

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4150587号
(P4150587)

(45) 発行日 平成20年9月17日(2008.9.17)

(24) 登録日 平成20年7月4日(2008.7.4)

(51) Int.Cl. F I
CO8L 23/08 (2006.01) CO8L 23/08
CO8F 210/18 (2006.01) CO8F 210/18

請求項の数 3 (全 10 頁)

(21) 出願番号	特願2002-548029 (P2002-548029)	(73) 特許権者	503220392
(86) (22) 出願日	平成13年12月3日 (2001.12.3)		ディーエスエム アイピー アセツ ビー. ブイ.
(65) 公表番号	特表2004-515593 (P2004-515593A)		オランダ国, 6411 ティーイー ヘーレン, ヘット オーバールーン 1
(43) 公表日	平成16年5月27日 (2004.5.27)	(74) 代理人	100094318
(86) 国際出願番号	PCT/NL2001/000875		弁理士 山田 行一
(87) 国際公開番号	W02002/046301	(74) 代理人	100123995
(87) 国際公開日	平成14年6月13日 (2002.6.13)		弁理士 野田 雅一
審査請求日	平成16年11月25日 (2004.11.25)	(74) 代理人	100128381
(31) 優先権主張番号	1016799		弁理士 清水 義憲
(32) 優先日	平成12年12月5日 (2000.12.5)	(74) 代理人	100107456
(33) 優先権主張国	オランダ(NL)		弁理士 池田 成人
前置審査			

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ポリマー組成物、ポリマー組成物の製造方法及びその成形された部品

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

エチレン、 -オレフィン、及び非共役ジエンのモノマー単位を含む共重合体を含むポリマー組成物において、

該ポリマー組成物が、エチレン、 プロピレン、及び非共役ジエンのモノマー単位を含む共重合体 A 及び共重合体 B を少なくとも含み、

共重合体 A の重量平均分子量は共重合体 B のそれより高く、共重合体 A が 250,000 ~ 400,000 の重量平均分子量を有し、共重合体 B が 125,000 ~ 175,000 の重量平均分子量を有し、

少なくとも共重合体 A は以下の関係：

$$M_w / M_n < -0.066 + a \quad (1)$$

ここで

M_w は共重合体の重量平均分子量であり、

M_n はポリマーの数平均分子量であり、

$a = 4.1$ 、

δ は角度で表され、 0.1 rad/s 及び 100 rad/s において、 G''/G' の商から決定される損失角の差であり、ここで G' は貯蔵弾性率であり、 G'' は損失弾性率であり、動的粘弾性スペクトロメトリーを用いて測定される、

を満足し、

共重合体 A が、ビニルノルボルネンを $0.1 \sim 0.3$ モル% 含み、 $2.5 \sim 3.8$ であ

る M_w / M_n を有し、

共重合体 B が、ピニルノルボルネンを $0.2 \sim 0.6$ モル% 含み、 $2.5 \sim 3.8$ である M_w / M_n を有することを特徴とするポリマー組成物。

【請求項 2】

請求項 1 に記載のポリマー組成物から全体に又は部分的に製造された成形品。

【請求項 3】

共重合体 A 及び / 又は共重合体 B が硬化されていることを特徴とする、請求項 2 に記載の成形品。

【発明の詳細な説明】

【0001】

10

【発明の属する技術分野】

本発明は、エチレン、 α -オレフィン及び非共役ジエンのモノマー単位を含む共重合体を含むポリマー組成物に関する。本発明は、該ポリマー組成物の製造方法及びその成形された部品にもまた関する。

