

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5237961号
(P5237961)

(45) 発行日 平成25年7月17日(2013.7.17)

(24) 登録日 平成25年4月5日(2013.4.5)

(51) Int.Cl. F I
CO8L 23/08 (2006.01) CO8L 23/08
CO8L 23/10 (2006.01) CO8L 23/10
CO8F 210/00 (2006.01) CO8F 210/00

請求項の数 7 (全 11 頁)

(21) 出願番号	特願2009-539686 (P2009-539686)	(73) 特許権者	506126071
(86) (22) 出願日	平成19年10月24日(2007.10.24)		バーゼル・ポリオレフィン・イタリア・ソ
(65) 公表番号	特表2010-511756 (P2010-511756A)		チエタ・ア・レスポンサビタ・リミター
(43) 公表日	平成22年4月15日(2010.4.15)		タ
(86) 国際出願番号	PCT/EP2007/061384		イタリア国 20124 ミラノ、ヴィア
(87) 国際公開番号	W02008/068113		・ペルゴレシ 25
(87) 国際公開日	平成20年6月12日(2008.6.12)	(74) 代理人	100140109
審査請求日	平成22年10月18日(2010.10.18)		弁理士 小野 新次郎
(31) 優先権主張番号	06125609.5	(74) 代理人	100089705
(32) 優先日	平成18年12月7日(2006.12.7)		弁理士 社本 一夫
(33) 優先権主張国	欧州特許庁 (EP)	(74) 代理人	100075270
(31) 優先権主張番号	60/874,563		弁理士 小林 泰
(32) 優先日	平成18年12月13日(2006.12.13)	(74) 代理人	100080137
(33) 優先権主張国	米国 (US)		弁理士 千葉 昭男

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 低い硬度及び低い光沢を有するポリオレフィン組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(A) プロピレンホモポリマー、又はプロピレンとエチレン及び $\text{CH}_2 = \text{CHR}$ の - オレフィン (式中、R は炭素数 2 ~ 8 のアルキルである) から選択される 1 種類以上のモノマーとのコポリマー (ここで、コポリマーは 8 重量% 以下の 1 種類又は複数のモノマーを含む)、或いはかかるポリマーの組み合わせ 10 ~ 25 重量% ;

(B) エチレンと、(i) プロピレン、又は (i i) $\text{CH}_2 = \text{CHR}$ の - オレフィン (式中、R は炭素数 2 ~ 8 のアルキル基である)、或いは (i i i) これらの組み合わせ、並びに場合によっては少量のジエンとのコポリマー (54 ~ 65 重量% のエチレンを含む) 75 ~ 90 重量% ;

を含み、いずれも (A) + (B) の合計重量に対する、コポリマー成分 (B) の含量 B と室温においてキシレン中に可溶のフラクション X S との重量比 : B / X S が 1 . 40 以下である、ポリオレフィン組成物。

【請求項 2】

X S フラクションの固有粘度 [] が 3 d L / g 未満である、請求項 1 に記載のポリオレフィン組成物。

【請求項 3】

前記成分 (A) 及び (B) を請求項 1 において定義された割合と同じ割合で含むが、3 d L / g 以上の X S フラクションの粘度 [] を有する前駆体組成物を分解にかけることによって得られる、請求項 2 に記載のポリオレフィン組成物。

【請求項 4】

少なくとも 2 つの逐次段階を含み、第 1 段階を除くそれぞれの段階において、前段階で形成されたポリマー及び前段階で用いた触媒の存在下で運転する別々の次段階で成分 (A) 及び (B) を製造する、請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載のポリオレフィン組成物を製造するための重合方法。

【請求項 5】

請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載のポリオレフィン組成物を含む製造物品。

【請求項 6】

押出又は射出成形によって製造される、請求項 5 に記載の製造物品。

【請求項 7】

シート、フィルム、又は自動車部品の形態の、請求項 5 又は 6 に記載の製造物品。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、低い硬度及び低い光沢を有するポリオレフィン組成物、及びそれらの製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

場合によっては少量のオレフィンモノマーを含むプロピレン、次にエチレン/プロピレン、又はエチレン/ - オレフィン混合物を逐次重合することによって、良好な熱可塑性挙動を保持しながら（即ち、熱可塑性ポリマーに関して用いられるものと同じ方法によって最終製品に変化させることができる）弾性特性を有するポリオレフィン組成物を得ることができることが公知である。

