

# 發明專利說明書 200427763

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：P3108049

※申請日期：93-3-25

※IPC 分類：C08L23/12 I

壹、發明名稱：(中文/英文)

C08F 299/08

耐衝擊性聚烯烴組成物

IMPACT RESISTANT POLYOLEFIN COMPOSITIONS

貳、申請人：(共 1 人)

姓名或名稱：(中文/英文)

巴塞爾聚烯烴義大利股份有限公司

BASELL POLIOLEFINE ITALIA S.P.A.

代表人：(中文/英文)

厄恩瑞寇札諾里/ZANOLI, ENRICO

住居所或營業所地址：(中文/英文)

義大利米蘭 20124 帕勾勒西路 25 號

Via Pergolesi 25, 20124 Milano, Italy

國籍：(中文/英文)

義大利/Italy

參、發明人：(共 3 人)

姓名：(中文/英文)

1. 珍紐思/NEWS, JEAN

2. 寶拉瑪薩里/MASSARI, PAOLA

3. 漢斯-尤根席摩曼/ZIMMERMANN, HANS-JUERGEN

住居所地址：(中文/英文)

1. 義大利非拉拉 44100 里帕格蘭迪街 63 號  
Via Ripagrande 63, 44100 Ferrara, Italy
2. 義大利非拉拉 44100E.伐洛非路 3 號  
Via E. Farolfi 3, 44100 Ferrara, Italy
3. 德國霍夫漢安土納斯 D-65719 非瑞里葛拉斯街 9 號  
Freiligrathstrasse 9, D-65719 Hofheim am Taunus, Germany

國籍：(中文/英文)

1. 美國/U.S.A.
2. 義大利/Italy
3. 德國/Germany

肆、聲明事項：

本案係符合專利法第二十條第一項  第一款但書或  第二款但書規定之期間，其日期為： 年 月 日。

◎本案申請前已向下列國家(地區)申請專利  主張國際優先權：

【格式請依：受理國家(地區)；申請日；申請案號數 順序註記】

1. EPC 2003.04.03 03007669.9

2.

主張國內優先權(專利法第二十五條之一)：

【格式請依：申請日；申請案號數 順序註記】

1.

2.

主張專利法第二十六條微生物：

國內微生物 【格式請依：寄存機構；日期；號碼 順序註記】

國外微生物 【格式請依：寄存國名；機構；日期；號碼 順序註記】

熟習該項技術者易於獲得，不須寄存。

住居所地址：(中文/英文)

1. 義大利非拉拉 44100 里帕格蘭迪街 63 號  
Via Ripagrande 63, 44100 Ferrara, Italy
2. 義大利非拉拉 44100E.伐洛非路 3 號  
Via E. Farolfi 3, 44100 Ferrara, Italy
3. 德國霍夫漢安土納斯 D-65719 非瑞里葛拉斯街 9 號  
Freiligrathstrasse 9, D-65719 Hofheim am Taunus, Germany

國籍：(中文/英文)

1. 美國/U.S.A.
2. 義大利/Italy
3. 德國/Germany

肆、聲明事項：

本案係符合專利法第二十條第一項  第一款但書或  第二款但書規定之期間，其日期為： 年 月 日。

◎本案申請前已向下列國家(地區)申請專利  主張國際優先權：

【格式請依：受理國家(地區)；申請日；申請案號數 順序註記】

1. EPC 2003.04.03 03007669.9

2.

主張國內優先權(專利法第二十五條之一)：

【格式請依：申請日；申請案號數 順序註記】

1.

2.

主張專利法第二十六條微生物：

國內微生物 【格式請依：寄存機構；日期；號碼 順序註記】

國外微生物 【格式請依：寄存國名；機構；日期；號碼 順序註記】

熟習該項技術者易於獲得，不須寄存。

## 玖、發明說明：

### (一)發明所屬之技術領域

本發明係關係一種耐衝擊性聚烯烴組成物及其製備方法。

### (二)先前技術

如所已知，同規立構性聚丙烯，雖然具備優異性質之卓越結合，但在較低溫度受到耐衝擊性不足之缺失所影響。

根據先前技術之教示，此項缺失可藉改變合成方法或與橡膠摻合而排除，不致於合情理地影響其他的聚合物性質。

合成方法之修改包括在聚合丙烯成爲同規立構性聚合物之後，在已有同規立構性聚合物存在之中使乙烯和丙烯混合物共聚合。先前技術之代表性方法和組成記載於美國專利第 3,200,173 號、3,629,368 和 3,670,053 號、歐洲專利申請案第 0077532 號和美國專利第 6,313,227 號。

現已發現可以利用兩個聚合階段而獲得特別有效平衡各項性質之聚丙烯組成物，尤其對於高剛性和良好的耐衝擊性。在第一階段中丙烯與少量之共單體聚合或共聚合，在第二階段中乙烯/ $\alpha$  烯烴混合物於含有第一階段所得丙烯聚合物之存在下被共聚合。

因此本發明關係一種烯烴聚合物組成物，其包含(以重量計，除非另予述明)：

A) 60-95%、較佳爲 65-90% 之丙烯均聚物，或含 3% 以下之乙烯或  $C_4-C_{10}$   $\alpha$ -烯烴之丙烯共聚物或其組合，該均聚

物或共聚物具有 4.6 至 10 之多分散性指數 (P.I.) 值、較佳為 5.1 至 8，且其同規五價物 (Pentads, mmmm) 含量於 25 °C 不溶於二甲苯之餾分中，用  $^{13}\text{C}$  NMR 量測，係高於 98 莫耳 %、較佳為自 98.5 至 99.5 莫耳 %；

B) 5-40%、較佳為 10-35% 之乙烯共聚物，其含有 40% 至 70%、較佳為 47 至 62% 之丙烯或  $\text{C}_4\text{-C}_{10}$   $\alpha$ -烯烴或其組合，且視需要小量比例之二烯；

該組成物具有一種「升溫洗析分餾 (Temperature Rinsing Elution Fractionation, TREF) 型態，其獲自於二甲苯中之分餾化，在 40 °C、80 °C 和 90 °C 收集各餾分，在 90 °C 所收集餾分之乙烯含量 Y 係滿足如下之關係 (I)：

$$Y \leq -0.8 + 0.035X + 0.0091X^2$$

其中 X 為在 40 °C 所收集餾分之乙烯含量，而 X 和 Y 均以重量百分比表示 (相對於各餾分)，其在 25 °C 溶於二甲苯之餾分之極限黏度  $[\eta]$  值為 1.8 至 4.2 分升/克、較佳為自 2 至 4.2 分升/克、更佳為 2.3 至 3.8。