【0002】

【従来の技術】

そのような組成物は、例えば、“Rubber Technology Handbook” W. ホフマン、Carl Hanser Verlag (1989) 93 ~ 100 ページから公知である。この参考文献から、エチレン、プロピレン、及び非共役ジエンの共重合体、以後 EPDM と呼ばれる、を含むポリマー組成物が公知である。EPDM は一般的にさらに例えば可塑剤、強化フィラー、及び硬化剤と混合されて EPDM コンパウンドを得る。成形品に加工するためには、EPDM コンパウンドが良い加工性例えば良い流動を有することが重要である。成形品における使用のためには、コンパウンドから生成されるゴムが、良い加工性及び機械的性質、例えば高い伸び、高い引張り強さ及び低い圧縮永久ひずみを有することが重要である。当業者は、文献から公知であり理論的基礎を有する、加工性、物理的性質、及び機械的性質を制御するために使用され得る、幾つかの選択肢を有する。しかし、そのときに遭遇される問題は、該性質の一つの改良が他の性質の一つの低下になるだろうということである。

20

【0003】

【発明が解決しようとする課題】

30

EPDM コンパウンドは、例えば、もし EPDM が低い重量平均分子量を有するならば、良い流動を有するが、これから生成されるゴムは劣る機械的性質を有する。反対に、もし EPDM が高い重量平均分子量を有するならば、該 EPDM から生成されるゴムは、良い機械的性質を有するが、その場合には EPDM コンパウンドは劣る流動を有する。もし EPDM が広い又はバイモーダルな分子量分布を有するか又は EPDM コンパウンドが高い重量平均分子量を有する EPDM 及び低い重量平均分子量を有する EPDM を含むならば、EPDM コンパウンドはさらにより流動を有する。しかし、それから生成されるゴムは再び劣る機械的性質を有する。例えば EPDM 又は EPDM コンパウンドの分子性質をさらに変化させることにより、加工性、物理的性質、及び機械的性質に影響を与えるための他の方法もまたある。しかし、一般的にもし 1 つの性質が改善されるともう 1 つの性質が低下することは欠点であり続ける。

40

【0004】

本発明の目的は、エチレン、 α -オレフィン及び非共役ジエンのモノマー単位を含む共重合体を含み、良い加工性及びに良い物理的性質及び機械的性質を有する、ポリマー組成物を提供することである。

【0005】

【課題を解決するための手段】

驚いたことに、この目的は、該ポリマー組成物が、エチレン、 α -オレフィン、及び非共役ジエンのモノマー単位を含む共重合体 A 及び共重合体 B を少なくとも含み、共重合体 A の重量平均分子量は共重合体 B のそれより高く、少なくとも共重合体 A は以下の関係：

50

$$M_w / M_n < 0.066 + a \quad (1)$$

ここで

M_w は共重合体の重量平均分子量であり、

M_n はポリマーの数平均分子量であり、

$a = 4.8$ 、

は角度で表され、 0.1 rad/s 及び 100 rad/s において、 G''/G' の商から決定される損失角の差であり、ここで G' は貯蔵弾性率であり、 G'' は損失弾性率であり、動的粘弾性スペクトロメトリーを用いて測定される、を満足することにおいて達成される。

【0006】

“Keltak Technical Information Bulletin” 3月、1998、1~7ページから、EPDMは式(1)を満足すること及びそれ自身、かなり良い機械的性質及びかなり良い加工性の両方を有することが公知であるが、そのようなEPDMと低い重量平均分子量を有するEPDMとの混合物はさらに改善された加工性及びさらに改善された機械的及び物理的性質を有するが、2つのランダムなEPDMが混合されるときにはこれは事実ではないということは、最も驚異的である。

【0007】

しかし、本発明のポリマー組成物の他の有利性は、該ポリマー組成物が非常に良いコンパウンディング性を有することである。これは、コンパウンドを生成するために、該ポリマー組成物を混合及び混練する間に達成される良いカーボンブラックディスパーションから、特に明らかである。驚いたことに、共重合体Aと共重合体B及びカーボンブラックとの混合は、個々の共重合体A及びBのカーボンブラックディスパーションに基づいては確かに予測され得ない、相乗効果を与えることが見出された。

