

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2006-193719

(P2006-193719A)

(43) 公開日 平成18年7月27日(2006.7.27)

(51) Int.C1.	F 1	テーマコード (参考)
C08F 10/00 (2006.01)	C08F 10/00	4 J 002
C08L 23/00 (2006.01)	C08L 23/00	4 J 004
C08L 101/00 (2006.01)	C08L 101/00	4 J 040
C09J 123/00 (2006.01)	C09J 123/00	4 J 100
C09J 123/10 (2006.01)	C09J 123/10	
審査請求 未請求 請求項の数 108 O L 外国語出願 (全 214 頁) 最終頁に続く		
(21) 出願番号 特願2005-313984 (P2005-313984)	(71) 出願人 599134676 エクソンモービル・ケミカル・パテンツ・ インク アメリカ合衆国、テキサス州 77520 -5200、ベイタウン、ベイウェイ・ド ライブ 5200	
(22) 出願日 平成17年10月28日 (2005.10.28)	(74) 代理人 100071010 弁理士 山崎 行造	
(31) 優先権主張番号 60/622,964	(74) 代理人 100121762 弁理士 杉山 直人	
(32) 優先日 平成16年10月28日 (2004.10.28)	(74) 代理人 100126767 弁理士 白銀 博	
(33) 優先権主張国 米国(US)	(74) 代理人 100118647 弁理士 赤松 利昭	
(特許庁注:以下のものは登録商標) 1. マジックテープ 2. テフロン	最終頁に続く	

(54) 【発明の名称】シンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】接着性に優れたポリオレフィンおよび該ポリマーを含む接着性に優れた樹脂組成物の提供。

【解決手段】約50重量%以上のC₃~C₄オレフィンを含み、ポリマー中に存在するr及びmダイアドの合計数に基づいて約50%~約80%以下のrダイアドを有し;融解熱がASTM E794-85に記載の手順に従って10J/g以下であり;及び灰含量が1重量%以下である、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを含有するポリマー。また、官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンも好ましい。

【選択図】なし

【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

約 50 重量 % 以上の C₃ ~ C_{4,0} オレフィンを含むアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンであって：

ポリマー中に存在する r 及び m ダイアドの合計数に基づいて約 50 % ~ 約 80 % の r ダイアドを有し；融解熱が 10 J / g 以下であり；及び灰含量が 1 重量 % 以下である、ポリマー。

【請求項 2】

少なくとも約 55 % の r ダイアドを有する、請求項 1 のポリマー。

【請求項 3】

ポリマー中に存在する r 及び m - ペンタドの合計数に基づいて少なくとも約 6.25 % の r ペンタド ~ 約 31.6 % の r ペンタドを有する、請求項 1 のポリマー。

【請求項 4】

約 60 重量 % より多いプロピレンを含む、請求項 1 のポリマー。

【請求項 5】

さらに、ポリマーの全重量に基づいて、少なくとも 0.5 重量 % のエチレンを含む、請求項 1 のポリマー。

【請求項 6】

融解熱が検出不能である、請求項 1 のポリマー。

【請求項 7】

灰含量が 0.1 重量 % 以下である、請求項 1 のポリマー。

【請求項 8】

密度が約 0.85 ~ 約 0.88 g / ml である、請求項 1 のポリマー。

【請求項 9】

メルトフロー速度が 0.2 g / 10 分以上である、請求項 1 のポリマー。

【請求項 10】

存在するポリマーの全重量に基づいて、少なくとも約 95 重量 % のポリマーがヘキサン、シクロヘキサン、キシレンまたはトルエンに 25 % で溶解性である、請求項 1 のポリマー。

【請求項 11】

重量平均分子量が約 5000 ~ 約 5,000,000 g / モルである、請求項 1 のポリマー。

【請求項 12】

数平均分子量が約 5000 ~ 約 3,000,000 g / モルである、請求項 1 のポリマー。

【請求項 13】

\bar{z} 平均分子量が約 10,000 ~ 約 10,000,000 g / モルである、請求項 1 のポリマー。

【請求項 14】

g' 指数がポリマーの M_w で測定して約 1.2 ~ 約 1.5 である、請求項 1 のポリマー。

【請求項 15】

識別できる結晶化温度 (T_c) を有さない、請求項 1 のポリマー。

【請求項 16】

以下を含むポリマーブレンド：

約 50 重量 % 以上の C₃ - C_{4,0} オレフィンを含み、ポリマー中に存在する r 及び m ダイアドの合計数に基づいて r ダイアドが約 50 % ~ 約 80 % 、融解熱が 10 J / g 以下、及び灰含量が 1 重量 % 以下の、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン；及び

C₂ - C_{4,0} ポリマー、C₂ - C_{4,0} コポリマー、エラストマー、ランダムコポリマー、インパクトコポリマー、フラクショナル (fractional) ポリマー、粘着付与

10

20

30

40

50

剤、架橋剤、酸化防止剤、中和剤、成核剤、充填剤、接着促進剤、油分、可塑剤、ワックス、エステルポリマー、ゴム強化組成物、再生ポリマー、ブロック剤、ブロック防止剤、色素、染料、加工助剤、UV安定化剤、潤滑剤、補助剤、界面活性剤、カラーマスター、バッヂ、流動性向上剤、結晶化助剤、ポリオレフィン、グループI I Iベースストック、またはこれらの組み合わせを含む少なくとも1の添加物。

【請求項17】

添加物が、ホモポリプロピレン、50重量%以下のエチレンまたはC4～C20-オレフィンと共に重合されたプロピレン、アイソタクチックポリプロピレン、プロピレンとエチレンとのランダムコポリマー、ポリプロピレンとブテンまたはヘキセンとのランダムコポリマー、ポリブテン、酢酸エチレンビニル、密度0.915～0.935g/cm³以下のポリエチレン、直鎖ポリエチレン、密度0.86～0.90g/cm³以下のポリエチレン、密度0.90～0.915g/cm³以下のポリエチレン、密度0.945g/cm³以下のポリエチレン、密度0.945～0.98g/cm³以下のポリエチレン、エチレンメチルアクリレート、アクリル酸のコポリマー、ポリメチルメタクリル酸、ポリビニルクロリド、ポリブテン-1、アイソタクチックポリブテン、ABS樹脂、エチレン-プロピレンゴム、硫化EPR、EPDM、SBSエラストマー、ポリアミド、ポリカーボネート、PET樹脂、架橋ポリエチレン、エチレンとビニルアルコールとのコポリマー、ポリスチレン、ポリ-1エステル、ポリアクリロニトリルホモポリマー、ポリアクリロニトリルコポリマー、熱可塑性ポリアミド、ポリアセタール、フッ化ポリビニリデン、ポリエチレングリコール、ポリイソブチレン、及びこれらの組み合わせからなる群より選択される、請求項16のポリマーブレンド。10
20

【請求項18】

添加物が、プロピレンとエチレンとをキラルメタロセン触媒の存在下、活性化剤と任意でスカベンジャーを用いて重合することにより調製したエラストマーを含み、当該エラストマーの平均プロピレン含量がモルベースで約68%～約92%である、請求項16のポリマーブレンド。

【請求項19】

添加物が半結晶性プロピレンコポリマーを含む請求項16のポリマーブレンドであって：

- A. 融解熱が約0.5J/g～約25J/g、
 - B. 結晶化度が約0.25%～約15%、
 - C. 単一の広い融点が約25～約75、
 - D. 重量平均分子量が10,000～5,000,000g/cc、
 - E. MWD(Mw/Mn)が1.5～40.0、及び/または
 - F. 125でのムーニー粘度ML(1+4)が100未満
- である、ポリマーブレンド。

【請求項20】

添加物がゴム強化組成物を含み、当該ゴムがエチレンプロピレンゴム、エチレンプロピレンジエンモノマーゴム、ネオプレンゴム、及び/またはスチレン系ブロックコポリマーゴムであり、当該ゴムが官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを含む連続相内で不連続相である、請求項16のポリマーブレンド。30
40

【請求項21】

添加物が单一反応器プロセスにおいてプロピレンとエチレンとを共重合することにより生成したランダムコポリマーを含み、当該ランダムコポリマーが約3～約17モル%のエチレンを含む、請求項16のポリマーブレンド。

【請求項22】

添加物が狭い組成分布を有するランダムコポリマーを含み、飽和炭化水素中で熱分留により決定して、75重量%のランダムコポリマーが1または2の隣接溶解性分画として直後または直前の分画における残りのポリマーから単離される、請求項16のポリマーブレンド。

【請求項23】

10

20

30

40

50

添加物が C₂ ~ C₂₀ オレフィンを含んだ直鎖アイソタクチックポリマー含有官能性ポリマーを含み、ポリマー鎖中の立体鏡像誤差の統計的分布に起因したアイソタクティシティが 25 ~ 60 % の [mmmm] ペンタド濃度を有し、重量平均分子量が 100,000 ~ 800,000 g/mol、ガラス転移温度が -50 ~ 30 °C、[rmmm] ペンタド濃度が全体のペンタド領域の最大 2.5 % 有し、[rrrrr] 及び [rrrmr] ペンタド濃度は組み合わせた場合、[rmmrm] ペンタド濃度よりも大きく、及び本質的に 20 ~ 80 °C でトルエンに溶解性である、請求項 16 のポリマーブレンド。

【請求項 24】

添加物が脂肪族炭化水素樹脂、芳香族変性脂肪族炭化水素樹脂、水添化ポリシクロペニタジエン樹脂、ポリシクロペニタジエン樹脂、ガムロジン、ガムロジンエステル、ウッドロジン、ウッドロジンエステル、トールオイルロジン、トールオイルロジンエステル、ポリテルペン、芳香族変性ポリテルペン、テルペンフェノール、芳香族変性水添化ポリシクロペニタジエン樹脂、水添化脂肪族樹脂、水添化脂肪族芳香族樹脂、水添化テルペン及び変性テルペン、水添化ロジン酸、及び水添化ロジンエステルからなる群より選択される粘着付与剤を含む、請求項 16 のポリマーブレンド。

10

【請求項 25】

添加物がアルコール、マルチオール、アミン、ジアミン及びトリアミンからなる群より選択される架橋剤を含む、請求項 16 のポリマーブレンド。

【請求項 26】

添加物が極性ワックス、非極性ワックス、ポリプロピレンワックス、ポリエチレンワックス、フィッシャー-トロプシュワックス、酸化フィッシャー-トロプシュワックス、ヒドロキシステアロマイドワックス、機能化ワックス、アモルファスワックス、カルナウバワックス、キャスター・オイルワックス、マイクロクリスタリンワックス、蜜ろう、カルナウバろう、キャスターワックス、鯨ろう、植物ろう、カンデリラろう、日本ろう、ouricury ワックス、ダグラスファー-バーク・ワックス、米ぬかワックス、ホホバワックス、ヤマモモワックス、モンタンワックス、ピートワックス、オゾケライトワックス、セレシンワックス、石油ろう、パラフィンワックス、ポリエチレンワックス、化学変性炭化水素ワックス、置換アミドワックス、及び / またはこれらの誘導体を含む、請求項 16 のポリマーブレンド。

20

【請求項 27】

添加物が結晶化助剤を含む、請求項 16 のポリマーブレンド。

30

【請求項 28】

ポリマーブレンドの重量に基づいて、10 ~ 90 重量 % の添加物を含む、請求項 16 のポリマーブレンド。

【請求項 29】

添加物がブレンドの全重量に基づいて 0.1 ~ 50 重量 % でブレンド中に存在する有機クレイであり、当該有機クレイがモンモリロナイト、ナトリウムモンモリロナイト、カルシウムモンモリロナイト、マグネシウムモンモリロナイト、ノントロナイト、バイデライト、ボルコンスコアイト、ラボナイト、ヘクトライト、サポナイト、ソーコナイト、マガタイト、ケニアイト、sobockite、svindordite、ステベンサイト、バーミキュライト、ハロイサイト、アルミニネートオキシド、ハイドロタルサイト、イライト、レクトライト、tarosovite、レディカイト (ledikite)、フッ素マイカ及びこれらの組み合わせからなる群より選択される、請求項 16 のポリマーブレンド。

40

【請求項 30】

ポリマーブレンドが高せん断条件下で、少なくとも 1 の添加物を用いて溶融ブレンドされた、10 ~ 90 重量 % のポリマーブレンドを含む濃縮物を生成するマスターバッチである、請求項 16 のポリマーブレンド。

【請求項 31】

官能基を用いて官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィ

50

ンであり；

官能化前に、当該アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは以下を含む：約50重量%以上のC₃～C₄₀のオレフィン、ポリマー中に存在するr及びmダイアドの合計数に基づいて約50%～約80%のrダイアド；融解熱がASTM E 794-85に記載の手順に従って10J/g以下；及び灰含量が1重量%以下。

【請求項32】

ポリマー中に存在するr及びmペントドの合計数に基づいて少なくとも約6.25%rペントド～約31.6%のrペントドを有する、請求項31のポリマー。

【請求項33】

約50重量%以上のプロピレンを含む、請求項31のポリマー。

10

【請求項34】

さらに少なくとも0.5重量%のエチレンをポリマーの全重量に基づいて含む、請求項31のポリマー。

【請求項35】

融解熱が検出不能である、請求項31のポリマー。

【請求項36】

灰含量が0.1重量%以下である、請求項31のポリマー。

【請求項37】

メルトフロー速度が0.2g/10分以上である、請求項31のポリマー。

【請求項38】

存在するポリマーの全重量に基づいて、少なくとも約95重量%のポリマーがヘキサン、シクロヘキサン、キシレンまたはトルエンに25で溶解性である、請求項31のポリマー。

20

【請求項39】

重量平均分子量(Mw)が約5000～約5,000,000g/molである、請求項31のポリマー。

【請求項40】

数平均分子量(Mn)が約5,000～約3,000,000g/molである、請求項31のポリマー。

30

【請求項41】

z平均分子量(Mz)が約5,000～約10,000,000g/molである、請求項31のポリマー。

【請求項42】

識別できる結晶化温度(Tc)を有さない、請求項31のポリマー。

【請求項43】

官能基が、重量平均分子量が1000以下であり、炭素-炭素二重結合、炭素-炭素三重結合、及び/またはヘテロ原子を含む化合物を含む、請求項31のポリマー。

【請求項44】

官能基がB、N、O、Si、P、F、Cl、Br、I、S、またはこれらの組み合わせを含む、請求項31のポリマー。

40

【請求項45】

官能基が、芳香族化合物、ビニル化合物、有機酸、有機アミド、有機アミン、有機エステル、有機ジエステル、有機イミド、有機無水物、有機アルコール、有機酸ハロゲン化物、有機過酸化物、及び/またはこれらの塩である、請求項31のポリマー。

【請求項46】

官能基が、無水マレイン酸、無水シトラコン酸、無水2-メチルマレイン酸、無水2-クロロマレイン酸、無水2,3-ジメチルマレイン酸、ビシクロ[2.2.1]-5-ヘプテン-2,3-ジカルボン酸無水物、4-メチル-4-シクロヘキセン-1,2-ジカルボン酸無水物、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、シトラコン酸、メサコン酸、クロトン酸、ビシクロ(2.2.2)オクト-5-エン-2,3-

50

ジカルボン酸無水物、1，2，3，4，5，&6，-オクタヒドロナフタレン-2，3-ジカルボン酸無水物、2-オクサ-1，3-ジケトスピロ(4.4)ノン-7-エン、ビシクロ(2.2.1)ヘプト-5-エン-2，3-ジカルボン酸無水物、マレオピマル酸(maleopimatic acid)、テトラヒドロフタル酸無水物、ノルボルン-5-エン-2，3-ジカルボン酸無水物、ナド酸無水物、メチルナド酸無水物、無水ハイミック酸、無水メチルハイミック酸、x-メチル-ビシクロ(2.2.1)ヘプト-5-エン-2，3-ジカルボン酸無水物、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸ブチル、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸ブチル、ビニルトリクロロシラン、ビニルトリス(-メトキシエトキシ)シラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、-メタクリルオキシプロピルトリメトキシシランモノビニルシラン、モノアリルシラン、塩化ビニルまたは塩化ビニリデンである、請求項31のポリマー。

10

【請求項47】

官能基が官能性ポリオレフィンの全重量に基づいて、1～5重量%で官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン中に存在する、請求項31のポリマー。

【請求項48】

官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンが熱安定性である、請求項31のポリマー。

【請求項49】

官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンが無水マレイン酸がグラフトされた官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンであり、無水マレイン酸が官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンの重量に基づいて、官能性シンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン中に濃度約0.005～10重量%無水マレイン酸で存在する、請求項31のポリマー。

20

【請求項50】

官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンが、当該ポリプロピレンの全重量に基づいて約1000ppm未満の遊離酸基を含み、かつ当該官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンが当該ポリプロピレンの全重量に基づいて約100ppm未満の亜リン酸塩を含む、請求項49のポリマー。

30

【請求項51】

以下を含むポリマーブレンド：

官能基で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンであって；官能化する前に、当該アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは以下を含む：約50重量%以上のC₃～C₄のオレフィン、ポリマー中に存在するr及びmダイアドの合計数に基づいて約50%～約80%のrダイアド；融解熱が10J/g以下；及び灰含量が1重量%以下；及びC₂-C₄0ポリマー、C₂-C₄0コポリマー、エラストマー、ランダムコポリマー、インパクトコポリマー、フラクショナルポリマー、粘着付与剤、架橋剤、酸化防止剤、中和剤、成核剤、充填剤、接着促進剤、油分、可塑剤、ワックス、エステルポリマー、ゴム強化組成物、再生ポリマー、ブロック剤、ブロック防止剤、色素、染料、加工助剤、UV安定化剤、潤滑剤、補助剤、界面活性剤、カラーマスター、バッヂ、流動性向上剤、結晶化助剤、またはこれらの組み合わせを含む少なくとも1の添加物。

40

【請求項52】

官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンが無水マレイン酸でグラフトされたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンであり、無水マレイン酸は当該官能性シンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン中に官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンの重量に基づいて、濃度約0.005～10重量%無水マレイン酸で存在する、請求項51のポリマー。

【請求項53】

添加物が、ホモポリプロピレン、50重量%以下のエチレンまたはC₄～C₂0-オレ

50

フィンと共に重合されたプロピレン、アイソタクチックポリプロピレン、プロピレンとエチレンとのランダムコポリマー、ポリプロピレンとブテンまたはヘキセンとのランダムコポリマー、ポリブテン、酢酸エチレンビニル、密度0.915～0.935g/cm³以下のポリエチレン、直鎖ポリエチレン、密度0.86～0.90g/cm³以下のポリエチレン、密度0.90～0.915g/cm³以下のポリエチレン、密度0.935～0.945g/cm³以下のポリエチレン、密度0.945～0.98g/cm³以下のポリエチレン、エチレンメチルアクリレート、アクリル酸のコポリマー、ポリメチルメタクリル酸、ポリビニルクロリド、ポリブテン-1、アイソタクチックポリブテン、ABS樹脂、エチレン-プロピレンゴム、硫化EPR、EPDM、SBSエラストマー、ポリアミド、ポリカーボネート、PET樹脂、架橋ポリエチレン、エチレンとビニルアルコールとのコポリマー、ポリスチレン、ポリ-1エステル、ポリアクリロニトリルホモポリマー、ポリアクリロニトリルコポリマー、熱可塑性ポリアミド、ポリアセタール、フッ化ポリビニリデン、ポリエチレングリコール、ポリイソブチレン、及びこれらの組み合わせからなる群より選択される、請求項51のポリマーブレンド。

10

20

30

40

50

【請求項54】

添加物が半結晶性プロピレンコポリマーを含む請求項51のポリマーブレンドであって：

- A . 融解熱が約0.5J/g～約25J/g、
- B . 結晶化度が約0.25%～約15%、
- C . 単一の広い融点が約25～約75、
- D . 重量平均分子量が10,000～5,000,000g/cc、
- E . MWD(Mw/Mn)が1.5～40.0、及び/または
- F . 125でのムーニー粘度ML(1+4)が100未満

である、ポリマーブレンド。

【請求項55】

添加物が、単一反応器プロセスにおいてプロピレンとエチレンとを共重合することにより生成したランダムコポリマーを含み、当該ランダムコポリマーが約3～約17モル%のエチレンを含み、かつ当該ランダムコポリマーは狭い組成分布を有し、飽和炭化水素中で熱分留により決定して、75重量%のランダムコポリマーが1または2の隣接溶解性分画として直後または直前の分画における残りのポリマーから単離される、請求項51のポリマーブレンド。

【請求項56】

添加物が、脂肪族炭化水素樹脂、芳香族変性脂肪族炭化水素樹脂、水添化ポリシクロペンタジエン樹脂、ポリシクロペンタジエン樹脂、ガムロジン、ガムロジンエステル、ウッドロジン、ウッドロジンエステル、トールオイルロジン、トールオイルロジンエステル、ポリテルペン、芳香族変性ポリテルペン、テルペンフェノール、芳香族変性水添化ポリシクロペンタジエン樹脂、水添化脂肪族樹脂、水添化脂肪族芳香族樹脂、水添化テルペン及び変性テルペン、水添化ロジン酸、及び水添化ロジンエステルからなる群より選択される粘着付与剤を含む、請求項51のポリマーブレンド。

【請求項57】

ポリマーブレンドの重量に基づいて、10～90重量%の添加物を含む、請求項51のポリマーブレンド。

【請求項58】

アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、官能基、及び官能化触媒との接触生成物であり、当該アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンが以下を含む：約50重量%以上のC₃-C₄0オレフィン、ポリマー中に存在するr及びmダイアドの合計数に基づいて約50%～約80%のrダイアド、融解熱が10J/g以下、及び灰含量が1重量%以下。

【請求項59】

官能化触媒が有機過酸化物である、請求項58の接触生成物。

【請求項60】

官能化触媒が過酸化ベンゾイル、メチルエチルケトンペルオキシド、シクロヘキサンペルオキシド、t - プチルペルオキシソプロピルカーボネート、ジ - t i - プチルペルフルアレート (p e r p h t h a l a t e) 、 2 , 5 - ジメチル - 2 , 5 - ジ (t - プチルペルオキシ) ヘキセン、 2 , 5 - ジメチル - 2 , 5 - ジ (t - プチルペルオキシ) ヘキセン - 3 、ジ - t - プチルペルオキシド、クメンヒドロペルオキシド、 t - プチルヒドロペルオキシド、ジラウリルペルオキシド、ジクミルペルオキシド及びこれらの組み合わせからなる群より選択される、請求項 5 8 の接触生成物。

【請求項 6 1】

官能基が、重量平均分子量が 1 0 0 0 以下であり、炭素 - 炭素二重結合、炭素 - 炭素三重結合、及び / またはヘテロ原子を含む化合物を含む、請求項 5 8 の接触生成物。 10

【請求項 6 2】

官能基が B 、 N 、 O 、 S i 、 P 、 F 、 C l 、 B r 、 I 、 S 、またはこれらの組み合わせを含む、請求項 5 8 の接触生成物。

【請求項 6 3】

官能基が、芳香族化合物、ビニル化合物、有機酸、有機アミド、有機アミン、有機エステル、有機ジエステル、有機イミド、有機無水物、有機アルコール、有機酸ハロゲン化物、有機過酸化物、及び / またはこれらの塩である、請求項 5 8 の接触生成物。

【請求項 6 4】

官能基が、無水マレイン酸、無水シトラコン酸、無水 2 - メチルマレイン酸、無水 2 - クロロマレイン酸、無水 2 , 3 - ジメチルマレイン酸、ビシクロ [2 , 2 , 1] - 5 - ヘプテン - 2 , 3 - ジカルボン酸無水物、 4 - メチル - 4 - シクロヘキセン - 1 , 2 - ジカルボン酸無水物、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、シトラコン酸、メサコン酸、クロトン酸、ビシクロ (2 . 2 . 2) オクト - 5 - エン - 2 , 3 - ジカルボン酸無水物、 1 , 2 , 3 , 4 , 5 , & 6 , - オクタヒドロナフタレン - 2 , 3 - ジカルボン酸無水物、 2 - オクサ - 1 , 3 - ジケトスピロ (4 . 4) ノン - 7 - エン、ビシクロ (2 . 2 . 1) ヘプト - 5 - エン - 2 , 3 - ジカルボン酸無水物、ナド酸無水物、メチルナド酸無水物、無水ハイミック酸、無水メチルハイミック酸、 x - メチル - ビシクロ (2 . 2 . 1) ヘプト - 5 - エン - 2 , 3 - ジカルボン酸無水物、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸ブチル、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸ブチル、ビニルトリクロロシラン、ビニルトリス (- メトキシエトキシ) シラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、 - メタクリルオキシプロピルトリメトキシシランモノビニルシラン、モノアリルシラン、塩化ビニルまたは塩化ビニリデンである、請求項 5 8 の接触生成物。 20

【請求項 6 5】

官能基が接触生成物の全重量に基づいて、 0 . 0 0 5 ~ 9 9 重量 % で接触生成物中に存在する、請求項 5 8 の接触生成物。

【請求項 6 6】

官能基が接触生成物の全重量に基づいて、 1 ~ 5 重量 % で接触生成物中に存在する、請求項 5 8 の接触生成物。

【請求項 6 7】

接触生成物が熱安定性である、請求項 5 8 の接触生成物。 40

【請求項 6 8】

官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンがアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンであり、官能基が無水マレイン酸であり、当該無水マレイン酸が接触生成物の重量に基づいて、濃度約 0 . 0 0 5 ~ 1 0 重量 % 無水マレイン酸で接触生成物中に存在する、請求項 5 8 の接触生成物。

【請求項 6 9】

アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンがアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンであり、官能基が無水マレイン酸であり、接触生成物が接触生成物の全重量に基づいて約 1 0 0 0 p p m 未満の遊離酸基を含む、請求項 5 8 50

の接触生成物。

【請求項 7 0】

アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンがアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンであり、官能基が無水マレイン酸であり、接触生成物が接触生成物の全重量に基づいて約 100 ppm 未満の亜リン酸塩を含む、請求項 5 8 の接触生成物。

【請求項 7 1】

無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンを含有したポリマーであり、当該官能性ポリプロピレンがポリマーに存在する r 及び m ダイアドの合計数に基づいて、約 50 % ~ 約 80 以下の r ダイアドを含み、融解熱が 10 0 J / g 以下、及び灰含量が 1 重量 % 以下である、ポリマー。

【請求項 7 2】

ポリマー中に存在する r 及び m ペンタドの合計数に基づいて少なくとも約 6 . 25 % r ペンタド ~ 約 31 . 6 % の r ペンタドを有する、請求項 7 1 のポリマー。

【請求項 7 3】

さらに少なくとも 0 . 5 重量 % のエチレンをポリマーの全重量に基づいて含む、請求項 7 1 のポリマー。

【請求項 7 4】

融解熱が検出不能である、請求項 7 1 のポリマー。

【請求項 7 5】

灰含量が 0 . 1 重量 % 以下である、請求項 7 1 のポリマー。

【請求項 7 6】

メルトフロー速度が 0 . 2 g / 10 分以上である、請求項 7 1 のポリマー。

【請求項 7 7】

存在するポリマーの全重量に基づいて、少なくとも約 95 重量 % のポリマーがヘキサン、シクロヘキサン、キシレンまたはトルエンに 25 で溶解性である、請求項 7 1 のポリマー。

【請求項 7 8】

重量平均分子量 (M_w) が約 5000 ~ 約 5 , 000 , 000 g / モルである、請求項 7 1 のポリマー。

【請求項 7 9】

数平均分子量 (M_n) が約 5 , 000 ~ 約 3 , 000 , 000 g / モルである、請求項 7 1 のポリマー。

【請求項 8 0】

z 平均分子量 (M_z) が約 5 , 000 ~ 約 10 , 000 , 000 g / モルである、請求項 7 1 のポリマー。

【請求項 8 1】

識別できる結晶化温度 (T_c) を有さない、請求項 7 1 のポリマー。

【請求項 8 2】

無水マレイン酸がポリマーの全重量に基づいて、ポリマー中、0 . 005 ~ 10 重量 % で存在する、請求項 7 1 のポリマー。

【請求項 8 3】

ポリマーが熱安定性である、請求項 7 1 のポリマー。

【請求項 8 4】

無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン、及び少なくとも 1 の添加物を含むポリマーブレンドであり、官能性ポリプロピレンがポリマー中に存在する r 及び m ダイアドの合計数に基づいて約 50 % ~ 約 80 % の r ダイアドを含み；融解熱が 10 J / g 以下；及び灰含量が 1 重量 % 以下であり、かつ添加物が、C₂ - C₄₀ ポリマー、エラストマー、ランダムコポリマー、インパクトコポリマー、フラクショナルポリマー、粘着付与剤、架橋剤、酸化防止剤、中和剤、成核剤、充填剤

20

30

40

50

、接着促進剤、油分、可塑剤、ワックス、エステルポリマー、ロック剤、ロック防止剤、色素、染料、加工助剤、UV安定化剤、潤滑剤、補助剤、界面活性剤、カラーマスター・バッヂ、流動性向上剤、結晶化助剤、及びこれらの組み合わせからなる群より選択される、ポリマーブレンド。

【請求項 8 5】

ポリマーブレンドの重量に基づいて、10～90重量%の添加物を含む、請求項84のポリマーブレンド。

【請求項 8 6】

アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、官能基で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、またはこれらの組み合わせを含む接着剤組成物であって、当該アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは以下を含む：約50重量%以上のC₃～C₄₀のオレフィン、ポリマー中に存在するr及びmダイアドの合計数に基づいて約50%～約80%のrダイアド；融解熱が10J/g以下；及び灰含量が1重量%以下であり、かつ、官能基は存在する場合、重量平均分子量が1000以下であり、炭素-炭素二重結合、炭素-炭素三重結合、及び/またはヘテロ原子を含む化合物を含み；当該接着剤組成物はアイソタクチックポリプロピレンに対する剥離強度が約3.51b/in以上あり、ポリエステルフィルムに対する剥離強度が約0.51b/in以上である。10

【請求項 8 7】

C₂-C₄₀ポリマー、C₂-C₄₀コポリマー、エラストマー、ランダムコポリマー、インパクトコポリマー、フラクショナルポリマー、粘着付与剤、架橋剤、酸化防止剤、中和剤、成核剤、充填剤、接着促進剤、油分、可塑剤、ワックス、エステルポリマー、ゴム強化組成物、再生ポリマー、ロック剤、ロック防止剤、色素、染料、加工助剤、UV安定化剤、潤滑剤、補助剤、界面活性剤、カラーマスター・バッヂ、流動性向上剤、結晶化助剤、及びこれらの組み合わせからなる群より選択される少なくとも1の添加物をさらに含む、請求項86の接着剤組成物。20

【請求項 8 8】

存在する接着剤の全重量に基づいて、少なくとも約95重量%の接着剤がヘキサン、シクロヘキサン、キシレンまたはトルエンに25で溶解性である、請求項86の接着剤組成物。30

【請求項 8 9】

ポリオレフィンが約60重量%以上のプロピレンを含む、請求項86の接着剤組成物。

【請求項 9 0】

ポリオレフィンが少なくとも0.5重量%のエチレンをポリオレフィンの全重量に基づいて含む、請求項86の接着剤組成物。

【請求項 9 1】

ポリオレフィンの融解熱が検出不能である、請求項86の接着剤組成物。

【請求項 9 2】

ポリオレフィンが0.1重量%以下の灰含量を含む、請求項86の接着剤組成物。

【請求項 9 3】

脂肪族炭化水素樹脂、芳香族変性脂肪族炭化水素樹脂、水添化ポリシクロペンタジエン樹脂、ポリシクロペンタジエン樹脂、ガムロジン、ガムロジンエステル、ウッドロジン、ウッドロジンエステル、トールオイルロジン、トールオイルロジンエステル、ポリテルペン、芳香族変性ポリテルペン、テルペンフェノール、芳香族変性水添化ポリシクロペンタジエン樹脂、水添化脂肪族樹脂、水添化脂肪族芳香族樹脂、水添化テルペン及び変性テルペン、水添化ロジン酸、水添化ロジンエステル、これらの誘導体、及びこれらの組み合わせからなる群より選択される1以上の粘着付与剤をさらに含む、請求項86の接着剤組成物。40

【請求項 9 4】

接着剤がさらに、極性ワックス、非極性ワックス、フィッシャー-トロプシュワックス、50

酸化フィッシャー - トロプシュワックス、ヒドロキシステアロマイドワックス、機能化ワックス、ポリプロピレンワックス、ポリエチレンワックス、ワックス改質剤、及びこれらの組み合わせからなる群より選択される 1 以上のワックスを含む、請求項 8 6 の接着剤組成物。

【請求項 9 5】

接着剤がさらに、可塑剤、油分、安定化剤、酸化防止剤、色素、染料、ポリマー添加物、消泡剤、保存料、増粘剤、流動性向上剤、保湿剤、充填剤及び水からなる群より選択される 1 以上の添加物を含む、請求項 8 6 の接着剤組成物。

【請求項 9 6】

固定時間が 30 秒以下である、請求項 8 6 の接着剤組成物。

10

【請求項 9 7】

請求項 1 の接着剤組成物を含む、消費者製品、製造品、包装用接着剤、包装、使い捨て製品、フィルム、感圧性接着剤、ラミネート製品、繊維製品、ホットメルト接着剤、カーペット、テープ、屋根板、屋根ふき部材、反射材料、木工技術材料、消費者材料、ラベル、製本材料、路面表示組成物、封止組成物、舗装組成物、スティックのり、パイプ、被服材料、透明窓ガラスを含む材料、またはこれらの組み合わせ。

【請求項 9 8】

官能基で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンであって、当該官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは以下を含む：約 50 重量 % 以上の C₃ - C₄ オレフィン、ポリマー中に存在する r 及び m ダイアドの合計数に基づいて r ダイアドが約 50 % ~ 約 80 % 以下；及び融解熱が 10 J / g 以下。

20

【請求項 9 9】

ポリマー物質を製造する方法であって、

アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン及び少なくとも 1 の添加物を高せん断条件下で溶融ブレンドして、10 ~ 90 重量 % のポリオレフィンを含む濃縮物を生成する工程、及び次に、当該濃縮物を少なくとも 1 の別の物質とブレンドして、最終生成物を生成する工程を含み、ここでアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンが、約 50 重量 % 以上の C₃ - C₄ オレフィンを含み、ポリオレフィン中に存在する r 及び m ダイアドの合計数に基づいて r ダイアドが約 50 % ~ 約 80 % 以下；及び融解熱が 10 J / g 以下；及び灰含量が 1 重量 % 以下である、方法。

30

【請求項 10 0】

アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンが官能基で官能化されており、当該官能基が、重量平均分子量が 1000 以下であり、炭素 - 炭素二重結合、炭素 - 炭素三重結合、及び / またはヘテロ原子を含む化合物を含む、請求項 9 9 の方法。

【請求項 10 1】

官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンが無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンである、請求項 10 0 の方法。

40

【請求項 10 2】

アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンが濃縮物の形成と同時に官能化される、請求項 10 1 の方法。

【請求項 10 3】

官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生成する方法であって、以下の工程を含む方法：

A . オレフィンモノマー、メタロセン触媒、及び活性化剤を反応器の脂肪族溶媒中に加える工程；

B . 前記反応器中で前記オレフィンモノマーの触媒溶液重合を行い、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生成する工程；

C . モノマーを除去して、非反応のオレフィンモノマーを取除く工程；

50

D . 前記アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンと官能基とフリーラジカル開始剤とを前記脂肪族溶媒中、前記官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生成するために十分な温度及び時間で混合することを含む、溶媒ベースの官能化を行う工程；及び、任意で

E . 前記脂肪族溶媒を取除く工程、

ここで、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは、約 50 重量 % 以上の C₃ - C₄ オレフィンを含み；ポリオレフィン中に存在する r 及び m ダイアドの合計数に基づいて約 50 % ~ 約 80 % 以下の r ダイアドを有し；融解熱が 10 J / g 以下；及び灰含量が 1 重量 % 以下である。

【請求項 104】

官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンが無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンである、請求項 103 の方法。

【請求項 105】

さらに、前記溶媒ベースの官能化工程 D の後に、有機クレイの添加をさらに含む、請求項 103 の方法。

【請求項 106】

官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生成する方法であって、以下の工程を含む方法：

A . アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、官能基、及びフリーラジカル開始剤を含む溶解物を混合装置に加える工程；

B . 前記溶解物を前記混合装置内で、前記官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生成するために十分な温度及び時間で接触させる工程であって、ここで、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは約 50 重量 % 以上の C₃ - C₄ オレフィン；ポリオレフィン中に存在する r 及び m ダイアドの合計数に基づいて約 50 % ~ 約 80 % 以下の r ダイアド；10 J / g 以下の融解熱；及び 1 重量 % 以下の灰含量を含む。

【請求項 107】

前記官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンが無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンである、請求項 106 の方法。

【請求項 108】

前記接触工程 B の後に、さらに有機クレイの添加を含む、請求項 106 の方法

【発明の詳細な説明】

【発明の詳細な説明】

【0001】

関連出願

この出願は 2004 年 10 月 28 日に提出した仮出願番号 60/622,964 号の利益を主張するものである。また、この出願は、2004 年 4 月 15 日に提出された米国特許出願番号 10/825348 の一部継続出願である。

【0002】

発明の分野

本発明はポリマー、ポリマー組成物、接着剤組成物、及び / または接着剤添加物、及びアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンオレフィン / または官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを含むこれらの製造方法に関する。特に、ポリマーはアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン及び / またはマレイン酸アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンを含み、1 以上の添加物との組み合わせであってもよい。

【0003】

発明の背景

10

20

30

40

50

オレフィンベースポリマー（ポリオレフィン）は、化学的に不活性で、低密度及び低価のため、種々の用途において広く使用されている。一般的な用途は接着剤、結合層（*t i e l a y e r s*）、フィルム、繊維、材料、ラミネート及びこれらの組み合わせに関する用途を含む。

【0004】

ポリオレフィンは種々のフィルムに形成でき、種々の基質にラミネートでき、被覆でき、または共押出しできる。フィルム及び基質はその他の物質と混合して複数の層を有する構造体を形成でき、各層は特定の目的を有することができる。包装ラミネートは、例えば、多数の層を含むことができ、例えば、紙または板紙からなる構造的に堅いコア層、外側液密層、アルミホイルの中間層などの酸素ガス防壁、及び／または用途ニーズに応じたその他の層である。

【0005】

効果的な接着を得るには、ほとんどの用途において層間の優れた結合強度または緊密な結合状態を達成することが好ましい。しかしながら、比較的非極性のオレフィンベースポリマーはそれよりも極性が高い基質には通常はよく接着しない。

【0006】

従って、極性と非極性基質の両方を緊密に結合する接着剤の必要性があり、好ましくは種々の温度条件下及び活性物質の存在下で結合強度の優れた耐久性を示すものが好ましい。

【0007】

さらに、結合層またはその他の接着剤として機能するために、接着剤組成物は種々の極性及び非極性基質間で、約-20～約10の“比較的低い”温度範囲内で接着性を示す必要性がある。しかしながら、ポリオレフィンは通常、この比較的低い温度範囲では接着特性に欠ける。また、接着組成物は基質への接着剤使用を容易にするために種々の溶媒に可溶性であるほうがよい。しかしながら、接着特性を示すほとんどのポリオレフィンが一般的な炭化水素溶媒への溶解を阻害する結晶化レベルを有する。従って、接着剤の結合、接着及びその他の特性の面を改善するために、種々の接着組成物と一緒に接着剤促進剤が利用できる。

【0008】

例えば、米国特許第6,656,385号、Wang、他（Wang）は約70%シンジオタクチックポリプロピレン及びアモルファスポリ（-オレフィン）とともに粘着付与剤、任意で可塑剤及び／または安定化剤を含むホットメルト接着剤に関する。Wangはシンジオタクチックポリプロピレンを70%以上のrダイアド（dyads）を有するものと定義している。そのようなものとして、Wangは炭化水素溶媒に基本的に可溶なシンジオタクチックポリプロピレンは開示していない。

【0009】

米国特許第4,822,688号、Noguesは、酸無水物でグラフトすることにより修飾されたポリプロピレンを含む接着剤組成物であって、さらにポリオールまたはポリアミンなどの少なくとも2つの基を運ぶ化合物と反応させた接着組成物に関する。Noguesは官能性ポリオレフィンを開示するが、当該文献は接着性、溶解性及び加工性を改善する官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン接着促進剤については開示していない。

【0010】

多数の文献が接着剤促進剤としてシンジオタクチックポリプロピレンを含む組成物を目的としている。例としては、日本国特許出願公開番号平01-152448号、日本国特許番号2824082号、米国特許第5,476,914号、第6,184,326号及び第6,245,870号が挙げられ、80%以上のrダイアドを有するシンジオタクチックポリプロピレンを含む組成物を生成できるバナジウム触媒に関する。しかしながら、当該文献に従うシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンの結晶性は物質が炭化水素溶媒に溶解することを妨げ、従って当該物質の用途が限定される。さらに、これらの文

10

20

30

40

50

献は“触媒部位制御”的もと、シンジオタクチックの特異な増殖を目的としており、生成されたポリマー中“r m m r”断片を生じる。これは、“r r m r”断片を生じ、基本的に“r m m r”断片を生成しない、本発明の“鎖末端制御”とは対照的である。

【0011】

米国特許第5,326,824号、第5,373,059号、第5,374,685号及び日本国特許番号第3025553号は官能性シンジオタクチックポリプロピレンを含む組成物に関する。しかしながら、これらの文献に開示された官能性シンジオタクチックポリプロピレンは約50%より高い結晶性を有し（例えば、[r r r r] > 50%、より好ましくは[r r r r] > 70%）、従って、そのように生成されたポリマーは有機溶媒に不溶性である。

10

【0012】

日本国特許第2837246号は、[r r r r] > 80%であり、固有粘度が約0.01~1.0dl/g、M_w/M_nが1.5~約2.0、融解温度T_mが約130~170℃、及びt_{1/2}=2分であるシンジオタクチックポリプロピレンを目的とする。特許第2837246号に従って生成されたポリマーは従って、結晶性であり、融解温度を有し、有機溶媒に溶解性ではない。

20

【0013】

さらに、バナジウムベース触媒を用いて生成したシンジオタクチックポリプロピレンはここに記載の通り測定した場合、存在する触媒からの残留物質に起因して灰含量が約1重量%以上の物質を生じる。

20

【0014】

従って、シンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン及び/または官能性シンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを含むポリマー及びポリマー組成物であって、本質的に種々のタンパク質溶媒に室温で可溶であり、好ましくは灰含量が1重量%未満であるポリマー及びポリマー組成物の必要性が依然として存在する。そのようなものとして、低結晶性、例えば、[r r r r] < 50%であるシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンとともに、明確な融解温度を有さず、及び/または融解熱が約10J/g未満の官能性シンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンに関する必要性が依然として存在する。

30

【0015】

発明の概要

本発明の1の側面において、ポリマーは約50重量%以上のC₃-C₄₀オレフィンを含み、ポリマー中に存在するr及びmダイアドの合計数に基づいて約50%~約80%のrダイアドを有し、融解熱がASTM E 794-85に記載の手順に従って10J/g以下、灰含量が1重量%以下である、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを含む。

30

【0016】

本発明の他の側面において、ポリマーブレンドは約50重量%以上のC₃-C₄₀オレフィン、ポリマー中に存在するr及びmダイアドの合計数に基づいて約50%~約80%のrダイアド、融解熱がASTM E 794-85に記載の手順に従って10J/g以下、及び灰含量が1重量%以下である、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを含み、及びC₂-C₄₀ポリマー、C₂-C₄₀コポリマー、エラストマー、ランダムコポリマー、インパクトコポリマー、官能性ポリマー、粘着付与剤、架橋剤、酸化防止剤、中和剤、成核剤、充填剤、接着促進剤、油分、可塑剤、ワックス、エステルポリマー、ゴム強化組成物、再生ポリマー、ブロック剤、ブロック防止剤、色素、染料、加工助剤、UV安定化剤、潤滑剤、補助剤、界面活性剤、カラーマスター、バッヂ、流動性向上剤、結晶化助剤、またはこれらの組み合わせを含む少なくとも1の添加物を含む。

40

【0017】

本発明のさらに他の側面において、ポリマーは官能基で官能化されたアモルファスシン

50

ジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを含み、ここで、官能化される前に、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは約50重量%以上のC₃-C₄0オレフィン、ポリマー中に存在するr及びmダイアドの合計数に基づいて約50%～約80%のrダイアドを含み、融解熱がASTM E 794-85に記載の手順に従って10J/g以下、灰含量が1重量%以下である。

【0018】

本発明のさらに他の側面において、ポリマープレンドは官能基で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを含み、ここで、官能化される前に、モルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは約50重量%以上のC₃-C₄0オレフィンを含み、ポリマー中に存在するr及びmダイアドの合計数に基づいて約50%～約80%のrダイアドを含み、融解熱がASTM E 794-85に記載の手順に従って10J/g以下、灰含量が1重量%以下であり、及びC₂-C₄0ポリマー、C₂-C₄0コポリマー、エラストマー、ランダムコポリマー、インパクトコポリマー、官能性ポリマー、粘着付与剤、架橋剤、酸化防止剤、中和剤、成核剤、充填剤、接着促進剤、油分、可塑剤、ワックス、エステルポリマー、ゴム強化組成物、再生ポリマー、ブロック剤、ブロック防止剤、色素、染料、加工助剤、UV安定化剤、潤滑剤、補助剤、界面活性剤、カラーマスター、バッヂ、流動性向上剤、結晶化助剤、またはこれらの組み合わせを含む少なくとも1の添加物を含む。10

【0019】

本発明の他の側面において、本発明はアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、官能基、及び官能化触媒の接触生成物であり、ここで、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは、約50重量%以上のC₃-C₄0オレフィンを含み、ポリマー中に存在するr及びmダイアドの合計数に基づいて約50%～約80%のrダイアドを含み、融解熱がASTM E 794-85に記載の手順に従って10J/g以下であり、及び灰含量が1重量%以下である。20

【0020】

本発明の他の側面において、ポリマーは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンを含み、ここで、官能化ポリプロピレンはポリマー中に存在するr及びmダイアドの合計数に基づいて約50%～約80%のrダイアドを含み、融解熱がASTM E 794-85に記載の手順に従って10J/g以下であり、及び灰含量が1重量%以下である。30

【0021】

本発明のさらに他の側面において、ポリマープレンドは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン及び少なくとも1の添加物を含み、ここで、官能化ポリプロピレンは、ポリマー中に存在するr及びmダイアドの合計数に基づいて約50%～約80%のrダイアドを含み、融解熱がASTM E 794-85に記載の手順に従って10J/g以下であり、及び灰含量が1重量%以下であり、及びここで、添加物は、C₂-C₄0ポリマー、エラストマー、ランダムコポリマー、インパクトコポリマー、官能性ポリマー、粘着付与剤、架橋剤、酸化防止剤、中和剤、成核剤、充填剤、接着促進剤、油分、可塑剤、ワックス、エステルポリマー、ブロック剤、ブロック防止剤、色素、染料、加工助剤、UV安定化剤、潤滑剤、補助剤、界面活性剤、カラーマスター、バッヂ、流動性向上剤、結晶化助剤、及びこれらの組み合わせからなる群より選択される。40

【0022】

本発明の他の側面において、接着組成物はアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、官能基で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、またはこれらの組み合わせを含み、ここで、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは、約50重量%以上のC₃-C₄0オレフィンを含み、ポリマー中に存在するr及びmダイアドの合計数に基づいて約50%～約80%のrダイアドを含み、融解熱がASTM E 794-85に記載の手順に従って10J/50

g 以下であり、及び灰含量が 1 重量 % 以下であり、ここで、官能基は、存在する場合、重量平均分子量 1 0 0 0 以下である化合物、及び炭素 - 炭素二重結合、炭素 - 炭素三重結合、及び / またはヘテロ原子を含み、アイソタクチックポリプロピレンに対する剥離強度が約 3 . 5 l b / インチ以上、及びポリエステルフィルムに対する剥離強度が約 0 . 5 l b / インチである接着組成物を含み、ここで、0 . 5 インチ幅サンプル及び 2 " / 分の分離速度を用いるために修正された A S T M D - 1 8 7 6 に従って測定する。

【 0 0 2 3 】

本発明のさらに他の側面において、ポリマーは官能基で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを含み、ここで、官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは約 5 0 重量 % 以上の C 3 - C 4 0 オレフィンを含み、ポリマー中に存在する r 及び m ダイアドの合計数に基づいて約 5 0 % ~ 約 8 0 % の r ダイアドを含み、融解熱が A S T M E 7 9 4 - 8 5 に記載の手順に従つて 1 0 J / g 以下である。 10

【 0 0 2 4 】

本発明の他の側面において、ポリマー材料を作る方法は、アモルファスシンジオタクチックがを豊富に含むポリオレフィン及び少なくとも 1 の添加物を高せん断条件下で溶融ブレンドして 1 0 ~ 9 0 重量 % のポリオレフィンを含む濃縮物を作る工程と、続いて当該濃縮物と少なくとも 1 の追加の物質とをブレンドして最終生成物を生成する工程とを含み、ここで、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは、約 5 0 重量 % 以上の C 3 - C 4 0 オレフィンを含み、ポリオレフィン中に存在する r 及び m ダイアドの合計数に基づいて約 5 0 % ~ 約 8 0 % の r ダイアドを含み、融解熱が A S T M E 7 9 4 - 8 5 に記載の手順に従つて 1 0 J / g 以下であり、及び灰含量が 1 重量 % 以下である。 20

【 0 0 2 5 】

本発明の他の側面において、官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生成する方法であって、以下の工程を含む：

A . オレフィンモノマー、メタロセン触媒及び活性化剤を反応器の脂肪族化合物溶媒中に加える工程；

B . 前記反応器中で前記オレフィンモノマーの触媒溶液重合を行い、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生成する工程； 30

C . モノマーを除去して、非反応のオレフィンモノマーを取除く工程；

D . 前記アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンと官能基とフリーラジカル開始剤とを前記脂肪族化合物溶媒中、前記官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生成するために十分な温度及び時間で混合することを含む、溶媒ベース官能化を行う工程；及び、任意で

E . 前記脂肪族化合物溶媒を取除く工程。

ここで、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは、約 5 0 重量 % 以上の C 3 - C 4 0 オレフィン；ポリオレフィン中に存在する r 及び m ダイアドの合計数に基づいて約 5 0 % ~ 約 8 0 % の r ダイアド；融解熱が A S T M E 7 9 4 - 8 5 に記載の手順に従つて 1 0 J / g 以下；及び灰含量が 1 重量 % 以下を含む。 40

【 0 0 2 6 】

本発明の他の側面において、官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生成する方法であって、以下の工程を含む：

A . アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、官能基、及びフリーラジカル開始剤を含む溶解物を混合装置に加える工程；

B . 前記溶解物を前記混合装置内で、前記官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生成するために十分な温度及び時間で接触させる工程であって、ここで、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは約 5 0 重量 % 以上の C 3 - C 4 0 オレフィン；ポリオレフィン中に存在する r 及び m ダイアドの合計数に基づいて約 5 0 % ~ 約 8 0 % の r ダイアド；融解熱が A S T M E 7 9 4 - 8 5 に記 50

載の手順に従って 10 J / g 以下 ; 及び灰含量が 1 重量 % 以下を含む。

【 0 0 2 7 】

上記ポリマーのブレンドとともに上記ポリマーを含む種々の製品も開示する。

【 0 0 2 8 】

定義

本発明及び請求の範囲の目的のため、及び参照の簡略化のため、ポリマー及び / またはオリゴマーが含む、含有する、有する等として言及された場合、ポリマー及び / またはオリゴマー中に存在するオレフィンはオレフィンの重合形態である。参照の簡略化のため、アモルファスポリオレフィンポリマーは a P P 、アイソタクチックを豊富に含むポリオレフィンポリマーは i r P P 、シンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンポリマーは s r P P 、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンポリマーは a - s r P P 、半結晶ポリオレフィンポリマーは s c P P に省略され、及び “ X - g - F G ” 10
は成分 X が官能基 “ F G ” でグラフト (- g -) されていることを示す。

【 0 0 2 9 】

この開示の目的のため、オリゴマーの語は 2 ~ 40 マー単位を有する組成物をいい、ポリマーの語は 41 以上のマー単位を有する組成物をいう。マーとは、オリゴマー化またはポリマー化反応に用いられるモノマーに本来対応するオリゴマーまたはポリマーの単位として定義される。例えば、ポリエチレンのマーはエチレンである。簡単にするために、別段に定めない限り、ポリマーについて言及する場合、当該言及はオリゴマーにも適用される。従って、ポリマー及びオリゴマーの語は、別段に定めない限り、ここで交換可能に用いられる。さらに、別段に定めない限り、“ポリマー”の語はホモポリマー（すなわち、本質的に 1 のモノマーを含むポリマー）及び / またはコポリマー（すなわち、2 以上のモノマーを含むポリマー）の両方を含む。
20

【 0 0 3 0 】

“官能性ポリマー”は、官能基と接触したポリマー及び / またはオリゴマーを意味し、任意で、触媒、熱、開始剤、またはフリーラジカル源と接触させて、当該ポリマーに当該官能基の一部または全部の組み込み、グラフト、結合、物理的付着、及び / または化学的付着を生じる。さらに、“官能性成分”もモノマーから直接重合されたポリマーを含むように定義され（または官能基を有する開始剤を用いる）、ここで、当該ポリマーは鎖末端に官能基を有する。
30

【 0 0 3 1 】

“官能性オリゴマー”は、官能基と接触したオリゴマーを意味し、任意で、触媒、熱、開始剤、またはフリーラジカル源と接触させて、当該オリゴマーに当該官能基の一部または全部の組み込み、グラフト、結合、物理的付着、及び / または化学的付着を生じる。さらに、“官能性オリゴマー”もモノマーから直接オリゴマー化されたオリゴマーを含むように定義され（または官能基を有する開始剤を用いる）、ここで、当該オリゴマーは鎖末端に官能基を有する。

【 0 0 3 2 】

“官能基”とは、重量平均分子量が 1000 以下、及び炭素 - 炭素二重結合、炭素 - 炭素三重結合、及び / またはヘテロ原子を有する任意の化合物を意味する。好ましくは、官能基はヘテロ原子を含み、ここで、ヘテロ原子は、B、N、O、S i 、P、F、C l 、B r 、I、S、またはこれらの組み合わせである。
40

【 0 0 3 3 】

好ましくは、官能基はヘテロ原子及び不飽和を含む化合物であり、例えば無水マレイン酸である。好ましい官能基は有機酸、有機アミド、有機アミン、有機エステル、有機無水物、有機アルコール、有機酸ハロゲン化物（例えば、酸塩化物、酸臭化物等）、有機過酸化物、及びこれらの塩である。

【 0 0 3 4 】

ポリオレフィン立体規則性

オレフィンポリマー及びオリゴマー（“ポリオレフィン”または“ポリオレフィンポリ

10

20

30

40

50

マー”) は一般的に、及び特にプロピレンまたはその他の C₃ 以上の - オレフィンモノマーを含むポリ - - オレフィンポリマーは、ポリマー骨格鎖からペンドントするヒドロカルビル基を含む。ペンドントヒドロカルビル基は、ポリマー骨格鎖に関して決定される異なる立体化学構造に配置できる。これらの配置はアタクチック、アイソタクチック、及び / またはシンジオタクチック構造を含む。

【 0 0 3 5 】

ポリオレフィンポリマーの立体規則性の程度及び種類はそのようなポリマーを含む組成物の物理的特性を決定する。そのような組成物のその他の決定要因はモノマー、コモノマー、オリゴマーの種類及び相対濃度、存在するポリマーの重量平均分子量 (M_w)、存在するポリマーの分子量分布 (MWD)、ポリマーの結晶化度等を含み得る。

10

【 0 0 3 6 】

立体規則性は、オレフィンポリマー、特にポリ - - オレフィンポリマーが有することができる結晶化度に関連し得る。ここで用いる、ポリマーの立体規則性はポリマー分子骨格にペンドントする、ヒドロカルビル基の立体化学規則性を反映する (すなわち、ポリマーの立体規則性) 。

【 0 0 3 7 】

4 種類の立体規則性はポリ - - オレフィンにおいて、アタクチック、標準アイソタクチック、アイソタクチックステレオブロック、及びシンジオタクチックで表現される。これら全ての立体規則性配置はポリプロピレンの場合において主として示されているが、理論的には、1 以上の C₃ 以上の - オレフィン、環状オレフィン、及び / または内部オレフィンからなるポリマーにも同様にそれぞれ可能である。

20

【 0 0 3 8 】

アタクチックポリ - オレフィンはヒドロカルビル基がポリマー分子骨格にペンドントしたものであり、骨格に関して順序正しいものではないと推測される。このランダムまたはアタクチック構造はメチレンとメチン炭素が交互であり、ランダムにメチン炭素を置換した側鎖を配向したポリマー骨格により表される。メチン炭素はランダムに R 及び S 立体配置を有し、類似配置 (“メソ” または “m” ダイアド) または異なる配置 (“ラセミ” または “r” ダイアド) のいずれかの隣接ペアを作る。ポリマーのアタクチック形は大体同じ割合のメソ及びラセミダイアドを含有する。重要なことに、アタクチックポリ - - オレフィン、特にアタクチックポリプロピレンは室温で脂肪族及び芳香族溶媒において可溶であることにより特徴付けることができる。アタクチックポリマーはポリマー鎖中、定期的な順序または繰返し単位を示さないので、そのようなアタクチックポリマーはアモルファス材料といえる。アモルファス材料なので、アタクチックポリマーは分子格子構造を欠く傾向にあり、ほとんど明確な融点を有さない。従って、アタクチックポリ - - オレフィンはアモルファスであり、通常、測定可能な融点を有さず、従って、たとえあったとしてもほとんど結晶性を示さない。

30

【 0 0 3 9 】

アイソタクチックポリ - オレフィンはポリマー骨格鎖の同じ側または同じ平面に間隙を介して並んだペンドントヒドロカルビル基を有するものとして特徴付けられる。例として、アイソタクチックポリプロピレンを用いると、アイソタクチック構造は通常、ポリマーの炭素骨格鎖を通る仮想平面の同じ側上の連続モノマー単位の 3 番目の炭素にくついたペンドントメチル基を有するものとして説明され、例えば、全てのメチル基は以下に示すように、平面の上または下にある。

40

【 化 1 】



【 0 0 4 0 】

アイソタクチック規則性の程度は NMR 技術により測定できる。アイソタクチックペ

50

タド (pentad) の Bovey の NMR 命名法は、. . . m m m m . . . であり、各 “m” は “メソ” ダイアドまたは平面の同じ側上の連続メチル基を表す。

【0041】

アイソタクチックポリ - - オレフィンにおいて、全てのモノマー単位はランダム誤差以外は同じ立体化学構成を有し、ポリマーに沿って表れる。このようなランダム誤差はたいてい立体構成の单一の反転としてみられ、すぐ隣の - オレフィンモノマー挿入において修正でき、増殖するポリマー鎖の元の R または S 配置を回復できる。反転配置の单一挿入は r r トライアド (triads) を生じ、これは NMR においてアイソタクチック構造と以下に示すアイソタクチックステレオブロック形態とを区別する。

【化2】



10

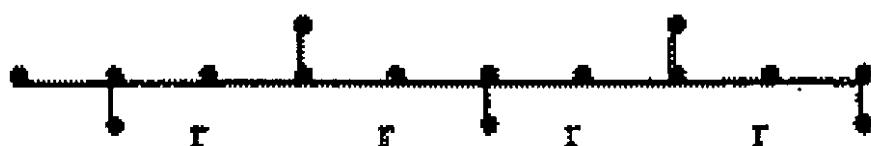
【0042】

ポリ - オレフィンのこのアイソタクチックステレオブロック形態は、アイソタクチックステレオブロックポリ - - オレフィンポリマーの形成時に “部位キラリティー交換” 及び / または “鎖末端制御” メカニズムから生じ得る。鎖構造の規則性の狂いまたは反転はアイソタクティシティを下げ、従って、ポリマーの結晶化が可能である。

【0043】

シンジオタクチックポリ - - オレフィンは、以下に示すように、ポリマー骨格に関して一方の側または平面から反対側または平面の順番に交互に順次ヒドロカルビル基がポリマー分子骨格にペンドントしたものである。

【化3】



20

30

【0044】

NMR 命名法において、このペントドは . . . r r r r . . . として説明され、各 r は “ラセミ” ダイアド、すなわち交互に平面の両側において連続したメチル基を表す (J. A. Ewen, "Catalytic Polymerization of Olefins (オレフィンの触媒重合)" , (Ewen 法); 及び編集、T. Keiji, K. Soga; Kodanska Elsevier Pub; 東京、1986、第 271 頁を参照)。鎖中の r ダイアドの割合はポリマーのシンジオタクティシティの程度を決定し、ポリマーの結晶化度に関係する。

【0045】

シンジオタクチックポリマーの分子鎖骨格は交互の立体化学構造を有するオレフィンのコポリマーであると考えることができる。高度にシンジオタクチックなポリマーは高度に結晶性であり、従って、そのアイソタクチック多形体に類似した明確な融点を有することができ、従って、その融点温度により部分的に特徴付けることができる。

【0046】

ポリオレフィン結晶化度

ポリマーにおける立体規則性の量または純度は当該ポリマーの結晶化度に関連する。アイソタクチック及びシンジオタクチックポリオレフィンの両方は種々のレベルの結晶化度を有することができる。ここでの目的のために、結晶性ポリオレフィンは 35 % 以上の結晶度、好ましくは約 50 % 以上の結晶度を有する。ここで用いる、結晶度の “高い” アイソタクチックポリ - - オレフィン及びシンジオタクチックポリ - - オレフィンの両方

40

50

は、少なくとも 35 重量 % であり、室温でキシレンに不溶である。結晶度が“高い”ポリ - - オレフィンは、明確な融点温度または温度範囲により少なくとも部分的に特徴付けることもできる。また、結晶度の“高い”ポリ - - オレフィンは、65 % 以上の結晶化度、好ましくは 75 % 以上の結晶化度により、少なくとも部分的に特徴付けることもできる。

【0047】

結晶性ポリオレフィンに反して、アモルファスポリ - オレフィンは約 35 % 未満の結晶化度を有する。本質的にアモルファスなポリオレフィン、及び特に本質的にアモルファスなポリ - - オレフィン（例えば、本質的にアモルファスなポリプロピレン）は室温で本質的にキシレン、トルエンに可溶であるとして特徴付けることができる。好ましい本質的にアモルファスなポリオレフィンポリマー、コポリマー、及び / またはオリゴマー、またはそれらのブレンド（集合的に、アモルファスポリオレフィンと呼ぶ）は、存在するアモルファスポリオレフィンの全重量に基づいて、少なくとも約 95 重量 % 、好ましくは少なくとも約 96 重量 % 、好ましくは少なくとも約 97 重量 % 、好ましくは少なくとも約 98 重量 % 、好ましくは少なくとも約 99 重量 % 、好ましくは少なくとも約 99.5 重量 % のアモルファスポリオレフィンが室温でキシレンまたはトルエンに溶解性であるものをいう。アモルファスポリオレフィンはまた、識別できる融点または融点範囲を有さない、またはほとんど有さないものとして特徴付けることもできる。

