

明 細 書

発明の名称：ポリプロピレン系樹脂組成物

技術分野

[0001] 本発明は、ポリプロピレン系樹脂組成物に関する。さらに詳しくは、機械的特性に優れ、フローマーク等が目立ち難く外観が良好で、低光沢性にも優れ、耐傷付き性も良好な成形品を製造できる樹脂組成物に関する。

背景技術

[0002] 樹脂成形品からなる自動車内装部品においては、通常は、耐傷付き性、低光沢化（成形品に高級感を持たせたり、安全性を考慮し窓ガラスへの移り込みを抑えること目的とする）、フローマーク等の外観不良を隠すために、塗装や表皮貼り合わせといった後工程を施して使用されることが多い。そのため、樹脂成形品の優れた経済性が十分に享受されていない。

[0003] 耐傷付き性、低光沢性、フローマーク外観が良好な材料として、特許文献1にポリプロピレン系樹脂組成物が記載されている。しかしながら、低光沢化がまだ不十分であった。また、高分子量のエチレン・ α -オレフィン・ジエン共重合体を用いているため分散性が悪く、成形品表面にブツが発生しやすかった。また、エチレン・ α -オレフィン・ジエン共重合体を使用すると原料費が高くなるという問題があった。

[0004] 特許文献2には、ウエルド等の外観が良好で、高い剛性と耐衝撃性のバランスがよいポリプロピレン系樹脂組成物が記載されている。しかしながら、ベースポリプロピレンに用いられるブロックポリプロピレンのEPR部の $[\eta]$ （テトラリン、135℃）が4～5.5（dl/g）であり、十分なスウェルが出ないため、金型に樹脂を射出した際、金型と樹脂との密着性が不安定で、フローマーク外観が悪くなるという問題があった。

特許文献3には、成形性、成形外観（フローマーク外観、シボ外観）が良好なプロピレン樹脂組成物が記載されている。しかしながら、このプロピレン樹脂組成物では十分な機械物性は得られない。

特許文献4には、成形性が良好な、特に、射出成形により成形した成形品は、フローマーク、低光沢、及びウエルド外観の点で優れているプロピレン樹脂組成物が記載されている。しかしながら、耐傷付き性については十分ではなかった。

特許文献5には、機械物性バランスの良好なプロピレン樹脂組成物が記載されている。しかしながら、耐傷付き性は十分ではなかった。また、ベースポリプロピレンに用いられるブロックポリプロピレンのEPR部の $[\eta]$ が比較的高いため、成形品表面にブツが発生し易いという問題があった。

先行技術文献

特許文献

- [0005] 特許文献1：特開2009-079117号公報
特許文献2：特開2006-193644号公報
特許文献3：特開2009-155627号公報
特許文献4：特開2000-143904号公報
特許文献5：特開2005-146013号公報

発明の概要

- [0006] 本発明は、機械的物性に優れ、フローマーク等が目立ち難く、低光沢性、耐傷付き性に優れるポリプロピレン系樹脂組成物を提供することを目的とする。

- [0007] 本発明によれば、以下のポリプロピレン系樹脂組成物等が提供される。

1. 下記(A)成分を100重量部、(B)成分を18重量部以上65重量部以下、(C)成分を6重量部以上45重量部以下、(D)成分を25重量部以上60重量部以下、(E)成分を0.1重量部以上6.5重量部以下、及び(F)成分を0.15重量部以上5.0重量部以下含有する、ポリプロピレン系樹脂組成物。

(A) 下記(a1)～(d1)を満たすプロピレン・エチレンブロック共重合体A：

(a1) 室温デカン可溶部が8重量%以上35重量%以下

(b 1) 室温デカン可溶部の極限粘度 $[\eta]$ が 1.0 dl/g 以上 10.0 dl/g 以下

(c 1) 室温デカン可溶部のエチレン量が 33 モル%以上 48 モル%以下

(d 1) メルトフローレート (MFR: 230°C 、 2.16 kg 荷重下) が 20 g/10分 以上 100 g/10分 以下

(B) 下記 (a 2) ~ (d 2) を満たすプロピレン・エチレンブロック共重合体 B:

(a 2) 室温デカン可溶部: 16 重量%以上 35 重量%以下

(b 2) 室温デカン可溶部の極限粘度 $[\eta]$ が 5.0 dl/g 以上 10.0 dl/g 以下

(c 2) 室温デカン可溶部のエチレン量が 36 モル%以上 49 モル%以下

(d 2) MFR (230°C 、 2.16 kg 荷重下) が 1 g/10分 以上 20 g/10分 未満

(C) MFR (230°C 、 2.16 kg 荷重下) が 0.5 g/10分 以上 20 g/10分 以下であるエチレン・ α -オレフィン共重合体

(D) 平均粒径が $1 \mu\text{m}$ 以上 $14 \mu\text{m}$ 以下である無機充填材

(E) 酸変性ポリプロピレン

(F) 滑剤

2. 前記 (A) 成分の室温デカン可溶部が 9 重量%以上 28 重量%以下である 1 に記載のポリプロピレン系樹脂組成物。

3. 前記 (A) 成分の (b 1) 室温デカン可溶部の極限粘度 $[\eta]$ が 2.0 dl/g 以上 8.5 dl/g 以下である 1 又は 2 に記載のポリプロピレン系樹脂組成物。

4. 前記 (B) 成分が 20 重量部以上 50 重量部以下である 1 ~ 3 のいずれかに記載のポリプロピレン系樹脂組成物。

5. 前記 (B) 成分の (b 2) 室温デカン可溶部の極限粘度 $[\eta]$ が 6.5 dl/g 以上 8.5 dl/g 以下である 1 ~ 4 のいずれかに記載のポリプロピレン系樹脂組成物。

6. 前記 (A) 成分の MFR (230℃、2.16 kg 荷重下) が 25 g / 10 分以上 95 g / 10 分以下である 1～5 のいずれかに記載のポリプロピレン系樹脂組成物。

7. 前記 (B) 成分の MFR (230℃、2.16 kg 荷重下) が 10 g / 10 分以上 18 g / 10 分以下である 1～6 のいずれかに記載のポリプロピレン系樹脂組成物。

8. MFR (230℃、2.16 kg 荷重下) が 10 g / 10 分以上 45 g / 10 分以下である 1～7 のいずれかに記載のポリプロピレン系樹脂組成物。

9. 前記無機充填材 (D) がタルクである 1～8 のいずれかに記載のポリプロピレン系樹脂組成物。

10. 前記滑剤 (F) が脂肪酸アミドである 1～9 のいずれかに記載のポリプロピレン系樹脂組成物。

11. 上記 1～10 のいずれかに記載のポリプロピレン系樹脂組成物を成形してなる成形品。

12. 自動車のインストルメントパネル用である 11 に記載の成形品。

[0008] 本発明のポリプロピレン系樹脂組成物により、機械的特性に優れ、フローマークが目立ち難く、低光沢性、耐傷付き性に優れる成形品が得られる。

発明を実施するための形態

[0009] 本発明のポリプロピレン系樹脂組成物は、下記の成分 (A) ～ (F) を含有することを特徴とする。

(A) プロピレン・エチレンブロック共重合体 A : 100 重量部

(B) プロピレン・エチレンブロック共重合体 B : 18 重量部以上 65 重量部以下

(C) MFR (230℃、2.16 kg 荷重下) が 0.5 g / 10 分以上 20 g / 10 分以下であるエチレン・ α -オレフィン共重合体 : 6 重量部以上 45 重量部以下

(D) 平均粒径が 1 μ m 以上 14 μ m 以下である無機充填材 : 25 重量部以

上60重量部以下

(E) 酸変性ポリプロピレン：0.1重量部以上6.5重量部以下

(F) 滑剤：0.15重量部以上5.0重量部以下

上記成分(A)～(F)を所定量含有することにより、フローマーク等が目立ち難く、低光沢性、耐傷付き性に優れる成形品が得られる。

以下、各成分について説明する。

[0010] (A) 成分(A)

成分(A)のプロピレン・エチレンブロック共重合体Aは、下記(a1)～(d1)を満たす。

(a1) 室温デカン可溶部が8重量%以上35重量%以下

(b1) 室温デカン可溶部の極限粘度 $[\eta]$ が1.0dl/g以上10.0dl/g以下

(c1) 室温デカン可溶部のエチレン量が33モル%以上48モル%以下

(d1) メルトフローレート(MFR：230℃、2.16kg荷重下)が20g/10分以上100g/10分以下

[0011] 上記(a1)について、本発明で使用するプロピレン・エチレンブロック共重合体Aの室温デカン可溶部は、8重量%以上35重量%以下であり、好ましくは8重量%以上28重量%以下である。16重量%以上35重量%以下又は17重量%以上28重量%以下とすることもできる。

室温デカン可溶部が8重量%未満では、得られる成形品の耐衝撃性が不十分となる。一方、35重量%を超えると引張弾性率が低下する。

[0012] 上記(b1)について、プロピレン・エチレンブロック共重合体Aの室温デカン可溶部の極限粘度 $[\eta]$ は1.0dl/g以上10.0dl/g以下であり、好ましくは、2.0dl/g以上8.5dl/g以下である。1.0dl/g以上4.5dl/g以下又は1.5dl/g以上3.5dl/g以下とすることもできる。

$[\eta]$ が1.0dl/g未満の場合、目標の耐衝撃性を得ることができない。一方、10.0dl/gを超えると、樹脂流動性の低下や混練時に他の

樹脂と混ざり難くなるため、成形品にてブツが発生して外観が悪くなり、また、機械物性を低下させる可能性がある。

[0013] 上記(c 1)について、プロピレン・エチレンブロック共重合体Aの室温デカン可溶部のエチレン量は33モル%以上48モル%以下であり、好ましくは、37モル%以上43モル%以下である。室温デカン可溶部のエチレン量が33モル%未満であると、光沢性が上昇する。また、48モル%を超えると、耐衝撃性が低下する可能性がある。

