

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5605932号  
(P5605932)

(45) 発行日 平成26年10月15日(2014.10.15)

(24) 登録日 平成26年9月5日(2014.9.5)

(51) Int.Cl.	F 1
C09J 123/00	(2006.01) C09J 123/00
C09J 11/04	(2006.01) C09J 11/04
C09J 123/16	(2006.01) C09J 123/16
C08L 23/00	(2006.01) C08L 23/00
C08K 3/00	(2006.01) C08K 3/00

請求項の数 9 (全 12 頁)

(21) 出願番号	特願2008-178767 (P2008-178767)
(22) 出願日	平成20年7月9日(2008.7.9)
(65) 公開番号	特開2009-19206 (P2009-19206A)
(43) 公開日	平成21年1月29日(2009.1.29)
審査請求日	平成23年7月8日(2011.7.8)
(31) 優先権主張番号	102007031967.5
(32) 優先日	平成19年7月10日(2007.7.10)
(33) 優先権主張国	ドイツ(DE)

(73) 特許権者	398056207 クラリアント・ファイナンス・(ビーブイ アイ)・リミテッド イギリス領ヴァージン諸島、トートーラ、 ロード・タウン、ウイックハムズ・ケイ、 シトコ ビルディング(番地なし)
(74) 代理人	100069556 弁理士 江崎 光史
(74) 代理人	100111486 弁理士 鍛治澤 實
(74) 代理人	100139527 弁理士 上西 克礼
(74) 代理人	100164781 弁理士 虎山 一郎

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】ポリオレフィンをベースとする建築材料

## (57) 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

ペグを製造するための、

a) 下記を有する一種以上のポリオレフィン：

50 ~ 165 の範囲のリング / ボール軟化点、

温度 170 で測定して 20 ~ 40000 mPa · s の範囲のメルト粘度および

ガラス転移温度  $T_g$  - 10 以下

ならびに

b) 一種以上の無機充填剤

を含む組成物の使用。

## 【請求項 2】

ポリオレフィンが、エチレンとプロピレンとを触媒としてメタロセンの存在において重合させることによって調製されている、請求項 1 記載の使用。

## 【請求項 3】

ポリオレフィンが、ISO 1133 に従って温度 190 測定して、30 g / 10 m in より大きいメルトフローインデックス MFI および荷重 2.16 kg を有する、請求項 1 または 2 記載の使用。

## 【請求項 4】

チョーク、天然の粉碎または沈降炭酸カルシウム、カルシウム・マグネシウム炭酸塩、酸化カルシウム、ケイ酸塩、バライト、グラファイト、カーボンブラックまたはバーミキ

ユライト、雲母、タルクまたは層状ケイ酸塩が無機充填剤として使用される、請求項 1 ~ 3 のいずれか一に記載の使用。

【請求項 5】

ポリオレフィン対無機充填剤の重量比が 1 : 99 ~ 99 : 1 の範囲である、請求項 1 ~ 4 のいずれか一に記載の使用。

【請求項 6】

ポリオレフィンを 61 ~ 89 重量% および充填剤を 11 ~ 39 重量% 含む、請求項 1 ~ 5 のいずれか一に記載の使用。

【請求項 7】

成分 a ) および b ) に加えて、成分 c ) を含有し、c ) は、極性になるように修飾されておりそしてポリオレフィン a ) と、 - 不飽和カルボン酸またはその誘導体とを遊離基発生剤の存在において反応させることによって作成する一種以上のコポリマーワックスである、請求項 1 ~ 6 のいずれか一に記載の使用。 10

【請求項 8】

前記組成物が、その組成物の総重量に基づいて、脂肪族および脂環式または芳香族炭化水素樹脂を 0 ~ 90 重量% 加えて含有する、請求項 1 ~ 7 のいずれか一に記載の使用。

【請求項 9】

前記組成物が、170 における粘度 100 ~ 10000 mPa · s の範囲を有する、請求項 8 記載の使用。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、a) 一種以上のポリオレフィンおよび b) 一種以上の無機充填剤を含む組成物の、物品を建築部位に固定する働きをする接続部位としての使用に関する。

【背景技術】

【0002】

物品を建築部位、例えば築壁または他の壁に固定するために、ペグ (peg) を種々の実施態様で接続部位として使用するのが従来技術である。ペグの使用の基本原理は、これらを、このために備えた非常に精確に造形したドリル穴の中に押し込みそして締め付けねじをペグの中にねじ込むことである。ペグを広げた結果として、これおよびねじは、建築部位においてしっかりと詰め込まれることになる。ペグおよびねじを互いに適合させることが、絶対に必要である。小さすぎる直径を有するねじを使用する場合には、それらは十分なグリップをもたらさない。大きすぎるねじ直径は、ペグにはまり込まないかまたはねじをねじ込むのに一層の力を必要とする。石こうまたは断熱材のような多孔質建築材料におけるペグの強度は、不満足であることがしばしばある。たびたび、例えば、品質不良の石こうまたは石造建築の場合に、ペグに精確に適合する穴を製造するのは難しい。 30

