



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 699 23 312 T2** 2005.12.22

(12) **Übersetzung der europäischen Patentschrift**

(97) **EP 1 086 168 B1**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **699 23 312.7**

(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/US99/11430**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **99 925 781.9**

(87) PCT-Veröffentlichungs-Nr.: **WO 99/064501**

(86) PCT-Anmeldetag: **24.05.1999**

(87) Veröffentlichungstag
der PCT-Anmeldung: **16.12.1999**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **28.03.2001**

(97) Veröffentlichungstag
der Patenterteilung beim EPA: **19.01.2005**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **22.12.2005**

(51) Int Cl.7: **C08J 5/18**
B32B 27/32

(30) Unionspriorität:
88974 P **11.06.1998** **US**

(73) Patentinhaber:
Dow Global Technologies, Inc., Midland, Mich., US

(74) Vertreter:
Weickmann & Weickmann, 81679 München

(84) Benannte Vertragsstaaten:
**AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT,
LI, LU, MC, NL, PT, SE**

(72) Erfinder:
**CHEUNG, Yunwa W., Lake Jackson, US; GUEST,
J., Martin, Lake Jackson, US; VAN
VOLKENBURGH, R., William, Lake Jackson, US**

(54) Bezeichnung: **ELASTISCHE FILME AUS ALPHA-OLEFIN/VINYLAROMATISCHEN- UND/ODER ALIPHATISCHEN
ODER CYCLOALIPHATISCHEN VINYL- ODER VINYLIDENE-INTERPOLYMEREN**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

Beschreibung

[0001] Diese Erfindung betrifft elastische Folien, welche aus Polymeren hergestellt sind, welche mindestens ein im Wesentlichen statistisches Interpolymer umfassen, welches Polymereinheiten umfasst, welche von Ethylen oder von einem oder mehreren α -Olefinmonomeren oder Kombinationen davon abgeleitet sind, mit spezifischen Mengen von einem oder mehreren aromatischen Monomeren oder aliphatischen oder cycloaliphatischen Vinyl- oder Vinylidenmonomeren, oder Kombinationen davon, oder Mischzusammensetzungen davon mit anderen Polymeren. Folien, welche aus solchen Interpolymeren hergestellt sind, weisen ein einzigartiges Gleichgewicht der Eigenschaften auf, einschließlich einer guten Elastizität, wie durch eine hohe Dehnungsrückformung bestimmt ($\geq 80\%$ Rückformvermögen in der Querrichtung (CD, "cross direction") und $\geq 60\%$ Rückformvermögen in der Längsrichtung (MD, "machine direction")).

[0002] Die Erfindung umfasst Folien, Platten und Mehrschichtlamine. Die erfindungsgemäßen Folien können auch als koextrudierte Folien und Mehrschichtfolien erhalten werden, wie etwa als einseitig abdichtbare Folien, zweiseitig abdichtbare Folien, beschichtete Folien, getönte Folien, kavitierte Folien, unbehandelte Folien, auf einer Seite behandelte Folien, auf zwei Seiten behandelte Folien und metallisierte Kunststofffolien. Die erfindungsgemäßen Folien können auch auf Polyesterfolien, Styrolpolymerfolien, Polyethylenfolien, nichtgewebte Gewebe, Fasern, Schäume und konventionell orientierte Polypropylenfolien und andere laminiert werden, um solchen Mehrschicht-Verbundkonstruktionen elastische Eigenschaften zu verleihen.

[0003] Zur Herstellung einer Vielzahl von Einweggegenständen und haltbaren Gegenständen, wie etwa Bänder, Bandagen, Inkontinenzkleidung, Einwegwindeln, Einweg- und Schutzbekleidung und -stoffe, werden Materialien mit einer ausgezeichneten Dehnbarkeit und Elastizität benötigt. Die Dehnbarkeit und Elastizität sind erwünschte Eigenschaften, um einen eng anliegenden Sitz an den Körper des Trägers oder den Rahmen des Gegenstands zu bewirken. Es ist auch erwünscht, den anliegenden Sitz während einer wiederholten Verwendung, Dehnungen und Schrumpfungen beizubehalten. Bei Inkontinenzgegenständen ist die Dehnbarkeit und Elastizität besonders erwünscht, um die Bequemlichkeit sicherzustellen und eine Sicherheit gegen unerwünschtes Auslaufen bereitzustellen. Elastische Folien können auch für Lebensmittelverpackungen, Fleischverpackungen und Haushaltsverpackungen wertvoll sein, wo die Rückformung von Bedeutung ist.

[0004] Einweggegenstände werden normalerweise hergestellt durch die Kombination von Polymerfasern, Folien, Platten bzw. dünnen Schichten und absorbierenden Materialien. Während die Fasern durch gut bekannte Verfahren wie etwa Spinnfließverfahren, Schmelzblasen und kontinuierliche Filamentwickeltechnik hergestellt werden, betreffen die Folien- und Plattenbildungsverfahren normalerweise bekannte Extrusions- und Koextrusionsverfahren, beispielsweise Extrusionsblasformen („blown bubble extrusion“, Extrusionsgießen, Profilextrusion, Spritzgießen, Extrusionsbeschichten und Folien- bzw. Plattenextrusion. Die resultierende elastische Folie, Beschichtung oder Platte kann anschließend auf kurze Längen oder enge Breiten geschnitten oder geschlitzt werden, um Streifen, Bandagen, Bänder, Bahnen oder dgl. herzustellen.

[0005] Es gibt mindestens zwei Arten, auf welche elastische Folien bei der Herstellung von Einweggegenständen und haltbaren Gegenständen verwendet werden. Elastische Folien, Streifen und Platten werden als nicht kombinierte, elastische Bestandteile (Streifen oder Abschnitte) verwendet, oder sie werden als Mehrschichtstrukturen oder in Mehrschichtstrukturen konstruiert, um elastische Verbundmaterialien mit einer verbesserten Elastizität und Dehnbarkeit herzustellen. In einer Windel beispielsweise umfassen experimentelle und kommerzielle Verwendungen die Verwendung in oder als Seitenstreifen, Taillenbänder, Rückenflächen, Beinbänder und sogar obere Schichten, wobei das elastische Material durchlässig oder "luftdurchlässig" gemacht wird durch Verfahren wie etwa Schlitzen, Aufschneiden oder Mikroperforation, wie von Lippert et al. im US-Patent 4,861,652 vorgeschlagen wird.

[0006] Ein Beispiel für die Verwendung von elastischen Folien zur Konstruktion von elastischen Verbundmaterialien wird von Van Gompel et al. im US-Patent 4,940,464, im US-Patent 4,938,757 und im US-Patent 4,938,753 bereitgestellt. Van Gompel et al. offenbaren Einweg-Inkontinenzkleidung welche elastische Mittel zum Zusammenziehen und dehnbare Seitenstreifen enthält. Die Mittel zum Zusammenziehen und die dehnbaren Seitenstreifen sind hergestellt aus einer Folie aus Block- oder Propf-Copolymeren wie etwa Butadien, Isopren, Styrol, Ethylen-Methylacrylat, Ethylen-Vinylacetat, Ethylen-Ethylacrylat oder Gemischen davon.

[0007] Ein Beispiel für die Verwendung von elastischen Folien zur Herstellung von Verbundstoffen mit dem besonderen Vorteil einer verbesserten Dehnbarkeit ist ein dehnbare Befestigungsband für eine Einwegwindel, offenbart von Gesp im US-Patent 5,057,097.

[0008] Es bestand ein anhaltender Bedarf für extrudierbare Materialien, welche für die Produktion von Folien, Streifen, Platten und Verbundstoffen mit einer ausgezeichneten Dehnbarkeit und Elastizität geeignet sind. Obwohl gegenwärtig eine Vielzahl von elastischen Folien erhältlich ist, erfordern diese bekannten Lösungen ein Mischen oder das Einarbeiten von Zusätzen, um das gewünschte Niveau an Extrusionsverarbeitbarkeit, Dehnbarkeit oder Elastizität zu erreichen. Noch andere vorgeschlagene Lösungen, wie etwa das von Butin im US-Patent 3,849,241 vorgeschlagene Verfahren, erfordern eine "kontrollierte thermische und oxidative Degradation" des elastischen Materials, um Anpassungen der Viskosität vor der Extrusion zu beeinflussen. Außerdem können die elastischen Folien des Standes der Technik Elastomere wie etwa Styrolbutadien-Copolymere, Polyetherblockamide, Polyetherester und Polyurethane betreffen, welche normalerweise ein Mischen mit Polyolefinen für eine adäquate Extrusionsverarbeitbarkeit erforderlich machen.

[0009] WO 95/05418 (The Dow Chemical Company) beschreibt elastische Materialien einschließlich Folien, welche aus mindestens einem im Wesentlichen linearen Ethylenpolymer hergestellt sind, welche mindestens etwa 80% Rückformvermögen bei 100% Belastung aufweisen.

[0010] WO 98/16582 (The Dow Chemical Company) beschreibt thermoplastische Gemische von Styrol-Block-Copolymeren und Interpolymeren aus α -Olefin/aromatischen Vinylidenmonomeren, worin das aromatische Vinylidenmonomer in einer Menge von 0,5 bis 15 und 17 bis 65 Mol% vorliegt.

[0011] Das US-Patent Nr. 5,739,200 (Y. W. Cheung et al., übertragen an „The Dow Chemical Company“) beschreibt eine Verbesserung von Eigenschaften, welche durch die Zugabe von Weichmachern zu Interpolymeren aus α -Olefin/aromatischen Vinylidenmonomeren erreicht werden kann. Die plastizierten Zusammensetzungen sind in einem breiten Anwendungsbereich verwendbar, einschließlich Folien, Platten, Haftmittel, Dichtungsmaterialien und Formartikel.

[0012] Wenn Polyolefine selbst zuvor als elastische Folien verwendet worden sind, haben sich andere Probleme ergeben. Z.B. ist bekannt, dass Ethylen/ α - β -ungesättigte Copolymere eine verbesserte Elastizität besitzen als eine Funktion des erhöhten Comonomergehalts. Daponte offenbart im US-Patent 4,803,117 Ethylenvinylester-Copolymere, wobei ein hoher Vinylestergehalt erforderlich ist, um eine adäquate Elastizität für Einweggegenstände zu bewirken. Aber dieser hohe Vinylestergehalt macht das Polymer immer anfällig für eine übermäßige thermische Degradation.

[0013] Bei der modernen Verteilung und Vermarktung von Nahrungsmittelprodukten wird eine Vielzahl von unterschiedlichen Verpackungsmaterialien verwendet. Eine Hauptkategorie der Nahrungsmittelverpackungsmaterialien ist Kunststoffolie. Es existieren viele unterschiedliche Arten von Kunststoffolie, sowohl bezüglich der Zusammensetzung als auch der Struktur, und einige sind auf spezielle Anwendungen zugeschnitten, während andere von der Art her unspezifischer sind.

[0014] Gegenwärtig ist eine Polyvinylchlorid (PVC)-Folie die vorherrschende Kunststoffolie, welche verwendet wird, um für den Einzelhandel geschnittenes rotes Fleisch und ähnliche Produkte, beispielsweise frischen Fisch, Geflügel, Gemüse, Früchte usw. einzupacken, aufgrund der vielen erwünschten Eigenschaften der Folie und ihrer geringen Kosten im Verhältnis zu anderen Kunststoffolien. Repräsentativ für diese erwünschten Eigenschaften sind Klarheit, Sauerstoffdurchlässigkeit, Flexibilität, Zähigkeit, Verschweißbarkeit, elastisches Rückformvermögen und Verarbeitbarkeit. Aber die meisten PVC-Folien enthalten einen Weichmacher, um die gewünschte Flexibilität zu erhalten, und es besteht eine wachsende Besorgnis im Hinblick auf die karzinogenen Eigenschaften der meisten gewöhnlich verwendeten PVC-Folienweichmacher und der Tendenz dieser Weichmacher, von der Folie zum Nahrungsmittelprodukt zu wandern. Eine wachsende Besorgnis besteht ebenso im Hinblick auf die Verwendung bei Anwendungen einer beliebigen Kunststoffolie bei der Nahrungsmittelverpackung, welche ein oder mehrere chlorierte Polymere umfasst. Diese Besorgnis umfasst die Tendenz von chlorierten Polymeren, bei thermischer Degradation oder Verbrennung aggressive Säure zu bilden, ebenso wie die Besorgnis im Hinblick auf die allgemeinen Schwierigkeiten, welche das Recycling von chlorierten Polymeren betrifft.

[0015] Bei der Suche nach Alternativen zu PVC-Folien wurden verschiedene Monoschichtolefinfolien, insbesondere Polyethylenfolien in Betracht gezogen, aber es wurde keine ohne zumindest einen bedeutenden Fehler gefunden, welcher die Brauchbarkeit der Folie gehindert hat. Polyethylen mit hoher Dichte (HDPE, "high density polyethylene") ist viel zu unelastisch, um als eine kommerzielle Verpackung nutzbar zu sein, während die verschiedenen Polyethylene mit geringer Dichte, beispielsweise Polyethylen mit geringer Dichte (LDPE, "low density polyethylene"), lineares Polyethylen mit geringer Dichte (LLDPE, "linear low density polyethylene"), Polyethylen mit sehr geringer Dichte (ULDPE, "ultra low density polyethylene") usw. kein ausreichendes

elastisches Rückformvermögen besitzen, und die Folien behalten Abdrücke oder Dellen zurück, welche durch die Berührung der verpackten Waren durch potenzielle Käufer während der Untersuchung ihrer Inhalte verursacht werden.

[0016] Es sind auch verschiedene Mehrschichtfolien in Betracht gezogen worden (beispielsweise diejenigen, welche im US-Patent 5,112,674 und in EP 0 243 965, EP 0 333 508 und EP 0 404 969 gelehrt wurden), und beachtlich unter diesen Folien sind Folien, welche durch Koextrusion von Polyethylen mit einem Ethylen/ α,β -ethylenisch ungesättigten Carbonylcopolymer wie etwa Ethylenvinylacetat (EVA) oder Ethylenacrylsäure (EAA) hergestellt werden. Diese Ethylen/ α,β -ethylenisch ungesättigten Carbonyl-Copolymere werden als schwer herstellbar betrachtet, besitzen eine Tendenz, dem Nahrungsmittelprodukt einen üblen Geschmack oder Geruch zu verleihen und es ist bekannt, dass sie mit Beschlagverhinderungsmitteln wechselwirken.

[0017] Obijeski et al. offenbaren im US-Patent Nr. 5,472,775 elastische Folien, insbesondere Folien, Streifen, Beschichtungen, Bänder und Platten, welche aus mindestens einem im Wesentlichen linearen Ethylenpolymer hergestellt sind, welche mit einer konventionellen Polyolefinextrusionsapparatur produziert werden können. Sie können verwendet werden, um elastische Verbundstrukturen herzustellen, welche dehnbar sind und Recycle-Verträglichkeit zwischen elastischen und nicht elastischen Bestandteilen besitzen.

[0018] Chum et al. offenbart im US-Patent Nr. 5,427,807 eine Nahrungsmittelverpackung, umfassend eine Folie mit mindestens einer Folienschicht, welche ein im Wesentlichen lineares Ethylenpolymer umfasst, bevorzugt ein Polymer, welches Ethylen und mindestens ein α -Olefin-Comonomer, beispielsweise 1-Octen, umfasst. Die Foliensstrukturen können entweder einschichtig oder mehrschichtig, orientiert oder nicht orientiert, sauerstoffdurchlässig oder undurchlässig sein, mit bestimmten anorganischen Füllstoffen gefüllt sein und durch ein beliebiges konventionelles Verfahren hergestellt werden.

[0019] Bradfute et al. offenbaren im US-Patent Nr. 5,658,625 Folien- und Plattenmaterialien und daraus hergestellte Gegenstände wie etwa Taschen, Beutel, Tablette usw., umfassend eine oder mehrere Schichten eines thermoplastischen, homogenen, Alpha-Olefin/aromatischen Vinyl-Copolymers, bevorzugt ein Ethylen/Styrol-Copolymer, gibt aber nicht die optimalen Mengen an Ethylen/Vinyl- und α -Olefinmonomeren in dem Mischungsbestandteil des Ethylen/aromatischen Vinyl-Interpolymers an.

[0020] Folglich verbleibt ein Bedarf an einer elastischen Folie, welche das erforderliche Ausmaß an Elastizität aufweist und ebenso: a) ein ausgezeichnetes Gleichgewicht bei anderen mechanischen Eigenschaften wie etwa Zugfestigkeit und Dehnung ebenso wie Weichheit und Flexibilität, angezeigt durch niedrige Modulwerte; b) eine gute Verarbeitbarkeit besitzt, ohne dass ein Mischen oder Einarbeiten von Zusatzstoffen wie etwa Verarbeitungshilfsmittel erforderlich ist; c) einer übermäßigen thermischen Degradation nicht zugänglich ist; d) keinen Weichmacher erfordert, um die Weichheit zu verbessern; e) keine aggressiven Chlorreste enthält; f) keinen üblen Geschmack oder Geruch an Nahrungsmittel vermittelt und g) nicht mit bekannten Beschlagverhinderungsmitteln wechselwirkt.

[0021] Wir haben nun gefunden, dass elastische Folien mit der gewünschten Elastizität, Verarbeitbarkeit und gewünschten mechanischen Eigenschaften hergestellt werden können, wenn solche Folien mindestens ein im Wesentlichen statistisches Interpolymer umfassen und wenn die Menge des aromatischen Vinyl- oder aliphatischen oder cycloaliphatischen Vinyl- oder Vinylidenmonomers oder eine Kombination davon, welches in das im Wesentlichen statistische Interpolymer eingearbeitet ist, innerhalb eines bestimmten Bereichs liegt, was die elastische Folie ergibt, welche ein Rückformvermögen in der Querrichtung von mehr als oder gleich 80 Prozent und ein Rückformvermögen in der Maschinenrichtung von mehr als oder gleich 60 Prozent aufweist.

[0022] Die vorliegende Erfindung betrifft eine elastische Folie mit mindestens einer Schicht, umfassend ein Gemisch aus

(A) mindestens einem im Wesentlichen statistischen Interpolymer, welches in einer Menge von 50 bis 100 Gew.% vorliegt (bezogen auf die vereinigten Gewichte der Bestandteile A und des Polymers, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A), eine Dichte von mehr als $0,93 \text{ g/cm}^3$, einem I_2 von 0,1 bis 1 000 g/10 min und einem M_w/M_n von 1,5 bis 20 aufweist, welches umfasst:

(1) von 10 bis 40 Mol% an Polymereinheiten, welche abgeleitet sind von

(i) mindestens einem aromatischen Vinylmonomer, oder

(ii) mindestens einem aliphatischen oder cycloaliphatischen Vinyl- oder Vinylidenmonomer, oder

(iii) einer Kombination aus mindestens einem aromatischen Vinylmonomer und mindestens einem aliphatischen oder cycloaliphatischen Vinyl- oder Vinylidenmonomer, und

(2) von 60 bis 90 Mol% an Polymereinheiten, welche abgeleitet sind von Ethylen oder mindestens einem

C₃₋₂₀Alpha-Olefin; und optional

(3) von 0 bis 20 Mol% an Polymereinheiten, welche abgeleitet sind von einem oder mehreren ethylenisch ungesättigten, polymerisierbaren Monomeren, welche andere sind als diejenigen in (1) und (2); und (B) von 0 bis 50 Gew.% (bezogen auf die vereinigten Gewichte des Bestandteils A und des Polymers, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A) eines Gemischs aus dem Bestandteil A mit mindestens einem Polymer, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A; und worin die elastische Folie in der Querrichtung ein Rückformvermögen von mehr als oder gleich 80% aufweist und in der Maschinenrichtung ein Rückformvermögen von mehr als oder gleich 60% aufweist.

[0023] Die vorliegende Erfindung betrifft auch eine Mehrschichtfolie, welche mindestens zwei Schichten umfasst, worin mindestens eine der Schichten in der Querrichtung ein Rückformvermögen von mehr als oder gleich 80% aufweist und in der Maschinenrichtung ein Rückformvermögen von mehr als oder gleich 60% aufweist und eine Polymerzusammensetzung umfasst, welche ein Gemisch umfasst aus

(A) mindestens einem im Wesentlichen statistischen Interpolymer, welches in einer Menge von 50 bis 100 Gew.% vorliegt (bezogen auf die vereinigten Gewichte der Bestandteile A und des Polymers, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A), eine Dichte von mehr als 0,93 g/cm³, einem I₂ von 0,1 bis 1 000 g/10 min und einem M_w/M_n von 1,5 bis 20 aufweist, welches umfasst:

(1) von 10 bis 40 Mol% an Polymereinheiten, welche abgeleitet sind von

(i) mindestens einem aromatischen Vinylmonomer, oder

(ii) mindestens einem aliphatischen oder cycloaliphatischen Vinyl- oder Vinylidenmonomer, oder

(iii) einer Kombination aus mindestens einem aromatischen Vinylmonomer und mindestens einem aliphatischen oder cycloaliphatischen Vinyl- oder Vinylidenmonomer, und

(2) von 60 bis 90 Mol% an Polymereinheiten, welche abgeleitet sind von Ethylen oder mindestens einem C₃₋₂₀Alpha-Olefin; und optional

(3) von 0 bis 20 Mol% an Polymereinheiten, welche abgeleitet sind von einem oder mehreren ethylenisch ungesättigten, polymerisierbaren Monomeren, welche andere sind als diejenigen in (1) und (2); und

(B) mindestens ein Polymer, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A, in einer Menge von 0 bis 50 Gew.% bezogen auf vereinigten Gewichte der Bestandteile A und des Polymers, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A.

[0024] Die elastischen Folien können verwendet werden in Anwendungen einschließlich, aber nicht beschränkt auf Einwegwindeln, Gewebe, medizinische Bandagen, Bänder, Nahrungsmittelverpackungsfolien, Haushaltsverpackungen, dehnbare Verpackungsfolien, Aufkleber, Bänder.

Definitionen

[0025] Alle Verweise hierin auf Elemente oder Metalle, welche zu einer bestimmten Gruppe gehören, beziehen sich auf das Periodensystem der Elemente, veröffentlicht und urheberrechtlich geschützt von CRC Press, Inc., 1989. Ebenso soll jeder Verweis auf die Gruppe oder Gruppen ein Verweis auf die Gruppe oder Gruppen sein wie in diesem Periodensystem der Elemente gezeigt unter Verwendung des IUPAC-Systems zur Gruppennummerierung.

[0026] Alle hierin zitierten Zahlenwerte umfassen alle Werte von dem niederen Wert bis zu dem höheren Wert in Stufen von einer Einheit, vorausgesetzt, dass es einen Abstand von mindestens zwei Einheiten zwischen einem beliebigen niederen Wert und einem beliebigen höheren Wert gibt. Wenn beispielsweise angegeben ist, dass die Menge eines Bestandteils oder eines Werts einer Prozessvariablen wie etwa beispielsweise Temperatur, Druck z.B. von 1 bis 90, bevorzugt von 20 bis 80, mehr bevorzugt von 30 bis 70 beträgt, ist beabsichtigt, dass Werte wie etwa 15 bis 85, 22 bis 68, 43 bis 51, 30 bis 32 usw. in dieser Beschreibung ausdrücklich aufgezählt sind. Für Werte, welche kleiner 1 sind, wird eine Einheit als 0,0001, 0,001, 0,01 oder 0,1 betrachtet, wie es passend ist. Dies sind nur Beispiele dafür, was insbesondere beabsichtigt ist und alle möglichen Kombinationen von Zahlenwerten zwischen dem niedrigsten Wert und dem höchsten aufgezählten Wert sollen in dieser Anmeldung auf ähnliche Weise ausdrücklich genannt sein.

