

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6638082号

(P6638082)

(45) 発行日 令和2年1月29日 (2020.1.29)

(24) 登録日 令和1年12月27日 (2019.12.27)

(51) Int. Cl. F I
C O 8 L 23/20 (2006.01) C O 8 L 23/20
C O 8 L 23/04 (2006.01) C O 8 L 23/04
B 6 5 D 53/00 (2006.01) B 6 5 D 53/00

請求項の数 10 (全 18 頁)

(21) 出願番号	特願2018-548068 (P2018-548068)	(73) 特許権者	513076604
(86) (22) 出願日	平成29年3月23日 (2017.3.23)		バーゼル・ポリオレフィン・イタリア・ソ
(65) 公表番号	特表2019-509384 (P2019-509384A)		チエタ・ア・レスポンサビタ・リミター
(43) 公表日	平成31年4月4日 (2019.4.4)		タ
(86) 国際出願番号	PCT/EP2017/056977		イタリア 20121 ミラノ ヴィア・
(87) 国際公開番号	W02017/162817		ポンタッチョ 10
(87) 国際公開日	平成29年9月28日 (2017.9.28)	(74) 代理人	100100354
審査請求日	平成30年9月10日 (2018.9.10)		弁理士 江藤 聡明
(31) 優先権主張番号	16162172.7	(72) 発明者	ロベルタ・マルチーニ
(32) 優先日	平成28年3月24日 (2016.3.24)		イタリア共和国 フェラーラ 44122
(33) 優先権主張国・地域又は機関	欧州特許庁 (EP)		ピアッツァーレ・グイード・ドネガニ
			12 バーゼル・ポリオレフィン・イタリア
			ア・ソチエタ・ア・レスポンサビタ・リ
			ミタータ内
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 軟性ポリオレフィン組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

A) 12モル%から18モル%の共重合エチレン含量を有し、 シヨアA 値が80～40であり、第2の加熱スキャンにてDSCで検出可能な溶融ピークを有さない、ブテン-1とエチレンとの共重合体65重量%～82重量%、及び

B) 23 でISO 1183に従って測定された、 $0.914\text{ g/cm}^3 \sim 0.935\text{ g/cm}^3$ の密度を有するLDPEエチレン重合体18重量%～35重量%を含み、

ここで、A)とB)の量は、A)+B)の総量を基準とし、かつDSCの第2加熱スキャンは、分当り10 の加熱速度で行われる、ポリオレフィン組成物。

【請求項 2】

0.5～8 g/10分のMIEを有し、MIEがISO 1133に従って決定された、2.16 kgの荷重下で190 でメルトフローレートである、請求項1に記載のポリオレフィン組成物。

【請求項 3】

第2加熱スキャンにてDSCによって測定された7 J/g～35 J/gの H_{fus} を有し、前記第2加熱スキャンが分当り10 の加熱速度で行われる、請求項1または請求項2に記載のポリオレフィン組成物。

【請求項 4】

前記ブテン-1共重合体成分A)は、下記の付加的な特徴、すなわち、

- 0.5 g/10分～3 g/10分のMIE；

10

20

- ショアD値が20以下；
- M_w / M_n 値（ここで、 M_w は、重量平均モル質量であり、 M_n は数平均モル質量であり、両方はGPCによって測定される）が3以下；
- 23（ISO 2285）の100%変形で30%未満の引張永久歪み；
- 80%超過のアイソタクチックペンタド形態のブテン-1単位のパーセント（mmmm%）；
- ISO 527によって測定された3MPa～20MPaの引張破断応力；
- ISO 527によって測定された550%～1000%の引張破断伸度；
- 固有粘度（I.V.）が1dl/g以上であり；
- X-線によって測定された30%未満の結晶化度；
- 0.895g/cm³以下の密度；
- 0で15重量%未満のキシレン不溶性分画の含量、
のうち少なくとも一つを有する、請求項1に記載のポリオレフィン組成物。

10

【請求項5】

請求項1～請求項4のいずれか1項に記載のポリオレフィン組成物を含む成形品。

【請求項6】

ガスキットの形態である、請求項5に記載の成形品。

【請求項7】

請求項6に記載の成形品を含む、ツイストクロージャ。

【請求項8】

食品容器で使用される、請求項7に記載のツイストクロージャ。

20

【請求項9】

プレスオン/ツイストオフキャップの形態である、請求項7又は請求項8に記載のツイストクロージャ。

【請求項10】

- a) 熔融状態のポリオレフィン組成物をクロージャの内部表面上に配置する段階；及び
 - b) 前記配置されたポリオレフィン組成物を形成する段階、を含む
- 請求項6に記載の成形品を製造する方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

30

【0001】

本発明は、良好な引張及び弾性特性と共に、低いショア硬度値を有する軟性及び熱可塑性ポリオレフィン組成物に関する。

【背景技術】

【0002】

良好な熱可塑性挙動を維持しつつ高い軟性を有するポリオレフィン組成物が当業界において開示されている。これらは、ポリオレフィンを代表する値をもつ特性（例えば、化学的慣性、機械的性質及び無毒性）によって多くの適用分野で使用されている。

【0003】

組成物は、一般的に多様な相対的な量で結晶質及び非晶質部分を含む。

40

【0004】

このような結晶質及び非晶質部分は、同様の重合体鎖及び/又は別個の相に存在することができる。

【0005】

このような部分の化学的組成物、これらの相対的な量及びこれらがポリオレフィン組成物の中で組合される方式によって異なる特性のセットが得られる。

【0006】

しかし、常に、軟性、可撓性及び熱可塑性挙動の良好なバランスを達成することは難しい。

【0007】

50

軟性、可撓性及び熱可塑性組成物の実施例はPCT公開公報WO2009/080485において提示されており、ここで、低い屈曲弾性率及びショア硬度はプロピレン及びヘキセン-1の結晶質共重合体を高溶解性で、従って高非結晶のエチレン共重合体と組み合わせることによって得られる。ブテン-1共重合体及びプロピレン共重合体のブレンドを含む押出又は成形プロファイルを製造するのに適した組成物の例は、EP2631 271 A1に提供される。

【0008】

特定のブテン-1重合体を減じた量のエチレン重合体と組み合わせることで、優秀で特異な特性のセットを有する軟性ポリオレフィン組成物を得られることが今、見出された。

【0009】

このような特性は、クロージャ用ガスケットを製造するための組成物を使用して堅固で耐久性のあるシール(seal)を提供することができることを可能にする。

【0010】

ガスケットは、非常に広い範囲のクロージャ型において密封要素として使用される。

【0011】

特に、これらは、一般にガラス又はプラスチック材料で製造されたジャー(jar)及びボトルのような容器のツイストクロージャ(twist closure)に広く使用される。

