

(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2006-500443

(P2006-500443A)

(43) 公表日 平成18年1月5日(2006.1.5)

(51) Int. Cl.		F I		テーマコード (参考)
C O 8 L 23/04	(2006.01)	C O 8 L 23/04		4 F 1 0 0
B 3 2 B 27/32	(2006.01)	B 3 2 B 27/32	Z	4 J 0 0 2
C O 8 L 101/12	(2006.01)	C O 8 L 101/12		

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 16 頁)

(21) 出願番号 特願2004-538296 (P2004-538296) (86) (22) 出願日 平成15年9月22日 (2003. 9. 22) (85) 翻訳文提出日 平成17年5月17日 (2005. 5. 17) (86) 国際出願番号 PCT/US2003/029620 (87) 国際公開番号 W02004/026955 (87) 国際公開日 平成16年4月1日 (2004. 4. 1) (31) 優先権主張番号 60/412, 843 (32) 優先日 平成14年9月23日 (2002. 9. 23) (33) 優先権主張国 米国 (US)	(71) 出願人 502141050 ダウ グローバル テクノロジーズ イン コーポレイティド アメリカ合衆国, ミシガン 48674, ミッドランド, ワシントン ストリート, 1790 ビルディング (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 100093676 弁理士 小林 純子 (74) 代理人 100120134 弁理士 大森 規雄 <div style="text-align: right;">最終頁に続く</div>
---	---

(54) 【発明の名称】 押出コーティング用ポリマー組成物

(57) 【要約】

押出コーティング用途に適切な組成物を特許請求の範囲に記載する。 前記組成物は、均一エチレンポリマーおよび不均一エチレンポリマーの混合物と、高溶融強度ポリオレフィンとを共に含む。 前記組成物より製造されるフィルム層は、「ネックイン」が改良され、良好なヒートシール開始を有する。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(A) 少なくとも 1 つの均一分枝ポリエチレンおよび少なくとも 1 つの不均一分枝ポリエチレンの混合物を、60 から 80 重量パーセント、ならびに、

(B) 最低でも前記混合物 (A) の 2 倍の溶融強度を有する少なくとも 1 つのポリマーを、20 から 40 重量パーセント含む、ポリマー組成物。

【請求項 2】

前記混合物 (A) が 40 から 75 重量パーセントの均一分枝ポリエチレン、および、25 から 60 重量パーセントの不均一分枝ポリエチレンを含む、請求項 1 の組成物。

【請求項 3】

前記均一分枝ポリエチレンが、エチレンと、最低でも $C_3 \sim C_{20}$ の α -オレフィンとのインターポリマーである、請求項 1 の組成物。

【請求項 4】

前記不均一分枝ポリエチレンが、3 から 6 の分子量分布 M_w / M_n を有する、請求項 1 の組成物。

【請求項 5】

前記混合物 (A) が 10 グラム / 10 分から 30 グラム / 10 分のメルトインデックス、 I_2 を有する、請求項 1 の組成物。

【請求項 6】

前記混合物 (A) が 0.88 グラム / 立方センチメートルから 0.92 グラム / 立方センチメートルの密度を有する、請求項 1 の組成物。

【請求項 7】

前記混合物 (A) が、示差走査熱量測定曲線上に少なくとも 3 つの溶融ピークを有する、請求項 1 の組成物。

【請求項 8】

前記均一分枝ポリエチレンが 1.5 から 3 の分子量分布、 M_w / M_n を有する、請求項 1 の組成物。

【請求項 9】

前記混合物 (A) が 50 から 60 重量パーセントの均一分枝ポリエチレン、および、40 から 50 重量パーセントの不均一分枝ポリエチレンを含む、請求項 1 の組成物。

【請求項 10】

(B) が、低密度ポリエチレン、エチレン / カルボン酸コポリマー類、エチレン / カルボン酸コポリマー類のアイオノマー類、エチレン酢酸ビニルコポリマー類、高溶融強度ポリプロピレンホモポリマー、および、高溶融強度ポリプロピレンコポリマーからなる群より選択される、請求項 1 の組成物。