【0048】

融解熱 (H_f) も、ASTM E 794 - 85 に記載の手順に従って、ポリマーの結晶化度を決定するために用いることができる。例えば、重さ約 7 - 10 mg のサンプルをサンプル皿内で密閉する。示差走査熱量計データ (DSC) は、それから最初にサンプルを約 -50 に冷却し、次に約 10 / 分の速度で約 200 まで徐々に加熱しながら記録する。そして、2 回目の冷却 - 加熱サイクルを適用する前に約 5 分間、約 200 を保つ。1 回目及び 2 回目の熱実験を両方とも記録する。次に、溶融ピークより下の領域を測定し、融解熱及び結晶化度を測定するために用いることができる。結晶化度は好ましくは、式、 $[\text{曲線より下の領域} (\text{J/g}) / B (\text{J/g})] * 100$ を用いて計算し、ここで、B はサンプル中の主なモノマー成分のホモポリマーの融解熱である。これらの B の値は、例えば、Polymer Handbook (ポリマー・ハンドブック) , 第 4 版、John Wiley and Sons により出版、ニューヨーク、1999 から得ることができる。慣例として、ポリマーが複数の溶融または結晶化ピークを示す場合、各ピークより下の合計領域を結晶化度を計算するために用いた。

【0049】

アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン

シンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンポリマー (srPP) は、Ewen 法に従って測定して、少なくとも約 50 % の r ダイアドを含むことができる。好ましい実施態様において、srPP は少なくとも約 55 % の r ダイアド、好ましくは少なくとも約 60 % の r ダイアド、好ましくは少なくとも約 65 % の r ダイアド、好ましくは少なくとも約 70 % の r ダイアド、好ましくは少なくとも約 75 % の r ダイアド、より好ましくは約 80 % 未満の r ダイアドをポリマー中に存在する r 及び m ダイアドの合計数に基づいて含むことができる。

【0050】

アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンポリマー (a-srPP) はシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンポリマーを含むことができ、本質的にその全てが室温でヘキサン、シクロヘキサン、トルエンまたはキシレンに溶解性である。

【0051】

アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンポリマー (a-srPP) はポリマー中に存在するダイアドの合計数に基づいて約 50 % の r ダイアドから約 80 % の r ダイアドを含むことができる。好ましい実施態様において、アモルファス srPP

10

20

30

40

50

は約 5 5 % の r ダイアドから約 7 5 % の r ダイアド、好ましくは約 6 0 % の r ダイアドから約 7 5 % の r ダイアド、好ましくは約 6 0 % の r ダイアドから約 7 0 % の r ダイアド、好ましくは約 6 5 % の r ダイアドから約 7 0 % の r ダイアドを、ポリマー中に存在する r ダイアドの合計数に基づいて含むことができる。

【 0 0 5 2 】

アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンポリマー (a - s r P P) はポリマー中に存在する r ペンタドの合計数に基づいて約 6 . 2 5 % から約 3 1 . 6 % の r ペンタドを含むことができる。好ましい実施態様において、アモルファス s r P P は、約 9 . 1 5 % の r ペンタドから約 3 1 . 6 % の r ペンタド、好ましくは約 1 3 . 0 % の r ペンタドから約 3 1 . 6 % の r ペンタド、好ましくは約 1 3 . 0 % の r ペンタドから約 2 4 . 0 % のえペントド、好ましくは約 1 7 . 9 % の r ペンタドから約 2 4 . 0 % の r ペンタドをポリマー中に存在する r ペンタドの合計数に基づいて含むことができる。
10

【 0 0 5 3 】

好ましい実施態様において、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンポリマーはアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン (a - s r P P r) である。 a - s r P P r は好ましくは、重量平均分子量 (M w) が 5 , 0 0 0 , 0 0 0 以下、数平均分子量 (M n) が約 3 , 0 0 0 , 0 0 0 以下 z - 平均分子量 (M z) が約 1 0 , 0 0 0 , 0 0 0 以下であり、基準としてアイソタクチックポリプロピレンを用いてポリマーの重量平均分子量 (M w) で測定して、 g ' 指数が 1 . 5 以下であり、これら全てはサイズ排除クロマトグラフィーにより測定でき、例えば、 3 D S E D であり、
20 ここで G P C - 3 D とも言う。

【 0 0 5 4 】

好ましい実施態様において、本発明の a - s r P P r は M w が約 5 , 0 0 0 ~ 約 5 , 0 0 0 , 0 0 0 g / モル、より好ましくは M w が約 1 0 , 0 0 0 ~ 約 1 , 0 0 0 , 0 0 0 、より好ましくは M w が約 2 0 , 0 0 0 ~ 約 5 0 0 , 0 0 0 、より好ましくは M w が約 5 0 , 0 0 0 ~ 約 3 0 0 , 0 0 0 であり、ここで M w はここに記載の通り測定する。
20

【 0 0 5 5 】

好ましい実施態様において、本発明の a - s r P P r は M n が約 5 , 0 0 0 ~ 約 3 , 0 0 0 , 0 0 0 g / モル、より好ましくは M n が約 1 0 , 0 0 0 ~ 約 1 , 0 0 0 , 0 0 0 、より好ましくは M n が約 3 0 , 0 0 0 ~ 約 5 0 0 , 0 0 0 、より好ましくは M n が約 5 0 , 0 0 0 ~ 約 2 0 0 , 0 0 0 であり、ここで M n はここに記載の通り測定する。
30

【 0 0 5 6 】

好ましい実施態様において、本発明の a - s r P P r は M z が約 1 0 , 0 0 0 ~ 約 1 0 , 0 0 0 , 0 0 0 g / モル、より好ましくは M z が約 5 0 , 0 0 0 ~ 約 1 , 0 0 0 , 0 0 0 、より好ましくは M z が約 8 0 , 0 0 0 ~ 約 5 0 0 , 0 0 0 、より好ましくは M z が約 1 0 0 , 0 0 0 ~ 約 3 0 0 , 0 0 0 であり、ここで M w はここに記載の通り測定する。
40

【 0 0 5 7 】

好ましい実施態様において、本発明の a - s r P P r は基準としてアイソタクチックポリプロピレンの固有粘度を用いてポリマーの M w で測定した場合、 g ' 指数值値が約 1 ~ 約 1 . 5 、より好ましくは g ' が約 1 . 2 5 ~ 約 1 . 4 5 であり、 g ' は明確であり、ここに記載の通り測定する。

【 0 0 5 8 】

好ましい実施態様において、本発明の a - s r P P r は示差走査熱量計 (D S C) で測定した結晶化温度 (T c) が約 2 0 0 以下、より好ましくは 1 5 0 以下であり、より好ましくは識別できる結晶化温度がない。

【 0 0 5 9 】

好ましい実施態様において、本発明の a - s r P P r は密度が、 A S T M D - 1 5 0 5 試験方法に従って測定して、室温で約 0 . 8 5 ~ 約 0 . 9 5 g / m l 、より好ましくは約 0 . 8 7 ~ 0 . 9 2 g / m l 、より好ましくは約 0 . 8 8 ~ 約 0 . 9 1 g / m l である。
50

【0060】

好ましい実施態様において、本発明の a - s r P P r は、重量平均分子量 M_w に反比例するメルトフロー速度 (MFR) が、ASTM D-1238 (190c、2.16kg) 試験方法に従って測定して、0.2g / 10分以上、好ましくは 2 ~ 500g / 10分、及びより好ましくは 20 ~ 200g / 10分である。

【0061】

アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンはベースポリマー内にオレフィンを含むことができ、従って、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは約 50 重量 % 以上の C₃ ~ C₂₀ オレフィン、好ましくは約 50 重量 % の C₃ ~ C₁₂ オレフィン、及びより好ましくは約 50 重量 % 以上の C₃ ~ C₁₀ オレフィンを含むことができる。10

【0062】

好ましくは、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは約 60 重量 % 以上のプロピレン、好ましくは約 70 重量 % 以上のプロピレン、好ましくは約 80 重量 % 以上のプロピレン、好ましくは約 90 重量 % 以上のプロピレン、好ましくは約 95 重量 % 以上のプロピレン、好ましくは約 99 重量 % 以上のプロピレンをポリマーの全重量に基づいて含むことができる。

【0063】

本発明のアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンはさらに、約 0.5 重量 % 以上のエチレン、好ましくは約 1 重量 % 以上のエチレン、好ましくは約 2 重量 % 以上のエチレン、好ましくは約 3 重量 % 以上のエチレン、好ましくは約 4 重量 % 以上のエチレン、好ましくは約 5 重量 % 以上のエチレンをポリマーの全重量に基づいて含むことができる。20

【0064】

例えば、a - s r P P r はベースポリマーとして少なくとも約 50 重量 % のプロピレン (C₃) とともに、エチレン (C₂) 及び C₄ ~ C₂₀ の オレフィン、好ましくは C₄ ~ C₂₀ の オレフィン、より好ましくは C₄ ~ C₁₂ の オレフィンを含むことができ、さらに好ましくは C₂ 及び C₄ ~ C₁₀ の オレフィンである。

【0065】

好ましい オレフィンの例としては、ブテン - 1、ペンテン - 1、ヘキセン - 1、ヘプテン - 1、オクテン - 1、ノネン - 1、デセン - 1、ウンデセン - 1、ドデセン - 1、トリデセン - 1、ペントデセン - 1、ヘキサデセン - 1、ヘプタデセン - 1、オクタデセン - 1、及び分岐鎖オレフィン、例えば 3 - メチルブテン - 1、4 - メチルペンテン - 1、及び 4, 4 - ジメチルペンテン - 1 が挙げられる。30

【0066】

ベースポリマーに加えて オレフィンの量は、a - s r P P 内に存在する場合、ポリマーの全重量に基づいて、約 0.001 重量 % 以上である。好ましくは、オレフィンの量は約 0.1 重量 % 以上、より好ましくは約 1 重量 % 以上である。その他の オレフィンも約 50 重量 % 以下でベースポリマー中に存在できる。好ましくは、その他の オレフィンの量は約 20 重量 % 以下、より好ましくは約 10 重量 % 以下である。40

【0067】

好ましい実施態様において、本発明の本質的に全ての a - s r P P (好ましくは a - s r P P r) は本質的にアモルファスであり、そのため本質的に全ての a - s r P P は室温でヘキサン、シクロヘキサン、キシレンまたはトルエンにおいて溶解性であることを意味する。ここで用いる、本質的に全ての a - s r P P とは、存在する a - s r P P の全重量に基づいて、少なくとも約 95 重量 %、好ましくは少なくとも約 96 重量 %、好ましくは少なくとも約 97 重量 %、好ましくは少なくとも約 98 重量 %、好ましくは少なくとも約 99 重量 %、好ましくは少なくとも約 99.5 重量 % の a - s r P P が室温 (すなわち、25) でヘキサン、シクロヘキサン、キシレン、またはトルエンに溶解性であるということを意味する。50

【0068】

好みの実施態様において、本発明の a - s r P P 、より好みくは a - s r P P r は、ASTM E 794 - 85 に記載の手順に従って測定した融解熱 (H_f) が、約 10 J / g 以下、好みくは約 9 J / g 以下、好みくは約 8 J / g 以下、好みくは約 7 J / g 以下、好みくは約 6 J / g 以下、好みくは約 5 J / g 以下、好みくは約 4 J / g 以下、好みくは約 3 J / g 以下、好みくは約 2 J / g 以下、好みくは約 1 J / g 以下であり、さらに好みくは融解熱は ASTM E 794 - 85 に記載の手順に従って検出できない。

【0069】

好みの実施態様において、本発明の a - s r P P 、より好みくは a - s r P P r は、ASTM D 5630 に記載の手順に従って測定した灰含量が、存在するポリマーの全量に基づいて約 1 重量 % 以下であり、より好みくは約 0.9 重量 % 以下、より好みくは約 0.8 重量 % 以下、より好みくは約 0.7 重量 % 、より好みくは約 0.6 重量 % 以下、より好みくは約 0.5 重量 % 以下、より好みくは約 0.4 重量 % 以下、より好みくは約 0.3 重量 % 以下、より好みくは約 0.2 重量 % 以下、より好みくは約 0.1 重量 % 以下、より好みくは約 0.05 重量 % 以下、より好みくは約 0.01 重量 % 以下、より好みくは約 0.005 重量 % 以下であり、ASTM D - 5630 に従って測定して、約 0.001 重量 % 以下の灰含量がさらに好み。

【0070】

アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンポリマーの調製

アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生成できる触媒、特にアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンは、米国特許第 5,476,914 号、第 6,184,326 号、第 6,245,870 号、第 5,373,059 号、第 5,374,685 号及び第 5,326,824 号に記載のものを含む。s r P P 、特に s r P P r ポリマーの調製については、米国特許第 3,305,538 号及び第 3,258,455 号 (Natta、他)、米国特許第 4,892,851 号 (Ewen、他)、米国特許第 5,270,410 号 (Job)、米国特許第 5,340,917 号 (Eckman、他)、米国特許第 5,476,914 号 (Ewen、他) に開示されており、その開示の内容の全体をここに引用する。

【0071】

触媒の選択に加えて、反応物質濃度、及び本発明のアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンの調製に用いる反応圧力も重要である。反応温度は、好みくは設定点に対して約 10 以内に制御され、より好みくは約 9 以内、より好みくは約 8 以内、より好みくは約 7 以内、より好みくは約 6 以内、より好みくは約 5 以内、より好みくは約 4 以内、より好みくは約 3 以内、より好みくは約 2 以内である。

【0072】

メタロセン触媒系を使用し、米国特許第 5,476,914 号に開示の方法を用いることにより調製したポリマーは好み。その他の方法と比較して、メタロセン触媒を用いて調製した a - s r P P r は、例えばバナジウム触媒などの他の触媒を用いて生成したポリマーと比較した場合、より狭い分子量分布及び / または均一なコモノマー分布を有し、バナジウム触媒などの他の触媒は本発明のものと比較してより多くの灰含量を有するポリマーを生じる傾向にある。従って、メタロセン生成 a - s r P P は他の a - s r P P と比較して、優れた物理的及び機械的特性及び優れた加工性を有し得る。最も好みの種類の a - s r P P ポリマーは、プロピレン及びエチレンまたはブテン - 1 のメタロセンで触媒されたコポリマーであり、エチレンまたはブテン - 1 コモノマー含量が約 2 ~ 20 重量 % の範囲である。

【0073】

一般的に、a - s r P P は液体充填、一段式反応器内で生成でき、例えば、ジ (p - トリアセチルシリルフェニル) メチレン (シクロペンタジエニル) (3,8 -ジ - t - ブチル

10

20

30

40

50

フルオレニル)ジルコニウムジクロリド、ジ(p - トリエチルシリルフェニル)メチレン(シクロペントジエニル)(3, 8 - ジ - t - プチルフルオレニル)ハフニウムジクロリド、ジ(p - トリエチルシリルフェニル)メチレン(シクロペントジエニル)3, 8 - ジ - t - プチルフルオレニル)ジルコニウムジメチル、ジ(p - トリエチルシリルフェニル)メチレン(シクロペントジエニル)(3, 8 - ジ - t - プチルフルオレニル)ハフニウムジメチル、ジ(p - トリエチルシリルフェニル)メチレン(シクロペントジエニル)(3, 8 - ジ - t - プチルフルオレニル)ハフニウムジメチル、ジ(p - トリエチルシリルフェニル)メチレン(シクロペントジエニル)(3, 3, 6, 9, 9, 12, 12 - オクタメチル - 4, 4, 5, 5, 8, 8, 9, 9 - オクタヒドロジベンジル [b, h] フルオレニル)ジルコニウムジクロリド、ジ(p - トリエチルシリルフェニル)メチレン(シクロペントジエニル)(3, 3, 6, 6, 9, 9, 12, 12 - オクタメチル - 4, 4, 5, 5, 8, 8, 9, 9 - オクタヒドロジベンジル [b, h] フルオレニル)ハフニウムジクロリド、ジ(p - トリエチルシリルフェニル)メチレン(シクロペントジエニル)(3, 3, 6, 6, 9, 9, 12, 12 - オクタメチル - 4, 4, 5, 5, 8, 8, 9, 9 - オクタヒドロジベンジル [b, h] フルオレニル)ジルコニウムジメチル、及びジ(p - トリエチルシリルフェニル)メチレン(シクロペントジエニル)(3, 3, 6, 6, 9, 9, 12, 12 - オクタメチル - 4, 4, 5, 5, 8, 8, 9, 9 - オクタヒドロジベンジル [b, h] フルオレニル)ハフニウムジメチルなどの適当な触媒用いる連続反応器である。
10

【0074】

当該触媒は適当な活性化剤(助触媒)を用いて活性化(プレ活性化)でき、例えば、アルモキサン化合物、修飾アルモキサン化合物、及びイオン化アニオン前駆体化合物があり、イオン化アニオン前駆体化合物は1の反応性結合、金属配位子を引き抜いて金属錯体カチオンを作り、電荷平衡非配位性または弱配位性アニオンを与え、例えば、メチルアルモキサン(MAO)及びN, N -ジメチルアニリニウムテトラキス(ペンタフルオロフェニル)ボレートがある。他の好ましい活性化剤は、WO2004/026921の段落[00121]～[00151]に記載されている。特に好ましい活性化剤は、WO2004/026921の第77-78頁、段落[00135]に記載のものを含む。
20

【0075】

上述の触媒及び触媒系は溶液、バルク、気体またはスラリー重合プロセスまたはこれらの組み合わせにおいて好ましく用いられ、液相またはバルク相重合プロセスが好ましい。

【0076】

1の実施態様において、本発明は、3～30炭素原子、好ましくは3～12炭素原子、及びより好ましくは3～8炭素原子を有する、1以上のモノマーの重合に関する溶液、バルク、スラリーまたは気相重合反応を目的とする。好ましいモノマーは、プロピレン、ブテン-1、ペンテン-1、4-メチル-ペンテン-1、ヘキセン-1、オクテン-1、デセン-1、3-メチル-ペンテン-1及び環状オレフィンまたはこれらの組み合わせの1以上を含む。その他のモノマーは、ビニルモノマー、ジオレフィン、例えば、ジエン、ポリエン、ノルボルネン、ノルボルナジエン、ビニルノルボルネン、エチリデンノルボルネンモノマーを含むことができる。好ましくは、プロピレンのホモポリマーまたはコポリマーを生成する。他の実施態様において、プロピレンのホモポリマー及びプロピレンと上述の1以上のモノマーとのコポリマーの両方を生成する。
30

【0077】

並列または直列の1以上の反応器を本発明において用いることができる。触媒成分及び活性化剤は溶液またはスラリーとして送ることができ、反応器に送る直前に直列で活性化させて反応器に別々に送ってもよく、または活性化溶液またはスラリーとして反応器にプレ活性化して送り込んでもよい。好ましい操作は直列で2溶液を活性化することである。複数の触媒を反応器内に導入する方法についてのさらなる情報については、米国特許第6,399,722号及びWO0130862A1を参照されたい。これらの文献は気相反応器に重点を置いたものであるが、記載の技術は、連続攪拌槽反応器、スラリーループ反応器などのその他の種類の反応器にも同様に適用できる。重合は、モノマー、コモノマー、触媒/活性化剤、スカベンジャー及び任意の改質剤を单一反応器に連続的に加える單一
40

反応器操作、または上述の成分を一連の接続した2以上の各反応器に加える連続反応器操作において行う。触媒成分は一連の第1の反応器に加えることができる。また、触媒成分は両方の反応器に加えることができ、1の成分を第1の反応に加え、他の成分をその他の反応器に加える。

【0078】

1の実施態様において、500 ppm以下 の水素を重合に加えることができ、または400 ppm以下、または300 ppm以下である。他の実施態様において、少なくとも50 ppmの水素を重合に加え、または100 ppm以上、または150 ppm以上である。

【0079】

官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン

本発明は、上述のアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、官能基、及び官能化触媒の接触生成物を含むことができ、官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生じる。好ましくは、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンはアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンであり、官能基は無水マレイン酸であり、官能化触媒は有機化合物酸化物であり、無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンを含有する接触生成物を生じる。

【0080】

従って、本発明は1以上の他の成分でさらに官能化され、ポリオレフィンに1以上の官能性を与えた上述のアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを含むことができる。この官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは好ましくはアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンであり、無水マレイン酸で官能化されている。従って、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは不飽和化合物（例えば、炭素-炭素二重結合、炭素-炭素三重結合を含む化合物、及び／またはヘテロ原子を含む化合物（例えば、B、N、O、Si、P、ハロゲン（例えば、F、Cl、Br、I）、及び／またはS））で官能化できる。官能基は、芳香族化合物、ビニル化合物、有機酸、有機アミド、有機アミン、有機エステル、有機ジエステル、有機イミド、有機無水物、有機アルコール、有機酸ハロゲン化物、有機過酸化物、及び／または塩、またはこれらの誘導体を含むことができる。

【0081】

参照を簡略化するために、別段に定めない限り、不飽和化合物及び／またはヘテロ原子を含む化合物は、集合的にここでは“官能基、（略記、FG）”とする。官能化（またはグラフト）とは、1以上の官能基が本発明のアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン（a-srPP）に組み込まれ、グラフトされ、結合し、物理的及び／または化学的に付着し、官能基により官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生成することを意味する（略記、“a-srPP-g-FG”、ここで、“-g-FG”はグラフトされた官能基を表す）。ポリオレフィンの官能化は好ましくは、ポリマー骨格上で起こるが、ポリマー末端及びポリマー骨格にペンドントしたポリマーの一部で起こってもよい。また、官能化はその他の官能基で、及び種々のポリマー鎖間でも起こり得る。

【0082】

好ましい実施態様において、官能性シンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは本質的にアモルファスであり、本発明の本質的に全てのa-srPP-g-FGは室温でヘキサン、シクロヘキサン、キシレン、またはトルエン中で溶解性である。そのようなものとして、a-srPP-g-FGは、存在するa-srPP-g-FGの全重量に基づいて少なくとも約95重量%、好ましくは少なくとも約96重量%、好ましくは少なくとも約97重量%、好ましくは少なくとも約98重量%、好ましくは少なくとも約99重量%、好ましくは少なくとも約99.5重量%が室温でヘキサン、シクロヘキサン、キシレン、またはトルエン中で溶解性である。

【0083】

典型的な実施態様として、官能基（すなわち、官能基を含む化合物）はここに詳細に説明するように、ラジカル共重合を利用して、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン（a-srPPr）上にグラフトでき、フリーラジカル開始剤の使用を含んでもよい。当該方法はここでグラフト共重合と呼ぶ。結果として官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むプロピレンポリマーまたは官能性ポリマーのブレンドを生じる。従って、本発明はポリオレフィン、好ましくはアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンと官能基とをフリーラジカル開始剤の存在下で接触させた結果物を含む。

【0084】

官能基の好ましい例としては、不飽和カルボン酸及びその塩とともに、酸誘導体、例えば、限定されないが、無水マレイン酸、無水シトラコン酸、無水2-メチルマレイン酸、無水2-クロロマレイン酸、無水2,3-ジメチルマレイン酸、ビシクロ[2.2.1]-5-ヘプテン-2,3-ジカルボン酸無水物、及び4-メチル-4-シクロヘキセン-1,2-ジカルボン酸無水物、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、シトラコン酸、メサコン酸、クロトン酸、ビシクロ(2.2.2)オクト-5-エン-2,3-ジカルボン酸無水物、1,2,3,4,5,&g、1o-オクタヒドロナフタレン-2,3-ジカルボン酸無水物、2-オクサ-1,3-ジケトスピロ(4.4)ノン-7-エン、ビシクロ(2.2.1)ヘプト-5-エン-2,3-ジカルボン酸無水物、マレオピマル酸(maleopimamic acid)、テトラヒドロタル酸無水物、ノルボルン-5-エン-2,3-ジカルボン酸無水物、ナド酸無水物、メチルナド酸無水物、無水ハイミック酸、無水メチルハイミック酸、及び/またはx-メチル-ビシクロ(2.2.1)ヘプト-5-エン-2,3-ジカルボン酸無水物(XMNA)が挙げられる。

【0085】

カルボン酸エステルの例としては、不飽和カルボン酸エステルを含み、例えば、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸ブチル、メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、及びメタクリル酸ブチルである。

【0086】

加水分解性不飽和シラン化合物は、ラジカル重合性不飽和基及びアルコキシリル基またはシリル基を分子内に含むことができ、従って、当該化合物はビニル基に結合した加水分解性シリル基及び/またはアルキレン基によりビニル基に結合した加水分解性シリル基、及び/またはアクリル酸、メタクリル酸等のエステルまたはアミドに結合した加水分解性シリル基を有する化合物を有する。これらの例として、ビニルトリクロロシラン、ビニルトリス(ベータ-メトキシエトキシ)シラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、ガンマ-メタクリロキシプロピルトリメトキシシランモノビニルシラン及びモノアリルシランが挙げられる。

【0087】

不飽和ハロゲン化炭化水素の例としては、塩化ビニル及び塩化ビニリデンを含む。

【0088】

グラフト共重合に用いるラジカル開始剤の好ましい例としては、有機過酸化物、例えば、過酸化ベンゾイル、メチルエチルケトンペルオキシド、シクロヘキサンペルオキシド、t-ブチルペルオキシソプロピルカーボネート、ジ-ti-ブチルペルフタレート(perphthalate)、2,5-ジメチル-2,5-ジ(t-ブチルペルオキシ)ヘキセン(Lupersol 101、Elf Atochem)、2,5-ジメチル-2,5-ジ(t-ブチルペルオキシ)ヘキセン-3、ジ-t-ブチルペルオキシド、クメンヒドロペルオキシド、t-ブチルヒドロペルオキシド、ジラウリルペルオキシド及びジクミルペルオキシドが挙げられる。

【0089】

好ましい実施態様において、a-srPPrは無水マレイン酸(MA)でグラフトでき、

10

20

30

40

50

無水マレイン酸でグラフトされた官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンを生成し(a - s r P P r - g - M A)、ここで無水マレイン酸は a - s r P P r が含むポリマー鎖のいずれかに共有結合できる。ポリマー上に官能的にグラフトした無水物は無水物として維持でき、酸及び / またはアルデヒド官能基内に酸化でき、及び / または当業界で公知の方法によりさらに反応させてアミド、アミン、エステル、酸塩等の官能基のその他の誘導体を導入できる。

【 0 0 9 0 】

好みしい実施態様において、官能基は存在する官能性ポリオレフィンの全重量に基づいて、官能性ポリマー（例えば、a - s r P P - g - F G ）内に約 0 . 0 0 5 ~ 9 9 重量 % で存在する。好みしい実施態様において、官能基は存在する官能性ポリオレフィンまたはそのブレンドの全重量に基づいて、約 0 . 0 1 ~ 9 9 重量 % 、好みしくは 0 . 0 5 ~ 9 0 重量 % 、好みしくは 0 . 1 ~ 7 5 重量 % 、より好みしくは 0 . 5 ~ 6 0 重量 % 、より好みしくは 0 . 5 ~ 5 0 重量 % 、より好みしくは 0 . 5 ~ 4 0 重量 % 、より好みしくは 0 . 5 ~ 3 0 重量 % 、より好みしくは 0 . 5 ~ 2 0 重量 % 、より好みしくは 0 . 5 ~ 1 5 重量 % 、より好みしくは 0 . 5 ~ 1 0 重量 % 、より好みしくは 0 . 5 ~ 5 重量 % 、より好みしくは 0 . 5 ~ 3 重量 % 、より好みしくは 0 . 5 ~ 2 重量 % 、より好みしくは 0 . 5 ~ 1 重量 % で存在する。

【 0 0 9 1 】

さらに好みしい実施態様において、官能性アモルファスポリオレフィンは、無水マレイン酸でグラフトされたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンである(a - s r P P r - g - M A)。さらに好みしい実施態様において、官能基無水マレイン酸は、存在するアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンまたはそのブレンドの全重量に基づいて、ここに記載の通り測定して濃度約 0 . 0 0 5 ~ 1 0 重量 % M A 、より好みしくは 0 . 0 1 ~ 1 0 重量 % M A 、より好みしくは 0 . 5 ~ 1 0 重量 % M A 、より好みしくは 0 . 5 ~ 5 重量 % M A 、より好みしくは 1 ~ 5 重量 % M A 、より好みしくは 1 ~ 2 重量 % M A 、より好みしくは 1 ~ 1 . 5 重量 % M A で含むポリマーまたはポリマーブレンド内に存在する。

【 0 0 9 2 】

本発明の官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン(a - s r P P - g - F G)、好みしくは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン(a - s r P P r - g - M A)は、E w e n 法に従って測定して、少なくとも約 5 0 % の r ダイアド、及び約 8 0 % 未満の r ダイアドを含み得る。好みしい実施態様において、a - s r P P r - g - M A は、ポリマー中に存在する r 及び m ダイアドの合計数に基づいて、少なくとも約 5 5 % のダイアド、好みしくは少なくとも約 6 0 % の r ダイアド、好みしくは少なくとも約 6 5 % の r ダイアド、好みしくは少なくとも約 7 0 % の r ダイアド、好みしくは少なくとも約 7 5 % の r ダイアド、より好みしくは約 8 0 % 未満の r ダイアドを含むことができる。

【 0 0 9 3 】

官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンポリマー(a - s r P P - g - F G)、好みしくは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン(a - s r P P r - g - M A)は、ポリマー中に存在する r ペンタドの合計数に基づいて、約 6 . 2 5 % ~ 約 3 1 . 6 % の r ペンタドを含むことができる。好みしい実施態様において、a - s r P P - g - F G は、ポリマー中に存在する r ペンタドの合計数に基づいて、約 9 . 1 5 % の r ペンタドから約 3 1 . 6 % の r ペンタド、好みしくは約 1 3 . 0 % の r ペンタドから約 3 1 . 6 % の r ペンタド、好みしくは約 1 3 . 0 % r ペンタドから約 2 4 . 0 % の r ペンタド、好みしくは約 1 7 . 9 % の r ペンタドから約 2 4 . 0 % の r ペンタドを含むことができる。

【 0 0 9 4 】

好みしい実施態様において、官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリ

10

20

30

40

50

オレフィンポリマーは官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン(a - s r P P r - g - F G)であり、好ましくは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン(a - s r P P r - g - M A)である。 a - s r P P r - g - F G 、好ましくは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン(a - s r P P r - g - M A)は好ましくは重量平均分子量(M_w)が 5 , 0 0 0 , 0 0 0 以下、好ましくは約 5 0 0 ~ 約 5 , 0 0 0 , 0 0 0 、数平均分子量(M_n)が約 3 , 0 0 0 , 0 0 0 以下、好ましくは約 5 0 0 0 ~ 約 3 , 0 0 0 , 0 0 0 、及び z - 平均分子量(M_z)が約 1 0 , 0 0 0 , 0 0 0 以下、好ましくは約 5 0 0 0 ~ 約 1 0 , 0 0 0 , 0 0 0 であり、これら全てはサイズ排除クロマトグラフィー、例えば 3 D SEC (GPC - 3 D ともいう) により測定できる。

10

【 0 0 9 5 】

好ましい実施態様において、本発明の a - s r P P r - g - F G 、好ましくは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン(a - s r P P r - g - M A)は、 M_w が約 5 , 0 0 0 ~ 約 1 , 0 0 0 , 0 0 0 g / モル、より好ましくは M_w が約 1 0 , 0 0 0 ~ 約 5 0 0 , 0 0 0 、より好ましくは M_w が約 2 0 , 0 0 0 ~ 約 3 0 0 , 0 0 0 、より好ましくは M_w が約 5 0 , 0 0 0 ~ 約 2 0 0 , 0 0 0 であり、 M_w はここに記載の通り測定する。

【 0 0 9 6 】

好ましい実施態様において、本発明の a - s r P P r - g - F G 、好ましくは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン(a - s r P P r - g - M A)は、 M_n が約 2 , 0 0 0 ~ 約 5 0 0 , 0 0 0 g / モル、より好ましくは M_n が約 5 , 0 0 0 ~ 約 3 0 0 , 0 0 0 、より好ましくは M_n が約 1 0 , 0 0 0 ~ 約 2 0 0 , 0 0 0 、より好ましくは M_n が約 2 0 , 0 0 0 ~ 約 1 5 0 , 0 0 0 であり、ここで M_n はここに記載の通り測定する。

20

【 0 0 9 7 】

好ましい実施態様において、本発明の a - s r P P r - g - F G 、好ましくは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン(a - s r P P r - g - M A)は、 M_z が約 1 0 , 0 0 0 ~ 約 1 0 , 0 0 0 , 0 0 0 g / モル、より好ましくは M_z が約 2 0 , 0 0 0 ~ 約 1 , 0 0 0 , 0 0 0 、より好ましくは M_z が約 4 0 , 0 0 0 ~ 約 5 0 0 , 0 0 0 、より好ましくは M_z が約 1 0 0 , 0 0 0 ~ 約 4 0 0 , 0 0 0 であり、ここで M_z はここに記載の通り測定する。

30

【 0 0 9 8 】

好ましい実施態様において、本発明の a - s r P P r - g - F G 、好ましくは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン(a - s r P P r - g - M A)は、示差走査熱量計(DSC)で測定した結晶化温度(T_c)が約 1 2 0 以下、より好ましくは 1 0 0 以下、より好ましくは識別できる結晶化温度がない。

30

【 0 0 9 9 】

好ましい実施態様において、本発明の a - s r P P r - g - F G 、好ましくは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン(a - s r P P r - g - M A)は、重量平均分子量 M_w に反比例するメルトフロー速度(MFR)が、 ASTM D - 1 2 3 8 (1 9 0 c 、 2 . 1 6 k g) 試験方法に従って測定して、 0 . 2 g / 1 0 分以上、好ましくは 2 ~ 5 0 0 g / 1 0 分、及びより好ましくは 2 0 ~ 2 0 0 g / 1 0 分である。

40

【 0 1 0 0 】

a - s r P P r - g - F G のアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、好ましくは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン(a - s r P P r - g - M A)はベースポリマー内に オレフィンを含むことができる。例えば、 a - s r P P r - g - F G はベースポリマーとしてプロピレン(C₃)とともに、エチレン(C₂)及び C₄ ~ C₄ 0 の オレフィン、好ましくは

50

C4～C20のオレフィン、より好ましくはC4～C12のオレフィンを含むことができ、C2及びC4～C10オレフィンがさらにより好ましい。

【0101】

好ましいオレフィンの例としては、ブテン-1、ペンテン-1、ヘキセン-1、ヘプテン-1、オクテン-1、ノネン-1、デセン-1、ウンデセン-1、ドデセン-1、トリデセン-1、ペントデセン-1、ヘキサデセン-1、ヘプタデセン-1、オクタデセン-1、及び分岐鎖オレフィン、例えば3-メチルブテン-1、4-メチルベンテン-1、及び4,4-ジメチルベンテン-1が挙げられる。

【0102】

ベースポリマーに加えてオレフィンの量は、a-srPPr-g-FG、好ましくは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン(a-srPPr-g-MA)内に存在する場合、ポリマーの全重量に基づいて、約0.001重量%以上である。好ましくは、オレフィンの量は約0.1重量%以上、より好ましくは約1重量%以上である。その他のオレフィンも約50重量%以下でベースポリマー中に存在できる。好ましくは、その他のオレフィンの量は約20重量%以下、より好ましくは約10重量%以下である。

【0103】

好ましい実施態様において、本発明のa-srPP-g-FG、より好ましくはa-srPPr-g-FG、さらにより好ましくは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン(a-srPPr-g-MA)は、ASTM E794-85に記載の手順に従って測定した融解熱(Hf)が、約10J/g以下、好ましくは約9J/g以下、好ましくは約8J/g以下、好ましくは約7J/g以下、好ましくは約6J/g以下、好ましくは約5J/g以下、好ましくは約4J/g以下、好ましくは約3J/g以下、好ましくは約2J/g以下、好ましくは約1J/g以下であり、さらに好ましくは融解熱はASTM E794-85に記載の手順に従って検出できない。

【0104】

好ましい実施態様において、a-srPP-g-FGに官能化される前の本発明のa-srPP、より好ましくはa-srPPr、好ましくは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン(a-srPPr-g-MA)は、ASTM D5630に記載の手順に従って測定した灰含量が、存在するポリマーの全量に基づいて約1重量%以下であり、より好ましくは約0.9重量%以下、より好ましくは約0.8重量%以下、より好ましくは約0.7重量%、より好ましくは約0.6重量%以下、より好ましくは約0.5重量%以下、より好ましくは約0.4重量%以下、より好ましくは約0.3重量%以下、より好ましくは約0.2重量%以下、より好ましくは約0.1重量%以下、より好ましくは約0.05重量%以下、より好ましくは約0.01重量%以下、より好ましくは約0.005重量%以下であり、ASTM D-5630に従って測定して、約0.001重量%以下の灰含量がさらによい。

【0105】

好ましい実施態様において、官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、好ましくは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン(a-srPPr-g-MA)は熱安定性であり、そのため180度48時間、熱老化された(例えば、保持された)a-srPP-g-FGのガードナー色(ASTM D-1544-68により測定)が最初の組成物のガードナー色と比較した場合、7ガードナー単位(Gardner units)よりも多く変化しないことを意味する。好ましくは、官能性ポリマーまたは官能性ポリマーを含む組成物のガードナー色は、48時間、融点以上で加熱した後、加熱前(例えば、熱老化前)の最初の官能性ポリマーと比較して、6ガードナー単位より多く変化せず、好ましくは5、さらに好ましくは4、さらに好ましくは3、さらに好ましくは2、さらに好ましくは1ガードナー単位より多く変化しない。

10

20

30

40

50

【0106】

無水マレイン酸で官能化（例えば、グラフト）されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンの場合（ $a - s r P P r - g - M A$ ）、組成物中に存在する遊離酸基が減少した熱安定性を生じ得ることが発見されている。従って、好ましい実施態様において、 $a - s r P P r - g - M A$ 、または $a - s r P P r - g - M A$ を含むブレンド中に存在する遊離酸基の量は、存在する $a - s r P P r - g - M A$ の全重量に基づいて、約1000 ppm未満、より好ましくは約500 ppm未満、さらにより好ましくは約100 ppm未満である。

【0107】

また、種々の亜リン酸塩は不安定性に寄与し得ることも発見されている。従って、さらに他の好ましい実施態様において、 $a - s r P P - g - F G$ 、より好ましくは $a - s r P P r - g M A$ は本質的に亜リン酸塩を含まず、すなわち亜リン酸塩は、 $a - s r P P - g - F G$ 、より好ましくは $a - s r P P r - g M A$ の全重量に基づいて、100 ppm以下で存在することを意味する。10

【0108】

アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンの官能化

本発明の官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン（ $a - s r P P - g - F G$ ）、好ましくは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン（ $a - s r P P r - g - M A$ ）を生成するためのアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン（ $a - s r P P$ ）の官能基（ $F G$ ）を用いた官能化は、官能化する当該ポリマーとともに官能基を、好ましくはラジカル開始剤の存在下で接触させることにより得られる。好ましい実施態様において、当該組成物は使用する1以上のラジカル開始剤の分解温度、またはその温度付近、またはその温度以上で加熱する。20

【0109】

いくつかの実施態様において、使用する官能基の量について特に制限する必要はなく、従って、従来条件、例えばアイソタクチックポリプロピレンを官能化するために用いられる条件などが本発明の官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、好ましくは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン（ $a - s r P P r - g - M A$ ）を生成するために用いることができる。共重合の効率が比較的高いので、官能基の量は少なくともよい場合もある（すなわち、官能性ポリマーの全重量に基づいて、約1重量%以下）。30

【0110】

ラジカル開始剤は官能基の重量に基づいて、好ましくは0.00001~10重量%の割合で用いられる。適用できる場合、加熱温度はポリマー、官能基、及び使用される場合はラジカル開始剤の接触が溶媒の存在下で行われるかどうかに依存する。接触温度は好ましくは約0以上及び約500未満であり、約50~350はより好ましい。加熱温度が50未満の場合、反応は遅く、従って効率が低い可能性がある。350以上の場合、ポリマーまたはその他の成分の分解が起こり得る。従って、本発明の $a - s r P P$ 、好ましくは $a - s r P P r$ は溶媒ベース官能化プロセスを用いて及び/または溶媒を用いない溶融ベース官能化プロセスを用いて官能基と一緒に官能化できる。40

【0111】

溶媒ベースプロセスにおいて、反応は $a - s r P P$ 、好ましくは $a - s r P P r$ を用いて溶液中で行うことができ、または濃度0.1~50重量%のスラリーとしてラジカルに安定な2~20炭素原子、芳香族化合物、ハロゲン化芳香族化合物、及び/またはアルキル置換芳香族炭化水素を有するハロゲン化炭化水素化合物の存在下行うことができる。

【0112】

重要なことに、本発明のアモルファスポリオレフィン、より好ましくはアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、さらにより好ましくはアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンは環状炭化水素及び/または6~20炭素元50

素を有する炭化水素を含む脂肪族溶媒中で官能化できることが見出されている。好ましい脂肪族溶媒はシクロヘキサン、ヘキサン、及びシクロヘキサン及び／またはヘキサンを含む混合物を含む。

【0113】

従って、この予期できなかった発見により芳香族及び／またはハロゲン化溶媒の使用を避けることができ、従って、本発明は環境問題の減少に活用でき、芳香族及び／またはハロゲン化溶媒の使用に関して特に大量生産において抑制することができる。また、この発見により、官能化用重合反応器からのポリマー溶液の直接使用が提供され、従って、ここにより詳細に説明するように、追加終了及び／または再溶解工程が避けられる。さらに、この発見により芳香族溶媒の沸点よりも低い沸点を有する溶媒の使用が可能となる利点もある。官能化においてベンゼン、トルエン、キシレン等の沸点よりも低い沸点を有する溶媒を使用することにより、例えば、特定の芳香族溶媒と比較して低温及び／または高圧での官能性ポリマーからの溶媒除去が促進される。従って、低温での除去はポリマーフィルタを少なくし、より効率的な溶媒除去が得られ、及び芳香族溶媒の溶媒除去に必要な操作条件と比較して低温及び／または高圧での操作により生産性の増加及び低コストの溶媒除去結果物を生じることができる。

【0114】

溶融ベース官能化プロセスを用いる官能化プロセスは、溶媒がほとんどまたは全く存在しないなかで、押出し機、混合機等の装置中で行うことができ、好ましくは溶媒は存在せず、当該装置は接触に影響を及ぼす高粘性の成分間で十分な物理的接触を生じることができ、従ってアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンの官能化が起こる。溶融ベース官能化プロセスにおいて、官能化反応は溶液または溶媒ベース官能化プロセスの同じ反応と比較して比較的高温で達成できる。

【0115】

本発明の a - s r P P 、好ましくは a - s r P P r を官能化するその他の方法は、限定されないが、溶液またはスラリー中における（すなわち、溶媒または希釈剤を使用する）、または溶融または混合物中における（すなわち、溶媒を使用しない）、選択的酸化、オゾン分解、エポキシ化等を含む。

【0116】

本発明において、官能化（例えば、グラフト重合）は水性媒体中でも行うことができる。この場合、1以上の分散剤を用いることができる。適当な分散剤の例としては、鹼化酢酸ポリビニル、変性セルロース、例えば、ヒドロキシエチルセルロース及びヒドロキシプロピルセルロース、及びOH基を含む化合物、例えば、ポリアクリル酸及びポリメタクリル酸が挙げられる。さらに、通常の水性懸濁重合において用いられる化合物も広く用いることができる。

【0117】

水性官能化はポリマー、官能基、不水溶性ラジカル開始剤及び／または分散剤を水中に懸濁し、混合物を加熱することにより行うことができる。ここで、水と全官能基との比は、好ましくは1：0.1～1：200であり、より好ましくは1：1～1：100である。加熱温度はラジカル開始剤の半減期が好ましくは0.1～100時間、より好ましくは0.2～10時間になるようにし、好ましくは30～200、より好ましくは40～150である。加熱工程において、混合物は懸濁状態になるように十分に攪拌することが好ましい。このようにして、グラフトポリオレフィンが顆粒形状で得られる。

【0118】

官能基と、官能化されるポリオレフィンを含むポリオレフィンまたはブレンドとの重量比は好ましくは1：0.1～1：10000であり、ラジカル開始剤と官能基との重量比は0.00001～0.1である。

【0119】

上述の通り、官能化 s r P P 中の遊離酸基及び亜リン酸塩の存在は a - s r P P - g - F G 、特に a - s r P P r - g - M A の熱安定性に影響を与える。 a - s r P P - g - M

Aの熱安定性に悪影響を与える遊離酸基及びその他の基の濃度は、以下の通りにして減少及び／または制御される：

1. 反応制御。本質的に完全な反応、及び従って、官能化プロセス中、添加した官能基（例えば、無水マレイン酸）の本質的に完全な消費を保証するために十分な温度及び時間で材料を接触させる；

2. 後洗浄。官能性ポリマーを、官能化反応後、少なくとも1の溶媒、水、希酸、希塩基、またはこれらの組み合わせと接触させる（例えば、洗浄）；

3. マスター・バッチ。官能性ポリマーのマスター・バッチを生成及び／または処理して本質的に遊離酸基及び／またはその他の基を含まないようにする。マスター・バッチは最終組成物に必要な上述の無水マレイン酸官能基濃度を有し、マスター・バッチは所望のレベルの a - s r P P - F G、好ましくは a - s r P P r - M A を最終ブレンド中に生じるために十分な量で最終ブレンド（“レットダウン（let down）”ともいう）中でブレンドされる；または

4. 湿度制御。官能性ポリマーにおける湿度（例えば、水）レベルを無水物（例えば、M A）の無水物官能性（anhydride functionality）を維持するレベルで維持する。

【0120】

脂肪族溶媒を利用する溶液官能化は a - s r P P、好ましくは a - s r P P r - g - M A の熱安定性を改善するために好ましい官能化方法である。

【0121】

溶液中の反応のために、a - s r P P は適当な溶媒中で溶解できる（例えば、ベンゼン、トルエン、またはキシレンなどの芳香族溶媒、またはヘキサンまたはシクロヘキサンなどの脂肪族溶媒）。a - s r P P を含む溶液を所望の温度（例えば、約 60 ~ 150）まで加熱した後、フリーラジカル開始剤及び官能基（例えば、反応性アミド及び／または無水マレイン酸）をグラフトプロセスを開始するために加えることができる。約 30 分～約 5 時間以上攪拌した後、当該溶液をアセトンなどの第 2 の溶媒内に沈殿させ、官能性ポリマーを非反応改質剤から分離する。次に、ろ過生成物を真空下で乾燥させ（例えば、120 で）、最終的な官能性アモルファスポリオレフィン生成物を得る。

【0122】

従って、1 の実施態様において、官能化プロセスは以下の工程を含むことができる：

1) オレフィンモノマー（例えば、プロピレン）、触媒、活性化剤等をヘキサンまたは脂肪族溶媒の混合物中、反応器に加える工程；

2) 触媒溶液重合工程；

3) モノマー除去工程；

4) 溶媒除去及び生成物乾燥を行い、ポリマーを生成する工程；

5) 溶液官能化のため、非脂肪族溶媒（例えば、ベンゼン、トルエン、または非炭化水素溶媒）中にポリマーを再溶解する工程；

6) 溶媒ベース官能化工程；及び

7) 溶媒ベース官能化において用いた溶媒の除去工程。

【0123】

好ましい実施態様において、官能化プロセスは以下の工程を含む：

1) オレフィンモノマー（例えば、プロピレン）、触媒、活性化剤等をヘキサンまたは脂肪族溶媒の混合物中、反応器に加える工程；

2) 触媒溶液重合工程；

3) モノマー除去工程；

4) 溶媒ベース官能化工程；及び

5) 官能化ポリオレフィンの分離（例えば、溶媒添加、温度制御、及び／または溶媒ベース官能化において用いた溶媒除去による沈殿）。このような好ましい方法は連続攪拌槽または順次反応槽により実現できる。

【0124】

10

20

30

40

50

従って、本発明の官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生成する方法は以下の工程を含むことができる：

1) オレフィンモノマー、メタロセン触媒及び活性化剤を反応器の脂肪族溶媒中に加える工程；

2) 反応器中でオレフィンモノマーの触媒溶液重合を行い、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生成する工程；

3) モノマー除去を行い、非反応オレフィンモノマーを除去する工程；

4) 溶媒ベース官能化工程；溶液重合工程で利用される脂肪族溶媒中で、フリーラジカル開始剤の存在下、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンと官能基とを、官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生成するために十分な温度及び時間で、接触させる工程を含む；及び任意で、10

5) アセトンなどの溶媒の添加により、及び／または脂肪族溶媒の除去により、官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを沈殿させる工程。

【0125】

プロピレンベースホモポリマー及びコポリマーを溶液中で官能化させることは最良の機能化学制御のために望ましい。さらに、いくつかの用途において、官能性ポリマーが目的用途まで溶液で輸送できることが望ましく、例えば、TPOバンパーのためのプライマーである。20

【0126】

溶融物の官能化は溶液の場合と類似のプロセスを含むが、例外として、溶媒が必要とされず、反応は混合装置（例えば、押出し機、ブランダー）中で起こり、温度は溶媒ベースプロセスよりも高い。従って、本発明の官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生成する方法は、以下の工程を含むことができる：

A. アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、官能基、及びフリーラジカル開始剤とを含む溶融物を混合装置に加える工程；及び

B. 前記溶融物を混合装置内で、官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生成するために十分な温度及び時間で接触させる工程。

【0127】

好ましい実施態様において、当該方法は以下の工程を含むことができる：

A. アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、無水マレイン酸、及びフリーラジカル開始剤として有機過酸化物とを含む溶融物を混合装置に加える工程；及び30

B. 前記溶融物を混合装置内で、本発明のa-srPP-g-MAを生成するために十分な温度及び時間で接触させる工程。

【0128】

好ましい実施態様において、ナノクレイをポリマーに加えることができ、官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生成する方法は以下の工程を含むことができる：

A. アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、官能基、任意のナノクレイ、及びフリーラジカル開始剤とを含む溶融物を混合装置に加える工程；40

B. 前記溶融物及び任意のナノクレイとを混合装置内で、前期官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを生成するために十分な温度及び時間で接触させる工程であって、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンが約50重量%以上のC₃-C₄0-オレフィンを含み；

ポリオレフィン中に存在するr及びmダイアドの合計数に基づいて、約50%～約80%のrダイアドを含み；及び

ASTM E794-85に記載の手順に従って、融解熱が10J/g以下である。

【0129】

好ましくは、当該方法は、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンがさらに1重量%以下の灰含量を含み、及び／または官能性アモルファスシンジオタク50

チックを豊富に含むポリオレフィンが無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンであり、及び／または、前記接触工程Bの後に有機クレイの添加をさらに含む。

【0130】

本発明のポリマーを含む用途

アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、好ましくはアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン及び官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、好ましくは官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン、より好ましくは、無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンは多数の用途において用いることができる。例としては、射出成形部分、フィルム、ラミネート、基質、その他の製品が挙げられ、及び再利用材料、純粋な物質または両方の混合物から種々の材料の形成における相溶化剤が挙げられる。

【0131】

射出成形部分は当業者に公知の通り、射出成形により生成される種々の製品を含む。フィルムは、メルトプローフィルム、押し出しフィルム、キャストフィルム等を含む。ラミネートは1以上の層を含み、追加の接着剤は含んでも含まなくてもよく、及び／または、ラミネート層間に配置されるその他の物質を含む。基質は非極性または極性であり、本発明の官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン内で官能基の組込みにより影響を受け得る。

【0132】

本発明のポリマーはマスターバッチを含んでもよい。実施態様において、マスターバッチは、上述のアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、好ましくはアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン、及び／または上述の官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、好ましくは官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン、より好ましくは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンを含むことができる。マスターバッチは最終用途に一致した種々のその他の添加物及び／またはその他の成分も含むことができ、従って、マスターバッチ内の物質は特定の最終用途に“レットダウン”できる。

【0133】

シンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、好ましくはアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン及び官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、好ましくは官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン、より好ましくは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンのアモルファス特性も本発明を液体形状での利用を可能とし、好ましくは適当な溶媒中に溶解する。そのようなものとして、本発明は当業者に公知の技術により、霧化及び／またはスプレーにして基質に適用できる。

【0134】

ポリマー形成

アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、好ましくはアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン及び官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、好ましくは官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン、より好ましくは無水マレイン酸により官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンは、少なくとも1、好ましくは1以上の添加物と組み合わせてブレンドとして利用できる。本発明のポリマーは従って、接着剤ブレンド中、添加物、接着剤、またはベースポリマーとして使用できる。ここで用いる、添加物はポリマーブレンドの物理的特性を促進、改善、修正または妨害する任意の物質またはその組み合わせ、または本発明のアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、好ましくはアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレ

10

20

30

40

50

ン、及び／または官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、好ましくは官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン、より好ましくは無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンの使用を助ける任意の物質またはその組み合わせであつてよい。

【0135】

ここでの使用に適した添加物は、1以上の中C2-C40ポリマー、エラストマー、ランダムコポリマー、インパクトコポリマー、フラクショナル(fractional)ポリマー、粘着付与剤、架橋剤、酸化防止剤、中和剤、成核剤、充填剤、接着促進剤、油分、可塑剤、ワックス、低分子量ポリマー、エステルポリマー及び／またはその他の添加物を含むことができる。10

【0136】

C2-C40ポリマー

1の実施態様において、添加物は種々のC2-C40ポリオレフィンポリマー(“ポリマー”)を単独またはその他のポリマー及び／または添加物とのブレンドで含むことができる。従って、添加物は別個のポリマー単独または別個のポリマーのブレンドを含むことができる。当該ブレンドは2以上のポリオレフィン、例えばポリプロピレン・ポリエチレンコポリマー、2以上のポリプロピレンコポリマーを含むことができ、ここでポリマーブレンドの各成分は単独で添加物として適したものである。

【0137】

好ましい実施態様において、添加物はメタロセンポリエチレン(mPE's)及び／またはメタロセンポリプロピレン(mPPr's)を含む。mPE及びmPPrホモポリマーまたはコポリマーは通常、モノ-またはビス-シクロペンタジエニル遷移金属触媒を用いて、アルモキサン及び／または非配位性アニオンと組み合わせて溶液、スラリー、高圧または気相中で生成される。触媒及び活性化剤は担持または非担持でもよく、シクロペンタジエニル環は置換または非置換でもよい。そのような触媒／活性化剤の組み合わせを用いて生成されるいくつかの商品はエクソンモービルケミカル社(ベイタウン(Baytown)、テキサス)から、商品名EXCEED(登録商標)、ACHIEVE(登録商標)及びEXACT(登録商標)として市販されている。そのようなmPEホモポリマー及びコポリマーを生成するための方法及び触媒／活性化剤のさらなる情報については、WO94/26816; WO94/03506; EPA277,003; EPA277,004; 米国特許第5,153,157号、米国特許第5,198,401号、米国特許第5,240,894号；米国特許第5,017,714号；CA1,268,753号；米国特許第5,324,800号；EPA129,368号；米国特許第5,264,405号、EPA520,732号；WO92/00333；米国特許第5,096,867号；米国特許第5,507,475号；EPA426,637；EPA573,403；EPA520,732；EPA495,375；EPA500,944；EPA570,982；WO91/09882号；WO94/03506号及び米国特許第5,055,438号を参照されたい。2030

【0138】

他の実施態様において、添加物はホモポリプロピレン、50重量%以下のエチレンまたはC4～C20-オレフィンと共に重合したプロピレン、アイソタクチックポリプロピレン、高度にアイソタクチックなポリプロピレン(例えば、約50%より多くのm-ペナードを有する)、シンジオタクチックポリプロピレン、プロピレンとエチレンとのランダムコポリマー、及び／またはブテン及び／またはヘキセン、ポリブテン、酢酸エチレンビニル、低密度ポリエチレン(密度0.915～0.935g/cm³)、直鎖低密度ポリエチレン、超低密度ポリエチレン(密度0.86～0.90g/cm³)、極低密度ポリエチレン(密度0.90～0.915g/cm³)、中密度ポリエチレン(密度0.935～0.945g/cm³)、高密度ポリエチレン(密度0.945～0.98g/cm³)、酢酸エチレンビニル、アクリル酸エチレンメチル、アクリル酸、ポリメチルメタクリル酸またはその他の高圧フリー・ラジカルプロセスにより重合可能なポリマーとのコポリマ4050

ー、塩化ポリビニル、ポリブテン - 1、アイソタクチックポリブテン、ABS樹脂、エラストマー、例えば、エチレン - プロピレンゴム（EPR）、加硫EPR、EPDM、プロックコポリマー-エラストマー、例えばSBS、ナイロン（ポリアミド）、ポリカーボネット、PET樹脂、架橋ポリエチレン、エチレンとビニルアルコールとのコポリマー（EVOH）、芳香族モノマーのポリマー、例えば、ポリスチレン、ポリ - 1エステル、グラフトコポリマー、通常はポリアクリロニトリルホモポリマーまたはコポリマー、熱可塑性ポリアミド、ポリアセタール、フッ化ポリビニリデン及びその他のフッ化エラストマー、ポリエチレングリコール及びポリイソブチレンを含む。

【0139】

ここで添加物として有用なその他の好ましいプロピレンコポリマーは“第2のポリマー成分（SPC）”として、同時継続中の1999年5月13日に提出された米国出願U.S.N.60/133,966及び1999年6月29日に提出されたU.S.S.N.60/342,854号に詳細に記載されており、1999年7月1日に提出されたU.S.S.N.90/346,460号に“プロピレンオレフィンコポリマー”としてさらに詳細に記載されている。これらの文献は米国実務の目的のため、その全体をここに引用するものとする。

【0140】

好ましい実施態様において、添加物はプロピレン、1以上のコモノマー（例えば、エチレン、4~8の炭素原子を有する - オレフィン、及びスチレン）及び任意で1以上の、ジエンを含むことができる。ジエンの量は好ましくは約10重量%以下、より好ましくは約5重量%以下である。好ましいジエンは、エチレンプロピレンゴム、好ましくはエチリデンノルボルネン、ビニルノルボルネン、ジシクロペントジエン、及び1,4-ヘキサジエン（DuPont Chemicalsより市販）の加硫に用いられるものを含む。

【0141】

1の実施態様において、添加物は2以上のポリプロピレンコポリマーを含むことができ、好ましくはそれぞれ - オレフィン含量が異なり、一方は7~13モル% - オレフィンの範囲であり、他方は14~22モル% - オレフィンの範囲内である。好ましい - オレフィンはエチレンである。2つのポリマー成分の使用により、最終ブレンドの引張伸長特性に有用な改善をもたらすと考えられる。

【0142】

ここで添加物として適当なポリマーは、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むC3-C40ホモポリマーまたはコポリマー、及び/または少なくとも部分的に結晶性のシンジオタクチックを豊富に含むC3-C40ホモポリマーまたはコポリマーも含む。少なくとも部分的に結晶性のポリオレフィンは、室温で少なくとも10重量%のキシレンまたはトルエン溶解性を有するポリオレフィンホモポリマーまたはコポリマーとして定義される。好ましくは、添加物は、室温でキシレンまたはトルエンへの溶解性が15重量%、好ましくは20重量%、好ましくは25重量%、好ましくは30重量%、好ましくは35重量%、好ましくは40重量%、好ましくは45重量%、好ましくは50重量%、好ましくは55重量%、好ましくは60重量%、好ましくは65重量%、好ましくは70重量%、好ましくは75重量%、好ましくは80重量%、好ましくは85重量%、好ましくは90重量%、好ましくは95重量%であるシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを含む。さらに好ましくは、上述の添加物のシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは、少なくとも部分的に結晶性のシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン（s r P P r）を含む。

【0143】

少なくとも部分的に結晶性のシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン（s r P P r）は少なくとも約80%[r]ダイアドを含むものとしてここで定義できる。好ましくは少なくとも約85%[r]ダイアド、好ましくは少なくとも約90%[r]ダイアド、より好ましくは少なくとも約95%[r]ダイアド、さらにより好ましくは少なくとも約99%[r]ダイアドである。

10

20

30

40

50

【0144】

また、添加物は、ベースポリマーとしてポリプロピレンとともに、エチレン（C2）及びC4～C40-オレフィンを含むその他の-オレフィンを含む、少なくとも部分的に結晶性のシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを含むことができる。-オレフィンの例としては、ブテン-1、ペンテン-1、ヘキセン-1、ヘプテン-1、オクテン-1、ノネン-1、デセン-1、ウンデセン-1、ドデセン-1、トリデセン-1、ペントデセン-1、ヘキサデセン-1、ヘプタデセン-1、オクタデセン-1、及び分岐鎖オレフィン、例えば3-メチルブテン-1、4-メチルペンテン-1、及び4,4-ジメチルペンテン-1が挙げられる。

【0145】

少なくとも部分的に結晶性のシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン中に存在する場合、その他の-オレフィンの量はポリマーの全重量に基づいて、約0.001重量%以上である。好ましくは、その他の-オレフィンの量は約0.1重量%以上であり、より好ましくは約1重量%以上である。その他の-オレフィンはベースポリマー中、約50重量%以下でも存在する。好ましくは、その他の-オレフィンの量はベースポリマー中、約20重量%以下、より好ましくは約10重量%である。

【0146】

エラストマー

他の実施態様において、添加物はエラストマーを含むことができる。適当なエラストマーの例としては、弾性特性を有する1以上のポリプロピレンコポリマーを含む。弾性特性を有するこのような好ましいプロピレンコポリマーは、ここに引用するWO02/36651中の手順に従って調製できる。同様に、添加物は、WO03/040202、WO03/040095、WO03/040201、WO03/040233及び/またはWO03/040442に記載のものと一致するポリマーを含むことができる。さらに、添加物はEP1,233,191号及び米国特許第6,525,157号に記載のものと一致するポリマーを含むこともできる。

【0147】

弾性特性を有する好ましいプロピレンコポリマーは、C2またはC4～C20-オレフィンとプロピレンとを重合することにより調製されるものを含み、最も好ましくはプロピレンとエチレンであり、キラルメタロセン触媒と活性化剤及び任意でスカベンジャーの存在下で重合する。プロピレンと一緒に用いられるコモノマーは直鎖または分岐してもよい。好ましい直鎖-オレフィンはエチレン（C2）及びC4～C8-オレフィンを含む。好ましい-オレフィンの例としては、エチレン、1-ブテン、1-ヘキセン及び1-オクテンを含み、さらに好ましくはエチレンまたは1-ブテンである。好ましい分岐鎖-オレフィンは4-メチル-1-ペンテン、3-メチル-1-ペンテン及び3,5,5-トリメチル-1-ヘキセンを含む。

【0148】

弾性特性を有するプロピレンコポリマーを含む好ましい添加物は、モル基準で平均プロピレン含量が約68%～約92%、より好ましくは約75%～約91%、さらにより好ましくは約78%～約88%、最も好ましくは約80%～約88%である。コポリマーの残りは上に明記した1以上の-オレフィン、及び任意で少量の1以上のジエンモノマーである。好ましくは、ポリプロピレンコポリマーはコモノマーとしてエチレンを約8～32モル%エチレン、より好ましくは約9～約25モル%エチレン、さらにより好ましくは約12～約22モル%エチレン、及び最も好ましくは約13～20モル%エチレンの範囲で含む。

【0149】

弾性特性を有するこれらのプロピレンコポリマーを生成するためにキラルメタロセン触媒を使用することにより、プロピレン残基のメチル基が大部分同じ立体規則性を有することが確実になる。プロピレンのシンジオタクチック及びアイソタクチック立体構造の両方が可能であり、アイソタクチックポリマーは特に好ましい。プロピレン残基の立体規則性

はポリマーの結晶性をもたらす。本発明の添加物ポリマーに関して、ポリプロピレンコポリマーの低結晶化レベルは上述の - オレフィンコモノマー組込みにより得られるアイソタクチックポリプロピレンに由来する。

【0150】

弾性特性を有するプロピレンコポリマーを含む特に好ましい添加物は、好ましくは以下の特徴を有する半結晶性プロピレンコポリマーを含む：

1. 融解熱が約 0.5 J / g ~ 約 2.5 J / g、より好ましくは約 1 J / g ~ 約 2.0 J / g、及び最も好ましくは約 1 J / g ~ 約 1.5 J / g；及び／または

