

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第3961030号

(P3961030)

(45) 発行日 平成19年8月15日(2007.8.15)

(24) 登録日 平成19年5月25日(2007.5.25)

| | | |
|-------------------|------------------|------------|
| (51) Int. Cl. | | F I |
| CO8L 23/10 | (2006.01) | CO8L 23/10 |
| CO8L 23/08 | (2006.01) | CO8L 23/08 |
| CO8L 23/16 | (2006.01) | CO8L 23/16 |

請求項の数 6 (全 10 頁)

| | | | |
|--------------|------------------------------|-----------|----------------------|
| (21) 出願番号 | 特願平5-343154 | (73) 特許権者 | 306044928 |
| (22) 出願日 | 平成5年12月15日(1993.12.15) | | バーゼル・ノース・アメリカ・インコーポ |
| (65) 公開番号 | 特開平7-3087 | | レーテッド |
| (43) 公開日 | 平成7年1月6日(1995.1.6) | | アメリカ合衆国メリーランド州, エレクト |
| 審査請求日 | 平成12年11月6日(2000.11.6) | | ン, アップルトン・ロード 912 |
| 審査番号 | 不服2003-18116(P2003-18116/J1) | (74) 代理人 | 100089705 |
| 審査請求日 | 平成15年9月18日(2003.9.18) | | 弁理士 社本 一夫 |
| (31) 優先権主張番号 | M192A002856 | (74) 代理人 | 100140109 |
| (32) 優先日 | 平成4年12月15日(1992.12.15) | | 弁理士 小野 新次郎 |
| (33) 優先権主張国 | イタリア(IT) | (74) 代理人 | 100075270 |
| | | | 弁理士 小林 泰 |
| | | (74) 代理人 | 100080137 |
| | | | 弁理士 千葉 昭男 |
| | | (74) 代理人 | 100096013 |
| | | | 弁理士 富田 博行 |

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 良好な透明性および改良された耐衝撃性を有するポリプロピレン組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

A) プロピレンの結晶性ホモポリマーまたはエチレンおよび/または $C_4 \sim C_{10}$ - オレフィン 0.5 ~ 10 重量% を含むプロピレンとエチレンおよび/または - オレフィンとの結晶性ランダムコポリマー 70 ~ 98 重量部 (画分 A) および

B) エチレン 60 ~ 85 重量% を含み 25 でキシレンに部分的に可溶性である、エチレンと1種類以上の $C_4 \sim C_{10}$ - オレフィンとのエラストマー性コポリマー 2 ~ 30 重量部 (画分 B) を含んでなり、25 のキシレンに可溶性の画分が、135 のテトラヒドロナフタレン中で極限粘度 0.8 ~ 1.1 dl/g を有することを特徴とする、ポリマー組成物。

【請求項2】

25 のキシレンに可溶性の画分が、135 のテトラヒドロナフタレン中で極限粘度 0.9 ~ 1.1 dl/g を有する、請求項1に記載の組成物。

【請求項3】

画分 B がエチレンと1-ブテンとのコポリマーである、請求項1または2に記載の組成物。

【請求項4】

画分 A がポリマー組成物の 75 ~ 85 重量部を構成し、画分 B が 15 ~ 25 重量部を構成する、請求項1に記載の組成物。

【請求項5】

10

20

画分 A がエチレンおよび / または $C_4 \sim C_{10}$ - オレフィン 0.5 ~ 10 重量% を含むプロピレンのコポリマーである、請求項 1 に記載の組成物。

【請求項 6】

画分 A を活性な二ハロゲン化マグネシウム上に担持される立体特異性触媒の存在下で行う第一の重合工程で生成し、画分 B を前工程で得たポリマーおよび触媒の存在下で行う第二の重合工程で生成することを特徴とする、請求項 1 に記載の組成物の製造法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

本発明は、改良された耐衝撃性および良好な透明性を有するポリプロピレン組成物に関する。

10

ある応用には、プロピレンホモポリマーの結晶化度を、プロピレンと少量のエチレンおよび / または - オレフィン、例えば 1 - ブテン、1 - ペンテンおよび 1 - ヘキセンとの共重合によって減少させるのが有用なことが知られている。このようにして、いわゆるランダムな結晶性のプロピレンコポリマーであって、ホモポリマーと比較して柔軟性および透明度が一層良好であることを本質的な特徴とするものを得ることができる。