【請求項 11】

組成物から製造されたフィルム層であり、前記組成物は

(C) 少なくとも 1 つの均一分枝ポリエチレンおよび少なくとも 1 つの不均一分枝ポリエチレンの混合物を、約 60 から約 80 重量パーセント、ならびに、

(D) 最低でも前記混合物 (A) の 2 倍の溶融高度を有する少なくとも 1 つのポリマーを、約 20 から約 40 重量パーセント含む、フィルム層。

【請求項 12】

前記混合物 (A) が 40 から 75 重量パーセントの均一分枝ポリエチレン、および、25 から 60 重量パーセントの不均一分枝ポリエチレンを含む、請求項 10 のフィルム層。

【請求項 13】

前記均一分枝ポリエチレンが、エチレンと最低でも $C_3 \sim C_{20}$ の α -オレフィンとのインターポリマーである、請求項 10 のフィルム層。

【請求項 14】

前記不均一分枝ポリエチレンが 3 から 6 の分子量分布、 M_w / M_n を有する、請求項 10 のフィルム層。

10

20

30

40

50

【請求項 15】

前記混合物 (A) が 10 グラム / 10 分から 30 グラム / 10 分のメルトインデックス、 I_2 を有する、請求項 10 のフィルム層。

【請求項 16】

前記混合物 (A) が 0.88 グラム / 立方センチメートルから 0.92 グラム / 立方センチメートルの密度を有する、請求項 10 のフィルム層。

【請求項 17】

前記混合物 (A) が、示差走査熱量測定曲線上に少なくとも 3 つの溶融ピークを有する、請求項 10 のフィルム層。

【請求項 18】

前記均一分枝ポリエチレンが 1.5 から 3 の分子量分布、 M_w / M_n を有する、請求項 10 のフィルム層。

【請求項 19】

前記混合物 (A) が 50 から 60 重量パーセントの均一分枝ポリエチレン、および、40 から 50 重量パーセントの不均一分枝ポリエチレンを含む、請求項 10 のフィルム層。

【請求項 20】

請求項 10 のフィルム層を含む、加工品。

【請求項 21】

低密度ポリエチレン、直鎖状低密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、これらのブレンド、ポリプロピレンホモポリマー、ポリプロピレンランダムコポリマー、スチレン / ブタジエンコポリマー、ポリスチレン、エチレン - 酢酸ビニルコポリマー、および、環状オレフィンコポリマーからなる群より選択される少なくとも 1 つのポリマーをさらに含む、請求項 1 の組成物。

【請求項 22】

少なくとも 1 つの他の層をさらに含む、請求項 10 のフィルム層。

【請求項 23】

(B) が、低密度ポリエチレン、エチレン / カルボン酸コポリマー類、エチレン / カルボン酸コポリマー類のアイオノマー類、エチレン酢酸ビニルコポリマー類、高溶融強度ポリプロピレンホモポリマー、および、高溶融強度ポリプロピレンコポリマーからなる群より選択される、請求項 10 のフィルム層。

【請求項 24】

1 つの層が組成物から製造され、前記組成物は、

(A) 少なくとも 1 つの均一分枝ポリエチレンおよび少なくとも 1 つの不均一分枝ポリエチレンの混合物を含み、

他の 1 つの層が、

(B) 最低でも前記 (A) の混合物の 2 倍の溶融強度を有する少なくとも 1 つの他のポリマーを含む、少なくとも 2 つの層を含むフィルム。

【請求項 25】

(A) 少なくとも 3 つの溶融ピークを有するエチレン系ポリマーを 60 から 80 重量パーセント、および、(B) 最低でも (A) の 2 倍の溶融強度を有する少なくとも 1 つのポリマーを 20 から 40 重量パーセント含む、ポリマー組成物。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、一般的に、押出コーティング用途に有用なフィルム組成物に関し、より詳細には包装用途におけるシーラント層の提供に関する。

