

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5301835号  
(P5301835)

(45) 発行日 平成25年9月25日 (2013.9.25)

(24) 登録日 平成25年6月28日 (2013.6.28)

(51) Int. Cl. F I  
**CO8L 23/08 (2006.01)** CO8L 23/08  
**CO8L 23/10 (2006.01)** CO8L 23/10  
**B29C 47/14 (2006.01)** B29C 47/14

請求項の数 17 (全 25 頁)

(21) 出願番号	特願2007-541467 (P2007-541467)	(73) 特許権者	502141050
(86) (22) 出願日	平成17年11月16日 (2005.11.16)		ダウ グローバル テクノロジーズ エル
(65) 公表番号	特表2008-520769 (P2008-520769A)		エルシー
(43) 公表日	平成20年6月19日 (2008.6.19)		アメリカ合衆国 ミシガン州 48674
(86) 国際出願番号	PCT/US2005/041562		, ミッドランド, ダウ センター 204
(87) 国際公開番号	W02006/055650		0
(87) 国際公開日	平成18年5月26日 (2006.5.26)	(74) 代理人	100092783
審査請求日	平成20年10月16日 (2008.10.16)		弁理士 小林 浩
(31) 優先権主張番号	60/628, 405	(74) 代理人	100120134
(32) 優先日	平成16年11月16日 (2004.11.16)		弁理士 大森 規雄
(33) 優先権主張国	米国 (US)	(74) 代理人	100104282
前置審査			弁理士 鈴木 康仁

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 高速シート押出のための、改良された耐ネッキング性を有するエラストマー組成物

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

高溶解強度材料および高流動性材料を含む組成物であって、

前記高溶解強度材料が、エラストマー性エチレン/ -オレフィンポリマーおよびポリプロピレンポリマーからなる群より選択された第一ポリマーであって、前記第一ポリマーは、 $0.5 \text{ dg / 分}$ 未満のメルトインデックスI2 (ASTMD - 1238、 $190 / 2.16 \text{ kg}$ )を有し、

前記高溶解強度材料が、1秒あたり1ラジアンおよび190で平行プレートレオメトリーを用いて測定されて、175,000ポアズ以上の動的複素粘度を有し、

前記高流動性材料が、エラストマー性エチレン/ -オレフィンポリマーおよびポリプロピレンポリマーからなる群より選択された第二ポリマーであって、前記第二ポリマーは、 $20 \text{ dg / 分}$ 以上のメルトインデックスI2 (ASTMD - 1238、 $190 / 2.16 \text{ kg}$ )を有し、

前記高流動性材料が、 $2,500$ 未満の比  $\ast / t d$  (ここで、 $\ast$ は動的複素粘度であり、 $t d$ はタンデルタであり、いずれも1秒あたり1ラジアンおよび190で測定される)を有し、

前記第一ポリマーおよび前記第二ポリマーの両方が、ポリプロピレンポリマーであるわけではなく、

前記高溶解強度材料が、前記高溶解強度材料および前記高流動性材料の合計重量を基準にして、 $20$ 重量%以上 $70$ 重量%以下の量で存在し、

10

20

前記高溶融強度材料および前記高流動性材料は各々個別に、エチレン/        -オレフィンポリマーを含む、組成物。

【請求項 2】

各エチレン/        -オレフィンポリマーは個別に、その中で、少なくとも1種の        -オレフィンモノマー、および場合によりジエンを重合しており、前記        -オレフィンは、3~20個の炭素原子を含有する、請求項1に記載の組成物。

【請求項 3】

各        -オレフィンは個別に、3~10個の炭素原子を含有する、請求項2に記載の組成物。

【請求項 4】

前記高溶融強度材料は、前記高溶融強度材料および前記高流動性材料の合計重量を基準にして、50重量%以上の量で存在する、請求項1に記載の組成物。

【請求項 5】

前記高流動性材料は、前記高溶融強度材料および前記高流動性材料の合計重量を基準にして、50重量%以下の量で存在する、請求項1に記載の組成物。

【請求項 6】

前記高流動性材料は、前記高溶融強度材料および前記高流動性材料の合計重量を基準にして、50重量%以下の量で存在する、請求項4に記載の組成物。

【請求項 7】

前記第一ポリマーは、0.4 dg / 分未満のメルトインデックス I 2 (ASTM D - 1238、190 / 2.16 kg )        を有する、請求項1に記載の組成物。

【請求項 8】

前記第二ポリマーは、2.5 dg / 分超のメルトインデックス I 2 (ASTM D - 1238、190 / 2.16 kg )        を有する、請求項1に記載の組成物。

【請求項 9】

前記第一ポリマーは、0.4 dg / 分未満のメルトインデックス I 2 (ASTM D - 1238、190 / 2.16 kg )        を有し、前記第二ポリマーは、2.5 dg / 分以上のメルトインデックス I 2 (ASTM D - 1238、190 / 2.16 kg )        を有する、請求項1に記載の組成物。

【請求項 10】

前記第一ポリマーは、0.3 dg / 分未満のメルトインデックス I 2 (ASTM D - 1238、190 / 2.16 kg )        を有し、前記第二ポリマーは、3.0 dg / 分以上のメルトインデックス I 2 (ASTM D - 1238、190 / 2.16 kg )        を有する、請求項1に記載の組成物。

【請求項 11】

前記組成物がペルオキシドを含有しない、請求項1に記載の組成物。

【請求項 12】

前記組成物が加硫剤を含有しない、請求項1に記載の組成物。

【請求項 13】

最小限のネッキングしかともなわずに高速でエラストマーシートを形成する方法であって、請求項1に記載の組成物の押出工程を含む方法。

【請求項 14】

請求項1に記載の組成物から形成されたエラストマーシート。

【請求項 15】

請求項1に記載の組成物から形成されたフォーム。

【請求項 16】

請求項1に記載の組成物から形成された成分を少なくとも1つ含む物品。

【請求項 17】

請求項1に記載の組成物を含む成分を少なくとも1つ含む物品。

【発明の詳細な説明】

10

20

30

40

50

## 【技術分野】

## 【0001】

本出願は、2004年11月16日に出願され、その全体が参照により本明細書に組み込まれた米国仮出願第60/628,405号の利益を主張する。

## 【0002】

本発明は、高速押出法を用いてシートに形成することができるエラストマー組成物、およびこのような組成物から製造されたシートに関する。

## 【背景技術】

## 【0003】

高速シート押出とは、1ダイにつき1時間あたり1,000ポンドを超える率での押出のことを言う。これは、例えば屋根葺き材または池ライナーなどの用途のためのシートまたは膜の好ましい生産方法になりつつある。この方法では、シートは、非常に大きい面積の連続シートを作製するために野外で溶接される。全体のコストを低下させるために、多くの改良がなされてきた。シート幅は、必要とされる溶接部の数を減少させるために、6フィートから10フィートに増加している。ポリマー、酸化防止剤/耐候パッケージ、および難燃剤添加剤を組成物に混合する一方で、溶融ミックスをダイへ送るために、オンライン配合が実施されてきた。このことは、ペレット化、ついで再溶融、および溶融された組成物のダイへの汲み上げ工程を省く。これらの工程は、もしも配合およびシート押出が別個の工程であるならば、必要とされるであろう。多層構造は、2つの別々の押出ダイ間に強化スクリムを供給し、引取ロールのニップにおいてこの構造をラミネートすることによって連続的に調製される。このことは、別個のラミネーション工程の準備をするために、これらの層を再加熱する必要性を排除する。高い生産速度、非常に幅広いシート、および複雑な構造の組み合わせは、押出プロセスにおいてネッキングの問題を生じる。

## 【0004】

ヘック(Heck)らは、国際公開第98/32795号パンフレットにおいて、レオロジー変性熱可塑性エラストマー(TPE)組成物について記載している。レオロジー変性は、ペルオキシドおよび照射を含む様々な手段によって誘発することができる。例示された組成物は、ペルオキシドのみを用いてレオロジー変性される。変性の結果として、改良された溶融強度、より高い上限運転温度、より迅速なセットアップ、およびより低い背圧およびトルクでより高い生産量を可能にするより大きいせん断減粘性を生じる。

## 【0005】

しかしながらレオロジー変性は、シート組成物を調製するために用いられる生成物の配合とは別個に実施されるならば、コストを追加する反応押出を必要とする。インライン配合を設置している設備において、レオロジー変性は、ポリマーがブレンドされると同時に行なうことができ、難燃剤およびほかの特別な添加剤が配合される。しかしながら大部分の作業員なら、二軸スクリュウ押出機において反応化学を行なうことによって、複雑さを増さないことを好むであろう。出願人は、ペルオキシドレオロジー変性剤を用いずに、国際公開第98/32795号パンフレットのTPE組成物を押出そうと試みた。後述するように、熱可塑性ポリオレフィン(TPO)組成物は、フィルムおよびシート用途に有用であるとして開示されている。その結果は、シート幅の減少および厚さの増加であった。引取速度の増加は厚さを低減させたが、さらに幅も低減させた。ペルオキシド変性をともなわずに生産されたシートは、もはや10フィート幅はなく、これは許容し得ないほど狭かった。それに対して、レオロジー変性されたシートは、10フィート4インチ幅であった。このことは、どちらの幅からも1インチ半トリミングすることを可能にし、シートになお10フィート1インチ幅を残した。ペルオキシドを止めた結果として、ネッキングの増加によって10インチ差を生じてしまった。

## 【0006】

熱可塑性ポリオレフィン(「TPO」)組成物の使用は、様々な用途のために開示されてきた。例えば米国特許第5,688,866号および第5,856,406号、および欧州特許出願公開第1,072,643号は、成形品用のTPO組成物を開示している。米

