

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6408481号
(P6408481)

(45) 発行日 平成30年10月17日(2018.10.17)

(24) 登録日 平成30年9月28日(2018.9.28)

(51) Int.Cl. F I
CO8L 23/08 (2006.01) CO8L 23/08
CO8L 91/00 (2006.01) CO8L 91/00
CO8L 23/16 (2006.01) CO8L 23/16
CO8F 210/18 (2006.01) CO8F 210/18

請求項の数 14 (全 26 頁)

(21) 出願番号	特願2015-545029 (P2015-545029)	(73) 特許権者	502141050
(86) (22) 出願日	平成25年3月15日 (2013.3.15)		ダウ グローバル テクノロジーズ エル
(65) 公表番号	特表2015-535551 (P2015-535551A)		エルシー
(43) 公表日	平成27年12月14日 (2015.12.14)		アメリカ合衆国 ミシガン州 48674
(86) 国際出願番号	PCT/US2013/032468		, ミッドランド, ダウ センター 204
(87) 国際公開番号	W02014/084892		O
(87) 国際公開日	平成26年6月5日 (2014.6.5)	(74) 代理人	100092783
審査請求日	平成28年3月8日 (2016.3.8)		弁理士 小林 浩
(31) 優先権主張番号	61/731, 869	(74) 代理人	100120134
(32) 優先日	平成24年11月30日 (2012.11.30)		弁理士 大森 規雄
(33) 優先権主張国	米国 (US)	(74) 代理人	100104282
			弁理士 鈴木 康仁

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 エチレン/ α オレフィン/非共役ポリエン系組成物およびそれから形成される発泡体

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

以下の特性：

A) 150,000 g / モル以上の Mw と、

B) 13C NMRにより決定された、19.5 ppm ~ 22.0 ppmの総積分面積の15パーセント超である21.3 ppm ~ 21.8 ppmのピーク面積と、を有するエチレン/プロピレン/ジエン (EPDM) ターポリマーを含む第1の組成物を含む組成物であって、

前記第1の組成物が、油をさらに含み、1.0以下のタンデルタ (0.1ラジアン/秒で190) を有し、前記13C NMRにおけるスペクトルデータが30 ppmのEE骨格と関係づけられる、組成物。

【請求項 2】

前記EPDMターポリマーが、180,000 g / モル以上の Mw を有する、請求項1に記載の組成物。

【請求項 3】

前記EPDMターポリマーが、200,000 g / モル以上の Mw を有する、請求項1または請求項2に記載の組成物。

【請求項 4】

前記EPDMターポリマーが、40以上のレオロジー比 (190 でV0.1 / V100) を有する、請求項1 ~ 3のいずれかに記載の組成物。

10

20

【請求項 5】

前記 E P D M ターポリマー が、80 ~ 130 のレオロジー比を有する、請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載の組成物。

【請求項 6】

前記第 1 の組成物が、0.1 ラジアン / 秒、190 で 150, 000 ~ 250, 000 Pa · s の粘度を有する、請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載の組成物。

【請求項 7】

前記 E P D M ターポリマー が、前記インターポリマーの重量に基づいて、6 ~ 15 重量パーセントのポリエチレン含有量を有する、請求項 1 ~ 6 のいずれかに記載の組成物。

【請求項 8】

前記 E P D M ターポリマー が、60 以上のムーニー粘度 (ML 1 + 4、125) を有する、請求項 1 ~ 7 のいずれかに記載の組成物。

【請求項 9】

前記 E P D M ターポリマー が、4.0 以下の MWD を有する、請求項 1 ~ 8 のいずれかに記載の組成物。

【請求項 10】

前記 E P D M ターポリマー が、前記 E P D M ターポリマー の重量に基づいて、40 ~ 65 重量パーセントのエチレンを含む、請求項 1 ~ 9 のいずれかに記載の組成物。

【請求項 11】

請求項 1 ~ 10 のいずれかに記載の前記組成物から形成される少なくとも 1 つの構成要素を備える物品。

【請求項 12】

前記物品が発泡体である、請求項 11 に記載の物品。

【請求項 13】

前記物品が、異形材、射出成形部品、ガスケット、自動車部品、建築および建設材料、靴構成要素、ならびに管から成る群から選択される、請求項 11 に記載の物品。

【請求項 14】

請求項 1 ~ 10 のいずれかに記載の前記組成物を調製するための方法であって、

溶液中で、少なくとも以下：エチレン、プロピレン、および非共役ポリエチレンを重合して、A) 150, 000 g / モル以上の Mw と、B) 13C NMR により決定された、19.5 ppm ~ 22.0 ppm の総積分面積の 15 パーセント超である 21.3 ppm ~ 21.8 ppm のピーク面積と、を有する エチレン / プロピレン / ジエン (E P D M) ターポリマー を得ること

前記 E P D M ターポリマー にオイルを組み込むこと
を含み、前記 13C NMR におけるスペクトルデータが 30 ppm の E E E 骨格と関係づけられる、方法。

【発明の詳細な説明】

【背景技術】

【0001】

関連出願の相互参照

本出願は、2012 年 11 月 30 日出願の米国特許仮出願第 61 / 731, 869 号の利益を主張するものである。

【技術分野】

【0002】

目標とする発泡体密度のために改善された発泡特性 (高膨張および滑らかな表面品質) ならびに低下した吸水率を有するポリマー組成物が必要とされている。観察される吸水率は、発泡構造および発泡体中に存在する独立気泡の数に直接関係する。発泡プロセスは、E P D M の架橋および膨張 (例えば C E L O G E N O T などの発泡剤から) の微妙なバランスであり、これは、E P D M の溶融弾性、ならびに膨張および硬化サイクルの間の粘

10

20

30

40

50

度上昇に高度に依存する。ポリマーの溶融弾性は、その分子量および存在する長鎖分枝の程度に関係する。例えばVISTALON 8800 (Exxon-Mobil) および KELTAN 7341A (Lanxess) などの典型的なスポンジ状EPDM生成物は、分子量が高く、相対的に非晶質の油展生成物である。発泡物品に配合および加硫される際、これらのEPDM樹脂は、吸水率ならびに例えば圧縮ひずみおよび引張などの発泡特性の観点から「そのクラスで最高」であると一般的に見なされる。発泡体および/または他の適用例のためのゴム組成物はまた、米国特許第20110233448A1号、米国特許第6384290B1号、米国特許第5691413B1号、米国特許第20090209672号、米国特許第4722971A号、米国特許第5610254号、米国特許第20110160323号、国際公開第2009/072503号(要約)、日本国特許第2006307100A号(要約)、日本国特許第2007191497A号(要約)、および日本国特許第2006335847A号(要約)に開示されている。

10

【0003】

しかしながら、目標とする発泡体密度のために改善された発泡特性(高膨張および滑らかな表面品質)ならびに低下した吸水率を有する新たなポリマー組成物が必要とされている。これらの需要は、以下の発明によって満たされている。

【発明の概要】

【0004】

本発明は、以下の特性：

A) 従来のGPCにより決定されたときに、150,000g/mol以上のMwと、
B) ¹³C NMRにより決定されたときに、19.5ppm~22.0ppmの総積分面積の3.0パーセント以上である21.3ppm~21.8ppmのピーク面積と、
を有するエチレン/オレフィン/非共役ポリエンインターポリマーを含む第1の組成物を含む組成物であって、

20

該第1の組成物が、1.0以下のタンデルタ(0.1ラジアン/秒で190°)を有する、組成物を提供する。

【図面の簡単な説明】

【0005】

【図1】発明および比較ポリマーの、タンデルタ(0.1ラジアン/秒、190°で測定されたもの)対重量平均分子量(Mw)を示す。

30

【図2】発明および比較ポリマーの、190°でのタンデルタ対周波数(ラジアン/秒)プロファイルを示す。

【図3】230°での発泡ロッドの「吸水率(重量%)対発泡体密度」を示す。

【図4】230°での発泡テープの「吸水率(重量%)対発泡体密度」を示す。

【発明を実施するための形態】

【0006】

上述の通り、本発明は、以下の特性：

A) 150,000g/mol以上のMwと、
B) ¹³C NMRにより決定されたときに、19.5ppm~22.0ppmの総積分面積の3.0パーセント以上である21.3ppm~21.8ppmのピーク面積と、
を有するエチレン/オレフィン/非共役ポリエンインターポリマーを含む第1の組成物を含む組成物であって、該第1の組成物が、1.0以下のタンデルタ(0.1ラジアン/秒で190°)を有する、組成物を提供する。

40

【0007】

本組成物は、本明細書に記載の2つ以上の実施形態の組み合わせを含み得る。

【0008】

第1の組成物は、本明細書に記載の2つ以上の実施形態の組み合わせを含み得る。

【0009】

エチレン/オレフィン/非共役ポリエンインターポリマーは、本明細書に記載の2つ以上の実施形態の組み合わせを含み得る。

50

【0010】

一実施形態では、エチレン／オレフィン／非共役ポリエンインターポリマーは、エチレン／オレフィン／ジエンインターポリマー（EAODM）である。さらなる実施形態では、該インターポリマーは、エチレン／プロピレン／ジエンターポリマー（EPDM）である。さらなる実施形態では、該ジエンは、5-エチリデン-2-ノルボルネン（ENB）である。

【0011】

一実施形態では、エチレン／オレフィン／非共役ポリエンインターポリマーは、180,000g/mol以上のMwを有する。さらなる実施形態では、該インターポリマーは、EAODM、さらにエチレン／プロピレン／ジエン（EPDM）ターポリマーである。さらなる実施形態では、該ジエンは、5-エチリデン-2-ノルボルネン（ENB）である。

10

【0012】

一実施形態では、エチレン／オレフィン／非共役ポリエンインターポリマーは、200,000g/mol以上のMwを有する。さらなる実施形態では、該インターポリマーは、EAODM、さらにエチレン／プロピレン／ジエン（EPDM）ターポリマーである。さらなる実施形態では、該ジエンは、5-エチリデン-2-ノルボルネン（ENB）である。