【0012】

容器の用途に応じて、クロージャは異なり、しばしば要求される要件を受け、その移行において、ガスケットが重要な役割を果たす。

【0013】

特に、ガスケットは、長時間間使用した後でさえも堅固なシールを保障するのに十分に柔軟で弾性があるべきである。

【0014】

例えば、米国特許第5,849,418号には、圧縮に耐えるのに十分に硬いでなければならぬが、良好なシールが形成されるほどに十分に柔軟であるべきであることが説明されている。約70~約100範囲のショアA硬度が勧奨されている。

【0015】

一方、ガスケットが得られる材料は、クロージャの内部表面に適用して成形するのに容易でなければならない。

【0016】

したがって、プラスチック材料のガスケットにおいて、熱可塑性の挙動が好ましい。

【0017】

しかしながら、常に、軟性、可撓性及び熱可塑性挙動の良好なバランスを達成することは難しい。

【0018】

本発明のポリオレフィン組成物を使用することにより、前記要件に対して特異な特性のプロファイルを有するクロージャ用ガスケットを得ることができるということが今、見出された。

【発明の概要】

【課題を解決するための手段】

【0019】

本開示は、ポリオレフィン組成物であって：

A) 最大18モル%の共重合エチレン含量を有し、第2の加熱スキャンにてDSCで検出可能な溶融ピークを有さないブテン-1とエチレンとの共重合体60重量%~89重量%、好ましくは65重量%~85重量%、より好ましくは65重量%~82重量%；

B) 23でISO 1183に従って測定された、0.900~0.970g/cm³、好ましくは0.900~0.965g/cm³の密度を有するエチレン重合体11重量%~40重量%、好ましくは15重量%~35重量%、より好ましくは18重量%~3

10

20

30

40

50

5重量%を含み。；

ここで、A)とB)の量は、A) + B)の総量を示し、DSCの第2の加熱スキャンは、分当り10の加熱速度で行われるポリオレフィン組成物を提供する。

【0020】

本明細書で提供される組成物は、溶融エンタルピー値によって明らかなように、結晶質分画の存在によって依然として熱可塑性挙動を維持しつつ高い軟性（ショアAが90未満）、良好な引張特性（破断伸度900%～1000%）及び弾性特性（23で圧縮永久歪み60未満）を有する。

【発明を実施するための形態】

【0021】

本明細書で提供されるポリオレフィン組成物は、一般に成分B)の溶融温度 T_m と等しいか、又は近い溶融温度 T_m 、すなわち105～135、好ましくは105～125、より好ましくは110～115を有する。

【0022】

一般に、単一の溶融ピークは、前記温度範囲のポリオレフィン組成物の第2のDSCスキャンにおいて検出される。

【0023】

一つ以上のピークが検出される場合、前記温度範囲で最も強い溶融ピークの温度は、成分B)及びA)及びB)を含むポリオレフィン組成物の両方に対する T_m 値として取られる。

【0024】

従って、本明細書において提供されるポリオレフィン組成物の H_{fus} 値は、105～135のDSC温度範囲で溶融ピークの面積又は溶融ピークの総面積（二つ以上である場合）によって付与されることが好ましい。

【0025】

特に、本発明のポリオレフィン組成物は、第2の加熱スキャンにてDSCで測定された H_{fus} が7J/g～35J/g、好ましくは8J/g～28J/gである。

【0026】

前記組成物に対するMIEの好ましい値は、0.5g/10分～8g/10分であり、MIEは、ISO 1133によって決定された2.16kgの荷重で190でのメル

【0027】

前記組成物に対する好ましいショアA値は、90未満、特に88以下であり、下限は60である。

【0028】

相応して、ショアD値は、20以下、特に20～5、より好ましくは20未満、特に20～5未満である。

【0029】

溶融及び冷却直後のブテン-1共重合体成分A)は、第2加熱スキャンで溶融ピークを示さない。しかし、これは結晶化可能であり、つまり、溶融され約10日後に重合体は測定可能な溶融点及びDSCで測定された溶融エンタルピーを示す。言い換えれば、ブテン-1共重合体は、本出願の実験的なセクションにおいて記載されるDSC方法によってサンプルの熱履歴を除去した後に測定されたポリブテン-1の結晶化度(T_m II)DSCに起因する溶融温度を示さない。

【0030】

また、ブテン-1共重合体成分A)は、下記の付加的な特徴のうち少なくとも一つを有し得る：

- 0.5g/10分～3g/10分のMIE；
- 12モル%の共重合エチレン含量の下限；
- ショアA値が80以下、より好ましくは70以下、特に80～40又は70～40

10

20

30

40

50

- ;
- ショアD値が20以下、特に20～5、より好ましくは20未満、特に20～5未満;
 - M_w / M_n 値(ここで、 M_w は、重量平均モル質量であり、 M_n は数平均モル質量であり、両方はGPCによって測定される)が3以下、特に3～1.5。
 - 23 (ISO 2285)の100%変形で30%未満の引張永久歪み、より好ましくは20%以下であり、ここで、下限は5であり;
 - 80%超過、好ましくは85%以上、より好ましくは90%以上のアイソタクチックペンタド形態のブテン-1単位のパーセント(mm mm %)、ここで、上限は99%であり;
 - ISO 527によって測定された3 MPa～20 MPa、より好ましくは4 MPa～13 MPaの引張破断応力;
 - ISO 527によって測定された550%～1000%;より好ましくは700%～1000%の引張破断伸度;
 - 固有粘度(I.V.)が1 dl/g以上;より好ましくは1.5 dl/g以上、ここで、上限は3 dl/gであり;
 - X-線を通じて測定された30%未満、より好ましくは20%未満の結晶化度;
 - 0.895 g/cm³以下、より好ましくは0.875 g/cm³以下の密度;ここで、下限は0.86 g/cm³であり;
 - 0で15重量%未満のキシレン不溶性分画の含量、ここで、下限は0%である。

10

【0031】

ブテン-1共重合体成分A)は:

- 立体剛性メタロセン化合物、
- アルキルメタロセン陽イオンを形成できるアルモキサン又は化合物;及び選択的に
- 有機アルミニウム化合物を接触させて得られることができるメタロセン触媒システムの存在下で単量体を重合させることで得ることができる。

【0032】

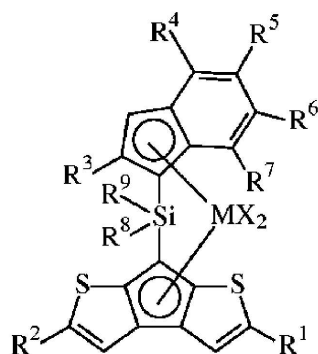
好ましくは、立体剛性メタロセン化合物は下記化学式(I)に属する。

【0033】

【化I】

20

30



40

【0034】

前記式中で、

Mは、元素周期率表第4族に属するものから選択された遷移金属の原子であり;好ましくはMはジルコニウムであり;