[0027] Der hierin verwendete Begriff "Hydrocarbyl" bedeutet beliebige aliphatische, cycloaliphatische, aromatische, arylsubstituierte aliphatische, arylsubstituierte cycloaliphatische, aliphatisch substituierte aromatische oder aliphatisch substituierte cycloaliphatische Gruppen.

[0028] Der Begriff "Hydrocarbyloxy" bedeutet eine Hydrocarbylgruppe mit einer Sauerstoffbindung zwischen der Hydrocarbylgruppe und dem Kohlenstoffatom, an welches sie gebunden ist.

[0029] Der Begriff "Interpolymer" wird hierin verwendet, um ein Polymer zu bezeichnen, worin zumindest zwei unterschiedliche Monomere polymerisiert sind zur Bildung des Interpolymers. Dies umfasst Copolymere, Terpolymere usw.

[0030] Wie hierin verwendet, bezieht sich der Ausdruck "äußere Schicht" auf eine beliebige Folienschicht einer Mehrschichtfolie, wobei nur eine ihrer Hauptflächen direkt an eine andere Schicht der Folie anhaftet.

[0031] Wie hierin verwendet, bezieht sich der Ausdruck "Innenschicht" auf die äußere Schicht einer Mehrschichtfolie, welche ein Produkt verpackt, welche im Verhältnis zu den anderen Schichten der Mehrschichtfolie am nächsten beim Produkt ist.

[0032] Wie hierin verwendet, bezieht sich der Ausdruck "Außenschicht" auf die äußere Schicht einer Mehrschichtfolie, welche ein Produkt verpackt, welche im Verhältnis zu den anderen Schichten der Mehrschichtfolie am weitesten von dem Produkt entfernt ist.

[0033] Wie hierin verwendet, wird der Begriff "Extrusion" benutzt unter Bezug auf das Verfahren zur Bildung von kontinuierlichen Formen durch Drücken eines geschmolzenen Kunststoffmaterials durch eine Düse, gefolgt vom Abkühlen oder chemischen Härten. Unmittelbar vor der Extrusion durch die Düse wird das relativ hochviskose polymere Material in eine sich drehende Schraube mit verstellbarer Steigung zugeführt, welche das Material durch die Düse drückt.

[0034] Wie hierin verwendet, bezieht sich der Begriff "Koextrusion" auf das Extrusionsverfahren von zwei oder mehr Materialien durch eine einzelne Düse mit zwei oder mehr Öffnungen, welche so angeordnet sind, dass die Extrudate verschmelzen und vor dem Abkühlen, d.h. Abschrecken, zu einer Verbundstruktur zusammengeschweißt werden. Eine Koextrusion kann beim Folienblasen, bei der freien Folienextrusion und bei Extrusionsbeschichtungsverfahren angewendet werden.

[0035] Wie hierin verwendet, bezieht sich der Ausdruck "Maschinenrichtung", hierin als "MD" abgekürzt, auf eine Richtung „entlang der Länge“ der Folie, d.h. auf die Richtung der Folie, in welcher die Folie während der Extrusion oder Beschichtung gebildet wird.

[0036] Wie hierin verwendet, bezieht sich der Ausdruck "Querrichtung", hierin als "CD" abgekürzt, auf eine Richtung quer zur Folie, senkrecht zur Maschinen- oder Longitudinalrichtung.

[0037] Elastizität kann durch die "bleibende Verformung" der Folie beschrieben werden. Die bleibende Verformung ist das Gegenteil von Elastizität. Eine Folie wird bis zu einem bestimmten Punkt gedehnt und anschließend zur originalen Position entspannt und dann wiederum gedehnt. Der Punkt, an dem das elastische Material beginnt, eine Kraft auszuüben (das bedeutet, eine Kraftmesswert ungleich 0 zeigt) wird als die prozentuale bleibende Verformung bezeichnet.

[0038] Der Begriff "dehnbar" wird hierin in Bezug auf ein beliebiges Material verwendet, welches sich bei Anwendung einer beeinflussenden Kraft mindestens um 60 Prozent verlängert (das bedeutet, auf eine gedehnte beeinflusste Länge, welche mindestens 160 Prozent der entspannten, nicht beeinflussten Länge beträgt) und welches mindestens 55 Prozent der Elongation bei Entspannung der dehnenden, verlängernden Kraft regeneriert.

[0039] Wie hierin verwendet, beziehen sich die Begriffe "rückformen" und "Rückformung" auf eine Kontraktion eines gedehnten Materials bei Beendigung einer beeinflussenden Kraft nach dem Dehnen des Materials durch Anwendung der beeinflussenden Kraft. Folglich wird eine Probe an einer Zugtestmaschine mit einer Messlängeneinstellung von 50 mm mit 250 mm/min auf 100% ihrer originalen Länge gezogen. Die Probe wird dann bei dieser Elongation für 30 sek gehalten. Die Probe wird dann mit der gleichen Geschwindigkeit auf die originale Messlänge von 50 mm entlastet. Nach einem Halt für 60 sek wird die Probe erneut gezogen, um den Punkt zu bestimmen, an welchem sie erneut eine Kraft ausübt. Die prozentuale Rückformung (Durchschnitt von 5 Messungen) wird erhalten durch anfängliches Messen der prozentualen Elongation oder der prozentualen bleibenden Verformung. Dies wird erhalten durch Messen des Abstands zu der Stelle, an der der zweite Belastungszyklus beginnt, eine Kraftanzeige von nicht 0 zu zeigen. Dieser Abstand ist die prozentuale bleibende Verformung oder prozentuale Elongation, wobei:

prozentuale Elongation = (verlängerte Länge-original Länge)/originale Länge × 100/1.

[0040] Die prozentuale Rückformung wird dann berechnet als:

prozentuale Rückformung = (100 – prozentuale Elongation).

[0041] Der hierin verwendete Begriff "gute Elastizität" wird verwendet, um Folien mit ≥ 80 Prozent Rückformung in der CD und $\geq 60\%$ Rückformung in der MD zu beschreiben.

[0042] Wie hierin verwendet, bezieht sich der Begriff "nicht elastisch" auf ein beliebiges Material, welches nicht in die obige Definition von "elastisch" oder "dehnbar" fällt.

[0043] Wie hierin verwendet, umfasst der Begriff "weniger elastisch" "nicht elastisch" und ein beliebiges Material, auf welches als Gegenteil eines "elastischen Materials" Bezug genommen wird.

[0044] Der hierin verwendete Begriff "elastisches Material" bezieht sich auf Folien, Streifen, Beschichtungen, Bandagen, Netze, Bahnen, Bänder, Platten ebenso wie auf die hierin offenbarten "elastischen Verbundmaterialien", solange sie nicht speziell als zum Stand der Technik gehörend unterschieden werden.

[0045] Der hierin verwendete Begriff "Gegenstand" bezieht sich auf erzeugte Verbundgegenstände, welche hierin offenbarten elastischen Folien umfassen. Gegenstände umfassen Einwegsäuglingspflegegegenstände und Inkontinenzpflegegegenstände für Erwachsene wie etwa Inkontinenzkleidung, Trainingshöschen („trainings pants“) und Windeln. Der Begriff umfasst auch Verpackungen oder Folien, welche zum Verpacken oder Einpacken von Nahrungsmitteln wie etwa Fleisch, Gemüse und kommerzielle Güter verwendet werden. Ebenso sind Kombinationen von Tablettts, Schalen oder anderen Behältern umfasst, die durch solche elastischen Folien bedeckt, verschweißt oder geschützt sind.

[0046] Der hierin verwendete Begriff "Struktur" ist definiert als eine Polymerzusammensetzung, welche einem Formverfahren, Folien-, Faser- oder Schaumbildungsverfahren unterzogen wurde.

[0047] Der hierin verwendete Begriff "Fabrikationsgegenstand" wird als eine Polymerzusammensetzung in Form eines fertigen Gegenstands definiert, welcher direkt aus der Polymerzusammensetzung gebildet werden kann oder welcher aus einem Zwischenprodukt gebildet werden kann, welches eine der hierin beschriebenen Folien umfasst.

[0048] Der hierin verwendete Begriff "Folie" ist so definiert, dass eine Dicke von weniger als oder gleich 12 mil vorliegt.

[0049] Der hierin verwendete Begriff "Platte bzw. dünne Schicht" ist so definiert, dass eine Dicke von mehr als 12 mil vorliegt.

[0050] Der hierin verwendete Begriff "im Wesentlichen statistisch" (in dem im Wesentlichen statistischen Interpolymer, umfassend Polymereinheiten, welche abgeleitet sind von Ethylen oder einem oder mehreren α -Olefinmonomeren oder Kombinationen davon, mit einem oder mehreren aromatischen Vinylmonomeren oder aliphatischen oder cycloaliphatischen Vinyl- oder Vinylidenmonomeren oder Kombinationen davon) bedeutet, dass die Verteilung der Monomere des Interpolymers durch das Statistikmodell von Bernoulli beschrieben werden kann oder durch ein Statistikmodell erster oder zweiter Ordnung nach Markovian, wie es von J. C. Randall in „Polymer Sequence Determination, Carbon-13 NMR Method“, Academic Press, New York, 1977, S. 71–78 beschrieben wird. Bevorzugt enthalten im Wesentlichen statistische Interpolymere nicht mehr als 15 Prozent der Gesamtmenge des aromatischen Vinylmonomers in Blocks von aromatischen Vinylmonomeren mit mehr als drei Einheiten. Mehr bevorzugt ist das Interpolymer nicht durch einen hohen Grad entweder an Isotaktizität oder Syndiotaktizität gekennzeichnet. Dies bedeutet, dass im Kohlenstoff-¹³-NMR-Spektrum des im Wesentlichen statistischen Interpolymers die Peakflächen, welche den Hauptketten-Methylen- und Methinkohlenstoffen entsprechen, welche entweder zweiwertige mesonische Sequenzen oder zweiwertige racemischen Sequenzen darstellen, 75 Prozent der Gesamtpeakfläche der Hauptketten-Methylen- und Methinkohlenstoffe nicht übersteigen sollten.

[0051] Die vorliegende Erfindung stellt elastische Folien bereit, hergestellt aus mindestens einem im Wesentlichen statistischen Interpolymer, umfassend Polymereinheiten, welche abgeleitet sind von Ethylen oder einem oder mehreren α -Olefinmonomeren oder Kombinationen davon mit bestimmten Mengen von einem oder mehreren aromatischen Vinylmonomeren oder aliphatischen oder cycloaliphatischen Vinyl- oder Vinylidenmonomeren oder Kombinationen davon. Die vorliegende Erfindung stellt auch elastische Folien bereit, hergestellt

aus Gemischen der im Wesentlichen statistischen Interpolymere mit einem oder mehreren anderen Polymerbestandteilen, welche einen breiten Bereich an Zusammensetzungen umfassen. Der andere Polymerbestandteil des Gemischs kann umfassen, ist aber nicht beschränkt auf ein oder mehrere technische Thermoplasten, ein α -Olefinhomopolymer oder -interpolymer, ein thermoplastisches Olefin, ein Styrol-Blockcopolymer, ein Styrol-Homo- oder Copolymer, ein Elastomer, ein duroplastisches Polymer oder ein Vinylhalogenpolymer.

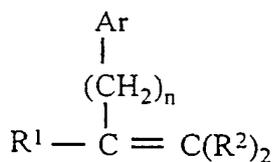
Die im Wesentlichen statistischen Interpolymere

[0052] Die bei der Herstellung der erfindungsgemäßen elastischen Folien verwendeten Interpolymere umfassen Interpolymere, welche hergestellt werden durch Polymerisation von Ethylen oder einem oder mehreren α -Olefinen oder Kombinationen davon mit einem oder mehreren aromatischen Vinylmonomeren oder einem oder mehreren aliphatischen oder cycloaliphatischen Vinyl- oder Vinylidenmonomeren oder Kombinationen davon und optional anderen polymerisierbaren Monomeren.

[0053] Geeignete α -Olefine umfassen beispielsweise α -Olefine, welche 3–20, bevorzugt 3–12, mehr bevorzugt 3–8 Kohlenstoffatome enthalten. Besonders geeignet sind Ethylen, Propylen, 1-Buten, 4-Methyl-1-penten, 1-Hexen oder 1-Octen oder Ethylen in Kombination mit einem oder mehreren von Propylen, 1-Buten, 4-Methyl-1-penten, 1-Hexen oder 1-Octen. Diese α -Olefine enthalten keinen aromatischen Anteil.

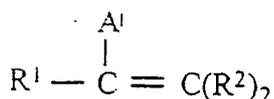
[0054] Andere optionale polymerisierbare ethylenisch ungesättigte Monomere (Monomer) umfassen Olefine mit gespanntem Ring wie etwa Norbornen und mit C_{1-10} -Alkyl oder C_{6-10} -Aryl substituierte Norbornene, wobei ein beispielhaftes Interpolymer Ethylen/Styrol/Norbornen ist.

[0055] Geeignete aromatische Vinylmonomere, welche zur Herstellung der Interpolymere verwendet werden können, umfassen beispielsweise diejenigen, welche durch die folgende Formel dargestellt werden:



worin R^1 ausgewählt ist aus der Gruppe von Resten bestehend aus Wasserstoff und Alkylresten mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, bevorzugt Wasserstoff oder Methyl; jedes R^2 jeweils unabhängig ausgewählt ist aus der Gruppe von Resten, bestehend aus Wasserstoff und Alkylresten mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, bevorzugt Wasserstoff oder Methyl; Ar eine Phenylgruppe ist oder eine Phenygruppe, substituiert mit 1 bis 5 Substituenten ist, welche ausgewählt sind aus der Gruppe bestehend aus Halogen, C_{1-4} -Alkyl und C_{1-4} -Halogenalkyl; und n einen Wert von 0 bis 4, bevorzugt von 0 bis 2, am meisten bevorzugt 0 aufweist. Beispielhafte aromatische Vinylmonomere umfassen Styrol, Vinyltoluol, α -Methylstyrol, t-Butylstyrol, Chlorstyrol, einschließlich aller Isomere dieser Verbindungen. Besonders geeignete solcher Monomere umfassen Styrol und mit Niederalkyl oder Halogen substituierte Derivate davon. Bevorzugte Monomere umfassen Styrol, α -Methylstyrol, die mit Niederalkyl(C_1 - C_4) oder einem Phenylring substituierten Derivate von Styrol, wie etwa beispielsweise Ortho-, Meta- und Paramethylstyrol, die am Ring halogenierten Styrole, Paravinyltoluol oder Gemische davon. Ein mehr bevorzugtes aromatisches Vinylmonomer ist Styrol.

[0056] Mit dem Begriff "aliphatische oder cycloaliphatische Vinyl- oder Vinylidenverbindungen" sind additionspolymerisierbare Vinyl- oder Vinylidenmonomere gemeint, entsprechend der Formel:



worin A^1 ein sterisch voluminöser, aliphatischer oder cycloaliphatischer Substituent mit bis zu 20 Kohlenstoffen ist, R^1 ausgewählt ist aus der Gruppe von Resten bestehend aus Wasserstoff und Alkylresten mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, bevorzugt Wasserstoff oder Methyl; jedes R^2 jeweils unabhängig ausgewählt ist aus der Gruppe der Reste bestehend aus Wasserstoff und Alkylresten mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, bevorzugt Wasserstoff oder Methyl; oder alternativ R^1 und A^1 zusammen ein Ringsystem bilden. Bevorzugte aliphatische oder cycloaliphatische Vinyl- oder Vinylidenverbindungen sind Monomere, bei welchen eines der Kohlenstoffatome, welches ethylenisch ungesättigt ist, tertiär oder quartär substituiert ist. Beispiele für solche Substituenten umfassen cyclische aliphatische Gruppen wie etwa Cyclohexyl, Cyclohexenyl, Cyclooctenyl oder Ringalkyl- oder -aryls substituierte Derivate davon, tert-Butyl, Norbornyl. Am meisten bevorzugte aliphatische oder cycloaliphatische

tische Vinyl- oder Vinylidenverbindungen sind die verschiedenen isomeren Vinyl-ringsubstituierten Derivate von Cyclohexen und substituierten Cyclohexenen und 5-Ethyliden-2-norbomen. Besonders geeignet sind 1-, 3- und 4-Vinylcyclohexen.

[0057] Die im Wesentlichen statistischen Interpolymere können durch übliches Propfen, Hydrieren, Funktionalisieren oder andere Reaktionen, welche Fachleuten gut bekannt sind, modifiziert werden. Die Polymere können leicht sulfoniert oder chloriert werden, um funktionalisierte Derivate durch etablierte Verfahren bereitzustellen.

[0058] Obwohl es kein Erfordernis für elastisches Verhalten ist, können die im Wesentlichen statistischen Interpolymere oder die elastischen Folien, welche mindestens eine Schicht der im Wesentlichen statistischen Interpolymere umfassen, auch durch verschiedene kettenverlängernde oder vernetzende Verfahren modifiziert werden, einschließlich, aber nicht beschränkt auf Vernetzungssysteme, welche auf Peroxid, Silan, Schwefel, Strahlung oder Azid basieren. Eine vollständige Beschreibung der verschiedenen Härtungstechnologien ist in dem parallel anhängigen US-Patentanmeldungen mit den Nummern 08/921,641 und 08/921,642 beschrieben, welche beide am 27. August 1997 eingereicht wurden.

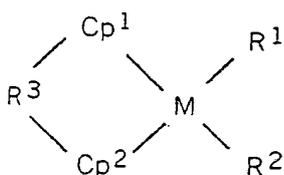
[0059] Es können duale Härtungssysteme, bei welchen eine Kombination von Wärme, feuchter Aushärtung und Strahlungsschritten verwendet wird, wirksam angewandt werden. Duale Härtungssysteme sind offenbart und beansprucht in der US-Patentanmeldung mit der Seriennr. 536,022, eingereicht am 29. September 1995 im Namen von K. L. Walton und S. V. Karande. Beispielsweise kann es wünschenswert sein, Peroxidvernetzungsmittel in Verbindung mit Silanvernetzungsmitteln zu verwenden, Peroxidvernetzungsmittel in Verbindung mit Strahlung, schwefelhaltige Vernetzungsmittel in Verbindung mit Silanvernetzungsmitteln usw.

[0060] Die im Wesentlichen statistischen Interpolymere können auch durch verschiedene andere Vernetzungsverfahren modifiziert werden, einschließlich, aber nicht beschränkt auf das Einbringen einer Dienkomponente als ein Termonomer bei der Herstellung und der nachfolgenden Vernetzung durch die zuvor genannten Verfahren und weitere Verfahren einschließlich einer Vulkanisierung über die Vinylgruppe unter Verwendung von Schwefel beispielsweise als Vernetzungsmittel.

[0061] Die im Wesentlichen statistischen Interpolymere können hergestellt werden, wie es in EP-A-0 416 815 von James C. Stevens et al. und im US-Patent 5,703,187 von Francis J. Timmers beschrieben wird. Solch ein Herstellungsverfahren der im Wesentlichen statistischen Interpolymere umfasst die Polymerisierung eines Gemischs aus polymerisierbaren Monomeren in Gegenwart von einem oder mehreren Metallocenkatalysatoren oder Katalysatoren mit eingeschränkter Geometrie in Kombination mit unterschiedlichen Cokatalysatoren. Bevorzugte Betriebsbedingungen für solche Polymerisierungsreaktionen sind Drücke von atmosphärischem Druck bis zu 3000 Atmosphären und Temperaturen von -30°C bis 200°C . Polymerisationen und eine Entfernung von nicht umgesetztem Monomer bei Temperaturen oberhalb der Autopolymerisationstemperatur der jeweiligen Monomere kann zur Bildung von gewissen Mengen an Homopolymerpolymerisationsprodukten führen, resultierend aus der Polymerisation freier Radikale.

[0062] Beispiele für geeignete Katalysatoren und Verfahren zur Herstellung der im Wesentlichen statistischen Interpolymere sind in der US-Anmeldung mit der Seriennr. 702,475, eingereicht am 20 Mai 1991 (EP-A-514 828) offenbart, ebenso wie in den US-Patenten 5,055,438; 5,057,475; 5,096,867; 5,064,802; 5,132,380; 5,189,192; 5,321,106; 5,347,024; 5,350,723; 5,374,696; 5,399,635; 5,470,993; 5,703,187; und 5,721,185.

[0063] Die im Wesentlichen statistischen α -Olefin/aromatische Vinyl-Interpolymere können auch hergestellt werden durch die Verfahren, welche in JP 07/278230 beschrieben werden unter Verwendung von Verbindungen, welche durch die allgemeine Formel dargestellt werden



worin Cp^1 und Cp^2 Cyclopentadienylgruppen, Indenylgruppen, Fluorenylgruppen oder Substituenten dieser Gruppen sind, jeweils unabhängig voneinander; R^1 und R^2 Wasserstoffatome, Halogenatome, Kohlenwasserstoffgruppen mit Kohlenstoffzahlen von 1–12, Alkoxygruppen oder Aryloxygruppen sind, jeweils unabhängig voneinander; M ein Metall der Gruppe IV ist, bevorzugt Zr oder Hf, am meisten bevorzugt Zr; und R^3 eine Alkylengruppe oder Silandiylgruppe ist, verwendet zur Vernetzung von Cp^1 und Cp^2 .

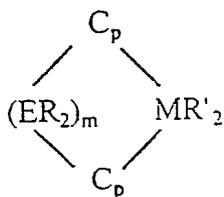
[0064] Die im Wesentlichen statistischen α -Olefin/aromatische Vinyl-Interpolymere können auch durch die Verfahren hergestellt werden, welche in WO 95/32095 von John G. Bradfute et al. (W. R. Grace & Co.); in WO 94/00500 von R. B. Pannell (Exxon Chemical Patents, Inc.); und in *Plastics Technology*, S. 25 (September 1992) beschrieben werden.

[0065] Auch geeignet sind die im Wesentlichen statistischen Interpolymere, welche mindestens eine α -Olefin/aromatisches Vinyl/aromatisches Vinyl/ α -Olefin-Tetrade umfassen, offenbart in der US-Anmeldung Nr. 08/708,809, welche am 4.

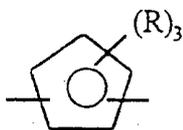
[0066] September 1996 eingereicht wurde und in WO 98/09999, beide von Francis J. Timmers et al. Diese Interpolymere enthalten zusätzliche Signale in ihrem Kohlenstoff-13-NMR-Spektrum, mit Intensitäten, welche größer als das Dreifache des „Peak to Peak“-Rauschens sind. Diese Signale treten im Bereich der chemischen Verschiebung 43.70-44.25 ppm und 38.0-38.5 ppm auf. Insbesondere werden Haupt-Peaks bei 44.1, 43.9 und 38.2 ppm beobachtet. Ein Protonentest-NMR-Experiment zeigt, dass die Signale in der chemischen Verschiebungsregion 43.70-44.25 ppm Methinkohlenstoffe sind und die Signale in der Region 38.0-38.5 ppm Methylenkohlenstoffe sind.

