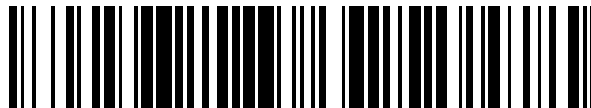


19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 398 654**

51 Int. Cl.:

C08L 23/10 (2006.01)

C08F 297/08 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **16.09.2010 E 10177133 (5)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **31.10.2012 EP 2431416**

54 Título: **Material polímero rígido y de alto flujo con buenas propiedades de transparencia e impacto**

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:
20.03.2013

73 Titular/es:

**BOREALIS AG (100.0%)
IZD Tower Wagramerstraße 17-19
1220 Vienna, AT**

72 Inventor/es:

**KOCK, CORNELIA;
GREIN, CHRISTELLE y
PRADES, FLORAN**

74 Agente/Representante:

MIR PLAJA, Mireia

ES 2 398 654 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín europeo de patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

Material polímero rígido y de alto flujo con buenas propiedades de transparencia e impacto

5 **[0001]** La presente invención está dirigida a un nuevo sistema de polipropileno heterofásico que presenta un buen equilibrio entre las propiedades de rigidez y de resistencia al impacto a un bajo nivel de turbidez, así como a su uso para la fabricación de artículos moldeados por inyección.

10 **[0002]** Son perfectamente conocidos en la técnica copolímeros de propileno heterofásico. Tales copolímeros de propileno heterofásico comprenden una matriz que es un homopolímero de propileno o un copolímero de propileno aleatorio en el cual está dispersado un copolímero elastomérico. Así, la matriz de polipropileno contiene inclusiones (finamente) dispersadas que no son parte de la matriz y dichas inclusiones contienen el copolímero elastomérico. El vocablo "inclusión" indica que la matriz y la inclusión forman fases distintas dentro del copolímero de propileno heterofásico, siendo dichas inclusiones por ejemplo visibles mediante microscopía de alta resolución, tal como
15 microscopía electrónica o microscopía de fuerza de barrido.

[0003] Una aplicación de los copolímeros de propileno heterofásico es la de su uso como material de envasado. Constituye un reto el desarrollo de copolímeros de propileno heterofásico rígidos y de alto flujo que sean adecuados para aplicaciones en forma de material transparente de pared delgada para el envasado y que presenten una alta
20 resistencia al impacto a bajas temperaturas (como se requiere para el envasado de helados). El problema es que al mejorarse una de estas características relevantes, las otras son influenciadas negativamente. Por ejemplo, la buena transparencia requiere que las partículas dispersadas en la matriz sean lo suficientemente pequeñas (típicamente con diámetros < 400 nm) como para que no dispersen la luz. Sin embargo, las pequeñas partículas son perjudiciales para la resistencia al impacto a bajas temperaturas. Otra manera de obtener transparencia es la de adaptar los índices refractivos de la matriz y de la fase dispersada mediante adición de PE. Asimismo puede también ser influenciado
25 negativamente el comportamiento en materia del índice de fusión.

[0004] En consecuencia, el objeto de la presente invención es el de encontrar una composición de polipropileno que sea adecuada como material transparente de pared delgada para el envasado. Por consiguiente es necesario desarrollar una composición de polipropileno de alto flujo que sea rígida y transparente y que además presente una buena
30 resistencia al impacto a bajas temperaturas.

[0005] El descubrimiento de la presente invención el de que se ha hallado y se aporta un copolímero de propileno heterofásico con un índice de fusión bastante alto, comprendiendo dicho sistema, además de una matriz de polipropileno cristalino y de una fase de copolímero de propileno elastomérico, dos polietilenos que se diferencian en cuanto a la densidad y al índice de fusión.
35

[0006] En consecuencia, la presente invención está dirigida a una composición de polipropileno que tiene un índice de fusión MFR₂ (a 230°C) según medición efectuada de acuerdo con lo indicado en la norma ISO 1133 de un valor igual o superior a 15 g/10 min. y que comprende
40 (a) una matriz de polipropileno cristalino (M-PP)
(b) una fase de copolímero de propileno elastomérico (E) que tiene
(I) un contenido de propileno situado dentro de la gama de valores que va de un 40 a un 80% en peso, y
(II) una viscosidad intrínseca (IV) medida según la norma ISO 1628-1 (a 135°C en decalina) situada dentro de la gama
45 de valores que va desde más de 0,7 hasta un valor inferior o igual a 2,5 dl/g,
(c) un primer polietileno (PE1) que tiene
(I) una densidad medida según la norma ISO 1183-187 situada dentro de la gama de valores que va desde 905 hasta 925 kg/m³, y
(II) un índice de fusión MFR₂ (a 190°C) medido según la norma ISO 1133 igual o inferior a 30 g/10 min.,
50 (d) un segundo polietileno (PE2) que tiene
(I) una densidad medida según la norma ISO 1183-1187 de más de 915 kg/m³, y
(II) un índice de fusión MFR₂ (a 190°C) medido según la norma ISO 1133 igual o superior a 30 g/10 min.

[0007] Se ha descubierto sorprendentemente que una composición de polipropileno de este tipo tiene una excelente transparencia, una alta rigidez, una buena resistencia al impacto a bajas temperaturas y una buena fluidez en comparación con los productos que son conocidos en la técnica.
55

[0008] A continuación se describe más en detalle la invención.

60 **[0009]** La presente invención es preferiblemente una composición de propileno que es un sistema heterofásico. La expresión "heterofásico" indica que está (finamente) dispersada en una matriz una fase elastomérica. En otras palabras, la fase elastomérica forma inclusiones en la matriz. Así, la matriz contiene inclusiones (finamente) dispersadas que no son parte de la matriz, y dichas inclusiones contienen el material elastomérico. El vocablo "inclusión" según esta invención preferiblemente indicará que la matriz y la inclusión forman fases distintas dentro del copolímero de propileno

heterofásico, siendo dichas inclusiones por ejemplo visibles mediante microscopía de alta resolución, tal como microscopía electrónica o microscopía de fuerza de barrido.

[0010] En consecuencia, la matriz de polipropileno cristalino (M-PP) constituye la matriz de la composición de propileno que es un sistema heterofásico. Mientras que la matriz de dicho sistema consta tan sólo de la matriz de polipropileno cristalino (M-PP), la fase dispersa consta de la fase de copolímero de propileno elastomérico (E), del primer polietileno (PE1) y del segundo polietileno (PE2), preferiblemente en forma de partículas que constan de un “núcleo con revestimiento”, formando la fase de copolímero de propileno elastomérico (E) el “revestimiento” amorfo y formando el primer polietileno (PE1) y/o el segundo polietileno (PE2) el “núcleo” cristalino de dichas partículas.

[0011] La composición de propileno inventiva, es decir, la composición de propileno que es un sistema heterofásico, puede contener adicionales aditivos, tales como agentes α -nucleantes (véase lo indicado más adelante), pero no otro polímero en una cantidad de más de un 7,0% en peso, y más preferiblemente de más de un 6,0% en peso, tal como de más de un 5,5% en peso, sobre la base de la composición de propileno total. Un polímero adicional que puede estar presente en cantidades así de bajas es un polietileno cristalino insoluble en xileno frío que es un subproducto de reacción obtenido mediante la preparación del copolímero de propileno heterofásico (véase en detalle lo indicado más adelante). En consecuencia, se aprecia en particular que la presente composición de polipropileno contenga tan sólo los componentes polímeros que se han indicado anteriormente y opcionalmente polietileno cristalino en cantidades como las mencionadas en este párrafo.

[0012] El índice de fusión depende principalmente del peso molecular medio. Esto es debido al hecho de que las moléculas largas le dan al material una menor tendencia a fluir en comparación con las moléculas cortas. Un incremento del peso molecular significa un decremento del valor del índice de fusión (MFR). El índice de fusión (MFR) se mide en g/10 min. del polímero que son descargados a través de una matriz definida bajo especificadas condiciones de temperatura y presión y constituye la medida de la viscosidad del polímero, la cual a su vez y para cada tipo de polímero se ve principalmente influenciada por su peso molecular, pero también por su grado de ramificación. El índice de fusión medido bajo una carga de 2,16 kg a 230°C (ISO 1133) se indica con las siglas MFR₂ (a 230°C). En consecuencia, se prefiere que la composición de polipropileno inventiva tenga un índice de fusión MFR₂ (a 230°C) igual o superior a 15 g/10 min., más preferiblemente de al menos 20 g/10 min., aún más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde 15 hasta 100 g/10 min., todavía más preferiblemente de 20 a 80 g/10 min., y todavía aún más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde 30 hasta 70 g/10 min.