【0008】

【発明の実施の態様】

式1において、好適には $a = 4.5$ 、より好適には $a = 4.3$ 、及びさらに好適には $a = 4.1$ である。

式1からの 及びそれを測定する方法は、H.C.ブーイ、“Kautschuk Gummi Kunststoffe” 44、128(1991)により紹介された。

【0009】

本発明の組成物における共重合体A及びBは、好適には、エチレン及び -オレフィンのモノマー単位を $85/15 (\text{mol/mol}) \sim 20/80 (\text{mol/mol})$ の間のモル比において含む。さらに好適には、該比は、 $75/25 (\text{mol/mol}) \sim 40/60 (\text{mol/mol})$ 、さらにより好適には $65/35 (\text{mol/mol}) \sim 45/55 (\text{mol/mol})$ の間に存在する。

【0010】

-オレフィン例えば $3 \sim 20$ のC原子を含む。好適には -オレフィンは $3 \sim 10$ のC原子を含む。非常に適切な -オレフィンの例は、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、及びオクテン-1である。最も好適には、 -オレフィンはプロピレンである。

【0011】

本発明による該ポリマー組成物における共重合体Aは例えば $200,000 \sim 500,000$ の重量平均分子量を有する。好適には共重合体Aは $250,000 \sim 450,000$ の M_w を有する。さらにより好適には共重合体Aは $300,000 \sim 400,000$ の M_w を有する。

【0012】

共重合体Aの分子量分布 (M_w/M_n) は例えば $2 \sim 10$ に存在してもよい。好適には M_w/M_n は $2 \sim 4$ 、より好適には $2.5 \sim 3.8$ に存在する。

【0013】

エチレン及び -オレフィンのモノマー単位以外に、本発明の共重合体Aはポリエチンから

10

20

30

40

50

誘導される1以上のモノマー単位もまた含んでもよい。好適には共重合体Aは非共役ポリエンを0.1~4モル%含み、好適にはその0.01~1モル%がチーグラール・ナッタ触媒を用いて共重合されることのできる二重炭素-炭素結合を少なくとも2つ有する1つ以上のポリエンからなり、残りはチーグラール・ナッタ触媒を用いて共重合され得る二重炭素-炭素結合を1つ有する1つ以上のポリエンからなる。より好適には共重合体Aは、チーグラール・ナッタ触媒を用いて共重合され得る二重炭素-炭素結合を少なくとも2つ有するポリエンを0.03~0.5モル%含む。さらにより好適には共重合体Aは、チーグラール・ナッタ触媒を用いて共重合され得る二重炭素-炭素結合を少なくとも2つ有するポリエンを0.1~0.3モル%含む。チーグラール・ナッタ触媒を用いて両者とも共重合され得る不飽和炭素-炭素結合を少なくとも2つ有する非共役ポリエンの例は、1,4-ペンタジエン、ビニルノルボルネン(VNB)、1,5-ヘキサジエン、及びジシクロペンタジエン(DCPD)である。共重合体Aは好適にはビニルノルボルネンを、チーグラール・ナッタ触媒を用いて共重合され得る二重炭素-炭素結合を少なくとも2つ有するポリエンとして含む。

10

【0014】

好適には共重合体Aは、チーグラール・ナッタ触媒を用いて共重合され得る二重炭素-炭素結合を1つ有する非共役ジエンを1.5~2.8モル%含み、より好適には共重合体Aはチーグラール・ナッタ触媒を用いて共重合され得る二重炭素-炭素結合を1つ有する非共役ジエンを1.7~2.4モル%含む。チーグラール・ナッタ触媒を用いて共重合され得る二重結合を1つ有する適切なポリエンの例は、J.ブーア, Jr.による“Ziegler-Natta Catalyst and Polymerization” Academic Press 1979、19章において記載されている。例はエチリデンノルボルネン及び1,4-ヘキサジエンである。本発明による共重合体Aは好適にはエチレンノルボルネン(ENB)をチーグラール・ナッタ触媒を用いて共重合され得る二重炭素-炭素結合を1つ有する非共役ジエンとして含む。