2. 結晶化度が約 0.25 % ~ 約 1.5 %、より好ましくは約 0.5 % ~ 約 1.3 %、及び最も好ましくは約 0.5 % ~ 約 1.1 %（ポリプロピレンコポリマーの結晶化度は結晶化パーセントについて表す。ポリプロピレンの最上位の熱エネルギーはここでの使用について、189 J / g で評価する。すなわち、ここでの使用について、100 % 結晶化度は 189 J / g に等しいものと仮定する）；及び／または

3. 単一の広い融点または融解転移（ポリプロピレンコポリマーのサンプルは第 2 の融解ピークまたは主要なピークに隣接するピークを示し得るが、ここでの目的について、これらは単一の融点または融解転移として一緒に考える）；及び／または

4. 約 2.5 ~ 約 7.5 の融点、好ましくは約 2.5 ~ 約 6.8 の範囲、より好ましくは約 3.0 ~ 約 6.0 の範囲（最も高い融解転移ピークは融点として考える）；及び／または

5. 重量平均分子量が 1.0, 000 ~ 5, 000, 000 g / c.c.、好ましくは 8.0, 000 ~ 5.00, 000；及び／または

6. MWD (M_w / M_n) が 1.5 ~ 4.0.0、より好ましくは約 1.8 ~ 5.0、及び最も好ましくは 1.8 ~ 3.0；及び／または

7. 125 でのムーニー粘度 M_L (1 + 4) が 100 未満、より好ましくは 75 未満、さらにより好ましくは 60 未満、最も好ましくは 30 未満である。

【0151】

ここで使用に適したその他のエラストマーは全ての天然及び合成ゴムを含み、ASTM D 1566 に定義されるものを含む。好ましい実施態様において、エラストマーはゴム強化組成物である。特に好ましい実施態様において、ゴム強化組成物は 2 (以上) 相系であり、当該ゴムは官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを含む連続相内で不連続相である。好ましいエラストマーの例としては、エチレンプロピレンゴム、エチレンプロピレンジエンモノマーゴム、ネオプレンゴム、ステレン系ブロッカポリマーゴム (S I、S I S、S B、S B S、S I B S、S E B S、S E P S 等を含む (S はステレン、I はイソブレン、B はブタジエン、E B はエチレンブチレン、E P はエチレンプロピレンである))、ブチルゴム、ハロブチルゴム、イソブチレン及びパラ-アルキルスチレンのコポリマー、イソブチレン及びパラ-アルキルスチレンのハロゲン化コポリマーが挙げられる。

【0152】

ランダムコポリマー

他の実施態様において、添加物はランダムコポリマーを含んでもよい。ここで使用に適したランダムコポリマーは、単一反応器プロセスでプロピレンと他のモノマー、例えばエチレン、ブテン及び高級 - オレフィン、最も一般的にはエチレンとを共重合させることにより生成できる。これらの添加物コポリマーのエチレン含量は好ましくは、3 ~ 4 モル%、14 ~ 17 モル% 以下、好ましくは 1 モル% ~ 20 モル% の範囲である。

【0153】

適当なランダムコポリマーの例としては、狭い組成分布を有するランダム結晶化可能プロピレンコポリマーも含む。当該ポリマーの分子内組成分布は例えばヘキサンまたはヘブタンのような飽和炭化水素などの溶媒中、熱分離により決定できる。狭い組成分布を有するとは、約 7.5 重量%、及びより好ましくは 8.5 重量% のポリマーが 1 または 2 の隣接溶解性分画として直後または直前の分画における残りのポリマーから単離されることを意味

する。従って、狭い組成分布を有するコポリマーにおいて、これらの各分画は、ポリプロピレンコポリマーにおける平均エチレン含有重量%の差が20%以下(相対的に)及びより好ましくは10%(相対的)の組成物(重量%エチレン含量)を有し得る。

【0154】

好みらしいランダム結晶化可能ポリプロピレンコポリマーにおける立体規則性プロピレン配列の長さ及び分布は実質的にランダムな統計共重合に一致し、配列長さ及び分布は共重合反応比に関係する。実質的にランダムとは、コポリマー反応比が通常1以下であることを意味する。ステレオブロック構造において、ポリプロピレン配列の平均長さは同様の組成を有する実質的にランダムなコポリマーよりも長く、実質的にランダムな統計分布よりもむしろ塊状構造に一致したポリプロピレン配列分布を有するステレオブロック構造を有するポリマーには似ていない。ポリマーの反応比及び配列分布は^{13C}NMRにより決定でき、エチレン残基は近隣のプロピレン残基に関連して配置される。ここで添加物としての使用に適した必要なランダム度及び狭い組成分布を有する結晶化可能コポリマーは好みしくは、(1)シングルサイト触媒及び(2)好みらしいポリプロピレンコポリマーの実質的に全てのポリマー鎖に関して单一の重合環境のみ可能とする、十分に混合された連続フロー攪拌槽重合反応器を用いて調製される。10

【0155】

インパクトコポリマー

他の実施態様において、添加物は1以上のインパクトコポリマーを含むことができ、インパクトコポリマーはヘテロ相コポリマーまたはブロックコポリマーとも呼ばれる。ここでの使用に適したインパクトコポリマーはアイソタクチックPPとエラストマー、例えばエチレン-プロピレンゴムなどのブレンドとして定義できる。好みらしい実施態様において、インパクトコポリマーブレンドは2(以上)相系において存在し、ここでインパクトコポリマーは接着組成物中で不連続相であり、a-srPP-g-FG及び/または上述のその他の添加物は連続相である。20

【0156】

フラクショナル(Fluctuational)ポリマー

他の実施態様において、添加物はいわゆる“フラクショナル触媒”を用いて生成される1以上のポリマーを含むことができる。このようなポリマーはここで“フラクショナルポリマー”と呼び、1またはいくつかのC₂~C₂₀オレフィン構造を有する直鎖アイソタクチックポリマーを含み、その中で、ポリマー鎖中の立体鏡像誤差の統計的分布に起因したアイソタクティシティは25~60%の[m m m m]ペンタド濃度の範囲内である。ペントド濃度決定は例えば、J. A. Ewenの、“Catalytic Polymerization of Olefins(オレフィンの触媒重合)”, (Ewan法)及び編集T. Keiji, K. Soga; Kodanska Elsevier Pub; 東京、1986、第271頁、以下参照を用いて測定できる。30

【0157】

添加物としての使用に適したフラクショナルポリマーは米国特許第6,555,643号に記載のものを含み、ここで特定のペントド濃度が生じるようにポリマー鎖自体において立体鏡像誤差を位置付けることは不可欠である。好みしくは、フラクショナルポリマーは、[r m r m]ペントド濃度が本質的にゼロである(すなわち、完全に欠落している)全体のペントド領域を最大2.5%有する[r m r m]ペントド濃度を含む。40

【0158】

適当なフラクショナルポリマー中における[r r r r]及び[r r r m]ペントドの混合濃度は[r m r m]ペントド濃度よりも大きい。好みらしい実施態様において、フラクショナルポリマーは直鎖、アイソタクチックポリマーであり、重量平均分子量が100,000~800,000g/mol、好みしくは110,000~500,000g/mol、及びより好みしくは120,000~300,000g/molである。この好みらしい実施態様に従うポリマーの分子量分布M_w/M_nは約1.2~3.5である。適当なフラクショナルポリマーはガラス転移温度T_gが、DSCで測定して-50~-+3050

好ましくは - 20 ~ + 10 である。

【0159】

好ましいフラクショナルポリマーは 1 または数個の C 2 ~ C 20 オレフィンを含む直鎖、アイソタクチックポリマーを含む。好ましくは、オレフィンは C 3 ~ C 20 アルキ - 1 - エン (alk - 1 - ene) であり、例えば、プロパン、1 - プテン、2 - プテン、1 - ペンテン、1 - ヘキセン、1 - オクテン、1 - ノネン、1 - デセン、1 - ドデセン、1 - ヘキサデセン、1 - オクタデセン、及び 1 - エイコセンまたは C 5 ~ C 20 シクロオレフィン、例えば、シクロ penten、シクロヘキセン、ノルボルナジエン及びその誘導体であり、ポリブロピレンが特に好ましい。また、プロピレン及び C 4 ~ C 20 オレフィンまたはシクロオレフィンから調製されるコポリマーは好ましい。

10

【0160】

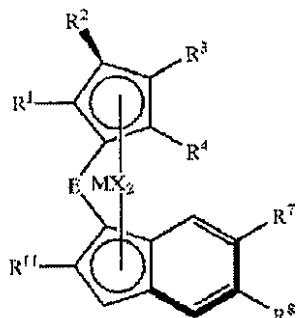
好ましいフラクショナルポリマーは本質的には 20 ~ 80 でトルエンに可溶である。さらに、このようなポリマーは引張強度試験において明確な弾性挙動を示し、ポリマーの流動作用または破壊と比較して明確なゴム - 弾性安定状態 (プラトー) を示す (米国特許第 6,555,643 号の図 1 を参照) 。適当なフラクショナルポリマーはまた、- 50 ~ 150 の範囲内で “ 示差走査熱量計 ” (DSC) により測定される結晶化融解温度を有する。適当なフラクショナルポリマーの弾性 - 熱可塑性挙動は最先端のもの、すなわち、例えば E P O 707016A1 に開示のポリマーとは明らかに異なる。

20

【0161】

従って、フラクショナルポリマーは以下の一般式を有するフラクショナル触媒を利用して生成されたものを含む：

【化 4】



30

【0162】

ここで M はチタニウム、ジルコニウム、ハフニウム、バナジウム、ニオビウムまたはタンタルからなる群より選択される金属であり； X はハロゲンまたは C 1 ~ C 5 アルキル、アリール、またはベンジル基であり、 R¹ 、 R² 、 R³ 、 R⁴ 、 R⁶ 、及び R⁷ は直鎖または分岐鎖 C 1 ~ C 10 アルキル、 C 5 ~ 7 シクロアルキルであり、順番に 1 または数個の C 1 ~ C 6 アルキル残基を置換基として運ぶことができ、 C 6 ~ C 18 アリール、アリールアルキルまたはアルキルアリールであり、この場合、 R¹ 、 R² 、 R³ 、 R⁴ 、及び R⁶ 、 R⁷ は繰り返すが、部分的にまたは同時に C 5 ~ C 7 シクロアルキルまたは融合されたアリール環内に統合できる。

40

【0163】

上述の式に従うメタロセン化合物の場合において、残基 R⁷ により置換された炭素に隣接した 7 番インデニル炭素及び残基 R⁶ により置換された炭素に隣接した 4 番インデニル炭素は水素によってのみ置換されることが重要であり、それにより本発明に従うアイソタクチックエラストマーを調製するために特に有利な触媒を提供する。適当な架橋構造単位 E は、 - CH₂CH₂ - 、 - CH₂CH₂CH₂ - 、 - CH₂CH₂CH₂CH₂ - 、 - CR₉R₁₀ - 、 SiR₉R₁₀ - 、または GeR₉R₁₀ - であり、ここで、 R₉ 及び R₁₀ は C 1 ~ C 8 アルキル、 C 4 ~ 7 シクロアルキルまたはアリールであり、及び R₉ 及び R₁₀ は一緒に結合して環構造を形成することができる。

50

【0164】

粘着付与剤

添加物は粘着付与剤を含むこともできる。適当な粘着付与剤の例としては、脂肪族炭化水素樹脂、芳香族変性脂肪族炭化水素樹脂、水添化ポリシクロペントジエン樹脂、ポリシクロペントジエン樹脂、ガムロジン、ガムロジンエステル、ウッドロジン、ウッドロジンエステル、トールオイルロジン、トールオイルロジンエステル、ポリテルペン、芳香族変性ポリテルペン、テルペンフェノール樹脂、芳香族変性水添化ポリシクロペントジエン樹脂、水添化脂肪族樹脂、水添化脂肪族芳香族樹脂、水添化テルペン及び変性テルペン、水添化ロジン酸、及び水添化ロジンエステルからなる群より選択される。いくつかの実施態様において、粘着付与剤は水素添加される。

10

【0165】

他の実施態様において、粘着付与剤は非極性であり、すなわち粘着付与剤は極性基を有するモノマーを実質的に含まないことを意味する。好ましくは、極性基は存在せず、しかしながら存在する場合には、好ましくは5重量%以上、好ましくは2重量%以上、より好ましくは0.5重量%以上存在しない。いくつかの実施態様において、粘着付与剤は環球法軟化点がASTM E-28により測定して、80～150であり、好ましくは100～130である。他の実施態様において、樹脂は液体であり、環球法軟化点が10～70である。

【0166】

粘着付与剤は接着組成物の重量に基づいて、約1～約80重量%を含み、より好ましくは2～40重量%、さらに好ましくは3～30重量%である。

20

【0167】

好ましい添加剤は粘着付与剤または改質剤として用いられる炭化水素樹脂を含み、当該樹脂は以下を含む：

1. C5/C6テルペン樹脂、スチレンテルペン、-メチルスチレンテルペン樹脂、C9テルペン樹脂、芳香族変性C5/C6、芳香族変性環状樹脂、芳香族変性ジシクロペントジエンベース樹脂などの樹脂またはこれらの混合物。別の好ましい樹脂は、WO91/07472、米国特許第5,571,867号、米国特許第5,171,793号及び米国特許第4,078,132号に開示のものを含む。これらの樹脂は1以上の以下のモノマーを含む組成物のカチオン重合から得られる：C5ジオレフィン（例えば、1～3ペントジエン、イソブレン等）；C5オレフィン（例えば、2-メチルブテン、シクロ penten等）；C6オレフィン（例えばヘキセン）、C9ビニル芳香族（例えば、スチレン、

30

メチルスチレン、ビニルトルエン、インデン、メチルインデン等）；環状化合物（例えば、ジシクロペントジエン、メチルジシクロペントジエン等）；及びまたはテルペン（例えば、リモネン、カレン、ツヨン等）。

【0168】

2. ジシクロペントジエンの熱重合により得られる樹脂、及び/またはシクロペントジエン及び/またはメチルシクロペントジエンの二量体またはオリゴマー、及び/またはビニル芳香族（例えば、スチレン、-メチルスチレン、ビニルトルエン、インデン、メチルインデン等）との熱重合により得られる樹脂。

40

【0169】

重合及び非反応物質の分離後に得られた樹脂は所望により水素添加できる。ここで添加物として用いる好ましい樹脂の例としては、米国特許第4,078,132号；WO91/07472号；米国特許第4,994,516号；EPO 046344A；EPO 082726A；及び米国特許第5,171,793号が挙げられる。

【0170】

架橋剤

他の実施態様において、添加物はさらに架橋剤を含むことができる。好ましい架橋剤はa-srPP-g-FG上に存在する官能基、例えば無水マレイン酸でグラフトされたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン（例えば、a-srPPr-

50

g - M A) 上に存在する無水物基と反応できる官能基を有するものを含む。好ましい架橋剤は、アルコール、マルチオール、アミン、ジアミン及び／またはトリアミンを含む。本発明で有用な架橋剤の特定の例としては、ポリアミン、例えばエチレンジアミン、ジエチレントリアミン、ヘキサメチレンジアミン、ジエチルアニリノプロピルアミン、及び／またはメタンジアミンを含む。

【 0 1 7 1 】

酸化防止剤

他の実施態様において、添加物は1以上のフェノール系酸化防止剤を含むことができる。フェノール系酸化防止剤の好ましい例としては、置換フェノール、例えば2, 6-ジ-t-ブチルフェノールを含み、ここで2及び／または6位置の水素原子はアルキル残基で置換される。一般的なフェノール系酸化防止剤の例としては、2, 6-ジ-t-ブチル-p-クレゾール、2, 4, 6-トリ-t-ブチルフェノール、ビタミンE、2-t-ブチル-6-(3'-t-ブチル-5'-メチル-2'-ヒドロキシベンジル)-4-メチルフェニルアクリレート、2, 2'-メチレン-ビス(4-メチル-6-t-ブチルフェニル)、2, 2'-メチレン-ビス(4-エチル-6-t-ブチル-フェノール)、2, 2'-メチレン-ビス(6-シクロヘキシル-4-メチルフェノール)、1, 6-ヘキサンジオール-ビス([3-(3, 5-ジ-t-ブチル[4-ヒドロキシフェニル])]プロピオン酸、及びペントエリトリチル-テトラキス-[3-(3, 5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)]プロピオン酸が挙げられる。好ましい酸化防止剤としては、フェノール系酸化防止剤、例えば、Irganox 1010、Irganox 1076を含み、いずれもチバ-ガイギーから市販されている。

【 0 1 7 2 】

中和剤 / 成核剤

本発明の添加物は、中和剤、例えばステアリン酸カルシウム、水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウムまたはハイドロタルサイト、及び／または成核剤、例えば安息香酸塩、ナトリウム-2, 2'-メチレン-ビス(4, 6-ジ-t-ブチルフェニル)ホスフェート及びベンジルソルビトール等を含むこともできる。

【 0 1 7 3 】

充填剤

他の実施態様において、添加物は充填剤も含むことができる。適当な充填剤は二酸化チタン、炭酸カルシウム、硫酸バリウム、シリカ、二酸化ケイ素、カーボンブラック、砂、ガラスビーズ、鉱物骨材、タルク、粘土等を含む。

【 0 1 7 4 】

別の実施態様ではナノクレイ(ナノ複合材料ともいう)を含むことが考えられ、有機クレイを含み、本発明のポリオレフィンを含み、好ましくは安定性官能基を含むポリオレフィン、好ましくは安定性官能基が共有結合されている。

【 0 1 7 5 】

有機クレイは1以上のアンモニウム、第1級アルキルアンモニウム、第2級アルキルアンモニウム、第3級アルキルアンモニウム、第4級アルキルアンモニウム、脂肪族、芳香族またはアリール脂肪族アミン、ホスフィンまたはスルフィドのホスホニウム誘導体、脂肪族、芳香族またはアリール脂肪族アミン、ホスフィンまたはスルフィドのスルホニウム誘導体を含むことができる。

【 0 1 7 6 】

有機クレイは、モンモリロナイト、ナトリウムモンモリロナイト、カルシウムモンモリロナイト、マグネシウムモンモリロナイト、ノントロナイト、バイデライト、ボルコンスコアイト、ラポナイト、ヘクトライト、サボナイト、ソーコナイト、マガタイト、ケニアイト、sobockite、svindordite、ステベンサイト、バーミキュライト、ハロイサイト、アルミネートオキシド、ハイドロタルサイト、イライト、レクトライト、tarosovite、レディカイト(ledikite)及び／またはフッ素マイカの1以上から選択できる。

10

20

30

40

50

【0177】

有機クレイは好ましくはナノ複合材料の全重量に基づいて、0.1～50重量%で存在する。安定性官能基は、フェノール、ケトン、ヒンダードアミン、置換フェノール、置換ケトン、置換ヒンダードアミン及びそれらの組み合わせの1以上から選択できる。

【0178】

ナノ複合材料はさらに少なくとも1のエラストマー系エチレン-プロピレンコポリマーを含むことができる。少なくとも1のエラストマー系エチレン-プロピレンコポリマーはナノ複合材料の全重量に基づいて、1～70重量%で存在できる。さらに、ナノ複合材料はさらに少なくとも1の非官能性熱ポリオレフィンを含むことができる。

【0179】

好ましくは、安定性官能基は少なくとも1の安定性官能化熱可塑性物質中に存在し、有機クレイはナノ複合材料中に各々効果的な量で存在し、従って、熱によりナノ複合材料の成型サンプルの障害は、共有結合安定性官能基を実質的に含まない官能基を含む熱可塑性ポリオレフィンを用いて作った対照ナノ複合材料と比較した場合、10%老化する。1の実施態様において、安定性官能基は少なくとも1の安定性官能化熱可塑性ポリオレフィンにおいて少なくとも1の安定性官能化熱可塑性物質の全重量に基づいて、0.01～15重量%で存在できる。

【0180】

非官能化熱可塑性ポリオレフィンは好ましくは少なくとも1の第1の安定性官能化熱可塑性ポリオレフィンと混和性である。そのような実施態様において、少なくとも1の非官能化熱可塑性ポリオレフィンはナノ複合材料の全重量に基づいて、1～40重量%でナノ複合材料中に存在することもでき、及び有機クレイはナノ複合材料の全重量に基づいて、0.5～40重量%でナノ複合材料中に存在できる。好ましくは、少なくとも1の第1の安定性官能化熱可塑性ポリオレフィン及び少なくとも1の非官能化熱可塑性ポリオレフィンの両方は、それぞれポリプロピレンまたはポリエチレンのいずれかを含む。

【0181】

他の実施態様において、本発明の接着剤での使用に適したナノ複合材料は以下を含むことができる：

a) ナノ複合材料の全重量に基づいて、10～98重量%でナノ複合材料中に存在する少なくとも1の第1の非官能化ポリプロピレン；

b) 安定性官能基を含む少なくとも1の第2のポリプロピレンであって、当該安定性官能基は、フェノール、ケトン、ヒンダードアミン、置換フェノール、置換ケトン、置換ヒンダードアミンまたはそれらの組み合わせの1以上から選択され、当該安定性官能基は安定性官能基を含むポリプロピレンの全重量に基づいて、0.05～15重量%で安定性官能化ポリプロピレン中に存在し、

安定性官能基を含む少なくとも1の第2のポリプロピレンはナノ複合材料の全重量に基づいて、10～90重量%でナノ複合材料中に存在する；

c) 有機クレイ。ここで当該有機クレイは、ヘキシリアンモニウムイオン、オクチルアンモニウムイオン、2-エチルヘキシリアンモニウムイオン、ドデシルアンモニウムイオン、オクタデシルアンモニウムイオン、ジオクチルジメチルアンモニウムイオン、トリオクチルアンモニウムイオン、ジステアリルアンモニウムイオン、アンモニウム塩、ピリジニウム塩、スルホニウム塩、ホスホニウム塩、またはこれらの組み合わせの1以上を含む。また、有機クレイはさらに、モンモリロナイト、ナトリウムモンモリロナイト、カルシウムモンモリロナイト、マグネシウムモンモリロナイト、ノントロナイト、バイデライト、ボルコンスコアイト、ラボナイト、ヘクトライト、サボナイト、ソーコナイト、マガタイト、ケニアイト、sobockite、svindordite、ステベンサイト、バーミキュライト、ハロイサイト、アルミニートオキシド、ハイドロタルサイト、イライト、レクトライト、tarosovite、レディカイト(ledikite)またはフッ素マイカの1以上から選択される粘土を含む。また、有機クレイはナノ複合材料の全重量に基づいて、1～30重量%でナノ複合材料中に存在する；及び

d) 任意で、ナノ複合材料の全重量に基づいて、2～70重量%でナノ複合材料中に存在する、エチレン・プロピレンエラストマー・コポリマーまたはイソブチレンゴムの1以上をさらに含む。

【0182】

接着促進剤

他の実施態様において、添加物は1以上の接着促進剤を含むことができ、例えば、極性酸、ポリアミノアミド（例えば、Henkelから市販のVersamid 115、125、140）、ウレタン（例えば、イソシアネート／ヒドロキシ末端ポリエステル系、例えば、Miles社から市販の結合剤TN/Mondur Cb-75）、カップリング剤（例えば、Dow Corningから市販のシランエステル（Z-6020））、チタン酸エステル（Kenrichから市販のKr-44）、反応性アクリル酸モノマー（例えば、Sartomerから市販のSarbox SB-600）、金属酸塩（例えば、Sartomerから市販のSaret 633）、酸化ポリフェニレン、酸化ポリオレフィン、酸変性ポリオレフィン、及び無水物変性ポリオレフィンがある。10

【0183】

油分

好みの油分は、脂肪族ナフテン系オイル、ホワイトオイル等を含む。特に好みの油分は、パラフィン系またはナフテン系オイル、例えばPrimol 352、またはPrimol 876（エクソンモービルケミカル・フランス、S.A.、パリ、フランスから市販）を含む。20

【0184】

可塑剤

好みの可塑剤は鉱物油、ポリブテン、フタレート等を含む。好みの可塑剤は、ジ-イソ-ウンデシルフタレート（DIP）、ジ-イソ-ノニルフタレート（DINP）、ジオクチルフタレート（DOP）、これらの組み合わせ、及び／またはこれらの誘導体などのフタレートを含む。20

【0185】

特に好みの可塑剤はポリブテンを含み、例えばParapol 950及びParapol 1300であり、以前はエクソンモービルケミカル社（ヒューストン、テキサス）から入手可能であった。30

【0186】

好みの可塑剤は、ポリアルファオレフィン（PAO）、高純度炭化水素液体組成物（HFC）及びグループIIベースストック、例えばWO 2004/014998、第16頁、14行～第24頁、1行に記載のものも含む。特に好みのPAOはデセンのオリゴマー及びデセンとドデセンとのコオリゴマーを含む。好みのPAOはエクソンモービルケミカル社（ヒューストン、テキサス）から商品名Supersynで市販されている。好みの実施態様において、PAO、HFCまたはグループIIベースストックは、ポリマー及びPAO、HFCまたはグループIIベースストックの重量に基づいて、0.5～60重量%で存在する。40

【0187】

ワックス

好みのワックスは極性または非極性ワックス、ポリプロピレンワックス、ポリエチレンワックス及びワックス改質剤を含む。特に好みのワックスは、極性ワックス、非極性ワックス、フィッシャー-トロプシュワックス、酸化フィッシャー-トロプシュワックス、ヒドロキシステアロマイドワックス、機能化ワックス、ポリプロピレンワックス、ポリエチレンワックス、ワックス改質剤、アモルファスワックス、カルナウバワックス、キャスター・オイルワックス、マイクロクリスタリンワックス、蜜ろう、カルナウバろう、キャスター・オイルワックス、植物ろう、カンデリラろう、日本ろう、ouricuryワックス、ダグラスファー・バーク・ワックス、米ぬかワックス、ホホバワックス、ヤマモモワックス、モンタンワックス、オゾケライトワックス、耳あか、セレシンワックス、石油ろう、パ50

ラフィンワックス、ポリエチレンワックス、化学変性炭化水素ワックス、置換アミドワックス、及びこれらの組み合わせ及び誘導体からなる群より選択できる。いくつかの実施態様において、極性及び非極性ワックスは同じ組成物内で同時に使用できる。

【0188】

低分子量ポリマー

その他の添加物は低分子量ポリマーを含む（すなわち、低M_nポリマーであり、ここで低とはM_nが5000以下、好ましくは4000以下、より好ましくは3000以下、さらに好ましくは2500以下を意味する）。好ましい低M_nポリマーは低-オレフィンのポリマーを含み、例えば、プロピレン、ブテン、ペンテン、ヘキセン等である（例えば、プロピレン、ブテン、ペンテン、及び/またはヘキセンを含むポリ-オレフィンであり、数平均分子量が5000g/mol以下である）。特に好ましいポリマーはM_nが1000未満のポリブテンを含む。このようなポリマーの例としては、エクソンモービルケミカル社から商品名PARAPOL（登録商標）で市販されている。PARAPOL（登録商標）950はM_nが約950、及び運動粘度がASTM D445で測定して、100で220センチ-ストーク(cSt)の液体ポリブテンポリマーである。10

【0189】

エステルポリマー

他の実施態様において、添加物は1以上のエステルポリマー（ポリエステル）を含むことができる。好ましい実施態様において、添加物は2（以上）相系のブレンドを含み、ここで当該ポリエステルは不連続相であり、及びa-srPP-g-FGを含む相は連続相である。20

【0190】

その他の添加物

その他の好ましい添加物は、ブロック剤、ブロック防止剤、色素、染料、着色料、加工助剤、UV安定化剤、潤滑剤、例えばポリジメチルシロキサン及びステアリン酸カルシウム、補助剤、界面活性剤、カラーマスター、流動性向上剤、結晶化助剤、可塑剤、油分、安定化剤、酸化防止剤、ポリマー添加物、消泡剤、保存料、増粘剤、流動改質剤、保湿剤、充填剤、水等が挙げられる。

【0191】

ポリマー添加物は、ホモポリ- -オレフィン、-オレフィンのコポリマー、ジオレフィンのコポリマー及びターポリマー、エラストマー、ポリエステル、ブロックコポリマー、エステルポリマー、アクリレートポリマー、アルキルアクリレートポリマー及び酢酸ビニルポリマーを含むことができる。30

【0192】

接着組成物

本発明の接着組成物（例えば、ポリマーブレンド）は上述の1以上のアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、及び/または1以上の官能性シンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを含むことができる。好ましい実施態様において、本発明の接着剤はアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、官能基で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、またはこれらの組み合わせを含み、ここで、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは以下を含む：約5重量%以上のC3~C40-オレフィン；ポリマー中に存在するr及びmダイアドの合計数に基づいて約50%~約80%のrダイアド；融解熱がASTM E 794-85に記載の手順に従って10J/g以下；及び灰含量が1重量%以下であり、ここで官能基は、存在する場合、重量平均分子量1000以下であり、及び炭素-炭素二重結合、炭素-炭素三重結合、及び/またはヘテロ原子を含む化合物を含み；非極性基質に対する剥離強度が約3.51b/インチ以上、及び極性基質に対する剥離強度が約0.51b/インチである接着剤を含み、ここで、剥離強度はここに記載の通りASTM D-1876に従って測定する。40

【0193】

10

20

30

40

50

さらに、本発明の接着組成物は1以上の上述の添加物を含むことができ、ポリオレフィンと添加物の重量比は約1：1000～1000：1で混合する。好ましくは重量比は約1：100、約1：50、約1：20、約1：10、約1：5、約1：4、約1：3、約1：2、または約1：1である。もしくは、重量比は約100：1、約50：1、約20：1、約10：1、約5：1、約4：1、約3：1、または約2：1である。

【0194】

本発明の接着組成物（例えばポリマーブレンド）は1以上のアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン及び／または1以上の官能性シンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを含むことができる。さらに、本発明の接着組成物は1以上の上述の添加物を含むことができ、ポリマーブレンドの重量に基づいて、ポリマーブレンドが10～90重量%の添加物を含むように混合する。好ましくは、ポリマーブレンドは20～80重量%の添加物、より好ましくは30～80重量%の添加物、より好ましくは40～80重量%の添加物、さらにより好ましくは50～80重量%の添加物、より好ましくは60～80重量%の添加物、さらにより好ましくは70～80重量%の添加物をポリマーブレンドの重量に基づいて含む。

【0195】

本発明の接着組成物を生成するために用いる方法において、混合方法に関する特定の制限は必要ない。従って、原材料はヘンシェル（H e n s c h e l）混合機等を用いて均一に混合でき、次に押出し機等により溶融、混合及びペレットに成形できる。プラベンドーミキサーを用いることも可能であり、それにより混合と溶融を同時にを行い、溶融後、当該材料はフィルム、シート等に直接成形できる。従って、ここに記載のブレンドは当業者に公知の従来技術を用いて形成でき、従って、ブレンドは1以上の静止型ミキサー、インラインミキサー、エルボー（e l b o w s）、オリフィス（o r i f i c e s）、バッフル（b a f f l e s）またはこれらの組み合わせを用いて達成できる。

【0196】

好ましい実施態様において、接着組成物は、ブレンドの全重量に基づいて約1～約99重量%で存在するアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを含有したブレンドを含み、より好ましくはアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは接着組成物の全重量に基づいて約5重量%以上で存在し、好ましくは約10重量%以上、好ましくは約20重量%以上、好ましくは約30重量%以上、好ましくは約40重量%以上、好ましくは約50重量%以上、好ましくは約60重量%以上、好ましくは約70重量%以上、好ましくは約80重量%以上、好ましくは約90重量%以上で存在する。

【0197】

好ましい実施態様において、接着組成物は、ブレンドの全重量に基づいて約1～約99重量%で存在する官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを含有したブレンドを含み、より好ましくは当該アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは接着組成物の全重量に基づいて約5重量%以上で存在し、好ましくは約10重量%以上、好ましくは約20重量%以上、好ましくは約30重量%以上、好ましくは約40重量%以上、好ましくは約50重量%以上、好ましくは約60重量%以上、好ましくは約70重量%以上、好ましくは約80重量%以上、好ましくは約90重量%以上で存在する。

【0198】

好ましい実施態様において、接着組成物は、ブレンドの全重量に基づいて約1～約99重量%で存在するアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンを含有したブレンドを含み、より好ましくは当該アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは接着組成物の全重量に基づいて約5重量%以上で存在し、好ましくは約10重量%以上、好ましくは約20重量%以上、好ましくは約30重量%以上、好ましくは約40重量%以上、好ましくは約50重量%以上、好ましくは約60重量%以上、好ましくは約70重量%以上、好ましくは約80重量%以上、好ましくは約90重量%以上で存

10

20

30

40

50

50

在する。

【0199】

好ましい実施態様において、接着組成物は、ブレンドの全重量に基づいて約1～約99重量%で存在する、無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンを含有したブレンドを含み、より好ましくは当該アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは接着組成物の全重量に基づいて約5重量%以上で存在し、好ましくは約10重量%以上、好ましくは約20重量%以上、好ましくは約30重量%以上、好ましくは約40重量%以上、好ましくは約50重量%以上、好ましくは約60重量%以上、好ましくは約70重量%以上、好ましくは約80重量%以上、好ましくは約90重量%以上で存在する。

10

【0200】

1の実施態様において、接着組成物は、3重量%未満の酸化防止剤、3重量%未満の低粘度流動性向上剤、10重量%未満のワックス、及び／または3重量%未満の結晶化助剤を含む。いくつかの実施態様において、しかしながら、ワックスは望ましくない場合もあり、接着組成物の重量に基づいて5重量%未満で存在し、好ましくは3重量%未満、より好ましくは1重量%未満、より好ましくは0.5重量%未満で存在する。

【0201】

他の実施態様において、本発明の接着組成物はアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンを含み、上述の接着剤の任意の組み合わせが、接着組成物の重量に基づいて合計50重量%未満であり、好ましくは25重量%未満、好ましくは20重量%未満、好ましくは15重量%未満、好ましくは10重量%未満、好ましくは5重量%未満である。

20

【0202】

他の実施態様において、本発明の接着組成物は無水マレイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンを含み、上述の接着剤の任意の組み合わせが、接着組成物の重量に基づいて合計50重量%未満であり、好ましくは25重量%未満、好ましくは20重量%未満、好ましくは15重量%未満、好ましくは10重量%未満、好ましくは5重量%未満である。

【0203】

接着組成物の特性
本発明の接着組成物は好ましくは、非極性基質（例えば、アイソタクチックポリプロピレン）に対して剥離強度が、修正ASTM D-1876に従って測定して約3.51b/in以上である。好ましくは、極性基質（例えば、マイラー（Mylar））に対する剥離強度は約0.51b/in以上であり、より好ましくは約1.01b/in以上である。

30

【0204】

ここでの纖維引裂け（fiber tear）例により示されるように、本発明の接着組成物はセルロース及びその他の類似物質に対して優れた接着特性を有する。本発明の接着組成物は好ましくは約10分未満の固定時間（set time）を有し、より好ましくは約1分未満であり、さらに好ましくは約30秒未満である。固定時間はここでの使用に関して、十分な接着力でひとつに固定するための接着基質構築体の圧縮にかかる時間として定義され、引裂いた場合、基質纖維引裂きが得られるようにし、従って、当該結合は圧縮を取り除くために十分に強いものである。当該結合はさらに冷却することにより強くなると考えられるが、それ以上の圧縮は必要ない。これらの固定時間は接着剤の融解物ドットを、平坦な机にテープで貼り付けたファイルホルダー基質上に設置することにより測定した。ファイルホルダー札（1インチ×3インチ（2.5cm×7.6cm））を当該ドット上に3秒後に置き、500gおもりで圧縮した。当該おもりを約0.5～約10秒間放置した。そのようにして形成された構築体を引剥がして、基質纖維引裂けを生じるための十分な結合レベルを確かめた。固定時間はこの結合が生じるために必要な最短時間として記録した。市販の標準接着剤をこのプロセスの較正に用いた。

40

50

【0205】

本発明の接着組成物は25で75%~100%の基質纖維引裂け率を有する。接着試験見本を基質と溶融接着剤の一部(例えばドット)とひとつに結合させることにより作成し、当該結合を室温(すなわち、約25)まで冷却されるまで圧縮した。当該ドットサイズは接着体積により制御し、従って、ほとんどの場合、形成した圧縮ディスクは基質面積のちょうど内側に均一な円を形成した。構築体が生成されると、結合の効果を評価するために種々の損傷を生じさせた。低温纖維引裂け試験は、所望の試験温度を得るために結合見本を冷凍庫または冷蔵庫内に置いた。室温での基質纖維引裂けは、当該見本を周囲条件で老化させた。当該結合は手で分離し、観測された損傷の種類について測定を行った。基質纖維引裂けの量はここではパーセントで表す。

10

【0206】

接着組成物の使用

上述の所望の各接着組成物は、最終特性及び特定用途に関する適合性は、立体規則性の種類(立体規則性)、融点、平均分子量、分子量分布、モノマー及びコモノマーの種類及びレベル、配列分布、別の官能基の存在または不存在、及びそこで利用される接着添加物の種類及び量に依存する。

20

【0207】

本発明の接着組成物は任意の接着用途に用いることができ、限定されないが、使い捨て用品、包装、ラミネート、感圧性接着剤、テープ、ラベル、木材結合、紙結合、不織布、路面表示、反射コーティング等に用いることができる。

30

【0208】

使い捨て用品

好みの実施態様において、本発明の接着組成物は、使い捨てオムツ及びナプキン胴体構造、使い捨て用品変換の弹性結合部、包装、ラベル、製本、木工細工、及びその他の組立て用途に用いることができる。特に好みの用途は以下を含む：赤ちゃんオムツ脚部ゴムひも、オムツ正面テープ、オムツ脚袖口、オムツ胴体構造、オムツ中心安定化、オムツ液体移動層、オムツ外側カバー層状構造、オムツゴム袖口層状構造、女性用ナプキン中心安定化、女性用ナプキン接着剥ぎ取り部、工業過接着(bonding)、工業フィルター物質層状構造、フィルターマスク層状構造、手術衣層状構造、手術着層状構造、及び傷みやすい製品の包装。

40

【0209】

1の実施態様において、本発明の接着組成物は1以上の使い捨て製品の少なくとも一部に適用でき、例えば、不織布、不織纖維、非弹性不織布、弹性不織布、ネック結合(necked-bonded)ラミネート、伸縮結合(stretched-bonded)ラミネート、スパンボンド-メルトプローラミネート、ポリプロピレンスパンボンド層、ポリエチレン層、ポリエチレン及びポリプロピレンスパンボンド混合層、弹性ストランド、スチレン-イソブレン-スチレン、スチレン-ブタジエン-スチレン、スチレン-エチレン/プロピレン-スチレン、スチレン-コ-ブタジエン-スチレン、ポリウレタン、織布、ポリプロピレン、ポリエステル、体液不浸透性パックシート、体液不浸透性層、体液浸透性層、体液浸透性カバー、吸収剤、ティッシュ、弹性物質、超吸収ポリマー、ポリオレフィンフィルム、ポリエステルフィルム、ポリビニルクロリドフィルム、ポリビニリデンフィルム、ポリビニリデンクロリドフィルム、ポリビニルアセテートフィルム、弹性付着テープ、正面テープ裏張り、木材、紙、バリアフィルム、フィルムラミネート、不織布複合材料、纖維材料、織布材料、耐久性纖維、吸収剤、弹性ストランド、弹性纖維、薄織物、フィルム、カバーストック材料、不織布ポリエチレン、せん孔ポリエチレン、超吸収ポリマー、フィラメント、多孔性纖維、纖維、マジックテープ材料、スパンボンド不織布材料、裏地、弹性側板、固定テープ、弹性バンド、レーヨン、ナイロン、セルロース系パルプ、セルロース系綿及び超吸収剤芯である。

【0210】

さらに、本発明に一致する使い捨て材料はここに開示する本発明の接着組成物を含むこ

50

とができ、ここで、当該接着剤は1以上の使い捨て用品の少なくとも一部に適用され、例えば、オムツ、トレーニングパンツ、生理用ナプキン、パンティライナー、失禁用衣類、ベッドパッド、手術ガウン、手術着、ネズミ捕り、マジックテープ、衣類、医療用衣類、及び水着である。同様に、使い捨て用品は、本発明の接着組成物により第1の使い捨て用品部分に接着した第2の使い捨て用品部分を含むことができる。

【0211】

1の実施態様において、本発明の接着組成物は、ヘキサン、ヘプタン、ミネラルスピリット、キシレン、トルエン、ベンゼン、塩素化炭化水素及びこれらの組み合わせまたは誘導体からなる群より選択される1以上の溶媒を含むことができる。

【0212】

1の実施態様において、本発明の接着組成物を含む使い捨て用品はさらに1以上の酸化防止剤を含むことができ、例えば、トリス(ジ-*t*-ブチル-*p*-ヒドロキシベンジル)-トリメチルベンゼン、アルキル化ビスフェノール、亜鉛ジブチルジチオカルバメート、4,4'-メチレンビス(2,6-ジ-*t*er*t*-ブチルフェノール)、テトラキス[メチレン(3,5-ジ-*t*er*t*-ブチル-4-ヒドロキシヒドロケイ皮酸)メタン]、ラルリルステアリルチオジプロピオネート、ジラウリル3,3'-チオジプロピオネート、2,6-ジ-*t*er*t*-ブチル-*p*-クレゾール、及びこれらの組み合わせまたは誘導体である。

【0213】

本発明の接着組成物を含む使い捨て用品はさらに1以上の安定化剤を含むことができ、例えば、ヒンダードフェノール、硫黄フェノール、リン含有フェノール、1,3,5-トリメチル-2,4,6-トリス(3-5-ジ-*t*er*t*-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン、ペンタエリトリトルテトラキス-3(3,5-ジ-*t*er*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、*n*-オクタデシル-3(3,5-ジ-*t*er*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、4,4'-メチレンビス(4-メチル-6-*t*er*t*-ブチルフェノール)、4,4'-チオビス(6-*t*er*t*-ブチル-o-クレゾール)、2,6-ジ-*t*er*t*-ブチルフェノール、6-(4-ヒドロキシフェノキシ)-2,4-ビス(*n*-オクチルチオ)-1,3,5-トリアジン、2,4,6-トリス(4-ヒドロキシ-3,5-ジ-*t*er*t*-ブチル-フェノキシ)-1,3,5-トリアジン、ジ-*n*-オクタデシル-3,5-ジ-*t*er*t*-ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホネート、2-(*n*-オクチルチオ)エチル-3,5-ジ-*t*er*t*-ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート、ソルビトールヘキサ-(3,3,5-ジ-*t*er*t*-ブチル-4-ヒドロキシ-フェノール)プロピオネート、及びこれらの組み合わせまたは誘導体である。好ましい実施態様において、本発明の接着剤を含む使い捨て用品は消費者製品である。

【0214】

ラミネート

1の実施態様において、2以上の層を含むラミネート製品は本発明の接着組成物との組み合わせであってもよい。ラミネート製品は本発明の接着組成物と組み合わせて2以上の層を含むことができ、ここで接着組成物は層間に存在する。1の実施態様において、本発明の接着組成物と組み合わせて2以上の層を含むラミネート製品は1以上の材料を含むことができ、例えば、木材、プラスティック、紙、ゴム、熱可塑性物質、ボール紙、金属、金属ホイル、金属蒸着表面、布、不織布、スパンボンド纖維、石、石膏、ガラス、岩、セラミックス、フィルム及び発泡体である。

【0215】

さらに、本発明の接着組成物と組み合わせて2以上の層を含むラミネート製品はラミネートを含むことができ、ここで、各層は独立して、木材、プラスティック、紙、ゴム、熱可塑性物質、ボール紙、金属、金属ホイル、金属蒸着表面、布、不織布、スパンボンド纖維、石、石膏、ガラス、岩、セラミックス、フィルム及び発泡体から選択される。

【0216】

10

20

30

40

50

本発明の接着組成物と組み合わせて2以上の層を含むラミネート製品は、ここで2以上の層は第1の層及び第2の層を含み、第2の層は第1の層の材料とは異なる材料から形成してもよい。

【0217】

1の実施態様において、本発明の接着組成物と組み合わせて2以上の層を含むラミネート製品はさらに、表面層上に存在する剥離紙または剥離剤を含むことができる。本発明の接着組成物と組み合わせて2以上の層を含むラミネート製品はまた、噴霧、押し出し成型、融着、ポリマー注入、及びホットメルト接着技術のいずれかにより生成されたラミネート構造を含むこともできる。

【0218】

1の実施態様において、本発明の接着組成物と組み合わせて2以上の層を含むラミネート製品はさらに、本発明の接着組成物と1以上の以下の材料との組み合わせを含む少なくとも1の層を含むことができ、当該材料は例えば木材、プラスティック、紙、ゴム、熱可塑性物質、ボール紙、金属、金属ホイル、金属蒸着表面、布、不織布、スパンボンド纖維、石、石膏、ガラス、岩、セラミックス、フィルム及び発泡体である。

【0219】

好みの実施態様において、ラミネート製品は本発明の接着組成物と組み合わせて2以上の層を含むことができ、ここで、当該接着組成物は開放時間(open time)が60秒以下であり、開放時間はASTM D4497に従って測定する。好みの実施態様において、本発明の接着組成物は、2以上の層を含むラミネート製品中で用いる場合、当業者が測定して固定時間は3秒以上である。

【0220】

好みの実施態様において、本発明の接着組成物と組み合わせて2以上の層を含むラミネート製品は、ここに記載の方法に従って測定して、基質纖維引裂け率が22で75%~100%である接着剤を含むことができる。好みの実施態様において、本発明の接着組成物と組み合わせて2以上の層を含むラミネート製品は消費者製品である。

【0221】

また、上述の接着組成物はラミネートとして任意の基質に適用でき、例えば極性基質(例えば、ボール紙、マイラー(ポリエステル))、非極性基質(例えば、iPP)、または極性基質及び非極性基質の両方(例えばその中間)である。好みの基質は木材、紙、ボール紙、プラスティック、熱可塑性物質、ゴム、金属、金属ホイル(例えば、アルミホイル及びスズ箔)、金属蒸着表面、布、不織布(特にポリプロピレンスパンボンド纖維または不織布)、スパンボンド纖維、ボール紙、石、石膏、ガラス(フィルム表面上に酸化ケイ素を蒸着させることにより塗布した酸化ケイ素(SiO_x)コートを含む)、発泡体、岩、セラミックス、フィルム、ポリマー発泡体(例えば、ポリウレタン発泡体)、インクコートした基質、染料、色素、PVC等またはこれらの組み合わせである。別の好みの基質はポリエチレン、ポリプロピレン、ポリアクリレート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、またはブレンドに適したものとして上述に記載したポリマーを含む。

【0222】

上述の基質及び/または本発明の接着組成物はいずれも、基質と接着組成物が混合される前または後に、コロナ放電処理、火炎処理、電子ビーム照射、マイクロ波、またはシラン処理できる。

【0223】

本発明の接着組成物またはそれらの剤形は基質に直接適用でき、及び/または噴霧でき、またはその上に配置できる。当該組成物は適用前または途中に、溶融または加熱して半固体状態にしてもよい。噴霧とは霧化を含むものとして定義され、例えば、均一ドットパターンの形成、スパイラルスプレー、例えば、Nordson制御纖維化(Controlled Fiberization)または伸長フィラメントの振動をITWダイナファイバー(Dynafiber)/オメガヘッド(Omega heads)またはNordsonからのサミット(Summit)テクノロジーにおいて行うことができる。本

10

20

30

40

50

発明の接着組成物はメルトブローしてもよい。メルトブロー技術は米国特許第5,145,689号に記載の方法や、気流を押出物のフィラメントを分裂するために用い、次に基質上に分裂フィラメントを堆積させるために用いる任意の方法を含むものとして定義される。通常、メルトブロー技術はホットメルト接着剤纖維を空気を用いて回転させ、結合用基質上にそれらを運ぶ方法である。纖維サイズは溶融物と空気との比を変えることにより20~200ミクロンで容易に制御できる。接着メルトブロー装置の固有の安定性に起因した遊離纖維はほとんど生じず、好ましくは全く生じない。UV光下では、結合は規則的で滑らかな、伸長ドットパターンとして見られる。原子化も、ホットメルト接着剤を微粒化するために空気を用い、非常に小さいドットにして、結合用基質上に運ぶ方法として定義できる。

10

【0224】

不織布 / 繊維

特定の実施態様において、本発明の接着剤は纖維製品に用いることができる。纖維製品は纖維状物質からなり、接着剤組成物が塗布されている。纖維状物質は単一成分纖維、複数成分纖維、またはこれらの組み合わせを含むことができる。いくつかの種類の纖維状物質は纖維製品を形成するために用いることができ、通常は纖維製品内の纖維構成に基づいて区別される。例えば、ある種の纖維状物質は等方的に組立てられ、個々の纖維は完全にランダム状態で配置され、3つの主な空間軸のいずれにおいても好ましい配向を有さない。纖維状物質の他の例としては、織物用糸であり、当該物質の主要な軸に関して高度の纖維配向を有する。織物用糸は紡績として集合的に言及される処理工程の組み合わせにより短(有限長)纖維から生成される。予備的に纖維配置した後、当該纖維はより合わせることにより一緒に固定して紡績糸を形成し、ここで当該紡績糸は長さが連続しており、実質的に均一である。糸は通常、織る、または編むことにより織物形成に使用される。

20

【0225】

纖維状物質は綿、カポック、コイア、亜麻、麻、ラミー、ジュート、サイザル、アバカ、セルロース、ウール、モヘア、カシミア、人毛、ヤギの毛、ラクダの毛、ラマの毛、アルパカの毛、ビクーナの毛、シルク、ナイロン、アラミド、ケブラー、n o m a x 、ポリアミド、ポリアクリレート、ポリオレフィン、ポリマー、例えばプロピレン、ブテン-1、ポリエチレン、ポリプロピレン、及びエチレン-ビニルアセテート、ポリエステル、例えば、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンテレフタレート、及びポリ-エチレンオキシベンゾネット、石綿、ポリアミド、ポリカーボネート、ポリスチレン、熱可塑性エラストマー、フッ素ポリマー、ビニルポリマー、鉱物、アクリル、ポリビニルクロリド、有機結合剤、ガラス、金属、アルミナ、炭化ケイ素、窒化ホウ素、炭化ホウ素、及びこれらの組み合わせを含むことができる。

30

【0226】

典型的な纖維製品としては、不織布、カーペット、カーペット裏地、オムツ、水着、小児用トレーニングパンツ、大人用失禁用衣類、女性用ケア製品、医療用衣類、ベッドパッド、手術着、布裏地、スポンジタワシ、自動車内装部、衣類、テープ、フェイスマスク及び呼吸マスク、空気フィルター、真空バッグ、油及び化学物質吸着剤、断熱材、応急手当用品、医療用包装紙、纖維充てん材、上着、ベッドキルト用詰め物、家具詰め物、ろ材、洗浄用タワシ、ふき取り物質、及びこれらの組み合わせが挙げられる。

40

【0227】

好ましい実施態様において、カーペットは本発明の接着剤組成物を含む。他の好ましい実施態様において、テープは本発明の接着剤組成物を含む。

【0228】

ここで用いる、“不織布”とは織る以外の手段により生成された布材料をいう。不織布において、纖維は中間状態である一次元の糸を経ることにより平面のシート状布構造に直接処理され、次に化学的に結合または機械的に結合され(または両方)、凝集性のある布が得られる。不織材料は天然または合成纖維またはこれらの混合物を含むことができる。不織布材料の形成に一般的に用いられる材料は、レーヨン、ポリエステル、ポリプロピレ

50

ン、ポリエチレン、ナイロン及びその他を含む。個々の纖維は通常、短纖維または連続ファイラメントである。典型的な纖維は、ポリプロピレン纖維、レーヨン纖維、ポリエステル纖維、ポリエチレン纖維、ナイロン纖維、セルロース纖維、ビスコース纖維、エチレン-プロピレンコポリマー纖維、ポリオレフィン纖維、ポリアミド纖維、ポリカーボネート纖維、ポリスチレン纖維、熱可塑性エラストマー纖維、フッ素ポリマー纖維、ビニルポリマー纖維、炭素纖維、ガラス纖維、鉱物纖維、ウール纖維、アクリル纖維、ポリビニルクロリド纖維、ポリウレタン纖維、有機結合剤纖維及びこれらの組み合わせを含むことができる。

【0229】

1の実施態様において、1以上の纖維状物質と本発明の接着剤組成物との組み合わせを含む纖維製品は第1の裏当て材を含むことができ、纖維状物質は第1の裏当て材に取り付けられ、接着剤は纖維状物質の少なくとも一部上に配置する。纖維製品はまた、1以上の纖維状物質と本発明の接着剤組成物との組み合わせを含むことができ、接着剤に接着した第1の裏当て材及び第2の裏当て材を含む。

【0230】

纖維製品はまた、1以上の纖維状物質と本発明の接着組成物との組み合わせとを含むことができ、第1の裏当て材はジュート織物、スリットポリプロピレンフィルム織物、黄麻布、ニードルパンチ材料、不織布ポリプロピレン、及びこれらの組み合わせである。

【0231】

1の実施態様において、1以上の纖維状物質と本発明の接着組成物との組み合わせを含む纖維製品は、円、楕円、T-形状、Y-形状、十字形状、中空、四角、多角形(multiobal)、ひも状、及び/または多角形の断面形状を有する纖維状物質を含むことができる。

【0232】

従って、1以上の纖維状物質と本発明の接着剤組成物とを組み合わせて含む纖維製品は、衣類、敷物、断熱材、カーペット、複合材料、印刷サーキットボード、プリプレグ、ウイッグ、またはこれらの組み合わせを含むことができる。

【0233】

さらに、纖維製品が1以上の纖維状物質と本発明の接着剤組成物とを組み合わせて含む1の実施態様において、接着剤組成物はさらに1以上の添加物を含むことができ、例えば、界面活性剤、発泡剤、ポリマー相溶化剤、難燃剤及び水である。

【0234】

好みの実施態様において、1以上の纖維状物質と本発明の接着剤組成物とを組み合わせて含む纖維製品は、22で75%~100%の基質纖維引裂け率を有する上述の接着剤組成物のうちいずれか一つを含むことができる。好みの実施態様において、1以上の纖維状物質と本発明の接着剤組成物とを組み合わせて含む纖維製品は、消費者製品である。

【0235】

フィルム

特定の実施態様において、ここに記載のポリマー成分は単層フィルムに用いることができる。もしくは、ポリマー成分は単層フィルムの少なくとも外側部分に適用することができる。単層フィルムは自己支持形態をとるために十分に厚く、一方、破損することなく動き、折り曲げ、またはしわをつけることができる程度に十分に薄い平面形状である。フィルム厚さは用途及び製品に依存するが、通常は125μm以下である。単層フィルムは非配向性、単軸配向、または二軸配向であり、ポリマー成分はフィルム基質の少なくとも一部に適用して形成される。もしくは、ポリマー成分はフィルム基質とブレンドしてその性質を変えることができる。

【0236】

フィルム基質は紙、ホイル、金属、合金、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエステル、ポリエチレンテレフタレート、ポリビニルクロリド、ポリビニリデンクロリド、ポリ

10

20

30

40

50

ビニルアセテート、ポリアミド、それらのホモポリマー、及びこれらの組み合わせ及びコポリマーを含むことができる。

【0237】

モノマーフィルムはさらに、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエステル、ポリエチレンテレフタレート、ポリビニルクロリド、ポリビニリデンクロリド、ポリビニルアセート、ポリアミド、それらのホモポリマー、これらの組み合わせ及びコポリマーから選択される別のポリマー成分を含むことができる。

【0238】

1の実施態様において、本発明の接着剤組成物を含むフィルムは好ましくは、ポリプロピレン層及び／または配向性ポリプロピル層、及び／または二軸配向性ポリプロピレン層を含む。10

【0239】

ホットメルト接着剤

特定の実施態様において、本発明の接着剤はホットメルト接着剤組成物において用いることができる。ホットメルト接着剤は室温で固体として存在し、熱を加えることにより粘着性のある液体に変換できる。ホットメルト接着剤は通常は溶融形態で基質に塗布される。。

【0240】

1の実施態様において、本発明の接着剤組成物を含むホットメルト接着剤組成物は、25で75%～100%の基質纖維引裂け率を有する接着剤組成物を含むことができ、好ましくは、25での基質纖維引裂け率は95%～100%である。1の好ましい実施態様において、本発明の接着剤組成物を含むホットメルト接着剤組成物は消費者製品である。20

【0241】

感圧性接着剤

1の特定の実施態様において、ここに記載の接着剤組成物は感圧性接着剤組成物において用いることができる。ここで用いる、“感圧性接着剤組成物”は室温で、またはおおよそ室温において（約25）、穏やかな圧力化で基質を十分に湿らせ、有用な結合を形成する能力を有する接着剤組成物である。ここで用いる“有用な結合”的語は、基質用途に依存して様々であり、接着及び凝集強度のバランスに対応するものをいう。1の実施態様において、本発明の接着剤組成物を含む感圧性接着剤は固定時間が30分以下である。30

【0242】

テープ

特定の実施態様において、本発明の接着剤はテープに用いることができる。テープは通常、2以上の基質をひとつに接着するように構成される。テープは裏当て部（backing element）に適用される接着剤組成物を含む。裏当て部は、ポリマーフィルム、ポリエステルフィルム、ポリオレフィンベースフィルム、ポリウレタンフィルム、ポリビニルクロリド発泡体（foams）、ポリエチレン発泡体、不織布ポリウレタン、不織布ポリエステル、織物、フェイスクロス、紙、合成ポリマー物質、プラスティック、ポリオレフィンポリマー、例えば、ポリエチレン及びポリプロピレン、ポリエステル、ポリエチレンテレフタレート、ポリビニルクロリド、クラフト紙、ポリマー、ラミネート、ラテックスを染み込ませた紙、ホイル、リソスクロス（litho stock）、軽量スチレン発泡体、膨張ポリスチレン発泡体、織布、不織布、布、クレープ紙、熱可塑性エラストマー、及びこれらの組み合わせを含む群から選択できる。一般的な裏当て部は1ミクロンから数cmの様々な厚さを有する。特に好ましい裏当て部は、配向性ポリプロピレン、二軸配向性ポリプロピレン及びポリビニルクロリドポリマーを含む。配向性ポリプロピレン、二軸配向性ポリプロピレン及びポリビニルクロリドポリマーのフィルムは特に好ましい裏当て部である。40

【0243】

テープは片面または両面であり、すなわち、接着剤物質は裏当て材料の片側または両側

に塗布される。テープは接着剤組成物と裏当て部の反対側に取り付けた剥離（release）物質を含むことができる。両面テープは裏当て部の反対側に塗布した第1の接着剤組成物及び第2の接着剤組成物を含むことができる。第1の接着剤組成物または第2の接着剤組成物の少なくとも1つはここに記載の接着剤組成物を含み、例えば、いずれかまたは両方の組成物は本発明の接着剤組成物を含む。

【0244】

テープは種々の基質、例えば、第1の基質と第2の基質がお互いに接着するように構成でき、またはテープは単一の基質を接着するように構成できる。第1の基質は第2の基質と同じ物質でもよく、またはこれらの基質は異なる物質で形成してもよい。いずれか、または両方の基質はプラスティック、ポリオレフィン、ポリマー、ステンレススチール、紙、板紙、ボール紙、厚紙、段ボール、合板、クラフト紙、カードボード、ファイバーボード、プラスティック樹脂、金属、合金、ホイル、皮、フィルム、プラスティックフィルム、ラミネート、衣類、容器、手術器具、医療機器、ガラス、及び敷布を含むことができる。
10

【0245】

テープはロール、シート、パッド、または特定の用途によって決定されるその他の形状で提供でき、意図した基質以外の表面へ意図せずに接着しないように裏当て部に接着した接着剤組成物を保護する。例えば、裏当て部に接着した接着剤組成物は使用するまで剥離物質に取り付けておくことができる。剥離物質は通常、接着剤組成物の接着強度を保持するためにテープに取り付け、テープから剥離できるように構成される。剥離物質は通常、テープがシートまたはロールとして供給される場合に用いられる。剥離物質は通常、剥離コーティング、例えばシリコンなどを含む。ロール形状で提供されたテープはテープディスペンサーと一緒に用いることができ、または手で破ることができる。パッド形態で提供されたテープは2つの剥離ライナー間に接着剤組成物を含むことができ、少なくとも1の剥離ライナーは剥離コーティング組成物で被覆されている。
20

【0246】

接着組成物は裏当て部の少なくとも片側の少なくとも一部に塗布できる。通常、接着剤組成物は室温で、またはおおよそ室温で、穏やかな圧力下で基質を十分に湿らし、有用な結合を形成する能力を有する。ここで用いる“有用な結合”の語は、接着（基質破損に対する接着性）及び凝集（内部接着破損）強度のバランスに対応するものをいい、テープの用途に従って最適化される。例えば、取り外し可能なテープにおける接着剤組成物は、凝集強度に比較して相対的に低い接着強度を有し、基質上に残留物（例えば、接着剤）を残さずに剥がすことができるテープを生じる。それに対し、高性能テープ、例えば出荷及び包装に用いられるテープは高接着及び高凝集強度の両方を示し、基質または裏当て部の破損を生じる。
30

【0247】

包装用接着剤

1の実施態様において、包装用接着剤は本発明の接着剤組成物を含むことができる。包装も本発明の接着剤組成物を含むことができ、ここに記載する接着剤は1以上の包装部材の少なくとも一部に適用され、包装部材は例えば、紙、板紙、ボール紙、厚紙、段ボール、合板、クラフト、カードボード、ファイバーボード、プラスティック樹脂、金属、合金、ホイル、フィルム、プラスティックフィルム、ラミネート、及び敷布を含む。
40

【0248】

1の実施態様において、本発明は、ここに記載の接着剤組成物を含む包装を含むことができ、接着剤は箱、容器、枠箱、ケース、段ボール箱、及びトレイなどの1以上の包装部材の少なくとも一部に塗布される。

【0249】

包装はまた、本発明の接着剤組成物を含むことができ、ここで接着剤は穀物製品、クラッカー製品、ビール包装、冷凍食品製品、紙袋、コップ、牛乳パック、ジュース容器、杯、及び出荷製品用容器の包装に使用される1以上の包装部材の少なくとも一部に塗布され
50

る。

【0250】

木材加工

特定の実施態様において、ここに記載の接着剤は木材加工処理に用いることができる。木材加工処理は構造部材の少なくとも一部に接着剤組成物を適用することによる木材加工製品の形成を含む。構造部材は種々の材料を含むことができ、限定されないが、木材、合板、またはプラスティックまたはベニヤを含む。例えば、構造部材は、また、板材、木材、ファイバーボード、石膏ボード、石膏、人造壁板、合板、PVC、メラミン、ポリエスチル、含浸紙、及びシートロックを含むことができる。木材加工処理は、例えば、室内家具、屋外家具、装飾、成形品、ドア、窓枠、窓、木工製品、及び高級家具を形成するため用いることができる。従って、好ましい実施態様は本発明の接着剤組成物を含む木材消費者製品である。

【0251】

ラベル

特定の実施態様において、ここに記載の接着剤組成物はラベルにおいて用いることができる。通常、ラベルは単に基質に接着させることを目的としたものである。そのこと自体、ラベルは構造的部分を意図するものではない。その結果、ラベルは高内部強度及び低接着強度を有することができる。