[0067] Es wird angenommen, dass diese neuen Signale von Sequenzen herrühren, welche die zwei Kopf-Schwanz-Insertionen des aromatischen Vinylmonomers betreffen, vorausgegangen und gefolgt von mindestens einer α -Olefininsertion, beispielsweise einer Ethylen/Styrol/Styrol/Ethylen-Tetrade, worin die Styrolmonomerinsertionen der Tetraden ausschließlich in der Art und Weise 1,2 (Kopf-Schwanz) auftreten. Ein Fachmann versteht, dass bei solchen Tetraden, welche ein anderes aromatisches Vinylmonomer als Styrol und ein anderes α -Olefin als Ethylen betreffen, die Ethylen/aromatisches Vinylmonomer/aromatisches Vinylmonomer/Ethylen-Tetrade ähnliche Kohlenstoff-13-NMR-Peaks ergeben wird, allerdings mit leicht unterschiedlichen chemischen Verschiebungen.

[0068] Diese Interpolymere können hergestellt werden durch Ausführung der Polymerisation bei Temperaturen von -30°C bis 250°C in Gegenwart solcher Katalysatoren, welche dargestellt werden durch die Formel



worin jedes Cp jeweils unabhängig bei jedem Vorkommen eine substituierte Cyclopentadienylgruppe ist, π -gebunden an M; E C oder Si ist; M ein Metall der Gruppe IV ist, bevorzugt Zr oder Hf, am meisten bevorzugt Zr; jedes R jeweils unabhängig bei jedem Auftreten H, Kohlenwasserstoff, Silahydrocarbyl oder Hydrocarbylsilyl mit bis zu 30, bevorzugt von 1 bis 20, mehr bevorzugt von 1 bis 10 Kohlenstoff- oder Siliciumatomen ist; jedes R' jeweils unabhängig bei jedem Auftreten H, Halogen, Kohlenwasserstoff, Hydrocarbyloxy, Silahydrocarbyl, Hydrocarbylsilyl mit bis zu 30, bevorzugt von 1–20, mehr bevorzugt von 1–10 Kohlenstoff- oder Siliciumatomen ist, oder 2 R'-Gruppen zusammen ein mit C_{1-10} -Kohlenwasserstoff substituiertes 1,3-Butadien ist; m 1 oder 2 ist und optional, aber bevorzugt in Gegenwart eines aktivierenden Cokatalysators. Besonders geeignete substituierte Cyclopentadienylgruppen umfassen diejenigen, welche veranschaulicht werden durch die Formel



worin jedes R jeweils unabhängig bei jedem Vorkommen H, Hydrocarbyl, Silahydrocarbyl oder Hydrocarbylsilyl mit bis zu 30, bevorzugt von 1 bis 20, mehr bevorzugt von 1 bis 10 Kohlenstoff- oder Siliciumatomen ist, oder 2 R-Gruppen zusammen ein zweiwertiges Derivat einer solchen Gruppe bilden. Bevorzugt ist R jeweils unabhängig bei jedem Vorkommen (einschließlich aller Isomere, wo es zweckmäßig ist) Wasserstoff, Methyl, Ethyl, Propyl, Butyl, Pentyl, Hexyl, Benzyl, Phenyl oder Silyl, oder (wo es zweckmäßig ist) sind zwei solcher R-Gruppen miteinander verbunden unter Bildung eines kondensierten Ringsystems wie etwa Indenyl, Fluorenyl, Tetrahydroindenyl, Tetrahydrofluorenyl oder Octahydrofluorenyl.

[0069] Besonders bevorzugte Katalysatoren umfassen beispielsweise racemisches (Dimethylsilandiyl)-bis-(2-methyl-4-phenylindenyl)zirkoniumdichlorid, racemisches (Dimethylsilandiyl)-bis-(2-methyl-4-phe-

nylindenyl))zirkonium-1,4-diphenyl-1,3-butadien, racemisches (Dimethylsilandiyl)-bis-(2-methyl-4-phenylindenyl))zirkoniumdi-C1-4-alkyl, racemisches (Dimethylsilandiyl)-bis-(2-methyl-4-phenylindenyl))zirkonium-di-C1-4-alkoxid oder eine beliebige Kombination davon.

[0070] Es ist auch möglich, die folgenden auf Titan basierenden Katalysatoren mit eingeschränkter Geometrie [N-(1,1-Dimethylethyl)-1,1-dimethyl-1-[(1,2,3,4,5-η)-1,5,6,7-tetrahydro-s-indacen-1-yl]silanaminato(2-)-N]titanidimethyl; (1-Indenyl)(tertbutylamido)-dimethyl-silantitandimethyl; ((3-tert-Butyl)(1,2,3,4,5-η)-1-indenyl)(tertbutylamido)dimethylsilantitandimethyl und ((3-Isopropyl)(1,2,3,4,5-η)-1-indenyl)(tertbutylamido)dimethylsilantitandimethyl, oder eine beliebige Kombination davon zu verwenden.

[0071] Weitere präparative Verfahren für die in der vorliegenden Erfindung verwendeten Interpolymere sind in der Literatur beschrieben worden. Longo und Grassi (Makromol. Chem., Volume 191, S. 2387–2396 [1990] und D'Anniello et al. (Journal of Applied Polymer Science, Volume 58, S. 1701–1706 [1995]) berichteten über die Verwendung eines katalytischen Systems, basierend auf Methylalumoxan (MAO) und Cyclopentadienyltitantrichlorid (CpTiCl₃) für die Herstellung eines Ethylen-Styrolcopolymeren. Xu und Lin (Polymer Preprints, Am. Chem. Soc., Div. Polym. Chem.) Volume 35, S. 686, 687 [1994] haben von einer Copolymerisation unter Verwendung eines MgCl₂/TiCl₄/NdCl₃/Al(iBu)₃-Katalysators zum Erhalten von statistischen Copolymeren von Styrol und Propylen berichtet. Lu et al. (Journal of Applied Polymer Science, Volume 53, S. 1453–1460 [1994]) haben die Copolymerisation von Ethylen und Styrol unter Verwendung eines TiCh/NdCl₃/MgCl₂/Al(Et)₃-Katalysators beschrieben. Sernetz und Mulhaupt (Macromol. Chem. Phys., V. 197, S. 1071–1083, 1997) haben den Einfluss von Polymerisationsbedingungen auf die Copolymerisation von Styrol mit Ethylen unter Verwendung von Me₂Si(Me₄Cp)(N-tert-butyl)TiCl₂/Methylaluminoxan-Ziegler-Natta-Katalysatoren beschrieben. Copolymere von Ethylen und Styrol, hergestellt durch verbrückte Metallocenkatalysatoren sind von Arai, Toshiaki und Suzuki (Polymer Preprints, Am. Chem. Soc., Div. Polym. Chem. Volume 38, S. 349, 350 [1997]) und im US-Patent Nr. 5,652,315, erteilt für Mitsui Toatsu Chemicals, Inc. beschrieben worden. Die Produktion von α-Olefin/aromatischen Vinylmonomer-Interpolymeren wie etwa Propylen/Styrol und Buten/Styrol wird beschrieben im US-Patent Nr. 5,244,996, erteilt für Mitsui Petrochemical Industries Ltd. oder im US-Patent Nr. 5,652,315, ebenso erteilt für Mitsui Petrochemical Industries, Ltd., oder wird in DE 197 11 339 A1 von Denki Kagaku Kogyo KK offenbart.

[0072] Bei der Herstellung des im Wesentlichen statistischen Interpolymers kann aufgrund von Homopolymerisation des aromatischen Vinylmonomers bei erhöhten Temperaturen ein Anteil an ataktischem aromatischem Vinylhomopolymer gebildet werden. Das Vorliegen von aromatischem Vinylhomopolymer ist im Allgemeinen für die Zwecke der vorliegenden Erfindung nicht nachteilig und kann toleriert werden. Das aromatische Vinylhomopolymer kann, falls erwünscht, von dem Interpolymer getrennt werden, durch Extraktionsverfahren wie etwa eine selektive Präzipitation aus Lösung mit einem Nichtlösungsmittel entweder für das Interpolymer oder das aromatische Vinylhomopolymer. Für den Zweck der vorliegenden Erfindung ist es bevorzugt, dass nicht mehr als 30 Gew.%, bevorzugt weniger als 20 Gew.% bezogen auf das Gesamtgewicht der Interpolymere an ataktischem aromatischem Vinylhomopolymer vorliegt.

Zusammensetzungsgemische umfassend die im Wesentlichen statistischen Interpolymere

[0073] Die vorliegende Erfindung stellt auch Folien bereit, welche aus Gemischen der im Wesentlichen statistischen Interpolymere mit einem oder mehreren anderen Polymerbestandteilen, welche einen breiten Bereich von Zusammensetzungen umfassen, hergestellt werden.

[0074] Der andere Polymerbestandteil des Gemischs kann umfassen, ist aber nicht beschränkt auf ein oder mehrere technische Thermoplasten, ein α-Olefinhomopolymer oder -interpolymer, ein thermoplastisches Olefin, ein Styrol-Blockcopolymer, ein Styrol-Copolymer, ein Elastomer, ein duroplastisches Polymer oder ein Vinylhalogenidpolymer.

Technische Thermoplasten

[0075] In der dritten Auflage der "Encyclopedia of Science and Technology" von Kirk-Othmer (Volume 9, S. 118–137) werden technische Kunststoffe als thermoplastische Harze definiert, pur oder unverstärkt oder gefüllt, welche oberhalb von 100°C und unterhalb von 0°C eine Formbeständigkeit und die meisten mechanischen Eigenschaften beibehalten. Die Begriffe "technische Kunststoffe" und "technische Thermoplasten" können austauschbar verwendet werden. Technische Thermoplasten umfassen Acetal- und Acrylharze, Polyamide (beispielsweise Nylon-6, Nylon 6,6), Polyimide, Polyetherimide, Cellulosefasern bzw. Cellulosics, Polyester, Poly(arylat), aromatische Polyester, Poly(carbonat), Poly(butylen) und Polybutylen- und Polyethylenterephthala-

te, Flüssigkristallpolymere und ausgewählte Polyolefine, Gemische oder Legierungen der vorhergehenden Harze und einige Beispiele von anderen Harztypen (einschließlich beispielsweise Polyether, Hochtemperaturpolyolefine wie etwa Polycyclopentane, deren Copolymere und Polymethylpentan).

[0076] Besondere bevorzugte technische Thermoplasten sind die Acrylharze, welche sich aus der Peroxid-katalysierten radikalischen Polymerisation von Methylmethacrylat (MMA) herleiten. Wie von H. Luke in "Modern Plastics Encyclopedia", 1989, Seiten 20–21 beschrieben wird, wird MMA normalerweise mit anderen Acrylaten wie etwa Methyl- oder Ethylacrylat copolymerisiert unter Verwendung von vier Grundpolymerisationsverfahren, Masse, Suspension, Emulsion und Lösung. Acryle können auch mit verschiedenen Bestandteilen modifiziert werden, einschließlich Butadien, Vinyl und Butylacrylat.

Die α -Olefinhomopolymere und -interpolymere

[0077] Die α -Olefinhomopolymere und -interpolymere umfassen Polypropylen, Propylen/ C_4 - C_{20} - α -Olefin-Copolymere, Polyethylen und Ethylen/ C_3 - C_{20} - α -Olefin-Copolymere, die Interpolymere können entweder heterogene Ethylen/ α -Olefininterpolymere oder homogene Ethylen/ α -Olefininterpolymere sein, einschließlich der im Wesentlichen linearen Ethylen/ α -Olefininterpolymere. Ebenso umfasst sind aliphatische α -Olefine mit 2 bis 20 Kohlenstoffatomen und mit polaren Gruppen. Geeignete aliphatische α -Olefinmonomere, welche polare Gruppen in das Polymer einbringen, umfassen beispielsweise ethylenisch ungesättigte Nitrile wie etwa Acrylonitril, Methacrylonitril, Ethacrylonitril usw.; ethylenisch ungesättigte Anhydride wie etwa Maleinsäureanhydrid; ethylenisch ungesättigte Amide wie etwa Acrylamid, Methacrylamid usw.; ethylenisch ungesättigte Carbonsäuren (sowohl mono- als bifunktionell) wie etwa Acrylsäure und Methacrylsäure usw.; Ester (insbesondere Nieder-, beispielsweise C_1 - C_6 -Alkylester) von ethylenisch ungesättigten Carbonsäuren wie etwa Methylmethacrylat, Ethylacrylat, Hydroxyethylacrylat, N-Butylacrylat oder Methacrylat, 2-Ethyl-Hexylacrylat oder Ethylen-Vinylacetat-Copolymere usw.; ethylenisch ungesättigte Dicarbonsäureimide wie etwa N-Alkyl oder N-Arylmaleimide wie etwa N-Phenylmaleimid usw. Bevorzugte solcher Monomere, welche polare Gruppen enthalten, sind Acrylsäure, Vinylacetat, Maleinsäureanhydrid und Acrylonitril. Halogengruppen, welche in den Polymeren von aliphatischen α -Olefinmonomeren enthalten sein können, umfassen Fluor, Chlor und Brom; bevorzugt sind solche Polymere chlorierte Polyethylene (CPEs).

[0078] Heterogene Interpolymere werden von den homogenen Interpolymeren dadurch unterschieden, dass bei den letzteren im Wesentlichen alle der Interpolymermoleküle das gleiche Ethylen/Comonomerverhältnis innerhalb des Interpolymers aufweisen, wohingegen heterogene Interpolymere diejenigen sind, bei welchen die Interpolymermoleküle nicht das gleiche Ethylen/Comonomerverhältnis aufweisen. Der hierin verwendete Begriff "breite Zusammensetzungsverteilung" beschreibt die Comonomerverteilung bei heterogenen Interpolymeren und bedeutet, dass die heterogenen Interpolymere eine "lineare" Fraktion aufweisen und dass die heterogenen Interpolymere mehrere Schmelzpunkte mittels DSC aufweisen (das bedeutet, mindestens zwei verschiedene Schmelzpeaks besitzen). Die heterogenen Interpolymere besitzen in 10% (Gewicht) oder mehr einen Verzweigungsgrad von weniger als oder gleich 2 Methyl/1000 Kohlenstoffe, bevorzugt in mehr als 15% (Gewicht) und insbesondere in mehr als 20% (Gewicht). Die heterogenen Interpolymere besitzen auch in 25% oder weniger (Gewicht) einen Verzweigungsgrad von gleich oder mehr als 25 Methyl/1000 Kohlenstoffe, bevorzugt in weniger als 15% (Gewicht) und insbesondere in weniger als 10% (Gewicht).

[0079] Die für die Herstellung des heterogenen Bestandteils der vorliegenden Erfindung geeigneten Ziegler-Katalysatoren sind normalerweise geträgerte Katalysatoren des Ziegler-Typs. Beispiele für solche Zusammensetzungen sind diejenigen, welche abgeleitet sind von Organomagnesiumverbindungen, Alkylhalogeniden oder Aluminiumhalogeniden oder Chlorwasserstoff und einer Übergangsmetallverbindung. Beispiele für solche Katalysatoren werden in den US-Patenten Nr. 4,314,912 (Lowery, Jr. et al.), 4,547,475 (Glass et al.) und 4,612,300 (Coleman, III) beschrieben.

[0080] Geeignete Katalysatormaterialien können auch von inerten Oxidträgern und Übergangsmetallverbindungen abgeleitet sein. Beispiele für solche Zusammensetzungen werden im US-Patent Nr. 5,420,090 (Spencer et al.) beschrieben.

[0081] Der heterogene Polymerbestandteil kann ein α -Olefinhomopolymer, bevorzugt Polyethylen oder Polypropylen oder bevorzugt ein Interpolymer von Ethylen mit mindestens einem C_3 - C_{20} - α -Olefin oder C_4 - C_{18} -Dienen oder Kombinationen davon sein. Heterogene Copolymere von Ethylen und Propylen, 1-Buten, 1-Hexen, 4-Methyl-1-penten und 1-Octen sind besonders bevorzugt.

[0082] Das relativ neue Einsetzen von auf Metallocen basierenden Katalysatoren für eine Ethylen/ α -Olefin-

polymerisation hat zur Herstellung von neuen Ethyleninterpolymeren geführt, welche als homogene Interpolymere bekannt sind.

[0083] Die homogenen Interpolymere, welche zur Bildung der hierin beschriebenen Zusammensetzungen verwendbar sind, besitzen homogene Verzweigungsverteilungen. Das bedeutet, die Polymere sind diejenigen, bei welchen das Comonomer statistisch innerhalb eines bestimmten Interpolymermoleküls verteilt ist und worin im Wesentlichen alle der Interpolymermoleküle innerhalb dieses Interpolymers das gleiche Ethylen/Comonomerverhältnis aufweisen. Die Homogenität der Polymere wird normalerweise beschrieben durch den SCBDI ("Short Chain Branch Distribution Index") oder den CDBI ("Composition Distribution Branch Index") und ist definiert als Gewichtsprozent der Polymermoleküle mit einem Comonomergehalt innerhalb von 50% des mittleren molaren Comonomergesamtgehalts. Der CDBI eines Polymers wird leicht berechnet aus Daten, welche mit im Stand der Technik bekannten Verfahren erhalten werden, wie etwa beispielsweise einer „Temperature Rising Elution Fractionation“ (hierin als "TREF" abgekürzt) welche beispielsweise von Wild et al. im Journal of Polymer Science, Poly. Phys. Ed., Vol. 20, S. 441 (1982), im US-Patent 4,798,081 (Hazlitt et al.) beschrieben wird, oder wie es im US-Patent 5,008,204 (Stehling) beschrieben ist. Das Verfahren zur Berechnung des CDBI wird im US-Patent 5,322,728 (Davey et al.) und im US-Patent 5,246,783 (Spenadel et al.) oder im US-Patent 5,089,321 (Chum et al.) beschrieben. Der SCBDI oder CDBI der in der vorliegenden Erfindung verwendeten homogenen Interpolymere ist bevorzugt größer als 30%, insbesondere größer als 50%.

[0084] Den in dieser Erfindung verwendeten homogenen Interpolymeren fehlt im Wesentlichen eine messbare "hochdichte" Fraktion, wie durch die TREF-Technik gemessen wird (das bedeutet, dass die homogenen Ethylen/ α -Olefininterpolymere keine Polymerfraktion enthalten mit einem Verzweigungsgrad von weniger als oder gleich 2 Methyl/1000 Kohlenstoffe). Die homogenen Interpolymere enthalten auch keine stark kurzkettenverzweigte Fraktion (das bedeutet, sie enthalten keine Polymerfraktion mit einem Verzweigungsgrad von gleich oder mehr als 30 Methyl/1000 Kohlenstoffe).

[0085] Die im Wesentlichen linearen Ethylen/ α -Olefinpolymere und -interpolymere der vorliegenden Erfindung sind auch homogene Interpolymere, werden hierin aber weiter definiert wie im US-Patent Nr. 5,272,236 (Lai et al.) und im US-Patent Nr. 5,272,872. Solche Polymere sind jedoch einzigartig aufgrund ihrer ausgezeichneten Verarbeitbarkeit und ihren einzigartigen rheologischen Eigenschaften und ihrer hohen Schmelzplastizität und Beständigkeit gegenüber Schmelzbruch. Diese Polymere können erfolgreich in einem kontinuierlichen Polymerisationsverfahren hergestellt werden unter Verwendung der Metallocenkatalysatorsysteme mit eingeschränkter Geometrie.

[0086] Der Begriff "im Wesentlichen lineares" Ethylen/ α -Olefininterpolymer bedeutet, dass das Polymergerüst mit 0,01 Langkettenverzweigungen/1000 Kohlenstoffe bis 3 Langkettenverzweigungen/1000 Kohlenstoffe substituiert ist, mehr bevorzugt 0,01 Langkettenverzweigungen/1000 Kohlenstoffe bis 1 Langkettenverzweigung/1000 Kohlenstoffe und insbesondere von 0,05 Langkettenverzweigungen/1000 Kohlenstoffe bis 1 Langkettenverzweigung/1000 Kohlenstoffe.

[0087] Eine Langkettenverzweigung ist hierin definiert als eine Kettenlänge von mindestens einem Kohlenstoff mehr als 2 Kohlenstoffe weniger als die Gesamtzahl der Kohlenstoffe in dem Comonomer, beispielsweise ist die Langkettenverzweigung eines Ethylen/Octen im Wesentlichen linearen Ethyleninterpolymers mindestens sieben (7) Kohlenstoffe lang (das bedeutet, 8 Kohlenstoffe weniger 2 gleich 6 Kohlenstoffe plus 1 ergibt 7 Kohlenstoffe Langkettenverzweigungslänge). Die Langkettenverzweigung kann so lang sein wie die gleiche Länge des Polymergerüsts. Eine Langkettenverzweigung wird bestimmt durch Verwendung von ^{13}C -Kernspinresonanz (NMR)-Spektroskopie und wird quantifiziert unter Verwendung des Verfahrens von Randall (Rev. Macromol. Chem. Phys., C29 (2&3), S. 285–297). Eine Langkettenverzweigung muss natürlich von Kurzkettenverzweigungen unterschieden werden, welche sich ausschließlich durch das Einbringen des Comonomers ergeben, so beträgt beispielsweise die Kurzkettenverzweigung eines im Wesentlichen linearen Ethylen/Octenpolymers sechs Kohlenstoffe in der Länge, während die Langkettenverzweigung für das gleiche Polymer mindestens sieben Kohlenstoffe Länge beträgt.

[0088] Die Katalysatoren, welche verwendet werden, um die homogenen Interpolymere zur Verwendung als Mischungsbestandteile in der vorliegenden Erfindung herzustellen, sind Metallocenkatalysatoren. Diese Metallocenkatalysatoren umfassen die Bis(cyclopentadienyl)-Katalysatorsysteme und die Mono(cyclopentadienyl)-Katalysatorsysteme mit eingeschränkter Geometrie (welche verwendet werden, um die im Wesentlichen linearen Ethylen/ α -Olefinpolymere herzustellen). Solche Metallkomplexe mit eingeschränkter Geometrie und Verfahren für ihre Herstellung werden in der US-Anmeldung mit der Seriennummer 545,403, eingereicht am 3. Juli 1990 (EP-A-416 815); in der US-Anmeldung mit der Seriennummer 547,718, eingereicht am 3. Juli 1990

(EP-A-468 651); in der US- Anmeldung mit der Seriennummer 702,475, eingereicht am 20. Mai 1991 (EP-A-514 828); ebenso wie in US-A-5,055,438, US-A-5,057,475, US-A-5,096,867, US-A-5,064,802, US-A-5,132,380, US-A-5,721,185, US-A-5,374,696 und US-A-5,470,993 offenbart. Für die hierin enthaltenen Lehren sind die zuvor genannten anhängigen US-Patentanmeldungen, die erteilten US-Patente und die veröffentlichten europäischen Patentanmeldungen hierin in ihrer Gesamtheit durch Referenz enthalten.

[0089] In EP-A-418 044, veröffentlicht am 20. März 1991 (äquivalent zur US-Seriennummer 07/758,654) und in der US-Seriennummer 07/758,660 sind bestimmte kationische Derivate der vorhergehenden Katalysatoren mit eingeschränkter Geometrie offenbart und beansprucht, welche als Olefinpolymerisationskatalysatoren höchst nützlich sind. In der US-Seriennummer 720,041, eingereicht am 24. Juni 1991, sind bestimmte Reaktionsprodukte der vorhergehenden Katalysatoren mit eingeschränkter Geometrie mit verschiedenen Boranen offenbart, und ein Verfahren zu deren Herstellung gelehrt und beansprucht. In US-A-5,453,410 wurden Kombinationen von kationischen Katalysatoren mit eingeschränkter Geometrie mit einem Alumoxan als geeignete Olefinpolymerisationskatalysatoren offenbart. Für die darin enthaltenen Lehren sind die zuvor genannten anhängigen US-Patentanmeldungen, die erteilten US-Patente und die veröffentlichten europäischen Patentanmeldungen hierin in ihrer Gesamtheit durch Referenz enthalten.