【背景技術】

【0002】

押出コーティング用途に有用なポリマー組成物の例は多く、例えば直鎖状低密度ポリエチレン (LLDPE) と高圧法 (フリーラジカル) 低密度ポリエチレン (LDPE) との

10

20

30

40

50

ブレンドが挙げられる。押出コーティングは、基材が他の基材とのシール性または当該基材間のシール性のような機能性を提供するように、基材を特定のポリマーでコーティングする方法である。例としては、金属箔基材上にポリマーを押出コーティングした内面を一般的に有し、前記ポリマーコーティングが互いにシール（接着）される、ジュースのパック類が挙げられる。押出コーティングは、コーティングの形成において「ネックイン」が特に重要なプロセスである。「ネックイン」とは、ポリマー配合物が押出後にその幅または当初の寸法を維持する能力をさす。ポリマー配合物のネックインを最小化することで、より効率的および均一に基材をコーティングすることが可能となる。

【0003】

例えば、その開示が参照により本明細書に組み込まれる米国特許第5,587,247号は、吸熱ピークが80 ~ 120 の範囲である高圧法エチレンポリマーと、吸熱ピークが118 ~ 130 の範囲であるエチレンコポリマーと、特に110 より高温の吸熱ピークを有さないエチレンコポリマーを含む、押出成型向け樹脂組成物を開示する。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

しかし、良好なシール性を維持しながら「ネックイン」が低減されたポリマー配合物が依然として必要とされている。

【課題を解決するための手段】

【0005】

発明者らは、「ネックイン」が最小であり、シール特性（例えば、低温ヒートシール開始温度）および強靱性に優れ、特に押出コーティングに適するポリマー組成物を見出した。

【0006】

これらの組成物は、

（A）少なくとも1つの均一分枝（homogeneously branched）ポリエチレンおよび少なくとも1つの不均一分枝（heterogeneously branched）ポリエチレンの混合物を60から80重量パーセント、ならびに、

（B）最低でも前記混合物（A）の2倍の溶融強度を有する少なくとも1つのポリマーを20から40重量パーセント含む。これらの組成物より製造されたフィルム層もまた、本発明の範囲内である。

【0007】

本発明の他の態様においては、フィルムは、（A）少なくとも1つの均一分枝ポリエチレンおよび少なくとも1つの不均一分枝ポリエチレンの混合物を含むポリマー組成物より製造される1つの層、ならびに、（B）最低でも前記（A）の混合物の2倍の溶融強度を有する、少なくとも1つの他のポリマーを含む1つの他の層の2層を含み製造される。

【発明を実施するための最良の形態】

【0008】

図1は、本発明の混合物（A）の、示差走査熱量測定（DSC）のグラフを示す。3つの識別可能な溶融ピークが明らかなことに留意すべきである。

本発明に使用可能なポリマー樹脂類はポリエチレン類であり、成分（B）に関してはさらに、ポリプロピレンランダムコポリマー（PPRC P）、スチレン/ブタジエンコポリマー類（SBC）、ポリスチレン、エチレン-酢酸ビニルコポリマー類（EVA）、ならびに、環状/オレフィンコポリマー類（COC）を用いることが可能である。

【0009】

本発明に使用可能なポリエチレン類は、フリーラジカル開始剤を用いて高温高圧で製造されたものと、配位触媒（coordination catalyst）を用いて高温および比較的低压で製造されたものの、大きく2つに分けられる。前者は一般的にLDPEとよばれ、ポリマー主鎖にぶら下がっている重合したモノマー単位の分枝鎖によって特徴づけられる。LDPEポリマー類の密度は一般的に、0.910から0.940 g/cm³の間である。特に