【0002】

これらの材料は、例えば灌漑用パイプ、飲料水および他の液状食物の輸送パイプ、加熱装置、単層ボトル（洗剤用）、多層ボトル（飲料および香水用）、包装用の単層または多層フィルムおよび固形食物の容器のような多くの応用分野に使用することができる。

しかしながら、プロピレンランダムコポリマーでは、優れた透明性は有するものの、特に低温下では、前記の用途に満足に使用することができるホモポリマーよりも良好な耐衝撃性は得られない。

20

ポリプロピレンの耐衝撃性は、十分量のエラストマー性のプロピレン - エチレンコポリマーの適量を機械的混合または逐次重合によってホモポリマーに加えることによって改良することができるということがかなり以前から知られている。しかしながら、この改良は材料の透明性を犠牲にして得られるのである。

【0003】

この不都合を解消するために、米国特許第 4,634,740 号明細書にはポリプロピレンを溶融状態で、特異的な触媒によって得られ、エチレン含量が 70 ~ 85 重量% であるプロピレン - エチレンコポリマーと混合することが提案されている。しかしながら、この

30

ような組成物の調製には、ホモポリマーとコポリマーとを別個に合成した後それらを混合する必要がある。これは、このような物質の生産に伴う設備投資および製造費用の点から明らかに不都合である。更に、これらの組成物は、プロピレンホモポリマーに実質的に匹敵する透明度値（曇り度）を有する。それ故、前記の特許明細書には、良好な透明性を有する組成物を得る方法は記載されていない。

前記の米国特許明細書に記載されている組成物のもう一つの欠点は、プロピレン - エチレンコポリマーが、精製工程を省略するため触媒活性のあまり高くない触媒を用いて合成されることである。

【0004】

これらの欠点を克服するため、本出願人は以前に低温耐衝撃性を有し、重合（逐次共重合）によって直接に製造することができる、透明なポリプロピレン組成物を製造した。この組成物は公開特許出願 EP - A - 373660 号明細書の主題を構成しており、結晶性のランダムプロピレンコポリマーと、エチレンとプロピレンおよび / またはエチレン 20 ~ 70 重量% を含む $C_4 \sim C_8$ - オレフィンとのエラストマー性コポリマーとを含んでいる。この特許出願明細書によれば、前記の組成物は、エラストマー性コポリマーのエチレン含量の値に周囲温度でキシレンに可溶性のエラストマー性コポリマーの極限粘度（I.V.）とプロピレンランダムコポリマーのそれとの比の値を掛けたものが所定の範囲内にあることから、機械的および化学的物性的特性のバランスが良好である。しかしながら、0

でのアイゾッド値と延性 / 脆性の転移温度から、前記の組成物を低温で、例えば食品の保存容器などに使用するには不適當である。

40

50

本出願人の名称での公開欧州特許第EP-A-0557953号明細書には、プロピレンの結晶性ランダムコポリマーを、エラストマー性コポリマーおよびLLDPE、LDPEおよびHDPEから選択した1種類以上のポリマーを含んでなる機械的混合物の適当量で改質することによって、低温でも透明性、剛性および耐衝撃性のバランスが良好であるポリオレフィン組成物が記載されている。

【0005】

ここで、低温でも透明性、剛性および耐衝撃性のバランスが最適である新規なポリプロピレン組成物が見出された。

したがって、本発明は、

A) 結晶性プロピレンのホモポリマー70~98重量部またはエチレンおよび/またはC₄~C₁₀-オレフィン0.5~10重量%を含むプロピレンとエチレンおよび/またはオレフィンとの結晶性のランダムコポリマー(画分A)およびB)エチレン60~85重量%を含み25でキシレンに部分的に可溶性である、エチレンと1種類以上のC₄~C₁₀-オレフィンとのエラストマー性コポリマー2~30重量部(画分B)を含んでなり、25のキシレンに可溶性の画分が、135のテトラヒドロナフタレン中で極限粘度0.8~1.1dl/gを有することを特徴とするポリマー組成物を提供するものである。