【0003】

ポリオレフィンを含むホットメルト接着剤組成物は、多数の文献から知られている。

【0004】

すなわち、ポリオレフィンおよびそれらのホットメルト接着剤としての使用およびまた、路面標識を製造するための結合剤としての使用も開示されている (特許文献 1)。 40

【0005】

有利な粘度挙動を有しそして従って、容易にスプレーすることができる、ポリオレフィンを含むホットメルト接着剤組成物が記載されている (特許文献 2)。

衛生用品を製造する際の構造接着剤としてのホットメルト接着剤組成物が、開示されている (特許文献 3)。

【0006】

エチレン-C<sub>3</sub>-C<sub>20</sub>コポリマーまたはC<sub>3</sub>-C<sub>30</sub>ホモポリマーもしくはコポリマーおよび充填剤少なくとも40重量%を含む組成物、およびまた、完成品、例えば、フィルム、床材または壁装材を製造するためのそれらの改良された加工性が記載されている (特許文献 4)。 50

これらの組成物の接着性についての情報またはそれらのホットメルト接着剤組成物としての使用は、挙げられていない。

【0007】

エチレンコポリマー、ワックスおよび核剤を含む混合物ならびにまた、それらのホットメルト接着剤組成物としての使用が、開示されている（特許文献5）。

核剤として、粘土鉱物が挙げられているが、好ましいのは、有機化合物、特にアセタールである。核剤は、ポリマー混合物を基準にして、0.1～10重量%の量で使用される。

【0008】

両方の文献において、エチレンおよびオクテンを含むエチレンコポリマーが使用される。これらのオレフィンコポリマーの凝集力および極限引張強度/破壊強度は、相対的に低い。

10

【0009】

上に挙げた文献の中で、ポリオレフィンホットメルト接着剤組成物の、締め付け材料としての、特にペグとしての使用を可能にすることを提案するものは無い。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

従って、本発明の目的は、上述した不利を回避しそして物品の建築部位、例えば石造建築壁あるいは例えば、コンクリート、木材または石を含む他の壁への耐久性がありそして強い締め付けを、使いやすい様式で達成するするのを可能にする締め付け材料を提供するにある。

20

【課題を解決するための手段】

【0011】

驚くべきことに、この目的は、特定のホットメルト組成物を使用することによって、達成することができるを見出した。

【0012】

本発明に従えば、ホットメルト材料用に適している組成物は、a) 一種以上のポリオレフィンおよび b) 一種以上の無機充填剤を含む。

【0013】

従って、本発明は、下記を含む組成物を提供する：

30

a) 下記を有する一種以上のポリオレフィン：

50～165 の範囲のリング/ボール軟化点，

温度170 で測定して20～40 000 mPa・sの範囲のメルト粘度および

ガラス転移温度  $T_g$  -10 以下

ならびに

b) 一種以上の無機充填剤。

【0014】

ここで、ホットメルト組成物を、温液形態で、建築材料内に存在するまたは作成した中空空隙の中に注入する。中空空隙は、例えば、慣習的なやりかたで、ドリル穴を用いて製造することができる。メルトは、中空空隙を完全に満たしそして中空空隙の内壁を濡らすことによって、建築材料に付着する。ホットメルト材料が固まりそして硬化する間に、ねじを、依然弾力性のある組成物にねじ込むことができる。これは、精確に適合する雌ねじを生じる。ホットメルト組成物は、短時間の後に、完全に固まっておりそしてねじに全負荷を施すことができる。

40

【0015】

任意の材料および任意の幾何学のねじを使用することが可能である。金属製のまたは木製の両方のねじまたは別の材料のねじが可能である。これらを、再び所望の通りに、それらの負荷に耐える能力を失わないで、ねじり抜くおよびねじ込むことができる。その上に、ねじの代わりに、棒状体取り付け、ねじ山の無いものでさえ使用することが可能である。本発明の原理は、任意のタイプの建築材料用に、それだけでなくそして特に、慣用のペ

50

グが不適当であるかまたは限られた程度だけに適しているもの、例えば多孔質石造建築用に適している。本発明の更なる利点は、ホットメルト組成物を伴う中空空隙が、ペグを使用する時のように、精確に適合する幾何学を有する必要が無いことである。

【発明を実施するための最良の形態】

【0016】

ポリオレフィンは、エチレンとプロピレンとを触媒としてメタロセンの存在において重合させることによって作成するのが好ましくそしてISO 1133に従って、温度190 および荷重 2.16 kgで測定して、30 g/10 minより大きいメルトフローインデックス MFI を有する。

【0017】

本発明の組成物は、有利には、接着力および凝集力の低下を被らないで、非常に短い硬化時間を有しそしてそれらは、また、脆弱で無く、改良された引張強度（引張 N）および剛性（伸び）を示しそしてまた、好都合な粘度挙動も示す。それらは、毒生物学的および生態学的に許容されそして簡単なやり方で取り扱うことができる。