本發明組成物特佳之特點為：

- 用 GPC (凝膠滲透色層分析法) 量測於成分 (A) 中之分子量分佈，以  $M_w/M_n$  表示係等於或高於 7，尤其為 7 至 20；

- 用 GPC 量測的  $M_z/M_w$  之值等於或高於 3.6，尤其為 3.6 至 7；

- 撓性模數自 900 至 2000 MPa、更佳為 1100 至 1700 MPa；

- 融熔流率 (MFR) 為 0.5 至 45 克/10 分、更佳為 2 至

35 克 / 10 分 (在條件 L 下量測，亦即在 230°C，2.16 仟克荷重)；

被共聚合之乙烯總量較佳自 1.5 至 24 重量 %。

如前所述，本發明組成物可用含有至少兩個階之聚合方法製成，其在第一階段內相關單體被聚合形成成分(A)，而在隨後階段中，乙烯-丙烯混合物、乙烯-丙烯和一或多種 C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub> α-烯烴、乙烯和一或多種 C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub> α-烯烴和適當之二烯等之混合物被聚合成為成分(B)。

因此本發明亦關係一種依序聚合製備前述組成物之方法，其包含至少兩個相繼之步驟，其中成分(A)和(B)製自分開的相繼步驟，除第一步驟之外，各步驟操作於存有先行步驟所用催化劑和所形成之聚合物之中。催化劑僅在第一步驟加入，然而其對於隨後各步驟仍具活性。成分(A)較佳製自單一的聚合步驟。各聚合步驟之順序並非關鍵之方法要點，然而成分(A)較佳係在成分(B)之前製成。

聚合作用可以發生於液相、氣相或液-氣相。

例如，可以用液態丙烯作稀釋劑進行丙烯聚合階段，而相隨之共聚合階段則在氣相進行，除非為了丙烯之局部排氣，並無中間階段。

適用之反應器之實例為連續操作之攪拌反應器、環形反應器、流化床反應器、或水平或直立之攪拌粉床反應器。當然，反應也可以進行於多個串聯之反應器中。

聚合作用亦可以進行於一系列串聯之氣相攪拌反應器內，在其中以直立攪拌器保持粉體反應床之運動。反應床通常含有各反應器內聚合所成之聚合物。

形成成分(A)之丙烯聚合作用可在乙烯及/或一或多種  $C_4-C_{10}$   $\alpha$ -烯烴之存在中完成，其如有丁烯-1、戊烯-1、4-甲基戊烯-1、己烯-1和辛烯-1、或其組合。

如前所述，形成成分(B)之乙烯與丙烯(較佳者)及/或其他  $C_4-C_{10}$   $\alpha$ -烯烴等之共聚作用，可發生於存有二烯、共軛或非共軛者，其如丁二烯、1,4-己二烯、1,5-己二烯和亞乙烯基萘烯-1。若有二烯存在，其一般相對於(B)之重量為 0.5 至 10 重量%。

聚合反應各步驟之反應時間、壓力和溫度非屬關鍵，然而最好使溫度在 20 至 150°C、尤其為 50 至 100°C，壓力可為大氣壓或較高。

分子量之調整係使用已知之調節劑，尤其為氫，予以實施。

本發明組成物亦可由氣相聚合法產生，進行於至少兩個互相連結之聚合區域。該方法類型係列示於歐洲專利申請案 782,587。

詳言之，上述方法包括饋入一或多種單體至各該聚合區內，其為在反應條件下存在催化劑者，並從各該反應區域收集聚合生成物。在該方法中，成長中之聚合物粒子在快速流體化條件下流經各該聚合區域之一(第一區，上升區)向上流動，離開該上升區而進入另一(第二區)聚合區(落下區)，經過其間因密度增加受重力作用而向下流落，離開該落下區再被導入上升區，因而在上升區和落下區之間建立聚合物之循環。

在落下區中固體達到高的密度值，接近聚合物之體密

度。壓力的正向增益因而使聚合物進入上升區而無須特別的機械機構協助。以此方式，建立了「環狀」的循環，受兩個聚合區域間的壓力平衡和被導入系統內之壓力損失所界定。

通常，快速流化之條件建立於饋入含有相關單位之氣體混合物至該上升區中。其較佳者，氣體混合物之饋入是在聚合物被再導入該上升區之點以下實施，宜用氣體分配機構。傳輸氣體進入上升區之速度高於操作條件下之傳輸速度、較佳為為 2 至 15 米/秒。

通常，離開上升區之聚合物和氣態混合物被送入固/氣分離區。固/氣分離作用可實施於利用習知之分離機構。聚合物從分離區進入落下區。氣態混合物離開分離區後則被壓縮、冷卻，如若適當加入補充單體及/或分子量調節劑，則轉移至上升區。轉移時可利用用於氣態混合物之循環管路實施。

在兩個聚合作用區之間聚合物循環的控制，可利用適於控制固體流動之機構如機械閥者，量測離開落下區之聚合物量而實施。

操作參數，其如溫度，為通常用於氣相烯烴聚合法者，例如自 50 至 120℃。

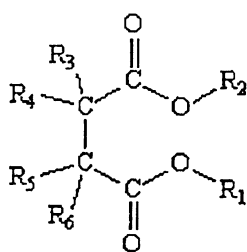
此法可在 0.5 和 10MPa 之操作壓力下進行、較佳為為 1.5 至 6MPa。

其有利者，維持一或多種惰性氣體於各聚合作用區內，其量以各惰氣之部份壓力之總和計，在各氣體總壓力之 5 至 80% 之間。惰氣可為例如氮或丙烷。

各種催化劑在該上升區任何一點饋入至上升區。然而，亦可以饋入於落下區之任一點。催化劑可為任一物理狀態，因此催化劑可為固體或液體。

較佳之聚合催化劑為一種齊格勒-納他催化劑，其含有一種固體催化劑成分，包含：

a) Mg、Ti 和鹵素與一種選自琥珀酸酯之電子供體，較佳為選自於如下式 (I) 之琥珀酸酯：



其中  $R_1$  和  $R_2$  基為相同或不同之  $C_1$ - $C_{20}$  線型或分支之烷基、烯基、環烷基、芳基、芳烷基或烷芳基，依所需含有雜原子； $R_3$  至  $R_6$  各基為彼此相同或互異之氫或  $C_1$ - $C_{20}$  之線型或分支之烷基、烯基、環烷基、芳基、芳烷基或烷芳基，視需要含有雜原子；且  $R_3$  至  $R_6$  之聯於同一碳原子者，可以一起鏈結形成環，其條件為若  $R_3$  至  $R_5$  同時為氫則  $R_6$  為選自第一分支、第二或第三之烷基、環烷基、芳基、芳烷基或烷芳基等之具有自 3 至 20 個碳原子者，或為線型烷基之具有至少四個碳原子而視狀況含有雜原子者；

