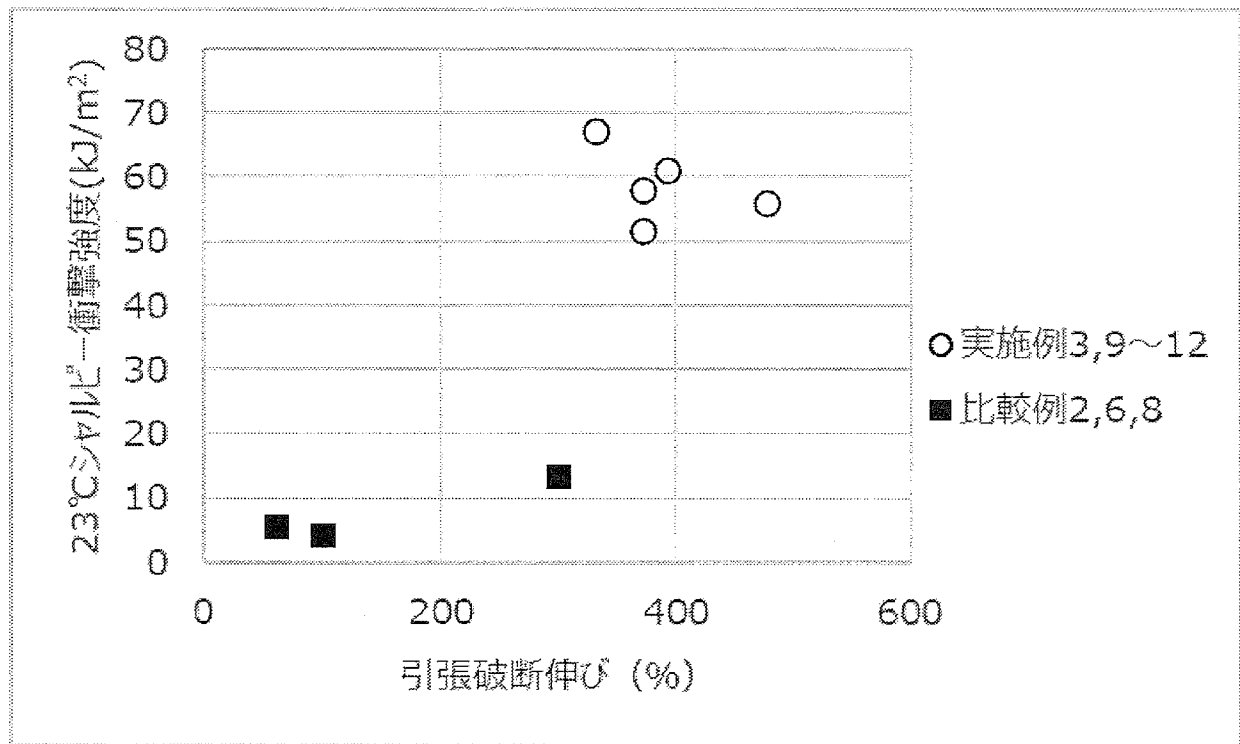
- [請求項1] エチレン含有量が80モル%以上であり、密度が890～980 kg/m³であるエチレン系重合体（A）を40～99質量部、
- 23℃n-デカン不溶部量が45質量%以上であり、23℃n-デカン可溶部の、135℃テトラリン中で測定される極限粘度 $[\eta]$ が6.5 dl/g未満であるプロピレン系重合体（B）を1～60質量部、および
- 下記要件（1）～（4）を満たすプロピレン・エチレンブロック共重合体（C）を1～30質量部（ただし、エチレン系重合体（A）とプロピレン系重合体（B）との合計量を100質量部とする。）含む重合体組成物。
- 要件（1）：温度230℃、荷重2.16 kgで測定されたメルトフローレート（MFR）が0.05～5 g/10分である。
- 要件（2）：23℃n-デカン可溶部量が30～55質量%である。
- 要件（3）：23℃n-デカン可溶部のエチレン含有量が25～55モル%である。
- 要件（4）：23℃n-デカン可溶部の、135℃テトラリン中で測定される極限粘度 $[\eta]$ が6.5～10.0 dl/gである。
- [請求項2] 前記プロピレン・エチレンブロック共重合体（C）の要件（3）における、23℃n-デカン可溶部のエチレン含有量が25～50モル%である、請求項1に記載の重合体組成物。
- [請求項3] 前記エチレン系重合体（A）が、温度190℃、荷重2.16 kgで測定されたメルトフローレート（MFR）が0.1～50 g/10分のエチレン系重合体である、請求項1に記載の重合体組成物。
- [請求項4] 前記プロピレン系重合体（B）が、
- 温度230℃、荷重2.16 kgで測定されたメルトフローレート（MFR）が0.1～50 g/10分のプロピレン単独重合体、
- 温度230℃、荷重2.16 kgで測定されたメルトフローレート