【0018】

本発明の組成物の更なる利点は、0 より低い温度においてさえ、それらの耐温度性である。

【0019】

無機充填剤は、たくさんの無機塩およびミネラルの中から選ぶことができる。好適な充填剤として、ここに、チョーク、天然の粉碎もしくは沈降炭酸カルシウム、カルシウム・マグネシウム炭酸塩、酸化カルシウム、ケイ酸塩およびバライトを挙げることができる。更なる適した充填剤は、バーミキュライト、雲母、タルクまたは同様の層状ケイ酸塩のような小板様充填剤、同様に、グラファイトまたはカーボンブラックである。充填剤の少なくとも一部が、表面処理されているのが有利になり得る。

【0020】

本発明に従って使用する組成物の好適な実施態様は、炭酸カルシウムを充填剤として含有する。

【0021】

本発明に従って使用する組成物における上述したポリオレフィン対無機充填剤の重量比は、1:99 ~ 99:1の範囲であり、10:90 ~ 90:10の範囲であるのが好ましい。特に、組成物は、ポリオレフィンを61 ~ 89重量%および充填剤を11 ~ 39重量%含み、ポリオレフィンを65 ~ 85重量%および充填剤を15 ~ 35重量%含むのが特に好ましい。

【0022】

本発明に従って使用する組成物は、温度170 で測定して、50 ~ 30 000 mPa · s、特に好ましくは100 ~ 20 000 mPa · sの溶融粘度を有する上述したタイプのポリオレフィンを含有するのが好ましい。

【0023】

好適な実施態様では、数平均モル質量 $M_n$  500 ~ 20 000 g/モルの範囲、好ましくは800 ~ 10 000 g/モルの範囲、特に好ましくは1000 ~ 5000 g/モルの範囲、および重量平均モル質量 $M_w$  1000 ~ 40 000 g/モルの範囲、好ましくは1600 ~ 30 000 g/モルの範囲、特に好ましくは2000 ~ 20 000 g/モルの範囲を有するポリオレフィンを使用する。モル質量の測定は、ゲルパーキュレーションクロマトグラフィーによって実施する。

【0024】

本発明の組成物は、特に、プロピレンのホモポリマーおよびプロピレンとエチレンとのコポリマーの中から選ぶポリオレフィンを含み、コポリマーは、一種のタイプのオレフィンを70 ~ 99.9重量%含むのが好まし、80 ~ 99重量%含むのが特に好ましい。

【0025】

更に好適な実施態様では、組成物は、プロピレンとエチレンとのコポリマーを含み、プロピレンに由来する構造単位の割合は、61重量% ~ 99.9重量%であり、70 ~ 99重量%であるのが好ましく、80 ~ 95重量%であるのが特に好ましい。

10

20

30

40

50

## 【0026】

好適な実施態様では、本発明の組成物は、成分 a) および b) に加えて、成分 c) を含有し、c) は、極性になるように修飾されておりそしてポリオレフィン a) と、-不飽和カルボン酸またはその誘導体とを遊離基成形体の存在において反応させることによって作成する一種以上のコポリマーワックスである。

## 【0027】

c)で述べた極性になるように修飾されているコポリマーワックスは、EP 0 941 257に記載されている方法によって作成することができる。

## 【0028】

好ましいのは、極性になるように修飾されておりそして無水マレイン酸を用いて修飾されたポリオレフィンに由来する、好ましくはポリプロピレンに由来するコポリマーワックスである。 10

## 【0029】

成分 a) および b) または a), b) および c) を含む本発明の組成物は、更なる添加剤を用いないで建築材料または接続部位として使用することができるかまたは樹脂の群より選ぶ接着剤成分の一種以上を含有することができる。

## 【0030】

可能な樹脂は、脂肪族および脂環式または芳香族炭化水素樹脂である。これらは、石油を処理する際に得られる特定の樹脂油留分を重合させることによって、作成することができる。そのような樹脂は、例えば、水素化または官能化することによって修飾することができ、例えば、商品名Eastoflex, RegalREZ, Kristalex, Eastotac, Piccotac (Eastman Chemical Company) またはEscorez (ExxonMobil Chemical Company)で入手できる。更なる可能な樹脂は、テルペン、例えばピネンをFriedel-Crafts触媒の存在において重合させることによって作成したポリテルペン樹脂、同様に、水素化ポリテルペン、天然のテルペンのコポリマーおよびターポリマー、例えば、スチレン-テルペンまたは-メチルスチレン-テルペンコポリマーである。更なる可能な樹脂は、天然のおよび修飾されたロジン樹脂、特に、樹脂エステル、ツリー(tree)樹脂のグリセリルエステル、ツリー樹脂およびトール油樹脂のペンタエリスリトールエステル、およびソレラノ水素化誘導体およびまた、樹脂のフェノール修飾されたペンタエリスリトールエステルおよびフェノール修飾されたテルペン樹脂である。 30