10

20

30

40

50

国特許第5,576,374号は、成形品用の充填TPO組成物を開示している。

【0007】

フィルムおよびシート、例えば膜、スキン、およびライナーのためのTPO組成物の使用もまた開示されてきた。最終フィルムまたはシートへ、あるいはいくつかの特性、例えば引裂抵抗、引張り強さ、柔軟性、およびヒートシール適性を付与する組成物が開示されている。例えば米国特許第5,358,792号は、エチレンベースのコポリマーおよびプロピレンベースのポリマーを含むヒートシール適性フィルム組成物を開示している。このエチレンベースのコポリマーは、 $0.88\text{ g/cc} \sim 0.915\text{ g/cc}$ の密度、 $1.5\text{ dg/分}$ （または $1.5\text{ g/10分}$ ） $\sim 7.5\text{ dg/分}$ （または $7.5\text{ g/10分}$ ）のメルトインデックス、3.5以下の分子量分布（「MWD」）、および70パーセント超の組成幅インデックスを有する。このプロピレンベースのポリマーは、88モルパーセント $\sim$ 100モルパーセントのプロピレン、および12モルパーセント $\sim$ 0モルパーセントの、プロピレン以外のアルファオレフィンを含む。米国特許第6,207,754号は、柔軟性スキンおよびライナーにおける使用のための、40,000psi未満の1パーセント割線モジュラスを有する組成物を開示している。これらの組成物は、(a)(i)95重量%のプロピレンを有する、80重量%のプロピレンポリマー、および(ii)<20重量%のオレフィンコポリマーエラストマーを含む耐衝撃変性ポリプロピレン樹脂、および(b)(i)87 $\sim$ 97.5モルパーセントのエチレンおよび(ii)13 $\sim$ 2.5モルパーセントのアルファオレフィンを含むプラストマー樹脂を含む。この耐衝撃変性ポリプロピレン樹脂は、0.5 $\sim$ 5.0の溶融流量を有する。より最近になって、国際特許出願である国際公開第03/033585号パンフレットは、ポリマー膜組成物を開示している。これらの組成物は、(a)メタロセン触媒を用いて生成され、>50モルパーセントのエチレン単位から形成され、残りが $\alpha$ -オレフィンモノマーである、10 $\sim$ 90重量パーセントの非常に低い密度のポリエチレン（「VLDPE」）、および(b)90 $\sim$ 100重量%のPPホモポリマーおよびコポリマーを含む。VLDPEは、ASTM-1238条件E（2.16kg、190 $\text{ }^\circ\text{C}$ ）にしたがって測定された場合、0.5 $\sim$ 20g/10分のメルトインデックスを特徴とする。これらの組成物は、増加した引裂抵抗および引張り強さが望ましい膜用途において特に適していると言われている。

【0008】

特定の生産方法に適した特性を有するいくつかのTPO組成物もまた開示されている。米国特許第6,096,831号は、優れた熱成形性を有するオレフィン樹脂組成物、およびこれから成形されたシートを開示している。このオレフィン樹脂組成物は、(a)97 $\sim$ 60重量%のPP樹脂、および(b)3 $\sim$ 40重量%のエチレン（「PE」）樹脂を含む。PP樹脂は好ましくは、JIS-D7210（230 $\text{ }^\circ\text{C}$ 、2.16kg荷重）にしたがって測定された場合、0.3 $\sim$ 20g/10分の溶融流量を有し、PE樹脂は好ましくは、JIS-K7210、条件4にしたがって測定された場合、0.5 $\sim$ 10g/10分の溶融流量を有する。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

しかしながら、ダイが引取ロールのニップからいくらかの距離にある高速シート押出法は、TPOシート、特にエラストマーTPOシートの生産には追加の課題を示す。TPO組成物は、ネックングするか、または幅において、ダイと引取ロールのニップとの間の距離において減少する。多くの場合、TPO組成物は、最終シートに適した特性を有するが、高速押出法において、許容しうる幅のシートを生産するにはあまりに多くの幅を失う。幅の低減とともに、厚さがあまりに大きすぎるという付随する欠陥がある。シートを「引張ること(drawing)」によって厚さを低減させる試みは、単にシート幅をさらに低減させるだけである。高速押出法においてシートを生産するのに適した、耐ネックング性エラストマーTPOシートへのニーズが依然としてある。

【課題を解決するための手段】

10

20

30

40

50

## 【 0 0 1 0 】

驚くべきことに、出願人は、高熔融強度ポリマーおよび高流動性ポリマーを含むエラストマー組成物が、非常に高い線速度で最小限のネッキングしかともなわずに押出され、シートを生産することができることを発見した。

## 【 0 0 1 1 】

本発明の1つの態様は、(a) エラストマー性エチレン/ - オレフィンポリマーおよびポリプロピレンポリマーからなる群より選択された第一ポリマーを含む高熔融強度材料であって、1秒あたり1ラジアンおよび190 で、平行プレートレオメトリーを用いて測定されて、175, 000ポアズ(17, 500 Pa·s)以上の動的複素粘度を有する高熔融強度材料、および(b) エラストマーエチレン/ - オレフィンポリマーおよびポリプロピレンポリマーからなる群より選択された第二ポリマーを含む高流動性材料であって、2, 500未満の  $\eta^*/t_d$  比(ここで、 $\eta^*$ は動的複素粘度であり、 $t_d$ はタンデルトであり、いずれも1秒あたり1ラジアン、190 で測定される)を有する高流動性材料を含む組成物である(ただし、第一ポリマーおよび第二ポリマーの両方が、ポリプロピレンポリマーであるわけではない)。好ましい実施形態において、該高熔融強度材料は、高熔融強度材料および高流動性材料の合計重量を基準にして、20重量%以上、好ましくは30重量%以上、より好ましくは40重量%以上、なお一層好ましくは50重量%以上の量で存在する。

10

## 【 0 0 1 2 】

本発明のもう1つの態様において、高熔融強度材料および高流動性材料は各々個別に、エチレン/ - オレフィンポリマーを含む。さらなる態様において、各エチレン/ - オレフィンポリマーは個別に、その中で、少なくとも1つの - オレフィンモノマー、および場合によりポリエチンまたはジエンを重合しており、この場合、 - オレフィンは3~20個の炭素原子を含有する。もう1つの態様において、各 - オレフィンは個別に、3~10個の炭素原子を含有する。なお1つのさらなる態様において、各エチレン/ - オレフィンポリマーは個別に、ジエン変性ポリマーであり、この場合、該ジエンは、ノルボルナジエン、ジシクロペンタジエン、1, 4 - ヘキサジエン、ピペリレン、5 - エチリデン - 2 - ノルボルネン、およびこれらの混合物からなる群より選択される。

20

## 【 0 0 1 3 】

本発明のもう1つの態様において、高流動性材料は、高熔融強度材料および高流動性材料の合計重量を基準にして、70重量%以下、好ましくは60重量%以下、より好ましくは50重量%以下、なお一層好ましくは45重量%以下の量で存在する。

30

## 【 0 0 1 4 】

さらにもう1つの態様において、高熔融強度材料は、50重量%以上の量で存在し、高流動性材料は、50重量%以下の量で存在し、ここで、このような重量パーセンテージは、高熔融強度材料および高流動性材料の合計重量を基準にしている。

## 【 0 0 1 5 】

本発明のもう1つの態様において、第一ポリマーは、0.4 dg/分未満のメルトインデックスI2または熔融流量MFRを有する。本発明のさらにもう1つの態様において、第二ポリマーは、2.5 dg/分超のメルトインデックスI2または熔融流量MFRを有する。

40

## 【 0 0 1 6 】

本発明のもう1つの態様において、第一ポリマーは、0.5 dg/分未満のメルトインデックスI2または熔融流量MFRを有し、第二ポリマーは、2.0 dg/分以上のメルトインデックスI2または熔融流量MFRを有する。本発明のさらにもう1つの態様において、第一ポリマーは、0.4 dg/分未満のメルトインデックスI2または熔融流量MFRを有し、第二ポリマーは、2.5 dg/分以上のメルトインデックスI2または熔融流量MFRを有する。本発明のさらにもう1つの態様において、第一ポリマーは、0.3 dg/分未満のメルトインデックスI2または熔融流量MFRを有し、第二ポリマーは、3.0 dg/分以上のメルトインデックスI2または熔融流量MFRを有する。

50

## 【0017】

本発明はまた、本明細書に記載されているような2以上の実施形態の組み合わせを含有する組成物も提供する。

## 【0018】

本発明のもう1つの態様は、最小限のネッキングしかともなわずに高速でエラストマーシートを形成する方法であって、(a)エラストマー性エチレン/オレフィンポリマーおよびポリプロピレンポリマーからなる群より選択された第一ポリマーを含む高溶解強度材料であって、1秒あたり1ラジアンおよび190で、平行プレートレオメトリーを用いて測定されて、175,000ポアズ(17,500Pa·s)以上の動的複素粘度を有する高溶解強度材料と、(b)エラストマー性エチレン/オレフィンポリマーおよびポリプロピレンポリマーからなる群より選択された第二ポリマーを含む高流動性材料であって、2,500未満の\*/td比(ここで、\*は、動的複素粘度であり、tdはタンデルタであり、いずれも1秒あたり1ラジアンで190で測定される)を有する高流動性材料とのブレンドを含む組成物(ただし、第一ポリマーおよび第二ポリマーの両方が、ポリプロピレンポリマーであるわけではない)を押し出工程を含む方法である。

10

## 【0019】

本発明はまた、本明細書に記載されているような2以上の実施形態の組み合わせを含有する組成物からのシートの形成方法も提供する。本発明はまた、シートの形成方法であって、本明細書に記載されているような2以上の実施形態の組み合わせを含む方法も提供する。