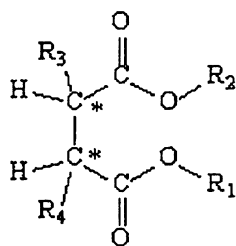
b) 一種烷基鋁化合物和視需要而有 (但非較佳)，

c) 一或多種電子供體化合物 (外供體)。

其他較佳之催化劑為如上述之齊格勒-納他催化劑，然而其中之固體催化劑成分 (a) 除所稱之 Mg、Ti 和氫外，其含有至少兩種電子供體化合物，該催化劑成分之特徵在於

一項事實，至少各電子供體之一，其相對於各供體之總量佔 15 至 50 莫耳 % 者，是選自琥珀酸之酯類，在下述條件下，其不能被萃取者多於 20 莫耳 %，且至少另一電子供體化合物在相同條件下為可萃取者多於 30 莫耳 %。

琥珀酸酯類無法萃取多於 20 莫耳 % 者係定義為非可萃取之琥珀酸酯。電子供體化合物可萃取為多於 30 莫耳 % 者則定義為可萃取之電子供體化合物。較佳者，非可萃取之琥珀酸酯之量為在 20 與 45 莫耳 % 之間、較佳為在 22 至 40 莫耳 % 之間，相對於電子供體化合物之總量。在上述非可萃取之琥珀酸酯之中，特佳者具有如下式 (II) 者：



其中  $R_1$  和  $R_2$  基相同或不同而為  $C_1$ - $C_{20}$  線型或分支之烷基、烯基、環烷基、芳基、芳烷基或烷芳基，視需要含有雜原子；而  $R_3$  和  $R_4$  為彼此相同或不同之  $C_1$ - $C_{20}$  之烷基、環烷基、芳基、芳烷基或烷芳基，視需要含有雜原子，其條件為其至少有一為分支之烷基；對化合物，有關在式 (II) 結構所見之兩個對稱之碳原子，出現 (S,R) 或 (R,S) 型之立體異構體於無雜質類型或混合物中。

在可萃取之電子供體之中特佳者為單或二羧基有機酸之酯類，其如苯甲酸酯、丙二酸酯、酞酸酯和琥珀酸酯。

較佳者為烷基酞酸酯類。

可萃取性試驗進行如後。

A. 固體催化劑成分之製備

通入氮氣至一 500 毫升四口圓底燒瓶內，在 0°C 送入 250 毫升  $\text{TiCl}_4$ 。在攪拌當中加入 10.0 克微球狀  $\text{MgCl}_2 \cdot 2.8\text{C}_2\text{H}_5\text{O}$  (根據美國專利 4,399,054 實施例 2 所述方法製成，但操作於 3,000rpm 而非 10,000)。並加入 4.4 毫莫耳所選用之電子供體化合物。

升高溫度至 100°C，並維持此溫度 120 分鐘。然後，停止攪拌，讓固體生成物沉下，並吸除上層液體。

加入 250 毫升新鮮  $\text{TiCl}_4$ 。在攪拌中使混合物於 120°C 經 60 分鐘反應，然後，吸除上層液體。於 60°C 用無水苯清洗固體 (A) 六次 (6×100 毫升)，在真空中乾燥並分析定量測定 Mg 和電子供體化合物。以決定電子供體化合物對 Mg 之比 (比例 A)。

B. 固體 A 之處理

在一 250 毫升具有機械攪拌器和過濾隔膜之夾層玻璃燒瓶內，在氮氣氛下加入 190 毫升無水正己烷、19 毫莫耳  $\text{AlEt}_3$  和 2 克如 A 所述製成之催化劑成分。使該混合物於攪拌之中 (攪拌速率為 400rpm) 在 60°C 加熱 1 小時。之後過濾混合物，於 60°C 用正己烷洗滌四次，最後在真空中於 30°C 乾燥 4 小時。然後定量分析固體，測定 Mg 和電子供體化合物。以決定電子供體化合物對 Mg 之莫耳比 (比例 B)。

電子供體化合物之可萃取性係根據下式計算：ED (電子供體) 萃取 % = (比例 A - 比例 B) / 比例 A。

上述催化劑成分中所用琥珀酸酯之較佳例爲：二乙基 2,3-雙(三甲基甲矽烷基)琥珀酸酯、二乙基 2,2-第三丁基-3-甲基琥珀酸酯、二乙基 2-(3,3,3-三氟丙基)-3-甲基琥珀酸酯、二乙基 2,3-雙(2-乙基丁基)琥珀酸酯、二乙基 2,3-二乙基-2-異丙基琥珀酸酯、二乙基 2,3-二異丙基-2-甲基琥珀酸酯、二乙基 2,3-雙(環己基甲基)琥珀酸酯、二乙基 2,3-二-第三丁基琥珀酸酯、二乙基 2,3-二異丁基琥珀酸酯、2,3-二新戊基琥珀酸酯、二乙基 2,3-二異戊基琥珀酸酯、二乙基 2,3-(1-三氟甲基-乙基)琥珀酸酯、二乙基 2,3-(9-芴基)琥珀酸酯、二乙基 2-異丙基-3-琥珀酸酯、二乙基 2-第三丁基-3-異丙基琥珀酸酯、二乙基 2-異丙基-3-環己基琥珀酸酯、二乙基 2-異戊基-3-環己基琥珀酸酯、二乙基 2-環己基-3-環戊基琥珀酸酯、二乙基 2,2,3,3-四甲基琥珀酸酯、二乙基 2,2,3,3-四乙基琥珀酸酯、二乙基 2,2,3,3-四丙基琥珀酸酯、二乙基 2,3-二乙基-2,3-二異丙基琥珀酸酯、二異丁基 2,3-雙(三甲基甲矽烷基)琥珀酸酯、二異丁基 2,2-第三丁基-3-甲基琥珀酸酯、二異丁基 2-(3,3,3-三氟丙基)-3-甲基琥珀酸酯、二異丁基 2,3-雙(2-乙基丁基)琥珀酸酯、二異丁基 2,3-二乙基-2-異丙基琥珀酸酯、二異丁基 2,3-二異丙基-2-甲基琥珀酸酯、二異丁基 2,3-二環己基-2-甲基琥珀酸酯、二異丁基 2,3-苯甲基琥珀酸酯、二異丁基 2,3-二異丙基琥珀酸酯、二異丁基 2,3-雙(環己基甲基)琥珀酸酯、二異丁基 2,3-二-第三丁基琥珀酸酯、二異丁基 2,3-二異丁基琥珀酸酯、二異丁基 2,3-二新戊基琥珀酸酯、二異丁基 2,3-二異戊基琥珀酸酯、二異丁基 2,3-(1,1,1-三氟-2-丙基)琥珀酸