## 【0031】

上述した樹脂は、個々にまたは任意の組合せでのいずれかで組成物の総重量に基づいて、0~90重量%の範囲、好ましくは10~50重量%、特に好ましくは15~40重量%の範囲の重量による割合で本発明に従って使用する組成物中に存在する。

本発明の組成物の非常に特に好適な実施態様では、これらは、非晶質のポリ-アルファ-オレフィン (= APAOs)、例えばVestoplast (登録商標) シリーズ (Degussa)の銘柄またはUntsman からの"Rextac" 銘柄、例えばExxon Mobilから商品名 "Escorez" で得ることができるような脂肪族、脂環式または芳香族炭化水素樹脂、また、例えば、BASFから商品名 "Oppanol" で得ができるようなポリイソブチレンの中から選ぶ接着剤成分の一種以上を含有する。また、他のポリオレフィン、例えば、Dow Chemicalから商品名 "Affinity" で入手し得るような低圧ポリエチレン、また、極性コモノマーを含有するもの、例えばエチレン-ビニルアセテートを含む高圧ポリエチレンが存在することも可能である。そのような組成物の総混合物は、170 における粘度100~10 000 mPa·s の範囲を有し、170 における粘度120~9000 mPa·s の範囲を有するのが好ましく、170 における粘度130~8000 mPa·s の範囲を有するのが特に好ましい。 40

## 【0032】

適切な場合には、顔料、酸化防止剤、臭気結合剤 (odor binder)、抗菌性物質または染料および香料が存在することもできる。

## 【0033】

本発明に従って使用する組成物中に存在するメタロセンポリオレフィンは、式 I のメタ

10

20

30

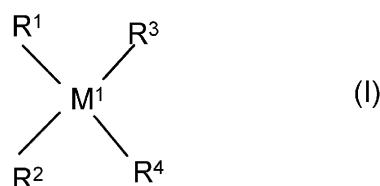
40

50

ロセン化合物を触媒として使用して作成する。

【0034】

【化1】



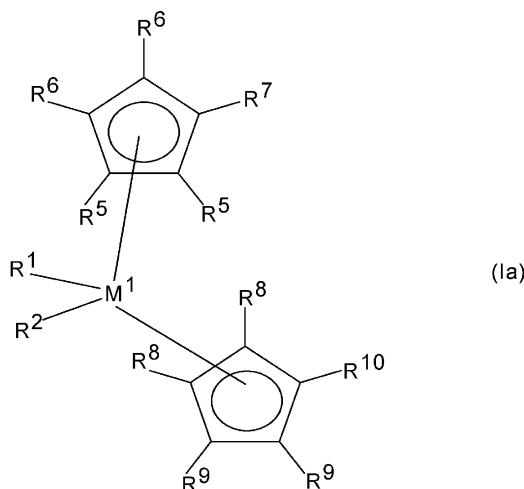
【0035】

この式は、また、式Iaの化合物、

10

【0036】

【化2】

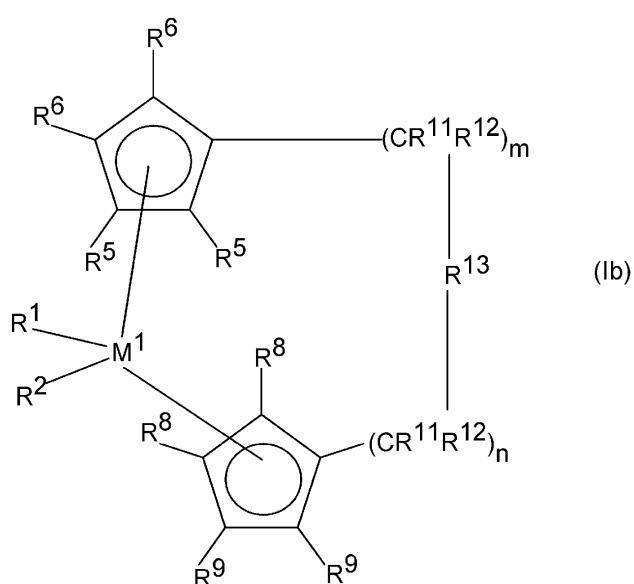


【0037】

式Ib、

【0038】

【化3】



【0039】

および式Ic

【0040】

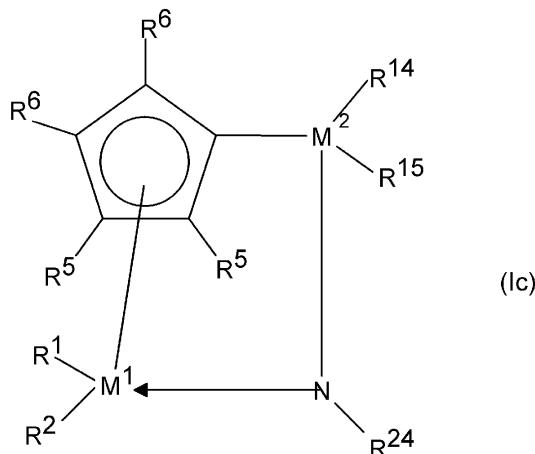
10

20

30

40

【化4】



10

【0041】

も包含する。

【0042】

式I, IaおよびIbにおいて, M<sup>1</sup>は、周期表のIVb, VbまたはVIb族の金属、例えばチタン, ジルコニウム, ハフニウム, バナジウム, ニオブ, タンタル, クロム, モリブデン, タングステンであり、好ましくは、チタン, ジルコニウムまたはハフニウムである。