【0013】

一実施形態では、エチレン／オレフィン／非共役ポリエンインターポリマーは、13C NMRにより決定されたときに19.5ppm~22.0ppmの総積分面積の5パーセント超、さらに10パーセント超、さらに15パーセント超である21.3ppm~21.8ppmのピーク面積を有する。さらなる実施形態では、該インターポリマーは、EAODM、さらにエチレン／プロピレン／ジエン（EPDM）ターポリマーである。さらなる実施形態では、該ジエンは、5-エチリデン-2-ノルボルネン（ENB）である。

20

【0014】

一実施形態では、エチレン／オレフィン／非共役ポリエンインターポリマーは、13C NMRにより決定されたときに19.5ppm~22.0ppmの総積分面積の16パーセント超、さらに17パーセント以上、さらに18パーセント以上である21.3ppm~21.8ppmのピーク面積を有する。さらなる実施形態では、該インターポリマーは、EAODM、さらにエチレン／プロピレン／ジエン（EPDM）ターポリマーである。さらなる実施形態では、該ジエンは、5-エチリデン-2-ノルボルネン（ENB）である。

30

【0015】

一実施形態では、第1の組成物は、1.0未満、さらに0.9以下のタンデルタ（0.1秒⁻¹で190）を有する。さらなる実施形態では、該インターポリマーは、EAODM、さらにエチレン／プロピレン／ジエン（EPDM）ターポリマーである。さらなる実施形態では、該ジエンは、5-エチリデン-2-ノルボルネン（ENB）である。

【0016】

一実施形態では、第1の組成物は油をさらに含む。さらなる実施形態では、該インターポリマーは、EAODM、さらにエチレン／プロピレン／ジエン（EPDM）ターポリマーである。さらなる実施形態では、該ジエンは、5-エチリデン-2-ノルボルネン（ENB）である。

40

【0017】

一実施形態では、第1の組成物は、0.1ラジアン/秒、190で150,000~250,000Pa・sの粘度を有する。さらなる実施形態では、該インターポリマーは、EAODM、さらにエチレン／プロピレン／ジエン（EPDM）ターポリマーである。さらなる実施形態では、該ジエンは、5-エチリデン-2-ノルボルネン（ENB）である。

50

【 0 0 1 8 】

－実施形態では、第 1 の組成物は、第 1 の組成物の重量に基づいて、9 0 重量パーセント以上、さらに 9 5 重量パーセント以上、さらに 9 8 重量パーセント以上のエチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーを含む。

【 0 0 1 9 】

第 1 の組成物は、本明細書に記載の 2 つ以上の実施形態の組み合わせを含み得る。

【 0 0 2 0 】

－実施形態では、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、4 0 以上、さらに 5 0 以上、さらに 6 0 以上のレオロジー比 (1 9 0 で $V 0 . 1 / V 1 0 0$) を有する。さらなる実施形態では、該インターポリマーは、E A O D M、さらにエチレン / プロピレン / ジエン (E P D M) ターポリマーである。さらなる実施形態では、該ジエンは、5 - エチリデン - 2 - ノルボルネン (E N B) である。レオロジー比 (1 9 0 で $V 0 . 1 / V 1 0 0$) は、ニートポリマー (油なし、充填剤なし) のものであり、ポリマーは、「 p p m 量」の 1 つ以上の抗酸化剤および / または他の安定剤で典型的に安定化される。

10

【 0 0 2 1 】

－実施形態では、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、7 0 以上、さらに 8 0 以上、さらに 9 0 以上のレオロジー比 (1 9 0 で $V 0 . 1 / V 1 0 0$) を有する。さらなる実施形態では、該インターポリマーは、E A O D M、さらにエチレン / プロピレン / ジエン (E P D M) ターポリマーである。さらなる実施形態では、該ジエンは、5 - エチリデン - 2 - ノルボルネン (E N B) である。

20

【 0 0 2 2 】

－実施形態では、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、8 0 ~ 1 3 0 のレオロジー比 (1 9 0 で $V 0 . 1 / V 1 0 0$) を有する。さらなる実施形態では、該インターポリマーは、E A O D M、さらにエチレン / プロピレン / ジエン (E P D M) ターポリマーである。さらなる実施形態では、該ジエンは、5 - エチリデン - 2 - ノルボルネン (E N B) である。

【 0 0 2 3 】

－実施形態では、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、インターポリマーの重量に基づいて、6 ~ 1 5 重量パーセントのポリエン、さらに 6 ~ 1 0 重量パーセントのポリエン、さらに 7 ~ 1 0 重量パーセントのポリエンを含む。さらなる実施形態では、該ポリエンはジエンである。さらなる実施形態では、該ジエンは、5 - エチリデン - 2 - ノルボルネン (E N B) である。

30

【 0 0 2 4 】

－実施形態では、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、6 0 以上、さらに 8 0 以上のムーニー粘度を有する (M L 1 + 4、1 2 5)。ムーニー粘度はニートポリマー (油なし、充填剤なし) のものであり、ポリマーは、1 つ以上の抗酸化剤および / または他の安定剤で典型的に安定化される。さらなる実施形態では、該インターポリマーは、E A O D M、さらにエチレン / プロピレン / ジエン (E P D M) ターポリマーである。さらなる実施形態では、該ジエンは、5 - エチリデン - 2 - ノルボルネン (E N B) である。

40

【 0 0 2 5 】

－実施形態では、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、4 . 0 以下、さらに 3 . 6 以下の M W D を有する。さらなる実施形態では、該インターポリマーは、E A O D M、さらにエチレン / プロピレン / ジエン (E P D M) ターポリマーである。さらなる実施形態では、該ジエンは、5 - エチリデン - 2 - ノルボルネン (E N B) である。

【 0 0 2 6 】

－実施形態では、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、5 0 0 , 0 0 0 g / モル以下、さらに 4 0 0 , 0 0 0 g / モル以下、さらに 3 0 0 , 0 0 0 g

50

／モル以下の重量平均分子量（ M_w ）を有する。さらなる実施形態では、該インターポリマーは、E A O D M、さらにエチレン／プロピレン／ジエン（E P D M）ターポリマーである。さらなる実施形態では、該ジエンは、5 - エチリデン - 2 - ノルボルネン（E N B）である。

【0027】

－実施形態では、エチレン／オレフィン／非共役ポリエンインターポリマーは、150,000～500,000 g／モル、さらに180,000～400,000 g／モル、さらに200,000～300,000 g／モルの重量平均分子量（ M_w ）を有する。さらなる実施形態では、該インターポリマーは、E A O D M、さらにエチレン／プロピレン／ジエン（E P D M）ターポリマーである。さらなる実施形態では、該ジエンは、5 -

10

【0028】

－実施形態では、エチレン／オレフィン／非共役ポリエンインターポリマーは、インターポリマーの重量に基づいて、40～65重量パーセントのエチレン、さらに40～60重量パーセントのエチレン、さらに45～58重量パーセントのエチレンを含む。さらなる実施形態では、該インターポリマーは、E A O D M、さらにエチレン／プロピレン／ジエン（E P D M）ターポリマーである。さらなる実施形態では、該ジエンは、5 - エチリデン - 2 - ノルボルネン（E N B）である。

【0029】

－実施形態では、エチレン／オレフィン／非共役ポリエンインターポリマーは、本組成物の重量に基づいて、20重量パーセント超、さらに30重量パーセント以上、さらに40重量パーセント以上の量で存在する。さらなる実施形態では、該インターポリマーは、E A O D M、さらにエチレン／プロピレン／ジエン（E P D M）ターポリマーである。さらなる実施形態では、該ジエンは、5 - エチリデン - 2 - ノルボルネン（E N B）である。

20

【0030】

エチレン／オレフィン／非共役ポリエンインターポリマー、さらにE A O D M、さらにE P D Mは、本明細書に記載の2つ以上の実施形態の組み合わせを含み得る。

【0031】

－実施形態では、発明組成物は充填剤をさらに含む。好適な充填剤には、粘土、C a C O 3、タルク、および鉱物繊維が含まれるが、これらに限定されない。

30

【0032】

－実施形態では、充填剤は、本組成物の重量に基づいて、5～30重量パーセントの量で存在する。

【0033】

－実施形態では、発明組成物は少なくとも1つの安定剤をさらに含む。好適な充填剤には、A OおよびU V安定剤が含まれるが、これらに限定されない。

【0034】

発明組成物は、本明細書に記載の2つ以上の実施形態の組み合わせを含み得る。

【0035】

本発明はまた、本明細書に記載の任意の実施形態の発明組成物から形成される少なくとも1つの構成要素を備える物品を提供する。

40

【0036】

－実施形態では、本物品は、発泡体である。

【0037】

－実施形態では、本物品は、異形材、射出成形部品、ガasket、自動車部品、建築および建設材料、靴構成要素、ならびに管から成る群から選択される。

【0038】

発明物品は、本明細書に記載の2つ以上の実施形態の組み合わせを含み得る。

50

【 0 0 3 9 】

本発明はまた、本明細書に記載の任意の実施形態の組成物を調製するためのプロセスであって、該プロセスが、溶液中で、少なくとも以下：エチレン、 オレフィン、および非共役ポリエンを重合することを含む、プロセスを提供する。さらなる実施形態では、エチレン、 オレフィン、および非共役ポリエンは、連続溶液重合プロセスにおいて重合される。

【 0 0 4 0 】

発明プロセスは、本明細書に記載の2つ以上の実施形態の組み合わせを含み得る。

【 0 0 4 1 】

エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマー

10

本明細書に記載の発明組成物のための、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、重合形態で、エチレン、 オレフィン、および非共役ポリエンを含む。

オレフィンの好適な例としては、C₃ ~ C₂₀ オレフィン、好ましくはプロピレンが挙げられる。非共役ポリエンの好適な例としては、C₄ ~ C₄₀ 非共役ジエンが挙げられる。