[0014] 上記(d 1)について、プロピレン・エチレンブロック共重合体AのMFRは、20g/10分以上100g/10分以下であり、好ましくは25g/10分以上95g/10分以下である。メルトフローレートが20g/10分未満の場合、樹脂流動性が低下し、成形がし難くなる。一方、100g/10分を超えると、衝撃性が低下する。

[0015] 尚、プロピレン・エチレンブロック共重合体Aは、1種単独で使用してもよく、2種以上の共重合体を混合して使用してもよい。例えば、MFR調整のため、2種の共重合体を混合することもできる。

[0016] (B) プロピレン・エチレンブロック共重合体B

プロピレン・エチレンブロック共重合体Bは、下記(a 2)～(d 2)を満たす。

(a 2) 室温デカン可溶部：16重量%以上35重量%以下

(b 2) 室温デカン可溶部の極限粘度 $[\eta]$ が5.0dl/g以上10.0dl/g以下

(c 2) 室温デカン可溶部のエチレン量が36モル%以上49モル%以下

(d 2) MFR(230℃、2.16kg荷重下)が1g/10分以上20g/10分未満

[0017] 上記(a 2)について、プロピレン・エチレンブロック共重合体Bの室温デカン可溶部は、16重量%以上35重量%以下であり、好ましくは17重量%以上28重量%以下である。デカン可溶部が16重量%未満の場合、耐衝撃性が低下し、また、フローマークの開始点が短くなり成形品外観が悪く

なる。また、光沢性も高くなる。一方、35重量%を超えると、樹脂流動性が低下し成形性が悪くなる。

[0018] 上記(b2)について、プロピレン・エチレンブロック共重合体Bのデカン可溶部の極限粘度 $[\eta]$ は5.0dl/g以上10.0dl/g以下であり、好ましくは、6.5dl/g以上8.5dl/g以下である。 $[\eta]$ が5.0dl/g未満の場合、フローマーク開始点が短くなり、成形品外観が悪くなる。また、光沢性も高くなる。一方、10.0dl/gを超えると、樹脂流動性の低下や、混練時に他の樹脂と混ざり難くなり、成形品にブツが生じて外観が悪くなる。

[0019] 上記(c2)について、プロピレン・エチレンブロック共重合体Bの室温デカン可溶部のエチレン量は36モル%以上49モル%以下であり、好ましくは、39モル%以上44モル%以下である。室温デカン可溶部のエチレン量が36モル%未満の場合、光沢性が上昇する。一方、49モル%を超える場合、ゴムの分散不良により、成形品表面にゴムのブツができ、外観悪化に繋がる。

[0020] 上記(d2)について、プロピレン・エチレンブロック共重合体BのMFRは、1g/10分以上20g/10分未満であり、好ましくは10g/10分以上18g/10分以下である。MFRが1g/10分未満の場合、樹脂流動性が低下し成形し難くなる。一方、20g/10分以上であると、耐衝撃性が低下する。

[0021] プロピレン・エチレンブロック共重合体Bの配合量は、上述した成分(A)100重量部に対して18重量部以上65重量部以下であり、好ましくは、20重量部以上50重量部以下である。共重合体Bの配合量が18重量部未満の場合、フローマーク開始点が短くなり、成形品外観が悪くなる。また、成形品の光沢が高くなる。一方、65重量部を超えると、樹脂流動性が低下し、成形性が悪くなる。また、成形品表面のブツが多くなり外観が悪くなる。

[0022] 本発明で使用するプロピレン・エチレンブロック共重合体A及びBは、例

えば、下記の固体状チタン触媒成分（Ⅰ）と有機金属化合物触媒成分（Ⅱ）とを含むオレフィン重合用触媒にて、プロピレンを重合し、さらにプロピレンとエチレンを共重合させることにより製造できる。以下、触媒成分及び重合方法について記載する。

[0023] [固体状チタン触媒成分（Ⅰ）]

固体状チタン触媒成分（Ⅰ）は、チタン、マグネシウム、ハロゲン及び必要に応じて電子供与体を含むことを特徴としている。この固体状チタン触媒成分（Ⅰ）は公知の固体状チタン触媒成分を制限無く用いることができる。固体状チタン触媒成分（Ⅰ）の製造方法の例を以下に示す。

[0024] 本発明の固体状チタン触媒成分（Ⅰ）の調製には、マグネシウム化合物及びチタン化合物が用いられる例が多い。

マグネシウム化合物としては、具体的には、塩化マグネシウム、臭化マグネシウム等のハロゲン化マグネシウム；メトキシ塩化マグネシウム、エトキシ塩化マグネシウム、フェノキシ塩化マグネシウム等のアルコキシマグネシウムハライド；エトキシマグネシウム、イソプロポキシマグネシウム、ブトキシマグネシウム、2-エチルヘキソキシマグネシウム等のアルコキシマグネシウム；フェノキシマグネシウム等のアリーロキシマグネシウム；ステアリン酸マグネシウム等のマグネシウムのカルボン酸塩等の公知のマグネシウム化合物を挙げることができる。

[0025] これらのマグネシウム化合物は単独で用いても、2種以上を組み合わせ用いてもよい。またこれらのマグネシウム化合物は、他の金属との錯化合物、複化合物あるいは他の金属化合物との混合物であってもよい。

[0026] これらの中ではハロゲンを含有するマグネシウム化合物が好ましく、ハロゲン化マグネシウム、特に塩化マグネシウムが好ましく用いられる。他に、エトキシマグネシウムのようなアルコキシマグネシウムも好ましく用いられる。また、該マグネシウム化合物は、他の物質から誘導されたもの、たとえばグリニャール試薬のような有機マグネシウム化合物とハロゲン化チタンやハロゲン化珪素、ハロゲン化アルコール等とを接触させて得られるものであ

ってもよい。

[0027] チタン化合物としては、例えば、下記式で示される4価のチタン化合物を挙げることができる。



(式中、Rは炭化水素基であり、Xはハロゲン原子であり、gは $0 \leq g \leq 4$ である。)

[0028] より具体的には、 TiCl_4 、 TiBr_4 等のテトラハロゲン化チタン； $\text{Ti}(\text{OCH}_3)\text{Cl}_3$ 、 $\text{Ti}(\text{OC}_2\text{H}_5)\text{Cl}_3$ 、 $\text{Ti}(\text{O}-n-\text{C}_4\text{H}_9)\text{Cl}_3$ 、 $\text{Ti}(\text{OC}_2\text{H}_5)\text{Br}_3$ 、 $\text{Ti}(\text{O}-i\text{soC}_4\text{H}_9)\text{Br}_3$ 等のトリハロゲン化アルコキシチタン； $\text{Ti}(\text{OCH}_3)_2\text{Cl}_2$ 、 $\text{Ti}(\text{OC}_2\text{H}_5)_2\text{Cl}_2$ 等のジハロゲン化アルコキシチタン； $\text{Ti}(\text{OCH}_3)_3\text{Cl}$ 、 $\text{Ti}(\text{O}-n-\text{C}_4\text{H}_9)_3\text{Cl}$ 、 $\text{Ti}(\text{OC}_2\text{H}_5)_3\text{Br}$ 等のモノハロゲン化アルコキシチタン； $\text{Ti}(\text{OCH}_3)_4$ 、 $\text{Ti}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$ 、 $\text{Ti}(\text{OC}_4\text{H}_9)_4$ 、 $\text{Ti}(\text{O}-2\text{-エチルヘキシル})_4$ 等のテトラアルコキシチタン等を挙げることができる。

[0029] これらの中で好ましいものは、テトラハロゲン化チタンであり、特に四塩化チタンが好ましい。これらのチタン化合物は単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0030] 上記のマグネシウム化合物及びチタン化合物としては、例えば、特開昭57-63310号公報、特開平5-170843号公報等に詳細に記載されている化合物も挙げることができる。

[0031] 本発明で用いられる固体状チタン触媒成分(1)の調製の好ましい具体例としては、下記(P-1)～(P-4)の方法を挙げることができる。

[0032] (P-1) マグネシウム化合物及びアルコール等の電子供与体成分(a)からなる固体状付加物と、後述する電子供与体成分(b)と、液状状態のチタン化合物とを、不活性炭化水素溶媒共存下、懸濁状態で接触させる方法。

(P-2) マグネシウム化合物及び電子供与体成分(a)からなる固体

状付加物と、電子供与体成分（b）と、液状状態のチタン化合物とを、複数回に分けて接触させる方法。

（P-3） マグネシウム化合物及び電子供与体成分（a）からなる固体状付加物と、電子供与体成分（b）と、液状状態のチタン化合物とを、不活性炭化水素溶媒共存下、懸濁状態で接触させ、且つ複数回に分けて接触させる方法。

（P-4） マグネシウム化合物及び電子供与体成分（a）からなる液状状態のマグネシウム化合物と、液状状態のチタン化合物と、電子供与体成分（b）とを接触させる方法。

[0033] 好ましい反応温度は、 -30°C ～ 150°C 、より好ましくは -25°C ～ 130°C 、更に好ましくは -25 ～ 120°C の範囲である。

また、上記の固体状チタン触媒成分の製造には、必要に応じて公知の媒体の存在下に行うこともできる。上記の媒体としては、やや極性を有するトルエン等の芳香族炭化水素やヘプタン、オクタン、デカン、シクロヘキサン等の公知の脂肪族炭化水素、脂環族炭化水素化合物が挙げられるが、これらの中では脂肪族炭化水素が好ましい例として挙げられる。

[0034] 上記の固体状付加物や液状状態のマグネシウム化合物の形成に用いられる電子供与体成分（a）としては、室温～ 300°C 程度の温度範囲で上記のマグネシウム化合物を可溶化できる公知の化合物が好ましく、たとえばアルコール、アルデヒド、アミン、カルボン酸及びこれらの混合物等が好ましい。これらの化合物としては、たとえば特開昭57-63310号公報、特開平5-170843号公報に詳細に記載されている化合物を挙げることができる。