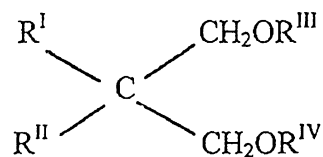
酯、二異丁基 2,3-正丙基琥珀酸酯、二異丁基 2,3-(9-芴基)琥珀酸酯、二異丁基 2-異丁基-3-異丁基琥珀酸酯、二異丁基 2-第三丁基-3-異丙基琥珀酸酯、二異丁基 2-異丁基-3-環己基琥珀酸酯、二異丁基 2-異戊基-3-環己基琥珀酸酯、二異丁基 2-正丙基-3-(環己基甲基)琥珀酸酯、二異丁基 2-環己基-3-環戊基琥珀酸酯、二異丁基 2,2,3,3-四甲基琥珀酸酯、二異丁基 2,3-二乙基-2,3-二異丙基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-雙(三甲基甲矽烷基)琥珀酸酯、二新戊基 2,2-二-第二丁基-3-甲基琥珀酸酯、二新戊基 2-(3,3,3-三氟丙基)-3-甲基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-雙(2-乙基丁基)琥珀酸酯、二新戊基 2,3-二乙基-2-異丙基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-二異丙基-2-甲基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-二環己基-2-甲基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-二苯甲基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-二異丙基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-雙(環己基甲基)琥珀酸酯、二新戊基 2,3-二-第三丁基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-雙(環己基甲基)琥珀酸酯、二新戊基 2,3-二-第三丁基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-二異丁基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-二新戊基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-二異戊基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-(1,1,1-三氟-2-丙基)琥珀酸酯、二新戊基 2,3-正丙基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-(9-芴基)琥珀酸酯、二新戊基 2-異丙基-3-異丁基琥珀酸酯、二新戊基 2-第三丁基-3-異丙基琥珀酸酯、二新戊基 2-異丙基-3-環己基琥珀酸酯、二新戊基 2-異戊基-3-環己基琥珀酸酯、二新戊基 2-正丙基-3-(環己基甲基)琥珀酸酯、二新戊基 2-環己基-3-環戊基琥珀酸酯、二新戊基 2,2,3,3-四甲基琥珀酸酯、二新戊基

2,2,3,3-四乙基琥珀酸酯、二新戊基 2,2,3,3-四丙基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-二乙基-2,3-二異丙基琥珀酸酯、二新戊基 2,2,3,3-四丙基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-二乙基-2,3-二異丙基琥珀酸酯。

特佳者為二乙基 2,3-二苯甲琥珀酸酯、二乙基 2,3-二異丙基琥珀酸酯、二乙基 2,3-雙(環己基甲基)琥珀酸酯、二乙基 2,3-二異丁基琥珀酸酯、2,3-(1-三氟甲基-乙基)琥珀酸酯、二異丁基 2,3-二苯甲基琥珀酸酯、二異丁基 2,3-二異丙基琥珀酸酯、二異丁基 2,3-雙(環己基甲基)琥珀酸酯、二異丁基 2,3-正丙基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-二異丙基-2-甲基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-二環己基-2-甲基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-二苯甲基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-二異丙基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-雙(環己基甲基)琥珀酸酯、二新戊基 2,3-二異丁基琥珀酸酯、二新戊基 2,3-正丙基琥珀酸酯、二新戊基 2-異丙基-3-環己基琥珀酸酯。

烷基鋁化合物(b)較佳選自三烷基鋁化合物，其如例如三乙基鋁、三異丁基鋁、三正丁基鋁、三正己基鋁、三正辛基鋁。其亦可以使用三烷基鋁化合物與鹵化烷基鋁之混合物，鹵化烷基鋁或倍半鹵化烷基鋁，其如  $\text{AlEt}_2\text{Cl}$  和  $\text{Al}_2\text{Et}_4\text{Cl}_3$ 。

外供體(C)可為與式(I)和(II)之琥珀酸酯相同之形態或為不同。適用之外在電子供體化合物包括矽化合物、醚類，酯類如酞酸酯、苯甲酸酯，琥珀酸酯亦具有與式(I)或(II)不同之結構，胺類，雜環化合物和特別的 2,2,6,6-四甲基吡啶，酮類和式(III)之 1,3-二醚類：



其中  $\text{R}^{\text{I}}$  和  $\text{R}^{\text{II}}$  為相同或不同，且為  $\text{C}_1\text{-C}_{18}$  烷基、 $\text{C}_3\text{-C}_{18}$  環烷基或  $\text{C}_7\text{-C}_{18}$  芳基； $\text{R}^{\text{III}}$  和  $\text{R}^{\text{IV}}$  為相同或不同，且為  $\text{C}_1\text{-C}_4$  烷基，或為 1,3-二醚類，其中在位置 2 之碳原子屬於由 5、6 或 7 個碳原子構成並含二或三個不飽和鍵之環或多環結構。

