

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2005-514469

(P2005-514469A)

(43) 公表日 平成17年5月19日(2005.5.19)

(51) Int. Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
C08J 5/18	C08J 5/18 CES	4F071
B29C 47/14	B29C 47/14	4F207
C08L 23/08	C08L 23/08	4J002
// B29K 23:00	B29K 23:00	
B29L 7:00	B29L 7:00	

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 12 頁)

(21) 出願番号	特願2003-556454 (P2003-556454)	(71) 出願人	594055158
(86) (22) 出願日	平成14年12月18日 (2002.12.18)		イーストマン ケミカル カンパニー
(85) 翻訳文提出日	平成16年6月18日 (2004.6.18)		アメリカ合衆国, テネシー 37660,
(86) 国際出願番号	PCT/US2002/040772		キングSPORT, ノース イーストマン
(87) 国際公開番号	W02003/055926		ロード 100
(87) 国際公開日	平成15年7月10日 (2003.7.10)	(74) 代理人	100099759
(31) 優先権主張番号	10/027, 556		弁理士 青木 篤
(32) 優先日	平成13年12月21日 (2001.12.21)	(74) 代理人	100077517
(33) 優先権主張国	米国 (US)		弁理士 石田 敬
		(74) 代理人	100087413
			弁理士 古賀 哲次
		(74) 代理人	100082898
			弁理士 西山 雅也

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 エチレン- α -オレフィン共重合体フィルムの製造方法

(57) 【要約】

エチレン - - オレフィン共重合体からフィルムを製造する方法が開示されており、このフィルムは改良された表面ヘイズ、剛性及び色調という特性を兼備している。この方法は、約0.1重量%から1重量%より少ない量までの機能化されたエチレン単独重合体又は機能化されたエチレン - - オレフィン共重合体を、エチレン - - オレフィン共重合体含有組成物に組み込むこと及びその組成物からフィルムを形成することを含む。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

組成物当り、99重量%より多い量から約99.9重量%までの量のエチレン-オレフィン共重合体と、約0.1重量%から1重量%より少ない量までの量の機能化されたエチレン単独重合体及び機能化されたエチレン-オレフィン共重合体からなる群から選ばれる機能化された成分とを含む組成物からフィルムを形成せしめることを含んでなる、減少した表面ヘイズ、増大した割線モジュラス及び改良された色調を有することによって特徴づけられるフィルムの製造方法であって、前記機能化された成分が、その機能化された成分当り、約0.01重量%~約3重量%の機能化剤を含んでなる前記フィルムの製造方法。

10

【請求項 2】

前記エチレン-オレフィン共重合体がエチレン及び少なくとも1種又はそれ以上のその他の-オレフィンを含み、且つそのエチレン含有量がその共重合体の少なくとも約50重量%である請求項1に記載の方法。

【請求項 3】

-オレフィンが炭素原子3~約16を有する請求項2に記載の方法。

【請求項 4】

機能化されたエチレン-オレフィン共重合体が、エチレン含有量が共重合体の少なくとも約50重量%であり、且つ-オレフィンが炭素原子3~約16を有する、エチレン-オレフィンの機能化された共重合体を含んでなる請求項1に記載の方法。

20

【請求項 5】

前記機能化剤が1個又はそれ以上のカルボキシル基を含む不飽和単量体及び1個又はそれ以上の酸無水物基を含む不飽和単量体からなる群から選ばれる請求項1に記載の方法。

【請求項 6】

前記機能化剤が無水マレイン酸である請求項5に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、改良された表面ヘイズ、剛性及び色調という特性を兼備したエチレン-オレフィン共重合体(interpolymer)フィルムの製造方法に関する。この方法は、エチレン-オレフィン共重合体と、組成物当り約0.1重量%から1重量%より少ない量までの機能化されたエチレン単独重合体又は機能化されたエチレン-オレフィン共重合体とを含む組成物からフィルムを形成することを含む。