[0013] Preferiblemente la composición de polipropileno total tiene una fracción soluble en frío en xileno (XCS) medida según la norma ISO 6427 situada dentro de la gama de valores que va desde un 15 hasta un 30% en peso, y más preferiblemente situada dentro de la gama de valores que va desde un 18 hasta un 25% en peso.

[0014] Además no deberá ser demasiado alto el contenido de solubles en hexano. En consecuencia se aprecia que la composición de polipropileno tenga un contenido de solubles en hexano medido según la norma FDA, parte 177.1520, de menos de un 5,5% en peso, y más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde un 3,0 hasta un 5,0% en peso.

[0015] La composición de polipropileno inventiva está además caracterizada por unas buenas propiedades ópticas. En consecuencia, la composición de polipropileno tiene preferiblemente

(a) una turbidez medida según la norma ASTM D1003 (muestra de 1,0 mm) igual o inferior a un 45%, más preferiblemente igual o inferior a un 40%, y aún más preferiblemente situada dentro de la gama de valores que va desde un 15 hasta un 40%, y/o

(b) una turbidez medida según la norma ASTM D1003 (muestra de 0,5 mm) igual o inferior a un 25%, más preferiblemente igual o inferior a un 20%, y aún más preferiblemente situada dentro de la gama de valores que va desde un 5 hasta un 25%.

[0016] Como alternativa o bien adicionalmente, la composición de polipropileno tiene preferiblemente

(a) una transparencia medida según la norma ASTM D1003 (muestra de 1,0 mm) igual o superior a un 70%, más preferiblemente igual o superior a un 80%, y aún más preferiblemente situada dentro de la gama de valores que va desde un 78 hasta un 95%,

y/o

(b) una transparencia medida según la norma ASTM D1003 (muestra de 0,5 mm) igual o superior a un 75%, más preferiblemente igual o superior a un 85%, y aún más preferiblemente situada dentro de la gama de valores que va desde un 85 hasta un 98%.

[0017] La composición de propileno inventiva está además caracterizada por una alta resistencia al impacto. En consecuencia, la composición de propileno inventiva tiene

(a) una resistencia al impacto con probeta entallada según Charpy determinada según la norma ISO 179 / 1eA a 23°C de un valor igual o superior al de 5,0 kJ/m², más preferiblemente de un valor igual o superior al de 6,0 kJ/m², y aún más preferiblemente situada dentro de la gama de valores que va desde 5,5 hasta 10,0 kJ/m²,

y/o

(a) una resistencia al impacto con probeta entallada según Charpy determinada según la norma ISO 179 / 1eA a -20°C de un valor igual o superior al de 1,3 kJ/m², más preferiblemente de un valor igual o superior al de 1,6 kJ/m², y aún más preferiblemente situada dentro de la gama de valores que va desde 1,5 hasta 5,0 kJ/m².

[0018] Adicionalmente la composición de polipropileno inventiva es bastante rígida, es decir que tiene un módulo de elasticidad a la tracción medido según la norma ISO 527-3 de al menos 1000 MPa, más preferiblemente de al menos 1100 MPa, aún más preferiblemente de al menos 1200 MPa, y todavía más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde 1100 hasta 1800 MPa.

[0019] Se describen a continuación más en detalle los componentes individuales de la presente invención.

[0020] Como se ha indicado anteriormente, la presente invención es un sistema heterofásico. El sistema heterofásico ha sido preferiblemente obtenido mezclando los dos polietilenos (PE1) y (PE2) con un copolímero de propileno heterofásico (HECO) que comprende la matriz de polipropileno cristalino (M-PP) y la fase de copolímero de propileno elastomérico (E). En consecuencia se define con mayor precisión a continuación el copolímero de propileno heterofásico (HECO) sin los dos polietilenos (PE1) y (PE2).

[0021] El copolímero de propileno heterofásico (HECO) comprende la matriz de polipropileno cristalino (M-PP) que constituye preferiblemente la matriz del copolímero de propileno heterofásico (HECO) y dispersada en la misma la fase de copolímero de propileno elastomérico (E). Preferiblemente la matriz de polipropileno cristalino (M-PP) y la fase de copolímero de propileno elastomérico (E) son los únicos componentes polímeros del copolímero de propileno heterofásico (HECO). Pueden estar adicionalmente presentes en cantidades de no más de un 7,0% en peso tan sólo pequeñas cantidades de polietileno cristalino como se ha indicado anteriormente.

[0022] Preferiblemente el copolímero de propileno heterofásico (HECO) tiene un índice de fusión MFR₂ (a 230°C) medido según la norma ISO 1133 de un valor igual o superior al de 20 g/10 min., más preferiblemente de un valor igual o superior al de 25 g/10 min., aún más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde 20 hasta 100 g/10 min., todavía más preferiblemente de 20 a 80 g/10 min., y aún más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde 30 hasta 70 g/10 min.

[0023] Preferiblemente se desea que el copolímero de propileno heterofásico (HECO) sea termomecánicamente estable. En consecuencia se aprecia que el copolímero de propileno heterofásico (HECO) tenga una temperatura de fusión de al menos 155°C, más preferiblemente de al menos 158°C, y aún más preferiblemente situada dentro de la gama de valores que va desde 158 hasta 165°C.

[0024] Preferiblemente el contenido de propileno en el copolímero de propileno heterofásico (HECO) es de un 75,0 a un 95,0% en peso, y aún más preferiblemente de un 82,0 a un 92,0% en peso, sobre la base del copolímero de propileno heterofásico total (HECO), más preferiblemente sobre la base de la cantidad de los componentes polímeros del copolímero de propileno heterofásico (HECO), y aún más preferiblemente sobre la base de la cantidad de la matriz de polipropileno cristalino (M-PP) y de la fase de copolímero de propileno elastomérico (E) juntamente. La parte restante constituye los comonomeros como los que se han definido para la matriz polipropileno cristalino (M-PP) y la fase de copolímero de propileno elastomérico (E), respectivamente, y preferiblemente etileno.

[0025] El contenido de solubles en frío en xileno (XCS) medido según la norma ISO 6427 (a 23°C) del copolímero de propileno heterofásico (HECO) está preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde un 12 hasta un 30% en peso, y más preferiblemente está situado dentro de la gama de valores que va desde un 15 hasta un 25% en peso.

[0026] Preferiblemente la matriz de polipropileno cristalino (M-PP) tiene un índice de fusión MFR₂ (a 230°C) medido según la norma ISO 1133 de un valor igual o superior al de 30 g/10 min., más preferiblemente de un valor igual o superior al de 40 g/10 min., todavía más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde 30 hasta 100 g/10 min., aún más preferiblemente de 40 a 90 g/10 min., y aún más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde 40 hasta 80 g/10 min.

[0027] Además se desea que la matriz de polipropileno cristalino (M-PP) sea termomecánicamente estable. En consecuencia se aprecia que la matriz de polipropileno cristalino (M-PP) tenga una temperatura de fusión de al menos 145°C, más preferiblemente de al menos 155°C, y aún más preferiblemente situada dentro de la gama de valores que va desde 158 hasta 165°C.

[0028] El contenido de solubles en frío en xileno (XCS) medido según la norma ISO 6427 (a 23°C) de la matriz de polipropileno cristalino (M-PP) es preferiblemente igual o inferior a un 4,0% en peso, y más preferiblemente igual o inferior a un 3,5% en peso, y aún más preferiblemente está situado dentro de la gama de valores que va desde un 0,5 hasta un 4,0% en peso, tal como situado dentro de la gama de valores que va desde un 0,5 hasta un 3,5% en peso.

[0029] La matriz de polipropileno cristalino (M-PP) es preferiblemente un homopolímero de propileno (H-PP), un copolímero de propileno aleatorio (R-PP), o bien una mezcla de un homopolímero de propileno (H-PP) y un copolímero de propileno aleatorio (R-PP), prefiriéndose esto último.

5

[0030] En consecuencia se aprecia que la matriz de polipropileno cristalino (M-PP) tenga un contenido de comonómeros de un valor igual o inferior al de un 4% en peso, más preferiblemente de un valor igual o inferior al de un 3,0% en peso, aún más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde el de más de un 0,3 hasta el igual o inferior al de un 4,0% en peso, y aún más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde el de más de un 0,3 hasta el igual o inferior al de un 2,0% en peso.