[0035] 上記のマグネシウム化合物可溶化能を有するアルコールとして、より具体的には、メタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール、イソブタノール、エチレングリコール、2-メチルペンタノール、2-エチルブタノール、n-ヘプタノール、n-オクタノール、2-エチルヘキサノール、デカノール、ドデカノール等の脂肪族アルコール；シクロヘキサノール、メチル

シクロヘキサノール等の脂環族アルコール；ベンジルアルコール、メチルベンジルアルコール等の芳香族アルコール；*n*-ブチルセルソルブ等のアルコキシ基を有する脂肪族アルコール等を挙げることができる。

[0036] カルボン酸としては、カプリル酸、2-エチルヘキサノイック酸等の炭素数7以上の有機カルボン酸類を挙げることができる。アルデヒドとしては、カプリックアルデヒド、2-エチルヘキシルアルデヒド等の炭素数7以上のアルデヒド類を挙げることができる。

[0037] アミンとしては、ヘプチルアミン、オクチルアミン、ノニルアミン、ラウリルアミン、2-エチルヘキシルアミン等の炭素数6以上のアミン類を挙げることができる。

[0038] 上記の電子供与体成分（a）としては、上記のアルコール類が好ましく、特にエタノール、プロパノール、ブタノール、イソブタノール、ヘキサノール、2-エチルヘキサノール、デカノール等が好ましい。

[0039] 得られる固体状付加物や液状状態のマグネシウム化合物のマグネシウムと電子供与体成分（a）との組成比は、用いる化合物の種類によって異なるので一概には規定できないが、マグネシウム化合物中のマグネシウム1モルに対して、電子供与体成分（a）は、好ましくは2モル以上、より好ましくは2.3モル以上、更に好ましくは2.7モル以上、5モル以下の範囲である。

[0040] 本発明に用いられる固体状チタン触媒成分（1）に必要な応じて用いられる電子供与体の特に好ましい例としては、芳香族カルボン酸エステル及び／又は複数の炭素原子を介して2個以上のエーテル結合を有する化合物（以下「電子供与体成分（b）」ともいう。）が挙げられる。

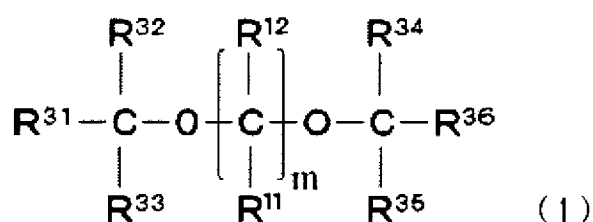
[0041] この電子供与体成分（b）としては、従来オレフィン重合用触媒に好ましく用いられている公知の芳香族カルボン酸エステルやポリエーテル化合物、たとえば特開平5-170843号公報や特開2001-354714号公報等に記載された化合物を制限無く用いることができる。

[0042] この芳香族カルボン酸エステルとしては、具体的には安息香酸エステルや

トルイル酸エステル等の芳香族カルボン酸モノエステルの他、フタル酸エステル類等の芳香族多価カルボン酸エステルが挙げられる。これらの中でも芳香族多価カルボン酸エステルが好ましく、フタル酸エステル類がより好ましい。このフタル酸エステル類としては、フタル酸エチル、フタル酸 *n*-ブチル、フタル酸イソブチル、フタル酸ヘキシル、フタル酸ヘプチル等のフタル酸アルキルエステルが好ましく、フタル酸ジイソブチルが特に好ましい。

[0043] また、ポリエーテル化合物としては、より具体的には以下の式 (1) で表わされる化合物が挙げられる。

[0044] [化1]



[0045] 上記式 (1) において、 m は $1 \leq m \leq 10$ の整数、より好ましくは $3 \leq m \leq 10$ の整数であり、 $\text{R}^{11} \sim \text{R}^{36}$ は、それぞれ独立に、水素原子、あるいは炭素、水素、酸素、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素、窒素、硫黄、リン、ホウ素及びケイ素から選択される少なくとも 1 種の元素を有する置換基である。

[0046] m が 2 以上である場合、複数個存在する R^{11} 及び R^{12} は、それぞれ同じであっても異なってもよい。任意の $\text{R}^{11} \sim \text{R}^{36}$ 、好ましくは R^{11} 及び R^{12} は共同してベンゼン環以外の環を形成していてもよい。

[0047] この様な化合物の一部の具体例としては、2-イソプロピル-1, 3-ジメトキシプロパン、2-*s*-ブチル-1, 3-ジメトキシプロパン、2-クミル-1, 3-ジメトキシプロパン等の 1 置換ジアルコキシプロパン類；2-イソプロピル-2-イソブチル-1, 3-ジメトキシプロパン、2, 2-ジシクロヘキシル-1, 3-ジメトキシプロパン、2-メチル-2-イソプロピル-1, 3-ジメトキシプロパン、2-メチル-2-シクロヘキシル-1, 3-ジメトキシプロパン、2-メチル-2-イソブチル-1, 3-ジメトキシプロパン、2, 2-ジイソブチル-1, 3-ジメトキシプロパン、2

， 2-ビス（シクロヘキシルメチル）-1， 3-ジメトキシプロパン、 2， 2-ジイソブチル-1， 3-ジエトキシプロパン、 2， 2-ジイソブチル-1， 3-ジブトキシプロパン、 2， 2-ジ-*s*-ブチル-1， 3-ジメトキシプロパン、 2， 2-ジネオペンチル-1， 3-ジメトキシプロパン、 2-イソプロピル-2-イソペンチル-1， 3-ジメトキシプロパン、 2-シクロヘキシル-2-シクロヘキシルメチル-1， 3-ジメトキシプロパン等の2置換ジアルコキシプロパン類； 2， 3-ジシクロヘキシル-1， 4-ジエトキシブタン、 2， 3-ジシクロヘキシル-1， 4-ジエトキシブタン、 2， 3-ジイソプロピル-1， 4-ジエトキシブタン、 2， 4-ジフェニル-1， 5-ジメトキシペンタン、 2， 5-ジフェニル-1， 5-ジメトキシヘキサン、 2， 4-ジイソプロピル-1， 5-ジメトキシペンタン、 2， 4-ジイソブチル-1， 5-ジメトキシペンタン、 2， 4-ジイソアミル-1， 5-ジメトキシペンタン等のジアルコキシアルカン類； 2-メチル-2-メトキシメチル-1， 3-ジメトキシプロパン、 2-シクロヘキシル-2-エトキシメチル-1， 3-ジエトキシプロパン、 2-シクロヘキシル-2-メトキシメチル-1， 3-ジメトキシプロパン等のトリアルコキシアルカン類等を例示することができる。

[0048] これらのうち、 1， 3-ジエーテル類が好ましく、 特に、 2-イソプロピル-2-イソブチル-1， 3-ジメトキシプロパン、 2， 2-ジイソブチル-1， 3-ジメトキシプロパン、 2-イソプロピル-2-イソペンチル-1， 3-ジメトキシプロパン、 2， 2-ジシクロヘキシル-1， 3-ジメトキシプロパン、 2， 2-ビス（シクロヘキシルメチル） 1， 3-ジメトキシプロパンが好ましい。

[0049] これらの化合物は、 1種単独で用いてもよく、 2種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0050] 本発明で用いられる固体状チタン触媒成分（I）において、 ハロゲン／チタン（原子比）（すなわち、 ハロゲン原子のモル数／チタン原子のモル数）は、 2～100、 好ましくは4～90であることが望ましく、 電子供与体成

分（a）や電子供与体成分（b）は、電子供与体成分（a）／チタン原子（モル比）は0～100、好ましくは0～10であることが望ましく、電子供与体成分（b）／チタン原子（モル比）は0～100、好ましくは0～10であることが望ましい。

[0051] マグネシウム／チタン（原子比）（すなわち、マグネシウム原子のモル数／チタン原子のモル数）は、2～100、好ましくは4～50であることが望ましい。

[0052] 固体状チタン触媒成分（I）のより詳細な調製条件として、電子供与体成分（b）を使用する以外は、例えば、EP 5 858 69 A 1（欧州特許出願公開第0 585 869号明細書）や特開平5－1 70843号公報等に記載の条件を好ましく用いることができる。

[0053] 次に、周期表の第1族、第2族及び第13族から選ばれる金属元素を含む有機金属化合物触媒成分（II）について説明する。

[0054] [有機金属化合物触媒成分（II）]

有機金属化合物触媒成分（II）としては、第13族金属を含む化合物、たとえば、有機アルミニウム化合物、第1族金属とアルミニウムとの錯アルキル化物、第2族金属の有機金属化合物等を用いることができる。これらの中でも有機アルミニウム化合物が好ましい。

[0055] 有機金属化合物触媒成分（II）としては具体的には、前記EP 5 858 69 A 1等の公知の文献に記載された有機金属化合物触媒成分を好ましい例として挙げることができる。

[0056] 本発明の目的を損なわない限り、上記電子供与体成分（a）や電子供与体成分（b）の他、公知の電子供与体成分（c）とを組み合わせ用いてもよい。

このような電子供与体成分（c）として好ましくは、有機ケイ素化合物が挙げられる。この有機ケイ素化合物としては、たとえば下記式で表される化合物を例示できる。



(式中、R及びR'は炭化水素基であり、nは $0 < n < 4$ の整数である。)

[0057] 上記式で示される有機ケイ素化合物としては、具体的には、ジイソプロピ

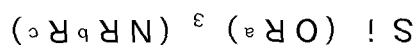
ルジメトキシシラン、トーマチルメチルジメトキシシラン、トーマチルメチルジエトキシシラン、トーマチルメチルトリメトキシシラン、シクロヘキシルトリメトキシシラン、シクロヘキシルトリエトキシシラン、ジメチルシクロペンチルトリメトキシシラン、ジメチルシクロペンチルトリエトキシシラン、ジメチルシクロペンチルジメトキシシラン、ジメチルシクロペンチルジエトキシシラン、トリシクロペンチルメトキシシラン、ジシクロペンチルメチルメトキシシラン、ジシクロペンチルエチルメトキシシラン、シクロペンチル