20

## 【0020】

本発明のもう1つの態様は、(a)エラストマー性エチレン/オレフィンポリマーおよびポリプロピレンポリマーからなる群より選択された第一ポリマーを含む高溶解強度材料であって、1秒あたり1ラジアンおよび190で、平行プレートレオメトリーを用いて測定されて、175,000ポアズ(17,500Pa·s)以上の動的複素粘度を有する高溶解強度材料、および(b)エラストマー性エチレン/オレフィンポリマーおよびポリプロピレンポリマーからなる群より選択された第二ポリマーを含む高流動性材料であって、2,500未満の\*/td比(ここで、\*は、動的複素粘度であり、tdはタンデルタであり、いずれも1秒あたり1ラジアンで190で測定される)を有する高流動性材料を含むブレンドを含むエラストマーシート(ただし、第一ポリマーおよび第二ポリマーの両方が、ポリプロピレンポリマーであるわけではない)である。

30

## 【0021】

本発明はまた、本明細書に記載されているような2以上の実施形態の組み合わせを含有する組成物から形成されたシートも提供する。本発明はまた、本明細書に記載されているような2またはそれ以上の実施形態の組み合わせを含むシートも提供する。

## 【0022】

本発明はまた、いずれも本発明の組成物から形成されたフォームおよびフォームシートも提供する。このような組成物は、本明細書に記載されているような2以上の実施形態の組み合わせを含有してもよい。本発明はまた、いずれも本明細書に記載されているような2以上の実施形態の組み合わせを含むフォームおよびフォームシートも提供する。

40

## 【0023】

本発明はまた、本明細書に記載されているような組成物を含むか、またはこれから形成された、少なくとも1つの成分を含む物品も提供する。本発明はまた、本明細書に記載されているような2以上の実施形態の組み合わせを含むか、またはこれから形成された、少なくとも1つの成分を含む物品も提供する。

## 【0024】

本発明の耐ネッキング性エラストマー押し出組成物は、エラストマー性エチレン/オレフィンポリマーおよびポリプロピレンポリマーからなる群より選択された第一ポリマーを含む高溶解強度材料と、エラストマーエチレン/オレフィンポリマーおよびポリプロピレンポリマーからなる群より選択された第二ポリマーを含む高流動性材料とのブレンド

50

ドを含む。

【発明を実施するための最良の形態】

【0025】

本発明に適したエチレン - オレフィンポリマー（「EAOポリマー」または「EAO」とも呼ばれる）は、インターポリマー、およびジエン変性インターポリマーを包含する。具体例としてのポリマーは、エチレン/プロピレン(EP)コポリマー、エチレン/ブチレン(EB)コポリマー、エチレン/オクテン(EO)コポリマー、およびエチレン/プロピレン/ジエン変性(EPDM)インターポリマーを包含する。より特定の例は、超低密度線状ポリエチレン(ULDPE)（例えばザ・ダウ・ケミカル・カンパニー(The Dow Chemical Company)によって製造されているAttane（商標））、均質枝分かれ線状EAOポリマー（例えばミツイ・ペトロケミカルズ・カンパニー・リミテッド(Mitsui Petrochemicals Company Limited)によるTafmer（商標）およびエクソン・ケミカル・カンパニー(Exxon Chemical Company)によるExact（商標））、および均質に枝分かれた実質的に線状のEAOポリマー（例えばザ・ダウ・ケミカル・カンパニーから入手しうるAffinity（商標）、およびザ・ダウ・ケミカル・カンパニーから入手しうるEngage（登録商標）ポリマー）を包含する。より好ましいEAOポリマーは、均質に枝分かれた線状の、および実質的に線状のエチレンインターポリマー、またはコポリマーであり、 $0.85 \sim 0.92 \text{ g/cc}$ 、特に $0.85 \sim 0.90 \text{ g/cc}$ の(ASTM D-792にしたがって測定された)密度を有する。

10

【0026】

「線状エチレン/ - オレフィンポリマー」という用語は、長鎖枝分かれが存在しないポリマー、例えば均一枝分かれ（すなわち均質に枝分かれた）分布重合方法（例えば米国特許第3,645,992号(エルストン(Elston))、これの開示は、その全体が参照により本明細書に組み込まれる）を用いて製造された、線状低密度ポリエチレンポリマーまたは線状高密度ポリエチレンポリマーを表わし、これらは、コモノマーが、所与のインターポリマー分子中にランダム分散され、これらのインターポリマー分子の実質的にすべてが、そのインターポリマー中に同じエチレン/コモノマー比を有するものである。これは、典型的にはチーグラ-ナッタ型触媒により生成され、このインターポリマーの分子の中でもコモノマーの非均質分布を含有する不均質枝分かれインターポリマーと対照的である。「線状エチレン/ - オレフィンポリマー」という用語は、多数の長鎖分枝を有することが当業者に公知である高圧枝分かれポリエチレンのことを言うのではない。

20

30

【0027】

実質的に線状のエチレンコポリマーまたはインターポリマー（「SLEP」としても公知である）が特に好ましい。これに加えて、様々な機能化エチレンコポリマー、例えば（ビニルアセテートに由来する $0.5 \sim 50$ 重量%単位を含有する）EVAも適切である。

【0028】

「実質的に線状」とは、ポリマーが、主鎖において $1,000$ 炭素あたり $0.01 \sim 3$ 長鎖分枝、より好ましくは $1,000$ 炭素あたり $0.01 \sim 1$ 長鎖分枝、特に $1,000$ 炭素あたり $0.05 \sim 1$ 長鎖分枝で置換された主鎖を有することを意味する。

【0029】

本発明の実質的に線状のエチレン/ - オレフィンインターポリマーは、米国特許第5,272,236号および米国特許第5,278,272号に記載されており、各々は、その全体が参照により本明細書に組み込まれている。有用な実質的に線状のエチレン/ - オレフィンインターポリマーは、コモノマーが、所与のインターポリマー分子中にランダム分散され、これらのインターポリマー分子の実質的にすべてが、そのインターポリマー中に同じエチレン/コモノマー比を有するものである。実質的に線状のエチレン/ - オレフィンインターポリマーはまた、2以上の溶融ピークを有する、不均質に枝分かれた線状エチレンポリマーとは対照的に、単一の溶融ピークを有する。

40

【0030】

1つの実施形態において、エチレンインターポリマーは、コモノマーの均一分布を有し

50

、したがってこのインターポリマーの分子量範囲全体におけるポリマーフラクションのコモノマー含量は、10重量%未満、好ましくは8重量%未満、より好ましくは5重量%未満、およびなお一層好ましくは2重量%未満だけ変わる。

【0031】

「長鎖枝分かれ」または「LCB」とは、EAOポリマーまたはEAOポリマーブレンドのアルファ-オレフィン成分の鎖長を超える鎖長を意味する。炭素-13核磁気共鳴(C-13 NMR)分光法は、この鎖中の炭素原子の実際の数を読みまたは決定することはできないが、この長さが、6超の炭素原子であるならば、LCBの存在は、EAOポリマーの分子量分布から決定することができるか、または少なくとも推定することができる。これはまた、メルトフロー比、またはASTM D-1238(190、10kg重量)を介したメルトインデックス((I10)対I2の比(I10/I2))から決定することができる。

10

【0032】

「インターポリマー」とは、その中で少なくとも2種のモノマーを重合しているポリマーのことを言う。これは例えば、コポリマー、ターポリマー、およびテトラポリマーを包含する。これは特に、エチレンと、少なくとも1つのエチレン性不飽和コモノマー、典型的には3~20個の炭素原子(C<sub>3</sub>-C<sub>20</sub>)の-オレフィンとを重合することによって調製されたポリマーを包含する。具体例としての脂肪族-オレフィン、プロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-ペンテン、4-メチル-1-ペンテン、1-ヘプテン、および1-オクテンを包含する。コモノマーはまた、スチレンおよびアルキル置換スチレンを包含する。-オレフィン、脂肪族C<sub>3</sub>-C<sub>10</sub>-オレフィンである。追加のコモノマーは、非限定的に共役および非共役ジエンを包含するポリエン、および3以上の二重結合を含有するモノマーを包含する。

20

【0033】

好ましいコポリマーは、EP、EB、エチレン/ヘキセン-1(EH)、およびEOポリマーを包含する。具体例としてのターポリマーは、エチレン/プロピレン/オクテンターポリマー、ならびにエチレン、C<sub>3</sub>-C<sub>20</sub>-オレフィン、およびジエン、例えばノルボルナジエン、ジシクロペンタジエン、1,4-ヘキサジエン、ピペリレン、または5-エチリデン-2-ノルボルネンのターポリマーを包含する。

【0034】

本明細書において用いられているような「エラストマー」とは、有利には0.920g/cc未満、望ましくは0.900g/cc未満、好ましくは0.895g/cc未満、より好ましくは0.880g/cc未満、さらにより好ましくは0.875g/cc未満、なお一層好ましくは0.870g/cc未満である密度、および33パーセント未満、好ましくは29パーセント未満、より好ましくは23パーセント未満のパーセント結晶度を有するEAOポリマーまたはEAOポリマーブレンドを意味する。密度は好ましくは0.850g/cc超である。パーセント結晶度は、示差走査熱量測定法(DSC)によって決定される。

30

【0035】

SLEPは、狭い分子量分布(MWD)および狭い短鎖枝分かれ分布(SCBD)を特徴とし、米国特許第5,272,236号および第5,278,272号において記載されているように調製される。両方の関連部分は、参照により本明細書に組み込まれる。SLEPは、長鎖枝分かれ(LCB)とカップリングされた、これらの狭いMWDおよび狭いSCBDによって際立った物理的性質を示す。

40

【0036】

米国特許第5,272,236号(5列、67行目~6列、28行目)は、少なくとも1つの反応器を用いて、制御された連続重合方法を介したSLEP生成について記載しているが、所望の特性を有するSLEPを生成するのに十分な重合温度および圧力における多重反応器も許容する。重合は好ましくは、溶液重合方法を介して、20~250の温度で、幾何拘束型触媒技術を用いて行なわれる。適切な幾何拘束型触媒は、米国特許第