【0043】

R<sup>1</sup>およびR<sup>2</sup>は、同一であるかまたは異なりそして各々、水素原子, C<sub>1</sub>-C<sub>10</sub>-<sup>1</sup>, 好ましくはC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-アルキル基、特にメチル, C<sub>1</sub>-C<sub>10</sub>-<sup>1</sup>, 好ましくはC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-アルコキシ基, C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-<sup>1</sup>, 好ましくはC<sub>6</sub>-C<sub>8</sub>-アリール基, C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-<sup>1</sup>, 好ましくはC<sub>6</sub>-C<sub>8</sub>-アリールオキシ基, C<sub>2</sub>-C<sub>10</sub>-<sup>1</sup>, 好ましくはC<sub>2</sub>-C<sub>4</sub>-アルケニル基, C<sub>7</sub>-C<sub>40</sub>-<sup>1</sup>, 好ましくはC<sub>7</sub>-C<sub>10</sub>-アリールアルキル基, C<sub>7</sub>-C<sub>40</sub>-<sup>1</sup>, 好ましくはC<sub>7</sub>-C<sub>12</sub>-アルキルアリール基, C<sub>8</sub>-C<sub>40</sub>-<sup>1</sup>, 好ましくはC<sub>8</sub>-C<sub>12</sub>-アリールアルケニル基またはハロゲン原子、好ましくは塩素原子である。

【0044】

R<sup>3</sup>およびR<sup>4</sup>は、同一であるかまたは異なりそして各々、単環式または多環式炭化水素ラジカルであり、中心原子M<sup>1</sup>と一緒に、サンドイッチ構造を形成することができる。R<sup>3</sup>およびR<sup>4</sup>は、好ましくは、シクロペンタジエニル、インデニル、テトラヒドロインデニル、ベンゾインデニルまたはフルオレニルであり、基本分子は、更なる置換基を持つかまたは互いに橋掛けすることができる。加えて、ラジカルR<sup>3</sup>およびR<sup>4</sup>の内の一つは、置換された窒素原子になることができ、ここで、R<sup>24</sup>は、R<sup>17</sup>について挙げる意味を有しそして好ましくは、メチル, tert-ブチルまたはシクロヘキシルである。

【0045】

R<sup>5</sup>, R<sup>6</sup>, R<sup>7</sup>, R<sup>8</sup>, R<sup>9</sup>およびR<sup>10</sup>は、同一であるかまたは異なりそして各々、水素原子、ハロゲン原子、好ましくは、フッ素、塩素または臭素原子, C<sub>1</sub>-C<sub>10</sub>-<sup>1</sup>, 好ましくはC<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-アルキル基, C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-<sup>1</sup>, 好ましくはC<sub>6</sub>-C<sub>8</sub>-アリール基, C<sub>1</sub>-C<sub>10</sub>-<sup>1</sup>, 好ましくはC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-アルコキシ基, -NR<sup>16</sup><sub>2</sub>, -SR<sup>16</sup><sub>2</sub>, -OSiR<sup>16</sup><sub>3</sub>, -SiR<sup>16</sup><sub>3</sub>または-PR<sup>16</sup><sub>2</sub>ラジカルであり、ここで、R<sup>16</sup>は、C<sub>1</sub>-C<sub>10</sub>-<sup>1</sup>, 好ましくはC<sub>1</sub>-C<sub>3</sub>-アルキル基またはC<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-<sup>1</sup>, 好ましくはC<sub>6</sub>-C<sub>8</sub>-アリール基またはSi-<sup>1</sup>もしくはP-含有ラジカルの場合には、また、ハロゲン原子、好ましくは塩素原子であってもよく、または2つの隣接するラジカルR<sup>5</sup>, R<sup>6</sup>, R<sup>7</sup>, R<sup>8</sup>, R<sup>9</sup>またはR<sup>10</sup>は、それらを接続する炭素原子と一緒に、環を形成する。特に好適な配位子は、基本ラジカルであるシクロペンタジエニル、インデニル、テトラヒドロインデニル、ベンゾインデニルまたはフルオレニルの置換された化合物である。