此型醚類係載於已公告之歐洲專利申請案 361493 號和 728769 號。

外供體化合物之特佳種類為式  $\text{R}_a^7\text{R}_b^8\text{Si}(\text{OR}^9)_c$ ，其中  $a$  和  $b$  為 0 至 2 之整數， $c$  為 1 至 3 之整數，且  $(a+b+c)$  之和為 4； $\text{R}^7$ 、 $\text{R}^8$  和  $\text{R}^9$  為  $\text{C}_1\text{-C}_{18}$  烴基可視狀況含有雜原子。特佳者為在矽化合物中  $a$  為 1、 $b$  為 1、 $c$  為 2， $\text{R}^7$  和  $\text{R}^8$  至少有一選自分支之烷基、烯基、炔基、環烷基或芳基而具 3-10 個碳原子和視情況含有雜原子者，又  $\text{R}^9$  為一  $\text{C}_1\text{-C}_{10}$  烷基，尤其為甲基。如此較佳之矽化合物之實例為環己基甲基二甲氧基矽烷、二苯基二甲氧基矽烷、甲基-第三丁基二甲氧基矽烷、二環戊基二甲氧基矽烷、2-乙基吡啶基-2-第三丁基二甲氧基矽烷和 (1,1,1-三氧-2-丙基)-2-乙基吡啶基二甲氧基矽烷、3,3,3-三氟丙基-2-乙基吡啶基二甲氧基矽烷和 (1,1,1-三氟-2-丙基)-甲基二甲氧基矽烷。再者，亦屬較佳之矽化合物，其中  $a$  為 0、 $c$  為 2， $\text{R}^8$  為分支之烷基或環烷基，視狀況含有雜原子，又  $\text{R}^9$  為甲基。如此較佳矽化合物之

實例為環己基三甲氧基矽烷、第三丁基三甲氧基矽烷和第三己基三甲氧基矽烷。

矽化合物之特佳特別實例為環己基甲基二甲氧基矽烷和二環戊基二甲氧基矽烷。

較佳之電子供體化合物(C)為用於如此之一種用量，為在有機鋁化合物與該電子供體化合物(C)之間產生之莫耳比例為 0.1 至 500、更佳為 1 至 300，且特別自 3 至 100。

如上所說明，固體催化劑成分除了以上之電子供體外，其含有 Ti、Mg 和鹵素。尤其，催化劑成分含有至少具有 Ti-鹵素鍵之鈦化合物，且上述之電子供體化合物被支撐於 Mg 之鹵化物上。較佳之鹵化鎂是活性的  $MgCl_2$ ，其已廣被專利文獻知悉作為齊格勒-納他催化劑之支撐物。美國專利 4,298,718 和 4,495,338 首先描述此等催化劑在齊格勒-納他催化劑中之用途。從此等專利已知活性狀態之二鹵化鎂被用作烯烴聚合作用催化劑成分中之支撐物或共支撐物者，已經 X 光光譜確認，其中最密集之繞射線，在非活性鹵化物光譜中者，出現強度減退，被一其最大強度被移向相對於較強線條為低之角度之鹵基所取代。

較佳之鈦催化劑為  $TiCl_4$  和  $TiCl_3$ ，另外，也可用如式  $Ti(OR)_n-yXy$  之 Ti 鹵醇酸酯，其中 n 為鈦之價數，y 為 1 和 n 間之數，X 為鹵素而 R 為具 1 至 10 個碳原子之烴基。

固體催化劑成分之製備可依若干業者熟知方法進行。

根據一較佳方法，固體催化劑成分可使如式  $Ti(OR)_n-yXy$  之鈦催化劑與由式  $MgCl_2 \cdot pROH$  加成物所衍生之氯化鎂反應，前者之中 n 為鈦之價數，y 為 1 與 n 間

之數、較佳為為  $\text{TiCl}_4$ ；後者之  $p$  為 0.1 與 6 間之數、較佳為為 2 至 3.5， $R$  為具有 1-18 個碳原子之烴基。加成物可被適切製成球狀，由醇與氯化鎂混合於有惰性烴之中，後者為可與加成物混合者，操作是在加成物熔融溫度 ( $100-130^\circ\text{C}$ ) 之攪拌條件下進行。然後，迅速淬冷乳液，因而使加成物固化成球粒形狀。

根據此程序製成球狀加成物之實例為在美國專利 4,399,054 和 4,469,648 中所述記。如此所得加成物可直接與  $\text{Ti}$  化合物反應，或可預先接受熱所控制之脫醇作用 ( $80-130^\circ\text{C}$ )，使獲得醇之莫耳數一般低於 3 之加成物、較佳為在 0.1 與 2.5 之間。與  $\text{Ti}$  化合物之反應可進行於使加成物 (已脫醇或如原樣) 懸浮於冷 (一般為  $0^\circ\text{C}$ ) 之  $\text{TiCl}_4$ ，此混合物被加熱至  $80-130^\circ\text{C}$ ，並保持此溫度經 0.5-2 小時。用  $\text{TiCl}_4$  之處理可進行一或多次。在用  $\text{TiCl}_4$  處理當中可加入電子供體化合物。

不論所用製備方法，電子供體化合物之最終量較佳應使相對於  $\text{MgCl}_2$  之莫耳比為 0.01 至 1，更佳者自 0.05 至 0.5。

該催化劑成分和催化劑說明於 WO 00/63261、WO 01/57099 和 WO 02/30998。

可用於本發明方法之其他催化劑為金屬茂型催化劑，如美國專利 5,324,800 和歐洲專利 EP-A-0 129 368；特別有益者為橋接之雙-茛基金屬茂，例如美國專利 5,145,819 和歐洲專利 EP-A-0 485 823 所述。另一類適當催化劑為所謂強制幾何催化劑，如 EP-A-0 416 815(Dow)、DP-A-0 420

436(Exxon)、EP-A-0 671 404；EP-A-0 643 066 和 WO 91/04257 等專利所述。

催化劑可先接觸小量之烯烴(預聚合)

本發明之組成物也可以含有業者常手之添加劑，其如抗氧化劑、光安定劑、熱安定劑、成核劑、色料和填料。

尤其，成核劑之加入，對重要的物理-機械性質，其如撓性模數、熱變形溫度(HDT)、降伏拉伸強度和透明性，造成相當程度的改良。

成核劑之典型實例為對-第三丁基苯甲酸酯和 1,3-與 2,4-二苯亞甲基山梨糖醇。

加入於本發明組成物之成核劑較佳用量相對於總重量為 0.05 至 2 重量%、更佳為 0.1 至 1 重量%，。

無機填料如滑石、碳酸鈣和礦物纖維之加入亦能促使改良若干機械性質，其如撓性模數和 HDT。滑石亦能夠具有成核效果。

詳列於如下各實施例者，其係作例示而非限制本發明。

各實施例之聚合物材料，其相關數據是由以下列報方法所測定。

- MFR(融熔流率)：ASTM D 1238，條件 L，230°C，2.16 仟克；

- 極限黏度 $[\eta]$ ：在 135°C 於四氫萘中量測；

-  $M_n$ (數量平均分子量)、 $M_w$ (重量平均分子量)和  $M_z$ ( $z$  平均分子量)：用凝膠滲透色層分析法(GPC)於 1,2,4-三氯苯中量測；詳言之，所製試樣濃度為 70 毫克/50 毫升經安