(MFR) が 0.1 ～ 50 g / 10 分、23℃ n-デカン可溶部量が 5 ～ 20 質量%、23℃ n-デカン可溶部のエチレン含有量が 25 ～ 50 モル%であるプロピレン・エチレンブロック共重合体、および
温度 230℃、荷重 2.16 kg で測定されたメルトフローレート (MFR) が 0.1 ～ 50 g / 10 分であり、プロピレンから導かれる構成単位 95 質量%以上 100 質量%未満と α -オレフィン（ただし、プロピレンを除く。）から導かれる構成単位 5 質量%以下とを含むプロピレン・ α -オレフィンランダム共重合体からなる群から選ばれる少なくとも 1 種のプロピレン系重合体である、請求項 1 に記載の重合体組成物。

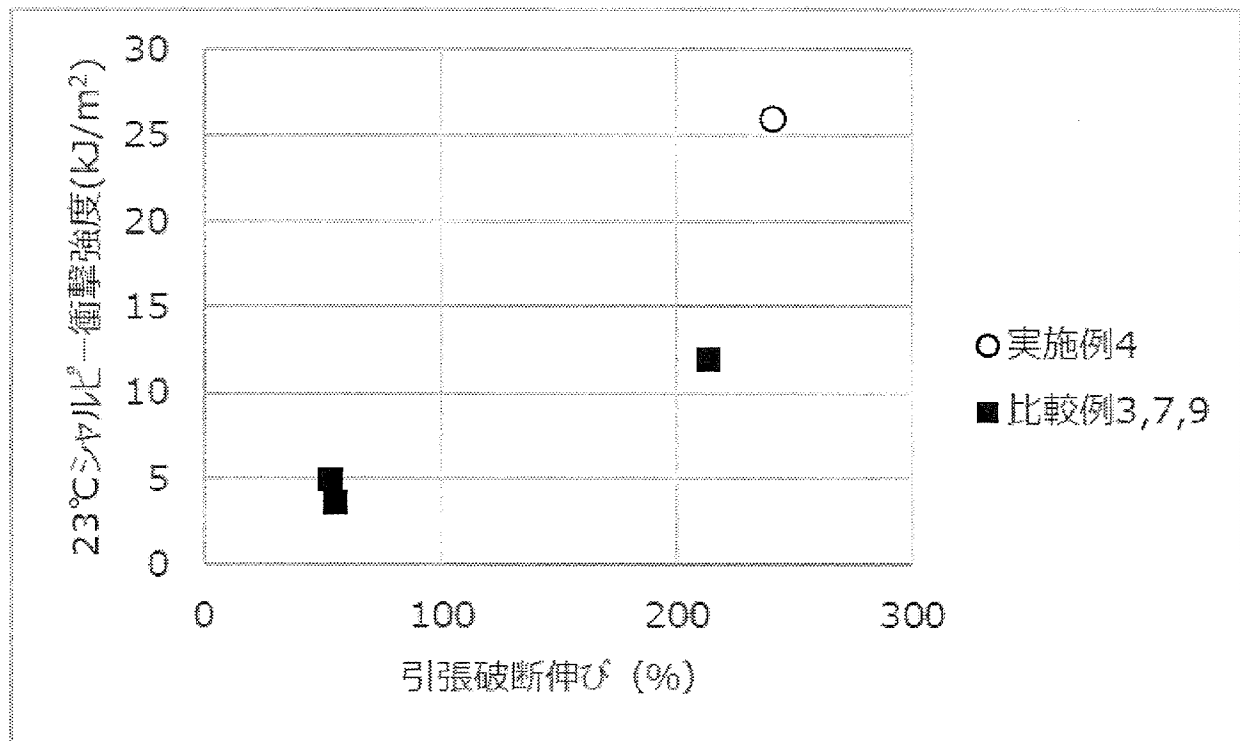
[請求項5] 前記エチレン系重合体 (A) および前記プロピレン系重合体 (B) が、それぞれリサイクルにより得られたエチレン系重合体およびプロピレン系重合体であるか、またはリサイクルにより得られた、エチレン系重合体およびプロピレン系重合体の混合物である、請求項 1 に記載の重合体組成物。