50

5, 272, 236号の6列、29行目～13列、50行目に開示されている。

【0037】

好ましいSLEPは、いくつかのはっきりとした特徴を有する。これらの1つは、20～90重量%、より好ましくは30～89重量%のエチレン含量であり、残りは、1種以上のモノマーを含む。エチレンおよびモノマー含量は、SLEP重量を基準にしており、100重量%の総モノマー含量を得るように選択される。6炭素原子までの鎖長については、SLEPモノマー含量は、C-13 NMR分光法を用いて測定することができる。

【0038】

前記基準に合致するSLEPは、例えば、ザ・ダウ・ケミカル・カンパニーからのEngage（登録商標）ポリオレフィンエラストマー、およびザ・ダウ・ケミカル・カンパニーおよびデュポン・ダウ・エラストマーズ(DuPont Dow Elastomers L.L.C.)からの幾何拘束型触媒作用を介して生成されたほかのポリマーを包含する。

【0039】

本発明に適したポリプロピレンポリマー（「PPポリマー」または「PP」とも呼ばれる）は、プロピレンのホモポリマー；プロピレンとモノマー、例えばエチレン、1-ブテン、1-ヘキセン、または4-メチル-1-ペンテン、別の-オレフィンとのコポリマー；またはホモポリマーとコポリマーとのブレンドである。ホモポリマー、コポリマー、またはホモポリマーとコポリマーとのブレンドの各々は、核形成されてもよい。該モノマーは、好ましくはエチレンである。該コポリマーは、ランダムコポリマーまたはブロックコポリマー、またはランダムコポリマーとブロックコポリマーとのブレンドであってもよい。そういうものとして、この成分は好ましくは、ポリプロピレン(PP)ホモポリマーおよびプロピレン/エチレンコポリマーからなる群より選択される。

【0040】

本明細書において用いられているように、「核形成された(nucleated)」とは、核形成剤、例えばミラッド(Millad)（商標）、すなわちミリケン(Miliken)から商業的に入手しうるジベンジルソルビトールの添加によって変性されているポリマーのことを言う。他の従来の核形成剤、例えばナトリウムベンゾエート、または他の塩も用いることができる。

【0041】

ポリプロピレン(PP)の調製はまた、チーグラ触媒、例えば、セッキン(Cecchin)の米国特許第4,177,160号に記載されているように、アルミニウムジエチルモノクロライドと組み合わされたチタントリクロライドの使用をともなう。PPを生成するために用いられる重合方法は、50～90 および0.5～1.5 MPa（5～15気圧）で運転されるスラリー方法、および非晶質ポリマーの除去のために格別な配慮が払われなければならない気相および液体モノマー方法の両方を包含する。エチレンが、エチレンブロックを有するポリプロピレンを形成するために、反応へ添加されてもよい。PP樹脂はまた、多様なメタロセン触媒、シングルサイト触媒、および幾何拘束型触媒のいずれかを、これらの関連方法とともに用いることによって調製されうる。

【0042】

この高溶融強度材料は、エラストマーEAOポリマーおよびPPポリマーからなる群より選択された第一ポリマーを含む。この高溶融強度材料は、1秒あたり1ラジアンおよび190 で平行プレートレオメトリーを用いて測定された、175,000ポアズ（17,500 Pa·s）またはそれ以上の動的複素粘度を特徴とする。高分子量および長鎖枝分かれを有するポリマーは、必要な高溶融強度を有するようである。

【0043】

動的複素粘度（\*）は、平行プレートレオメトリーによって測定される。レオメーターは、振動を駆動プレートへ入力し、荷重、および第二プレート上の入力と出力との間の位相角を測定する。応答の位相角は、複素粘度\*をデコンヴォリューションして、入力と正確に位相が合っている粘度成分'、およびこの入力から90度だけずれている粘度成分''にするために利用される。二乗された複素粘度\*は、二乗された'プラス

10

20

30

40

50

二乗された  $\omega'$  に等しい。1秒あたり1ラジアンにおける複素粘度は、1逆(reciprocal)秒の歪率においてキャピラリーレオメトリーによって測定された粘度と非常によく相関している。 $\omega'$  は、この系の弾性応答に対応する。 $\omega''$  は、この系の粘性応答に対応する。 $\omega''$  対  $\omega'$  の比は、タンデルタに等しい。振動率は、どのようにして粘度がせん断率に依存するかを調べるために、1秒あたり0.1~100ラジアンで様々に変えられる。サンプルは、TAインストルメントによって販売されている「最新式レオメトリックス膨張装置(The Advanced Rheometrics Expansion Systems)(ARES)」レオメーターを用いて分析された。

【0044】

動的複素粘度およびメルトインデックスまたは  $I^2$  (ASTM D-1238 (190 / 2.16 kg 重量) にしたがって測定された) は、直接相関関係がない。同じメルトインデックスを有するポリマーは、異なる動的複素粘度を有する。このことに留意しつつ、本発明の高熔融強度材料に適した動的複素粘度を有するEAOポリマーは一般に、0.5 dg / 分未満のメルトインデックスまたは  $I_2$  を有し、大部分の例では、0.3 dg / 分未満、より好ましくは0.2 dg / 分未満のメルトインデックスまたは  $I_2$  を有し、多くの場合、実際に測定不可能なほど低いメルトインデックスまたは  $I_2$  を有する。

10

【0045】

同様に、動的複素粘度および熔融流量 (ASTM D-1238 (230 / 2.16 kg 重量) にしたがって測定された) は、直接相関関係がない。同じ熔融流量を有するポリマーは、異なる動的複素粘度を有する。このことに留意しつつ、本発明の高熔融強度材料に適した動的複素粘度を有するPPポリマーは一般に、0.4 dg / 分未満、好ましくは0.3 dg / 分未満、または0.2 dg / 分未満の熔融流量(MFR)を有する。

20

【0046】

1つの実施形態において、高熔融強度材料において用いられているEAOポリマーは、ASTM D-1238 (190 / 2.16 kg 荷重) を用いて決定された場合、0.001 dg / 分~0.4 dg / 分、好ましくは0.005 dg / 分~0.3 dg / 分、より好ましくは0.01 dg / 分~0.2 dg / 分のメルトインデックス ( $I_2$ ) を有する。すべての個々の値および0.001 dg / 分~0.4 dg / 分の部分的範囲は本発明に包含され、本明細書に開示されている。0.5 dg / 分以上のメルトインデックスを有するEAOポリマーは、本明細書に記載されているように、高流動性材料と組み合わせて使用されるには不十分な熔融強度を有する。

30

【0047】

もう1つの実施形態において、高熔融強度材料において用いられているEAOポリマーは、0.83 g / cc ~ 0.93 g / cc、好ましくは0.84 g / cc ~ 0.92 g / cc、より好ましくは0.85 g / cc ~ 0.91 g / cc の密度を有する。すべての個々の値および0.83 g / cc ~ 0.93 g / cc の部分的範囲は本発明に包含され、本明細書に開示されている。

【0048】

もう1つの実施形態において、高熔融強度材料において用いられているEAOポリマーは、3~40、好ましくは4~35、より好ましくは5~30の粘度比  $V_{0.1} / V_{100}$  を有する。すべての個々の値および3~40の部分的範囲は本発明に包含され、本明細書に開示されている。

40

【0049】

もう1つの実施形態において、高熔融強度材料において用いられているEAOポリマーは、重合性モノマーの総重量を基準にして40重量%未満、好ましくは30重量%未満の最終ポリマー中へのコモノマーの組み込みを有する。コモノマーの組み込み量は、重合性モノマーの総重量を基準にして20重量%未満であってもよく、10または5重量%未満でさえあってもよい。

【0050】

もう1つの実施形態において、高熔融強度材料において用いられているPPポリマーは

50

、ASTM D - 1238 (230 / 2.16 kg 荷重) を用いて決定された場合、0.001 dg / 分 ~ 0.4 dg / 分、好ましくは0.005 dg / 分 ~ 0.3 dg / 分、より好ましくは0.01 dg / 分 ~ 0.2 dg / 分の溶融流量(MFR)を有する。すべての個々の値および0.001 dg / 分 ~ 0.4 dg / 分の部分的範囲は本発明に包含され、本明細書に開示されている。

【0051】

もう1つの実施形態において、高溶融強度材料において用いられているPPポリマーは、0.83 g / cc ~ 0.94 g / cc、好ましくは0.84 g / cc ~ 0.93 g / cc、より好ましくは0.85 g / cc ~ 0.93 g / ccの密度を有する。すべての個々の値および0.83 g / cc ~ 0.94 g / ccの部分的範囲は本発明に包含され、本明細書に開示されている。

10

【0052】

もう1つの実施形態において、高溶融強度材料において用いられているPPポリマーは、3 ~ 50、好ましくは4 ~ 45、より好ましくは5 ~ 40の粘度比 $V_{0.1} / V_{100}$ を有する。すべての個々の値および3 ~ 50の部分的範囲は本発明に包含され、本明細書に開示されている。

【0053】

高流動性材料は、エラストマー性エチレン / オレフィンポリマーおよびポリプロピレンポリマーからなる群より選択された第二ポリマーを含む。この高流動性材料は、どちらも上記のように、2,500未満の $\ast / t d$ 比(ここで、 $\ast$ は、動的複素粘度であり、 $t d$ はタンデルタであり、いずれも1秒あたり1ラジアンで190 で測定される)を特徴とする。

20

【0054】

単独の動的複素粘度のように、「動的複素粘度対タンデルタ( $\ast / t d$ )」およびメルトインデックスまたはI2 (ASTM D - 1238 (190 / 2.16 kg 重量) にしたがって測定された)は、直接相関関係がない。同じメルトインデックスを有するポリマーは、異なる $\ast / t d$ 比を有しうる。このことに留意しつつ、本発明の高流動性材料に適した $\ast / t d$ 比を有するEAOポリマーは一般に、15 dg / 分以上のメルトインデックスまたはI2を有し、最も多くの場合、18 dg / 分以上のメルトインデックスまたはI2を有し、なお一層好ましくは20 dg / 分以上、または25 dg / 分以上のI2を有する。