【0003】

塩化マグネシウム上に担持されているハロゲン化チタン化合物をベースとする触媒がこの目的のために用いられている。

【0004】

とりわけポリオレフィンに特有の価値のある特性（例えば、化学的不活性、機械特性、及び非毒性）のためにこのタイプの組成物に関する実際的な関心が増大していることを考えると、かかる組成物の用途を多くの異なる分野に拡大する努力が当該技術において増している。

【0005】

ヨーロッパ公開特許出願 4 0 0 3 3 3 においては、

(A) プロピレンの結晶質ポリマー又はコポリマー 1 0 ~ 6 0 重量部；

(B) 室温においてキシレン中に不溶の、エチレンを含むポリマーフラクション 1 0 ~ 4 0 重量部；

(C) 室温においてキシレン中に可溶で 4 0 ~ 6 0 重量 % のエチレンを含むエチレン/プロピレンコポリマーフラクション 3 0 ~ 6 0 重量部；

を含む、逐次重合によって得られる弾塑性ポリオレフィン組成物が記載されている。

【0006】

かかる組成物は可撓性で、良好な引張り歪み値に関係する低い曲げ弾性率値（7 0 0 M P a 未満で、通常は 2 0 0 M P a より高い）によって示されるように価値のある弾性特性を有するが、2 0 0 M P a 以下の曲げ弾性率値及び低い硬度値（ショア）に関係する特に良好な硬度値及び光学特性を有さず、特に光沢値に関しては、他方でシート押出、熱成形、自動車表面層、ブロー成形、フィルムのような用途のためには、押出シートについて測定して好ましくは 1 0 ~ 4 0 の範囲でなければならない。

【0007】

他方で、ヨーロッパ公開特許出願 4 7 2 9 4 6 においては、キシレン可溶フラクション (C)、及びしたがって全エチレン/プロピレンエラストマーコポリマーフラクションのエチレン含量を低くすることによって、曲げ弾性率と硬度との改良されたバランスを達成

10

20

30

40

50

することができることが示されている。しかしながら、この場合においても光沢値は実施例において示されるように高すぎる。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0008】

【特許文献1】ヨーロッパ公開特許出願400333

【特許文献2】ヨーロッパ公開特許出願472946

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

10

したがって、可撓性で（即ち、比較的低い曲げ弾性率値を有する）、軟質で（即ち、比較的低い硬度値を有する）、また低い光沢値も有する弾塑性ポリオレフィン組成物に関する必要性が存在する。

【課題を解決するための手段】

【0010】

かかる必要性に応じて、本発明は、重量%（全てのパーセント量は重量基準である）で

（A）プロピレンホモポリマー、又はプロピレンとエチレン及び $\text{CH}_2 = \text{CHR}$ の - オレフィン（式中、Rは炭素数2～8のアルキルである）から選択される1種類以上のモノマーとのコポリマー（ここで、コポリマーは8%以下の1種類又は複数のモノマーを含む）、或いはかかるポリマーの組み合わせ10～25%、好ましくは15～25%；

20

（B）エチレンと、（i）プロピレン、又は（i i） $\text{CH}_2 = \text{CHR}$ の - オレフィン（式中、Rは炭素数2～8のアルキル基である）、或いは（i i i）これらの組み合わせ、並びに場合によっては少量のジエンとのコポリマー（54～65%、好ましくは55～63%のエチレンを含む）75～90%、好ましくは75～85%；

を含み、いずれも（A）+（B）の合計重量に対する、コポリマー成分（B）の含量Bと室温（約25℃）においてキシレン中に可溶のフラクションXSとの重量比：B/XSが1.50以下、好ましくは1.40以下、特に1.50～0.9、又は1.40～0.9である、ポリオレフィン組成物を提供する。

