



(21) 申請案號：108139035 (22) 申請日：中華民國 108 (2019) 年 10 月 29 日
 (51) Int. Cl. : C08L23/06 (2006.01) C08L23/12 (2006.01)
 (30) 優先權：2018/10/31 歐洲專利局 18 203 678.0
 (71) 申請人：奧地利商柏列利斯股份公司 (奧地利) BOREALIS AG (AT)
 奧地利
 (72) 發明人：卡倫 蘇珊那 KAHLEN, SUSANNE (AT)；布勞恩 赫爾曼 BRAUN, HERMANN
 (AT)；劉毅 LIU, YI (CN)；加萊特爾 馬庫斯 GAHLEITNER, MARKUS (AT)
 (74) 代理人：閻啓泰；林景郁
 申請實體審查：有 申請專利範圍項數：13 項 圖式數：2 共 27 頁

(54) 名稱

升級的再生聚乙烯聚丙烯摻合物

(57) 摘要

本發明提供一種聚乙烯-聚丙烯組成物，其可藉由摻和以下物質獲得：

a) 80 至 97 wt.-% 摻合物 (A)，其包含

A-1) 聚丙烯，及

A-2) 聚乙烯，

其中聚丙烯與聚乙烯之重量比為 3:7 至 7:3，且

其中摻合物 (A) 為再生材料，其自衍生自消費後及/或工業廢料之廢塑膠材料回收；及

b) 3 至 20 wt.-% 之為 C₂C₈ 塑性體之增容劑 (B)，其具有

- 低於 75°C 之 DSC 熔點 (ISO11357)；

- 等於或低於 1.5 g/10 min 之 MFR₂ (ISO1133，190°C 下 2.16 kg 負載)；及

- 等於或低於 885 kg/m³ 之密度 (ISO1183)，

其中 MFR₂ (摻合物 (A)) (ISO1133，230°C 下 2.16 kg 負載) / MFR₂ (增容劑 (B)) (ISO1133，190°C 下 2.16 kg 負載) 之比率在 3.0 至 15 的範圍內；及

c) 0 至 1.0 wt.-% 之穩定劑或穩定劑混合物。

A polyethylene-polypropylene composition obtainable by blending

a) 80 to 97 wt.-% of a blend (A) comprising

A-1) polypropylene and

A-2) polyethylene,

wherein the weight ratio of polypropylene to polyethylene is from 3:7 to 7:3, and

wherein blend (A) is a recycled material, which is recovered from a waste plastic material derived from post-consumer and/or industrial waste; and

b) 3 to 20 wt.-% of a compatibilizer (B) being a C₂C₈ plastomer, having

- a DSC melting point of below 75 °C (ISO11357);

- an MFR₂(ISO1133, 2.16 kg load at 190 °C) of equal or below w 1.5 g/10 min; and

- a density of equal or lower than 885 kg/m³(ISO1183),

wherein the ratio of MFR₂(blend (A) (ISO1133, 2.16 kg load at 230 °C) / MFR₂(compatibilizer (B) (ISO1133, 2.16 kg load at 190 °C), is in the range 3.0 to 15; and
c) 0 to 1.0 wt.-% of a stabilizer or mixture of stabilizers.

指定代表圖：

符號簡單說明：

無

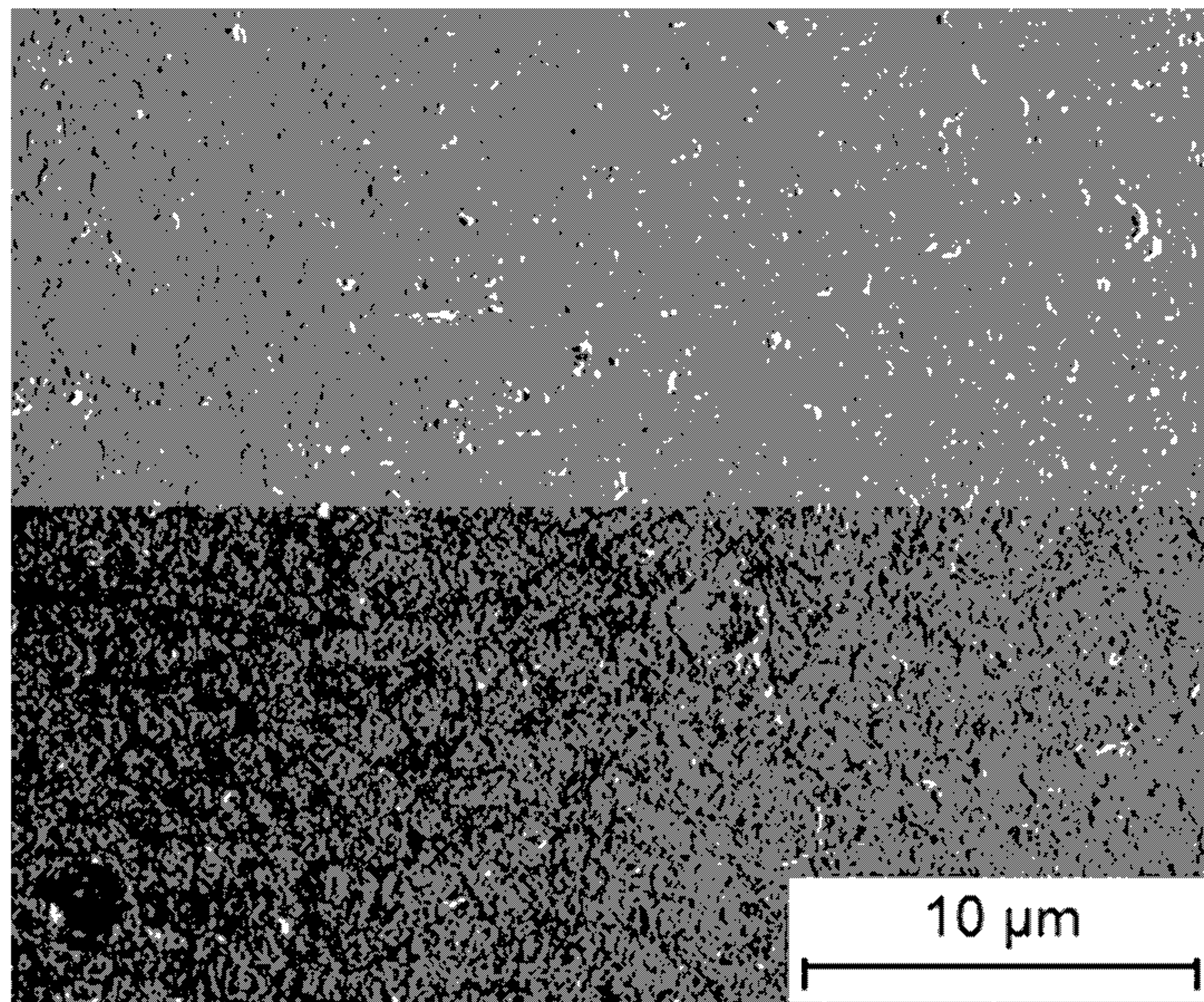


圖 1



202018001

【發明摘要】

【中文發明名稱】 升級的再生聚乙烯聚丙烯摻合物

【英文發明名稱】 UPGRADED RECYCLED POLYETHYLENE
POLYPROPYLENE BLEND

【中文】

本發明提供一種聚乙烯-聚丙烯組成物，其可藉由摻和以下物質獲得：

a) 80至97 wt.-%摻合物 (A)，其包含

A-1) 聚丙烯，及

A-2) 聚乙烯，

其中聚丙烯與聚乙烯之重量比為3:7至7:3，且

其中摻合物 (A) 為再生材料，其自衍生自消費後及/或工業廢料之廢塑膠材料回收；及

b) 3至20 wt.-%之為 C_2C_8 塑性體之增容劑 (B)，其具有

-低於 $75^{\circ}C$ 之DSC熔點 (ISO11357)；

-等於或低於1.5 g/10 min之 MFR_2 (ISO1133， $190^{\circ}C$ 下2.16 kg負載)；及

-等於或低於 885 kg/m^3 之密度 (ISO1183)，

其中 MFR_2 (摻合物 (A) (ISO1133， $230^{\circ}C$ 下2.16 kg負載) / MFR_2 (增容劑 (B) (ISO1133， $190^{\circ}C$ 下2.16 kg負載) 之比率在3.0至15的範圍內；及

