

發明專利說明書

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※ 申請案號：93133906

※ 申請日期：93.11.5、

※IPC 分類：C08L23/10

一、發明名稱：(中文/英文)

聚丙烯組合物

POLYPROPYLENE COMPOSITION

二、申請人：(共 1 人)

姓名或名稱：(中文/英文)

義大利商巴賽爾聚烯烴公司

BASELL POLIOLEFINE ITALIA S.P.A.

代表人：(中文/英文)

菲利浦 林德斯登

LINDSTEN, PHILIP

住居所或營業所地址：(中文/英文)

義大利米蘭佩高雷希路 25 號

VIA PERGOLESI 25, MILAN 20124, ITALY

國 籍：(中文/英文)

義大利 ITALY

三、發明人：(共 2 人)

姓 名：(中文/英文)

1. 多米尼克 A 博塔
BERTA, DOMINIC A.
2. 將保羅 佩雷嘉蒂
PELLEGATTI, GIAMPAOLO

國 籍：(中文/英文)

1. 美國 U.S.A.
2. 義大利 ITALY

四、聲明事項：

☐ 主張專利法第二十二條第二項 ☐ 第一款或 ☐ 第二款規定之事實，其事實發生日期為： 年 月 日。

☒ 申請前已向下列國家（地區）申請專利：

【格式請依：受理國家（地區）、申請日、申請案號 順序註記】

☒ 有主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

1. 美國；2003 年 11 月 06 日；60/518,449

2.

☐ 無主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

1.

2.

☐ 主張專利法第二十九條第一項國內優先權：

【格式請依：申請日、申請案號 順序註記】

☐ 主張專利法第三十條生物材料：

☐ 須寄存生物材料者：

國內生物材料 【格式請依：寄存機構、日期、號碼 順序註記】

國外生物材料 【格式請依：寄存國家、機構、日期、號碼 順序註記】

☐ 不須寄存生物材料者：

所屬技術領域中具有通常知識者易於獲得時，不須寄存。

九、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明係關於一具有經改良的衝擊-硬度平衡之丙烯聚合物組合物。

【先前技術】

丙烯聚合物因具極佳之剛度、耐熱性、耐衝擊性而可於衆多領域中用於各種模製物件。爲改良某些特性(例如耐衝擊性及剛度)，使丙烯聚合物與各種其他聚合物(例如橡膠)混合，以獲得用於各種不同用途(例如汽車元件)之材料。

歐洲專利第844 280號係關於一丙烯樹脂組合物，其包括呈特定比例的一聚丙烯樹脂與一橡膠組份。該橡膠組份包括乙烯無規共聚物及丙烯/1-丁烯無規共聚物。該兩種聚合物皆可藉助一金屬錯合物觸媒組份獲得。乙烯無規共聚物與丙烯/1-丁烯無規共聚物之重量比係介於95/5至20/80之範圍中。

歐洲專利第936 247號係關於一丙烯樹脂組合物，其包括一聚丙烯樹脂，一乙烯/ α -烯烴無規共聚物及一丙烯/乙烯/1-丁烯無規共聚物。特定言之，該丙烯/乙烯/1-丁烯無規共聚物包含50至88莫耳%之自丙烯衍生之單位、2至30莫耳%之自乙烯衍生之單位及10至40莫耳%之自1-丁烯衍生之單位。

歐洲專利第816 395號揭示一製備丙烯聚合物組合物之方法，其包含一製備丙烯聚合物之第一階段、一製備丙烯橡膠之第二階段及一製備乙烯橡膠之第三階段。該等三個階段皆可藉助一以金屬錯合物爲主之觸媒達成。根據該專

利，所得組合物具極佳之剛度、耐熱性及耐衝擊性。

本案申請人意外發現，可進一步改良丙烯聚合物組合物中之衝擊-硬度平衡。

【發明內容】

本發明之一目的係一丙烯聚合物組合物，其包含下述組份：

a) 50重量%至90重量%之丙烯均聚物或丙烯共聚物，其含有高達5莫耳%之 C_2 - C_{20} α -烯烴之衍生單位並具有下述特徵：

(i) 多分散性指數 $PI>3$ ；較佳地 $PI>3.5$ ；更佳地 $PI>4$

(ii) 熔化流速(MFR)，於 $230^{\circ}C$ 及2.16公斤負載下量測， $MFR>1$ dg/min；及

(iii) 於 $25^{\circ}C$ 下可溶於二甲苯中之比例(XSRT) $>1\%$ ；

b) 5重量%至25重量%之乙烯與一或多種 C_4 - C_{20} α -烯烴之衍生單位之共聚物，其具有下述特徵：

(i) 乙烯衍生單位之含量大於50莫耳%且小於92莫耳%；

(ii) 固有黏度(IV)大於1.2 dL/g且小於6 dL/g；

(iii) 密度介於0.850至0.890克/立方公分之間；及

(iv) 一以熔化焓表示之結晶度小於62 J/g；

c) 5重量%至25重量%之丙烯與乙烯之共聚物，其具有下述特徵：

(i) 丙烯衍生單位之含量大於50莫耳%且小於92莫耳%；

(ii) 固有黏度(IV)大於2 dL/g且小於6 dL/g；

(iii) 密度介於0.850至0.890克/立方公分之間；

(iv) 反應性比例之乘積值 $r_1 \times r_2$ 小於 2；及

(v) 一以熔化焓表示之結晶度小於 45 J/g；

其中乙烯共聚物(組份 b)與組份 b)及組份 c)(丙烯共聚物)總和之重量比等於或大於 0.5 且小於或等於 0.9。

【實施方式】

在本發明之丙烯聚合物組份 a) 中，較佳地，在一 300 MHz 儀器上記錄之 ^{13}C NMR 光譜中未檢測到 2.1 區域誤差。於 230°C 下及在 2.16 公斤負載下量測之熔化流速 (MFR) 較佳 >20 dg/min；更佳 >50 dg/min；尤佳 >55 dg/min。於 25°C 下可溶於二甲苯中之比例 (XSRT) 較佳 $>1.5\%$ ，尤佳 $>1.8\%$ 。

本發明之丙烯聚合物組份 a) 可根據習知技術藉由以下製備：在包含烷基鋁與一固體組份(其包含承載於呈活性形式 MgCl_2 上之過渡金屬)間反應之產物之習知 Ziegler/Natta 型觸媒存在下，聚合丙烯與視情況一或多種選自 $\text{C}_2\text{-C}_{20}$ α -烯烴之共單體。特定言之，當使用包含如下二者間反應之產物之觸媒時，可獲得最佳效果：

- (i) 一固體組份，其包含一不含 Ti- π 鍵結之鈦化合物及一承載於呈活性形式鹵化鎂上之電子供體化合物(內部供體)；
- (ii) 一 Al-烷基化合物，及，若適宜，一電子供體化合物(外部供體)。

通常必需使用一外部電子供體化合物以獲得一順聯度 (mm) 大於 80 之丙烯聚合物。然而，若使用如專利案 EP-A-361,493 中所述類型之化合物作為內部電子供體化合

物，則該觸媒之立體特異性本身已足夠高，不必使用一外部電子供體化合物。

自專利文獻中已廣泛獲知，呈活性形式之鹵化鎂(較佳 MgCl_2)可用作Ziegler/Natta型觸媒之載體。美國專利案第4,298,718號及第4,495,338號首次闡釋於Ziegler-Natta型催化中使用該等化合物。自該等專利案中獲知，於烯烴聚合反應之觸媒組份中以活性形式用作載體或共載體之鹵化鎂可藉由X-射線光譜表徵，其中出現於非活性鹵化物光譜中之最高強度繞射線之強度降低且其由一譜峰(halo)代替，該譜峰之強度最大值偏移一定角度，該等角度較最高強度繞射線之角度為小。

