(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7289830号
(P7289830)

(45)発行日　令和5年6月12日(2023.6.12)

(24)登録日　令和5年6月2日(2023.6.2)

(51)国際特許分類		FI	
C08L 23/10 (2006.01)		C08L	23/10
C08L 23/18 (2006.01)		C08L	23/18
C08K 5/098(2006.01)		C08K	5/098
C08K 3/00 (2018.01)		C08K	3/00

請求項の数　7　（全28頁）

(21)出願番号	特願2020-514680(P2020-514680)
(86)(22)出願日	平成30年9月7日(2018.9.7)
(65)公表番号	特表2020-534392(P2020-534392A)
(43)公表日	令和2年11月26日(2020.11.26)
(86)国際出願番号	PCT/US2018/049913
(87)国際公開番号	WO2019/055304
(87)国際公開日	平成31年3月21日(2019.3.21)
審査請求日	令和3年8月31日(2021.8.31)
(31)優先権主張番号	62/559,898
(32)優先日	平成29年9月18日(2017.9.18)
(33)優先権主張国・地域又は機関	米国(US)

(73)特許権者　502141050
ダウ グローバル テクノロジーズ エルエルシー
アメリカ合衆国 ミシガン州 ４８６７４，ミッドランド，エイチ エイチ ダウ ウェイ ２２１１
(74)代理人　100092783
弁理士　小林 浩
(74)代理人　100095360
弁理士　片山 英二
(74)代理人　100120134
弁理士　大森 規雄
(74)代理人　100104282
弁理士　鈴木 康仁
(72)発明者　ムンロ、ジェフリー シー.

最終頁に続く

(54)【発明の名称】　コーティングされたポリマー粒子を含む組成物およびそれから形成されたＴＰＯ組成物

(57)【特許請求の範囲】

【請求項１】

組成物であって、

Ａ）コーティングされたポリマー粒子であって、前記ポリマー粒子は、０．８５４～０．８６０ｇ／ｃｃの密度、および４．０～１５．０ｇ／１０分のメルトインデックス（Ｉ２）の特性を含むエチレン系ポリマーを含む第１の組成物から形成され、

前記ポリマー粒子は、前記ポリマー粒子の全表面の少なくとも一部分上にコーティングを含み、

前記エチレン系ポリマーは、エチレン－オクテンコポリマーであり、

前記コーティングは、少なくとも１種の無機粉末と、金属ステアリン酸塩からなる有機粉末とを含む粉末組成物から形成され、前記無機粉末の総量と前記有機粉末の総量との重量比は３．０～５０．０である、コーティングされたポリマー粒子と、

Ｂ）プロピレン系ポリマーと、を含む、組成物。

【請求項２】

前記成分Ｂのプロピレン系ポリマーが、２０～１２０ｇ／１０分のＭＦＲ、および０．８８０～０．９２０ｇ／ｃｃの密度を有する、請求項１に記載の組成物。

【請求項３】

組成物が３０ｇ／１０分以上のＭＦＲを有する、請求項１または請求項２に記載の組成物。

【請求項４】

組成物が３０～６０ｇ／１０分のＭＦＲを有する、請求項１～３のいずれか一項に記載の組成物。
【請求項５】
組成物が、前記組成物の重量に基づいて、５０重量％以上の成分Ｂと、５０重量％以下の成分Ａとを含む、請求項１～４のいずれか一項に記載の組成物。
【請求項６】
成分Ａについて、前記第１の組成物が、前記第１の組成物の重量に基づいて、９５重量％以上の前記エチレン系ポリマーを含む、請求項１～５のいずれか一項に記載の組成物。
【請求項７】
成分Ａについて、前記無機粉末が、タルク、マイカ、炭酸カルシウム、微粉シリカ、ヒュームドシリカ、石英、およびそれらの組み合わせからなる群から選択される、請求項１～６のいずれか一項に記載の組成物。
【発明の詳細な説明】
【背景技術】
【０００１】
エチレン／α－オレフィンエラストマーは、数十年にわたって、ポリプロピレン、特に一般にＴＰＯと呼ばれるタルク充填ポリプロピレンコンパウンドに対する衝撃改質剤として使用されてきた。ＴＰＯコンパウンドは、自動車産業で広く普及しており、バンパーフェイシア、内装ドアパネル、エアバッグカバー、およびその他の多くの構成要素など、内装および外装自動車部品の製造に使用されている。部品の大部分は射出成形で製造されている。自動車メーカーは、燃費を改善するために車両の重量を減らし続けているため、ＴＰＯ部品の厚さを減らすことが望まれている。同時に、車両の美観を改善し、より多くの電子機器およびセンサーを組み込むために、設計の複雑さが増している。「薄肉」および設計の複雑さの両方には、特に射出成形プロセスにおいて、より高い流動性をもつＴＰＯコンパウンドが必要である。伝統的に、例えばポリプロピレンマトリックスのメルトフローレートを増加させることにより、ＴＰＯの流動性を増加させると、衝撃性能が低下し、これは望ましくない。
【０００２】
流動性が改善されるが、従来のＴＰＯ配合物と同じレベルの剛性と靭性を維持するＴＰＯ配合物が必要である。エラストマー、およびそれを含む配合物は、以下の参考文献に記載されている：ＷＯ２０１７／０４９０６４。ＵＳ６１３６９３７およびＵＳ５９２５７０３。しかし、上記の「改善された流動性」のＴＰＯ配合物の必要性が残っている。このニーズは、以下の組成物によって満たされた。
【発明の概要】
【０００３】
組成物であって、
Ａ）コーティングされたポリマー粒子であって、ポリマー粒子は、０．８５４～０．８６０ｇ／ｃｃの密度、および４．０～１５．０ｇ／１０分のメルトインデックス（Ｉ２）の特性を含むエチレン系ポリマーを含む第１の組成物から形成され、
ポリマー粒子は、ポリマー粒子の全表面の少なくとも一部分上にコーティングを含み、
コーティングは、少なくとも１種の無機粉末と、金属ステアリン酸塩および／またはポリマー粉末から選択される少なくとも１種の有機粉末と、を含む粉末組成物から形成され、無機粉末の総量と有機粉末の総量との重量比は３．０～５０．０である、コーティングされたポリマー粒子と、
Ｂ）任意選択の、プロピレン系ポリマーと、を含む、組成物である。
【図面の簡単な説明】
【０００４】
【図１】流動性試験用の急角度のガラス漏斗を示す。
【発明を実施するための形態】
【０００５】

本発明の組成物は、経済的に製造することができ、かつ流動性、剛性、および靭性の全体的なバランスが改善されたＴＰＯ配合物に使用することができる。

【０００６】

組成物であって、

Ａ）コーティングされたポリマー粒子であって、ポリマー粒子は、０．８５４～０．８６０ｇ／ｃｃの密度、および４．０～１５．０ｇ／１０分のメルトインデックス（Ｉ２）の特性を含むエチレン系ポリマーを含む第１の組成物から形成され、

ポリマー粒子は、ポリマー粒子の全表面の少なくとも一部分上にコーティングを含み、

コーティングは、少なくとも１種の無機粉末と、金属ステアリン酸塩および／またはポリマー粉末から選択される少なくとも１種の有機粉末と、を含む粉末組成物から形成され、無機粉末の総量と有機粉末の総量との重量比は３．０～５０．０である、コーティングされたポリマー粒子と、

Ｂ）任意選択の、プロピレン系ポリマーと、を含む、組成物である。

【０００７】

本発明の組成物は、本明細書において記載される２つ以上の実施形態の組み合わせを含み得る。

【０００８】

コーティングされたポリマー粒子は、ポリマー粒子と粉末組成物とを含む。コーティングされた粒子はまた、粉末組成物が粒子の表面に適用される前に、典型的にはポリマー粒子の表面に適用される油（例えば、シリコーン油）を含んでもよい。

【０００９】

一実施形態では、組成物は、成分Ｂのプロピレン系ポリマーを含む。

【００１０】

一実施形態では、成分Ｂのプロピレン系ポリマーは、２０～１２０ｇ／１０分、または３０～１１０ｇ／１０分、または４０～１００ｇ／１０分、５０～９０ｇ／１０分、６０～８０ｇ／１０分、６０～７０ｇ／１０分のＭＦＲを有する。さらなる実施形態では、プロピレン系ポリマーはポリプロピレンホモポリマーである。

【００１１】

一実施形態では、成分Ｂのプロピレン系ポリマーは、０．８８０～０．９２０ｇ／ｃｃ、または０．８８５～０．９１５ｇ／ｃｃ、または０．８９０～０．９１０ｇ／ｃｃ、または０．８９５～０．９０５ｇ／ｃｃの密度を有する。さらなる実施形態では、プロピレン系ポリマーはポリプロピレンホモポリマーである。

【００１２】

一実施形態では、成分Ｂのプロピレン系ポリマーは、２０～１２０ｇ／１０分、または３０～１１０ｇ／１０分、または４０～１００ｇ／１０分、５０～９０ｇ／１０分、６０～８０ｇ／１０分、６０～７０ｇ／１０分のＭＦＲを有し、０．８８０～０．９２０ｇ／ｃｃ、または０．８８５～０．９１５ｇ／ｃｃ、または０．８９０～０．９１０ｇ／ｃｃ、または０．８９５～０．９０５ｇ／ｃｃのＭＦＲを有する。さらなる実施形態では、プロピレン系ポリマーはポリプロピレンホモポリマーである。

【００１３】

一実施形態では、組成物は３０ｇ／１０分以上のＭＦＲ、または３５ｇ／１０分以上のＭＦＲを有する。一実施形態では、組成物は、１００ｇ／１０分以下のＭＦＲ、または９０ｇ／１０分以下のＭＦＲ、または８０ｇ／１０分以下のＭＦＲ、または７０ｇ／１０分以下のＭＦＲ、または６０ｇ／１０分以下のＭＦＲを有する。

【００１４】

一実施形態では、組成物は、３０～６０ｇ／１０分、または３０～５５ｇ／１０分、または３０～５０ｇ／１０分のＭＦＲを有する。一実施形態では、組成物は、３５～６０ｇ／１０分、または３５～５５ｇ／１０分、または３５～５０ｇ／１０分のＭＦＲを有する。

【００１５】

一実施形態では、組成物は、５０重量％以上の成分Ｂ、および５０重量％以下の成分Ａを含み、各重量％は組成物の重量に基づく。一実施形態では、組成物は、５５重量％以上の成分Ｂ、および４５重量％以下の成分Ａを含み、各重量％は組成物の重量に基づく。一実施形態では、組成物は、５８重量％以上の成分Ｂ、および４０重量％以下の成分Ａを含み、各重量％は組成物の重量に基づく。一実施形態では、組成物は、６０重量％以上の成分Ｂ、および３５重量％以下の成分Ａを含み、各重量％は組成物の重量に基づく。

【００１６】

一実施形態では、組成物は、「－１０℃でのダート延性％」が５０～１００、または６０～１００、または７０～１００、８０～１００、または９０～１００、または９５～１００である。

【００１７】

一実施形態では、組成物は、５０～１００、または６０～１００、または７０～１００、８０～１００、または９０～１００、または９５～１００の「－２０℃でのダート延性％」を有する。

【００１８】

一実施形態では、組成物は、３０～９０、または４０～９０、または５０～９０、または６０～９０、または７０～９０、または８０～９０の「－３０℃でのダート延性％」を有する。