Xは、お互い同一であるか異なり、水素原子、ハロゲン原子、R、OR、OR'O、OSO₂CF₃、OCOR、SR、NR₂又はPR₂基であり、ここで、Rは線状又は分岐状、飽和又は不飽和のC₁-C₂₀-アルキル、C₃-C₂₀-シクロアルキル、C₆-C₂₀-アリール、C₇-C₂₀-アルキルアリール又はC₇-C₂₀-アリールアルキルラジカルであり、これらは、元素周期率表第13族～第17族に属するヘテロ原子を選択的に含み;R'はC₁-C₂₀-アルキルリデン、C₆-C₂₀-アリーリデン、C₇

50

- C_{20} - アルキルアリーリデン、又は $C_7 - C_{20}$ - アリールアルキリデンラジカルであり；好ましくはXは水素原子、ハロゲン原子、OR' O又はR基であり；より好ましくはXは塩素又はメチルラジカルであり；

R^1 、 R^2 、 R^5 、 R^6 、 R^7 、 R^8 及び R^9 はお互い同一であるか異なり、水素原子、又は線状又は分岐状、飽和又は不飽和の $C_1 - C_{20}$ - アルキル、 $C_3 - C_{20}$ - シクロアルキル、 $C_6 - C_{20}$ - アリール、 $C_7 - C_{20}$ - アルキルアリール又は $C_7 - C_{20}$ - アリールアルキルラジカルであり、元素周期律表の第13族～第17族に属するヘテロ原子を選択的に含有し；又は R^5 及び R^6 及び/又は R^8 及び R^9 は、選択的に飽和又は不飽和5員又は6員環を形成することができ、前記環は置換体で $C_1 - C_{20}$ - アルキルラジカルを有し得；但し、 R^6 又は R^7 中少なくとも一つは、元素周期律表の第3族～第17族に属するヘテロ原子を選択的に含有する、線状又は分岐状、飽和又は不飽和 $C_1 - C_{20}$ - アルキルラジカルであり、好ましくは $C_1 - C_{10}$ - アルキルラジカルであり、

10

R^3 及び R^4 は、お互い同一であるか異なり、元素周期律表の第13～17族に属するヘテロ原子を選択的に含有する線状又は分岐状、飽和又は不飽和 $C_1 - C_{20}$ - アルキルラジカルであり；好ましくは R^3 及び R^4 は互いに同一であるか異なり、 $C_1 - C_{10}$ - アルキルラジカルであり；より好ましくは R^3 はメチル又はエチルラジカルであり； R^4 はメチル、エチル又はイソプロピルラジカルである。

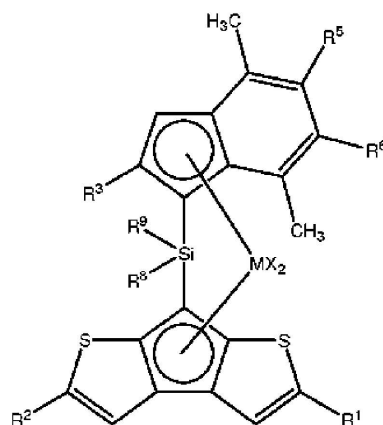
【0035】

好ましくは、化学式(I)の化合物は下記化学式(Ia)を有する。

20

【0036】

【化Ia】



30

前記式中で、

M、X、 R^1 、 R^2 、 R^5 、 R^6 、 R^8 及び R^9 は前記に記載されたとおりであり；

R^3 は、元素周期律表の第13族～第17族に属するヘテロ原子を選択的に含有する線状又は分岐状、飽和又は不飽和 $C_1 - C_{20}$ - アルキルラジカルであり；好ましくは R^3 は $C_1 - C_{10}$ - アルキルラジカルであり；より好ましくは R^3 はメチル、又はエチルラジカルである。

40

【0037】

メタロセン化合物の具体例は、ジメチルシランジイル{(1-(2,4,7-トリメチルインデニル)-7-(2,5-ジメチル-シクロペンタ[1,2-b:4,3-b']ジチオフェン)}ジルコニウムジクロライド及びジメチルシランジイル{(1-(2,4,7-トリメチルインデニル)-7-(2,5-ジメチル-シクロペンタ[1,2-b:4,3-b']ジチオフェン)}ジルコニウムジメチルである。

【0038】

アルモキサンの例は、メチルアルモキサン(MAO)、テトラ-(イソブチル)アルモキサン(TIBA O)、テトラ-(2,4,4-トリメチル-ペンチル)アルモキサン(TIOAO)、テトラ-(2,3-ジメチル)アルモキサン(TDMBAO)及びテトラ

50

- (2 , 3 , 3 - トリメチルブチル) アルモキサン (T T M B A O) である。

【 0 0 3 9 】

アルキルメタロセン陽イオンを形成することのできる化合物の例は、化学式 $D^+ E^-$ の化合物であり、ここで、 D^+ は陽性子を供与して化学式 (I) のメタロセンの置換体 X と非可塑的に反応できるブレンステッド酸であり、 E^- は二つの化合物の反応に起因する活性触媒種を安定化させ、オレフィン単量体によって除去され得るようにする十分に不安定な常用性陰イオンである。好ましくは、陰イオン E^- は一つ以上のホウ素原子を含む。

【 0 0 4 0 】

有機 - アルミニウム化合物の例は、トリメチルアルミニウム (T M A)、トリイソブチルアルミニウム (T I B A L)、トリス (2 , 4 , 4 - トリメチル - ペンチル) アルミニウム (T I O A)、トリス (2 , 3 - ジメチルブチル) アルミニウム (T D M B A)、及びトリス (2 , 3 , 3 - トリメチルブチル) アルミニウム (T T M B A) である。

10

【 0 0 4 1 】

前記触媒システム及びこのような触媒システムを使用する重合工程の例は、W O 2 0 0 4 / 0 9 9 2 6 9 及び W O 2 0 0 9 / 0 0 0 6 3 7 で探することができる。

【 0 0 4 2 】

一般的に、ブテン - 1 共重合体成分 A) の製造のための重合工程は、知られた技術、例えば、希釈剤として、液体不活性炭化水素を使用するスラリー重合又は例えば、反応媒体に液体ブテン - 1 を使用する溶液重合によって行われることができる。また、一つ以上の流動層又は機械的に攪拌された反応器で作動する、気相で重合工程を行うことが可能になり得る。反応媒体として液体ブテン - 1 で行われる重合が好ましい。

20

【 0 0 4 3 】

概して、重合温度は、一般的に - 1 0 0 ~ 2 0 0 、好ましくは 2 0 ~ 1 2 0 、より好ましくは 4 0 ~ 9 0 、最も好ましくは 5 0 ~ 8 0 である。