10

【0006】

好ましいポリマー組成物は、極限粘度が0.9~1.1dl/g(両限界値を含む)の範囲であるものである。

20

画分Aがポリマー組成物の75~85重量部を構成し、画分Bがこの組成物の15~25重量部を構成するポリマー組成物も好ましい。

画分Aのコポリマーに含まれるエチレンおよび/またはC₄~C₁₀-オレフィンの好ましい量は、1~5重量%である。

画分Bのコポリマーに含まれるエチレンの量は、好ましくは63~85重量%であり、最も好ましくは、65~75重量%である。

画分AおよびBにおいてモノマーとして用いることのできるC₄~C₁₀-オレフィンの例は、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセンおよび4-メチル-1-ペンテンなどが挙げられる。特に好ましいのは、1-ブテンである。

【0007】

30

本発明のポリマー組成物は、好ましくは7~20g/10分のMFR値(ASTM D1238L)を有する。

更に、前記の組成物の曲げ弾性率値は通常は500~1600MPaの範囲であり、延性/脆性の転移温度は+10~-50である。

改良された透明性および剛性を得るために、本発明のポリマー組成物は場合によっては、この目的に一般に用いる物質、例えばジブチリデンソルビトール(DBS)で成核させることができる。この成核剤は、1000~3000ppmの量で加えるのが好ましい。

【0008】

本発明の組成物は、二ハロゲン化マグネシウム上に担持された立体特異性チグラ-ナツタ触媒の存在下で、モノマーを逐次共重合して製造することができる。重合は少なくとも2工程で行い、第一の工程では画分Aのポリマーの合成を行い、第二工程では画分Bのポリマーの合成を行う。後者の合成は、前工程で得られるポリマーおよび使用した触媒の存在下で行う。

40

この重合工程は、既知の技術にしたがい、不活性な希釈剤の存在下または非存在下で液相または気相で、あるいは液相-気相の混合手法で操作して、連続的にまたは回分式で行うことができる。

二工程に関する反応時間および温度は重大ではないが、好都合にはそれぞれ0.5~5時間および50~90の範囲にある。分子量の調節は、一般に用いられる分子量調節剤、例えば水素およびZnEt₂を用いて行う。

【0009】

50

本発明のポリマー組成物の製造に用いることのできる触媒は、特許文献において周知である。特に好適なものは、米国特許第4,339,054号明細書および欧州特許第45977号明細書に記載の触媒である。他の触媒の例は、米国特許第4,472,524号および第4,473,660号明細書に記載されている。

重合に用いる立体特異触媒は、下記の成分の反応生成物を含んでなる。

a) 塩化マグネシウム上に担持されたチタン化合物および電子供与体化合物(内部電子供与体)を含む固体成分、

b) アルミニウムアルキル化合物(共触媒)および

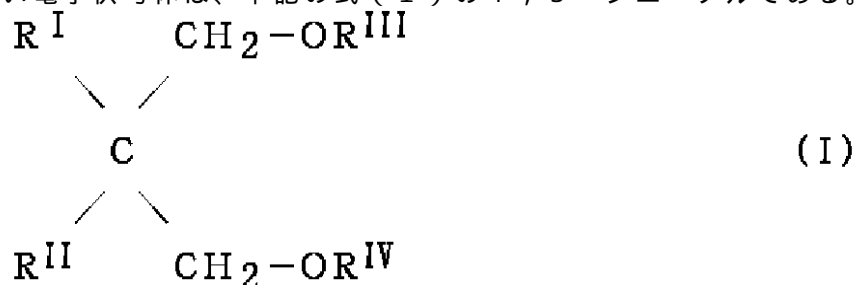
c) 電子供与体化合物(外部電子供与体)。

前記の触媒は、アイソタクチック指数が90%を上回るホモポリマーポリプロピレンを生成することができるのが好ましい。 10

【0010】

固体触媒成分(a)は、電子供与体として、エーテル、ケトン、ラクトン、N、Pおよび/またはS原子を含む化合物、およびモノ-およびジカルボン酸エステルの中から選択した化合物を含む。