【0252】

ラベルは裏当て部上に接着剤組成物被覆層を含み、接着剤組成物の反対側に剥離可能な表面を有する。ラベルの剥離ライナーはラベルが意図した基質に適用されるまで、ラベルに接着されていることを目的とする。ラベル裏当て部は当業界に公知である。任意の適当な裏当て部が本発明において利用できる。裏当て部は、ポリマーフィルム、ポリエスチルフィルム、ポリオレフィン・ベースフィルム、ポリウレタンフィルム、ポリビニルクロリドフィルム、ポリビニルクロリド発泡体、ポリエチレン発泡体、不織布ポリウレタン、不織布ポリエスチル、編物、紙、合成ポリマー材料、プラスティック、ポリオレフィン、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエスチル、ポリエチレンテレフタレート、ポリビニルクロリド、クラフト紙、ポリマー、ラミネート、ラテックスを染み込ませた紙、ホイル、リソストック(litho stock)、軽量ストック、スチレン発泡体、ラミネート発泡体、膨張ポリスチレン発泡体、織布、不織布、布、クレープ紙、熱可塑性物、及びポリエチレン及びポリプロピレンとの混合物を例えれば含むことができる。

【0253】

適当な基質は、プラスティック、ポリオレフィン、ステンレススチール、紙、板紙、ボール紙、厚紙、段ボール、合板、クラフト紙、カードボード、ファイバーボード、プラスティック樹脂、金属、合金、ホイル、皮、フィルム、プラスティックフィルム、ラミネート、衣類、容器、手術器具、医療機器、ガラス、及び敷布を例えれば含むことができる。

【0254】

ラベルはロール、シートまたは特定の用途によって決定されるその他の形でもよく、従って、他の表面への意図しない接着から保護される。上述の通り、ラベルは剥離ライナーに積層して、他の表面への予期しない接着を防ぐことができる。ラベルの剥離ライナーはシリコンなどの剥離コーティングとともに供給され、ラベルから容易に剥離ライナーを剥がせるようにする。剥離ライナーはラベルに使用するために剥離物質で被覆したシートである。剥離ライナーは目的の接着剤に適度なレベルの剥離を再生可能に提供するものであり、接着剤に悪影響を及ぼさないことが望まれ、剥離レベルが時間とともに比較的予測できるように老化耐性であるべきである。

【0255】

ラベルは裏当て部、接着剤組成物、及び剥離ライナーを含むことができる。接着剤組成物は裏当て部に適用でき、剥離ライナーは接着剤組成物に適用できる。もしくは、接着剤組成物は剥離ライナーに適用でき、次に裏当て部を接着剤組成物に適用できる。剥離ライナーはそれから、ラベルを基質に適用する前に接着剤組成物から取除くことができる。

【0256】

製本

特定の実施態様において、本発明の接着剤は製本に用いることができる。便宜のため、“製本”の語は結合部を有する本であって、接着剤組成物が結合部の少なくとも一部に適用された本を生成する方法を説明するために用いられる。しかしながら、ここに記載の実施態様は本の製本にのみ適した接着剤組成物に限定されるものではない。ここで用いる“本”的語は接着剤組成物を用いて綴じられたページを含むその他の製品を含むものとし、例えば、ペーパーバック、ソフトカバー本、指示マニュアル、雑誌、カタログ、業界誌、辞書等である。

【0257】

1の実施態様において、本発明の接着剤組成物を含む製本製品は、紙または大量の紙を含む結合部を含むことができる。1の実施態様において、本発明の接着剤は22で基質纖維引裂け率が75%~100%である。好ましくは、本発明の接着剤組成物を含む製本製品は消費者製品である。

【0258】

路面表示

特定の実施態様において、ここに記載の接着剤組成物は路面表示組成物に用いることができる。路面表示組成物は通常、結合組成物及び1以上の基質に適用される1以上の充填剤を含む。1以上の基質は、アスファルト、コンクリート、金属、レンガ、敷石、セラミック、ポリマー材料、軽量コンクリートブロック、ソフトスポーツ表面、運動場表面、助走路、タータン置換物(tartan substitutes)、コンクリート、金属、アスファルト、ピューメン、レンガ、敷石、タイル、鋼板、木材、セラミック、ポリマー材料、ガラス、コンクリートブロック、磁器、石、木材パネル、削片板(particle board)、木材輸送部(wooden vehicle parts)、軽量コンクリートブロック、スクリム、及びこれらの組み合わせを含むことができる。

【0259】

路面表示組成物は1以上の充填剤を含んで、耐候性、視認性、被覆力、磨耗耐性、接着性、及び/または路面表示組成物の反射性を増加させる。さらに、特定の充填剤は熱可塑性路面表示の全体的な流動特性を改善するために加えることができ、路面表示の分離を防ぎ、結合組成物に適用される基質に対する抵抗力を与える、及び/または路面表示組成物の費用を低減することができる。この目的のために用いることができる充填剤は砂、色素、ガラスピース、ポリマーベースピース、炭酸カルシウム、破碎大理石、砂利、白雲石、タルク、ガラスパール、プリズムリフレクタ、レンズリフレクタ、方解石(calcite spar)、ケイ砂、グラファイト、集じん灰、セメントダスト、粘土、長石、霞石、ヒュームドシリカ、アルミナ、酸化マグネシウム、酸化亜鉛、硫酸バリウム、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸カルシウム、チアナート(tiianates)、チョーク、反射型無機充填剤、增量充填剤、ビーズ、硫酸カルシウム、メタケイ酸カルシウム、石英粉末、焼成フリント粉末、雲母、ケイ酸カルシウムガラスファイバー、染料、花こう岩、石膏、消石灰、アルミナ、珪藻土、反射剤、改質剤、鉛白、リトポン、クロムイエロー、カドミウムイエロー、樹脂ビーズ、ポリマーゲル、ポリマー、セラミック物質、破碎ガラス、石、コランダム、水酸化アルミニウム、酸化ケイ素、ガラス球、及びネオデカン酸亜鉛が挙げられる。色素の例としては、二酸化チタン、酸化亜鉛、酸化マグネシウム、クロム酸鉛、及びこれらの混合物が挙げられる。色素の種類及び含量は路面表示の特定目的に従って選択され、当業者であれば容易に確認できる。さらに、1以上の充填剤が路面表示組成物に添加でき、当該路面表示組成物に色、不透明性、または色合いを与えることができる。

【0260】

路面表示組成物の重要な特性は、全ての環境条件下において視認できるということである。従って、路面表示組成物は1以上の反射充填剤を含むことができる。1以上の反射充填剤を組み込んだ路面表示組成物は車のライト光を反射することにより雨及び暗闇中の路面表示の視認性を最大化する。1以上の反射充填剤は反射光による組成物の高められた

10

20

30

40

50

視認性を与るために十分な量で路面表示組成物内に含むことができる。適当な反射充填剤は、限定されないが、ガラスビーズ、ポリマービーズ、砂、シリカ化合物、セラミック物質、及び／または路面表示組成物に通常そのような目的で用いられるその他の反射充填剤を含む。ビーズは好ましい反射充填剤であり、限定されないが、ポリマービーズ、またはガラスビーズを含む。ガラスビーズは最も好ましい。ビーズは冷却結合剤の凝集力に悪影響を及ぼすべきではなく、従って、結合剤とビーズ間に強い結合が生じなければならない。主に要求されることは、ビーズは路面表示の調製、混合及び使用中に適用される熱に安定であるということである。好ましくは、ビーズは約20分間、少なくとも200℃以上の熱にあてたときに、安定に維持されるべきである。

【0261】

10

ポリマーから調製されたビーズは通常の交通から与えられる圧力に破損または押しつぶされずに抵抗できるべきである。さらに、反射充填剤は、路面表示の特性に統一性をえて、長寿命の反射特性を与えるために結合剤全体に均一に分布されるべきである。反射充填剤の均一分布は、交通磨耗及び風化により路面表示の上層が取除かれた場合、表面に新しい反射充填剤の曝露を生じる。また、路面表示組成物に添加する反射充填剤の量の増加は、路面表示の反射性を増加しつつ、長期にわたって十分な反射特性の維持を助ける。路面表示組成物中に存在する反射充填剤の量が少ない場合、反射能力は、組成物中に分散した反射充填剤がタイヤによる磨耗に起因して減少した場合に、劣化するが、一方、加えた反射充填剤の量が多すぎる場合、路面表示組成物の強度が減少する。

【0262】

20

好ましい実施態様において、本発明の接着剤組成物及び1以上の充填剤を含む結合剤を含む路面表示組成物は、M_wが100,000～250,000のコポリマーをさらに含む結合剤を含む。

【0263】

30

1の実施態様において、本発明の接着剤組成物を含む結合剤を含む路面表示組成物はまた、1以上のワックスを含むことができ、例えば、極性ワックス、非極性ワックス、フィッシャー-トロプシュワックス、酸化フィッシャー-トロプシュワックス、ヒドロキシテアロマイドワックス、機能化ワックス、ポリプロピレンワックス、ポリエチレンワックス、ワックス改質剤、無水マレイン酸グラフト、ペンドント酸官能基を含むポリエチレン、パラフィンワックス、マイクロクリスタリンワックス、及びこれらの組み合わせである。

【0264】

1の実施態様において、本発明の接着剤組成物を含む結合剤を含んだ路面表示組成物は1以上の路面表示添加物を含むこともでき、例えば、可塑剤、油分、安定化剤、酸化防止剤、色素、染料、ポリマー添加物、消泡剤、保存料、増粘剤、流動性向上剤、保湿剤、增量剤、ヒンダードフェノール、リン酸塩、粘着防止剤、滑剤、光安定化剤、紫外線吸収剤、分散剤、増粘剤、基剤、湿潤剤、難燃剤、架橋剤、硬化剤、乳白剤、及び水である。その他のそのような添加物は油分を含み、脂肪族油、ナフテン系油、ホワイト油、大豆油、これらの組み合わせ、及びこれらの誘導体が挙げられる。

【0265】

40

本発明の接着剤組成物を含む結合剤を含んだ路面表示組成物はさらに、1以上の可塑剤を含むことができ、例えば、鉱物油、ポリブテン、フタレート、炭化水素油、大豆油、フタレートエステル、エラストマー、オレフィンオリゴマー、植物油、シクロヘキサンジメタノールジベンゾエート、及びこれらの組み合わせ、及び／または砂、色素、ガラスビーズ、ポリマーベースビーズ、炭酸カルシウム、破碎大理石、砂利、白雲石、タルク、ガラスパール、プリズムリフレクタ、レンズリフレクタ、方解石（calcite spar）、ケイ砂、グラファイト、集じん灰、セメントダスト、粘土、長石、霞石、ヒュームドシリカ、アルミナ、酸化マグネシウム、酸化亜鉛、硫酸バリウム、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸カルシウム、チアネート（titanates）、チョーク、反射型無機充填剤、增量充填剤、ビーズ、硫酸カルシウム、メタケイ酸カルシウム、石英粉末、焼成フリント粉

50

末、ケイ酸カルシウムガラスファイバー、染料、花こう岩、石膏、消石灰、アルミナ、珪藻土、反射剤、改質剤、鉛白、リトポン、クロムイエロー、カドミウムイエロー、樹脂ビーズ、ポリマーゲル、ポリマー、セラミック物質、破碎ガラス、石、コランダム、水酸化アルミニウム、酸化ケイ素、ガラス球、及びネオデカン酸亜鉛が挙げられる。

【0266】

好みの実施態様において、本発明の接着剤組成物及び1以上の充填剤を含む結合剤を含んだ路面表示組成物は、1以上の改質剤を含む結合剤を含み、当該改質剤は例えば、無水コハク酸変性ポリマー及び金属酸化物である。

【0267】

路面表示組成物中で用いられる場合、充填剤は路面表示の強度増加及び路面表示の厚さ維持に効果的である。しかしながら、過度に大量の充填剤の使用は脆弱な路面表示を生じ得る。結果として、路面表示組成物は1以上の充填剤を20～90重量%含む。1の側面において、1以上の充填剤は1以上のビーズを50重量%以下、または10～40重量%、または15～30重量%含む。さらに他の側面において、1以上の充填剤は1以上の色素を20重量%以下、または2～15重量%、または3～10重量%含む。

【0268】

1の側面において、路面表示組成物は結合剤を10～80重量%含み、結合剤組成物はここに記載の本発明のポリマーを含む。

【0269】

好みの実施態様において、本発明の接着剤組成物を含む結合剤を含んだ路面表示組成物は、30重量%以下の1以上のワックス、及び/または80重量%以下の1以上の粘着付与剤、及び/または20重量%以下の1以上の可塑剤、及び/または5重量%以下の1以上の酸変性粘着付与剤またはポリマー、及び/または5重量%以下の1以上の安定化剤、及び/または40重量%以下の1以上のポリマー添加物、及び/または10重量%以下の1以上の乳白剤、及び/または1重量%以下の1以上の酸化防止剤を含む結合剤を含む。好みの実施態様において、本発明の接着剤組成物を含む結合剤を含んだ路面表示組成物は輝度が70以上である。

【0270】

シーリング材

特定の実施態様において、ここに記載の接着剤組成物はシーリング材組成物において用いることができる。シーリング材の目的は一の基質の2表面間の密封を維持することであり、従って、基質を修繕し、または別の方法では、二組の基質間の密封を達成及び維持することである。従って、本発明の接着剤組成物を含む混合物を含んだシーリング材組成物は、当該混合物が密封される基質表面の少なくとも一部に適用される。

【0271】

基質は、コンクリート、屋根ふき材、大理石、陽極酸化アルミ、レンガ、モルタル、花こう岩、石灰岩、磁器、ガラス、塗装表面、木材、ポリビニルクロリド、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリエチレン、布、詰め物、プラスティック、石、石造材料、パイプ、ホース、金属、配線、スキー板、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエステル、アクリル、PVC、紙、エチレン、酢酸ビニル、自動車、建物、飛行機、パネル、デッキ、骨、舗道、自動車などの尾板、ドアパネル、操舵室、ロッカーパネル、防火壁、床輪縁、トランク、及びフロアーパンを含むことができる。例えば、シーリング材組成物は液漏れパイプまたは自動車のひび割れたフロントガラスの修理に用いることができる。シーリング材はさらに、2以上の表面間に耐荷重性弹性結合を生じ、空気、水及びほこりの通過を防ぐ。

【0272】

シーリング材組成物は修理作業中、隙間を埋めて、基質表面を結合するために有用であるだけでなく、第1の基質を他の基質に結合するために用いることもできる。自動車産業は特に、主にこの目的に関してシーリング材を用いる。自動車はいくつかの構造部品から組み立てられ、特定の部品及び部品により耐えなければならない応力度に応じて種々の方

10

20

30

40

50

法でひとつに結合される。例えば、シーリング材はドアパネル、クォーターパネル、自動車などの尾板、及び屋根ふき材の組立てに利用される。溶接またはボルトでひとつに固定されたその他の自動車組立部品はその継ぎ目にシーリング材組成物を用いる。シーリング材を用いる自動車用途のさらなる例は操舵室、衝撃低減器、ロッカーパネル、防火壁、床輪縁、フロアーパン、及びトランクである。

【0273】

用途の目的に関わらず、シーリング材組成物は隙間充填用物質である。従って、密封形成される時点では、シーリング組成物は、シーリング組成物が適用される基質中の隙間に流れ当該隙間を埋めることができるように十分に低い弾性を有するべきであり、シーリング材が固まり、硬化された後は、基質が密封されるように依然として十分に隙間を埋めているべきである。未硬化状態では、シーリング組成物は粘着性を維持すべきであり、適切な基質の湿り気を確保するために十分に低い粘度を有する。

【0274】

シーリング材組成物は好ましくは、一度凝固または硬化された後は接触に対して本質的に粘着性を有さない。硬化状態で、シーリング材は種々の用途における通常の気候及び使用者への曝露に耐える十分な耐久力を有するべきである。第一に、シーリング材は酸素、水、及び空気に対して効果的な防壁を提供すべきである。硬化シーリング材は高温での基質膨張などの機械応力に対して、ひび割れ耐性及び縮み防止性を有するべきであり、従って、シーリング材は時間とともにたるんだり流れたりしない。特にガラス基質は、高レベルの応力でひび割れを生じ得る。シーリング材はその通常の形状及び寸法を保持するために十分に堅くなければならないが、伸長に対して実質的な回復を示すように十分な柔軟性も維持しなければならない。従って、高接着強度とともに高伸長率及び低引張係数との平衡はシーリング材として用いる混合物にとって望ましい。高接着強度組成物は通常、接着強度が高ければ高いほど、混合物から基質を除去するために必要な力が大きければ大きいほど、効果的な密封を提供する。混合物の伸長率は、指定の引張伸長に供した後、おおよその元の構成に戻る組成物の能力をいう。高伸長率は極めて高度な自己修復特性を有するシーリング材を提供するために望ましい。すなわち、シーリング材は基質の密封部分に及ぼされた応力に順応するために変形する。

【0275】

好ましい実施態様において、シーリング材混合物はさらに、1以上のワックスを含み、例えば、極性ワックス、非極性ワックス、フィッシャー・トロプシュワックス、酸化フィッシャー・トロプシュワックス、ヒドロキシステアロマイドワックス、機能化ワックス、ポリプロピレンワックス、ポリエチレンワックス、ワックス改質剤、アモルファスワックス、カルナウバワックス、キャスター・オイルワックス、マイクロクリスタリンワックス、蜜ろう、カルナウバろう、キャスターワックス、鯨ろう、植物ろう、カンデリラろう、日本ろう、ouricuryワックス、ダグラスファーバーク・ワックス、米ぬかワックス、ホホバワックス、ヤマモモワックス、モンタンワックス、ピートワックス、オゾケライトワックス、セレシンワックス、石油ろう、パラフィンワックス、ポリエチレンワックス、化学変性炭化水素ワックス、置換アミドワックス、及びこれらの組み合わせ及び誘導体である。

【0276】

1の実施態様において、本発明の接着剤組成物を含む混合物を含んだシーリング材組成物はさらに、1以上の添加物を含むことができ、可塑剤、油分、安定化剤、酸化防止剤、色素、粘着防止剤、加工助剤、中和剤、水、染料、ポリマー添加物、消泡剤、保存料、増粘剤、流動性向上剤、保湿剤、增量剤、水、架橋剤、チキソトロープ剤、界面活性剤、接着促進剤、強化剤、鎖延長剤、紫外線安定剤、着色剤、有機溶媒、安定化剤、乾燥剤、潤滑剤、成核剤、促進剤、硬化剤、及びこれらの組み合わせまたは誘導体が挙げられる。

【0277】

1の実施態様において、本発明の接着剤組成物を含む混合物を含んだシーリング材組成物はさらに1以上の充填剤を含むことができ、例えば、シリカ、珪藻土、炭酸カルシウム

10

20

30

40

50

、酸化鉄、水添化キャスター油、ヒュームドシリカ、沈降炭酸カルシウム、疎水性処理ヒュームドシリカ、疎水性沈降炭酸カルシウム、タルク、酸化亜鉛、ポリビニルクロリド粉末、殺菌剤、グラファイト、カーボンブラック、アスファルト、炭素充填剤、粘土、雲母、纖維、二酸化チタン、硫化カドミウム、石綿、木粉、ポリエチレン粉末、細切纖維、発泡体、ビーズ、チキソトローブ、ベントナイト、硫酸カルシウム、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、及びこれらの組み合わせまたは誘導体である。

【0278】

1の実施態様において、本発明の接着剤組成物を含む混合物を含んだシーリング材組成物はさらに、1以上の接着促進剤を含むことができ、例えば、シラン、チタン酸塩、有機シラン、アクリル、酸、無水物、エポキシ樹脂、硬化剤、ポリアミド、メチルアクリレート、エポキシ、フェノール樹脂、ポリイソブチレン、アミノアルキル、メルカプトアルキル、エポキシアルキル、ウレイドアルキル、カルボキシ、アクリレート及びイソシアヌレート官能化シラン、メルカプトプロピルトリメトキシシラン、グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、アミノプロピルトリエトキシシラン、アミノエチルアミノプロピルトリメトキシシラン、ウレイドプロピルトリメチルオキシシラン、bis- -トリメトキシシリル-プロピル尿素、1，3，5-tris- -トリメトキシシリルプロピルイソシアヌレート、bis- -トリメトキシシリルプロピルマレイン酸、フマル酸及び-メタクリルオキシプロピルトリメトキシシラン、アミノプロピルトリエトキシシラン、及びこれらの組み合わせ及び誘導体である。

【0279】

1の実施態様において、本発明の接着剤組成物を含む混合物を含んだシーリング材組成物はさらに、1以上の架橋剤を含むことができ、例えば、オキシム架橋剤、アルコキシシラン、エポキシアルキルアルコキシシラン、アミドシラン、アミノシラン、エノキシシラン、テトラエトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、ビニルトリメトキシシラン、グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、ビニルtris-イソプロペノキシシラン、メチルtris-イソプロペノキシシラン、メチルtris-シクロヘキシリアミノシラン、メチルtris-2級ブチルアミノシラン、ポリイソシアネート、及びこれらの組み合わせまたは誘導体である。

【0280】

1の実施態様において、本発明の接着剤組成物を含む混合物を含んだシーリング材組成物はさらに、1以上の有機溶媒を含むことができ、例えば、脂肪族溶媒、脂環族溶媒、ミネラルスピリット、芳香族溶媒、ヘキサン、シクロヘキサン、ベンゼン、トルエン、キレン、及びこれらの組み合わせまたは誘導体である。

【0281】

1の実施態様において、本発明の接着剤組成物を含む混合物を含んだシーリング材組成物はさらに、1以上の界面活性剤を含むことができ、例えば、ビニル含有またはメルカプト含有ポリオルガノシロキサン、ビニル末端ポリジメチルシロキサンを含むマクロモノマー、これらの組み合わせまたは誘導体である。

【0282】

1の実施態様において、本発明の接着剤組成物を含む混合物を含んだシーリング材組成物はさらに、1以上の鎖延長剤を含むことができ、例えば、アミノシラン、アミドシラン、アセトキシシラン、及びアミノキシシラン、メチルビニルビス-N,-メチルアセトアミドシラン、メチル水素ジアセトキシシラン、ジメチルビス-ジエチルヒドロキシアミノシラン、ジメチルビス-2級ブチルミノシラン、ポリイソシアネート、及びこれらの組み合わせまたは誘導体である。

【0283】

1の実施態様において、本発明の接着剤組成物を含む混合物を含んだシーリング材組成物はさらに、1以上の酸化防止剤を含むことができ、例えば、チオエステル、リン酸塩、ヒンダードフェノール、テトラキス(メチレン3-(3',5'-ジ-t-ブチル-4ヒドロキシフェニル)プロ-ピオネート)メタン、2,2'-エチリデンビス(4,6-ジ

10

20

30

40

50

- 3 級ブチルフェノール)、1,1-3-トリス(2-メチル-4-ヒドロキシ-5-t-ブチルフェニル)ブタン、1,3,5-トリメチル-2,4,6,tri s-(3,5-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン、ジラウリルチオジプロピオネート、ペンタエリトリトールテトラキス(-ラウリルチオプロピオネート)、アルキル-アリール-ジ-及びポリリン酸塩、チオ亜リン酸塩、及びこれらの組み合わせまたは誘導体である。

【0284】

1の実施態様において、本発明の接着剤組成物を含む混合物を含んだシーリング材組成物は30重量%以下の1以上のワックスを含むことができる。

【0285】

舗装組成物

特定の実施態様において、ここに記載の接着剤組成物は舗装組成物に用いることができる。通常、舗装組成物はアスファルト、砂利及び接着剤組成物を含む。ここで用いる“アスファルト”的語は、室温で固体または半固体の種々の物質をいい、通常、加熱に際して液化し、主な構成物質は石油精製での残留物として得られる天然の瀝青(ビチューメン)である。アスファルトはさらにカーカー・オスマー(Kirk-Othmer)、Encyclopedia of Chemical Technology(化学技術百科事典), 第3巻、第3版、(1978)、第284-327頁、John Wiley & Sons, ニューヨークにより定義されている。さらなる説明は、文献の表題“A Brief Introduction to Asphalt and some of its Use(アスファルト及びその使用の簡単な説明)”、マニュアルシリーズNo.5(MS-5)、The Asphalt Institute、第7版、1974年、9月にある。

【0286】

天然の瀝青の例としては、天然アスファルトまたは石油精製アスファルト、アスファルタイト、発熱性蒸留物、ボトムストック、及びその他の発熱性残留物、例えば、発熱性アスファルト、石油ピッチ、コールタールピッチ、及びこれらの混合物が挙げられる。このような物質は0~300またはそれ以上の通過率(ASTM D-5-51)により特徴付けられることが多く、好ましくは約40~300であり、軟化点は約32~120の範囲であり、好ましくは38~65である。

【0287】

アスファルトの有用な供給源は現在市販されているものの多くを含む。例えば、天然アスファルト及び石油アスファルトは屋根ふき材及び舗装用途に用いられることが公知である。天然アスファルトは例えば、ギルソナイト、グラハマイト及びグランスピッチなどのアスファルタイト；トリニダードアスファルトなどのレーキアスファルト；及びロックアスファルトを含む。石油アスファルトは原油の蒸留により得られるストレートアスファルト(非ブローン及び実質的に非酸化)、触媒の存在下または不存在下で酸素含有気体をストレートアスファルトに吹き込むことにより生成されるブローンアスファルト、プロパンまたはその他の溶媒の使用により、アスファルト物質が石油分留から分離されたときに得られる溶媒抽出アスファルト、及びストレートアスファルトと軽油溶媒との混合物であるカットバックアスファルトを含む。当該アスファルトは石油タール及びアスファルトセメントを含むこともできる。石油タールは、石油分留、当該精製形のタール、軽油分留と当該タールとを混合することにより得られるカットバックタール、及び当該タールから揮発性分留を除去した残留物であるタールピッチから気体が生成したときに副生成物として得られる石油ガスターを含む。これらのいずれの種類のアスファルトも単独または組み合せて用いることができる。例えば、ストレートアスファルトは舗装用途に有用であり、及び酸化及びブローンアスファルトは屋根ふき材用途に有用である。

【0288】

本発明の舗装組成物は特にアスファルト被覆組成物の調製に有用である。これらは砂利含有アスファルトを含み、例えば道路、橋、空港滑走路及び歩道の舗装及びこれらの部分

的補修または継ぎ接ぎに用いられる。本発明の舗装組成物は流動体または溶融状態中、砂利と混合できる。一般的に、舗装組成物は前もって加熱、乾燥させた砂利と混合して、統一した砂利コートの均一な混合物を形成する。砂利は混合前に本質的に全ての湿気を取り去るために十分な時間及び温度条件下で加熱できる。混合中、舗装組成物は通常、温度約100～約160である。最終的な組成物をその加工性を失う温度まで冷却する前に、路盤に広げることができ、例えば、それから圧縮し、硬化させる。硬化後、得られた舗装組成物はアスファルト結合剤による凝集結合を含む。

【0289】

ここで用いる“凝集”の語は、大きさが砂などの微細粒子から破碎石、砂利またはスラグなどの比較的大粒の範囲の固体粒子を含むものとする。一般的に、舗装組成物の調製に用いられるこのような砂利は主に無機物質であり、すなわち、例えば碎岩、石及び場合によっては砂である。砂利の大きさは特定の舗装組成物の所望の最終用途によりいくぶん左右される。例えば、大きめ砂利は、一般的に小さい平均粒子サイズの砂利を含む破碎修繕組成物と比較して、通常は新しいまたは再舗装した車道に敷くために用いられる。もちろん、砂利は、特に研磨または粉碎される場合、不規則性の高いものとなり得る。砂利物質の例としては無機物質を含み、例えば、砂、砂利、破碎石等、及び特定の有機物質を含み、例えば再利用タイヤ材料及び熱可塑性物質、及び1以上の無機及び有機物質の混合物である。砂利として有用なことが知られるその他の無機物質及び有機物質も、ここでは明示しないが、本発明の組成物に使用できる。

【0290】

本発明の舗装組成物は改善されたシールコートの調製にも有用である。シールコートは通常は温アスファルト、カットバックアスファルト、またはアスファルト乳剤として適用される。溶融または流動アスファルトは通常はトラックから噴霧され、砂利がアスファルトの上部に置かれ、続いて当該砂利をアスファルト内にロールまたは圧縮し、塗布を終える。

【0291】

本発明の舗装組成物は、形成後、例えば道路建設条件下で流動または融解状態で維持するために従来技術により処理できる。例えば、アスファルトは適当な揮発性溶媒または蒸留物とアスファルトとを流動させることによりカットバックに形成できる。カットバックアスファルトは次に砂利と直接混合でき、流動形状で舗装組成物として、場合によっては室温で利用できる。砂利と混合して舗装組成物に形成する前にアスファルトを流動化させる他の従来技術は、公知技術によりアスファルトを乳化されることである。この流動化方法の利点は砂利と混合後、室温で舗装組成物として適用できることである。

【0292】

舗装組成物生成において重要な技術的に考慮すべき事項はアスファルトセメント及び舗装組成物の意図した最終用途の両方の化学的な適合性を保証することである。化学的適合性に関しては、砂利中の望ましくない塩の存在などの因子を考慮して、アスファルト舗装組成物の崩壊可能性を最小限にしなければならない。

【0293】

さらに、舗装組成物中に含まれる砂利及びアスファルトセメントに優れた粘着性が存在することも必要であり、アスファルト舗装組成物を表面に敷く前または後の両方において、アスファルト組成物が完全に“湿って”おり、及びこれらの材料の十分な混合を確実にする。さらに、砂利の物理的特性も考慮しなければならず、すなわち、高度の交通量、及び/または重負荷に直面することが予想される特定条件下、予想される使用形態に適した混合物が選択できる。

【0294】

そのようなものとして、舗装組成物はここに記載の本発明のポリマーを含む接着剤を含む。好ましくは、アスファルト、砂利及び本発明の接着剤組成物を含有する舗装組成物は1以上の天然アスファルト、石油アスファルト、またはこれらの任意の組み合わせ、及び/または、アスファルタイト、ギルソナイト、グラハマイ特、グランスピッチ、レーキア

10

20

30

40

50

スファルト、トリニダードアスファルト、またはロックアスファルト、及び／または粘土、石、砂、岩、砂利、及びスラグ、及び／またはカーボンブラック、鉱山チャット（mine chatt）、鉱山尾鉱、硬質レンガ、燃え殻、灰、粉碎タイヤ（ground tire）、粘土、及びガラスを含む。

【0295】

好みの実施態様において、アスファルト、砂利及び本発明の接着剤組成物を含有する舗装組成物は、95重量%以下の砂利を含む。

【0296】

他の実施態様において、アスファルト、砂利及び本発明の接着剤組成物を含有する舗装組成物は、90～96重量%の砂利を含む。 10

【0297】

他の実施態様において、アスファルト、砂利及び本発明の接着剤組成物を含有する舗装組成物は、80～99重量%のアスファルトを含む。

【0298】

スティックのり

特定の実施態様において、ここに記載の接着剤組成物はスティックのり中に用いることができる。スティックのりは種々の形態で販売されており、その一つはホットメルト接着剤グルーガンである。ホットメルト接着剤スティックのりは通常、グルーガンでの使用のために設計される。グルーガンは使用者の手の中に握られるように溶融室を用いて適合され、スティックのりの末端部分は溶融室に供給された熱を受け取り、融解される。ホットメルト接着剤スティックのりの融解を進行させるにはホットメルト接着剤スティックのりを溶融室内に押付けることによって達成できる。ホットメルト接着剤スティックのりは溶融室に充填されてそこで融解したときに、溶融接着剤がガンノズルから提供される。従って、ホットメルト接着剤スティックのりは基質に溶融状態でのりを提供するために十分な使用温度に加熱される。基質は、紙、板紙、ボール紙、厚紙、段ボール、合板、クラフト、カードボード、ファイバーボード、プラスティック樹脂、金属、合金、ホイル、フィルム、プラスティックフィルム、ラミネート、シート、木材、プラスティック、ポリスチレン、ナイロン、ポリカーボネート、ポリプロピレン、発泡スチレン、多孔質基体、ポリビニルクロリド、壁、ポリエステル、またはこれらの組み合わせを含むことができる。 20

【0299】

ホットメルト接着剤スティックのりの使用温度は十分に低い接着剤溶融粘度が生じるように調節し、基質の十分な湿りを保証し、のり塗布後に基質の位置を固定するための十分な開放時間を与える。接着剤組成物は室温程度または以下まで冷却された後は実質的に非粘着性になることが望ましい。ホットメルト接着剤スティックのりに使用する接着剤は種々の基質に結合する能力も有すべきである。 30

【0300】

その他のスティックのりは感圧性接着剤スティックのりである。感圧性接着剤スティックのりは容器内に収容された固体接着剤本体を含む市販製品である。通常は、取り外し可能な蓋で容器が閉じられており、当該容器は底に開放部分を有する。当該開放部分は感圧性接着剤スティックのりの軸に垂直な平面である。当該蓋は感圧性接着剤スティックのりを使用したいときに取り外すことができる。 40

【0301】

感圧性接着剤スティックのりは基質に使用する際に加熱は必要なく、単に圧力をかけることで基質上に接着剤が塗布される。同様に、スティックのりから塗布されたのりは室温で粘着性なので、当該基質を次に単に圧力をかけるだけで他の基質に接着して付着できる。

【0302】

感圧性接着剤は、少なくとも1の接着剤組成物成分が室温で液体である。当該液体成分は感圧性接着剤スティックのりに室温で感圧性または表面粘着性を与える。スティックのりが粘着性を有するように、及びその一部が接触により基質上に留まるように、ポリマー

10

20

30

40

50

添加物、粘着付与剤、及び／または可塑剤がしばしば接着剤組成物に添加される。

【0303】

スティックのりは接着剤ポリマー、粘着付与剤及びワックスの混合物から構成できる。成分量は融点、使用温度、開放時間、結合強度、耐久性及び耐熱性の適切なブレンドを接着剤組成物中に与えるように用途に応じて変更される。接着性を損なわずに応力をよく受容する接着剤組成物が望ましく、結合強度及び結合破損までの時間により測定される。スティックのり組成物の結合強度及び結合破損までの時間は両方とも高いことが好ましい。結合破損までの時間が長ければ長いほど柔軟性が増加する。

【0304】

好ましい実施態様において、細長い構成 (elongated member) を含むスティックのりは本発明の接着剤組成物を含み、ここで当該接着剤がさらに、可塑剤、油分、安定化剤、酸化防止剤、共力剤、色素、染料、ポリマー添加物、消泡剤、保存料、増粘剤、流動性向上剤、保湿剤、充填剤、水、香料、難燃剤、着色料、抗生物質、消毒剤、抗真菌薬、無機塩、ゲル化剤、結合剤、界面活性剤、塩基、抗菌剤、及び泡止め剤などの1以上の添加物、及び／または1以上のポリエチレン、酸化チタン、及び炭酸カルシウムなどの1以上の充填剤を含む。

【0305】

1の好ましい実施態様において、本発明の接着剤組成物を含む細長い構成を含むスティックのりは5～30重量%の1以上の無機塩を含む。

【0306】

好ましい実施態様において、本発明の接着剤組成物を含む細長い構成を含むスティックのりは5重量%以下の1以上の着色料、染料、酸化防止剤、香料、または色素を含む。

【0307】

好ましい実施態様において、本発明の接着剤組成物を含む細長い構成を含むスティックのりは1重量%以下の1以上の抗菌剤を含む。

【0308】

好ましい実施態様において、本発明の接着剤組成物を含む細長い構成を含むスティックのりは、当該接着剤の基質繊維引裂け率が25～75%～100%である。

【0309】

パイプ被覆

特定の実施態様において、本発明の接着剤はパイプ被覆材料に用いることができる。パイプ被覆材料またはパイプラップは、圧力容器、工業用船舶、変圧器、パイプ、接続金具、タンク、容器及びコンテナの絶縁または漏れ口の修復に用いることができる。さらに、パイプ被覆材料は様々な種類の表面上に用いることができ、例えば、平面壁表面、円形接合部及びその他の機械的部品である。ここに記載のパイプ被覆材料は種々の産業で用いることができ、例えば、建築、建物、建造、食品、飲料、鉱業、石油化学、オイル、ガス、及び水処理である。

【0310】

パイプ被覆材料は通常、被覆部材の少なくとも一部に接着剤組成物を適用することにより形成される。被覆部材は、ガラスファイバー、繊維、織布、不織布、織物、布、ポリエチレン、ポリプロピレン、アクリルゴム、E P D M、ニトリルゴム、ナイロン、エピクロルヒドリンエラストマー、多硫化物、アクリルエラストマー、またはブチルゴム、ポリイソブチレン (polysisobutylene) を例えれば含むことができる。パイプ被覆材料は、木材、セメント、コンクリート、不織布、織布、アルミニウム、ステンレススチール、真ちゅう、ニッケル、ガラス、施釉セラミック、未施釉セラミック、タイル、ポリビニルクロリド、ポリエチレンテレフタレート、石膏、スタッコ、アスファルトコーティング、屋根ぶきフェルト、合成ポリマー膜、及び発泡ポリウレタン絶縁材から例えれば形成できる。被覆部材は任意の厚さを有する。例えば、一般的な民間建築において使用される被覆部材の厚さは1.27mmである。

【0311】

10

20

30

40

50

従って、本発明の接着剤組成物及び被覆部材を含むパイプ被覆材料は、被覆部材の上または中の少なくとも一部に配置された接着剤を含むことができる。

【0312】

好みの実施態様において、本発明の接着剤組成物を含むパイプ被覆材料は1以上のポリマー接着剤を含み、例えばブチルゴム及びポリイソブチレンである。さらに好みの実施態様において、本発明の接着剤組成物を含むパイプ被覆材料は消費者製品である。

【0313】

安全ガラス

特定の実施態様において、ここに記載の接着剤は安全ガラスに用いることができる。2種類の安全ガラスがあり、積層安全ガラス及び強化安全ガラスである。積層安全ガラスは通常、高周波音の伝導を減少し、及び紫外線の97%をブロックする。強化安全ガラスは当該ガラスを素早く加熱及び冷却して固めることにより強化された一体のガラスであり、そうすることによりガラス強度が増加される。

【0314】

ここで用いる“安全ガラス”とは、透明窓ガラスを含む材料である。安全ガラスの重要な機能は、そこに用いられている接着剤組成物が温度変化により影響を受けず、ガラスが割れたときに備えて、接着剤組成物がガラス片を保持しているということである。さらに、接着剤組成物はガラス成分の異なる膨張率に起因して当該安全ガラスに加えられたせん断応力を吸収し、例えば安全ガラスが第一の層としてガラス、及び第二の層としてポリカーボネートを含む場合である。安全ガラスは通常、複数の物質層と、接着層とを含み、当該接着層は1の層の外側または2以上の層を互いに接着させるためにその層間に塗布される。透明窓ガラスは接着剤組成物を1以上の透明パネルに適用することにより形成され、当該接着剤組成物は1以上の透明パネル上にフィルムを形成できる。1以上の透明パネルはポリビニルブチラール、ポリウレタン、酢酸ビニル、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリカーボネート、ガラス、ケイ酸塩ガラス、またはこれらの組み合わせから形成できる。

【0315】

1の実施態様において、透明窓ガラスを含む材料は1以上の透明パネルを含み、及び1以上のパネルの少なくとも一部に塗布された本発明の接着剤組成物を含む。より好みの実施態様において、当該材料は1以上の透明パネル及び本発明の接着剤組成物を含む透明窓ガラスを含み、当該接着剤組成物は1以上のパネルの少なくとも一部に適用され、ここで、1以上の透明パネルは、ポリビニルブチラール、ポリウレタン、酢酸ビニル、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリカーボネート、ガラス、ケイ酸塩ガラス、またはこれらの組み合わせを含む。好みの実施態様において、当該材料は、防弾ガラス、防音ガラス、及び/または安全ガラスである。さらに、本発明の接着剤組成物は1以上の当該透明パネル上にフィルムを形成できる。

【0316】

シングル屋根板

特定の実施態様において、本発明の接着剤はシングル屋根板に用いることができる。シングル屋根板は通常は屋根ふき部材と当該屋根ふき部材を屋根に結合させる接着剤とから形成される。屋根ふき部材は通常、シートメタルから形成され、例えば、銅、ターンメッキステンレススチール、亜鉛、アルミニウムまたはこれらの合金である。

【0317】

屋根板の重要な基準としては、当該屋根板が輸送用に山積みにして詰め込まれた場合の圧迫耐性、加熱設備を用いずに自動密封を可能にする比較的低い融解温度、及び結合表面間の強い結合を含み、高い風抵抗、及び優れた低温安定性を有する。その他の重要な考慮すべき事項は、光酸化に対する優れた耐性を含み、特に2時間以上接着剤を日光に当てた後の接着特性を保持する能力である。

【0318】

さらに、接着剤組成物は、より強い接着及び優れた風耐性を備えるために32～37

10

20

30

40

50

の低温で“移動”特性を示すべきである。ここで用いる“移動”とは接着剤組成物が部分的に屋根ふき材料の接触面内に流動する場合をいう。

【0319】

従って、1の実施態様において、屋根板は第1の側面及び第2の側面を有する屋根ふき部材を含み、ここで本発明の接着剤組成物は第2の側面の少なくとも一部に塗布される。他の実施態様において、屋根ふき部材は、シートメタル、銅、スチール、亜鉛、アルミニウム、これらの組み合わせ及びこれらの合金、屋根ふきアスファルト、織物、砂利、及びこれらの組み合わせを含む。さらに、屋根ふき部材の両側は、ゴム、ガラスファイバー、アラミド、炭素、ポリエステル、ナイロン、アスファルト、及び／または、シートメタルを含むことができ、ここでシートメタルは銅、アルミニウム、これらの組み合わせ、またはこれらの合金を含む。

【0320】

好みの実施態様において、第1の側面及び第2の側面を有する屋根ふき部材は、本発明の接着剤組成物が第2の側面の少なくとも一部に塗布され、当該接着剤はさらに、1以上の瀝青材料を含み、好みの場合は1以上の瀝青材料はアスファルトを含み、より好みの場合は、接着剤組成物は80重量%以下の1以上の瀝青材料を含む。

【0321】

反射コーティング

特定の実施態様において、本発明の接着剤組成物は反射製品に用いることができる。反射製品は反射材料を基質表面に適用することにより形成され、基質の一部に反射力を備える。反射材量は当業者に公知の材料を含むことができる。例えば、反射材料はプリズム及びガラスビーズを含むことができる。基質表面は道路、自転車用車線、路面標識、軟らかい競技表面、運動場表面、船、滑走路、横断歩道、建物、テニスコート、車道、人工芝代用品、油田掘削装置、コンクリート、金属、アスファルト、瀝青、レンガ、敷石、タイル、スチールプレート、木材、セラミック、ポリマー材料、ガラス、橋台、道路障害物、障壁、パイプ、柱、ガードレール、コンクリートブロック、歩道の縁石、駐車場、磁器、石、木材パネル、削片板、木材自動車部品、軽量コンクリートブロック、ガラス窓、交通ドラム、交通コーン、液晶ディスプレイ、照明、コピー機、電子バックボード、拡散白色標準（diffuse white standards）、及び写真用光源を含むことができる。

【0322】

接着剤組成物は反射材料の少なくとも一部に塗布して、当該反射材料を基質に接着する。接着剤組成物はここに記載の本発明のポリマーを含む。

反射製品は、道路、自転車用車線、路面標識、軟らかい競技表面、運動場表面、船、滑走路、横断歩道、建物、テニスコート、車道、人工芝代用品、油田掘削装置、コンクリート、金属、アスファルト、瀝青、レンガ、敷石、タイル、スチールプレート、木材、セラミック、ポリマー材料、ガラス、橋台、道路障害物、障壁、パイプ、柱、ガードレール、コンクリートブロック、歩道の縁石、駐車場、磁器、石、木材パネル、削片板、木材自動車部品、軽量コンクリートブロック、ガラス窓、交通ドラム、交通コーン、液晶ディスプレイ、照明、コピー機、電子バックボード、拡散白色標準（diffuse white standards）、及び写真用光源からなる群より選択される基質表面を含むことができる。

【0323】

好みの実施態様において、反射製品は本発明の接着剤組成物が基質表面の少なくとも一部に適用された反射材料を含み、反射材料は70以上の輝度を有する。

【0324】

その他の製品

1の実施態様において、本発明のポリマーは射出成形された製品でもよく、フィルム、押出フィルム、キャストフィルム、またはこれらの組み合わせである。当該製品は好みの場合は、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン及び／または無水マ

10

20

30

40

50

レイン酸で官能化されたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンを含む。当該製品はまた、非極性基質、極性基質上、または両方の上に配置したアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを含むことができる。従って、本発明の製品は、木材、紙、厚紙、プラスティック、熱可塑性物質、ゴム、金属、金属ホイル、金属化表面、布、不織布纖維、スパンボンド纖維、石、石膏、ガラス、フィルム基質上に酸化ケイ素を蒸着して適用された SiO_x被覆、発泡体、岩、セラミック、フィルム、ポリマー発泡体、インク被覆基質、染料被覆基質、色素被覆基質、P V D C、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリアクリル酸、アクリル酸、ポリエチレンテレフタレート、コロナ放出処理基質、火炎処理基質、電子ビーム放射基質、放射基質、電子波処理基質、シラン化基質及びこれらの組み合わせ上に配置された、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン及び／または官能性アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを含むことができる。

10

20

20

【0325】

マスター・バッチ

また、本発明は、製品、フィルム等の種々のポリマー材料を生成するために本発明のポリマーを提供するマスター・バッチプロセスを含み、高せん断条件下で本発明のポリオレフィンと少なくとも1の添加物とを溶融ブレンドして10～90重量%の本発明のポリマーを含む濃縮物を生成することを含み、次に、最終生成物のその他の成分をブレンドしてもよい。適した接着剤の例としては、ここに記載の接着剤が挙げられる。本発明のアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、好ましくはアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレン、官能化アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィン、好ましくは無水マレイン酸でグラフトされたアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンは希釈剤、及び濃縮材料の両方としてマスター・バッチで利用でき、続いて最終生成物に加える。1の実施態様において、マスター・バッチを生成するプロセスは、アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンが濃縮物の形成と同時に官能化される工程を含むことができる。

【0326】

実施例a-srPPの調製

サンプル a-srPP-1-、a-srPP-3-、a-srPP-4-、a-srPP-5-及びa-srPPr-6の重合を液体充填、一段階0.5リットルステンレススチール・オートクレーブ連続反応器中で、N₂、N₂-ジメチルアニリニウムテトラキス(ペニタフルオロフェニル)ボレートで前もって活性化させたジフェニルメチレン(フルオレニル)(シクロペニタジエニル)ハフニウムジメチルを用いて行った。当該反応器は攪拌装置、温度制御装置を有する水冷却／蒸気加熱部及び圧力制御装置を備える。溶媒及びプロピレンは反応器内に送り込む前に、3カラム精製系を通過させることにより精製した。全触媒溶液は水含量が1.5 ppm未満の不活性化雰囲気下で保持し、定量ポンプにより反応器内に送った。触媒とモノマーとの接触は反応器内で起こした。

30

【0327】

反応器は最初にヘキサン及びスカベンジャーを反応器系を通して、最大可能温度(約150℃)で少なくとも1時間、連続的にポンプで送ることにより洗浄した。洗浄後、反応器を反応器ジャケット経由で流れる水／蒸気混合物を用いて所望の温度まで加熱／冷却し、制御溶媒流により設定圧力で制御した。モノマー及び触媒溶液を、動作が定常状態に達すると、反応器内に送った。設定温度で反応器を制御及び維持するために自動温度制御系を用いた。粘性生成物の放出及び水流混合物の温度の低下を観測することにより重合活動の開始を推測した。活性が定着し、系が平衡に達すると、サンプルを回収する前に、平均滞留時間の少なくとも5倍の時間、達成条件下で、系の操作は続けながら反応器をラインから外した。主に溶媒、ポリマー及び未反応モノマーを含有する最終混合物を、当該系の動作が定常状態に達した後、回収箱に回収した。メタノールを触媒不活性化剤として用いた。回収サンプルはフード中でまず空気乾燥してほとんどの溶媒を蒸発させ、次に温度約

40

50

90 約 12 時間で、真空オーブン中で乾燥させた。真空オーブンで乾燥させたサンプルの重量を量り、収量を得た。全ての反応は圧力約 350 psig 及び温度 80 ~ 120 の範囲で行った。詳細な実験条件及びポリマー特性は以下の表中に記載する。

【 0328 】

当該実施例において、重合温度はポリマーの分子量及び立体規則性を変えるために変化させた。生成したポリマーは約 58 ~ 75 % の % [r] ダイアドを有する。また、それぞれ本質的にアモルファスポリマーを示す。

【 0329 】

a - s r P P の官能化

アモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンサンプルは次に、約 120 g のポリマーをトルエン中に溶解することにより官能化し、ポリマー濃度が約 20 重量 % のポリマー溶液を得た。15 重量 % の無水マレイン酸（使用する特定の a - s r P P に基づく）を次に溶液に加え、2.5 重量 % のラジカル開始剤、2,5-ジメチル-2,5-ジ(t - プチルペルオキシ)ヘキサンと一緒に加えた。反応温度は 139¹⁰、約 4 時間である。1-ビニル-2-ピロリドンを用いることによりアミド官能基が得られ、アクリル酸を用いることにより、酸官能基が得られた。

【 0330 】

データを以下に示す。

【表1】

ポリマー	a-srPPr-1	a-srPPr-3	a-srPPr-4	a-srPPr-5	a-srPPr-6	比較 iPP-g-MA
触媒供給速度(モル/分)	1.75E-06	1.75E-06	1.75E-06	1.75E-07	8.76E-06	
プロピレン供給速度(g/分)	14	14	14	14	14	14
ヘキサン供給速度(mL/分)	90	90	90	90	90	
重合温度°C	110	120	107	94	90	
Mn (kg/モル)	23	17	34	74	128	
Mw (kg/モル)	62	43	86	188	311	
Mz (kg/モル)	148	80	177	385	606	
g'_{vis}	1.08	0.98	1.05	1.11	1.19	
トライアッドモル分画 C13 NMR						
Mm		0.152	0.133	0.114	0.0922	
mr rm		0.483	0.464	0.435	0.399	
Rr		0.365	0.403	0.451	0.509	
ダイアッドモル分画 C13 NMR						
M		0.394	0.365	0.331	0.292	
R		0.606	0.635	0.669	0.708	

【表2】

官能化ポリマー		無水マレイン酸 (MA)				無水マレイン酸 (MA)				無水マレイン酸 (MA)				無水マレイン酸 (MA)			
官能基		1-ビニル-2-アクリル酸 (AA)	無水マレイン酸 (MA)														
Mn (kg/モル)	8	8	8	17	23	29	29	60	60	60	60	60	60	60	60	3.7	
Mw (kg/モル)	20	20	20	33	44	68	68	135	135	135	135	135	135	135	135	9.8	
Mz (kg/モル)	38	38	38	55	71	116	116	263	263	263	263	263	263	263	263	18	
Wt% FG	3.20	1.00	1.00	1.92	1.00	1.00	1.00	1.12	1.12	1.12	1.12	1.12	1.12	1.12	1.12	5.24	

iPP-g-MA は軟化点 50、190°Cでの粘度 300 cps のマレイン酸変性ポリプロピレンであり、Chusei, Pasadena, テキサスから市販されている。

キャラクタリゼーション及び試験

本発明及び請求項の目的のために、別段に示さない限り、以下の試験を用いる。

【0332】

引張強度（引張破断強度及び破断点伸び）はASTM D 1708により測定する。
破断点伸びはここで引張破断伸びまたは伸長率ともいう。

【0333】

剥離強度（角度180°での引き剥がし粘着力、180°剥離強度、180°引き剥がし粘着力、T-剥離強度、T-剥離ともいう）はASTM D-1876の修正版に従って測定する（0.5インチ幅サンプル、及び2"/分分離速度（2" per minute separation speed）を用いるために修正）。10

【0334】

100%伸長での引張強度係数及びヤング係数はASTM E-1708に従って測定する。

【0335】

動的貯蔵弾性率（貯蔵弾性率ともいう）はG'であり、以下の通り測定される。一般的に、サンプルは三点曲げ構造を用いて試験する（TAインストゥルメンツDMA 2980）。固形の長方形圧縮成形棒を2つの固定支点上に置き、周波数1Hz及び振幅20μmで、サンプルの中間点に可動留め具により定期的に変形を加える。サンプルは最初に-130に冷却し、次に60まで加熱速度3/分で加熱する。場合によっては、圧縮成形棒はその他の変形設定を用いて試験でき、すなわち、二重カンチレバー曲げ及び引張り伸び（Rheometrics RSAII）である。これらの設定下では、周波数1Hz及びひずみ振幅0.05%で定期的な変形を加える。当該サンプルは-130まで冷却し、次に60まで、速度2/分で加熱する。20

【0336】

クリープ抵抗はASTM D-2293を用いて測定し、クリープはたるみともいう。

【0337】

ローリングボールタックはPSTC 6を用いて測定する。

【0338】

熱間せん断強度は、接触領域12.5mm×25mmでステンレススチール板に接着されたポリマーまたは接着剤で被覆された25mm幅片のマイラー（ポリエステル）フィルムから1000gおもりを吊るすことにより測定する。当該サンプルは40の換気オープン内に置く。応力破損が起こるまでの時間を記録する。30

【0339】

プローブタック（ポリケンプローブタックとも呼ばれる）はASTM D 2979に従って測定する。

【0340】

保持力はPSTC 7に従って測定し、せん断保持力またはせん断強度とも呼ばれる。

【0341】

密度はASTM D 792に従って25で測定する。

【0342】

ガードナー色はASTM D-1544-68により測定する。40

【0343】

輝度は、ASTM D 1925により決定されるCIE色座標における反射率“Y”を100で除したものである。

【0344】

針貫入試験はASTM D 5により測定する。

【0345】

結合強度はASTM D 3983により測定する。

【0346】

路面への接着力はASTM D 4541により測定する。50

【0347】

固定時間は、引裂いたときに基質纖維引裂けが得られるような圧縮接着基質構築体を十分な接着力でひとつに固定するために必要な時間としてここで定義する。これらの固定時間は平面なテーブルにテープで固定したファイルホルダー基質上に接着剤の融解物ドットを配置することにより測定した。ファイルホルダー札(1インチ×3インチ(2.5cm×7.6cm))を当該ドット上に3秒後に置き、500gおもりで圧縮した。当該おもりを約0.5～約10秒間放置した。そのようにして形成された構築体を引剥がして、基質纖維引裂けを生じるための十分な結合レベルを確かめた。固定時間はこの結合が生じるために必要な最小時間として記録した。標準は市販接着剤をこのプロセスを較正するために用いた。

10

【0348】

分子量(数平均分子量(M_n)、重量平均分子量(M_w)、及びz平均分子量(M_z))は示差屈折率検出器(DRI)、オンライン低角度光散乱(LALLS)検出器、及び粘度計(VIS)を備えたウォーターズ150サイズ排除クロマトグラフィー(SEC)を用いて決定した。検出器較正の詳細は他の場所に記載されている[文献:T.Sun, P.Brant, R.R.Chance, 及びW.W.Graessley, Macro molecules, 第34巻、No.19、6812-6820(2001)]；3つのポリマーラボラトリーズPLゲル10mmミックス-Bカラムを用いるSEC、名目上の流速 $0.5\text{ cm}^3/\text{分}$ 、及び名目上の注入量300マイクロリットルは両検出器構成に共通する。種々のトランスファーライン、カラム及び示差屈折計(DRI検出器、溶離液濃度の決定に主に用いられる)はオープン中、135に維持しながら含んだ。

20

【0349】

LALLS検出器はモデル2040二重角光散乱光度計(Precision Detector Inc.)である。SECオープン内に配置したそのフローセルは690nmのダイオードレーザー光源を用い、2つの角度、15°及び90°で散乱光を集め。15°出射のみこれらの実験で用いた。そのシグナルはデータ獲得板(ナショナルインストゥルメンツ(National Instruments)に送られ、当該板は速度16/秒で測定値を蓄積する。最も低い測定値4つを平均し、次に比例シグナルをSEC-LALLS-VISコンピューターに送った。LALLS検出器をSECカラムの後ろ、粘度計の前に配置した。

30

【0350】

粘度計は高温モデル150R(Viscotek Corporation)である。ホイートストン・ブリッジ構成で配置されたキャピラリー4つと圧力変換器2つから構成される。1の変換機は検出器の全域にわたる合計圧力低下を測定し、他の変換機はブリッジの両側間に配置され、差圧を測定する。粘度計を通って流れる溶液の比粘度はこれらの測定値から計算した。粘度計はSECオープン内にあり、LALLS検出器の後ろ、DRI検出器の前に配置した。

【0351】

SEC実験用の溶媒は、酸化防止剤として6gのブチル化ヒドロキシトルエン(BHT)を4リットルボトルの1,2,4トリクロロベンゼン(TCB)(アルドリッヒ試薬グレード)に加え、BHTの溶解を待つことにより調製した。次にTCB混合物を0.7ミクロンのガラス前置フィルターに通し、続いて0.1ミクロンテフロンフィルターに通してろ過した。さらに、高圧ポンプとSECカラム間に別のオンライン0.7ミクロンガラス前置フィルター/0.22ミクロンテフロンフィルター組立て部を有した。そして、TCBはSECに入る前にオンライン脱気剤(Phenomenex, モデルDG-4000)を用いて脱気した。

40

【0352】

ポリマー溶液をガラス容器に乾燥ポリマーを置き、所望の量のTCBを加えることにより調製し、次に当該混合物を約2時間、連続してかき混ぜながら160で加熱した。全ての量は重量測定法により測定した。ポリマー濃度を質量/体積単位で表すために用いた

50

T C B 密度は室温で 1 . 4 6 3 g / m l 及び 1 3 5 で 1 . 3 2 4 g / m l であった。注入濃度は 1 . 0 ~ 2 . 0 m g / m l の範囲であり、高分子量サンプル用には低濃度を用いた。

【 0 3 5 3 】

各サンプルを処理する前に、D R I 検出器及び注入器を洗浄した。装置中の流速をそれから 0 . 5 m l / 分に増加させ、最初のサンプルを注入する前に、D R I を 8 ~ 9 時間安定化させた。アルゴンイオンレーザーを 1 ~ 1 . 5 時間出し、それからレーザーを待機モードで 2 0 ~ 3 0 分間出すことによりサンプルを流し、次に光調節モードを全出力に切り替えた。

【 0 3 5 4 】

オンライン粘度計を備えた S E C (S E C - V I S) を用いて g' 指数を測定し、各分子量について g' を S E C トレース中に記録した。 g' 指数は $g' = \eta_b / \eta_1$ として定義される：ここで、 η_b は分岐鎖ポリマーの固有粘度であり、 η_1 は当該分岐鎖ポリマーと同じ粘度平均分子量 (M v) の直鎖ポリマーの固有粘度である。 $\eta_1 = K M v$ たり、K 及び η は直鎖ポリマーの測定値であり、 g' 指数測定に用いたものと同じ S E C - D R I - L S - V I S 機器により得られるはずである。本発明中に存在するポリプロピレンサンプルに関して、K = 0 . 0 0 0 2 2 8 8 及び $\eta = 0 . 7 0 5$ を用いた。S E C - D R I - L S - V I S 法は、固有粘度及び分子量を個々の溶出体積で測定しているので、恐らく狭く分散したポリマーを含み、多分散性に関して修正の必要性がない。比較用に標準として選択した直鎖ポリマーは同じ粘度平均分子量、モノマー含量、及び組成物分布を有するべきである。C 2 ~ C 1 0 モノマーを含むポリマーの線形特性は炭素 - 1 3 N M R 、 R a n d a l l 法 (Rev. Macromol. Chem. Phys. , C 2 9 (2 & 3) 、第 2 8 5 - 2 9 7 頁) により確認する。C 1 1 以上のモノマーの線形特性は M A L L S 検出器を用いて G P C 分析により確認する。例えば、プロピレンコポリマーに関して、N M R はコモノマーよりも大きな分岐を示さないはずである（すなわち、コモノマーがブテンの場合、2 炭素より大きい分岐は存在しないはずである）。プロピレンホモポリマーに関して、G P C は 1 炭素原子より大きい分岐は示さないはずである。線形標準がコモノマーが C 9 以上のポリマーに望ましい場合、T . Sun , P . Brant , R . R . Chanc e , 及び W . W . Graessley , Macromolecules , 第 3 4 卷、No . 1 9 、 6 8 1 2 - 6 8 2 0 (2 0 0 1) のこれらのポリマー標準を決定する手順を参照できる。シンジオタクチックポリマーの場合、標準は炭素 1 3 N M R により測定される量に匹敵するシンジオタクティシティを有するべきである。粘度平均 g' は以下の式を用いて計算した：

【 化 5 】

$$g'_{vis} = \frac{\sum C_i \eta_{bi}}{\sum C_i K M_i^\alpha}$$

【 0 3 5 5 】

マレイン化ポリマーの無水マレイン酸 (M A) 含量は以下の通り決定した。約 0 . 5 g のポリマーを 1 5 0 m l のトルエンに沸点で溶解させた。プロモチモールブルーを変色指示薬として用い、T B A O H (テトラ - プチルアンモニウム水酸化物) を含む電位差滴定を加熱溶液上で行った。滴定中、ポリマーは沈殿しなかった。

【 0 3 5 6 】

ムーニー粘度は A S T M D 1 6 4 6 - 9 0 に従い、1 2 5 での M L 1 + 4 を測定した。

【 0 3 5 7 】

ピーク融点 (T m) 、ピーク結晶化温度 (T c) 、融解熱及び結晶化度を A S T M E 7 9 4 - 8 5 に従い、以下の手順を用いて測定した。示差走査熱量測定 (D S C) データは T A インストゥルメンツモデル 2 9 2 0 機器を用いて得た。重さ約 7 ~ 1 0 m g のサン

10

20

30

40

50

プルをアルミニウムサンプル鍋内に密封した。まずサンプルを - 50 まで冷却し、それから速度 10 / 分で徐々に 200 まで加熱することにより DSC データを記録した。サンプルは第 2 回目の冷却・加熱サイクルを始める前に 200 で 5 分間維持した。第 1 回及び第 2 回目の熱サイクルイベントの両方を記録した。曲線より下の領域を測り、融解熱及び結晶化度の決定に使用した。結晶化率は式、[曲線下の領域 (ジュール / g) / B (ジュール / g)] × 100 を用いて計算し、ここで B は、主要なモノマー成分のホモポリマーの融解熱である。これらの B の値はポリマーハンドブック、第 4 版、John Wiley and Sons , ニューヨーク、1999 から得られる。値 189 J / g (B) を 100 % 結晶ポリプロピレンの融解熱として用いた。複数の融点または結晶化ピークを示すポリマーについては、最も高い融解ピークを融点とし、最も高い結晶化ピークをピーク結晶化温度とした。

【 0358 】

ガラス転移温度 (Tg) を ASTM E 1356 により TA インストゥルメンツモデル 2920 機器を用いて測定した。

【 0359 】

溶融粘度 (ASTM D - 3236) (“ 粘度 ” 、 “ ブルックフィールド粘度 ” ともいう) 溶融粘度プロファイルを、通常は、ブルックフィールド・サーモセル (Thermo Scientific) 粘度計及び No. 27 軸を用いて、温度 120 ~ 190 で測定した。