[請求項6] 請求項 1 ～ 5 のいずれか一項に記載の重合体組成物から形成された成形体。

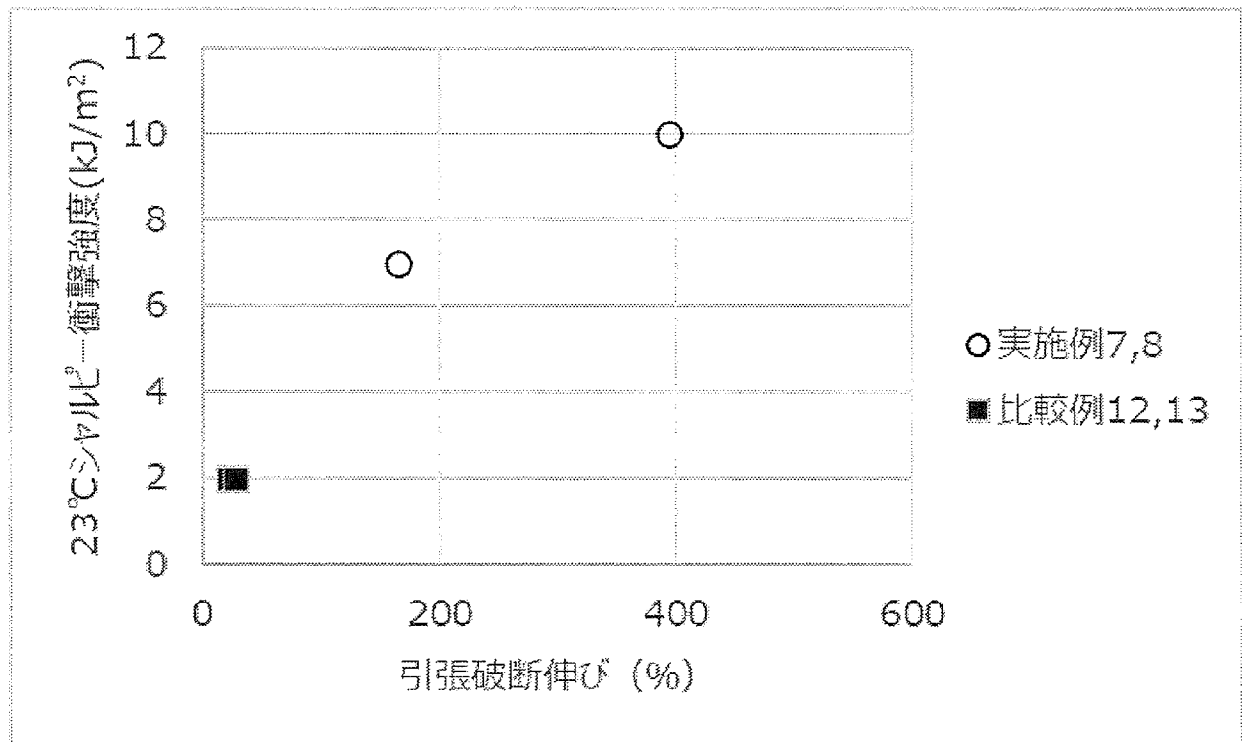
[図1]