【発明を実施するための形態】

30

【0011】

共重合したエチレンの全量は、好ましくは30重量%～65重量%、より好ましくは30重量%～60重量%、特に30重量%～55重量%である。

【0012】

本発明の組成物に関する他の好ましい特性は：

- 15%以下、より好ましくは10%以下、特に7%以下の光沢値；
- 90以下、より好ましくは85以下のショアA値；
- 35以下、特に35～15のショアD値；
- ASTM-D1238、条件L（230℃、2.16kgの負荷）にしたがって測定して0.01～1.0g/10分、より好ましくは0.05～5g/10分のMFR値；
- ASTM-D1238、条件Lにしたがって測定して2g/10分以上、より好ましくは3g/10分以上の成分（A）のMFR値；
- 200MPa以下の曲げ弾性率；
- 2～13MPaの破断点応力；
- 200%より高い破断点伸び；
- 厚さ1mmのプラークを曲げた際に実質的に白化（かぶり）がないこと；
- （A）+（B）の合計重量に対して40～70重量%、より好ましくは45～65重量%の室温においてキシレン中に可溶のフラクション（XS）の量；
- いずれも（A）+（B）の合計重量に対する、室温においてキシレン中に可溶のフラクションXSと全エチレン含量 C_2 との重量比：XS/ C_2 が、1.15以上、より好まし

40

50

くは 1.20 以上、特に 1.15 ~ 1.50、又は 1.20 ~ 1.50 であること；
- 3 d L / g 未満、特に 2.9 ~ 1.5 d L / g の X S フラクシオンの固有粘度 [] ；
- 90 % 以上、より好ましくは 95 % 以上の成分 (A) のアイソタクチシティーインデックス (I I) ；
である。

【 0 0 1 3 】

本発明の組成物を製造するための重合プロセスは、公知の技術にしたがい、不活性希釈剤の存在下又は不存在下において液相中で運転して、又は気相中で、或いは混合液 - 気法によって、連続又はバッチ法で行うことができる。

【 0 0 1 4 】

重合時間及び温度は重要ではなく、有利にはそれぞれ 0.5 ~ 5 時間及び 50 ~ 90 の範囲である。

【 0 0 1 5 】

成分 (A) を形成するためのプロピレンの重合は、エチレン、或いは、例えばブテン - 1、ペンテン - 1、4 - メチルペンテン - 1、ヘキセン - 1、及びオクテン - 1、又はこれらの組み合わせのような 1 種類又は複数の $\text{CH}_2 = \text{CHR}$ の α -オレフィン (式中、R は炭素数 2 ~ 8 個のアルキルである) の存在下で行うことができる。

【 0 0 1 6 】

成分 (B) を形成するためのエチレン、及びプロピレン或いは他の 1 種類又は複数の α -オレフィン (その例は、成分 (A) に関して上記に与えられている) の共重合は、共役又は非共役のジエン、例えばブタジエン、1,4 - ヘキサジエン、1,5 - ヘキサジエン、及びエチリデン - ノルボルネン - 1 の存在下で行うことができる。

【 0 0 1 7 】

存在する場合には、ジエンは、通常、(B) の重量に対して 0.5 ~ 10 重量 % の量である。

【 0 0 1 8 】

特に、本組成物は、1 以上が成分 (A) の合成のためであり、1 つ又は複数の他のものが成分 (B) の合成のためである少なくとも 2 つの段階で行う逐次重合プロセスによって製造することができる。次段階での重合は、1 つ又は複数の前段階において得られたポリマー及びそこで用いられた触媒の存在下で行う。分子量の調整は、通常用いられている分子量調整剤、例えば水素及び ZnEt_2 を用いることによって行う。

【 0 0 1 9 】

高い値の MFR は、重合において直接か、又はポリマーの逐次分解 (一般に化学ビスブレーキングによって行う) によって得ることができる。

【 0 0 2 0 】

ポリマーの化学ビスブレーキングは、ペルオキシドのような遊離基開始剤の存在下で行う。この目的のための用いることのできるラジカル開始剤の例は、2,5 - ジメチル - 2,5 - ジ (t e r t - ブチルペルオキシド) ヘキサン及びジクミルペルオキシドである。

【 0 0 2 1 】

ビスブレーキング処理は、適当量の遊離基開始剤を用いることによって行い、好ましくは窒素のような不活性雰囲気中で行う。当該技術において公知の方法、装置、及び運転条件を用いてこのプロセスを行うことができる。

【 0 0 2 2 】

分解プロセスの効果として、本発明のポリマー組成物の上記規定の X S フラクシオンの固有粘度 [] が低下する。

【 0 0 2 3 】

同じ成分 (A) 及び (B) を同じ割合 (即ち上記の成分及び割合) で含むが、3 d L / g 以上の X S フラクシオンの粘度 [] を有する前駆体組成物を分解にかけることによって得られる、3 d L / g 未満、特に 2.9 ~ 1.5 d L / g の X S フラクシオンの粘度 [] を有するポリマー組成物が特に好ましい。