【 0360 】

接着剤試験

官能性 a - s r P P r または i P P r を完全に混合して、次に 180 、真空オーブン中で脱気し、それから 25 まで冷却した。これを次の接着層製造において気泡が生じる可能性を取除くため、成形及び結合前に行つた。各官能性 a - s r P P r サンプルは次に、180 、 10 秒間で厚さ約 0.4 mm の薄いシート材料に成形した。 T - 剥離見本の調製のため、この薄シートの接着剤サンプルを陽圧で 2 枚のマイラー基質 (0.003 " = 0.076 mm 厚さ ; 入手した形で用いる) 間に積層し、温度 180 及び圧力 0.67 MPa で、 10 秒間、テフロン被覆成形した。 i P P 基質のため、メルトフロー速度 9 以下、及び融点 150 ~ 151 のメタロセンホモポリプロピレンの 3 ミル厚キャストフィルムをより低い結合温度 150 で用いた。これら全ての接着剤 / 基質ラミネートは 1 / 2 " = 1.3 cm 幅見本に切り取った。接着剤の厚さは ~ 0.2 ~ 0.3 mm であった。サンプル 3 個を用いた T - 剥離測定を ASTM - 1876 の修正版に従つて行い、ここで、 Instron 試験機上、室温で、及び当該方法により特定される 10 " / 分の代わりに分離速度 2 " / 分 = 850 μm / s で利用できるサンプルが限られているので 0.5 " 幅サンプルを用いた。接着力は平均剥離強度により測定した : 剥離強度 = F / w 。ここで、 F は剥離力であり、 w は試験見本の幅である。 A I F 及び C F は明白な界面破壊 (apparent interfacial failure) (1 のマイラー基質上にのみ残った接着剤を示す) 及び凝集破壊 (両方のマイラー基質上に残った接着剤を示す) をそれぞれ意味し、視覚的に観測される。各 T - 剥離測定は 3 個のサンプルを用いるので、 A I F / C F は 2 つのサンプルが A I F モードで破損し、 1 のサンプルが C F モードで破損することを意味する。一方、 C F / A I F は 2 つのサンプルが C F モードで破損し、 1 のサンプルが A I F モードで破損することを意味する。以下のデータは多数の官能性ポリオレフィンを示す。

10

20

30

40

【表3】

表3

サンプル	マイラーに対する T-剥離 (1b/in)	破損モード	iPP 对する T-剥離 (1b/in)	破損モード
iPPr-g-MA	0.005	AIF	3.65	CF
a-srPPr-3-g-MA	6.60	CF	5.72	CF
a-srPPr-4-g-MA	8.13	CF	7.80	CF
a-srPPr-5-g-MA	1.66	AIF	11.17	CF
a-srPPr-6-g-MA	2.59	AIF	>5.96	基質破損

10

20

【0361】

全ての官能性 srPPr ポリマーは MA - iPPr と比較して、マイラー及び iPP の両方に対して高い接着性を有する。従って、a - srPPr - g - MA は iPP への接着性を犠牲にすることなくマイラーへの接着性を改善する。

【0362】

以下の表中、いくつかの組成物は a - srPPr または官能性 a - srPPr とプロピレンベースポリマー (POA)とのブレンドであり、粘着付与剤及び / またはワックスを含むまたは含まない。POA はモリプロピレン (表中、APP - iPP として記載) は 2003 年 10 月 15 日に提出された U S S N 10 / 868, 951 号に記載の一般的な手順に従って製造した。使用した触媒は、ジ (p - トリエチルシリルフェニル) メチレン (シクロペンタジエニル) (3, 8 - ジ - t - プチルフルオレニル) ハフニウムジメチル (触媒 # 1) 及び rac - ジメチルシリルビス (2 - メチル - 4 - フェニルインデニル) ジルコニウムジメチル (触媒 # 2) であり、使用した活性化剤は、N, N - ジメチルアミニウムテトラキス (ペンタフルオロフェニル) ボレートである。詳細な重合条件及びポリマー特性は以下の表に記載する。

【表4】

表4

	aPP-iPP-1	aPP-iPP-2	aPP-iPP-3
触媒 #1 供給速度 (モル/分)	1.65E-06	1.65E-06	1.65E-06
触媒 #2 供給速度 (モル/分)	9.45E-08	9.45E-08	9.45E-08
プロピレン (g/分)	14	14	14
ヘキサン (ml/分)	90	90	90
重合温度 (°C)	125	120	115
Mn (kg/モル)	17.8	19.2	21.3
Mw (kg/モル)	35.5	44.4	54.9
Mz (kg/モル)	63.8	83.7	112.8
Tc (°C)	88.1	90.2	91.8
Tm (°C)	127.1	138.1	140.8
Tg (°C)	-5.8	-4.7	-4.2
融解熱 (J/g)	37.4	38.3	38.0
190°Cでの粘度 (cp)	1890	3970	11450

10

20

30

40

【表5】

表5

ポリマー	aPP-iPP-4	aPP-iPP-5	aPP-iPP-6
触媒混合物中の触媒 #1 (モル%)	86	86	86
先導反応器中の重合温度 (°C)	132	130	135
追従反応器中の重合温度 (°C)	132	131	135
供給物中のスカベンジャー濃度 (wppm)	24	24.5	25
供給物中の触媒濃度 (wppm)	4.6	4.1	4.2
供給物中の活性化濃度 (wppm)		73.5	4.7
供給物中のプロピレン濃度 (Wt.%)	30	28.6	29.2
冷水 (g/時間)	2.72	2.72	4.54
190°Cでの粘度 (cp)	2400	1600	1500
Mw (kg/モル)	41.4	41.1	29.3
Mn (kg/モル)	19.4	19.6	13.1
Mz (kg/モル)	76.6	76	62.6
Tc (°C)	79.9	77.8	68
Tm (°C)	139	132	136
融解熱 (J/g)	31.5	28.7	22

50

【表6】

表6
粘着付与剤を含まない組成物のマイラーへの接着性

	T-剥離 1b/in	破損モード
aPP-iPP-1	0.03	AF
aPP-iPP-1+20 Wt% a-srPPr-3	0.10	AF
aPP-iPP-1+20 Wt% iPPr-g-MA	0.19	CF
aPP-iPP-1+20 Wt% a-srPPr-1-g-アミド	0.10	AF
aPP-iPP-1+20 Wt% a-srPPr-1-g-MA	0.48	AF
aPP-iPP-2	0.03≡P ₁	AF/CF
aPP-iPP-2+20 Wt% a-srPPr-3	0.04	AF
aPP-iPP-2+20 Wt% iPPr-g-MA	0.20	CF
aPP-iPP-2+20 Wt% a-srPPr-1-g-酸	0.05	AF
aPP-iPP-2+20 Wt% a-srPPr-1-g-アミド	0.08	CF
aPP-iPP-2+20 Wt% a-srPPr-1-g-MA	1.21~40 P ₁	AF
aPP-iPP-2+20 Wt% a-srPPr-3-g-MA	1.83	CF/AF
aPP-iPP-2+20 Wt% a-srPPr-4-g-MA	2.12	AF
aPP-iPP-2+20 Wt% a-srPPr-5-g-MA	6.28~200 P ₁	CF/AF
aPP-iPP-2+20 Wt% a-srPPr-6-g-MA	4.58	AF
aPP-iPP-3	0.001	AF
aPP-iPP-3+20 Wt% a-srPPr-3	0.02	AF
aPP-iPP-3+20 Wt% iPPr-g-MA	0.32	CF
aPP-iPP-3+20 Wt% a-srPPr-1-g-アミド	0.09	AF
aPP-iPP-3+20 Wt% a-srPPr-1-g-MA	0.40	AF

記号“≡”は“として定義される”という意味である。

10

20

30

【表7】

表7

粘着付与剤を含む組成物のマイラーへの接着性

(aPP-iPP/E-5380/ポリマー改質剤=72/8/20 Wt. 比)

	T-剥離 1b/in	破損モード
aPP-iPP-2/E-5380 (9 対 1 Wt.比)	0.04≡P ₂	AF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-3	0.04	AF
aPP-iPP-2/E-5380/iPPr-g-MA	0.14	CF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-1-g-酸	0.06	AF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-1-g-アミド	0.22	AF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-1-g-MA	2.15~50 P ₂	CF/AF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-3-g-MA	2.56	CF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-4	0.05	AF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-4-g-MA	5.83	CF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-5	0.13	AF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-5-g-MA	12.02	AF/CF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-6	0.02	AF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-6-g-MA	13.77~350 P ₂	CF

10

20

30

40

【0363】

E-5380はE S C O R E Z（登録商標）5380であり、これは環球法軟化点が約85の水添化ジシクロペンタジエンベース炭化水素樹脂であり、エクソンモービルケミカル社、ヒューストン、テキサス州から市販されている。

【表8】

表8

改質POA'sのマイラー及びiPPへの結合

	マイラーに対する T-剥離 (1b/in)	破損 モード	iPPに対する T-剥離 (1b/in)	破損 モード
aPP-iPP-2/iPPr-g-MA	0.2	CF	2.9	CF
aPP-iPP-2/E-5380/iPPr-g-MA	0.14	CF	2.87	CF
aPP-iPP-2/E-5380	0.04	AF	3.09	CF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-3	0.09	AF	>10.31	基質破損
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-1-g-MA	2.15	CF/AF	>8.53	基質破損

【表9】

表9

粘着付与剤及びワックスにより改質されたPOA's

	処方 PP-1	処方 PP-1
aPP-iPP-4	79.4	—
aPP-iPP-5	—	81.6
E-2203 ($T_g = 47^\circ\text{C}$)	13.4	—
E-5690 ($T_g = 45^\circ\text{C}$)	—	9.02
パラフリント C80	6.7	8.68
Irganox 1010	0.50	0.69
マイラーに対するT-剥離	0.23	0.45
破損モード	AIF	CF

10

20

30

40

50

【0364】

E-2203はE SCORE Z(登録商標)2203であり、これは環球法軟化点が約93の脂肪族・芳香族ベース炭化水素樹脂である。E-5690はE SCORE Z(登録商標)5690であり、これは環球法軟化点が約89の水添化ジシクロペニタジエン・芳香族ベース炭化水素樹脂である。いずれもエクソンモービルケミカル社、ヒューストン、テキサス州から市販されている。官能性ポリオレフィンが不存在の場合、組成PP-1オレフィンPP-2は両方ともマイラーへの低い接着性を示す。

【表10】

表10

aPP-iPP-6ベースの組成物のマイラーに対する接着性

(aPP-iPP/E-5380/ポリマー改質剤=72/8/20 Wt. 比)

	T-剥離 1b/in	破損モード
aPP-iPP-6	0.07	CF
aPP-iPP-6/E-5380 (9対1 Wt.比)	0.19	CF
aPP-iPP-6/E-5380/a-srPPr-3-g-MA	4.32	CF
aPP-iPP-6/E-5380/a-srPPr-4-g-MA	6.94	CF
aPP-iPP-6/E-5380/a-srPPr-5-g-MA	11.1	CF
aPP-iPP-6/E-5380/a-srPPr-6-g-MA	12.0	CF

【0365】

上の表中のデータが示すように、官能性a-srPPrはこれらの組成物にマイラーへのT-剥離強度の利点を与える。明らかに、官能基は、MA基がより良い結果を示すので、プロピレンベースポリマーのマイラーへの接着性を改善する。また、プロピレンベースポリマーの粘度(または分子量)は、中間分子量ポリマー、aPP-iPP-2がより良い結果を示すので、接着性に影響を及ぼし得る。

【0366】

また実施例が示すように、本発明の組成物は極性及び非極性基質の両方に高められた接着性を提供する。これらは種々の領域に適用でき、例えば、接着剤、結合層、ペンキ下塗り剤、接着促進剤、界面剤、相溶化剤等である。上述の通り、いくつかの本発明の組成は成分1、aPP-iPPポリマー及び官能性ポリオレフィン、例えばa-srPPr-g

- M A とその他の成分、例えば粘着付与剤、ワックス、酸化防止剤、可塑油、液体樹脂粘着付与剤等を低または高せん断混合下、高温でブレンドし、溶融流動体を形成することにより調製した。混合温度は約 130 ~ 約 190 度様々である。

【0367】

a - s r P P の脂肪族 - 溶媒ベース官能化

アモルファスまたは低結晶性プロピレンベースホモポリマー及びコポリマーをシクロヘキサン、ヘキサンまたは脂肪族溶媒の混合物中で調製及び官能化した。官能化後、生成物は例えば、T P O バンパー塗膜接着剤用プライマーとして任意で輸送用に溶液中に放置でき、または溶融ブレンド用またはフィルム及び成形品用結合層、表面薄層、接着剤組成物中の成分などの他の用途における押出し用に乾燥できる。進歩性に関する重要な点は、脂肪族溶媒中での官能化が挙げられ、a) 従って、芳香族溶媒の使用及び芳香族溶媒に伴う環境及びプロセスに関する問題が避けられ、ベースポリマーがすべて同じ溶媒中で生成、官能化及び使用のため輸送できる可能性が開け、及び b) 官能化 - 阻害最終加工及び再溶解工程のために重合反応器からポリマー溶液を直接使用できる。

10

【0368】

官能化実施例 :

比較例 F 1 :

5 . 1 g のアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンを 500 ml のキシレンに 130 度溶解させた。1 . 2 ml の Luperox P (T E R T - プチルペルオキシベンゾエート、A t o F i n a I n c . , オンタリオ州、カナダ) 及び 4 ml の 1 - ビニル - 2 - ピロリドンを溶液に加えた。溶液を 2 . 5 時間攪拌した。生成物をアセトン内で沈殿させ、次にさらにアセトンで洗浄した。生成物を真空中、120 度一晩中乾燥させた。

20

【0369】

比較例 F 2

50 g のアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンをブランダーミキサー中、190 度融解させた。2 . 0 g のジクミルペルオキシド及び 4 ml のビニル - 2 - ピロリドンを加え、混合物を 2 . 5 時間攪拌した。生成物をアセトン内で沈殿させ、生成物をさらにアセトンで洗浄した。生成物を真空中、120 度一晩中乾燥させた。

30

【0370】

実施例 F 3

100 g のアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリオレフィンを 700 ml のシクロヘキサンに 130 度溶解させた。3 g のジクミルペルオキシド、10 g の無水マレイン酸を溶液に加えた。当該溶液を 2 . 5 時間攪拌させた。生成物をアセトン内で沈殿させ、生成物をそれからさらにアセトンで洗浄した。生成物を真空中、120 度一晩中乾燥させた。

【0371】

実施例 F 4

100 g のアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンを 700 ml のシクロヘキサン中、130 度溶解した。3 g のジクミルペルオキシド及び 4 ml の 1 - ビニル - 2 - ピロリドンを溶液に加えた。当該溶液を 2 . 5 時間攪拌させた。生成物をアセトン内で沈殿させ、生成物をそれからさらにアセトンで洗浄した。生成物を真空中、120 度一晩中乾燥させた。

40

【0372】

実施例 F 5

100 g のアモルファスシンジオタクチックを豊富に含むポリプロピレンを 700 ml のシクロヘキサン中、130 度溶解した。3 g のジクミルペルオキシド及び 8 ml の 1 - ビニル - 2 - ピロリドンを溶液に加えた。当該溶液を 2 . 5 時間攪拌させた。生成物をアセトン内で沈殿させ、生成物をそれからさらにアセトンで洗浄した。生成物を真空中、120 度一晩中乾燥させた。

50

【0373】

結果を以下に示す。

【表11】

表11

サンプル	官能基	溶媒	Mn	Mw	Mz
SrPPr (出発物質)	N/A	N/A	46	82.4	142.8
比較例 F1	1-ビニル-2-ピロリジノン	キシレン	43.2	82.1	12.8
比較例 F2	1-ビニル-2-ピロリジノン	溶融	27.8	56.4	91.0
F3	無水マレイン酸	シクロヘキサン	28.5	57.7	92.0
F4	1-ビニル-2-ピロリジノン	シクロヘキサン	28.9	59.6	94.2
F5	1-ビニル-2-ピロリジノン	シクロヘキサン	31.1	60.5	96.1

10

20

【0374】

本発明は例示した実施態様を参照して説明したが、種々の変更が可能であり、本発明の範囲を逸脱することなく均等物で構成要素を置換することが可能であることが当業者に理解される。さらに、本発明の本質的な範囲を逸脱することなく、本発明の教示に対して、特定の状況または物質に適合するように多くの修正が可能である。従って、本発明を実行するための最善の形式として開示された特定の実施態様に本発明は限定されず、本発明は本発明の請求項の範囲内に含まれる全ての実施態様を含むものとする。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.	F I	テーマコード(参考)
C 09 J 11/08 (2006.01)	C 09 J 11/08	
C 09 J 11/00 (2006.01)	C 09 J 11/00	
C 09 J 7/02 (2006.01)	C 09 J 7/02	Z

(74)代理人 100138519
弁理士 奥谷 雅子

(74)代理人 100120145
弁理士 田坂 一朗

(74)代理人 100122839
弁理士 星 貴子

(74)代理人 100133547
弁理士 木戸 基文

(72)発明者 パトリック、プラント
アメリカ合衆国、テキサス州 77586、シープルック、シャーウッド 1038

(72)発明者 マン、フ・ツエ
アメリカ合衆国、テキサス州 77586、シープルック、フェアー・オーツ・ドライブ 17
06

(72)発明者 ケイグイ、ゴング
アメリカ合衆国、テキサス州 77584、パーランド、フォールブルック・ドライブ 3055

(72)発明者 ペイジュン、ジャング
アメリカ合衆国、テキサス州 77573、リーグ・シティー、マリナー・コウプ・コート 11
9

(72)発明者 ワカバヤシ、ヒデアキ
神奈川県横浜市都筑区東山田 2 - 10 - 1

F ターム(参考) 4J002 BB03X BB07X BB11W BB11X BB12X BB15X BB17X BB20W BB21W BC03X
BD04X BD14X BE03X BF02X BG01X BG10X BN15X BP01X CB00X CF04X
CG00X CH02X CL00X FD010 FD020 FD070 FD140 FD200 GJ01
4J004 AA02 AA04 AA06 AA07 AA17 AA18 AB01 CA04 CA05 CA06
CA08 CB01 CB02 CB04 CD07 DB00 FA01
4J040 BA182 BA202 DA111 DA131 DA161 DK022 DL061 DN032 DN072 GA07
JA09 JB01 JB09 KA16 KA22 KA25 KA26 KA29 KA31 KA35
KA38 KA42 LA01 LA02 LA08 MA05 NA06 NA08 NA12
4J100 AA00R AA02Q AA03P CA03 CA04 CA05 DA01 DA11 DA24 DA39
JA03 JA05

【外国語明細書】

2004B132-JP

-1-

SYNDIOTACTIC RICH POLYOLEFINS

Inventors: Patrick Brant
Mun Fu Tse
Caiguo Gong
Peijun Jiang
Hideaki Wakabayashi

Related Application

[0001] This application claims the benefit of Provisional Application No. 60/622,964 filed October 28, 2004. This application also is a Continuation in Part of U.S. Patent Application No. 10/825348, filed April 15, 2004.

Field of the Invention

[0002] This invention relates to a polymer, to a polymer composition, to an adhesive composition, and/or an adhesion additive, and a process of making the same comprising an amorphous syndiotactic rich polyolefin and/or a functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin. In particular, the polymer comprises amorphous syndiotactic rich polypropylene, and/or maleated amorphous syndiotactic rich polypropylene, which may be in combination with one or more additives.

Background of the Invention

[0003] Olefin based polymers (polyolefins) are widely used in various applications due to their being chemically inert, having low density, and low cost. Common applications include those related to adhesives, tie layers, films, fibers, articles, laminates, and combinations thereof.

[0004] Polyolefins may be formed into various films, which may be laminated to, coated on, or co-extruded with various substrates. The film and the substrate may be combined with other materials to form a structure having a plurality of layers, each layer having a specific purpose. Packaging laminates, for example, may comprise a plurality of layers, such as a configurationally rigid core layer of paper

2004B132-JP

-2-

or paperboard, an outer liquid-tight layer, an oxygen gas barrier such as a mid-layer of aluminum foil, and/or other layers depending on application needs.

[0005] To provide effective adhesion, it may be preferable that good bonding strength or intimate integrity between the layers be achieved for most applications. However, relatively non-polar olefin based polymers do not normally adhere well to substrates which are more polar than they.

[0006] Thus, there is a need for an adhesive that will intimately bond to both polar and non-polar substrates, preferably one that exhibits a superior durability of bond strength under various temperature conditions and in the presence of aggressive products.

[0007] In addition, to function as a tie layer or other adhesive, an adhesive composition may need to demonstrate adhesion between various polar and non-polar substrates within a "relatively cold" temperature range of about -20°C to about 10°C. However, polyolefins typically lack adhesion characteristics in this relatively cold temperature range. Also, an adhesive composition may need to be soluble in various solvents to facilitate application of the adhesive to the substrate. However, most polyolefins which demonstrate adhesive characteristics have a level of crystallinity which prevents their being solubilized in typical hydrocarbon solvents. Accordingly, adhesion promoters may be utilized with various adhesive compositions to improve aspects of bonding, adhesion, and other properties of an adhesive.

[0008] For example, U.S. Patent No. 6,656,385 to Wang et al. (Wang) is directed to a hot melt adhesive comprising about 15 to about 70% syndiotactic polypropylene and amorphous poly(alpha-olefin) along with a tackifier, optionally a plasticizer and/or a stabilizer. Wang defines syndiotactic polypropylene to have greater than 70% r dyads. As such, Wang does not disclose a syndiotactic polypropylene which is essentially soluble in hydrocarbon solvents.

[0009] U.S. Patent No. 4,822,688 to Nogues is directed to an adhesive composition comprising polypropylene modified by grafting with an acid anhydride which is further reacted with a compound bearing at least two groups such as a polyol or a polyamine. While Nogues discloses functionalized polyolefins, the reference does not disclose functionalized amorphous syndiotactic

2004B132-JP

-3-

rich polyolefin adhesion promoters that improve adhesion, solubility, and processability.

[0010] Numerous references are directed to compositions comprising syndiotactic polypropylene as an adhesion promoter. Examples include Japanese Patent Application 01-152448, Japanese Patent no. JP2824082, U.S. Patent Nos. 5,476,914, 6,184,326, and 6,245,870 which are directed to vanadium catalysts capable of producing compositions comprising syndiotactic polypropylene having greater than 80% r dyads. However, the crystallinity of the syndiotactic rich polypropylene according to the references prevents the material from being soluble in hydrocarbon solvents, thus limiting the use of the material. In addition, these references are directed to syndiotactic specific propagation under "catalytic site control", resulting in "rmmr" segments being present in the polymer produced. This is in contrast to "chain end control" of the present invention, wherein "rrmr" segments are produced and essentially no "rmmr" segments are produced.

[0011] U.S. Patent Nos. 5,326,824, 5,373,059, 5,374,685, and Japanese Patent Nos. JP3025553 are directed to compositions comprising functionalized syndiotactic polypropylene. However, the functionalized syndiotactic polypropylene disclosed in these references has greater than about 50% crystallinity, (e.g., [rrrr] > 50%, more preferably [rrrr] > 70%), and thus, the polymers so produced are not soluble in organic solvents.

[0012] The Japanese reference JP2837246 is directed to syndiotactic polypropylene having [rrrr] > 80%, an intrinsic viscosity of about 0.01 to 10 dl/g, a Mw/Mn of 1.5 to about 20, a melting temperature Tm of about 130 to 170°C, and a t1/2 = 2 minutes. The polymers produced according to JP2837246 are thus crystalline, have a melting temperature, and are not soluble in organic solvents.

[0013] In addition, syndiotactic polypropylene produced using vanadium based catalysts result in materials having an ash content, when determined as described herein, of greater than about 1 weight %, due to residual materials from the catalyst being present.

[0014] Accordingly, there remains a need for polymers, and polymer compositions comprising a syndiotactic rich polyolefin and/or a functionalized syndiotactic rich polyolefin, which is essentially soluble in various hydrocarbon

2004B132-JP

-4-

solvents at room temperature, preferably having an ash content of less than 1 weight %. As such, there remains a need for syndiotactic rich polyolefins of low crystallinity e.g., $[rrrr] < 50\%$, along with functionalized syndiotactic rich polyolefins that do not have a defined melting temperature, and/or a heat of fusion of less than about 10 joules/g.

Summary of the Invention

[0015] In one aspect of the present invention, a polymer comprises an amorphous syndiotactic rich polyolefin comprising greater than about 50 wt% C3-C40 alpha olefins and having about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer; a heat of fusion of 10 joules/g or less according to the procedure described in ASTM E 794-85; and an ash content of 1 wt% or less.

[0016] In another aspect of the present invention, a polymer blend comprises an amorphous syndiotactic rich polyolefin having greater than about 50 wt% C3-C40 alpha olefins, about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer, a heat of fusion of 10 joules/g or less according to the procedure described in ASTM E 794-85, and an ash content of 1 wt% or less; and at least one additive comprising a C2-C40 polymer, a C2-C40 copolymer, an elastomer, a random copolymer, an impact copolymer, a flunctional polymer, a tackifier, a crosslinking agent, an antioxidant, a neutralizing agent, a nucleating agent, a filler, an adhesion promoter, an oil, a plasticizer, a wax, an ester polymer, a rubber toughened composition, a recycled polymer, a block, an antiblock, a pigment, a dye, a processing aid, a UV stabilizer, a lubricant, an adjuvant, a surfactant, a color masterbatch, a flow improver, a crystallization aid, or a combination thereof.

[0017] In yet another aspect of the present invention, a polymer comprises an amorphous syndiotactic rich polyolefin that has been functionalized with a functional group; wherein prior to being functionalized, the amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises greater than about 50 wt% C3-C40 alpha olefins, about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer; a heat of fusion of 10 joules/g or less

2004B132-JP

-5-

according to the procedure described in ASTM E 794-85; and an ash content of 1 wt% or less.

[0018] In still another aspect of the present invention, a polymer blend comprises an amorphous syndiotactic rich polyolefin that has been functionalized with a functional group; wherein prior to being functionalized, the amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises greater than about 50 wt% C3-C40 alpha olefins, about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer, a heat of fusion of 10 joules/g or less according to the procedure described in ASTM E 794-85, and an ash content of 1 wt% or less; and at least one additive comprising a C2-C40 polymer, a C2-C40 copolymer, an elastomer, a random copolymer, an impact copolymer, a flunctional polymer, a tackifier, a crosslinking agent, an antioxidant, a neutralizing agent, a nucleating agent, a filler, an adhesion promoter, an oil, a plasticizer, a wax, an ester polymer, a rubber toughened composition, a recycled polymer, a block, an antiblock, a pigment, a dye, a processing aid, a UV stabilizer, a lubricant, an adjuvant, a surfactant, a color masterbatch, a flow improver, a crystallization aid, or a combination thereof.

[0019] In another aspect of the present invention is the contact product of an amorphous syndiotactic rich polyolefin, a functional group, and a functionalization catalyst, wherein the amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises greater than about 50 wt% C3-C40 alpha olefins, about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer; a heat of fusion of 10 joules/g or less according to the procedure described in ASTM E 794-85; and an ash content of 1 wt% or less.

[0020] In another aspect of the present invention, a polymer comprises amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride, wherein the functionalized polypropylene comprises about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer; a heat of fusion of 10 joules/g or less according to the procedure described in ASTM E 794-85; and an ash content of 1 wt% or less.

[0021] In still another aspect of the present invention, a polymer blend comprises amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride,

2004B132-JP

-6-

and at least one additive, wherein the functionalized polypropylene comprises about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer; a heat of fusion of 10 joules/g or less according to the procedure described in ASTM E 794-85; and an ash content of 1 wt% or less, and wherein the additive is selected from the group consisting of a C2-C40 polymer, an elastomer, a random copolymer, an impact copolymer, a flunctional polymer, a tackifier, a crosslinking agent, an antioxidant, a neutralizing agent, a nucleating agent, a filler, an adhesion promoter, an oil, a plasticizer, a wax, an ester polymer, a block, an antiblock, a pigment, a dye, a processing aid, a UV stabilizer, a lubricant an adjuvant, a surfactant, a color masterbatch, a flow improver, a crystallization aid, and a combination thereof.

[0022] In another aspect of the present invention, an adhesive composition comprises an amorphous syndiotactic rich polyolefin, an amorphous syndiotactic rich polyolefin that has been functionalized with a functional group, or a combination thereof, wherein the amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises greater than about 50 wt% C3-C40 alpha olefins; about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer; a heat of fusion of 10 joules/g or less according to the procedure described in ASTM E 794-85; and an ash content of 1 wt% or less, and wherein the functional group, when present, comprises a compound having a weight average molecular weight of 1000 or less, and a carbon-carbon double bond, a carbon-carbon triple bond, and/or a heteroatom; the adhesive composition having a peel strength to isotactic polypropylene of greater than about 3.5 lb/in, and a peel strength to polyester film of greater than about 0.5 lb/in, wherein peel strength is measured according to ASTM D-1876 modified to use a 0.5 inch wide sample, and a 2" per minute separation speed.

[0023] In yet another aspect of the present invention, a polymer comprises an amorphous syndiotactic rich polyolefin that has been functionalized with a functional group; wherein the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises greater than about 50 wt% C3-C40 alpha olefins about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads

2004B132-JP

-7-

present in the polymer; and a heat of fusion of 10 joules/g or less according to the procedure described in ASTM E 794-85.

[0024] In another aspect of the present invention, a process to make a polymeric material comprises the steps of melt blending an amorphous syndiotactic rich polyolefin and at least one additive under high shear conditions to produce a concentrate containing from 10 to 90 wt.% of the polyolefin, and subsequently blending the concentrate with at least one additional material to produce a final product, wherein the amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises greater than about 50 wt% C₃-C₄₀ alpha olefins; about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polyolefin; a heat of fusion of 10 joules/g or less according to the procedure described in ASTM E 794-85; and an ash content of 1 wt% or less.

[0025] In another aspect of the present invention, a method to produce a functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises the steps of:

- A. providing an olefin monomer, metallocene catalyst, and an activator to a reactor in an aliphatic solvent;
- B. catalytic solution polymerization of said olefin monomer in said reactor to produce an amorphous syndiotactic rich polyolefin;
- C. monomer stripping to remove unreacted olefin monomer;
- D. solvent based functionalization; comprising combining said amorphous syndiotactic rich polyolefin with a functional group and with a free radical initiator in said aliphatic solvent, at a temperature and for a period of time sufficient to produce said functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin; and optionally
- E. removal of said aliphatic solvent,

wherein the amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises greater than about 50 wt% C₃-C₄₀ alpha olefins; about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polyolefin; a heat of fusion of 10 joules/g or less according to the procedure described in ASTM E 794-85, and an ash content of 1 wt% or less.

[0026] In another aspect of the present invention, a method to produce a functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises the steps of:

2004B132-JP

-8-

A. providing a melt comprising an amorphous syndiotactic rich polyolefin, a functional group, and a free radical initiator to a mixing device;

B. contacting said melt within said mixing device at a temperature and for a period of time sufficient to produce said functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin, wherein the amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises greater than about 50 wt% C₃-C₄₀ alpha olefins; about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polyolefin; a heat of fusion of 10 joules/g or less according to the procedure described in ASTM E 794-85, and an ash content of 1 wt% or less.

[0027] Blends of the above polymers, along with various articles comprising the above polymers are also disclosed.

Definitions

[0028] For the purposes of this invention and the claims thereto, and for ease of reference herein, when a polymer and/or oligomer is referred to as including, containing, comprising, or the like, an olefin, the olefin present in the polymer and/or oligomer is the polymerized form of the olefin. For ease of reference, an amorphous polyolefin polymer is abbreviated aPP, an isotactic rich polyolefin polymer is abbreviated irPP, a syndiotactic rich polyolefin polymer is abbreviated srPP, an amorphous syndiotactic rich polyolefin polymer is abbreviated a-srPP, a semi-crystalline polyolefin polymer is abbreviated scPP, and "X-g-FG" indicates that the component X is grafted (-g-) with a functional group "FG".

[0029] For purposes of this disclosure, the term oligomer refers to compositions having 2-40 mer units and the term polymer refers to compositions having 41 or more mer units. A mer is defined as a unit of an oligomer or polymer that originally corresponded to the monomer(s) used in the oligomerization or polymerization reaction. For example, the mer of polyethylene would be ethylene. For simplicity, when polymers are referred to, the reference may also apply to oligomers, unless specifically specified otherwise. Accordingly, the term polymer and oligomer may be referred to interchangeably herein, unless otherwise specified. In addition, unless otherwise stated, the term "polymer" may include

2004B132-JP

-9-

both homopolymers (i.e., a polymer comprising essentially one monomer), and/or a copolymer (i.e., a polymer comprising more than one monomer).

[0030] By "functionalized polymer" it is meant that the polymer and/or oligomer is contacted with a functional group, and optionally a catalyst, heat, initiator, or free radical source to cause all or part of the functional group to incorporate, graft, bond to, physically attach to, and/or chemically attach to the polymer. In addition, "functionalized component" is also defined to include a polymer directly polymerized from monomers (or using an initiator having a functional group) where the polymer has a functional group at a chain end.

[0031] By "functionalized oligomer" is meant that the oligomer is contacted with a functional group, and optionally a catalyst, heat, initiator, or free radical source to cause all or part of the functional group to incorporate, graft, bond to, physically attach to, and/or chemically attach to the oligomer. In addition, "functionalized oligomer" is also defined to include an oligomer directly oligomerized from monomers (or using initiator having a functional group) where the oligomer has a functional group at a chain end.

[0032] By "functional group" is meant any compound having a weight average molecular weight of 1000 or less, and a carbon-carbon double bond, a carbon-carbon triple bond, and/or a heteroatom. Preferably, the functional group comprises a heteroatom, wherein the heteroatom is B, N, O, Si, P, F, Cl, Br, I, S, or a combination thereof.

[0033] Preferably the functional group is a compound containing a heteroatom and unsaturation, such as maleic anhydride. Preferred functional groups include organic acids, organic amides, organic amines, organic esters, organic anhydrides, organic alcohols, organic acid halides (such as acid chlorides, acid bromides, etc.), organic peroxides, and salts thereof.

Polyolefin Tacticity

[0034] Olefin polymers and oligomers ("polyolefins" or "polyolefin polymers"), in general, and in particular poly-alpha-olefin polymers comprising propylene or other C3 or higher alpha-olefin monomers, comprise hydrocarbyl groups that are pendant from the polymer backbone chain. The pendant hydrocarbyl groups may

2004B132-JP

-10-

be arranged in different stereochemical configurations determined relative to the polymer backbone chain. These arrangements include atactic, isotactic, and/or syndiotactic configurations.

[0035] The degree and type of tacticity of a polyolefin polymer may determine the physical properties of a composition comprising such a polymer. Other determinants of such a composition may include the type and relative concentration of monomers, comonomers, oligomers, the weight average molecular weight (M_w) of the polymer(s) present, the molecular weight distribution (MWD) of the polymer(s) present, the crystallinity of the polymer(s), and the like.

[0036] Tacticity may be related to the degree of crystallinity that an olefin polymer, in particular a poly-alpha-olefin polymer, is capable of obtaining. As used herein, the tacticity of a polymer reflects the stereochemical regularity of hydrocarbyl groups, which are pendent to the polymer molecule backbone (i.e., the tacticity of the polymer).

[0037] Four types of tacticity have been described in poly-alpha-olefins: atactic, normal isotactic, isotactic stereoblock, and syndiotactic. Although all of these tacticity configurations have been primarily demonstrated in the case of polypropylene, in theory each is equally possible for polymers comprised of one or more C3 or higher alpha-olefin, cyclic olefin, and/or internal olefin.

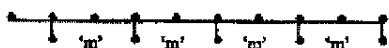
[0038] Atactic poly-olefins are those wherein the hydrocarbyl groups pendent to the polymer molecule backbone assume no regular order with reference to the backbone. This random, or atactic, structure is represented by a polymer backbone of alternating methylene and methine carbons, with randomly oriented branches substituting the methine carbons. The methine carbons randomly have R and S configurations, creating adjacent pairs either of like configuration (a "meso" or "m" dyad) or of unlike configuration (a "racemic" or "r" dyad). The atactic form of a polymer contains approximately equal fractions of meso and racemic dyads. Importantly, atactic poly-alpha-olefins, particularly atactic polypropylene, may be characterized by being soluble in aliphatic and aromatic solvents at ambient temperature. Since atactic polymers exhibit no regular order or repeating unit configurations in the polymer chain, such atactic polymers may be referred to as

2004B132-JP

-11-

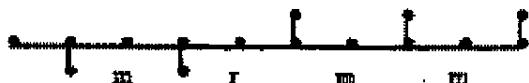
amorphous materials. As an amorphous material, atactic polymers tend to lack a molecular lattice structure and may have poorly defined melting points. Accordingly, atactic poly-alpha-olefins are amorphous, typically have no measurable melting point, and thus exhibit little if any crystallinity.

[0039] Isotactic poly-olefins are characterized as having pendent hydrocarbyl groups ordered in space to the same side or plane of the polymer backbone chain. Using isotactic polypropylene as an example, the isotactic structure is typically described as having the pendent methyl groups attached to the tertiary carbon atoms of successive monomeric units on the same side of a hypothetical plane through the carbon backbone chain of the polymer, e.g., the methyl groups are all above or below the plane as shown below:



The degree of isotactic regularity may be measured by NMR techniques. Bovey's NMR nomenclature for an isotactic pentad is . . . mmmm . . . with each "m" representing a "meso" dyad or successive methyl groups on the same side in the plane.

[0040] In an isotactic poly-alpha-olefin, all of the monomer units have the same stereochemical configuration, with the exception of random errors, which appear along the polymer. Such random errors almost always appear as isolated inversions of configuration that may be corrected in the very next alpha-olefin monomer insertion to restore the original R or S configuration of the propagating polymer chain. Single insertions of inverted configuration give rise to rr triads, which distinguish this isotactic structure in its NMR from the isotactic stereoblock form shown below:



2004B132-JP

-12-

[0041] This isotactic stereoblock form of poly-olefin may result from "site chirality exchange" and/or "chain end control" mechanisms during formation of an isotactic stereoblock poly-alpha-olefin polymer. Deviation or inversion in the regularity of the structure of the chains lowers the degree of isotacticity and hence the crystallinity of which the polymer is capable.

[0042] Syndiotactic poly-alpha-olefins are those wherein the hydrocarbyl groups pendent to the polymer molecular backbone alternate sequentially in order from one side or plane to the opposite side or plane relative to the polymer backbone, as shown below:



[0043] In NMR nomenclature, this pentad is described as . . . rr rr . . . in which each r represents a "racemic" dyad, i.e., successive methyl groups on alternate sides of the plane (see J. A. Ewen, "Catalytic Polymerization of Olefins", (the Ewen method); and Eds. T. Keii, K. Soga; Kodansha Elsevier Pub.; Tokyo, 1986, P 271). The percentage of r dyads in the chain determines the degree of syndiotacticity of the polymer, and is related to the crystallinity of the polymer.

[0044] The molecular chain backbone of a syndiotactic polymer can be considered to be a copolymer of olefins with alternating stereochemical configurations. Highly syndiotactic polymers may be highly crystalline and thus may have defined melting points similar to their isotactic polymorphs and thus may be characterized in part by their melting point temperature.

Polyolefin Crystallinity

[0045] The amount or purity of tacticity in a polymer is related to the crystallinity of that polymer. Both isotactic and syndiotactic polyolefins may possess various levels of crystallinity. For purposes herein, a crystalline polyolefin has greater than 35% crystallinity, preferably greater than about 50% crystallinity. As used herein, both isotactic poly-alpha-olefins and syndiotactic poly-alpha-olefins

2004B132-JP

-13-

having a "high" amount of crystallinity have at least 35 weight % that is not soluble in xylene at room temperature. Poly-alpha-olefins having a "high" amount of crystallinity may also be characterized, at least in part, by a defined melting point temperature or temperature range. Poly-alpha-olefins having a "high" amount of crystallinity may also be characterized, at least in part, by a percent crystallinity of 65% or more, preferably 75% or more.

[0046] Contrary to crystalline polyolefins, amorphous poly-olefins have less than about 35% crystallinity. An essentially amorphous polyolefin, and in particular essentially amorphous poly-alpha-olefin (e.g., essentially amorphous polypropylene) may be characterized as being essentially soluble in xylene, toluene at room temperature. A preferred essentially amorphous polyolefin polymer, copolymer, and/or oligomer, or blend thereof (collectively referred to as an amorphous polyolefin), is one where at least about 95 wt%, preferably at least about 96 wt%, preferably at least about 97 wt%, preferably at least about 98 wt%, preferably at least about 99 wt%, preferably at least about 99.5 wt% of the amorphous polyolefin is soluble in xylene or toluene at room temperature, based on the total weight of the amorphous polyolefin present. Amorphous polyolefins may also be characterized as having no, or little discernable melting point or melting point range.

[0047] Heat of fusion (H_f) may also be used to determine the crystallinity of a polymer, according to the procedure described in ASTM E 794-85. For example, samples weighing approximately 7-10 mg may be sealed in sample pans. The differential scanning calorimetric data (DSC) is then recorded by first cooling the sample to about -50 °C, and then gradually heating it to about 200 °C at a rate of about 10 °C/minute. The sample may then be kept at about 200 °C for about 5 minutes before a second cooling-heating cycle is applied. Both the first and second cycle thermal events are recorded. Areas under the melting peaks may then be measured and used to determine the heat of fusion and the degree of crystallinity. The percent crystallinity is preferably calculated using the formula, [area under the curve (Joules/gram) / B (Joules/gram)] * 100, where B is the heat of fusion for the homopolymer of the major monomer component in the sample. These values for B may be obtained from the literature, e.g., Polymer Handbook,

2004B132-JP

-14-

Fourth Edition, published by John Wiley and Sons, New York 1999. As a matter of convention, if a polymer displays multiple melting or crystallization peaks, the sum of area under each peak was used to calculate the crystallinity.

Amorphous Syndiotactic Rich Polyolefins

[0048] A syndiotactic rich polyolefin polymer (srPP) may comprise at least about 50% r-dyads as determined according to the Ewen method. In a preferred embodiment, a srPP may include about at least about 55% r dyads, preferably at least about 60% r dyads, preferably at least about 65% r dyads, preferably at least about 70% r dyads, preferably at least about 75% r dyads, more preferably less than about 80% r-dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer.

[0049] An amorphous syndiotactic rich polyolefin polymer (a-srPP) may include a syndiotactic rich polyolefin polymer, essentially all of which is soluble in hexane, cyclohexane, toluene or xylene at room temperature.

[0050] An amorphous syndiotactic rich polyolefin polymer (a-srPP) may comprise about 50% r-dyads to less than about 80% r-dyads, based on the total number of dyads present in the polymer. In a preferred embodiment, an amorphous srPP may include about 55% r dyads to about 75% r dyads, preferably about 60% r dyads to about 75% r dyads, preferably about 60% r dyads to about 70% r dyads, preferably about 65% r dyads to about 70% r dyads, based on the total number of r-dyads present in the polymer.

[0051] An amorphous syndiotactic rich polyolefin polymer (a-srPP) may comprise about 6.25% to about 31.6% r-pentads, based on the total number of r-pentads present in the polymer. In a preferred embodiment, an amorphous srPP may include about 9.15% r-pentads to about 31.6% r-pentads, preferably about 13.0% r-pentads to about 31.6% r-pentads, preferably about 13.0% r-pentads to about 24.0% r-pentads, preferably about 17.9% r-pentads to about 24.0% r-pentads, based on the total number of r-pentads present in the polymer.

[0052] In a preferred embodiment, the amorphous syndiotactic rich polyolefin polymer is amorphous syndiotactic rich polypropylene (a-srPPr). The a-srPPr preferably has a weight average molecular weight (Mw) of 5,000,000 or less, a

2004B132-JP

-15-

number average molecular weight (M_n) of about 3,000,000 or less, a z-average molecular weight (M_z) of about 10,000,000 or less, and a g' index of 1.5 or less measured at the weight average molecular weight (M_w) of the polymer using isotactic polypropylene as the baseline, all of which may be determined by size exclusion chromatography, e.g., 3D SEC, also referred to as GPC-3D as described herein.

[0053] In a preferred embodiment, the a-srPPr of the present invention, may have a M_w of about 5,000 to about 5,000,000 g/mole, more preferably a M_w of about 10,000 to about 1,000,000, more preferably a M_w of about 20,000 to about 500,000, more preferably a M_w of about 50,000 to about 300,000, wherein M_w is determined as described herein.

[0054] In a preferred embodiment, the a-srPPr of the present invention may have a M_n of about 5,000 to about 3,000,000 g/mole, more preferably a M_n of about 10,000 to about 1,000,000, more preferably a M_n of about 30,000 to about 500,000, more preferably a M_n of about 50,000 to about 200,000, wherein M_n is determined as described herein.

[0055] In a preferred embodiment, the a-srPPr of the present invention may have a M_z of about 10,000 to about 10,000,000 g/mole, more preferably a M_z of about 50,000 to about 1,000,000, more preferably a M_z of about 80,000 to about 500,000, more preferably a M_z of about 100,000 to about 300,000, wherein M_z is determined as described herein.

[0056] In a preferred embodiment, the a-srPPr of the present invention may have a g' index value of about 1 to about 1.5, more preferably a g' of about 1.25 to about 1.45, when measured at the M_w of the polymer using the intrinsic viscosity of isotactic polypropylene as the baseline, wherein g' is defined, and is determined as described herein.

[0057] In a preferred embodiment, the a-srPPr of the present invention may have a crystallization temperature (T_c) measured with differential scanning calorimetry (DSC) of about 200 °C or less, more preferably, 150 °C or less, more preferably no crystallization temperature is not discernable.

[0058] In a preferred embodiment, the a-srPPr of the present invention may have a density of about 0.85 to about 0.95 g/ml, more preferably, about 0.87 to 0.92

2004B132-JP

-16-

g/ml, more preferably about 0.88 to about 0.91 g/ml at room temperature as measured per the ASTM D-1505 test method.

[0059] In a preferred embodiment, the a-srPPr of the present invention may have a melt flow rate (MFR), which is inversely related to weight average molecular weight Mw, equal to or greater than 0.2 g/10 min., preferably between 2-500 g/10 min. and more preferably between 20-200 g/10 min., as measured according to the ASTM D-1238 (190c,2.16kg) test method.

[0060] The amorphous syndiotactic rich polyolefin may include alpha olefins within the base polymer such that the amorphous syndiotactic rich polyolefin may have greater than about 50 wt% C3-C20 alpha olefins, preferably greater than about 50 wt% C3-C12 alpha olefins, and more preferably greater than about 50 wt% C3-C10 alpha olefins.

[0061] Preferably, the amorphous syndiotactic rich polyolefin may include greater than about 60 wt% propylene, preferably greater than about 70 wt% propylene, preferably greater than about 80 wt% propylene, preferably greater than about 90 wt% propylene, preferably greater than about 95 wt% propylene, preferably greater than about 99 wt% propylene, based on the total weight of the polymer.

[0062] The amorphous syndiotactic rich polyolefin of the present invention may further include greater than about 0.5 wt% ethylene, preferably greater than about 1 wt% ethylene, preferably greater than about 2 wt% ethylene, preferably greater than about 3 wt% ethylene, preferably greater than about 4 wt% ethylene, preferably greater than about 5 wt% ethylene, based on the total weight of the polymer.

[0063] For example, a-srPPr may include at least about 50 wt% propylene (C3) as the base polymer, along with ethylene (C2) and from C4 to C40 alpha olefins, preferably C4 to C20 alpha olefins, more preferably C4 to C12 alpha olefins, with C2 and C4 to C10 alpha olefins being still more preferred.

[0064] Examples of preferred alpha olefins include butene-1, pentene-1, hexene-1, heptene-1, octene-1, nonene-1, decene-1, undecene-1, dodecene-1, tridecene-1, pentadecene-1, hexadecene-1, heptadecene-1, octadecene-1, and branched olefins including 3-methylbutene-1, 4-methylepentene-1, and 4,4-dimethylepentene-1.

2004B132-JP

-17-

[0065] The amount of alpha olefins in addition to the base polymer, when present in the a-srPP, may be greater than about 0.001% by weight (wt%), based on the total weight of the polymer. Preferably, the amount of the alpha olefins is greater than or equal to about 0.1 wt%, more preferably greater than or equal to about 1 wt%. The other alpha olefins may also be present in the base polymer at about 50 wt% or less. Preferably, the amount of the other alpha olefins is less than or equal to about 20 wt%, more preferably less than or equal to about 10 wt%.

[0066] In a preferred embodiment, essentially all of the a-srPP (preferably a-srPPr) of the present invention is essentially amorphous, by which it is meant that essentially all of the a-srPP is soluble in hexane, cyclohexane, xylene or toluene at room temperature. As used herein, by essentially all of the s-srPP it is meant that at least about 95 wt%, preferably at least about 96 wt%, preferably at least about 97 wt%, preferably at least about 98 wt%, preferably at least about 99 wt%, preferably at least about 99.5 wt% of the a-srPP is soluble in hexane, cyclohexane, xylene or toluene at room temperature (i.e., 25°C), based on the total weight of the a-srPP present.

[0067] In a preferred embodiment, the a-srPP, more preferably the a-srPPr, of the present invention may have a heat of fusion (H_f) determined according to the procedure described in ASTM E 794-85, which is less than or equal to about 10 Joules/g, preferably less than or equal to about 9 Joules/g, preferably less than or equal to about 8 Joules/g, preferably less than or equal to about 7 Joules/g, preferably less than or equal to about 6 Joules/g, preferably less than or equal to about 5 Joules/g, preferably less than or equal to about 4 Joules/g, preferably less than or equal to about 3 Joules/g, preferably less than or equal to about 2 Joules/g, preferably less than or equal to about 1 Joule/g, , still more preferably, a heat of fusion which is not detectable according to the procedure described in ASTM E 794-85.

[0068] In a preferred embodiment, the a-srPP, more preferably the a-srPPr, of the present invention may have an ash content, determine according to the procedure described in ASTM D 5630, which is less than or equal to about 1 wt%, based on the total amount of the polymer present, more preferably less than or equal to about 0.9 wt%, more preferably less than or equal to about 0.8 wt%, more

2004B132-JP

-18-

preferably less than or equal to about 0.7 wt%, more preferably less than or equal to about 0.6 wt%, more preferably less than or equal to about 0.5 wt%, more preferably less than or equal to about 0.4 wt%, more preferably less than or equal to about 0.3 wt%, more preferably less than or equal to about 0.2 wt%, more preferably less than or equal to about 0.1 wt%, more preferably less than or equal to about 0.05 wt%, more preferably less than or equal to about 0.01 wt%, more preferably less than or equal to about 0.005 wt%, with an ash content, as determined according to ASTM D-5630 of less than or equal to about 0.001 wt% ash content being still more preferred.

Preparation of Amorphous Syndiotactic Rich Polyolefin Polymers

[0069] Catalyst capable of producing amorphous syndiotactic rich polyolefins, and in particular amorphous syndiotactic rich polypropylene include those disclosed in U.S. 5,476,914, 6,184,326, 6,245,870, 5,373,059, 5,374,685, and 5,326,824. Preparation of srPP polymers, in particular srPPr polymers have been disclosed in U.S. Pat. Nos. 3,305,538 and 3,258,455 to Natta et al, U.S. Pat. No. 4,892,851 to Ewen et al, U.S. Pat. No. 5,270,410 to Job, U.S. Pat. No. 5,340,917 to Eckman et al, U.S. patent and U.S. Pat. No. 5,476,914 to Ewen et al., the entire disclosures of which are hereby incorporated by reference.

[0070] In addition to the selection of the catalyst, the concentration of the reactants, and the pressure of the reaction used for the preparation of the amorphous syndiotactic rich polyolefins of the present invention, temperature control of the reaction may also be critical. The temperature of the reaction is preferably controlled to within about 10°C to a set point, more preferably within about 9°C, more preferably within about 8°C, more preferably within about 7°C, more preferably within about 6°C, more preferably within about 5°C, more preferably within about 4°C, more preferably within about 3°C, more preferably within about 2°C.,

[0071] Polymers prepared by using the method disclosed in U.S. Pat. No. 5,476,914 with a metallocene catalyst system are preferred. Compared with other methods, the a-srPPr prepared with metallocene catalyst will have a narrower molecular weight distribution and/or more uniform comonomer distribution, as

2004B132-JP

-19-

compared to the polymers produced using other catalysts, such as vanadium catalysts as disclosed in, which tend to produce polymers having ash contents greater than those of the present invention. Thus, metallocene produced a-srPP may have better physical and mechanical properties and superior processability, compared to other a-srPP. The most preferred type of a-srPP polymers is metallocene catalyzed copolymer of propylene with ethylene or butene-1 having ethylene or butene-1 comonomer content ranging from about 2 to 20 wt%.

[0072] In general, a-srPP may be produced in a liquid filled, single-stage reactor such as a continuous reactor using an appropriate catalyst such as di(p-triethylsilylphenyl)methylene(cyclopentadienyl)(3,8-di-t-butylfluorenyl) zirconium dichloride, di(p-triethylsilylphenyl)methylene(cyclopentadienyl)(3,8-di-t-butylfluorenyl) hafnium dichloride, di(p-triethylsilylphenyl)methylene(cyclopentadienyl)(3,8-di-t-butylfluorenyl) zirconium dimethyl, di(p-triethylsilylphenyl)methylene(cyclopentadienyl)(3,8-di-t-butylfluorenyl) hafnium dimethyl, di(p-triethylsilylphenyl)methylene(cyclopentadienyl)(3,3,6,6,9,9,12,12-octamethyl-4,4,5,5,8,8,9,9-octahydrodibenzyl[b,h]fluorenyl) zirconium dichloride, di(p-triethylsilylphenyl)methylene(cyclopentadienyl)(3,3,6,6,9,9,12,12-octamethyl-4,4,5,5,8,8,9,9-octahydrodibenzyl[b,h]fluorenyl) hafnium dichloride, di(p-triethylsilylphenyl)methylene(cyclopentadienyl)(3,3,6,6,9,9,12,12-octamethyl-4,4,5,5,8,8,9,9-octahydrodibenzyl[b,h]fluorenyl) zirconium dimethyl, and di(p-triethylsilylphenyl)methylene(cyclopentadienyl)(3,3,6,6,9,9,12,12-octamethyl-4,4,5,5,8,8,9,9-octahydrodibenzyl[b,h]fluorenyl) hafnium dimethyl.

[0073] The catalyst may be activated (or pre-activated) with an appropriate activator (cocatalyst) including alumoxane compounds, modified alumoxane compounds, and ionizing anion precursor compounds that abstract one reactive, σ -bound, metal ligand making the metal complex cationic and providing a charge-balancing noncoordinating or weakly coordinating anion such as methylalumoxane (MAO) and N,N-dimethylanilinium tetrakis(pentafluorophenyl) borate. Additional preferred activators are those described at paragraphs [00121] to [00151] of WO 2004/026921]. Particularly preferred activators include those listed on page 77-78 at paragraph [00135] of WO 2004/026921.

2004B132-JP

-20-

[0074] The catalysts and catalyst systems described above are suitable for use in a solution, bulk, gas or slurry polymerization process or a combination thereof, preferably solution phase or bulk phase polymerization process.

[0075] In one embodiment, this invention is directed toward the solution, bulk, slurry or gas phase polymerization reactions involving the polymerization of one or more of monomers having from 3 to 30 carbon atoms, preferably 3-12 carbon atoms, and more preferably 3 to 8 carbon atoms. Preferred monomers include one or more of propylene, butene-1, pentene-1, 4-methyl-pentene-1, hexene-1, octene-1, decene-1, 3-methyl-pentene-1, and cyclic olefins or a combination thereof. Other monomers can include vinyl monomers, diolefins such as dienes, polyenes, norbornene, norbornadiene, vinyl norbornene, ethylidene norbornene monomers. Preferably a homopolymer or copolymer of propylene is produced. In another embodiment, both a homopolymer of propylene and a copolymer of propylene and one or more of the monomers listed above are produced.

[0076] One or more reactors in series or in parallel may be used in the present invention. Catalyst component and activator may be delivered as a solution or slurry, either separately to the reactor, activated in-line just prior to the reactor, or preactivated and pumped as an activated solution or slurry to the reactor. A preferred operation is two solutions activated in-line. For more information on methods to introduce multiple catalysts into reactors, please see US 6,399,722, and WO0130862A1. While these references may emphasize gas phase reactors, the techniques described are equally applicable to other types of reactors, including continuous stirred tank reactors, slurry loop reactors and the like. Polymerizations are carried out in either single reactor operation, in which monomer, comonomers, catalyst/activator, scavenger, and optional modifiers are added continuously to a single reactor or in series reactor operation, in which the above components are added to each of two or more reactors connected in series. The catalyst components can be added to the first reactor in the series. The catalyst component may also be added to both reactors, with one component being added to first reaction and another component to other reactors.

[0077] In one embodiment 500 ppm or less of hydrogen may be added to the polymerization, or 400 ppm or less, or 300 ppm or less. In other embodiments at

2004B132-JP

-21-

least 50 ppm of hydrogen may be added to the polymerization, or 100 ppm or more, or 150 ppm or more.

Functionalized Amorphous Syndiotactic Rich Polyolefins

[0078] The present invention may comprise the contact product of the above described amorphous syndiotactic rich polyolefin, a functional group, and a functionalization catalyst, which may result in a functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin. Preferably, the amorphous syndiotactic rich polyolefin is amorphous syndiotactic rich polypropylene, the functional group is maleic anhydride, and a functionalization catalyst is an organic peroxide, which may result in a contact product comprising a amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride.

[0079] Accordingly, the present invention may comprise the above described amorphous syndiotactic rich polyolefin which has been further functionalized with one or more additional compounds to impart one or more functionalities into the polyolefin. This functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin is preferably amorphous syndiotactic rich polypropylene, functionalized with maleic anhydride. Accordingly, the amorphous syndiotactic rich polyolefin may be functionalized with an unsaturated compound (e.g., compounds comprising a carbon-carbon double bond, a carbon-carbon triple bond, and/or a compound comprising a heteroatom (e.g., B, N, O, Si, P, halogens (e.g., F, Cl, Br, I), and/or S). The functional group may comprise an aromatic compound, a vinyl compound, an organic acid, an organic amide, an organic amine, an organic ester, an organic di-ester, an organic imide, an organic anhydride, an organic alcohol, an organic acid halide, an organic-peroxide, and/or salts or derivatives thereof.

[0080] For ease of reference, unless otherwise stated, unsaturated compound(s) and/or compound(s) comprising a heteroatom are collectively referred to herein as "a functional group or functional groups, (abbreviated FG)". By functionalized (or grafted) it is meant that one or more functional group(s) are incorporated, grafted, bonded to, physically and/or chemically attached to the amorphous syndiotactic rich polyolefin (a-srPP) of the present invention, to produce an amorphous syndiotactic rich polyolefin functionalized with a functional group

2004B132-JP

-22-

(abbreviated “a-srPP-g-FG”, where “-g-FG” represents the grafted functional group). Functionalization of the polyolefin preferably occurs at or on the polymer backbone, but may also occur at the polymer ends, and on portions of the polymer which are pendant to the polymer backbone. Functionalization may also occur at other functional groups, and between various polymer chains.

[0081] In a preferred embodiment the functionalized syndiotactic rich polyolefin is essentially amorphous in that essentially all of the a-srPP-g-FG of the present invention is soluble in hexane, cyclohexane, xylene or toluene at room temperature. As such, at least about 95 wt%, preferably at least about 96 wt%, preferably at least about 97 wt%, preferably at least about 98 wt%, preferably at least about 99 wt%, preferably at least about 99.5 wt% of the a-srPP-g-FG is soluble in hexane, cyclohexane, xylene or toluene at room temperature, based on the total weight of the a-srPP-g-FG present.

[0082] As an exemplary embodiment, functional groups (i.e., compounds comprising a functional group) may be grafted onto an amorphous syndiotactic rich polypropylene (a-srPPr) utilizing radical copolymerization as described in detail herein, which may include use of a free radical initiator. Such a process is referred to herein as graft copolymerization. The end result being a functionalized amorphous syndiotactic rich propylene polymer or blend of functionalized polymers. Accordingly, the present invention comprises the result of contacting a polyolefin, preferably an amorphous syndiotactic rich polyolefin, with a functional group in the presence of a free radical initiator.

[0083] Preferred examples of functional groups include unsaturated carboxylic acids and salts thereof, along with acid derivatives including, but are not limited to, maleic anhydride, citraconic anhydride, 2-methyl maleic anhydride, 2-chloromaleic anhydride, 2,3-dimethylmaleic anhydride, bicyclo[2.2.1]-5-heptene-2,3-dicarboxylic anhydride and 4-methyl-4-cyclohexene-1,2-dicarboxylic anhydride, acrylic acid, methacrylic acid, maleic acid, fumaric acid, itaconic acid, citraconic acid, mesaconic acid, crotonic acid, bicyclo(2.2.2)oct-5-ene-2,3-dicarboxylic acid anhydride, 1,2,3,4,5,&g, 10-octahydronaphthalene-2,3-dicarboxylic acid anhydride, 2-oxa-1,3-diketospiro(4.4)non-7-ene, bicyclo(2.2.1)hept- 5-ene-2,3- dicarboxylic acid anhydride, maleopimamic acid,

2004B132-JP

-23-

tetrahydrophthalic anhydride, norborn-5-ene-2,3-dicarboxylic acid anhydride, nadic anhydride, methyl nadic anhydride, himic anhydride, methyl himic anhydride, and/or α -methyl-bicyclo(2.2.1)hept-5-ene-2,3-dicarboxylic acid anhydride (XMNA).

[0084] Examples of the esters of the carboxylic acids include esters of unsaturated carboxylic acids including methyl acrylate, ethyl acrylate, butyl acrylate, methyl methacrylate, ethyl methacrylate and butyl methacrylate.

[0085] Hydrolyzable unsaturated silane compounds may include radical polymerizable unsaturated group and an alkoxy silyl group or a silyl group in its molecule, such that the compound has a hydrolyzable silyl group bonded to a vinyl group and/or a hydrolyzable silyl group bonded to the vinyl group via an alkylene group, and/or a compound having a hydrolyzable silyl group bonded to an ester or an amide of acrylic acid, methacrylic acid or the like. Examples thereof include vinyltrichlorosilane, vinyltris(beta-methoxyethoxy)silane, vinyltriethoxysilane, vinyltrimethoxysilane, gamma-methacryloxypropyltrimethoxysilane monovinylsilane and monoallylsilane.

[0086] Examples of unsaturated halogenated hydrocarbons include vinyl chloride and vinylidene chloride.

[0087] Preferable examples of the radical initiator used in the graft copolymerization include organic peroxides such as benzoyl peroxide, methyl ethyl ketone peroxide, cyclohexanone peroxide, t-butylperoxyisopropyl carbonate, di-ti-butyl perphthalate, 2,5-dimethyl-2,5-di(t-butylperoxy)hexene (Lupersol 101, ElfAtochem), 2,5-dimethyl-2,5-di(t-butylperoxy)hexene-3, di-t-butyl peroxide, cumene hydroperoxide, t-butyl hydroperoxide, dilauryl peroxide and dicumyl peroxide.

[0088] In a preferred embodiment, a-srPPr may be grafted with maleic anhydride (MA), to produce the functionalized amorphous syndiotactic rich polypropylene grafted with maleic anhydride (a-srPPr-g-MA), wherein the maleic anhydride may be covalently bonded to any one of the polymer chains of which the a-srPPr is comprised. The anhydride functionality grafted onto the polymer may remain as an anhydride, may be oxidized into acid and/or aldehyde functional groups, and/or

2004B132-JP

-24-

may be further reacted by processes known in the art to induce other derivatives of the functional group such as amides, amines, esters, acid salts, and the like.

[0089] In a preferred embodiment the functional group is present in the functionalized polymer (e.g., a-srPP-g-FG) at about 0.005 to 99 wt%, based on the total weight of the functionalized polyolefin present. In a preferred embodiment, the functional group is present at about 0.01 to 99 wt%, preferably 0.05 to 90 wt %, preferably at 0.1 to 75 wt%, more preferably at 0.5 to 60 wt%, more preferably at 0.5 to 50 wt%, more preferably at 0.5 to 40 wt%, more preferably at 0.5 to 30 wt%, more preferably at 0.5 to 20 wt%, more preferably at 0.5 to 15 wt%, more preferably at 0.5 to 10 wt%, more preferably at 0.5 to 5 wt%, more preferably at 0.5 to 3 wt%, more preferably at 0.5 to 2 wt%, more preferably at 0.5 to 1 wt%, based upon the total weight of the functionalized polyolefin or blend thereof present.