【００１９】

一実施形態では、組成物は、２０～５０、または２５～４５の「２３℃でのアイゾット強度、ｋＪ／ｍ^2」を有する。

【００２０】

一実施形態では、組成物は、９～４０、または９～３５の「０℃でのアイゾット強度、ｋＪ／ｍ^2」を有する。

【００２１】

一実施形態では、組成物は、１６０，０００～２４０，０００ｋｐｓｉ、または１７０，０００～２２０，０００ｋｐｓｉの「曲げ弾性率、ｋｐｓｉ」を有する。

【００２２】

一実施形態では、成分Ａについて、第１の組成物は、第１の組成物の重量に基づいて、９５重量％以上、９６重量％以上、９７重量％以上、９８重量％以上、または９９重量％以上のエチレン系ポリマーを含む。

【００２３】

一実施形態では、成分Ａについて、エチレン系ポリマーはエチレン／α－オレフィンインターポリマーであり、さらにエチレン／α－オレフィンコポリマーである。

【００２４】

一実施形態では、成分Ａについて、有機粉末は金属ステアリン酸塩であり、さらにステアリン酸カルシウムまたはステアリン酸亜鉛、さらにステアリン酸カルシウムである。

【００２５】

一実施形態では、成分Ａについて、無機粉末は、タルク、マイカ、炭酸カルシウム、微粉シリカ、ヒュームドシリカ、石英、およびそれらの組み合わせからなる群から選択される。一実施形態では、成分Ａについて、無機粉末は、タルク、マイカ、微粉シリカ、ヒュームドシリカ、およびそれらの組み合わせからなる群から選択される。一実施形態では、成分Ａについて、無機粉末はタルクである。

【００２６】

一実施形態では、成分Ａについて、コーティングされたポリマー粒子は結合剤をさらに含む。さらなる実施形態では、結合剤はシリコーン油（シリコーン流体）である。

【００２７】

一実施形態では、コーティングされたポリマー粒子は、３７℃で１２週間後に、２００ｇ／秒以上、または２１０ｇ／秒以上の流動性を有する。

【００２８】

一実施形態では、コーティングされたポリマー粒子は、無拘束降伏強度（Ｕｎｃｏｎｆｉｎｅｄ　Ｙｉｅｌｄ　Ｓｔｒｅｎｇｔｈ）（３７℃、６週間）、４００ポンド／フィート^{2}以下、または≦３８０ポンド／フィート^{2}以下、または３６０ポンド／フィート^{2}以下を有する。

【００２９】

また、前述の請求項のいずれか１つの組成物から形成された少なくとも１つの構成要素を含む物品も提供される。一実施形態では、物品は射出成形品である。一実施形態では、物品は自動車部品である。

【００３０】

本発明の組成物は、本明細書において記載される２つ以上の実施形態の組み合わせを含み得る。

【００３１】

構成要素Ａは、本明細書に記載の２つ以上の実施形態の組み合わせを含むことができる。成分Ｂは、本明細書に記載の２つ以上の実施形態の組み合わせを含むことができる。

【００３２】

組成物

一実施形態では、組成物は１つ以上の添加剤を含む。添加剤には、酸化防止剤、紫外線吸収剤、帯電防止剤、着色剤（二酸化チタン、カーボンブラック、および顔料など）、粘度調整剤、粘着防止剤、剥離剤、摩擦係数（ＣＯＦ）調整剤、熱安定剤、臭気調整剤／吸収剤、およびそれらの任意の組み合わせが含まれるが、これらに限定されない。

【００３３】

一実施形態では、組成物は充填剤を含む。さらなる実施形態では、充填剤は鉱物充填剤（例えばタルク）である。一実施形態では、組成物は、組成物の重量に基づいて、１～４０重量％、または２～３５重量％、または３～３０重量％、または４～２５重量％、または５～２０重量％の充填剤（例えば、タルク）を含む。

【００３４】

一実施形態では、組成物は充填剤を含む。さらなる実施形態では、充填剤は鉱物充填剤（例えば、タルク）である。一実施形態では、組成物は、組成物の重量に基づいて、４～４０重量％、または５～３５重量％、または６～３０重量％、または７～２５重量％、または８～２０重量％、または８～１５重量％、または８～１２重量％の充填剤（例えば、タルク）を含む。

【００３５】

一実施形態では、ポリマー組成物は少なくとも１種の他の熱可塑性ポリマーを含む。さらなる実施形態では、少なくとも１種の他の熱可塑性ポリマーは、ポリスチレンホモポリマーまたはポリエチレンホモポリマー（例えば、Ａ　ＨＤＰＥ）からなる群から選択される。

【００３６】

一実施形態では、成分Ｂのプロピレン系ポリマーは、ポリプロピレンホモポリマー、プロピレン／α－オレフィンコポリマー、プロピレン／エチレンコポリマー、または耐衝撃性改質プロピレン系ポリマーから選択される。一実施形態では、成分Ｂのプロピレン系ポリマーは、ポリプロピレンホモポリマー、プロピレン／α－オレフィンコポリマー、またはプロピレン／エチレンコポリマーから選択される。一実施形態では、成分Ｂのプロピレン系ポリマーは、ポリプロピレンホモポリマーまたはプロピレン／エチレンコポリマーから選択される。一実施形態では、成分Ｂのプロピレン系ポリマーはポリプロピレンホモポリマーである。

【００３７】

一実施形態では、成分Ｂのプロピレン系ポリマーは、１～１５０ｇ／１０分、または５～１３０ｇ／１０分、または１０～１２０ｇ／１０分、または２０～１００ｇ／１０分、または３０～８０ｇ／１０分、または４０～７０ｇ／１０分、または５０～６０ｇ／１０分（２３０℃、２．１６ｋｇ）のＭＦＲを有する。さらなる実施形態では、プロピレン

系ポリマーはポリプロピレンホモポリマーである。

【００３８】

コーティングされたポリマー粒子

一実施形態では、ポリマー粒子は、ペレット、ビーズ、フレーク、または粉末である。ポリマー粒子のＤ５０値は、粉末組成物のＤ５０値よりも大きく、好ましくはポリマー粒子のＤ５０値は、本明細書に記載の粉末組成物のＤ５０値の２倍以上、さらに５倍以上、さらに１０倍以上である。典型的なポリマー粒子は、一般に、実質的に小板、球状、円柱状、または棒状である。断面積はポリマーによって異なるが、ポリマー粒子の断面積は、好ましくは３ｘ１０$^{-3}$平方インチ（１．９３ｘ１０$^{-2}$平方センチメートル）～０．２平方インチ（１．２９平方センチメートル）であり、例えば、断面が円形の場合、直径は１／１６インチ（０．１５８７５ｃｍ）～１／２インチ（１．２７ｃｍ）である。一実施形態では、粒子は、０．０１平方インチ（６．４５×１０$^{-2}$平方センチメートル）～０．０５平方インチ（０．３２２平方センチメートル）の断面積を有する。例えば、断面が円形の場合、直径は０．１２５インチ（０．３１７５ｃｍ）～０．３７５インチ（０．９５２５ｃｍ）である。一実施形態では、粒子は直径０．２５ｃｍ～０．４０ｃｍである。

【００３９】

上記で議論したように、ポリマー粒子は、粉末からペレットまでのサイズの範囲の粒子状固体の形である。ペレットは粒子状の固体であり、それだけではないが、一般的には押出成形およびペレット化プロセスによって形成され、一般的な平均粒子サイズ（最長寸法の平均）は２ｍｍを超え、通常２ｍｍ～１０ｍｍ、さらに２ｍｍ～６ｍｍ、さらに２ｍｍ～４ｍｍである。通常、マイクロペレットの平均粒子サイズは標準ペレットの粒子サイズよりも小さいが、一般的な市販のダイ機能で製造される平均粒子サイズよりも大きい。マイクロペレットの平均粒子サイズは、通常２００ミクロン～２ｍｍの範囲である。マイクロペレットは一般に半球状の形状を示す。

【００４０】

第１の組成物

一実施形態では、ポリマー粒子は、エチレン系ポリマー、さらにエチレン系インターポリマー、およびさらにエチレン系コポリマーを含む第１の組成物から形成される。好適なエチレン系インターポリマーまたはコポリマーとしては、エチレン／α－オレフィンインターポリマーまたはコポリマー、これらに限定されないが、例えば、エチレン／Ｃ$_3$～Ｃ$_8$α－オレフィンインターポリマーもしくはコポリマーが含まれる。好ましいα－オレフィンは、プロピレン、１－ブテン、１－ペンテン、１－ヘキセン、１－ヘプテン、および１－オクテンなどの３～８個の炭素原子を有するものである。

【００４１】

一実施形態では、エチレン系ポリマーは、エチレン／α－オレフィン／ジエンターポリマー、例えばエチレン／プロピレン／ジエンターポリマーである。

【００４２】

一実施形態では、エチレン系ポリマーは、０．８５４～０．８６０ｇ／ｃｃ、または０．８５５～０．８６０ｇ／ｃｃ、または０．８５６～０．８６０ｇ／ｃｃ、または０．８５７～０．８６０ｇ／ｃｃ、または０．８５８～０．８６０ｇ／ｃｃの密度を有する（１ｃｃ＝１ｃｍ^3）。さらなる実施形態では、エチレン系ポリマーは、エチレン系インターポリマーであり、さらに、エチレン／α－オレフィンインターポリマー、および／またはエチレン／α－オレフィンコポリマーである。好ましいα－オレフィンは、プロピレン、１－ブテン、１－ペンテン、１－ヘキセン、１－ヘプテン、および１－オクテンなどの３～８個の炭素原子を有するものである。

【００４３】

一実施形態では、エチレン系ポリマーは、４．０～１４．５ｇ／１０分、または４．０～１４．０ｇ／１０分、または４．５～１３．５ｇ／１０分のメルトインデックス（Ｉ２、１９０℃および２．１６ｋｇ）を有する。さらなる実施形態では、エチレン系ポリマーはエチレン系インターポリマーであり、さらにエチレン／α－オレフィンコポリマーで

ある。好ましいα－オレフィンは、プロピレン、１－ブテン、１－ペンテン、１－ヘキセン、１－ヘプテン、および１－オクテンなどの３～８個の炭素原子を有するものである。

【００４４】

一実施形態では、エチレン系ポリマーは、６．８～７．７、または７．０～７．５のＩ１０／Ｉ２比を有する。さらなる実施形態では、エチレン系ポリマーはエチレン系インターポリマーであり、さらにエチレン／α－オレフィンコポリマーである。好ましいα－オレフィンは、プロピレン、１－ブテン、１－ペンテン、１－ヘキセン、１－ヘプテン、および１－オクテンなどの３～８個の炭素原子を有するものである。

【００４５】

一実施形態では、エチレン系ポリマーは、３０，０００～４４，０００ｇ／モル、または３２，０００～４２，０００ｇ／モルの数平均分子量（Ｍｎ）を有する。さらなる実施形態では、エチレン系ポリマーはエチレン系インターポリマーであり、さらにエチレン／α－オレフィンコポリマーである。好ましいα－オレフィンは、プロピレン、１－ブテン、１－ペンテン、１－ヘキセン、１－ヘプテン、および１－オクテンなどの３～８個の炭素原子を有するものである。

【００４６】

一実施形態では、エチレン系ポリマーは、１．７～３．５、または１．８～３．２、または１．８～３．０、または１．８～２．８の分子量分布（ＭＷＤ）を有する。さらなる実施形態では、エチレン系ポリマーはエチレン系インターポリマーであり、さらにエチレン／α－オレフィンコポリマーである。好ましいα－オレフィンは、プロピレン、１－ブテン、１－ペンテン、１－ヘキセン、１－ヘプテン、および１－オクテンなどの３～８個の炭素原子を有するものである。

【００４７】

一実施形態では、エチレン系ポリマーは、３５～５５℃、または４０～５０℃、または４２～４８℃の融解温度（Ｔｍ）を有する。さらなる実施形態では、エチレン系ポリマーはエチレン系インターポリマーであり、さらにエチレン／α－オレフィンコポリマーである。好ましいα－オレフィンは、プロピレン、１－ブテン、１－ペンテン、１－ヘキセン、１－ヘプテン、および１－オクテンなどの３～８個の炭素原子を有するものである。