c) 0至1.0 wt.-%之穩定劑或穩定劑混合物。

【英文】

A polyethylene-polypropylene composition obtainable by blending

a) 80 to 97 wt.-% of a blend (A) comprising

A-1) polypropylene and

A-2) polyethylene,

wherein the weight ratio of polypropylene to polyethylene is from 3:7 to 7:3,

and

wherein blend (A) is a recycled material, which is recovered from a waste plastic material derived from post-consumer and/or industrial waste; and

b) 3 to 20 wt.-% of a compatibilizer (B) being a C₂C₈ plastomer, having

- a DSC melting point of below 75 °C (ISO11357);

- an MFR₂ (ISO1133, 2.16 kg load at 190 °C) of equal or below 1.5 g/10 min;

and

- a density of equal or lower than 885 kg/m³ (ISO1183),

wherein the ratio of MFR₂ (blend (A) (ISO1133, 2.16 kg load at 230 °C) / MFR₂ (compatibilizer (B) (ISO1133, 2.16 kg load at 190 °C), is in the range 3.0 to 15; and

c) 0 to 1.0 wt.-% of a stabilizer or mixture of stabilizers.

【指定代表圖】 圖1

【代表圖之符號簡單說明】

無

【特徵化學式】

無

【發明說明書】

【中文發明名稱】 升級的再生聚乙烯聚丙烯摻合物

【英文發明名稱】 UPGRADED RECYCLED POLYETHYLENE
POLYPROPYLENE BLEND

【技術領域】

【0001】 本發明係關於升級的再生摻和物，其主要包含聚乙烯及聚丙烯。

【先前技術】

【0002】 聚烯烴領域中必須要使用衍生自多種來源之再生材料。然而，可獲得的再生流皆受有限機械性質影響，而不允許具有商業吸引力的最終用途。已推薦各種昂貴輔助劑聚合物用於升級再生流，從而使再生變得不經濟。因此，當下再生摻和物的市場極其有限。在主要包含聚乙烯及聚丙烯之摻合物中，經由添加彈性體充當增容劑（如習知乙烯-丙烯橡膠或EPDM）而相對容易地實現更高衝擊強度，參見Jose等人 J. Polym. Res. 20 (2013) 303。然而，此類添加將限制所得組成物之硬度。此外，此等彈性體中之多種僅可呈高分子量版本及/或以非粒化形式獲得，後者需要特定混合設備。WO 2015/169690 A1建議併入包含乙烯-辛烯共聚物之異相乙烯-丙烯共聚物（heterophasic ethylene-propylene；HECO），其尤其可自Borealis Plastomers（NL）以商品名Queo®、自DOW Chemical公司（USA）以商品名Engage®或自ENI SpA（IT）商購。

【0003】 然而，使用任意異相乙烯-丙烯共聚物（HECO）並未產生良好結果，特別係相對於硬度。通常咸信，僅可藉由使用具有嵌段共聚物性質之塑性體（諸如由Dow Chemical提供的Dow Infuse OBC或Intune OBC塑性體）來克

服有限硬度。舉例而言，INTUNE™聚丙烯類OBC（polypropylene-based OBC；PP-OBC）已經設計為增容劑而非彈性體。其含有與聚丙烯相容之富含丙烯的嵌段及與聚乙烯相容之富含乙烯之嵌段。

【0004】 可容易地理解嵌段共聚物引入具有更高硬度及因此總體上增大的硬度之某些結構域之選項。然而，可輕易地由NMR偵測之具有嵌段共聚物性質之塑性體具有相對昂貴的缺點。

【0005】 因此，非常需要再生聚乙烯聚丙烯摻合物中之硬度與良好抗衝擊之間的良好平衡。

【0006】 特定言之，非常需要針對95 wt.-%再生摻和物+5 wt.-%塑性體混合物具有至少8.0 kJ/m²的夏比（Charpy）缺口衝擊強度（ISO179 A, RT）且同時至少700 MPa拉伸模數（ISO527-2）（理想地，至少750 MPa）的升級的組成物且另外針對90 wt.-%再生摻和物+10 wt.-%塑性體混合物具有至少25 kJ/m²的夏比缺口衝擊強度（ISO179 A, RT）且同時至少650 MPa拉伸模數（ISO527-2）之升級的組成物。

【0007】 本發明係基於令人驚訝的發現：不需要具有嵌段共聚物結構之複雜塑性體，只要使用MFR為1.5 g/10 min或更低、密度等於或低於885 kg/m³的C2C8塑性體且再生摻和物之MFR與增容劑之MFR的比率在3.0至15的範圍內即可。

【發明內容】

【0008】 就此而言，本發明係針對
聚乙烯-聚丙烯組成物，其可藉由摻和以下物質獲得：

a) 80至97 wt.-%摻合物（A），其包含

A-1) 聚丙烯，及

A-2) 聚乙烯，

其中聚丙烯與聚乙烯之重量比為3:7至7:3，且

其中摻合物 (A) 為再生材料，其自衍生自消費後及/或工業廢料之廢塑膠材料回收；及

b) 3至20 wt.-%之為C₂C₈塑性體之增容劑 (B)，其具有

-低於75°C之DSC熔點 (ISO11357)；

-等於或低於1.5 g/10 min之MFR₂ (ISO1133，190°C下2.16 kg負載)；及

-等於或低於885 kg/m³之密度 (ISO1183)，

其中MFR₂ (摻合物 (A)) (ISO1133，230°C下2.16 kg負載) /MFR₂ (增容劑 (B)) (ISO1133，190°C下2.16 kg負載) 之比率在3.0至15的範圍內；及

c) 0至1.0 wt.-%之穩定劑或穩定劑混合物。

【0009】 本發明進一步提供一種滑石填充組成物，其由0.1至20.0 wt.-%滑石及如本文所述之聚乙烯-聚丙烯組成物組成。

【0010】 在另一態樣中，本發明係關於一種包含根據本發明的聚乙烯-聚丙烯組成物或滑石填充組成物之物品。

【0011】 在另一態樣中，本發明係關於一種用於提供根據本發明之聚乙烯-聚丙烯組成物之製程，該製程包含以下步驟：

a) 按聚乙烯-聚丙烯組成物之總重量計，以至少80 wt.-%之量提供摻合物 (A)，該摻合物 (A) 以3:7至7:3的比率包含聚丙烯及聚乙烯，

b) 按聚乙烯-聚丙烯組成物之總重量計，以3至20 wt.-%的量提供增容劑 (B)，其中增容劑 (B) 為C₂C₈塑性體，該增容劑 (B) 具有

○低於75°C之DSC熔點 (ISO11357)；

○等於或低於1.5 g/10 min之MFR₂ (ISO1133，190°C下2.16 kg負載)；及

○等於或低於885 kg/m³之密度 (ISO1183)；

其中MFR₂（摻合物（A）（ISO1133，230°C下2.16 kg負載）/MFR₂（增容劑（B）（ISO1133，190°C下2.16 kg負載））之比率在3.0至15的範圍內；