定之 1,2,4-三氯苯 (250 微克 / 毫升 BHT(丁基化羥基甲苯 (CAS 登記號 128-37-0))；然後加熱至 170℃ 經 2.5 小時使溶解；於 Waters 之 GPC V2000 上於 145℃ 以 1.0 毫升 / 分之流率運行，使用相同之已安定溶劑；用三支 Polymer Lab 之析柱串聯 (Plgel, 20 微米混合 ALS, 300×7.5 毫升)；

- 乙烯含量：用 IR 光譜法；
- 撓性模數：ISO 178；
- Izod(懸臂樑試驗)：根據 ISO 181/IA 方法量測；
- 斷裂能量：Basell 方法 17324(見下文)；所用試件和試法和延展性 / 脆性轉變溫度(見下述)之測定，但在此項目中使試樣斷裂所需之能量是在 -20℃ 測定。

延展性 / 脆性轉變溫度之測定

測驗是根據內部方法 MA 17324，應申請而提供。

根據此方法，用自動、電腦化之擊鎚衝擊而測定雙軸耐衝擊性。

圓形試件用圓形手衝模 (38 毫米直徑) 衝切獲得。其為被調節於 23℃ 和 50RH 經至少 12 小時，然後置於在試驗溫度之恆溫浴內 1 小時。

圓形試件置於一環形支撐物上，在擊鎚 (5.3 仟克，1/2" 直徑之半球形衝頭) 衝擊之際，測得力 - 時間曲線。所用機具為 CEAST 6758/000 型第 2 式。

D/B(延展 / 脆性) 轉變溫度意指在接受該衝擊試驗時，有 50% 之試樣發生脆裂時之溫度。

用於 D/B 量測之試片，具有 127×127×1.5 毫米之尺寸，以如下方法製法。

射出壓機為 Negri Bossi<sup>TM</sup> 型 (NB90)，鉗挾力 90 噸，  
 模具為方形片 (127×127×1.5 毫米)。

主要方法參數列下：

背壓 (巴)：	20
射出時間 (秒)：	3
最大射出壓力 (MPa)：	14
液壓射出壓力 (MPa)：	6-3
第一保持液壓 (MPa)：	4±2
第一保持時間 (秒)：	3
第二保持液壓 (MPa)	3±2
第二保持時間 (秒)：	7
冷卻時間 (秒)：	20

模溫 (°C)：

溶體溫度在 200 與 280°C 之間。

#### 同規立構體五價物 (Pentads) 含量之測量

以 50 毫克之各個二甲苯不溶餾分溶於 0.5 毫升之  
 $C_2D_2Cl_4$  內。

在 Bruker DPX-400 (100.61 兆赫，90°脈衝，12 秒遲延  
 於各脈衝之間，取得  $^{13}C$  NMR 光譜。每一光譜貯有大約 3000  
 暫態；mmmm 五價物峰 (21.8ppm) 被用作參考。

微結構分析之進行如文獻所述 (Polymer, 1984, 25,  
 1640, Inoue Y 等人；和 Polymer, 1994, 35, 339, Chujo R  
 等人)。

多分散性指數 (PI)：聚合物分子量分佈之量測。對於  
 PI 值之測定，在低模數值之模數分離，亦即在 500Pa (巴士

噶)，是用 Rheometrics(USA)所售 RMS-800 型平行板流阻計在 200°C 之溫度測定，操作於自 0.01 弧度/秒至 100 弧度/秒而增大之振盪頻率。從模數分離值，可用下式導出 PI：

$$PI = 54.6 \times (\text{模數分離})^{-1.76}$$

其中模數分離 (MS) 定義為：

$$MS = (\text{在 } G' = 500 \text{ Pa 時之頻率}) / (\text{在 } G'' = 500 \text{ Pa 時之頻率})$$

其中  $G'$  為貯存模數而  $G''$  為損失模數。

在 25°C 時於二甲苯中可溶和不可溶餾分：在 135°C 於攪拌中將 2.5 克聚合物溶於 250 毫升二甲苯中。20 分鐘後使溶液冷卻至 25°C，仍在攪拌中，然後使靜置 30 分鐘。用濾紙過濾沉澱物，在氮氣流中蒸發溶液，在 80°C 真空中乾燥殘餘物直至重量恆定不變。於是計算在室溫 (25°C) 聚合物之可溶和不可溶之重量百分比。

#### 升溫洗提分餾 (TREF)

在二甲苯中依如下方法測定。

主要分餾容器由一 500 毫升雙層反應器構成。一振動混合器加於上方。用於萃取程序之溶劑可經位於容器下方出口之管路進入反應器。

以溶解 5 克聚合物於 400 毫升沸騰之二甲苯中而開始 TREF 程序，用 5 g/l 之 2,6-第三丁基-4-甲基酚使安定。為使聚合物沉澱，用恆溫器控制冷卻速率為 10°C/小時而直線冷卻溶液。

第一步驟。結晶之懸浮液被加熱至第一析溫度 (40°C)，在裝置內之聚合物結晶被振動混合器攪動 15 分鐘。然

後經由下方之閥排出在溶液中之聚合物，留下聚丙烯結晶於萃取器內。將溶液傾入 800 毫升冷丙酮(溫度 $<0^{\circ}\text{C}$ )內而將被流析之聚合物沉澱。用 Büchner 漏斗(3 號玻璃濾板)過濾，並用冷丙酮( $<0^{\circ}\text{C}$ )清洗。然後被分離出之聚合物餾分在真被乾燥於  $100^{\circ}\text{C}$  約 4 至 5 小時並予稱量。

次一步驟，增加萃取器溫度至所需溫度，並加入 400 毫升溫度相同之二甲苯至分餾容器內。在裝置內留下之聚合物結晶然後再萃取 15 分鐘。再排出聚合物溶液，沉澱被溶解之聚合物並予過濾。