【0046】

R<sup>13</sup>は、

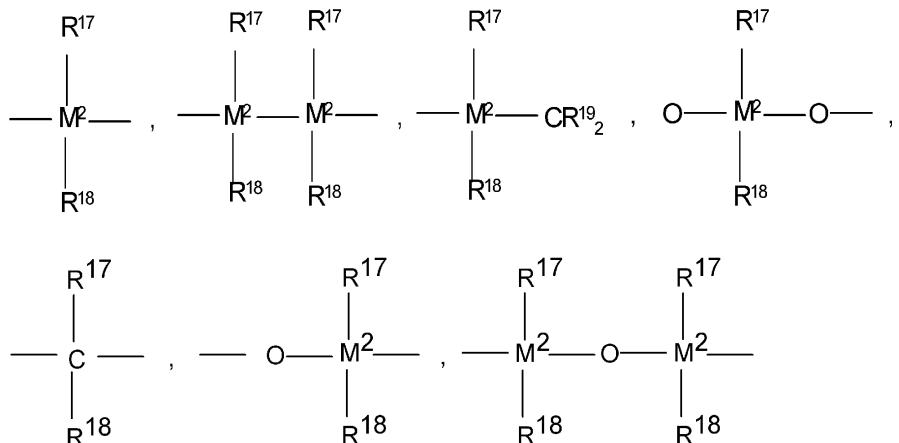
【0047】

20

30

40

## 【化5】



## 【0048】

$=\text{BR}^{17}$ ,  $=\text{AIR}^{17}$ ,  $-\text{Ge}-$ ,  $-\text{Sn}-$ ,  $-\text{O}-$ ,  $-\text{S}-$ ,  $=\text{SO}$ ,  $=\text{SO}_2$ ,  $=\text{NR}^{17}$ ,  $=\text{CO}$ ,  $=\text{PR}^{17}$  または  $=\text{P}(\text{O})\text{R}^1$ <sup>7</sup> であり, ここで、 $\text{R}^{17}$ ,  $\text{R}^{18}$  および  $\text{R}^{19}$  は、同一であるかまたは異なりそして各々、水素原子, ハロゲン原子, 好ましくは、フッ素, 塩素または臭素原子,  $\text{C}_1\text{-C}_{30}-$ , 好ましくは  $\text{C}_1\text{-C}_4\text{-アルキル基}$ , 特にメチル基,  $\text{C}_1\text{-C}_{10}-$ フルオロアルキル基, 好ましくは  $\text{CF}_3$  基,  $\text{C}_6\text{-C}_{10}-$ フルオロアリール基, 好ましくはペンタフルオロフェニル基,  $\text{C}_6\text{-C}_{10}-$ , 好ましくは  $\text{C}_6\text{-C}_8\text{-アリール基}$ ,  $\text{C}_1\text{-C}_{10}-$ , 好ましくは  $\text{C}_1\text{-C}_4\text{-アルコキシ基}$ , 特にメトキシ基,  $\text{C}_2\text{-C}_{10}-$ , 好ましくは  $\text{C}_2\text{-C}_4\text{-アルケニル基}$ ,  $\text{C}_7\text{-C}_{40}-$ , 好ましくは  $\text{C}_7\text{-C}_{10}-$ アラルキル基,  $\text{C}_8\text{-C}_{40}-$ , 好ましくは  $\text{C}_8\text{-C}_{12}-$ アリールアルケニル基または  $\text{C}_7\text{-C}_{40}-$ , 好ましくは  $\text{C}_7\text{-C}_{12}-$ アリルアリール基, あるいは  $\text{R}^{17}$  および  $\text{R}^{18}$  または  $\text{R}^{17}$  および  $\text{R}^{19}$  は、それらを接続する原子と一緒に、環を形成する。

## 【0049】

$\text{M}^2$ は、ケイ素, ゲルマニウムまたはスズであり, 好ましくはケイ素またはゲルマニウムである。 $\text{R}^{13}$ は、好ましくは、 $=\text{CR}^{17}\text{R}^{18}$ ,  $=\text{SiR}^{17}\text{R}^{18}$ ,  $=\text{GeR}^{17}\text{R}^{18}$ ,  $-\text{O}-$ ,  $-\text{S}-$ ,  $=\text{SO}$ ,  $=\text{PR}^{17}$  または  $=\text{P}(\text{O})\text{R}^{17}$  である。

## 【0050】

$\text{R}^{11}$  および  $\text{R}^{12}$ は、同一であるかまたは異なりそして  $\text{R}^{17}$ について挙げた意味を有する。

。

## 【0051】

$\text{m}$  および  $\text{n}$ は、同一であるかまたは異なりそして各々、ゼロ, 1 または 2 であり, 好ましくはゼロまたは 1 であり,  $\text{m} + \text{n}$ は、ゼロ, 1 または 2 であり, 好ましくはゼロまたは 1 である。

## 【0052】

$\text{R}^{14}$  および  $\text{R}^{15}$ は、 $\text{R}^{17}$  および  $\text{R}^{18}$ について挙げた意味を有する。