該鈦化合物較佳係選自鹵化物及鹵代醇鹽。

較佳鈦化合物係 TiCl_4 、 TiCl_3 及式 $\text{Ti}(\text{OR}^1)_m\text{X}_n$ 之鹵代醇鹽，其中 R^1 係具1至12個碳原子之烴基或一 COR^1 基團，X係鹵素且 $(m+n)$ 係鈦之化合價。

所用觸媒組份(i)較佳以平均直徑介於約10至150微米間的球形顆粒形式使用。製備該等呈球形形式之組份之適當方法闡釋於(舉例而言)專利案EP-A-395,083、EP-A-553,805及EP-A-553,806中，其闡釋內容係關於製備方法及產物特徵且以引用的方式併入本文中。

適當之內部電子供體化合物包括專利案EP-A-361,493、EP-A-361,494、EP-A-362,705及EP-A-451,645中所述類型之1,3-二醚、醚、酯(尤其為多元羧酸酯)、胺、酮。

該Al-烷基化合物(ii)較佳係選自三烷基鋁，例如Al-三乙

基、Al-三異丁基、Al-三-正-丁基、Al-三-正-己基及Al-三-正-辛基。亦可使用Al-三烷基與Al-烷基鹵化物、Al-烷基氯化物或Al-烷基倍半氯化物(例如 AlEt_2Cl 及 $\text{Al}_2\text{Et}_3\text{Cl}_3$)之混合物。

外部供體與內部供體之類型可相同或不同。若內部供體係多元羧酸之酯(特定言之, 鄰苯二甲酸酯), 則外部供體較佳係選自式 $\text{R}_1\text{R}_2\text{Si}(\text{OR})_2$ 之矽化合物, 其中 R_1 及 R_2 係具1至18個碳原子之烷基、環烷基或芳基基團。此等矽烷之實例為甲基-環己基-二甲氧基-矽烷、二苯基-二甲氧基-矽烷、甲基-第三丁基-二甲氧基-矽烷及二環戊基-二甲氧基-矽烷。

本發明組合物之組份b)係乙烯與一或多種 C_4 - C_{20} α -烯烴衍生單位的一共聚物, 其具有下述特徵:

- (i) 乙烯衍生單位之含量大於50莫耳%且小於92莫耳%;
- (ii) 固有黏度(IV)大於1.2 dL/g且小於6 dL/g;
- (iii) 密度介於0.850至0.890克/立方公分之間;
- (iv) 一以熔化焓表示之結晶度小於62 J/g。

C_4 - C_{20} α -烯烴衍生單位之含量較佳介於5莫耳%至40莫耳%之間, 更佳介於10莫耳%至30莫耳%之間。

固有黏度(IV)較佳大於1.25 dL/g且小於3.0 dL/g, 更佳大於1.28 dL/g且小於2.8 dL/g。

熔化焓較佳小於50 J/g; 更佳小於30 J/g, 尤佳小於25 J/g。

組份b)具有之反應性比例之乘積值 $r_1 \times r_2$ 較佳小於5; 尤佳小於4。

可用作共單體之 C_2 - C_{20} α -烯烴之實例為: 1-丁烯、1-戊

烯、4-甲基-1-戊烯、1-己烯、1-辛烯、4,6-二甲基-1-庚烯、1-癸烯、1-十二碳烯、1-十四碳烯、1-十六碳烯、1-十八碳烯及1-二十碳烯。較佳共單體為1-丁烯及1-辛烯。

反應性比例之乘積 $r_1 \cdot r_2$ 可根據下式計算：

$$r_1 \times r_2 = 4[EE][OO]/[EO]^2$$

其中[EE]及[OO]分別代表乙烯共聚物中乙烯單位及 α -烯烴單位之莫耳分數，且[EO]係乙烯/ α -烯烴交錯鏈數占總二元鏈數之比例。

據M. Kakugo, Y. Naito, K. Mizunuma及Macromolecules 1982, 15, 1150-1152及J. C. Randall JMS-REV. Macromol. Chem. Phys., C29 (2&3), 201-317 (1989)所載，EE、OO及OE之值可藉由一300 MHz儀器上記錄之 ^{13}C -NMR光譜確定。

該等乙烯共聚物可在存在具至少一個可與中心金屬 π -鍵結之環戊二烯基部分之金屬錯合物化合物的情況下藉由聚合乙烯與一或多種 α -烯烴獲得。

本發明組合物之組份c)係丙烯與乙烯之共聚物，其具有下述特徵：

- (i) 丙烯衍生單位之含量大於50莫耳%且小於92莫耳%；
- (ii) 固有黏度(IV)大於2 dL/g且小於6 dL/g；
- (iii) 密度介於0.850至0.890克/立方公分之間；
- (iv) 反應性比例之乘積值 $r_1 \times r_2$ 小於2；
- (v) 一以熔化焓表示之結晶度小於45 J/g。

丙烯衍生單位之含量較佳介於50莫耳%至80莫耳%之間；更佳介於60莫耳%至75莫耳%之間。

組份c)中乙烯衍生單位之含量低於50莫耳%，較佳介於50莫耳%至20莫耳%之間；更佳介於40莫耳%至15莫耳%之間。

固有黏度較佳大於2 dL/g且小於4 dL/g，更佳大於2 dL/g且小於3 dL/g。

熔化焓較佳小於35 J/g；更佳小於30 J/g。

反應性比例之乘積值 $r_1 \times r_2$ 較佳小於1.8；更佳地小於1.6。

該等丙烯/乙烯共聚物可在存在具至少一個可與中心金屬 π -鍵結之環戊二烯基部分之金屬錯合物化合物的情況下藉由聚合丙烯與乙烯獲得。

反應性比例之乘積值 $r_1 \cdot r_2$ 可根據下式計算：

$$r_1 \times r_2 = 4[PP] \cdot [EE] / [PE]^2$$

其中[PP]及[EE]分別代表丙烯/乙烯共聚物中丙烯單位及乙烯單位之莫耳分數，且[PE]係丙烯/乙烯交錯鏈數占總二元鏈數之比例。

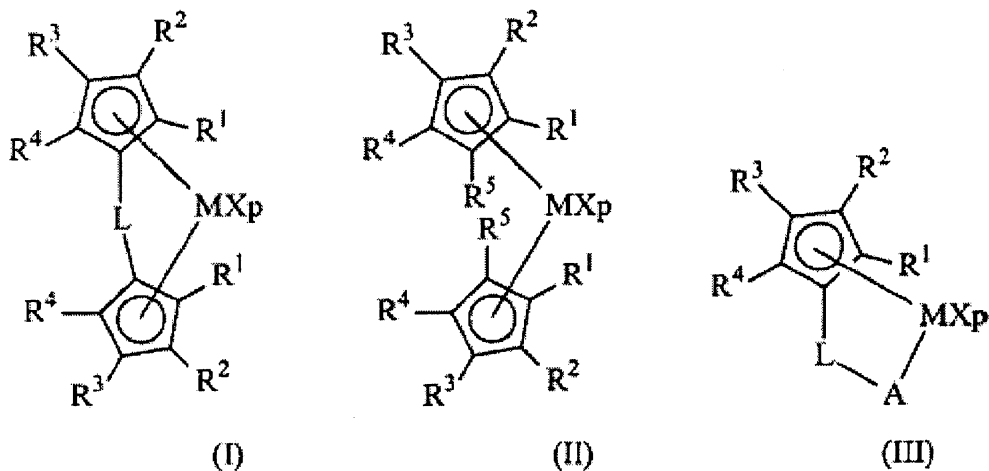
據M. Kakugo, Y. Naito, K. Mizunuma, *Macromolecules* 1982, 15, 1150-1152及J. C. Randall *JMS-REV. Macromol. Chem. Phys.*, C29 (2&3), 201-317 (1989)所載，[PP]、[EE]及[PE]之值可藉由一於一300 MHz儀器上記錄之 ^{13}C -NMR光譜確定。