【００４８】

一実施形態では、エチレン系ポリマーは、１５～３５℃、または２０～３０℃、または２２～２８℃の結晶化温度（Ｔｃ）を有する。さらなる実施形態では、エチレン系ポリマーはエチレン系インターポリマーであり、さらにエチレン／α－オレフィンコポリマーである。好ましいα－オレフィンは、プロピレン、１－ブテン、１－ペンテン、１－ヘキセン、１－ヘプテン、および１－オクテンなどの３～８個の炭素原子を有するものである。

【００４９】

一実施形態では、エチレン系ポリマーは、－６５～－５５℃、または－６４～－６０℃の融解温度（Ｔｇ）を有する。さらなる実施形態では、エチレン系ポリマーはエチレン系インターポリマーであり、さらにエチレン／α－オレフィンコポリマーである。好ましいα－オレフィンは、プロピレン、１－ブテン、１－ペンテン、１－ヘキセン、１－ヘプテン、および１－オクテンなどの３～８個の炭素原子を有するものである。

【００５０】

一実施形態では、エチレン系ポリマーは、５００～２５００Ｐａ・ｓ、または６００～２０００Ｐａ・ｓの溶融粘度Ｖ０．１（１９０℃）を有する。さらなる実施形態では、エチレン系ポリマーはエチレン系インターポリマーであり、さらにエチレン／α－オレフィンコポリマーである。好ましいα－オレフィンは、プロピレン、１－ブテン、１－ペンテン、１－ヘキセン、１－ヘプテン、および１－オクテンなどの３～８個の炭素原子を有するものである。

【００５１】

一実施形態では、エチレン系ポリマーは、１．５～３．０、または１．５～２．８の溶融粘度比Ｖ０．１／Ｖ１００（１９０℃での各粘度）を有する。さらなる実施形態では

、エチレン系ポリマーはエチレン系インターポリマーであり、さらにエチレン／α－オレフィンコポリマーである。好ましいα－オレフィンは、プロピレン、１－ブテン、１－ペンテン、１－ヘキセン、１－ヘプテン、および１－オクテンなどの３～８個の炭素原子を有するものである。

【００５２】

エチレン系ポリマーは、本明細書に記載の２つ以上の実施形態の組み合わせを含んでもよい。エチレン系インターポリマーは、本明細書に記載の２つ以上の実施形態の組み合わせを含んでもよい。エチレン系コポリマーは、本明細書に記載の２つ以上の実施形態の組み合わせを含んでもよい。

【００５３】

一実施形態では、第１の組成物は、第１の組成物の重量に基づいて、９０重量％以上、または９１重量％以上、または９２重量％以上、または９３重量％以上、または９４重量以上％、または９５重量％以上、または９６重量％以上、または９７重量％以上、または９８重量％以上、または９９重量％以上のエチレン系ポリマーを含む。さらなる実施形態では、エチレン系ポリマーはエチレン／α－オレフィンインターポリマーであり、さらにエチレン／α－オレフィンコポリマーである。さらなる実施形態では、α－オレフィンは、プロピレン、１－ブテン、１－ペンテン、１－ヘキセン、１－ヘプテン、および１－オクテンからなる群から選択される。

【００５４】

粉末組成物

無機粉末には、タルク、マイカ、炭酸カルシウム、石英、微粉シリカまたはヒュームドシリカ、アルミナ三水和物、大理石粉、セメント粉、粘土、長石、アルミナ、酸化マグネシウム、水酸化マグネシウム、酸化アンチモン、亜鉛酸化物、硫酸バリウム、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸カルシウム、二酸化チタン、チタン酸塩、およびチョーク、が含まれるが、これらに限定されない。

【００５５】

一実施形態では、無機粉末は、タルク、マイカ、炭酸カルシウム、微粉シリカ、ヒュームドシリカ、石英、およびそれらの組み合わせからなる群から選択される。一実施形態では、無機粉末は、タルク、マイカ、炭酸カルシウム、およびそれらの組み合わせ、またはタルク、マイカ、もしくはそれらの組み合わせからなる群から選択される。一実施形態では、無機粉末はタルクである。

【００５６】

一実施形態では、無機粉末は、１００ミクロン以下、または５０ミクロン以下、または２０ミクロン以下のＤ５０値を有する。一実施形態では、無機粉末は、０．５ミクロン以上、または１ミクロン以上、または２ミクロン以上のＤ５０値を有する。さらなる実施形態では、ポリマー粒子のＤ５０値は、粉末組成物のＤ５０値の２倍以上、さらに５倍以上、さらに１０倍以上である。

【００５７】

本発明に有用な有機粉末には、金属ステアリン酸塩、ポリマー粉末およびそれらの組み合わせが含まれる。ポリマー粉末の例には、粉末エチレン系ポリマー（例えば粉末ポリエチレンホモポリマー）、粉末ポリスチレンおよび粉末プロピレン系ポリマー（例えば、粉末ポリプロピレンホモポリマー）が含まれる。一実施形態では、有機粉末は、金属ステアリン酸塩、さらにステアリン酸カルシウムまたはステアリン酸亜鉛、およびさらにステアリン酸カルシウムである。

【００５８】

一実施形態では、有機粉末は、１００ミクロン以下、または５０ミクロン以下、または２０ミクロン以下のＤ５０値を有する。一実施形態では、無機粉末は、０．５ミクロン以上、または１ミクロン以上、または２ミクロン以上のＤ５０値を有する。さらなる実施形態では、ポリマー粒子のＤ５０値は、粉末組成物のＤ５０値の２倍以上、さらに５倍以上、さらに１０倍以上である。

【００５９】
一実施形態では、粉末組成物は、１００ミクロン以下、または５０ミクロン以下、または２０ミクロン以下のＤ５０値を有する。一実施形態では、無機粉末は、０．５ミクロン以上、または１ミクロン以上、または２ミクロン以上のＤ５０値を有する。さらなる実施形態では、ポリマー粒子のＤ５０値は、粉末組成物のＤ５０値の２倍以上、さらに５倍以上、さらに１０倍以上である。
【００６０】
一般に、粉末状組成物の量は、コーティングされたポリマー粒子の総重量に基づいて、５．０重量パーセント以下、または４．０重量パーセント以下、または３．０重量パーセント以下である。一実施形態では、粉末組成物の量は、コーティングされたポリマー粒子の総重量に基づいて、０．０５重量パーセント以上、または０．１０重量パーセント以上、または０．２０重量パーセント以上である。一実施形態では、粉末組成物の量は、コーティングされたポリマー粒子の総重量に基づいて、０．２５重量パーセント以上、または０．３０重量パーセント以上、または０．３５重量パーセント以上、または０．４０重量パーセント以上、または０．４５重量パーセント以上である。
【００６１】
一実施形態では、コーティングされたポリマー粒子は、コーティングされたポリマー粒子の重量に基づいて、０．１０～３．００重量パーセント、または０．２０～２．５０重量パーセント、または０．３０～２．００重量パーセント、または０．３０～１．５０重量パーセント、または０．４０～１．００重量パーセントの粉末組成物を含む。
【００６２】
一実施形態では、無機粉末の総量と有機粉末の総量との重量比は、３．０～４５．０、または３．０～４０．０、または３．０～３５．０、または３．０～２５．０、または３．０～２０．０である。一実施形態では、無機粉末の総量と有機粉末の総量との重量比は、３．０～１５．０、または３．０～１２．０、または３．０～９．０、または３．０～７．０、または３．０～５．０である。
【００６３】
一実施形態では、粉末組成物は、ポリマー粒子の全表面の少なくとも５０％、または少なくとも６０％、または少なくとも７０％、または少なくとも８０％、または少なくとも９０％、または少なくとも９５％をコーティングしている。
【００６４】
ポリマー粒子の総表面積は、粒子（ペレットなど）の平均ペレット寸法とグラムあたりの粒子の重量から計算することができ、またはＢＥＴ分析によって（例えば、Ｍｉｃｒｏｍｅｒｉｔｉｃｓ　ＡＳＡＰ　２４２０から入手可能なＢＥＴ機器を使用して）分析することができる。粉末組成物でコーティングされたポリマー粒子の表面積の量は、典型的には拡大鏡を使用して、目視検査によって決定することができる。
【００６５】
一実施形態では、コーティングされたポリマー粒子は、コーティングされたポリマー粒子重量に基づいて、０．０２～３．００重量パーセント、または０．０４～２．５０重量パーセント、または０．０６～２．００重量パーセント、または０．０８～１．５０重量パーセントの粉末組成物を含む。一実施形態では、コーティングされたポリマー粒子は、コーティングされたポリマー粒子の重量に基づいて、０．１０～１．６０重量パーセント、または０．２０～１．４０重量パーセント、または０．３０～１．２０重量パーセント、または０．４０～１．００重量パーセント、または０．６０～０．８０重量パーセントの粉末組成物を含む。
【００６６】
一実施形態では、有機粉末の総量と無機粉末の総量は、粉末組成物の総重量の、９０重重量％以上、または９１重量％以上、または９２重量％以上、または９３重量％以上、または９４重量％以上、または９５重量％以上、または９６重量％以上、または９７重量％以上、または９８重量％以上、または９９重量％以上を含む。

【００６７】
結合剤
結合剤は、通常の取り扱いおよび出荷条件で、粉末組成物の大部分がポリマー粒子上に残るように、粉末組成物をポリマー粒子に保持または固定する薬剤である。
【００６８】
一実施形態では、組成物は結合剤をさらに含む。一実施形態では、結合剤の少なくとも一部は、ポリマー粒子の全表面の少なくとも一部分をコーティングして、結合剤コーティングを形成し、その結果、結合剤コーティングは、ポリマー粒子と、粉末組成物から形成されるコーティングとの間に位置する。
【００６９】
結合剤の種類とその量は、粉末組成物、ポリマー、および組成物の他の成分に応じて異なる。好ましい結合剤は、粘度がそれほど高くないため、結合剤を適用するのが難しいものである。他方、粘度は、粉末組成物からの過剰な粉塵が生じるほど低くすべきではない。一般的に、２５℃で粘度が５０～６０，０００センチストーク、または１００～１０，０００センチストークの範囲の油が有用である。
【００７０】
一実施形態では、結合剤は、シリコーン油（またはシリコーン流体）、ポリエーテルポリオール、鉱物油などの脂肪族炭化水素油、７～１８個の炭素原子を有するアルカンまたはアルケン（１つ以上の炭素がＯＨ、CO_2H、またはエステルで任意に置換されている）からなる群から選択される。結合剤には、ヒマシ油、コーン油、綿実油、オリーブ油、菜種油、大豆油、ひまわり油、その他の植物油および動物油などの天然油、ならびにナフテン油、パラフィン油、芳香油、およびシリコーン油（またはシリコーン流体）および当該油のエステル、アルコール、および酸またはエマルションが含まれる。可塑剤または粘着付与剤としてしばしば使用される物質は、結合剤としても有用である。
【００７１】
一実施形態では、結合剤は、構造式－Ｓｉ（R^1R^1）－Ｏ－を有するシロキサンポリマーであり、R^1基はC_1～C_{18}ヒドロカルビル基である。特に好ましいヒドロカルビル基には、脂肪族および芳香族基が含まれる。R^1の特に好ましい基はメチル基である。これらの材料は、Ｄｏｗ　Ｃｏｒｎｉｎｇから市販されている。
【００７２】
一実施形態では、結合剤は、ポリエーテルポリオール、脂肪族炭化水素油、７～１８個の炭素原子を有し、ＯＨ、CO_2H、またはエステルで任意に置換されたアルカン、７～１８個の炭素原子を有し、ＯＨ、CO_2H、またはエステルで任意に置換されたアルケン、天然油、ナフテン系油、パラフィン油、芳香油、シリコーン油（またはシリコーン流体）、およびそれらの組み合わせからなる群から選択される。一実施形態では、結合剤はシリコーン油（またはシリコーン流体）である。
【００７３】
一実施形態では、組成物は、コーティングされたポリマー粒子の総重量に基づいて、０．０１０～０．０５０重量パーセント、または０．０１５～０．０４重量パーセント、または０．０２０～０．０３５重量パーセントの結合剤を含む。
【００７４】
一実施形態では、結合剤は、２５℃で、２００～２０００ｃＳｔ、または２５０～１８００ｃＳｔ、または３００～１５００ｃＳｔ、または３００～１０００ｃＳｔ、または３００～５００ｃＳｔの粘度を有する。
【００７５】
結合剤は、精製された形態、溶液、エマルジョンまたは混合物で使用されてもよい。特に非熱可塑性結合剤を使用する場合は、粉末組成物とポリマー粒子の混合を最小限に抑える必要がある。混合が多すぎると、表面偏析が生じ、不均一な層が生じる可能性がある。
【００７６】
コーティングプロセス