30

【背景技術】

【0002】

エチレン-オレフィン共重合体フィルムは、包装やその他の外観が重要な用途に、しばしば採用されている。包装の場合、通常、フィルムは包装される製品がより魅力的であるように、光学的に透明で光沢があることが望まれる。従って、改良された表面ヘイズ特性を有するのみならず、改良された剛性及び色調を有するフィルムを提供することが望まれる。

40

【発明の開示】

【0003】

本発明に係る、改良された表面ヘイズ、剛性及び色調を有する、エチレン-オレフィン共重合体フィルムの新規な製造方法は、次のように構成される。エチレン-オレフィン共重合体と、組成物当り約0.1重量%から1重量%より少ない量までの、本明細書で定義される機能化されたエチレン単独重合体又は機能化されたエチレン-オレフィン共重合体を含む組成物が製造される。この組成物は、次いで、本技術分野では公知の任意の方法でフィルムに形成される。この方法の好適な態様では、フィルムは、周知のインフレーションフィルム技法を利用して形成される。

【発明を実施するための最良の形態】

50

【0004】

本発明の改良された表面ヘイズ、剛性及び色調を有する、エチレン - - オレフィン共重合体フィルムの新規な製造方法は、次のように構成される。エチレン - - オレフィン共重合体と、組成物当たり約0.1重量%から1重量%より少ない量までの、本明細書で定義される機能化されたエチレン単重合体又は機能化されたエチレン - - オレフィン共重合体を含む組成物が製造される。この組成物は、次いで、本技術分野では公知の任意の方法でフィルムに形成される。この方法の好適な態様では、フィルムは、周知のインフレーションフィルム技法を利用して形成される。

【0005】

更に詳しくは、本発明のフィルムに形成される組成物の製造に使用されるエチレン - - オレフィン共重合体は、エチレン及び少なくとも1種又はそれ以上のその他の - オレフィンを含み、そのエチレンの含有量は共重合体を構成する単量体の合計の少なくとも約50重量%である、任意のエチレン - - オレフィン共重合体である。好ましくは、その共重合体のエチレン含有量は、共重合体を構成する単量体の合計の約50重量%より多い量から約99重量%までの量の範囲である。 - オレフィン単量体は、好ましくは炭素原子3～約16を含む。本発明で使用することができる - オレフィンの例には、プロピレン、1 - ブテン、1 - ペンテン、1 - ヘキセン、1 - ヘプテン、1 - オクテン、4 - メチル - 1 - ペンテン、1 - デセン、1 - ドデセン、1 - ヘキサデセン等がある。ここで - オレフィン単量体として利用することができるものには、また、非共役ジエン及び重合媒体中で、その場で形成されるオレフィンがある。エチレン - - オレフィン共重合体は、線状であってもいいし、また「実質的に線状の (substantially linear)」重合体のように、レオロジー的に有意な長さの分岐を含んでいてもよく、更に、溶液、気相又はスラリー・ループ (slurry loop) などの任意のプロセスで、拘束された幾何構造のメタロセン系、チーグラ - ナッター系又は酸化クロム系などの任意のオレフィン重合触媒を用いて製造することができる。エチレン - - オレフィン共重合体は、本発明のフィルムを形成するために使用される組成物中に、その組成物の約99重量%より多い量から約99.9重量%までの量で存在する。