【 0 0 4 4 】

重合圧力は、一般的に 0 . 5 b a r ~ 1 0 0 b a r を含む。重合は、分子量調節剤の濃度、共単量体濃度、温度、圧力のように同一であるか異なる反応条件下で作用できる一つ以上の反応器で行われることができる。

【 0 0 4 5 】

エチレン重合体 B) は、H D P E (通常的に 0 . 9 3 5 g / c m ³ ~ 0 . 9 7 0 g / c m ³、特に 0 . 9 3 5 g / c m ³ ~ 0 . 9 6 5 g / c m ³ の密度を有する高密度ポリエチレン)、M D P E 及び L L D P E (通常的に 0 . 9 1 5 g / c m ³ ~ 0 . 9 3 4 g / c m ³ の密度を有する中間密度及び線形低密度ポリエチレン)、V L D P E (通常的に 0 . 9 0 0 g / c m ³ ~ 0 . 9 1 4 g / c m ³ の密度を有する超低密度ポリエチレン)、及び L D P E (低密度ポリエチレン) からなる群から選択される。L D P E が好ましい。

30

【 0 0 4 6 】

前記前記エチレン重合体の混合物はまた、エチレン重合体 B) の定義に含まれる。

【 0 0 4 7 】

特に、成分 B) に使用され得る L D P E は、フリーラジカル開始剤を使用して高圧重合により製造されたアクリル酸ブチルのように、少量の他の共単量体を含有するエチレン単独重合体又はエチレン共重合体である。

40

【 0 0 4 8 】

L D P E 単独重合体が特に好ましい。

【 0 0 4 9 】

前記 L D P E の密度は、通常的に 0 . 9 1 4 g / c m ³ ~ 0 . 9 3 5 g / c m ³ の範囲である。

【 0 0 5 0 】

エチレン重合体 B) の M I E、特に前記 L D P E の M I E は、好ましくは 0 . 5 g / 1 0 分 ~ 5 0 g / 1 0 分、より好ましくは 1 g / 1 0 分 ~ 4 0 g / 1 0 分、特に 1 g / 1 0 分 ~ 1 0 g / 1 0 分である。

50

【 0 0 5 1 】

前記 L D P E の融点は、一般的に 1 1 0 ~ 1 1 5 である。

【 0 0 5 2 】

このような種類の L D P E は、当業界においてよく知られており、市販されている。具体的な実施例は、E s c o r e n e 及び L u p o l e n という商標名で利用可能な市販中の重合体である。

【 0 0 5 3 】

本明細書に記載されている前記 H D P E、M D P E、L L D P E 及び V L D P E 重合体は、当業界においてよく知られており、チーグラ－・ナッタ又は単一部位重合触媒の存在下で低圧重合で製造され得る。

10

【 0 0 5 4 】

通常的に、チーグラ－・ナッタ触媒は、元素周期律表の第 1 族、第 2 族又は第 1 3 族の有機金属化合物と元素周期律表の第 4 族～第 1 0 族の遷移金属化合物（新規表記法）との反応生成物を含む。特に、遷移金属化合物は、T i、V、Z r、C r 及び H f の化合物のうちから選択されることができ、好ましくは M g C l₂ 上に担持される。

【 0 0 5 5 】

特に好ましい触媒は、元素周期律表の第 1 族、第 2 族又は第 1 3 族の前記有機金属化合物、及び T i 化合物及び M g C l₂ 上に担持された選択的に電子供与体化合物を含む固体触媒成分との反応の生成物を含む。

20

【 0 0 5 6 】

好ましい有機金属化合物は、アルミニウムアルキル化合物である。

【 0 0 5 7 】

H D P E は単独重合体又はエチレン共重合体であり得るが、M D P E 及び L L D P E は共重合体である。

【 0 0 5 8 】

前記共重合体の全てにおいて、共単量体は、一般に一般式 C H₂ = C H R を有する C₄ - C₁₀ アルファ - オレフィンから選択され、ここで、R は、2 個～8 個の炭素原子を有するアルキルラジカル、線状又は分岐状、又はアリアルラジカルである。

【 0 0 5 9 】

C₄ - C₁₀ アルファ - オレフィンの具体的な実施例は、ブテン - 1、ペンテン - 1、4 - メチルペンテン - 1、ヘキセン - 1 及びオクテン - 1 である。

30

【 0 0 6 0 】

エチレン共重合体中の共単量体の量は、関連する共重合体の重量を示す、1 重量 % ～ 4 0 重量 %、特に 2 重量 % ～ 3 5 重量 % であり得る。

【 0 0 6 1 】

ポリオレフィン組成物はまた、酸化防止剤、光安定化剤、熱安定化剤、着色剤及び充填剤のような当業界で一般的に使用される添加剤を含有することができる。

【 0 0 6 2 】

ポリオレフィン組成物はまた、特に結晶質プロピレン単独重合体及びプロピレンとエチレン及び / 又は C₄ - C₁₀ アルファ - オレフィン（具体的な実施例は、前記で提供された通りである）との共重合体、及びエチレンとプロピレン及び / 又は高級アルファ - オレフィン、特にブテン - 1、ヘキセン - 1 又はオクテン - 1 のような共重合体のようにエラストマ性共重合体から選択される追加のポリオレフィンを含有することができる。このようなエチレン共重合体は、一般的に E P R 又は E P D M 共重合体として知られている。

40

【 0 0 6 3 】

プロピレン共重合体中の共単量体の量は、関連する共重合体の重量を示す、1 重量 % ～ 1 5 重量 %、特に 2 重量 % ～ 1 2 重量 % であり得る。

【 0 0 6 4 】

前記追加的なポリオレフィンの好ましい量は、ポリオレフィン組成物の総重量に対して 1 重量 % ～ 2 0 重量 %、より好ましくは 3 重量 % ～ 1 5 重量 % である。

50

【 0 0 6 5 】

特定の実施形態において、本ポリオレフィン組成物は、ポリオレフィン組成物の総重量を基準として、20重量%超過、特に15重量%以下のプロピレン重合体を含有しない。

【 0 0 6 6 】

このような量は、組成物に存在するプロピレン重合体の総量を表し、ここで“プロピレン重合体”は、支配的な量 (p r e v a i l i n g a m o u n t) のプロピレン、特に85重量%以上のプロピレンを含有するプロピレン単独重合体又は重合体を意味する。