ブレンド装置／プロセスの例には、例えば、ジャーの単純なタンブリング、または円錐回転容器、リボンブレンダー、ドラムタンブラー、パドルブレンダー、凝集パンおよび流動層法でのブレンドなど、ポリマー粒子を動かす任意の機械的手段が含まれる。一実施形態では、コーティングプロセスは、空気または不活性ガス下での空気コンベヤーの使用を含む。中程度の攪拌、振とう、またはスクリューコンベヤでの短い距離の搬送でさえ、このような薬剤の適切な分配に十分である。使用される接触のタイプは、ポリマー粒子が結合剤および粉末組成物と別々の時間で接触される場合であれば、結合剤および粉末組成物に対して同じでも異なっていてもよい。

【００７７】

薬剤（結合剤および／または粉末組成物）とポリマー粒子の接触は、薬剤が蒸発、固化、粘稠化、またはポリマー粒子と著しく反応しない任意の温度で実施できる。そのような温度は、コーティングされるポリマー粒子の成分に応じて異なることが多いが、典型的には－１０℃～１５０℃、さらに０℃～６０℃、または５℃～３５℃である。

【００７８】

状況によっては、結合剤を使用することが望ましくない場合がある。このような状況には、例えば、結合剤がポリマー粒子の最終用途に干渉する場合が含まれる。また、状況によっては、粉末組成物の量を最小限に抑えることが望ましい場合がある。このようにして、（粉末組成物からの）コーティングに関連しない環境ダストを最小限に抑えることができる。例えば、フィルムが最終組成物から作られており、光学特性が重要である場合、粉末組成物の量を減らすことも有利である。

【００７９】

結合剤を必要としない組成物は、上記と同じ種類のポリマー粒子および粉末組成物を使用する。一実施形態では、粉末組成物の量は、コーティングされたポリマー粒子の重量に基づいて、３．０重量パーセント以下、または２．０重量パーセント以下、または１．５重量パーセント以下、または１．０重量パーセント以下、または０．５重量パーセント以下、または０．３重量パーセント以下であり得る。それに対応して、粉末組成物の有効量は、コーティングされたポリマー粒子の重量に基づいて、典型的には０．０８重量パーセント以上、または０．１０重量パーセント以上、または０．１５重量パーセント以上である。

【００８０】

一実施形態では、粉末組成物は、ポリマー粒子に機械的に接着される。一実施形態では、プロセスは、有効量の粉末組成物をポリマー粒子の全表面の約４０パーセント超、さらに約５０パーセント超、さらに約６０パーセント超に機械的に接着させることを含む。このようにして、有効量の付着粉末組成物を有するポリマー粒子は、有効量の付着粉末組成物を有さない多数のポリマー粒子が凝集またはブロッキングするのを防ぐ障壁として機能する。粒子が埋め込まれる深さ、および粉末組成の量は、ポリマー粒子上の粉末組成物層の厚さを決定する。もちろん、この厚さは、無拘束降伏強度によって決定されるように、ポリマーの種類、粒子のサイズ、粉末組成物の種類、および粉末組成物の所望の量に応じて変化する。これらのコーティングの特徴は、例えば、走査型電子顕微鏡（ＳＥＭ）によって測定できる。

【００８１】

粉末組成物は、いかなる方法でもポリマー粒子に機械的に付着させることができる。これは、粒子形成と同時に、または粒子形成に続いて達成され得る。これを達成することができる１つの方法は、例えば、所望の量の粉末組成物が所望の量のポリマー粒子に付着するように、ポリマー粒子を衝撃コーティングすることによるものである。これは、水蒸気を使用することで容易にすることができる。

【００８２】

粉末組成物を機械的に付着させる別の方法は、ポリマー粒子を粉末組成物と接触させる前、それと同時に、またはその後に、ポリマー粒子を柔らかくすることである。軟化は、有効量の粉末組成物をポリマー粒子の外表面に付着させるのに十分なほど表面が軟化す

る限り、任意の方法で行うことができる。ただし、ポリマー粒子はあまり軟化してはならず、離散した粒子が存在しないようにする必要がある。つまり、ポリマー粒子が融解したり、互いに接着したりしないようにする必要がある。一般に、通常、ポリマー粒子の表面がわずかに粘着性になり、コーティングの準備ができていることを観察することができる（例えば、目視観察）。これが発生するポイントは、ポリマーと使用する粉末組成物の種類によって異なる。軟化方法の選択は、ポリマーの種類、粉末組成の種類、および所望の結果に応じて異なる。一般に、熱風、放射（ＵＶ、ＩＲ、可視）、接触加熱、またはそれらの組み合わせによる加熱を採用することができる。一般に、ポリマー粒子の表面がわずかに粘着性になり、コーティングの準備が整うため、粒子が十分に加熱されたときを通常観察できる。説明したように、これが発生するポイントは、ポリマーの種類、粒子のサイズ、および使用する粉末組成物の種類によって異なる。

【００８３】

物品

本発明はまた、本発明の組成物から形成される少なくとも１つの構成要素を含む物品も提供する。物品には、射出成形品、熱成形品、発泡体が含まれますが、これらに限定されない。追加の物品には、医療機器（圧力カフや安定化機器など）、インフレータブル用品（玩具、船舶、クッション、家具など）、シート（天幕、バナー、標識、テント、防水シート、プール、池、埋め立て用ライナーなど）、製本、キャリア（スポーツバッグ、バックパックなど）、および自動車部品が含まれる。好ましい物品には、自動車部品が含まれる。

【００８４】

定義

反対の記載、文脈から暗黙的、または当技術分野で慣習的でない限り、すべての部およびパーセントは重量に基づいており、すべての試験方法は本開示の出願日現在のものである。

【００８５】

本明細書で使用される「組成物」という用語は、その組成物を含む材料の混合物、ならびにその組成物の材料から形成される反応生成物および分解生成物を含む。典型的に、反応生成物または分解生成物は、微量または残留量で存在する。

【００８６】

本明細書で使用される「ポリマー」という用語は、同じ種類であろうと異なる種類であろうと、モノマーを重合することにより調製されたポリマー化合物を指す。したがって、ポリマーという一般的な用語は、ホモポリマーという用語（微量の不純物をポリマー構造に組み込むことができるという理解を前提として、１つの種類のモノマーのみから調製されるポリマーを指すために用いられる）と、以下で定義するインターポリマーという用語とを包含する。触媒残留物などの微量の不純物が、ポリマーの中および／またはポリマー内に組み込まれる場合がある。

【００８７】

本明細書で使用される「インターポリマー」という用語は、少なくとも２種の異なるタイプのモノマーの重合により調製されるポリマーを指す。したがって、インターポリマーという用語は、コポリマーという用語（２つの異なる種類のモノマーから調製されるポリマーを指すために用いられる）と、２つ超の異なる種類のモノマーから調製されるポリマーとを含む。

【００８８】

本明細書で使用される「オレフィン系ポリマー」という用語は、重合形態で、５０重量％または過半量のオレフィンモノマー、例えばエチレンまたはプロピレン（ポリマーの重量に基づいて）を含むポリマーを指し、任意で１種以上のコモノマーを含んでもよい。

【００８９】

本明細書で使用される「オレフィン系インターポリマー」という用語は、重合形態で、５０重量％または過半量のオレフィンモノマー、例えばエチレンまたはプロピレン（イ

ンターポリマーの重量に基づいて）と、１種以上のコモノマーとを含むインターポリマーを指す。

【００９０】

本明細書で使用される「オレフィン系コポリマー」という用語は、重合形態で、５０重量％または過半量のオレフィンモノマー、例えばエチレンまたはプロピレン（コポリマーの重量に基づいて）と、１種のコモノマーとを２種類のみのモノマーとして含むコポリマーを指す。

【００９１】

本明細書で使用される「エチレン系ポリマー」という用語は、重合形態で、５０重量％または過半量のエチレンモノマー（ポリマーの重量に基づいて）を含むポリマーを指し、任意に１種以上のコモノマーを含んでもよい。

【００９２】

本明細書で使用される「エチレン系インターポリマー」という用語は、重合形態で、５０重量％または過半量のエチレンモノマー（インターポリマーの重量に基づいて）と、１種以上のコモノマーとを含むインターポリマーを指す。

【００９３】

本明細書で使用される「エチレン系コポリマー」という用語は、重合形態で、５０重量％または過半量のエチレンモノマー（コポリマーの重量に基づいて）と、１種のコモノマーとを２種類のみのモノマーとして含むコポリマーを指す。

【００９４】

本明細書で使用される「エチレン／α－オレフィンインターポリマーという用語は、重合形態で、５０重量％または過半量のエチレンモノマー（インターポリマーの重量に基づいて）と、少なくとも１種のα－オレフィンとを含むインターポリマーを指す。

【００９５】

本明細書で使用される「エチレン／α－オレフィンコポリマー」という用語は、重合形態で、５０重量％または過半量のエチレンモノマー（コポリマーの重量に基づいて）と、α－オレフィンとを２種類のみのモノマーとして含むコポリマーを指す。

【００９６】

本明細書で使用される「エチレン／α－オレフィン／ジエンインターポリマー」という用語は、重合形態で、エチレンモノマー、α－オレフィン、およびジエンを含むインターポリマーを指す。典型的には、「エチレン／α－オレフィン／ジエンインターポリマー」は、重合形態で、インターポリマーの重量に基づいて過半量のエチレンモノマーを含む。

【００９７】

本明細書で使用される「プロピレン系ポリマー」という用語は、重合形態で、過半量のプロピレンモノマー（ポリマーの重量に基づいて）を含むポリマーを指し、任意に１種以上のコモノマーを含んでもよい。

【００９８】

本明細書で使用される「プロピレン系インターポリマー」という用語は、重合形態で、過半量のプロピレンモノマー（インターポリマーの重量に基づいて）と、１種以上のコモノマーとを含むインターポリマーを指す。

【００９９】

本明細書で使用される「プロピレン系コポリマー」という用語は、重合形態で、過半量のプロピレンモノマー（コポリマーの重量に基づいて）と、１種のコモノマーとを２種類のみのモノマーとして含むコポリマーを指す。

【０１００】

本明細書で使用される「プロピレン／α－オレフィンインターポリマー」という用語は、重合形態で、過半量のプロピレンモノマー（インターポリマーの重量に基づいて）と、少なくとも１種のα－オレフィンとを含むインターポリマーを指す。