20

【0015】

本発明のポリマー組成物における共重合体Bは例えば40,000~200,000の重量平均分子量(M_w)を有する。好適には共重合体Bは100,000~200,000、より好適には125,000~175,000の M_w を有する。

共重合体Bの分子量分布(M_w/M_n)は例えば2~10に存在してもよい。好適には M_w/M_n は2~5、より好適には2.5~3.8に存在する。

30

【0016】

エチレン及び α -オレフィンのモノマー単位以外に、共重合体Bはポリエンから誘導される1以上のモノマー単位もまた含む。適切なポリエンの例は、共重合体の次の硬化において使用される少なくとももう1つの二重C-C結合に加えて、チーグラール・ナッタ触媒を用いて重合され得る分子内に二重C-C結合を含むものである。適切なポリエン類の例はJ.ブーア, Jr.による“Ziegler-Natta Catalyst and Polymerization” Academic Press 1979、19章において記載されている。例は、エチリデンノルボルネン及び1,4-ヘキサジエンである。

好適には共重合体Bはエチリデンノルボルネンを非共役ポリエンとして含む。好適には共重合体Bは0.5~6モル%の非共役ポリエンを含む。より好適には共重合体Bは1.5~5モル%の非共役ポリエン、さらにより好適には2~4モル%の非共役ポリエンを含む。

40

【0017】

上述されたポリエン以外に、共重合体Bは例えば、チーグラール・ナッタ触媒を用いて共重合され得る二重炭素-炭素結合を少なくとも2つ有するポリエン類もまた1つ以上含んでもよい。例は1,4-ペンタジエン、ビニルノルボルネン(VNB)、1,5-ヘキサジエン、及びジシクロペンタジエン(DCPD)である。共重合体Bは好適にはビニルノルボルネンを含む。例えば、共重合体Bは、チーグラール・ナッタ触媒を用いて共重合され得る2つの二重炭素-炭素結合を少なくとも2つ有するポリエンを0.02~2モル%含む。

50

好適には共重合体 B は、チーグラー・ナッタ触媒を用いて共重合され得る 2 つの二重炭素-炭素結合を少なくとも 2 つ有するポリエンを 0.06 ~ 1 モル% 含む。さらにより好適には共重合体 B は、チーグラー・ナッタ触媒を用いて共重合され得る二重炭素-炭素結合を少なくとも 2 つ有するポリエンを 0.2 ~ 0.6 モル% 含む。

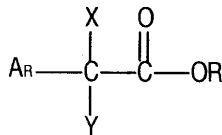
【0018】

共重合体 A 及び共重合体 B は、室温及びより高温において、DSC (示差走査熱量計) により測定されて、せいぜい 5% の結晶化度を好適に有する。

【0019】

本発明は、少なくとも共重合体 A が 3, 4, 5、又は 6 族からの遷移金属、1, 2, 12, 又は 13 族からの有機金属、及び式 2 による化合物；

10



(式 2)

ここで

X = 塩素原子

Y = H 原子、塩素原子又はフェニル

R = H、1 ~ 30 C 原子のアルキル基又は 6 ~ 30 C 原子の芳香族基

Ar = 6 ~ 30 C 原子の芳香族基

を含むチーグラー・ナッタ触媒を用いる重合により得られた、ポリマー組成物にもまた関する。

【0020】

式 2 の化合物における芳香族基 (Ar) は置換されていてもよい。そのような置換基の例は、アルキル、置換されたアルキル、アルコキシ、ハロゲン、アミノ、ニトリル、ニトロ、チオール、及びカルボキシル基である。フェニル又は p-トリル基が好ましい。

R は好適にはメチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、イソブチル、ヘキシル、オクチル、フェニル又はトリル基である。より好適には R はエチル基である。

30

【0021】

Y は好適には塩素原子又はフェニル基である。好適には、式 2 のモノクロロジフェニル酢酸エステル又はジクロロフェニル酢酸エステルが使用される。

【0022】

少なくとも共重合体 A の合成において使用される触媒系は、遷移金属化合物及び有機金属化合物を含む。加えて、他の成分、例えばルイス塩基が存在してもよい。適切なルイス塩基の例は、アミン類、ピリジン類、エーテル類、及びエステル類である。