30

【0055】

同様に、 $\ast / t d$ 比および溶融流量(ASTM D - 1238 (230 / 2.16 kg 重量) にしたがって測定された)は、直接相関関係がない。同じ溶融流量を有するポリマーは、異なる $\ast / t d$ 比を有しうる。このことに留意しつつ、本発明の高流動性材料に適した $\ast / t d$ 比を有するPPポリマーは一般に、25 dg / 分以上の溶融流量を有し、より好ましくは30 dg / 分以上、または40 dg / 分以上の溶融流量を有する。

【0056】

1つの実施形態において、高流動性材料において用いられているEAOポリマーは、ASTM D - 1238 (190 / 2.16 kg 荷重) を用いて決定された場合、15 dg / 分 ~ 1,000 dg / 分、好ましくは20 dg / 分 ~ 500 dg / 分、より好ましくは30 dg / 分 ~ 300 dg / 分、なお一層好ましくは40 dg / 分 ~ 200 dg / 分のメルトインデックス(I2)を有する。すべての個々の値および15 dg / 分 ~ 1,000 dg / 分の部分的範囲は本発明に包含され、本明細書に開示されている。

40

【0057】

もう1つの実施形態において、高流動性材料において用いられているEAOポリマーは、0.83 g / cc ~ 0.92 g / cc、好ましくは0.84 g / cc ~ 0.91 g / cc、より好ましくは0.85 g / cc ~ 0.90 g / ccの密度を有する。すべての個々の値および0.83 g / cc ~ 0.92 g / ccの部分的範囲は本発明に包含され、本明細書に開示されている。

50

## 【0058】

もう一つの実施形態において、高流動性材料において用いられているEAOポリマーは、1~20、好ましくは1~15、より好ましくは1~10の粘度比 $V_{0.1}/V_{100}$ を有する。すべての個々の値および1~20の部分的範囲は本発明に包含され、本明細書に開示されている。

## 【0059】

もう一つの実施形態において、高流動性材料において用いられているEAOポリマーは、重合性モノマーの総重量を基準にして5重量%超、好ましくは10重量%超の最終ポリマー中へのコモノマーの組み込みを有する。コモノマーの組み込み量は、重合性モノマーの総重量を基準にして15重量%超であってもよく、20または25重量%超でさえあってもよい。

10

## 【0060】

もう一つの実施形態において、高流動性材料において用いられているPPポリマーは、ASTM D-1238(230、2.16kg荷重)を用いて決定された場合、25dg/分~1,000dg/分、好ましくは30dg/分~500dg/分、より好ましくは40dg/分~400dg/分の溶融流量(MFR)を有する。すべての個々の値および25dg/分~1,000dg/分の部分的範囲は本発明に包含され、本明細書に開示されている。

## 【0061】

もう一つの実施形態において、高流動性材料において用いられているPPポリマーは、0.82g/cc~0.92g/cc、好ましくは0.81g/cc~0.91g/cc、より好ましくは0.80g/cc~0.90g/ccの密度を有する。すべての個々の値および0.82g/cc~0.92g/ccの部分的範囲は本発明に包含され、本明細書に開示されている。

20

## 【0062】

もう一つの実施形態において、高流動性材料において用いられているPPポリマーは、1~20、好ましくは1~15、より好ましくは2~10の粘度比 $V_{0.1}/V_{100}$ を有する。すべての個々の値および1~20の部分的範囲は本発明に包含され、本明細書に開示されている。

## 【0063】

EAOポリマーおよびPPポリマーを含む本発明の組成物は、高強度材料のもので、高流動性材料のもので無関係に、好ましくは少なくとも30重量%のEAOポリマー、および少なくとも30重量%のPPポリマーを含む。屋根葺き材層用途のためには、この組成物は好ましくは少なくとも60重量%のEAOポリマーを含む。

30

## 【0064】

一つの実施形態において、本発明の組成物は、それぞれのASTM D-1238手順を用いて決定された場合、0.01dg/分~100dg/分、好ましくは0.1dg/分~50dg/分、より好ましくは1dg/分~40dg/分のメルトインデックス(12)または溶融流量(MFR)を有する。すべての個々の値および0.01dg/分~100dg/分の部分的範囲は本発明に包含され、本明細書に開示されている。

40

## 【0065】

もう一つの実施形態において、これらの組成物は、DSCによって測定された場合、50パーセント以下、好ましくは40パーセント以下、より好ましくは30パーセント以下のパーセント結晶度を有する。好ましくはこれらの組成物は、2~50パーセントのパーセント結晶度を有し、これは、すべての個々の値および2~50パーセントの部分的範囲を包含する。このような個々の値および部分的範囲は本発明に包含され、本明細書に開示されている。

## 【0066】

もう一つの実施形態において、これらの組成物は、0.83g/cc~0.93g/cc、好ましくは0.84g/cc~0.92g/cc、より好ましくは0.85g/cc

50

~ 0.91 g / c c の密度を有する。すべての個々の値および 0.83 g / c c ~ 0.93 g / c c の部分的範囲は本発明に包含され、本明細書に開示されている。

【0067】

適切な組成物は、20重量%以上の高溶融強度材料、好ましくは30重量%以上、より好ましくは40重量%以上、なお一層好ましくは50重量%以上、または55重量%以上のこの材料を含有する。さらなる実施形態において、このポリマー組成物は、60重量%以下の高流動性材料、より好ましくは50重量%以下、または45重量%以下のこの材料を含有する。もう1つの実施形態において、このポリマー組成物は、50~90重量%、好ましくは55~80重量%、より好ましくは60~75重量%の高溶融強度材料を含有する。さらなる実施形態において、このポリマー組成物は、15~50重量%、好ましくは20~45重量%、なお一層好ましくは25~40重量%の高流動性材料を含有する。すべての重量パーセンテージは、これら2つの材料の合計量を基準にする。

10

【0068】

本発明の好ましい実施形態において、これらの組成物は、架橋剤または加硫剤、例えばペルオキシド、フェノール、アジド、アルデヒド-アミン反応生成物、置換ウレア、置換グアニジン；置換キサントゲン；置換ジチオカルバメート；硫黄含有化合物、例えばチアゾール、イミダゾール、スルフェンアミド、チウラミジスルフィド、元素硫黄、パラキノンジオキシム、ジベンゾパラキノンジオキシム；またはこれらの組み合わせを含有しない。もう1つの実施形態において、この組成物は、ペルオキシドを含有しない。

【0069】

本明細書において規定されているネッキングは、シートダイからの熱い押出物が、ダイのリップを離れる押出物の速度に等しいかまたはそれ以上の速度で、一对の引取ロールのニップ中に引っ張られる時、ダイとニップとの間の距離において発生するシート幅の損失である。許容しうるネッキングによる幅の低減は、シートの所望幅および押出ダイのサイズによる。例えば、生産されることになるシートの目標幅よりも11インチしか幅広くないダイを備えた高速度押出ラインにおいて、このラインで製造される最も薄いシートから結果として生じるネッキングは、正常なプロセス変動を許容しうるには、9インチ未満でなければならない。

20

【0070】

特定の理論によって縛られるわけではないが、出願人は、ネッキングに關与する2つの要因があると仮定する。第一の要因は、ポリマーが重力および引取力に応じてストレッチするので、ポリマーの圧伸(drawing)である。第二の要因は、溶融弾性効果であり、この結果として、このような材料が高い押出速度ではあるが、比較的低い引取速度においてテストされた時、高溶融強度材料に対して狭いシートを生じる。これは、高い押出速度による「メモリー効果」である。ポリマーは、半インチ直径を有する円形断面から、24インチ幅を有する長方形断面へ行く。このダイにおいて、応力緩和が発生するのに十分な時間はなく、ポリマーは、ダイを出る時に収縮する。収縮は、低減幅およびより低い見掛け速度において見られる。

30

【0071】

出願人は、高溶融強度成分と高流動性成分、特に、平行プレートレオメトリーによって高いタンデルタ、したがって非常に低い弾性を有することが証明された成分とを組み合わせることによって、高い生産速度においてでさえ、応力緩和を発生させることを発見した。タンデルタは、平行プレートレオメトリーによって、粘性モジュラス対弾性モジュラスの比として容易に決定される。エチレン/アルファ-オレフィンのメルトインデックス、およびポリプロピレンのMFRを決定するために用いられる、より従来からのキャピラリーレオメトリーは、複素粘度を測定するだけであり、これは、この粘度が粘性原因によるか、弾性原因によるかを決定することはできない。

40

【0072】

高速押出法は、次の実施形態を参照して例証されるであろうが、この実施形態に限定されるわけではない。2インチ直径キリオン(Killion)一軸スクリュウ押出機は、ダイリッ

50

プから引取ロールのニップまでの距離が16インチに等しくなるように配置された。この押出機は、最大容積の生産量を達成するために、150の最大RPMで運転された。この押出機は、24インチ幅で、かつ柔軟性調節可能リップを有するコートハンガー押出ダイと組み合わせられた。この押出機のリップは、0.033インチまたは33ミル（1インチの1,000分の1）の一定分離になるまで、可能なかぎり注意深く調節された。したがってダイ出口は、0.792平方インチの断面積を有した。押出機からの平均生産量は、経験的に1時間あたり53.5立方インチであると決定された。ダイを通る流動は、この断面積の速度の数倍に等しいので、ダイリップにおける速度は、1分あたり5.63フィートとして計算された。これらの引取ロールは、従来の垂直3ロールスタックの一部であった。これら2つの引取ロール間の隙間は、20ミルの間隔に調節された。これは、45ミル厚さの単一層の屋根葺き材構成における個々のTPO層の実際の目標厚さである。このペアのトップロールは、このロールの両端部において、油圧ピストンによって停止装置に対して押し付けられた。このトップロールは、このシートが予め設定された隙間よりも厚いかぎり、シート上で「浮き」、このスタックを通して行くポリマーによって生じた圧力は、ピストン中の圧力よりも大きかった。ピストンへの圧力は、ロールを浮かせるために、および大きい回転バンクを生じるのを避けるために、1平方インチあたり650ポンドに制限された。大部分の配合物が、1分あたり5.63フィート未満の前進速度を有することが観察されたので、3ロールスタックについての引取速度は、1分あたり5フィートに調節された。