乙烯共聚物(組份b)與組份b及組份c(丙烯共聚物)總和間之重量比較佳介於0.55至0.85之間，且更佳介於0.60至

0.80之間。

本發明之組合物較佳含有50重量%至80重量%間之丙烯聚合物組份a)，25重量%至9重量%間之組份b)，及25重量%至11重量%間之組份c)。

一類較佳的可用於獲得本發明組合物之組份b)及c)之金屬錯合物化合物係彼等屬於下式(I)、(II)或(III)者：



其中

M係元素週期表中屬於4、5族或屬於鑰係或鈷係之過渡金屬；M較佳為鋯、鈦或鈦。

取代基X彼此相同或不同，其係選自由氫、鹵素、 R^6 、 OR^6 、 $OCOR^6$ 、 SR^6 、 NR^6_2 及 PR^6_2 組成之群中之單陰離子 σ 配位子，其中 R^6 係一直鏈或具支鏈、飽和或不飽和 C_1 - C_{20} 烷基、 C_3 - C_{20} 環烷基、 C_6 - C_{20} 芳基、 C_7 - C_{20} 烷芳基或 C_7 - C_{20} 芳烷基基團，視情況其含有一或多個Si或Ge原子；或兩個X視情況可形成一經取代或未經取代之丁二烯基團或一 $OR'O$ 基團，其中 R' 係一選自 C_1 - C_{20} 亞烷基、 C_6 - C_{40} 亞芳基、 C_7 - C_{40} 烷基亞芳基及 C_7 - C_{40} 芳基亞烷基之二價基團；取代基X較佳相同，且其較佳係 R^6 、 OR^6 及 NR^6_2 ；其中 R^6 較佳係一 C_1 - C_7

烷基、 C_6-C_{14} 芳基或 C_7-C_{14} 芳烷基基團，視情況其含有一或多個Si或Ge原子；取代基X更佳係選自由-Cl、-Br、-Me、-Et、-正-Bu、-sec-Bu、-Ph、-Bz、-CH₂SiMe₃、-OEt、-OPr、-OBu、-OBz及-NMe₂組成之群；

p係一整數，其等於金屬M之氧化態減去2；

L係一選自 C_1-C_{20} 亞烷基、 C_3-C_{20} 環亞烷基、 C_6-C_{20} 亞芳基、 C_7-C_{20} 烷基亞芳基或 C_7-C_{20} 芳基亞烷基(視情況可含有屬於元素週期表13至17族之雜原子)及亞甲矽烷基(含有至多五個矽原子，例如SiMe₂、SiPh₂)之二價橋聯基團；L較佳係一二價基團(ZR⁷_m)_n；Z係C、Si、Ge、N或P，且R⁷基團彼此相同或不同，其係氫或直鏈或具支鏈、飽和或不飽和 C_1-C_{20} 烷基、 C_3-C_{20} 環烷基、 C_6-C_{20} 芳基、 C_7-C_{20} 烷芳基或 C_7-C_{20} 芳烷基基團或兩個R⁷可形成一脂肪族或芳族 C_4-C_7 環；

m係1或2，且更具體而言，當Z係N或P時，其係1；且當Z係C、Si或Ge時，其係2；n係一介於1至4間之整數；n較佳係1或2；

L更佳係選自Si(CH₃)₂、SiPh₂、SiPhMe、SiMe(SiMe₃)、CH₂、(CH₂)₂、(CH₂)₃或C(CH₃)₂；

R¹、R²、R³、R⁴及R⁵彼此相同或不同，其皆可係氫原子、鹵素原子或直鏈或具支鏈、飽和或不飽和 C_1-C_{20} -烷基、 C_3-C_{20} -環烷基、 C_6-C_{20} -芳基、 C_7-C_{20} -烷芳基或 C_7-C_{20} -芳烷基基團，視情況其含有一或多個屬於元素週期表13至17族之雜原子；或兩個鄰近的R¹、R²、R³、R⁴及R⁵可形成一視

情況含有一或多個包含屬於週期表13至17族之雜原子的3至7員環；例如其可與環戊二烯基部分一起形成(例如)下述基團：茛基；單、二或三及四甲基茛基；2-甲基茛基、3-第三丁基茛基、2-異丙基-4-苯基茛基、2-甲基-4-苯基茛基、2-甲基-4,5-苯并茛基；3-三甲基甲矽烷基茛基；4,5,6,7-四氫茛基；萘基；5,10-二氫茛并[1,2-b]吡啶-10-基；N-甲基-或N-苯基-5,10-二氫茛并[1,2-b]吡啶-10-基；5,6-二氫茛并[2,1-b]吡啶-6-基；N-甲基-或N-苯基-5,6-二氫茛并[2,1-b]吡啶-6-基；氮雜并環戊二烯-4-基；硫代并環戊二烯-4-基；氮雜并環戊二烯-6-基；硫代并環戊二烯-6-基；單、二及三甲基氮雜并環戊二烯-4-基、2,5-二甲基環戊二烯并[1,2-b:4,3-b']二噻吩。

屬於式(I)(II)及(III)之化合物之非限制性實例係下述化合物(若可能，呈其內消旋或外消旋異構體形式或該等異構體之混合物形式)：

雙(環戊二烯基)二氯化鋇；

雙(茛基)二氯化鋇；

雙(四氫茛基)二氯化鋇；

雙(萘基)二氯化鋇；

(環戊二烯基)(茛基)二氯化鋇；

(環戊二烯基)(萘基)二氯化鋇；

(環戊二烯基)(四氫茛基)二氯化鋇；

(萘基)(茛基)二氯化鋇；

雙(1-甲基-3-正-丁基-環戊二烯基)二氯化鋇；

二甲基矽烷二基雙(茚基)二氯化鋇，
 二甲基矽烷二基雙(2-甲基-4-苯基茚基)二氯化鋇，
 二甲基矽烷二基雙(4-萘基茚基)二氯化鋇，
 二甲基矽烷二基雙(2-甲基茚基)二氯化鋇，
 二甲基矽烷二基雙(2-甲基-4-第三丁基茚基)二氯化鋇，
 二甲基矽烷二基雙(2-甲基-4-異丙基茚基)二氯化鋇，
 二甲基矽烷二基雙(2,4-二甲基茚基)二氯化鋇，
 二甲基矽烷二基雙(2-甲基-4,5-苯并茚基)二氯化鋇，
 二甲基矽烷二基雙(2,4,7-三甲基茚基)二氯化鋇，
 二甲基矽烷二基雙(2,4,6-三甲基茚基)二氯化鋇，
 二甲基矽烷二基雙(2,5,6-三甲基茚基)二氯化鋇，
 甲基(苯基)矽烷二基雙(2-甲基-4,6-二異丙基茚基)-二氯化鋇，
 甲基(苯基)矽烷二基雙(2-甲基-4-異丙基茚基)-二氯化鋇，
 1,2-伸乙基雙(茚基)二氯化鋇，
 1,2-伸乙基雙(4,7-二甲基茚基)二氯化鋇，
 1,2-伸乙基雙(2-甲基-4-苯基茚基)二氯化鋇，
 1,4-丁烷二基雙(2-甲基-4-苯基茚基)二氯化鋇，
 1,2-伸乙基雙(2-甲基-4,6-二異丙基茚基)二氯化鋇，
 1,4-丁烷二基雙(2-甲基-4-異丙基茚基)二氯化鋇，
 1,4-丁烷二基雙(2-甲基-4,5-苯并茚基)二氯化鋇，
 1,2-伸乙基雙(2-甲基-4,5-苯并茚基)二氯化鋇，
 [4-(η^5 -環戊二烯基)-4,6,6-三甲基(η^5 -4,5-四氫-并環戊二烯)]
 二甲基鋇，