c) 在存在0至1.0 wt.-%之穩定劑或穩定劑混合物的情況下，熔化並混合摻合物（A）及增容劑（B）之摻合物，且

d) 視情況，粒化。

【0012】 在又一態樣中，本發明係關於作為C₂C₈塑性體之增容劑（B）的用途，該增容劑（B）具有

-低於75°C之DSC熔點（ISO11357）；

-等於或低於1.5 g/10 min之MFR₂（ISO1133，190°C下2.16 kg負載）；及

-等於或低於885 kg/m³之密度（ISO1183），

以用於改良摻合物（A）之抗衝擊-硬度平衡，該摻合物（A）包含

A-1) 聚丙烯，及

A-2) 聚乙烯，

其中聚丙烯與聚乙烯之重量比為3:7至7:3，且

其中摻合物（A）為再生材料，其自衍生自消費後及/或工業廢料之廢塑膠材料回收；且

其中MFR₂（摻合物（A）（ISO1133，230°C下2.16 kg負載）/MFR₂（增容劑（B）（ISO1133，190°C下2.16 kg負載））之比率在3.0至15的範圍內。

【0013】 除非另作定義，否則本文所用之所有技術及科學術語均具有與由所屬技術領域中具有通常知識者通常所理解相同的含義。儘管可使用與本文所述之方法及材料類似或等效的任何方法及材料實踐本發明之測試，但在本文中描述較佳方法及材料。在描述及主張本發明時，將根據下文所闡述之定義使用以下術語。

【0014】 除非另外清晰指示，否則術語「一（a/an）」及其類似術語係

指一或多個。

【0015】 出於本說明書及後續申請專利範圍之目的，相較於原生聚合物，術語「再生廢料」用於指示自消費後廢料及工業廢料兩者回收之材料。消費後廢料係指已完成至少第一使用週期（或生命週期）（亦即已服務其第一目的）的物體；而工業廢料係指製造廢品，其通常不會到達消費者手中。

【0016】 術語「原生」表示在第一次使用之前的新產生材料及/或物體，其未經再生。

【0017】 多種不同種類之聚乙烯或聚丙烯可存在於「再生廢料」中。特定言之，聚丙烯部分可包含等規丙烯均聚物、丙烯與乙烯及/或C₄-C₈ α-烯烴之無規共聚物、包含丙烯均聚物及/或至少一種C₂或C₄-C₈ α-烯烴共聚物之異相共聚物；及彈性部分，其包含乙烯與丙烯及/或C₄-C₈ α-烯基之共聚物，視情況含有少量二烯。下文給出聚乙烯部分中之成分之實例。

【0018】 諸如本文所用的術語「再生材料」表示利用「再生廢料」再處理的材料。

【0019】 聚合物摻合物為兩種或大於兩種聚合性組分之混合物。大體而言，可藉由將兩種或大於兩種聚合性組分混合來製備摻合物。所屬技術領域中已知的適合之混合程序為聚合後摻合程序。聚合後摻合可為聚合性組分（諸如聚合物粉末及/或混合的聚合物丸粒）之乾式摻合或藉由熔化混合聚合性組分之熔化摻合。

【0020】 「增容劑」為聚合物化學反應中之物質，將其添加至聚合物之不可混溶的摻合物中以提高其穩定性。「聚乙烯-聚丙烯組成物」係指含有聚丙烯及聚乙烯兩者之組成物。

【0021】 摻合物（A）中之聚丙烯/聚乙烯重量比在7:3至3:7的範圍內。

【0022】 術語「C₂C₈塑性體」表示彈性體及塑膠之聚合物組合質量且由

衍生自單體之結構單元組成，該等單體由乙烯及1-辛烯組成。

【0023】 若未另外指示，則「%」係指重量%。

【0024】 在下文中，將更詳細地描述本發明聚烯烴組成物之細節及較佳具體實例。應理解，只要適用，此等技術細節及具體實例亦適用於本發明滑石填充組成物、本發明物品、本發明製程及用途。

【0025】 增容劑（B）適當地具有等於或低於73°C之DSC熔點。

【0026】 增容劑（B）較佳地具有低於60°C（ISO11357）、更佳地40至低於60°C且最佳地40至50°C之DSC熔點。

【0027】 增容劑（B）較佳地具有0.1至低於0.7 g/10 min之MFR₂（ISO1133，190°C下2.16 kg負載）。最佳地，增容劑（B）具有0.2至低於0.6 g/10 min之MFR₂（ISO1133，190°C下2.16 kg負載）。

【0028】 增容劑（B）較佳地具有等於或低於875 kg/m³（ISO1183），更佳地等於或低於870 kg/m³（ISO1183）之密度。通常，增容劑（B）將具有等於或比850 kg/m³（ISO1183）之密度。

【0029】 MFR₂（摻合物（A）（ISO1133，230°C下2.16 kg負載））/MFR₂（增容劑（B）（ISO1133，190°C下2.16 kg負載））之比率較佳地在6.0至15、更佳地8.0至15且最佳地10至15的範圍內。

【0030】 摻合物（A）較佳地具有如藉由使用固相微萃取（HS-SPME-GC-MS）所測定之1 ppm至100 ppm、較佳地1 ppm至50 ppm、更佳地2 ppm至50 ppm、最佳地3 ppm至35 ppm之檸檬烯含量。取決於再生流之來源，檸檬烯含量將更低或更高。檸檬烯含量為存在家庭垃圾之較強指示物。

【0031】 摻合物（A）較佳地含有

(i) 少於6.0 wt.-%聚苯乙烯；及/或

(ii) 含有少於3 wt.-%滑石；及/或

(iii) 含有少於5.0 wt.-%聚醯胺；及/或

(viii) 含有少於3 wt.-%白堊 (chalk)。

【0032】 摻合物 (A) 典型地含有

(i) 少於0.1至6.0 wt.-%聚苯乙烯；及/或

(ii) 含有0.1至3 wt.-%滑石；及/或

(iii) 含有0.2至5.0 wt.-%聚醯胺；及/或

(viii) 含有0.1至3 wt.-%白堊。

【圖式簡單說明】

【0033】

圖1顯示由AFM評估之相容質量。

圖2顯示由AFM評估之相容質量。

【實施方式】

【0034】 根據本發明之聚乙烯-聚丙烯組成物包含80至97 wt.-%之摻合物 (A)。本發明之本質為摻合物 (A) 獲自再生廢料流。摻合物 (A) 可為來自諸如 (例如) 汽車工業的再生消費後廢料或工業廢料或替代地兩者之組合。

【0035】 尤佳為摻合物 (A) 由再生消費後廢料及/或工業廢料組成。

【0036】 較佳地，摻合物 (A) 藉助於所屬技術領域中已知的塑膠再生製程自再生廢料中獲得。此類再生物可例如自Corepla (收集、回收、再生包裝塑膠廢料之意大利協會 (Italian Consortium))、Resource Plastics公司 (Brampton, ON)、Kruschitz公司、Plastics及Recycling (AT)、Vogt Plastik公司 (DE)、Mtm Plastics公司 (DE) 等商購。富含聚乙烯之再生材料之非詳盡實例包括：DIPOLEN S (Mtm Plastics公司)、食品級rHDPE (BIFFA PLC) 及