【0023】

遷移金属化合物は、元素の周期系の 3, 4, 5 又は 6 族から選択される金属を含む。1 以上の遷移金属化合物が触媒系に存在してもよい。元素の周期系の 5 族からの金属が好適である。バナジウムがさらにより好適である。適切なバナジウム化合物の例は VOCl_3 、 VCl_4 、 $\text{VCl}_3 \cdot \text{THF}$ (ここで THF はテトラヒドロフラン基である)、 $\text{V}(\text{acac})_3$ 、(ここで acac はアセチルアセトネート基)、 $\text{VO}(\text{acac})_2$ 、 Cp_2VCl (ここで Cp は置換又は非置換のシクロペンタジエニル、インデニル、テトラヒドロインデニル又はフルオレニル基)、 $\text{VOCl}_2\text{OR}'$ (ここで R' は 1 ~ 20 C 原子を有する置換又は非置換アルキル基である) である。

40

【0024】

有機金属化合物は、元素の周期系の 1, 2, 12 又は 13 族から選ばれる金属を含む。1 以上の有機金属化合物が触媒系に存在してもよい。好適には少なくとも 1 つの有機金属化

50

合物はアルミニウムを含む。この有機アルミニウム化合物は、好適には式 $R'_{3-n}AlCl_n$ 、ここで $0 \leq n \leq 2$ であり、 R' は 1 ~ 20 の C 原子の置換又は非置換のアルキル基である、を満足する。適切な有機金属化合物は、トリエチルアルミニウム、トリイソブチルアルミニウム、トリオクチルアルミニウム、メチルアルミノキサン、ジエチルアルミニウムエトキサイド、ジイソブチルアルミニウムクロライド、ジメチルアルミニウムクロライド、ジエチルアルミニウムクロライド、メチルアルミニウムジクロライド、エチルアルミニウムジクロライド、イソブチルアルミニウムジクロライド、イソブチルアルミニウムセスキクロライド、エチルアルミニウムセスキクロライド等である。ジエチルアルミニウムクロライド及びエチルアルミニウムセスキクロライドが好適である。

【0025】

式 2 の化合物及び触媒系の他の成分は、溶解された条件（好適には溶媒は、対応する液相重合においてもまた使用される溶媒が選択される）及び該触媒系の成分の少なくとも 1 つがキャリアーに施与された形の両方において添加されることができる。当業者は、彼らの中において公知であるさまざまな技術に熟知している。キャリアー物資としては、例えば、シリカ、アルミナ、ゼオライト、 $MgCl_2$ 等が使用され得る。

【0026】

重合反応は例えば、 $40 \sim 200$ の温度、好適には $10 \sim 80$ の温度において実施される。圧力は例えば $3 \sim 30$ MPa である。好適には本方法は、連続的に実施されるが、半-連続的に又はバッチ式に実行されることもまた可能である。

【0027】

滞留時間は数秒から数時間にわたってもよい。一般的に、滞留時間は数分から 1 時間の間において選択される。

【0028】

重合は例えば触媒系に対して不活性である溶媒、例えば 1 以上の飽和脂肪族炭化水素類、例えばブタン、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、ペンタメチルヘプタン又は石油留分 (petroleum fraction)；芳香族炭化水素、例えばベンゼン又はトルエン、又はハロゲン化脂肪族又は芳香族炭化水素、例えばテトラクロロエチレン中において実行されてもよい。使用される 1 以上のモノマー、特に α -オレフィン、例えばプロピレンが液体であり、それが溶媒として作用するような多量において存在するような温度及び圧力が使用され得る。その場合には、他の溶媒は必要ない。重合は、ガス及び液体で充填された重合反応容器及び完全に液体で充填された反応容器の両方において実行されることができる。共重合体 B は上で述べられたほう本発明を用いて得られることもまたできる。