【０１０１】

本明細書で使用される「プロピレン／α－オレフィンコポリマー」という用語は、重

合形態で、過半量のプロピレンモノマー（コポリマーの重量に基づいて）と、α－オレフィンとを２種類のみのモノマーとして含むコポリマーを指す。

【０１０２】

本明細書で使用される「プロピレン／エチレンインターポリマー」という用語は、重合形態で、過半量のプロピレンモノマー（インターポリマーの重量に基づいて）と、少なくともエチレンとを含むインターポリマーを指す。

【０１０３】

本明細書で使用される「プロピレン／エチレンコポリマー」という用語は、重合形態で、過半量のプロピレンモノマー（コポリマーの重量に基づいて）と、エチレンとを２種類のみのモノマーとして含むコポリマーを指す。

【０１０４】

本明細書で使用される「ポリマー粒子の全表面の少なくとも一部分上のコーティング」という語句は、粒子の全表面積の１０％以上の表面コーティングを指す。粒子の総表面積は、粒子（例えば、ペレット）の平均ペレット寸法およびグラムあたりの粒子の重量から、またはＢＥＴ分析によって（例えば、Ｍｉｃｒｏｍｅｒｉｔｉｃｓ　ＡＳＡＰ　２４２０から入手可能なＢＥＴ機器を使用して）計算することができる。粉末組成物でコーティングされたポリマー粒子の表面積の量は、典型的には拡大鏡を使用して、目視検査によって決定することができる。一実施形態では、粉末組成物は、粒子の総表面積の、２０％以上、または３０％以上、または４０％以上、または５０％以上、または６０％以上、または７０％以上、または８０％以上、または９０％以上、または９５％以上をコーティングする。

【０１０５】

本明細書で使用される「無機粉末」という用語は、炭素の酸化物、例えば炭酸カルシウムおよび炭素の硫化物、例えば二硫化炭素を除いて、元素炭素を含まない化合物を指す。

【０１０６】

本明細書で使用される「有機粉末」という用語は、炭素の酸化物、例えば炭酸カルシウムおよび炭素の硫化物、例えば二硫化炭素を除いて、元素炭素を含む化合物を指す。

【０１０７】

粉末組成物に関して本明細書で使用される「ポリマー粉末」という用語は、ポリマー粒子のＤ５０値より小さいＤ５０値を有する微細ポリマー粒子を指す。通常、ポリマー粉末のＤ５０値は２００ミクロン以下、さらにＤ５０値は１５０ミクロン以下、さらにＤ５０値は１００ミクロン以下である。

【０１０８】

本明細書で使用される「機械的に付着した」とは、本明細書で使用するとき、ポリマー粒子上に粉末組成物が物理的に結合した粒子を指す。例えば、粉末組成物の粒子は、ポリマー粒子の表面に埋め込まれている。

【０１０９】

「含む（ｃｏｍｐｒｉｓｉｎｇ）」、「含む（ｉｎｃｌｕｄｉｎｇ）」、「有する（ｈａｖｉｎｇ）」という用語、およびそれらの派生語は、任意の追加の構成要素、ステップ、または手順の存在を、それらが具体的に開示されているか否かにかかわらず、除外することを意図するものではない。任意の疑義を避けるために、「備える」という用語の使用を通して請求されるすべての組成物は、相反する記載がない限り、ポリマーであるかないかに関わらずに、任意の追加の添加剤、アジュバント、または化合物を含んでもよい。対照的に、「から本質的になる」という用語は、操作性に必須ではないものを除き、任意の以降の記述の範囲から任意の他の構成要素、ステップ、または手順を除外する。「からなる」という用語は、特に記載または一覧表に記載されていない任意の構成要素、ステップ、または手順を除外する。

【０１１０】

試験方法

密度は、ＡＳＴＭ　Ｄ７９２（ＡＳＴＭ　Ｄ４７０３、Ａ１　Ｐｒｏｃ　Ｃ、１時間以

内のテスト）に従って測定される。

【０１１１】

エチレン系ポリマーのメルトインデックス（I_2）は、ＡＳＴＭ Ｄ－１２３８に従って、２．１６ｋｇの荷重下、１９０℃で測定される。メルトインデックス（I_5）は、ＡＳＴＭ Ｄ－１２３８に従って、１９０℃、５ｋｇの荷重で測定される。メルトインデックス（I_{10}）は、ＡＳＴＭ Ｄ－１２３８に従って、１９０℃、１０ｋｇの荷重で測定される。メルトインデックス（I_{21}）は、ＡＳＴＭ Ｄ－１２３８に従って、１９０℃、２１．６ｋｇの荷重で測定される。プロピレン系ポリマーのメルトフローレート（ＭＦＲ）は、ＡＳＴＭ Ｄ－１２３８、条件２３０℃／２．１６ｋｇに従って測定される。ＴＰＯコンパウンドのメルトフローレート（ＭＦＲ）は、ＡＳＴＭ Ｄ－１２３８、条件２３０℃／２．１６ｋｇに従って、乾燥ペレットで測定された。

【０１１２】

示差走査熱量測定（ＤＳＣ）は、ＲＣＳ冷却ユニットとオートサンプラーを備えたＴＡ Ｉｎｓｔｒｕｍｅｎｔｓ Ｄｉｓｃｏｖｅｒｙ ＤＳＣを使用して示差走査熱量測定（ＤＳＣ）を実行した。５０ｍＬ／分の窒素パージガス流量を使用した。サンプルは、Ｃａｒｖｅｒ Ｈｙｄｒａｕｌｉｃプレスで１９０℃、圧力２０，０００ｐｓｉで４分間、薄いフィルムにプレス成形され、その後、２３℃の温度で、２０，０００ｐｓｉの圧力で１分間冷却された。約３～１０ｍｇの材料をプレスフィルムから切り取り、重量を測定し、軽いアルミニウムのパンに入れ、圧着して閉じた。サンプルの熱挙動は、次の温度プロファイルを使用して調査した。サンプルは急速に１８０℃に加熱され、５分間等温で保持された。次に、サンプルを１０℃／分で－９０℃に冷却し、５分間等温で保持した。次に、サンプルを１０℃／分で１５０℃に加熱した。分析には、冷却曲線と２番目の加熱曲線を使用した。ガラス転移温度（Ｔｇ）、融解温度（Ｔｍ）、およびエンタルピー熱（ΔＨｍ）は、２番目の熱データから取得された。結晶化温度（Ｔｃ）は、最初のクールデータから取得された。Ｔｇは、半値高法（ｈａｌｆ－ｈｅｉｇｈｔ ｍｅｔｈｏｄ）を使用して決定された。ＴｍおよびＴｃは、それぞれ融解吸熱および結晶化発熱のピークとして決定された。結晶化度パーセントは、第２の熱曲線から決定される融解熱（Ｈｆ）をＰＥについて２９２Ｊ／ｇ（ＰＰについて１６５Ｊ／ｇ）の理論融解熱で除算し、この量に１００を掛ける（例えば、％ｃｒｙｓｔ＝（Ｈｆ／２９２Ｊ／ｇ）×１００（ＰＥの場合）。

【０１１３】

動的機械分光法（ＤＭＳ）レオロジーについて、本発明および比較のコポリマーのレオロジーは、「２５ｍｍ」ステンレス鋼平行板を装備したＡｄｖａｎｃｅｄ Ｒｈｅｏｍｅｔｒｉｃ Ｅｘｐａｎｓｉｏｎ Ｓｙｓｔｅｍ（ＡＲＥＳ）で測定した。０．１～１００ｒａｄ／ｓの周波数範囲での一定温度の動的周波数掃引は、１９０℃の窒素パージ下で実行された。約「直径２５．４ｍｍ」および「厚さ３．２ｍｍ」のサンプルを、Ｃａｒｖｅｒ油圧式ホットプレスで、温度１９０℃、圧力２０，０００ｐｓｉで４分間圧縮成形し、その後、温度２３℃、圧力２０，０００ｐｓｉ、１分間冷却した。サンプルを下部プレートに置き、５分間融解させた。次に、プレートを２．０ｍｍのギャップまで閉じ、サンプルを「直径２５ｍｍ」にトリミングした。テストを開始する前に、サンプルを１９０℃で５分間平衡化させた。複素粘度は、１０％の一定の歪み振幅で測定された。０．１ｒａｄ／ｓ（Ｖ０．１）および１００ｒａｄ／ｓ（Ｖ１００）での粘度と、２つの粘度値の比（Ｖ０．１／Ｖ１００）が報告されている。

【０１１４】

ゲル浸透クロマトグラフィー（ＧＰＣ）：ＰｏｌｙｍｅｒＣｈａｒ Ｉｎｃ（バレンシア、スペイン）の赤外線濃度検出器（ＩＲ－５）で構成される高温ゲル浸透クロマトグラフィーシステム（ＧＰＣ ＩＲ）を分子量（MW）および分子量分布（MWD）の決定に使用した。担体溶媒は、１，２，４－トリクロロベンゼン（ＴＣＢ）であった。オートサンプラーコンパートメントは、１６０℃で稼働され、カラムコンパートメントは、１５０℃で稼働された。使用したカラムは、４つのＰｏｌｙｍｅｒ Ｌａｂｏｒａｔｏｒｉｅｓ Ｍｉｘｅｄ Ａ ＬＳ、２０ミクロンカラムであった。クロマトグラフィー溶媒（ＴＣＢ）

とサンプル調製溶媒は、同じ溶媒源からのもので、２５０ｐｐｍのブチル化ヒドロキシトルエン（ＢＨＴ）を使用し、窒素を注入した。サンプルを、ＴＣＢで２ｍｇ／ｍＬの濃度で調製した。ポリエチレンサンプルを１６０℃で２時間穏やかに振盪した。注入量は２００μＬで、流量は１．０ｍＬ／分であった。

【０１１５】

ＧＰＣカラムセットの較正は、２１の狭い分子量分布のポリスチレン標準物を用いて行った。標準物の分子量は５８０～８，４００，０００ｇ／ｍｏｌの範囲であり、個々の分子量の間に少なくとも１０桁の隔たりを有した６つの「カクテル」混合物に配置された。

【０１１６】

ポリスチレン標準ピーク分子量は、以下の式を使用してポリエチレン分子量に変換された（Ｗｉｌｌｉａｍｓ ａｎｄ Ｗａｒｄ，Ｊ．Ｐｏｌｙｍ．Ｓｃｉ．，Ｐｏｌｙｍ．Ｌｅｔ．，６，６２１（１９６８）に記載されているように）。

$$M_{ポリエチレン} = A\left(M_{ポリスチレン}\right)^{B} \quad （１）$$

ここで、Ｂの値は１．０であり、Ａの実験的に決定された値は約０．４１である。３次多項式を使用して、式（１）から得られたそれぞれのポリエチレン相当キャリブレーションポイントを、ポリスチレン標準の観察された溶出体積に適合させた。数平均、重量平均、およびｚ平均分子量は、以下の式に従って計算した。

【数１】

$$\overline{Mn} = \frac{\sum^{i} Wf_i}{\sum^{i}\left(Wf_i / M_i\right)} \quad （２）$$

$$\overline{Mw} = \frac{\sum^{i}\left(Wf_i * M_i\right)}{\sum^{i} Wf_i} \quad （３）$$

$$\overline{Mz} = \frac{\sum^{i}\left(Wf_i * M_i^{2}\right)}{\sum^{i}\left(Wf_i * M_i\right)} \quad （４）$$

式中、Ｗｆｉは、ｉ番目の成分の重量分率であり、Ｍｉは、ｉ番目の成分の分子量である。ＭＷＤは、数平均分子量（Ｍｎ）に対する重量平均分子量（Ｍｗ）の比として表した。

【０１１７】

正確なＡ値は、式（３）を使用して計算されたＭｗおよび対応する保持体積多項式が、標準の直鎖ポリエチレンホモポリマー参照の１２０，０００ｇ／ｍｏｌの既知のＭｗ値と一致するまで、式（１）のＡ値を調整して、決定された。