一系列富含聚乙烯的材料，諸如（例如）來自PLASgran有限公司的HD-LM02041。

【0037】 在某一較佳具體實例中，再生之富含聚乙烯之材料為DIPOLEN（Mtm Plastics公司），諸如DIPOLEN S或DIPOLEN H，較佳地為DIPOLEN H。DIPOLEN獲自家庭廢料流（亦即，其為家庭再生之產物），例如在德國（Germany）的一些地區運行的「黃袋（yellow bag）」再生系統。

【0038】 摻合物（A）可具有相對於摻合物（A）之總重量的大於20 wt.-%、較佳地大於27 wt.-%、更佳地大於30 wt.-%、再更佳地大於35 wt.-%、最佳地大於40 wt.-%之衍生自乙烯之單元相對量。

【0039】 此外，摻合物（A）可具有相對於摻合物（A）之總重量的大於40 wt.-%但小於65 wt.-%之衍生自丙烯之單元相對量。

【0040】 再生材料之聚乙烯部分可包含再生高密度聚乙烯（recycled high-density polyethylene；rHDPE）、再生中等密度聚乙烯（recycled medium-density polyethylene；rMDPE）、再生低密度聚乙烯（recycled low-density polyethylene；rLDPE）及其混合物。在某一具體實例中，再生材料為平均密度大於 0.8 g/cm^3 、較佳地大於 0.9 g/cm^3 、最佳地大於 0.91 g/cm^3 之高密度PE。

【0041】 摻合物（A）中之聚丙烯與聚乙烯之重量比為3:7至7:3。

【0042】 根據本發明，摻合物（A）較佳地具有如使用固相微萃取（HS-SPME-GC-MS）測定之1 ppm至100 ppm、較佳地1 ppm至50 ppm、更佳地2 ppm至50 ppm、最佳地3 ppm至35 ppm之檸檬烯含量。檸檬烯習知地發現於再生聚烯烴材料中且來源於化妝品、清潔劑、洗髮劑及類似產品領域之包裝應用。因此，當摻合物（A）含有來源於此類類型之家庭廢料流之材料時，摻合物（A）含有檸檬烯。

【0043】 根據本發明，摻合物（A）較佳地具有如使用固相微萃取（HS-

SPME-GC-MS) 測定之大於0但小於200 ppm、較佳地小於100 ppm、更佳地小於50 ppm、最佳地小於35 ppm之檸檬烯含量。

【0044】 脂肪酸含量為摻合物(A)之再生來源的又一指示。

【0045】 由於再生來源，摻合物(A)亦可相對於摻合物(A)之重量而以至多3 wt.-%之量含有：

-有機填充物，及/或

-無機填充物，及/或

-添加劑。

【0046】 根據本發明之滑石填充組成物較佳地由5.0至15.0 wt.-%滑石及如本文所述之聚乙烯-聚丙烯組成物組成。

【0047】 本發明之聚乙烯-聚丙烯組成物可含有至多1.0 wt.-%之穩定劑或穩定劑混合物。較佳地，按聚乙烯-聚丙烯組成物之總重量計，以0.1至1.0 wt.-%的量含有穩定劑。下文更詳細地描述穩定劑。

【0048】 用於提供聚乙烯-聚丙烯組成物之根據本發明之製程包含以下步驟：

a) 按聚乙烯-聚丙烯組成物之總重量計，以至少80 wt.-%之量提供摻合物(A)，該摻合物(A)以3:7至7:3的比率包含聚丙烯及聚乙烯，

b) 按聚乙烯-聚丙烯組成物之總重量計，以3至20 wt.-%的量提供增容劑(B)，其中增容劑(B)為C₂C₈塑性體，該增容劑(B)具有

○低於75°C之DSC熔點(ISO11357)；

○等於或低於1.5 g/10 min之MFR₂(ISO1133，190°C下2.16 kg負載)；及

○等於或低於885 kg/m³之密度(ISO1183)，

其中MFR₂(摻合物(A))(ISO1133，230°C下2.16 kg負載)/MFR₂(增容劑(B))(ISO1133，190°C下2.16 kg負載)之比率在3.0至15的範圍內；

c) 在存在0至1.0 wt.-%之穩定劑或穩定劑混合物的情況下，熔化並混合摻合物 (A) 及增容劑 (B) 之摻合物，且

d) 視情況，粒化。

【0049】 如上所述之所有較佳態樣及具體實例亦應保持用於該製程。

【0050】 穩定劑為所屬技術領域中所熟知的且可為例如抗氧化劑、抗酸劑、抗結塊劑、抗UV劑、成核劑或抗靜電劑。

【0051】 所屬技術領域中常用的抗氧化劑之實例為位阻酚 (sterically hindered phenol) (諸如CAS編號6683-19-8，亦由BASF以Irganox 1010FF™出售)、磷類抗氧化劑 (諸如CAS編號31570-04-4，亦由Clariant以Hostanox PAR 24 (FF)™或由BASF以Irgafos 168 (FF)™出售)、硫類抗氧化劑 (諸如CAS編號693-36-7，由BASF以Irganox PS-802 FL™出售)、氮類抗氧化劑 (諸如4,4'-雙(1, 1'-二甲苄基)二苯胺)或抗氧化劑摻合物。

【0052】 抗酸劑亦為所屬技術領域中通常已知的。實例為硬脂酸鈣、硬脂酸鈉、硬脂酸鋅、氧化鎂及鋅、合成水滑石 (例如，SHT，CAS編號11097-59-9)、乳酸鹽及乳酸酯，以及硬脂酸鈣 (CAS編號1592-23-0) 及硬脂酸鋅 (CAS編號557-05-1)。

【0053】 常見抗結塊劑為天然二氧化矽，諸如矽藻土 (諸如CAS編號60676-86-0 (SuperfFloss™)、CAS編號60676-86-0 (SuperFlossE™) 或CAS編號60676-86-0 (Celite499™))、合成二氧化矽 (諸如CAS編號7631-86-9、CAS編號7631-86-9、CAS編號7631-86-9、CAS編號7631-86-9、CAS編號7631-86-9、CAS編號7631-86-9、CAS編號112926-00-8、CAS編號7631-86-9或CAS編號7631-86-9)、矽酸鹽 (諸如矽酸鋁 (高嶺土 (Kaolin))，CAS編號1318-74-7；矽酸鈉鋁，CAS編號1344-00-9；煨燒高嶺土，CAS編號92704-41-1；矽酸鋁，CAS編號1327-36-2；或矽酸鈣，CAS編號1344-95-2)、合成沸石 (諸如

鋁矽酸鈉鈣水合物，CAS編號1344-01-0、CAS編號1344-01-0或鋁矽酸鈉鈣，水合物CAS編號1344-01-0)。

【0054】 抗UV劑為例如雙-(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)-癸二酸酯 (CAS編號52829-07-9, Tinuvin 770) ; 2-羥基-4-正-Ctoxy-二苯甲酮 (CAS編號1843-05-6, Chimassorb 81) 。

【0055】 成核劑如苯甲酸鈉 (CAS編號532-32-1) ; 1,3:2,4-雙(3,4-二甲基苯亞甲基)山梨糖醇 (CAS 135861-56-2, Millad 3988) 。