10

20

30

40

50

記載のない限り、本明細書記載の樹脂の密度はASTM D-792の手順に基づいて測定する。

【0010】

チーグラ-ナッタ触媒またはフィリップス触媒のような配位触媒を用いて製造されたエチレンポリマー類およびコポリマー類は、ポリマー主鎖にぶら下がっている重合したモノマー単位の分枝鎖を実質的に有さないため、一般的に直鎖状ポリマーとよばれる。エチレンと、3から12の炭素原子を有する、好適には4から8炭素原子を有する、少なくとも1つの-オレフィンとの直鎖状コポリマーもまた公知であり市販されている。既存技術において公知のように、直鎖状エチレン/-オレフィンコポリマーの密度は、-オレフィンの長さと、コポリマー中の当該モノマーをエチレンと比較した量との両方の関数であり、-オレフィンの長さが大きく、存在する-オレフィンの量が多いほど、コポリマーの密度は小さくなる。LLDPEは不均一ポリマーであり、これはコモノマーがポリマー主鎖に沿って均等に分配されていないことを意味する。分枝が不均一性なため、不均一エチレンポリマーの分枝分布は広い。LLDPEは一般的にはエチレンと、3から20の炭素原子、好適には4から8の炭素原子の-オレフィン(an-olefin)(例えば1-ブテン、1-オクテンなど)とのコポリマーであり、前記コポリマーの密度をLDPEの密度(例えば、 0.910 g/cm^3 から 0.940 g/cm^3)にまで低下させるのに十分な-オレフィン含有量を有する。コポリマーがより多量の-オレフィンを含む場合は、密度は約 0.91 g/cm^3 より低くなり、これらのコポリマー類は超低密度ポリエチレン(ULDPE)またはVLDPEとよばれ、これらは同義である。VLDPEまたはULDPEポリマー類の密度は、一般的には 0.87 から 0.91 g/cm^3 の範囲である。LLDPEおよびVLDPEまたはULDPEは両方とも既存技術において公知であり、またその製造方法も公知である。例えば、不均一LLDPEは、米国特許第4,076,698号に記載のように、スラリー、気相、溶液または高圧プロセスにおいてチーグラ-ナッタ触媒を用いて製造可能であり、一方、均一直鎖状エチレンポリマー類は、米国特許第3,645,992号に記載のように製造可能である。均一エチレンポリマー類は、均一な分枝分布を有し、すなわち、実質的に全てのポリマー分子それぞれに同量のコモノマーが組み込まれている。組成分布分枝インデックス(composition distribution branching index、CDBI)は、分枝分布(または均一度もしくは不均一度)を特徴づけるために用いられ、米国特許第5,246,783号に従い、米国特許第5,008,204号に記載の機器を用いて決定可能であり、これらの開示はそれぞれ参照により本明細書に組み込まれる。不均一ポリマー類のCDBIは30から70の間であり、一方、均一ポリマー類のCDBIは80から100の高さになることが可能である。

【0011】

ポリマー混合物(A)は、固体原料類の物理的ブレンドを続いて溶融ブレンドしたものでよく、または、混合物(A)は、参照により本明細書に組み込まれる米国特許第5,844,045号の記載および特許請求の範囲にあるように、反応器内(in-situ)で製造することも可能である。

【0012】

高密度ポリエチレン(HDPE)は、一般的に密度が 0.941 から 0.965 g/cm^3 であり、典型的にはエチレンのホモポリマーであり、多種多様なエチレンおよび-オレフィンの直鎖状コポリマー類と比較して含まれる分枝鎖が少ない。HDPEは公知であり、多種多様なグレードで市販され、本発明に用いる場合がある。

【0013】

本発明のポリプロピレンコポリマー類は、プロピレンおよびエチレンおよび/または1つ以上の不飽和コモノマー類に由来する単位を含むポリマー類である。「コポリマー」の語は、ターポリマー類、テトラポリマー類などを含む。「ランダムコポリマー」は、モノマーがポリマー鎖全体にランダムに分布するコポリマーを意味する。一般的に、プロピレンコポリマー類は、コポリマーの最低でも60、好適には最低でも70、さらに好適には最低でも80重量%の量のプロピレン由来の単位を含む。コポリマーのエチレンおよび/