ジメチルエトキシシラン等が用いられる。

[0058] このうちビニルトリエトキシシラン、ジフェニルジメトキシシラン、ジシクロヘキシルジメトキシシラン、シクロヘキシルメチルジメトキシシラン、ジシクロペンチルジメトキシシランが好ましく用いられる。

[0059] また、国際公開第2004/016662号パンフレットに記載されている下記式で表されるシラン化合物も前記有機ケイ素化合物の好ましい例であ

る。



[0060] 式中、R^aは、炭素数1～6の炭化水素基であり、R^aとしては、炭素数1

～6の不飽和あるいは飽和脂肪族炭化水素基等が挙げられ、特に好ましくは炭素数2～6の炭化水素基が挙げられる。具体例としてはメチル基、エチル基、n-プロピル基、isopropyl基、n-ブチル基、isobutyl基、sec-butyl基、n-ペンチル基、isopentyl基、シクロペンチル基、n-ヘキシル基、シクロヘキシル基等が挙げられ、これらの中でもエチル基が特に好ましい。

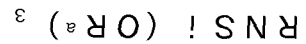
[0061] R^bは、炭素数1～12の炭化水素基又は水素であり、R^bとしては、炭素

数 1 ～ 12 の不飽和あるいは飽和脂肪族炭化水素基又は水素等が挙げられる。具体例としては水素原子、メチル基、エチル基、 n -プロピル基、 iso -ペンチル基、 iso -ブチル基、 sec -ブチル基、 n -ペンチル基、シクロペンチル基、 n -ヘキシル基、オクテシル基、 n -ヘキシル基等が挙げられ、これらの中でもエチル基が特に好ましい。

[0062] R^o は、炭素数 1 ～ 12 の炭化水素基であり、 R^o としては、炭素数 1 ～ 12 の不飽和あるいは飽和脂肪族炭化水素基又は水素等が挙げられる。具体例としてはメチル基、エチル基、 n -プロピル基、 iso -ブチル基、 n -ペンチル基、 sec -ブチル基、 n -ペンチル基、シクロペンチル基、 n -ヘキシル基、オクテシル基等が挙げられ、これらの中でもエチル基が特に好ましい。

[0063] 上記式で表される化合物の具体例としては、ジメチルアミノトリエトキシシラン、ジエチルアミノトリエトキシシラン、ジエチルアミノトリメトキシシラン、ジエチルアミノトリエトキシシラン、ジエチルアミノトリプロポキシシラン、ジ n -プロピルアミノトリエトキシシラン、メチル n -プロピルアミノトリエトキシシラン、 t -ブチルアミノトリエトキシシラン、エチル n -プロピルアミノトリエトキシシラン、エチル iso -ブチルアミノトリエトキシシラン、メチルエチルアミノトリエトキシシランが挙げられる。

[0064] また、有機ケイ素化合物の他の例としては、下記式で表される化合物が挙げられる。



[0065] 式中、 RN は、環状アミノ基であり、この環状アミノ基として、例えば、パーヒドロキノリノ基、パーヒドロイソキノリノ基、1, 2, 3, 4-チトラヒドロイソキノリノ基、オクタメチレンイミノ基等が挙げられる。

上記式で表される化合物として具体的には、(パーヒドロキノリノ)トリ

エトキシシラン、（パーヒドロイソキノリノ）トリエトキシシラン、（１，２，３，４－テトラヒドロキノリノ）トリエトキシシラン、（１，２，３，４－テトラヒドロイソキノリノ）トリエトキシシラン、オクタメチレンイミノトリエトキシシラン等が挙げられる。

[0066] これらの有機ケイ素化合物は、２種以上組み合わせて用いることもできる。

[0067] プロピレン・エチレンブロック共重合体は、上述したオレフィン重合用触媒の存在下にプロピレンを重合し、次いで、プロピレンとエチレンを共重合させるか、又は予備重合させて得られる予備重合触媒の存在下で、プロピレンを重合し、次いで、プロピレンとエチレンを共重合を行うこと等の方法で製造できる。

[0068] 予備重合は、オレフィン重合用触媒１ｇ当り通常０．１～１０００ｇ、好ましくは０．３～５００ｇ、特に好ましくは１～２００ｇの量でオレフィンを予備重合させることにより行われる。

予備重合では、本重合における系内の触媒濃度よりも高い濃度の触媒を用いることができる。

予備重合における固体状チタン触媒成分（１）の濃度は、液状媒体１リットル当り、チタン原子換算で、通常約０．００１～２００ミリモル、好ましくは約０．０１～５０ミリモル、特に好ましくは０．１～２０ミリモルの範囲とすることが望ましい。

[0069] 予備重合における有機金属化合物触媒成分（１１）の量は、固体状チタン触媒成分（１）１ｇ当り通常０．１～１０００ｇ、好ましくは０．３～５００ｇの重合体が生成するような量であればよく、固体状チタン触媒成分（１）中のチタン原子１モル当り、通常約０．１～３００モル、好ましくは約０．５～１００モル、特に好ましくは１～５０モルの量であることが望ましい。

[0070] 予備重合では、必要に応じて前記電子供与体成分等を用いることもでき、この際これらの成分は、前記固体状チタン触媒成分（１）中のチタン原子１

モル当り、通常0.1～50モル、好ましくは0.5～30モル、さらに好ましくは1～10モルの量で用いられる。

[0071] 予備重合は、不活性炭化水素媒体にオレフィン及び上記の触媒成分を加え、温和な条件下に行うことができる。

この場合、用いられる不活性炭化水素媒体として具体的には、プロパン、ブタン、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、デカン、ドデカン、灯油等の脂肪族炭化水素；シクロペンタン、メチルシクロペンタン、シクロヘキサン、シクロヘプタン、メチルシクロヘプタン、シクロオクタン等の脂環族炭化水素；ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素；エチレンクロリド、クロルベンゼン等のハロゲン化炭化水素；あるいはこれらの混合物等を挙げることができる。

これらの不活性炭化水素媒体のうち、特に脂肪族炭化水素を用いることが好ましい。このように、不活性炭化水素媒体を用いる場合、予備重合はバッチ式で行うことが好ましい。

[0072] 一方、オレフィン自体を溶媒として予備重合を行うこともでき、また、実質的に溶媒のない状態で予備重合することもできる。この場合には、予備重合を連続的に行うのが好ましい。

[0073] 予備重合で使用されるオレフィンは、後述する本重合で使用されるオレフィンと同一であっても、異なってもよいが、プロピレンであることが好ましい。

予備重合の際の温度は、通常 $-20\sim+100^{\circ}\text{C}$ であり、好ましくは $-20\sim+80^{\circ}\text{C}$ 、さらに好ましくは $0\sim+40^{\circ}\text{C}$ の範囲である。

[0074] 次に、予備重合を経由した後に、あるいは予備重合を経由することなく実施される本重合について説明する。

本重合は、プロピレン重合体成分を製造する工程及びプロピレンーエチレン共重合体ゴム成分を製造する工程に分けられる。

予備重合及び本重合は、バルク重合法、溶解重合、懸濁重合等の液相重合法あるいは気相重合法のいずれにおいても実施できる。プロピレン重合体成

分を製造する工程として好ましいのは、バルク重合や懸濁重合等の液相重合あるいは気相重合法である。また、プロピレンーエチレン共重合体ゴム成分を製造する工程として好ましいのは、バルク重合や懸濁重合等の液相重合あるいは気相重合法であり、より好ましいのは、気相重合法である。

[0075] 本重合がスラリー重合の反応形態を採る場合、反応溶媒としては、上述の予備重合時に用いられる不活性化水素を用いることもできるし、反応温度・圧力において液体であるオレフィンを用いることもできる。

[0076] 本重合において、固体状チタン触媒成分（I）は、重合容積1リットル当たりチタン原子に換算して、通常は約0.0001～0.5ミリモル、好ましくは約0.005～0.1ミリモルの量で用いられる。また、有機金属化合物触媒成分（II）は、重合系中の予備重合触媒成分中のチタン原子1モルに対し、通常約1～2000モル、好ましくは約5～500モルとなるような量で用いられる。前記電子供与体成分は、使用される場合であれば、有機金属化合物触媒成分（II）1モルに対して、0.001～50モル、好ましくは0.01～30モル、特に好ましくは0.05～20モルの量で用いられる。

[0077] 本重合を水素の存在下に行えば、得られる重合体の分子量を調節する（下げる）ことができ、メルトフローレートの高い重合体を得られる。分子量を調整するために必要な水素量は、使用する製造プロセスの種類、重合温度、圧力によって異なるため、適宜調整すればよい。

プロピレン重合体成分を製造する工程では、重合温度、水素量を調整してMFRを調整できる。また、プロピレンーエチレン共重合体ゴム成分を製造する工程においても、重合温度、圧力、水素量を調整して、極限粘度を調整することができる。

[0078] 本重合において、オレフィンの重合温度は、通常、約0～200℃、好ましくは約30～100℃、より好ましくは50～90℃である。圧力（ゲージ圧）は、通常、常圧～100kgf/cm²（9.8MPa）、好ましくは約2～50kgf/cm²（0.20～4.9MPa）に設定される。

プロピレン・エチレンプロック共重合体の製造方法においては、重合を、回分式、半連続式、連続式の何れの方法においても行うことができる。さらに反応器の形状は、管状型、槽型のいずれも使用できる。さらに重合を、反応条件を変えて二段以上に分けて行うこともできる。この場合、管状と槽型を組合せることができる。