然後再重複此步驟於隨後之溫度，並繼續以至接近  $125^{\circ}\text{C}$ ，溶劑之溫度。在此溫度時，全部聚合物應已被萃取。

#### 實施例 1 和比較例 1 與 2

##### 固體催化劑成分之製備

以氮氣衝刷入 500 毫升之四口圓燒瓶，於  $0^{\circ}\text{C}$  加入 250 毫升  $\text{TiCl}_4$ 。在攪拌中加入 10.0 克微球狀  $\text{MgCl}_2 \cdot 2.8\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$  (依美國專利 4,399,054 實施例 2 所述方法製成，但操作於 3000rpm 以替代 10000rpm)和 7.4 毫莫耳之二乙基 2,3-二異丙基琥珀酸酯。升高溫度至  $100^{\circ}\text{C}$  並維持 120 分鐘。然後，中斷攪拌，讓固體生成物靜置並吸除上層液體。然後加入 250 毫升新鮮  $\text{TiCl}_4$ 。混合物反應於  $120^{\circ}\text{C}$  歷經 60 分鐘，然後，吸除上層液體。用無水己烷(6×100 毫升)於  $60^{\circ}\text{C}$  清洗固體 6 次。

##### 催化劑系統和預聚合處理

在加入於聚合反應器之前，上述固體催化劑成分在

12 °C 與三乙基鋁  $z$ (TEAL)和二環戊基二甲氧基矽烷(DCPMS)接觸 24 分鐘，其量為使 TEAL 對固體催化劑成分之重量比等於 11，且 TEAL/DCPMS 之重量比等於 4.4。

然後使催化劑系統接受預聚合作用。在加入於第一聚合反應器之前，維持在 20°C 之液體丙烯成懸浮液約經 5 分鐘。

### 聚合作用

聚合作用進行於串聯之三個反應器中成連續模式，各反應器裝有將生成物從一反應器轉移至相近之次一反應器之裝置。前二反應器為液相反應器，第三為流床氣相反應器。成分(A)製於第一和第二反應器，而成分(B)製於第三反應器。

氫被用作分子量調節劑。

氣相(丙烯：乙烯和氫)用氣相色層分析法連續分析。

在運轉終結時，粉體被排出並在氮氣液中被乾燥。

在三個反應器中所產生聚合物之主要聚合條件和分析數據列於表 1。

聚合物粒子被送入轉鼓內，在其中與 0.2 重量%之 Irganox B 225(由約 50%Irgano X 1010 和 50%Irgafos 168 製成)，0.3 重量 GMS90(單硬脂酸甘油酯)和 0.09 重量%苯甲酸鈉等混合，獲得核化組成物。以上該 Irganox 1010 為季戊四醇基肆 3-(3,5-二第三丁基-4-羥苯基)丙酸酯，而 Irgafos 168 為參(2,4-二第三丁基苯基)亞磷酸酯。

然後聚合物粒子在氮氣氛下於一雙螺桿擠押機內，於 250rpm 轉速和 200-250°C 熔融溫度被擠押。

所得聚合物性質列於表 2。在同表內亦列出兩種比較用之成核聚合物組成物(比較例 1 和 2)之性質，有相近之 MFR，雜相結構和組成。

比較例 1 之比較聚合物組成物是製自(全部用量以重量計)：

A)83.5% 丙烯均聚物，其 MFRL 為 33 克/10 分，二甲苯不溶量為 98.8%，PI 為 4.3；

B)16.5% 丙烯 / 乙烯 共聚物，含 乙烯 45%；並含 0.3% GMS90、0.12% Irganox B 225 和 0.09% 苯甲酸鈉。

另外，該比較用之組成物含有 15.3 重量%之二甲苯可溶餾分，具有 2 之極限黏度值，並有如下各特點：

- (A)之二甲苯不溶部之 (m m m m)：99.7 莫耳%；
- (A)之  $M_w/M_n$ ：10.1；
- (A)之  $M_z/M_w$ ：3.5；
- Y：15.1 重量%；
- X：37.7 重量%；

比較例 2 之比較用聚合物組成物製自(全部之量以重量計)：

A)82% 丙烯均聚物，具有 4.3 之 PI；

B)18% 之 丙烯 / 乙烯 共聚物，含 乙烯 50%；並含 0.3% GMS90、0.12% 之 Irganox B 225 和 0.09% 苯甲酸鈉。

另外，該比較組成物含有 16 重量溶於二甲苯之餾分，具有 2.58 分升/克之極限黏度，並有如下特點：

- (A)之二甲苯不溶部之 (m m m m)：99.1 莫耳%；
- (A)之  $M_w/M_n$ ：10.1；
- (A)之  $M_z/M_w$ ：3.5。

表 1

聚合作用		第一反應器	第二反應器	第三反應器
溫度	°C	70	70	80
壓力	巴	40	40	18
滯留時間	分	55	44	25
H <sub>2</sub> 量	莫耳 ppm	7426	6990	-
C <sub>2</sub> <sup>-</sup> /C <sub>2</sub> <sup>-</sup> +C <sub>3</sub> <sup>-</sup>	%	-	-	0.28
H <sub>2</sub> /C <sub>2</sub> <sup>-</sup>	%	-	-	0.062
分離	重量%	64	17	19
聚合物分析				
MIL	分克/分	49.5	50.2	21
成分(A)之 PI	-	-	6	-
已共聚之 C <sub>2</sub> <sup>-</sup> (合計)	重量%	-	-	8.4
二甲苯可溶物 I.V. (合計)	分升/克	-	-	2.86
二甲苯不溶物	重量%	98.2	97.6	82.2
在(A)中之 X.I.(mmmm)	莫耳%		98.8	
(A)之 Mw/Mn			15.1	
(A)之 Mz/Mw			4.7	
Y	重量%			8.2
X	重量%			41.2
在(B)中被共聚之 C <sub>2</sub> <sup>-</sup>	重量%	-	-	45

註：氫量 (H<sub>2</sub> bulk)=在液體單體內之氫濃度；C<sub>2</sub><sup>-</sup>=乙烯；C<sub>3</sub><sup>-</sup>=丙烯；分離=指相對於合計重量在各反應器內所製聚合物之量；「合計」=指全部聚合物組成物；I.V.=極限黏度；X.I.(mmmm)=在 25°C 不溶於二甲苯之餾分內同規立構體之含量。

表 2

各例聚合物	1 (成核)	比較例 1 (成核)	比較例 2 (成核)
MFR(克/10 分)	21	21.3	21
PI(A)	6	4.3	4.3
撓性模數(MPa)	1544	1510	1426
23°C 衝斷試驗(仟焦/米 <sup>2</sup> )	6.6	6	5.9
0°C 衝斷試驗(仟焦/米 <sup>2</sup> )	5.2	3.8	4.6
-10°C 衝斷試驗(仟焦/米 <sup>2</sup> )	5	3.6	4.5
-20°C 衝斷試驗(仟焦/米 <sup>2</sup> )	4.4	3.8	4.4
-20°C 之斷裂能量	14.1	13.1	13.8
D/B(°C)	<-50	-47	<-50