10

20

30

40

50

【 0 0 2 4 】

しかしながら、3 d L / g 以上、特に 3 ~ 4 d L / g の X S フラクシヨンの粘度 [] を有するポリマー組成物もまた本発明の範囲内である。

【 0 0 2 5 】

上述したように、重合は、液相、気相、又は液 - 気相中で行うことができる。

【 0 0 2 6 】

例えば、希釈剤として液体プロピレンを用いる重合段階で成分 (A) を製造し、そしてプロピレンの部分脱気を除いて中間段階なしに、次の気相中の共重合段階で成分 (B) を製造することができる。

【 0 0 2 7 】

好ましくは、成分 (A) 及び (B) の両方とも、重合を気相中で運転することによって製造する。成分を製造する順番は重要ではない。

【 0 0 2 8 】

成分 (A) を製造するための 1 つ又は複数の重合段階、及び成分 (B) を製造するための 1 つ又は複数の重合段階における反応温度は、同一であっても異なってもよく、通常、成分 (A) の製造に関しては 4 0 ~ 9 0 、好ましくは 5 0 ~ 8 0 、成分 (B) の製造に関しては 4 0 ~ 7 0 である。

【 0 0 2 9 】

1 つの段階の圧力は、液体モノマー中で行う場合には、用いる運転温度における液体プロピレンの蒸気圧に匹敵するものであり、1 種類又は複数のモノマー及び分子量調整剤として用いる水素の過圧により、及び場合により触媒混合物を供給するのに用いる少量の不活性希釈剤の蒸気圧によって変化する。

【 0 0 3 0 】

重合圧力は、液相中で行う場合には、指示値で 5 ~ 3 0 気圧であってよい。

【 0 0 3 1 】

2 以上の段階に関する滞留時間は、成分 (A) 及び (B) の間の所望の比によって定まり、通常は 1 5 分 ~ 8 時間である。

【 0 0 3 2 】

かかる重合プロセスは、一般に、二ハロゲン化マグネシウム上に担持されている立体特異性チーグラマー・ナッタ触媒の存在下で行う。

【 0 0 3 3 】

重合において用いるかかる立体特異性触媒は、

(1) 二ハロゲン化マグネシウム (好ましくは塩化物) 上に担持されているチタン化合物及び電子ドナー化合物 (内部電子ドナー) を含む固体成分 ;

(2) アルミニウムアルキル化合物 (共触媒) ; 及び場合によっては

(3) 電子ドナー化合物 (外部電子ドナー) ;

の間の反応の生成物を含む。

【 0 0 3 4 】

かかる触媒は、好ましくは、9 0 % より高いアイソタクチックインデックスを有するホモポリマーポリプロピレンを製造することができる。

【 0 0 3 5 】

固体触媒成分 (1) は、電子ドナーとして、一般にエーテル、ケトン、ラクトン、N、P、及び / 又は S 原子を含む化合物、並びにモノ及びジカルボン酸エステルの中から選択される化合物を含む。

【 0 0 3 6 】

上記記載の特徴を有する触媒は特許文献において周知であり、米国特許 4 , 3 9 9 , 0 5 4 及びヨーロッパ特許 4 5 9 7 7 に記載されている触媒が特に有利である。

【 0 0 3 7 】

かかる電子ドナー化合物の中で、フタル酸エステル及びコハク酸エステルが特に適している。

10

20

30

40

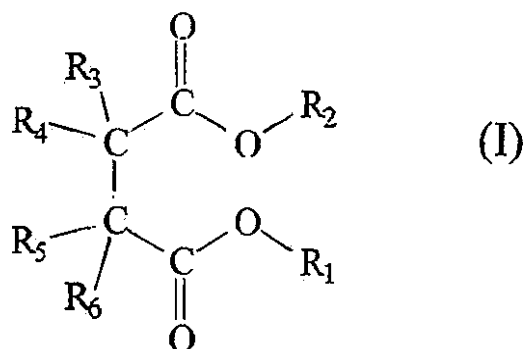
50

【 0 0 3 8 】

好適なコハク酸エステルは、式 (I) :