【0006】

本発明での使用に適した、機能化されたエチレン単重合体又は機能化されたエチレン - - オレフィン共重合体は、次のように定義される。機能化されるポリエチレンは任意のエチレン単重合体とすることができる。本発明のフィルムが形成される組成物を製造するための使用に適した、機能化されるエチレン共重合体は、エチレン及び、少なくとも1種又はそれ以上のその他の - オレフィンを含み、エチレンの含有量が、その共重合体を構成する単量体の合計の少なくとも約50重量%である、任意のエチレン - - オレフィン共重合体である。好ましくは、その共重合体のエチレン含有量は、共重合体を構成する単量体の合計の約50重量%より多い量から約99重量%までの量の範囲である。 - オレフィン単量体は、好ましくは炭素原子3～約16を含む。本発明で使用することができる - オレフィンの例としては、プロピレン、1 - ブテン、1 - ペンテン、1 - ヘキセン、1 - ヘプテン、1 - オクテン、4 - メチル - 1 - ペンテン、1 - デセン、1 - ドデセン、1 - ヘキサデセン等がある。ここで - オレフィン単量体として使用することができるものにはまた、非共役ジエン及び重合媒体中で、その場で形成されるオレフィンがある。エチレン - - オレフィン共重合体は、線状であってもいいし、また「実質的に線状の」重合体のように、レオロジー的に有意な長さの分岐を含んでいてもよく、更に、溶液、気相又はスラリー・ループ (slurry loop) などの任意の方法で、拘束された幾何構造のメタロセン系、チーグラ - ナッター系又は酸化クロム系などの任意のオレフィン重合触媒を用いて製造されることができる。

【0007】

本発明での使用に適した機能化されたエチレン単重合体又は機能化されたエチレン - - オレフィン共重合体の製造において、機能化剤として、1個又はそれ以上のカルボン酸、カルボン酸エステル又は酸無水物を含む、任意の不飽和単量体を、使用することがで

10

20

30

40

50

きる。ここでの適当な機能化剤の例としては、例えばアクリル酸及びメタクリル酸などのカルボン酸、例えばメチルアクリレート及びメチルメタクリレートなどのカルボン酸エステル及び例えば無水マレイン酸などの酸無水物がある。ここでの使用に適した機能化剤の更なる例としては、不飽和モノカルボン酸、ポリカルボン酸及び環状酸無水物がある。具体的には、ここでは、例えばマレイン酸、フマル酸、ハイミック酸、イタコン酸、シトラコン酸、メサコン酸、アクリル酸、メタクリル酸、クロトン酸、イソクロトン酸などの酸及び例えば無水マレイン酸及び無水ハイミック酸などの酸無水物が含まれる。ここでの機能化剤としての使用に好ましいものは、無水マレイン酸である。機能化剤の混合物も、本発明では使用できる。機能化剤は、エチレン単独重合体及び/又は共重合体を機能化して、機能化されたエチレン単独重合体及び/又は共重合体が、その機能化されたエチレン単独重合体又は共重合体当り、少なくとも1種の機能化剤を約0.01~約3重量%含むようになるような任意の量で使用される。好ましくは、所望の機能化された重合体を得るために、機能化剤は、エチレン成分の重量当り、約0.20~約10重量%の量で使用される。

10

20

30

40

50

【0008】

本発明で使用される機能化されたエチレン単独重合体及び機能化されたエチレン-オレフィン共重合体は、本技術分野では公知の任意の方法で製造することができる。そのような機能化エチレン単独重合体及び共重合体を製造する方法の例は、米国特許第4,612,155号;第4,762,890号;第5,180,788号;第5,705,565号;及び第5,728,776号;並びに国際特許公開第WO01/36495A1号に記載されている。

【0009】

機能化されたエチレン単独重合体又は機能化されたエチレン-オレフィン共重合体は、本発明のフィルムを形成するために使用される組成物中に、その組成物の約0.1重量%から1重量%より少ない量までの量で存在する。