[0079] また、プロピレン・エチレン共重合体を得るためにエチレン／（エチレン＋プロピレン）ガス比を制御している。

エチレン／（エチレン＋プロピレン）ガス比は、通常５～８０モル％、好ましくは、１０～７０モル％、より好ましくは１５～６０モル％で制御して用いる。

[0080] 本発明で使用するプロピレン・エチレンプロック共重合体の製造方法につ

いてさらに詳細に説明する。

本発明者らの知見に拠れば、プロピレン・エチレンプロック共重合体を構成する室温ｎ－ヘキサンに不溶な部分（ D_{insol} ）は、主としてプロピレン共重合体成分から構成される。

一方、室温ｎ－ヘキサンに可溶な部分（ D_{sol} ）は、主としてプロピレン－エチレン共重合体成分から構成される。

[0081] 従って、以下の二つの重合工程（重合工程１及び重合工程２）を連続的に実施することによって、上述した各要件を満たすプロピレン・エチレンプロック共重合体を得ることができる（以下、この方法を「直重法」と呼ぶ）。

[重合工程１]

固体状触媒成分の存在下でプロピレンを重合し、プロピレン共重合体成分を製造する工程（プロピレン重合体製造工程）。

[重合工程２]

固体状触媒成分の存在下でプロピレン及びエチレンを共重合してプロピレン－エチレン共重合体成分を製造する工程（共重合体成分製造工程）。

[0082] 本発明で使用するプロピレン・エチレンプロック共重合体は、前述した製

造方法で製造されることが好ましく、重合工程 1 を前段で行い、重合工程 2 を後段で行うことがより好ましい。また、各重合工程（重合工程 1、重合工程 2）は 2 槽以上の重合槽を用いて行うこともできる。ブロック共重合体中のデカン可溶部の含有量は、工程 1 と工程 2 の重合時間（滞留時間）を調整すればよい。

[0083] (C) エチレン・ α -オレフィン共重合体

本発明で使用するエチレン・ α -オレフィン共重合体は、MFR（230℃、2.16 kg 荷重下）が 0.5 g/10 分以上 20 g/10 分以下であり、好ましくは 0.5 g/10 分以上 15 g/10 分以下である。MFR が 0.5 g/10 分未満の場合、混練時に分散せず、成形品表面にブツが発生し、その結果、十分な耐衝撃性を得ることができない。一方、20 g/10 分を超えると十分な耐衝撃性が得られない。

[0084] エチレン・ α -オレフィン共重合体としては、エチレンと炭素数 3 以上 10 以下の α -オレフィンとの共重合体が挙げられる。 α -オレフィンとしては、プロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-オクテン等が好ましい。 α -オレフィンは 1 種で使用してもよく、2 種以上混合して使用してもよい。

エチレン・ α -オレフィン共重合体に占める α -オレフィンの量は、15 重量%以上 65 重量%以下がよい。

エチレン・ α -オレフィン共重合体としては、エチレン-オクテン共重合体、エチレン-ブテン共重合体が好ましい。

[0085] エチレン・ α -オレフィン共重合体の配合量は、上述した成分 (A) 100 重量部に対して 6 重量部以上 45 重量部以下であり、好ましくは、6 重量部以上 40 重量部以下、特に好ましくは、6 重量部以上 35 重量部以下である。配合量が 6 重量部未満である場合、目標の耐衝撃性が得られない。一方、45 重量部を超えると、目標の引張弾性率が得られず、また、光沢性も上昇する。さらに耐傷付き性能も低下する。

[0086] (D) 平均粒径が 1 μ m 以上 14 μ m 以下である無機充填材

本発明で使用する無機充填材としては、特に限定されることなく公知の無機充填材を用いることができる。例えば、タルク、マイカ、炭酸カルシウム、硫酸バリウム、ガラス繊維、石膏、炭酸マグネシウム、酸化マグネシウム、酸化チタン等が挙げられる。その中でも特にタルクが好ましい。

無機充填材の平均粒径は、 $1\ \mu\text{m}$ 以上 $14\ \mu\text{m}$ 以下、好ましくは $3\ \mu\text{m}$ 以上 $7\ \mu\text{m}$ 以下である。平均粒径が $1\ \mu\text{m}$ より小さいと、無機充填材が凝集して分散不良が発生するため、耐衝撃性等の機械物性が低下する。一方、 $14\ \mu\text{m}$ より大きい場合も、耐衝撃性や引張弾性率等の機械物性が低下する。

尚、平均粒径は、レーザー回折法により測定される値である。

[0087] 無機充填材の配合量は、上述した成分（A）100重量部に対して25重量部以上60重量部以下であり、好ましくは25重量部以上50重量部以下である。配合量が25重量部未満の場合、引張弾性率が低下する。一方、60重量部を超えると耐衝撃性が低下する。

[0088] （E）酸変性ポリプロピレン

本発明のポリプロピレン系樹脂組成物には、成分（A）100重量部に対して、酸変性ポリプロピレンを0.1重量部以上6.5重量部以下、好ましくは、0.1重量部以上4.5重量部以下の割合で配合する。酸変性ポリプロピレンの添加量が0.1重量部未満である場合、耐傷付き性の改良効果が発現しない。一方、6.5重量部を超えると耐衝撃性が低下する。

[0089] 酸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。ポリプロピレンの変性方法としては、グラフト変性や共重合化がある。

変性に用いる不飽和カルボン酸としては、例えば、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、フタル酸等が挙げられる。また、その誘導体としては、酸無水物、エステル、アミド、イミド、金属塩等があり、例えば、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及びその誘導体が好ましく、特に無水マレイン酸又は無水フタル酸が好適である。

[0090] 溶融混練過程で酸変性する場合は、ポリプロピレンと不飽和カルボン酸又はその誘導体を、有機過酸化物を用いて押出機中で混練することにより、不飽和カルボン酸又はその誘導体をグラフト共重合し変性化する。

上記有機過酸化物としては、例えば、ベンゾイルパーオキシド、ラウロイルパーオキシド、アゾビスイソブチロニトリル、ジクミルパーオキシド、t-ブチルヒドロパーオキシド、 α , α' -ビス(t-ブチルパーオキシジイソプロピル)ベンゼン、ビス(t-ブチルジオキシイソプロピル)ベンゼン、2,5-ジメチル-2,5-ジ(t-ブチルパーオキシ)ヘキサン、2,5-ジメチル-2,5-ジ(t-ブチルパーオキシ)ヘキシノー3、ジ-t-ブチルパーオキシド、クメンヒドロパーオキシド等を挙げることができる。

[0091] 本発明では、酸変性ポリプロピレンとして不飽和ジカルボン酸又はその誘導体で変性された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。

酸変性ポリプロピレンにおける酸含有量は、0.5重量%~7.0重量%が好ましく、さらに、0.8重量%~5.0重量%が好ましい。

酸含有量は、酸変性ポリプロピレンのIRスペクトルを測定し、変性に用いた酸の特有の吸収から測定することができる。尚、無水マレイン酸であれば、 1780 cm^{-1} 付近、メタクリル酸エステルであれば 1730 cm^{-1} 付近に吸収があり、そのピーク面積から決定できる。

酸変性ポリプロピレンの極限粘度(135℃、テトラリン中)は、0.1~3 dl/g程度のものを使用することができる。

[0092] 酸変性ポリプロピレンとして、例えば、三井化学株式会社製のアドマー、三洋化成工業株式会社製のユーメックス、デュポン社製のMZシリーズ、E

x x o n社製のE x x e l o r、東洋化成株式会社製のポリボンドシリーズ等の市販品（いずれも無水マレイン酸変性ポリプロピレン）を使用することができる。

[0093] (F) 滑剤

滑剤としては、脂肪酸アミドが挙げられる。脂肪酸としては、炭素数15～30程度の飽和、不飽和脂肪酸が挙げられる。

脂肪酸アミドの具体例としては、オレイン酸アミド、ステアリン酸アミド、エルカ酸アミド、ベヘニン酸アミド、パルミチン酸アミド、ミリスチル酸アミド、ラウリン酸アミド、カプリル酸アミド、カプロン酸アミド、n-オレイルパルミトアミド、n-オレイルエルカアミド、及びそれらの2量体等が挙げられる。中でもオレイン酸アミド、ステアリン酸アミド、エルカ酸アミド及びエルカ酸アミドの2量体が好ましい。

これらは単独もしくは混合して使用することができる。

[0094] 滑剤の配合量は、上述した成分(A)100重量部に対して0.15重量部以上5.0重量部以下であり、好ましくは、0.2重量部以上3.0重量部以下である。滑剤の添加量が0.15重量部未満である場合、十分な耐傷付き性改良効果が認められない。一方、5.0重量部を超えると、組成物から滑剤がブリードし、成形時に金型に付着することで金型汚染に繋がる場合がある。

[0095] 本発明のポリプロピレン系樹脂組成物には、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、酸化防止剤、脂肪酸金属塩、分散剤、着色剤、顔料等の他の添加剤を本発明の目的を損なわない範囲で配合することができる。本発明の組成物は、例えば、90%重量以上、95重量%以上、98重量%以上、100重量%が、成分(A)～(F)、及び任意に上記添加物からなってもよい。

[0096] 本発明のポリプロピレン系樹脂組成物では、組成物全体のMFR(230℃、2.16kg荷重下)が10g/10分以上45g/10分以下であることが好ましく、特に、15g/10分以上30g/10分以下であること

が好ましい。

[0097] 本発明のポリプロピレン系樹脂組成物は、上述した成分（A）～（F）及び必要に応じてその他の添加剤を、公知の方法にて混合することで製造することができる。例えば、各成分を各種ミキサーやタンブラー等により混合してもよく、また、混合したものを押出機等により熔融混練してもよい。さらに、成形の操作性を向上するために、本発明の組成物をペレット等に加工してもよい。

[0098] 本発明の組成物は、公知の加工法、例えば、射出成形や押出成形等により、各種成形品に加工できる。本発明の成形品は、フローマーク等が目立ち難く、低光沢性、耐傷付き性に優れている。そのため、塗装や表皮張り合わせといった後工程を設けなくとも製品として使用できる。従って、特に自動車の内装材（インストルメントパネル、ピラー、ドアトリム等）として好適である。