10

## 【0073】

20

シートは、これらの条件（150rpm、1分あたり5フィート）での平衡後に生産され、ついで引取速度が、1分あたり10フィートに増加された。このラインは平衡化され、ついで引取速度は更に1分あたり15フィートに増加された。再度の平衡後、引取速度は1分あたり20フィートに増加された。各々の引取速度において生産されたシートの幅および平均厚さが測定された。幅および厚さは一般に、下記に示されているように指数法則関係にしたがうので、集められたデータから係数または定数「s」を経験的に決定することが可能であり、および厚さが20ミルである時にこの幅を計算することが可能である。この関係は次のとおりである：

$$W_j / W_i = [H_j / H_i]^s$$

（ここで、Wは、シートの幅であり、Hは、シートの高さまたは厚さである。）

30

## 【0074】

出願人は、耐ネッキング性が低い配合物は、1分あたり5フィート程度低さの速度においてさえ、7インチ超の幅を失ったことを発見した。物質が破壊されているわけではないので、これらのシートは、同じ断面積を有し、したがってより厚かった。引取速度の増加は場合により、これらのシートを20ミル厚さにしたが、1分あたり20フィートを超える引取速度においてでしかなく、この結果として、14インチ超のネッキングを生じた。

## 【0075】

これに対して、本発明の耐ネッキング性配合物は、1分あたり5フィートでネッキングに対して3インチ未満しか失わなかった。質量保存の法則に従って、これらのシートは、同じ断面積を保持するためにこれに対応して薄くなった。「s」の値が低くなったので、これらのシートは、幅よりもはるかに速く厚さを失い、いくつかは、1分で10フィートを少し上回る引取速度で20ミルの厚さに達することが可能にされた。

40

## 【0076】

本発明のこれらの組成物は、高速押出を介してシートおよび膜を製造するのに有用である。これらのシートおよび膜は、非限定的にライナー、池ライナー、および単一層および多層屋根葺き材膜を包含する多様な物品を製造するために用いることができる。

## 【0077】

これらのシートがヒートシールされるあらゆる用途、特に屋根葺き材膜用途のために、これらのより低いピーク融解温度のために、ランダムPPコポリマーが本発明の組成物に

50

おけるPPポリマーとして好ましい。従来のホモポリマーポリプロピレンは、そのアタクチックポリプロピレン含量に応じて、160～165で融解する。ランダムコポリマーについて、融解温度は、エチレンモノマー含量の増加とともに減少し、通常は140～145である。耐衝撃性コポリマーも、本発明における高溶融強度PPポリマーとして用いられてもよい。これらの材料は、離散相としてホモポリマーポリプロピレンの中に分散された、エチレンプロピレンゴムとしてエチレンモノマーを組み込んでいる。この理由により、これらは通常、ヘテロ相コポリマーまたはインターポリマーと呼ばれている。これらの耐衝撃性コポリマーは、ランダムコポリマーと同様の屈曲モジュラスを有する。

**【0078】**

過剰溶融弾性の結果として性能の損失を生じるであろうようなほかの高速方法は、フォーム押出であろう。これらの配合物は、ひとたびフォームがダイを離れ、膨張する機会を得たら、安定した気泡を形成するのに十分な溶融強度を有しなければならないことは、当業界において公知である。不十分な溶融強度および気泡の破壊は、内部圧力を緩和する。しかしながらこの材料が、大きすぎる溶融弾性を有するならば、これらの気泡は、完全なサイズまで成長しないであろうし、実際、これが冷却するにつれて、ただしポリマーが結晶化する前に、気泡の収縮を引き起こす。高溶融強度を与えることによって、しかしながら残留応力を衰えさせることによって、本発明の組成物は、より小さい収縮しかともならないか、または冷却の間の応力下で構築されたより低い密度（より大きい気泡）のフォームを可能にすることが計画されている。

**【0079】**

本明細書に挙げられているあらゆる数字範囲は、1単位の増分において、低い方の値から高い方の値までのすべての値を包含する（ただし、あらゆる低い方の値とあらゆる高い方の値との間に少なくとも2単位の分離がある）。一例として、1成分の量、または組成的または物理的性質の値、例えばブレンド成分の量、軟化温度、メルトインデックスなどが1～100であると記載されているならば、すべての個々の値、例えば1、2、3など、およびすべての部分的範囲、例えば1～20、55～70、197～100などは、明らかにこの明細書において列挙されているものとする。1未満の値については、1単位は、必要に応じて、0.0001、0.001、0.01、または0.1であると考えられる。10未満の単一の桁の値については、1単位は典型的には「0.1」である。これらは、特別に意図されているものの例にすぎず、列挙されている最低値と最高値との間の数値のあらゆる可能な組み合わせは、本出願において明らかに記載されていると考えるべきである。数字範囲は、本明細書において考察されているように、メルトインデックス、溶融流量、密度、パーセント結晶度、1つの成分の重量パーセント、モノマー中の炭素原子数、およびほかの特性を参照して挙げられている。

**【0080】**

本明細書において用いられているような「フィルム」という用語は、単層または多層フィルム構造を意味する。

**【0081】**

本明細書において用いられているような「ポリマー」という用語は、同一型のものであれ、異なる型のものであれ、モノマーを重合することによって調製されたポリマー化合物のことを言う。一般名のポリマーは、このようにして、ただ1つの型のモノマーから調製されたポリマーのことを言うために通常用いられているホモポリマーという用語、および後で規定されるようなインターポリマーという用語を包含する。

**【0082】**

本明細書において用いられているような「インターポリマー」という用語は、少なくとも2つの異なる型のモノマーの重合によって調製されたポリマーのことを言う。一般名のインターポリマーとは、このようにして、2つの異なる型のモノマーから調製されたポリマー、および2つ以上の異なる型のモノマーから調製されたポリマーのことを言うために通常用いられるコポリマーを包含する。

10

20

30

40

50

## 【 0 0 8 3 】

本明細書において用いられているような「ブレンド」または「ポリマーブレンド」という用語は、2種以上のポリマーのブレンドを意味する。このようなブレンドは、混和性であってもよく、混和性でなくてもよい。このようなブレンドは、相分離されてもよく、相分離されていなくてもよい。このようなブレンドは、透過電子顕微鏡法から決定されたような、1以上のドメイン形状を含有してもよく、含有しなくてもよい。

## 【 0 0 8 4 】

本明細書において用いられているような「E A O」または「エチレン / - オレフィン」という用語は、少なくとも50モルパーセントエチレン、および1以上の追加モノマーを含有するエチレンベースのインターポリマーのことを言う。

10

## 【 0 0 8 5 】

本明細書において用いられているような「P P」または「ポリプロピレンポリマー」という用語は、ポリプロピレンホモポリマー、プロピレンベースのインターポリマー、またはヘテロ相プロピレンベースのインターポリマーことを言う。プロピレンベースのインターポリマーは、少なくとも50モルパーセントプロピレン、および1以上の追加モノマーを含有する。

## 【 0 0 8 6 】

本発明の組成物および方法、およびこれらの使用は、次の実施例によってより十分に記載される。これらの実施例は、本発明を例証する目的で提供され、本発明の範囲を限定するものとしてと考えるべきではない。

20

## 【実施例】

## 【 0 0 8 7 】

特定の実施例または表においてほかの記載がなければ、動的複素粘度 ( $*$ ) は、平衡プレートオメトリーによって測定する。レオメーターは、振動を駆動プレートへ入力し、荷重、および第二プレート上の入力と出力との間の位相角を測定する。応答の位相角は、複素粘度  $*$  をデコンヴォリューションして、入力と正確に位相が合っている粘度成分  $'$ 、およびこの入力から90度だけずれている粘度成分  $'$  にするために利用する。二乗された複素粘度  $*$  は、二乗された  $'$  プラス二乗された  $'$  に等しい。1秒あたり1ラジアンにおける複素粘度は、1逆秒の歪率においてキャピラリーレオメトリーによって測定された粘度と非常によく相関している。位相が合っている成分  $'$  は、この系の弾性応答に対応する。位相が合っていない成分  $'$  は、この系の粘性応答に対応する。 $'$  対  $'$  の比は、タンデルタに等しい。

30

## 【 0 0 8 8 】

メルトインデックス (「M I」) は、ポリマーの分子量の表示である。メルトインデックスは、ポリマーの分子量に反比例する。このようにして、分子量が高ければ高いほど、メルトインデックスは低くなる。ただしこの関係は直線的ではない。これらの実施例におけるE A OについてのM Iは、A S T M D - 1 2 3 8、条件1 9 0 C / 2 . 1 6 k g (以前は「条件 ( E ) 」として公知であり、またI 2としても公知である) にしたがって測定された。M Iは、d g / 分の単位で報告されている (これは、g / 1 0 分に等しい)。< 0 . 5 インチのメルトインデックスは、このメルトインデックスが、検出不能になるほど有意に0 . 5 未満であったことを示している。

40

## 【 0 0 8 9 】

溶融流量 (「M F R」) もまた、ポリマーの分子量の表示である。これはポリマーの分子量に反比例する。このようにして、分子量が高ければ高いほど、溶融流量は低くなる。ただしこの関係は直線的ではない。これらの実施例におけるポリプロピレンについての溶融流量は、製造業者によって測定されたか、またはA S T M D - 1 2 3 8、条件2 3 0 C / 2 . 1 6 k g (以前は「条件 ( L ) 」として公知であり、またI 2としても公知である) にしたがって測定されたものとして報告した。M F Rは、d g / 分の単位で報告する (これは、g / 1 0 分に等しい)。