【0010】

前記組成物は、それから新規なフィルムが形成されるもので、ここに記載されたエチレン-オレフィン共重合体を99重量%より多く約99.9重量%までそして、ここに記載された機能化されたエチレン単独重合体又は機能化されたエチレン-オレフィン共重合体を約0.1重量%から1重量%より少ない量までを含むものであるが、この技術分野では公知の任意の方法で製造してもよい。例えば、この組成物の構成成分は、慣用の混合機、例えばミルロール、押出機又は連続ミキサーなどで一緒に混合することができる。本発明の実施例の組成物を製造するに際しては、構成成分のペレットがファイバードラム中に入れられ、“INS”プラスチックタンブル装置の上で5分間混合した。より詳細には、組成物が調製される以下の実施例のそれぞれにおいて、次の手順が使用された。何れもここに記載されているエチレン-オレフィン共重合体及び、機能化されたエチレン単独重合体又は機能化エチレン-オレフィン共重合体の所定量が、“Tolledo”秤を用いて計量し、ファイバードラム中に入れた。ファイバードラムは、次いで“INS”プラスチックタンブル装置上に載せ、5分間混合して所望の組成物を得た。

【0011】

多くの目的のため、他の慣用の添加剤を、本発明に使用される組成物と組合せることは望ましい。例えば、酸化防止剤、熱及び光安定剤、染料、静電防止剤、滑剤、防腐剤、加工助剤、スリップ剤、粘着防止剤、顔料、難燃剤、発泡剤等を添加してもよい。

【0012】

この組成物は、この技術分野では公知の任意の技法によりフィルムに製造することができるが、特にインフレーションフィルム技法での使用に適している。更に詳しくは、実施例のフィルムは、次の条件下でインフレーション成形した。

【0013】

タンプリングされたペレットブレンドは、長さ/直径比が24/1で、遮断スクリュー(barrier screw)を有する2.5インチ(64mm)“Egan”押出機のホッパーに

供給された。押出機は、ダイの間隙 88 ミル (2.2 mm) を有する 6 インチ (152 mm) 径の環状のダイを装備していた。チューブ状フィルムが環状ダイを出たとき、その外表面を冷却するため、二重リップエアリングが使用した。「猫背 (hump-back)」押出機の温度分布は、領域 1 から 5 まで、それぞれ設定値 193、232、221、216 及び 204 を採用し、ダイの設定値は 218 を採用した。厚さ 1 ミル (0.025 mm)、膨張比 2.4 のフィルムを製造する間、押出量速度 69 kg/時を維持した。フィルム形成の間、フロストライン高さ 38 cm を維持した。フィルムは長さ約 60 m (about 60 linear meters) のロールに巻き取り、試験の前 40 時間、標準実験室条件 (23、50% RH) で熟成した。

【0014】

本発明は、以下の実施例を参照することにより一層容易に理解されるであろう。勿論、本発明が完全に開示されれば、当業者には明白となる本発明の他の形態が存在しており、従って、これらの実施例は詳説の目的でのみ提供されたものであって、決して本発明の範囲を限定するものとして解釈されるべきではないということはいうまでもない。更に、ここに引用された全ての米国特許は、それらの全てを参照により本明細書に組み込むものとする。

【実施例】

【0015】

以下の実施例において、次に列挙した試験の手順をここでのフィルム特性を評価するのに用いた。

【0016】

総フィルムヘイズは、ASTM D1003 に従い、“BYK Gardner Hazegard Plus” を用いて測定した。内部ヘイズ要素を測定するため、重合体 (屈折率: 1.51) に対して、相互作用がなく近似の屈折率 (1.48) を有する液体が、その組織の「目を詰める (fill-in)」ために粗面上に散布された。そのような被覆試料に対して測定されたヘイズは、本体、即ち内部の半結晶構造のみから発する要素 (内部ヘイズ) を表した。表面ヘイズ要素は、総ヘイズから内部ヘイズを差引くことにより計算した。

【0017】

酸価 (AN) は、ASTM D1386-83 に従い、次のように変更して測定した。水酸化ナトリウムの 0.05 N メタノール溶液は水酸化カリウムの 0.1 N エタノール溶液に置き換え、また試料サイズは 1~2 g の間から 5 g に増加し、更に計量精度は 0.001 g から 0.0001 g に変更した。最終的な機能化されたポリエチレンのグラフト化された機能化剤の重量% は $0.178 \times AN$ である。