【 0 0 3 9 】

【 化 1 】



10

【 0 0 4 0 】

(式中、基 R_1 及び R_2 は、互いに同一か又は異なり、場合によってはヘテロ原子を含む、 $C_1 \sim C_{20}$ の線状又は分岐のアルキル、アルケニル、シクロアルキル、アリール、アリールアルキル、又はアルキルアリール基であり；基 $R_3 \sim R_6$ は、互いに同一か又は異なり、水素、或いは、場合によってはヘテロ原子を含む、 $C_1 \sim C_{20}$ の線状又は分岐のアルキル、アルケニル、シクロアルキル、アリール、アリールアルキル、又はアルキルアリール基であり、同じ炭素原子に結合している基 $R_3 \sim R_6$ は一緒に結合して環を形成してもよい)

20

によって表される。

【 0 0 4 1 】

R_1 及び R_2 は、好ましくは、 $C_1 \sim C_8$ のアルキル、シクロアルキル、アリール、アリールアルキル、及びアルキルアリール基である。 R_1 及び R_2 が、第 1 級アルキル、特に分岐第 1 級アルキルから選択される化合物が特に好ましい。好適な R_1 及び R_2 基の例は、メチル、エチル、 n -プロピル、 n -ブチル、イソブチル、ネオペンチル、2-エチルヘキシルである。エチル、イソブチル、及びネオペンチルが特に好ましい。

30

【 0 0 4 2 】

式 (I) によって示される化合物の好ましい群の 1 つは、 $R_3 \sim R_5$ が水素であり、 R_6 が、3 ~ 10 個の炭素原子を有する分岐のアルキル、シクロアルキル、アリール、アリールアルキル、及びアルキルアリール基であるものである。式 (I) の範囲内の化合物の他の好ましい群は、 $R_3 \sim R_6$ からの少なくとも 2 つの基が、水素とは異なり、場合によってはヘテロ原子を含む、 $C_1 \sim C_{20}$ の線状又は分岐のアルキル、アルケニル、シクロアルキル、アリール、アリールアルキル、又はアルキルアリール基から選択されるものである。水素とは異なる 2 つの基が同じ炭素原子に結合している化合物が特に好ましい。更に、水素とは異なる少なくとも 2 つの基が異なる炭素原子、即ち R_3 と R_5 又は R_4 と R_6 に結合している化合物も特に好ましい。

40

【 0 0 4 3 】

特に適している他の電子ドナーは、公開ヨーロッパ特許出願 EP - A - 3 6 1 4 9 3 及び 7 2 8 7 6 9 に示されているような 1, 3 - ジエーテルである。

【 0 0 4 4 】

共触媒 (2) としては、A 1 - トリエチル、A 1 - トリイソブチル、及び A 1 - トリ - n - ブチルのようなトリアルキルアルミニウム化合物が好ましく用いられる。

【 0 0 4 5 】

(A 1 - アルキル化合物に加えて) 外部電子ドナーとして用いることのできる電子ドナー化合物 (3) は、芳香族酸エステル (例えば安息香酸アルキル) 、複素環式化合物 (例えば、2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジン、及び 2, 6 - ジイソプロピルピペリジ

50

ン)、及び特に少なくとも1つのSi-O-R結合(ここで、Rは炭化水素基である)を含むケイ素化合物を含む。上述の1,3-ジエーテルは外部ドナーとして用いるのにも好適である。内部ドナーがかかる1,3-ジエーテルの1つである場合には、外部ドナーは省くことができる。

【0046】

触媒は、少量のオレフィンと予備接触(予備重合)させ、触媒を炭化水素溶媒中に懸濁状態で保持し、室温~60の温度で重合して、これにより触媒の重量の0.5~3倍の量のポリマーを製造することができる。

【0047】

操作はまた、液体モノマー中で行うこともでき、この場合には触媒の重量の1000倍以下の量のポリマーが生成する。

【0048】

本発明方法において用いることのできる他の触媒は、USP 5,324,800及びEP-A-0129368において記載されているようなメタロセンタイプの触媒であり、例えばUSP 5,145,819及びEP-A-0485823において記載されているような橋架ビスインデニルメタロセンが特に有利である。好適な触媒の他のクラスは、EP-A-0416815(Dow)、EP-A-0420436(Exxon)、EP-A-0671404、EP-A-0643066、及びWO 91/04257において記載されているような所謂幾何拘束型触媒である。これらのメタロセン化合物は、特に成分(B)を製造するために用いることができる。

【0049】

本発明の組成物には、例えば造核剤、エクステンションオイル、無機充填剤、有機及び無機顔料のような、オレフィンポリマーに関して通常用いられている添加剤、充填剤、及び顔料を含ませることもできる。