【 0 0 4 2 】

該 オレフィン、脂肪族または芳香族化合物のいずれかであってもよい。該 オレフィン、好ましくはC₃ ~ C₂₀ 脂肪族化合物、好ましくはC₃ ~ C₁₆ 脂肪族化合物、より好ましくはC₃ ~ C₁₀ 脂肪族化合物である。好ましいC₃ ~ C₁₀ 脂肪族 オレフィンは、プロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、および1-オクテン、ならびにより好ましくはプロピレンから成る群から選択される。さらなる実施形態では、該インターポリマーは、エチレン / プロピレン / -ジエン (EPDM) ターポリマーである。さらなる実施形態では、該ジエンは、5-エチリデン-2-ノルボルネン (ENB) である。

20

【 0 0 4 3 】

例示的非共役ポリエンとしては、例えば1,4-ヘキサジエンおよび1,5-ヘプタジエンなどの直鎖非環式ジエンと、例えば5-メチル-1,4-ヘキサジエン、2-メチル-1,5-ヘキサジエン、6-メチル-1,5-ヘプタジエン、7-メチル-1,6-オクタジエン、3,7-ジメチル-1,6-オクタジエン、3,7-ジメチル-1,7-オクタジエン、5,7-ジメチル-1,7-オクタジエン、1,9-デカ-ジエン、およびジヒドロミルセンの混合異性体などの分枝鎖非環式ジエンと、例えば1,4-シクロヘキサジエン、1,5-シクロオクタジエン、および1,5-シクロデカジエンなどの単環脂環式ジエンと、例えばテトラヒドロインデン、メチルテトラヒドロインデンなどの多環脂環式融合および架橋環ジエンと、例えば5-メチレン-2-ノルボルネン (MNB)、5-エチリデン-2-ノルボルネン (ENB)、5-ビニル-2-ノルボルネン、5-プロペニル-2-ノルボルネン、5-イソプロピリデン-2-ノルボルネン、5-(4-シクロペンテニル)-2-ノルボルネン、および5-シクロヘキシリデン-2-ノルボルネンなどのアルケニル、アルキリデン、シクロアルケニル、およびシクロアルキリデンノルボルネンと、が挙げられる。該ポリエンは好ましくは、ENB、ジシクロペンタジエン、1,4-ヘキサジエン、7-メチル-1,6-オクタジエン、好ましくはENB、ジシクロペンタジエン、および1,4-ヘキサジエン、より好ましくはENBおよびジシクロペンタジエン、さらにより好ましくはENBから成る群から選択される非共役ジエンである。

30

40

【 0 0 4 4 】

一実施形態では、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、インターポリマーの重量に基づいて、過半量の重合エチレンを含む。さらなる実施形態では、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、エチレン / オレフィン / ジエンインターポリマーである。さらなる実施形態では、該インターポリマーはEPDMである。さらなる実施形態では、該ジエンはENBである。

【 0 0 4 5 】

一実施形態では、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、1 .

50

7 ~ 5 . 0、または 2 . 0 ~ 4 . 0、または 2 . 1 ~ 3 . 5、または 2 . 5 ~ 3 . 5 の分子量分布 (M_w / M_n) を有する。さらなる実施形態では、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、エチレン / オレフィン / ジエンインターポリマー (E A O D M) である。さらなる実施形態では、該インターポリマーは E P D M である。さらなる実施形態では、該ジエンは E N B である。

【 0 0 4 6 】

一実施形態では、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、1 2 5 で 6 0 以上、または 7 0 以上、または 8 0 以上、または 9 0 以上のムーニー粘度、 $ML(1+4)$ を有する。さらなる実施形態では、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、エチレン / オレフィン / ジエンインターポリマーである。さら

10

【 0 0 4 7 】

一実施形態では、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、1 2 5 で 5 0 0 未満、または 3 0 0 以下、または 2 0 0 以下のムーニー粘度、 $ML(1+4)$ を有する。さらなる実施形態では、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、エチレン / オレフィン / ジエンインターポリマーである。さらなる実施形態では、該インターポリマーは E P D M である。さらなる実施形態では、該ジエンは E N B である。

【 0 0 4 8 】

20

一実施形態では、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、1 2 5 で 6 0 ~ 5 0 0、または 7 0 ~ 3 0 0、または 8 0 ~ 2 0 0 のムーニー粘度、 $ML(1+4)$ を有する。さらなる実施形態では、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、エチレン / オレフィン / ジエンインターポリマーである。さらなる実施形態では、該インターポリマーは E P D M である。さらなる実施形態では、該ジエンは E N B である。

【 0 0 4 9 】

ムーニー粘度は、ニートインターポリマーのもの (または、例えばカーボンブラック、および / または油などの充填剤を含有するポリマーに対するニートポリマーの計算された粘度) である。ニートポリマーとは、充填剤を含まず油を含まないポリマーを意味する。

30

【 0 0 5 0 】

一実施形態では、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、着色可能なインターポリマーである。さらなる実施形態では、エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、エチレン / オレフィン / ジエンインターポリマーである。さらなる実施形態では、該インターポリマーは E P D M である。さらなる実施形態では、該ジエンは E N B である。

【 0 0 5 1 】

エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーは、本明細書に記載の 2 つ以上の実施形態の組み合わせを含み得る。

【 0 0 5 2 】

40

エチレン / オレフィン / ジエンインターポリマーは、本明細書に記載の 2 つ以上の実施形態の組み合わせを含み得る。

【 0 0 5 3 】

E P D M ターポリマーは、本明細書に記載の 2 つ以上の実施形態の組み合わせを含み得る。

【 0 0 5 4 】

油

油には、例えば芳香族およびナフテン油などの石油と、ポリアルキルベンゼン油と、例えばアルキルおよびアルコキシアルキルオレートならびにステアレートなどの有機酸モノエステルと、例えばジアルキル、ジアルコキシアルキル、およびアルキルアリールフタレ

50

ート、テレフタレート、セバケート、アジペート、ならびにグルタレートなどの有機酸ジエステルと、例えばトリ - 、テトラ - 、およびポリエチレングリコールジアルカノエートなどのグリコールジエステルと、トリアルキルトリメリテートと、トリアルキル、トリアルコキシアルキル、アルキルジアリール、およびトリアリールフォスフェートと、塩化パラフィン油と、クマロン - インデン樹脂と、松ヤニと、例えばヒマシ油、トール油、ナタネ油、および大豆油などの植物油と、これらのエステルおよびエポキシド化誘導体などが含まれるが、これらに限定されない。

【 0 0 5 5 】

一実施形態では、油は、本組成物の重量に基づいて、5 ~ 7 0 重量パーセント、さらに5 ~ 5 0 重量パーセントの量で存在する。

10

【 0 0 5 6 】

一実施形態では、油は、非芳香族油、パラフィン油、ナフテン油、およびこれらの組み合わせから成る群から選択される。好適な油には、PARALUX 6 0 0 1、HYDROBRITE 5 5 0、およびCALSOL 5 5 5 0が含まれるが、これらに限定されない。

【 0 0 5 7 】

油は、本明細書に記載の2つ以上の実施形態の組み合わせを含み得る。

【 0 0 5 8 】

添加剤

発明組成物は、1つ以上の追加の添加剤を含み得る。好適な添加剤には、充填剤、抗酸化剤、UV安定剤、難燃剤、着色料または色素、ならびにこれらの組み合わせが含まれるが、これらに限定されない。

20

【 0 0 5 9 】

充填剤には、ケイ酸アルミニウム、ケイ酸マグネシウム、ケイ酸カルシウム、ケイ酸ナトリウム、ケイ酸カリウム、およびこれらの混合物と、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、およびこれらの混合物と、酸化ケイ素、酸化カルシウム、酸化亜鉛、酸化鉄、酸化チタン、および酸化アルミニウムと、硫酸カルシウム、硫酸バリウム、および硫酸鉛と、アルミナ三水和物と、マグネシウム水酸化物と、天然繊維、合成繊維などが含まれるが、これらに限定されない。

【 0 0 6 0 】

30

いくつかの抗酸化剤およびオゾン劣化防止剤には、ヒンダードフェノール、ビスフェノール、およびチオビスフェノール、ならびに置換ヒドロキノンが含まれるが、これらに限定されない。発泡構造体を作製するために、アゾジカーボンアミドなどの発泡剤を使用できる。

【 0 0 6 1 】

適用例

本発明の組成物を使用して、様々な物品もしくは製造物、またはそれらの構成要素部品もしくは部分を調製することができる。多くの従来のプロセスおよび装置のうちの任意の1つによって、発明組成物を完成製造品に転換することができる。例示的プロセスには、押出成形、カレンダー成形、圧縮成形、および他の典型的な熱硬化性材料形成プロセスが含まれるが、これらに限定されない。

40

【 0 0 6 2 】

物品には、シート、発泡体、成形品、および押出成形部品が含まれるが、これらに限定されない。追加の物品としては、自動車部品、ウェザーストリップ、ベルト、ホース、建築異形材、ワイヤおよびケーブル外被、床材、ガasket、タイヤおよびタイヤ構成要素、コンピュータ部品、建築材料、ならびに履物構成要素が挙げられる。当業者であれば、過度の実験なしにこのリストを容易に増大させることができる。

【 0 0 6 3 】

発明組成物は、自動車用密封剤のための発泡体としての使用に特に好適である。例えば

50

、キャビンを空気および水の進入から遮蔽するための扉密封剤、例えば、主要な扉密封剤のために、発明組成物を使用することができる。主要な扉密封剤は、良好な表面品質、高い耐圧壊性、良好な引張強度、低い発泡体密度、および低い吸水率を有さなければならない。

【 0 0 6 4 】

定義

別段の記載があるか、文脈から暗示的であるか、または当技術分野において慣例となっている場合を除き、全ての部分およびパーセントは重量に基づいて、全ての試験方法は本開示の出願日現在で最新である。

【 0 0 6 5 】

用語「組成物」は、本明細書において使用される場合、本組成物を含む材料の混合物、ならびに本組成物の材料から形成される反応生成物および分解生成物を含む。いかなる反応生成物または分解生成物も、典型的に微量または残存量で存在する。