【0056】 適合之抗靜電劑為例如甘油酯 (CAS編號97593-29-8) 或乙氧基化胺 (CAS編號71786-60-2或61791-31-9) 或乙氧基化醯胺 (CAS編號204-393-1) 。

【0057】 通常，以100-2.000 ppm之量添加此等穩定劑以用於聚合物之各個別組分。

【0058】 聚乙烯-聚丙烯組成物較佳地含有1.0與2.0 wt.-%之間的PO灰。

實驗部分

【0059】 包括以下實例以展現如申請專利範圍中所描述的本發明之某些態樣及具體實例。然而，所屬技術領域中具有通常知識者應瞭解，以下描述僅為說明性的且不應以任何方式看作本發明之限制。

測試方法

【0060】 a) 使用如EN ISO 1873-2中所描述之射出成形之標本 (狗骨形狀，4 mm厚度) 根據ISO 527-2 (在23°C下，十字頭 (cross head) 速度=1 mm/min ; 測試速度50 mm/min) 量測**拉伸模數**。在標本之96 h調節時間後，進行量測。

【0061】 b) **衝擊強度**測定為在根據EN ISO 1873-2製備之80 × 10 × 4 mm的射出成形之標本上根據ISO 179-1 eA在+23°C下的夏比缺口衝擊強度。在標本

之96 h調節時間後，進行量測。

【0062】 c) 衍生自C2及C3之單元之比率：藉由經校準至自定量 ^{13}C NMR光譜法獲得之結果的定量傅立葉變換紅外光譜法 (Fourier transform infrared spectroscopy ; FTIR) 來測定共聚物之共聚單體含量。

【0063】 在 190°C 下，將薄膜壓製成300至500 μm 之間的厚度，且以透射模式記錄光譜。相關儀器設置包括5000至400波數 (cm^{-1}) 之光譜窗、 2.0 cm^{-1} 之解析度及8次掃描。

【0064】 使用分別地在用於 ^1H 及 ^{13}C 之400.15及100.62 MHz下操作的Bruker Avance III 400 NMR光譜儀在溶液態下記錄定量 $^{13}\text{C}\{^1\text{H}\}$ NMR光譜。所有光譜均在 125°C 下針對所有氣動裝置使用氦氣使用 ^{13}C 最佳化之10 mm寬溫探頭記錄。將大約200 mg材料連同乙醯基丙酮酸鉻 (III) ($\text{Cr}(\text{acac})_3$) 一起溶解於3 ml之1,2-四氫乙烷- d_2 (TCE- d_2) 中，產生弛豫劑於溶劑中之65 mM溶液 (Singh, G., Kothari, A., Gupta, V., Polymer Testing 28 5 (2009), 475)。為確保均質溶液，在加熱塊中之初始樣品製備後，進一步在旋轉烘箱中加熱NMR管至少1小時。插入至磁鐵中後，使管在10 Hz下旋轉。此設置主要為了高解析度而選擇且定量地為精確乙烯含量定量所需。採用標準單脈衝激勵，無NOE，使用最佳化頂錐角、1 s再生延遲及雙水準WALTZ16去耦流程 (Zhou, Z., Kuemmerle, R., Qiu, X., Redwine, D., Cong, R., Taha, A., Baugh, D. Winniford, B., J. Mag. Reson. 187 (2007) 225, Busico, V., Carbonniere, P., Cipullo, R., Pellicchia, R., Severn, J., Talarico, G., Macromol. Rapid Commun. 2007, 28, 1128)。每個光譜獲得總計6144 (6k) 個瞬態。定量 $^{13}\text{C}\{^1\text{H}\}$ NMR光譜經處理、積分，且自積分測定相關定量特性。所有化學位移均間接參照在30.0 ppm下使用溶劑之化學位移的乙烯嵌段 (EEE) 之中心亞甲基。甚至在此結構單元不存在時，此方法允許類似參照。觀測到對應於乙烯併入之特徵信號 (Cheng, H. N., Macromolecules 17

(1984), 1950) 且共聚單體部分經計算為相對於聚合物中之所有單體的聚合物中之乙烯部分： $f_E = (E / (P + E))$ 。共聚單體部分使用Wang等人 (Wang, W-J., Zhu, S., *Macromolecules* 33 (2000), 1157) 之方法經由對 $^{13}\text{C}\{^1\text{H}\}$ 光譜之整個光譜區域上之多個信號進行積分而定量。選擇此方法係因為其穩固性質及在需要時考慮區域缺陷之存在的能力。略微調整積分區域以增加在遇到之共聚單體含量之整個範圍內的適用性。自莫耳分數計算共聚單體併入莫耳百分比： $E [\text{mol}\%] = 100 * f_E$ 。自莫耳分數計算共聚單體併入重量百分比： $E [\text{wt}\%] = 100 * (f_E * 28.06) / ((f_E * 28.06) + ((1 - f_E) * 42.08))$ 。

【0065】 d) PE、PS、PA含量：使用膜厚度方法、使用定量頻帶之強度 $I(q)$ 及按壓膜之厚度 T 、使用以下關係測定共聚單體含量 C ： $[I(q) / T]_m + c = C$ ，其中 m 及 c 為自使用自 ^{13}C NMR光譜法獲得之共聚單體含量建構的校準曲線測定的係數。

【0066】 以已知方式基於藉由 ^{13}C -NMR校準之傅立葉變換紅外光譜法 (FTIR) 使用Nicolet Magna 550 IR光譜儀連同Nicolet Omnic FTIR軟體來量測共聚單體含量。由樣品壓縮模製厚度為約 $250 \mu\text{m}$ 之膜。類似膜由具有已知含量之共聚單體的校準樣品製成。根據波數範圍為 1430 至 1100 cm^{-1} 之光譜測定共聚單體含量。吸光度藉由選擇所謂的較短或較長基線或兩者而量測為峰之高度。經由最小點及約在 1410 與 1220 cm^{-1} 之間的較長基線將較短基線繪製呈約 1410 - 1320 cm^{-1} 。尤其需要對各基線類型進行校準。同樣，未知樣品之共聚單體含量需要在校準樣品之共聚單體含量的範圍內。

【0067】 滑石及白堊含量：藉由熱解重量分析 (Thermogravimetric Analysis; TGA) 量測；藉由Perkin Elmer TGA 8000執行實驗。將大約 10 - 20 mg 材料置放於鉑盤中。溫度在 50°C 下平衡 10 分鐘，且然後在氮氣下，以 $20^\circ\text{C}/\text{min}$ 之加熱速率升高至 950°C 。約 550°C 與 700°C 之間之重量損失 (WCO_2) 歸因於由

CaCO₃釋放的CO₂，且因此白堊含量經評估為：

$$\text{白堊含量} = 100/44 \times W_{CO_2}$$

【0068】 然後，溫度以20°C/min之冷卻速率降至300°C。隨後，將氣體切換為氧氣，且溫度再次升高至900°C。此步驟中之重量損失歸因於碳黑（W_{cb}）。知道碳黑及白堊之含量，除白堊及碳黑之外的灰含量經計算為：

$$\text{灰含量} = (\text{灰殘餘物}) - 56/44 \times W_{CO_2} - W_{cb}$$

【0069】 其中灰殘餘物為在氮氣下進行的第一步驟中在900°C下量測的重量%。灰含量經估計為與研究再生物的滑石含量相同。

【0070】 e) **MFR**：如所指示，藉由230°C 或190°C 下2.16 kg負載（MFR₂）量測熔體流動速率。熔體流動速率為標準化為ISO 1133的測試設備在10分鐘內在230°C（或190°C）之溫度下在2.16 kg負載下擠出的以公克為單位之聚合物之質量。