【0050】

本発明のポリオレフィン組成物は、特に押出、ブロー成形、射出成形、及び熱成形の分野において、シート、フィルム、及び自動車部品のような種々の物品を製造するための用途が見出される。

【実施例】

【0051】

以下において、本発明の実施及び利点を下記の実施例において開示する。これらの実施例は例示のみのものであり、本発明の特許請求の範囲をいかなるようにも限定することを意図してはいない。

【0052】

ポリマー組成物を特徴づけるために以下の分析法を用いた。

【0053】

メルトフローレート: ASTM-D1238、条件L(230、2.16kg);

[]固有粘度: テトラヒドロナフタレン中、135において測定;

エチレン含量: IR分光法;

光沢: ASTM-D523の方法(1mmの押出シート);

ショアA及びD: ISO-868(厚さ4mmの圧縮成形ブランク);

曲げ弾性率: ISO-178(厚さ4mmの圧縮成形ブランク);

破断点応力: ISO-527(1mmの押出シート);

破断点伸び: ISO-527(1mmの押出シート)。

【0054】

キシレンに可溶及び不溶のフラクション:

冷却装置及び磁気スターラーを取り付けたガラスフラスコ内に、2.5gのポリマー及び250cm³のキシレンを導入した。温度を30分で溶媒の沸点に上昇させた。かくして得られた明澄な溶液を、次に還流下に保持し、更に30分間攪拌した。次に、フラスコを閉止し、氷水浴内で30分間、更に25の温度制御水浴内で30分間保持した。かく

10

20

30

40

50

して形成された固体を急速濾紙上で濾過した。100 cm³の濾過された液体を、窒素流下、加熱プレート上で加熱した予め秤量したアルミニウム容器内に注ぎ入れ、蒸発によって溶媒を除去した。次に、容器を、真空下、80 のオープン内において、一定の重量が得られるまで保持した。次に、室温においてキシレン中に可溶のポリマーの重量%を計算した。

【0055】

室温においてキシレン中に不溶のポリマーの重量%は、ポリマーのアイソタクチシティーインデックスと考えられる。この値は、実質的に、定義上ポリプロピレンのアイソタクチシティーインデックスを構成する沸騰n-ヘプタンによる抽出によって求めたアイソタクチシティーインデックスに相当する。

10

【0056】

実施例1～2及び比較例1：

重合において用いた固体触媒成分は、ヨーロッパ公開特許出願395083の実施例3において記載されている方法と同様の方法によって製造された、約2.2重量%のチタン及び内部ドナーとしてジイソブチルフタレートを含む、塩化マグネシウム上に担持されている高立体特異性チーグラ-ナッタ触媒成分であった。

【0057】

触媒系及び予備重合処理：

上記に記載の固体触媒成分を、重合反応器中に導入する前に、約5に等しいTEAL / DCPMSの重量比で、TEAL / 固体触媒成分の重量比が5に等しいような量のアルミニウムトリエチル (TEAL) 及びジシクロペンチルジメトキシシラン (DCPMS) と、-5 において5分間接触させた。

20

【0058】

次に、触媒系を、第1の重合反応器中に導入する前に、それを25 において液体プロピレン中に約30分間懸濁状態に保持することによって予備重合にかけた。

【0059】

重合：

第1の気相重合反応器中に、予備重合した触媒系、水素（分子量調整剤として用いる）、及び気体状態のプロピレン（実施例1）又はプロピレンとエチレン（実施例2）を連続的な一定流で供給することによって、プロピレンポリマー（成分（A））を製造した。

30

【0060】

第1の反応器内で製造されたプロピレンポリマーを連続流で排出し、未反応のモノマーをパージした後、連続流で、気体状態の水素、エチレン、及びプロピレンの一定量の流れと一緒に第2の気相重合反応器中に導入した。