【 0 0 6 6 】

用語「ポリマー」は、本明細書において使用される場合、同じか異なる種類のものかを問わず、モノマーを重合することによって調製されるポリマー化合物を意味する。したがって一般名称「ポリマー」は、用語「ホモポリマー」（微量の不純物がポリマー構造に組み込まれ得るという理解の下に、1種類のみモノマーから調製されるポリマーを意味するために用いられる）、および下文に定義される用語「インターポリマー」を包含する。触媒残渣などの微量の不純物はポリマー内に組み込まれてもよい。

【 0 0 6 7 】

用語「インターポリマー」は、本明細書において使用される場合、少なくとも2つの異なる種類のモノマーの重合によって調製されるポリマーを意味する。したがって用語「インターポリマー」は、用語「コポリマー」（2つの異なる種類のモノマーから調製されるポリマーを意味するために用いられる）、および2つ以上の異なる種類のモノマーから調製されるポリマーを含む。

【 0 0 6 8 】

用語「エチレン系ポリマー」は、本明細書において使用される場合、重合形態で、過半数の重量パーセントのエチレン（ポリマーの重量に基づく）を含み、任意に1つ以上のコモノマーを含み得るポリマーを意味する。

【 0 0 6 9 】

用語「エチレン系インターポリマー」は、本明細書において使用される場合、重合形態で、過半数の重量パーセントのエチレン（インターポリマーの重量に基づく）、および少なくとも1つのコモノマーを含むポリマーを意味する。

【 0 0 7 0 】

用語「エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマー」は、本明細書において使用される場合、重合形態で、エチレン、オレフィン、および非共役ポリエンを含むポリマーを意味する。一実施形態では、「エチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマー」は、過半数の重量パーセントのエチレン（インターポリマーの重量に基づく）を含む。

【 0 0 7 1 】

用語「エチレン / オレフィン / ジエンインターポリマー」は、本明細書において使用される場合、重合形態で、エチレン、オレフィン、およびジエンを含むポリマーを意味する。一実施形態では、「エチレン / オレフィン / ジエンインターポリマー」は、過半数の重量パーセントのエチレン（インターポリマーの重量に基づく）を含む。

【 0 0 7 2 】

用語「エチレン / オレフィン / ジエンターポリマー」は、本明細書において使用される場合、重合形態で、エチレン、オレフィン、およびジエンを、唯一の種類のモノマーとして含むポリマーを意味する。一実施形態では、「エチレン / オレフィン / ジエンターポリマー」は、過半数の重量パーセントのエチレン（ターポリマーの重量に基づく）を

10

20

30

40

50

含む。

【0073】

用語「エチレン／オレフィンコポリマー」は、本明細書において使用される場合、重合形態で、過半量のエチレンモノマー（コポリマーの重量に基づく）、およびオレフィンを、ただ2つの種類のモノマーとして含むコポリマーを意味する。

【0074】

用語「プロピレン系ポリマー」は、本明細書において使用される場合、重合形態で、過半量のプロピレンモノマー（ポリマーの重量に基づく）を含み、任意に1つ以上のコモノマーを含み得るポリマーを意味する。

【0075】

用語「プロピレン／オレフィンコポリマー」は、本明細書において使用される場合、重合形態で、過半量のプロピレンモノマー（コポリマーの重量に基づく）、およびオレフィンを、ただ2つの種類のモノマーとして含むコポリマーを意味する。

【0076】

用語「プロピレン／エチレンコポリマー」は、本明細書において使用される場合、重合形態で、過半量のプロピレンモノマー（コポリマーの重量に基づく）、およびエチレンを、ただ2つの種類のモノマーとして含むコポリマーを意味する。

【0077】

用語「組み込まれた油」は、本明細書において使用される場合、エチレン／オレフィン／非共役ポリエンインターポリマー内に含有される油を意味する。

【0078】

用語「含む (comprising)」、「含む (including)」、「有する (having)」、およびそれらの派生語は、それが明確に開示されているかを問わず、いかなる追加の構成要素、ステップ、または手順の存在も除外することを意図しない。いかなる疑義を回避するために、用語「含む (comprising)」の使用を通じて特許請求される全ての組成物は、別段の記載がない限り、任意の追加の添加剤、アジュバント、またはポリマーのものを問わない化合物を含み得る。対照的に、用語「から本質的に成る」は、実現可能性に本質的でないものを除き、いかなる他の構成要素、ステップ、または手順を、いかなる後続の記述の範囲からも除外する。用語「から成る」は、明確に記述または列記されないいかなる構成要素、ステップ、または手順を除外する。

【0079】

試験方法

ムーニー粘度

ASTM 1646 - 04に従い、大型ローターを使用して、1分間の予熱時間および4分間のローター動作時間で、インターポリマー [エチレン／オレフィン／非共役ポリエンインターポリマー（例えば、充填剤および油を有さないEPDM）、または油展剤を有するエチレン／オレフィン／非共役ポリエンインターポリマー（例えば、EPDM）] のムーニー粘度（125 でML1 + 4）を測定した。機器はAlpha Technologiesのムーニー粘度計2000であった。

【0080】

ムーニー粘度（充填剤なし、油なし）対Mw（重量平均MW）は、以下の等式によって推定され得る： $MV(125 \text{ でML1} + 4) = 147.82 \ln(Mw) - 1697.3$

【0081】

油展ムーニー粘度（OE MV）対ムーニー粘度（充填剤なし、油なし）は、以下の等式によって推定され得る：

$OE \text{ MV}(125 \text{ でML1} + 4) = \{ [MV(125 \text{ でML1} + 4)] \times [100 / (100 + \text{油部})]^{2.8} \}$

【0082】

従来のゲル浸透クロマトグラフィ

クロマトグラフシステムは、Polymer LaboratoriesのモデルPL-210またはPolymer LaboratoriesのモデルPL-220のいずれかから成った。カラムおよびカルーセル区画を140で操作した。カラムは、3つのPolymer Laboratoriesの10ミクロンMixed-Bカラムであった。使用した溶剤は1, 2, 4トリクロロベンゼンであった。「50ミリリットルの溶剤中0.1グラムのポリマー」の濃度で試料を調製した。試料を調製するために使用した溶剤は、「200ppmのブチル化ヒドロキシトルエン(BHT)」を含有した。2時間160で軽く攪拌することによって試料を調製した。注入体積は100マイクロリットルであり、流速は1.0ミリリットル/分であった。

【0083】

580~8,400,000g/モルの範囲の分子量を有し、個別の分子量の間に少なくとも10の分離を有する6つの「カクテル」混合物内に配置した、21の「狭い分子量分布のポリスチレン標準」を用いて、GPCカラムセットの校正を行った。この標準はPolymer Laboratories (Shropshire, UK) から購入した。1,000kg/モル以上の分子量については「50ミリリットルの溶剤中0.025グラム」で、1,000kg/モル未満の分子量については「50ミリリットルの溶剤中0.05グラム」で、このポリスチレン標準を調製した。このポリスチレン標準を、30分間穏やかに攪拌しながら80摂氏度で溶解した。「最高分子量」の構成要素が減少する順序に狭い標準の混合をまず行い、分解を最小化した。以下の等式を使用して、ポリスチレン標準ピーク分子量をポリエチレン分子量に変換した： $M_{\text{ポリエチレン}} = A \times (M_{\text{ポリスチレン}})^B$ 、式中、Mは、分子量であり、Aは、0.431の値を有し、Bは、1.0に等しい(Williams and Ward, J. Polym. Sci., Polym. Lett., 6, 621 (1968)に記載の通り)。Viscotek TriSECソフトウェア、バージョン3.0を使用して、ポリエチレン等価分子量の計算を行った。

【0084】

EPDM組成分析のためのFTIR方法

エチレン、プロピレン、および5-エチリデン-2-ノルボルネンを含むターポリマーを、そのエチレン含有量についてはASTM D3900を、そのエチリデン-ノルボルネンまたはジシクロペンタジエン含有量についてはASTM D6047を使用して分析した。

【0085】

EPDM組成分析のためのC13 NMR方法

クロムアセチルアセトネート(弛緩剤)中「0.025M」である、およそ「2.6g」の「テトラクロロエタン-d2/オルトジクロロベンゼンの50/50の混合物」を、10mmのNMR管内の「0.2gの試料」に添加することによって、試料を調製した。管およびその内容物を150まで加熱することによって、試料を溶解および均質化した。BrukerのDual DUL高温CryoProbeを備えたBrukerの400MHz分光計を使用して、データを収集した。120の試料温度で、「1データファイル当たり160スキャン」、6秒パルス繰り返し遅延を使用して、データを取得した。25,000Hzのスペクトル幅および32Kデータ点のファイルサイズを使用して、この取得を実行した。

【0086】

以下の分析方法を使用して、実施例の組成物のNMRスペクトル分析を実行した。EPDM内に存在するモノマーの定量化は、以下の等式(1~9)を使用して計算することができる。

【0087】

モルエチレンの計算は、1000積分単位に対して55.0~5.0ppmのスペクトル範囲を正規化する。正規化された積分面積下の付加は7個のENB炭素のみを占める。111および147ppmにおけるENBジエンのピークは、高温で二重結合が反応し得るという懸念のため計算から除外される。

10

20

30

40

50

【 0 0 8 8 】

【 数 1 】

$$\text{等式 1 } \text{モル } Eth = \frac{(1000 - 3 * \text{モル } P - 7 * \text{モル } ENB)}{2}$$

$$\text{等式 2 } \text{モル } ENB = CH3(13.6 - 14.7 \text{ ppm})$$

$$\text{等式 3 } \text{モル } P = CH3(19.5 - 22.0 \text{ ppm})$$

10

$$\text{等式 4 } \text{モル \% エチレン} = \frac{100 * \text{モル } E}{\text{モル } E + \text{モル } P + \text{モル } ENB}$$

$$\text{等式 5 } \text{モル \% プロピレン} = \frac{100 * \text{モル } P}{\text{モル } E + \text{モル } P + \text{モル } ENB}$$