【 0 0 6 7 】

ポリオレフィン組成物は成分を共に混合し、混合物を押出し、生成された組成物を知られた技術及び装置を使用してペレット化することによって製造されることができる。

10

【 0 0 6 8 】

本発明はまた前記ポリオレフィン組成物で製造されるか又は前記ポリオレフィン組成物を含む製造品を提供する。

【 0 0 6 9 】

このような物品は、軟性であり可撓性である。

【 0 0 7 0 】

一般的に、本発明のポリオレフィン組成物は当業界でよく知られた装備及び工程を使用して押出によって物品を製造するのに適合する。

【 0 0 7 1 】

このような物品の具体的な実施例は、ガスケット、特にクロージャ用ガスケット、好ましくはプラスチック及び/又は金属クロージャである。

20

【 0 0 7 2 】

前述のように、クロージャ用ガスケットは、一般的にガラス又はプラスチック材料で製造されたジャー及びボトルのような容器のツイストクロージャに広く使用される。

【 0 0 7 3 】

ツイストクロージャは、一般的に金属又はプラスチックで製造された円形形態のキャップ形態であり、容器のネジ型、円形ネック部の開口に向かう内部表面にライナーをホスティングする。

【 0 0 7 4 】

ガスケットは開口のリム (r i m) に堅固なシールを達成するのに使用される。

30

【 0 0 7 5 】

クロージャをツイスト (回転) させることによって容器を閉め開けができる。

【 0 0 7 6 】

しかし、プレス - オン / ツイスト - オフ (登録商標) キャップのようなキャップは、容器のネック部のネジ山要素に対してガスケットの弾性変形によって容器を閉めるためにまず容器に加圧し、続いてツイストして開くようにする。

【 0 0 7 7 】

従って、クロージャのタイプによって、ガスケットは様々な種類の形状及び機能を有し得る。

【 0 0 7 8 】

特に、一般的に密封機能を有するが、プレス - オン / ツイスト - オフ (登録商標) キャップでは、これは密封機能と保持機能の両方を有する。

40

【 0 0 7 9 】

他の種類のクロージャで、保持機能はクロージャの自体の本体でスレッド又はラグ (l u g) によって実施される。

【 0 0 8 0 】

前記クロージャは特に食品及び薬剤のパッケージングに使用するためのものである。

【 0 0 8 1 】

本発明のポリオレフィン組成物を使用して、空気及び液体密封ガスケットが得られる。

【 0 0 8 2 】

50

一般的に、ガスケットは本発明のポリオレフィン組成物から以下の段階を含む方法によって製造される：

- a) 溶融状態のポリオレフィン組成物をクロージャの内部表面上に配置する段階；
- b) 配置されたポリオレフィン組成物を形成する段階。

【0083】

前記定義された段階 a) は、一般的に当業界によく知られた押出機及び計量装置を使用して行い、ポリオレフィン組成物の制御された配置達成する。「制御された」とは、配置された材料の量と形相が制御されることを意味する。

【0084】

一般的に段階 a) に適用される押出温度は 160 ~ 220 である。

10

【0085】

段階 a) を行う前に、クロージャの内部表面はワニス又はラッカー (lacquer) の保護フィルムでコーティングされ得る。

【0086】

前記定義された段階 b) は溶融ポリオレフィン組成物をクロージャの内部表面に対して圧縮成形することによって行われる。

【0087】

前記記載された工程及び装備は、例えば、US 5,451,360 に開示されたように当業界によく知られている。

【0088】

20

得られたライナーは、クロージャの最終用途によって可変的な厚さの特に「O-リング」又は平たいフィルムのような相違な形状を有し得る。

【0089】

ガスケットが得られる本発明のポリオレフィン組成物の前述した特性から、このようなガスケットは軟性で弾性があるということが直ちに明白であり、従って、長時間の使用後にも堅固で耐久性のあるシールを提供する。

【0090】

他の重要な利点は、ポリオレフィン組成物の特性が軟化剤を添加せずに得られることである。前記軟化剤は、一般的に鉱油のような低分子量の材料で製造され、例えば、食品の遊離脂肪 / オイル成分との接触によって容易に抽出可能である。

30

【実施例】

【0091】

本明細書で提供される様々な実施形態、組成物及び方法の実施及び利点は以下の実施例で開示される。これら実施例は単なる例示的なものであり、いかなる方式にも本発明の範囲を限定しようとするものではない。

【0092】

下記分析方法は、重合体組成物を特性化するために使用される。

【0093】

熱的特性 (溶融温度及びエンタルピー)

パーキンエルマー (Perkin Elmer) DSC-7 器具社で示差走査熱量計 (DSC) によって決定される。

40

ブテン-1 共重合体 A) の溶融温度は下記方法によって決定した。

- T_{mII} (第2の加熱スキャンで測定) : 重合から得られた加重サップル (5 mg ~ 10 mg) をアルミニウムパンに密封し、200 で 10 / 分に対応するスキャン速度で加熱した。サンプルを 200 で 5 分間維持して全ての結晶体を完全に溶融させ、これによってサンプルの熱履歴を除去した。続いて、10 / 分に対応するスキャン速度で -20 まで冷却した後、ピーク温度を結晶化温度 (T_c) に取った。-20 で 5 分間放置した後、サンプルを 200 で 10 / 分に対応するスキャン速度で 2 回加熱した。このような第2加熱作業で、ピーク温度は、現在の場合、ポリブテン-1 (PB) 結晶形態 II (T_{mII}) の溶融温度及び全体の溶融エンタルピー (H_{fII}) としての面積

50

に取った。

【0094】

本発明のポリオレフィン組成物のブテン - 1 共重合体成分 A) は T_m I I ピークを有しない。

- T_m I を決定するためにサンプルを溶融し、200 で5分間保持した後、10 / 分の冷却速度で20 まで冷却した。

続いて、サンプルを室温で10日間貯蔵した。10日後、サンプルをDSCで実施し、
- 20 まで冷却した後、200 で10 / 分に対応するスキャン速度で加熱した。このような加熱作業で、サーモグラムで低温側から来る第1ピーク温度を溶融温度 (T_m I) と取った。

10

【0095】

共重合体成分 B) 及び重合体成分 A) 及び B) を含む全体組成物の溶融温度をブテン - 1 共重合体成分 A) の T_m I I の決定に対して前記報告したような同様の条件下で第2加熱スキャンで測定した。