【0061】

第2の反応器内において、プロピレン / エチレンコポリマー（成分（B））を製造した。重合条件、反応物質のモル比、及び得られたポリマーの組成を表1に示す。

【0062】

第2の反応器から排出されたポリマー粒子を、蒸気処理にかけて反応性のモノマー及び揮発性物質を除去し、次に乾燥した。

40

【0063】

ポリマー粒子を、二軸押出機Berstorff ZE 25（スクリュ-の長さ / 直径比：33）内で通常の安定剤と混合し、窒素雰囲気下、以下の条件下で押出した。

【0064】

回転速度：250 rpm；

押出機産出量：6～20 kg / 時；

熔融温度：200～250 。

【0065】

かくして押出されたポリマーについて行った測定から、表2に報告するポリマー組成物に関する特性が得られた。

50

【 0 0 6 6 】

また、かくして得られたポリマー組成物を、Werner 58二軸押出機内において、0.015重量%（実施例1）及び0.03重量%（実施例2）の量のLuperox™ 101（2,5-ジメチル-2,5-ビス（tert-ブチルペルオキシ）ヘキサン）の存在下で押出/造粒にかけた。押出は、窒素雰囲気下、以下の条件下で行った。

【 0 0 6 7 】

回転速度：200rpm；

押出機産出量：150kg/時；

熔融温度：約240。

【 0 0 6 8 】

かくして得られたポリマーの特性を表3に報告する。

【 0 0 6 9 】

比較の目的のために、表2及び3に、逐次重合によって製造され、

（A）約3.5重量%のエチレンを含むプロピレンとエチレンのランダムコポリマー31重量%；

（B）約27重量%のエチレンを含むプロピレンとエチレンのエラストマーコポリマー69重量%；

を含むポリオレフィン組成物（比較例1C）の特性を報告する。

【 0 0 7 0 】

【表1】

表1

実施例番号		1	2
第1反応器			
温度	℃	75	75
圧力	barg	16	16
H ₂ /C ₃ -	モル	0.025	0.006
C ₂ /(C ₂ + C ₃ -)	モル	---	0.022
スプリット	重量%	20	21
C ₂ -含量(コポリマー)	重量%	---	2.5
MFR	g/10分	25	5.36
第2反応器			
温度	℃	65	65
圧力	barg	16	16
H ₂ /C ₂ -	モル	0.0759	0.046
C ₂ /(C ₂ + C ₃ -)	モル	0.35	0.415
スプリット	重量%	80	79
C ₂ -含量(コポリマー)	重量%	57	59

注：C₃-＝プロピレン；C₂-＝エチレン；

スプリット＝関係する反応器内で製造された
ポリマーの量；C₂-含量（コポリマー）＝関係する
反応器内で製造されたコポリマーに関する
エチレン含量；

【 0 0 7 1 】

【表 2】

表 2

実施例番号		1	2	1C
MFR L	g/10 分	0.24	0.1	0.6
キシレン可溶分	重量%	63.2	62.95	64
C2-含量	重量%	45.6	46.4	19.7
X.S.I.V.	dL/g	3.87	4.36	3.2

注：X.S.I.V.=キシレン中に可溶のフラクションの固有粘度；
MD=縦方向；TD=横方向；

10

【 0 0 7 2 】

【表 3】

表 3

実施例番号		1	2	1C
MFR L	g/10 分	0.5	0.7	0.6
キシレン可溶分	重量%	61	62.5	64
X.S.I.V.	dL/g	2.8	2.3	3.2
ショア A		75	73	>90
曲げ弾性率	MPa			80
破断点応力 MD/TD	MPa	4.8/3.5	3.8/2.6	21.4/20.3
破断点伸び MD/TD	%	510/472	378/261	723/762
光沢	%	4.9	4.5	73.5

20

フロントページの続き

- (74)代理人 100096013
弁理士 富田 博行
- (74)代理人 100094008
弁理士 沖本 一暁
- (74)代理人 100108899
弁理士 松本 謙
- (74)代理人 100112634
弁理士 松山 美奈子
- (74)代理人 100114904
弁理士 小磯 貴子
- (72)発明者 ゴベルティ, パオロ
イタリア国 44049 フェラーラ, ヴィガラーノ・マイナルダ, ヴィア・フォンド・レーノ
53
- (72)発明者 ペッレガッティ, ジャンパオロ
イタリア国 44030 ボアーラ(フェラーラ), ヴィア・ヴィルギリ 30
- (72)発明者 バラルディ, レティツィア
イタリア国 44100 サン・バルトロメオ・イン・ボスコ(フェラーラ), ヴィア・ヴィア・
スピナッツィーノ 212/2

審査官 宮本 純

- (56)参考文献 国際公開第2005/103140(WO, A1)
特開平06-025367(JP, A)
特表平11-511805(JP, A)
特表2005-520011(JP, A)
特表2004-536212(JP, A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
C08L 23/00 - 23/36