10

[0031] La expresión "homopolímero de propileno" que se usa en la presente invención hace referencia a un polipropileno que consta en sustancia, es decir, en más de un 99,7% en peso, y aún más preferiblemente en al menos un 99,8% en peso, de unidades de propileno. En una realización preferida son detectables en el homopolímero de propileno tan sólo unidades de propileno. El contenido de comonómeros puede determinarse con espectroscopia de resonancia magnética nuclear de ^{13}C , como se describe más adelante en los ejemplos.

15

[0032] En caso de que la matriz de polipropileno cristalino (M-PP) sea un copolímero de propileno aleatorio (R-PP), se aprecia que el copolímero de propileno aleatorio (R-PP) comprenda monómeros copolimerizables con propileno, como por ejemplo comonómeros tales como etileno y/o α -olefinas de C_4 a C_{12} , y en particular etileno y/o α -olefinas de C_4 a C_8 , como p. ej. 1-buteno y/o 1-hexeno. Preferiblemente el copolímero de propileno aleatorio (R-PP) según esta invención comprende, y especialmente consta de, monómeros copolimerizables con propileno seleccionados de entre los miembros del grupo que consta de etileno, 1-buteno y 1-hexeno. Más específicamente el copolímero de propileno aleatorio (R-PP) de esta invención comprende, aparte de propileno, unidades derivables de etileno y/o 1-buteno. En una realización preferida el copolímero de propileno aleatorio (R-PP) comprende unidades derivables de etileno y propileno solamente.

20

25

[0033] El vocablo "aleatorio" indica que los comonómeros de los copolímeros de propileno aleatorio como los que se definen en la presente invención están distribuidos aleatoriamente dentro de los copolímeros de propileno. Al vocablo "aleatorio" se le da el significado que le da la IUPAC (IUPAC = Unión Internacional de la Química Pura y Aplicada) (Glosario de términos básicos en la ciencia de los polímeros; recomendaciones de la IUPAC de 1996).

30

[0034] En consecuencia, en una realización preferida la matriz de polipropileno cristalino (M-PP) es un copolímero de propileno aleatorio (R-PP) con un contenido de comonómeros situado dentro de la gama de valores que va desde el de más de un 0,3 hasta el igual o inferior al de un 4,0% en peso, y más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde el de más de un 0,3 hasta el igual o inferior al de un 2,0% en peso.

35

[0035] Aún más preferiblemente, la matriz de polipropileno cristalino (M-PP) comprende como componentes polímeros al menos dos fracciones de polipropileno (PP1) y (PP2), más preferiblemente comprende como componentes polímeros dos fracciones de polipropileno (PP1) y (PP2), y aún más preferiblemente comprende como componentes polímeros dos fracciones de polipropileno (PP1) y (PP2) solamente.

40

[0036] Las dos fracciones de polipropileno (PP1) y (PP2) pueden diferenciarse en cuanto al índice de fusión MFR_2 (a 230°C) y/o en cuanto al contenido de comonómeros y/o al tipo de comonómeros. Preferiblemente las dos fracciones de polipropileno (PP1) y (PP2) se diferencian en cuanto al índice de fusión MFR_2 (a 230°C) y/o al contenido de comonómeros.

45

[0037] En consecuencia, la primera fracción de polipropileno (PP1) y la segunda fracción de polipropileno (PP2) pueden ser un homopolímero de propileno o un copolímero de propileno aleatorio. Así la matriz de polipropileno (M-PP) comprende, y preferiblemente comprende al menos en un 90% en peso, y más preferiblemente comprende al menos en un 98% en peso, tal como consta de

50

(a) una primera fracción de polipropileno (PP1) que es un primer homopolímero de propileno (H-PP1) o un primer copolímero de propileno aleatorio (R-PP1), y preferiblemente un primer homopolímero de propileno (H-PP1), y

(b) una segunda fracción de polipropileno (PP2) que es un segundo homopolímero de propileno (H-PP2) o un segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2), y preferiblemente un segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2).

55

[0038] Preferiblemente la relación en peso [(PP1)/(PP2)] entre la primera fracción de polipropileno (PP1) y la segunda fracción de polipropileno (PP2) es de 70/30 a 30/70, y más preferiblemente de 60/40 a 40/60.

[0039] Como se ha indicado anteriormente, la primera fracción de polipropileno (PP1) es una primera fracción de copolímero de propileno aleatorio (R-PP1) o una primera fracción de homopolímero de propileno (H-PP1), siendo preferida ésta última.

60

- 5 **[0040]** El contenido de solubles en frío en xileno (XCS) medido según la norma ISO 6427 (a 23°C) de la primera fracción de polipropileno (PP1) es preferiblemente igual o inferior a un 3,0% en peso, y más preferiblemente igual o inferior a un 2,5% en peso, y aún más preferiblemente está situado dentro de la gama de valores que va desde un 0,5 hasta un 3,0% en peso, tal como dentro de la gama de valores que va desde un 0,5 hasta un 2,0% en peso.
- 10 **[0041]** Preferiblemente la primera fracción de polipropileno (PP1) tiene un índice de fusión MFR_2 (a 230°C) medido según la norma ISO 1133 de un valor igual o superior al de 30 g/10 min., más preferiblemente de un valor igual o superior al de 40 g/10 min., aún más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde 30 hasta 150 g/10 min., todavía más preferiblemente de 40 a 120 g/10 min., y aún todavía más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde 50 hasta 100 g/10 min. En una realización el índice de fusión MFR_2 (a 230°C) de la primera fracción de polipropileno (PP1) es más alto que el índice de fusión MFR_2 (a 230°C) de la segunda fracción de polipropileno (PP2).
- 15 **[0042]** Como alternativa o bien adicionalmente, la primera fracción de polipropileno (PP1) tiene un peso molecular medio en peso (Mw) medido mediante cromatografía de permeación en gel (GPC; ISO 16014-4:2003) de un valor igual o inferior al de 280 kg/mol, más preferiblemente de un valor igual o inferior al de 250 kg/mol, aún más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde 120 hasta 180 kg/mol, y todavía más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde 150 hasta 250 kg/mol.
- 20 **[0043]** En caso de que la primera fracción de polipropileno (PP1) sea un primer copolímero de propileno aleatorio (R-PP1), se aprecia que el primer copolímero de propileno aleatorio (R-PP1) comprenda monómeros copomerizables con propileno, como por ejemplo comonómeros tales como etileno y/o α -olefinas de C_4 a C_{12} , y en particular etileno y/o α -olefinas de C_4 a C_8 , tal como p. ej. 1-buteno y/o 1-hexeno. Preferiblemente el primer copolímero de propileno aleatorio (R-PP1) según esta invención comprende, y especialmente consta de, monómeros copomerizables con propileno seleccionados de entre los miembros del grupo que consta de etileno, 1-buteno y 1-hexeno. Más específicamente el primer copolímero de propileno aleatorio (R-PP1) de esta invención comprende, aparte de unidades de propileno, unidades derivables de etileno y/o 1-buteno. En una realización preferida el primer copolímero de propileno aleatorio (R-PP1) comprende unidades derivables de etileno y propileno solamente.
- 25 **[0044]** En una realización la primera fracción de polipropileno (PP1) es un primer copolímero de propileno aleatorio (R-PP1) con un contenido de comonómeros situado dentro de la gama de valores que va desde el de más de un 0,3 hasta el igual o inferior al de un 5,0% en peso, y más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde el de más de un 0,3 hasta el igual o inferior a un 3,5% en peso. Sin embargo, como se ha indicado anteriormente, en una realización preferida la primera fracción de polipropileno (PP1) es un primer homopolímero de propileno (H-PP1).
- 30 **[0045]** Como se ha indicado anteriormente, la segunda fracción de polipropileno (PP2) es una segunda fracción de homopolímero de propileno (H-PP2) o una segunda fracción de copolímero de propileno aleatorio (R-PP2), siendo preferida ésta última.
- 35 **[0046]** El contenido de solubles en frío en xileno (XCS) medido según la norma ISO 6427 (a 23°C) de la segunda fracción de polipropileno (PP2) es preferiblemente de un valor igual o inferior al de un 5,0% en peso, más preferiblemente igual o inferior al de un 4,0% en peso, y todavía más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde un 0,5 hasta 4,5% en peso, tal como situado dentro de la gama de valores que va desde un 1,5 hasta un 4,0% en peso. En una realización el contenido de solubles en frío en xileno (XCS) medido según la norma ISO 6427 (a 23°C) de la segunda fracción de polipropileno (PP2) es más alto que el contenido de solubles en frío en xileno (XCS) medido según la norma ISO 6427 (a 23°C) de la primera fracción de polipropileno (PP1).
- 40 **[0047]** Preferiblemente la segunda fracción de polipropileno (PP2) tiene un índice de fusión MFR_2 (a 230°C) medido según la norma ISO 1133 de más de 30 g/10 min., más preferiblemente de un valor igual o superior al de 35 g/10 min., y aún más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde 30 hasta 100 g/10 min., todavía más preferiblemente de 35 a 80 g/10 min., y aún todavía más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde 40 hasta 75 g/10 min.
- 45 **[0048]** En caso de que la segunda fracción de polipropileno (PP2) sea un segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2), se aprecia que el segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2) comprenda monómeros copolimerizables con propileno, como por ejemplo comonómeros tales como etileno y/o α -olefinas de C_4 a C_{12} , y en particular etileno y/o α -olefinas de C_4 a C_8 , como p. ej. 1-buteno y/o 1-hexeno. Preferiblemente el segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2) según esta invención comprende, y especialmente consta de, monómeros copolimerizables con propileno seleccionados de entre los miembros del grupo que consta de etileno, 1-buteno y 1-hexeno. Más específicamente el segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2) de esta invención comprende, aparte de propileno, unidades derivables de etileno y/o 1-buteno. En una realización preferida el segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2) comprende unidades derivables de etileno y propileno solamente.
- 50 **[0048]** En caso de que la segunda fracción de polipropileno (PP2) sea un segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2), se aprecia que el segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2) comprenda monómeros copolimerizables con propileno, como por ejemplo comonómeros tales como etileno y/o α -olefinas de C_4 a C_{12} , y en particular etileno y/o α -olefinas de C_4 a C_8 , como p. ej. 1-buteno y/o 1-hexeno. Preferiblemente el segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2) según esta invención comprende, y especialmente consta de, monómeros copolimerizables con propileno seleccionados de entre los miembros del grupo que consta de etileno, 1-buteno y 1-hexeno. Más específicamente el segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2) de esta invención comprende, aparte de propileno, unidades derivables de etileno y/o 1-buteno. En una realización preferida el segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2) comprende unidades derivables de etileno y propileno solamente.
- 55 **[0048]** En caso de que la segunda fracción de polipropileno (PP2) sea un segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2), se aprecia que el segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2) comprenda monómeros copolimerizables con propileno, como por ejemplo comonómeros tales como etileno y/o α -olefinas de C_4 a C_{12} , y en particular etileno y/o α -olefinas de C_4 a C_8 , como p. ej. 1-buteno y/o 1-hexeno. Preferiblemente el segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2) según esta invención comprende, y especialmente consta de, monómeros copolimerizables con propileno seleccionados de entre los miembros del grupo que consta de etileno, 1-buteno y 1-hexeno. Más específicamente el segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2) de esta invención comprende, aparte de propileno, unidades derivables de etileno y/o 1-buteno. En una realización preferida el segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2) comprende unidades derivables de etileno y propileno solamente.
- 60 **[0048]** En caso de que la segunda fracción de polipropileno (PP2) sea un segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2), se aprecia que el segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2) comprenda monómeros copolimerizables con propileno, como por ejemplo comonómeros tales como etileno y/o α -olefinas de C_4 a C_{12} , y en particular etileno y/o α -olefinas de C_4 a C_8 , como p. ej. 1-buteno y/o 1-hexeno. Preferiblemente el segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2) según esta invención comprende, y especialmente consta de, monómeros copolimerizables con propileno seleccionados de entre los miembros del grupo que consta de etileno, 1-buteno y 1-hexeno. Más específicamente el segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2) de esta invención comprende, aparte de propileno, unidades derivables de etileno y/o 1-buteno. En una realización preferida el segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2) comprende unidades derivables de etileno y propileno solamente.