【0096】

成分 B) 及び実施例の全体組成の両方は溶融温度 T_m に対応する110 ~ 115 の単一溶融ピークを示す。

【0097】

全体組成物のこのような溶融ピークの面積は、ポリオレフィン組成物の溶融エンタルピー $-H_{fus}$ に取った。

20

【0098】

屈曲弾性率

標準ISO 178によって、成形10日後に測定した。

【0099】

ショアA及びD

標準ISO 868によって、成形10日後に測定した。

【0100】

引張破断応力及び破断伸度

圧縮成形されたブランクに対する標準ISO 527によって、成形10日後に測定した。

30

【0101】

引張永久歪み

標準ISO 2285によって、成形10日後に測定した。

【0102】

圧縮永久歪み

標準ISO 815によって、成形10日後に測定した；

【0103】

MIE

標準ISO 1133によって、190 で2.16 kg の荷重で決定した。

【0104】

MIL

標準ISO 1133によって、230 で2.16 kg の荷重で決定した。

40

【0105】

固有粘度

標準ASTM D 2857によって、135 でテトラヒドロナフタレンの中で決定した。

【0106】

密度

標準ISO 1183によって、23 で決定した。

【0107】

50

共単量体含量

I R 分光法によって又はNMRによって決定した。

【0108】

特に、ブテン - 1 共重合体の場合、共重合体の ^{13}C - NMR スペクトルから共単量体の量を計算した。測定は、120 で二重重水素化 (dideuterated) 1, 1, 2, 2 - テトラクロロ - エタン中の重合体溶液 (8 重量% ~ 12 重量%) で実施した。 ^{13}C NMR スペクトルは、 ^1H - ^{13}C - カップリングを除去するためのパルスと CPD (WALTZ16) 間の 15 秒遅延、90° パルスを使用して 120 でフーリエ変換モードにて 150.91 MHz で作動する Bruker AV - 600 分光計で獲得した。約 1500 個の過渡信号は 60 ppm (0 ppm ~ 60 ppm) のスペクトル窓を使用して 32 K データポイントとして貯蔵した。

10

【0109】

共重合体組成物

ダイアド (Diad) 分布は、下記関係式を使用して ^{13}C NMR スペクトルで計算した：

- $PP = 100 I_1 /$
- $PB = 100 I_2 /$
- $BB = 100 (I_3 - I_{19}) /$
- $PE = 100 (I_5 + I_6) /$
- $BE = 100 (I_9 + I_{10}) /$
- $EE = 100 (0.5 (I_{15} + I_6 + I_{10}) + 0.25 (I_{14})) /$
- ここで、 $I = I_1 + I_2 + I_3 - I_{19} + I_5 + I_6 + I_9 + I_{10} + 0.5 (I_{15} + I_6 + I_{10}) + 0.25 (I_{14})$
- モル含量は、以下の関係式を使用してダイアドで得られた：
- $P (\text{m}\%) = PP + 0.5 (PE + PB)$
- $B (\text{m}\%) = BB + 0.5 (BE + PB)$
- $E (\text{m}\%) = EE + 0.5 (PE + BE)$

20

【0110】

I_1 、 I_2 、 I_3 、 I_5 、 I_6 、 I_9 、 I_{10} 、 I_{14} 、 I_{15} 、 I_{19} は ^{13}C NMR スペクトルにおけるピークの積分 (基準として 29.9 ppm で EEE シークエンスのピーク)。これらピークの割り当ては、文献「J. C. Randal Macromol. Chem Phys., C29, 201 (1989)」、文献「M. Kakugo, Y. Naito, K. Mizunuma and T. Miyatake, Macromolecules, 15, 1150 (1982)」、及び文献「H. N. Cheng, Journal of Polymer Science, Polymer Physics Edition, 21, 57 (1983)」によって行われた。これらは、表 A (文献「C. J. Carman, R. A. Harrington 及び C. E. Wilkes, Macromolecules, 10, 536 (1977)」による命名法) に収集されている。

30

【0111】

40

【表 A】

I	化学シフト (ppm)	炭素	シーケンス
1	47.34 - 45.60	$S_{\alpha\alpha}$	PP
2	44.07 - 42.15	$S_{\alpha\alpha}$	PB
3	40.10 - 39.12	$S_{\alpha\alpha}$	BB
4	39.59	$T_{\delta\delta}$	EBE
5	38.66 - 37.66	$S_{\alpha\gamma}$	PEP
6	37.66 - 37.32	$S_{\alpha\delta}$	PEE
7	37.24	$T_{\beta\delta}$	BBE
8	35.22 - 34.85	$T_{\beta\beta}$	<u>XB</u> X
9	34.85 - 34.49	$S_{\alpha\gamma}$	<u>B</u> BE
10	34.49 - 34.00	$S_{\alpha\delta}$	<u>B</u> EE
11	33.17	$T_{\delta\delta}$	<u>E</u> PE
12	30.91 - 30.82	$T_{\beta\delta}$	<u>X</u> PE
13	30.78 - 30.62	$S_{\gamma\gamma}$	XEEX
14	30.52 - 30.14	$S_{\gamma\delta}$	XEEE
15	29.87	$S_{\delta\delta}$	EEE
16	28.76	$T_{\beta\beta}$	XPX
17	28.28 - 27.54	$2B_2$	XBX
18	27.54 - 26.81	$S_{\beta\delta} + 2B_2$	BE, PE, BBE
19	26.67	$2B_2$	EBE
20	24.64 - 24.14	$S_{\beta\beta}$	XEX
21	21.80 - 19.50	CH_3	P
22	11.01 - 10.79	CH_3	B

【0112】

プロピレン共重合体の場合、共単量体含量は、フーリエ変換赤外線分光計 (FTIR) を有する空気バックグラウンドに対するサンプルのIRスペクトルを収集することにより赤外線分光法によって決定する。機器データ獲得媒介変数は次のようである：

- パージ時間：最小30秒；
- 収集時間：最小3分；
- アポディゼーション：H a p p - G e n z e l ；
- 解像度： 2 cm^{-1} 。

【0113】

サンプル準備

油圧プレスを使用して、二つのアルミニウムホイルの間に約1gのサンプルをプレスすることによって厚いシートが得られる。均質性が問題になる場合は、最小二度のプレス作動を勧める。このシートから小さい部分を切断してフィルムを成形する。勧奨されたフィルム厚さは $0.02\text{ cm} \sim 0.05\text{ cm}$ (8ミール \sim 20ミール)の範囲である。

【0114】

プレス温度は約1分間、 180 ± 10 (356°F) 及び約 10 kg/cm^2 (142.2 PSI) 圧力である。次に、圧力を解除してサンプルをプレスから除去して室温まで冷却する。

【0115】

重合体圧縮フィルムのスペクトルを吸光度対波数 (cm^{-1}) で記録する。以下の測定を使用してエチレン及びブテン-1の含量を計算する：

- $4482\text{ cm}^{-1} \sim 3950\text{ cm}^{-1}$ の組合吸収バンドの面積 (A t)、これは、フィルム厚さの分光標準化に使用される。

- エチレンが存在する場合、アイソタクチック非添加的ポリプロピレンスペクトル及

び続いてブテン - 1 が存在する場合、1, 4 - ブテン - 1 - プロピレンランダム共重合体の基準スペクトルの二つの適切な連続分光学的減算後、 $750\text{ cm}^{-1} \sim 700\text{ cm}^{-1}$ の間の吸収バンドの面積 (AC2) は $800\text{ cm}^{-1} \sim 690\text{ cm}^{-1}$ の範囲である。