または1つ以上の不飽和モノマー類は、最低でも0.1、好適には最低でも1、さらに好適には最低でも3重量パーセント含まれ、不飽和モノマーの一般的な最大量はコポリマーの40wt%を超えず、好適には30wt%を超えない。このようなポリプロピレンのランダムコポリマー類は、例えばThe Dow Chemical CompanyからDOW PolyPropylene RESINS(商標)として市販されている。

【0014】

スチレン/ブタジエンコポリマー類(SBC)は、公知の透明樹脂である。SBC樹脂類は、高透明度および良好なフィルム剛性の両方を与える。好適なSBC樹脂類の例は、Chevron Phillips Chemical Company LPから市販のSBCである、K-Resin(登録商標)ファミリーである。

10

【0015】

環状オレフィンコポリマー類(COC)は、メタロセン触媒類を用いて製造されるエチレンとノルボルネンのアモルファス、無色透明コポリマーである。COC樹脂類は、良好剛性および高透明度を与える。COCは例えば、TiconaからTopas(登録商標)COCコポリマーとして市販されている。

【0016】

ポリスチレンは公知の透明な樹脂であり、市販されている。ポリスチレンは、高透明度および良好なフィルム剛性の両方を与える。好適な市販ポリスチレンの例としては、The Dow Chemical Companyから市販されているStyron(商標)663が挙げられる。

【0017】

エチレン-酢酸ビニルコポリマー類は公知の市販されているエラストマーである。

20

【0018】

好適には、混合物(A)は、約40から約75重量パーセントの均一分枝ポリエチレン、および、約25から約60重量パーセントの不均一分枝ポリエチレンを含む。不均一分枝ポリエチレンの分子量分布、 M_w/M_n は、約3から約6であり、均一分枝ポリエチレンの分子量分布、 M_w/M_n は、約1.5から約3である。混合物(A)は、約6グラム/10分から約20グラム/10分のメルトインデックス、 I_2 を有していてもよい。メルトインデックス(I_2)は、ASTM D-1238、条件190/2.16kgに従って測定する。混合物(A)はまた、約0.88グラム/立方センチメートルから約0.92グラム/立方センチメートルの密度を有していてもよい。混合物(A)は、示差走査熱量測定曲線上に少なくとも3つの溶融ピークを有する。好適には、混合物(A)は、約50から約60重量パーセントの均一分枝ポリエチレン、および、約40から約50重量パーセントの不均一分枝ポリエチレンを含む。

30

【0019】

成分(B)は、低密度ポリエチレン、エチレン/カルボン酸コポリマー類、エチレン/カルボン酸コポリマー類のアイオノマー類、エチレン酢酸ビニルコポリマー類、高溶融強度ポリプロピレンホモポリマー、および、高溶融強度ポリプロピレンコポリマーからなる群より選択することが可能である。成分(B)は、混合物(A)の最低でも2倍、またはそれより大きい溶融強度を有するべきであり、例えばその溶融強度が混合物(A)の溶融強度の約2.5倍、混合物(A)の溶融強度の約3倍、またはそれらより大きいものもまた意図される。

40

【0020】

特定の理論に拘束されるものではないが、三相(triple phase)ポリマー(3つの融点)の利点は、第1のピーク(すなわち、低温で生じる大きなピーク)の割合が高いため、低温ヒートシール開始温度でのシールが可能になる一方で、第2および第3のピークは、ビカー軟化点(Vicat Softening temperature)で表される全体的な耐熱性に寄与することであると思われる。

【0021】

好適には、成分(A)は、組成物の約60から約80重量パーセント含まれ、成分(B)は組成物の約20から約40重量パーセント含まれる。既存技術にて一般的に用いられ

50

る酸化防止剤類のような添加剤もまた、本発明の組成物に有利に用いることができる。

【0022】

他の態様においては、フィルム層はポリマー組成物から製造され、前記組成物は

(A) 少なくとも1つの均一分枝ポリエチレンおよび少なくとも1つの不均一分枝ポリエチレンの混合物を約60から約80重量パーセント、ならびに、

(B) 最低でも前記混合物(A)の2倍の熔融強度を有する少なくとも1つのポリマーを約20から約40重量パーセント含む。

【0023】

本発明のフィルム層は特に、ジュースパック類、スナック包装、および、パーティカル/フォーム/フィル/シール(vertical/form/fill/seal)用途に用いられる。