【0071】 f) **DSC熔點 (ISO 11357)**

【0072】 g) **密度 (ISO 1183)**

【0073】 h) **形態**，藉由AFM

實驗

【0074】 用DIPOLEN S作為摻合物（A）、來自Mtm Plastics公司之聚乙烯-聚丙烯摻合物、根據2018年8月的說明書之材料產生多種摻合物。

【0075】 在摻合物中之各者中，添加5至20 wt.-%之反應器衍生的增容劑（B）。使用以下可商購塑性體作為增容劑（B）：

Queo8201（本發明IE1 a-c）

Queo6800（本發明IE2 a-c）

Infuse9077（比較C1a、b）

IntuneD5535（比較C2a、b）

Exact8203 (比較C3 a-c)

Queo7007 (比較C4 a-c)

Queo8207 (比較C5 a-c)

【0076】 經由在共轉雙螺桿擠壓機上熔化摻合藉由0.3 wt.-% Irganox B225F作為穩定劑來製備組成物。

【0077】 排放且粒化聚合物熔化混合物。為測試機械特性，標本經產生且根據ISO 179藉由1eA缺口標本測試以量測夏比缺口衝擊強度且根據ISO 527-1/2藉由1A標本測試以量測室溫下的拉伸特性。

DIPOLEN中之檸檬烯含量

量測

【0078】 使用固相微萃取 (HS-SPME-GC-MS) 藉由標準添加進行檸檬烯定量。

【0079】 將50 mg研磨樣品稱重至20 mL頂空瓶中且在添加呈不同濃度之檸檬烯及經玻璃塗佈磁性攪拌棒後，藉由襯有矽酮/PTFE之磁力蓋將瓶密閉。微型毛細管 (10 pL) 用於將已知濃度之稀釋檸檬烯標準品添加至樣品。添加0、2、20及100 ng等於0 mg/kg、0.1 mg/kg、1 mg/kg及5 mg/kg檸檬烯，此外，標準量之6.6 mg/kg、11 mg/kg及16.5 mg/kg檸檬烯與本申請案中測試的樣品中的一些組合使用。為定量，使用以SIM模式獲得的離子-93。在60°C下藉由具有2 cm穩定的柔性50/30 pm DVB/Carboxen/PDMS纖維之頂空固相微萃取進行揮發性部分之富集，保持20分鐘。在270°C下，直接在GCMS系統之經加熱注入口中進行脫附。

GCMS參數：

管柱：30 m HP 5 MS 0.25*0.25

注入器：用0.75 mm SPME襯管不分流，270°C

溫度程式：-10°C (1 min)

載氣：氮5.0，31 cm/s線速度，恆定流速

MS：單一四極，直接界面，280°C界面溫度

獲取：SIM掃描模式

掃描參數：20-300 amu

SIM參數：m/Z 93，100 ms停留時間

表1：DIPOLEN（摻合物（A））中之檸檬烯含量

樣品	檸檬烯[mg/kg] HS-SPME-GC-MS ¹
Dipolen S	31.5±2.6

¹頂空固相微萃取。可獲自mtm plastics公司之材料，根據2018說明書。

總自由脂肪酸含量

【0080】 使用頂空固相微萃取（HS-SPME-GC-MS）藉由標準添加進行脂肪酸定量。

【0081】 將50 mg研磨樣品稱重至20 mL頂空瓶中且在添加呈不同濃度之檸檬烯及經玻璃塗佈磁性攪拌棒後，藉由襯有矽酮/PTFE之磁力蓋將瓶密閉。10 µL微型毛細管用於將已知濃度之稀釋自由脂肪酸混合物（乙酸、丙酸、丁酸、戊酸、己酸及辛酸）標準品以三個不同量添加樣品。添加0、50、100及500 ng等於0 mg/kg、1 mg/kg、2 mg/kg及10 mg/kg之各個別酸。為定量，以SIM模式獲得的離子60用於除丙酸之外的所有酸，此處使用離子74。

GCMS參數：

管柱：20 m ZB Wax加0.25*0.25

注入器：用玻璃內襯之分流襯管分流5:1，250°C

溫度程式：40°C (1 min)，在6°C/min下至120°C，在15°C至245°C下 (5 min)

載劑：氮5.0，40 cm/s線速度，恆定流速

MS：單一四極，直接界面，220°C 界面溫度

獲取：SIM掃描模式

掃描參數：46-250 amu 6.6次掃描/秒

SIM參數：m/z 60，74，6.6次掃描/秒

表2：Dipolen（摻合物（A））中之總脂肪酸含量

樣品	總脂肪酸濃度[mg/kg] ¹
Dipolen S	70.6

¹將各樣品中之乙酸、丙酸、丁酸、戊酸、己酸、辛酸、壬酸及癸酸之濃度加在一起以得到總脂肪酸濃度值。

表5：結果

	Ref1	IE1a	IE1b	IE1c	IE2a	IE2b	IE2c	C1a	C1b	C2a	C2b	C3a	C3b	C3c	C4a	C4b	C4c	C5a	C5b	C5c	
摻和物 (A)	Dipolen S																				
(B)		Queo8201			Queo6800			Infuse9077		Intune D5535		Exact8203			Queo7007			Queo8207			
-嵌段共聚物性質 (B)		否			否			是		是		否			否			否			
Wt.-% (A) 對比 (A) + (B)	100	95	90	80	95	90	80	95	90	95	90	95	90	80	95	90	80	95	90	80	
Wt.-% (B)	0	5	10	20	5	10	20	5	10	5	10	5	10	20	5	10	20	5	10	20	
(B) 之 Tm (DSC) °C		73			47			118		(90)		72			48			75			
MFR2 (B)		1.1			0.5			0.5		4		3.0			6.6			6.6			
密度 (B) kg/m ³		883			868			869		nd		882			870			883			
MFR (A) /MFR (B)	-	5.2			11.5			11.5		1.4		1.9			0.9			0.9			
熔化模數 (RT, ISO 5272), MPa	849	807	727	607	773	670	522	744	656	806	747	773	744	581	769	680	675	798	745	602	
夏比 ISO 179 缺口 RT	5.5	6.8	10.7	45.2	9.0	30	65	8.4	31	5.8	7.1	7.6	8.4	41	6.7	11	nd	6.4	8.2	30.2	
MFR (總計)	5.7	5.5	5.1	4.8	5.2	4.9	4.3	5.4	4.8	5.9	5.9	5.7	5.7	5.6	5.8	6.2	6.1	5.9	6.2	6.8	
(A) + (B) /總組成物 wt.-%		99.7																			
IrganoxB225F wt.-%		0.3																			

【0082】 特定言之，可自實施例IE2a至IE2c中看到，DSC熔點低於75°C (ISO11357)、MFR₂ (ISO1133, 190°C 下2.16 kg負載) 等於或低於1.5 g/10 min且密度等於或低於885 kg/m³ (ISO1183) 而無嵌段共聚物結構之習知C2C8 塑性體令人驚訝地足以實現與可藉由具有嵌段共聚物性質之塑性體獲得的相同或甚至更佳 (IE2a、b對比C2a、b) 抗衝擊及實際上相同或略微更佳的硬度 (以5 wt.-%; IE2a對比C1a)。另外可 (自C3a-c) 看到增容劑 (B) 之MFR₂ (ISO1133, 190°C 下2.16 kg負載) 的確應低於3.0 g/10 min以便實現良好抗衝擊。在又一其他態樣中，可 (自C2a、b) 看到增容劑 (B) 之嵌段共聚物性質無法確保良好抗衝擊特性。