- ブテン - 1 が存在する場合、アイソタクチック非添加的ポリプロピレンスペクトル及び続いてエチレンが存在する場合、エチレン - プロピレンランダム共重合体の基準スペクトルの二つの適切な連続分光学的減算後、 769 cm^{-1} (最大値) で吸収バンドの高さ (DC4) は $800\text{ cm}^{-1} \sim 690\text{ cm}^{-1}$ の範囲である。

【0116】

エチレン及びブテン - 1 含量を計算するために、既知量のエチレン及びブテン - 1 のサンプルを使用して得られたエチレン及びブテン - 1 の校正直線が必要である。

10

【0117】

GPCによるMw/Mn決定

平均Mw及びMn及びそこから誘導されたMw/Mnの決定は、4つのPL gel Olexis 混合 - ゲル (Polymer Laboratories) のカラムセット及びIR4赤外線検出器 (Polymer Char) が具備されたWaters GPCV 2000装置を使用して行った。カラムの寸法は、 $300 \times 7.5\text{ mm}$ であり、粒子の大きさは $13\text{ }\mu\text{m}$ である。使用された移動相は1 - 2 - 4 - トリクロロベンゼン (TCB) であり、その流速は、 1.0 mL/分 を維持した。全ての測定は 150°C で行った。溶液濃度は、TCBで 0.1 g/dL であり、分解を防止するために 0.1 g/L の2, 6 - ジ - tert - ブチル - p - クレゾールを添加した。GPC計算のために、Polymer Laboratoriesによって供給された10個のポリスチレン (PS) 標準サンプル ($580 \sim 8500000$ 範囲のピーク分子量) を使用してユニバーサル校正曲線を得た。三次多項式フィットを使用して実験データを補間し関連校正曲線を得た。Empower (Waters) を使用してデータの獲得及び処理を行った。Mark - Houwink 関係を利用して分子量の分布及び関連する平均分子量を決定した: K 値は、PS 及びPBに対してそれぞれ $K_{PS} = 1.21 \times 10^{-4}\text{ dL/g}$ 及び $K_{PB} = 1.78 \times 10^{-4}\text{ dL/g}$ である一方、Mark - Houwink 指数は、PSの場合、 $a = 0.706$ 、そしてPBの場合、 $a = 0.725$ を使用した。

20

【0118】

ブテン - 1 / エチレン共重合体の場合、データ評価に関する限り、分子量の全体範囲で組成物が一定であり、Mark - Houwink 関係のK値は、以下に報告されたように線形結合を使用して計算することに仮定される:

30

【0119】

【数1】

$$K_{EB} = x_E K_{PE} + x_P K_{PB}$$

【0120】

ここで、 K_{EB} は共重合体の常数であり、 K_{PE} ($4.06 \times 10^{-4}\text{ dL/g}$) 及び K_{PB} ($1.78 \times 10^{-4}\text{ dL/g}$) は、ポリエチレン及びポリブテンの常数であり、 x_E 及び x_P は、エチレン及びブテン - 1 重量%の含量である。Mark - Houwink 指数 $a = 0.725$ はその組成物と関係なく全てのブテン - 1 / エチレン共重合体に対して使用される。

40

【0121】

0 (XS - 0) でキシレン中に可溶性及び不溶性の分画

2.5 gの重合体サンプルを攪拌下に 135°C で 250 mL のキシレンに溶解させた。30分後、溶液は依然として攪拌下で 100°C まで冷却するようにした後、水及び氷バスに入れて 0°C まで冷却する。次に、溶液を水及び氷バスで1時間沈降させる。沈殿物を濾紙で濾過した。濾過する間、フラスコは、フラスコの内部温度を可能な限り 0°C 付近を維持するように水と氷バスに放置した。濾過が完了すると、濾過液の温度を 25°C で均衡とさせ、容量フラスコを水洗バスに約30分間沈漬した後、二つの 50 mL の一定分量で分

50

割する。溶液の一定分量を窒素の流れ中で蒸発させ、残留物を一定の重量に到達するまで 80 にて真空下で乾燥した。二つの残留物間の重量差は、3 %未満でなければならない；そうでなければ、試験を繰り返す必要がある。従って、残留物の平均重量から重合体の可溶性（0 のキシレン可溶性 = $X S 0$ ）の重量 % を計算する。0 で 0 - キシレン不溶性分画（0 でキシレン不溶性分 $X I \% 0$ ）は以下のとおりである：

$$X I \% 0 = 100 - X S \% 0$$

【0122】

25 ($X S - 25$) でのキシレン中の可溶性及び不溶性の分画

2.5 g の重合体を 135 で攪拌下で 250 mL のキシレンに溶解した。20 分後、溶液を依然として攪拌下で 25 まで冷却するようにした後、30 分間沈降させた。沈殿物をろ過紙で濾過し、溶液を窒素の流れ中で蒸発させて、残留物を一定の重量に到達するまで 80 にて真空下で乾燥した。従って、可溶性重合体（キシレン可溶性 - $X S$ ）と室温（25）で不溶性の重量 % を計算する。

10

【0123】

室温（25）でキシレン中の不溶性の重合体の重量 % は、重合体のアイソタクチック指数に考慮される。このような値は、実質的にポリプロピレン重合体のアイソタクチック指数を組み立てる定義によって、沸騰 *n* - ヘプタンを使用した抽出によって決定されたアイソタクチック指数に対応する。

【0124】

アイソタクチックペンタド含量の決定

20

50 mg の各サンプルを 0.5 mL の $C_2D_2Cl_4$ に溶解させた。

【0125】

^{13}C NMR スペクトルは Bruker DPX - 400 (100.61 MHz、90°パルス、パルス間の 12 秒遅延) から獲得した。各スペクトルに対して約 3000 個の過渡信号が貯蔵され；mmmm ペンタッドピーク (27.73 ppm) を基準として使用した。

【0126】

微細構造分析は、文献「Macromolecules 1991、24、2334 - 2340、by Asakura T. et al. 及び Polymer、1994、35、339、by Chujo R. et al.」に記載されたとおり行った。

30

【0127】

ブテン - 1 共重合体に対するペンタドタクティシティー (pentad tacticity) の百分率値 (mmmm %) は、分岐状メチレン炭素の NMR 領域で関連ペンタドシグナル (ピーク領域) から計算された立体規則性ペンタド (アイソタクチックペンタド) の百分率であり (BBBBB アイソタクチックシーケンスに割当てられた約 27.73 ppm)、同一領域に属する立体不規則性ペンタドとこれらシグナルとの重畳を十分に考慮する。

【0128】

X - 線結晶化度の決定

X - 線結晶化度は、固定スリットを有する Cu - K α 1 放射線を使用し、6 秒毎に 0.1° の段階で回折角度 $2\theta = 5^\circ$ 及び $2\theta = 35^\circ$ 間のスペクトルを収集する X - 線回折粉末回折回折計で測定した。