[0090] Der homogene Polymerbestandteil kann ein α -Olefinhomopolymer sein, bevorzugt Polyethylen oder Polypropylen, oder bevorzugt ein Interpolymer von Ethylen mit mindestens einem C_3 - C_{20} - α -Olefin oder C_4 - C_{18} -Diene oder Kombinationen davon.

[0091] Homogene Copolymere von Ethylen und Propylen, 1-Buten, 1-Hexen, 4-Methyl-1-penten und 1-Octen sind besonders bevorzugt.

Thermoplastische Olefine

[0092] Thermoplastische Olefine (TPOs) werden im Allgemeinen aus Propylenhomo- oder -copolymeren hergestellt oder aus Gemischen eines elastomeren Materials wie etwa Ethylen/Propylen-Gummi (EPM) oder Ethylen/Propylen dienmonomerterpolymer (EPDM) und einem steiferen Material wie etwa einem isotaktischen Polypropylen. Andere Materialien oder Bestandteile können in Abhängigkeit von der Anwendung in die Formulierung zugegeben werden, einschließlich Öl, Füllstoffe und Vernetzungsmittel. Im Allgemeinen sind TPOs charakterisiert durch ein Gleichgewicht an Steifheit (Modul) und Tieftemperaturschlagzähigkeit („Impact“), einen guten chemischen Widerstand und breiten Verwendungstemperaturen. Aufgrund von Merkmalen wie diesen werden TPOs in vielen Anwendungen verwendet, einschließlich Kraftfahrzeugverkleidungen und Armaturenbrettern und ebenso in Leitungen und Kabeln.

[0093] Das Polypropylen liegt im Allgemeinen in der isotaktischen Form von Homopolymerpolypropylen vor, obwohl andere Formen von Propylen auch verwendet werden können (beispielsweise syndiotaktisches oder ataktisches). Schlagfeste Polypropylen copolymere (beispielsweise diejenigen, worin ein zweiter Copolymerisationsschritt zur Umsetzung von Ethylen mit dem Propylen verwendet wird) und statistische Copolymere (ebenso reaktormodifiziert und normalerweise mit 1,5 bis 7% Ethylen, copolymerisiert mit dem Propylen), kann jedoch bei den hierin offenbarten TPO-Formulierungen auch verwendet werden. TPOs im Reaktor können auch verwendet werden als Zusammensetzungsgemische der vorliegenden Erfindung. Eine vollständige Erörterung von verschiedenen Polypropylenpolymeren ist in "Modern Plastics Encyclopedia/89", Ausgabe Mitte Oktober 1988, Volume 65, Nr. 11, S. 86–92 enthalten. Das Molekulargewicht des Polypropylens zur Verwendung in der vorliegenden Erfindung wird zweckmäßigerweise angegeben unter Verwendung einer Schmelzflussmessung gemäß ASTM D-1238, Bedingung 230°C/2,16 kg (früher als "Bedingung (L)" bekannt und ebenso als I2). Der Schmelzindex ist umgekehrt proportional zum Molekulargewicht des Polymers. Je höher das Molekulargewicht, desto niedriger ist folglich der Schmelzindex, obwohl das Verhältnis nicht linear ist. Der Schmelzindex des hierin verwendbaren Propylens beträgt im Allgemeinen von 0,1 Gramm/10 Minuten (g/10 min) bis 35 g/10 min, bevorzugt von 0,5 g/10 min bis 25 g/10 min und insbesondere von 1 g/10 min bis 20 g/10 min.

Styrol-Block-Copolymere

[0094] Ebenso umfasst sind Block-Copolymere mit ungesättigten Gummi-Monomereinheiten einschließlich, aber nicht beschränkt auf Styrol-Butadien (SB), Styrol-Isopren (SI), Styrol-Butadien-Styrol (SBS), Styrol-Isopren-Styrol (SIS), α -Methylstyrol-Butadien- α -Methylstyrol und α -Methylstyrol-Isopren- α -Methylstyrol.

[0095] Der Styrol-Anteil des Blockcopolymeren ist bevorzugt ein Polymer oder Interpolymer von Styrol und sei-

nen Analoga und Homologen einschließlich α -Methylstyrol und ringssubstituierter Styrole, insbesondere ring-methylierter Styrole. Die bevorzugten Styrolverbindungen sind Styrol und α -Methylstyrol, und Styrol ist besonders bevorzugt.

[0096] Block-Copolymere mit ungesättigten Gummi-Monomereinheiten können Homopolymere von Butadien oder Isopren umfassen oder sie können Copolymere von einem oder beiden dieser zwei Diene mit einer kleineren Menge eines Styrol-Monomers umfassen.

[0097] Bevorzugte Block-Copolymere mit gesättigten Gummi-Monomereinheiten umfassen mindestens ein Segment einer Styrol-Einheit und mindestens ein Segment eines Ethylen-Buten- oder Ethylen-Propylen-Copolymers. Bevorzugte Beispiele solcher Block-Copolymere mit gesättigten Gummi-Monomereinheiten umfassen Styrol/Ethylen-Buten-Copolymere, Styrol/Ethylen-Propylen-Copolymere, Styrol/Ethylen-Buten/Styrol (SEBS)-Copolymere, Styrol/Ethylen-Propylen/Styrol (SEPS)-Copolymere.

Styrol-Homo- und Copolymere

[0098] Außer den Block-Copolymeren gibt es die verschiedenen Styrolhomopolymere und -copolymere und Gummi-modifizierte Styrole. Diese umfassen Polystyrol, schlagzähes Polystyrol und Copolymere wie etwa Acrylonitril-Butadien-Styrol (ABS)-Polymere, Styrol-Acrylonitril (SAN).

Elastomere

[0099] Die Elastomere umfassen, sind aber nicht beschränkt auf Gummis wie etwa Polyisopren, Polybutadien, natürliche Gummis, Ethylen/Propylen-Gummis, Ethylen/Propylen (EPDM)-Gummis, Styrol/Butadien-Gummis, thermoplastische Polyurethane.

Duroplastische Polymere

[0100] Die duroplastischen Polymere umfassen, sind aber nicht beschränkt auf Epoxide, Vinylesterharze, Polyurethane und Phenolharze.

Vinylhalogenidpolymere

[0101] Vinylhalogenidhomopolymere oder -copolymere sind eine Gruppe von Harzen, welche als Baustein die Vinylstruktur $\text{CH}_2=\text{CXY}$ verwenden, wobei X ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus F, Cl, Br und I, und Y ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus F, Cl, Br, I und H.

[0102] Der Vinylhalogenidpolymerbestandteil der erfindungsgemäßen Gemische umfasst, ist aber nicht beschränkt auf Homopolymere und Copolymere von Vinylhalogeniden mit copolymerisierbaren Monomeren wie etwa α -Olefinen, einschließlich, aber nicht beschränkt auf Ethylen, Propylen, Vinylester von organischen Säuren mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen, beispielsweise Vinylacetat, Vinylstearat usw; Vinylchlorid, Vinylidenchlorid, symmetrisches Dichlorethylen; Acrylonitril, Methacrylonitril; Alkylacrylatester, bei welchen die Alkylgruppe 1 bis 8 Kohlenstoffatome enthält, beispielsweise Methylacrylat und Butylacrylat; die entsprechenden Alkylmethacrylatester; die Alkylester von zweibasischen organischen Säuren, bei welchen die Alkylgruppe 1 bis 8 Kohlenstoffatome enthält, beispielsweise Dibutylfumarat, Diethylmaleat usw.

[0103] Bevorzugt sind die Vinylhalogenidpolymere Homopolymere oder Copolymere von Vinylchlorid oder Vinylidenchlorid. Poly(vinylchlorid)polymere (PVC) können aufgrund ihrer Festigkeit weiterhin in zwei Haupttypen eingeteilt werden. Diese sind "Hart"-PVC und "Weich"-PVC. Weich-PVC wird von Hart-PVC primär durch das Vorliegen einer gewissen Menge an Weichmachern im Harz unterschieden. Weich-PVC besitzt normalerweise eine verbesserte Bearbeitbarkeit, eine geringere Zugfestigkeit und eine höhere Elongation als Hart-PVC.

[0104] Von den Vinylidenchloridhomopolymeren und -copolymeren (PVDC) werden normalerweise die Copolymere mit Vinylchlorid, Acrylaten oder Nitrilen kommerziell verwendet und sind am meisten bevorzugt. Die Wahl des Comonomers beeinflusst die Eigenschaften des resultierenden Polymers wesentlich. Vielleicht die bemerkenswertesten Eigenschaften der unterschiedlichen PVDCs sind ihre geringe Permeabilität gegenüber Gasen und Flüssigkeiten, Barriereigenschaften und die chemische Beständigkeit.

[0105] Ebenso in der Familie von Vinylhalogenidpolymeren zur Verwendung als Gemischbestandteile der vorliegenden Erfindung sind die chlorierten Derivate von PVC enthalten, normalerweise hergestellt durch

Nachchlorierung des Grundharzes und als chloriertes PVC (CPVC) bekannt. Obwohl CPVC auf PVC basiert und einige der charakteristischen Eigenschaften teilt, ist CPVC ein einzigartiges Polymer mit einem viel höheren Schmelztemperaturbereich (410 bis 450°C) und einer höheren Glasübergangstemperatur (239 bis 275°F) als PVC.

[0106] Die Zusammensetzungen, welche mindestens ein im Wesentlichen statistisches Interpolymer umfassen, welche zur Herstellung der erfindungsgemäßen elastischen Folien verwendet werden, können zusätzlich dazu, dass sie optional ein oder mehrere andere Polymerbestandteile umfassen, optional ein oder mehrere Zusätze umfassen.

Andere Zusätze

[0107] Zusätze wie etwa Antioxidationsmittel (beispielsweise gehinderte Phenole wie etwa beispielsweise Irganox® 1010 und Phosphite, beispielsweise Irgafos™ 168 (beides sind eingetragene Warenzeichen der Ciba-Geigy Corporation, NY und werden geliefert durch die Ciba-Geigy Corporation, NY), u.v. Stabilisatoren (einschließlich Tinuvin™ 328 und Chimassorb™ 944, beides sind eingetragene Warenzeichen der Ciba-Geigy Corporation, NY und werden geliefert durch die Ciba-Geigy Corporation, NY), Klebezusätze (beispielsweise Polyisobutylen), Gleitmittel (wie etwa Erucamid oder Stearamid oder Kombinationen davon), Antihafmittel, Farbstoffe, Pigmente können ebenso in den Interpolymergemischen enthalten sein, welche zur Herstellung der erfindungsgemäßen elastischen Folien verwendet werden, in dem Ausmaß, dass die elastischen Eigenschaften der Folien, welche die im Wesentlichen statistischen Interpolymere umfassen, nicht stören. Verarbeitungshilfsmittel, welche hierin ebenfalls als Weichmacher bezeichnet werden, werden optional bereitgestellt zur Verringerung der Viskosität einer Zusammensetzung und umfassen die Phthalate wie etwa Dioctylphthalat und Diisobutylphthalat, natürliche Fette wie etwa Lanolin und Paraffin, Naphthenerdöl und Duftöle, erhalten aus der Erdölverarbeitung, und flüssige Harze aus Kolophonium oder Erdölrohmaterial. Geeignete Modifikationsmittel, welche hierin als die Weichmacher verwendet werden können, umfassen mindestens einen Weichmacher ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Phthalatester, Trimellitatester, Benzoate, Adipatester, Epoxiverbindungen, Phosphatester (Triaryl, Trialkyl, gemischte Alkylarylphosphate), Glutarate und Öle. Besonders geeignete Phthalatester umfassen beispielsweise Dialkyl-C4-C18-Phthalatester wie etwa Diethyl, Dibutylphthalat, Diisobutylphthalat, Butyl-2-ethylhexylphthalat, Dioctylphthalat, Diisooctylphthalat, Dinonylphthalat, Diisononylphthalat, Didecylphthalat, Diisodecylphthalat, Diundecylphthalat, gemischte aliphatische Ester wie etwa Heptylnonylphthalat, Di(n-hexyl, n-octyl, n-decyl)phthalat (P610), Di(n-octyl, n-decyl)phthalat (P810) und aromatische Phthalatester wie etwa Diphenylphthalatester oder gemischte aliphatisch-aromatische Ester wie etwa Benzylbutylphthalat oder eine beliebige Kombination davon.

[0108] Beispielhafte Klassen von Ölen, welche als Verarbeitungshilfsmittel verwendbar sind, umfassen weißes Mineralöl (wie etwa Kaydol™-Öl (erhältlich von Witco) und Shellflex™ 371-Naphthenerdöl (erhältlich von der Shell Oil Company). Ein anderes geeignetes Öl ist Tuflo™-Öl (erhältlich von Lyondell).

[0109] Beschlagverhinderungsmittel oder antistatische Mittel können zu den Folien und Platten der vorliegenden Erfindung zugegeben werden, um die Oberflächenleitfähigkeit zu erhöhen und eine gesteigerte Verhinderung der Wassertropfenbildung und der Anziehung von Staub und Schmutz auf der Folienoberfläche bereitzustellen. Diese Beschlagverhinderungsmittel umfassen, sind aber nicht beschränkt auf Glycerolmonostearat, Glycerolmonooleat, Laurindiphthalamide, ethoxylierte Amine, ethoxylierte Ester und andere in der Industrie bekannte Zusätze.

[0110] Es können auch Klebrigmacher zu den Polymerzusammensetzungen, welche zur Herstellung der erfindungsgemäßen Folien oder Platten verwendet werden, zugegeben werden, um die Tg zu verändern und folglich das verfügbare Fenster der Anwendungstemperatur der Folie zu erweitern. Beispiele für die unterschiedlichen Klassen von Klebrigmachern umfassen, sind aber nicht beschränkt auf aliphatische Harze, Polyterpenharze, hydrierte Harze, gemischte aliphatisch-aromatische Harze, Styrol/α-Methylenstyrolharze, reines Monomerkohlenwasserstoffharz, hydriertes reines Monomerkohlenwasserstoffharz, modifizierte Styrol-Copolymere, reine aromatische Monomer-Copolymere und hydrierte aliphatische Kohlenwasserstoffharze. Beispielhafte aliphatische Harze umfassen diejenigen, welche unter den Handelsbezeichnungen Escorez™, Piccotac™, Mercuris™, Wingtack™, Hi-Rez™, Quintone™, Tackirol™ usw. erhältlich sind. Beispielhafte Polyterpenharze umfassen diejenigen, welche unter den Handelsbezeichnungen Nirez™, Piccolyte™, Wingtack™, Zonarez™ usw. erhältlich sind. Beispielhafte hydrierte Harze umfassen diejenigen, welche unter den Handelsbezeichnungen Escorez™, Arkon™, Clearon™ usw. erhältlich sind. Beispielhafte gemischte aliphatisch-aromatische Harze umfassen diejenigen, welche unter den Handelsbezeichnungen Escorez™, Regalite™, Hercules™, AR™, Imprez™, Norsolene™ M, Marukarez™, Arkon™ M, Quintone™, Wingtack™ usw. erhältlich sind.

Eine besonders bevorzugte Klasse an Klebrigmachern umfasst die von Hercules erhältlichen Styrol/ α -Methylenstyrolklebrigmacher. Besonders geeignete Klassen von Klebrigmachern umfassen Wingtack™ 86 und Hercotac™ 1149, Eastman H-130 und Styrol/ α -Methylstyrolklebrigmacher.

[0111] Ebenso sind als potenzieller Bestandteil der in der vorliegenden Erfindung verwendeten Polymerzusammensetzungen verschiedene organische und anorganische Füllstoffe umfasst, deren Identität von der Art der Anwendung abhängt, für welche die elastische Folie verwendet werden soll. Repräsentative Beispiele für solche Füllstoffe umfassen organische und anorganische Fasern wie etwa diejenigen, welche aus Asbest, Bor, Graphit, Keramik, Glas, Metallen (wie etwa Edelstahl) oder Polymeren (wie etwa Aramidfasern) hergestellt sind, Talk, Ruß, Kohlenstofffasern, Calciumcarbonat, Aluminiumoxidtrihydrat, Glasfasern, Marmorstaub, Zementstaub, Ton, Feldspat, Silicamaterial oder Glas, Quarzstaub, Aluminiumoxid, Magnesiumoxid, Magnesiumhydroxid, Antimonoxid, Zinkoxid, Bariumsulfat, Aluminiumsilikat, Calciumsilikat, Titandioxid, Titanate, Aluminiumnitrid, B_2O_3 , Nickelpulver oder Kalk.

[0112] Andere repräsentative organische oder anorganische Faser- oder Mineral-Füllstoffe umfassen Carbonate wie etwa Barium-, Calcium- oder Magnesiumcarbonat; Fluoride wie etwa Calcium- oder Natriumaluminiumfluorid; Hydroxide wie etwa Aluminiumhydroxid; Metalle wie etwa Aluminium, Bronze, Blei oder Zink; Oxide wie etwa Aluminium-, Antimon-, Magnesium- oder Zinkoxid oder Silicium- oder Titandioxid; Silikate wie etwa Asbest, Glimmer, Ton (Kaolin oder calciniertes Kaolin), Calciumsilikat, Feldspat, Glas (gemahlen oder Flockenglas oder Hohlglasskugeln oder Mikrokugeln oder Beads, Faserkristall oder Filamente), Nephelin, Perlit, Pyrophyllit, Talk oder Wollastonit; Sulfate wie etwa Barium- oder Calciumsulfat; Metallsulfide; Cellulose, etwa in Form von Holz oder Schalenmehl; Calciumterephthalat und Flüssigkristalle. Gemische von mehr als einem solcher Füllstoffe können ebenso verwendet werden.

[0113] Diese Zusätze werden in funktionell äquivalenten Mengen verwendet, welche Fachleuten bekannt sind. Beispielsweise ist die Menge an verwendetem Antioxidationsmittel die Menge, welche verhindert, dass das Polymer oder Polymergemisch bei den während der Lagerung und Endverwendung der Polymere verwendeten Temperaturen und Umgebungsbedingungen eine Oxidation durchläuft. Solch eine Menge an Oxidationsmittel liegt normalerweise im Bereich von 0,01 bis 10, bevorzugt von 0,05 bis 5, mehr bevorzugt von 0,1 bis 2 Gew.%, bezogen auf das Gewicht des Polymers oder Polymergemischs. Ebenso sind die Mengen von einem beliebigen der anderen aufgezählten Zusätze die funktionell äquivalenten Mengen wie etwa die Menge, um das Polymer oder Polymergemisch nicht haftend zu machen, die gewünschten Ergebnisse zu erzielen, die gewünschte Farbe durch den Farbstoff oder das Pigment bereitzustellen. Solche Zusätze können entsprechend im Bereich von 0,05 bis 50, bevorzugt von 0,1 bis 35, mehr bevorzugt von 0,2 bis 20 Gew.%, bezogen auf das Gewicht des Polymer oder Polymergemischs verwendet werden. Wenn ein Verarbeitungshilfsstoff verwendet wird, liegt er in der Zusammensetzung der Erfindung in einer Menge von mindestens 5% vor. Der Verarbeitungshilfsstoff ist normalerweise in einer Menge von nicht mehr als 60, bevorzugt nicht mehr als 30 und am meisten bevorzugt nicht mehr als 20 Gew.% vorhanden.

Herstellung der Gemische, welche die im Wesentlichen statistischen Interpolymere umfassen

[0114] Die gemischten Polymerzusammensetzungen, welche zur Herstellung der erfindungsgemäßen elastischen Folien verwendet werden, können durch ein beliebiges geeignetes Verfahren hergestellt werden, einschließlich Trockenmischen der einzelnen Bestandteile und nachfolgendes Schmelzmischen oder Schmelzvermischen in einem Haake-Drehmoment-Rheometer oder durch Trockenmischen ohne Schmelzmischen, gefolgt von einer Teilfertigung, entweder direkt oder in dem Extruder oder der Mühle, welche zur Herstellung des fertigen Gegenstands (beispielsweise ein Kraftfahrzeugteil) verwendet wird, oder durch Pre-Schmelzmischen in einem getrennten Extruder oder einer Mühle (beispielsweise einem Banbury-Mischer), oder durch Lösungsmischen oder durch Formpressen oder durch ein Kalanderverfahren.

Herstellung der elastischen Folien der vorliegenden Erfindung

[0115] Die erfindungsgemäßen elastischen Folien können unter Verwendung von konventionellen Fabrikationsverfahren hergestellt werden, beispielsweise durch eine einfache Blasenextrusion, eine einfache Gussextrusion/Folienextrusion, Koextrusion, Laminierung usw. Konventionelle einfache Blasenextrusionsverfahren (auch als Warmblasfolienverfahren bekannt) werden beispielsweise in "The Encyclopedia of Chemical Technology", Kirk-Othmer, 3. Auflage, John Wiley & Sons, New York, 1981, Vol. 16, S. 416–417 und Vol. 18, S. 191–192 beschrieben.

[0116] Spritzgieß-, Warmform-, Extrusionsbeschichtungs-, Profilextrusions- und Folienextrusionsverfahren

werden beispielsweise in "Plastics Materials and Processes", Seymour S. Schwartz und Sidney H. Goodman, Van Nostrand Reinhold Company, New York, 1982, S. 527–563, S. 632–647 und S. 596–602 beschrieben. Die Streifen, Bänder und Bahnen der vorliegenden Erfindung können durch das primäre Extrusionsverfahren selbst oder durch bekannte Längstrennungs-, Schneide- oder Stanzverfahren nach der Extrusion hergestellt werden. Eine Profilextrusion ist ein Beispiel eines primären Extrusionsverfahrens, welches besonders geeignet ist für die Herstellung von Bandagen, Bändern, Bahnen.

[0117] Die erfindungsgemäßen elastischen Folien können auch durch ein beliebiges, im Fachgebiet bekanntes Verfahren durchlässig oder "atmungsaktiv" gemacht werden, einschließlich Schlitzten, Längsschneiden, Mikroperforieren, Mischen mit Fasern oder Schäumen oder dgl. und Kombinationen davon. Beispiele für solche Verfahren umfassen das US-Patent 3,156,242 von Crowe, Jr., das US-Patent 3,881,489 von Hartwell, das US-Patent 3,989,867 von Sisson und das US-Patent 5,085,654 von Buell, die Offenbarungen von all diesen sind hierin durch Referenz enthalten.

[0118] Die Folienstruktur und das zur Verwendung bei der Praxis dieser Erfindung ausgewählte, im Wesentlichen statistische Interpolymer hängt zum großen Teil von den Einzelheiten der Anwendung ab, beispielsweise sind die bevorzugten Eigenschaften einer in einer Schrumpfverpackung verwendeten Folie unterschiedlich von den bevorzugten Eigenschaften einer Folie, welche in einer elastischen Umverpackung verwendet wird. Die vorliegenden elastischen Folienstrukturen können Einschichtfolien oder eine Mehrschichtfolie sein, bei welchen ein oder mehrere Folienschichten mindestens ein im Wesentlichen statistisches Interpolymer umfassen.