20

$$\text{等式 6 } \text{モル \% } ENB = \frac{100 * \text{モル } ENB}{\text{モル } E + \text{モル } P + \text{モル } ENB}$$

$$\text{等式 7 } \text{重量 \% エチレン} = \frac{100 * \text{モル \% } E * 28}{\text{モル \% } E * 28 + \text{モル \% } P * 42 + \text{モル \% } ENB * 120}$$

$$\text{等式 8 } \text{重量 \% プロピレン} = \frac{100 * \text{モル \% } P * 42}{\text{モル \% } E * 28 + \text{モル \% } P * 42 + \text{モル \% } ENB * 120}$$

30

$$\text{等式 9 } \text{重量 \%} = \frac{100 * \text{モル \% } ENB * 120}{\text{モル \% } E * 28 + \text{モル \% } P * 42 + \text{モル \% } ENB * 120}$$

【 0 0 8 9 】

発明組成物中に使用される E P D M のさらなる N M R スペクトル分析は、19.5 ~ 22.0 ppm の総積分面積の 3.0 % を超える 21.3 ~ 21.8 ppm のピーク面積を示す。比較組成物中に使用される E P D M (N O R D E L I P 5565 以外) の同様のスペクトル分析は、19.5 ~ 22.0 ppm の総積分面積の 3.0 % 未満を示す。スペクトルデータは 30 ppm の E E E 骨格と関係づけられる。この領域内のピーク応答は、E P D M 内に組み込まれたプロピレン立体規則性の差 (mm %) に典型的に関する。別の種類のエチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーについて同様の分析を行うことができる。

40

【 0 0 9 0 】

動的機械分光法 (D M S)

窒素パージ下で「25 mm の平行プレート」を備えた T A 機器 A R E S を使用して、小角度振動剪断 (溶融 D M S) を行った。全試料について、試料装填と試験開始との間の時間を 5 分に設定した。0.1 ~ 100 ラジアン / 秒の周波数範囲にわたって 190 で実験を行った。1 ~ 3 % の試料の応答に基づいて、ひずみ振幅を調節した。振幅および位相

50

の観点から応力応答を分析し、それから貯蔵係数 (G')、損失係数 (G'')、動的粘度 η^* 、およびタンデルタを計算した。動的機械分光のための標本は、180 および 10 MPa の成形圧力で 5 分間かけて形成し、次に冷却した圧盤 (15 ~ 20) の間で 2 分間急冷した「直径 25 mm × 厚さ 3.3 mm」の圧縮成形ディスクであった。0.1 ラジアン/秒における粘度対 100 ラジアン/秒における粘度のレオロジー比 (190 で $V_{0.1} / V_{100}$ 、「RR」とも称される) を記録した。直鎖分子 (検出可能な長鎖分枝がない) は、8 以下の RR を典型的に有する。ポリマー内の油の存在は観察される RR を減少し得ることが理解されているため、以下の等式を使用して、油を含有するポリマーの RR 値 ($RR_{OE} - \text{ポリマー}$) からポリマーの RR ($RR_{\text{ポリマー}}$) を推定した: $RR_{\text{ポリマー}} = RR_{OE} - \text{ポリマー} / (油の重量\% * (-0.01988) + 1.0321)$ 【0091】

10

示差走査熱量測定 (DSC)

示差走査熱量測定 (DSC) を使用して、エチレン系 (PE) 試料 (EPDM を含む) 内の結晶化度を測定した。ポリマー (0.5 g) 試料を、5000 psi、190 で、2 分間かけてフィルムに圧力成形した。約 5 ~ 8 mg のフィルム試料を秤量し、DSC パン内に配置した。蓋をパン上に圧着し、密閉雰囲気を確認した。試料パンを DSC セル内に配置し、次におよそ 10 / 分の速度で、PE については 180 の温度まで加熱した。試料をこの温度に 3 分間保った。次に、試料を 10 / 分の速度で、PE については -90 まで冷却し、この温度に 3 分間等温的に保った。試料を次に 10 / 分の速度で加熱し、完全に熔融させた (第 2 の加熱)。第 2 の加熱曲線により決定される融解熱 (H_f) を、PE については 292 J/g の理論的融解熱で割り、この量に 100 を乗じることによって、結晶化度パーセントを計算した (例えば、結晶化度% = $(H_f / 292 \text{ J/g}) \times 100$ (PE については))。

20

【0092】

別段の記載がない限り、第 2 の加熱曲線から各ポリマーの融点 (複数可) (T_m) を決定し、第 1 の冷却曲線から結晶化温度 (T_c) を決定した。

【0093】

圧縮ひずみ

ASTM D395 に従い、23 および 100 で圧縮ひずみを測定した。圧縮成形の項の下に記載の通りに調製した圧縮成形ブランクから、直径「29 mm (± 0.5 mm)」および厚さ「12.7 (± 0.5 mm)」のディスクを型抜きした (実験の項を参照のこと)。切痕、不均一な厚さ、および不均質性について各ボタン試料を検査し、選択したボタン (それらの欠陥がない) を試験した。各試料につき 2 つの標本に、規定の温度で圧縮ひずみを行い、2 つの標本の平均を報告した。押し合わされ得る 2 枚の金属プレートを有する圧縮装置内にボタン試料を配置し、ボタン試料の原初の高さの 75 % の所定位置に固定した。圧縮した試料と共に、圧縮装置を次にオープン内に配置し、適切な温度で規定の時間 (23 または 100 に対して 22 時間) にわたって平衡化した。この試験では、試験温度で応力を放出し、室温で平衡化期間の 30 分後に試料の厚さを測定した。圧縮ひずみは、圧縮後の試料の回復度の測定値であり、等式 $CS = (H_0 - H_2) / (H_0 - H_1)$ に従って計算され、式中、 H_0 は試料の原初の厚さであり、 H_1 は使用されるス

30

40

【0094】

引張応力 - ひずみ特性

ASTM D-1708 に記載の寸法を有する小さなイヌの骨型のマイクロ引張打抜型を使用して打抜いた標本を使用して、引張特性を測定した。圧縮成形の項の下に記載の通りに調製した圧縮成形ブランクから、打抜標本を切断した (実験の項を参照のこと)。INSTRU-MET 製の INSTRON モデル 1122 の機械説明書内の ASTM D-412 の方法に従い、室温で引張特性 (引張強度および伸長) を測定した。

【0095】

ショア A 硬度

50

圧縮成形の項に記載の通りに調製した圧縮成形ブランクから、試料標本を切断した（実験の項を参照のこと）。デュロメータスタンドモデル 902 と共に I N S T R O N 製のショア A デュロメータモデル 2000 で、A S T M D 2240 によってショア A 硬度を測定した。この方法は、初期圧入、または規定の期間後の圧入、またはその両方のいずれかに基づく硬度測定を可能にする。本明細書において使用される場合、10 秒の規定の時間で圧入を測定した。

【0096】

比重

A S T M - D 792 に従い、発泡試料の比重を測定した。

【0097】

真空法による吸水

A S T M D 1056 に従い、吸水の決定を測定した。この試験方法は、規定の浸漬期間後の重量（質量）の変化を測定することによって独立気泡発泡体の吸水特性を決定する。この試験方法は間接的に、試料の気泡構造 / 独立気泡含有量の尺度である。

【0098】

硬化発泡試料は少なくとも 1 日にわたり条件付けされた部屋であった。試験の前に、真空オープン腔内の温度計を測定室で維持した。硬化発泡試料を、1 インチのロッドまたは 1 インチの切片に切断した。試料 1 つ当たり 3 組の 1 インチの区分を切断した。各試料を 3 小数位まで秤量し、その初期の重量を記録した。脱イオン水を収容するプラスチック容器を使用して試料を浸水させた。プラスチック容器の開口部の上にプラスチックメッシュを配置し、試料をメッシュの下に置き、プラスチックメッシュを容器の下部に触れさせた。試料は水面の少なくとも 2 インチ下であった。試料容器を真空オープン（VWR オープンモデル 1410）内に配置し、真空を適用し、25 インチ Hg まで減少させた。「25 インチ / Hg」の真空に達し次第、試験の計時を開始した。3 分後、真空ポンプを停止した。ポンプを停止し、オープンチャンバを大気に放出することによってオープン腔を大気圧に戻した。容器をさらに 3 分間オープン内に留め、その後試料を容器から取り除いた。過剰な表面水を各試料から除去し、その後、試験した試料を秤量した。試験した試料のそれぞれをできる限り迅速に秤量して蒸発による水の損失を回避し、その最終重量を記録した。質量のパーセント変化を以下の通り計算した：

【0099】

【数 2】

$$W = \left[\frac{(A - B)}{B} \times 100 \right]$$

【0100】

式中、W は、質量の変化（％）であり、A は、空気中の標本の最終質量（g）であり、B は、空気中の標本の初期質量（g）である。

【0101】

実験

I . 実験用 E P D M の代表的合成

連続重合

内部攪拌機を備えたコンピュータ制御高圧滅菌反応器内で実行した連続溶液重合を使用して、発泡ポリマーを生成した。精製混合アルカン溶剤（E x x o n M o b i l C h e m i c a l C o m p a n y から入手可能な I S O P A R E）、エチレン、プロピレン、5 - エチリデン - 2 - ノルボルネン、および水素（使用される場合）を、温度制御のための外被および内部熱電対を備えた 3 . 8 L の反応器に供給した。反応器への溶剤供給量を質量流制御器によって測定した。変速ダイヤフラムポンプで反応器への溶剤の流速およ

10

20

30

40

50

び圧力を制御した。ポンプの放出において、支流を用いて触媒および共触媒の注入ライン、ならびに反応器攪拌機のフラッシュ流を提供した。Micro-Motionの質量流計器を用いてこれらの流れを測定し、制御弁によって、またはニードル弁の手動調節によって制御した。プロピレン、エチレン、5-エチリデン-2-ノルボルネン、および水素（使用される場合）と残りの溶剤を合わせて、反応器に供給した。質量流制御器を使用して、必要に応じて水素を反応器に送達した。連続重合に関連する反応器および他の条件について、米国特許第5,977,251号および同第6,545,088号、ならびにその中の参考文献を参照されたい。