【0018】

メルトインデックス (MI) 及び溶融流動比 (MFR) は、ASTM D1238 の条件 190/2.16 及び 190/21.6 に従って測定された。

【0019】

割線モジュラス (1% 歪みにおける) は、ASTM D882 に従って測定された。ポリエチレンインフィレーションフィルムの異方性のため、モジュラスの測定は、押出方向即ち縦方向 (MD) 及びフープ方向即ち横方向 (TD) の両方について、インフィレーションフィルムを試験することにより実施した。

【0020】

ペレットの黄色度指数は、ASTM E313-96 に従い、“BYK-Gardner” 色視分光光度計 (Color-View Spectrophotometer) を用いて測定した。ポリエチレン及び機能化されたポリエチレンのブレンドからなるペレットは、タンプリングされたペレット/ペレットブレンドの溶融押出によって製造した。溶融押出は、1.25 インチ (31.8 mm) 一軸 “Killion” 押出機を用い、スクリー速度 50 rpm で、次の温度分布 (パレル領域 1~4 / アダプター / 締付環): 177 / 221 / 216 / 216 / 216 / 216 で実施した。ペレットは標準の水浴及びペレタイザーで変

10

20

30

40

50

形し、黄色度指数測定前の少なくとも24時間、23、湿度50%で状態調整した。

【0021】

密度は、ASTM D4883-89に従い、“Haake V Tecrad”密度測定装置を用いて測定した。

例1

【0022】

この例において、インフレーションフィルムはここに記載されたとおりにして製造した。フィルムが形成された組成物の主成分は、エチレン/1-ヘキセン共重合体(ここではLLDPEという)であって、1-ヘキセンを8.3重量%含み、MI 0.85 dg/分、密度0.917 g/cm³である。その組成物はまた、酸価7、無水マレイン酸含有量1.2重量%及びMI 8 dg/分を有する、無水マレイン酸グラフト・エチレン/1-ヘキセン共重合体(ここではmal-LLDPEという)を、量を変えて含んでいた。

10

【0023】

この例で使用される無水マレイン酸グラフト・エチレン/1-ヘキセン共重合体(ここではmal-LLDPEという)は、次のようにして製造した。密度0.917 g/cm³、メルトインデックス0.8 dg/分及び熔融流動比27を有するエチレン/1-ヘキセン共重合体が、直径0.74 m、高さ7 mの直立円筒からなり、減速室の上に載置されている気相重合用の流動床反応器中で、連続重合法を利用して製造した。その反応器には、その下部に流動化格子及び再循環気体用の外部配管を設け、その外部配管は減速室の頂部を、反応器の下部で流動化格子より下の点に連結させた。再循環の配管は、循環気体用のコンプレッサー及び熱交換器などの熱伝達手段を備えていた。具体的には、流動床を通過する気体状反応混合物の主構成成分を表すエチレン、1-ヘキセン、水素及び窒素の供給用配管は再循環配管中に供給する。

20

【0024】

反応器は流動化格子の上に、線状低密度ポリエチレン粉末が重量平均径約1.3 mmの粒子に仕上げられたものからなる重さ800 lb(360 kg)の流動床を含んでいた。気体状反応混合物は、エチレン、1-ヘキセン、水素、窒素及び少量の他の成分を含んでいるが、圧力約296 psig(2.04 MPa)、上昇流動速度約1.7 ft/秒(52 cm/秒)で流動床を通過させた。

30

【0025】

使用したチーグラ-ナッター触媒の遷移金属成分は、欧州特許出願公開第0703246A1号(EP0703246A1)の実施例1-aに従って製造した。チーグラ-ナッター触媒は、プレポリマーの形態で使用し、欧州特許出願公開第0703246A1号(EP0703246A1)の例1-bに従って製造した。チタンのミリモル当たりポリエチレン約35.7 gを含み、トリ-n-オクチルアルミニウム(TnOA)のチタンに対するモル比約1.0を有するプレポリマーを、このようにして製造した。