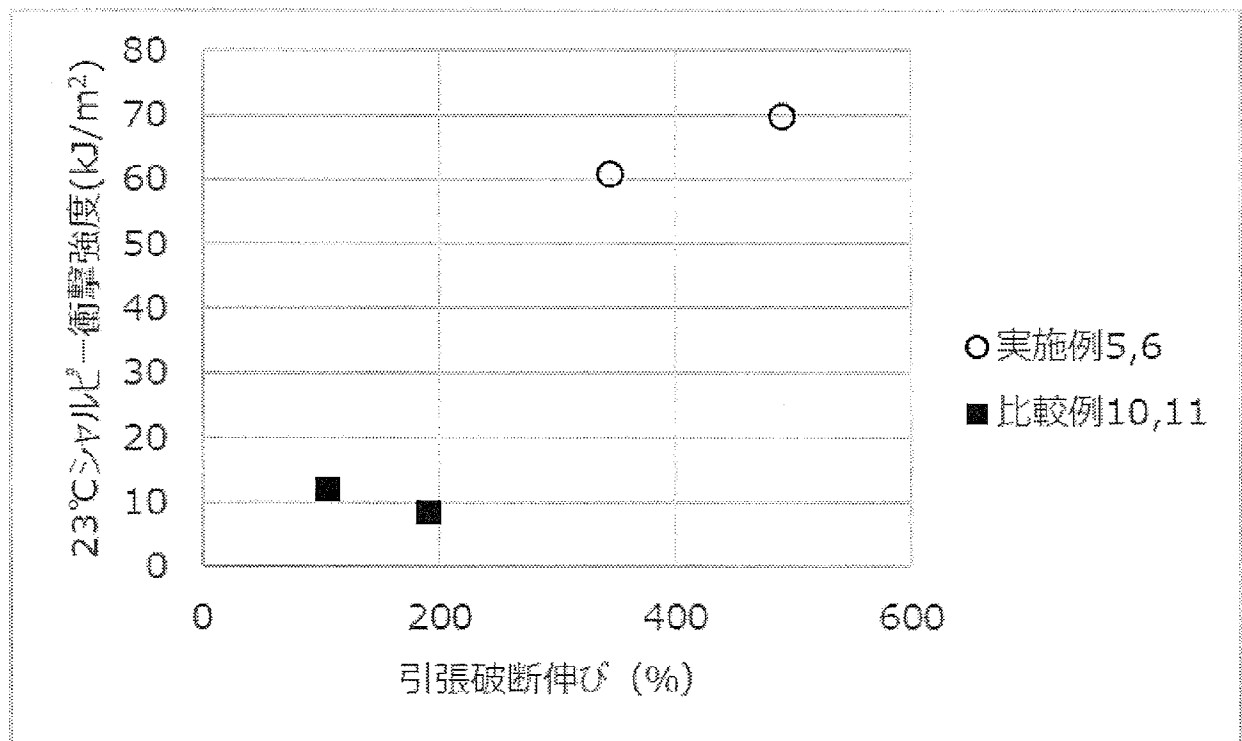
[図2]



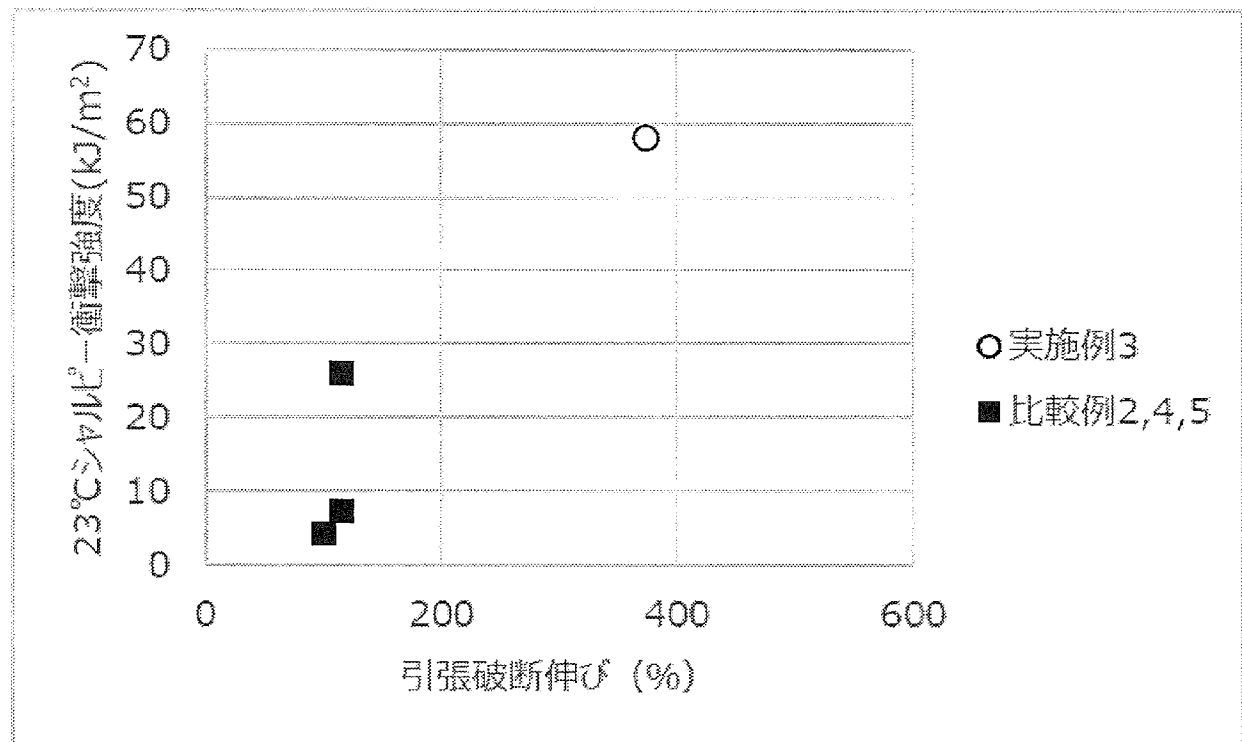
[図3]