実施例

[0099] 以下、本発明を実施例によってさらに具体的に説明する。

各成分及び本発明のポリプロピレン系樹脂組成物の特性の測定、並びに本発明のポリプロピレン系樹脂組成物及び成形品の評価方法を以下に示す。

[0100] （１）室温デカン可溶部

プロピレン・エチレンブロック共重合体の室温（２５℃）におけるデカン可溶分量は、次のようにして求めた。まず、試料を５ｇ精秤し、１，０００ミリリットルのナス型フラスコに入れ、さらにＢＨＴ（ジブチルヒドロキシトルエン、フェノール系酸化防止剤）１ｇを添加した後、回転子及びｎ－デカン７００ミリリットルを投入した。

次いで、ナス型フラスコに冷却器を取り付け、回転子を作動させながら、１３５℃のオイルバスでフラスコを１２０分間加熱して、試料をｎ－デカンに溶解させた。

次に、１，０００ミリリットルのビーカーにフラスコの内容物を注いだ後、ビーカー内の溶液をスターラーで攪拌しながら、室温（２５℃）になるま

で放冷（８時間以上）した後、析出物を金網でろ取した。ろ液を、さらに、ろ紙でろ過した後、３，０００ミリリットルのビーカーに収容されたメタノール２，０００ミリリットル中に注ぎ、この液を、室温（２５℃）下、スターラーで攪拌しながら、２時間以上放置した。

次に、得られた析出物を金網でろ取した後、５時間以上風乾後、真空乾燥機にて１００℃で２４０～２７０分間乾燥し、２５℃におけるｎ－デカン可溶部を回収した。

２５℃におけるｎ－デカン可溶部の含有量（ x ）は、試料重量を A g、回収したｎ－デカン可溶部の重量を C gとすれば、 x （質量％）＝ $100 \times C / A$ で表される。

[0101] （２）室温デカン可溶部のエチレン量

フーリエ変換赤外線分光法（FT-IR）により測定した。

[0102] （３）室温デカン可溶部の極限粘度 $[\eta]$

１３５℃のデカリンで測定した。

[0103] （４）メルトフローレートの測定：

ISO 1133に準拠し、試験荷重２．１６kg、試験温度２３０℃の条件で測定した。

[0104] （５）無機充填材の平均粒径

レーザー回折法により測定した。

[0105] （６）酸変性基含有量

酸変性ポリプロピレン２gを採取し、５００mlの沸騰p-キシレンに完全に加熱溶解した。冷却後、１２００mlのアセトンに投入し、析出物を濾過、乾燥してポリマー精製物を得た。熱プレスにより厚さ２０μmのフィルムを作製した。この作製したフィルムの赤外吸収スペクトルを測定し、 1780 cm^{-1} でのピーク面積から求めた。

[0106] （７）常温シャルピー衝撃強度（ kJ/m^2 ）

ISO 179に準拠し、ノッチ付、ハンマー容量４J、温度２３℃の条件で測定した。

[0107] (8) 引張弾性率

ISO 527に準拠し、引張速度 1 mm/min 、温度 23°C の条件で測定した。

[0108] (9) フローワーク測定方法

成形温度 210°C 、金型温度 40°C 、射出速度 25 mm/s 、保圧 30 MPa 、保圧時間 10 sec 、 $350 \text{ mm} \times 100 \text{ mm} \times 2 \text{ mm}$ の成形品を作製し、ゲートからフローワークが目視で観察できる距離を測定した。

[0109] (10) 鏡面グロス

成形温度 210°C 、金型温度 40°C で成形した長さ 130 mm 、幅 120 mm 、厚み 3 mm の成形品表面をクロスメーター（日本電色工業（株）製 NDH-300）により光源照射角度 60° で鏡面グロスを測定した。

[0110] (11) 耐傷付き性

成形温度 210°C 、金型温度 40°C で成形した長さ 130 mm 、幅 120 mm 、厚み 2 mm で角板の表面を Grain のシボ加工した成形品を用いて $\text{Ford 5-Finger Test}$ 試験により、目視にて白化が認められない最大荷重 (N) を評価した。

[0111] 実施例、比較例で用いた (A) 成分と (B) 成分の製造方法を以下に示す。
[0112] 製造例 1：成分 (A-1)

(1) 固体状チタン触媒成分の調製

無水塩化マグネシウム 95.2 g 、デカシロキサン 420 ml 及び 2-エチルヘキシルアルコール 390.6 g を、 130°C で 2 時間加熱して均一溶液とした。この溶液中に無水フタル酸 213 g を添加し、 130°C にてさらに 1 時間攪拌混合を行って無水フタル酸を溶解した。

[0113] このようにして得られた均一溶液を 23°C まで冷却した後、この均一溶液の 750 ml を、 -20°C に保持した四塩化チタン 2000 ml 中に 1 時間のわたって滴下した。滴下後、得られた混合液の温度を 4 時間かけて 110°C に昇温し、 110°C に達したところでフタル酸ジイソブチル (DIBP)

52. 2 g を添加し、これより2時間攪拌しながら同温度に保持した。次いで熱時濾過にて固体部を採取し、この固体部を2750 ml の四塩化チタンに再懸濁した後、再び110℃で2時間加熱した。

加熱終了後、再び熱濾過にて固体部を採取し、110℃のデカン及びヘキサンを用いて、洗浄液中にチタン化合物が検出されなくなるまで洗浄した。

[0114] 上記の様に調製された固体状チタン触媒成分はヘキサンスラリーとして保存したが、このうち一部を乾燥して触媒組成を調べた。固体状チタン触媒成分は、チタンを2重量%、塩素を57重量%、マグネシウムを21重量%及びDIBPを20重量%の量で含有していた。

[0115] (2) 前重合触媒の製造

固体触媒成分87.5 g、トリエチルアルミニウム99.8 mL、ジエチルアミノトリエトキシシラン28.4 mL、ヘプタン12.5 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875 g挿入し、100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。得られた前重合触媒を精製ヘプタンに再懸濁して、固体触媒成分濃度で0.7 g/Lとなるよう、ヘプタンにより調整を行った。

[0116] (3) 本重合

内容量58 Lのジャケット付循環式管状重合器にプロピレンを40 kg/時間、水素を123 NL/時間、(2)で製造した触媒スラリーを固体触媒成分として0.30 g/時間、トリエチルアルミニウム2.1 mL/時間、ジエチルアミノトリエトキシシラン0.88 mL/時間を連続的に供給し、気相の存在しない満液の状態にて重合した。管状重合器の温度は70℃であり、圧力は3.3 MPa/Gであった。

得られたスラリーは内容量100 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3.3 mol%になるように供給した。重合温度70℃、圧力3.1 MPa/Gで重合を行った。

[0117] 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 の気相重合器にポリプロピレンホモポリマーパウダーを送り、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）＝0.24（モル比）、水素／エチレン＝0.10（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 1.2 MPa／G で重合を行った。得られたプロピレン系ブロック共重合体は、80℃で真空乾燥を行った。得られたプロピレン系ブロック共重合体（A-1）の組成と特性を表 1 に示す。

[0118] 製造例 2：成分（A-2）

本重合（3）を以下の様に変えた以外は、製造例 1 と同様の方法で行った。

（3）本重合

内容量 58 L のジャケット付循環式管状重合器にプロピレンを 45 kg／時間、水素を 189 NL／時間、（2）で製造した触媒スラリーを固体触媒成分として 0.41 g／時間、トリエチルアルミニウム 2.7 ml／時間、ジエチルアミノトリエトキシシラン 1.1 ml／時間を連続的に供給し、気相の存在しない満液の状態にて重合した。管状重合器の温度は 70℃であり、圧力は 3.4 MPa／G であった。

得られたスラリーは内容量 100 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 6.0 mol％になるように供給した。重合温度 70℃、圧力 3.3 MPa／G で重合を行った。

[0119] 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 の気相重合器にポリプロピレンホモポリマーパウダーを送り、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）＝0.21（モル比）、水素／エチレン＝0.13（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 1.2 MPa/G で重合を行った。得られたプロピレン系ブロック共重合体は、80℃で真空乾燥を行った。得られたプロピレン系ブロック共重合体 (A-2) の組成と特性を表 1 に示す。

[0120] 製造例 3 : 成分 (A-3)

(1) 固体状チタン触媒成分の調製

(i) 固体成分の調製

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精製灯油 700 ml、市販塩化マグネシウム 10 g、エタノール 24.2 g 及び商品名エマゾール 320 (花王アトラス (株) 製ソルビタンジステアレート) 3 g をいれ、系を攪拌下に昇温し、120℃にて 800 rpm で 30 分攪拌した。高速攪拌下、内径 5 mm 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 リットルを入れた 2 リットルのガラスフラスコ (攪拌機付) に移液した。精製固体を濾過により精製 n-ヘキサンで充分洗浄することにより、塩化マグネシウムに対してエタノールが配位した固体状付加物を得た。

[0121] デカン 50 ml で懸濁状にした上記固体状付加物をマグネシウム原子に換算して 75 ミリモルを -20℃に保持した四塩化チタン 200 ml 中に攪拌下、全量導入した。この混合液を 5.5 時間かけて 110℃に昇温し、110℃に達したところでジイソブチルフタレート 3.0 ml (11.25 ミリモル)、2-イソブチル-2-イソプロピル-1,3-ジメトキシプロパン 0.026 ml (0.11 ミリモル) を添加した。引き続き 1.5 時間、110℃で攪拌した。