10

【実施例】

【0024】

実施例中のフィルムの製造には、以下の樹脂を用いた。

【0025】

メルトインデックス I_2 が2.3 g/10分(ASTM D-1238、条件190/2.16 kgに従い測定)、密度が0.918 g/cm³(ASTM D-792に従い測定)、発明の詳細な説明に以前記載された方法に従い測定した熔融張力が8グラムであり、そして、ヒンダードフェノール系酸化防止剤(本実施例ではCiba Geigyより入手可能なIrganox 1010)を300 ppm含むLLDPE。

【0026】

20

混合物(A)

メルトインデックス I_2 が20 g/10分(ASTM D-792に従い測定)であり、密度が0.903 g/cm³(ASTM D-792に従い測定)の均一エチレンポリマーが56重量パーセント、および、不均一エチレンポリマーが44重量パーセントの混合物であり、得られる混合物は最終的なメルトインデックスが20 g/10分であり、密度が0.907 g/cm³である。

【0027】

3.5インチ(9 cm)押出機(32 L/D)を備える押出コーティングラインを以下のゾーン温度で運転し、配合を行った。

【0028】

30

バレル 1	200	バレル 2	250	バレル 3	280	バレル 4	290
バレル 5	290	バレル 6	290	フランジ	290		
パイプゾーン 1 から 3	290	フィードブロックゾーン	1 ~ 3	290			
ダイゾーン	1 から 10	290					

ネックイン(mm):

ドロウダウン(m/分):

【0029】

示差走査熱量測定(DSC)は、TAQ-1000示差走査熱量測定計を用いて窒素雰囲気下で行った。各サンプルを約100 /分で180 に急速加熱して熔融し、180 で3分間維持し、10 /分で-40 に冷却し、そして、-40 から150 ま

40

【0030】

ビカー軟化点は、ASTM D-1525およびISO 306に基づき測定可能である。

【0031】

熔融強度は、Goettfert Rheotens細管レオメーターを用いて、190 で熔融ポリマーを供給し、30.26 mm³/秒の速度で、内径が2.11 mm、ダイ長が41.9 cm、および、導入角が90度のダイを用いて測定する。ピストン直径は

50

9.54 cm、ピストン速度は0.423 mm/秒、切断速度は33 秒⁻¹、ドロダウン (draw down) は100 mmである。溶融物を続いて、エアギャップが10 cm、加速率が2.4 mm²/秒で、Goettfert Rheotensモデル71.97エクステンショナルレオメータのホイールに巻き取る。溶融強度は、スピンラインにおける力のプラトー値 (plateau value) であるか、高溶融強度素材の場合に多く経験されるようにプラトーが欠如する場合はピーク値であり、センチニュートン (cN) で表される。

【0032】

ポリマー類の引張特性は、ISO 527-3または同等の標準試験法を用いて測定された。引張特性は、2パーセントセカントモジュラス、最大引張強度、および、最大引張強度時のパーセント伸張を含む。ホットタック開始温度の決定は、ASTM D-3706に従いJ & B Topwaveを用い、同機器をヒートシールの製造にも用いた。ヒートシーラーは5 mm幅のテフロン (登録商標) コーティングされたヒートシールバーを備え、0.5 ニュートン/mm² シールバー圧力および0.5 秒の停止時間を用いてシールを作成した。ヒートシール作成後、2 秒の遅延の後に、インストロン万能材料試験機を用いて、ASTM D-88に従いヒートシール強度を測定した。SentinelまたはLloyd K 機器をヒートシール開始温度の測定に用いてもよい。