【0026】

前記触媒は断続的に反応器中に導入したが、前記触媒はマグネシウム、塩素及びチタンを含んでいた。プレポリマーの反応器への導入速度は、所望の生産速度を達成するため調整した。重合の間、トリメチルアルミニウム(TMA)のヘキサン溶液を、約2重量%濃度で、気体状反応混合物の再循環用配管の、熱交換手段より下流に位置する点に、連続的に導入した。TMAの供給速度は、TMAのチタンに対するモル比(TMA/Ti)として表し、TMA供給速度(TMAの時間当たりのモル)の、プレポリマー供給速度(チタンの時間当たりのモル)に対する比として定義する。同時にテトラヒドロフラン(THF)のn-ヘキサン溶液を、濃度約1重量%で気体状反応混合物の再循環用配管に、連続的に導入した。THFの供給速度は、THFのチタンに対するモル比(THF/Ti)として表し、THF供給速度(THFの時間当たりのモル)の、プレポリマー供給速度(チタンの時間当たりのモル)に対する比として定義する。一酸化二窒素(N₂O)は、気体として気体状反応混合物の再循環用配管に添加した。気相重合媒体中のN₂O濃度は百万当

40

50

たりの容量部の単位 (ppm) で表す。

【0027】

クロロホルム (CHCl_3) の *n*-ヘキサン溶液を、濃度約 0.5 重量% で気体状反応混合物の再循環用配管に、連続的に導入した。 CHCl_3 の供給速度は、 CHCl_3 のチタンに対するモル比 (CHCl_3/Ti) として表し、 CHCl_3 供給速度 (CHCl_3 の時間当たりのモル) の、プレポリマー供給速度 (チタンの時間当たりのモル) に対する比として定義する。 CHCl_3 は *n*-ヘキサン溶液として、気体状反応混合物の再循環用配管に添加した。

【0028】

連続気相法の条件は表 I に示す。TMA/Ti のモル比は 4 であった。 CHCl_3/Ti のモル比は 2.0 であった。THF/Ti のモル比は 0.3 であった。一酸化二窒素 (N_2O) の重合媒体中の濃度は 304 ppm (容量) であった。1-ヘキセンを共単量体として使用した。これらの条件下で、密度 0.917 g/cm^3 及び $\text{MI } 0.8 \text{ dg/分}$ を有するエチレン/1-ヘキセン共重合体を製造した。これが例 1 で機能化された重合体である。

【0029】

【表 1】

表 I

反応器圧力	psig (MPa)	296 (2.04)
反応器温度	°C	86
流動床嵩密度	lb/ft ³ (g/cm ³)	16.3 (0.261)
反応床高さ	ft (m)	10.7 (3.26)
エチレン	モル%	50.4
H ₂ /C ₂ H ₄		0.124
C ₆ /C ₂ ²		0.117
TMA/Ti ³		4
CHCl_3/Ti ⁴		2.0
THF/Ti ⁵		0.3
N ₂ O	ppm (容量)	304
プレポリマー速度	lb/h (kg/h)	0.73 (0.33)
生産速度	lb/h (kg/h)	205 (93)
空塔時間収率	kg/h·m ³	66.9
生産性	質量比	281
活性度 ⁶		244
残留チタン	ppm	4.8

[¹ エチレンに対する水素のモル比; ² エチレンに対する 1-ヘキセンのモル比; ³ チタンに対するトリメチルアルミニウムのモル比; ⁴ チタンに対するクロロホルムのモル比; ⁵ チタンに対するテトラヒドロフランのモル比; ⁶ $\text{g PE} \cdot (\text{ミリモル Ti})^{-1} \cdot \text{h}^{-1} \cdot (0.1 \text{ MPa})^{-1}$]