## 【0053】

適したメタロセンの具体例は、下記である:

ビス(1,2,3-トリメチルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ビス(1,2,4-トリメチルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ビス(1,2-ジメチルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ビス(1,3-ジメチルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ビス(1-メチルインデニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ビス(1-n-ブチル-3-メチルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ビス(2-メチル-4,6-ジ-i-プロピルインデニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ビス(2-メチルインデニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ビス(4-メチルインデニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ビス(5-メチルインデニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ビス(アルキルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド,

10

20

30

40

50

ビス(アルキルインデニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ビス(シクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ビス(インデニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ビス(メチルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ビス(n-ブチルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ビス(オクタデルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ビス(ペンタメチルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ビス(トリメチルシリルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ビスシクロペンタジエニルジベンジルジルコニウム,  
 ビスシクロペンタジエニルジメチルジルコニウム,  
 ビステトラヒドロインデニルジルコニウムジクロリド,  
 10  
 ジメチルシリル-9-フルオレニルシクロペンタジエニルジルコニウムジクロリド,  
 ジメチルシリルビス-1-(2,3,5-トリメチルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ジメチルシリルビス-1-(2,4-ジメチルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ジメチルシリルビス-1-(2-メチル-4,5-ベンゾインデニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ジメチルシリルビス-1-(2-メチル-4-エチルインデニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ジメチルシリルビス-1-(2-メチル-4-i-プロピルインデニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ジメチルシリルビス-1-(2-メチル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ジメチルシリルビス-1-(2-メチルインデニル)ジルコニウムジクロリド,  
 20  
 ジメチルシリルビス-1-(2-メチルテトラヒドロインデニル)ジルコニウムジクロリド,  
 ジメチルシリルビス-1-インデニルジルコニウムジクロリド,  
 ジメチルシリルビス-1-インデニルジメチルジルコニウム,  
 ジメチルシリル-ビス-1-テトラヒドロインデニルジルコニウムジクロリド,  
 ジフェニルメチレン-9-フルオレニルシクロペンタジエニルジルコニウムジクロリド,  
 ジフェニルシリルビス-1-インデニルジルコニウムジクロリド,  
 エチレンビス-1-(2-メチル-4,5-ベンゾインデニル)ジルコニウムジクロリド,  
 エチレンビス-1-(2-メチル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジクロリド,  
 エチレンビス-1-(2-メチルテトラヒドロインデニル)ジルコニウムジクロリド,  
 エチレンビス-1-(4,7-ジメチルインデニル)ジルコニウムジクロリド,  
 30  
 エチレンビス-1-インデニルジルコニウムジクロリド,  
 エチレンビス-1-テトラヒドロインデニルジルコニウムジクロリド,  
 インデニルシクロペンタジエニルジルコニウムジクロリド  
 イソプロピリデン(1-インデニル)(シクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド,  
 イソプロピリデン(9-フルオレニル)(シクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロリド,  
 フェニルメチルシリルビス-1-(2-メチルインデニル)ジルコニウムジクロリド,  
 およびまた、これらのメタロセンジクロリドのアルキルまたはアリール誘導体。

## 【0054】

単一サイト触媒系を活性化するのに、適した助触媒を使用する。式 I のメタロセン用に  
 適した助触媒は、オルガノアルミニウム化合物、特に アルミニオキサン、または他に、アルミニウムの入っていない系、例えば、 $R^{20}_xNH_{4-x}BR^{21}_4$ 、 $R^{20}_xPH_{4-x}BR^{21}_4$ 、 $R^{20}_3CBR^{21}_4$  または  $BR^{21}_3$  である。これらの式において、xは、1~4であり、ラジカル  $R^{20}$  は、同一であるかまたは異なり、好ましくは同一であり、そして各々  $C_1-C_{10}$ -アルキルまたは  $C_6-C_{18}$ -アリールであるかまたは2個のラジカル  $R^{20}$  は、それらを接続する原子と一緒に、環を形成し、そしてラジカル  $R^{21}$  は、同一であるかまたは異なり、好ましくは同一であり、そして各々  $C_6-C_{18}$ -アリールであり、これは、アルキル、ハロアルキルまたはフッ素によって置換されてよい。特に、 $R^{20}$  は、エチル、プロピル、ブチルまたはフェニルでありそして  $R^{21}$  は、フェニル、ペンタフルオロフェニル、3,5-ビストリフルオロメチルフェニル、メシチル、キシリルまたはトリルである。

## 【0055】

10

20

30

40

50

第三成分は、また、極性触媒毒に対して保護を保つのに必要であることがよくある。トリエチルアルミニウム、トリブチルアルミニウム等のようなオルガノアルミニウム化合物およびまた、これらの混合物もこの目的に適している。

【0056】

プロセスに応じて、また、担持された单一サイト触媒を使用することも可能である。好みのものは、担体材料および助触媒の残留含有量が、生成物中の濃度 100 ppmを超えない触媒系である。