[図4]



[図5]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/009016

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER*C08L 23/04*(2006.01)i; *C08L 23/10*(2006.01)i; *C08L 53/00*(2006.01)i

FI: C08L23/04; C08L23/10; 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)

C08L23/04; 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 1971-2024
Registered utility model specifications of Japan 1996-2024
Published registered utility model applications of Japan 1994-2024

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 2010-180282 A (MITSUI CHEMICALS, INC.) 19 August 2010 (2010-08-19) entire text	1-6
A	JP 47-22096 B1 (ASAHI CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.) 21 June 1972 (1972-06-21) entire text	1-6
A	JP 2013-529706 A (DOW GLOBAL TECHNOLOGIES LLC) 22 July 2013 (2013-07-22) entire text	1-6
A	JP 2015-504102 A (DOW GLOBAL TECHNOLOGIES LLC) 05 February 2015 (2015-02-05) entire text	1-6
A	JP 7-286022 A (MITSUI SEKIYU KAGAKU KOGYO K.K.) 31 October 1995 (1995-10-31) entire text	1-6



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
“D” document cited by the applicant in the international application
“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

04 April 2024

Date of mailing of the international search report

16 April 2024

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/JP2024/009016

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	2010-180282	A	19 August 2010	(Family: none)	
JP	47-22096	B1	21 June 1972	(Family: none)	
JP	2013-529706	A	22 July 2013	WO 2011/163189	A1
				whole document	
				US 2011/0313106	A1
				EP 2582748	A1
				CN 103097453	A
				KR 10-2013-0087016	A
JP	2015-504102	A	05 February 2015	WO 2013/090393	A1
				whole document	
				US 2014/0343229	A1
				EP 2791239	A1
				CN 104114633	A
				KR 10-2014-0101359	A
JP	7-286022	A	31 October 1995	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

C08L 23/04(2006.01)i; C08L 23/10(2006.01)i; C08L 53/00(2006.01)i

FI: C08L23/04; C08L23/10; 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））

C08L23/04; 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 - 2024年

日本国実用新案登録公報

1996 - 2024年

日本国登録実用新案公報

1994 - 2024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 2010-180282 A（三井化学株式会社）19.08.2010（2010 - 08 - 19） 全文	1-6
A	JP 47-22096 B1（旭化成工業株式会社）21.06.1972（1972 - 06 - 21） 全文	1-6
A	JP 2013-529706 A（ダウ グローバル テクノロジーズ エルエルシー）22.07.2013 （2013 - 07 - 22） 全文	1-6
A	JP 2015-504102 A（ダウ グローバル テクノロジーズ エルエルシー）05.02.2015 （2015 - 02 - 05） 全文	1-6
A	JP 7-286022 A（三井石油化学工業株式会社）31.10.1995（1995 - 10 - 31） 全文	1-6

☐ 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

“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献

“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

04.04.2024

国際調査報告の発送日

16.04.2024

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）

堀内 建吾 4W 7885

電話番号 03-3581-1101 内線 3448

様式 PCT/ISA/210（第2ページ）（2022年7月）

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/JP2024/009016

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2010-180282	A	19.08.2010	(ファミリーなし)	
JP	47-22096	B1	21.06.1972	(ファミリーなし)	
JP	2013-529706	A	22.07.2013	WO 2011/163189	A1
				Whole document	
				US 2011/0313106	A1
				EP 2582748	A1
				CN 103097453	A
				KR 10-2013-0087016	A
JP	2015-504102	A	05.02.2015	WO 2013/090393	A1
				Whole document	
				US 2014/0343229	A1
				EP 2791239	A1
				CN 104114633	A
				KR 10-2014-0101359	A
JP	7-286022	A	31.10.1995	(ファミリーなし)	