【0030】

次いで、無水マレイン酸グラフト・エチレン/1-ヘキセン共重合体(ここではmal-LLDPE)を、40mm×55L/D(長さ/直径)“Berstorff ZE 40A”二軸押出機(Berstorff Corp., Florence, Kentucky製造・販売)を用いて製造した。押出機のスクリー速度は270rpmに設定した。密度0.917g/cc、メルトインデックス0.8dg/分及び熔融流動比27を有するエチレン/1-ヘキセン共重合体のペレットが、ペレット容量供給装置により45kg/時の速度で押出機の供給口に供給し、ペレットはバレル1及び2で熔融した。無水マレイン酸は、押出機のパレル2及び3の間に位置する注入装置を通して、1.1kg/時で注入した。無水マレイン酸は、それから、それぞれ逆送要素により他の領域から分離されている3つの連続した反応/混合領域で共重合体と混合した。3つの連続した反応/混合領域は358に保持した。得られたマレイン化共重合体は、それぞれ6840Pa減圧及び6960Pa減圧の連続した2つの減圧領域を通過して揮発分を除去した。得られた無水マレイン酸グラフト・エチレン/1-ヘキセン共重合体(ここではmal-LLDPE)は、押出機末端から、慣用の標準浴及びペレット化装置により回収した。分析により、このmal-LLDPEがメルトインデックス8dg/分、酸価7及び共重合体の1.2重量%の無水マレイン酸含有量を有していることが示された。

10

【0031】

ここで言及したように、フィルムは、LLDPE及び比率を変えたmal-LLDPEを含む次の組成物から製造した。データは下表IIに報告する。

20

【0032】

【表2】

表II

mal-LLDPE 含有量 (重量%)	総ヘイズ (%)	内部ヘイズ (%)	表面ヘイズ (%)	MD割線 モジュラス (Pa)	TD割線 モジュラス (Pa)
0 (100%LLDPE)	12.3	3.3	9.0	1.99 (10 ⁸)	2.21 (10 ⁸)
0.1	6.4	2.6	3.8	2.08 (10 ⁸)	2.59 (10 ⁸)
0.2	6.3	2.6	3.7	2.25 (10 ⁸)	2.63 (10 ⁸)
0.5	5.5	2.5	3.0	2.23 (10 ⁸)	2.85 (10 ⁸)
1	5.7	2.2	3.5	2.37 (10 ⁸)	2.88 (10 ⁸)
2	5.6	2.2	3.4	2.29 (10 ⁸)	3.06 (10 ⁸)

30

【0033】

表IIのデータから、ここで記載された、所望量のエチレン-オレフィン共重合体及び機能化成分を含む組成物から形成されたフィルムは、表面ヘイズが小さくなり、それにより透明性が向上したことが観察される。これはLLDPEから形成されたフィルムと比較してのものある。更に表IIのデータから、所望量の成分を含む組成物から形成される本発明のフィルムは、LLDPEから形成されたフィルムと比較して、モジュラスが大きくなったことが観察される。増大したモジュラスの値は、フィルムが剛性を増したことを示している。

40

【0034】

フィルムに形成された表IIの組成物は、フィルムに形成される前に黄色度指数が測定された。黄色度指数の値は下表IIIに報告される。

【0035】

50

【表 3】

表III

mal-LLDPE含有量 (重量%)	黄色度指数
0 (100%LLDPE)	2.42±0.36
0.1	2.33±0.21
0.2	2.28±0.12
0.5	2.87±0.32
1	3.42±0.08
2	4.85±0.21

10

【0036】

表IIIのデータから、LLDPEとブレンドされるmal-LLDPEの量が1重量%のレベルに達するとき、ブレンド組成物の黄色度指数が、mal-LLDPEを含まない組成物の黄色度指数に比べて、望ましくなく増大することが観察される。従って、所望含有量のmal-LLDPEを含む組成物から製造されたフィルムは、ここに記載したように、色調が改善される。