【０１１８】

粒度分布（Ｄ５０、Ｄ１０、Ｄ９０）

粒度分布は、汎用液体モジュールを装備したＢｅｃｋｍａｎ Ｃｏｕｌｔｅｒ ＬＳ １３ ３２０レーザー回折式粒度分布測定装置を使用して測定できる。この機器は、光散乱の原理を使用しており、粒子によって散乱された光の角度パターンが測定される。この散乱光パターンは、デコンボリューションアルゴリズムに送られ、サイズ分布が取得される。この装置は物理学の第一原理で動作するため、較正されていない。散乱パターンは、粒子の複素屈折率と周囲の媒質の屈折率の影響を受ける可能性がある。そのため、最大限の精度を得るために、粒子と懸濁媒質の複素屈折率がモデルによって考慮される。複素屈折率は実部と虚部で構成される。実数部は、ある媒体から別の媒体に伝播する際の光の曲がりによって特徴付けられ、虚数部または複合部は材料の吸収係数を表す。粒度分布測定で使用される屈折率は、ステアリン酸カルシウムでは「１．４６＋０．０５ｉ」、タルクでは「１．５７＋０．０５」であった。屈折率の選択に関するガイドラインは、Ｂｅｃｋｍａｎ Ｃｏｕｌｔｅｒ（フロリダ州、米国）が提供するＬＳ １３ ３２０操作マニュアルに記載されている。

【０１１９】

サンプル（粒子）をイソプロピルアルコールに懸濁し、ソニックバス（Ｆｉｓｈｅｒ ＳｃｉｅｎｔｉｆｉｃモデルＦＳ－１４）で５分間超音波処理した後、５０の排気速度で動作するユニバーサル液体モジュールに注入する。体積メジアン径（Ｄ５０、通常ミクロン）は、粒子径として定義される。体積分布の半分はこの点より上にあり、半分はこの点

より下にある。Ｄ１０は、体積分布の１０％がこのポイント（Ｄ１０）の下にある粒子直径として定義される。Ｄ９０は粒子直径として定義され、体積分布の９０％がこのポイント（Ｄ９０）の下にある。質量分布は、粒子の密度を掛けることで計算できる。

【０１２０】

流動性試験：標準試験漏斗は、直径１．２５インチの排出口を備えた急角度のガラス漏斗で構成されている。漏斗に２，５００ｇｍのペレットを装填し、ストップウォッチを使用して吐出時間を正確に計時することにより、吐出速度を測定した。輸送中または保管中に予想される最も暖かい温度をシミュレートするために、サンプルを３７℃で硬化させた。硬化は最大１２週間行われた。流量測定は常に２１℃のペレット温度で行われた。各測定の前に、各フロー測定の前に、ペレットを室温で２４時間置いた。

【０１２１】

ブロッキング力

試験方法－無拘束降伏強度

十分な量のコーティングされたペレットまたはコーティングされていないペレットを、高さ対直径の比が２．５の直径２インチ（ＩＤ）シリンダーに装填し、ペレットのレベルがシリンダーの上部と同じ高さになるようにした（通常１００～１２０グラムのペレット）。シリンダーは、ホースクランプによって垂直方向に固定された２つの半分で構成されていた。ペレットは、３７℃（静的オーブン、周囲雰囲気）で１９５ｌｂ／ｆｔ^{2}の圧密応力にさらされた。ペレットは、この圧密応力下で６週間保持される。２１℃で非拘束降伏強度（ＵＹＳ）を測定するために、シリンダーをオーブンから取り出した。圧密負荷を取り除き、ペレット（シリンダー内）を周囲温度（２１℃）および大気で一晩冷却して、圧密ペレットの最終サンプルを得た。０℃での非拘束降伏強度（ＵＹＳ）を測定するために、シリンダーをオーブンから取り出した。圧密荷重を取り除き、ペレットを（シリンダー内で）周囲温度０℃に設定した環境チャンバーで一晩冷却して、圧密ペレットの最終サンプルを得た。シリンダーは、インストロンの試験機のプラットフォームに配置した。ホースクランプを取り外した後、分割シリンダーの２つの半分を分離した。圧密したサンプルのペレットが完全に自由流動性である場合、ペレットは円柱の形を保持せず、単純に山に集まる。圧密したペレットの塊がシリンダーの形を保持している場合、ＩＮＳＴＲＯＮマシンを使用して、シリンダーを押しつぶすのに必要な最大力を測定した。ＩＮＳＴＲＯＮ　５５４３フレームを使用して圧密ペレットを粉砕し、圧密ペレットの「シリンダー形状」を破壊するのに必要な最大力を測定した。圧密したペレットは、ＩＮＳＴＲＯＮの垂直方向に配置された－長い寸法が垂直方向である。このテストでは、２ｍｍ／分の一定のひずみ速度（室温）が使用された。データの一貫性を確保するために、各組成物（コーティングされたペレット）を２回測定し、平均を報告した。

【０１２２】

非拘束降伏強度（ＵＹＳ）は、次のように計算された。

ＵＹＳ（ｌｂ／ｆｔ^2）＝ピーク力／シリンダーの断面積。

【０１２３】

ＵＹＳはブロック力の指標である（非拘束降伏強度が大きいほど、ブロック力が大きくなる）。ゼロの値は、自由に流れるペレットに対応する。

【０１２４】

曲げ弾性率について、曲げ弾性率（１％割線弾性率）は、ＡＳＴＭ　Ｄ７９０、射出成形、ＡＳＴＭ　Ｄ６３８、タイプ１引張試験片を使用して測定した（以下の実験セクションを参照）。０．０５インチ／分の試験速度を使用した。各サンプルについて５個の試験片をテストし、平均１％割線弾性率を報告した。

【０１２５】

アイゾット衝撃強度について、ノッチ付きアイゾット試験は、ＡＳＴＭ　Ｄ２５６、射出成形、ＡＳＴＭ　Ｄ６３８、タイプ１引張試験片を使用して実施した（以下の実験セクションを参照）。試験は、２３℃、０℃、および－４０℃の温度で実施した。各サンプルに対して、各温度で５個の試験片を試験し、各温度での各サンプルの平均衝撃強度を報

告した。

【０１２６】

ダート衝撃試験について、多軸ダート衝撃試験は、ＡＳＴＭ Ｄ３７６３に基づいて、環境チャンバーを備え、スプリングアシストのＩＮＳＴＲＯＮ ＣＥＡＳＴ ９３５０ドロップタワー衝撃システム（Ｄｙｎａｔｕｐ）で実施した。直径４インチの「厚さ０．１２５インチ」の射出成形ディスクを試験した（以下の実験セクションを参照する）。ディスクは、テスト前に少なくとも４時間、テスト温度で状態調整した。試験片を冷凍庫から取り出し、指定された試験温度の環境チャンバーに入れた。６．７ｍ／ｓの試験速度を使用し、総試験質量は２９．１３１ｋｇ、「直径１２．７ｍｍ」タップであった。多軸ダート衝撃試験各温度で各サンプルについて５個の試験片を試験した。多軸ダート衝撃試験サンプルは、－１０℃、－２０℃、および－３０℃で試験した。試験された試験片は、それぞれ、延性がある（試験された部品に割れや欠けがない）；ひび割れ（試験された部品のひび割れが観察されたが、試験された部品の材料が欠落していない）；脆い（試験された部品から材料破損がある、または部品が複数の個別の部品に破損した）に特徴づけられた。次に、以下の式Ａに従って延性率を計算した。

延性％＝（Ｎｄ＊１＋Ｎｃ＊０．５）／（Ｎｄ＋Ｎｃ＋Ｎｂ）＊１００（式Ａ）、

Ｎｄ＝延性試験片の数、Ｎｃ＝割れた試験片の数、およびＮｂ＝脆性試験片の数。

【０１２７】

以下の実施例は、本発明を例証するが、本発明の範囲を限定することを意図するものではない。

【実施例】

【０１２８】

Ａ）材料

ＥＮＧＡＧＥ８８４２（Ｉ２＝１．０ｇ／１０分、密度＝０．８５７ｇ／ｃｃ）、Ｔｈｅ Ｄｏｗ Ｃｈｅｍｉｃａｌ Ｃｏｍｐａｎｙから入手可能。

ＥＮＧＡＧＥ８１００（Ｉ２＝１．０ｇ／１０分、密度＝０．８７０ｇ／ｃｃ）、Ｔｈｅ Ｄｏｗ Ｃｈｅｍｉｃａｌ Ｃｏｍｐａｎｙから入手可能。

ＥＮＧＡＧＥ８２００（Ｉ２＝５．０ｇ／１０分、密度＝０ ０．８７０ｇ／ｃｃ）、Ｔｈｅ Ｄｏｗ Ｃｈｅｍｉｃａｌ Ｃｏｍｐａｎｙから入手可能。

ＥＮＧＡＧＥ８１３７（Ｉ２＝１１．８ｇ／１０分、密度＝０．８６５ｇ／ｃｃ）、Ｔｈｅ Ｄｏｗ Ｃｈｅｍｉｃａｌ Ｃｏｍｐａｎｙから入手可能。

コーティング用無機粉末：タルク：Ｓｐｅｃｉａｌｉｔｙ Ｍｉｎｅｒａｌｓから入手可能なＴＡＬＣＲＯＮ ＭＰ １０－５２。

コーティング用有機粉末：ステアリン酸カルシウム（ＣａＳｔ）：ＳＹＮＰＲＯ ＣａＳｔ ５００Ｂ、Ｖａｌｅｒｕｓから入手可能。

コーティング用結合剤：ポリジメチルシロキサン（ＸＩＡＭＥＴＥＲ ＰＭＸ－２００シリコーン流体－２５℃で３５０ｃＳｔ）、ダウコーニングから入手可能。

各ＴＰＯ配合物用のポリプロピレン（ＰＰ）：ＡＤＳＴＩＦ ＨＡ８０１Ｕ（ＭＦＲ＝６５ｇ／１０分；密度＝０．８９８ｇ／ｃｃ）は、ＬｙｏｎｄｅｌｌＢａｓｅｌｌ Ｉｎｄｕｓｔｒｉｅｓから入手可能な有核ポリプロピレンホモポリマーである。

ＴＰＯコンパウンド用のタルク：Ｉｍｅｒｙｓから入手可能なＪＥＴＦＩＬ ７００Ｃタルク。

ＴＰＯコンパウンド用の酸化防止剤：ＢＡＳＦから入手可能なＩＲＧＡＮＯＸ Ｂ ２２５酸化防止剤粉末。

【０１２９】

Ｂ）重合（コポリマー１および２）

本発明のコポリマーは、定常状態条件で運転される単一ループ反応器を使用して調製した。触媒と共触媒は次のとおりであった。触媒は、ジルコニウム、［２，２’’’－［１，３－プロパンジイルビス（オキシ－κＯ）］ビス［３’’，５，５’’－トリス（１，１－ジメチルエチル）－５’－メチル［１，１’：３’、１’’－テルフェニル］－２’－オラート－κＯ

]]ジメチル－、（ＯＣ－６－３３）－（Ｂｏｕｌｄｅｒ　Ｓｃｉｅｎｔｉｆｉｃから供給）であり、共触媒－１は、長鎖トリアルキルアミン（ＡＲＭＥＥＮ　Ｍ２ＨＴ、Ａｋｚｏ－Ｎｏｂｅｌ、Ｉｎｃ．から入手可能）の反応によって調製された、テトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレートのメチルジ（Ｃ１４～１８アルキル）アンモニウム塩の混合物、Ｂｏｕｌｄｅｒ　Ｓｃｉｅｎｔｉｆｉｃから供給された、ＵＳＰ５，９１９，９８３、実施例２（さらなる精製は実施されていない）に実質的に開示されている、ＨＣｌおよびＬｉ［Ｂ（Ｃ６Ｆ５）４］であり、共触媒－２は、Ａｋｚｏ　Ｎｏｂｅｌから供給された修飾メチルアルモキサン（ＭＭＡＯ）タイプ３Ａ（さらなる精製は行われていない）であった。