特に好ましいのは、例えばジイソブチル、ジオクチルおよびジフェニルフタレート、モノベンジルモノブチルフタレートのようなフタル酸エステル;ジイソブチルおよびジエチルマロネートのようなリンゴ酸エステル;アルキルおよびアリールピバレート;アルキル、シクロアルキルおよびアリールメレエート;ジイソブチルカーボネート、モノエチルモノフェニルカーボネートおよびジフェニルカーボネートのようなアルキルおよびアリールカーボネート;モノ-およびジエチルスクシネートなどのコハク酸エステルである。他の特に好ましい電子供与体は、下記の式(I)の1,3-ジエーテルである。 20



(上記式中、

R^I および R^{II} は、同一でもまたは異なってもよく、 $C_1 \sim C_{18}$ アルキル、 $C_3 \sim C_{18}$ シクロアルキルまたは $C_6 \sim C_{18}$ アリール基を表わし、 R^{III} および R^{IV} は、同一でもまたは異なってもよく、1~4個の炭素原子を有するアルキル基である)。

前記の型のエーテルは、公開欧州特許出願第EP-A-361493号明細書に例示されている。

式(I)のエーテルの代表的な例は、2-メチル-2-イソプロピル-1,3-ジメトキシプロパン、2,2-ジイソブチル-1,3-ジメトキシプロパン、および2-イソプロピル-2-シクロペンチル-1,3-ジメトキシプロパンである。

【0011】

前記の触媒成分は、様々な方法によって製造される。それらの1つは、二ハロゲン化マグネシウム(水含量が1重量%未満の無水状態で用いられる)を、チタン化合物および電子供与体化合物と共に、二ハロゲン化マグネシウムを活性化する条件下で微粉碎または同時微粉碎した後、微粉碎した生成物を過剰量のTiCl₄で80~135の温度で1回以上処理し、次いで、塩素イオンが洗浄水から消失するまで、炭化水素(例えばヘキサン)で繰り返し洗浄することからなっている。

【0012】

もう一つの方法によれば、無水のハロゲン化マグネシウムを既知の方法にしたがって予備活性化し、次に電子供与体化合物を含む過剰量のTiCl₄の溶液と反応させる。この場合には、操作は80~135の温度でも行われる。場合によっては、TiCl₄処理 30

を繰り返し行うことができる。次に、固形物をヘキサンまたは他の溶媒で洗浄し、未反応の $TiCl_4$ を完全に除去する。

【0013】

もう一つの方法では、 $MgCl_2 \cdot nROH$ 付加生成物（特に、球形粒子の形態のもの）であって、 n が通常 1 ~ 3 であり、 ROH がエタノール、ブタノールまたはイソブタノールであるものを電子供与体化合物を含む過剰量の $TiCl_4$ の溶液と反応させる。反応温度は、通常は 80 ~ 120 の範囲である。反応後に固形生成物を単離し、 $TiCl_4$ と 1 回以上反応させた後、炭化水素の溶媒で洗浄して、未反応の $TiCl_4$ を完全に除去する。

【0014】

更に別の方法では、マグネシウムアルコールおよびクロロアルコール（クロロアルコールは米国特許第 4,220,554 号明細書にしたがって製造することができる）を、電子供与体化合物を含む過剰量の $TiCl_4$ の溶液と前記と同じ条件下で操作しながら反応させる。

Ti 含量として表わされる固体触媒成分中のチタン化合物は、通常は 0.5 ~ 10 重量% の量で含まれており、固体上に残った電子供与体化合物（内部供与体）の量は、通常は二ハロゲン化マグネシウムに対して 5 ~ 20 モル% である。

【0015】

触媒成分の調製に用いることのできるチタン化合物は、ハロゲン化物またはハロゲンアルコールである。四塩化チタンが、好ましい化合物である。三八ロゲン化チタン、特に $TiCl_3HR$ (HR = 還元された水素)、 $TiCl_3ARA$ (ARA = 還元され、活性化したアルミニウム) および $TiCl_3OR$ (但し、 R はフェニル基である) のようなハロゲン化チタンアルコールでも、満足な結果が得られる。

前記の調製を行うことにより、活性化二ハロゲン化マグネシウムが形成される。前記の反応の他に、ハロゲン化マグネシウムと異なるマグネシウム化合物、例えばマグネシウムカルボキシレートから出発して、活性化した二ハロゲン化マグネシウムを形成する他の反応が、当該技術分野で知られている。