20

【0037】

ここで記載された発明の形態は詳説するためのみのものであり、本発明の範囲を限定することを意図してはいないことは明確に理解されるべきである。本発明は、前記の特許請求の範囲の中に含まれるあらゆる修正を包含するものである。

【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/US 02/40772

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 C08F255/02 C08F8/46 C08L23/16 C08L23/04 C08J5/18		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 C08F		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) WPI Data, PAJ, EPO-Internal		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 171 777 A (DOW CHEMICAL CO) 19 February 1986 (1986-02-19) abstract; claims 1-14 page 15, line 1-13 page 5, line 6-27	1-3,5,6 4
Y	---	---
Y	WO 90 01504 A (DOW CHEMICAL CO) 22 February 1990 (1990-02-22) abstract; claims 1-19	4 1-3,5,6
A	---	---
A	WO 01 36495 A (EASTMAN CHEM CO) 25 May 2001 (2001-05-25) cited in the application abstract; claims 1-28	1-6
E	US 6 514 583 B1 (SHAH GAUTAM P ET AL) 4 February 2003 (2003-02-04) abstract; claims 1-51	1-6
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.		
* Special categories of cited documents:		
A document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance *E* earlier document but published on or after the international filing date *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. *Z* document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 4 April 2003	Date of mailing of the international search report 17/04/2003	
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer Bergmans, K	

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No
PCT/US 02/40772

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0171777	A	19-02-1986	AU 584910 B2	08-06-1989
			AU 4560485 A	20-02-1986
			BR 8503861 A	27-05-1986
			DK 352485 A	16-02-1986
			EP 0171777 A2	19-02-1986
			FI 853137 A	16-02-1986
			JP 61081447 A	25-04-1986
			KR 9105563 B1	31-07-1991
			NO 853200 A	17-02-1986
			NZ 213048 A	26-04-1989
			US 5372885 A	13-12-1994
			US 5066542 A	19-11-1991
			US 4684576 A	04-08-1987
WO 9001504	A	22-02-1990	WO 9001504 A1	22-02-1990
			AU 642848 B2	04-11-1993
			DE 3855900 D1	12-06-1997
			DE 3855900 T2	11-09-1997
			EP 0428510 A1	29-05-1991
			JP 2666080 B2	22-10-1997
			JP 4505165 T	10-09-1992
			KR 182607 B1	15-05-1999
			US 4950541 A	21-08-1990
			US 4762890 A	09-08-1988
WO 0136495	A	25-05-2001	US 6433133 B1	13-08-2002
			BR 0015594 A	09-07-2002
			EP 1237947 A1	11-09-2002
			WO 0136495 A1	25-05-2001
US 6514583	B1	04-02-2003	EP 0597502 A2	18-05-1994

 フロントページの続き

(81) 指定国 AP(GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP(AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SI, SK, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW

(72) 発明者 ジョーダンス, カート ジョセフ

アメリカ合衆国, テキサス 75605, ロングビュー, イースト ホーキンス パークウェイ
#1706 110

(72) 発明者 コー, スティーブン ウェイン

アメリカ合衆国, テキサス 75601, ロングビュー, カクタス 105

(72) 発明者 ハンソン, スコット アーノルド

アメリカ合衆国, テネシー 37601, ジョンソン シティ, ジェントリー カーソン ドライブ 1

(72) 発明者 バンダービルト, ジェフリー ジェイムズ

アメリカ合衆国, テキサス 75604, ロングビュー, ローズダウン ストリート 1417

(72) 発明者 ウェストブルック, ブラッドリー スコット

アメリカ合衆国, テキサス 75605, ロングビュー, マクセイ ロード 412

Fターム(参考) 4F071 AA15 AA78 AF14 AF27 AF30 AH04 BC01

4F207 AA08 AE10 AG01 AH54 KA01 KA17

4J002 BB051 BB212 GG00