[4-(η^5 -3'-三甲基甲矽烷基環戊二烯基)-4,6,6-三甲基(η^5 -4,5-四氫并環戊二烯)]二甲基鋇，

(第三丁基醯胺基)(四甲基- η^5 -環戊二烯基)-1,2-乙烷-二甲基鈦，

(甲基醯胺基)(四甲基- η^5 -環戊二烯基)二甲基甲矽烷基-二甲基鈦，

(甲基醯胺基)(四甲基- η^5 -環戊二烯基)-1,2-乙烷二基-二甲基鈦，

(第三丁基醯胺基)-(2,4-二氯-2,4-戊二烯-1-基)二甲基甲矽烷基-二甲基鈦，

雙(1,3-二甲基環戊二烯基)二氯化鋇，

伸甲基(3-甲基-環戊二烯基)-7-(2,5-二甲基環戊二烯基-[1,2-b:4,3-b']二噻吩)二氯化鋇；

伸甲基(3-異丙基-環戊二烯基)-7-(2,5-二甲基環戊二烯基-[1,2-b:4,3-b']二噻吩)二氯化鋇；

伸甲基(2,4-二氯-環戊二烯基)-7-(2,5-二甲基環戊二烯基-[1,2-b:4,3-b']二噻吩)二氯化鋇；

伸甲基(2,3,5-三甲基-環戊二烯基)-7-(2,5-二甲基環戊二烯基-[1,2-b:4,3-b']二噻吩)二氯化鋇；

伸甲基-1-(茚基)-7-(2,5-二甲基環戊二烯基-[1,2-b:4,3-b']二噻吩)二氯化鋇；

伸甲基-1-(茚基)-7-(2,5-二-三甲基甲矽烷基環戊二烯基-[1,2-b:4,3-b']二噻吩)二氯化鋇；

伸甲基-1-(3-異丙基-茚基)-7-(2,5-二甲基環戊二烯基-

[1,2-b:4,3-b']二噻吩)二氯化鋇；

伸甲基-1-(2-甲基-茛基)-7-(2,5-二甲基環戊二烯基)-

[1,2-b:4,3-b']二噻吩)二氯化鋇；

伸甲基-1-(四氫茛基)-7-(2,5-二甲基環戊二烯基)-

[1,2-b:4,3-b']二噻吩)二氯化鋇；

伸甲基(2,4-二氯-環戊二烯基)-7-(2,5-二甲基環戊二烯基)-

[1,2-b:4,3-b']二噁唑基)二氯化鋇；

伸甲基(2,3,5-三甲基-環戊二烯基)-7-(2,5-二甲基環戊二烯

基-[1,2-b:4,3-b']二噁唑基)二氯化鋇；

伸甲基-1-(茛基)-7-(2,5-二甲基環戊二烯基-[1,2-b:4,3-b']二

噁唑基)二氯化鋇；

伸異丙基(3-甲基-環戊二烯基)-7-(2,5-二甲基環戊二烯基)-

[1,2-b:4,3-b']二噻吩)二氯化鋇；

伸異丙基(2,4-二氯-環戊二烯基)-7-(2,5-二甲基環戊二烯基)-

[1,2-b:4,3-b']二噻吩)二氯化鋇；

伸異丙基(2,4-二乙基-環戊二烯基)-7-(2,5-二甲基環戊二烯

基-[1,2-b:4,3-b']二噻吩)二氯化鋇；

伸異丙基(2,3,5-三甲基-環戊二烯基)-7-(2,5-二甲基環戊二

烯基-[1,2-b:4,3-b']二噻吩)二氯化鋇；

伸異丙基-1-(茛基)-7-(2,5-二甲基環戊二烯基-[1,2-b:4,3-b']