【0083】 藉由AFM進一步評估相容質量。圖1 (實施例IE2c) 驗證良好形態，而圖2 (比較實施例C3c) 證明粗糙、非所需形態。

【符號說明】

無

【發明申請專利範圍】

【第1項】一種聚乙烯-聚丙烯組成物，其可藉由摻和以下物質獲得：

a) 80至97 wt.-%摻合物 (A)，其包含

A-1) 聚丙烯，及

A-2) 聚乙烯，

其中聚丙烯與聚乙烯之重量比為3:7至7:3，且

其中摻合物 (A) 為再生材料，其自衍生自消費後及/或工業廢料之廢塑膠材料回收；及

b) 3至20 wt.-%之為 C_2C_8 塑性體之增容劑 (B)，其具有

-低於 $75^{\circ}C$ 之DSC熔點 (ISO11357)；

-等於或低於 $1.5\text{ g}/10\text{ min}$ 之 MFR_2 (ISO1133， $190^{\circ}C$ 下 2.16 kg 負載)；及

-等於或低於 $885\text{ kg}/m^3$ 之密度 (ISO1183)，

其中 MFR_2 (摻合物 (A)) (ISO1133， $230^{\circ}C$ 下 2.16 kg 負載) / MFR_2 (增容劑 (B)) (ISO1133， $190^{\circ}C$ 下 2.16 kg 負載) 之比率在3.0至15的範圍內；及

c) 0至1.0 wt.-%之穩定劑或穩定劑混合物。

【第2項】如請求項1所述之聚乙烯-聚丙烯組成物，其中該增容劑 (B) 具有等於或低於 $73^{\circ}C$ 、較佳地低於 $60^{\circ}C$ 之DSC熔點 (ISO11357)。

【第3項】如請求項1或2所述之聚乙烯-聚丙烯組成物，其中該增容劑 (B) 具有低於 $0.7\text{ g}/10\text{ min}$ 之 MFR_2 (ISO1133， $190^{\circ}C$ 下 2.16 kg 負載)。

【第4項】如前述請求項中任一項所述之聚乙烯-聚丙烯組成物，其中該增容劑 (B) 具有等於或低於 $875\text{ kg}/m^3$ 之密度 (ISO1183)。

【第5項】如前述請求項中任一項所述之聚乙烯-聚丙烯組成物，其中 MFR_2 (摻合物 (A)) (ISO1133， $230^{\circ}C$ 下 2.16 kg 負載) / MFR_2 (增容劑 (B)) (ISO1133， $190^{\circ}C$ 下 2.16 kg 負載) 之該比率在6.0至15的範圍內。

【第6項】如前述請求項中任一項所述之聚乙烯-聚丙烯組成物，其中摻合物（A）具有如藉由使用固相微萃取（HS-SPME-GC-MS）所測定之1 ppm至100 ppm、較佳地1 ppm至50 ppm、更佳地2 ppm至50 ppm、最佳地3 ppm至35 ppm的檸檬烯含量。

【第7項】如前述請求項中任一項所述之聚乙烯-聚丙烯組成物，其中摻合物（A）具有相對於摻合物（A）之總重量的大於20 wt.-%之衍生自乙烯的單元相對量。

【第8項】如前述請求項中任一項所述之聚乙烯-聚丙烯組成物，其中摻合物（A）

(i) 含有少於6.0 wt.-%聚苯乙烯；及/或

(ii) 含有少於3 wt.-%滑石；及/或

(vii) 含有少於5.0 wt.-%聚醯胺；及/或

(viii) 含有少於3 wt.-%白堊。

【第9項】一種滑石填充組成物，其由0.1至20.0 wt.-%滑石及如前述請求項中任一項所述之聚乙烯-聚丙烯組成物組成。

【第10項】一種物品，其包含如請求項1至8中任一項所述之聚乙烯-聚丙烯組成物或如請求項9所述之滑石填充組成物。

【第11項】一種用於提供如請求項1至8中任一項所述之聚乙烯-聚丙烯組成物的製程，該製程包含以下步驟：

a) 按該聚乙烯-聚丙烯組成物之總重量計，以至少80 wt.-%之量提供摻合物（A），該摻合物（A）以3:7至7:3的比率包含聚丙烯及聚乙烯，

b) 按該聚乙烯-聚丙烯組成物之總重量計，以3至20 wt.-%的量提供增容劑（B），其中增容劑（B）為C₂C₈塑性體，該增容劑（B）具有

○低於75°C之DSC熔點（ISO11357）；

○等於或低於1.5 g/10 min之MFR₂ (ISO1133, 190°C下2.16 kg負載) ; 及

○等於或低於885 kg/m³之密度 (ISO1183) ;

其中MFR₂ (摻合物 (A) (ISO1133, 230°C下2.16 kg負載) /MFR₂ (增容劑 (B) (ISO1133, 190°C下2.16 kg負載) 之該比率在3.0至15的範圍內;

c) 在存在0至1.0 wt.-%之穩定劑或穩定劑混合物的情況下, 融化並混合摻合物 (A) 及該增容劑 (B) 之摻合物, 且

d) 視情況, 粒化。

【第12項】一種作為C₂C₈塑性體之增容劑 (B) 之用途, 該增容劑 (B) 具有

-低於75°C之DSC熔點 (ISO11357) ;

-等於或低於1.5 g/10 min之MFR₂ (ISO1133, 190°C下2.16 kg負載) ; 及

-等於或低於885 kg/m³之密度 (ISO1183) ,

以用於改良摻合物 (A) 之抗衝擊-硬度平衡, 該摻合物 (A) 包含

A-1) 聚丙烯, 及

A-2) 聚乙烯,

其中聚丙烯與聚乙烯之重量比為3:7至7:3, 且

其中摻合物 (A) 為再生材料, 其自衍生自消費後及/或工業廢料之廢塑膠材料回收; 且

其中MFR₂ (摻合物 (A) (ISO1133, 230°C下2.16 kg負載) /MFR₂ (增容劑 (B) (ISO1133, 190°C下2.16 kg負載) 之比率在3.0至15的範圍內。

【第13項】一種作為C₂C₈塑性體之增容劑 (B) 之用途, 該增容劑 (B) 具有

-低於75°C之DSC熔點 (ISO11357) ;

-等於或低於1.5 g/10 min之MFR₂ (ISO1133, 190°C下2.16 kg負載) ; 及

-等於或低於 885 kg/m^3 之密度 (ISO1183) ，

以用於改良摻合物 (A) 之形態，該摻合物 (A) 包含

A-1) 聚丙烯，及

A-2) 聚乙烯，

其中聚丙烯與聚乙烯之重量比為3:7至7:3，且

其中摻合物 (A) 為再生材料，其自衍生自消費後及/或工業廢料之廢塑膠材料回收；且

其中 MFR_2 (摻合物 (A) (ISO1133, 230°C 下 2.16 kg 負載) / MFR_2 (增容劑 (B) (ISO1133, 190°C 下 2.16 kg 負載) 之比率在3.0至15的範圍內。