- 5 **[0049]** En consecuencia, en una realización preferida la segunda fracción de polipropileno (PP2) es un segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2) con un contenido de comonómeros situado dentro de la gama de valores que va desde el de más de un 0,3 hasta el igual o inferior al de un 5,0% en peso, y más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde el de más de un 0,3 hasta el igual o inferior al de un 3,5% en peso.
- 10 **[0050]** Otro componente esencial del copolímero de propileno heterofásico (HECO) es su fase de copolímero elastomérico (E).
- 15 **[0051]** La fase de copolímero de propileno elastomérico (E) preferiblemente comprende monómeros copolimerizables con propileno, tal como por ejemplo comonómeros tales como etileno y/o α -olefinas de C₄ a C₁₂, y en particular etileno y/o α -olefinas de C₄ a C₈, como p. ej. 1-buteno y/o 1-hexeno. Preferiblemente la fase de copolímero de propileno elastomérico (E) comprende, y especialmente consta de, monómeros copolimerizables con propileno seleccionados de entre los miembros del grupo que consta de etileno, 1-buteno y 1-hexeno. Más específicamente la fase de copolímero de propileno elastomérico (E) comprende, aparte de propileno, unidades derivables de etileno y/o 1-buteno. Así, en una realización especialmente preferida la fase de copolímero de propileno elastomérico (E) comprende unidades derivables de etileno y propileno solamente.
- 20 **[0052]** Las propiedades de la fase de copolímero de propileno elastomérico (E) principalmente influyen al contenido de solubles en frío en xileno (XCS), así como a la fase amorfa (AM) del copolímero de propileno heterofásico (HECO) final. Así, según la presente invención la fase amorfa (AM) de la fracción soluble en frío en xileno (XCS) del copolímero de propileno heterofásico (HECO) es considerada como la fase de copolímero de propileno elastomérico (E) del copolímero de propileno heterofásico (HECO).
- 25 **[0053]** La cantidad de fase de copolímero de propileno elastomérico (E), es decir, de fase amorfa (AM) de la fracción soluble en frío en xileno (XCS) del copolímero de propileno heterofásico (HECO), dentro del copolímero de propileno heterofásico (HECO), es de un 10 a un 30% en peso, y más preferiblemente de un 15 a un 25% en peso.
- 30 **[0054]** En consecuencia, un importante requisito de la presente invención es el de que la fase de copolímero de propileno elastomérico (E) tenga un peso molecular medio en peso bastante bajo. Los bajos valores de viscosidad intrínseca (IV) reflejan un bajo peso molecular medio en peso. Así, se aprecia que la fase de copolímero de propileno elastomérico (E), es decir, la fase amorfa (AM) de la fracción soluble en frío en xileno (XCS) del copolímero de propileno heterofásico (HECO), tenga una viscosidad intrínseca (IV) medida según la norma ISO 1628-1 (a 135°C en decalina) de un valor igual o inferior al de 2,5 dl/g, más preferiblemente de un valor de 0,9 a un valor igual o inferior al de 2,5 dl/g, y todavía más preferiblemente situada dentro de la gama de valores que va desde 0,7 hasta 2,0 dl/g.
- 35 **[0055]** El contenido de comonómeros, y preferiblemente el contenido de etileno, dentro de la fase de copolímero de propileno elastomérico (E) es comparativamente de moderado a alto. En consecuencia, en una realización preferida el contenido de comonómeros, y más preferiblemente el contenido de etileno, del copolímero de propileno elastomérico (E), es decir, de la fase amorfa (AM) de la fracción soluble en frío en xileno (XCS) del copolímero de propileno heterofásico (HECO), es de un valor igual o superior al de un 35% en peso, más preferiblemente está situado dentro de la gama de valores que va desde un 35 hasta un 70% en peso, todavía más preferiblemente es de entre un 40 y un 60% en peso, y aún más preferiblemente está situado dentro de la gama de valores que va desde un 40,0 hasta un 55,0% en peso.
- 40 **[0056]** Se prefiere especialmente que la fase de copolímero de propileno elastomérico (E) comprenda, y preferiblemente conste de, un primer copolímero elastomérico (E1) y un segundo copolímero elastomérico (E2), diferenciándose el primer copolímero elastomérico (E1) y el segundo copolímero elastomérico (E2) en su viscosidad intrínseca medida según la norma ISO 1628-1 (a 135°C en decalina) y/o su contenido de comonómeros.
- 45 **[0057]** Preferiblemente la relación en peso [(E1)/(E2)] entre el primer copolímero elastomérico (E1) y el segundo copolímero elastomérico (E2) es de 80/20 a 20/80, y más preferiblemente de 70/30 a 30/70.
- 50 **[0058]** Como se explica en detalle más adelante, el copolímero de propileno heterofásico (HECO) es producido en un proceso de polimerización secuencial que comprende al menos tres reactores, y preferiblemente cuatro reactores, conectados en serie. En consecuencia, en el caso de un sistema de cuatro reactores, en los reactores primero y segundo se produce la matriz de polipropileno cristalino (M-PP), es decir, el primer polipropileno (PP1) y el segundo polipropileno (PP2), mientras que en los reactores tercero y cuarto se obtiene la fase de copolímero de propileno elastomérico (E), es decir, el primer copolímero elastomérico (E1) y el segundo copolímero elastomérico (E2). Así, la viscosidad intrínseca (IV) así como el contenido de comonómeros del copolímero elastomérico ((E1) o (E2)) producido en el último reactor se calculan a partir de la fase amorfa después del cuarto reactor, teniendo en cuenta las propiedades después del tercero. El método exacto está indicado en la parte de los ejemplos.
- 55 **[0059]** El primer copolímero elastomérico (E1) preferiblemente comprende monómeros copolimerizables con propileno, como por ejemplo comonómeros tales como etileno y/o α -olefinas de C₄ a C₁₂, y en particular etileno y/o α -olefinas de
- 60