1.5 時間の反応終了後、熱濾過にて固体部を採取し、100℃のデカン及び室温のヘキサンによって、濾液中にチタンが検出されなくなるまで洗浄した。

[0122] (ii) 固体状チタン触媒成分の調製

充分に窒素置換された 200 ml のガラス製反応器に 2,4-ジクロロト

ルエン 150 ml、四塩化チタニウム 4.5 ml (40.9 mmol) 及びジイソブチルフラタレート 0.55 ml (2.06 mmol) を入れ、次いで上記で得られた固体成分 4.56 g を挿入した。その後、反応器内の温度を 130°C に昇温し、その温度で 1 時間撹拌した。1 時間の接触処理の後、熱濾過により固体部を採取し、この固体部を 150 ml の 2, 4-ジクロロトルエンに再懸濁させ、更に四塩化チタニウム 4.5 ml (40.9 mmol) 及びジイソブチルフラタレート 0.55 ml を添加した。その後、昇温し 130°C に達したところで、1 時間撹拌しながら保持した。

[0123] 反応終了後、再び熱濾過にて固液分離を行い、得られた固体部を 100°C のデカン及び室温のヘキサンによって触媒中の 2, 4-ジクロロトルエンが 1 重量% 以下となるまで洗浄した。その結果、チタニウム 1.3 重量%、マグネシウムを 2.1 重量%、ジイソブチルフラタレートを 1.4、4 重量% 含有する固体状チタン触媒成分を得た。

[0124] (2) 前重合触媒の製造

固体触媒成分 5.6 g、トリエチルアルミニウム 6.2 ml、ヘプタン 80 ml を内容量 200 L の撹拌機付きオートクレーブに挿入し、内温 5 ~ 15°C に保ちプロピレンを 560 g 挿入し、70 分間撹拌しながら反応させた。重合終了後、上澄み液の除去及びヘプタンによる洗浄は実施しなかった。

[0125] (3) 本重合

内容量 58 L のジャケット付循環式管状重合器にプロピレンを 30 kg / 時間、水を 107 NL / 時間、(2) で製造した触媒スラリーを固体触媒成分として 0.22 g / 時間、トリエチルアルミニウム 3.4 ml / 時間、シクロヘキシルメチルジメトキシシラン 1.0 ml / 時間を連続的に供給し、気相の存在しない満液の状態にて重合した。管状重合器の温度は 70°C であり、圧力は 3.5 MPa / G であった。

[0126] 得られたスラリーは内容量 100 L の撹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、水を気相部の水素濃度が 3.5 mol % になるように供給した。重合温度 70°C、圧

力3. 3 MP a / Gで重合を行った。

[0127] 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4 8 0 Lの気相重合器にポリプロピレンホモポリマーパウダーを送り、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. 2 8（モル比）、水素／エチレン＝0. 1 8（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7 0℃、圧力1. 2 MP a / Gで重合を行った。得られたプロピレン系ブロック共重合体は、8 0℃で真空乾燥を行った。得られたプロピレン系ブロック共重合体（A－3）の組成と特性を表1に示す。

[0128] 製造例4：成分（A－4）

（1）固体状チタン触媒成分の調製

直径1 2 m mの鋼球9 k gの入った内容積4 Lの粉碎用ポットを4個装備した振動ミルを用意した。各ポットに窒素雰囲気中で塩化マグネシウム3 0 0 g、フタル酸ジイソブチル1 1 5 m L、四塩化チタン6 0 m Lを加え4 0時間粉碎した。

上記共粉碎物7 5 gを5 Lのフラスコに入れトルエン1. 5 Lを加え1 1 4℃で3 0分間攪拌処理し、次いで静置して上澄液を除去した。次いでn－ヘプタン1. 5 Lにより2 0℃で3回、固形分を洗浄しさらに1. 5 Lのn－ヘプタンに分散して遷移金属触媒成分スラリーとした。得られた遷移金属触媒成分はチタンを2重量%含有しフタル酸ジイソブチルを1 8重量%含有していた。

[0129] （2）前重合触媒の製造

遷移金属触媒成分1 1 5 g、トリエチルアルミニウム6 5. 6 m L、2－イソブチル－2－イソプロピル－1, 3－ジメトキシプロパン2 2. 1 m L、ヘプタン1 1 5 Lを内容量2 0 0 Lの攪拌機付きオートクレーブに挿入し、内温5℃に保ちプロピレンを1 1 5 0 g挿入し、6 0分間攪拌しながら反応させた。重合終了後、四塩化チタン1 5. 8 m Lを装入し、前重合触媒と

した。

[0130] (3) 本重合

内容量 1000 L の攪拌機付きベッセル重合器に、プロピレンを 159 kg / 時間、触媒スラリーを遷移金属触媒成分として 1.4 g / 時間、トリエチルアルミニウム 21.9 mL / 時間、ジシクロペンチルジメトキシシラン 2.8 mL / 時間を連続的に供給し、水素を気相部の水素濃度が 13.4 mol % になるように供給した。重合温度 68℃、圧力 3.6 MPa / G で重合を行った。

[0131] 得られたスラリーは内容量 500 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 37 kg / 時間、水素を気相部の水素濃度が 11.5 mol % になるように供給した。重合温度 68℃、圧力 3.4 MPa / G で重合を行った。

得られたスラリーは内容量 500 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 19 kg / 時間、水素を気相部の水素濃度が 8.0 mol % になるように供給した。重合温度 68℃、圧力 3.4 MPa / G で重合を行った。

[0132] 得られたスラリーは内容量 500 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 0.27 mol %、重合温度 65℃、圧力 3.2 MPa / G となるようにエチレンを装入した。ジエチレングリコールエチルアセテートを遷移金属触媒成分中の Ti 成分あたり 26 モル倍の割合で添加した。

[0133] 得られたスラリーは失活、気化後、気固分離を行った。得られたプロピレン系ブロック共重合体は、80℃で真空乾燥を行った。得られたプロピレン系ブロック共重合体 (A-4) の組成と特性を表 1 に示す。

[0134] 製造例 5 : 成分 (A-5)

本重合 (3) を以下の様に変えた以外は、製造例 1 と同様の方法で行った。

(3) 本重合

内容量 1000 L の攪拌機付きベッセル重合器に、プロピレンを 131 kg / 時間、触媒スラリーを遷移金属触媒成分として 0.67 g / 時間、トリエチルアルミニウム 19.7 mL / 時間、ジエチルアルミニトリエトキシシラ ン 4 mL / 時間を連続的に供給し、水素を気相部の水素濃度が 5.9 m o l % になるように供給した。重合温度 75℃、圧力 3.5 MP a / G で重合を行った。

[0135] 得られたスラリーは内容量 500 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 30 kg / 時間、水素を気相部の水素濃度が 4.6 m o l % になるように供給した。重合温度 74.5℃、圧力 3.5 MP a / G で重合を行った。

得られたスラリーは内容量 500 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 20 kg / 時間、水素を気相部の水素濃度が 4.0 m o l % になるように供給した。重合温度 73℃、圧力 3.4 MP a / G で重合を行った。

[0136] 得られたスラリーは内容量 500 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 0.17 m o l %、重合温度 67℃、圧力 3.3 MP a / G となるようにエチレンを装入した。ジエチレングリコールエチルアセテートを遷移金属触媒成分中の T1 成分あたり 46 モル倍の割合で添加した。得られたスラリーは失活、気化後、気固分離を行った。得られたプロピレン系プロック共重合体は、80℃で真空乾燥を行った。得られたプロピレン系プロック共重合体 (A-5) の組成と特性を表 1 に示す。

[0137] 製造例 6 : 成分 (B)

本重合 (3) を以下の様に変えた以外は、製造例 1 と同様の方法で行った。

(3) 本重合

内容量 58 L のジャケット付循環式管状重合器にプロピレンを 40 kg / 時間、水素を 156 NL / 時間、(2) で製造した触媒スラリーを固体触媒成

分として0.33 g/時間、トリエチルアルミニウム2.2 ml/時間、ジエチルアミノトリエトキシシラン0.9 ml/時間を連続的に供給し、気相の存在しない満液の状態にて重合した。管状重合器の温度は70℃であり、圧力は3.5 MPa/Gであった。

[0138] 得られたスラリーは内容量100 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4.3 mol%になるように供給した。重合温度69℃、圧力3.3 MPa/Gで重合を行った。

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の気相重合器にポリプロピレンホモポリマーパウダーを送り、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)=0.21 (モル比)、水素/エチレン=0.0063 (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1.5 MPa/Gで重合を行った。

得られたプロピレン系ブロック共重合体は、80℃で真空乾燥を行った。得られたプロピレン系ブロック共重合体(B)の組成と特性を表1に示す。

[0139] [表1]

共重合体	室温デカン可溶部 (重量%)	室温デカン可溶部 エチレン量 (モル%)	室温デカン可溶部 極限粘度 η (dl/g)	MFR (g/10分)
A-1	24	40	2.5	30
A-2	24	40	2.5	50
A-3	18.5	40	2.2	30
A-4	12	38	6.0	55
A-5	11	40	7.5	80
B	23	41	7.2	13

[0140] 実施例1～13、比較例1～8

表2, 3に示すように、各成分を配合し、タンブラーでドライブレンドした。得られた混合物を、二軸押出機(商品名:TEX、日本製鋼製)で混練して、ポリプロピレン系樹脂組成物ペレットを製造した。混練条件は、混練

温度 180℃、スクリー回転速度 1100 rpm, 吐出量 100 kg/h
とした。

得られたペレットを、射出成型にて上述した評価項目用試料に成形加工し、評価した。結果を表 2, 3 に示す。

[0141]

[表2]