【發明圖式】

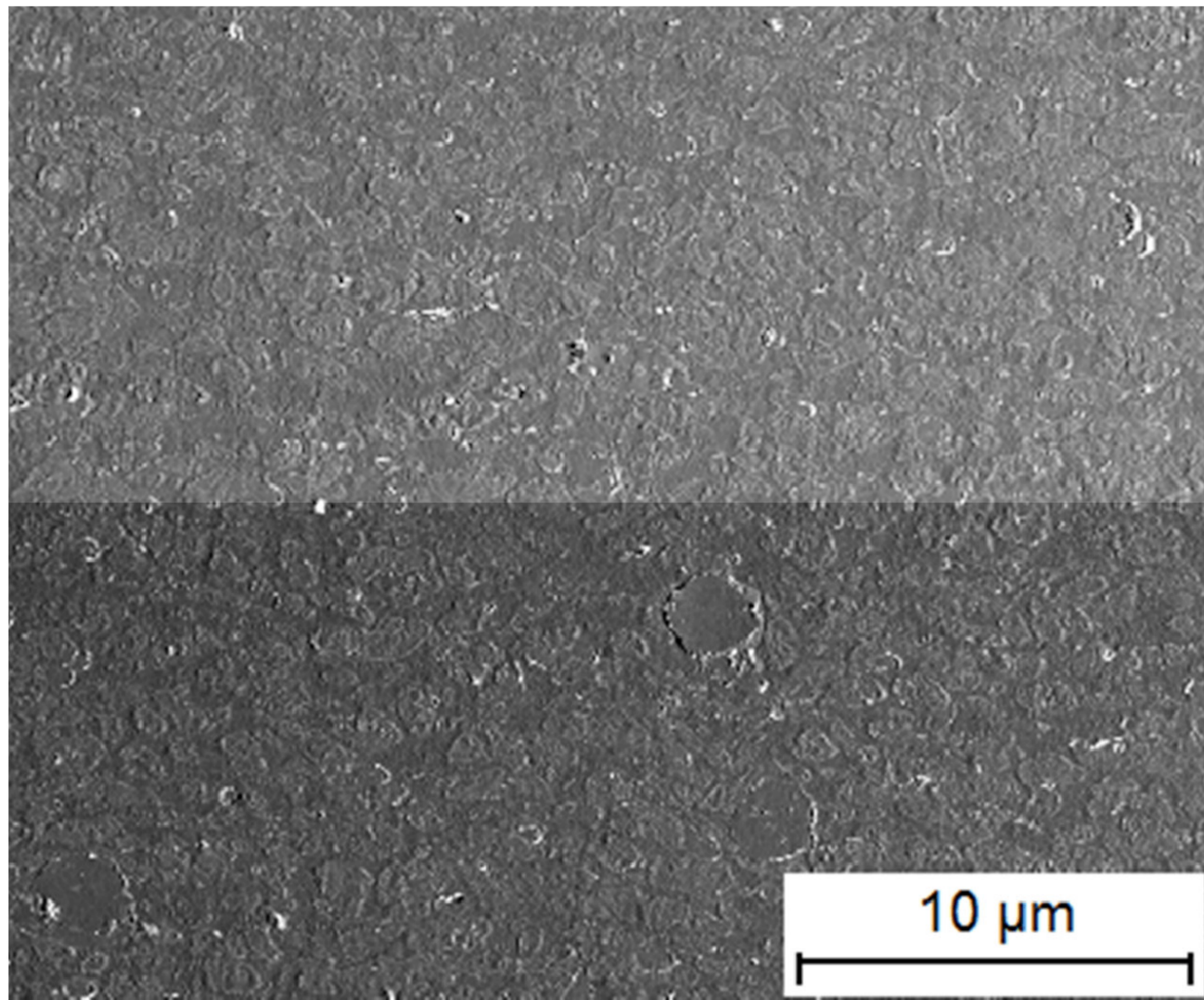


圖1

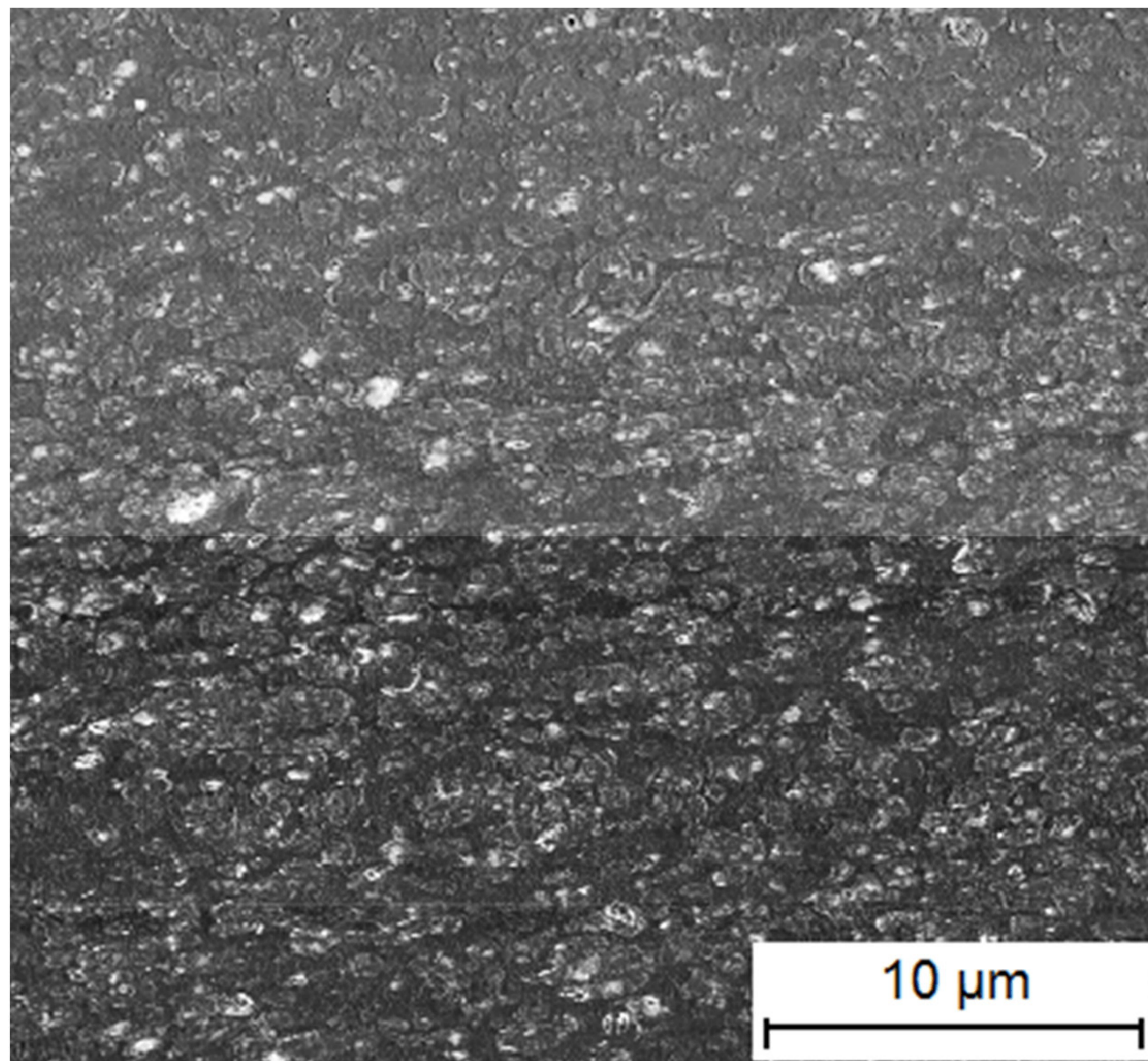


圖2