- C₄ a C₈, como p. ej. 1-buteno y/o 1-hexeno. Preferiblemente el primer copolímero elastomérico (E1) comprende, y especialmente consta de, monómeros copolimerizables con propileno seleccionados de entre los miembros del grupo que consta de etileno, 1-buteno y 1-hexeno. Más específicamente el primer copolímero elastomérico (E1) comprende, aparte de propileno, unidades derivables de etileno y/o 1-buteno. Así, en una realización especialmente preferida el primer copolímero elastomérico (E1) comprende unidades derivables etileno y propileno solamente.
- [0060]** Es comparativamente alto el contenido de comonómeros, y preferiblemente el contenido de etileno, dentro del primer copolímero elastomérico (E1). En consecuencia, en una realización preferida el contenido de comonómeros, y más preferiblemente el contenido de etileno, del primer copolímero elastomérico (E1) es de un valor igual o superior al de un 40% en peso, más preferiblemente está situado dentro de la gama de valores que va desde un 40 hasta un 75% en peso, y todavía más preferiblemente es de entre un 50 y un 70% en peso. En consecuencia, el contenido de propileno del primer copolímero elastomérico (E1) es de menos de un 60% en peso, más preferiblemente está situado dentro de la gama de valores que va desde un 25 hasta un 60% en peso, y todavía más preferiblemente es de entre un 30 y un 50% en peso.
- [0061]** Además, la viscosidad intrínseca (IV) del primer copolímero elastomérico (E1) está situada dentro de la gama de valores que va desde 0,5 hasta 2,5 dl/g, y más preferiblemente está situada dentro de la gama de valores que va desde 0,7 hasta 2,0 dl/g.
- [0062]** Como en el primer copolímero elastomérico (E1), el segundo copolímero elastomérico (E2) preferiblemente comprende monómeros copolimerizables con propileno, como por ejemplo comonómeros tales como etileno y/o α -olefinas de C₄ a C₁₂, y en particular etileno y/o α -olefinas de C₄ a C₈, como p. ej. 1-buteno y/o 1-hexeno. Preferiblemente el segundo copolímero elastomérico (E2) comprende, y especialmente consta de, monómeros copolimerizables con propileno seleccionados de entre los miembros del grupo que consta de etileno, 1-buteno y 1-hexeno. Más específicamente, el segundo copolímero elastomérico (E2) comprende, aparte de propileno, unidades derivables de etileno y/o 1-buteno. Así, en una realización especialmente preferida el segundo copolímero elastomérico (E2) comprende unidades derivables de etileno y propileno solamente.
- [0063]** Se prefiere en particular que el primer copolímero elastomérico (E1) y el segundo copolímero elastomérico (E2) tengan el mismo comonómero.
- [0064]** El contenido de comonómeros, y preferiblemente el contenido de etileno, dentro del segundo copolímero elastomérico (E2) está preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde un 15 hasta un 50% en peso, y más preferiblemente es de entre un 20 y un 40% en peso. En consecuencia, el contenido de propileno del segundo copolímero elastomérico (E2) está preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde un 50 hasta un 85% en peso, y más preferiblemente está situado dentro de la gama de valores que va desde un 60 hasta un 80% en peso. Preferiblemente el contenido de comonómeros, y preferiblemente el contenido de etileno, del segundo copolímero elastomérico (E2) es más bajo en comparación con el contenido de comonómeros, y preferiblemente con el contenido de etileno, del primer copolímero elastomérico (E1).
- [0065]** Además la viscosidad intrínseca (IV) del segundo copolímero elastomérico (E2) está situada dentro de la gama de valores que va desde 1,0 hasta 3,0 dl/g, y más preferiblemente está situada dentro de la gama de valores que va desde 1,0 hasta 2,5 dl/g. Preferiblemente la viscosidad intrínseca (IV) del segundo copolímero elastomérico (E2) es más alta en comparación con la viscosidad intrínseca (IV) del primer copolímero elastomérico (E1).
- [0066]** Además del copolímero de propileno heterofásico (HECO), la presente invención debe comprender dos polietilenos distintos, es decir, un primer polietileno (PE1) y un segundo polietileno (PE2), en donde el segundo polietileno (PE2) tiene una densidad más alta que la del primer polietileno (PE1).
- [0067]** En consecuencia, el primer polietileno (PE1) tiene una densidad medida según la norma ISO 1183-187 situada dentro de la gama de valores que va desde 905 hasta 925 kg/m³, y más preferiblemente situada dentro de la gama de valores que va desde 910 hasta 920 kg/m³. Así se aprecia que el primer polietileno sea un polietileno de baja densidad (LDPE).
- [0068]** Una adicional característica distintiva del primer polietileno (PE1) es su índice de fusión. En consecuencia se aprecia que el primer polietileno (PE1) tenga un índice de fusión MFR₂ (a 190°C) de menos de 30 g/10 min., más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde 8 hasta 30 g/10 min., y aún más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde 10 hasta 20 g/10 min.
- [0069]** El primer polietileno (PE1) preferiblemente está caracterizado por una distribución del peso molecular bastante amplia. Así se prefiere que la distribución del peso molecular (MWD) del primer polietileno (PE1) según determinación efectuada mediante cromatografía de permeación en gel (GPC) sea de al menos 10, y más preferiblemente se prefiere que la misma sea de al menos 20, y aún más preferiblemente se prefiere que la misma esté situada dentro de la gama

de valores que va desde 10 hasta 45, y todavía aún preferiblemente se prefiere que la misma esté situada dentro de la gama de valores que va desde 20 hasta 40.

5 **[0070]** El peso molecular medio en peso (M_w) del primer polietileno (PE1) es preferiblemente de un valor igual o superior a 100 kg/mol, más preferiblemente está situado dentro de la gama de valores que va desde 100 hasta 1000 kg/mol, y aún más preferiblemente está situado dentro de la gama de valores que va desde 300 hasta 800 kg/mol.

10 **[0071]** Adicionalmente se aprecia que el primer polietileno (PE1) tenga una temperatura de fusión igual o inferior a 120°C, y más preferiblemente se aprecia que la misma esté situada dentro de la gama de valores que va desde 90 hasta 115°C.

15 **[0072]** En una realización preferida el primer polietileno (PE1), es decir el polietileno de baja densidad (LDPE), es un copolímero de etileno o un homopolímero de etileno, siendo preferido esto último. En consecuencia, el contenido de etileno del primer polietileno (PE1) es de al menos un 80% en peso, y más preferiblemente de al menos un 90% en peso.

20 **[0073]** La expresión “homopolímero de etileno” que se usa en la presente invención se refiere a un polietileno que consta sustancialmente, es decir, en más de un 99,7% en peso, y aún más preferiblemente en al menos un 99,8% en peso, de unidades de etileno. En una realización preferida tan sólo son detectables unidades de etileno en el homopolímero de etileno. El contenido de comonomeros puede determinarse con espectroscopia de resonancia magnética nuclear de ^{13}C , como se describe más adelante en los ejemplos.