## 【 0 0 9 0 】

50

ムーニー粘度は、125 でASTM D-1646にしたがって測定したムーニー粘度ML 1+4である。

【0091】

エチレンホモポリマーおよびインターポリマー、およびほかのポリオレフィンの密度は、ASTM D-792にしたがって測定する。いくつかのサンプルは、測定を行う前に24時間、周囲条件においてアニールする。ASTM D-792はまた、このテスト手順に記載されている他のポリマーの密度を測定するためにも用いられうる。

【0092】

示差走査熱量測定法(DSC)は、ポリエチレン(PE)ベースのサンプルおよびポリプロピレン(PP)ベースのサンプルにおける結晶度を測定するために用いることができる。サンプルは、190の温度で薄膜にプレスした。約5~8mgのフィルムサンプルの重さを測り、DSCパンに入れた。閉鎖雰囲気確保するために、フタをパンにクリンプした。サンプルパンを、DSCセルに入れ、次いで約10/分の率で、PEについては180の温度まで(PPについては230まで)加熱した。サンプルを、この温度に3分間保持した。次いでサンプルを10/分の率で、PEについては-60の温度まで(PPについては-40まで)冷却し、その温度で3分間恒温に保持した。このサンプルを次に、完全融解まで10/分の率で加熱した(第二加熱)。パーセント結晶度は、第二加熱曲線から決定された融解熱( $H_f$ )を、PEについては292 J/g(PPについては165 J/g)の理論的融解熱で割り、この量に100を掛けて計算した(例えば、パーセント結晶度 =  $(H_f / 292 \text{ J/g}) \times 100$ )。

【0093】

インターポリマー粘度は、都合よくは1秒あたり0.1~100ラジアン(rad/秒)の範囲内のせん断率および190において、動的機械的分光計、例えばレオメトリックスからのRMS-800またはARESを用いて、ポアズ(ダイン・秒/平方センチメートル(dsec/cm<sup>2</sup>))で測定する。0.1 rad/秒および100 rad/秒における粘度は、それぞれ $V_{0.1}$ および $V_{100}$ として表わされてもよく、これら2つの比は、RRとして言及され、 $V_{0.1} / V_{100}$ として表示される。

【0094】

実験押出手順

実験室設備は、生産ラインの設備よりもはるかに小さいが、ネッキング現象を再現することは可能である。一軸スクリュウ押出機は、その最大速度である150rpmで運転した。ダイリップと引取ロールのニップとの間の距離は、0.033インチに設定された。引取速度は最初に、押出物がダイから出てくるにつれて、押出物の前進速度に合っているように見えるまで調節した。このことは、速度の予測を必要としたが、予測が低すぎるならば、このことは結果として問題を生じる。これを防ぐために、手順は、1分あたり5フィートで開始するように修正した。次いで引取速度は、当初引取速度の4倍になるまで次第に増加した。所望の引取速度に達した時、このプロセスが平衡に達した後で、シート幅および厚さが測定された。これは一般に約5分かかった。これらの条件における幅と厚さとの指数法則関係を、シートの幅を2つの目標厚さに規定するために用いた。これらの1つは、単一層屋根葺き材についての厚さ範囲の上限における、スクリムの両側のTPOプライの厚さであり、これらの2つ目は、単一層屋根葺き材についての厚さ範囲の下限における、スクリムの両側のTPOプライの厚さを表わす。シートの幅は、これら2つの目標厚さの各々におけるネッキングの量を決定するために、ダイの幅から差し引いた。

【0095】

表1に示されているような次のEAOおよびポリプロピレンポリマーが、これらの実施例および比較例において用いられた：

【表 1】

表 1

BAO	コモノマー	Wt% エチレン	I2 (dg/min)	MFR (dg/min)	密度 (g/cc)	RR*
EAO-1	1-オクテン	61	0.5		0.868	9.0
EAO-2	1-ブテン	87	<0.5		0.905	25.0
EAO-3	1-オクテン	67	<0.5		0.88	25.9
EAO-4	1-オクテン	62	2.0		0.87	7.1
EAO-5	1-ブテン	77	2.0		0.885	7.7
EAO-6	1-オクテン	67	18		0.88	1.5
EAO-7	1-オクテン	67	<0.5		0.88	18.5
EAO-8	1-ブテン	70	<0.5		0.87	19.8
EAO-9	1-オクテン	78	30		0.902	1.3
PP-1				2.0	0.902	14.5
PP-2				0.4	-	33.2
PP-3				1.5	0.90	16.9
PP-4				1.9	0.90	20.6
PP-5				10	-	6.0
PP-6				25	0.90	4.4
PP-7				35	0.90	2.7
PP-8				35	0.90	2.3
PP-9				0.45	0.902	30.0
PP-10				35	0.90	2.5

$$* RR = V_{0.1} / V_{100}$$

【 0 0 9 6 】

比較例 A ~ C

比較例 A は、レオロジー調節ペルオキシドが省かれている、国際公開第 98 / 32795 号パンフレットからの組成物である。比較例 A の組成物は、EAO-1 と PP-1 とのブレンドであった。EAO-1 は、表 1 に示されている特性および 0.868 g / cc の密度を有するエチレン / 1-オクテンコポリマーであった。PP-1 は、表 2 に示されている特性を有する核形成ランダムコポリマーポリプロピレンであった。表 2 に報告されて

10

20

30

40

50

いる「ネッキングによる損失(Loss to Necking)」から分かるように、比較例Aの組成物は、ダイの幅から14インチ以上もネッキングしてしまったシートを、結果として生じた。

【表2】

実施例	重量部	成分	公称流動性	タンデルタ @ 1 rad/s	Pにおける粘度 @ 1 rad/s (Pa·s)	粘度/タンデルタ	幅 @ 20 mil	ネッキング による 損失
比較例A	60	EAO-1	0.5 MI	2.60	125680 (12568.0)	48410	9.7	14.3
	40	PP-1	2.0 MFR	2.06	91734 (9173.4)	44551		
比較例B	60	EAO-1	0.5 MI	2.60	125680 (12568.0)	48410	12.4	11.6
	40	PP-2 (HMS)	0.4 MFR	1.31	262310 (26231.0)	200638		
比較例C	60	EAO-2 (HMS)	< 0.5 MI	1.20	186020 (18602.0)	154520	10.7	13.3
	40	PP-1	2.0 MFR	2.06	91734 (9173.4)	44551		

P = Poise (1P = 0.1 Pa·s)

表2

【0097】

比較例Aにおいて示された低い耐ネッキング性を改良するために、まずポリプロピレンコポリマー、ついでEAOを、より高い溶融強度の代替物(すなわち、1ラジアン/秒において、より大きい動的複素粘度を有するもの)と置き換えて、比較例BおよびCを調製した。比較例Bの組成物は、EAO-1とPP-2とのブレンドであった。EAO-1は、比較例AのEAOであった。PP-2は、表2に示されている特性を有するヘテロ相ポリプロピレンコポリマーであった。比較例Cは、EAO-2とPP-1とのブレンドであった。EAO-2は、高度の長鎖枝分かれ、表2に示されている特性、および25のムーニー粘度を有する0.905g/cc密度のエチレン/1-ブテンコポリマーであった。より高い溶融強度を有するポリマーの置換は、幾分助けになったが、幅1~2.7インチの改良は、確固たる生産を可能にするには十分でない。いくつかの商業的押出方法は、目

10

20

30

40

50

標シート幅よりも11インチだけ幅広いダイを利用する。10インチまたはそれ以上の「ネッキングによる損失」は、このようなプロセスには許容しえない。比較例A、B、およびCの組成物は、不適切な耐ネッキング性を有し、結果として狭すぎるシートを生じる。このようにして、高熔融強度の増加単独では、この組成物へ十分な耐ネッキング性を付与するのに失敗した。

【0098】

実施例1～3および比較例D～F

これらの実施例は、この組成物の耐ネッキング性に対する高流動性成分の効果を証明している。表3のすべての組成物は、EAO-2を用いて調製した。その分子量、および動的複素粘度によって示されているような長鎖枝分かれの程度によって、このEAOは、本発明の高熔融強度成分の定義に合致する。

【0099】

比較例D～Fは、1～10の熔融流量で商業的に入手しうるランダムコポリマーポリプロピレンを用いて調製した。比較例Dは、EAO-2とPP-3とのブレンドであった。これは、表3に示されている特性を有するランダムコポリマーポリプロピレンであった。比較例Eは、EAO-2とPP-4とのブレンドであった。これは、表3に示されている特性を有するランダムコポリマーポリプロピレンであった。比較例Fは、EAO-2とPP-5とのブレンドであった。これは、表3に示されている特性を有するランダムコポリマーポリプロピレンであった。5989の動的複素粘度/タンデルタ比(および10のMFR)を有するPP-5を含有する比較例Fの組成物のみが、改良されてはいるが依然として不適切な幅および耐ネッキング性の兆候を示し始めている。

【表3】

表3

	重量部	成分	公称流動性	タンデルタ @ 1 rad/s	PIにおける粘度 @ 1 rad/s (Pa·s)	粘度/タンデルタ	幅 @ 20 mil	ネッキングによる 損失
比較例 D	60	EAO-2 (HMS)	< 0.5 MI	1.20	186020 (18602.0)	154520	12.3	11.7
	40	PP-3	1.5 MFR	1.88	112250 (11225.0)	59696		
比較例 E	60	EAO-2 (HMS)	< 0.5 MI	1.20	186020 (18602.0)	154520	12.2	11.8
	40	PP-4	1.9 MFR	1.63	96423 (9642.3)	59262		
比較例 F	60	EAO-2 (HMS)	< 0.5 MI	1.20	186020 (18602.0)	154520	13.4	10.6
	40	PP-5	10 MFR	3.83	22911 (2291.1)	5989		
実施例 1	60	EAO-3 (HMS)	< 0.5 MI	1.24	189030 (18903.0)	152701	15.8	8.2
	40	PP-6 (HF)	25 MFR	4.94	11924 (1192.4)	2413		
実施例 2	60	EAO-2 (HMS)	< 0.5 MI	1.20	186020 (18602.0)	154520	15.3	8.7
	40	PP-7 (HF)	35 MFR	11.15	8022 (802.2)	719		
実施例 3	60	EAO-2 (HMS)	< 0.5 MI	1.20	186020 (18602.0)	154520	15.1	8.9
	40	PP-8 (HF)	35 MFR	14.82	6911 (691.1)	466		