【0016】

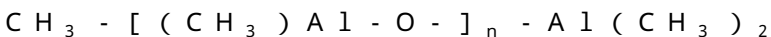
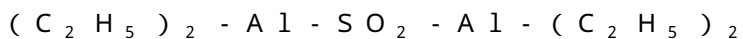
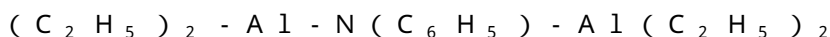
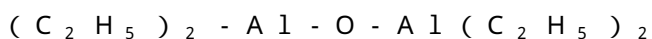
固体触媒成分中のハロゲン化マグネシウムの活性化した形態は、触媒成分の X 線スペクトルにおいて、主要な強度反射のピーク半値幅が活性化されていない二ハロゲン化マグネシウムのスペクトルに現れる主要な強度反射に対して少なくとも 30% を上回るという事実、または（表面積が $3 m^2 / g$ 未満の活性化されていないハロゲン化マグネシウムのスペクトルに現れる）主要な強度反射が存在せず、代わりに活性化されていない二ハロゲン化マグネシウムの最大強度反射の位置に対して移動した最大強度を有するハロゲンが存在するという事実から識別することができる。ハロゲン化マグネシウムの最も活性な形態は、X 線スペクトルがハロゲンを示すものである。

二ハロゲン化マグネシウムの中では、塩化マグネシウムが好ましい化合物である。塩化マグネシウムの最も活性な形態の場合には、この触媒成分の X 線のスペクトルは反射の代わりにハロゲンを示し、活性化されていない塩化マグネシウムのスペクトルでは、2.56 オングストロームの距離に位置する。

【0017】

助触媒 (b) としては、トリアルキルアルミニウム化合物、例えば Al - トリエチル、 Al - トリイソブチルおよび Al - トリ - n - ブチルが好ましく用いられる。助触媒 (b) の他の例は、 O または N 原子または SO_2 、 SO_3 または SO_4 基によって結合した 2 個以上の Al 原子を含む、線状または環状の Al - アルキル化合物である。

これらの化合物の幾つかの例には、下記のようなものが挙げられる。



10

20

30

40

50

- [(C H ₃) A l - O] _n -

(式中、

n は 1 ~ 2 0 までの数である) 。

通常は、A l - アルキル化合物は、A l / T i の比が 1 ~ 1 0 0 0 の間になる量で含まれる。

【 0 0 1 8 】

(A l - アルキル化合物に加えられる) 外部電子供与体として用いることのできる電子供与体化合物 (c) には、芳香族酸エステル (例えば、アルキルベンゾエート)、ヘテロ環式化合物 (例えば、2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジンおよび 2, 6 - ジイソプロピルピペリジン)、および特に少なくとも 1 つの S i - O R 結合 (R は炭化水素基である) を含むケイ素化合物が含まれる。ケイ素化合物の例としては、(t - C ₄ H ₉) ₂ S i (O C H ₃) ₂、(C ₆ H ₁₁) ₂ S i (O C H ₃) ₂ および (C ₆ H ₅) ₂ S i (O C H ₃) ₂ が挙げられる。式 (I) の 1, 3 - ジエーテルも、外部供与体として用いるのに好適である。内部供与体が式 (I) の 1, 3 - ジエーテルの 1 つである場合には、外部供与体を省略することができる。

10

触媒は、少量のオレフィンと予備接触 (前重合) をさせ、炭化水素溶媒の懸濁液中に触媒を保持し、周囲温度から 6 0 °C の間の温度で重合させることができる。生成するポリマーの量は、触媒の重量の 0 . 5 ~ 3 倍である。

予備重合は、前記の温度条件下で、液状プロピレン中で行うこともでき、ポリマーの生成量は、触媒成分 1 グラムにつき 1 0 0 0 g にまで達することができる。

20

【 0 0 1 9 】

組成物に関して実施例に報告したデータおよびポリマー組成物の特性は、下記の方法によって測定した。

極限粘度 : テトラヒドロナフタリン中、1 5 °C 。

M F R : A S T M D - 1 2 3 8 に準じて、条件 L 。

エチレン含量 (C ₂) : I R 分光分析法。

キシレンに可溶性および不溶性の画分 : 材料の試料を 1 2 5 °C のキシレンに溶解し、溶液を周囲温度まで冷却する。可溶性および不溶性の画分を、濾過によって分離する。