10

【0033】

ドロダウンは、ポリマーのドロ性 (表#?) の測定法であり、安定したウェブ形態でポリマーをどれほど薄く引き取れるかの指標としての役目を果たす。ドロダウンは、表に示すような、設定プロセス条件下で一定の押出吐出と同等の、安定したコーティング重量およびラインスピードを最初に確立することにより決定される。ドロダウン速度は、一定の押出吐出を維持しながら、ラインスピードを分類されたウェブの欠陥が発生するまで増加することにより測定する。ウェブ欠陥は、端部の裂け、ウェブの裂け、および、ウェブのどちらかの側の+/- 3 mmを超える端部の波打ちを含む、溶融引取の限界として分類される。

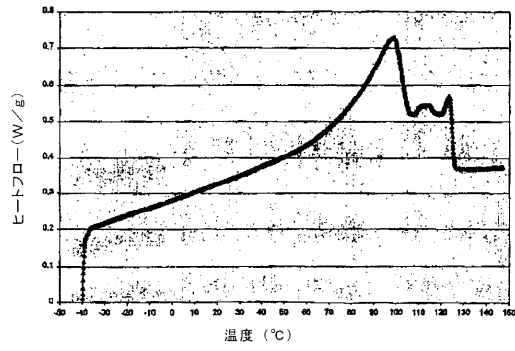
20

【図面の簡単な説明】

【0034】

【図1】図1は、本発明の混合物 (A) の、示差走査熱量測定 (DSC) のグラフを示す。3つの識別可能な溶融ピークが明らかなことに留意すべきである。

【図 1】



【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 C08L23/08 C08J5/18 B32B27/32 C08L23/04		International Application No PCT/US 03/29620
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 C08L C08J B32B		
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) EPO-Internal, WPI Data, PAJ		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 5 879 768 A (FALLA DANIEL JAMES ET AL) 9 March 1999 (1999-03-09) abstract; claims 1-50 column 11 - column 12; tables 1,2 -----	1,11,20, 24
X	WO 01/010643 A (BANASZAK CHERYL M ;BUCCULO ADAM D (US); CHILDRESS BLAINE C (US); S) 15 February 2001 (2001-02-15) abstract; claims 1-30 page 9, lines 20-36 page 11 page 12; table 1A -----	1-3,6, 8-13,16, 18-20, 22-24
A	WO 98/05731 A (DOW CHEMICAL CO ;GREENE EDWARD E (US); HOENIG STEVE M (US); WHETTE) 12 February 1998 (1998-02-12) abstract; claims 1-13 ----- -/-	1-24
<input checked="" 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. "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 27 January 2004		Date of mailing of the international search report 22.03.04
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

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.
US 03/29620

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>US 5 582 923 A (BAKER SHARON L ET AL) 10 December 1996 (1996-12-10)</p> <p>abstract; claims 1-51 column 1, lines 25-31 column 6, line 65 - column 7, line 5 column 16, lines 5-59 column 20; table 1 -----</p>	<p>1,3-6,8, 10,11, 13-16, 18,20, 22-24</p>

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/US 03/29620**Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)**

This International Search Report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the International Application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful International Search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

see additional sheet

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this International Search Report covers all searchable claims.

2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.

3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this International Search Report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☒ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this International Search Report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

1 - 24

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
- ☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

International Application No. PCT/US 03/29620

FURTHER INFORMATION CONTINUED FROM PCT/ISA/ 210

This International Searching Authority found multiple (groups of) inventions in this international application, as follows:

1. claims: 1-24

A polymer composition or a film layer wherein on layer comprises said polymer composition, comprising A) in an amount of 60-80 wt% a mixture of at least one homogeneously branched polyethylene and at least one heterogeneously polyethylene and B) a polymer having a melt strength at least twice that of the mixture A).