10

20

30

40

50

## 【0100】

実施例1～3は、高熔融強度EAO成分に加えて、高流動性ポリプロピレン成分を含む本発明の組成物を例証している。この高流動性成分は、2,500以下の「動的複素粘度/タンデルタ」比を特徴とする。このような高流動性ポリプロピレンは一般に、25以上のMFRを有する。実施例1は、EAO-3とPP-6とのブレンドであった。EAO-3は、0.88の密度を有するエチレン/1-オクテンコポリマーであった。PP-6は、表3に示されている特性を有するランダムコポリマーポリプロピレンであった。実施例2は、EAO-2とPP-7とのブレンドであった。これは、表3に示されている特性を有するランダムコポリマーポリプロピレンであった。実施例3は、EAO-2とPP-8とのブレンドであった。これは、表3に示されている特性を有するランダムコポリマーポリプロピレンであった。実施例1～3の組成物は、耐ネッキング性を示し、商業用シート押出法の要求に合致する、増加したシート幅を生じた。

10

## 【0101】

実施例4および比較例GおよびH

PP-2、すなわちヘテロ相ポリプロピレンコポリマーを、既に記載された比較例2において用いた。これは、0.4のMFRを有する。これは、262,310ポアズ(26,231.0Pa·s)の動的複素粘度を有し、本発明の高熔融強度材料である。200,638の「動的複素粘度/タンデルタ」比では、これは本発明の高流動性材料として許容しえない。PP-9、すなわち同様なグレードのヘテロ相ポリプロピレンコポリマーが、比較例GおよびH、および実施例4において用いられた。PP-9は、表4に示されている特性を有する。

20

## 【0102】

高熔融強度ポリプロピレンを有する組成物においてEAO流動特性を増加させる効果を証明するために、比較例GおよびH、および実施例4において、EAOが様々に変えられた。比較例Gは、EAO-4とPP-9とのブレンドであった。EAO-4は、0.87g/ccの密度、および広げられた分子量分布を有するエチレン/1-オクテンコポリマーであった。これは、表4において動的複素粘度/タンデルタの比によって証明されるように、流動性を改良する。比較例Hは、EAO-5とPP-9とのブレンドであった。EAO-5は、EAO-4に類似する広げられた分子量分布、0.885g/ccの密度、および2のメルトインデックスを有するエチレン/1-ブテンポリマーであった。

30

## 【0103】

高熔融強度成分とともに用いられた時、48.410の「動的複素粘度/タンデルタ」比および0.5のMIを有するEAO-1は、耐ネッキング性を有する組成物を配合するには不十分な流動性(比較例B参照)を有していた。ネッキングは、比較例GおよびHにおいて、EAOの「動的複素粘度/タンデルタ」比が減少し、かつEAOのMIが2に増加したので低減された。しかしながら、「ネッキングによる損失」は、依然として許容しえないほど高いままであった。

【表4】

表4

	重量部	成分	公称流動性	タンデルタ @ 1 rad/s	Piにおける粘度 @ 1 rad/s (Pa·s)	粘度/タンデルタ	幅 @ 20 mil	ネッキングによる 損失
比較例 B	60	EAO-1	0.5 MI	2.60	125680 (12568.0)	48410	12.4	11.6
	40	PP-2 (HMS)	0.4 MFR	1.31	262310 (26231.0)	200638		
比較例 G	60	EAO-4	2.0 MI	2.74	41044 (4104.4)	14980	13.7	10.3
	40	PP-9 (HMS)	0.4 MFR	1.38	239040 (23904.0)	173205		
比較例 H	60	EAO-5	2.0 MI	2.43	42024 (4202.4)	17303	13.6	10.4
	40	PP-9 (HMS)	0.4 MFR	1.38	239040 (23904.0)	173205		
実施例 4	60	EAO-6 (HF)	18 MI	41.16	4033 (403.3)	98	16.5	7.5
	40	PP-9 (HMS)	0.4 MFR	1.38	239040 (23904.0)	173205		

10

20

## 【0104】

高流動性成分に望まれる流動性は、実施例4において、EAO-6とPP-9とをブレンドすることによって達成された。EAO-6は、1ラジアン/秒および190で、低い動的複素粘度および高いタンデルタの両方を有する、0.88g/cc密度のエチレン/1-オクテンコポリマーであった。この組み合わせの結果として、100未満の「動的複素粘度/タンデルタ」比を生じる。実施例4は、比較例Aよりも6インチ幅広く、比較例Bよりも4インチ幅広く、比較例GおよびHよりも3インチ幅広いシートを結果として生じる。

## 【0105】

## 実施例5～11

実施例5～11は本発明を例証する。実施例5および6の組成物は、EAO-7を含有する。これは、0.88g/ccの密度、低～中程度の長鎖枝分かれ、および表5に示されている特性を有するエチレン/1-オクテンコポリマーであった。EAO-7の密度は、実施例1のEAO-3についてのものと同じである。しかしながら、EAO-7は、EAO-3よりも高い分子量および低い枝分かれを有していた。これは、EAO-3のもののほぼ2倍であるEAO-7の動的複素粘度において反映される。メルトフローポリマーについての範囲の上限において動的複素粘度/タンデルタ比を有する同じポリプロピレンを含有する実施例1および6は、高溶融強度ポリマーの動的複素粘度が増加するにつれて、より大きい幅、および低減された「ネッキングによる損失」が達成されることを証明している。高い動的複素粘度を有する同じEAOを含有する実施例5および6は、高いメルトフローポリマーの「動的複素粘度/タンデルタ」比が減少するにつれて、より大きい幅、およびより低い「ネッキングによる損失」が達成されることを証明している。

30

40

【表5】

表5

	重量部	成分	公称流動性	タンデルタ @ 1 rad/s	Pにおける粘度 @ 1 rad/s (Pa·s)	粘度/タン デルタ	幅 @ 20 mil	ネッキング による 損失
実施例 5	60	EAO-7 (HMS)	< 0.5 MI	1.78	367940 (36794.0)	207022	17.3	6.7
	40	PP-8 (HF)	35 MFR	14.82	6911 (691.1)	466		
実施例 6	60	EAO-7 (HMS)	< 0.5 MI	1.78	367940 (36794.0)	207022	16.5	7.5
	40	PP-6 (HF)	25 MFR	4.94	11924 (1192.4)	2413		
実施例 1	60	EAO-3 (HMS)	< 0.5 MI	1.24	189030 (18903.0)	152701	15.8	8.3
	40	PP-6 (HF)	25 MFR	4.94	11924 (1192.4)	2413		
実施例 7	60	EAO-8 (HMS)	< 0.5 MI	1.50	242010 (24201.0)	161406	17.4	6.6
	40	PP-8 (HF)	35 MFR	14.82	6911 (691.1)	466		
実施例 8	60	EAO-8 (HMS)	< 0.5 MI	1.50	242010 (24201.0)	161406	17.0	7.0
	40	PP-10 (HF)	35 MFR	12.42	6837 (683.7)	551		
実施例 9	60	EAO-3 (HMS)	< 0.5 MI	1.24	189030 (18903.0)	152701	16.0	8.1
	40	EAO-9 (HF)	30 MI	59.91	2259 (225.9)	38		
実施例 10	65	EAO-2 (HMS)	< 0.5 MI	1.20	186020 (18602.0)	154520	15.8	8.2
	35	PP-8 (HF)	35 MFR	14.82	6911 (691.1)	466		
実施例 11	70	EAO-2 (HMS)	< 0.5 MI	1.20	186020 (18602.0)	154520	14.8	9.2
	30	PP-8 (HF)	35 MFR	14.82	6911 (691.1)	466		

## 【0106】

実施例7および8の組成物は、EAO-8、すなわち1立方センチメートルあたり0.87グラムの密度を有する高分子量(48ムーニー)エチレン/1-ブテンコポリマーを含有していた。これら2つの実施例についての高流動性成分は、それぞれPP-8およびPP-10であった。これらの各々は、35MFRランダムプロピレンコポリマーである。実施例7および8における大多数の成分の比較的低い密度および結晶度のために、これらの組成物は、実際の屋根葺き材用途において、頑丈なヒートシーミングを保証する。

## 【0107】

実施例9の組成物は、高溶融強度および高流動性成分の両方のために、エチレンアルファオレフィンを有していた。このような系は、ランダムコポリマーであれ、耐衝撃性(ヘテロ相)コポリマーであれ、ポリプロピレンまたはエチレンプロピレンコポリマーを含有するもののどれよりもはるかに低いモジュラスを有していた。

## 【0108】

実施例10および11の組成物は、高流動性成分のレベルを減少させる効果を示してい

10

20

30

40

50

る。60 : 40 比における同等の例は、前に記載した実施例 3 である。

---

フロントページの続き

(72)発明者 ヘック, ヘンリー, ジー.

アメリカ合衆国 テキサス州 77566, レイク ジャクソン, ハックルベリー 423

審査官 久保 道弘

(56)参考文献 特開平09-188788(JP, A)

特開平10-158411(JP, A)

特開2005-139212(JP, A)

特表2002-521546(JP, A)

特開昭59-213746(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C08L 1/00 - 101/14

B29C 47/14