[0090] In a still more preferred embodiment, the functionalized amorphous polyolefin is amorphous syndiotactic rich polypropylene grafted maleic anhydride (a-srPPr-g-MA). In yet a more preferred embodiment, the functional group maleic anhydride, is present in the polymer or polymer blend comprising amorphous syndiotactic rich polypropylene at a concentration of about 0.005 to 10 wt % MA, more preferably 0.01 to 10 wt % MA, more preferably at 0.5 to 10 wt% MA, more preferably at 0.5 to 5 wt% MA, more preferably at 1 to 5 wt% MA, more preferably at 1 to 2 wt% MA, more preferably at 1 to 1.5 wt% MA, as determined as described herein and based upon the weight of the functionalized amorphous syndiotactic rich polypropylene or blend thereof present.

[0091] The functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin of the present invention (a-srPP-FG), preferably amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride (a-srPPr-g-MA) may comprise at least about 50% r-dyads, and less than about 80% r-dyads, as determined according to the Ewen method. In a preferred embodiment, a-srPPr-g-MA may include at least about 55% r dyads, preferably at least about 60% r dyads, preferably at least about 65% r dyads, preferably at least about 70% r dyads, preferably at least about 75% r dyads, more preferably less than about 80% r-dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer.

2004B132-JP

-25-

[0092] A functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin polymer (a-srPP-g-FG), preferably amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride (a-srPPr-g-MA) may comprise about 6.25% to about 31.6% r-pentads, based on the total number of r-pentads present in the polymer. In a preferred embodiment, a-srPP-g-FG may include about 9.15% r-pentads to about 31.6% r-pentads, preferably about 13.0% r-pentads to about 31.6% r-pentads, preferably about 13.0% r-pentads to about 24.0% r-pentads, preferably about 17.9% r-pentads to about 24.0% r-pentads, based on the total number of r-pentads present in the polymer.

[0093] In a preferred embodiment, the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin polymer is a functionalized amorphous syndiotactic rich polypropylene (a-srPPr-g-FG), preferably amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride (a-srPPr-g-MA). The a-srPPr-g-FG, preferably amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride (a-srPPr-g-MA), preferably has a weight average molecular weight (Mw) of 5,000,000 or less, preferably about 5000 to about 5,000,000; a number average molecular weight (Mn) of about 3,000,000 or less, preferably about 5000 to about 3,000,000; and a z-average molecular weight (Mz) of about 10,000,000 or less, preferably about 5000 to about 10,000,000; all of which may be determined by size exclusion chromatography, e.g., 3D SEC, also referred to as GPC-3D as described herein.

[0094] In a preferred embodiment, the a-srPPr-g-FG of the present invention, preferably amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride (a-srPPr-g-MA), may have a Mw of about 5,000 to about 1,000,000 g/mole, more preferably a Mw of about 10,000 to about 500,000, more preferably a Mw of about 20,000 to about 300,000, more preferably a Mw of about 50,000 to about 200,000, wherein Mw is determined as described herein.

[0095] In a preferred embodiment, the a-srPPr-g-FG of the present invention, preferably amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride (a-srPPr-g-MA), may have a Mn of about 2,000 to about 500,000 g/mole, more preferably a Mn of about 5,000 to about 300,000, more preferably a

2004B132-JP

-26-

Mn of about 10,000 to about 200,000, more preferably a Mn of about 20,000 to about 150,000, wherein Mn is determined as described herein.

[0096] In a preferred embodiment, the a-srPPr-g-FG of the present invention, preferably amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride (a-srPPr-g-MA), may have a Mz of about 10,000 to about 10,000,000 g/mole, more preferably a Mz of about 20,000 to about 1,000,000, more preferably a Mz of about 40,000 to about 500,000, more preferably a Mz of about 100,000 to about 400,000, wherein Mz is determined as described herein.

[0097] In a preferred embodiment, the a-srPPr-g-FG of the present invention, preferably amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride (a-srPPr-g-MA), may have a crystallization temperature (Tc) measured with differential scanning calorimetry (DSC) of about 120 °C or less, more preferably, 100 °C or less, more preferably no crystallization temperature is not discernable..

[0098] In a preferred embodiment, the a-srPPr-g-FG of the present invention, preferably amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride (a-srPPr-g-MA), may have a melt flow rate (MFR), which is inversely related to weight average molecular weight Mw, equal to or greater than 0.2 g/10 min., preferably between 2-500 g/10 min. and more preferably between 20-200 g/10 min., as measured per the ASTM D-1238 (190c,2.16kg) test method.

[0099] The amorphous syndiotactic rich polyolefin of the a-srPPr-g-FG, preferably amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride (a-srPPr-g-MA), may include alpha olefins within the base polymer. For example, a-srPPr-g-FG may include propylene (C3) as the base polymer, along with ethylene (C2) and from C4 to C40 alpha olefins, preferably C4 to C20 alpha olefins, more preferably C4 to C12 alpha olefins, with C2 and C4 to C10 alpha olefins being still more preferred.

[0100] Examples of preferred alpha olefins include butene-1, pentene-1, hexene-1, heptene-1, octene-1, nonene-1, decene-1, undecene-1, dodecene-1, tridecene-1, pentadecene-1, hexadecene-1, heptadecene-1, octadecene-1, and branched olefins including 3-methylbutene-1, 4-methylpentene-1, and 4,4-dimethylpentene-1.

2004B132-JP

-27-

[00101] The amount of alpha olefins in addition to the base polymer, when present in the a-srPPr-g-FG, preferably amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride (a-srPPr-g-MA), may be greater than about 0.001% by weight (wt%), based on the total weight of the polymer. Preferably, the amount of the alpha olefins is greater than or equal to about 0.1 wt%, more preferably greater than or equal to about 1 wt%. The other alpha olefins may also be present in the base polymer at about 50 wt% or less. Preferably, the amount of the other alpha olefins is less than or equal to about 20 wt%, more preferably less than or equal to about 10 wt%.

[00102] In a preferred embodiment, the a-srPP-g-FG, more preferably the a-srPPr-g-FG, still more preferably amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride (a-srPPr-g-MA) of the present invention may have a heat of fusion (Hf) determined according to the procedure described in ASTM E 794-85, which is less than or equal to about 10 Joules/g, preferably less than or equal to about 9 Joules/g, preferably less than or equal to about 8 Joules/g, preferably less than or equal to about 7 Joules/g, preferably less than or equal to about 6 Joules/g, preferably less than or equal to about 5 Joules/g, preferably less than or equal to about 4 Joules/g, preferably less than or equal to about 3 Joules/g, preferably less than or equal to about 2 Joules/g, preferably less than or equal to about 1 Joule/g, still more preferably, a heat of fusion which is not detectable according to the procedure described in ASTM E 794-85.

[00103] In a preferred embodiment, the a-srPP, more preferably the a-srPPr, prior to functionalization into a-srPP-g-FG of the present invention, preferably amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride (a-srPPr-g-MA), may have an ash content, determine according to the procedure described in ASTM D 5630, which is less than or equal to about 1 wt%, based on the total amount of the polymer present, more preferably less than or equal to about 0.9 wt%, more preferably less than or equal to about 0.8 wt%, more preferably less than or equal to about 0.7 wt%, more preferably less than or equal to about 0.6 wt%, more preferably less than or equal to about 0.5 wt%, more preferably less than or equal to about 0.4 wt%, more preferably less than or equal to about 0.3 wt%, more preferably less than or equal to about 0.2 wt%, more

2004B132-JP

-28-

preferably less than or equal to about 0.1 wt%, more preferably less than or equal to about 0.05 wt%, more preferably less than or equal to about 0.01 wt%, more preferably less than or equal to about 0.005 wt%, with an ash content, as determined according to ASTM D 5630 of less than or equal to about 0.001 wt% ash content being still more preferred.

[00104] In a preferred embodiment, the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin, preferably amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride (a-srPPr-g-MA), is heat stable, by which is meant that the Gardner color of the a-srPP-g-FG (as determined by ASTM D-1544-68) that has been heat aged (e.g., maintained) at or 180°C for 48 hours, does not change by more than 7 Gardner units when compared to the Gardner color of the initial composition. Preferably, the Gardner color of the functionalized polymer or composition comprising the functionalized polymer, after heating above its melting point for 48 hours, does not change by more than 6, more preferably 5, still more preferably 4, still more preferably 3, still more preferably 2, still more preferably 1 Gardner color unit, as compared to the initial functionalized polymer prior to being heated (e.g., prior to heat aging).

[00105] In the case of amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized (e.g., grafted) with maleic anhydride (a-srPPr-g-MA) it has been discovered that free acid groups present in the composition may result in reduced heat stability. Accordingly, in a preferred embodiment, the amount of free acid groups present in the a-srPPr-g-MA, or blend comprising a-srPPr-g-MA, is less than about 1000 ppm, more preferably less than about 500 ppm, still more preferably less than about 100 ppm, based on the total weight of the a-srPPr-g-MA present.

[00106] It has also been discovered that various phosphites may contribute to instability. Accordingly, in yet another preferred embodiment, the a-srPP-g-FG, more preferably the a-srPPr-g-MA, is essentially free from phosphites, by which it is meant that phosphites are present at 100 ppm or less, based on the weight of a-srPP-g-FG, more preferably the a-srPPr-g-MA.

2004B132-JP

-29-

Functionalization of an Amorphous Syndiotactic Rich Polyolefin

[00107] Functionalization of an amorphous syndiotactic rich polyolefin (a-srPP) with a functional group (FG) to produce a functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin (a-srPP-g-FG), preferably amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride (a-srPPr-g-MA) of the present invention, may be obtained by contacting the polymer to be functionalized along with the functional group, preferably in the presence of the radical initiator. In a preferred embodiment, the combination is heated to a temperature at, near, or above the decomposition temperature of one or more of the radical initiator(s) being used.

[00108] In some embodiments, no particular restriction need be put on the amount of functional group to be used, accordingly, conventional conditions such as may be utilized for functionalizing an isotactic polypropylene may be used to produce the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin, preferably amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride (a-srPPr-g-MA) of the present invention. Since in some cases the efficiency of the copolymerization is relatively high, the amount of the functional group may be small (i.e., less than or equal to about 1 wt% functional group, based on the total weight of the functionalized polymer).

[00109] The radical initiator is preferably used in a ratio of from 0.00001 to 10 wt%, based on the weight of the functional group. When applicable, the heating temperature depends upon whether or not the contact (e.g., the reaction) of the polymer, the functional group, and the radical initiator when used, is carried out in the presence of a solvent. The contact temperature is preferably greater than about 0°C and less than about 500°C, with from about 50°C to 350°C being more preferred. When the heating temperature is less than 50°C, the reaction may be slow and thus efficiency may be low. When it is more than 350°C, decomposition of the polymer or other components may occur. Accordingly, the a-srPP, preferably the a-srPPr of the present invention may be functionalized with a functional group utilizing a solvent based functionalization process and/or utilizing a melt based functionalization process without a solvent.

2004B132-JP

-30-

[00110] In the solvent based process, the reaction may be carried out using the a-srPP, preferably the a-srPPr in solution, or as a slurry having a concentration of from 0.1 to 50 wt% in the presence of a halogenated hydrocarbon compound having 2 to 20 carbon atoms, an aromatic compound, a halogenated aromatic compound, and/or an alkyl substituted aromatic hydrocarbon which is stable to the radicals.

[00111] Importantly, it has been discovered herein that, amorphous polyolefins, more preferably amorphous syndiotactic rich polyolefins, still more preferably amorphous syndiotactic rich polypropylene of the present invention, may functionalized in aliphatic solvents including cyclic hydrocarbons, and/or hydrocarbons having 6 to 20 carbon atoms. Preferred aliphatic solvents include cyclohexane, hexane, and mixtures comprising cyclohexane and/or hexane.

[00112] Accordingly, this unexpected discovery thus may avoid use of aromatic and/or halogenated solvents and thus the present invention may by utilized to reduce environmental issues and restraints that may be associated with the use of aromatic and/or halogenated solvents, especially in mass production. This discovery also provides for direct use of a polymer solution from a polymerization reactor for functionalization, thus avoiding an added finishing and/or re-dissolving step(s), as described in more detail herein. Further, this discovery also allows for the advantages associated with the use of solvents having lower boiling points than those associated with aromatic solvents. Use of solvents in functionalization having boiling points below that of benzene, toluene, xylene, or the like, for example, will facilitate removal of solvent from the functionalized polymer at a lower temperature and/or higher pressure relative to a particular aromatic solvent. Lower temperature removal may thus result in less degradation of the polymer, more efficient solvent removal, and an increase in productivity / lower cost of solvent removal resultant from operation at a lower temperature and/or a higher pressure relative to operational conditions required for solvent removal of an aromatic solvent.

[00113] In the functionalization process utilizing a melt based functionalization process the reaction may be carried out with little or no solvent present, preferably in the absence of the solvent, in a device such as an extruder, a mixer, or the like,

2004B132-JP

-31-

which can produce sufficient physical contact between what may be highly viscous components to affect contact and thus functionalization of the amorphous syndiotactic rich polyolefin. In the melt based functionalization process, the functionalization reaction may be effected at a relatively high temperature as compared to the same reaction a solution or solvent based functionalization process.

[00114] Other methods for functionalizing the a-srPP, preferably the a-srPPr of the present invention may include, but are not limited to, selective oxidation, ozonolysis, epoxidation, and the like, both in solution or slurry (i.e., with a solvent and/or diluent), or in a melt or mixer (i.e., without a solvent).

[00115] In the present invention, the functionalization (e.g., graft polymerization) may also be carried out in an aqueous medium. In this case one or more dispersants may be used. Examples of suitable dispersants include: saponified polyvinyl acetate, modified celluloses such as hydroxyethyl cellulose and hydroxypropyl cellulose, and compounds containing an OH group such as polyacrylic acid and polymethacrylic acid. In addition, compounds which are used in a usual aqueous suspension polymerization can also be widely employed.

[00116] The aqueous functionalization may be carried out by suspending the polymer, the functional group, the water-insoluble radical initiator and/or the dispersant in water, and then heating the mixture. Here, a ratio of water to the sum of the functional group is preferably 1:0.1 to 1:200, more preferably 1:1 to 1:100. The heating temperature is such that the half-life of the radical initiator is preferably from 0.1 to 100 hours, more preferably from 0.2 to 10 hours, and it is preferably from 30° to 200°C, more preferably from 40° to 150°C. In the heating step, it is preferred that the mixture is stirred sufficiently so as to become in a suspension state. In this way, the grafted polyolefin may be obtained in granular form.

[00117] A weight ratio of the functional group to the polyolefin or blend comprising the polyolefin to be functionalized may preferably be from 1:01 to 1:10000, and a weight ratio of the radical initiator to the functional group may be from 0.00001 to 0.1.

2004B132-JP

-32-

[00118] As stated above, the presence of free acid groups and phosphites in functionalized srPP may affect heat stability of the a-srPP-g-FG, in particular with respect to a-srPPr-g-MA. The concentration of free acid groups and other moieties which may negatively affect heat stability in a-srPPr-g-MA may be reduced and/or controlled by:

1. Reaction control, wherein the materials are contacted at a temperature, and for a period of time sufficient to insure an essentially complete reaction and thus essentially complete consumption of the added functional group (e.g., maleic anhydride) during the functionalization process;
2. Post washing, wherein the functionalized polymer is contacted (e.g., washed) at least once with a solvent, with water, with a dilute acid, with a dilute base, or a combination thereof, after the functionalization reaction;
3. Master batching, wherein a master batch of functionalized polymer is produced and/or processed to be essentially free from free acid groups and/or other moieties, and wherein the master batch has a concentration of maleic anhydride functional groups above that required in the final composition, and wherein the master batch is blended in the final blend (also referred to as being "let down") in an amount sufficient to produce the desired level of a-srPP-FG, preferably a-srPPr-MA, in the final blend; or
4. Moisture control, wherein moisture (e.g., water) level in the functionalized polymer is kept at a level which maintains the anhydride functionality of the anhydride (e.g., MA).

Solution functionalization utilizing an aliphatic solvent is a preferred functionalization method to improve heat stability of a-srPP-FG, preferably a-srPPr-g-MA.

[00119] For reaction in solution, the a-srPP may be dissolved in an appropriate solvent (e.g., an aromatic solvent such as benzene, toluene, or xylene, or an aliphatic solvent such as hexane or cyclohexane). After the solution containing a-

2004B132-JP

-33-

srPP is heated to the desired temperature (e.g., from about 60 to 150 °C), a free radical initiator and a functional group (e.g., a reactive amide and/or maleic anhydride) may be added to initiate the grafting process. After stirring for about 30 min. to about 5 hr or more, the solution is precipitated into a second solvent such as acetone, to separate functionalized polymer from unreacted modifier. The filtered product may then be dried under vacuum (e.g., at 120°C) to afford the final functionalized amorphous polyolefin product.

[00120] Accordingly, in one embodiment, functionalization process may comprise the steps of:

- 1) providing olefin monomer (e.g., propylene), catalyst, activator and the like to a reactor in hexane or a mixture of aliphatic solvents;
- 2) catalytic solution polymerization;
- 3) monomer stripping;
- 4) solvent removal and product drying to produce polymer;
- 5) redissolution of polymer in non-aliphatic solvent (e.g., benzene, toluene, or non-hydrocarbon solvent) for solution functionalization;
- 6) solvent based functionalization; and
- 7) removal of solvent used in solvent based functionalization.

[00121] In a preferred embodiment, functionalization process may comprise the steps of:

- 1) providing olefin monomer (e.g., propylene), catalyst, activator and the like to a reactor in hexane or a mixture of aliphatic solvents;
- 2) catalytic solution polymerization;
- 3) monomer stripping;
- 4) solvent based functionalization; and
- 5) separation of the functionalized polyolefin (e.g., via precipitation upon addition of a solvent, temperature control, and/or removal of solvent used in solvent based functionalization. Such a preferred process can be realized by a continuous stirred tank reactor or sequential reactor tank.

[00122] Accordingly, a method to produce the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin of the present invention may comprise the steps of:

2004B132-JP

-34-

- 1) providing an olefin monomer, metallocene catalyst, and an activator to a reactor in an aliphatic solvent;
- 2) catalytic solution polymerization of the olefin monomer in the reactor to produce an amorphous syndiotactic rich polyolefin;
- 3) monomer stripping to remove unreacted olefin monomer;
- 4) solvent based functionalization; comprising contacting the amorphous syndiotactic rich polyolefin with a functional group in the presence of a free radical initiator in the aliphatic solvent utilized in the solution polymerization step, at a temperature and for a period of time sufficient to produce the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin; and optionally,
- 5) precipitation of functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin via addition of a solvent such as acetone, and/or the removal of the aliphatic solvent.

[00123] It is desirable to functionalize propylene-based homopolymers and copolymers in solution for best control of the functionalization chemistry. It is further desirable in some applications that the functionalized polymer can be delivered to target application - such as primer for a TPO bumper - in solution.

[00124] Functionalization in a melt involves a process similar to that in solution, except that no solvent is required, the reaction takes place in a mixing device (e.g., an extruder or Brabender), and the temperature may be higher than that used in the solvent based process. Accordingly, a method to produce the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin of the instant invention may comprise the steps of:

- A. providing a melt comprising an amorphous syndiotactic rich polyolefin, a functional group, and a free radical initiator to a mixing device; and
- B. contacting said melt within said mixing device at a temperature and for a period of time sufficient to produce the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin.

[00125] In a preferred embodiment, the method may comprise the steps of:

- A. providing a melt comprising an amorphous syndiotactic rich polypropylene, maleic anhydride, and an organic peroxide as a free radical initiator to a mixing device; and

2004B132-JP

-35-

B. contacting the melt within the mixing device at a temperature and for a period of time sufficient to produce a-srPP-g-MA of the present invention.

[00126] In a preferred embodiment, wherein a nanoclay may be added to the polymer, a method to produce a functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin may comprise the steps of:

A. providing a melt comprising an amorphous syndiotactic rich polyolefin, a functional group, an optional nanoclay, and a free radical initiator to a mixing device;

B. contacting said melt and optional nanoclay within said mixing device at a temperature and for a period of time sufficient to produce said functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin, wherein the amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises greater than about 50 wt% C₃-C₄₀ alpha olefins;

about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polyolefin;

and a heat of fusion of 10 joules/g or less according to the procedure described in ASTM E 794-85.

[00127] Preferably, the method includes wherein the amorphous syndiotactic rich polyolefin further comprises an ash content of 1 wt% or less, and/or wherein the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin is amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride, and/or further comprising the addition of an organo-clay after said contacting step B.

Applications Comprising the Inventive Polymers

[00128] Both the amorphous syndiotactic rich polyolefin, preferably the amorphous syndiotactic rich polypropylene and the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin, preferably the functionalized amorphous syndiotactic rich polypropylene, more preferably the amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride may be utilized in a number of applications. Examples include, injection molded parts, films, laminates, substrates, other articles of manufacture, and as a compatibilizer in formation of various articles from a combination of recycled materials, new materials, or both.

2004B132-JP

-36-

[00129] Injection molded parts include various articles of manufacture produced through injection molding, as is known to one of skill in the art. Films include melt blown films, extruded films, cast films, and the like. Laminates include one or more layer, with or without additional adhesives and/or other materials disposed between the layers of the laminate. Substrates may be non-polar or polar, and may be affected by incorporation of functional groups within the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefins of the present invention.

[00130] The polymer of the present invention may also comprise a master batch. In an embodiment, the master batch may include the above described amorphous syndiotactic rich polyolefin, preferably the amorphous syndiotactic rich polypropylene and/or the above described functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin, preferably the functionalized amorphous syndiotactic rich polypropylene, more preferably the amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride. The master batch may also include various other additives and/or other components consistent with the end use, such that the material within the master batch may be "let down" into a particular end use.

[00131] The amorphous character of the syndiotactic rich polyolefin, preferably the amorphous syndiotactic rich polypropylene and the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin, preferably the functionalized amorphous syndiotactic rich polypropylene, more preferably the amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride also allows the present invention to be utilized in a liquid form, preferably dissolved in an appropriate solvent. As such, the present invention may be atomized and/or spray applied to a substrate via techniques known to those of skill in the art.

Polymer Formulations

[00132] Both the amorphous syndiotactic rich polyolefin, preferably the amorphous syndiotactic rich polypropylene and the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin, preferably the functionalized amorphous syndiotactic rich polypropylene, more preferably the amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride may be utilized as a blend in combination with at least one, preferably one or more additives. The polymer of

2004B132-JP

-37-

the present invention may thus be utilized as an additive, as an adhesive, or as a base polymer in an adhesive blend. As used herein, an additive may be any material or combination of materials which facilitate, improve, modifies, or retards physical properties of the polymer blend, or which facilitates the use of the amorphous syndiotactic rich polyolefin, preferably the amorphous syndiotactic rich polypropylene, and/or the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin, preferably the functionalized amorphous syndiotactic rich polypropylene, more preferably the amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride of the present invention.

[00133] Additives suitable for use herein may comprise one or more of C2-C40 polymers, elastomers, random copolymers, impact copolymers, flunctional polymers, tackifiers, crosslinking agents, antioxidants, neutralizing agents, nucleating agents, fillers, adhesion promoters, oils, plasticizers, waxes, low molecular weight polymers, ester polymers, and/or other additives.

C2-C40 Polymers

[00134] In an embodiment, an additive may include various C2-C40 polyolefin polymers ("polymers") either alone, or in a blend with other polymers and/or additives. Accordingly, the additive may comprise a single discrete polymer, or a blend of discrete polymers. Such blends may include two or more polyolefins such as polypropylene-polyethylene copolymers, two or more polypropylene copolymers, where each of the components of the polymer blend would individually qualify as an additive.

[00135] In a preferred embodiment the additive comprises a metallocene polyethylenes (mPE's) and/or metallocene polypropylenes (mPPr's). The mPE and mPPr homopolymers or copolymers are typically produced using mono- or bis-cyclopentadienyl transition metal catalysts in combination with an activator of alumoxane and/or a non-coordinating anion in solution, slurry, high pressure or gas phase. The catalyst and activator may be supported or unsupported and the cyclopentadienyl rings by may substituted or unsubstituted. Several commercial products produced with such catalyst/activator combinations are commercially available from ExxonMobil Chemical Company in Baytown, Texas under the

2004B132-JP

-38-

tradenames EXCEED™, ACHIEVE™ and EXACT™. For more information on the methods and catalysts/activators to produce such mPE homopolymers and copolymers see WO 94/26816; WO 94/03506; EPA 277,003; EPA 277,004; U.S. Pat. No. 5,153,157; U.S. Pat. No. 5,198,401; U.S. Pat. No. 5,240,894; U.S. Pat. No. 5,017,714; CA 1,268,753; U.S. Pat. No. 5,324,800; EPA 129,368; U.S. Pat. No. 5,264,405; EPA 520,732; WO 92 00333; U.S. Pat. No. 5,096,867; U.S. Pat. No. 5,507,475; EPA 426 637; EPA 573 403; EPA 520 732; EPA 495 375; EPA 500 944; EPA 570 982; WO91/09882; WO94/03506 and U.S. Pat. No. 5,055,438.

[00136] In another embodiment the additive comprises homopolypropylene, propylene copolymerized with up to 50 wt% of ethylene or a C4 to C20 alpha-olefin, isotactic polypropylene, highly isotactic polypropylene (e.g., having greater than about 50% m-pentads), syndiotactic polypropylene, random copolymer of propylene and ethylene and/or butene and/or hexene, polybutene, ethylene vinyl acetate, low density polyethylene (density 0.915 to less than 0.935 g/cm³) linear low density polyethylene, ultra low density polyethylene (density 0.86 to less than 0.90 g/cm³), very low density polyethylene (density 0.90 to less than 0.915 g/cm³), medium density polyethylene (density 0.935 to less than 0.945 g/cm³), high density polyethylene (density 0.945 to 0.98 g/cm³), ethylene vinyl acetate, ethylene methyl acrylate, copolymers of acrylic acid, polymethylmethacrylate or any other polymers polymerizable by a high-pressure free radical process, polyvinylchloride, polybutene-1, isotactic polybutene, ABS resins, elastomers such as ethylene-propylene rubber (EPR), vulcanized EPR, EPDM, block copolymer elastomers such as SBS, nylons (polyamides), polycarbonates, PET resins, crosslinked polyethylene, copolymers of ethylene and vinyl alcohol (EVOH), polymers of aromatic monomers such as polystyrene, poly-1 esters, graft copolymers generally, polyacrylonitrile homopolymer or copolymers, thermoplastic polyamides, polyacetal, polyvinylidene fluoride and other fluorinated elastomers, polyethylene glycols and polyisobutylene.

[00137] Other preferred propylene copolymers useful herein as additives are described in detail as the "Second Polymer Component (SPC)" in co-pending U.S. applications USSN 60/133,966, filed May 13, 1999, and USSN 60/342,854, filed June 29, 1999, and described in further detail as the "Propylene Olefin

2004B132-JP

-39-

Copolymer" in USSN 90/346,460, filed July 1, 1999, which are both fully incorporated by reference herein for purposes of U.S. practice.

[00138] In a preferred embodiment, the additive may comprise propylene, one or more comonomers (such as ethylene, alpha-olefins having 4 to 8 carbon atoms, and styrenes) and optionally one or more α , ω dienes. The amount of diene is preferably no greater than about 10 wt%, more preferably no greater than about 5 wt%. Preferred dienes include those used for vulcanization of ethylene propylene rubbers, preferably ethylidene norbornene, vinyl norbornene, dicyclopentadiene, and 1,4-hexadiene (available from DuPont Chemicals).

[00139] In an embodiment, the additive may comprise two or more polypropylene copolymers, each of which preferably differ in α -olefin content, with one being in the range of 7 to 13 mole % α -olefin while the other is in the range of 14 to 22 mole % α -olefin. The preferred α -olefin is ethylene. It is believed that the use of two-polymer components leads to beneficial improvements in the tensile-elongation properties of the final blends.

[00140] Polymers suitable for use herein as additives also include amorphous syndiotactic rich C3-C40 homopolymer or copolymer, and/or an at least partially crystalline syndiotactic rich C3-C40 homopolymer or copolymer. An at least partially crystalline polyolefin being defined as a polyolefin homopolymer or copolymer having at least 10 wt% solubility in xylene or toluene at room temperature. Preferably, the additive comprises a syndiotactic rich polyolefin, having a 15 wt%, preferably a 20 wt%, preferably a 25 wt%, preferably a 30 wt%, preferably a 35 wt%, preferably a 40 wt%, preferably a 45 wt%, preferably a 50 wt%, preferably a 55 wt%, preferably a 60 wt%, preferably a 65 wt%, preferably a 70 wt%, preferably a 75 wt%, preferably an 80 wt%, preferably an 85 wt%, preferably a 90 wt%, preferably a 95 wt% solubility in xylene or toluene at room temperature. Still more preferably, the syndiotactic rich polyolefin of the above additive comprises an at least partially crystalline syndiotactic rich polypropylene (srPPr).

[00141] The at least partially crystalline syndiotactic rich polypropylene,(srPPr) may be defined herein to comprise at least about 80% [r] dyads. Preferably at least about 85% [r] dyads, with at least about 90% [r] dyads preferred, with at

2004B132-JP

-40-

least about 95% [r] dyads more preferred, with at least about 99% [r] dyads yet still more preferred.

[00142] The additive may also include an at least partially crystalline syndiotactic rich polyolefin comprising polypropylene as the base polymer, along with other alpha olefins including ethylene (C2) and from C4 to C40 alpha olefins. Examples of alpha olefins include butene-1, pentene-1, hexene-1, heptene-1, octene-1, nonene-1, decene-1, undecene-1, dodecene-1, tridecene-1, pentadecene-1, hexadecene-1, heptadecene-1, octadecene-1, and branched olefins including 3-methylbutene-1, 4-methylepentene-1, and 4,4-dimethylepentene-1.

[00143] The amount of the other alpha olefins, when present in the at least partially crystalline syndiotactic rich polypropylene may be greater than about 0.001% by weight (wt%), based on the total weight of the polymer. Preferably, the amount of the other alpha olefins is greater than or equal to about 0.1 wt%, more preferably greater than or equal to about 1 wt%. The other alpha olefins may also be present in the base polymer at about 50 wt% or less. Preferably, the amount of the other alpha olefins is less than or equal to about 20 wt%, more preferably less than or equal to about 10 wt% in the base polymer.

Elastomers

[00144] In another embodiment the additive may comprise an elastomer. Examples of suitable elastomers include one or more polypropylene copolymers having elastic properties. Such preferred propylene copolymers having elastic properties may be prepared according the procedures in WO 02/36651 which is incorporated by reference here. Likewise the additive may comprise polymers consistent with those described in WO 03/040202, WO 03/040095, WO 03/040201, WO 03/040233, and/or WO 03/040442. Additionally, the additive may comprise polymers consistent with those described in EP 1,233,191, and US 6,525,157.

[00145] Preferred propylene copolymers having elastomeric properties include those prepared by polymerizing propylene with a C2 or C4-C20 alpha olefin, most preferably propylene and ethylene, in the presence of a chiral metallocene catalyst with an activator and optionally a scavenger. The co-monomer used with

2004B132-JP

-41-

propylene may be linear or branched. Preferred linear alpha-olefins include ethylene (C2) and C4 to C8 alpha olefins. Examples of preferred α -olefins include ethylene, 1 -butene, 1 -hexene, and 1-octene, even more preferably ethylene or 1 -butene. Preferred branched α -olefins include 4-methyl-1-pentene, 3-methyl-1-pentene, and 3,5,5-trimethyl- 1 -hexene.

[00146] Preferred additives comprising propylene copolymers having elastomeric properties may have an average propylene content on a molar basis of from about 68% to about 92%, more preferably from about 75% to about 91%, even more preferably from about 78% to about 88%, most preferably from about 80% to about 88%. The balance of the copolymer may be one or more α -olefins as specified above and optionally minor amounts of one or more diene monomers. Preferably, the polypropylene copolymer comprises ethylene as the comonomer in the range of from about 8 to 32 mole % ethylene, more preferably from about 9 to about 25 mole % ethylene, even more preferably from about 12 to about 22 mole % ethylene and most preferably from about 13 to 20 mole % ethylene.

[00147] The use of a chiral metallocene catalyst to produce these propylene copolymers having elastomeric properties ensures that the methyl group of the propylene residues have predominantly the same tacticity. Both syndiotactic and isotactic configuration of the propylene are possible, with the isotactic polymers being particularly preferred. The tacticity of the propylene residues leads to crystallinity in the polymers. For the polymers of the additives of the present invention, the low levels of crystallinity in the polypropylene copolymer may be derived from isotactic polypropylene obtained by incorporating alpha-olefin comonomers as described above.

[00148] Particularly preferred additives comprising propylene copolymers having elastomeric properties include semi-crystalline propylene copolymers preferably having:

1. a heat of fusion from about 0.5 J/g to about 25 J/g, more preferably from about 1 J/g to about 20 J/g, and most preferably from about 1 J/g to about 15 J/g; and /or
2. a crystallinity of about 0.25% to about 15%, more preferably from about 0.5% to about 13%, and most preferably from about 0.5% to about

2004B132-JP

-42-

11% (The crystallinity of the polypropylene copolymer is expressed in terms of percentage of crystallinity. The thermal energy for the highest order of polypropylene is estimated for use herein at 189 J/g. That is, for use herein, 100% crystallinity is assumed to be equal to 189 J/g.); and/or

3. a single broad melting point or melting transition (A sample of the polypropylene copolymer may show a secondary melting peak or peaks adjacent to a principal peak, yet for the purposes herein, these are considered together as a single melting point or melting transition.); and/or

4. a melting point of from about 25°C to about 75°C, preferably in the range of from about 25°C to about 65°C, more preferably in the range of from about 30°C to about 60°C. (The highest of melting transition peaks is considered the melting point.); and/or

5. a weight average molecular weight of 10,000 to 5,000,000 g/cc, preferably 80,000 to 500,000; and/or

6. an MWD (Mw/Mn) between 1.5 to 40.0, more preferably between about 1.8 to 5 and most preferably between 1.8 to 3; and/or

7. a Mooney viscosity ML (1+4)@125°C less than 100, more preferably less than 75, even more preferably less than 60, most preferably less than 30.

[00149] Other elastomers suitable for use herein include all natural and synthetic rubbers, including those defined in ASTM D 1566. In a preferred embodiment, elastomers may be rubber toughened compositions. In a particularly preferred embodiment, the rubber toughened composition is a two (or more) phase system where the rubber is a discontinuous phase within a continuous phase comprising the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin. Examples of preferred elastomers include ethylene propylene rubber, ethylene propylene diene monomer rubber, neoprene rubber, styrenic block copolymer rubbers (including SI, SIS, SB, SBS, SIBS, SEBS, SEPS, and the like (S is styrene, I is isoprene, B is butadiene, EB is ethylenebutylene, EP is ethylenepropylene), butyl rubber, halobutyl rubber, copolymers of isobutylene and para-alkylstyrene, halogenated copolymers of isobutylene and para-alkylstyrene.

2004B132-JP

-43-

Random Copolymers

[00150] In another embodiment, the additive may comprise a random copolymer. Random copolymers suitable for use herein may be produced by copolymerizing propylene in a single reactor process with other monomers such as ethylene, butene and higher alpha-olefins, the most common one being ethylene. Ethylene content for these additive copolymers preferably ranges from 3-4 mole %, up to 14-17 mole%, preferably from 1 mole % to 20 mole %.

[00151] Examples of suitable random copolymers also include random crystallizable propylene copolymers having a narrow compositional distribution. The intermolecular composition distribution of the polymer may be determined by thermal fractionation in a solvent such as a saturated hydrocarbon e.g., hexane or heptane. By having a narrow compositional distribution, it is meant that approximately 75% by weight and more preferably 85% by weight of the polymer is isolated as one or two adjacent, soluble fraction with the balance of the polymer in immediately preceding or succeeding fractions. Thus in a copolymer having a narrow compositional distribution, each of these fractions may have a composition (wt. % ethylene content) with a difference of no greater than 20% (relative to each other) and more preferably 10% (relative to each other) of the average wt% ethylene content of the polypropylene copolymer.

[00152] The length and distribution of stereoregular propylene sequences in preferred random crystallizable polypropylene copolymers is consistent with substantially random statistical copolymerization, in which the sequence length and distribution are related to the copolymerization reactivity ratios. By substantially random, it is meant that the copolymer reactivity ratio is generally 1 or less. In stereoblock structures, the average length of polypropylene sequences may be greater than that of substantially random copolymers with a similar composition, which is unlike polymers with stereoblock structure having a distribution of polypropylene sequences consistent with blocky structures rather than a random substantially statistical distribution. The reactivity ratios and sequence distribution of the polymer may be determined by ^{13}C NMR, which locates the ethylene residues in relation to the neighboring propylene residues. The crystallizable copolymer with the required randomness and narrow

-

2004B132-JP

-44-

composition distribution suitable for use as an additive herein are preferably prepared using (1) a single sited catalyst and (2) a well-mixed, continuous flow stirred tank polymerization reactor which allows only a single polymerization environment for substantially all of the polymer chains of preferred polypropylene copolymers.

Impact Copolymers

[00153] In another embodiment the additive may comprise one or more impact copolymers, also called heterophasic copolymers or block copolymers. Impact copolymers suitable for use herein may be defined to be a blend of isotactic PP and an elastomer such as an ethylene-propylene rubber. In a preferred embodiment the impact copolymer blend is present in a two (or more) phase system where the impact copolymer is a discontinuous phase in the adhesive composition and the a-srPP-g-FG, and/or other additives as described above, is the continuous phase.

Flunctional Polymers

[00154] In another embodiment the additive may comprise one or more polymers produced with a so-called "flunctional catalyst". Such polymers are referred to herein as "flunctional polymers", which include linear isotactic polymers having a structure of one or several C2 to C20 olefins, of which the isotacticity due to statistic distribution of stereoscopic errors in the polymer chain, is within the range of from 25 to 60% of [mmmm] pentad concentration. Determination of the pentad concentration may be determined using e.g. in J. A. Ewen, "Catalytic Polymerization of Olefins", (the Ewan method); and Eds. T. Keii, K. Soga; Kodanska Elsevier Pub.; Tokyo, 1986, P 271 et seq.

[00155] Suitable flunctional polymers for use as additives include those described in U.S. Patent No. 6,555,643, wherein it is essential that the stereoscopic errors be situated in the polymer chain itself such that a specific pentad concentration results. Preferably, the flunctional polymers comprise an [rmrm] pentad concentration having a maximum of 2.5% of the entire pentad area with an [rmrm] pentad concentration of essentially zero (i.e., completely missing).

2004B132-JP

-45-

[00156] The combined concentration of [rrrr] and [rrrm] pentads in suitable flunctional polymers may be greater than the concentration of [rmmm] pentad concentration. In a preferred embodiment, the flunctional polymers are linear, isotactic polymers having a weight average molecular weight of 100,000 to 800,000 g/mol, preferably 110,000 to 500,000 g/mol, and more preferably 120,000 to 300,000 g/mol. The molecular weight distribution Mw/Mn of the polymers according to this preferred embodiment may be about 1.2 to 3.5. Suitable flunctional polymers may have a glass transition temperature Tg of -50°C to +30°C, preferably -20°C to +10°C, as determined by DSC.

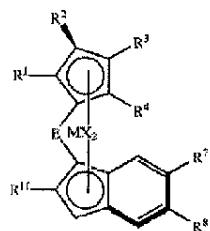
[00157] Preferred flunctional polymers include linear, isotactic polymers comprising one or several C₂ -C₂₀ olefins. Preferably, the olefin is a C₃ -C₂₀ alk-1-ene, such as propene, 1-butene, 2-butene, 1-pentene, 1-hexene, 1-octene, 1-nonene, 1-decene, 1-dodecene, 1-hexadecene, 1-octadecene, and 1-eicosene or a C₅ -C₂₀ cycloolefin, for example, cyclopentene, cyclohexene, norbornadiene and its derivatives, with polypropylene being especially preferred. Also preferred are copolymers prepared from propylene and a C₄ -C₂₀ olefin or cycloolefin.

[00158] Preferred flunctional polymers are essentially soluble in toluene at a 20 to 80°C. In addition, such polymers demonstrate a distinct elastic behavior in a tensile-strength test, showing a distinctive rubber-elastic plateau as compared to either a flow behavior or breaking of the polymer (see Figure 1 of U.S. Patent No. 6,555,643). Suitable flunctional polymers may also possess a crystallization melting temperature, measured by means of the "Differential Scanning Calorimetry" (DSC) within the range of from -50°C to 150°C. Suitable flunctional polymers clearly differ in regard of their elastic-thermoplastic behavior from the state-of-the-art, i.e. from the polymers disclosed in, for example, EP 0 707 016 A1.

[00159] Accordingly, flunctional polymers include those produced utilizing flunctional catalyst of the general formula:

2004B132-JP

-46-



wherein M is a metal selected from the group consisting of titanium, zirconium, hafnium, vanadium, niobium, or tantalum; X is a halogen or a C1-C5 alkyl, aryl, or benzyl group, R¹, R², R³, R⁴, R⁶, and R⁷ are a linear or branched C1 -C10 alkyl, a C5-7 cycloalkyl that, in its turn, may carry one or several C1 -C6 alkyl residues as substituents, a C6 -C18 aryl, aryl alkyl or alkyl aryl, in which case R¹, R², R³, R⁴, and R⁶, R⁷, here again, may be partially or simultaneously integrated into C5-C7 cycloalkyl or aryl rings fused thereto.

[00160] In case of the metallocene compound according to the above formula, it is essential that the number 7 indenyl carbon adjacent to the carbon substituted by residue R7 and the number 4 indenyl carbon adjacent to the carbon substituted by residue R6 are only substituted by hydrogen, thereby providing a catalyst that is especially advantageous for preparing isotactic elastomers according to the invention. Suitable bridging structural units E are --CH₂ CH₂ --, --CH₂ CH₂ CH₂ --, --CH₂ CH₂ CH₂ CH₂ --, --CR₉ R₁₀ --, --SiR₉ R₁₀ --, or --GeR₉ R₁₀ --, wherein R₉ and R₁₀ are a C1 -C8 alkyl, a C4-7 cycloalkyl or aryl, and R₉ and R₁₀ are able to join together to form a ring structure.

Tackifiers

[00161] Additives may also include tackifiers. Examples of suitable tackifiers may be selected from the group consisting of aliphatic hydrocarbon resins, aromatic modified aliphatic hydrocarbon resins, hydrogenated polycyclopentadiene resins, polycyclopentadiene resins, gum rosins, gum rosin esters, wood rosins, wood rosin esters, tall oil rosins, tall oil rosin esters, polyterpenes, aromatic modified polyterpenes, terpene phenolics, aromatic modified hydrogenated polycyclopentadiene resins, hydrogenated aliphatic resin, hydrogenated aliphatic

2004B132-JP

-47-

aromatic resins, hydrogenated terpenes and modified terpenes, hydrogenated rosin acids, and hydrogenated rosin esters. In some embodiments the tackifier may be hydrogenated.

[00162] In other embodiments, the tackifier may be non-polar, meaning that the tackifier is substantially free of monomers having polar groups. Preferably, the polar groups are not present, however if they are present, they are preferably not present at more than 5 wt%, preferably not more than 2 wt%, even more preferably no more than 0.5 wt%. In some embodiments the tackifier may have a Ring and Ball softening point, as measured by ASTM E-28 of 80 °C to 150 °C, preferably 100 °C to 130 °C. In another embodiment the resins is liquid and has a Ring and Ball softening point of between 10 and 70 °C.

[00163] The tackifier may comprise about 1 to about 80 wt%, based upon the weight of the adhesive composition, more preferably 2 to 40 wt%, even more preferably 3 to 30 wt%.

[00164] Preferred additives include hydrocarbon resins used as tackifiers or modifiers which include:

1. Resins such as C5/C6 terpene resins, styrene terpenes, alpha-methyl styrene terpene resins, C9 terpene resins, aromatic modified C5/C6, aromatic modified cyclic resins, aromatic modified dicyclopentadiene based resins or mixtures thereof. Additional preferred resins include those described in WO 91/07472, US 5,571,867, US 5,171,793 and US 4,078,132. These resins may be obtained from the cationic polymerization of compositions containing one or more of the following monomers: C5 diolefins (such as 1-3 pentadiene, isoprene, and the like); C5 olefins (such as 2- methylbutenes, cyclopentene, and the like); C6 olefins (such as hexene), C9 vinyl aromatics (such as styrene, alpha methyl styrene, vinyltoluene, indene, methyl indene, and the like); cyclics (such as dicyclopentadiene, methyldicyclopentadiene, and the like); and/or terpenes (such as limonene, carene, thujone, and the like).

2. Resins obtained by the thermal polymerization of dicyclopentadiene, and/or the thermal polymerization of dimers or oligomers of cyclopentadiene and/or methylcyclopentadiene, and/or with vinyl aromatics (such

2004B132-JP

-48-

as styrene, alpha-methyl styrene, vinyl toluene, indene, methyl indene, and the like).

[00165] The resins obtained after polymerization and separation of unreacted materials, can be hydrogenated if desired. Examples of preferred resins for use as additives herein include those described in US 4,078,132; WO 91/07472; US 4,994,516; EP 0 046 344 A; EP 0 082 726 A; and US 5,171,793.

Crosslinking Agents

[00166] In another embodiment the additive may further comprises a crosslinking agent. Preferred crosslinking agents include those having functional groups that can react with the functional group present on the a-srPP-g-FG, for example, the anhydride group present on the amorphous syndiotactic rich polypropylene grafted with maleic anhydride (e.g., a-srPPr-g-MA). Preferred crosslinking agents include alcohols, multiols, amines, diamines and/or triamines. Particular examples of crosslinking agents useful in this invention include polyamines such as ethylenediamine, diethylenetriamine, hexamethylenediamine, diethylamino propylamine, and/or menthanediamine.

Antioxidants

[00167] In another embodiment, the additive may comprise one or more phenolic antioxidants. Preferred examples of phenolic antioxidants include substituted phenols such as 2,6-di-t-butylphenol in which a hydrogen atom at 2 and/or 6 position is substituted by an alkyl residue. Typical examples of the phenolic antioxidant include 2,6-di-t-butyl-p-cresol, 2,4,6-tri-t-butylphenol, vitamin E, 2-t-butyl-6-(3'-t-butyl-5'-methyl-2'-hydroxybenzyl)-4-methylphenyl acrylate, 2,2'-methylene-bis(4-methyl-6-t-butylphenyl), 2,2'-methylene-bis(4-ethyl-6-t-butylphenol), 2,2'-methylene-bis(6-cyclohexyl-4-methylphenol), 1,6-hexanediol-bis([3-(3,5-di-t-butyl[4-hydroxyphenyl])]) propionate, and pentaerythritol-tetrakis-[3-(3,5-di-t-butyl-4-hydroxyphenyl)] propionate. Preferred antioxidants include phenolic antioxidants, such as Irganox 1010, Irganox, 1076 both available from Ciba-Geigy.

2004B132-JP

-49-

Neutralizing Agents/Nucleating Agents

[00168] The additive of the present invention may also include a neutralizing agent such as calcium stearate, magnesium hydroxide, aluminum hydroxide or hydrotalcite, and/or a nucleating agent such as a salt of benzoic acid, sodium-2,2'-methylene-bis(4,6-di-t-butylphenyl) phosphate and benzyl sorbitol, and the like.

Fillers

[00169] In another embodiment, the additive may comprise fillers. Suitable fillers include titanium dioxide, calcium carbonate, barium sulfate, silica, silicon dioxide, carbon black, sand, glass beads, mineral aggregates, talc, clay, and the like.

[00170] Additional embodiments contemplated include a nanoclay, also referred to herein as a nanocomposite, comprising organo-clay, and the polyolefin of the present invention, preferably the polyolefin comprising stabilization functionality, preferably the stabilization functionality being covalent.

[00171] The organo-clay may comprise one or more of ammonium, primary alkylammonium, secondary alkylammonium, tertiary alkylammonium, quaternary alkylammonium, phosphonium derivatives of aliphatic, aromatic or arylaliphatic amines, phosphines or sulfides or sulfonium derivatives of aliphatic, aromatic or arylaliphatic amines, phosphines or sulfides.

[00172] The organo-clay may be selected from one or more of montmorillonite, sodium montmorillonite, calcium montmorillonite, magnesium montmorillonite, nontronite, beidellite, volkonskoite, laponite, hectorite, saponite, saucomite, magadite, kenyaita, sobockite, svindordite, stevensite, vermiculite, halloysite, aluminate oxides, hydrotalcite, illite, rectorite, tarosovite, ledikite and/or florine mica.

[00173] The organo-clay is preferably present in the nanocomposite at from 0.1 to 50 wt%, based on the total weight of the nanocomposite. The stabilization functionality may be selected from one or more of phenols, ketones, hindered amines, substituted phenols, substituted ketones, substituted hindered amines, and combinations thereof.

[00174] The nanocomposite may further comprise at least one elastomeric ethylene-propylene copolymer. The at least one elastomeric ethylene-propylene

2004B132-JP

-50-

copolymer may be present in the nanocomposite from 1 to 70 wt%, based on the total weight of the nanocomposite. The nanocomposite may further comprise at least one non-functionalized thermoplastic polyolefin.

[00175] Preferably, the stabilization functionality is present in the at least one stabilization functionalized thermoplastic, and the organo-clay is present in the nanocomposite, each in an effective amount such that the heat aged failure of a molded sample of the nanocomposite by 10% when compared to a reference nanocomposite made with a thermoplastic polyolefin containing functionality substantially free of covalently-bonded stabilization functionality. In an embodiment, the stabilization functionality may be present in the at least one stabilization functionalized thermoplastic polyolefin from 0.01 to 15 wt% based on the total weight of the at least one stabilization functionalized thermoplastic.

[00176] The non-functionalized thermoplastic polyolefin is preferably miscible with the at least one first stabilization functionalized thermoplastic polyolefin. In such an embodiment, the at least one non-functionalized thermoplastic polyolefin may also be present in the nanocomposite from 1 to 40 wt%, based on the total weight of the nanocomposite, and the organo-clay may be present in the nanocomposite from 0.5 to 40 wt%, based on the total weight of the nanocomposite. Preferably, both the at least one first stabilization functionalized thermoplastic polyolefin and the at least one non-functionalized thermoplastic polyolefin each comprise one of polypropylene or polyethylene.

[00177] In another embodiment, a nanocomposite suitable for use in the adhesive of the present invention may comprise:

- a) at least one first non-functionalized polypropylene present in the nanocomposite from 10 to 98 wt%, based on the total weight of the nanocomposite;
- b) at least one second polypropylene comprising stabilization functionality, the stabilization functionality selected from one or more of phenols, ketones, hindered amines, substituted phenols, substituted ketones, substituted hindered amines, or combinations thereof, and the stabilization functionality present in the stabilization functionalized polypropylene from 0.05 to 15 wt%,

2004B132-JP

-51-

based on the total weight of the polypropylene comprising stabilization functionality,

the at least one second polypropylene comprising stabilization functionality present in the nanocomposite from 10 to 90 wt. %, based on the total weight of the nanocomposite;

c) an organo-clay wherein the organo-clay comprises one or more of hexyl ammonium ion, octyl ammonium ion, 2-ethylhexyl ammonium ion, dodecyl ammonium ion, octadecyl ammonium ion, dioctyl dimethyl ammonium ion, trioctyl ammonium ion, distearyl ammonium ion, ammonium salt, pyridinium salt, sulfonium salt, phosphonium salt, or combinations thereof, wherein the organo-clay further comprising a clay selected from one or more of montmorillonite, sodium montmorillonite, calcium montmorillonite, magnesium montmorillonite, nontronite, beidellite, volkonskoite, laponite, hectorite, saponite, sauconite, magadite, kanyaite, sobockite, svindordite, stevensite, vermiculite, halloysite, aluminate oxides, hydrotalcite, illite, rectorite, tarosovite, ledikite or florine mica, and wherein the organo-clay is present in the nanocomposite from 1 to 30 weight %, based on the total weight of the nanocomposite; and

d) optionally further comprising one or more of an ethylene-propylene elastomeric copolymer or an isobutylene rubber present in the nanocomposite at 2 to 70 wt%, based on the total weight of the nanocomposite.

Adhesion Promoters

[00178] In another embodiment the additive may comprise one or more adhesion promoters including polar acids, polyaminoamides (such as Versamid 115, 125, 140, available from Henkel), urethanes (such as isocyanate/hydroxy terminated polyester systems, e.g. bonding agent TN/Mondur Cb-75 from Miles, Inc.), coupling agents, (such as silane esters (Z-6020 from Dow Corning)), titanate esters (such as Kr-44 available from Kenrich), reactive acrylate monomers (such as sarbox SB-600 from Sartomer), metal acid salts (such as Saret 633 from Sartomer), polyphenylene oxide, oxidized polyolefins, acid modified polyolefins, and anhydride modified polyolefins.

2004B132-JP

-52-

Oils

[00179] Preferred oils include aliphatic napthenic oils, white oils, and the like. Particularly preferred oils include paraffinic or napthenic oils such as Primol 352, or Primol 876 available from ExxonMobil Chemical France, S.A. in Paris, France.

Plasticizers

[00180] Preferred plasticizers include mineral oils, polybutenes, phthalates and the like. Preferred plasticizers include phthalates such as di-iso-undecyl phthalate (DIUP), di-iso-nonylphthalate (DINP), dioctylphthalates (DOP) combinations thereof, and/or derivatives thereof, and/or the like.

[00181] Particularly preferred plasticizers include polybutenes, such as Parapol 950 and Parapol 1300 formerly available from ExxonMobil Chemical Company in Houston Texas.

[00182] Preferred plasticizers also include polyalphaolefins (PAO's), high purity hydrocarbon fluid compositions (HPFC's) and Group III basestocks such as those described in WO 2004/014998 at page 16, line 14 to page 24, line 1. Particularly preferred PAO's include oligomers of decene and co-oligomers of decene and dodecene. Preferred PAO's are available under the trade name Supersyn from ExxonMobil Chemical Company in Houston Texas. In a preferred embodiment, the PAO, HPFC or Group III base stock is present at from 0.5 to 60 weight %, based upon the weight of the polymer and the PAO, HPFC or Group III base stock.

Waxes

[00183] Preferred waxes include polar or non-polar waxes, polypropylene waxes, polyethylene waxes, and wax modifiers. Particularly preferred waxes may be selected from the group consisting of: polar waxes, non-polar waxes, Fischer-Tropsch waxes, oxidized Fischer-Tropsch waxes, hydroxystearamide waxes, functionalized waxes, polypropylene waxes, polyethylene waxes, wax modifiers, amorphous waxes, carnauba waxes, castor oil waxes, microcrystalline waxes, beeswax, carnauba wax, castor wax, spermaceti wax, vegetable wax, candelilla wax, japan wax, ouricury wax, douglas-fir bark wax, rice-bran wax, jojoba wax, bayberry wax, montan wax, peat wax, ozokerite wax, ear wax, ceresin wax,

2004B132-JP

-53-

petroleum wax, paraffin wax, polyethylene wax, chemically modified hydrocarbon wax, substituted amide wax, and combinations and derivatives thereof. In some embodiments, the polar and non-polar waxes may be used together in the same composition.

Low Molecular Weight Polymers

[00184] Other additives include low molecular weight polymers (i.e., low Mn polymer, where low means below Mn of 5000, preferably below 4000, more preferably below 3000, even more preferably below 2500). Preferred low Mn polymers include polymers of lower alpha olefins such as propylene, butene, pentene, hexene and the like (e.g., a poly alpha olefin comprising propylene, butene, pentene, and/or hexene, having a number average molecular weight below 5000 g/mole). A particularly preferred polymer includes polybutene having an Mn of less than 1000. An example of such a polymer is available under the trade name PARAPOL™ 950 from ExxonMobil Chemical Company. PARAPOL™ 950 is a liquid polybutene polymer having an Mn of about 950 and a kinematic viscosity of 220 centi-Stokes (cSt) at 100 °C, as measured by ASTM D 445.

Ester Polymers

[00185] In another embodiment the additive may comprise one or more ester polymers (polyesters). In a preferred embodiment the additive comprises a blend of two (or more) phase system, where the polyester is a discontinuous phase and the phase comprising the a-srPP-g-FG is the continuous phase.

Other Additives

[00186] Other preferred additives include block, antiblock, pigments, dyes, dyestuffs, processing aids, UV stabilizers, lubricants such as polydimethylsiloxane and calcium sterate, adjuvants, surfactants, color masterbatches, flow improvers, crystallization aids, plasticizers, oils, stabilizers, antioxidants, polymeric additives, defoamers, preservatives, thickeners, rheology modifiers, humectants, fillers, water, and the like.

2004B132-JP

-54-

[00187] Polymeric additives may include homo poly-alpha-olefins, copolymers of alpha-olefins, copolymers and terpolymers of diolefins, elastomers, polycesters, block copolymers, ester polymers, acrylate polymers, alkyl acrylate polymers and vinyl acetate polymers.

Adhesive Composition

[00188] The adhesive composition (e.g., the polymer blend) of the present invention may comprise one or more amorphous syndiotactic rich polyolefins, and/or one or more functionalized syndiotactic rich polyolefins as defined above. In a preferred embodiment, the adhesive of the present invention comprises an amorphous syndiotactic rich polyolefin, an amorphous syndiotactic rich polyolefin that has been functionalized with a functional group, or a combination thereof, wherein the amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises: greater than about 50 wt% C3-C40 alpha olefins; about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer; a heat of fusion of 10 joules/g or less according to the procedure described in ASTM E 794-85; and an ash content of 1 wt% or less, and wherein the functional group, when present, comprises a compound having a weight average molecular weight of 1000 or less, and a carbon-carbon double bond, a carbon-carbon triple bond, and/or a heteroatom; the adhesive having a peel strength to a non-polar substrate of greater than about 3.5 lb/in, and a peel strength to a polar substrate of greater than about 0.5 lb/in, wherein peel strength is measured according to a modified ASTM D-1876, as described herein.

[00189] In addition, the adhesive composition of the present invention may include one or more additives as defined above, which have been combined in a weight to weight ratio of polyolefin to additive of about 1:1000 to 1000:1. Preferably the weight to weight ratio may be about 1:100, about 1:50, about 1:20, about 1:10, about 1:5, about 1:4, about 1:3, about 1:2, or about 1:1. Alternately, the weight to weight ratio may be about 100:1, about 50:1, about 20:1, about 10:1, about 5:1, about 4:1, about 3:1, or about 2:1.

[00190] The adhesive composition (e.g., the polymer blend) of the present invention may comprise one or more amorphous syndiotactic rich polyolefins,

2004B132-JP

-55-

and/or one or more functionalized syndiotactic rich polyolefins. In addition, the adhesive composition of the present invention may include one or more additives as defined above, which have been combined such that the polymer blend comprises 10 to 90 wt% additive, based upon the weight of the polymer blend. Preferably, the polymer blend comprises from 20 to 80 wt% additive, more preferably from 30 to 80 wt% additive, more preferably from 40 to 80 wt% additive, still more preferably from 50 to 80 wt% additive, more preferably from 60 to 80 wt% additive, still more preferably from 70 to 80 wt% additive, based upon the weight of the polymer blend.

[00191] In the process utilized for producing the adhesive composition of the present invention, no particular restriction need be put on a mixing manner. Accordingly, the raw materials may be mixed uniformly by means of a Henschel mixer or the like and then may be melted, mixed and molded into pellets by an extruder or the like. It is also possible to utilize a Brabender mixer by which mixing and melting are carried out simultaneously, and after the melting, the material can be directly molded into films, sheets, or the like. Thus, the blends described herein may be formed using conventional techniques known in the art such that blending may be accomplished using one or more static mixers, in-line mixers, elbows, orifices, baffles, or any combination thereof.

[00192] In a preferred embodiment, the adhesive composition comprises a blend which includes amorphous syndiotactic rich polyolefin present at about 1 to about 99 wt%, based upon the total weight of the blend, more preferably the amorphous syndiotactic rich polyolefin is present at greater than about 5 wt%, preferably greater than about 10 wt%, preferably greater than about 20 wt%, preferably greater than about 30wt%, preferably greater than about 40wt%, preferably greater than about 50 wt%, preferably greater than about 60 wt%, preferably greater than about 70 wt%, preferably greater than about 80 wt%, preferably greater than about 90 wt%, based on the total weight of the adhesive composition.

[00193] In a preferred embodiment, the adhesive composition comprises a blend which includes functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin present at about 1 to about 99 wt%, based upon the total weight of the blend, more preferably the amorphous syndiotactic rich polyolefin is present at greater than

2004B132-JP

-56-

about 5 wt%, preferably greater than about 10 wt%, preferably greater than about 20 wt%, preferably greater than about 30wt%, preferably greater than about 40wt%, preferably greater than about 50 wt%, preferably greater than about 60 wt%, preferably greater than about 70 wt%, preferably greater than about 80 wt%, preferably greater than about 90 wt%, based on the total weight of the adhesive composition.

[00194] In a preferred embodiment, the adhesive composition comprises a blend which includes amorphous syndiotactic rich polypropylene at about 1 to about 99 wt%, based upon the total weight of the blend, more preferably the amorphous syndiotactic rich polyolefin is present at greater than about 5 wt%, preferably greater than about 10 wt%, preferably greater than about 20 wt%, preferably greater than about 30wt%, preferably greater than about 40wt%, preferably greater than about 50 wt%, preferably greater than about 60 wt%, preferably greater than about 70 wt%, preferably greater than about 80 wt%, preferably greater than about 90 wt%, based on the total weight of the adhesive composition.

[00195] In a preferred embodiment, the adhesive composition comprises a blend which includes amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride, which is present at about 1 to about 99 wt%, based upon the total weight of the blend, more preferably the amorphous syndiotactic rich polyolefin is present at greater than about 5 wt%, preferably greater than about 10 wt%, preferably greater than about 20 wt%, preferably greater than about 30wt%, preferably greater than about 40wt%, preferably greater than about 50 wt%, preferably greater than about 60 wt%, preferably greater than about 70 wt%, preferably greater than about 80 wt%, preferably greater than about 90 wt%, based on the total weight of the adhesive composition.

[00196] In an embodiment the adhesive composition comprises less than 3 wt% anti-oxidant, less than 3 wt% of a low viscosity flow improver, less than 10 wt% wax, and/or less than 3 wt% of a crystallization aid. In some embodiments, however, wax may not be desired and may be present at less than 5 wt%, preferably less than 3 wt%, more preferably less than 1 wt%, more preferably less than 0.5 wt%, based upon the weight of the adhesive composition.

2004B132-JP

-57-

[00197] In another embodiment the adhesive composition of this invention comprise amorphous syndiotactic rich polypropylene, and less than 50 wt% total of any combination of the additives described above, preferably less than 25 weight%, preferably less than 20 wt%, preferably less than 15 wt%, preferably less than 10 weight%, preferably less than 5 weight%, based upon the weight of the adhesive composition.

[00198] In another embodiment the adhesive composition of this invention comprise amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride, and less than 50 wt% total of any combination of the additives described above, preferably less than 25 weight%, preferably less than 20 wt%, preferably less than 15 wt%, preferably less than 10 weight%, preferably less than 5 weight%, based upon the weight of the adhesive composition.

Properties of the Adhesive Composition

[00199] The adhesive composition of the present invention preferably has a peel strength, to a non-polar substrate (e.g., isotactic polypropylene) of greater than about 3.5 lb/in as measured according to a modified ASTM D-1876. Preferably, the peel strength to a polar substrate (e.g., Mylar) is greater than about 0.5 lb/in, with greater than about 1.0 lb/in being more preferred.