【0102】

熱交換器の使用により溶剤/モノマー溶液の温度を制御し、その後反応器に入れた。この流れは反応器の下部に進入した。ポンプおよび質量流計器を使用して触媒成分溶液を計量し、触媒フラッシュ溶剤と合わせて、反応器の下部に導入した。勢いよく攪拌させながら、500 psig (3.45 MPa) で液体が充満した反応器を動作させた。反応器の頂部の出口ラインを通して生成物を除去した。反応器からの全ての出口ラインを蒸気トレースして遮蔽した。任意の安定剤、または他の添加剤と合わせた、出口ラインへの少量の水の添加、ならびに混合物の静的混合器の通過によって、重合を停止させた。同様に加工粘度を低減させるために、伸展油（例えば、HYDROBRITE 550）を規定量で添加した。次に熱交換器を通過させることによって生成物の流れを加熱し、その後脱揮発した。脱揮発押出成形機および水で冷却したベレット化機を使用する押出成形によって、ポリマー生成物を回収した。プロセスの詳細および結果を表1Aおよび1Bに示す。

【0103】

触媒1 {[[[2, 2 - [1, 3 - プロパンジイルビス(オキシ-kO)] ビス [3 - [3, 6 - ビス(1, 1 - ジメチルエチル) - 9H - カルバゾール - 9 - イル] - 5 - フルオロ - 5 - (1, 1, 3, 3 - テトラメチルブチル) [1, 1 - ビフェニル] - 2 - オラト - kO]] (2 -)] - ハフニウムジメチル} を別々に反応器に供給し、共触媒1および共触媒2を使用して原位置で活性化した。共触媒1は、米国特許第5,919,988号（実施例2）に実質的に開示される通り、長鎖トリアルキルアミン（Akzo-Nobel, Inc. から入手可能なARMEEN M2HT）、HCl、およびLi[B(C₆F₅)₄]の反応から調製した、テトラキス（ペンタフルオロフェニル）ボレートのメチルジ(C₁₄₋₁₈アルキル)アンモニウム塩の混合物であった。共触媒1はBoulder Scientificから購入し、さらなる精製なしで使用した。共触媒2（変性メチルアルモキサン(MMAO)）はAkzo-Nobelから購入し、さらなる精製なしで使用した。

【0104】

反応器の排出流は結果的にポリマー、溶剤、および減少したレベルの初期モノマー流の混合物であった。ポリマーの分子量を、反応器の温度、モノマーの転換、および/または水素などの連鎖停止剤の添加によって制御した。定常状態条件、即ち、一定の反応物質濃度ならびに溶剤、モノマー、および触媒の継続的投入、ならびに未反応のモノマー、溶剤、およびポリマーの除去の下で、重合反応を行った。反応器システムを冷却し、加圧して蒸気相の形成を防止した。

【0105】

表1Aおよび1Bは、いくつかの発明実施例を生成するために使用した反応条件を概説する。

【0106】

【表 1 A】

表 1 A 実験用 E P D M の反応条件

実施例	反応器 体積、 [ガロン]	反応器温 度[摂氏 度]	圧力 [psig]	溶剤供 給 [lb/時 間]	エチレン 供給 [lb/ 時間]	プロピレ ン供給 [lb/ 時間]	ENB 供 給 [lb/時 間]	油供給 [lb/時間]
EPDM01	1	160	524	39.03	2.52	4.10	0.74	0.00
EPDM04	1	140	526	34.59	2.94	5.99	1.06	1.05
EPDM07	1	130	523	30.45	1.99	3.10	0.78	1.14

【 0 1 0 7 】

【表 1 B】

表 1 B 実験用 E P D M の反応条件

実施例	H2 モ ル%	C2 濃 度[g/L]	触媒効 率 [lb_ポ リ/ lb_金属] *10E6	触媒流 [lb/時 間]	触媒溶 液濃度 (ppm)	共触 媒 1 流 [lb/時 間]	共触媒 1 溶液 濃度 (ppm)	共触 媒 2 流 [lb/時 間]	共触媒 2 溶液 濃度 (ppm)	生成率 [lb/時間]
EPDM01	0.013	6.03	0.582	0.09	74.10	0.08	611.89	0.11	130.88	3.80
EPDM04	0.009	14.5	0.586	0.08	74.10	0.08	611.89	0.11	130.88	3.60
EPDM07	0.008	6.00	0.207	0.34	37.49	0.33	306.68	0.41	69.83	2.61

【 0 1 0 8 】

I I . E P D M ポリマー組成物

表 2 は、比較実施例のいくつかの特性を要約する。なお、NORDEL IP 556 5 を除くこれらの実施例の全てをバナジウム系触媒（例えばVOCl₃またはVC14、低効率触媒など）を使用するプロセスにおいて生成した；ROYALENE EPDM、VISTALON EPDM、およびKELTAN EPDMは、単一もしくは二重反応器内で、かつ追加の分枝剤（例えば1，4ヘキサジエンまたは5 - ビニル - 2 - ノルボルネンなど）の存在下で生成され得た、組成的に調整された生成物である。

【 0 1 0 9 】

表 3 は、この研究のために作製された全ての実験用 E P D M の特性を要約する。

【 0 1 1 0 】

10

20

【表 2】

表 2 比較実施例（商業的樹脂）の特性データ

実施例			比較	比較	比較	比較	比較
		単位	NORDEL IP 5565	ROYALENE 525	VISTALON 8600	VISTALON 8800	KELTAN 7341A
			DOW	Lion Copolymer	ExxonMobil	ExxonMobil	Lanxess
第 1 の組成物	C2% (FTIR)		49.2	60.7	56.7	56.4	59.4
	C3% (FTIR)		44.4	31.4	34.9	35.3	34.4
	ENB% (FTIR)		6.43	7.87	8.43	8.28	6.19
組み込まれた油 ^a	油	重量%	NA	NA	NA	13.0	17.0
ポリマーのムーニー [*]	ML (1+4) 125℃	MU	63.3	64.0	92.8		
ポリマーのムーニー ^{**}						75.9	78.9
油なしのポリマー のムーニー ^{***}						127	131
転換 GPC	Mn	g/モル	54,090	60,030	62,700	70,800	96,050
	Mw	g/モル	180,240	173,980	202,850	213,710	254,350
	Mz	g/モル	434,100	417,800	491,200	483,700	531,800
	Mw/Mn		3.33	2.90	3.24	3.02	2.65
0.1 ラジアン/秒に おける粘度	V (0.1、 190℃)	Pa-s	78,612	136,390	283,810	195,710	243,890
100 ラジアン/秒に おける粘度	V (100、 190℃)	Pa-s	2,964	3,364	3,226	2,344	3,204
レオロジー比 [*]	RR V0.1/V100		26.5	40.5	60.7		
レオロジー比 ^{**}						33.5	76.1
レオロジー比 ^{****}						43.3	109.6
0.1 ラジアン/秒に おけるタンデルタ	TD (0.1、 190℃)		1.55	0.94	0.67	0.66	0.67
100 ラジアン/秒に おけるタンデルタ	TD (100、 190℃)		0.58	0.58	0.49	0.49	0.45
NMR ピーク面積% 21.3~21.8ppm		%	3.0	0.9	0.5	1.2	1.1

*油なしの測定値。

**油ありの測定値。

***等式、 $OE\ MV(125^{\circ}CでML1+4) = \{ [MV(125^{\circ}CでML1+4)] \times [100 / (100 + 油部)]^{2.8} \}$ (式中、 $OE\ MV$ は油ありのポリマーのムーニーであり、 MV は油なしのポリマーのムーニーである) を使用して推定されるムーニー (油なし)。

****等式、 $RR_{ポリマー} = RR_{OE-ポリマー} / (油の重量\% \times (-0.01988) + 1.0321)$ (式中、 $RR_{ポリマー}$ はポリマー (油なし) のレオロジー比であり、 RR_{OE} は油ありのポリマーのレオロジー比である) を使用して推定されるレオロジー比 (油なし)。

NA=該当なし

a) 質量バランスにより測定され、かつ重合プロセスの終わりで重合ポリマーに添加された油の重量パーセントに等しい組み込まれた油。ポリマーおよび油の総重量に基づく重量パーセント。

【0111】

【表 3】

表 3 実験用 EPDM 試料の特性

			比較	発明	発明
		単位	EPDM01	EPDM04	EPDM07
第 1 の組成物	C2% (13C NMR)		52.2	52.1	48.0
	ENB% (13C NMR)		8.7	6.6	7.8
組み込まれた油 ^a	油	重量%		22	22
ムーニー*	ML (1+4) 125℃	MU	74.3		
ムーニー**	ML (1+4) 125℃	MU		75.1	51.0
油なしのムーニー***				150	100
転換 GPC	Mn	g/モル	65,860	105,590	81,850
	Mw	g/モル	194,470	291,670	284,190
	Mz	g/モル	429,000	659,000	762,800
	Mw/Mn		2.95	2.76	3.47
0.1 ラジアン/秒における粘度	V (0.1 190℃)	Pa-s	148,000	169,000	157,280
100 ラジアン/秒における粘度	V (100 190℃)	Pa-s	3,672	2,881	2,243
レオロジー比*	RR (V0.1/V100)		40.3		
レオロジー比**	RR (油あり)			58.7	70.1
レオロジー比***	RR (油なし)			98.7	117.9
0.1 ラジアン/秒におけるタンデルタ	TD (0.1 190℃)		1.1	0.9	0.77
100 ラジアン/秒におけるタンデルタ	TD (100 190℃)		0.50	0.41	0.43
NMR ピーク面積% 21.3~21.8ppm			16.4	17.9	23.2