[0119] Bei denjenigen Ausführungsformen, bei welchen die Folienstruktur mehrschichtig ist, kann sie von einer beliebigen konventionellen Struktur sein, beispielsweise 2-lagig, 3-lagig, 4-lagig, 5-lagig, 6-lagig, 7-lagig usw. Die Struktur besitzt im Allgemeinen eine ungerade Anzahl von Schichten und die Folienschicht(en), welche ein im Wesentlichen statistisches Interpolymer umfasst, kann eine der äußeren Schichten oder beide äußere Schichten oder eine oder mehrere Kernschichten oder beides sein. Diejenige Schicht(en), welche aus einem anderen Polymer als einem im Wesentlichen statistischen Interpolymer hergestellt ist, kann ein beliebiges geeignetes Material umfassen, welches im Allgemeinen kompatibel ist mit einer Folie, hergestellt aus einem im Wesentlichen statistischen Interpolymer, beispielsweise ein oder mehrere konventionelle LDPE, LLDPE, ULDPE, EVA, EAA. Zusätze wie die oben im Hinblick auf Monoschichtfolien beschriebenen Zusätze können auch bei diesen Mehrschichtfolien verwendet werden, und diese Zusätze können in eine beliebige der Folienschichten wie gewünscht eingebracht werden, beispielsweise Klebrigmacher und Gleitmittel in eine oder beide der äußeren Schichten, Füllstoffe in eine oder mehrere der Kernschichten usw.

[0120] Andere Mehrschichtfolienherstellungsverfahren für Nahrungsverpackungsanwendungen werden in "Packaging Foods With Plastics" von Wilmer A. Jenkins und James P. Harrington (1991), S. 19–27, und in "Co-extrusion Basics" von Thomas I. Butler, „Film Extrusion Manual: Process, Materials, Properties“, S. 31–80 (veröffentlicht von TAPPI Press (1992)) beschrieben.

[0121] Andere wünschenswerten Eigenschaften der in dieser Erfindung verwendeten Kunststofffolien umfassen in Abhängigkeit von der Art der äußeren Folienschichten in der Struktur eine leichte Fabrikation und eine gute Sauerstoffpermeabilität (insbesondere im Hinblick auf Folien, welche aus solchen Copolymeren wie EVA und EAA hergestellt sind), Sauerstoffundurchlässigkeit (insbesondere im Hinblick auf Folien, welche eine Sauerstoffbarriere enthalten wie etwa SARAN oder Ethylvinylalkohol), Schlagzähigkeit bzw. „Dart Impact“, Durchstoßfestigkeit, Zerreißfestigkeit, einen niedrigen Modul, Reißfestigkeit, Schrumpffähigkeit, eine hohe Klarheit und eine geringe Wirkung auf die Geschmacks- und Geruchseigenschaften der verpackten Nahrung.

[0122] Die Kunststofffolien dieser Erfindung sind gut geeignet für dehnbare Umverpackungen von verschiedenen frischen Nahrungsmitteln, beispielsweise für den Einzelhandel geschnittenes rotes Fleisch, Fisch, Geflügel, Gemüse, Früchte, Käse und andere Nahrungsprodukte, welche für eine Einzelhandelsauslage bestimmt sind. Diese Folien werden bevorzugt als nicht schrumpfende Folien hergestellt (beispielsweise ohne biaxiale Orientierung, welche durch eine „Double-Bubble“-Verarbeitung induziert wird), mit einer guten Dehnung, elastischem Rückformvermögen und Warmklebeeigenschaften, und sie können für Großhändler und Einzelhändler in jeder konventionellen Form verfügbar gemacht werden, beispielsweise als Lagerrollen, und können auf jeder konventionellen Ausrüstung verwendet werden.

[0123] Andere Kunststofffolien dieser Erfindung können als Schrumpfverpackungen, Sichtverpackungen und vakuumartige Verpackungen für Nahrungsmittel verwendet werden. Die Folien, welche die Schrumpfverpackungen umfassen, sind normalerweise biaxial orientiert, weisen eine geringe Schrumpfspannung auf, besitzen eine Dichte von größer 0,89 g/cm³ und sind normalerweise 0,6 bis 2 mil dick. Die elastischen Folienstruk-

turen, welche bei der Vakuumsichtverpackung verwendet werden, können mehrschichtig sein, normalerweise sind sie 5 bis 12 mil dick.

[0124] Die erfindungsgemäßen elastischen Folien können auch durch Extrusionsverfahren und am meisten bevorzugt durch im Fachgebiet bekannte Koextrusionsverfahren gebildet werden. Nach der Koextrusion wird die Folie zu einem festen Zustand abgekühlt, beispielsweise durch Kaskadenwasser oder Abschrecken durch gekühlte Luft. Bei einigen Strukturen kann eine Vorläuferfilmschicht oder -schichten durch Extrusion gebildet werden, wobei zusätzliche Schichten danach darauf extrusionsgeschichtet werden, um Mehrschichtfolien zu bilden. Es können auch zwei Mehrschichtschläuche gebildet werden, wobei einer der Schläuche danach auf den anderen geschichtet oder laminiert wird.

Herstellung der erzeugten Verbundstoffgegenstände, welche die erfindungsgemäße elastische Folie umfassen

[0125] Fabrikationsgegenstände, welche unter Verwendung der hierin offenbarten neuen elastischen Folien hergestellt werden können, umfassen Verbundstofffabrikationsgegenstände (beispielsweise Einwegkontinenzkleidung und Windeln), welche ein oder mehrere elastische Bestandteile oder Anteile umfassen. Beispielsweise sind elastische Bestandteile gewöhnlich in Windeltaillenbandteilen vorhanden, um zu verhindern, dass die Windel abfällt und in Beinbandteilen, um das Auslaufen zu verhindern (wie im US-Patent 4,381,781 (Sciaraffa)) gezeigt. Oft fördert der elastische Bestandteil eine bessere Passform oder Verschlussysteme für eine gute Kombination von Komfort und Sicherheit. Die hierin offenbarten neuen elastischen Folien können auch Gewebeverbundstrukturen erzeugen, welche Elastizität mit Atemfähigkeit kombinieren, durch Verwendung eines Verfahrens, welches die elastische Folie durchlässig oder "atmungsaktiv" macht, wie von Lippert et al. Im US-Patent 4,861,652 vorgeschlagen und oben gezeigt.

[0126] Die hierin offenbarten neuen elastischen Folien können auch in verschiedenen Strukturen verwendet werden, wie im US-Patent 2,957,512 (Wade) beschrieben wird. Beispielsweise kann Schicht 50 der im US-Patent '512 beschriebenen Struktur (das bedeutet, der elastische Bestandteil) durch die neue elastische Folie ersetzt werden, insbesondere wenn aus flachen, plissierten, gekreppten usw. nicht elastischen Folien elastische oder halbelastische Strukturen gemacht werden. Das Anheften der neuen elastischen Folien an nicht elastische oder wenig elastische Folien kann durch Wärmeverbindung oder mit Klebemitteln durchgeführt werden. Gekräuselte oder elastische Verbundmaterialien können aus den neuen hierin beschriebenen elastischen Folien und nicht elastischen Bestandteilen hergestellt werden durch Falten des nicht elastischen Bestandteils (wie im US-Patent '512 beschrieben) vor dem Anheften, Vordehnen des elastischen Bestandteils vor dem Anheften oder Wärmeschrumpfen des elastischen Bestandteils nach dem Anheften.

[0127] Die hierin beschriebenen neuen elastischen Folien können auch verwendet werden, um andere neue Strukturen herzustellen. Beispielsweise offenbart das US-Patent 4,801,482 (Goggans) eine elastische Schicht, welche nun mit den hierin beschriebenen neuen Materialien gemacht werden kann.

[0128] Die hierin beschriebenen neuen elastischen Folien können auch verwendet werden, um einen luftdurchlässigen Teil oder luftdurchlässige elastische Verbundmaterialien herzustellen. Beispielsweise offenbart das US-Patent 5,085,654 (Buell) ein Beinband mit einem luftdurchlässigen Teil, einer luftdurchlässigen oberen Lage, einer luftdurchlässigen Rückenlage, elastischen Elementen, einem luftdurchlässigen Element und einem luftdurchlässigen Unterelement, wobei alle oder eine beliebige Kombination davon nun mit den hierin offenbarten elastischen Folien entweder in durchlässiger oder undurchlässiger Form hergestellt werden kann.

[0129] Die hierin offenbarten neuen elastischen Folien besitzen auch eine einstellbare Dehnbarkeit und Elastizität, welche durch spezielle Kombinationen von elastischen Folien und weniger elastischem Material erreicht werden kann, oder durch Einstellen der Interpolymerzusammensetzung, oder durch eine spezielle Kombination von verschiedenen, im Wesentlichen statistischen Interpolymeren, was eine Designflexibilität im Hinblick auf eine variable Dehnbarkeit oder Rückzugskraft im gleichen Kleidungsstück ermöglicht, wie beispielsweise im US-Patent 5,196,000 (Clear et al.) beschrieben wird.

[0130] Das US-Patent 5,037,416 (Allen et al.) beschreibt die Vorteile einer anliegenden oberen Schicht unter Verwendung von elastischen Bändern und einer elastischen Rückenschicht. Hierin beschriebene durchlässige neue elastische Folien können der Funktion der elastischen Bänder dienen und undurchlässige elastische Materialien dieser Erfindung können als elastische Rückenschicht fungieren oder offenbarte elastische Folien können in einer elastischen Verbundgewebeform verwendet werden.

[0131] Im US-Patent 4,981,747 (Morman) können die hierin offenbarten neuen elastischen Folien gegen elas-

tische Schichten ausgetauscht werden, um ein elastisches Verbundmaterial zu konstruieren, welches ein Material mit reversiblen Einschnürungen umfasst.

[0132] Es können auch elastische Tafeln, Elemente, Teile oder dgl. auch aus den hierin offenbarten neuen elastischen Folien hergestellt werden, und können beispielsweise als Teile, welche im US-Patent 4,940,464 (Van Gompel) beschrieben werden, verwendet werden. Die hierin beschriebenen neuen elastischen Folien können beispielsweise auch als elastische Verbundseitenverkleidungen (beispielsweise eine Schicht) oder als elastische Bänder verwendet werden.

Eigenschaften der erfindungsgemäßen elastischen Folie

[0133] Wenn die Elastizität der neuen Folien der vorliegenden Erfindung im Hinblick auf die Dicke des Materials variiert, werden Dicken von weniger als 22 mil, bevorzugt von 0,1 bis 20 mil und mehr bevorzugt von 0,4 mil bis 15 mil als innerhalb des erfindungsgemäßen Bereichs angesehen.

[0134] Die elastischen Folien der vorliegenden Erfindung besitzen ein Rückformvermögen in der CD von $\geq 80\%$, bevorzugt $\geq 90\%$, mehr bevorzugt $\geq 95\%$ und ein Rückformvermögen in der MD von $\geq 60\%$, bevorzugt $\geq 70\%$, mehr bevorzugt $\geq 75\%$.

[0135] Bei den hierin offenbarten neuen elastischen Folien kann der Schmelzindex des im Wesentlichen statistischen Interpolymers breit variieren, mit einem geringen Einfluss auf die Elastizität. Dies ermöglicht eine größere Designflexibilität der elastischen Verbundstoffe und fertigen Gegenstände, da die Festigkeit und Rückzugskraft der elastischen Folie unabhängig von der Elastizität verändert werden kann. Beispielsweise können die Zugfestigkeitseigenschaften einer elastischen Folie eher durch Veränderung des Schmelzindex des Polymers verändert werden (eine Abnahme des Schmelzindex erhöht die Zugfestigkeitseigenschaften) als durch Veränderung der Dicke der Folie, folglich wird eine bessere Optimierung der "Hand" (das bedeutet, Griffigkeit) eines elastischen Verbundstoffgewebes ermöglicht mit den gewünschten elastischen Leistung/Festigkeitsleistung des Verbundstoffgewebes. Der Schmelzindex der hierin offenbarten, im Wesentlichen statistischen Interpolymere ist traditionell beschränkt durch Anforderungen im Hinblick auf spezielle Extrusionsverfahren. Beispielsweise erfordern eine Extrusionsbeschichtung und Spritzgießverfahren normalerweise hohe Schmelzindices, um übermäßige Extrusionsdrücke und Polymerschere zu vermeiden, auch um adäquate Schmelzflusseigenschaften bereitzustellen, während Blasfolienverfahren im Allgemeinen geringere Schmelzindices erfordern, um eine adäquate Blasenstabilität zu erreichen.

Eigenschaften der Interpolymere und Zusammensetzungsgemische, welche zur Herstellung der erfindungsgemäßen elastischen Folien verwendet werden.

[0136] Die zur Herstellung der erfindungsgemäßen elastischen Folien verwendeten Polymerzusammensetzungen umfassen von 5 bis 100, bevorzugt von 75 bis 100, mehr bevorzugt von 90 bis 95 Gew.% (bezogen auf die vereinigten Gewichte dieses Bestandteils und des Polymerbestandteils, welcher ein anderer ist als das im Wesentlichen statistische Interpolymer) von einem oder mehreren Interpolymeren von Ethylen oder einem oder mehreren α -Olefinen oder Kombinationen davon, und ein oder mehrere aromatische Vinylmonomere oder ein oder mehrere aliphatische oder cycloaliphatische Vinyl- oder Vinylidenmonomere oder Kombinationen davon.

[0137] Es wurde herausgefunden, dass die elastischen Eigenschaften in den resultierenden Folien beobachtet werden, wenn diese im Wesentlichen statistischen Interpolymere von 10 bis 40, bevorzugt von 13 bis 33, mehr bevorzugt von 15 bis 29 Mol% von mindestens einem aromatischen Vinylmonomer oder aliphatischen oder cycloaliphatischen Vinyl- oder Vinylidenmonomer oder Kombinationen davon enthält, und von 60 bis 90, bevorzugt von 67 bis 87, mehr bevorzugt von 71 bis 85 Mol% Ethylen oder mindestens ein aliphatisches α -Olefin mit 3 bis 20 Kohlenstoffatomen oder Kombinationen davon.

[0138] Der Schmelzindex (I_2) des im Wesentlichen statistischen Interpolymers, welches zur Herstellung der erfindungsgemäßen elastischen Folien verwendet wird, beträgt 0,1 bis 1000, bevorzugt 0,5 bis 200, mehr bevorzugt 0,5 bis 100 g/10 min.

[0139] Die Molekulargewichtsverteilung (M_w/M_n) des im Wesentlichen statistischen Interpolymers, welches zur Herstellung der erfindungsgemäßen elastischen Folien verwendet wird, beträgt von 1,5 bis 20, bevorzugt von 1,8 bis 10, mehr bevorzugt von 2 bis 5.

[0140] Die Dichte des im Wesentlichen statistischen Interpolymers, welches zur Herstellung der erfindungsgemäßen elastischen Folien verwendet wird, ist größer als 0,930, bevorzugt von 0,930 bis 1,045, mehr bevorzugt von 0,930 bis 1,040, am meisten bevorzugt von 0,930 bis 1,030 g/cm³.

[0141] Die Polymerzusammensetzungen, welche zur Herstellung der elastischen Folien der vorliegenden Erfindung verwendet werden, können auch von 0 bis 50, bevorzugt von 0 bis 25, noch mehr bevorzugt 5 bis 10 Gew.% von mindestens einem Polymer umfassen, welches ein anderes ist als das im Wesentlichen statistische Interpolymer (bezogen auf die vereinigten Gewichte dieses Bestandteils und des im Wesentlichen statistischen Interpolymers), welches ein homogenes α -Olefinhomopolymer oder Interpolymer umfassen kann, umfassend Polypropylen, Propylen/C₄-C₂₀- α -Olefin-Copolymere, Polyethylen und Ethylen/C₃-C₂₀- α -Olefin-Copolymere umfassen kann, wobei die Interpolymere entweder heterogene Ethylen/ α -Olefininterpolymere sein können, bevorzugt ein heterogenes Ethylen/C₃-C₈- α -Olefininterpolymer, am meisten bevorzugt ein heterogenes Ethylen/1-Octeninterpolymer oder homogene Ethylen/ α -Olefininterpolymere, einschließlich der im Wesentlichen linearen Ethylen/ α -Olefininterpolymere, bevorzugt ein im Wesentlichen lineares Ethylen/ α -Olefininterpolymer, am meisten bevorzugt ein im Wesentlichen lineares Ethylen/C₃-C₈- α -Olefininterpolymer; oder ein heterogenes Ethylen/ α -Olefininterpolymer; oder ein thermoplastisches Olefin, bevorzugt ein Ethylen/Propylen-Gummi (EPM) oder ein Ethylen/Propylen-*di*enmonomereinterpolymer (EPDM) oder isotaktisches Polypropylen, am meisten bevorzugt isotaktisches Polypropylen; oder ein Styrol-Blockcopolymer, bevorzugt Styrol-Butadien (SB), Styrol-Isopren (SI), Styrol-Butadien-Styrol (SBS), Styrol-Isopren-Styrol (SIS) oder ein Styrol-Ethylen/Buten-Styrol (SEBS) Blockcopolymer, am meisten bevorzugt ein Styrol-Butadien-Styrol (SBS)-Copolymer; oder Styrol-Homopolymere oder Copolymere, bevorzugt Polystyrol, schlagzähes Polystyrol, Polyvinylchlorid, Copolymere von Styrol und mindestens einem von Acrylonitril, Methacrylonitril, Maleinsäureanhydrid oder α -Methylstyrol, am meisten bevorzugt Polystyrol, oder Elastomere, bevorzugt Polyisopren, Polybutadien, natürliche Gummis, Ethylen/Propylen-Gummis, Ethylen/Propylen-*di*en (EPDM)-Gummis, Styrol/Butadien-Gummis, thermoplastische Polyurethane, am meisten bevorzugt thermoplastische Polyurethane; oder duroplastische Polymere, bevorzugt Epoxide, Vinylesterharze, Polyurethane, Phenolharze, am meisten bevorzugt Polyurethane oder Vinylhalogenidhomopolymere und Copolymere, bevorzugt Homopolymere oder Copolymere von Vinylchlorid oder Vinylidenchlorid oder die chlorierten Derivate davon, am meisten bevorzugt Poly(vinylchlorid) und Poly(vinylidenchlorid); oder technische Thermoplasten, bevorzugt Poly(methylmethacrylat) (PMMA), Cellulosefasern bzw. Cellulosics, Nylon, Poly(ester), Poly(acetale); Poly(amide), Poly(arylat), aromatische Polyester, Poly(carbonate), Poly(butylen) und Polybutylen- und Polyethylenterephthalate, am meisten bevorzugt Poly(methylmethacrylat) (PMMA) und Poly(ester).

[0142] Die erfindungsgemäßen elastischen Folien können erfolgreich verwendet werden zum Verpacken im Allgemeinen und zum Verpacken von kleinen Gegenständen im Besonderen. Andere mögliche Anwendungen umfassen, sind aber nicht beschränkt auf eine Umverpackung von Fleisch, Papierersatz, Tischdecken und Duschvorhänge.

[0143] Die folgenden Beispiele veranschaulichen die Erfindung, sollen aber auf keinerlei Art und Weise als Beschränkung des Umfangs der Erfindung gedeutet werden.

BEISPIELE

Testverfahren

a) Schmelzfluss- und Dichtemessungen

[0144] Es wurde das Molekulargewicht der Polymerzusammensetzungen zur Verwendung in der vorliegenden Erfindung günstigerweise angegeben unter Verwendung einer Schmelzindexmessung gemäß ASTM D-1238, die Bedingung 190° C/2,16 kg (formal als "Bedingung (E)" und ebenso als I₂ bekannt) bestimmt. Der Schmelzindex ist umgekehrt proportional zum Molekulargewicht des Polymers. Je höher das Molekulargewicht, desto geringer ist folglich der Schmelzindex, obwohl das Verhältnis nicht linear ist.

[0145] Ebenso nützlich zur Angabe des Molekulargewichts der im Wesentlichen statistischen Interpolymere, welche in der vorliegenden Erfindung verwendet werden, ist der Gottfert-Schmelzindex (G, cm³/10 min), welcher auf eine ähnliche Art wie der Schmelzindex (I₂) erhalten wird unter Verwendung des ASTM D1238-Verfahrens für automatisierte Plastometer, wobei die Schmelzdichte von 0,7632 vorgegeben wurde, der Schmelzdichte von Polyethylen bei 190°C.

[0146] Das Verhältnis von Schmelzdichte zu Styrolgehalt bei Ethylen-Styrol-Interpolymeren wurde gemessen

als eine Funktion des Styrolgesamtgehalts bei 190°C für einen Bereich von 29,8% bis 81,8 Gew.% Styrol. Ataktische Polystyrolmengen in diesen Proben betragen normalerweise 10% oder weniger. Aufgrund der geringen Mengen wurde angenommen, dass der Einfluss des ataktischen Polystyrols minimal war. Ebenso sind die Schmelzdichte von ataktischem Polystyrol und die Schmelzdichten der Proben mit hohem Gesamtstyrol sehr ähnlich. Das Verfahren, welches zur Bestimmung der Schmelzdichte verwendet wurde, wandte eine Gottfert-Schmelzindexmaschine an, wobei ein Schmelzdichteparameter von 0,7632 eingestellt wurde, und einer Sammlung von Schmelzesträngen als eine Funktion der Zeit, während das I_2 -Gewicht in Kraft war. Das Gewicht und die Zeit wurden für jeden Schmelzestrang aufgezeichnet und normiert und ergaben die Masse in g/10 min. Der vom Instrument berechnete I_2 -Schmelzindexwert wurde ebenso aufgezeichnet. Die zur Berechnung der tatsächlichen Schmelzdichte verwendete Gleichung ist

$$\bar{\delta} = \bar{\delta}_{0,7632} \times I_2 / I_2 \text{ Gottfert}$$

wobei $\bar{\delta}_{0,7632} = 0,7632$ und $I_2 \text{ Gottfert} =$ angezeigter Schmelzindex.

[0147] Eine lineare Regression („linear least square fit“) der berechneten Schmelzdichte gegen den Styrolgesamtgehalt führt zu einer Gleichung mit einem Korrelationskoeffizient von 0,91 für die folgende Gleichung:

$$\bar{\delta} = 0,00299 \times S + 0,723$$

wobei S = Gewichtsprozent Styrol in dem Polymer. Das Verhältnis von Gesamtstyrol zur Schmelzdichte kann verwendet werden, um unter Verwendung dieser Gleichungen einen tatsächlichen Schmelzindexwert zu bestimmen, wenn der Styrolgehalt bekannt ist.