【0029】

共重合体 A 及び共重合体 B 以外に、該ポリマー組成物は可塑剤、強化フィラー、硬化剤、及び他の慣用のゴムコンパウンド化添加剤を含んでもよい。適切な可塑剤の例は鉱油、パラフィン油、又はナフタレン酸油である。強化フィラーの例はカーボンブラック、シリカ粒子である。適切な硬化剤の例は硫黄、硫黄含有化合物、及び過酸化物である。他の慣用の添加剤の例はステアリン酸及び脂肪酸のカルシウム石鹸である。

【0030】

そのようなポリマー組成物は、共重合体 A 及び共重合体 B、又は共重合体 A および B 及び他の上述された成分を、例えば連続の又は非連続のニーダー例えば、バンバリーミキサーにおいて、混合及び混練することにより製造されることができる。

【0031】

本発明は、本発明のポリマー組成物に完全に又は部分的に基づいて製造される成形品にもまた関する。これらにおいて、共重合体 A 及び / 又は B は硬化されてもよい。

【0032】

本発明のポリマー組成物は多くの種々の用途、例えば泡構造を有するプロファイル、ホース類、シールプロファイル類、シーリングリング例えば O リング及び屋根フィルムの製造に適している。

【0033】

10

20

30

40

50

本発明は以下の実施例及び比較実験に基づいてさらに説明されるが、これらに限定されるものではない。

【0034】

該ポリマー組成物の加工性及び機械的性質を評価するために以下の試験が実施された：

- ・ カーボンブラックディスパージョンは、ASTM C 257に従って90秒及び180秒における混合時間が体積抵抗率(VR)に対してプロットされて測定された；(k . cm)
- ・ 圧縮永久ひずみ(CS)はISO 815タイプBに従って100 において24時間測定された
- ・ 以下に記載される方法に従って、ゲル浸透クロマトグラフィー(GPC)により測定され得る、共重合体の分子量分布から計算された、共重合体の M_w 及び M_n に基づいて、該共重合体は特徴づけられた；

以下の装置及び実験条件が、このSEC DVサイズ排除クロマトグラフィー(size exclusion chromatography)及び微量粘度測定法(differential viscosimetry)のために用いられた：

【0035】

装置：

- ウォーターズ社のM150Cゲル浸透クロマトグラフ(GPC)クロマトグラフィ
- 内部的に加熱される微量反射率(differential refractive index、DRI)検出器(ウォーターズ社)
- 加熱されたトランスファーラインを介して接続された、外部微量粘度測定器DV検出器(Viscotek)
- 0.300ml注入体積

カラム：4 TSK GMHxL HT混合ベッドカラム

溶媒：DBPCにより安定化された1,2,4 トリクロロベンゼン

ソフトウェア：Viscotek TriSEC バージョン2.7

較正：線状ポリエチレン(PE)標準分子量によるユニバーサル較正

0.4 4000 kg/mol

- Mark-Houwink PE a : 0.725

Log K : -3.391

試料製造：

- 濃度 0.01-0.15mg/ml
- 窒素下、150 において4時間溶解

次に再生されたセルロースフィルターを用いて150 において濾過。

この方法はさらに詳細にW.W.ヨー、J.J.カーランド、及びD.D.ブライ、John Wiley & Sons、ニューヨーク(1979)による“Modern Size-Exclusion Liquid Chromatography”に記載されている。

【0036】

実施例において用いられた共重合体組成物；

10

20

30

40

	Mw	Mw/Mn	$\Delta\delta$	a	モル% エチレン	モル% ENB	モル% VNB
EPDM1	225,000	3.0	36	5.4	59.5	1.4	
EPDM2	175,000	2.9	36	5.3	59.5	1.4	
EPDM A	290,000	2.9	16	4.0	67.3	1.7	0.15
EPDM B	150,000	2.7	16	3.8	65.4	1.7	0.30