曲げ弾性率 : A S T M D - 7 9 0 (タンジェント) に準じる。

耐衝撃性 (アイゾッド) : A S T M D - 2 5 6 (ノッチ付試験片) に準じる。

30

延性 / 脆性転移温度 : 内部ハイモント法による。ここで、延性 / 脆性転移は所定の重量を有し、所定の高さから落下するラムにより衝撃を加えるとき、その 5 0 % が脆性亀裂を呈する温度として定義される。

曇り度 : 厚み 1 m m の標本につき A S T M D - 1 0 0 3 に準じる。

融点 : D S C 法に準じる。

降伏点伸び : A S T M D - 6 3 8 に準じる。

破断点伸び : A S T M D - 6 3 8 に準じる。

ビカー : A S T M D - 1 5 2 5 に準じる。

下記の実施例は本発明を説明するためのものであり、制限するものではない。

【 0 0 2 0 】

40

触媒成分 (a) の調製

実施例で用いる固体触媒は、下記のようにして製造する。

攪拌機を備えた反応装置に、不活性雰囲気中で、M g C l ₂ 2 8 . 4 g、無水エタノール 4 9 . 5 g、R O L O B / 3 0 ワセリン油 1 0 0 m l、粘度が 3 5 0 c s のシリコーン油 1 0 0 m l を導入し、内容物を 1 2 0 °C に加熱して、M g C l ₂ を溶解させる。次に、高温の反応混合物を、T - 4 5 N U l t r a T u r r a x 攪拌機を備え、ワセリン油 1 5 0 m l およびシリコーン油 1 5 0 m l の入った 1 5 0 0 m l の容器に移す。温度を 1 2 0 °C に保ち、攪拌を 3 0 0 0 r p m で 3 分間続ける。次に、混合物を、攪拌機を備え 0 °C に冷却した無水 n - ヘプタン 1 0 0 0 m l を含む 2 リットル容器中に空ける。得られた微粒子を濾過によって回収し、n - ヘキサン 5 0 0 m l で洗浄し、M g C l ₂ · 2 . 1 C

50

2 H₅OHの付加生成物が得られるまで、窒素気流中で温度を30から180まで徐々に上昇させる。

付加物25gを、攪拌機を備え、TiCl₄625mlを含む反応機に、0で攪拌しながら移す。温度を100まで上げ、混合物をこの温度で1時間加熱する。この温度が40に達したとき、ジイソブチルフタレートに対するマグネシウムのモル比が8になる量のジイソブチルフタレートを加える。

反応装置の内容物を攪拌しながら100まで2時間加熱し、次に固形生成物を沈澱させた後、液体をまだ熱いうちにサイフォンで吸出する。TiCl₄550mlを加え、混合物を攪拌しながら120まで1時間加熱する。攪拌を中断し、固形生成物を沈澱させ、液体をまだ熱いうちにサイフォンで吸出する。固形生成物を1回につきn-ヘキサン200mlを用いて60で6回洗浄した後、室温で3回洗浄する。

【0021】

重合

重合は、生成物を1個の反応装置からすぐ隣の反応装置へと直ちに移すための装置を備えた一連の反応装置中で連続的に行う。

下記の実施例では、重合工程の前に予備重合を行い、これは過剰量の液体プロピレンの存在下で反応装置中で行い、この予備重合は20~24の温度で、約1.5~約2分間継続する。

次に、このプレポリマーを第一の反応装置に移し、ここで気相で重合を行うことによって画分Aを形成する。

この画分Aのポリマーは、未反応のモノマーを総て除去した後に、第一の反応装置から第二の反応装置へと送られる。この反応装置中で画分Bが形成される。

この予備重合および重合の実施例では、固体触媒成分(a)(前記の通り調製)と共に、助触媒としてのトリエチルアルミニウム(TEAL)、外部電子供与体としてのジシクロペンチル-ジメトキシシラン(DCPMS)が用いられる。TEAL対DCPMS、およびTEAL対Tiの重量比を、表1に示す。