【０１３０】

すべての材料（エチレン、１－オクテン）およびプロセス溶媒（狭い沸点範囲、高純度、イソパラフィン溶媒、Ｅｘｘｏｎ　Ｍｏｂｉｌ　Ｃｏｒｐｏｒａｔｉｏｎから市販されているＩＳＯＰＡＲ　Ｅ）は、反応環境に導入する前にモレキュラーシーブで精製した。水素は高純度グレードとして加圧シリンダー内に供給され、それ以上精製されなかった。反応器モノマー供給（エチレン）流を５２５ｐｓｉｇで反応圧力より上に加圧した。溶媒とコモノマー（１－オクテン）の供給は、５２５ｐｓｉｇで反応圧力以上に加圧した。個々の触媒成分を精製溶媒（ＩＳＯＰＡＲ　Ｅ）で指定の成分濃度に希釈し、５２５ｐｓｉｇで反応圧力以上に加圧した。

【０１３１】

すべての反応フィード流量は、質量流量計で測定され、独立して制御した。連続溶液重合反応器は制御ループであった。反応器は、すべての新鮮な溶媒、モノマー、コモノマー、水素、および触媒成分の供給を独立して制御した。反応器への組み合わせ溶媒、モノマー、コモノマー、および水素は、供給ストリームを熱交換器に通すことにより、５℃～５０℃、典型的には３０℃に温度制御した。重合反応器への新鮮なコモノマーフィードは、溶媒フィードとともに供給した。

【０１３２】

主要な触媒成分の供給は、反応器モノマー濃度を特定の目標に維持するように制御した。主要な触媒成分に対する指定されたモル比に基づいて、２つの共触媒成分を供給した。各新鮮な注入位置（供給または触媒）の直後に、供給流を循環重合反応器の内容物と混合した。各反応器の内容物は、熱交換器を通して連続的に循環され、特定の温度で等温反応環境を維持した。最初の重合反応器からの流出物（溶媒、モノマー、コモノマー、水素、触媒成分、および溶融ポリマーを含む）は反応器ループを出て、水と接触させて反応を停止させた。さらに、酸化防止剤などの様々な添加剤を、この時点で添加することができる。次に、このストリームは２段階の分離および脱揮システムに入り、そこで溶媒、水素、未反応のモノマーおよびコモノマーからポリマーを取り出した。溶媒（および溶解成分）がリサイクルされた。リサイクルされた流れは、再び反応器に入る前に精製された。分離され揮発分が除去されたポリマー溶融物を、ダイを通してポンプで送り、ペレット化した。ペレットはほぼ球形で、直径は約３～６ｍｍであった。

【０１３３】

本発明のコポリマーを製造するためのプロセス条件を表１に提供する。本発明のコポリマー（実施例１および２）および比較コポリマー（実施例Ａ～Ｄ）の特性は表２に記載されている。

【表１】

表1：本発明のEOコポリマーの重合条件

名称	1	2
触媒金属濃度、ppm金属	7.4	7.4
触媒溶液流量、lb/hr	1.10	1.03
共触媒-1濃度、ppm共触媒	372	372
共触媒-1溶液流量、lb/hr	1.14	1.09
共触媒-2濃度、ppm Al	61	61
共触媒-2溶液流量、lb/hr	1.58	1.55
反応器温度、℃	169	169
溶剤流量、lb/hr	497	498
エチレン流量、lb/hr	118	119
オクテン流量、lb/hr	305	293
水素流量、sccm	1446	2006
エチレン変換率、%	86	87
ポリマー濃度、%	36	33
生産速度、lb/hr	222	206

【表２】

表2：本発明および比較のエチレン/オクテンコポリマー(EO)の特性

実施例	A ENGAGE 8842	B ENGAGE 8100	C ENGAGE 8200	1	D ENGAG E8137	2
密度、g/cc	0.857	0.870	0.870	0.859	0.865	0.859
I2(190°C)、g/10分	1.0	1.0	5.0	4.6	11.8	13.1
I10/I2	8.0	7.7	7.4	7.5	7.1	7.1
Mn、kg/mol	55,050	48,480	33,290	40,412	29,980	32,975
Mw、kg/mol	121,310	108,630	71,820	106,774	60,760	64,870
Mw/Mn	2.20	2.24	2.16	2.64	2.03	1.97
Tc, °C	23	43	46	26	40	26
Tg, °C	-58	-52	-52	-61	-53	-61
Tm, °C	39	61	64	45	57	46
ΔHm, J/g	43	50	89	44	48	43
V0.1, Pa·s (190°C)	8,679	7,936	1,511	1,907	692	638
V100, Pa·s (190°C)	1,478	1,546	683	730	422	404
V0.1/V100	5.9	5.1	2.2	2.6	1.6	1.6

【０１３４】
Ｃ）粉体コーティングと粉体のポリマーペレットへの適用
２種の粉末（８０重量％のタルクと２０重量％のＣａＳｔ）を、室温で、容器内で、タービンインペラーを備えたハンドヘルド高速ミキサーで少なくとも１５分間乾式混合して、均一な混合物（粉末組成物）を形成した。混合作用は対流と高せん断の両方であった。バッチサイズは１００グラムであった。スプレーでペレット（２５００グラム、コポリマー１またはコポリマー２）に最初に上記ポリジメチルシロキサン油（結合剤）をスプレーし、ペレットを室温でバッチドラムミキサー（直径２５　１／２インチ、長さ６　１／４インチ）内でタンブリング（ＲＰＭ＝８）させながらコーティングした。ペレットが結合剤で実質的にコーティングされるまで、噴霧されたペレットをタンブリングさせた。次いで、油でコーティングされたペレットを大きなバッグ（５ガロン）に移し、粉末組成物の目標コーティングレベルの総重量に基づいて、「２５重量％の粉末組成物」の増分で粉末組成物を加えた。バッグの内容物を各添加の間に１分間混合した。バッグ内の混合動作は、対流およびせん断混合を伴うパドルミキサーと機構的に類似していた。結合剤および粉末組成物は、結合剤でコーティングされたペレットに適用された。ポリジメチルシロキサンの量は、コーティングされていないポリマー粒子の重量に基づいて「２５０ｐｐｍ」であった。粉末組成物の量は、コーティングされていないポリマー粒子の重量に基づいて６，０００ｐｐｍであった。コーティングされたポリマー粒子の流動性とブロッキングをテストした。

【０１３５】
コーティングされたポリマー粒子の流動性とブロッキングを表３に示す。１５０ｇ／ｓを超える流動性は、例えば、ペレットをツインスクリュー押出機に適切に供給するための十分なペレットの流れと見なされる。

【表３】
表3：コーティングされたポリマー粒子の流動性とブロッキング

種類	比較	本発明	比較	本発明
EO コポリマー	A	1	D	2
EO I2、dg /分	1.0	4.6	11.8	13.1
EO 密度、g/cc	0.857	0.859	0.865	0.859
EO コーティング	3500 ppm タルク	250 ppm 結合剤 +6000 ppm CaSt2/ タルク (20/80 重量%)	3500 ppm タルク	250 ppm 結合剤 +6000 ppm CaSt2/ タルク (20/80 重量%)
37°C で 12 週間硬化後の流動性、g/s	-	233	-	224
37°C で 6 週間硬化後、0°C での無拘束降伏強度(lb/ft^2)	-	580	-	595
37°C で 6 週間(lb/ft^2) 硬化後、21°C での無拘束降伏強度	-	215	-	360

【０１３６】
Ｄ）ＴＰＯ
上記のコーティングされた粒子を使用して、ＴＰＯ配合物を形成した。ＴＰＯ配合物

を表４に示す。すべてのＴＰＯ配合物に同じＰＰ、タルク、および酸化防止剤を使用した。以下に説明する方法を使用して、ＴＰＯ配合物を調製し試験した。

【表４】

表４：TPO 配合物

種類	比較	比較	比較	本発明	比較	本発明
実施例	TPO A	TPO B	TPO C	TPO 1	TPO D	TPO 2
EO コポリマー	A	B	C	1	D	2
EO I2、dg/分	1.0	1.1	5.0	4.6	11.8	13.1
EO 密度、g/cc	0.857	0.870	0.870	0.859	0.865	0.859
EO コーティング[1]	3500 ppm タルク	なし	なし	250 ppm 結合剤 ＋6000 ppm CaSt2/タルク (20/80 重量%)	3500 ppm タルク	250 ppm 結合剤 ＋6000 ppm CaSt2/タルク (20/80 重量%)
コーティングされたポリマー粒子重量%/エラストマー重量%[2]	29.3/29.20			29.3/29.12	29.3/29.20	29.3/29.12
EO 重量%[3]		29.3	29.3			
PP 重量%[3]	60.5	60.5	60.5	60.5	60.5	60.5
タルク重量%[3]	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0
酸化防止剤重量%[3]	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
MFR (2.16kg、230°C)、g/10 分	25	23	42	44	51	50
種類	比較	比較	比較	本発明	比較	本発明
実施例	TPO E	TPO F	TPO G	TPO 3	TPO H	TPO 4
エラストマー	A	B	C	1	D	2
エラストマーI2、dg/min	1.0	1.1	5.0	4.6	11.8	13.1
エラストマー密度、g/cc	0.857	0.870	0.870	0.859	0.865	0.859
エラストマーコーティング[1]	3500 ppm タルク	なし	なし	250 ppm 結合剤 ＋6000 ppm CaSt2 /タルク (20/80 重量%)	3500 ppm タルク	250 ppm 結合剤 ＋6000 ppm CaSt2 /タルク (20/80 重量%)
コーティングされたポリマー粒子重量%/エラストマー重量%[2]	33.8 / 33.68			33.8 / 33.59	33.8 / 33.68	33.8 / 33.59
エラストマー重量%[3]		33.8	33.8			
PP 重量%[3]	56.0	56.0	56.0	56.0	56.0	56.0
タルク重量%[3]	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0	10.0
酸化防止剤重量%[3]	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
MFR(2.16 kg、230°C)、g / 10 分	21	20	34	35	48	50

[1]コーティングされていないポリマー粒子の重量に基づく ppm 量。[2]TPO 配合物の重量に基づく各重量%。[3]TPO 配合物の重量に基づく重量%。

【０１３７】

コンパウンド製造

ＴＰＯ配合物は、２穴ダイ、ウォーターバス、ストランドカッターを備えたＣｏｐｅｒｉｏｎ　ＺＳＫ－２５ｍｍ、二軸スクリュー押出機で調製した。全ての構成成分が主供給口を介して添加された。ポリマー成分は、ＩＲＧＡＮＯＸ　Ｂ２２５酸化防止剤とともにドライブレンドされ、重量検出方式連続定量供給フィーダー（ロスインウエイトフィーダ）から供給された。酸化防止剤粉末がペレットに付着するのを助けるために、数滴の油

がペレットに加えられた。タルクは、別の粉末フィーダーを介してメインフィードスロートに供給された。コンパウンドをストランドとして押し出し、ウォーターバスで冷却し、エアナイフの下を通過させ、ストランドカッターを使用してペレット化した。窒素流で一晩パージすることにより、すべてのコンパウンドを乾燥させた。すべてのコンパウンドに使用されるプロセス条件を表５に示す。