[00200] As demonstrated by fiber tear examples herein, the adhesive composition of the present invention provides excellent adhesion properties to cellulose and other similar materials. The adhesive composition of the present invention preferably has a set time of less than about 10 minutes, with less than about 1 minute being more preferred, with less than about 30 seconds being still more preferred. Set time is defined for use herein as the time it takes for a compressed adhesive substrate construct to fasten together with enough adhesion so as to give substrate fiber tear when pulled apart, and thus the bond is sufficiently strong to remove the compression. The bond will likely still strengthen upon further cooling, however, it no longer requires compression. These set times were measured by placing a molten dot of adhesive on to a file folder substrate taped to a flat table. A file folder tab (1 inch by 3 inch (2.5 cm x 7.6 cm)) was placed upon the dot 3 seconds later and compressed with a 500 gram weight. The weight was

2004B132-JP

-58-

allowed to sit for about 0.5 to about 10 seconds. The construct thus formed was pulled apart to check for a bonding level sufficient to produce substrate fiber tear. The set time was recorded as the minimum time required for this bonding to occur. Standards of commercially available adhesives were used to calibrate this process. [00201] The adhesive composition of the present invention preferably has a percent substrate fiber tear of from 75% to 100% at 25 °C. Adhesive test specimens were created by bonding the substrates together with a portion (e.g., a dot) of molten adhesive and compressing the bond with a 500-gram weight until cooled to room temperature (i.e., about 25°C). The dot size was controlled by the adhesive volume such that in most cases the compressed disk which formed gave a uniform circle just inside the dimensions of the substrates. Once a construct has been produced, it was subjected to various insults in order to assess the effectiveness of the bond. For low temperature fiber tear test, the bond specimens were placed in a freezer or refrigerator to obtain the desired test temperature. For substrate fiber tear at room temperature, the specimens were aged at ambient conditions. The bonds were separated by hand and a determination made as to the type of failure observed. The amount of substrate fiber tear is expressed herein as a percentage.

Use of the Adhesive Composition

[00202] For any of the above described adhesive compositions, the final properties and the suitability for a particular applications depends on the type of tacticity, (stereoregularity), the melting point, the average molecular weight, the molecular weight distribution, the type and level of monomer and comonomer, the sequence distribution, the presence or absence of any additional functionality, and the type and quantity of adhesion additives utilized therein.

[00203] The adhesive composition of this invention can be used in any adhesive application, including but not limited to, disposables, packaging, laminates, pressure sensitive adhesives, tapes, labels, wood binding, paper binding, non-wovens, road marking, reflective coatings, and the like.

Disposables

2004B132-JP

-59-

[00204] In a preferred embodiment the adhesive composition of this invention can be used for disposable diaper and napkin chassis construction, elastic attachment in disposable goods converting, packaging, labeling, bookbinding, woodworking, and other assembly applications. Particularly preferred applications include: baby diaper leg elastic, diaper frontal tape, diaper standing leg cuff, diaper chassis construction, diaper core stabilization, diaper liquid transfer layer, diaper outer cover lamination, diaper elastic cuff lamination, feminine napkin core stabilization, feminine napkin adhesive strip, industrial filtration bonding, industrial filter material lamination, filter mask lamination, surgical gown lamination, surgical drape lamination, and perishable products packaging.

[00205] In an embodiment, the adhesive composition of the present invention may be applied to at least a portion of one or more disposable elements including nonwoven fabrics, non-woven webs, non-elastic nonwoven fabrics, elastic nonwoven fabrics, necked-bonded laminates, stretch-bonded laminates, spunbond-meltblown-spunbond laminates, polypropylene spunbonded layers, polyethylene layers, combination polyethylene and polypropylene spunbonded layers, elastic strands, styrene-isoprene-styrene, styrene-butadiene-styrene, styrene-ethylene-propylene-styrene, styrene-co-butadiene-styrene, polyurethane, woven fabrics, polypropylene, polyester, body fluid impermeable backsheets, body fluid impermeable layers, body fluid permeable layers, body fluid permeable covers, absorbents, tissues, elastomeric materials, superabsorbent polymers, polyolefin films, polyester films, polyvinylchloride films, polyvinylidene chloride films, polyvinyl acetate films, elastic attachment tape, frontal tape backing, wood, paper, barrier films, film laminates, nonwoven composites, textile materials, woven materials, durable fabrics, absorbents, elastomeric strands, elastomeric webs, tissues, films, coverstock materials, nonwoven polyethylene, perforated polyethylene, superabsorbent polymers, filaments, porous webs, fibers, loop fastener material, spunbonded nonwoven articles, liners, elastic side panels, fastening tape, elastic bands, rayon, nylon, cellulosic pulp, cellulosic fluff, and superabsorbent batts.

[00206] Further, a disposable article consistent with the present invention may comprise the inventive adhesive composition disclosed herein, wherein the

2004B132-JP

-60-

adhesive is applied to at least a portion of one or more disposable elements including diapers, training pants, sanitary napkins, panty liners, incontinent wear, bed pads, surgical gowns, surgical drapes, rodent traps, hook and loop fasteners, garments, medical garments, and swimwear. Likewise, a disposable article may include a first element of the disposable article adhered to a second element of the disposable article by the adhesive composition of the present invention.

[00207] In an embodiment, the adhesive composition of the present invention may include one or more solvents selected from the group consisting of hexane, heptane, mineral spirits, xylene, toluene, benzene, chlorinated hydrocarbons, and combinations or derivatives thereof.

[00208] In an embodiment, a disposable article comprising the adhesive composition of the present invention may further comprise one or more antioxidants including tris(di-t-butyl-p-hydroxybenzyl)-trimethylbenzene, alkylated bisphenol, zinc dibutyl dithiocarbamate, 4,4'-methylene bis(2,6-di-tert-butylphenol), tetrakis[methylene(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate)methane], lauryl stearyl thiodipropionate, dilauryl 3,3'-thiodipropionate, 2,6-di-tert-butyl-p-cresol, and combinations or derivatives thereof.

[00209] A disposable article comprising the adhesive composition of the present invention may further comprises one or more stabilizers including hindered phenols, sulfur phenols, phosphorous-containing phenols, 1,3,5-trimethyl-2,4,6-tris(3-5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl) benzene, pentaerythritol tetrakis[3(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl) propionate, n-octadecyl-3(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl) propionate, 4,4'-methylenebis(4-methyl-6-tert-butylphenol), 4,4'-thiobis(6-tert-butyl-o-cresol), 2,6-di-tert-butylphenol, 6-(4-hydroxyphenoxy)-2,4-bis(n-octylthio)-1,3,5-triazine, 2,4,6-tris(4-hydroxy-3,5-di-tert-butyl-phenoxy)-1,3,5-triazine, di-n-octadecyl-3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzylphosphonate, 2-(n-octylthio)ethyl-3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzoate, sorbitol hexa-(3,3,5-di-tert-butyl-4-hydroxy-phenyl) propionate, and combinations or derivatives thereof. In a preferred embodiment, a disposable article comprising the adhesive composition of the present invention is a consumer good.

2004B132-JP

-61-

Laminates

[00210] In an embodiment, a laminate article comprising two or more layers may be in combination with the adhesive composition of the present invention. A laminate article may comprise two or more layers in combination with the adhesive composition of the present invention, wherein the adhesive composition is present between the layers. In an embodiment, a laminate article comprising two or more layers in combination with the adhesive composition of the present invention may comprise one or more materials including wood, plastic, paper, rubber, thermoplastic, cardboard, metal, metal foil, metallized surfaces, cloth, non-wovens, spunbonded fibers, stone, plaster, glass, rock, ceramics, films, and foams.

[00211] Further, a laminate article comprising two or more layers in combination with the adhesive composition of the present invention, may include a laminate wherein each of the layers are individually selected from wood, plastic, paper, rubber, thermoplastic, cardboard, metal, metal foil, metallized surfaces, cloth, non-wovens, spunbonded fibers, stone, plaster, glass, rock, ceramics, films, and foams.

[00212] A laminate article comprising two or more layers in combination with the adhesive composition of the present invention wherein the two or more layers comprise a first layer and a second layer, the second layer may be formed from a material that is different than a material of the first layer.

[00213] In an embodiment, a laminate article comprising two or more layers in combination with the adhesive composition of the present invention may further comprise a releasing paper or releasing agent present on a surface layer. A laminate article comprising two or more layers in combination with the adhesive composition of the present invention may also include a laminate structure produced by any one of spraying, extrusion molding, fusion bonding, injecting the polymer, and hot-melt adhesion techniques.

[00214] In an embodiment, a laminate article comprising two or more layers in combination with the adhesive composition of the present invention may further comprise at least one of layer comprising a combination of the adhesive composition of the present invention, and one or more materials such as wood,

2004B132-JP

-62-

plastic, paper, rubber, thermoplastic, cardboard, metal, metal foil, metallized surfaces, cloth, non-wovens, spunbonded fibers, stone, plaster, glass, rock, ceramics, films, and foams.

[00215] In a preferred embodiment, a laminate article may comprise two or more layers in combination with the adhesive composition of the present invention, wherein the adhesive composition has an open time of 60 seconds or less, wherein open time is determined according to ASTM D 4497. In a preferred embodiment the adhesive composition of the present invention, when used in a laminate article comprising two or more layers in may have a set time of 3 seconds or more, when determined by one of skill in the art.

[00216] In a preferred embodiment, a laminate article comprising two or more layers in combination with the adhesive composition of the present invention, may include the adhesive having a percent substrate fiber tear of from 75% to 100% at 22 °C, when determined according to the methods described herein. In a preferred embodiment, a laminate article comprising two or more layers in combination with the adhesive composition of the present invention is a consumer good.

[00217] The adhesive compositions described above may also be applied as a laminate to any substrate, including polar substrates (e.g., cardboard, Mylar (polyester)), non-polar substrates (e.g. iPP), or both (e.g., between) polar substrates and non-polar substrates. Preferred substrates include wood, paper, cardboard, plastic, thermoplastic, rubber, metal, metal foil (such as aluminum foil and tin foil), metallized surfaces, cloth, non-wovens (particularly polypropylene spun bonded fibers or non-wovens), spunbonded fibers, cardboard, stone, plaster, glass (including silicon oxide (SiO_x) coatings applied by evaporating silicon oxide onto a film surface), foam, rock, ceramics, films, polymer foams (such as polyurethane foam), substrates coated with inks, dyes, pigments, PVDC and the like or combinations thereof. Additional preferred substrates include polyethylene, polypropylene, polyacrylates, acrylics, polyethylene terephthalate, or any of the polymers listed above as suitable for blends.

[00218] Any of the above substrates, and/or the adhesive composition of this invention, may be corona discharge treated, flame treated, electron beam

2004B132-JP

-63-

irradiated, gamma irradiated, microwaved, or silanized before or after the substrate and the adhesive composition are combined.

[00219] The adhesive composition of the present invention or formulations thereof may be applied directly to a substrate and/or may be sprayed or otherwise disposed thereon. The composition may be molten, or heated to a semisolid state prior to, or during application. Spraying is defined to include atomizing, such as producing an even dot pattern, spiral spraying such as Nordson Controlled Fiberization or oscillating a stretched filament may be done in the ITW Dynafiber/Omega heads or Summit technology from Nordson. The adhesive composition of may also be melt blown. Melt blown techniques are defined to include the methods described in U.S. patent 5,145,689 or any process where air streams are used to break up filaments of the extrudate and then used to deposit the broken filaments on a substrate. In general, melt blown techniques are processes that use air to spin hot melt adhesive fibers and convey them onto a substrate for bonding. Fibers sizes can easily be controlled from 20-200 microns by changing the melt to air ratio. Few, preferably no, stray fibers are generated due to the inherent stability of adhesive melt blown applicators. Under UV light the bonding appears as a regular, smooth, stretched dot pattern. Atomization may also be defined as a process that uses air to atomize hot melt adhesive into very small dots and convey them onto a substrate for bonding.

Non wovens / Fibers

[00220] In a particular embodiment, the adhesives of this invention can be used in fiber products. Fiber products consist of fibrous materials having an adhesive composition applied thereto. The fibrous material can include a single-component fiber, a multi-component fiber, or a combination thereof. Several types of fibrous materials can be used to form fiber products and are generally distinguished based on fiber organization within the fiber product. For example, one type of fibrous material is an isotropic assembly in which individual fibers are arranged in a completely random fashion with no preferred orientation in any of the three principal spatial axes. Another example of fibrous materials is textile yarns, having a high degree of fiber orientation with respect to the principal axis of the

2004B132-JP

-64-

material. Textile yarns are produced from staple (finite length) fibers by a combination of processing steps referred to collectively as yarn spinning. After preliminary fiber alignment, the fibers are locked together by twisting the structure to form the spun yarn, which is continuous in length and substantially uniform. Yarns are typically used in the formation of textile fabrics, either by weaving or knitting.

[00221] The fibrous materials can include cotton, kapok, coir, flax, hemp, ramie, jute, sisal, abaca, cellulose, wool, mohair, cashmere, human hair, common goat hair, camel hair, llama hair, alpaca hair, vicun wool, silk, nylon, aramid, Kevlar, nomax, polyamides, polyacrylates, polyolefin polymers, such as propylene, butene-1, polyethylene, polypropylene, and ethylene-vinyl acetate, polyester, such as polyethylene terephthalate, polybutylene terephthalate, polycethylene terephthalate, and poly-ethylencoxybenzonate, asbestos, polyamides, polycarbonate, polystyrene, thermoplastic elastomers, fluoropolymers, vinyl polymers, minerals, acrylics, polyvinylchloride, organic binders, glass, metal, alumina, silicon carbide, boron nitride, boron carbide, and combinations thereof.

[00222] Exemplary fiber products include nonwovens, carpet, carpet backing, diapers, swimwear, child training pants, adult incontinence garments, feminine care products, medical garments, bed pads, surgical drapes, cloth linings, scrubbing pads, automotive interior parts, garments, tapes, face masks and respirators, air filters, vacuum bags, oil and chemical spill sorbents, thermal insulation, first aid dressings, medical wraps, fiberfill, outerwear, bed quilt stuffing, furniture padding, filter media, scrubbing pads, wipe materials, and combinations thereof.

[00223] In a preferred embodiment, a carpet comprises the adhesive composition of the present invention. In another preferred embodiment, a tape comprises the adhesive composition of the present invention.

[00224] As used herein, "nonwoven" refers to a textile material that has been produced by means other than weaving. In nonwoven fabrics, the fibers are processed directly into a planar sheetlike fabric structure by passing the intermediate one-dimensional yarn state, and then are either bonded chemically or interlocked mechanically (or both) to achieve a cohesive fabric. The nonwoven

2004B132-JP

-65-

article may include natural or synthetic fibers or mixtures thereof. Materials commonly used in forming nonwoven articles include rayon, polyester, polypropylene, polyethylene, nylon, and others. The individual fibers are usually staple fibers or continuous filaments. Exemplary fibers may include polypropylene fibers, rayon fibers, polyester fibers, polyethylene fibers, nylon fibers, cellulose fibers, viscose fibers, ethylene-propylene copolymer fibers, polyolefin fibers, polyamide fibers, polycarbonate fibers, polystyrene fibers, thermoplastic elastomer fibers, fluoropolymer fibers, vinyl polymer fibers, carbon fibers, glass fibers, mineral fibers, wool fibers, acrylic fibers, polyvinylchloride fibers, polyurethane fibers, organic binder fibers, and combinations thereof.

[00225] In an embodiment a fiber product comprising one or more fibrous materials in combination with the adhesive composition of the present invention may comprise a primary backing material, wherein the fibrous materials are attached to the primary backing material and the adhesive is disposed on at least a portion of the fibrous materials. A fiber product may also comprise one or more fibrous materials in combination with the adhesive composition of the present invention, and include a primary backing material and a second backing material adhered to the adhesive.

[00226] A fiber product may also comprise one or more fibrous materials in combination with the adhesive composition of the present invention, wherein a primary backing material is woven jute, woven slit polypropylene film, burlap, needle punched materials, non-woven polypropylene, and combinations thereof.

[00227] In an embodiment, a fiber product comprising one or more fibrous materials in combination with the adhesive composition of the present invention may include a fibrous material having a cross-sectional shape that is circular, elliptic, T-shaped, Y-shaped, +-shaped, hollow, square, multilobal, ribbon, and/or polygonal.

[00228] Accordingly, a fiber product comprising one or more fibrous materials in combination with the adhesive composition of the present invention may include clothing, rugs, insulation, carpet, composite materials, printed circuitboard prepegs, wigs, or combinations thereof.

2004B132-JP

-66-

[00229] Furthermore, in an embodiment wherein a fiber product comprises one or more fibrous materials in combination with the adhesive composition of the present invention the adhesive composition may further include one or more additives such as surfactants, foaming agents, polymer compatibilizers, fire retardants and water.

[00230] In a preferred embodiment, a fiber product comprising one or more fibrous materials in combination with the adhesive composition of the present invention, may include anyone of the above described adhesive compositions having a percent substrate fiber tear from 75% to 100% at 22 °C. In a preferred embodiment, a fiber product comprising one or more fibrous materials in combination with the adhesive composition of the present invention is a consumer good.

Films

[00231] In a particular embodiment, the polymer components described herein can be used in a monolayer film. Alternatively, the polymer components can be applied to at least an outer portion of a monolayer film. Monolayer films are planar forms which are thick enough to be self-supporting but thin enough to be flexed, folded, or creased without cracking. The thickness of the film depends on the application and manufacturing, but is generally 125 µm or less. The monolayer film, which may be unoriented, uniaxially oriented, or biaxially oriented, is formed from applying a polymer component to at least a portion of a film substrate. Alternatively, the polymer component may be blended with a film substrate to alter the properties thereof.

[00232] The film substrate may include paper, foil, metal, metal alloys, polyethylene, polypropylene, polyester, polyethylene terephthalate, polyvinyl chloride, polyvinylidene chloride, polyvinyl acetate, polyamides, homo polymers thereof, and combinations and copolymers thereof.

[00233] The monolayer film may further include additional polymer components selected from polyethylene, polypropylene, polyester, polyethylene terephthalate, polyvinyl chloride, polyvinylidene chloride, polyvinyl acetate, polyamides, homo polymers thereof, combinations and copolymers thereof.

2004B132-JP

-67-

[00234] In an embodiment, a film comprising the adhesive composition of the present invention preferably comprises a layer of polypropylene and/or a layer of oriented polypropylene, and/or a layer of biaxially oriented polypropylene.

Hot Melt Adhesives

[00235] In a particular embodiment, the adhesives of this invention can be used in a hot melt adhesive composition. Hot melt adhesives exist as a solid at ambient temperature and can be converted into a tacky liquid by the application of heat. Hot melt adhesives are typically applied to a substrate in molten form.

[00236] In an embodiment, a hot melt adhesive composition comprising the adhesive composition of the present invention may include an adhesive composition having a percent substrate fiber tear of from 75% to 100% at 25 °C, preferably a percent substrate fiber tear of from 95% to 100% at 25 °C. In a preferred embodiment, the hot melt adhesive composition comprising the adhesive composition of the present invention is a consumer good.

Pressure Sensitive Adhesives

[00237] In a particular embodiment, the adhesive compositions described herein can be used in pressure sensitive adhesive compositions. As used herein, "pressure sensitive adhesive compositions" are adhesive compositions that have the ability at, or at about, room temperature (about 25 °C) to sufficiently wet a substrate under gentle pressure and to form a useful bond. As used here, the term "useful bond" differs depending on the substrate application and refers to a corresponding balance of adhesive and cohesive strength. In an embodiment, a pressure sensitive adhesive comprising the adhesive composition of the present invention may have a set time of 30 minutes or less.

Tapes

[00238] In a particular embodiment, the adhesives of this invention can be used in tapes. Tapes are generally configured to adhere two or more substrates together. Tapes include an adhesive composition applied to a backing element. The backing element can be selected from the group including polymeric films, polyester films, polyolefin-based films, polyurethane films, polyvinylchloride

2004B132-JP

-68-

foams, polyethylene foams, nonwoven polyurethane, nonwoven polyester, fabric, face stock, paper, synthetic polymeric material, plastic, polyolefin polymers, such as polyethylene and polypropylene, polyester, polyethylene terephthalate, polyvinyl chloride, kraft paper, polymers, laminates, latex saturated papers, foil, litho stock, lightweight stock, styrene foam, expanded polystyrene foam, woven fabric, non-woven fabric, cloth, crepe paper, thermoplastic elastomers, and combinations thereof. A typical backing element has a variable thickness within a range of 1 micron to several centimeters. Particularly preferred backing elements include oriented polypropylene, biaxially oriented polypropylene and polyvinylchloride polymers. Films of oriented polypropylene, biaxially oriented polypropylene and polyvinylchloride polymers are particularly preferred backing elements.

[00239] The tapes can be either single or double-sided, i.e., the adhesive material is applied to either one or two opposing sides of the backing material. The tape may include an adhesive composition and a release material applied to opposite sides of a backing element. A double-sided tape may include a first adhesive composition and a second adhesive composition applied to opposite sides of a backing element. At least one of the first adhesive composition or the second adhesive composition include the adhesive composition described herein, e.g., either or both adhesive compositions include the inventive adhesive composition.

[00240] Tapes can be configured to adhere a variety of substrates to one another, such as a first substrate to a second substrate, or tapes can be configured to adhere to a single substrate. The first substrate can be the same material as the second substrate, or the substrates can be formed of different materials. Either or both substrates can include plastic, polyolefin polymers, stainless steel, paper, paperboard, containerboard, tagboard, corrugated board, chipboard, kraft paper, cardboard, fiberboard, plastic resin, metal, metal alloys, foil, skin, film, plastic film, laminates, clothing, containers, surgical instruments, medical devices, glass and sheeting.

[00241] Tapes can be supplied in the form of rolls, sheets, pads or other shapes determined by the specific use requirements, to protect the adhesive composition adhered to the backing element from unintended adhesion to surfaces other than the intended substrate. For example, the adhesive composition applied to the

2004B132-JP

-69-

backing material may be applied to a release material until use. Release materials are generally applied to the tape to retain the adhesive strength of the adhesive composition and are configured to allow release of the tape therefrom. Release materials are generally used when the tape is supplied as a sheet or a roll. The release material typically comprises a release coating, such as silicon. Tapes that are provided in a roll form can be used with a tape dispenser or be torn by hand. Tapes that are provided in pad form can include an adhesive composition between two release liners, at least one release liner being coated with a release coating composition.

[00242] The adhesive composition may be applied to at least a portion of at least one side of the backing material. Generally, the adhesive composition has the ability, at or at about room temperature, to sufficiently wet a substrate under gentle pressure to form a useful bond. As used herein, a "useful bond" refers to a balance of adhesive (adhesive to substrate failure) and cohesive (internal adhesive failure) strengths, which is optimized according to the application of the tape. For example, the adhesive composition in removable tapes can have relative a relatively low adhesive strength in comparison to cohesive strength, resulting in a tape that can be removed without leaving a residue (e.g., adhesive) on the substrate. In contrast, high performance tapes, e.g., tapes used for shipping and packaging, can exhibit both high adhesive and cohesive strength, resulting in failure of the substrate or backing element.

Packaging Adhesive

[00243] In an embodiment, a packaging adhesive may comprise the adhesive composition of the present invention. A package may also comprise the adhesive composition of the present invention, wherein the adhesive as disclosed herein is applied to at least a portion of one or more packaging elements including paper, paperboard, containerboard, tagboard, corrugated board, chipboard, kraft, cardboard, fiberboard, plastic resin, metal, metal alloys, foil, film, plastic film, laminates, and sheeting.

[00244] In an embodiment, the present invention may include a package comprising the adhesive composition as described herein, wherein the adhesive is

2004B132-JP

-70-

applied to at least a portion of one or more packaging elements including cartons, containers, crates, cases, corrugated cases, and trays.

[00245] A package may also comprise the adhesive composition of the present invention, wherein the adhesive is applied to at least a portion of one or more packaging elements used in packaging of cereal products, cracker products, beer packaging, frozen food products, paper bags, drinking cups, milk cartons, juice cartons, drinking cups, and containers for shipping produce.

Wood Working

[00246] In a particular embodiment, the adhesives described herein can be used in woodworking processes. A woodworking process involves forming a woodworking article by applying an adhesive composition to at least a portion of a structural element. The structural element can include a variety of materials, which include, but are not limited to wood or plywood, or plastic or veneer. For example, the structural element can also include lumber, wood, fiberboard, plasterboard, gypsum, wallboard, plywood, PVC, melamine, polyester, impregnated paper and sheetrock. A woodworking process can be used to form indoor furniture, outdoor furniture, trim, molding, doors, sashes, windows, millwork and cabinetry, for example. Accordingly, a preferred embodiment is a wooden consumer article comprising the adhesive composition of the present invention.

Labels

[00247] In a particular embodiment, the adhesive compositions described herein can be used in labels. In general, labels are intended to merely adhere themselves to a substrate. As such, labels are not intended to be structural components. As a result, labels may have high internal strength and low adhesive strength.

[00248] Labels comprise a layer of an adhesive composition coated on a backing element, which may have a releasable surface on the side opposite the adhesive composition. A release liner of a label is intended to adhere to the label until the label is applied to its intended substrate. Label backing elements are well known in the label art. Any suitable backing element can be utilized in the present

2004B132-JP

-71-

invention. Backing elements may include polymeric film, polyester film, polyolefin-based film, polyurethane film, polyvinylchloride foam, polyethylene foam, nonwoven polyurethane, nonwoven polyester, knitted fabric, paper, synthetic polymeric material, plastic, polyolefin, polyethylene, polypropylene, polyester, polyethylene terephthalate, polyvinyl chloride, kraft paper, polymers, laminate, latex saturated paper, foil, litho stock, lightweight stock, styrene foam, laminated foam, expanded polystyrene foam, woven fabric, non-woven fabric, cloth, creped paper, thermoplastic, and mixtures of polyethylene and polypropylene, for example.

[00249] Suitable substrates may include plastic, polyolefins, stainless steel, paper, paperboard, containerboard, tagboard, corrugated board, chipboard, kraft paper, cardboard, fiberboard, plastic resin, metal, metal alloys, foil, skin, film, plastic film, laminates, clothing, containers, surgical instruments, medical devices, glass, and sheeting, for example.

[00250] Labels may be in the form of rolls, sheets or other shapes determined by the specific use requirements, so that they are protected from unintended adhesion to other surfaces. As described above, labels may be laminated to a release liner to prevent their accidental adhesion to other surfaces. The release liner of the label is supplied with a release coating such as silicone to permit the easy removal of the release liner from the label. Release liners are sheets that are coated with release material for use in labels. The release liner is expected to reproducibly provide an appropriate level of release to the adhesive of interest, to not deleteriously affect the adhesive, and to be resistant to aging so that the release level remains relatively predictable with time.

[00251] A label may comprise a backing element, an adhesive composition, and a release liner. The adhesive composition may be applied to the backing element, while the release liner may be applied to the adhesive composition. Alternatively, the adhesive composition may be applied to the release liner, and then the backing element may be applied to the adhesive composition. The release liner may then be removed from the adhesive composition prior to application of the label to a substrate.

2004B132-JP

-72-

Bookbinding

[00252] In a particular embodiment, the adhesives of this invention can be used in bookbinding. For purposes of convenience, the word "bookbinding" will be used to describe the process by which books having a binder element, wherein an adhesive composition is applied to at least a portion of the binder element, are produced. However, the embodiments described herein are not limited to adhesive compositions suitable for binding only books. As used herein the term "books" is intended to include other articles containing pages bound with adhesive compositions such as paperback books, soft cover books, instruction manuals, magazines, catalogs, trade journals, directories, and the like.

[00253] In an embodiment, a bookbinding article comprising the adhesive composition of the present invention may include a binder element comprises paper or heavy stock paper. In an embodiment, the adhesive of the present invention may have a percent substrate fiber tear of from 75% to 100% at 22 °C. Preferably, a bookbinding article comprising the adhesive composition of the present invention is a consumer good.

Road Markings

[00254] In a particular embodiment, the adhesive compositions described herein can be used in a roadmarking composition. Roadmarking compositions generally include a binder composition and one or more fillers applied to one or more substrates. The one or more substrates can include asphalt, concrete, metal, brick, cobbles, ceramics, polymeric materials, cinder blocks, soft sports surfaces, playground surfaces, runways, tartan substitutes, concrete, metals, asphalt, bitumen, bricks, cobbles, tiles, steel plates, wood, ceramics, polymeric materials, glass, concrete blocks, porcelain, stone, wood panels, particle board, wooden vehicle parts, cinder blocks, scrims, and combinations thereof.

[00255] The roadmarking composition includes the one or more fillers to increase weatherability, visibility, covering power, abrasion resistance, adhesion, and/or reflectivity of the roadmarking composition. In addition, certain fillers may be added to improve the overall rheological properties of the thermoplastic road marking, prevent segregation of the roadmarking, provide friction for the binder

2004B132-JP

-73-

composition to the substrate to which it is being applied, and/or reduce the cost of the roadmarking composition. Fillers that may be used for this purpose include sand, pigments, glass beads, polymer-based beads, calcium carbonate, crushed marble, aggregate, dolomite, talc, glass pearls, prismatic reflectors, lens reflectors, calcite spar, silica sand, graphite, fly ash, cement dust, clay, feldspar, nepheline, fumed silica, alumina, magnesium oxide, zinc oxide, barium sulfate, aluminum silicate, calcium silicate, tianates, chalk, reflective inorganic fillers, extending fillers, beads, calcium sulfate, calcium metasilicate, quartz powder, calcined flint powder, mica, calcium silicate glass fibers, dyes, granite, plaster, slaked lime, alumina, diatomaceous earth, reflecting agents, modifiers, white lead, lithopone, chrome yellow, cadmium yellow, resin beads, polymeric gels, polymers, ceramic materials, crushed glass, stone, corundum, aluminum hydroxide, silicon oxide, glass bubbles, and zinc neodecanoate. Exemplary pigments include titanium dioxide, zinc oxide, magnesium oxide, lead chromate, and mixtures thereof. The type and content of the pigment is selected according to the specific purpose for the roadmarking, which is readily ascertainable by a person skilled in the art. In addition, one or more fillers may be added to the roadmarking composition to impart color, opacity, or hue to the roadmarking composition.

[00256] A key characteristic of roadmarking compositions is visibility under all environmental conditions. Therefore, the roadmarking composition can include one or more reflective fillers. The incorporation of one or more reflective fillers into the roadmarking composition maximizes the visibility of road markings in rain and darkness by reflecting light from a vehicle's lamps. One or more reflective fillers can be included in the roadmarking composition in an amount sufficient to provide enhanced visibility to the composition by reflecting light. Suitable reflective fillers include but are not limited to glass beads, polymeric beads, sand, silica compounds, ceramic materials, and/or any other reflective filler normally used for such purpose in roadmarking compositions. Beads are the preferred reflective filler, including but not limited to polymer-based beads or glass beads. Glass beads are most preferred. The beads should not adversely affect the cohesive strength of the cooled binder, so strong bonding must occur between the binder and the beads. The primary requirement is that the beads are

2004B132-JP

-74-

stable to heat applied during the preparation, mixing, and application of the road marking. Preferably, the beads should remain stable when subjected to a heat above at least 200 °C for a period of about 20 minutes.

[00257] Beads prepared from polymers should be able to withstand the pressure applied from normal traffic without breaking or crushing. Furthermore, the reflective filler should be evenly distributed throughout the binder to give uniformity of properties and to provide longevity to the reflective character of the roadmarking. An even distribution of the reflective filler causes exposure of new reflective fillers to the surface when traffic wear and weathering remove an upper layer of the roadmarking. Increasing the amount of reflective filler added to the roadmarking composition also helps maintain satisfactory reflective properties over time while increasing the reflectivity of the roadmarking. If the amount of reflective filler present in the roadmarking composition is small, the reflective ability is deteriorated when the reflective fillers interspersed in the composition are decreased due to abrasion by tires, whereas if the amount of reflective filler added is too large, the roadmarking composition is reduced in strength.

[00258] In a preferred embodiment, a roadmarking composition comprising a binder comprising the adhesive composition of the present invention and one or more fillers includes a binder further comprising a copolymer having a Mw of from 100,000 to 250,000.

[00259] In an embodiment, a roadmarking composition comprising a binder comprising the adhesive composition of the present invention may also include one or more waxes such as polar waxes, non-polar waxes, Fischer-Tropsch waxes, oxidized Fischer-Tropsch waxes, hydroxystearamide waxes, functionalized waxes, polypropylene waxes, polyethylene waxes, wax modifiers, maleic anhydride grafted, polyethylenes with pendant acid functionality moieties, paraffin waxes, microcrystalline waxes, and combinations thereof.

[00260] In an embodiment, a roadmarking composition comprising a binder comprising the adhesive composition of the present invention may also include one or more roadmarking additives such as plasticizers, oils, stabilizers, antioxidants, pigments, dyestuffs, polymeric additives, defoamers, preservatives, thickeners, rheology modifiers, humectants, extenders, hindered phenolics,

2004B132-JP

-75-

phosphates, antiblock additives, lubricants, photo stabilizers, ultraviolet absorbents, dispersants, thickeners, bases, wetting agents, fire retardants, crosslinking agents, curing agents, opacifiers, and water. Other such additives include oils such as aliphatic oils, naphthenic oils, white oils, soya oils, combinations thereof, and derivatives thereof.

[00261] Roadmarking compositions comprising a binder comprising the adhesive composition of the present invention may further include one or more plasticizers including mineral oils, polybutenes, phthalates, hydrocarbon oils, soybean oils, phthalate esters, elastomers, olefin oligomers, vegetable oils, cyclohexane dimethanol dibenzoate, and combinations thereof, and/or sand, pigments, glass beads, polymer-based beads, calcium carbonate, crushed marble, aggregate, dolomite, talc, glass pearls, prismatic reflectors, lens reflectors, calcite spar, silica sand, graphite, fly ash, cement dust, clay, feldspar, nepheline, fumed silica, alumina, magnesium oxide, zinc oxide, barium sulfate, aluminum silicate, calcium silicate, tianates, chalk, reflective inorganic fillers, extending fillers, beads, calcium sulfate, calcium metasilicate, quartz powder, calcined flint powder, mica, calcium silicate glass fibers, dyes, granite, plaster, slaked lime, alumina, diatomaceous earth, reflecting agents, modifiers, white lead, lithopone, chrome yellow, cadmium yellow, resin beads, polymeric gels, polymers, ceramic materials, crushed glass, stone, corundum, aluminum hydroxide, silicon oxide, glass bubbles, and zinc neodecanoate.

[00262] In a preferred embodiment, a roadmarking composition comprising a binder comprising the adhesive composition of the present invention, and one or more fillers, comprises a binder that includes one or more modifiers including succinic anhydride modified polymers and metal oxides.

[00263] When used in the roadmarking compositions, fillers are effective in increasing the strength of the roadmarking and in retaining the thickness of the roadmarking; however, the use of the fillers in unduly large amounts may result in the production of brittle road markings. As a result, the roadmarking composition includes from 20 to 90 percent by weight of the one or more fillers. In one aspect, the one or more fillers include 50 percent by weight or less, or from 10 to 40 percent by weight, or from 15 to 30 percent of the one or more beads. In yet

2004B132-JP

-76-

another aspect, the one or more fillers include 20 percent by weight or less, or from 2 to 15 percent by weight or from 3 to 10 percent by weight of the one or more pigments.

[00264] In one aspect, the roadmarking composition includes from 10 to 80 percent by weight of the binder, wherein the binder composition includes the inventive polymer described herein.

[00265] Preferably, a roadmarking composition comprising a binder comprising the adhesive composition of the present invention comprises a binder having 30 percent or less by weight of one or more waxes, and/or 80 percent by weight or less of one or more tackifiers, and/or 20 percent by weight or less of one or more plasticizers, and/or 5 percent by weight or less of one or more acid-modified tackifiers or polymers, and/or 5 percent by weight or less of one or more stabilizers, and/or 40 percent by weight or less of one or more polymeric additives, and/or 10 percent by weight or less of one or more opacifiers, and/or 1 percent by weight or less of one or more antioxidants. In a preferred embodiment, a roadmarking composition comprising a binder comprising the adhesive composition of the present invention has a luminance of 70 or more.

Sealants

[00266] In a particular embodiment, the adhesive compositions described herein can be used in a sealant composition. The purpose of a sealant is to maintain a seal between two surfaces of a single substrate, thus repairing the substrate, or in the alternative, to establish and maintain a seal between a pair of substrates. Thus a sealant composition comprising a mixture comprising the adhesive composition of the present invention includes wherein the mixture is applied to at least a portion of a substrate surface to be sealed.

[00267] The substrates can include concrete, roofing, marble, anodized aluminum, brick, mortar, granite, limestone, porcelain, glass, painted surfaces, wood, polyvinylchloride, polyacrylate, polycarbonate, polystyrene, fabrics, gaskets, plastic, stone, masonry materials, pipes, hoses, metal, wiring, skis, polyethylene, polypropylene, polyester, acrylic, PVDC, paper, ethylene vinyl acetate,

2004B132-JP

-77-

automobiles, buildings, aircraft, panels, decks, bones, pavement, tailgates, door panels, wheel houses, rocker panels, firewalls, floor hem flanges, trunks, and floor pans. For example, sealant compositions may be used for repairing leaky pipes or cracked windshields on automobiles. Sealants further produce load bearing elastic joints between two or more surfaces and to prevent the passage of air, water and dirt there through.

[00268] Sealant compositions are useful not only in filling gaps and thus bonding the surfaces of a substrate in a repair operation, but also may be used to bond a first substrate to another substrate. The automotive industry, in particular, is a major user of sealants for this purpose. Automobiles are assembled from several structural components that are joined together in various fashions depending on the particular components and the degree of stress that will have to be endured by the components. For example, sealants are utilized in the assemblies of door panels, quarter panels, tailgates and roofs. Still other automobile assemblies that are welded or bolted together use sealant compositions in their seams. The wheel house, shock lower, rocker panel, firewall, floor hem flange, floor plan, and trunk are further examples of automotive applications which employ sealants.

[00269] Regardless of the purpose of its use, a sealant composition is a gap-filling material. Consequently, at the time of seal formation, sealant compositions should have an elasticity that is sufficiently low such that the sealant composition is able to flow into and fill gaps in the substrate to which it is applied and, after the sealant has solidified and thus cured, still sufficiently fill the gaps so as to seal the substrate. In the uncured state, the sealant composition should remain tacky and possess a low enough viscosity to ensure adequate wetting of the substrate.

[00270] Sealant compositions are preferably essentially not tacky to the touch once they have solidified or cured. Upon cure, sealants should have sufficient durability to withstand normal weather and user exposure in several applications. Primarily, a sealant should provide an effective barrier against oxygen, water, and air. Cured sealants should possess crack resistance and shrink resistance to mechanical stresses such as expansion in the substrate at elevated temperatures, so that the sealant does not sag or flow over time. Particularly with glass substrates, high levels of stress can cause the glass to crack. While the sealant should be

2004B132-JP

-78-

sufficiently rigid to retain its general shape and dimension, it must also remain sufficiently flexible to exhibit substantial recovery upon stretching. Therefore, a balance of high adhesive strength along with high elongation percent and low tensile modulus is desirable for the mixture used as a sealant. High adhesive strength compositions generally provide effective seals, as the higher the adhesive strength, the greater the force that is required to remove the substrate from the mixture. Elongation percent of the mixture refers to the ability of the composition to return to about its original configuration after being subject to the designated extend of elongation. High percent elongation is desirable to provide sealants with a highly advantageous self-repairing property. That is, the sealants will deform to accommodate stress exerted on the sealed portion of the substrate.

[00271] In a preferred embodiment, the sealant mixture further comprises one or more waxes including polar waxes, non-polar waxes, Fischer-Tropsch waxes, oxidized Fischer-Tropsch waxes, hydroxystearamide waxes, functionalized waxes, polypropylene waxes, polyethylene waxes, wax modifiers, amorphous waxes, carnauba waxes, castor oil waxes, microcrystalline waxes, beeswax, carnauba wax, castor wax, spermaceti wax, vegetable wax, candelilla wax, japan wax, ouricury wax, douglas-fir bark wax, rice-bran wax, jojoba wax, bayberry wax, montan wax, peat wax, ozokerite wax, ceresin wax, petroleum wax, paraffin wax, polyethylene wax, chemically modified hydrocarbon wax, substituted amide wax, and combinations and derivatives thereof.

[00272] In an embodiment, a sealant composition comprising a mixture comprising the adhesive composition of the present invention may further comprise one or more additives including plasticizers, oils, stabilizers, antioxidants, pigments, antiblock additives, processing aids, neutralizing agents, water, dyestuffs, polymeric additives, defoamers, preservatives, thickeners, rheology modifiers, humectants, fillers, water, crosslinking agents, thixotropic agents, surfactants, adhesion promoters, reinforcing agents, chain extenders, ultraviolet stabilizers, colorants, organic solvents, stabilizers, dryers, wetting agents, nucleating agents, accelerators, curing agents, and combinations or derivatives thereof.

[00273] In an embodiment, a sealant composition comprising a mixture comprising the adhesive composition of the present invention may further comprise one or

2004B132-JP

-79-

more fillers including silica, diatomaceous earth, calcium carbonate, iron oxide, hydrogenated castor oil, fumed silica, precipitated calcium carbonate, hydrophobic treated fumed silicas, hydrophobic precipitated calcium carbonates, talc, zinc oxides, polyvinyl chloride powders, fungicides, graphite, carbon black, asphalt, carbon fillers, clay, mica, fibers, titanium dioxide, cadmium sulfide, asbestos, wood flour, polyethylene powder, chopped fibers, bubbles, beads, thixotropes, bentonite, calcium sulfate, calcium oxide, magnesium oxide, and combinations or derivates thereof.

[00274] In an embodiment, a sealant composition comprising a mixture comprising the adhesive composition of the present invention may further comprise one or more adhesion promoters including silanes, titanates, organosilane, acrylics, acids, anhydrides, epoxy resins, hardening agents, polyamides, methylacrylates, epoxies, phenolic resins, polyisobutylene, aminoalkyl, mercaptoalkyl, epoxyalkyl, ureidoalkyl, carboxy, acrylate and isocyanurate functional silanes, mercaptopropyltrimethoxysilane, glycidoxpropyltrimethoxysilane, aminopropyltriethoxysilane, aminoethylaminopropyltrimethoxysilane, ureidopropyltrimethoxysilane, bis-.gamma.-trimethoxysilyl-propylurea, 1,3,5-tris-.gamma.-trimethoxysilylpropylisocyanurate, bis-.gamma.-trimethoxysilylpropylmaleate, fumarate and .gamma.-methacryloxypropyltrimethoxysilane, aminopropyltriethoxysilane, and combinations and derivatives thereof.

[00275] In an embodiment, a sealant composition comprising a mixture comprising the adhesive composition of the present invention may further comprise one or more crosslinking agents including oxime crosslinkers, alkoxy silanes, epoxyalkylalkoxysilanes, amido silanes, aminosilanes, enoxysilanes, tetraethoxysilanes, methyltrimethoxy silane, vinyl trimethoxysilane, glycidoxypropyltrimethoxysilane, vinyl tris-isopropenoxysilane, methyl tris-isopropenoxysilane, methyl tris-cyclohexylaminosilane, methyl tris-secondarybutylaminosilane, polysiocyanates, and combinations or derivatives thereof.

[00276] In an embodiment, a sealant composition comprising a mixture comprising the adhesive composition of the present invention may further comprises one or

2004B132-JP

-80-

more organic solvents including aliphatic solvents, cycloaliphatic solvents, mineral spirits, aromatic solvents, hexane, cyclohexane, benzene, toluene, xylene, and combinations or derivatives thereof.

[00277] In an embodiment, a sealant composition comprising a mixture comprising the adhesive composition of the present invention may further comprises one or more surfactants including vinyl-containing or mercapto-containing polyorganosiloxanes, macromonomers with vinyl terminated polydimethyl siloxane, and combinations or derivatives thereof.

[00278] In an embodiment, a sealant composition comprising a mixture comprising the adhesive composition of the present invention may further comprises one or more chain extenders including amino silanes, amido silanes, acetoxy silanes, and aminoxy silanes, methylvinyl bis-N,-methylacetamidosilane, methylhydrogendiacetoxysilane, dimethylbis-diethylhydroxylaminosilane, dimethylbis-secondarybutylaminosilane, polyisocyanates, and combinations or derivatives thereof.

[00279] In an embodiment, a sealant composition comprising a mixture comprising the adhesive composition of the present invention may further comprises one or more antioxidants including thioesters, phosphates, hindered phenols, tetrakis (methylene 3-(3',5'-di-t-butyl-4-hydroxyphenyl)pro-pionate)methane, 2,2'-ethyldenebis (4,6-di-tertiarybutylphenol), 1,1-3-tris (2-methyl-4-hydroxy-5-t-butylephenyl) butane, 1,3,5-trimethyl2,4,6, tris (3,5-tertbutyl-4-hydroxybenzyl)benzene, dilaurylthiodipropionate, pentaerythritol tetrakis (beta-laurylthiopropionate), alkyl-aryldi- and polyphosphates, thiophosphites, and combinations or derivatives thereof.

[00280] In an embodiment, a sealant composition comprising a mixture comprising the adhesive composition of the present invention may comprise 30 percent or less by weight of one or more waxes.

Paving Compositions

[00281] In a particular embodiment, the adhesive compositions described herein can be used in paving compositions. Typically, paving compositions include asphalt, aggregate and an adhesive composition. The term "asphalt" as used

2004B132-JP

-81-

herein refers to any of a variety of solid or semi-solid materials at room temperature which gradually liquify when heated, and in which the predominant constituents are naturally occurring bitumens of which are obtained as residue in petroleum refining. Asphalt is further defined by Kirk-Othmer, Encyclopedia of Chemical Technology, Vol. 3, Third Ed. (1978) pp. 284-327, John Wiley & Sons, New York. An additional discussion appears in the publication entitled "A Brief Introduction to Asphalt and some of its Uses", Manual Series No. 5 (MS-5), The Asphalt Institute, 7th Ed., September, 1974.

[00282] Exemplary naturally occurring bitumens include natural-asphalts or petroleum-refined asphalts, asphaltites, pyrogenous distillates, bottom stock, as well as other pyrogenous residues such as pyrogenous asphalts, petroleum pitch, coal tar pitch and mixtures thereof, for example. Such material is often characterized by a penetration value of from 0-300 or higher (ASTM D-5-51), preferably about 40-300, with a softening point in the range of about 32 to 120 °C (ASTM D-36-26), preferably between 38 to 65 °C.

[00283] Useful sources of asphalt include many of those which are presently commercial available. For example, natural asphalts and petroleum asphalts are generally known for roofing and paving applications may be used. The natural asphalts include, for example, asphaltite such as gilsonite, grahamite and glance pitch; lake asphalt such as trinidad asphalt; and rock asphalt. The petroleum asphalts include straight asphalt obtained by distillation of a crude oil (unblown and substantially unoxidized), blown asphalt produced by blowing an oxygen-containing gas into a straight asphalt in the presence or absence of a catalyst, solvent-extracted asphalt obtained when asphaltic material is separated from the petroleum fraction containing it by the use of propane or other solvents, and cut-back asphalt which is a mixture of straight asphalt and a light petroleum solvent. The asphalts may also include petroleum tar and asphalt cement. Petroleum tars include oil gas tar obtained as a by-product when gases are produced from petroleum fractions, such tar in refined form, cut-back tar obtained by mixing a light petroleum fraction with such tar, and tar -pitch obtained as a residue by removing the volatile fraction from such tar. Any of these kinds of asphalt may be

2004B132-JP

-82-

used alone or in combination. For example, straight asphalt is useful for paving applications, and oxidized and blown asphalts are useful for roofing applications.

[00284] The paving compositions of the present invention are particularly useful for preparing asphalt coating compositions. These include aggregate-containing asphalts such as employed in the paving of roads, bridges, airport runways, and sidewalks, as well as the localized repair or patching of the same. The paving compositions of the present invention may be mixed with aggregate while in a fluid or molten condition. Typically, the paving composition is mixed with preheated, predried aggregates to form a homogeneous mixture of uniformly coated aggregates. The aggregate may be heated under conditions of time and temperature that are sufficient to drive off essentially all free moisture prior to mixing. During mixing, the paving composition is typically at temperatures of about 100 °C to about 160 °C. Before the resulting composition is cooled to a temperature at which it loses its workability, it may be spread on a road bed, for example, and then compacted and permitted to cure. After curing, the resulting paving composition comprises aggregate bound by a matrix of asphalt binder.

[00285] The term "aggregate" as used herein is intended to include solid particles having a range of sizes including fine particles such as sand to relatively coarse particles such as crushed stone, gravel or slag. Typically, such aggregate used in the preparation of paving compositions are primarily inorganic materials, i.e., such as crushed rock, stone, and in certain instances, sand. The size of aggregates depends in part upon the desired end use application of a particular paving composition. For example, larger aggregate is typically used in laying down of a new or resurfaced roadway, as compared to crack repairing compositions which typically have a aggregate of lower average particle sizes. Of course, the aggregate, particularly when it is ground or crushed, can be highly irregular. Exemplary aggregate materials include inorganic materials including sand, gravel, crushed stone and the like; certain organic materials including recycled tire materials and thermoplastics, as well as mixtures of one or more inorganic and organic materials. Other inorganic as well as organic materials known to be useful as aggregates, although not elucidated here, may also be used in the present inventive compositions.

2004B132-JP

-83-

[00286] The paving composition of the present invention may also be useful for preparing improved seal coats. A seal coat is generally applied as a hot asphalt, cutback asphalt, or emulsified asphalt. The molten or fluid asphalt is generally sprayed from a truck, and the aggregate is placed on top of the asphalt followed by rolling or compacting the aggregate into the asphalt to finish the application.

[00287] The paving compositions of the present invention, after formation, may be handled by conventional techniques to maintain them in fluid or molten form under, for example, road-building conditions. For example, the asphalts may be formed into a cutback by fluxing the asphalt with a suitable volatile solvent or distillate. The asphalt cutback may then be directly mixed with aggregate and applied as a paving composition in fluid form, possibly at ambient temperatures. Another conventional technique for fluidizing the asphalt prior to mixing with aggregate and forming into a paving composition is to emulsify the asphalt by known techniques. An advantage of this method of fluidizing is that after mixing with the aggregate, it may be applied as a paving composition at ambient temperature.

[00288] A key technical consideration in the production of a paving composition is to insure the chemical compatibility of both the asphalt cement as well as the intended end-use application of the paving composition. With regard to chemical compatibility, factors such as the presence of undesired salts within the aggregate must be considered, in order to minimize that the likelihood of breakdown of either the asphalt paving compositions.

[00289] Additionally, it is also a requirement that good adhesion of the aggregate and the asphalt cement contained in a paving composition exists to ensure that thorough "wetting" of the asphalt composition, and good mixing of these materials occurs, both prior to, and subsequent to the placement of the asphalt paving compositions on to a surface. Further, the physical characteristics of the aggregate must also be taken into consideration, i.e., under certain conditions where high levels of traffic, and/or heavy loads are expected to be encountered, and are a mixture appropriate to the expected usage patterns, can be selected.

[00290] As such, the paving composition includes an adhesive comprising the inventive polymer described herein. Preferably, a paving composition comprising

2004B132-JP

-84-

asphalt, aggregate, and the adhesive composition of the present invention comprises one or more natural asphalts, petroleum asphalts, or any combinations thereof, and/or asphaltite, gilsonite, grahamite, glance pitch, lake asphalt, trinidad asphalt, or rock asphalt, and/or clay, stone, sand, rock, gravel, and slag, and/or carbon black, mine chatt, mine tailings, clinkers, cinders, ash, ground tires, clay, and glass.

[00291] In a preferred embodiment, a paving composition comprising asphalt, aggregate, and the adhesive composition of the present invention comprises 95 percent by weight or less of the aggregate.

[00292] In another embodiment, a paving composition comprising asphalt, aggregate, and the adhesive composition of the present invention comprises from 90 to 96 percent by weight of the aggregate.

[00293] In another embodiment, a paving composition comprising asphalt, aggregate, and the adhesive composition of the present invention comprises from 80 to 99 percent by weight of the asphalt.

Glue Sticks

[00294] In a particular embodiment, the adhesive compositions described herein can be used in a glue stick. Glue sticks are sold in a variety of forms, one of which is hot melt adhesive glue sticks. Hot melt adhesive glue sticks are typically designed for use in glue guns. Glue guns are adapted to be held in the hand of an operator with a melt chamber in which an end portion of a glue stick is received and melted by heat supplied to the melt chamber. Progressive melting of the hot melt adhesive glue stick may be achieved by pressing the hot melt adhesive glue stick into the melt chamber. Melted adhesive is dispensed from a nozzle of the gun as the hot melt adhesive glue stick is fed into the melt chamber and melted therein. Therefore, the hot melt adhesive glue stick is heated to an application temperature sufficient to provide glue to a substrate in molten form. The substrate can include paper, paperboard, containerboard, tagboard, corrugated board, chipboard, kraft, cardboard, fiberboard, plastic resin, metal, metal alloys, foil, film, plastic film, laminates, sheeting, wood, plastic, polystyrene, nylon, polycarbonate,

2004B132-JP

-85-

polypropylene, styrofoam, porous substrates, polyvinylchloride, walls, polyester, or combinations thereof.

[00295] The application temperature of the hot melt adhesive glue stick is adjusted to provide a low enough adhesive melt viscosity to ensure good wetting of the substrates and provide an adequate open time to position substrates after glue is applied thereto. It is desirable that the adhesive composition becomes substantially non-tacky after cooling to about room temperature or below. Adhesives for use in hot melt adhesive glue sticks should also have the ability to bond to a variety of substrates.

[00296] Another type of glue stick is a pressure sensitive adhesive glue stick. Pressure sensitive adhesive glue sticks are commercially available products comprising a body of solid adhesive contained within a housing. Conventionally, a removable cap closes the housing, the housing having an opening on its bottom. The opening is in a plane perpendicular to the axis of the pressure sensitive adhesive glue stick. The cap can be removed when one wishes to use the pressure sensitive adhesive glue stick.

[00297] Pressure sensitive adhesive glue sticks do not require heating for application to a substrate, but produce an adhesive deposition upon the substrate merely upon application of pressure. Similarly, the substrate may be subsequently attached adhesively to another substrate upon application of mere pressure, because the applied glue from the glue stick is tacky at room temperature.

[00298] For pressure sensitive adhesives, at least one component of the adhesive composition is liquid at ambient temperature. The liquid component imparts pressure sensitivity or surface tackiness to the pressure sensitive adhesive glue stick at ambient temperature. Often polymeric additives, tackifiers, and/or plasticizers are added to the adhesive composition so that the glue stick is tacky and a portion thereof remains on the substrate upon contact.

[00299] Glue sticks can be composed of a mixture of adhesive polymer, tackifier, and wax. The component amounts are altered to provide an adequate blend of melting point, application temperature, open time, bond strength, durability and heat resistance in the adhesive composition, depending on the application. It is desirable to have adhesive compositions that are good at accepting stress without

2004B132-JP

-86-

failing adhesively, which is measured by bond strength and time to bond failure. Both bond strength and time to bond failure are preferably high for a glue stick composition. Longer time to bond failure increases flexibility of the glue.

[00300] In a preferred embodiment, a glue stick comprising an elongated member includes the adhesive composition of the present invention, wherein the adhesive further comprises one or more additives including plasticizers, oils, stabilizers, antioxidants, synergists, pigments, dyestuffs, polymeric additives, defoamers, preservatives, thickeners, rheology modifiers, humectants, fillers, water, fragrances, fire retardants, colorants, antibiotics, antiseptics, antifungal agents, inorganic salts, gelling agents, binders, surfactants, bases, antimicrobial agents, and anti-foaming agents, and/or one or more fillers including polyethylene, titanium oxide, and calcium carbonate.

[00301] In a preferred embodiment, a glue stick comprising an elongated member that includes the adhesive composition of the present invention comprises from 5 to 30 percent by weight of the one or more inorganic salts.

[00302] In a preferred embodiment, a glue stick comprising an elongated member that includes the adhesive composition of the present invention comprises 5 percent by weight or less of the one or more colorants, dyes, antioxidants, fragrances, or pigments.

[00303] In a preferred embodiment, a glue stick comprising an elongated member that includes the adhesive composition of the present invention comprises 1 percent by weight or less of the one or more antimicrobial agents.

[00304] In a preferred embodiment, a glue stick comprising an elongated member that includes the adhesive composition of the present invention wherein the adhesive has a percent substrate fiber tear of from 75% to 100% at 25 °C.

Pipe Wrapping

[00305] In a particular embodiment, the adhesives of this invention can be used in pipe wrapping articles. Pipe wrapping articles or pipe wrap may be used to insulate or repair leaks to pressure vessels, industrial vessels, transformers, pipes, fittings, tanks, vessels, and containers. In addition, pipe wrapping articles may be used on various types of surfaces including flat faced surfaces, circular joints and

2004B132-JP

-87-

other mechanical components. The pipe wrapping articles described herein may be used in any type of industry, such as architectural, building, construction, food, beverage, mining, petrochemical, oil, gas, and water treatment, for example.

[00306] Pipe wrapping articles are generally formed by applying an adhesive composition to at least a portion of a wrapping element. The wrapping element can include fiberglass, fibers, wovens, nonwovens, fabric, cloth, polyethylene, polypropylene, acrylic rubber, EPDM, nitrile rubber, nylon, epichlorohydrin elastomer, polysulfide, acrylic elastomer, or butyl rubber, polyisobutylene, for example. The pipe wrapping article can be formed of wood, cement, concrete, nonwoven fabric, woven fabric, aluminum, stainless steel, brass, nickel, glass, glazed ceramics, unglazed ceramics, tiles, polyvinyl chloride, polyethylene terephthalate, plaster, stucco, asphaltic coatings, roofing felts, synthetic polymer membranes, and foamed polyurethane insulation, for example. The wrapping element may have any thickness. For example, a typical wrapping element for use in civil construction may have a minimum thickness of 1.27 mm.

[00307] Accordingly, a pipe wrapping article comprising the adhesive composition of the present invention, and a wrapping element, may include the adhesive at least partially disposed on or within the wrapping element.

[00308] In a preferred embodiment, a pipe wrapping article comprising the adhesive composition of the present invention comprises one or more polymeric additives including butyl rubber and polyisobutylene. Still more preferably a pipe wrapping article comprising the adhesive composition of the present invention is a consumer good.

Safety Glass

[00309] In a particular embodiment, the adhesives described herein can be used in safety glass. There are two kinds of safety glass, laminated and tempered safety glass. Laminated safety glass generally reduces the transmission of high frequency sound and blocks 97 percent of ultraviolet radiation. Tempered safety glass is a single piece of glass that is tempered by quickly heating and cooling the glass to harden it, thereby increasing the strength of the glass.

2004B132-JP

-88-

[00310] As used herein, "safety glass" is an article having a transparent pane. An important function of safety glass is that the adhesive composition used therein is not affected by temperature variations and that, in the case of breaking of the glass, the adhesive composition holds the glass pieces. Furthermore, the adhesive composition absorbs shearing stresses applied to the safety glass due to different expansion rates of the glass components, such as when the safety glass includes a first layer of glass and a second layer of polycarbonate. Safety glass generally includes layers of materials, with an adhesive layer either applied to the outside of one layer, or applied in between two or more layers to adhere them to one another. The transparent pane is formed by applying an adhesive composition to one or more transparent panels, the adhesive composition possibly forming a film on the one or more transparent panels. The one or more transparent panels can be formed of polyvinylbutyral, polyurethane, vinyl acetate, polyethylene, polypropylene, polycarbonate, glass, silicate glass, or a combination thereof.

[00311] In an embodiment, a article having a transparent pane comprises one or more transparent panels; and the adhesive composition of the present invention applied to at least a portion of the one or more panels. More preferably, the article has a transparent pane comprising one or more transparent panels; and the adhesive composition of the present invention, applied to at least a portion of the one or more panels, wherein the one or more transparent panels comprises polyvinylbutyral, polyurethane, vinyl acetate, polyethylene, polypropylene, polycarbonate, glass, silicate glass, or a combination thereof. In a preferred embodiment, the article is bulletproof glass, soundproofing glass, and/or safety glass. In addition, the adhesive composition of the present invention may form a film on the one or more transparent panels.

Roofing Shingles

[00312] In a particular embodiment, the adhesives of this invention can be used in shingles. Roofing shingles are generally formed of a roofing element and an adhesive to bind the roofing element to a roof. The roofing element is generally formed of a sheet metal, such as copper, terne-coated stainless steel, zinc, aluminum, or alloys thereof.

2004B132-JP

-89-

[00313] Important criteria for shingles include resistance to crush when the shingles are packed in stacks for shipment, a relatively low melting temperature to permit self-sealing without the application of heating equipment and a strong bond between the joined surfaces, which has high wind resistance and good low temperature stability. Other important considerations include good resistance to photo-oxidation; in particular, the ability to retain adhesive properties after exposure of the adhesive to sunlight for more than two hours.

[00314] In addition, the adhesive composition should exhibit a "migrating" property at low temperatures of 32 °C to 37 °C in order to provide stronger bonds and better wind resistance. As used herein, "migrating" refers to when the adhesive composition flows partially into the contacting face of the roofing material.

[00315] Accordingly, in an embodiment, a shingle comprises a roofing element having a first side and a second side, wherein the adhesive composition of the present invention is applied to at least a portion of the second side. In another embodiment, the roofing element comprises sheet metal, copper, steel, zinc, aluminum, combinations thereof, and alloys thereof, roofing asphalt, fabric, aggregate, and combinations thereof. In addition, either side of the roofing element may include rubber, fiberglass, aramid, carbon, polyester, nylon, asphalt, and/or sheet metal, wherein the sheet metal comprises copper, aluminum, combinations thereof, or alloys thereof.

[00316] In a preferred embodiment, a roofing element having a first side and a second side, wherein the adhesive composition of the present invention is applied to at least a portion of the second side, the adhesive composition further comprises one or more bituminous materials, preferably wherein the one or more bituminous materials comprise asphalt, more preferably the adhesive composition comprises 80 percent by weight or less of the one or more bituminous materials.

Reflective Coating

[00317] In a particular embodiment, the adhesives of this invention can be used in reflective articles. Reflective articles are formed by applying a reflective material to a substrate surface to provide reflectivity to a portion of the substrate. The

2004B132-JP

-90-

reflective material can include any material known to one skilled in the art. For example, the reflective material can include prisms and glass beads. The substrate surface can include roads, bicycle lanes, traffic signs, soft sports surfaces, playground surfaces, ships, runways, pedestrian crosswalks, buildings, tennis courts, driving courses, tartan substitutes, oil rigs, tunnels, concrete, metals, asphalt, bitumen, bricks, cobbles, tiles, steel plates, wood, ceramics, polymeric materials, glass, bridge abutments, traffic barricades, barriers, pipes, poles, guard rails, concrete blocks, curbs, parking lots, porcelain, stone, wood panels, particle board, wooden vehicle parts, cinder blocks, glass windows, traffic drums, traffic cones, scrims, liquid crystal displays, lights, copy machines, electronic backboards, diffuse white standards, and photographic lights.

[00318] An adhesive composition is applied to at least a portion of the reflective material to adhere the reflective material to the substrate. The adhesive composition includes the inventive polymer described herein.

[00319] The reflective article may include a substrate surface selected from the group consisting of roads, bicycle lanes, traffic signs, soft sports surfaces, playground surfaces, ships, runways, pedestrian crosswalks, buildings, tennis courts, driving courses, tartan substitutes, oil rigs, tunnels, concrete, metals, asphalt, bitumen, bricks, cobbles, tiles, steel plates, wood, ceramics, polymeric materials, glass, bridge abutments, traffic barricades, barriers, pipes, poles, guard rails, concrete blocks, curbs, parking lots, porcelain, stone, wood panels, particle board, wooden vehicle parts, cinder blocks, glass windows, traffic drums, traffic cones, scrims, liquid crystal displays, lights, copy machines, electronic backboards, diffuse white standards, and photographic lights.

[00320] In a preferred embodiment, a reflective article comprises a reflective material at least partially applied to a substrate surface with the adhesive composition of the present invention wherein the reflective article has a luminance of 70 or more.