*油なしの測定値。

**油ありの測定値。

***等式、 $OE\ MV(125^\circ CでML1+4) = \{ [MV(125^\circ CでML1+4)] \times [100 / (100 + 油部)]^{2.8} \}$ (式中、 $OE\ MV$ は油ありのポリマーのムーニーであり、 MV は油なしのポリマーのムーニーである) を使用して推定されるムーニー (油なし)。

****等式、 $RR_{ポリマー} = RR_{OE-ポリマー} / (油の重量\% \times (-0.01988) + 1.0321)$ (式中、 $RR_{ポリマー}$ はポリマー (油なし) のレオロジー比であり、 RR_{OE} は油ありのポリマーのレオロジー比である) を使用して推定されるレオロジー比 (油なし)。

a) 質量バランスにより測定され、かつ重合プロセスの終わりで重合ポリマーに添加された油の重量パーセントに等しい組み込まれた油。ポリマーおよび油の総重量に基づく重量パーセント。

【0112】

図 1 は、比較および発明 (EPDM04 および EPDM07) 組成物の「Mw 対タンデルタ」を示す。示される通り、発明組成物は 200,000 g/モルを超える重量平均分子量を有する EPDM を含有し、これらの組成物は動的機械分光におけるより低いタンデルタ、190 での周波数掃引を示し、より高い量の長鎖分枝から付与されるより高い程度の溶融弾性を示している。高い分子量および長鎖分枝は高い溶融弾性に必要とされ、これは、低い開放気泡含有量を有する発泡物品をもたらすためのスポンジ発泡に重要である。

【0113】

図 2 は、記述した EPDM 組成物のタンデルタ応答を比較する。高い溶融弾性 (0.1 ラジアン/秒でタンデルタ 1 未満) を示す EPDM04 および EPDM07、ならびに低

10

20

30

40

50

い溶融弾性（0.1ラジアン/秒でタンデルタ1超）を示すEPDM01と共に、様々なタンデルタ応答が示されている。発明実施例EPDM04およびEPDM07は、周波数範囲全体にわたって1未満のタンデルタ値を示す。比較実施例NORDEL IP 5565は、1超、最大約5ラジアン/秒のタンデルタ値を有し、EPDM01は、1超、最大約2ラジアン/秒のタンデルタ値を有する。発明実施例および比較実施例の「タンデルタ対周波数」応答を比較すると、発明実施例は高レベルの分枝および高分子量を有するという観察に至る。Van-Gurp Palmenプロット（位相角対 G^* ）を使用するデータの描写（図示せず）は、この観察をさらに支持する（Trinkle, S.; Friedrich, C.; Van Gurp - Palmen - plot: a way to characterize polydispersity of linear polymers, Rheologica Acta, 40, 322 - 328 (2001)）。

10

【0114】

各発明EPDM組成物はまた、EPDM内の立体規則性mm%（メソダイアド）に関するため、「3.0%超での21.3~21.8ppmのNMRピーク面積%」により示される通り、予想外に高いプロピレン立体規則性を有するEPDMを含有する。表2は、バナジウム系触媒を用いて作製された商業的に入手可能なEPDM材料（例えばROYAL ENE 525、VISTALON 8600、8800、またはLanxess（Keltan 7341A）など）は、この特徴を示さないことを示す。この立体規則性特徴は、他の成分とのEPDMの相溶性および分散を改善することによって、均一溶融を提供する。発泡物品の生成の間、改善された相溶性は、より均一な気泡サイズが発泡体全体で生成されるような気泡形成の均一性の上昇を提供する。

20

【0115】

III. 発泡体

この研究で使用した発泡体配合を表4に示す。特定の発泡体配合を表5に示す。比較実施例および発明実施例の両方を、表5に示す処方で化合する。比較実施例は、NORDEL IP 5565、VISTALON 8600、VISTALON 8800、およびEPDM01を含有した。発明実施例は、EPDM04およびEPDM 07を含有した。なお、VISTALON 8800、EPDM04、およびEPDM 07の処方を、ポリマー内に存在した予め組み込まれた油の量に合わせて調節した。

30

【0116】

【表 4】

表 4 配合物

スポンジ配合物*		
成分	部	重量%
第 1 の組成物	100	35.5%
カーボンブラック	80	28.4%
Flexon(商標) 845	65	23.1%
炭酸カルシウム	25	8.9%
ZnO	6	2.1%
Butyl Zimate	1.5	0.5%
硫黄	1.5	0.5%
ステアリン酸	1	0.4%
Methyl TUADS	1	0.4%
チアジド	0.5	0.2%
20 合計	281.5	100.0%

Ohm, R. F. ; The Vanderbilt Rubber Handbook 13th Edition, Ed. , R. F. Ohm, R. T. Vanderbilt Company, Inc. , Norwalk, CT USA, 1990

【 0 1 1 7 】

【表 5】

表 5 配合物

実施例	比較	比較	比較	比較	発明	発明
称号	F46-1	F46-3	F46-4	F46-5	F46-6	F46-7
第 1 の組成物	NORD EL IP 5565	VISTA LON 8600	VISTA LON 8800	EPDM01	EPDM04	EPDM07
ゴム	100.0	100.0	115.0	100.0	128.0	128.0
THERMAX N900	40.0	40.0	40.0	40.0	40.0	40.0
FEF 黒 N550	40.0	40.0	40.0	40.0	40.0	40.0
FLEXON 845	65.0	65.0	50.0	65.0	37.0	37.0
炭酸カルシウム	25.0	25.0	25.0	25.0	25.0	25.0
ZnO	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0
Butyl Zimate	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
硫黄	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
ステアリン酸	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
Methyl TUADS	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
チアジド	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
合計	282	282	282	282	282	282
*3 部の CELOGEN OT 発泡剤が圧延ステップの間に添加される。						

【 0 1 1 8 】

ゴム組成物の混合

各発泡体配合物を BANBURY 混合器内で剪断混合し（室温から開始）、次にロールミルを使用して平坦なブランケットに圧延した。

【 0 1 1 9 】

上下反転混合法を使用し、Farrel BR Banbury 混合器（体積 1.5 L

）を使用して、この配合物（発泡剤なし）を混合した。硫黄および他の乾燥成分と共にポリマーを秤量し、低速で2.5分間、66（150°F）で溶かし、促進剤を添加し、次にこの混合物をさらに溶かし、次に99（210°F）で滴下した。

【0120】

発泡組成物を調製するため、上記の組成物を、発泡剤と合わせてBanbury内に導入し、2.5分間溶かし、93（200°F）で滴下した。6インチの信頼性のあるロールミルを次に使用して、混合を完了して所望の組成物の未硬化のブランケットを圧延した。

【0121】

圧縮成形ブランク

圧縮成形機内で硬化したブランクから、非発泡組成物（発泡剤を含有しない）の物理的特性を測定した（引張圧縮ひずみ試験について）。ASTM D3182に従い、PHI（100トンのプレス）を使用して試料を圧縮成形した。

【0122】

所望の型（6インチ×6インチのブランク、または圧縮ボタン）を圧盤内においた。各試料（未硬化のブランケット）を、個別の型孔の寸法より僅かに小さく切断した。ミル方向をマークし、試料を標識化した。シリコンの希釈液で軽くスプレーブラシして型に適用する。ミル方向に適切に配置するように注意して、予熱した型内に試料を配置した。圧盤を冷却した。「正常」動作圧力は100トン、またはゲージに示されるように200,000ポンドであった。硬化時間が終了したとき、下部の圧盤は自動的に開いた。試料を取り除き、直ちに水中に配置して硬化を停止させた。試験の前に、試料を室温で24時間条件付けた。試料を加硫するために、ブランクの場合はt95データに加えて3分、圧縮ひずみボタンの場合はt95データに加えて15分を使用して、200で試料を条件付けた。

【0123】

表7は、発泡剤を含有しなかった圧縮成形試料からの、ムーニー、ショアA、引張、および圧縮ひずみ特性を列記する。硬化化合物のショアAは、22~27ShAの範囲であった。発明実施例の100での圧縮ひずみは、全実施例中で最も低く、EPDM 04は23%の値を有し、EPDM 07は26%の値を有した。比較実施例の100での圧縮ひずみは、28%~39%の範囲であった。

【0124】

MDR分析

ASTM D-3182に従い、Alpha TechnologiesのレオメータMDR 2000を使用して各配合物のMDR硬化特性を測定した。200で12分の期間にわたりMDR試験を実行した。

【0125】

物理的特性および硬化特性を試験できるように、レオメータ内で硬化した（MDR分析のために）未硬化のブランケットから、非発泡配合物（発泡剤を含有しない）のレオロジーを測定した。試験の前に、試料を室温で24時間条件付けた。表6は、各配合物の硬化特性を示す。「T95硬化時間（95%の硬化に対する時間）」は、200で3分未満、またはおよそ3分である。230において、発泡実験の時間枠内で架橋が完了するように、硬化時間は3分を大きく下回ると予想される。

【0126】

10

20

30

40

【表 6】

表 6 レオロジー特性

実施例の種類			比較	比較	比較	比較	発明	発明
化合物			F46-1	F46-3	F46-4	F46-5	F46-6	F46-7
MDR			正常					
試験温度	[C]	=	200	200	200	200	200	200
試験時間	[分]	=	12	12	12	12	12	12
ML	[dNm]	:	0.84	0.85	0.90	0.96	1.61	1.17
MH	[dNm]	:	11.9	11.32	11.4	11.89	13.38	11.44
MH-ML	[dNm]	:	11.06	10.47	10.5	10.93	11.77	10.27
ts1	[分]	:	0.30	0.32	0.33	0.30	0.29	0.30
ts2	[分]	:	0.36	0.38	0.38	0.35	0.33	0.35
t10	[分]	:	0.31	0.32	0.33	0.31	0.30	0.30
t50	[分]	:	0.68	0.74	0.67	0.65	0.61	0.63
t90	[分]	:	2.15	2.41	2.03	2.17	2.52	2.07
t95	[分]	:	2.75	3.15	2.64	2.89	3.18	2.64