40

【0129】

測定を約 1.5 mm ~ 2.5 mm の厚さ及び 2.5 cm ~ 4.0 cm の直径を有するディスクの形態の圧縮成形された試片に対して実施した。これらの試片は、 200 ± 5 の温度で 10 分間いかなる認知可能な圧力も加えずに圧縮成形プレスから得られた後、約 10 kg/cm^2 の圧力を約数秒間加えて、この最後の動作を 3 回繰り返す。

【0130】

回折パターンを使用して全体のスペクトルに対する適切な線形ベースラインを定義し、スペクトルプロファイルとベースライン間のカウント / 秒 $\cdot 2$ で表現される総面積 (T

50

a) を計算することで結晶化度に必要な全ての成分を誘導した。次に、適した非晶質プロファイルは、二相モデルによって非晶質領域を結晶質領域と分離する全体のスペクトルによって定義される。従って、非晶質プロファイルとベースライン間の面積としてカウント / 秒・2 で表現される非晶質領域 (Aa) ; 及び $C a = T a - A a$ としてカウント / 秒・2 で表現される結晶質領域 (Ca) を計算することができる。

【0131】

次に、サンプルの結晶化度は次の式によって計算した：

$$\% C r = 100 \times C a / T a$$

【0132】

実施例1及び比較例1

実施例で使用した材料

PPB-1: WO2009/000637に記載された工程によって製造された、1.6モル%の共重合エチレンを含有するブテン-1/エチレン共重合体に、7重量%の量のプロピレン共重合体組成物(I) (ブテン-1/エチレン共重合体とプロピレン共重合体組成物(I)との総重量に対して) がインラインブレンドされた材料。

【0133】

上記のプロピレン共重合体組成物(I)は、5.5g/10分のMFRL、3重量%の総共重合エチレンの含量、6重量%の総共重合ブテン-1の含量、25におけるキシレン中に可溶性の分画(XS-25) 19重量%、及び133のTmを有し、次の二つの成分からなる：

I') 3.5重量%の、プロピレンとエチレン(共重合体中に3.2重量%)の共重合体、及び

I'') 6.5重量%の、プロピレン、エチレン(共重合体中に3.2重量%)、及びブテン-1(共重合体中に6重量%)の共重合体；

ここで、I')及びI'')の量は、I') + I'')の総重量を基準とする；

LDPE: LyondellBasellによって販売されている0.928g/cm³の密度及び4g/10分のMIEを有する低密度ポリエチレン単独重合体Lupolen 3020；

安定化剤: 0.05重量%のペンタエリトリールテトラキス(3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート(Irganox(登録商標)1010、BASFによって販売される)及び0.05重量%のトリス(2,4-ジ-tert-ブチルフェニル)フォスフェイト(Iragafos(登録商標)168、BASFによって販売される)のブレンド、前記パーセント量は、ポリオレフィン組成物の総重量を基準とする；

潤滑剤: 1重量%のエルカミド(erucamide)(Crodamide(登録商標)ER、Crodaによって販売される)、1重量%のオレアミド(Oleamide)(Crodamide(登録商標)OR、Crodaによって販売される)及び1重量%のステアリン酸グリセリル(Atmer(登録商標)129、Crodaによって販売される)のブレンド、前記パーセント量は、前記ポリオレフィン組成物の総重量を基準とする；

顔料: 二酸化チタニウムTi-Pure(登録商標)R-104、DuPontによって販売される。

【0134】

減少されたプロピレン重合体の含有量のため、上述されたPB-1のDSC分析(第2のスキャン)では溶融ピークが検出されなかった。

【0135】

前記材料を、下記条件下で、スクリュ直径が40mm及びスクリュ長さ/直径比が43:1である共廻り2軸押出機Coperion ZSK40SCで溶融ブレンドする：

- 180 ~ 200 の押出温度：

10

20

30

40

50

- 220 rpmのスクリー回転速度；
- 60 kg / 時間の製造速度。

【0136】

このようにして得られた最終組成物の特性を表1で報告する。

【0137】

また、表1は比較の目的に上述されたPB-1（比較例1）の特性が報告されている。

【0138】

【表1】

実施例		1	比較例1
PB-1	重量%	71.9	100
LDPE	重量%	24.0	-
安定化剤	重量%	0.1	-
潤滑剤	重量%	3	-
顔料	重量%	1	-
A) の量*	重量%	66.9	93
B) の量*	重量%	24	-
組成物の特性			
ΔH_{fus}	J/g	20	0
T_m	°C	112.4	-
シヨアA		70	60
シヨアD		< 20	< 20
MIE	gr/10'	2.4	1.4
破断応力	MPa	12.5	11
破断伸度	%	> 900	790
オートクレーブ中で 10分後に23℃で 圧縮永久歪み22時間	%	45	32
オートクレーブ中で 10分後に70℃で 圧縮永久歪み22時間	%	97	100

注：* A) + B) の総重量に対する重量%。

フロントページの続き

- (72)発明者 ステファノ・スパタロ
イタリア共和国 フェラーラ 4 4 1 2 2 ピアッツァーレ・グイード・ドネガニ 1 2 パーゼ
ル・ポリオレフィン・イタリア・ソチエタ・ア・レスポンサビリタ・リミタータ内
- (72)発明者 ステファノ・パスカリ
イタリア共和国 フェラーラ 4 4 1 2 2 ピアッツァーレ・グイード・ドネガニ 1 2 パーゼ
ル・ポリオレフィン・イタリア・ソチエタ・ア・レスポンサビリタ・リミタータ内
- (72)発明者 ジャンルカ・ムサッキ
イタリア共和国 フェラーラ 4 4 1 2 2 ピアッツァーレ・グイード・ドネガニ 1 2 パーゼ
ル・ポリオレフィン・イタリア・ソチエタ・ア・レスポンサビリタ・リミタータ内

審査官 中西 聡

- (56)参考文献 特開昭 6 3 - 2 1 3 5 3 1 (J P , A)
国際公開第 2 0 1 4 / 0 4 2 2 4 9 (W O , A 1)
特表 2 0 1 2 - 5 0 3 6 8 0 (J P , A)
特開 2 0 0 2 - 1 4 6 3 4 3 (J P , A)
米国特許出願公開第 2 0 1 5 / 0 0 5 1 3 5 0 (U S , A 1)
国際公開第 2 0 0 9 / 0 0 0 6 3 7 (W O , A 1)

- (58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)
C 0 8 L 1 / 0 0 - 1 0 1 / 1 4
B 6 5 D 5 3 / 0 0 - 5 3 / 1 0
C A p l u s / R E G I S T R Y (S T N)