25 **[0074]** En el caso en el que el primer polietileno (PE1), es decir, el polietileno de baja densidad (LDPE), es un copolímero de etileno, se prefiere que el mismo contenga como mayor parte unidades derivables de etileno. En consecuencia, se aprecia que el primer polietileno (PE1) que es un copolímero de etileno comprenda al menos un 80% en peso de unidades derivables de etileno, y más preferiblemente al menos un 90% en peso de unidades derivadas de etileno. Así se aprecia que el primer polietileno (PE1) que es un copolímero de etileno comprenda una cantidad de un 80 a un 99,5% en peso, y más preferiblemente de un 90 a un 99% en peso, de unidades derivables de etileno. Los comonomeros presentes en un primer polietileno (PE1) de este tipo son α -olefinas de C_4 a C_{20} , tales como 1-buteno, 1-hexeno y 1-octeno, siendo éste último especialmente preferido, o dienos, y preferiblemente α,ω -alcadienos no conjugados, es decir, α,ω -alcadienos de C_5 a C_{20} , tales como 1,7-octadieno. En consecuencia, en una realización específica el primer polietileno (PE1) que es un copolímero de etileno es un polímero de etileno-1,7-octadieno con las cantidades que se indican en este párrafo.

35 **[0075]** El segundo polietileno (PE2) tiene una densidad medida según la norma ISO 1183-1187 de más de 915 kg/m³, más preferiblemente situada dentro de la gama de valores que va desde el de más de 915 hasta el de 938 kg/m³, y aún más preferiblemente situada dentro de la gama de valores que va desde el de 920 hasta el de 935 kg/m³. Así se aprecia que el primer polietileno sea un polietileno de baja densidad (LDPE).

40 **[0076]** Una adicional característica distintiva del segundo polietileno (PE2) es su índice de fusión. En consecuencia se aprecia que el segundo polietileno (PE2) tenga un índice de fusión MFR_2 (a 190°C) de un valor igual o superior al de 30 g/10 min., más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde 30 hasta 500 g/10 min., y aún más preferiblemente situado dentro de la gama de valores que va desde 90 hasta 300 g/10 min.

45 **[0077]** El segundo polietileno (PE2) preferiblemente está caracterizado por una distribución del peso molecular bastante estrecha. Así se prefiere que la distribución del peso molecular (MWD) del segundo polietileno (PE2) según determinación efectuada mediante cromatografía de permeación en gel (GPC) sea de menos de 10, esté más preferiblemente situada dentro de la gama de valores que va desde 0,5 hasta 10, aún más preferiblemente esté situada dentro de la gama de valores que va desde 1 hasta 8, y todavía aún más preferiblemente esté situada dentro de la gama de valores que va desde 1,5 hasta 6.

50 **[0078]** El peso molecular medio en peso (M_w) del segundo polietileno (PE2) es preferiblemente de menos de 100 kg/mol, más preferiblemente está situado dentro de la gama de valores que va desde 10 hasta 100 kg/mol, y aún más preferiblemente está situado dentro de la gama de valores que va desde 20 hasta 60 kg/mol.

55 **[0079]** En una realización preferida el segundo polietileno (PE2) es un homopolímero de etileno o un copolímero de etileno, siendo preferido éste último. En consecuencia, el contenido de etileno en el segundo polietileno (PE2) es de al menos un 80% en peso, y más preferiblemente de al menos un 85% en peso.

60 **[0080]** En caso de que el segundo polietileno (PE2) sea un copolímero de etileno, se prefiere que el mismo contenga como mayor parte unidades derivables de etileno. En consecuencia se aprecia que el segundo polietileno (PE2) que sea un copolímero de etileno comprenda al menos un 80% en peso de unidades derivables de etileno, y más preferiblemente al menos un 85% en peso de unidades derivadas de etileno. Así se aprecia que el segundo polietileno (PE2) que sea un copolímero de etileno comprenda de un 80 a un 97% en peso, y más preferiblemente de un 85 a un

95% en peso, de unidades derivables de etileno. Los comonómeros presentes en un segundo polietileno (PE2) de este tipo son α -olefinas de C₄ a C₂₀, tales como 1-buteno, 1-hexeno y 1-octeno, siendo especialmente preferido éste último. En consecuencia, en una realización específica el segundo polietileno (PE2) que es un copolímero de etileno es un polímero de etileno-1-octeno con las cantidades que se indican en este párrafo.

5

[0081] Finalmente la presente composición de polipropileno preferiblemente comprende un agente α -nucleante (NA).

[0082] En principio puede usarse cualquier agente α -nucleante (NA). Sin embargo se prefiere que el agente α -nucleante (NA) sea seleccionado de entre los miembros del grupo que consta de

10

(a) sales de ácidos monocarboxílicos y ácidos policarboxílicos, como p. ej. benzoato sódico o terbutilbenzoato de aluminio,

(b) dibencilidenosorbitol (p. ej. 1,3 : 2,4 dibencilidenosorbitol) y derivados de dibencilidenosorbitol C₁-C₈-alquilsustituídos, tales como metildibencilidenosorbitol, etildibencilidenosorbitol o dimetildibencilidenosorbitol (como p. ej. 1,3 : 2,4 bis(dimetilbencilideno)sorbitol),

15

(c) derivados de nonitol sustituidos, tales como 1,2,3,-tridesoxi-4,6:5,7-bis-O-[(4-propilfenil)metileno]-nonitol,

(d) sales de diésteres de ácido fosfórico, como p. ej. 2,2'-metileno-bis(4,6,-di-terbutilfenil)fosfato sódico o hidroxibis[2,2'-metileno-bis(4,6-di-t-butilfenil)fosfato] de aluminio, tal como hidroxibis[2,2'-metileno-bis(4,6-di-terbutilfenil)fosfato] de aluminio y miristato de Li (NA21),

(e) derivados de trisamida-benceno, es decir, N-[3,5-bis-(2,2-dimetilpropionilamino)-fenil]-2,2-dimetilpropionamida.

20

[0083] Son obtenibles resultados especialmente buenos en caso de que la presente composición de polipropileno comprenda

(a1) de un 55 a un 80% en peso, y preferiblemente de un 60 a un 75% en peso, de la matriz de polipropileno cristalino (M-PP)

25

(b1) de un 7,5 a un 30% en peso, y preferiblemente de un 10 a un 25% en peso, de la fase de copolímero de propileno elastomérico (E),

(c1) de un 2,5 a un 15% en peso, y preferiblemente de un 5 a un 10% en peso, del primer polietileno (PE1),

(d1) de un 2,5 a un 15% en peso, y preferiblemente de un 5 a un 10% en peso, del segundo polietileno (PE2), y

(e1) de un 0,0005 a un 1,0% en peso, y preferiblemente de un 0,1 a un 0,5% en peso, del agente α -nucleante (NA),

30

o

(a2) de un 55 a un 80% en peso, y preferiblemente de un 60 a un 75% en peso, de la matriz de polipropileno cristalino (M-PP)

(b2) de un 2,5 a un 20% en peso, y preferiblemente de un 5 a un 15% en peso, del primer copolímero de propileno elastomérico (E1),

35

(c2) de un 2,5 a un 20% en peso, y preferiblemente de un 2,5 a un 10% en peso, del segundo copolímero de propileno elastomérico (E2),

(d2) de un 2,5 a un 15% en peso, y preferiblemente de un 5 a un 10% en peso, del primer polietileno (PE1),

(e2) de un 2,5 a un 15% en peso, y preferiblemente de un 5 a un 10% en peso, del segundo polietileno (PE2), y

(f2) de un 0,0005 a un 1,0% en peso, y preferiblemente de un 0,1 a un 0,5% en peso, del agente α -nucleante (NA),

40

o

(a3) de un 15 a un 45% en peso, y preferiblemente de un 25 a un 45% en peso, de una primera fracción de polipropileno (PP1) que es parte de la matriz de polipropileno cristalino (M-PP),

(b3) de un 15 a un 55% en peso, y preferiblemente de un 25 a un 45% en peso, de una segunda fracción de polipropileno (PP2) que es parte de la matriz de polipropileno cristalino (M-PP),

45

(c3) de un 2,5 a un 20% en peso, y preferiblemente de un 5 a un 15% en peso, del primer copolímero de propileno elastomérico (E1),

(d3) de un 2,5 a un 20% en peso, y preferiblemente de un 2,5 a un 10% en peso, del segundo copolímero de propileno elastomérico (E2),

(e3) de un 2,5 a un 15% en peso, y preferiblemente de un 5 a un 10% en peso, del primer polietileno (PE1),

50

(f3) de un 2,5 a un 15% en peso, y preferiblemente de un 5 a un 10% en peso, del segundo polietileno (PE2), y

(g3) de un 0,0005 a un 1,0% en peso, y preferiblemente de un 0,1 a un 0,5% en peso, del agente α -nucleante (NA).