【 0 1 2 7 】

化合物の押出成形

発泡試験のために、3部の発泡剤（Celogen OT）を含有する未硬化配合物をロールミル上で混合し、未硬化配合物のブランケットを形成した。未硬化EPDMブランケットを切片に切断し、次に、1インチのテープダイスまたはロッドダイスが取付けられた単軸押出成形機を備えたCW BrabenderのIntelli-Torque Plasti-Corderを使用して、テープおよびロッドに押出成形した。温度プロファイルは、打抜型において70、80、および90であった。50rpmで押出成形機を操作した。発明組成物で作製したテープは滑らかな外観を有し、目に見える欠陥を有さなかったことを観察した。

【 0 1 2 8 】

発泡

結果として生じるロッドおよびテープを、230で4分間、砂浴（ロッドの場合）および熱風オープン（テープの場合）内で硬化した。ロッドの厚さに起因して、酸化アルミニウム粉末で充填した砂浴（Technefluidized Sandbath、モデル番号：IFB-51）を使用して良好な熱伝達を確保した；およそ「20cm長」のロッドを砂浴の中心近くに懸濁した。「20cm×2.54cm×1.5mm厚」のテープを熱風オープン内に垂直に懸濁した。熱処理後、-20に設定した冷凍庫内で発泡架橋試料を冷却した。試験の前に、発泡架橋試料を室温で24時間条件付けた。

【 0 1 2 9 】

表7は、配合物、ならびに発泡ロッドおよびテープの特性を示す。EPDM 04およびEPDM 07を含有する発明組成物のロッドの膨張比（膨張していないロッド、および230で4分間の熱処理後の膨張したロッドの直径に基づく）は、それぞれ1.33および1.37であった。比較組成物の膨張比は1.20～1.41の範囲であった。発明組成物は、良好な膨張、ならびに、200,000g/mol未満の重量平均分子量および1を超えるタンデルタ値を有する、NORDEL 5565およびEPDM 01を含有する組成物よりも良好な膨張を示す。

【 0 1 3 0 】

EPDM 04およびEPDM 07を含有する発明組成物のテープの膨張比（膨張していないテープ、および230で4分間の熱処理後の膨張したテープの幅に基づく）は、それぞれ1.39および1.51であった。比較組成物の膨張比は1.29～1.57の範

囲であった。発明組成物は良好な膨張を示し、EPDM07を含有する組成物は、200,000g/mol未満の重量平均分子量および1を超えるタンデルタ値を有する、NORDEL 5565およびEPDM01を含有する組成物よりも大きな膨張を有する。

【0131】

【表7】

表7 ロッドスポンジおよびテープスポンジの特性

説明		NORDEL 5565	VISTALON 8600	VISTALON 8800	R01 比較	R04 発明	R07 発明
ムーニー* (ML 1+4、 125℃)	Mu	42	40	44	44	63	48
ショア A**	ShA	27	25	22	27	27	24
引張係数**	MPa	.73	.65	.66	.76	.79	.74
破断点のひずみ**	%	273	364	326	338	308	273
圧縮ひずみ**、23℃	%	5	4	6	5	4	6
圧縮ひずみ**、100℃	%	30	39	28	39	23	26
砂浴(230℃)内で発泡した押出成 形ロッド							
発泡前の押出成形品の直 径	[mm]	6.7	7.0	8.5	8.2	8.3	8.3
膨張比		1.25	1.41	1.35	1.20	1.33	1.37
比重 (g/cc)	[g/cc]	0.51	0.39	0.38	0.54	0.44	0.43
吸水率 (真空3分、23℃)	[%]	26.0	8.7	7.0	10.9	0.5	0.4
オープン(230℃)内で発泡した押 出成形テープ							
発泡前の押出成形品の幅	[mm]	1.40	1.45	1.86	1.63	2.0	1.73
膨張比		1.29	1.63	1.57	1.38	1.39	1.51
比重 (g/cc)	[g/cc]	0.60	0.53	0.51	0.58	0.63	0.55
吸水率 (真空3分、23℃)	[%]	5.7	3.1	4.1	2.3	0.5	1.1

*発泡剤なしの硬化配合物のムーニー。

**発泡剤なしの硬化配合物の機械的特性。

【0132】

図3は、発泡ロッドの吸水率を示す。発明EPDM04およびEPDM07ポリマーに基づくスポンジ（発泡）配合物は、低い発泡体密度（0.4～0.55g/cc）をもたらし、試験した全試料中で最も低い吸水率を示した。図3で見られるように、EPDM04およびEPDM07を含有する発明組成物から作製された発泡ロッドの吸水率は4重量%未満であり、比較組成物よりも著しく低い。NORDEL IP 5565を含有する比較組成物は、約13重量%の吸水率を有し、VISTALON 8800および8600を含有する比較組成物は、それぞれ17重量%および16重量%の吸水率を有した。EPDM01を含有する比較組成物は、19重量%の高い吸収率を有した。

【0133】

図4は、発泡テープの吸水率を示す。EPDM04およびEPDM07を含有する発明組成物から作製されたテープは1.5重量%未満であり、比較組成物よりも著しく低い。NORDEL IP 5565を含有する比較組成物は、5.7重量%の最も高い吸水率を有し、VISTALON 8600および8800を含有する比較組成物は、それぞれ、3.1重量%および4.1重量%を示した。EPDM01を含有する比較組成物は、2.3重量%のより高い吸水率を有した。

【 0 1 3 4 】

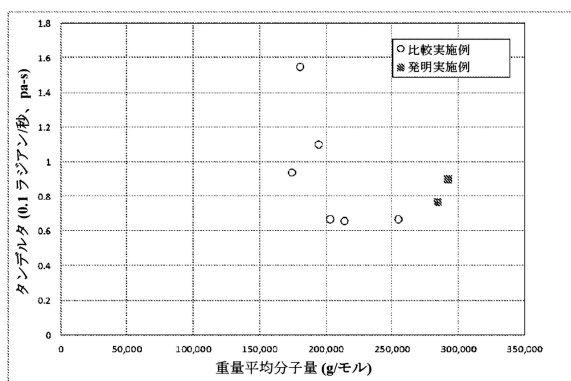
発明組成物が低い吸水率を有する低密度発泡体を生成することが予想外に発見された。低い吸水率と低密度のこの前例のない組み合わせは、発明組成物中に形成される気泡の大半が独立気泡構造を有することを示す。高い独立気泡含有量を有する発泡体の利益としては、低い吸水率、冷却時のより少ない収縮、および寸法安定性の増加が挙げられる。屋外用途に使用される発泡体（例えば、扉密封剤）については、水分吸収の減少が密封性能を改善させる。

【 0 1 3 5 】

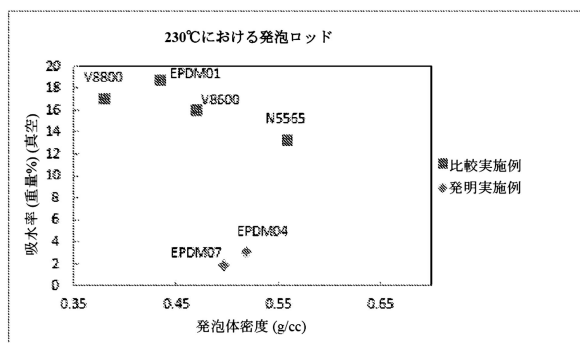
発明組成物が低い吸水率と低い発泡体密度の予想外の組み合わせを提供することが発見された。発明組成物は、高分子量かつ高分枝のエチレン / オレフィン / 非共役ポリエンインターポリマーの、他の添加剤との均一な分散を提供する。高レベルの立体規則性mm %は、発泡体処方内の追加の成分（例えば、油、硬化剤、促進剤、他のポリマー）との改善された相溶性をもたらすと考えられている。発泡すると、滑らかな表皮、低い開放気泡含有量を有する気泡形状を有する物品がもたらされる。本発泡物品は、良好な圧縮ひずみ、低比重、および非常に低い吸水率を有する。

10

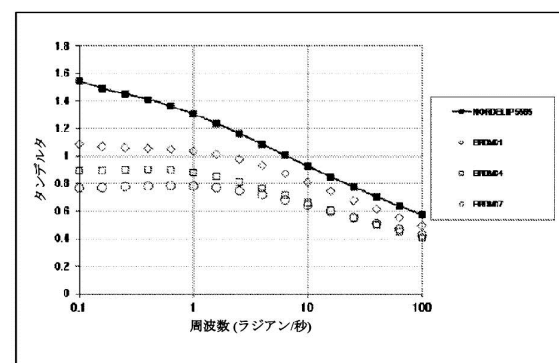
【 図 1 】



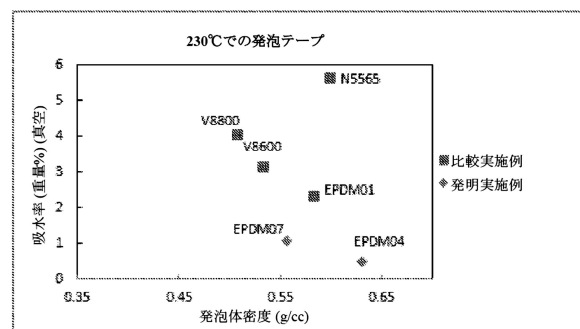
【 図 3 】



【 図 2 】



【 図 4 】



フロントページの続き

(72)発明者 コリン・リビシャン

アメリカ合衆国 テキサス州 77584 パーランド ブロードウェイ・ストリート 1120
0 アpartment 4108

(72)発明者 ティモシー・イー・クレイフィールド

スイス連邦 ヴェーデンスヴィル シーエイチ - 8820 マイアーホーフライン 18

(72)発明者 ソンジャ・エム・デラッテ

アメリカ合衆国 ルイジアナ州 70706 デナム・スプリングス 3628724679 ラ
・ハイウェイ 1032

審査官 大久保 智之

(56)参考文献 国際公開第2012/027448(WO, A1)

特開2004-107539(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C08L23

C08F10

C08F4