Other Articles

[00321] In an embodiment, the polymer of the present invention may be an article that has been injection molded, is a film, is an extruded film, is a cast film, or is a

2004B132-JP

-91-

combination thereof. The article preferably comprises amorphous syndiotactic rich polypropylene and/or amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride. The article may also comprise the amorphous syndiotactic rich polyolefin disposed on a non-polar substrate, on a polar substrate, or both. Accordingly, the article of the present invention may comprise the amorphous syndiotactic rich polyolefin and/or the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin disposed on wood, paper, cardboard, plastic, thermoplastic, rubber, metal, metal foil, metallized surfaces, cloth, non-woven fibers, spunbonded fibers, stone, plaster, glass, SiO_x coatings applied by evaporating silicon oxide onto a film surface, foam, rock, ceramics, films, polymer foams, substrates coated with inks, substrates coated with dyes, substrates coated with pigments, PVDC, polyethylene, polypropylene, polyacrylates, acrylics, polyethylene terephthalate, corona discharge treated substrates, flame treated substrates, electron beam irradiated substrates, gamma irradiated substrates, microwave treated substrates, silanized substrates, and combinations thereof.

Master Batch

[0032] The present invention may also include a master batch process for providing the polymer of the present invention for the production of various polymeric materials including articles, films and the like, comprising melt blending under high shear conditions the polyolefin of the present invention with at least one additional additive to produce a concentrate containing from 10 to 90 wt.% of the polymer of the present invention, which may then be subsequently blended with other components of the final product. Examples of suitable additives include the additives described herein. The amorphous syndiotactic rich polyolefin, preferably amorphous syndiotactic rich polypropylene, functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin, preferably amorphous syndiotactic rich polyolefin grafted with maleic anhydride, of the present invention, may be utilized in the master batch as both the diluent, and as the concentrated material that is subsequently let down into the final product. In an embodiment, a process of the

2004B132-JP

-92-

producing the master batch may include a step wherein the amorphous syndiotactic rich polyolefin is functionalized simultaneously with the formation of the concentrate.

EXAMPLES

Preparation of a-srPP

[00323] Polymerization of the samples a- srPP-1-, a-srPPr-3, a-srPPr-4, a-srPPr-5, and a-srPPr-6 were carried out in a liquid filled, single-stage 0.5 liter stainless steel autoclave continuous reactor using diphenylmethylene(fluorenyl)(cyclopentadienyl)hafnium dimethyl pre-activated with N,N-dimethylanilinium tetrakis(pentafluorophenyl) borate. The reactor is equipped with a stirrer, a water cooling/steam-heating element with a temperature controller, and a pressure controller. Solvent and propylene were purified by passing through a three-column purification system prior to pumping into the reactor. All catalyst solutions were kept in an inert atmosphere with <1.5 ppm water content and fed into reactor by metering pumps. Catalyst and monomer contacts took place in the reactor.

[00324] The reactor was first cleaned by continuously pumping hexane and scavenger through the reactor system for at least one hour at a maximum allowed temperature (about 150°C). After cleaning, the reactor was heated/cooled to the desired temperature using water/steam mixture flowing through the reactor jacket and controlled at a set pressure with controlled solvent flow. Monomers and catalyst solutions were then fed into the reactor when a steady state of operation was reached. An automatic temperature control system was used to control and maintain the reactor at a set temperature. Beginning of polymerization activity was deduced from observation of a viscous discharge product and lower temperature of the water-steam mixture. Once activity was established and system reached equilibrium, the reactor was lined out by continuing operating the system under the established condition for a time period of at least five times of mean residence time prior to sample collection. The resulting mixture, containing mostly solvent, polymer and unreacted monomers, was collected in a collection

2004B132-JP

-93-

box after the system reached a steady state operation. Methanol was used as catalyst deactivation agent. The collected samples were first air-dried in a hood to evaporate most of the solvent, and then dried in a vacuum oven at a temperature of about 90 °C for about 12 hours. The vacuum oven dried samples were weighed to obtain yields. All the reactions were carried out at a pressure of about 350 psig and in the temperature range of 80 to 120°C. Detailed experimental condition and polymer properties are listed in the following table.

[00325] In the examples, polymerization temperatures were changed to vary the molecular weight and tacticity of the polymer. The polymers produced have %[r] dyads of about 58 to 75%. Each also demonstrate an essentially amorphous polymer.

Functionalization of a-srPP

[00326] The amorphous syndiotactic rich polypropylene samples were then functionalized by dissolving about 120 g of the polymer in toluene to produce a polymer solution having a polymer concentration of about 20 wt%. 15 wt% maleic anhydride (based on the particular a-srPP used) was then added to the solution, along with 2.5 wt% of the radical initiator, 2,5-dimethyl-2,5-di(t-butylperoxyl)hexane. The reaction temperature was 139°C for about 4 hours time. The amide functional group was provided by using 1-vinyl-2-pyrrolidinone, and the acid functional group was provided by using acrylic acid.

[00327] The data is shown below.

2004B132-JP

-94-

Polymer	a-srPPr-1	a-srPPr-3	a-srPPr-4	a-srPPr-5	a-srPPr-6	Comparative iPP-g-MMA
Catalyst feed rate (mole/min)	1.75E-06	1.75E-06	1.75E-06	1.75E-07	8.76E-06	
Propylene feed rate (g/min)	14		14	14	14	14
Hexane feed rate (ml/min)	90	90	90	90	90	
Polymerization temp °C	110	120	107	94	90	
Mn (kg/mol)	23	17	34	74		128
Mw (kg/mol)	62	43	86	188		311
Mz (kg/mol)	148	80	177	385		606
β'_{vis}	1.08	0.98	1.05	1.11	1.19	
<u>Triad mole fraction C13 NMR</u>						
Mm		0.152	0.133	0.114	0.0922	
mr+rm		0.483	0.464	0.435	0.399	
Rr		0.365	0.403	0.451	0.509	
<u>Diad mole fraction from C13 NMR</u>						
M		0.394	0.365	0.331	0.292	
R		0.606	0.635	0.669	0.708	

2004B132-JP

Functionalized Polymer						
Functional Group	Maleic Anhydride (MA)	1-vinyl-2-pyrrolidinone	Acrylic acid (AA)	Maleic Anhydride (MA)	Maleic Anhydride (MA)	Maleic Anhydride (MA)
Mn (kg/mol)	8	8	8	17	23	29
Mw (kg/mol)	20	20	20	33	44	68
Mz (kg/mol)	38	38	38	55	71	116
Wt% FG	3.20	1.00	1.00	1.92	1.00	1.00
					1.12	1.12
						5.24

iPP-g-MA is a maleic modified polypropylene with acid number of 50, viscosity of 300 cps @190 °C available from Chusei, in Pasadena, Texas.⁹⁵⁻

2004B132-JP

-96-

Characterization and Tests

[00328] For purposes of this invention and the claims thereto, the following tests are used, unless otherwise indicated:

[00329] Tensile strength (tensile strength at break and elongation at break) are measured by ASTM D 1708. Elongation at break is also referred to herein as strain at break or percent elongation.

[00330] Peel strength (also referred to as Peel adhesion at 180 ° peel angle, 180° peel strength, 180 ° peel adhesion, T-Peel strength, T-Peel.) is measured according to a modified version of ASTM D-1876. (modified to use a 0.5 inch wide sample, and a 2" per minute separation speed.)

[00331] Tensile Strength Modulus at 100 % elongation and Young's Modulus are determined according to ASTM E-1708.

[00332] Dynamic Storage modulus (also called storage modulus) is G' and is determined as follows. Typically, samples are tested using a three point bending configuration (TA Instruments DMA 2980). A solid rectangular compression molded bar is placed on two fixed supports; a movable clamp is applied a periodic deformation to the sample midpoint at a frequency of 1 Hz and an amplitude of 20 μm . The sample is initially cooled to -130°C then heated to 60°C at a heating rate of 3°C/min. In some cases, compression molded bars may be tested using other deformation configurations, namely dual cantilever bending and tensile elongation (Rheometrics RSAII). The periodic deformation under these configurations is applied at a frequency of 1 Hz and strain amplitude of 0.05%. The sample is cooled to -130°C and then heated to 60°C at a rate of 2°C/min.

[00333] Creep resistance is determined using ASTM D-2293, and sag is also referred to as creep.

[00334] Rolling Ball Tack is determined using PSTC 6.

[00335] Hot Shear Strength is determined by suspending a 1000 gram weight from a 25mm wide strip of MYLAR (polyester) film coated with the polymer or adhesive formulation which is adhered to a stainless steel plate with a contact area of 12.5mm x 25mm. The sample is placed in a ventilated oven at 40°C. The time is recorded until stress failure occurs.

2004B132-JP

-97-

[00336] Probe tack (also called Polyken probe tack) is determined according to ASTM D 2979.

[00337] Holding Power is determined according to PSTC 7, and is also called Shear adhesion or Shear strength.

[00338] Density is determined according to ASTM D792 at 25 °C.

[00339] Gardner color is measured according to ASTM D 1544-68. .

[00340] Luminence is the reflectance "Y" in the CIE color coordinates as determined by ASTM D 1925 divided by 100.

[00341] Needle penetration is measured by ASTM D5.

[00342] Bond strength is measured by ASTM D3983.

[00343] Adhesion to road surface is measured by ASTM D4541.

[00344] Set time is defined for use herein as the time it takes for a compressed adhesive substrate construct to fasten together with enough adhesion so as to give substrate fiber tear when pulled apart. These set times were measured by placing a molten dot of adhesive on to a file folder substrate taped to a flat table. A file folder tab (1 inch by 3 inch (2.5 cm x 7.6 cm)) was placed upon the dot 3 seconds later and compressed with a 500 gram weight. The weight was allowed to sit for about 0.5 to about 10 seconds. The construct thus formed was pulled apart to check for a bonding level sufficient to produce substrate fiber tear. The set time was recorded as the minimum time required for this bonding to occur. Standards of commercially available adhesives were used to calibrate this process.

[00345] Molecular weights (number average molecular weight (M_n), weight average molecular weight (M_w), and z-average molecular weight (M_z)) were determined using a Waters 150 Size Exclusion Chromatograph (SEC) equipped with a differential refractive index detector (DRI), an online low angle light scattering (LALLS) detector and a viscometer (VIS). The details of the detector calibrations have been described elsewhere [Reference: T. Sun, P. Brant, R. R. Chance, and W. W. Graessley, Macromolecules, Volume 34, Number 19, 6812-6820, (2001)]; The SEC with three Polymer Laboratories PLgel 10mm Mixed-B columns, a nominal flow rate 0.5 cm³ /min, and a nominal injection volume 300 microliters was common to both detector configurations. The various transfer lines, columns and differential refractometer (the DRI detector, used mainly to

2004B132-JP

-98-

determine eluting solution concentrations) were contained in an oven maintained at 135°C.

[00346] The LALLS detector was the model 2040 dual-angle light scattering photometer (Precision Detector Inc.). Its flow cell, located in the SEC oven, uses a 690 nm diode laser light source and collects scattered light at two angles, 15° and 90°. Only the 15° output was used in these experiments. Its signal was sent to a data acquisition board (National Instruments) that accumulates readings at a rate of 16 per second. The lowest four readings were averaged, and then a proportional signal was sent to the SEC-LALLS-VIS computer. The LALLS detector was placed after the SEC columns, but before the viscometer.

[00347] The viscometer was a high temperature Model 150R (Viscotek Corporation). It consists of four capillaries arranged in a Wheatstone bridge configuration with two pressure transducers. One transducer measures the total pressure drop across the detector, and the other, positioned between the two sides of the bridge, measures a differential pressure. The specific viscosity for the solution flowing through the viscometer was calculated from their outputs. The viscometer was inside the SEC oven, positioned after the LALLS detector but before the DRI detector.

[00348] Solvent for the SEC experiment was prepared by adding 6 grams of butylated hydroxy toluene (BHT) as an antioxidant to a 4 liter bottle of 1,2,4 Trichlorobenzene (TCB) (Aldrich Reagent grade) and waiting for the BHT to solubilize. The TCB mixture was then filtered through a 0.7 micron glass pre-filter and subsequently through a 0.1 micron Teflon filter. There was an additional online 0.7 micron glass pre-filter/0.22 micron Teflon filter assembly between the high pressure pump and SEC columns. The TCB was then degassed with an online degasser (Phenomenex, Model DG-4000) before entering the SEC.

[00349] Polymer solutions were prepared by placing dry polymer in a glass container, adding the desired amount of TCB, then heating the mixture at 160 °C with continuous agitation for about 2 hours. All quantities were measured gravimetrically. The TCB densities used to express the polymer concentration in mass/volume units were 1.463 g/ml at room temperature and 1.324 g/ml at 135 °C.

2004B132-JP

-99-

The injection concentration ranged from 1.0 to 2.0 mg/ml, with lower concentrations being used for higher molecular weight samples.

[00350] Prior to running each sample the DRI detector and the injector were purged. Flow rate in the apparatus was then increased to 0.5 ml/minute, and the DRI was allowed to stabilize for 8-9 hours before injecting the first sample. The argon ion laser was turned on 1 to 1.5 hours before running samples by running the laser in idle mode for 20-30 minutes and then switching to full power in light regulation mode.

[00351] The g' index was measured using SEC with an on-line viscometer (SEC-VIS) and are reported as g' at each molecular weight in the SEC trace. The g' index is defined as:

$$g' = \frac{\eta_b}{\eta_l}$$

[00352] where η_b is the intrinsic viscosity of the branched polymer and η_l is the intrinsic viscosity of a linear polymer of the same viscosity-averaged molecular weight (M_v) as the branched polymer. $\eta_l = KMv\alpha$, K and α were measured values for linear polymers and should be obtained on the same SEC-DRI-LS-VIS instrument as the one used for g' index measurement. For polypropylene samples presented in this invention, K=0.0002288 and $\alpha=0.705$ were used. The SEC-DRI-LS-VIS method obviates the need to correct for polydispersities, since the intrinsic viscosity and the molecular weight were measured at individual elution volumes, which arguably contain narrowly dispersed polymer. Linear polymers selected as standards for comparison should be of the same viscosity average molecular weight, monomer content and composition distribution. Linear character for polymer containing C2 to C10 monomers is confirmed by Carbon-13 NMR the method of Randall (Rev. Macromol. Chem. Phys., C29 (2&3), p. 285-297). Linear character for C11 and above monomers is confirmed by GPC analysis using a MALLS detector. For example, for a copolymer of propylene, the NMR should not indicate branching greater than that of the co-monomer (i.e. if the comonomer is butene, branches of greater than two carbons should not be present). For a homopolymer of propylene, the GPC should not show branches of more than one carbon atom. When a linear standard is desired for a polymer where the

2004B132-JP

-100-

comonomer is C9 or more, one can refer to T. Sun, P. Brant, R. R. Chance, and W. W. Graessley, Macromolecules, Volume 34, Number 19, 6812-6820, (2001) for protocols on determining standards for those polymers. In the case of syndiotactic polymers, the standard should have a comparable amount of syndiotacticity as measured by Carbon 13 NMR. The viscosity averaged \bar{g}' was calculated using the following equation:

$$\bar{g}'_{vs} = \frac{\sum C_i \eta_{bi}}{\sum C_i KM_i^a}$$

[00353] Maleic anhydride (MA) contents of the maleated polymers were determined as follows. Approximately 0.5 g of the polymer was dissolved in 150 ml of toluene at boiling temperature. A potentiometric titration with TBAOH (tetra-butylammonium hydroxide) using bromothymol blue as the color indicator was performed on the heated solution in which the polymers did not precipitate during titration.

[00354] Mooney viscosity was determined ML 1+4 @ 125°C according to ASTM D1646-90.

[00355] Peak melting point (T_m), peak crystallization temperature (T_c), heat of fusion and crystallinity were determined using the following procedure according to ASTM E 794-85. Differential scanning calorimetric (DSC) data was obtained using a TA Instruments model 2920 machine. Samples weighing approximately 7-10 mg were sealed in aluminum sample pans. The DSC data was recorded by first cooling the sample to -50 °C and then gradually heating it to 200 °C at a rate of 10 °C/minute. The sample was kept at 200 °C for 5 minutes before a second cooling-heating cycle was applied. Both the first and second cycle thermal events were recorded. Areas under the curves were measured and used to determine the heat of fusion and the degree of crystallinity. The percent crystallinity is calculated using the formula, [area under the curve (Joules/gram) / B (Joules/gram)] * 100, where B is the heat of fusion for the homopolymer of the major monomer component. These values for B are to be obtained from the Polymer Handbook, Fourth Edition, published by John Wiley and Sons, New York 1999. A value of 189 J/g (B) was used as the heat of fusion for 100%

2004B132-JP

-101-

crystalline polypropylene. For polymers displaying multiple melting or crystallization peaks, the highest melting peak was taken as peak melting point, and the highest crystallization peak was taken as peak crystallization temperature. [00356] The glass transition temperature (T_g) was measured by ASTM E 1356 using a TA Instruments model 2920 machine.

[00357] Melt Viscosity (ASTM D-3236) (also called "viscosity", "Brookfield viscosity") Melt viscosity profiles were typically measured at temperatures from 120 °C to 190 °C using a Brookfield Thermoel viscometer and a number 27 spindle.

Adhesive Testing

[00358] Functionalized a-srPPr or iPPr were mixed thoroughly and then degassed in a vacuum oven at 180°C and subsequently cooled down to 25°C. This was performed before molding and bonding to eliminate the possibility of air bubbles in the subsequent fabrication of the adhesive layer. Each of the functionalized a-srPPr samples were then molded into a thin sheet of material with thickness about 0.4 mm at 180°C for 10 s. For the preparation of the T-peel specimens, this thin sheet of adhesive sample was laminated between two pieces of Mylar substrate (0.003" = 0.076 mm thickness; used as received) in a positive pressure, Teflon-coated mold at a temperature of 180°C and a pressure of 0.67 MPa for 10 s. For the iPP substrate a 3-mil thick cast film of a metallocene homopolypropylene of Melt Flow Rate ~9, and a melting point of 150-151°C was used, along with a lower bonding temperature of 150°C. All these adhesive/substrate laminates were cut into 1/2" = 1.3 cm wide specimens. The adhesive thickness was ~ 0.2-0.3 mm. T-peel measurements using triplicate samples were performed according to a modified version of ASTM-1876, wherein a 0.5" wide sample was used due to limited sample availability, at room temperature, and at a separation speed of 2 "/min = 850 $\mu\text{m}/\text{s}$ instead of 10"/min as specified by the method, on an Instron Tester. Adhesion was measured by the average peel strength:

Peel Strength = F/w

2004B132-JP

-102-

where F is the peel force and w is the width of the test specimen. AIF and CF denote apparent interfacial failure (debonded adhesive left only on one Mylar substrate) and cohesive failure (debonded adhesive left on both Mylar substrates), respectively, as observed visually. Because each T-peel measurement employs triplicate samples, AIF/CF means two samples fail in AIF mode and one sample fails in CF mode. On the other hand, CF/AIF means two samples fail in CF mode and one sample fails in AIF mode. The data are shown below for a number of functionalized polyolefins:

Sample	T-Peel to Mylar (lb/in)	Failure Mode	T-Peel to iPP (lb/in)	Failure Mode
iPPr-g-MA	0.005	AIF	3.65	CF
a-srPPr-3-g-MA	6.60	CF	5.72	CF
a-srPPr-4-g-MA	8.13	CF	7.80	CF
a-srPPr-5-g-MA	1.66	AIF	11.17	CF
a-srPPr-6-g-MA	2.59	AIF	> 5.96	Substrate Broken

[00359] All the functionalized srPPr polymers have higher adhesion to both Mylar and iPP compared to MA-iPPr. Therefore, a-srPPr-g-MA improves adhesion to Mylar without sacrificing adhesion to iPP.

[00360] In the following tables, some compositions are blends of a-srPPr or functionalized a-srPPr with a propylene-based polymer (POA) in the presence or absence of a tackifier and/or a wax. The POA homopolypropylenes (listed as aPP-iPP in the tables) were produced according to the general procedures described in USSN 10/868,951, filed October 15, 2003. The catalysts used were di(p-triethylsilylphenyl) methylene(cyclopentadienyl)(3,8-di-t-butylfluorenyl)hafnium dimethyl (catalyst #1) and rac-dimethylsilyl bis(2-methyl-4-phenylindenyl) zirconium dimethyl (catalyst #2) the activator used was N,N-dimethylaniliniumtetrakis(pentafluorophenyl)borate. The detailed polymerization conditions and polymer properties are listed in the following tables.

2004B132-JP

-103-

	aPP-iPP-1	aPP-iPP-2	aPP-iPP-3
Catalyst #1 feed rate (mole/min)	1.65E-06	1.65E-06	1.65E-06
Catalyst #2 feed rate (mole/min)	9.45E-08	9.45E-08	9.45E-08
Propylene (g/min)	14	14	14
Hexane (ml/min)	90	90	90
Polymerization temperature (°C)	125	120	115
Mn (kg/mol)	17.8	19.2	21.3
Mw (kg/mol)	35.5	44.4	54.9
Mz (kg/mol)	63.8	83.7	112.8
Tc (°C)	88.1	90.2	91.8
Tm (°C)	127.1	138.1	140.8
Tg (°C)	-5.8	-4.7	-4.2
Heat of fusion (J/g)	37.4	38.3	38.0
Viscosity @190 °C (cp)	1890	3970	11450

2004B132-JP

-104-

Polymer	aPP-iPP-4	aPP-iPP-5	aPP-iPP-6
Catalyst #1 in catalyst mixture (mol. %)	86	86	86
Polymerization temperature in leading reactor (°C)	132	130	135
Polymerization temperature in trailing reactor (°C)	132	131	135
Scavenger concentration in feed (wppm)	24	24.5	25
Catalyst concentration in feed (wppm)	4.6	4.1	4.2
Activator concentration in feed (wppm)		73.5	4.7
Propylene concentration in feed (wt.%)	30	28.6	29.2
Quench water (gram/hour)	2.72	2.72	4.54
Viscosity @ 190 °C (cp)	2400	1600	1500
Mw (kg/mol)	41.4	41.1	29.3
Mn (kg/mol)	19.4	19.6	13.1
Mz (kg/mol)	76.6	76	62.6
Tc (°C)	79.9	77.8	68
Tm (°C)	139	132	136
Heat of fusion (J/g)	31.5	28.7	22

2004B132-JP

-105-

Adhesion to Mylar for Compositions without Tackifier

	T-peel, lb/in	Failure mode
aPP-iPP-1	0.03	AF
aPP-iPP-1 + 20 Wt% a-srPPr-3	0.10	AF
aPP-iPP-1 + 20 Wt% iPPr-g-MA	0.19	CF
aPP-iPP-1 + 20 Wt% a-srPPr-1-g-amide	0.10	AF
aPP-iPP-1 + 20 Wt% a-srPPr-1-g-MA	0.48	AF
aPP-iPP-2	0.03 ≡ P ₁	AF/CF
aPP-iPP-2 + 20 Wt% a-srPPr-3	0.04	AF
aPP-iPP-2 + 20 Wt% iPPr-g-MA	0.20	CF
aPP-iPP-2 + 20 Wt% a-srPPr-1-g-acid	0.05	AF
aPP-iPP-2 + 20 Wt% a-srPPr-1-g-amide	0.08	CF
aPP-iPP-2 + 20 Wt% a-srPPr-1-g-MA	1.21 ~ 40P ₁	AF
aPP-iPP-2 + 20 Wt% a-srPPr-3-g-MA	1.83	CF/AF
aPP-iPP-2 + 20 Wt% a-srPPr-4-g-MA	2.12	AF
aPP-iPP-2 + 20 Wt% a-srPPr-5-g-MA	6.28 ~ 200P ₁	CF/AF
aPP-iPP-2 + 20 Wt% a-srPPr-6-g-MA	4.58	AF
aPP-iPP-3	0.001	AF
aPP-iPP-3 + 20 Wt% a-srPPr-3	0.02	AF
aPP-iPP-3 + 20 Wt% iPPr-g-MA	0.32	CF
aPP-iPP-3 + 20 Wt% a-srPPr-1-g-amide	0.09	AF
aPP-iPP-3 + 20 Wt% a-srPPr-1-g-MA	0.40	AF

The symbol, "≡", denotes "is defined as".

2004B132-JP

-106-

Adhesion to Mylar for Compositions with Tackifier
 (aPP-iPP/E-5380/Polymer Modifier = 72/8/20 Wt. Ratio)

	T-peel, lb/in	Failure mode
aPP-iPP-2/E-5380 (9 to 1 Wt. Ratio)	0.04 = P ₂	AF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-3	0.04	AF
aPP-iPP-2/E-5380/ iPPr-g-MA	0.14	CF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-1-g-acid	0.06	AF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-1-g-amide	0.22	AF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-1-g-MA	2.15 ~ 50 P ₂	CF/AF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-3-g-MA	2.56	CF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-4	0.05	AF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-4-g-MA	5.83	CF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-5	0.13	AF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-5-g-MA	12.02	AF/CF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-6	0.02	AF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-6-g-MA	13.77 ~ 350 P ₂	CF

[00361] E-5380 is ESCOREZ® 5380, which is a hydrogenated dicyclopentadien based hydrocarbon resin having a Ring and Ball softening point of about 85°C, available from ExxonMobil Chemical Co. in Houston, Texas.

Bonding to Mylar and iPP of Modified POA's

	T-peel to Mylar (lb/in)	Failure mode	T-Peel to iPP (lb/in)	Failure mode
aPP-iPP-2/ iPPr-g-MA	0.2	CF	2.9	CF
aPP-iPP-2/E-5380/ iPPr-g-MA	0.14	CF	2.87	CF
aPP-iPP-2/E-5380	0.04	AF	3.09	CF
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-3	0.09	AF	>10.31	Substrate broken
aPP-iPP-2/E-5380/a-srPPr-1-g-MA	2.15	CF/AF	>8.53	Substrate broken

2004B132-JP

-107-

POA's modified by Tackifier and Wax

	Formulated PP-1	Formulated PP-2
aPP-iPP-4	79.4	-
aPP-iPP-5	-	81.6
E-2203 ($T_g = 47^\circ\text{C}$)	13.4	-
E-5690 ($T_g = 45^\circ\text{C}$)	-	9.02
Parafint C80	6.7	8.68
Irganox 1010	0.50	0.69
T-Peel to Mylar, lb/in	0.23	0.45
Failure Mode	AIF	CF

E-2203 is ESCOREZ® 2203, which is an aliphatic-aromatic based hydrocarbon resin having a Ring and Ball softening point of about 93°C. E-5690 is ESCOREZ® 5690, which is a hydrogenated dicyclopentadiene-aromatic based hydrocarbon resin having a Ring and Ball softening point of about 89°C. Both are available from ExxonMobil Chemical Co. in Houston, Texas. In the absence of functionalized polyolefin, both Formulated PP-1 and PP-2 show low adhesion to Mylar.

Adhesion to Mylar for Compositions Based on aPP-iPP-6

(aPP-iPP/E-5380/ Polymer Modifier = 72/8/20 Wt. Ratio)

	T-peel, lb/in	Failure mode
aPP-iPP-6	0.07	CF
aPP-iPP-6/E-5380 (9 to 1 Wt. Ratio)	0.19	CF
aPP-iPP-6/E-5380/a-srPPr-3-g-MA	4.32	CF
aPP-iPP-6/E-5380/a-srPPr-4-g-MA	6.94	CF
aPP-iPP-6/E-5380/a-srPPr-5-g-MA	11.1	CF
aPP-iPP-6/E-5380/a-srPPr-6-g-MA	12.0	CF

[00362] As the data shown in the above tables, the functionalized a-srPPr provides a benefit to the T-peel strengths to Mylar of these compositions. Clearly,

2004B132-JP

-108-

functional groups improve adhesion of propylene-based polymer to Mylar with the MA group showing the better results. Also, viscosity (or molecular weight) of the propylene-based polymer may affect adhesion, with the medium molecular weight polymer, aPP-iPP-2, showing better results.

[00363] As the examples also show, the compositions of the present invention provide enhanced adhesion to both polar and non-polar substrates. They can be applied to various areas, such as adhesives, tie layers, paint primer, adhesion promoter, interfacial agent, compatibilizer, and the like. As above, some inventive formulations were prepared by blending component 1, the aPP-iPP polymer, and a functionalized polyolefin, such as a-srPPr-g-MA, with other ingredients, such as tackifier, wax, antioxidant, plasticizer oil, liquid resin tackifier, and the like under low or high shear mixing at elevated temperatures to form a fluid melt. Mixing temperatures varied from about 130°C to about 190°C.

Aliphatic-Solvent Based Functionalization of a-srPP

[00364] Amorphous or low crystallinity propylene based homopolymers and copolymers have been prepared and functionalized in cyclohexane, hexane or mixture of aliphatic solvents. Following functionalization, the product optionally can be left in solution for delivery as a primer for e.g. TPO bumper paint adhesion, or dried for melt blending or extrusion in other applications such as tie layers, skin layers for films and molded objects, components in adhesive formulations, and the like. Key inventive steps include functionalization in aliphatic solvent: a) thus avoiding use of aromatic solvent and the environmental and process issues accompanying aromatic solvent, and opening the possibility that the base polymer can be made, functionalized, and delivered for use all in the same solvent and b) the direct use of polymer solution from polymerization reactor for functionalization-avoiding finishing and re-dissolving steps.

2004B132-JP

-109-

Functionalization Examples:

Comparative Example F1:

[00365] 5.1 g amorphous syndiotactic rich polypropylene was dissolved in 500 ml xylene at 130 °C. 1.2 ml Luperox P (TERT-BUTYL PEROXYBENZOATE, AtoFina Inc., Ontario Canada) and 4 mls l-vinyl-2-pyrrolidinone were added to the solution. The solution was stirred for 2.5 hrs. The product was precipitated into acetone and then further washed with acetone. The product was dried under vacuum overnight at 120 °C.

Comparative Example F2

[00366] 50 g amorphous syndiotactic rich polypropylene was melted in brander mixer at 190 °C. 2.0 g dicumylperoxide and 4 ml vinyl-2-pyrrolidinone were added and the mixture stirred for 2.5 hrs. The product was precipitated into acetone and product was further washed with acetone. The product was dried under vacuum overnight at 120 °C.

Example F3

[00367] 100 g of amorphous syndiotactic rich polypropylene was dissolved in 700 ml cyclohexane at 130°C. 3 g dicumylperoxide 10 g maleic anhydride was added to the solution. The solution was stirred for 2.5 hrs. The product was precipitated into acetone and product was then further washed with acetone. The product was dried under vacuum overnight at 120 °C.

Example F4

[00368] 100 g of amorphous syndiotactic rich polypropylene was dissolved in 700 ml cyclohexane at 130°C. 3 g dicumylperoxide and 4 ml 1-vinyl-2-pyrrolidinone was added to the solution. The solution was stirred for 2.5 hrs. The product was precipitated into acetone and product was then further washed with acetone. The product was dried under vacuum overnight at 120 °C.

2004B132-JP

-110-

Example F5

[00369] 100 g of amorphous syndiotactic rich polypropylene was dissolved in 700 ml cyclohexane at 130°C. 3 g dicumylperoxide and 8 ml 1-vinyl-2-pyrrolidinone was added to the solution. The solution was stirred for 2.5 hrs. The product was precipitated into acetone and product was then further washed with acetone. The product was dried under vacuum overnight at 120 °C.

The results are shown below:

Sample	Functional Group	Solvent	Mn	Mw	Mz
SrPPr (starting material)	N/A	N/A	46	82.4	142.8
Comparative F1	1-vinyl-2-pyrrolidinone	xylene	43.2	82.1	12.8
Comparative F2	1-vinyl-2-pyrrolidinone	Melt	27.8	56.4	91.0
F3	Maleic anhydride	cyclohexane	28.5	57.7	92.0
F4	1-vinyl-2-pyrrolidinone	cyclohexane	28.9	59.6	94.2
F5	1-vinyl-2-pyrrolidinone	cyclohexane	31.1	60.5	96.1

[00370] While the invention has been described with reference to an exemplary embodiment, it will be understood by those skilled in the art that various changes may be made and equivalents may be substituted for elements thereof without departing from the scope of the invention. In addition, many modifications may be made to adapt a particular situation or material to the teachings of the invention without departing from the essential scope thereof. Therefore, it is intended that the invention not be limited to the particular embodiment disclosed as the best mode contemplated for carrying out this invention, but that the invention will include all embodiments falling within the scope of the appended claims.

2004B132-JP

-111-

CLAIMS

1. An amorphous syndiotactic rich polyolefin comprising greater than about 50 wt% C₃-C₄₀ alpha olefins and having:
about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer;
a heat of fusion of 10 joules/g or less; and
an ash content of 1 wt% or less.
2. The polymer of claim 1 having at least about 55% r dyads.
3. The polymer of claim 1 having at least about 6.25% r pentads to about 31.6% r-pentads, based on the total number of r and m-pentads present in the polymer.
4. The polymer of claim 1, comprising greater than about 60 wt% propylene.
5. The polymer of claim 1, further comprising at least 0.5 wt% ethylene, based on the total weight of the polymer.
6. The polymer of claim 1, wherein the heat of fusion is not detectable.
7. The polymer of claim 1 having an ash content of 0.1 wt% or less.
8. The polymer of claim 1, having a density of about 0.85 to about 0.88 g/ml.
9. The polymer of claim 1 having a melt flow rate of 0.2 g/10 min or greater.

2004B132-JP

-112-

10. The polymer of claim 1, wherein at least about 95 wt% of the polymer is soluble in hexane, cyclohexane, xylene or toluene at 25°C, based on the total weight of the polymer present.

11. The polymer of claim 1, having a weight average molecular weight of about 5000 to about 5,000,000 g/mole.

12. The polymer of claim 1, having a number average molecular weight of about 5000 to about 3,000,000 g/mole.

13. The polymer of claim 1, having a z average molecular weight of about 10,000 to about 10,000,000 g/mole.

14. The polymer of claim 1, having g' index of about 1.2 to about 1.5, as determined at Mw of the polymer.

15. The polymer of claim 1, having no discernable crystallization temperature (Tc).

16. A polymer blend comprising:
an amorphous syndiotactic rich polyolefin having greater than about 50 wt% C₃-C₄₀ alpha olefins, about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer, a heat of fusion of 10 joules/g or less, and an ash content of 1 wt% or less; and
at least one additive comprising a C2-C40 polymer, a C2-C40 copolymer, an elastomer, a random copolymer, an impact copolymer, a flunctional polymer, a tackifier, a crosslinking agent, an antioxidant, a neutralizing agent, a nucleating agent, a filler, an adhesion promoter, an oil, a plasticizer, a wax, an ester polymer, a rubber toughened composition, a recycled polymer, a block, an antiblock, a pigment, a dye, a processing aid, a UV stabilizer, a lubricant, an adjuvant, a surfactant, a color masterbatch, a flow improver, a crystallization aid, a polyalphaolefin, a Group III basestock, or a combination thereof.

2004B132-JP

-113-

17. The polymer blend of claim 16, wherein the additive is selected from the group consisting of a homopolypropylene, a propylene copolymerized with up to 50 wt% of ethylene or a C4 to C20 alpha-olefin, an isotactic polypropylene, a random copolymer of propylene and ethylene, a random copolymer of polypropylene and butene or hexene, a polybutene, an ethylene vinyl acetate, a polyethylene having a density of 0.915 to less than 0.935 g/cm³, a linear polyethylene, a polyethylene having a density of 0.86 to less than 0.90 g/cm³, a polyethylene having a density of 0.90 to less than 0.915 g/cm³, a polyethylene having a density of 0.935 to less than 0.945 g/cm³, a polyethylene having a density of 0.945 to 0.98 g/cm³, an ethylene methyl acrylate, a copolymers of acrylic acid, a polymethylmethacrylate, a polyvinylchloride, a polybutene-1, an isotactic polybutene, an ABS resins, an ethylene-propylene rubber, a vulcanized EPR, an EPDM, a SBS elastomer, a polyamide, a polycarbonate, a PET resin, a crosslinked polyethylene, a copolymer of ethylene and vinyl alcohol, a polystyrene, a poly-1 ester, a polyacrylonitrile homopolymer, a polyacrylonitrile copolymer, a thermoplastic polyamide, a polyacetal, a polyvinylidene fluoride, a polyethylene glycol a polyisobutylene, and a combination thereof.

18. The polymer blend of claim 16, wherein the additive comprises an elastomer prepared by polymerizing propylene with ethylene in the presence of a chiral metallocene catalyst with an activator and optionally a scavenger, the elastomer having an average propylene content on a molar basis of from about 68% to about 92%.

19. The polymer blend of claim 16, wherein the additive comprises a semi-crystalline propylene copolymers having:

- A. a heat of fusion from about 0.5 J/g to about 25 J/g,
- B. a crystallinity of about 0.25% to about 15%,
- C. a single broad melting point from about 25°C to about 75°C,

2004B132-JP

-114-

- D. a weight average molecular weight of 10,000 to 5,000,000 g/cc,
- E. a MWD (Mw/Mn) between 1.5 to 40.0, and/or
- F. a Mooney viscosity ML (1+4)@125°C of less than 100.

20. The polymer blend of claim 16, wherein the additive comprises a rubber toughened composition, wherein the rubber is an ethylene propylene rubber, an ethylene propylene diene monomer rubber, a neoprene rubber, and/or a styrenic block copolymer rubber, and wherein the rubber is a discontinuous phase within a continuous phase comprising the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin.

21 The polymer blend of claim 16, wherein the additive comprises a random copolymer produced by copolymerizing propylene in a single reactor process with ethylene, such that the random copolymer comprises about 3 to about 17 mole% ethylene.

22. The polymer blend of claim 16, wherein the additive comprises a random copolymer having a narrow compositional distribution, such that 75 wt% of the random copolymer is isolated as one or two adjacent, soluble fractions with the balance of the polymer in immediately preceding or succeeding fractions as determined by thermal fractionation in a saturated hydrocarbon.

23. The polymer blend of claim 16, wherein the additive comprises a functional polymer comprising a linear isotactic polymer comprising C2 to C20 olefins, of which the isotacticity due to statistic distribution of stereoscopic errors in the polymer chain has a 25 to 60% [mmmm] pentad concentration, a weight average molecular weight of 100,000 to 800,000 g/mol, a glass transition temperature of from -50 to 30°C, an [rrrr] pentad concentration having a maximum of 2.5% of the entire pentad area, a [rrr] and a [rrrr] pentad concentration that when combined, have a pentad concentration which is greater

2004B132-JP

-115-

than the concentration of [rmm] pentad, and is essentially soluble in toluene at a 20 to 80°C.

24. The polymer blend of claim 16, wherein the additive comprises a tackifier selected from the group consisting of aliphatic hydrocarbon resins, aromatic modified aliphatic hydrocarbon resins, hydrogenated polycyclopentadiene resins, polycyclopentadiene resins, gum rosins, gum rosin esters, wood rosins, wood rosin esters, tall oil rosins, tall oil rosin esters, polyterpenes, aromatic modified polyterpenes, terpene phenolics, aromatic modified hydrogenated polycyclopentadiene resins, hydrogenated aliphatic resin, hydrogenated aliphatic aromatic resins, hydrogenated terpenes and modified terpenes, hydrogenated rosin acids, and hydrogenated rosin esters.

25. The polymer blend of claim 16, wherein the additive comprises a crosslinking agent selected from the group consisting of alcohols, multiols, amines, diamines, and triamines.

26. The polymer blend of claim 16, wherein the additive comprises a polar wax, a non-polar wax, a polypropylene wax, a polyethylene wax, a Fischer-Tropsch wax, an oxidized Fischer-Tropsch wax, a hydroxystearamide wax, a functionalized wax, an amorphous wax, carnauba wax, castor oil wax, microcrystalline wax, beeswax, carnauba wax, castor wax, spermaceti wax, vegetable wax, candelilla wax, japan wax, ouricury wax, douglas-fir bark wax, rice-bran wax, jojoba wax, bayberry wax, montan wax, peat wax, ozokerite wax, ceresin wax, petroleum wax, paraffin wax, polyethylene wax, chemically modified hydrocarbon wax, substituted amide wax, and/or combinations and derivatives thereof.

27. The polymer blend of claim 16, wherein the additive includes a crystallization aid.

2004B132-JP

-116-

28. The polymer blend of claim 16, comprising from 10 to 90 wt% additive, based upon the weight of the polymer blend.

29. The polymer blend of claim 16, wherein the additive is an organo-clay present in the blend at from 0.1 to 50 wt%, based on the total weight of the blend, and wherein the organo-clay selected from the group consisting of montmorillonite, sodium montmorillonite, calcium montmorillonite, magnesium montmorillonite, nontronite, beidellite, volkonskoite, laponite, hectorite, saponite, sauconite, magadite, kenyaita, sobockite, svindordite, stevensite, vermiculite, halloysite, aluminate oxides, hydrotalcite, illite, rectorite, tarosovite, ledikite, florine mica, and a combination thereof.

30. The polymer blend of claim 16, wherein the polymer blend is a master batch melt blended under high shear conditions with at least one additive, to produce a concentrate containing from 10 to 90 wt.% of the polymer blend.

31. An amorphous syndiotactic rich polyolefin that has been functionalized with a functional group;

wherein prior to being functionalized, the amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises:

greater than about 50 wt% C₃-C₄₀ alpha olefins

about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer;

a heat of fusion of 10 joules/g or less according to the procedure described in ASTM E 794-85; and

an ash content of 1 wt% or less.

32. The polymer of claim 31 having at least about 6.25% r pentads to about 31.6% r-pentads, based on the total number of r and m-pentads present in the polymer.

2004B132-JP

-117-

33. The polymer of claim 31, comprising greater than about 50 wt% propylene.
34. The polymer of claim 31, further comprising at least 0.5 wt% ethylene, based on the total weight of the polymer.
35. The polymer of claim 31, wherein the heat of fusion is not detectable.
36. The polymer of claim 31 having an ash content of 0.1 wt% or less.
37. The polymer of claim 31 having a melt flow rate of 0.2 g/10 min or greater.
38. The polymer of claim 31, wherein at least about 95 wt% of the polymer is soluble in hexane, cyclohexane, xylene or toluene at 25°C, based on the total weight of the polymer present.
39. The polymer of claim 31, having a weight average molecular weight (Mw) of about 5000 to about 5,000,000 g/mole.
40. The polymer of claim 31, having a number average molecular weight (Mn) of about 5,000 to about 3,000,000 g/mole.
41. The polymer of claim 31, having a z average molecular weight (Mz) of about 5,000 to about 10,000,000 g/mole.
42. The polymer of claim 31, having no discernable crystallization temperature (Tc).

2004B132-JP

-118-

43. The polymer of claim 31, wherein the functional group comprises a compound having a weight average molecular weight of 1000 or less, and a carbon-carbon double bond, a carbon-carbon triple bond, and/or a heteroatom.

44. The polymer of claim 31, wherein the functional group comprises B, N, O, Si, P, F, Cl, Br, I, S, or a combination thereof.

45. The polymer of claim 31, wherein the functional group is an aromatic compound, a vinyl compound, an organic acid, an organic amide, an organic amine, an organic ester, an organic di-ester, an organic imide, an organic anhydride, an organic alcohol, an organic acid halide, an organic peroxide, and/or salts thereof.

46. The polymer of claim 31, wherein the functional group is maleic anhydride, citraconic anhydride, 2-methyl maleic anhydride, 2-chloromaleic anhydride, 2,3-dimethylmaleic anhydride, bicyclo[2.2.1]-5-heptene-2,3-dicarboxylic anhydride, 4-methyl-4-cyclohexene-1,2-dicarboxylic anhydride, acrylic acid, methacrylic acid, maleic acid, fumaric acid, itaconic acid, citraconic acid, mesaconic acid, crotonic acid, bicyclo(2.2.2)oct-5-ene-2,3-dicarboxylic acid anhydride, 1,2,3,4,5,& 6, octahydronaphthalene-2,3-dicarboxylic acid anhydride, 2-oxa-1,3-diketospiro(4.4)non-7-ene, bicyclo(2.2.1)hept- 5-ene-2,3- dicarboxylic acid anhydride, maleopimamic acid, tetrahydrophthalic anhydride, norborn-5-ene-2,3-dicarboxylic acid anhydride, nadic anhydride, methyl nadic anhydride, himic anhydride, methyl himic anhydride, x-methyl-bicyclo(2.2.1)hept-5-ene-2,3-dicarboxylic acid anhydride, methyl acrylate, ethyl acrylate, butyl acrylate, methyl methacrylate, ethyl methacrylate, butyl methacrylate, vinyltrichlorosilane, vinyltris(beta-methoxyethoxy)silane, vinyltriethoxysilane, vinyltrimethoxysilane, gamma-methacryloxypropyltrimethoxysilane monovinylsilane, monoallylsilane, vinyl chloride, or vinylidene chloride.

2004B132-JP

-119-

47. The polymer of claim 31, wherein the functional group is present in the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin at 1 to 5 wt%, based on the total weight of the functionalized polyolefin.

48. The polymer of claim 31, wherein the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin is heat stable.

49. The polymer of claim 31, wherein the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin is amorphous syndiotactic rich polypropylene grafted with maleic anhydride, and wherein maleic anhydride is present in the functionalized syndiotactic rich polypropylene at a concentration of about 0.005 to 10 wt % maleic anhydride, based upon the weight of the functionalized amorphous syndiotactic rich polypropylene.

50. The polymer of claim 49, wherein the functionalized amorphous syndiotactic rich polypropylene comprises less than about 1000 ppm free acid groups, based on the total weight of the polypropylene, and wherein the functionalized amorphous syndiotactic rich polypropylene comprises less than about 100 ppm phosphite, based on the total weight of the polypropylene.

51. A polymer blend comprising:

an amorphous syndiotactic rich polyolefin that has been functionalized with a functional group;

wherein prior to being functionalized, the amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises:

greater than about 50 wt% C₃-C₄₀ alpha olefins, about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer, a heat of fusion of 10 joules/g or less, and an ash content of 1 wt% or less; and

at least one additive comprising a C2-C40 polymer, a C2-C40 copolymer, an elastomer, a random copolymer, an impact copolymer, a flunctional polymer, a tackifier, a crosslinking agent, an antioxidant, a neutralizing agent, a nucleating

2004B132-JP

-120-

agent, a filler, an adhesion promoter, an oil, a plasticizer, a wax, an ester polymer, a rubber toughened composition, a recycled polymer, a block, an antiblock, a pigment, a dye, a processing aid, a UV stabilizer, a lubricant, an adjuvant, a surfactant, a color masterbatch, a flow improver, a crystallization aid, or a combination thereof.

52. The polymer of claim 51, wherein the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin is amorphous syndiotactic rich polypropylene grafted with maleic anhydride, and wherein maleic anhydride is present in the functionalized syndiotactic rich polypropylene at a concentration of about 0.005 to 10 wt % maleic anhydride, based upon the weight of the functionalized amorphous syndiotactic rich polypropylene.

53. The polymer blend of claim 51, wherein the additive is selected from the group consisting of a homopolypropylene, a propylene copolymerized with up to 50 wt% of ethylene or a C4 to C20 alpha-olefin, an isotactic polypropylene, a random copolymer of propylene and ethylene, a random copolymer of polypropylene and butene or hexene, a polybutene, an ethylene vinyl acetate, a polyethylene having a density of 0.915 to less than 0.935 g/cm³, a linear polyethylene, a polyethylene having a density of 0.86 to less than 0.90 g/cm³, a polyethylene having a density of 0.90 to less than 0.915 g/cm³, a polyethylene having a density of 0.935 to less than 0.945 g/cm³, a polyethylene having a density of 0.945 to 0.98 g/cm³, an ethylene methyl acrylate, a copolymers of acrylic acid, a polymethylmethacrylate, a polyvinylchloride, a polybutene-1, an isotactic polybutene, an ABS resins, an ethylene-propylene rubber, a vulcanized EPR, an EPDM, a SBS elastomer, a polyamide, a polycarbonate, a PET resin, a crosslinked polyethylene, a copolymer of ethylene and vinyl alcohol, a polystyrene, a poly-1 ester, a polyacrylonitrile homopolymer, a polyacrylonitrile copolymer, a thermoplastic polyamide, a polyacetal, a polyvinylidene fluoride, a polyethylene glycol a polyisobutylene, and a combination thereof.

2004B132-JP

-121-

54. The polymer blend of claim 51, wherein the additive comprises a semi-crystalline propylene copolymers having:

- A. a heat of fusion from about 0.5 J/g to about 25 J/g,
- B. a crystallinity of about 0.25% to about 15%,
- C. a single broad melting point from about 25°C to about 75°C,
- D. a weight average molecular weight of 10,000 to 5,000,000 g/cc,
- E. a MWD (Mw/Mn) between 1.5 to 40.0, and/or
- F. a Mooney viscosity ML (1+4)@125°C of less than 100.

55. The polymer blend of claim 51, wherein the additive comprises a random copolymer produced by copolymerizing propylene in a single reactor process with ethylene, such that the random copolymer comprises about 3 to about 17 mole% ethylene, and wherein the random copolymer has a narrow compositional distribution, such that 75 wt% of the random copolymer is isolated as one or two adjacent, soluble fractions with the balance of the polymer in immediately preceding or succeeding fractions as determined by thermal fractionation in a saturated hydrocarbon.

56. The polymer blend of claim 51, wherein the additive comprises a tackifier selected from the group consisting of aliphatic hydrocarbon resins, aromatic modified aliphatic hydrocarbon resins, hydrogenated polycyclopentadiene resins, polycyclopentadiene resins, gum rosins, gum rosin esters, wood rosins, wood rosin esters, tall oil rosins, tall oil rosin esters, polyterpenes, aromatic modified polyterpenes, terpene phenolics, aromatic modified hydrogenated polycyclopentadiene resins, hydrogenated aliphatic resin, hydrogenated aliphatic aromatic resins, hydrogenated terpenes and modified terpenes, hydrogenated rosin acids, and hydrogenated rosin esters.

57. The polymer blend of claim 51, comprising from 10 to 90 wt% additive, based upon the weight of the polymer blend.

2004B132-JP

-122-

58. The contact product of an amorphous syndiotactic rich polyolefin, a functional group, and a functionalization catalyst, wherein the amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises:

greater than about 50 wt% C₃-C₄₀ alpha olefins

about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer;

a heat of fusion of 10 joules/g or less; and

an ash content of 1 wt% or less.

59. The contact product of claim 58, wherein the functionalization catalyst is an organic peroxide.

60. The contact product of claim 58, wherein the functionalization catalyst is selected from the group consisting of benzoyl peroxide, methyl ethyl ketone peroxide, cyclohexanone peroxide, t-butylperoxyisopropyl carbonate, di-t-butyl perphthalate, 2,5-dimethyl-2,5-di(t-butylperoxy)hexene, 2,5-dimethyl-2,5-di(t-butylperoxy)hexene-3, di-t-butyl peroxide, cumene hydroperoxide, t-butyl hydroperoxide, dilauryl peroxide dicumyl peroxide, and a combination thereof.

61. The contact product of claim 58, wherein the functional group comprises a compound having a weight average molecular weight of 1000 or less, and a carbon-carbon double bond, a carbon-carbon triple bond, and/or a heteroatom.

62. The contact product of claim 58, wherein the functional group comprises B, N, O, Si, P, F, Cl, Br, I, S, or a combination thereof.

63. The contact product of claim 58, wherein the functional group is an aromatic compound, a vinyl compound, an organic acid, an organic amide, an organic amine, an organic ester, an organic di-ester, an organic imide, an organic anhydride, an organic alcohol, an organic acid halide, an organic peroxide, and/or salts thereof.

2004B132-JP

-123-

64. The contact product of claim 58, wherein the functional group is maleic anhydride, citraconic anhydride, 2-methyl maleic anhydride, 2-chloromaleic anhydride, 2,3-dimethylmaleic anhydride, bicyclo[2.2.1]-5-heptene-2,3-dicarboxylic anhydride, 4-methyl-4-cyclohexene-1,2-dicarboxylic anhydride, acrylic acid, methacrylic acid, maleic acid, fumaric acid, itaconic acid, citraconic acid, mesaconic acid, crotonic acid, bicyclo(2.2.2)oct-5-ene-2,3-dicarboxylic acid anhydride, 1,2,3,4,5,&g, lo-octahydronaphthalene-2,3-dicarboxylic acid anhydride, 2-oxa-1,3-diketospiro(4.4)non-7-ene, bicyclo(2.2.1)hept- 5-ene-2,3- dicarboxylic acid anhydride, maleopimamic acid, tetrahydrophthalic anhydride, norborn-5-ene-2,3-dicarboxylic acid anhydride, nadic anhydride, methyl nadic anhydride, himic anhydride, methyl himic anhydride, x-methyl-bicyclo(2.2.1)hept-5-ene-2,3-dicarboxylic acid anhydride, methyl acrylate, ethyl acrylate, butyl acrylate, methyl methacrylate, ethyl methacrylate, butyl methacrylate, vinyltrichlorosilane, vinyltris(beta-methoxyethoxy)silane, vinyltriethoxysilane, vinyltrimethoxysilane, gamma-methacryloxypropyltrimethoxysilane monovinylsilane, monoallylsilane, vinyl chloride, or vinylidene chloride.

65. The contact product of claim 58, wherein the functional group is present in the contact product at 0.005 to 99 wt%, based on the total weight of the contact product.

66. The contact product of claim 58, wherein the functional group is present in the contact product at 1 to 5 wt%, based on the total weight of the contact product.

67. The contact product of claim 58, wherein the contact product is heat stale.

68. The contact product of claim 58, wherein the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin is amorphous syndiotactic rich polypropylene, whcrein the functional group is maleic anhydride, and wherein

2004B132-JP

-124-

maleic anhydride is present in the contact product at a concentration of about 0.005 to 10 wt % maleic anhydride, based upon the weight of the contact product.

69. The contact product of claim 58, wherein the amorphous syndiotactic rich polyolefin is amorphous syndiotactic rich polypropylene, the functional group is maleic anhydride, and wherein the contact product comprises less than about 1000 ppm free acid groups, based on the total weight of the contact product.

70. The contact product of claim 58, wherein the amorphous syndiotactic rich polyolefin is amorphous syndiotactic rich polypropylene, the functional group is maleic anhydride, and wherein the contact product comprises less than about 100 ppm phosphite, based on the total weight of the contact product.

71. A polymer comprising amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride, wherein the functionalized polypropylene comprises about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer;

a heat of fusion of 10 joules/g or less; and
an ash content of 1 wt% or less.

72. The polymer of claim 71 having at least about 6.25% r pentads to about 31.6% r-pentads, based on the total number of r and m-pentads present in the polymer.

73. The polymer of claim 71, further comprising at least 0.5 wt% ethylene, based on the total weight of the polymer.

74. The polymer of claim 71, wherein the heat of fusion is not detectable.

2004B132-JP

-125-

75. The polymer of claim 71 having an ash content of 0.1 wt% or less.
76. The polymer of claim 71 having a melt flow rate of 0.2 g/10 min or greater.
77. The polymer of claim 71, wherein at least about 99 wt% of the polymer is soluble in hexane, cyclohexane, xylene or toluene at 25°C, based on the total weight of the polymer present.
78. The polymer of claim 71, having a weight average molecular weight (Mw) of about 5000 to about 5,000,000 g/mole.
79. The polymer of claim 71, having a number average molecular weight (Mn) of about 5,000 to about 3,000,000 g/mole.
80. The polymer of claim 71, having a z average molecular weight (Mz) of about 5,000 to about 10,000,000 g/mole.
81. The polymer of claim 71, having no discernable crystallization temperature (Tc).
82. The polymer of claim 71, wherein the maleic anhydride is present in the polymer at 0.005 to 10 wt%, based on the total weight of the polymer.
83. The polymer of claim 71, wherein the polymer is heat stable.
84. A polymer blend comprising amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride, and at least one additive, wherein the functionalized polypropylene comprises about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer;
a heat of fusion of 10 joules/g or less; and

2004B132-JP

-126-

an ash content of 1 wt% or less, and wherein the additive is selected from the group consisting of a C2-C40 polymer, an elastomer, a random copolymer, an impact copolymer, a flunctional polymer, a tackifier, a crosslinking agent, an antioxidant, a neutralizing agent, a nucleating agent, a filler, an adhesion promoter, an oil, a plasticizer, a wax, an ester polymer, a block, an antiblock, a pigment, a dye, a processing aid, a UV stabilizer, a lubricant an adjuvant, a surfactant, a color masterbatch, a flow improver, a crystallization aid, and a combination thereof.

85. The polymer blend of claim 84, comprising from 10 to 90 wt% additive, based upon the weight of the polymer blend.

86. An adhesive composition comprising an amorphous syndiotactic rich polyolefin, an amorphous syndiotactic rich polyolefin that has been functionalized with a functional group, or a combination thereof, wherein the amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises:

greater than about 50 wt% C₃-C₄₀ alpha olefins;

about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer;

a heat of fusion of 10 joules/g or less; and

an ash content of 1 wt% or less,

and wherein the functional group, when present, comprises a compound having a weight average molecular weight of 1000 or less, and a carbon-carbon double bond, a carbon-carbon triple bond, and/or a heteroatom;

the adhesive composition having a peel strength to isotactic polypropylene of greater than about 3.5 lb/in, and a peel strength to polyester film of greater than about 0.5 lb/in.

87. The adhesive composition of claim 86 further comprising at least one additive selected from the group consisting of a C2-C40 polymer, a C2-C40 copolymer, an elastomer, a random copolymer, an impact copolymer, a flunctional polymer, a tackifier, a crosslinking agent, an antioxidant, a neutralizing agent, a nucleating agent, a filler, an adhesion promoter, an oil, a plasticizer, a wax, an

2004B132-JP

-127-

ester polymer, a rubber toughened composition, a recycled polymer, a block, an antiblock, a pigment, a dye, a processing aid, a UV stabilizer, a lubricant, an adjuvant, a surfactant, a color masterbatch, a flow improver, a crystallization aid, and a combination thereof.

88. The adhesive composition of claim 86, wherein at least about 95 wt% of the adhesive is soluble in hexane, cyclohexane, xylene or toluene at 25°C, based on the total weight of the adhesive present.

89. The adhesive composition of claim 86 wherein the polyolefin comprises greater than about 60 wt% propylene.

90. The adhesive composition of claim 86 wherein the polyolefin comprises at least 0.5 wt% ethylene, based on the total weight of the polyolefin.

91. The adhesive composition of claim 86 wherein a heat of fusion of the polyolefin is not detectable.

92. The adhesive composition of claim 86 wherein the polyolefin comprises an ash content of 0.1 wt% or less.

93. The adhesive composition of claim 86 further comprising one or more tackifiers selected from the group consisting of aliphatic hydrocarbon resins, aromatic modified aliphatic hydrocarbon resins, hydrogenated polycyclopentadiene resins, polycyclopentadiene resins, gum rosins, gum rosin esters, wood rosins, wood rosin esters, tall oil rosins, tall oil rosin esters, polyterpenes, aromatic modified polyterpenes, terpene phenolics, aromatic modified hydrogenated polycyclopentadiene resins, hydrogenated aliphatic resin, hydrogenated aliphatic aromatic resins, hydrogenated terpenes and modified terpenes, hydrogenated rosin acids, hydrogenated rosin esters, derivatives thereof, and combinations thereof.

2004B132-JP

-128-

94. The adhesive composition of claim 86, wherein the adhesive further comprises one or more waxes selected from the group consisting of polar waxes, non-polar waxes, Fischer-Tropsch waxes, oxidized Fischer-Tropsch waxes, hydroxystearamide waxes, functionalized waxes, polypropylene waxes, polyethylene waxes, wax modifiers, and combinations thereof.

95. The adhesive composition of claim 86 wherein the adhesive further comprises one or more additives selected from the group consisting of plasticizers, oils, stabilizers, antioxidants, pigments, dyestuffs, polymeric additives, defoamers, preservatives, thickeners, rheology modifiers, humectants, fillers and water.

96. The adhesive composition of claim 86, having a set time of 30 seconds or less.

97. A consumer good, an article of manufacture, a packaging adhesive, a package, a disposable article, a film, a pressure sensitive adhesive, a laminate article, a fiber product, a hot melt adhesive, a carpet, a tape, a shingle, a roofing element, a reflective article, a woodworking article, a consumer article, a label, a bookbinding article, a roadmarking composition, a sealant composition, a paving composition, a glue stick, a pipe wrapping article, an article having a transparent pane, or a combination thereof, comprising the adhesive composition of claim 1.

98. An amorphous syndiotactic rich polyolefin that has been functionalized with a functional group;

wherein the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises:

greater than about 50 wt% C₃-C₄₀ alpha olefins

about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer; and

a heat of fusion of 10 joules/g or less.

99. A process to make a polymeric material comprising the steps of:

2004B132-JP

-129-

melt blending an amorphous syndiotactic rich polyolefin and at least one additive under high shear conditions to produce a concentrate containing from 10 to 90 wt.% of the polyolefin, and

subsequently blending the concentrate with at least one additional material to produce a final product, wherein the amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises:

greater than about 50 wt% C3-C40 alpha olefins;

about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polyolefin;

a heat of fusion of 10 joules/g or less; and

an ash content of 1 wt% or less.

100. The process of claim 99, wherein the amorphous syndiotactic rich polyolefin has been functionalized with a functional group, the functional group comprising a compound having a weight average molecular weight of 1000 or less, and a carbon-carbon double bond, a carbon-carbon triple bond, and/or a heteroatom.

101. The process of claim 100, wherein the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin is amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride.

102. The process of claim 101, wherein the amorphous syndiotactic rich polyolefin is functionalized simultaneously with the formation of the concentrate.

2004B132-JP

-130-

103. A method to produce a functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin comprising the steps of:

- A. providing an olefin monomer, metallocene catalyst, and an activator to a reactor in an aliphatic solvent;
- B. catalytic solution polymerization of said olefin monomer in said reactor to produce an amorphous syndiotactic rich polyolefin;
- C. monomer stripping to remove unreacted olefin monomer;
- D. solvent based functionalization; comprising combining said amorphous syndiotactic rich polyolefin with a functional group and with a free radical initiator in said aliphatic solvent, at a temperature and for a period of time sufficient to produce said functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin; and optionally
- E. removal of said aliphatic solvent,
wherein the amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises greater than about 50 wt% C₃-C₄₀ alpha olefins;
about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polyolefin;
a heat of fusion of 10 joules/g or less, and
an ash content of 1 wt% or less.

104. The method of claim 103, wherein the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin is amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride.

105. The method of claim 103, further comprising the addition of an organo-clay after said solvent based functionalization step D.

106. A method to produce a functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin comprising the steps of:

2004B132-JP

-131-

A. providing a melt comprising an amorphous syndiotactic rich polyolefin, a functional group, and a free radical initiator to a mixing device;

B. contacting said melt within said mixing device at a temperature and for a period of time sufficient to produce said functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin, wherein the amorphous syndiotactic rich polyolefin comprises greater than about 50 wt% C₃-C₄₀ alpha olefins;

about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polyolefin;

a heat of fusion of 10 joules/g or less, and

an ash content of 1 wt% or less.

107. The method of claim 106, wherein the functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin is amorphous syndiotactic rich polypropylene functionalized with maleic anhydride.

108. The method of claim 106, further comprising the addition of an organo-clay after said contacting step B.

2004B132-JP

-132-

SYNDIOTACTIC RICH POLYOLEFINS**Abstract of the Invention**

Disclosed herein is a polymer comprising an amorphous syndiotactic rich polyolefin comprising greater than about 50 wt% C₃-C₄₀ alpha olefins and having about 50% to less than about 80% r dyads, based on the total number of r and m dyads present in the polymer; a heat of fusion of 10 joules/g or less according to the procedure described in ASTM E 794-85; and an ash content of 1 wt% or less. A functionalized amorphous syndiotactic rich polyolefin is also disclosed, along with methods to produce and a method to use the inventive polymer.