【0057】

そのようなポリオレフィンを調製するプロセスは、例えば、従来技術、例えばEP-A-0 3 21 851, EP-A-0 321 852, EP-A-0 384 264, EP-A-0 571 882 および EP-A-0 890 584に記載されている。

10

【0058】

本発明の組成物は、建築材料を製造するために、特に、物品、例えばペグを表面に締め付けるための接続部位を製造するために使用するのに適している。組成物の硬化時間は、非常に短くそして < 12 秒の範囲、好ましくは 0.1 ~ 10 秒の範囲、特に好ましくは 0.5 ~ 8 秒の範囲、特に好ましくは 1 ~ 5 秒の範囲であるので接続部位は、簡単なやり方で、非常に短時間の内に取り付けることができる。

充填剤含有量が、組成物を基準にして、40 重量 % より少ない組成物が、特に有利である。% で表す伸び率として求める、組成物の伸び能力または剛性は、意図する目的に理想的である、すなわち、組成物は、脆弱でなくそしてねじをねじ込む際に、破断したり破壊したりしないで、良好な剛性を達成する。充填剤を非常に高い割合で有する組成物は、伸び率 0 % を示しそしてクラックを形成する高い傾向を有する。

20

【実施例】

【0059】

下記の例は、本発明を例示するが、本発明を具体的に述べる実施態様に限定しない。パーセンテージは、別の方で示さない場合には、重量によるパーセンテージである。

【0060】

溶融粘度は、DIN 53019に従って、回転式粘度計を使用して求め、滴点は、ASTM D3954に従って求め、リング/ボール 軟化点は、ASTM D3104に従って求めた。重量平均モル質量  $M_w$  および数平均モル質量  $M_n$  は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィーにより、1,2-ジクロロベンゼン中温度 135 で求めた。

30

【0061】

硬化時間は、2つの紙ストリップを互いに接着結合させそして時間であって、その時間内に、紙ストリップを、損傷なしでおよび纖維を引き裂かないで、分離することができる時間を測定することによって、求めた。

【0062】

引張強度 (引張 N) は、求める厚さ 500  $\mu\text{m}$  を有する供試体に引張力を施しそして供試体が破断する力を測定することによって、求めた。

【0063】

伸び率 (% で表す) は、供試体の破断への伸展性である。

40

【0064】

本発明に従って使用した Licocene PP 2602 (登録商標) TP プロピレンポリマーは、EP 0 384 264 の従来技術に開示されているプロセスによって調製した。

処方 1 (F1)

Licocene PP 2602 (登録商標) TP 30%

Snowcal 70 65%

Licocene PP MA 6252 TP 5%

比較処方1 (C-F1)

Licocene PP 2602 (登録商標) TP 85.7%

Licocene PP MA 6252 TP 14.3%

50

## 処方2 (F2)

Licocene PP 2602 (登録商標) TP 76.3%

Snowcal 70 11%

Licocene PP MA 6252 TP 13.7%

## 処方3 (F3)

Licocene PP 2602 (登録商標) TP 62.3%

Snowcal 70 39%

Licocene PP MA 6252 TP 9.7%

一般的な製造方法： 使用するポリマーを200 °C で融解した。引き続いて、充填剤を攪拌しながら加えそして充填剤の総量が、ポリマーによって吸収されてしまうまで、攪拌を続けた。

## 【0065】

表 2:

処方 (F1 ~ F3) および比較処方(C-F1) 結果として生じた粘度、硬化時間、引張強度(引張 N)および伸び率

## 【0066】

## 【表 1】

F, CF	粘度, 180°C [mPa · s]	硬化時間 [秒]	引張 N [N]	伸び率 [%]
F 1	11160	3	2.8	0
C-F 1	3870	15	1.6	600
F2	3810	10	0.9	32
F3	6350	5	1.3	13

## 【0067】

試験結果は、充填剤Snowcal 70 ( $\text{CaCO}_3$ ) による硬化時間の非常に大きな短縮、および引張強度および/または剛性の相当の増大を示した。高い充填剤含有量 (F1) を有する組成物の場合に、伸び率は0%と測定された、これは、組成物の高い脆性を示す。

使用した商品の特性表示：

Licocene PP MA 6252 TP: ポリプロピレン、無水マレイン酸でグラフトした，

Clariant Produkte (Deutschland) GmbH.

Licocene PP 2602 (登録商標) TP: プロピレンポリマー，Clariant Produkte (Deutschland) GmbH

Snowcal 70: 炭酸カルシウム，Omya

10

20

30

---

フロントページの続き

(72)発明者 ゼバスティヤン・バッハ

ドイツ連邦共和国、86462 アッハスハイム、ファイゲンホファーストラーセ、24

審査官 阪野 誠司

(56)参考文献 特開2006-104472(JP, A)

特開昭60-096676(JP, A)

特表2008-546890(JP, A)

特表2009-540108(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C08L 23/00

C09J 123/00