二噻吩)二氯化鋇；

伸異丙基-1-(2-甲基-茛基)-7-(2,5-二甲基環戊二烯基)-

[1,2-b:4,3-b']二噻吩)二氯化鋇；

二甲基矽烷二基-1-(2-甲基-茛基)-7-(2,5-二甲基環戊二烯

基-[1,2-b:4,3-b']二噻吩)二氯化鋁；

二甲基矽烷二基(3-第三丁基-環戊二烯基)(9-萸基)二氯化鋁，

二甲基矽烷二基(3-異丙基-環戊二烯基)(9-萸基)二氯化鋁，

二甲基矽烷二基(3-甲基-環戊二烯基)(9-萸基)二氯化鋁，

二甲基矽烷二基(3-乙基-環戊二烯基)(9-萸基)二氯化鋁，

1-2-乙烷(3-第三丁基-環戊二烯基)(9-萸基)二氯化鋁，

1-2-乙烷(3-異丙基-環戊二烯基)(9-萸基)二氯化鋁，

1-2-乙烷(3-甲基-環戊二烯基)(9-萸基)二氯化鋁，

1-2-乙烷(3-乙基-環戊二烯基)(9-萸基)二氯化鋁，

二甲基矽烷二基雙-6-(3-甲基環戊二烯基-[1,2-b]-噻吩)二氯化鋁；

二甲基矽烷二基雙-6-(4-甲基環戊二烯基-[1,2-b]-噻吩)二氯化鋁；

二甲基矽烷二基雙-6-(4-異丙基環戊二烯基-[1,2-b]-噻吩)二氯化鋁；

二甲基矽烷二基雙-6-(4-第三丁基環戊二烯基-[1,2-b]-噻吩)二氯化鋁；

二甲基矽烷二基雙-6-(3-異丙基環戊二烯基-[1,2-b]-噻吩)二氯化鋁；

二甲基矽烷二基雙-6-(3-苯基環戊二烯基-[1,2-b]-噻吩)二氯化鋁；

二甲基矽烷二基雙-6-(2,5-二氯-3-苯基環戊二烯基-[1,2-b]-噻吩)二甲基鋁；

二甲基矽烷二基雙-6-[2,5-二氯-3-(2-甲基苯基)環戊二烯基-
-[1,2-b]-噻吩]二甲基鋇；

二甲基矽烷二基雙-6-[2,5-二氯-3-(2,4,6-三甲基苯基)環戊
二烯基-[1,2-b]-噻吩]二氯化鋇；

二甲基矽烷二基雙-6-[2,5-二氯-3-三甲基苯環戊二烯基-
[1,2-b]-噻吩]二氯化鋇；

二甲基矽烷二基雙-6-(2,4,5-三甲基-3-苯基環戊二烯基-
[1,2-b]-噻吩)二氯化鋇；

二甲基矽烷二基雙-6-(2,5-二乙基-3-苯基環戊二烯基-
[1,2-b]-噻吩)二氯化鋇；

二甲基矽烷二基雙-6-(2,5-二異丙基-3-苯基環戊二烯基-
[1,2-b]-噻吩)二氯化鋇；

二甲基矽烷二基雙-6-(2,5-二第三丁基-3-苯基環戊二烯基-
[1,2-b]-噻吩)二氯化鋇；

二甲基矽烷二基雙-6-(2,5-二-三甲基甲矽烷基-3-苯基環戊
二烯基-[1,2-b]-噻吩)二氯化鋇；

二甲基矽烷二基雙-6-(3-甲基環戊二烯基-[1,2-b]-矽羅)二
氯化鋇；

二甲基矽烷二基雙-6-(3-異丙基環戊二烯基-[1,2-b]-矽羅)
二氯化鋇；

二甲基矽烷二基雙-6-(3-苯基環戊二烯基-[1,2-b]-矽羅)二
氯化鋇；

二甲基矽烷二基雙-6-(2,5-二氯-3-苯基環戊二烯基-[1,2-b]-
矽羅)二氯化鋇；

二甲基矽烷二基雙-6-[2,5-二氯-3-(2-甲基苯基)環戊二烯基-[1,2-b]-矽羅]二氯化鋇；

二甲基矽烷二基雙-6-[2,5-二氯-3-(2,4,6-三甲基苯基)環戊二烯基-[1,2-b]-矽羅]二氯化鋇；

二甲基矽烷二基雙-6-[2,5-二氯-3-三甲基苯環戊二烯基-[1,2-b]-矽羅]二氯化鋇；

二甲基矽烷二基雙-6-(2,4,5-三甲基-3-苯基環戊二烯基-[1,2-b]-矽羅)二氯化鋇；

[二甲基甲矽烷基(第三丁基醯胺基)][四甲基戊二烯基]二氯化鈦；

[二甲基甲矽烷基(第三丁基醯胺基)][1-茚基]二氯化鈦；

[二甲基甲矽烷基(第三丁基醯胺基)][9-蒾基]二氯化鈦；

[二甲基甲矽烷基(第三丁基醯胺基)][N-甲基-1,2-二氫環戊二烯并[2,1-b]吡啶-2-基]]二氯化鈦；

[二甲基甲矽烷基(第三丁基醯胺基)][(6-甲基-N-甲基-1,2-二氫環戊二烯并[2,1-b]吡啶-2-基)]二氯化鈦；

[二甲基甲矽烷基(第三丁基醯胺基)][(6-甲氧基-N-甲基-1,2-二氫環戊二烯并[2,1-b]吡啶-2-基)]二氯化鈦；

[二甲基甲矽烷基(第三丁基醯胺基)][(N-乙基-1,2-二氫環戊二烯并[2,1-b]吡啶-2-基)]二氯化鈦；

[二甲基甲矽烷基(第三丁基醯胺基)][(N-苯基-1,2-二氫環戊二烯并[2,1-b]吡啶-2-基)]二氯化鈦；

[二甲基甲矽烷基(第三丁基醯胺基)][(6-甲基-N-苯基-1,2-二氫環戊二烯并[2,1-b]吡啶-2-基)]二氯化鈦；

[二甲基甲矽烷基(第三丁基醯胺基)][(6-甲氧基-N-苯基-1,2-二氫環戊二烯并[2,1-b]吡啶-2-基)]二氯化鈦；

[二甲基甲矽烷基(第三丁基醯胺基)][N-甲基-3,4-二氯-1,2-二氫環戊二烯并[2,1-b]吡啶-2-基]]二氯化鈦；

[二甲基甲矽烷基(第三丁基醯胺基)][N-乙基-3,4-二氯-1,2-二氫環戊二烯并[2,1-b]吡啶-2-基]]二氯化鈦；

[二甲基甲矽烷基(第三丁基醯胺基)][N-苯基-3,4-二氯-1,2-二氫環戊二烯并[2,1-b]吡啶-2-基]]二氯化鈦；

二甲基矽烷二基雙(2-甲基-4-p-第三丁基苯基節基)二氯化鋇；

二甲基矽烷二基(2-異丙基-4-p-第三丁基苯基節基)(2-甲基-4-p-第三丁基苯基節基)二氯化鋇；

二甲基矽烷二基(2-異丙基-4-p-第三丁基苯基節基)(2-甲基-4-p-第三丁基-7-甲基苯基節基)二氯化鋇；

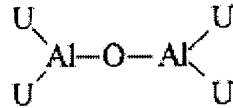
以及相應的二甲基鋇、鹽酸二氫鹽(hydrochloride)及 η^4 -丁二烯化合物。

屬於式(I)、(II)或(III)之合適的金屬錯合物錯合物闡釋於WO 98/22486、WO 99/58539、WO 99/24446、USP 5,556,928、WO 96/22995、EP-485822、EP-485820、USP 5,324,800、EP-A-0 129 368、USP 5,145,819、EP-A-0 485 823、WO 01/47939、WO 01/44318、PCT/EP02/13552、EP-A-0 416 815、EP-A-0 420 436、EP-A-0 671 404、EP-A-0 643 066及WO-A-91/04257中。

該等化合物通常與一鋁氧烷或一能提供一烷基金屬錯合

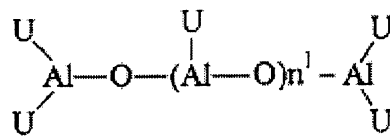
物陽離子之化合物聯合使用。

根據本發明之觸媒中所用鋁氧烷據認為係含有至少一個下述類型基團之直鏈、具支鏈或環狀化合物：

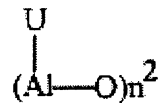


其中取代基U可相同或不同，其定義同前。

具體而言，下式之鋁氧烷：



可用於直鏈化合物之狀況，其中 n^1 為0或一介於1至40間之整數且取代基U定義同前；或下式之鋁氧烷：



可用於環狀化合物之狀況，其中 n^2 係一介於2至40間之整數且取代基U定義同前。

根據本發明適用之鋁氧烷之實例係甲基鋁氧烷(MAO)、四(異丁基)鋁氧烷(TIBAO)、四(2,4,4-三甲基-戊基)鋁氧烷(TIOAO)、四-(2,3-二甲基丁基)鋁氧烷(TDMBAO)及四-(2,3,3-三甲基丁基)鋁氧烷(TTMBAO)。