註：D/B = 延展性 / 脆性轉變溫度。

(五) 圖式簡單說明

無

### 伍、中文發明摘要：

本發明係關於一種烯烴聚合物組成物，其含有(以重量計，除非另有說明)：

A) 60-95%之丙烯均聚物或共聚物，其具有自 4.6 至 10 之多分散指數(P.I.)值，且具有高於 98 莫耳之等規五價物(Pentads)(mmmm)含量，其係以  $^{13}\text{C}$  NMR 所量測於 25°C 在二甲苯中不可溶之餾分。

B) 5-40%之乙烯共聚物，其含有 40%至 70%丙烯或  $\text{C}_4\text{-C}_{10}$   $\alpha$ -烯烴或其組合，以及視需要小量比例之二烯；

該組成物具有升溫洗提分餾(TREF)型態，其獲自在二甲苯中之分餾，並在 40°C、80°C 和 90°C 之溫度收集各餾分，其中在 90°C 溫度所收集餾分之乙烯含量 Y 係滿足如下式(I)：

$$Y \leq -0.8 + 0.035X + 0.0091X^2$$

其中 X 為在 40°C 所收集餾分之乙烯含量，而 X 和 Y 兩者以重量百分比表示，且在 25°C 可溶於二甲苯餾分之極限黏度(intrinsic viscosity)值  $[\eta]$  為 1.8 至 4.2 分升/克。

## 陸、英文發明摘：

Olefin polymer composition comprising (by weight, unless otherwise specified):

- A) 60 - 95% of a propylene homopolymer or copolymer having a Polydispersity Index (P.I.) value of from 4.6 to 10 and a content of isotactic pentads (mmmm), measured by  $^{13}\text{C}$  NMR on the fraction insoluble in xylene at 25 °C, higher than 98 molar;
- B) 5 - 40% of a copolymer of ethylene containing from 40% to 70% of propylene or  $\text{C}_4\text{-C}_{10}$   $\alpha$ -olefin(s) or of combinations thereof, and optionally minor proportions of a diene;

said composition having a Temperature Rising Elution Fractionation (TREF) profile, obtained by fractionation in xylene and collection of fractions at temperatures of 40 °C, 80°C and 90 °C, in which the ethylene content Y of the fraction collected at 90 °C satisfies the following relation (I):

$$Y \leq -0.8 + 0.035X + 0.0091X^2$$

wherein X is the ethylene content of the fraction collected at 40 °C and both X and Y are expressed in percent by weight, and a value of intrinsic viscosity  $[\eta]$  of the fraction soluble in xylene at 25 °C of from 1.8 to 4.2 dl/g.

## 拾、申請專利範圍：

1. 一種烯烴聚合物組成物，其包含(以重量計，除非另有說明)：

A) 60-95% 丙烯均聚物、或含 3% 或以下之乙烯或 C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>

$\alpha$ -烯烴之丙烯共聚物或其組合，該均聚物或共聚物具有

自 4.6 至 10 之多分散性指數(P.I.)值，其用 <sup>13</sup>C NMR

所量測在 25°C 不溶於二甲苯之餾分，有高於 98 莫耳

之等規五價物(mmmm)含量；

B) 5-40% 含有 40% 至 70% 丙烯或 C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>  $\alpha$ -烯烴之乙烯共

聚物或其組合；其視需要少量比例的二烯；

該具有如下升溫洗提分餾(TREF)型態之組成物，獲自在

二甲苯中之分餾，然後收集於 40°C、80°C 和 90°C 各溫度

之分餾，其中收集於 90°C 餾分之乙烯含量 Y 係滿足如下關

係(I)：

$$Y \leq -0.8 + 0.035X + 0.0091X^2$$

其中 X 為在 40°C 所收集之分餾之乙烯含量，而 X 和 Y

兩者以重量百分比表示，且在 25°C 溶於二甲苯之分餾之

極限黏度(intrinsic viscosity)[ $\eta$ ]值為 1.8 至 4.2 分升/

克。

2. 如申請專利範圍第 1 項之組成物，其中成分(A)具有一種

分子量分佈，用 GPC(凝膠色層分析法)量測，以 Mw/Mn

比表示，係等於或高於 7；而 Mz/Mn 比之值，用 GPC 量

測係等於或高於 3.6。

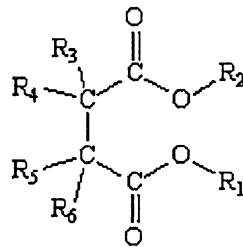
3. 一種用於製成如申請專利範圍第 1 項之烯烴聚合物組成

物之聚合方法，其包含至少兩個順序步驟，其中成分(A)

和(B)製自分別之相繼步驟，除第一步驟外，在各步驟之操作中，存在有於先前步驟中所形成之聚合物和所用催化劑。

4. 如申請專利範圍第 3 項之聚合方法，其中聚合催化劑為含有固體催化劑成分之齊格勒-納他 (Ziegler-Natta) 催化劑，該固體催化劑成分包含：

a) Mg、Ti 和鹵素和一種選自於琥珀酸酯、較佳選自於下式 (I) 之琥珀酸酯的電子供體：



其中  $R_1$  和  $R_2$  基係彼此相同或不同之  $C_1-C_{20}$  線型或分支之烷基、烯基、環烷基、芳基、芳烷基或烷芳基，視需要含有雜原子； $R_3$  至  $R_6$  各基係彼此相同或不同之氫或  $C_1-C_{20}$  之線型或分支之烷基、烯基、環烷基、芳基、芳烷基或烷芳基，視需要含雜原子；且  $R_3$  至  $R_6$  各基，其連接於同一碳原子者，可形成環，其條件為若  $R_3$  至  $R_5$  同時為氫而  $R_6$  為選自具有 3 至 20 個碳原子之第一分支的、第二或第三烷基、環烷基、芳基、芳烷基或烷芳基，或具有至少 4 個碳原子、視需要含有雜原子之一線型烷基；

b) 一種烷基鋁化合物和依所需而有，

c) 一或多種電子供體化合物 (外供體)。

柒、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：無。

(二)本代表圖之元件代表符號簡單說明：無

捌、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

無。