【表５】

表５：コンパウンド製造条件

ゾーン１℃	130
ゾーン２℃	180
ゾーン３℃	200
ゾーン４℃	200
ゾーン５℃	200
ゾーン６℃	200
ゾーン７℃	200
ゾーン８℃	200
押出機 RPM	300
流量、lb/hr	30

【０１３８】

射出成形：ペレット状のＴＰＯコンパウンドを、射出成形により機械的試験のために試験サンプルに変換した。射出成形部品は、Ａｘｘｉｃｏｎ型ベースを備えた「Ｋｒａｕｓｓ－Ｍａｆｆｅｉ　ＫＭ　１１０－３９０／３９０　ＣＬ」射出成形機で作製した。ＡＳＴＭ　Ｄ６３８タイプＩ引張棒、直径４インチ、厚さ０．１２５インチのディスクを作製した。同じ成形条件が、表６にリストされた射出成形条件を使用して、表４にリストされた本発明および比較例のすべてに使用された。ＡＳＭＴ　Ｄ６３８　Ｔｙｐｅ　Ｉ引張試験片を使用して、曲げ弾性率とノッチ付きアイゾット衝撃強度を測定した。射出成形ディスクを使用して、多軸ダート衝撃を測定した。本発明および比較のＴＰＯコンパウンドの機械的特性を表７に示す。

【表６】

表6：射出成形条件

条件	単位	4インチディスク	ASTM D638 タイプ 1
供給口温度	℃	30	30
ゾーン 1 の温度	℃	226	226
ゾーン 2 の温度	℃	226	226
ゾーン 3 の温度	℃	226	226
ゾーン 4 の温度	℃	226	226
ゾーン 5 の温度	℃	226	226
ノズル温度	℃	226	226
金型温度	°F	90	90
RPM	rpm	90	90
背圧	bar	50	50
投与遅延	秒	0	0
投与量	mm	45	40
サックバック	mm	5	5
射出速度	mm / s	40	40
射出圧力	bar	2000	2000
スイッチオーバー位置	mm / s	15	10
保圧	bar	350	425
保持時間	秒	21	21
冷却時間	秒	21	21

【表７】

表7：TPOの機械的特性とMFR

種類	比較	比較	比較	本発明	比較	本発明
実施例	TPO A	TPO B	TPO C	TPO 1	TPO D	TPO 2
曲げ弾性率、kpsi	209	222	218	199	205	182
23°C でのアイゾット強度、kJ / m2	45.9	9.5	8.0	32.7	9.8	26.9
0°C でのアイゾット強度、kJ / m2	12.6	6.2	5.5	13.9	6.5	9.0
-40°C でのアイゾット強度、kJ / m2	5.4	5.2	3.9	5.2	4.1	4.5
-10°C でのダート、%延性	90	40	20	100	30	100
-20°C でのダート、%延性	90	0	0	100	0	40
-30°C でのダート、%延性	60	0	0	30	0	0
MFR、2.16 kg、230°C、dg /分	25	23	42	44	51	50
種類	比較	比較	比較	本発明	比較	本発明
実施例	TPO E	TPO F	TPO G	TPO 3	TPO H	TPO 4
曲げ弾性率、kpsi	181	185	183	182	180	165
23°C でのアイゾット強度、kJ / m2	61.1	46.9	26.2	41.2	22.3	29.2
0°C でのアイゾット強度、kJ / m2	52.8	31.6	7.4	32.1	10.9	19.1
-40°C でのアイゾット強度、kJ / m2	9.9	6.5	5.1	7.7	5.1	5.6
-10°C でのダート、%延性	100	100	100	100	90	100
-20°C でのダート、%延性	100	100	100	100	20	100
-30°C でのダート、%延性	100	10	0	80	0	90
MFR、2.16 kg、230°C、dg /分	21	20	34	35	48	50

粉末の組成は、これらの機械的特性には影響しない。低結合剤レベルは、これらの機械的特性に影響しない。

【０１３９】

Ｅ）結果の要約

本発明のＴＰＯ　１およびＴＰＯ　３は、より低い密度のエチレン－オクテンコポリマー（本発明コポリマー１）と、ＴＰＯ　ＣおよびＴＰＯ　Ｇで使用されるエラストマー（比較コポリマーＣ）と同様のメルトインデックスとを含む。ＴＰＯ　１およびＴＰＯ　３は、それぞれ曲げ弾性率がわずかに低く、ＴＰＯ　ＣおよびＴＰＯ　Ｇと同様のＭＦＲを持っていることが発見されたが、テストされた温度範囲でアイゾット衝撃強度とダート延性が高いため、衝撃靭性において有利であった。スクリュー押出装置さらに、ＴＰＯ　１およびＴＰＯ　３で使用される本発明のコポリマー　１が低密度および高ＭＩであるにもにもかかわらず、本発明のコポリマー１のペレットは自由流動性のペレットであり、それにより一般的な二軸スクリュー押出装置でＴＰＯコンパウンドを容易に製造できることが発見された。同様に、本発明のＴＰＯ　２およびＴＰＯ　４は、より低い低密度のエチレン－オクテンコポリマー（本発明コポリマー２）と、ＴＰＯ　ＤおよびＴＰＯ　Ｈで使用されるエラストマー（比較コポリマーＤ）と同様のメルトインデックスとを含む。ＴＰＯ　２とＴＰＯ　４は、それぞれ曲げ弾性率が低く、ＴＰＯ　ＤとＴＰＯ　Ｈと同様のＭＦＲを持っているが、テストされた温度範囲にわたってより高いアイゾット衝撃強度およびより高いダート延性を有しており、衝撃靭性において有利であることが発見された。さらに、ＴＰＯ　２お

よびＴＰＯ　４で使用される本発明のコポリマー２が低密度および高ＭＩであるにもかかわらず、本発明のコポリマー２のペレットは自由流動性のペレットであり、それにより一般的な二軸スクリュー押出装置でＴＰＯコンパウンドを容易に製造することができた。

【０１４０】

本発明のＴＰＯ　１およびＴＰＯ　３は、高いメルトインデックスのエチレン－オクテンコポリマー（本発明のコポリマー１）と、ＴＰＯ　ＡおよびＴＰＯ　Ｅで使用されるエラストマー（比較例Ａ）と類似の密度とを含む。ＴＰＯ１およびＴＰＯ　３はそれぞれＴＰＯ　ＡおよびＴＰＯ　Ｅと比較して、わずかに低いアイゾット衝撃強度および同様の曲げ弾性率を有するが、－１０℃～－３０℃の温度範囲にわたって同様のダート延性を有し、ＭＦＲがはるかに高くなっている。ＴＰＯコンパウンドのＭＦＲが高ければ高いほど、より薄くて大きな射出成形部品を充填するのに有利である。また、比較例Ａと比較して、本発明のコポリマー１のＭＩが高いにもかかわらず、本発明のコポリマー１のペレットは自由流動性ペレットであり、それにより一般的な二軸スクリュー押出装置でＴＰＯコンパウンドを容易製造することができた。本発明のＴＰＯ配合物は、驚くべきことに、優れた流動性、剛性、および靭性を提供することが発見された。

なお、本発明は次の態様にも関する。

（１）組成物であって、

Ａ）コーティングされたポリマー粒子であって、前記ポリマー粒子は、０．８５４～０．８６０ｇ／ｃｃの密度、および４．０～１５．０ｇ／１０分のメルトインデックス（Ｉ２）の特性を含むエチレン系ポリマーを含む第１の組成物から形成され、

前記ポリマー粒子は、前記ポリマー粒子の全表面の少なくとも一部分上にコーティングを含み、

前記コーティングは、少なくとも１種の無機粉末と、金属ステアリン酸塩および／またはポリマー粉末から選択される少なくとも１種の有機粉末とを含む粉末組成物から形成され、前記無機粉末の総量と前記有機粉末の総量との重量比は３．０～５０．０である、コーティングされたポリマー粒子と、

Ｂ）任意選択の、プロピレン系ポリマーと、を含む、組成物。

（２）前記成分Ｂのプロピレン系ポリマーを含む、上記（１）に記載の組成物。

（３）前記成分Ｂのプロピレン系ポリマーが、２０～１２０ｇ／１０分のＭＦＲ、および０．８８０～０．９２０ｇ／ｃｃの密度を有する、上記（２）に記載の組成物。

（４）組成物が３０ｇ／１０分以上のＭＦＲを有する、上記（２）または（３）に記載の組成物。

（５）組成物が３０～６０ｇ／１０分のＭＦＲを有する、上記（２）～（４）のいずれか一項に記載の組成物。

（６）組成物が、前記組成物の重量に基づいて、５０重量％以上の成分Ｂと、５０重量％以下の成分Ａとを含む、上記（２）～（５）のいずれか一項に記載の組成物。

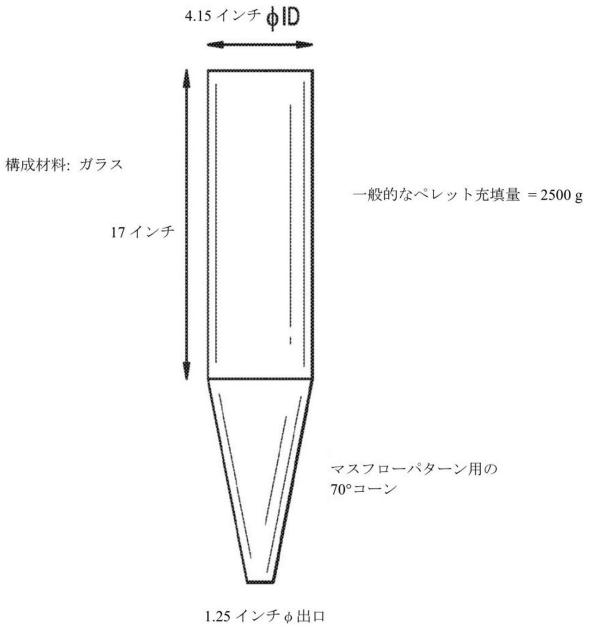
（７）成分Ａについて、前記第１の組成物が、前記第１の組成物の重量に基づいて、９５重量％以上の前記エチレン系ポリマーを含む、上記（１）～（６）のいずれか一項に記載の組成物。

（８）成分Ａについて、前記エチレン系ポリマーがエチレン／α－オレフィンインターポリマーである、上記（１）～（７）のいずれか一項に記載の組成物。

（９）成分Ａについて、前記有機粉末が金属ステアリン酸塩である、上記（１）～（８）のいずれか一項に記載の組成物。

（１０）成分Ａについて、前記無機粉末が、タルク、マイカ、炭酸カルシウム、微粉シリカ、ヒュームドシリカ、石英、およびそれらの組み合わせからなる群から選択される、上記（１）～（９）のいずれか一項に記載の組成物。

【図面】
【図１】


4.15 インチ ϕID
構成材料: ガラス
17 インチ
一般的なペレット充填量 = 2500 g
マスフローパターン用の
70°コーン
1.25 インチ ϕ 出口

フロントページの続き

アメリカ合衆国 テキサス州 ７７５６６ レーク ジャクソン，エイブナー ジャクソン パークウェイ ２３０
(72)発明者 リー、チーヒェン
アメリカ合衆国 テキサス州 ７７５８４ パールランド，エリン グレン ウェイ １０２０２
(72)発明者 ヒューズ、モルガン エム．
アメリカ合衆国 テキサス州 ７７５１５ アングルトン，ミルトン ストリート ７０８

審査官 岩田 行剛
(56)参考文献 米国特許出願公開第２００４／００９２６３１（ＵＳ，Ａ１）
米国特許出願公開第２００６／０１００３８２（ＵＳ，Ａ１）
特開２００２－００３６６７（ＪＰ，Ａ）
(58)調査した分野 (Int.Cl.，ＤＢ名)
Ｃ０８Ｌ ２３／