表2は、一回の反応工程に導入されるモノマーの温度、圧力およびモル比を示したものである。

気相では、水素およびモノマーをガスクロマトグラフィーによって連続的に分析し、適当に供給を行うことによって所望の濃度を維持する。

一回の重合工程では、温度および圧力を一定に保つ。

表3および4に、本発明による実施例(実施例1-3)および比較例(1c)の生成物の組成および特性を示す。

【0022】

表1

| 実施例 | 1 | 2 | 3 | 1c |
|------------|-----|-----|-----|-----|
| TEAL/DCPMS | 5.4 | 3.6 | 5.8 | 4.0 |
| TEAL/Ti | 6.2 | 7.2 | 7.7 | --- |

【0023】

10

20

30

40

表 2

| 実施例 | 1 | 2 | 3 | 1c | |
|--|------|-------|-------|-------|----|
| 第一の気相反応装置 | | | | | |
| 温度 (°C) | 75 | 75 | 75 | 75 | |
| 圧力 (バール) | 22.5 | 22.5 | 24.0 | 17.0 | |
| 滞留時間 (分) | 65 | 64 | 69 | --- | 10 |
| H ₂ /C ₃ (モル) | 0.02 | 0.02 | — | 0.035 | |
| C ₂ /(C ₂ +C ₃) (モル) | 0.01 | 0.005 | 0.006 | — | |
| 第2の気相反応装置 | | | | | |
| 温度 (°C) | 70 | 70 | 70 | 70 | |
| 圧力 (バール) | 12 | 12 | 15 | 11.5 | |
| 滞留時間 (分) | 29 | 25 | 53 | — | |
| H ₂ /C ₂ (モル) | 0.8 | 0.81 | 0.8 | 0.5 | 20 |
| C ₄ /(C ₄ +C ₂) (モル) | 0.5 | 0.5 | 0.5 | 0.5 | |

【 0 0 2 4 】

表 3

| 実施例 | 1 | 2 | 3 | 1c | |
|------------------------------|------|------|------|------|----|
| 画分 A (重量部) | 81.1 | 80.0 | 74.4 | 75 | 30 |
| 画分 A 中の C ₂ (重量%) | 2.0 | 1.0 | 1.3 | 45 | |
| 画分 A のキシレン中の溶解度 (重量部) | 4.4 | 3.2 | 5.9 | 4.5 | |
| 画分 B 中の C ₂ (重量%) | 70.0 | 70.0 | 65.0 | 65 | |
| キシレンに可溶性の画分の I. V. | 0.93 | 0.96 | 0.93 | 1.28 | |

【 0 0 2 5 】

表 4

| 実施例 | 1 | 2 | 3 | 1c |
|----------------------|---------|-----------|---------|-----|
| MFR “L” (g/10分) | 9.0-9.5 | 12-13 | 9-10 | 12 |
| 曲げ弾性率 (MPa) | 900-950 | 1050-1150 | 800-850 | 890 |
| 23℃でのアイゾッド (J/m) | 410 | 250 | 600 | 580 |
| 0℃でのアイゾッド (J/m) | 70 | 45 | 480 | --- |
| 延性/脆性転移温度 (℃) | -27.0 | -26.0 | -40.0 | -42 |
| 降伏応力 (MPa) | 24.0 | 27.0 | 20.6 | 21 |
| 破断点伸び (重量%) | 500 | 500 | 500 | 500 |
| 熔融温度 (℃) | 153 | 153 | 154 | 154 |
| ビカー (℃) | 130.0 | 137.0 | 128.0 | 128 |
| 曇り度 ¹ (%) | 16 | 20 | 16 | 31 |

10

20

¹ DBS (2500 ppm) の添加後に得られた値

フロントページの続き

(74)代理人 100108899

弁理士 松本 謙

(72)発明者 アンテオ、ベルリコーニ

イタリア国フェララ、ロ、エッセ、エンメ、マッダレーナ、ピア、ア、ボルタ、22

(72)発明者 アントニオ、チアロッキ

イタリア国フェララ、ピア、クロスノダール、138

(72)発明者 パオラ、マッサリ

イタリア国フェララ、ピア、エッフェ、ネリ、8

合議体

審判長 西川 和子

審判官 鈴木 紀子

審判官 天野 宏樹

(56)参考文献 特開平02 - 258854 (JP, A)

特開昭64 - 054045 (JP, A)

特開昭61 - 042553 (JP, A)