特別令人感興趣之助催化劑係彼等闡釋於WO 99/21899及WO 01/21674中者，其中烷基及芳基基團具有特定的支鏈模式。

可與水反應得到闡釋於WO 99/21899及WO 01/21674號專利中之合適鋁氧烷的鋁化合物之非限制性實例係：

三(2,3,3-三甲基-丁基)鋁、三(2,3-二甲基-己基)鋁、三(2,3-二甲基-丁基)鋁、三(2,3-二甲基-戊基)鋁、三(2,3-二甲基-庚基)鋁、三(2-甲基-3-乙基-戊基)鋁、三(2-甲基-3-乙基-己基)鋁、三(2-甲基-3-乙基-庚基)鋁、三(2-甲基-3-丙基-己基)鋁、三(2-乙基-3-甲基-丁基)鋁、三(2-乙基-3-甲基-戊基)鋁、三(2,3-二乙基-戊基)鋁、三(2-丙基-3-甲基-丁基)鋁、三(2-異丙基-3-甲基-丁基)鋁、三(2-異丁基-3-甲基-戊基)鋁、三(2,3,3-三甲基-戊基)鋁、三(2,3,3-三甲基-己基)鋁、三(2-乙基-3,3-二甲基-丁基)鋁、三(2-乙基-3,3-二甲基-戊基)鋁、三(2-異丙基-3,3-二甲基-丁基)鋁、三(2-三甲基甲矽烷基-丙基)鋁、三(2-甲基-3-苯基-丁基)鋁、三(2-乙基-3-苯基-丁基)鋁、三(2,3-二甲基-3-苯基-丁基)鋁、三(2-苯基-丙基)鋁、三[2-(4-氟-苯基)丙基]鋁、三[2-(4-氯-苯基)丙基]鋁、三[2-(3-異丙基-苯基)丙基]鋁、三(2-苯基-丁基)鋁、三(3-甲基-2-苯基-丁基)鋁、三(2-苯基-戊基)鋁、三[2-(五氟苯基)丙基]鋁、三[2,2-二苯基-乙基]鋁及三[2-苯基-2-甲基-丙基]鋁，以及其中該等烴基之一由一氫原子取代之相應化合物，及其中該等烴基中的一個或兩個由一異丁基取代的彼等化合物。

在上述鋁化合物中，較佳者係三甲基鋁(TMA)、三異丁基鋁(TIBA)、三(2,4,4-三甲基-戊基)鋁(TIOA)、三(2,3-二甲基丁基)鋁(TDMBA)、及三(2,3,3-三甲基丁基)鋁(TTMBA)。

能夠形成一烷基金屬錯合物陽離子之化合物之非限制性實例係式 D^+E^- 之化合物，其中 D^+ 係一布忍司特酸(Bronsted

acid)，其能貢獻出一質子並能與式(I)之金屬錯合物之取代基X進行不可逆反應，且 E^- 係一相容陰離子，其能穩定由該兩種化合物之反應產生的活性催化物質，且其極易於由一烯烴單體移除。陰離子 E^- 較佳包含一或多個硼原子。陰離子 E^- 更佳係一式 $BAr_4^{(-)}$ 之陰離子，其中取代基Ar(可相同或不同)係芳基基團，例如苯基、五氟苯基或雙(三氟甲基)苯基。如WO 91/02012號專利中所闡釋，四-五氟苯基硼酸鹽係尤佳之化合物。此外，可方便地使用式 BAr_3 之化合物。該類化合物闡釋於(舉例而言)國際專利申請案WO 92/00333號專利中。其他能夠生成一烷基金屬錯合物陽離子之化合物之實例為式 BAr_3P 之化合物，其中P係一經取代或未經取代之吡咯基。該等化合物闡釋於WO 01/62764號專利中。含有硼原子之化合物可方便地根據DE-A-19962814及DE-A-19962910號專利之闡釋獲得。所有該等含硼原子之化合物可以硼與金屬錯合物之金屬間莫耳比率介於約1:1至約10:1之間(較佳介於1:1至2:1之間，更佳約1:1)的量使用。

式 D^+E^- 之化合物之非限制性實例係：

- 四(苯基)硼酸三乙基銨鹽，
- 四(苯基)硼酸三丁基銨鹽，
- 四(甲苯基)硼酸三甲基銨鹽，
- 四(甲苯基)硼酸三丁基銨鹽，
- 四(五氟苯基)硼酸三丁基銨鹽，
- 四(五氟苯基)鋁酸三丁基銨鹽，

四(二甲基苯基)硼酸三丙基銨鹽，
四(三氟甲基苯基)硼酸三丁基銨鹽，
四(4-氟苯基)硼酸三丁基銨鹽，
四五氟苯基硼酸N,N-二甲基苄基銨鹽，
四五氟苯基硼酸N,N-二甲基己基銨鹽，
四(苯基)硼酸N,N-二甲基苯銨鹽，
四(苯基)硼酸N,N-二乙基苯銨鹽，
四(五氟苯基)硼酸N,N-二甲基苯銨鹽，
四(五氟苯基)鋁酸N,N-二甲基苯銨鹽，
四五氟苯基硼酸N,N-二甲基苄基銨鹽，
四五氟苯基硼酸N,N-二甲基己基銨鹽，
四(五氟苯基)硼酸二(丙基)銨鹽，
四(五氟苯基)硼酸二(環己基)銨鹽，
四(苯基)硼酸三苯磷，
四(苯基)硼酸三乙磷，
四(苯基)硼酸二苯磷，
四(苯基)硼酸三(甲基苯基)磷，
四(苯基)硼酸三(二甲基苯基)磷，
四(五氟苯基)硼酸三苯基碳鎗鹽，
四(五氟苯基)鋁酸三苯基碳鎗鹽，
四(苯基)鋁酸三苯基碳鎗鹽，
四(五氟苯基)硼酸二茂鐵鎗鹽，
四(五氟苯基)鋁酸二茂鐵鎗鹽，
四(五氟苯基)硼酸三苯基碳鎗鹽，及

四(五氟苯基)硼酸N,N-二甲基苯銨鹽。

藉助本發明之組合物，可獲得一相對於先前技術中之類似組合物其衝擊-硬度平衡提高的最終物質。

下述實例用於舉例說明而非限制本發明。

實驗部分

通用方案

固有黏度

固有黏度(IV)於135°C下在四氫萘(THN)中量測。

於25°C下可溶於二甲苯中之比例(XSRT)

於135°C下將2克聚合物溶於250毫升二甲苯中，同時不斷攪拌。20分鐘後，邊攪拌邊冷卻溶液，直至溫度達到25°C。30分鐘後，經由濾紙過濾沈澱物質，於氮氣流中蒸發溶液並在真空下於80°C乾燥殘餘物直至其達到恒重。藉此可量測於25°C下可溶於二甲苯中之聚合物之百分比。

熔化流速

熔化流速(MFR)根據ASTM D1238於230°C；2.16公斤下量測。

2,1區域誤差之測定：

2,1區域誤差根據J.C. Randall於 "Polymer sequence determination Carbon 13 NMR method", Academic Press 1977中所闡釋的方法藉由記錄於一Varian 300 MHz儀器上之 C^{13} -NMR光譜確定。可基於 $S_{\alpha\beta}+S_{\beta\beta}$ 伸甲基序列之相對濃度計算區域轉變(regioinversion)之比例。

有效密度

密度根據ASTM-D 792量測。

熔化焓

熔化焓根據下述方案使用一差式掃描熱量測定法(DSC)測定，該測定於TA Instruments.公司之儀器DSC 2920上實施。將約5毫克試樣於-20℃下平衡5分鐘，然後以10℃/分鐘之速率升溫至235℃，並於氮氣中保持3分鐘。然後以10℃/分鐘之速率降溫至-20℃並保持5分鐘。然後再次以10℃/分鐘升溫至235℃加熱。所報告值係彼等於第一次掃描時所獲得的值。