10

【0037】

比較実験 1

100部のEPDM1が80部のパラフィン油、30部のCaCO₃及び70部のカーボンブラックと共に混合され、バンパリーミキサーの中で180秒間混練された。該コンパウンドは次に50 においてロールの上に置かれ、その上に8部の標準硬化システムが添加された。次にさらに混合が1分間行われた。

得られたコンパウンドはプレスの中において180 において12分間硬化された。圧縮永久ひずみは上述されたように100 において24時間測定された。体積抵抗率(VR)は90秒及び180秒において測定された。

20

結果は表1に示される。

【0038】

比較実験 2

比較実験1と同様に、しかし100部のEPDM1の代わりに50部のEPDM1及び50部のEPDM2の混合が使用された。

EPDM1及びEPDM2に基づく硬化されたコンパウンドについて、圧縮永久ひずみが測定された。体積抵抗率は90秒及び180秒において測定された。

結果は表1に示される。

30

【0039】

比較実験 3

比較実験1と同様に、しかし100部のEPDM1の代わりに100部のEPDM Aが使用された。EPDM Aに基づく硬化されたコンパウンドについて、圧縮永久ひずみが測定された。体積抵抗率は90秒及び180秒において測定された。

結果は表1に示される。

【0040】

実施例 1

比較実験1と同様に、しかし100部のEPDM1の代わりに50部のEPDM共重合体A及び50部のEPDM共重合体Bの混合が使用された。EPDM共重合体A及びBに基づく硬化されたコンパウンドについて、圧縮永久ひずみが測定された。体積抵抗率は90秒及び180秒において測定された。結果は表1に示される。

40

【表1】

表 1	CS	VR 90 秒	VR 180 秒
比較実験 1 EPDM1	30	12,500	12,900
比較実験 2 EPDM1+EPDM2	32	4360	29,700
比較実験 3 EPDM A		26,300	39,500
実施例 1 EPDM A + EPDM B	25	28,100	74,500

10

【 0 0 4 1 】

表 1 から、90 秒の混合後の2つのランダムに選択された E P D M 共重合体 1 + 2 (比較実験 2) に基づくポリマー組成物のカーボンブラックディスパージョンは、個々の E P D M 共重合体 1 のそれより劣ることは明らかである (比較実験 1)。より長い混合時間 1 8 0 秒において、E P D M 1 及び E P D M 2 の混合のカーボンブラックディスパージョンの方がよい (比較実験 2)。

20

E P D M 共重合体 A (比較実験 3) に基づくポリマー組成物は、E P D M 共重合体 1 (比較実験 1) 又は E P D M 共重合体 1 及び 2 の混合物 (比較実験 2) よりよいカーボンブラックディスパージョンを有さないが、E P D M 共重合体 A が E P D M 共重合体 B と混合されるときは (実施例 1)、良いカーボンブラックディスパージョンが短い混合時間においてすでに得られる。1 8 0 秒の混合時間後、優れたカーボンブラックディスパージョンが得られる。さらに、該混合物の圧縮永久ひずみもまたかなり向上することが見出される。

【 0 0 4 2 】

30

まとめ：もし異なる分子量を有するランダムに選択された E P D M が混合されるならば、該カーボンブラックディスパージョンは、比較的短い混合サイクル後の単独の E P D M のカーボンブラックディスパージョンに劣る。

しかし、もし本発明により、2つの E P D M が、混合され、少なくともより高い分子量の E P D M は式 1 の条件を満足すると、反対に、強く改善されたディスパージョンが、短い混合時間の後ばかりでなく、より長い混合時間の後にも得られる。さらに、圧縮永久ひずみに対して非常によりよい値が得られる。

フロントページの続き

- (72)発明者 ディース, ミッシェル, ヤン
オランダ国, 6241 ディーゼー ブンデ, ハイリゲンストラート 13
- (72)発明者 ヌーダーミーア, ジェイコブス, ウィルヘルマス, マリア
オランダ国, 6118 ビービー ニューシュタット, ミルナーウエグ 6

審査官 中川 淳子

- (56)参考文献 特開平10-204201(JP,A)
特表平09-502464(JP,A)

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