[0148] So ergibt sich für ein Polymer mit 73% Styrolgesamtgehalt mit einem gemessenen Schmelzfluss (der "Gottfert-Zahl“) die Gleichung:

$$x = 0,00299 \cdot 73 + 0,723 = 0,9412$$

wobei $0,9412/0,7632 = I_2/G\#$ (gemessen) = 1,23

[0149] Die Dichte der im Wesentlichen statistischen Interpolymere, welche in der vorliegenden Erfindung verwendet werden, wurde gemäß ASTM D-792 bestimmt.

b) Styrol-Analysen

[0150] Der Interpolymerstyrolgehalt und die Konzentration an ataktischem Polystyrol wurden bestimmt unter Verwendung von Protonen-Kernspinresonanz (^1H NMR). Alle Protonen-NMR-Proben wurden in 1,1,2,2-Tetrachlorethan- d_2 (TCE- d_2) hergestellt. Die resultierenden Lösungen wiesen 1,6 bis 3,2 Gew.% Polymer auf. Der Schmelzindex (I_2) wurde als eine Richtschnur zur Bestimmung der Probenkonzentration verwendet. Wenn der I_2 größer als 2 g/10 min war, wurden folglich 40 mg Interpolymer verwendet; bei einem I_2 zwischen 1,5 und 2 g/10 min wurden 30 mg Interpolymer verwendet; und wenn der I_2 geringer als 1,5 g/10 min war, wurden 20 mg Interpolymer verwendet. Die Interpolymere wurden direkt in 5 mm-Probenröhrchen eingewoben. Ein Aliquot von 0,75 ml TCE- d_2 wurde mittels einer Spritze zugegeben und das Röhrchen wurde mit einem eng passenden Polyethylendeckel bedeckt. Die Proben wurden in einem Wasserbad bei 85°C erwärmt, um das Interpolymer zu erweichen. Um das Mischen durchzuführen, wurden die bedeckten Proben gelegentlich unter Verwendung einer Heißluftpistole refluxiert.

[0151] Die Protonen-NMR-Spektren wurden auf einem Varian VXR 300 gespeichert, mit der Probe bei 80°C, und bei 5,99 ppm auf die restlichen Protonen von TCE- d_2 bezogen. Die Verzögerungszeiten wurden zwischen 1 Sekunde variiert, und die Daten wurden dreifach für jede Probe gesammelt. Die folgenden Instrumentenbedingungen wurden für die Analyse der Interpolymerproben verwendet:

Varian VXR-300, Standard- ^1H :

Abtastbreite, 5000 Hz

Messdauer, 3,002 sek

Pulsbreite, 8 μsek

Frequenz, 300 MHz

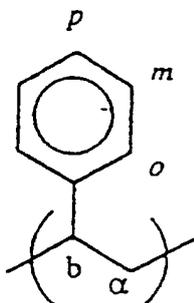
Verzögerung, 1 sek

„Transients“, 16

Die Gesamtanalysezeit pro Probe betrug 10 min.

[0152] Anfänglich wurde ein $^1\text{H-NMR}$ -Spektrum für eine Probe des Polystyrols Styron™ 680 (erhältlich von der Dow Chemical Company, Midland, MI und eine eingetragene Handelsmarke der Dow Chemical Company, Midland, MI) mit einer Verzögerungszeit von 1 sek erfasst. Die Protonen wurden "markiert": b, Verzweigung; a, alpha; o, ortho; m, meta; p, para, wie in Fig. 1 gezeigt.

Figur 1



[0153] Es wurden Integrale um die in Fig. 1 markierten Protonen gemessen; "A" bezeichnet aPS. Es wird angenommen, dass Integral $A_{7,1}$ (aromatisch, ungefähr 7,1 ppm) die drei Ortho/Para-Protonen darstellt; und Integral $A_{6,6}$ (aromatisch, ungefähr 6,6 ppm) die zwei Meta-Protonen. Die zwei mit α markierten aliphatischen Protonen schwingen bei 1,5 ppm; und das einzelne mit b markierte Proton liegt bei 1,9 ppm. Die aliphatische Region wurde von 0,8 bis 2,5 ppm integriert und wird als A_{al} bezeichnet. Das theoretische Verhältnis für $A_{7,1} : A_{6,6} : A_{al}$ beträgt 3 : 2 : 3 oder 1,5 : 1 : 1,5, und korrelierte sehr gut mit den beobachteten Verhältnissen für Styron™ 680 (erhältlich von der Dow Chemical Company, Midland, MI und eine eingetragene Handelsmarke der Dow Chemical Company, Midland, MI) für mehrere Verzögerungszeiten von 1 sek. Die Berechnungen der Verhältnisse, welche zur Überprüfung der Integration und zur Bestätigung der Peakzuordnung verwendet wurden, wurden durchgeführt durch Division des geeigneten Integrals durch das Integral $A_{6,6}$, Verhältnis $A_r = A_{7,1}/A_{6,6}$.

[0154] Der Region Ass wurde der Wert von 1 zugeordnet. Das Verhältnis AI ist das Integral $A_{al}/A_{6,6}$. Alle gesammelten Spektren weisen das erwartete 1,5 : 1 : 1,5-Integrationsverhältnis von (o + p) : m : (α + b) auf. Das Verhältnis von aromatischen zu aliphatischen Protonen beträgt 5 : 3. Ein aliphatisches Verhältnis von 2 : 1 wird vorausgesagt bezogen auf die mit α - bzw. b-markierten Protonen in Fig. 1. Dieses Verhältnis wurde auch beobachtet, wenn die zwei aliphatischen Peaks getrennt integriert wurden.

[0155] Bei den Ethylen/Styrol-Interpolymeren besaßen die $^1\text{H-NMR}$ -Spektren unter Verwendung einer Verzögerungszeit von 1 Sekunde die so definierten Integrale $C_{7,1}$, $C_{6,6}$ und C_{al} , dass die Integration des Peaks bei 7.1 ppm alle die aromatischen Protonen des Copolymers ebenso wie die o- & p-Protonen von aPS umfasste. Ebenso umfasste die Integration der aliphatischen Region C_{al} im Spektrum der Interpolymere aliphatische Protonen sowohl von dem aPS als auch dem Interpolymer, wobei keines der Signale der Polymere klar gegenüber der Grundlinie aufgelöst war. Das Integral des Peaks bei 6.6 ppm $C_{6,6}$ ist gegenüber den anderen aromatischen Signalen aufgelöst und es wird angenommen, dass dies ausschließlich wegen des aPS-Homopolymers (wahrscheinlich die meta-Protonen) si ist. (Die Peakzuordnung für ataktisches Polystyrol bei 6.6 ppm (Integral $A_{6,6}$) wurde durchgeführt bezogen auf einen Vergleich mit der authentischen Probe Styron™ 680 (erhältlich von der Dow Chemical Company, Midland, MI und eine eingetragene Handelsmarke der Dow Chemical Company, Midland, MI)). Dies ist eine vernünftige Annahme, da bei sehr geringen Mengen an ataktischem Polystyrol hier nur ein sehr schwaches Signal beobachtet wird. Deswegen dürfen die Phenylprotonen des Copolymers nicht zu diesem Signal beitragen. Unter dieser Annahme wird das Integral $A_{6,6}$ die Basis für eine quantitative Bestimmung des aPS-Gehalts.

[0156] Die folgenden Gleichungen wurden dann verwendet, um das Ausmaß des Styroleinbaus in die Ethylen/Styrol-Interpolymerproben zu bestimmen:

$$(C \text{ Phenyl}) = C_{7,1} + A_{7,1} - (1.5 \times A_{6,6})$$

$$(C \text{ Aliphatisch}) = C_{al} - (1.5 \times A_{6,6})$$

$$s_c = (C \text{ Phenyl})/5$$

$$e_c = (C \text{ Aliphatisch} - (3 \times s_c))/4$$

$$E = e_c / (e_c + s_c)$$

$$S_c = s_c / (e_c + s_c)$$

und die folgenden Gleichungen wurden verwendet, um Mol%-Ethylen und Styrol in den Interpolymeren zu berechnen.

$$\text{Wt \% E} = \frac{E * 28}{(E * 28) + (S_c * 104)} (100)$$

und

$$\text{Wt \% S} = \frac{S_c * 104}{(E * 28) + (S_c * 104)} (100)$$

wobei: s_c und e_c Styrol bzw. Ethylenprotonenfraktionen in dem Interpolymer sind und S_c und E Molfraktionen von Styrolmonomer bzw. Ethylenmonomer in dem Interpolymer sind.

[0157] Die Gewichtsprozent an aPS in den Interpolymeren wurde dann bestimmt durch die folgende Gleichung:

$$\text{Gew. \% aPS} = \frac{(\text{Gew. \% S}) * \left(\frac{A_{6.6/2}}{s_c} \right)}{100 + \left[(\text{Gew. \% S}) * \left(\frac{A_{6.6/2}}{s_c} \right) \right]} * 100$$

[0158] Es wurde auch der Gesamtstyrolgehalt durch eine quantitative Fouriertransformations-Infrarotspektroskopie (FTIR) bestimmt.

Herstellung von ESI-Interpolymeren. welche in Beispielen und Vergleichsbeispielen der vorliegenden Erfindung verwendet werden

1) Herstellung von ESI # 1–6

[0159] ESI # 1–6 sind im Wesentlichen statistische Ethylen/Styrol-Interpolymere, hergestellt unter Verwendung der folgenden Katalysatoren und Polymerisationsverfahren.

Herstellung des Katalysators A (Dimethyl[N-(1,1-dimethyl)-1,1-dimethyl-1-[(1,2,3,4,5- η)-1,5,6,7-tetrahydro-3-phenyl-s-indacen-1-yl]silanilaminato(2-)-N]-titan

1) Herstellung von 3,5,6,7-Tetrahydro-s-hydrindacen-1(2H)-on

[0160] Indan (94,00 g, 0,7954 Mol) und 3-Chlorpropionylchlorid (100,99 g, 0,7954 Mol) wurden in CH_2Cl_2 (300 ml) bei 0°C gerührt, als AlCl_3 (130,00 g, 0,9750 Mol) langsam unter einem Stickstofffluss zugegeben wurde. Das Gemisch wurde dann bei Raumtemperatur für 2 h gerührt. Dann wurden die flüchtigen Stoffe entfernt. Das Gemisch wurde dann auf 0°C abgekühlt und langsam wurde konzentriertes H_2SO_4 (500 ml) zugegeben. Der sich bildende Feststoff musste häufig mit einem Spatel zerbrochen werden, da Rühren in diesem Schritt schnell nicht mehr möglich war. Das Gemisch wurde dann über Nacht bei Raumtemperatur unter Stickstoff belassen. Das Gemisch wurde dann erhitzt, bis die Temperaturanzeige 90°C erreichte. Diese Bedingungen wurden für einen 2-stündigen Zeitraum beibehalten, währenddessen wurde regelmäßig ein Spaten verwendet, um das Gemisch zu rühren. Nach der Reaktionsperiode wurde gestoßenes Eis im Gemisch platziert und bewegt. Das Gemisch wurde dann in einen Becher übertragen und periodisch mit H_2O und Diethylether gewaschen und dann wurden die Fraktionen filtriert und vereinigt. Das Gemisch wurde mit H_2O (2×200 ml) gewaschen. Die organische Schicht wurde dann abgetrennt und die flüchtigen Stoffe entfernt. Das gewünschte Produkt wurde dann durch Umkristallisieren aus Hexan bei 0°C als schwach gelbe Kristalle (22,36 g, 16,3% Ausbeute)

isoliert.

$^1\text{H NMR}$ (CDCl_3): d 2,04–2,19 (m, 2H), 2,65 (t, $^3\text{JHH} = 5,7$ Hz, 2H), 2,84–3,0 (m, 4H), 3,03 (t, $^3\text{JHH} = 5,5$ Hz, 2H), 7,26 (s, 1H), 7,53 (s, 1H).

$^{13}\text{C NMR}$ (CDCl_3): d 25,71, 26,01, 32,19, 33,24, 36,93, 118,90, 122,16, 135,88, 144,06, 152,89, 154,36, 206,50.

GC-MS: berechnet für $\text{C}_{12}\text{H}_{12}\text{O}$ 172,09, gefunden 172,05.

2) Herstellung von 1,2,3,5-Tetrahydro-7-phenyl-s-indacen.

[0161] 3,5,6,7-Tetrahydro-s-hydrindacen-1(2H)-on (12,00 g, 0,06967 Mol) wurde in Diethylether (200 ml) bei 0°C gerührt, als PhMgBr (0,105 Mol, 35,00 ml einer 3,0 M Lösung in Diethylether) langsam zugegeben wurde. Dieses Gemisch wurde dann über Nacht bei Raumtemperatur gerührt. Nach der Reaktionsperiode wurde das Gemisch durch Schütten über Eis abgeschreckt. Das Gemisch wurde dann mit HCl angesäuert ($\text{pH} = 1$) und heftig für 2 h gerührt. Die organische Schicht wurde dann abgetrennt und mit H_2O (2×100 ml) gewaschen und dann über MgSO_4 getrocknet. Eine Filtration nach dem Entfernen der flüchtigen Stoffe resultierte in der Isolierung des gewünschten Produkts als dunkles Öl (14,68 g, 90,3% Ausbeute).

$^1\text{H NMR}$ (CDCl_3): d 2,0–2,2 (m, 2H), 2,8–3,1 (m, 4H), 6,54 (s, 1H), 7,2–7,6 (m, 7H).

GC-MS: berechnet für $\text{C}_{18}\text{H}_{16}$ 232,13, gefunden 232,05.

3) Herstellung von 1,2,3,5-Tetrahydro-7-phenyl-s-indacendilithiumsalz.

[0162] 1,2,3,5-Tetrahydro-7-phenyl-s-indacen (14,68 g, 0,06291 Mol) wurde in Hexan (150 ml) gerührt, als $n\text{BuLi}$ (0,080 Mol, 40,00 ml einer 2,0 M Lösung in Cyclohexan) langsam zugegeben wurde. Dieses Gemisch wurde dann über Nacht gerührt. Nach der Reaktionsperiode wurde der Feststoff durch Saugfiltration als gelber Feststoff gesammelt, welcher mit Hexan gewaschen, unter Vakuum getrocknet und ohne weitere Reinigung oder Analyse verwendet wurde (12,2075 g, 81,1% Ausbeute).

4) Herstellung von Chlordimethyl(1,5,6,7-tetrahydro-3-phenyl-s-indacen-1-yl)silan.

[0163] 1,2,3,5-Tetrahydro-7-phenyl-s-indacendilithiumsalz (12,2075 g, 0,05102 Mol) in THF (50 ml) wurde tropfenweise zu einer Lösung von Me_2SiCl_2 (19,5010 g, 0,1511 Mol) THF (100 ml) bei 0°C zugegeben. Dieses Gemisch wurde dann bei Raumtemperatur über Nacht gerührt. Nach der Reaktionsperiode wurden die flüchtigen Stoffe entfernt und der Rückstand unter Verwendung von Hexan extrahiert und filtriert. Die Entfernung des Hexans resultierte in der Isolierung des gewünschten Produkts als ein gelbes Öl (15,1492 g, 91,1% Ausbeute).

$^1\text{H NMR}$ (CDCl_3): d 0,33 (s, 3H), 0,38 (s, 3H), 2,20 (p, $^3\text{JHH} = 7,5$ Hz, 2H), 2,9–3,1 (m, 4H), 3,84 (s, 1H), 6,69 (d, $^3\text{JHH} = 2,8$ Hz, 1H), 7,3–7,6 (m, 7H), 7,68 (d, $^3\text{JHH} = 7,4$ Hz, 2H).

$^{13}\text{C NMR}$ (CDCl_3): d 0,24, 0,38, 26,28, 33,05, 33,18, 46,13, 116,42, 119,71, 127,51, 128,33, 128,64, 129,56, 136,51, 141,31, 141,86, 142,17, 142,41, 144,62.

GC-MS: berechnet für $\text{C}_{20}\text{H}_{21}\text{ClSi}$ 324,11, gefunden 324,05.

5) Herstellung von N-(1,1-Dimethylethyl)-1,1-dimethyl-1-(1,5,6,7-tetrahydro-3-phenyl-s-indacen-1-yl)silanamin.

[0164] Chlordimethyl(1,5,6,7-tetrahydro-3-phenyl-s-indacen-1-yl)silan (10,8277 g, 0,03322 Mol) wurde in Hexan (150 ml) gerührt, als NEt_3 (3,5123 g, 0,03471 Mol) und t-Butylamin (2,6074 g, 0,03565 Mol) zugegeben wurden. Dieses Gemisch wurde für 24 h gerührt. Nach der Reaktionsperiode wurde das Gemisch filtriert und die flüchtigen Stoffe entfernt, was in der Isolierung des gewünschten Produkts als ein dickes rotgelbes Öl (10,6551 g, 88,7% Ausbeute) resultierte.

$^1\text{H NMR}$ (CDCl_3): d 0,02, (s, 3H), 0,04 (s, 3H), 1,27 (s, 9H), 2,16 (p, $^3\text{JHH} = 7,2$ Hz, 2H), 2,9–3,0 (m, 4H), 3,68 (s, 1H), 6,69 (s, 1H), 7,3–7,5 (m, 4H), 7,63 (d, $^3\text{JHH} = 7,4$ Hz, 2H).

$^{13}\text{C NMR}$ (CDCl_3): d -0,32, -0,09, 26,28, 33,39, 34,11, 46,46, 47,54, 49,81, 115,80, 119,30, 126,92, 127,89, 128,46, 132,99, 137,30, 140,20, 140,81, 141,64, 142,08, 144,83.

6) Herstellung von N-(1,1-Dimethyl)-1,1-dimethyl-1-(1,5,6,7-tetrahydro-3-phenyl-s-indacen-1-yl)silanamin, Dilithiumsalz.

[0165] N-(1,1-Dimethylethyl)-1,1-dimethyl-1-(1,5,6,7-tetrahydro-3-phenyl-s-indacen-1-yl)silanamin (10,6551 g, 0,02947 Mol) wurde in Hexan (100 ml) gerührt, als $n\text{BuLi}$ (0,070 Mol, 35,00 ml einer 2,0 M Lösung in Cyclohexan) langsam zugegeben wurde.

[0166] Dieses Gemisch wurde dann über Nacht gerührt, während dieser Zeit brachen keine Salze aus dunkelroten Lösung. Nach der Reaktionsperiode wurden die flüchtigen Stoffe entfernt und der Rückstand wurde schnell mit Hexan (2 × 50 ml) gewaschen. Der dunkelrote Rückstand wurde dann trockengesaugt und ohne weitere Reinigung oder Analyse verwendet (9,6517 g, 87,7% Ausbeute).

Herstellung von Dichlor[N-(1,1-Dimethylethyl)-1,1-dimethyl-1-[(1,2,3,4,5-η)-1,5,6,7-tetrahydro-3-phenyl-s-indacen-1-yl]silanaminato(2-)-N]titan

[0167] [N-(1,1-Dimethylethyl)-1,1-dimethyl-1-(1,5,6,7-tetrahydro-3-phenyl-s-indacen-1-yl)silanamin, Dilithiumsalz (4,5355 g, 0,01214 Mol) in THF (50 ml) wurde tropfenweise zu einer Aufschlämmung von $\text{TiCl}_3(\text{THF})_3$ (4,5005 g, 0,01214 Mol) in THF (100 ml) zugegeben. Dieses Gemisch wurde für 2 h gerührt. PbCl_2 (1,7136 g, 0,006162 Mol) wurde dann zugegeben und das Gemisch wurde für eine weitere Stunde gerührt. Nach der Reaktionsperiode wurden die flüchtigen Stoffe entfernt und der Rückstand extrahiert und unter Verwendung von Toluol filtriert. Eine Entfernung des Toluols resultierte in der Isolierung eines dunklen Rückstands. Dieser Rückstand wurde dann in Hexan aufgeschlämmt und auf 0°C gekühlt. Das gewünschte Produkt wurde dann durch Filtration als ein rotbrauner kristalliner Feststoff isoliert (2,528 g, 43,5% Ausbeute).

$^1\text{H NMR}$ (CDCl_3): d 0.71 (s, 3H), 0.97 (s, 3H), 1.37 (s, 9H), 2.0–2.2 (m, 2H), 2.9–3.2 (m, 4H), 6.62 (s, 1H), 7.35–7.45 (m, 1H), 7.50 (t, $^3\text{JHH} = 7.8$ Hz, 2H), 7.57 (s, 1H), 7.70 (d, $^3\text{JHH} = 7.1$ Hz, 2H), 7.78 (s, 1H).

$^1\text{H NMR}$ (C_6D_6): d 0.44 (s, 3H), 0.68 (s, 3H), 1.35 (s, 9H), 1.6–1.9 (m, 2H), 2.5–3.9 (m, 4H), 6.65 (s, 1H), 7.1–7.2 (m, 1H), 7.24 (t, $^3\text{JHH} = 7.1$ Hz, 2H), 7.61 (s, 1H), 7.69 (s, 1H), 7.77–7.8 (m, 2H).

$^{13}\text{C NMR}$ (CDCl_3): d 1.29, 3.89, 26.47, 32.62, 32.84, 32.92, 63.16, 98.25, 118.70, 121.75, 125.62, 128.46, 128.55, 128.79, 129.01, 134.11, 134.53, 136.04, 146.15, 148.93.

$^{13}\text{C NMR}$ (C_6D_6): d 0.90, 3.57, 26.46, 32.56, 32.78, 62.88, 98.14, 119.19, 121.97, 125.84, 127.15, 128.83, 129.03, 129.55, 134.57, 135.04, 136.41, 136.51, 147.24, 148.96.

8) Herstellung von

Dimethyl[N-(1,1-dimethylethyl)-1,1-dimethyl-1-[(1,2,3,4,5-η)-1,5,6,7-tetrahydro-3-phenyl-s-indacen-1-yl]silanaminato(2-)-N]titan

[0168] Dichlor[N-(1,1-dimethylethyl)-1,1-dimethyl-1-[(1,2,3,4,5-η)-1,5,6,7-tetrahydro-3-phenyl-s-indacen-1-yl]silanaminato(2-)-N]titan (0,4970 g, 0,001039 Mol) wurde in Diethylether (50 ml) gerührt, als MeMgBr (0,0021 Mol, 0,70 ml einer 3,0 M Lösung in Diethylether) langsam zugegeben wurde. Dieses Gemisch wurde dann für 1 h gerührt. Nach der Reaktionsperiode wurden die flüchtigen Stoffe entfernt und der Rückstand extrahiert und unter Verwendung von Hexan filtriert. Eine Entfernung des Hexans resultierte in der Isolierung des gewünschten Produkts als ein goldgelber Feststoff (0,4546 g, 66,7% Ausbeute).

$^1\text{H NMR}$ (C_6D_6): d 0.071 (s, 3H), 0.49 (s, 3H), 0.70 (s, 3H), 0.73 (s, 3H), 1.49 (s, 9H), 1.7–1.8 (m, 2H), 2.5–2.8 (m, 4H), 6.41 (s, 1H), 7.29 (t, $^3\text{JHH} = 7.4$ Hz, 2H), 7.48 (s, 1H), 7.72 (d, $^3\text{JHH} = 7.4$ Hz, 2H), 7.92 (s, 1H).

$^{13}\text{C NMR}$ (C_6D_6): d 2.19, 4.61, 27.12, 32.86, 33.00, 34.73, 58.68, 58.82, 118.62, 121.98, 124.26, 127.32, 128.63, 128.98, 131.23, 134.39, 136.38, 143.19, 144.85.

Herstellung des Katalystors B; (1H-Cyclopenta[*l*]phenanthren-2-yl)dimethyl(t-butylamido)-silantitan-1,4-diphenylbutadien)

1) Herstellung von Lithium-1H-cyclopenta[*l*]phenanthren-2-yl

[0169] Zu einem 250 ml-Rundkolben mit 1,42 g (0,00657 Mol) 1H-Cyclopenta[*l*]phenanthren und 120 ml Benzol wurden tropfenweise 4,2 ml einer 1,60 M Lösung n-BuLi in gemischten Hexanen zugegeben. Die Lösung wurde über Nacht gerührt. Das Lithiumsalz wurde durch Filtration isoliert, zweimal mit 25 ml Benzol gewaschen und unter Vakuum getrocknet. Die isolierte Ausbeute betrug 1,426 g (97,7%). Eine $^1\text{H NMR}$ -Analyse zeigte, dass das vorherrschende Isomer an 2-Position substituiert war.