2. claim: 25

A polymer composition comprising an ethylenic polymer (A) in an amount of 60-80 % having at least three melting peaks, and an other polymer (B) present in an amount of 20-40 % having a melt strength at least twice that of the ethylenic polymer (A)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No
PCT/JP 03/29620

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 5879768	A	09-03-1999	AU 704902 B2	06-05-1999
			AU 7251396 A	28-04-1997
			BR 9611161 A	30-03-1999
			CA 2231449 A1	10-04-1997
			CN 1198706 A ,B	11-11-1998
			EP 0866744 A1	30-09-1998
			JP 11513345 T	16-11-1999
			WO 9712755 A1	10-04-1997
			US 5942579 A	24-08-1999
			ZA 9608384 A	06-04-1998
WO 0110643	A	15-02-2001	US 6423421 B1	23-07-2002
			AU 767514 B2	13-11-2003
			AU 6525600 A	05-03-2001
			BR 0013145 A	30-04-2002
			CA 2379272 A1	15-02-2001
			CN 1378503 T	06-11-2002
			EP 1216148 A1	26-06-2002
			JP 2003506232 T	18-02-2003
			NZ 517049 A	29-04-2003
			WO 0110643 A1	15-02-2001
WO 9805731	A	12-02-1998	US 5929128 A	27-07-1999
			AU 3970397 A	25-02-1998
			TW 466257 B	01-12-2001
			WO 9805731 A1	12-02-1998
US 5582923	A	10-12-1996	US 5395471 A	07-03-1995
			US 5272236 A	21-12-1993
			US 5278272 A	11-01-1994
			US 5562958 A	08-10-1996
			AT 185829 T	15-11-1999
			AU 691386 B2	14-05-1998
			AU 4283096 A	17-06-1996
			BR 9510328 A	02-06-1998
			CA 2205116 A1	30-05-1996
			DE 69512932 D1	25-11-1999
			DE 69512932 T2	09-03-2000
			EP 0792318 A1	03-09-1997
			ES 2137558 T3	16-12-1999
			FI 972032 A	11-07-1997
			JP 10509200 T	08-09-1998
			NO 972203 A	14-07-1997
			NZ 297629 A	28-01-2000
			WO 9616119 A1	30-05-1996
			US 5773155 A	30-06-1998
			US 5863665 A	26-01-1999
			AT 240988 T	15-06-2003
			AU 685331 B2	15-01-1998
			AU 3947195 A	15-05-1996
			BR 9510388 A	23-12-1997
			CA 2203128 A1	02-05-1996
			CN 1167496 A ,B	10-12-1997
			DE 69530854 D1	26-06-2003
			DE 69530854 T2	11-03-2004
			EP 0787167 A1	06-08-1997
			ES 2194061 T3	16-11-2003
			FI 972169 A	21-05-1997

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

JP/US 03/29620

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 5582923	A	JP 10507786 T	28-07-1998
		JP 3118759 B2	18-12-2000
		NO 971819 A	18-06-1997
		NZ 295837 A	29-06-1999
		RU 2171263 C2	27-07-2001
		TW 381098 B	01-02-2000
		WO 9612762 A1	02-05-1996
		US 5792534 A	11-08-1998
		US 5773106 A	30-06-1998
		US 5874139 A	23-02-1999
		US 5747594 A	05-05-1998
		ZA 9508897 A	21-04-1997
		AT 182511 T	15-08-1999
		CA 2165191 A1	12-01-1995
		DE 69419757 D1	02-09-1999
		DE 69419757 T2	18-11-1999
		EP 0706448 A1	17-04-1996
		ES 2135591 T3	01-11-1999
		FI 956302 A	28-12-1995

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,HU,IE,IT,LU,MC,NL,PT,RO,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,CZ,DE,DK,DM,DZ,EC, EE,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KR,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,MA,MD,MG,MK,MN,MW,MX,M Z,NO,NZ,OM,PH,PL,PT,RO,RU,SD,SE,SG,SK,SL,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,YU,ZA,ZM,ZW

(72)発明者 ウィークス,ロナルド,ジェイ.

アメリカ合衆国,テキサス州 77566,レーク ジャクソン,インディアン ウェリアー ト
レイル 110

Fターム(参考) 4F100 AK04A AK06A AK07A AK68A AK70A AL05A AL07A AT00B BA02 GB15

JA06A JL11 YY00A

4J002 BB03Y BB05W BB05X BB06Y BB08Y BB12Y BB23Y GF00