[0084] La presente invención está también dirigida al uso de la composición de polipropileno inventiva para material de envasado.

55

[0085] Además, la presente invención se refiere a materiales de envasado tales como recipientes de envasado moldeados por inyección tales como piezas de pared delgada moldeadas por inyección, a artículos domésticos y a envases para el transporte, que preferiblemente comprenden al menos un 75% en peso, que más preferiblemente comprenden al menos un 90% en peso, tal como al menos un 95% en peso, y que con la máxima preferencia constan de, una composición de polipropileno como la que se define en la presente invención.

60

[0086] Además la invención define un proceso para la preparación de la composición de polipropileno según esta invención. El proceso comprende los pasos de mezclar en una extrusora una composición que comprende la matriz de polipropileno (M-PP) y la fase de copolímero de propileno elastomérico (E) (es decir, el copolímero de

propileno heterofásico (HECO)), el primer polietileno (PE1), el segundo polietileno (PE2) y opcionalmente el agente α -nucleante (NA). Son conocidos todos los componentes que se usan para la preparación de la presente composición. En consecuencia, también es perfectamente conocida su preparación.

5 **[0087]** Por ejemplo el polipropileno heterofásico (HECO) según esta invención es preferiblemente producido en un proceso multietápico que es conocido en la técnica, en donde la matriz de polipropileno (M-PP) es producida al menos en un reactor de lechada y a continuación la fase de copolímero de propileno elastomérico (E) es producida al menos en un reactor de fase gaseosa.

10 **[0088]** El copolímero de propileno heterofásico (HECO) como el que se ha definido anteriormente es en particular producido mediante un proceso de polimerización secuencial como el que se define más adelante.

[0089] En consecuencia, la presente invención está dirigida a un proceso de polimerización secuencial para producir un copolímero de propileno heterofásico (HECO) según la presente invención, comprendiendo dicho copolímero de propileno heterofásico (HECO) una primera fracción de polipropileno (PP1), una segunda fracción de polipropileno (PP2), un primer copolímero elastomérico (E1) y un segundo copolímero elastomérico (E2), en donde dicho proceso comprende los pasos de

15 (a) polimerizar propileno y opcionalmente al menos un etileno y/o una α -olefina de C_4 a C_{12} en un primer reactor (R1) obteniendo la primera fracción de polipropileno (PP1), siendo dicha primera fracción de polipropileno (PP1) preferiblemente un primer homopolímero de propileno (H-PP1),

20 (b) transferir la primera fracción de polipropileno (PP1) a un segundo reactor (R2),

(c) polimerizar en el segundo reactor (R2) y en presencia de dicha primera fracción de polipropileno (PP1) propileno y opcionalmente al menos un etileno y/o una α -olefina de C_4 a C_{12} , obteniendo con ello la segunda fracción de polipropileno (PP2), siendo dicha segunda fracción de polipropileno (PP2) preferiblemente un segundo copolímero de propileno aleatorio (R-PP2), formando dicha primera fracción de polipropileno (PP1) y dicha segunda fracción de polipropileno (PP2) la matriz de polipropileno (M-PP),

25 (d) transferir la matriz de polipropileno (M-PP) del paso (c1) a un tercer reactor (R3),

(e) polimerizar en el tercer reactor (R3) y en presencia de la mezcla obtenida en el paso (c1) propileno y al menos un etileno y/o una α -olefina de C_4 a C_{12} , obteniendo con ello un primer copolímero de propileno elastomérico (E1), siendo dicho primer copolímero de propileno elastomérico (E1) preferiblemente un primer copolímero de propileno-etileno elastomérico, quedando el primer copolímero de propileno elastomérico (E1) dispersado en la matriz de polipropileno (M-PP),

30 (f) transferir la matriz de polipropileno (M-PP) en la cual está dispersado el primer copolímero de propileno elastomérico (E1) a un cuarto reactor (R4), y

35 (g) polimerizar en el cuarto reactor (R4) y en presencia de la mezcla obtenida en el paso (e) propileno y al menos un etileno y/o una α -olefina de C_4 a C_{12} , obteniendo con ello el segundo copolímero de propileno elastomérico (E2), formando la matriz de polipropileno (M-PP), el primer copolímero de propileno elastomérico (E1) y el segundo copolímero de propileno elastomérico (E2) el copolímero de propileno heterofásico (HECO).

40 **[0090]** Naturalmente, en el primer reactor (R1) puede producirse la segunda fracción de polipropileno (PP2), y en el segundo reactor (R2) puede obtenerse la primera fracción de polipropileno (PP1). Lo mismo se cumple para la fase de copolímero de propileno elastomérico (E). En consecuencia, en el tercer reactor (R3) se produce el segundo copolímero de propileno elastomérico (E2), mientras que en el cuarto reactor (R4) se hace el primer copolímero de propileno elastomérico (E1).

45 **[0091]** Preferiblemente entre el segundo reactor (R2) y el tercer reactor (R3) y opcionalmente entre el tercer reactor (R3) y el cuarto reactor (R4) se purgan los monómeros.

50 **[0092]** Para realizaciones preferidas del copolímero de propileno heterofásico (HECO), de la matriz de polipropileno (M-PP), de la primera fracción de polipropileno (PP1), de la segunda fracción de polipropileno (PP2) y del copolímero de propileno elastomérico (E), o sea del primer copolímero elastomérico (E1), así como del segundo copolímero elastomérico (E2), se hace referencia a las definiciones que se han dado anteriormente.

55 **[0093]** La expresión "proceso de polimerización secuencial" indica que el polipropileno es producido en al menos dos reactores, tal como tres o cuatro reactores, conectados en serie. En consecuencia el presente proceso comprende al menos un primer reactor (R1) y un segundo reactor (R2), y más preferiblemente un primer reactor (R1), un segundo reactor (R2), un tercer reactor (R3) y un cuarto reactor (R4). La expresión "reactor de polimerización" indicará que es el reactor en el que tiene lugar la polimerización principal. Así, en caso de que el proceso conste de cuatro reactores de polimerización, esta definición no excluye la opción de que el proceso global comprenda por ejemplo un paso de prepolimerización en un reactor de prepolimerización. La expresión "constan de" es tan sólo un formulismo conclusivo en relación con los reactores de polimerización principal.

60 **[0094]** El primer reactor (R1) es preferiblemente un reactor de lechada (SR) y puede ser cualquier reactor de bucle o reactor de tanque continuo o simple discontinuo con agitación que opere en masa o en lechada. "En masa" significa una

polimerización en un medio de reacción que consta de al menos de un 60% en peso de monómero. Según la presente invención el reactor de lechada (SR) es preferiblemente un reactor de bucle (en masa) (LR).

5 **[0095]** El segundo reactor (R2), el tercer reactor (R3) y el cuarto reactor (R4) son preferiblemente reactores de fase gaseosa (GPR). Tales reactores de fase gaseosa (GPR) pueden ser cualesquiera reactores con mezcla mecánica o de lecho fluidizado. Preferiblemente los reactores de fase gaseosa (GPR) comprenden un reactor de lecho fluidizado con agitación mecánica con velocidades del gas de al menos 0,2 m/seg. Así se aprecia que el reactor de fase gaseosa sea un reactor del tipo de los de lecho fluidizado preferiblemente con un agitador mecánico.

10 **[0096]** Así en una realización preferida el primer reactor (R1) es un reactor de lechada (SR), tal como un reactor de bucle (LR), mientras que el segundo reactor (R2), el tercer reactor (R3) y el cuarto reactor (R4) son reactores de fase gaseosa (GPR). En consecuencia, para el presente proceso se usan al menos cuatro, y preferiblemente cuatro reactores de polimerización, y concretamente un reactor de lechada (SR), tal como un reactor de bucle (LR), un primer reactor de fase gaseosa (GPR-1), un segundo reactor de fase gaseosa (GPR-2) y un tercer reactor de fase gaseosa (GPR-3) conectados en serie. De ser necesario, antes del reactor de lechada (SR) se sitúa un reactor de prepolimerización.

15 **[0097]** Un proceso multietápico preferido es un proceso "en bucle-fase gaseosa", tal como el desarrollado por la Borealis A/S, de Dinamarca (conocido como la tecnología BORSTAR®), que está descrito p. ej. en la literatura de patentes, tal como en los documentos EP 0 887 379, WO 92/12182, WO 2004/000899, WO 2004/111095, WO 99/24478, WO 99/24479 y/o WO 00/68315.