Herstellung von (1H-cyclopenta[*l*]phenanthren-2-yl)dimethylchlorsilan

[0170] In einen 500 ml-Rundkolben mit 4,16 g (0,0322 Mol) Dimethyldichlorsilan ($\text{Me}_2\text{-SiCl}_2$) und 250 ml Tetrahydrofuran (THF) wurde tropfenweise eine Lösung von 1,45 g (0,0064 Mol) Lithium-1H-cyclopenta[*l*]phenanthren-2-yl in THF zugegeben. Die Lösung wurde für ungefähr 16 h gerührt, danach wurde das Lösungsmittel unter verringertem Druck entfernt, wobei ein öliger Feststoff zurückblieb, welcher mit Toluol extrahiert wurde, durch ein Diatomeenerdenfilterhilfsmittel (Celite™) filtriert, zweimal mit Toluol gewaschen und unter verringertem Druck getrocknet wurde. Die isolierte Ausbeute betrug 1,98 g (99,5%).

3) Herstellung von (1H-cyclopenta[*l*]phenanthren-2-yl)dimethyl(*t*-butylamino)silan

[0171] Zu einem 500 ml-Rundkolben mit 1,98 g (0,0064 Mol) (1H-cyclopenta[*l*]phenanthren-2-yl)dimethylchlorosilan und 250 ml Hexan wurden 2,00 ml (0,0160 Mol) *t*-Butylamin zugegeben. Das Reaktionsgemisch wurde für mehrere Tage gerührt, dann unter Verwendung eines Diatomeenerdenfilterhilfsmittels (Celite™) filtriert, zweimal mit Hexan gewaschen. Das Produkt wurde isoliert durch Entfernen des restlichen Lösungsmittels unter verringertem Druck. Die isolierte Ausbeute betrug 1,98 g (88,9%).

4) Herstellung von Dilithio-(1H-cyclopenta[*l*]phenanthren-2-yl)dimethyl(*t*-butylamido)silan

[0172] In einen 250 ml-Rundkolben mit 1,03 g (0,003 Mol) (1H-cyclopenta[*l*]phenanthren-2-yl)dimethyl(*t*-butylamino)silan und 120 ml Benzol wurden tropfenweise 3,90 ml einer Lösung von 1,6 M *n*-BuLi in gemischten Hexanen zugegeben. Das Reaktionsgemisch wurde für ungefähr 16 h gerührt. Das Produkt wurde durch Filtration isoliert, zweimal mit Benzol gewaschen und unter verringertem Druck getrocknet. Die isolierte Ausbeute betrug 1,08 g (100%).

5) Herstellung von (1H-cyclopenta[*l*]phenanthren-2-yl)dimethyl(*t*-butylamido)silantitandichlorid

[0173] Zu einem 250 ml-Rundkolben mit 1,17 g (0,0030 Mol) $\text{TiCl}_3 \cdot 3\text{THF}$ und 120 ml THF wurden mit einer schnellen Tropfgeschwindigkeit 50 ml einer THF-Lösung von 1,08 g Dilithio(1H-cyclopenta[*l*]phenanthren-2-yl)dimethyl(*t*-butylamido)silan zugegeben. Das Gemisch wurde bei 20°C für 1,5 h gerührt, in dieser Zeit wurden 0,55 g (0,002 Mol) festes PbCl_2 zugegeben. Nach Rühren für weitere 1,5 h wurde das THF unter Vakuum entfernt und der Rückstand wurde mit Toluol gewaschen, filtriert und unter vermindertem Druck getrocknet und ergab einen orangen Feststoff. Die Ausbeute betrug 1,31 g (93,5%).

6) Herstellung von (1H-cyclopenta[*l*]phenanthren-2-yl)dimethyl(*t*-butylamido)silantitan-1,4-diphenylbutadien

[0174] Zu einer Aufschlämmung von (1H-cyclopenta[*l*]phenanthren-2-yl)dimethyl(*t*-butylamido)silantitandichlorid (3,48 g, 0,0075 Mol) und 1,551 g (0,0075 Mol) 1,4-Diphenylbutadien in 80 ml Toluol bei 70°C wurden 9,9 ml einer 1,6 M Lösung *n*-BuLi (0,0150 Mol) zugegeben. Die Lösung färbte sich sofort dunkel. Die Temperatur wurde angehoben, um das Gemisch in Rückfluss zu bringen und das Gemisch wurde bei dieser Temperatur für 2 h gehalten. Das Gemisch wurde auf -20°C abgekühlt und die flüchtigen Stoffe wurden unter vermindertem Druck entfernt. Der Rückstand wurde in 60 ml gemischten Hexanen bei 20°C für ungefähr 16 h aufgeschlämmt. Das Gemisch wurde für 1 h auf -25°C abgekühlt. Die Feststoffe wurden in einer Glasfritte durch Vakuumfiltration gesammelt und unter vermindertem Druck getrocknet. Der getrocknete Feststoff wurde in einer Glasfaserhülse platziert und der Feststoff kontinuierlich mit Hexanen extrahiert unter Verwendung eines Soxhlet-Extraktionsapparats. Nach 6 h wurde in dem Siedetopf ein kristalliner Feststoff beobachtet. Das Gemisch wurde auf -20°C abgekühlt, durch Filtration aus dem kalten Gemisch isoliert und unter vermindertem Druck getrocknet und ergab 1,62 g eines dunklen kristallinen Feststoffs. Das Filtrat wurde verworfen. Die Feststoffe im Extraktionsapparat wurden gerührt und die Extraktion mit einer weiteren Menge an gemischten Hexanen fortgeführt, und ergab weitere 0,46 g des gewünschten Produkts als dunklen kristallinen Feststoff.

Herstellung des Co-Katalysators E, (Bis hydriertes Talkalkyl)methylamin

[0175] Methylcyclohexan (1200 ml) wurde in einen zylindrischen 2l-Kolben platziert. Unter Rühren wurde Bis(hydriertes Talkalkyl)methylamin (ARMEEN® M2HT, 104 g, gemahlen in granulärer Form) zu dem Kolben zugegeben und gerührt, bis es vollständig aufgelöst war. Wässriges HCl (1 M, 200 ml) wurde zu dem Kolben zugegeben und das Gemisch wurde für 30 min gerührt. Es bildete sich sofort ein weißes Präzipitat. Am Ende dieser Zeit wurde $\text{LiB}(\text{C}_6\text{F}_5)_4 \cdot \text{Et}_2\text{O} \cdot 3\text{LiCl}$ (Mw = 887,3; 177,4 g) zu dem Kolben zugegeben. Die Lösung begann milchig weiß zu werden. Der Kolben wurde mit einer 6" Vigreux-Kolonnen ausgestattet, mit einem Destillationsapparat bedeckt, und das Gemisch wurde erhitzt (140°C Außenwandtemperatur). Ein Gemisch von Ether und Methylcyclohexan wurde aus dem Kolben destilliert. Die zweiphasige Lösung war nun nur leicht trüb. Das Gemisch wurde auf Raumtemperatur abgekühlt und der Inhalt wurde in einem 4l-Scheidetrichter platziert. Die wässrige Phase wurde entfernt und verworfen und die organische Phase wurde zweimal mit H_2O gewaschen und die wässrigen Schichten erneut verworfen. Die mit H_2O gesättigten Methylcyclohexanlösungen wurden gemessen und enthielten 0,48 Gew.% Diethylether (Et_2O).

[0176] Die Lösung (600 ml) wurde in einen 1l-Kolben transferiert, sorgfältig mit Stickstoff gespült und in den Trockenschrank transferiert. Die Lösung wurde durch eine Säule (1" Durchmesser, 6" Höhe) mit 13X Molekularsieben geleitet. Dies verringerte den Gehalt an Et_2O von 0,48 Gew.% auf 0,28 Gew.%. Das Material wurde

dann über frischen 13X-Sieben (20 g) für 4 h gerührt. Der Et₂O-Gehalt wurde dann gemessen und betrug 0,19 Gew.%. Das Gemisch wurde dann über Nacht gerührt, was eine weitere Verringerung des Et₂O-Gehalts auf ungefähr 40 ppm ergab. Das Gemisch wurde filtriert unter Verwendung eines Filters, ausgestattet mit einer Glasfritte mit einer Porengröße von 10 bis 15 µm und ergab eine klare Lösung (die Molekularsiebe wurden mit weiterem trockenem Methylcyclohexan gespült). Die Konzentration wurde durch gravimetrische Analyse gemessen und ergab einen Wert von 16,7 Gew.%.

Polymerisation

[0177] ESI # 1–6 wurden in einem Autoklaven-CSTR („continuously stirred tank reactor“) von 6 Gallonen (22,7 l) mit Ölmantel hergestellt. Ein magnetisch gekoppelter Rührer mit A-320-Impeller sorgte für das Mischen. Der Reaktor lief voll Flüssigkeit bei 475 psig (3,275 kPa). Der Prozessfluss ging am Boden hinein und am oberen Teil hinaus. Ein Wärmeaustauschöl zirkulierte durch den Mantel des Reaktors, um einen Teil der Reaktionswärme zu entfernen. Am Ausgang des Reaktors befand sich ein Mikrobewegungsflussmesser, welcher den Fluss und die Lösungsdichte maß. Alle Leitungen am Ausgang des Reaktors wurden mit 50 psi (344,7 kPa) Dampf verfolgt und isoliert.

[0178] Toluollösungsmittel wurde dem Reaktor mit 30 psig (207 kPa) zugeführt. Die Zufuhr zum Reaktor wurde durch ein Mikrobewegungsmassenstrommessgerät gemessen. Eine Diaphragmapumpe mit variabler Geschwindigkeit steuerte die Zufuhrrate. Am Auslass der Lösungsmittelpumpe wurde ein Seitenstrom verwendet, um Spülflüsse für die Katalysatoreinspritzleitung (1 lb/h (0,45 kg/h)) und den Reaktorrührer (0,75 lb/h (0,34 kg/h)) bereitzustellen. Diese Flüsse wurden gemessen durch Differentialdruck-Flussmessgeräte und gesteuert durch manuelle Einstellung von Mikroflussnadelventilen. Nicht gehemmtes Styrolmonomer wurde dem Reaktor bei 30 psig (207 kPa) zugeführt. Die Zufuhr zum Reaktor wurde durch ein Mikrobewegungsmassenstrommessinstrument gemessen. Eine Diaphragmapumpe mit variabler Geschwindigkeit steuerte die Zufuhrrate. Der Styrolstrom wurde mit dem verbleibenden Lösungsmittelstrom gemischt. Ethylen wurde dem Reaktor bei 600 psig (4,137 kPa) zugeführt. Der Ethylenstrom wurde durch ein Mikrobewegungsmassenstrommessgerät gemessen, direkt bevor das Untersuchungsventil den Fluss steuert. Ein Brooks-Flussmessgerät/Steuergerät wurde verwendet, um Wasserstoff in den Ethylenstrom am Auslass des Ethylensteuerventils zuzuführen. Das Ethylen/Wasserstoffgemisch vereinigt sich mit dem Lösungsmittel/Styrolstrom bei Umgebungstemperatur. Die Temperatur des Lösungsmittel/Monomers bei Eintritt in den Reaktor wurde durch einen Austauscher mit –5°C Glykol im Mantel auf ungefähr 5°C abgesenkt. Dieser Strom gelangte in den Boden des Reaktors. Das Dreikomponentenkatalysatorsystem und seine Lösungsmittelspülung gelangte auch am Boden in den Reaktor, aber durch eine andere Öffnung als der Monomerstrom. Die Herstellung der Katalysatorbestandteile fand in einer Schutzkammer mit inerter Atmosphäre statt. Die verdünnten Bestandteile wurden in mit Stickstoff gepolsterte Zylinder gelegt und in die Katalysatorlauf tanks im Produktionsbereich geladen. Aus diesen Lauf tanks wurden die Katalysatoren mit Kolbenpumpen hochgedrückt und der Fluss wurde mit Mikrobewegungsmassenstrommessgeräten gemessen. Diese Ströme vereinigen sich miteinander und der Katalysatorspüllösung kurz vor dem Eintritt durch eine einzelne Injektionsleitung in den Reaktor.

[0179] Die Polymerisation wurde gestoppt durch Zugabe eines Mittels zur Unterdrückung des Katalysators (Wasser gemischt mit Lösungsmittel) in die Reaktorproduktleitung, nachdem das Mikrobewegungsflussmessgerät die Lösungsdichte gemessen hat. Andere Polymerzusätze können mit dem Mittel zur Unterdrückung des Katalysators zugegeben werden. Ein statischer Mischer in der Leitung stellte die Dispersion des Mittels zur Unterdrückung des Katalysators und der Zusätze im Reaktoreffluentstrom bereit. Dieser Strom gelangte als nächstes in Heizelemente nach dem Reaktor, welche weitere Energie für den Flash der Lösungsmittelentfernung bereitstellen. Dieser Flash trat ein, als der Effluent das Heizelement nach dem Reaktor verließ und der Druck von 475 psig (3,275 kPa) hinunter auf ungefähr 250 mm absoluten Druck am Reaktordruckkontrollventil gefallen war. Dieses ausgedampfte Polymer gelangte in eine Entgasungseinrichtung mit heissem Ölmantel. Ungefähr 85% der flüchtigen Stoffe wurden aus dem Polymer in der Entgasungseinrichtung entfernt. Die flüchtigen Stoffe traten am oberen Ende der Entgasungseinrichtung aus. Der Strom wurde mit einem Austauscher mit Glykolmantel kondensiert und gelangte in den Sog einer Vakuumpumpe und wurde in ein Trenngefäß für Lösungsmittel und Styrol/Ethylen mit Glykolmantel abgeleitet. Lösungsmittel und Styrol wurden aus dem Boden des Gefäßes entfernt und Ethylen vom oberen Ende. Der Ethylenstrom wurde mit einem Mikrobewegungsmassenstrommessgerät gemessen und im Hinblick auf die Zusammensetzung analysiert. Die Messung von entlüftetem Ethylen plus eine Berechnung der gelösten Gase im Lösungsmittel/Styrolstrom wurden verwendet, um die Ethylenumwandlung zu berechnen. Das in der Entgasungseinrichtung getrennte Polymer wurde mit einer Zahnradschnecke zu einem entgasenden ZSK-30 Vakuumentruder ausgepumpt. Das trockene Polymer gelangt als Einzelstrang in den Extruder. Dieser Strang wurde gekühlt, als er durch ein Wasserbad gezogen wurde. Das überschüssige Wasser wurde von dem Strang mit Luft abgeblasen und der Strang wurde mit einem

Strangzerhacker in Pellets gehackt.

[0180] Die verschiedenen Katalysatoren, Cokatalysatoren und Verfahrensbedingungen, welche zur Herstellung der einzelnen unterschiedlichen Ethylenstyrolinterpolymere (ESI # 1–6) verwendet wurden, sind in Tabelle 1 zusammengefasst, und ihre Eigenschaften sind in Tabelle 2 zusammengefasst.

Tabelle 1. Herstellungsbedingungen für ESI # 1–6

ESI #	Reaktor-temp. °C	Lösungsmittel-fluss lb/h	Ethylen-fluss lb/h	Wasser-stoff-fluss sccm	Styrol-fluss lb/h	Ethylen-umwandlung %	B/Ti-Verhältnis	MMAO'/Ti-Verhältnis	Katalysator	Co-Katalysator
ESI 1	93,0	33,8	3,10	16,0	5,4	95,3	3,00	7,0	A ^a	D ^d
ESI 2	69,0	30,0	1,30	0	10,0	87,0	3,00	5,0	B ^b	D ^d
ESI 3	71,5	30,0	1,30	0	15,8	96,6	3,00	4,0	A ^a	D ^d
ESI 4	100,1	18,9	1,99	4,3	7,0	85,12	1,25	10,0	C ^c	E ^e
ESI 5	73,6	15,9	1,21	2,8	8,5	89,08	1,25	N/A	C ^c	E ^e
ESI 6	91,1	29,9	2,90	21,0	9,0	91,92	1,26	10,0	A ^a	E ^e

N/A = nicht verfügbar

^a Katalysator A ist

Dimethyl[N-(1,1-dimethylethyl)1,1-dimethyl-1-[(1,2,3,4,5-η)-1,5,6,7-tetrahydro-3-phenyl-s-indacen-1-yl]silanaminato(2-)-N]-titan.

^b Katalysator B ist (1H-cyclopental[1]phenanthren-2-yl)dimethyl(t-butylamido)-silantitan-1,4-diphenylbutadien).

^c Katalysator C ist (t-Butylamido)dimethyl(tetramethylcyclopentadienyl)silantitan(II)-1,3-pentadien, hergestellt wie im US-Patent Nr. 5,556,928, Beispiel 17 beschrieben.

^d Cokatalysator D ist Tris(pentafluorphenyl)boran, (CAS# 001109-15-5).

^e Cokatalysator E ist bis-hydriertes Talkalkylmethylammoniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat.

^f ist ein modifiziertes Methylaluminoxan, kommerziell erhältlich von Akzo Nobel als MMAO-3A (CAS# 146905-79-5).

Tabelle 2. Eigenschaften der ESI # 1–6

ESI #	ESI Styrol (Gew.%)	ESI Styrol (Mol%)	Ataktisches Polystyrol (Gew.%)	Gottfert Nr., (cm ³ /10 min)	10 ³ M _w	M _w /M _n -Verhältnis
ESI 1	40,3	15,4	0,5	1,4	115	1,8
ESI 2	69,8	38,4	5,6	0,9	190	3,0
ESI 3	75,6	43,6	8,3	1,3	N/A	N/A
ESI 4	30,3	10,5	5,9	1,6	N/A	N/A
ESI 5	56,9	26,2	8,3	1,2	255	6,6
ESI 6	43,6	17,2	2,0	1,0	133	3,1

N/A = nicht verfügbar

Beispiel 1

[0181] Eine Probe ESI 1 mit 15,4 Mol% Styrol (40,3 Gew.%) und mit einem Gottfert-Schmelzindex (G#) von 1,4 cm³/10 min wurde zu einer Folie gefertigt unter Verwendung eines Extruders mit 1,25 Durchmesser mit einer 12/6/6 24 : 1 L/D-Schnecke, welcher bei einer Schmelztemperatur von 415°F betrieben wurde. Die Düse betrug 3" Durchmesser mit einer Austrittsöffnung von 60 mil (die Extrusionsbedingungen sind in Tabelle 3 zusammengefasst). Die Folie (mit einer Dicke von 1–3 mil) wurde einer Untersuchung des prozentualen Rückformvermögens als einem Maß der elastischen Folieneigenschaften unterzogen, wie hierin beschrieben. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4 zusammengefasst und zeigen die gewünschte prozentuale Rückformung von mehr als 80% in der CD und mehr als 60% in der MD.

Beispiel 2

[0182] Eine Probe ESI 2 mit 38,4 Mol% Styrol (69,8 Gew.%) und mit einem Gottfert-Schmelzindex (G#) von 0,9 cm³/10 min wurde zu einer Folie gefertigt und wie in Beispiel 1 untersucht. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4 zusammengefasst und zeigen die gewünschte prozentuale Rückformung von mehr als 80% in der CD und mehr als 60% in der MD.

Beispiel 3

[0183] Eine Probe ESI 5 mit 26,2 Mol% Styrol (56,9 Gew.%) und mit einem Gottfert-Schmelzindex (G#) von 1,2 cm³/10 min wurde zu einer Folie gefertigt und wie in Beispiel 1 untersucht. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4 zusammengefasst und zeigen die gewünschte prozentuale Rückformung von mehr als 80% in der CD und mehr als 60% in der MD.

Beispiel 4

[0184] Eine Probe ESI 6 mit 17,2 Mol% Styrol (43,6 Gew.%) und mit einem Gottfert-Schmelzindex (G#) von 1,0 cm³/10 min wurde zu einer Folie gefertigt und wie in Beispiel 1 untersucht. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4 zusammengefasst und zeigen die gewünschte prozentuale Rückformung von mehr als 80% in der CD und mehr als 60% in der MD.

Beispiel 5

[0185] Eine Probe ESI 4 mit 10,5 Mol% Styrol (30,3 Gew.%) und mit einem Gottfert-Schmelzindex (G#) von 1,6 cm³/10 min wurde zu einer Folie gefertigt und wie in Beispiel 1 untersucht. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4 zusammengefasst und zeigen die gewünschte prozentuale Rückformung von mehr als 80% in der CD und mehr als 60% in der MD.

Vergleichsbeispiel 1

[0186] Eine Probe ESI 3 mit 43,6 Mol% Styrol (74,6 Gew.%) und mit einem Gottfert-Schmelzindex (G#) von 1,3 cm³/10 min wurde zu einer Folie gefertigt und wie in Beispiel 1 untersucht. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4 zusammengefasst und zeigen nicht die gewünschte prozentuale Rückformung von mehr als 80% in der CD und mehr als 60% in der MD.

Vergleichsbeispiel 2

[0187] Dies war eine Folie, hergestellt aus Affinity™ PL1880, einem im Wesentlichen linearen Ethylen/1-Octeninterpolymer erhältlich von The Dow Chemical Company, hergestellt unter Verwendung eines Metallocenkatalysators und mit einem Schmelzindex $I_2 = 1,6$ g/10 min, einer Dichte = 0,8965 g/cm³ und einem I_{10}/I_2 von 10 und mit 500 ppm Irganox™ 1076 und 800 ppm PEPQ™, und sie wurde der prozentualen Rückformung wie hierin beschrieben unterzogen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4 zusammengefasst und zeigen nicht die gewünschte prozentuale Rückformung von mehr als 80% in der CD und mehr als 60% in der MD.

Vergleichsbeispiel 3

[0188] Dies war eine Folie, hergestellt aus Attane™ 4201, einem Ethylen/1-Octeninterpolymer erhältlich von The Dow Chemical Company mit einem Schmelzindex $I_2 = 1,0$ g/10 min, einer Dichte = 0,912 g/cm³ und einem I_{10}/I_2 von 8,5 und sie wurde den Untersuchungen zur prozentualen Rückformung unterzogen wie hierin beschrieben. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4 zusammengefasst und zeigen nicht die gewünschte prozentuale Rückformung von mehr als 80% in der CD und mehr als 60% in der MD.