	配合物 (重量部)	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 10	実施例 11	実施例 12	実施例 13
成分(A)	A-1	100	100	63	17	100	63	100						
	A-2			37	83		37					100		
	A-3								100	100	100			
	A-4												100	
	A-5													100
成分(B)		25	25	25	56	25	25	25	25	26	29	21	30	45
成分(C)	C-1						8							
	C-2				10							8		
	C-3	8	8	8		8			8	14	23			
	C-4							8						
	C-5												30	
	C-6													35
成分(D)	タルク 1	33	33	33	42	33	33	33	33	35	39	33	41	46
成分(E)	E-1	0.5	0.2	0.2	0.2		0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.5	0.2	0.2
	E-2					0.5								
成分(F)	エルカ酸アミド	0.5	0.5	0.5	0.6	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.6	0.5	0.5	0.5
組成物の MFR	g/10 分	19	22	24	23	20	25	25	20	18	16	41	16	14
シャルピー衝撃 強度	KJ/m ² (23°C)	13.7	16.2	13.4	13.6	13.2	14.7	16.2	12.7	15.4	18.1	10.3	33.9	22.1
引張弾性率	MPa	2041	2032	2064	2072	2035	2073	2082	2131	2013	1892	2062	2025	1962
フローマーク	mm	127	130	134	178	129	136	134	132	128	122	145	182	214
グロス(鏡面)	%	28	28	26	29	28	28	31	29	30	33	33	27	17
耐傷付き性	N (白化開始荷重)	13N	11N	11N	11N	13N	11N	11N	11N	11N	11N	13N	13N	13N

[0142] [表3]

	配合物(重量部)	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
成分(A)	A-1	68	92	27	83	63	63	63	63
	A-2	32	8	73	17	37	37	37	37
	A-3								
成分(B)		24	15	34	23	25	25	25	25
成分(C)	C-1								
	C-2	5	8	48	8	8			
	C-3						8	8	8
	C-4								
成分(D)	タルク 1	32	31	45	21		33	33	33
	タルク 2					33			
成分(E)	E-1	0.5	0.5	0.7	0.45	0.5	0.08	7.8	0.5
	E-2								
成分(F)	エルカ酸アミド	0.5	0.5	0.7	0.45	0.5	0.5	0.5	0.13
組成物の MFR	g/10 分	23	24	16	25	24	25	19	26
シャルピー衝撃強度	KJ/m ² (23°C)	8.8	14.3	37.6	17.9	9.6	14.2	9.4	13.9
引張弾性率	MPa	2138	2048	1615	1634	1913	2064	1982	2053
フローマーク	mm	130	118	124	146	136	138	122	142
グロス(鏡面)	%	32	37	51	34	30	27	26	28
耐傷付き性	N (白化開始荷重)	13N	13N	10N	15N	13N	8N	13N	7N

[0143] ・成分(A)：プロピレン・エチレンブロック共重合体A

(A-1) (株) プライムポリマー製 商品名: プライムポリプロ

(A-2) (株) プライムポリマー製 商品名: プライムポリプロ

(A-3) CCC CHEMICAL COMMERCE CO., LTD 社製 商品名: TPP

(A-4) (株) プライムポリマー製 商品名: プライムポリプロ

(A-5) (株) プライムポリマー製 商品名: プライムポリプロ

[0144] ・成分 (B) : プロピレン・エチレンブロック共重合体 B

(株) プライムポリマー製 商品名: プライムポリプロ

[0145] ・成分 (C) : エチレン- α -オレフィン共重合体

(C-1) エチレン-オクテンランダム共重合体 (ダウエラストマー日本社製 製品名: EG8100)

MFR = 2.0 g / 10 分、 α -オレフィン (オクテン) 量: 37.4 重量%

(C-2) エチレン-オクテンランダム共重合体 (ダウエラストマー日本社製 製品名: EG8200)

MFR = 9 g / 10 分、 α -オレフィン (オクテン) 量: 37.4 重量%

(C-3) エチレン-ブテンランダム共重合体 (三井化学社製 製品名: A0550S)

MFR = 1.8 g / 10 分、 α -オレフィン (ブテン) 量: 29.1 重量%

(C-4) エチレン-ブテンランダム共重合体 (三井化学社製 製品名: A4050S)

MFR = 8 g / 10 分、 α -オレフィン (ブテン) 量: 29.1 重量%

(C-5) エチレン-ブテンランダム共重合体 (三井化学社製 製品名: A1050S)

MFR = 2.4 g / 10 分、 α -オレフィン (ブテン) 量: 29.1 重量%

(C-6) エチレン-ブテンランダム共重合体 (三井化学社製 製品名: A0250S)

MFR = 1.0 g / 10 分、 α -オレフィン (ブテン) 量: 29.1 重量%

[0146] ・成分（D）：無機充填材

タルク 1（浅田製粉社製 製品名：JM209 平均粒径（レーザー回折）：5 μm ）

タルク 2（日本タルク製 製品名：UG 剤 平均粒径（レーザー回折）：15 μm ）

[0147] ・成分（E）：酸変性ポリプロピレン

（E-1）無水マレイン酸変性ポリプロピレン（三井化学社製 製品名：アドマー QX-100）

$[\eta] = 0.43 \text{ dl/g}$ （135℃、テトラリンで測定）、マレイン酸変性基含有量＝3.0 重量％

（E-2）無水マレイン酸変性ポリプロピレン（三洋化成社製 製品名：ユーメックス 1010）

$[\eta] = 0.28 \text{ dl/g}$ （135℃、テトラリンで測定）、マレイン酸変性基含有量＝4.5 重量％

[0148] ・成分（F）：滑剤

エルカ酸アミド（日本精化製 製品名：ニュートロン S）

[0149] ・その他添加剤

酸化防止剤として Irganox 1010（BASF（株））0.1 重量部，Irgafos 168（BASF（株））0.1 重量部，耐光安定剤として LA-52（（株）ADEKA 製）0.2 重量部，分散剤としてステアリン酸カルシウム（（株）日本油脂）0.1 重量部，及び黒色顔料として MB PPCM 802Y-307（（株）東京インキ製）6 重量部を配合した。

[0150] 表 2，3 から、実施例で得られる組成物とその成形品は、シャルピー衝撃強度、引張弾性率、フローマーク、グロス、耐傷付き性のバランスに優れることが分かる。

産業上の利用可能性

[0151] 本発明の樹脂組成物を成形してなる成形品は、自動車の内装材（インパネ

、ピラー、ドアトリム等）等に使用できる。本成形品は、フローマーク等が目立ち難く、低光沢性、耐傷付き性に優れている。そのため、塗装や表皮張り合わせといった後工程を設けなくとも製品として使用できる。

[0152] 上記に本発明の実施形態及び／又は実施例を幾つか詳細に説明したが、当業者は、本発明の新規な教示及び効果から実質的に離れることなく、これら例示である実施形態及び／又は実施例に多くの変更を加えることが容易である。従って、これらの多くの変更は本発明の範囲に含まれる。

この明細書に記載の文献の内容を全てここに援用する。

請求の範囲

[請求項1] 下記 (A) 成分を 100 重量部、(B) 成分を 18 重量部以上 65 重量部以下、(C) 成分を 6 重量部以上 45 重量部以下、(D) 成分を 25 重量部以上 60 重量部以下、(E) 成分を 0.1 重量部以上 6.5 重量部以下、及び (F) 成分を 0.15 重量部以上 5.0 重量部以下含有する、ポリプロピレン系樹脂組成物。

(A) 下記 (a1) ~ (d1) を満たすプロピレン・エチレンブロック共重合体 A :

(a1) 室温デカン可溶部が 8 重量%以上 35 重量%以下

(b1) 室温デカン可溶部の極限粘度 $[\eta]$ が 1.0 dl/g 以上 10.0 dl/g 以下

(c1) 室温デカン可溶部のエチレン量が 33 モル%以上 48 モル%以下

(d1) メルトフローレート (MFR : 230℃、2.16 kg 荷重下) が 20 g/10 分以上 100 g/10 分以下

(B) 下記 (a2) ~ (d2) を満たすプロピレン・エチレンブロック共重合体 B :

(a2) 室温デカン可溶部 : 16 重量%以上 35 重量%以下

(b2) 室温デカン可溶部の極限粘度 $[\eta]$ が 5.0 dl/g 以上 10.0 dl/g 以下

(c2) 室温デカン可溶部のエチレン量が 36 モル%以上 49 モル%以下

(d2) MFR (230℃、2.16 kg 荷重下) が 1 g/10 分以上 20 g/10 分未満

(C) MFR (230℃、2.16 kg 荷重下) が 0.5 g/10 分以上 20 g/10 分以下であるエチレン・ α -オレフィン共重合体

(D) 平均粒径が 1 μ m 以上 14 μ m 以下である無機充填材

(E) 酸変性ポリプロピレン

(F) 滑剤

- [請求項2] 前記(A)成分の室温デカン可溶部が8重量%以上28重量%以下である請求項1に記載のポリプロピレン系樹脂組成物。
- [請求項3] 前記(A)成分の室温デカン可溶部の極限粘度 $[\eta]$ が2.0dl/g以上8.5dl/g以下である請求項1又は2に記載のポリプロピレン系樹脂組成物。
- [請求項4] 前記(B)成分が20重量部以上50重量部以下である請求項1～3のいずれかに記載のポリプロピレン系樹脂組成物。
- [請求項5] 前記(B)成分の室温デカン可溶部の極限粘度 $[\eta]$ が6.5dl/g以上8.5dl/g以下である請求項1～4のいずれかに記載のポリプロピレン系樹脂組成物。
- [請求項6] 前記(A)成分のMFR(230℃、2.16kg荷重下)が25g/10分以上95g/10分以下である請求項1～5のいずれかに記載のポリプロピレン系樹脂組成物。
- [請求項7] 前記(B)成分のMFR(230℃、2.16kg荷重下)が10g/10分以上18g/10分以下である請求項1～6のいずれかに記載のポリプロピレン系樹脂組成物。
- [請求項8] MFR(230℃、2.16kg荷重下)が10g/10分以上45g/10分以下である請求項1～7のいずれかに記載のポリプロピレン系樹脂組成物。
- [請求項9] 前記無機充填材(D)がタルクである請求項1～8のいずれかに記載のポリプロピレン系樹脂組成物。
- [請求項10] 前記滑剤(F)が脂肪酸アミドである請求項1～9のいずれかに記載のポリプロピレン系樹脂組成物。
- [請求項11] 請求項1～10のいずれかに記載のポリプロピレン系樹脂組成物を成形してなる成形品。
- [請求項12] 自動車のインストルメントパネル用である請求項11に記載の成形品。