單體含量

單體含量藉助C¹³-NMR光譜測定。

多分散性指數(PI)之測定

該特性與所檢查的聚合物之分子量分佈緊密相關。特定言之，其與熔融狀態下聚合物之潛變抵抗成反比。該阻力稱做低模數值(500 Pa)下之模數分離，其可於一約200℃之溫度下藉由使用一由RHEOMETRICS(USA)出售之RMS-800型平行板流變儀測定，於一自0.1 rad/sec增加至100 rad/sec之振蕩頻率下操作。藉助下述等式可自模數分離值得出P.I.：

$$P.I.=54.6*(\text{模數分離})^{-1.76}$$

其中該模數分離定義為：

$$\text{模數分離}=(G'=500 \text{ Pa時之頻率})/(G''=500 \text{ Pa時之頻率})$$

其中G'係儲存模數且G''係損耗模數。

r1xr2反應性比例之測定

$r_1 \times r_2$ 反應性比例藉由記錄於一 Varian 300 MHz儀器上之 C^{13} -NMR光譜測定。

對於組份 b)， $r_1 \times r_2$ 根據下式測定：

$$r_1 \times r_2 = 4[EE] \cdot [OO] / [EO]^2$$

其中 [EE] 及 [OO] 分別代表乙烯共聚物中乙烯單位及 1-辛烯單位之莫耳分數，且 [EO] 係乙烯/1-辛烯交錯鏈數占總二元鏈數之比例。

對於組份 c)， $r_1 \times r_2$ 可根據下式測定：

$$r_1 \times r_2 = 4[PP] \cdot [EE] / [PE]^2$$

其中 [PP] 及 [EE] 分別代表丙烯/乙烯共聚物中丙烯單位及乙烯單位之莫耳比例，且 [PE] 係丙烯/乙烯交錯鏈數占總二元鏈數之比例。

根據 M. Kakugo, Y. Naito, K. Mizunuma, *Macromolecules* 1982, 15, 1150-1152 及 J. C. randall *JMS-REV. Macromol. Chem. Phys.*, C29 (2&3), 201-317 (1989) 進行二元鏈之分配。

組合物之組份

組份 a)

組份 a-1) 根據 EP 03102001.9 之試驗 4 獲得。

組份 a-2) 根據 EP 728769 之實例 1 獲得，其中氫氣濃度約為 3.4 Nl。

組份 a-3) 根據 EP 728769 之實例 5 中所闡釋方法獲得，其中使用環己基甲基二甲氧矽烷代替 9,9-雙(甲氧基甲基)蒽，以

75°C 作為聚合溫度並在給料中使用 3350 ppm 之氫氣。

組份 a) 之特徵列於表 1 中。

表1				
組份	PI	MFRdg/min	XSRT%	2,1區域誤差%
a-1	2.4	50	0.6	存在
a-2	3.8	60	3.8	n.d.
a-3	5	63	2	n.d.

n.d. 未檢測到

組份 b)

組份 b) 係一由 DuPont Dow elastomers 公司出售之乙烯/1-辛烯共聚物(商標名為 Engage® 8180)，其具有下述特徵：

乙烯含量(NMR)	85.7 莫耳 %
1-辛烯含量(NMR)	14.3 莫耳 %
固有黏度	2.1 dL/g
密度	0.863 克/立方公分
r1×r2	3.637
熔化烒	21.5 J/g

組份 c)

組份 c) 使用根據 WO 01/48034 中所述方案製備之外消旋-二甲基矽烷二基(2-甲基-4-(4'-第三丁基苯基)茚基)(2-異丙基-4-(4'-第三丁基苯基)茚基)二氯化鋇(A-1)作為金屬錯合物觸媒組份根據下述方案 WO 01/48034 獲得。

於 1 加侖不銹鋼高壓釜中實施聚合反應。在實施聚合反應前，於 90°C 下用乾燥氫氣吹掃該高壓釜 1 小時。將 2 毫克上

述金屬錯合物化合物溶解於50毫升7重量%之MAO之己烷溶液中，振蕩10分鐘，並將其加至該反應器中(15°C)。將12000克丙烯/丙烷之混合物(丙烯為12.5重量%)加至該反應器中。該反應器於40°C下恒溫保持，並施加乙烯過壓力。繼而使用一經控制量之氫氣壓力下經由一不銹鋼管將二茂鋁/MAO溶液注入該反應器中。將該反應器及其內容物加熱至60°C，同時用一質量流動控制器按要求加入乙烯(加入50克乙烯)以保持所需之反應過壓力。在整個試驗過程中保持恒定過壓力。在達到聚合反應溫度後將一氧化碳氣體注入反應器2小時，排出殘餘單體並冷卻反應器至室溫。移出該聚合物並於50°C下在一真空爐中乾燥1小時。所得丙烯共聚物之特徵記錄於表2中。

表2				
乙烯含量 莫耳%	IV dL/g	密度 克/立方公分	r1xr2	熔化焓 J/g
30.7	2.23	0.87	1.52	16.3

組合物製備通用方案

向所有試樣中加入0.2重量份/100重量份聚合物的A.O.B.-225(一抗氧化劑，其由50% Irgafos 168及50% Irganox 1010組成)及0.1重量份/100重量份聚合物的硬脂酸鈣。

試樣藉由在一塑料袋中以手動方式翻滾摻混總重約5磅之物質製備。然後於280 RPM下使用一具25-09螺桿的25毫米Berstorff雙螺桿擠壓機(低速剪切型)將試樣切粒，給料速率為50，350 F的給料溫度設定值在模具處增至400 F。使用

供撓性測試及懸臂樑式試驗(Izod)用的ISO試棒模具製作注射成型樣品，並根據ISO 1873-2模製該等樣品。

弦模數、懸臂樑式衝擊及張力強度根據ISO法量測。該等組合物之特性見表3。

表3					
	Ex 1*	Ex 2	Ex 3*	Ex 4	Ex 5
組份a)					
a-1	70%		80%		
a-2		70%		80%	
a-3					80
組份b)	20%	20%	13.33	13.33	13.33
組份c)	10%	10%	6.67	6.67	6.67
b)/b)+c)之比率	0.66	0.66	0.66	0.66	0.66
MFR, 2.16公斤, 230 C dg/min	21	20	30	31	18
楊氏模數(young modulus) MPa)	859	972	1083	1265	1340
降服張力強度(Mpa)	17.2	18.3	21	23	21.7
降服伸長百分率	10.8	10	9.7	8.7	6.5
斷裂張力強度(Mpa)	13	14.4	14.7	13.8	16.4
斷裂伸長百分率	>440	>440	>440	>440	155
弦模數1%秒(MPa)	641	728	804	943	1117
Izod-30 C, KJ/m ²	5.7	6.7	2.8	3.5	5.3
Izod-40 C, KJ/m ²	4.9	5.5	2.7	3.5	4.8

*對照實例

由表4可明顯看出，根據本發明之實例具一經改良的衝擊-硬度平衡特性。

五、中文發明摘要：

一種丙烯聚合物組合物，其包含下述組份：

a) 50重量%至90重量%之丙烯均聚物或丙烯共聚物，其含有高達5莫耳%之 C_2-C_{20} α -烯烴之衍生單位並具有下述特徵：

(i) 多分散性指數 $PI>3$ ；

(ii) 熔化流速(MFR)，於 $230^{\circ}C$ 及2.16公斤之負載下量測， $MFR>1\text{ dg/min}$ ；及

(iii) 於 $25^{\circ}C$ 下可溶於二甲苯中之比例(XSRT) $>1\%$

b) 5重量%至25重量%之乙烯與一或多種 C_4-C_{20} α -烯烴之衍生單位之共聚物，其具有下述特徵：

(i) 乙烯衍生單位之含量大於50莫耳%且小於92莫耳%；

(ii) 固有黏度(IV)大於 1.2 dL/g 且小於 6 dL/g ；

(iii) 密度介於 0.850 至 0.890 克/立方公分之間；及

(iv) 一以熔化焓表示的結晶度小於 62 J/g ；

c) 5重量%至25重量%之丙烯與乙烯之共聚物，其具有下述特徵：

(i) 丙烯衍生單位之含量大於50莫耳%且小於92莫耳%；

(ii) 固有黏度(IV)大於 2 dL/g 且小於 6 dL/g ；

(iii) 密度介於 0.850 至 0.890 克/立方公分之間；

(iv) 反應性比例之乘積值 $r_1 \times r_2$ 小於2；及

(v) 一以熔化焓表示的結晶度小於 45 J/g ；

其中乙烯共聚物(組份b)與組份b)與組份c)總和之重量比等於或大於0.5且小於或等於0.9。

六、英文發明摘要：

A propylene polymer composition comprising the following components:
from 50% to 90% by weight of a propylene homopolymer or a propylene copolymer
containing up to 5% by mol of derived units of C₂-C₂₀ alpha-olefins, having the
following features:

- (i) a polydispersity index $PI > 3$;
- (ii) melt flow rate (MFR), as measured at 230°C under a load of 2.16 kg, $MFR > 1$ dg/min; and

(iii) fraction soluble in xylene at 25°C (XSRT) $> 1\%$

from 5% to 25% by weight a copolymer of ethylene and one or more derived units of C₄-C₂₀ alpha-olefins having the following features:

- (i) content of ethylene derived units higher than 50% by mol and lower than 92% by mol;
 - (ii) intrinsic viscosity (IV) higher than 1.2 dL/g and lower than 6 dL/g;
 - (iii) density ranging from 0.850 to 0.890 g/cm³; and
 - (iv) a crystallinity content, expressed as the enthalpy of fusion, lower than 62 J/g
- from 5% to 25% by weight of a copolymer of propylene and ethylene having the following features:

- (i) content of propylene derived units higher than 50% by mol and lower than 92% by mol;
- (ii) intrinsic viscosity (IV) higher than 2 dL/g and lower than 6 dL/g;
- (iii) density ranging from 0.850 to 0.890 g/cm³;
- (iv) the value of the product of reactivity ratios $r_1 \times r_2$ lower than 2; and
- (v) a crystallinity content, expressed as the enthalpy of fusion, lower than 45 J/g

wherein the weight ratio between the ethylene copolymer (component b) and the sum of component b) and component c) is equal to or higher than 0.5 and less than or equal to 0.9.

十、申請專利範圍：

1. 一種丙烯聚合物組合物，其包括下述組份：

a) 50重量%至90重量%之丙烯均聚物或丙烯共聚物，其含有高達5莫耳%之 C_2-C_{20} α -烯烴之衍生單位並具有下述特徵：

(i) 多分散性指數 $PI>3$ ；

(ii) 熔化流速(MFR)，於 $230^{\circ}C$ 及2.16公斤負載下量測， $MFR>1$ dg/分鐘；及

(iii) 於 $25^{\circ}C$ 下可溶於二甲苯中之比例(XSRT) $>1\%$

b) 5重量%至25重量%之乙烯與一或多種 C_4-C_{20} α -烯烴之衍生單位之共聚物，其具有下述特徵：

(i) 乙烯衍生單位之含量大於50莫耳%且小於92莫耳%；

(ii) 固有黏度(IV)大於1.2 dL/g且小於6 dL/g；

(iii) 密度介於0.850至0.890克/立方公分之間；及

(iv) 一以熔化焓表示之結晶度小於62 J/g

c) 5重量%至25重量%之丙烯及乙烯之共聚物，其具有下述特徵：

(i) 丙烯衍生單位之含量大於50莫耳%且小於92莫耳%；

(ii) 固有黏度(IV)大於2 dL/g且小於6 dL/g；

(iii) 密度介於0.850至0.890克/立方公分之間；

(iv) 反應性比例之乘積值 $r_1 \times r_2$ 小於2；及

(v) 一以熔化焓表示之結晶度小於45 J/g

其中該乙烯共聚物(組份b)與組份b)及組份c)總和之重量比等於或大於0.5且小於或等於0.9。

2. 如請求項1之丙烯聚合物組合物，其中組份a)之特徵進一步在於：在記錄於一300 MHz儀器上之 ^{13}C NMR光譜中未檢測到2,1區域誤差。
3. 如請求項1之丙烯聚合物組合物，其中組份b)之特徵進一步在於反應性比例之乘積值 $r_1 \times r_2$ 小於5。
4. 如請求項1之丙烯聚合物組合物，其中組份a)之含量介於50重量%至80重量%之間；組份b)之含量介於25重量%至9重量%之間且組份c)之含量介於25重量%至11重量%之間。
5. 如請求項1之丙烯聚合物組合物，其中組份b)中 α -烯烴衍生單位之含量較佳介於5莫耳%至40莫耳%之間。
6. 如請求項1之丙烯聚合物組合物，其中組份b)中該固有黏度(IV)大於1.25 dL/g且小於3.0 dL/g。
7. 如請求項1之丙烯聚合物組合物，其中組份b)中該熔化焓較佳小於50 J/g。
8. 如請求項1之丙烯聚合物組合物，其中組份b)中該共單體係1-丁烯或1-辛烯。
9. 如請求項1之丙烯聚合物組合物，其中組份c)中丙烯衍生單位之含量較佳介於50莫耳%至80莫耳%之間，且乙烯衍生單位之含量介於50莫耳%至20莫耳%之間。
10. 如請求項1之丙烯聚合物組合物，其中組份c)中該固有黏度較佳大於2 dL/g且小於4 dL/g。

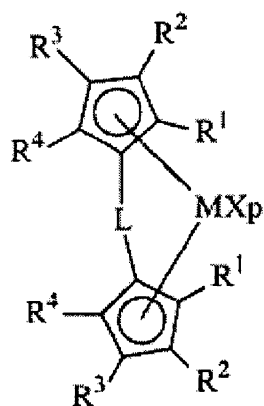
11. 如請求項1之丙烯聚合物組合物，其中組份c)中反應性比例之乘積值 $r_1 \times r_2$ 小於1.8。
12. 如請求項1之丙烯聚合物組合物，其中組份c)中該熔化焓較佳小於35 J/g。
13. 如請求項1之丙烯聚合物組合物，其中組份b)係在存在具至少一個可與該中心金屬 π -鍵結之環戊二烯基部分之金屬錯合物化合物的情況下，藉由聚合乙烯與一或多種 C_2-C_{20} α -烯烴而獲得，且組份c)係在存在具至少一個可與該中心金屬 π -鍵結之環戊二烯基部分之金屬錯合物化合物的情況下，藉由聚合丙烯與乙烯而獲得。

七、指定代表圖：

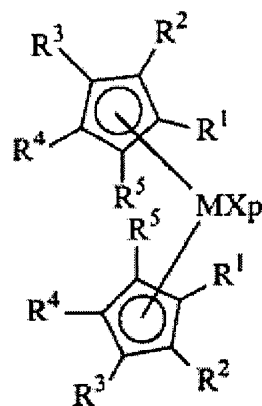
(一)本案指定代表圖為：(無)

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

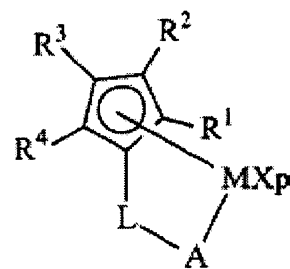
八、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：



(I)



(II)



(III)