Tabelle 3. Fertigungsbedingungen der Folien der Beispiele # 1–5 und der Vergleichsbeispiele 1–3

	Bsp. 1	Bsp. 2	Bsp. 3	Bsp. 4	Bsp. 5	Ver- gleichs-- bsp. 1	Ver- gleichs- bsp. 2	Ver- gleichs-- bsp. 3
Zone #1, Einstellung F	260	270	250	275	275	270	N/A	N/A
Zone #2, Einstellung F	370	370	325	350	350	370	N/A	N/A
Zone #3, Einstellung F	380	380	351	385	375	380	N/A	N/A
Großer Flansch, Einstel- lung F	380	380	384	-	373	380	N/A	N/A
Adapter, Einstellung F	380	380	370	399	369	380	N/A	N/A
Düse 1, Einstellung F	380	385	376	400	379	385	N/A	N/A
Düse 2, Einstellung F	380	385	374	400	375	385	N/A	N/A
Schmelztemp. F	417	412	418	341	433	415	N/A	N/A
Extruderpresse, psig	3170	3590	2730	2790	2460	2390	N/A	N/A
Schnecken- geschwindigkeit, rpm	50,1	50,1	50,1	49,7	50,1	50,1	N/A	N/A
Extruder amp.	16,7	18	16	13	17	15,5	N/A	N/A
Presswalzengeschw., ft/min	16,6	16,6	26	20	26	16,6	N/A	N/A

Testverfahren

[0189] Die Probendimension der elastischen Rückformung MD (Längsrichtung) betrug 25 mm Breite in der CD (Querrichtung) und 127 mm Länge in der MD. Elastische Rückformung: Die CD (Querrichtung)- Probendimension betrug 25 mm Breite in der MD (Längsrichtung) und 127 mm Länge in der CD. So wurde eine Probe an einer Zugprüfmaschine mit einer Messlängeneinstellung von 50 mm bei 250 mm/min auf 100% ihrer Originallänge gezogen. Die Probe wurde dann bei dieser Elongation für 30 sek gehalten. Dann wurde die Probe mit der gleichen Geschwindigkeit auf die originale Messlänge von 50 mm entspannt. Nach 60 sek Halten wurde die Probe erneut gezogen, um den Punkt zu bestimmen, an welchem sie erneut eine Kraft ausübt. Die prozentuale Rückformung (Durchschnitt von 5 Messungen) wurde erhalten durch anfängliches Messen der prozentualen Elongation oder der prozentualen Verformung. Dies wurde erhalten durch Messung des Abstands dahin, wo der zweite Belastungszyklus beginnt, eine Kraftanzeige von ungleich 0 zu zeigen. Dieser Abstand war die prozentuale Verformung oder prozentuale Elongation, wobei

prozentuale Elongation = (elongierte Länge-original Länge)/originale Länge × 100/1.

[0190] Die prozentuale Rückformung wurde dann berechnet als

prozentuale Rückformung = (100 – prozentuale Elongation).

[0191] Die erfindungsgemäßen Folien besitzen eine gute Elastizität, was gezeigt wird durch ihre Rückformung von ≥ 80% in der CD und ihre Rückformung von ≥ 60% in der MD.

Tabelle 4. Prozentuale Rückformung als eine Anzeige von elastischen Filmeigenschaften der Beispiele # 1–5 und der Vergleichsbeispiele 1–3

Beispiel #	ESI #	ESI -Styrol	Prozent	Prozent
Bsp. 1	ESI 1	15,4	93	95
Bsp. 2	ESI 2	38,4	95	80
Bsp. 3	ESI 5	26,2	92	72
Bsp. 4	ESI 6	17,2	95	95
Bsp. 5	ESI 4	10,5	80	77
Vergleichsbsp. 1	ESI 3	43,6	29	23
Vergleichsbsp. 2	N/A	N/A	70	69
Vergleichsbsp. 3	N/A	N/A	65	62

[0192] Die Beispiele 1 und 4 zeigen beide eine ausgezeichnete Folienelastizität mit einer hohen Rückformung sowohl in der CD als auch MD. Die Beispiele 2 und 3 zeigen auch eine gute Elastizität mit einer hohen Rückformung in der CD und einer annehmbaren Rückformung in der MD. Beispiel 5 zeigt eine annehmbare Rückformung sowohl in der CD als auch in der MD. Vergleichsbeispiel 1 zeigt eine schlechte Elastizität und besaß eine geringe Rückformung sowohl in der CD als auch in der MD aufgrund des hohen Styrolgehalts. Die Vergleichsbeispiele 2 und 3 zeigen auch eine schlechte Elastizität und eine geringe Rückformung in der CD und MD.

Tabelle 5. Folieneigenschaften der Beispiele # 3–4

	Bsp. 3	Bsp. 4
Sekantenmodul (Mpsi)		
1 Prozent Sekant., MD, (Mpsi)	6,3	0,7
1 Prozent Sekant. CD, (Mpsi)	0,8	0,8
2 Prozent Sekant. MD (Mpsi)	6,3	0,7
2 Prozent Sekant. CD (Mpsi)	0,8	0,8
Folienzugeigenschaften		
Streckgrenze MD (psi)	556	179
Zerreifestigkeit MD (psi)	1286	2000
Dehnungsgrenze, MD (%)	337	448
Zugbeständigkeit, MD (ft-lb/cu.in)	238	207
Streckgrenze, CD (psi)	232	216
Zerreifestigkeit, CD (psi)	1317	1308
Dehnungsgrenze, CD (%)	354	471
Zugbeständigkeit, CD (ft-lb/cu.in)	155	174

[0193] Die Daten in Tabelle 5 zeigen die gute Zugfestigkeit und Elongation der elastischen Folien der vorliegenden Erfindung und ihre Weichheit und Flexibilität, wie durch ihre niederen Modulwerte angezeigt wird.

Patentansprüche

1. Elastische Folie mit mindestens einer Schicht, umfassend ein Gemisch aus (A) mindestens einem im Wesentlichen statistischen Interpolymer, welches in einer Menge von 50 bis 100 Gew.% vorliegt (bezogen auf die vereinigten Gewichte der Bestandteile A und des Polymers, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A), eine Dichte von mehr als 0,93 g/cm³, einem I₂ von 0,1 bis 1000 g/10 min und einem M_w/M_n von 1,5 bis 20 aufweist, welches umfasst:

- (1) von 10 bis 40 Mol% an Polymereinheiten, welche abgeleitet sind von
- (i) mindestens einem aromatischen Vinylmonomer, oder
 - (ii) mindestens einem aliphatischen oder cycloaliphatischen Vinyl- oder Vinylidenmonomer, oder
 - (iii) einer Kombination aus mindestens einem aromatischen Vinylmonomer und mindestens einem aliphatischen oder cycloaliphatischen Vinyl- oder Vinylidenmonomer, und
- (2) von 60 bis 90 Mol% an Polymereinheiten, welche abgeleitet sind von Ethylen oder mindestens einem C₃₋₂₀-Alpha-Olefin; und optional
- (3) von 0 bis 20 Mol% an Polymereinheiten, welche abgeleitet sind von einem oder mehreren ethylenisch ungesättigten, polymerisierbaren Monomeren, welche andere sind als diejenigen in (1) und (2); und
- (B) von 0 bis 50 Gew.% (bezogen auf die vereinigten Gewichte des Bestandteils A und des Polymers, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A) eines Gemischs aus dem Bestandteil A mit mindestens einem Polymer, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A; und worin die elastische Folie in der Querrichtung ein Rückformvermögen von mehr als oder gleich 80% aufweist, und in der Maschinenrichtung ein Rückformvermögen von mehr als oder gleich 60% aufweist.

2. Elastische Folie nach Anspruch 1, worin

(I) das im Wesentlichen statistische Interpolymer des Bestandteils (A) in einer Menge von 75 bis 100 Gew.% vorliegt (bezogen auf die vereinigten Gewichte des Bestandteils A und des Polymers, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A), und einen I₂ von 0,5 bis 200 g/10 min und einen M_w/M_n von 1,8 bis 10 aufweist, und umfasst:

- (1) von 13 bis 33 Mol% an Polymereinheiten, welche abgeleitet sind von
- (i) dem aromatischen Vinylmonomer, welches durch die folgende Formel dargestellt wird, worin R¹ ausgewählt ist aus der Gruppe der Reste, bestehend aus Wasserstoff und Alkylresten mit drei oder weniger Kohlenstoffen, und Ar eine Phenylgruppe oder eine Phenylgruppe ist, welche mit 1 bis 5 Substituenten substituiert ist, welche ausgewählt sind aus der Gruppe bestehend aus Halogen, C₁₋₄-Alkyl und C₁₋₄-Halogenalkyl, jedes R² jeweils unabhängig ausgewählt ist aus der Gruppe der Reste, bestehend aus Wasserstoff und Alkylresten mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, und n einen Wert von Null bis 4 aufweist; und
 - (ii) dem aliphatischen oder cycloaliphatischen Vinyl- oder Vinylidenmonomer, welches durch die folgende Formel dargestellt wird, worin A¹ ein sterisch voluminöser, aliphatischer oder cycloaliphatischer Substituent mit bis zu 20 Kohlenstoffen ist, R¹ ausgewählt ist aus der Gruppe von Resten bestehend aus Wasserstoff und Alkylresten mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen; jedes R² jeweils unabhängig ausgewählt ist aus der Gruppe der Reste, bestehend aus Wasserstoff und Alkylresten mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen; oder alternativ R¹ und A¹ zusammen ein Ringsystem bilden; und
- (2) von 67 bis 87 Mol% an Polymereinheiten, welche von dem Alpha-Olefin abgeleitet sind; welches Ethylen oder Ethylen und mindestens eines von Propylen, 4-Methyl-1-penten, 1-Buten, 1-Hexen oder 1-Octen umfasst; und
- (3) die ethylenisch ungesättigten, polymerisierbaren Monomere, welche andere sind als die, welche von (1) und (2) abgeleitet sind, Norbornen oder ein mit C₁₋₁₀-Alkyl oder C₆₋₁₀-Aryl substituiertes Norbornen umfassen; und

(II) das Polymer, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A in einer Menge von 0 bis 25 Gew.% vorliegt (bezogen auf die vereinigten Gewichte der Bestandteile A und des Polymers, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A), und eines oder mehrere von

- a) einem homogenen Interpolymer;
- b) einem heterogenen Interpolymer;
- c) einem thermoplastischen Olefin;
- d) einem styrolischen Blockcopolymer;
- e) einem styrolischen Homo- oder Copolymer;
- f) einem Elastomer;
- g) einem duroplastischen Polymer;
- h) einem Vinylhalogenidpolymer oder
- g) einem technischen Thermoplasten umfasst.

3. Elastische Folie nach Anspruch 1, worin

(I) das im Wesentlichen statistische Interpolymer, Bestandteil (A), in einer Menge von 90 bis 95 Gew.% vorliegt (bezogen auf die vereinigten Gewichte der Bestandteile A und des Polymers, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A), und einen I₂ von 0,5 bis 100 g/10 min und einen M_w/M_n von 2 bis 5 aufweist, und umfasst:

- (1) von 15 bis 29 Mol% an Polymereinheiten, welche abgeleitet sind von
- (i) dem aromatischen Vinylmonomer, welches Styrol, Alpha-Methylstyrol, ortho-, meta- und para-Methylstyrol und die am Ring halogenierten Styrole umfasst, oder
 - (ii) den aliphatischen oder cycloaliphatischen Vinyl- oder Vinylidenmonomeren, welche 5-Ethyliden-2-norbor-

- nen oder 1-Vinylcyclohexen, 3-Vinylcyclohexen und 4-Vinylcyclohexen umfassen;
- (2) von 71 bis 85 Mol% an Polymereinheiten, welche von dem Alpha-Olefin abgeleitet sind, welches Ethylen oder Ethylen und mindestens eines von Propylen, 4-Methyl-1-penten, 1-Buten, 1-Hexen oder 1-Octen umfasst; und
- (3) die ethylenisch ungesättigten, polymerisierbaren Monomere, welche andere sind als die, welche von (1) und (2) abgeleitet sind, Norbornen sind; und
- (II) das Polymer, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A, in einer Menge von 5 bis 10 Gew.% vorliegt (bezogen auf die vereinigten Gewichte der Bestandteile A und des Polymers, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A), und eines oder mehrere von
- a) einem im Wesentlichen linearen Ethylen/Alpha-Olefin-Interpolymer;
 - b) einem heterogenen Ethylen/C₃-C₈-Alpha-Olefin-Interpolymer;
 - c) einem Ethylen/Propylengummi (EPM), Ethylen/Propylen-Dienmonomer-Terpolymer (EPDM), isotaktischen Polypropylen;
 - d) einem Styrol/Ethylen-Buten-Copolymer, einem Styrol/Ethylen-Propylen-Copolymer, einem Styrol/Ethylen-Buten/Styrol (SEBS) Copolymer, einem Styrol/Ethylen-Propylen/Styrol (SEPS) Copolymer;
 - e) den Acrylnitril-Butadien-Styrol (ABS) Polymeren, Styrol-Acrylnitril (SAN), Polystyrol, schlagzähem Polystyrol;
 - f) Polyisopren, Polybutadien, natürlichen Gummis, Ethylen/Propylengummi, Ethylen/Propylen-Dien (EPDM) Gummi, Styrol/Butadiengummi, thermoplastischen Polyurethanen;
 - g) Epoxiden, Vinylesterharzen, Polyurethanen, phenolischen Harzen;
 - h) Homopolymeren oder Copolymeren von Vinylchlorid oder Vinylidenchlorid oder
 - i) Poly(methylmethacrylat), Polyester, Nylon-6, Nylon-6,6, Poly(acetal), Poly(amid), Poly(arylat), Poly(carbonat), Poly(butylen) und Polybutylen- und Polyethylenterephthalaten umfasst.

4. Elastische Folie nach Anspruch 3, worin der Bestandteil A1(i) Styrol ist, der Bestandteil A2 Ethylen ist und das Polymer, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A, Polystyrol ist.

5. Elastische Folie nach Anspruch 3, worin der Bestandteil A1 (i) Styrol ist, und der Bestandteil A2 Ethylen und mindestens eines von Propylen, 4-Methyl-1-penten, 1-Buten, 1-Hexen oder 1-Octen ist; und das Polymer, welches anders ist als das des Bestandteils A, Polystyrol ist.

6. Fabrikationsgegenstand, umfassend die elastische Folie nach Anspruch 1.

7. Fabrikationsgegenstand, umfassend die elastische Folie nach Anspruch 4.

8. Fabrikationsgegenstand, umfassend die elastische Folie nach Anspruch 5.

9. Fabrikationsgegenstand nach einem der Ansprüche 6–8 in Form eines Bandes, einer Bandage, Inkontinenzkleidung, Einwegwindel, Einweg- und Schutzbekleidung und -stoffe, einer Lebensmittelverpackung, Fleischverpackung oder einer Haushaltsverpackung.

10. Mehrschichtfolie, umfassend mindestens zwei Schichten, worin mindestens eine der Schichten in der Querrichtung ein Rückformvermögen von mehr als oder gleich 80% aufweist, und in der Maschinenrichtung ein Rückformvermögen von mehr als oder gleich 60% aufweist, und eine Polymerzusammensetzung umfasst, welche ein Gemisch umfasst aus:

(A) mindestens einem im Wesentlichen statistischen Interpolymer, welches in einer Menge von 50 bis 100 Gew.% vorliegt (bezogen auf die vereinigten Gewichte der Bestandteile A und des Polymers, das ein anderes ist als das des Bestandteils A), und eine Dichte von mehr als 0,93 g/cm³, einen I₂ von 0,1 bis 1 000 g/10 min und einen M_w/M_n von 1,5 bis 20 aufweist, welches umfasst:

- (i) mindestens einem aromatischen Vinylmonomer, oder
- (ii) mindestens einem aliphatischen oder cycloaliphatischen Vinyl- oder Vinylidenmonomer, oder
- (iii) einer Kombination aus mindestens einem aromatischen Vinylmonomer und mindestens einem aliphatischen oder cycloaliphatischen Vinyl- oder Vinylidenmonomer, und

(2) von 60 bis 90 Mol% an Polymereinheiten, welche abgeleitet sind von Ethylen oder mindestens einem C₃₋₂₀-Alpha-Olefin; und optional

(3) von 0 bis 20 Mol% an Polymereinheiten, welche abgeleitet sind von einem oder mehreren ethylenisch ungesättigten, polymerisierbaren Monomeren, welche andere sind als diejenigen in (1) und (2); und

(B) mindestens einem Polymer, welches anders ist als das des Bestandteils A, welches in einer Menge von 0 bis 50 Gew.% vorliegt, bezogen auf die vereinigten Gewichte des Bestandteils A und des Polymers, welches

ein anderes ist als das des Bestandteils A.

11. Mehrschichtfolie nach Anspruch 10, worin

(I) das im Wesentlichen statistische Interpolymer in einer Menge von 75 bis 100 Gew.% vorliegt (bezogen auf die vereinigten Gewichte der Bestandteile A und des Polymers, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A), und einen I_2 von 0,5 bis 200 g/10 min und einen M_w/M_n von 1,8 bis 10 aufweist, und umfasst:

(1) von 13 bis 33 Mol% an Polymereinheiten, welche abgeleitet sind von

(i) dem aromatischen Vinylmonomer, welches durch die folgende Formel

dargestellt wird, worin R^1 ausgewählt ist aus der Gruppe der Reste, bestehend aus Wasserstoff und Alkylresten mit drei oder weniger Kohlenstoffatomen, und Ar eine Phenylgruppe oder eine Phenylgruppe ist, welche mit 1 bis 5 Substituenten substituiert ist, welche ausgewählt sind aus der Gruppe bestehend aus Halogen, C_{1-4} -Alkyl und C_{1-4} -Halogenalkyl; jedes R^2 jeweils unabhängig ausgewählt ist aus der Gruppe der Reste, bestehend aus Wasserstoff und Alkylresten mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, und n einen Wert von Null bis 4 aufweist; und

(ii) dem aliphatischen oder cycloaliphatischen Vinyl- oder Vinylidenmonomer, welches durch die folgende Formel dargestellt wird, worin A^1 ein sterisch voluminöser, aliphatischer oder cycloaliphatischer Substituent mit bis zu 20 Kohlenstoffatomen ist, R^1 ausgewählt ist aus der Gruppe von Resten bestehend aus Wasserstoff und Alkylresten mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen; jedes R^2 jeweils unabhängig ausgewählt ist aus der Gruppe der Reste, bestehend aus Wasserstoff und Alkylresten mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen; oder alternativ R^1 und A^1 zusammen ein Ringsystem bilden; und

(2) von 67 bis 87 Mol% an Polymereinheiten, welche von dem Alpha-Olefin abgeleitet sind, welches Ethylen oder Ethylen und mindestens eines von Propylen, 4-Methyl-1-penten, 1-Buten, 1-Hexen oder 1-Octen umfasst; und

(3) die ethylenisch ungesättigten, polymerisierbaren Monomere, welche andere sind als die, welche von (1) und (2) abgeleitet sind, Norbornen oder ein mit C_{1-10} -Alkyl oder C_{6-10} -Aryl substituiertes Norbornen umfassen; und

(II) das Polymer, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A, in einer Menge von 0 bis 25 Gew.% vorliegt (bezogen auf die vereinigten Gewichte der Bestandteile A und des Polymers, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A), und eines oder mehrere von

a) einem homogenen Interpolymer;

b) einem heterogenen Interpolymer;

c) einem thermoplastischen Olefin;

d) einem styrolischen Blockcopolymer;

e) einem styrolischen Homo- oder Copolymer;

f) einem Elastomer;

g) einem duroplastischen Polymer;

h) einem Vinylhalogenidpolymer oder

i) einem technischen Thermoplasten umfasst.

12. Mehrschichtfolie nach Anspruch 10, worin

(I) das im Wesentlichen statistische Interpolymer, Bestandteil (A), in einer Menge von 90 bis 95 Gew.% vorliegt (bezogen auf die vereinigten Gewichte der Bestandteile A und des Polymers, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A), und einen I_2 von 0,5 bis 100 g/10 min und einen M_w/M_n von 2 bis 5 aufweist, und umfasst:

(1) von 15 bis 29 Mol% an Polymereinheiten, welche abgeleitet sind von

(i) dem aromatischen Vinylmonomer, welches Styrol, Alpha-Methylstyrol, ortho-, meta- und para-Methylstyrol und die am Ring halogenierten Styrole umfasst, oder

(ii) den aliphatischen oder cycloaliphatischen Vinyl- oder Vinylidenmonomeren, welche 5-Ethyliden-2-norbornen oder 1-Vinylcyclohexen, 3-Vinylcyclohexen und 4-Vinylcyclohexen umfassen;

(2) von 71 bis 85 Mol% an Polymereinheiten, welche von dem Alpha-Olefin abgeleitet sind, welches Ethylen oder Ethylen und mindestens eines von Propylen, 4-Methyl-1-penten, 1-Buten, 1-Hexen oder 1-Octen umfasst; oder

(3) die ethylenisch ungesättigten, polymerisierbaren Monomere, welche andere sind als die, welche von (1) und (2) abgeleitet sind, Norbornen sind; und

(II) das Polymer, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A, in einer Menge von 5 bis 10 Gew.% vorliegt (bezogen auf die vereinigten Gewichte der Bestandteile A und des Polymers, welches anders ist als das des Bestandteils A), und eines oder mehrere von

a) einem im Wesentlichen linearen Ethylen/Alpha-Olefin-Interpolymer;

b) einem heterogenen Ethylen/ C_3 - C_8 -Alpha-Olefin-Interpolymer;

c) einem Ethylen/Propylengummi (EPM), Ethylen/Propylen-Dienmonomer-Terpolymer (EPDM), isotaktischen Polypropylen;

d) einem Styrol/Ethylen-Buten-Copolymer, einem Styrol/Ethylen-Propylen-Copolymer, einem Styrol/Ethy-

- len-Buten/Styrol (SEBS) Copolymer, einem Styrol/Ethylen-Propylen/Styrol (SEPS) Copolymer;
e) den Acrylnitril-Butadien-Styrol (ABS) Polymeren, Styrol-Acrylnitril (SAN), Polystyrol, schlagzähem Polystyrol;
f) Polyisopren, Polybutadien, natürlichen Gummi, Ethylen/Propylengummi, Ethylen/Propylendien (EPDM) Gummi, Styrol/Butadiengummi, thermoplastischen Polyurethanen;
g) Epoxiden, Vinylesterharzen, Polyurethanen, phenolischen Harzen;
h) Homopolymeren oder Copolymeren von Vinylchlorid oder Vinylidenchlorid oder
i) Poly(methylmethacrylat), Polyester, Nylon-6, Nylon-6,6, Poly(acetal), Poly(amid), Poly(arylat), Poly(carbonat), Poly(butylen) und Polybutylen- und Polyethylenterephthalaten umfasst.

13. Mehrschichtfolie nach Anspruch 12, worin der Bestandteil A1(i) Styrol ist, der Bestandteil A2 Ethylen ist und das Polymer, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A, Polystyrol ist.

14. Mehrschichtfolie nach Anspruch 12, worin der Bestandteil A1(i) Styrol ist, und der Bestandteil A2 Ethylen und mindestens eines von Propylen, 4-Methyl-1-Penten, 1-Buten, 1-Hexen oder 1-Octen ist, und das Polymer, welches ein anderes ist als das des Bestandteils A, Polystyrol ist.

15. Fabrikationsgegenstand, umfassend die Mehrschichtfolie nach Anspruch 10.

16. Fabrikationsgegenstand, umfassend die Mehrschichtfolie nach Anspruch 13.

17. Fabrikationsgegenstand, umfassend die Mehrschichtfolie nach Anspruch 14.

18. Fabrikationsgegenstand nach einem der Ansprüche 15–17 in Form eines Bandes, einer Bandage, Inkontinenzkleidung, Einwegwindel, Einweg- und Schutzbekleidung und -stoffe, einer Lebensmittelverpackung, Fleischverpackung oder einer Haushaltsverpackung.

19. Elastische Folie nach Anspruch 1, worin der Bestandteil A vernetzt ist.

20. Mehrschichtfolie nach Anspruch 10, worin der Bestandteil A vernetzt ist.

Es folgt kein Blatt Zeichnungen