[0098] Otro adecuado proceso en lechada-fase gaseosa es el proceso Spheripol® de Basell.

25 **[0099]** Preferiblemente, en el presente proceso para producir el copolímero de propileno heterofásico (HECO) como el definido anteriormente las condiciones para el primer reactor (R1), es decir, el reactor de lechada (SR), tal como un reactor de bucle (LR), del paso (a) pueden ser como se indica a continuación:

- 30 - la temperatura está situada dentro de la gama de valores que va desde 50°C hasta 110°C, preferiblemente es de entre 60°C y 100°C, y más preferiblemente es de entre 68 y 95°C,
- la presión está situada dentro de la gama de valores que va desde 20 bares hasta 80 bares, y es preferiblemente de entre 40 bares y 70 bares,
- puede añadirse hidrógeno para controlar la masa molar de una manera conocida per se.

35 **[0100]** A continuación, la mezcla de reacción del paso (a) es transferida al segundo reactor (R2), es decir al reactor de fase gaseosa (GPR-1), es decir, al paso (c), siendo las condiciones en el paso (c) preferiblemente como se indica a continuación:

- 40 - la temperatura está situada dentro de la gama de valores que va desde 50°C hasta 130°C, y es preferiblemente de entre 60°C y 100°C,
- la presión está situada dentro de la gama de valores que va desde 5 bares hasta 50 bares, y es preferiblemente de entre 15 bares y 35 bares,
- puede añadirse hidrógeno para controlar la masa molar de una manera conocida per se.

45 **[0101]** Las condiciones en el tercer reactor (R3) y en el cuarto reactor (R4), y preferiblemente en el segundo reactor de fase gaseosa (GPR-2) y en el tercer reactor de fase gaseosa (GPR-3), son similares a las del segundo reactor (R2).

[0102] El tiempo de permanencia puede variar en las tres zonas de reactor.

50 **[0103]** En una realización del proceso para producir el polipropileno el tiempo de permanencia en el reactor masivo, como p. ej. el reactor de bucle, está situado dentro de la gama de valores que va desde 0,1 hasta 2,5 horas y es p. ej. de 0,15 a 1,5 horas, y el tiempo de permanencia en el reactor de fase gaseosa será generalmente de 0,2 a 6 horas, tal como de 0,5 a 4,0 horas.

55 **[0104]** Si se desea, la polimerización puede ser efectuada de una manera conocida bajo condiciones supercríticas en el primer reactor (R1), es decir, en el reactor de lechada (SR), tal como en el reactor de bucle (LR), y/o como modo condensado en los reactores de fase gaseosa (GPR).

60 **[0105]** Preferiblemente el proceso comprende también una prepolimerización con el sistema catalizador como el que se describe en detalle más adelante, que comprende un procatalizador de Ziegler-Natta, un dador externo y opcionalmente un cocatalizador.

[0106] En una realización preferida, la prepolimerización es llevada a cabo como polimerización masiva en lechada en propileno líquido, es decir que la fase líquida principalmente comprende propileno, con pequeñas cantidades de otros reactivos y opcionalmente componentes inertes disueltas en la misma.

[0107] La reacción de prepolimerización es típicamente llevada a cabo a una temperatura de 10 a 60°C, preferiblemente de 15 a 50°C, y más preferiblemente de 20 a 45°C.

5 [0108] La presión en el reactor de prepolimerización no es crítica pero debe ser lo suficientemente alta como para mantener a la mezcla de reacción en la fase líquida. Así, la presión puede ser de 20 a 100 bares, tal como por ejemplo de 30 a 70 bares.

10 [0109] Los componentes catalizadores son preferiblemente todos ellos introducidos en el paso de prepolimerización. Sin embargo, cuando el componente catalizador sólido (I) y el cocatalizador (II) puedan ser aportados por separado, es posible que tan sólo una parte del cocatalizador sea introducida en la etapa de prepolimerización y que la parte restante sea introducida en subsiguientes etapas de polimerización. Asimismo en tales casos es necesario introducir en la etapa de prepolimerización tanto cocatalizador como para que se obtenga ahí una suficiente reacción de polimerización.

15 [0110] Es posible añadir otros componentes también a la etapa de prepolimerización. Así, puede añadirse hidrógeno en la etapa de prepolimerización para controlar el peso molecular del prepolímero como es sabido en la técnica. Además, puede usarse aditivo antiestática para impedir que las partículas se adhieran entre sí o a las paredes del reactor.

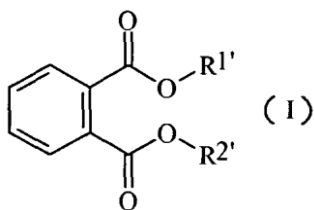
20 [0111] El preciso control de las condiciones de prepolimerización y de los parámetros de reacción queda por completo dentro de los conocimientos de la técnica.

25 [0112] Según la invención el copolímero de propileno heterofásico (HECO) es obtenido mediante un proceso de polimerización multietápica, tal como se ha descrito anteriormente, en presencia de un sistema catalizador que comprende como componente (I) un procatalizador de Ziegler-Natta que contiene un producto de transesterificación de un alcohol inferior y éster ftálico.

[0113] El procatalizador que se usa según la invención se prepara realizando los pasos siguientes:

a) hacer que un aducto cristalizado por pulverización o solidificado en emulsión de $MgCl_2$ y un alcohol de C_1-C_2 reaccione con $TiCl_4$

30 b) hacer que el producto de la etapa a) reaccione con un ftalato de dialquilo de fórmula (I)



40 en donde $R^{1'}$ y $R^{2'}$ son independientemente un alquilo de al menos C_5 bajo condiciones en las que tiene lugar para formar el dador interno una transesterificación entre dicho alcohol de C_1-C_2 y dicho ftalato de dialquilo de fórmula (I)

c) lavar el producto de la etapa b) o bien

45 d) opcionalmente hacer que el producto del paso c) reaccione con $TiCl_4$ adicional.

[0114] El procatalizador es producido como se define por ejemplo en las solicitudes de patente WO 87/07620,

50 [0115] WO 92/19653, WO 92/19658 y EP 0 491 566. El contenido de estos documentos queda incluido en la presente por referencia.

[0116] Primeramente se forma un aducto de $MgCl_2$ y un alcohol de C_1-C_2 de la fórmula $MgCl_2 \cdot nROH$, en donde R es metilo o etilo y n es un número de 1 a 6. Se usa preferiblemente como alcohol etanol.

55 [0117] El aducto, que es primeramente fundido y luego cristalizado por pulverización o solidificado en emulsión, es usado como soporte del catalizador.

[0118] En el paso siguiente el aducto cristalizado por pulverización o solidificado en emulsión de la fórmula $MgCl_2 \cdot nROH$, en donde R es metilo o etilo, y preferiblemente etilo, y n es un número de 1 a 6, es puesto en contacto con $TiCl_4$ para formar un soporte titanizado, siendo a continuación realizados los pasos de

60 • añadir a dicho soporte titanizado

(I) un ftalato de dialquilo de fórmula (I), siendo $R^{1'}$ y $R^{2'}$ independientemente un alquilo de al menos C_5 , tal como un alquilo de al menos C_8 , o bien preferiblemente

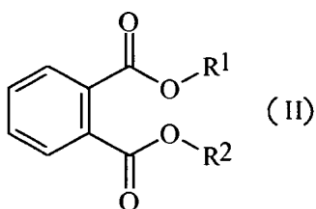
(II) un ftalato de dialquilo de fórmula (I), siendo $R^{1'}$ y $R^{2'}$ el mismo y siendo un alquilo de al menos C_5 , tal como un alquilo de al menos C_8 ,

o bien más preferiblemente

(III) un ftalato de dialquilo de fórmula (I) seleccionado de entre los miembros del grupo que consta de ftalato de propilhexilo (PrHP), ftalato de dioctilo (DOP), ftalato de di-iso-decilo (DIDP) y ftalato de tridecilo (DTDP), siendo aún más preferiblemente el ftalato de dialquilo de fórmula (I) un ftalato de dioctilo (DOP), tal como ftalato de di-iso-octilo o ftalato de dietilhexilo, y en particular ftalato de dietilhexilo,

para formar un primer producto,

• someter a dicho primer producto a adecuadas condiciones de transesterificación, es decir, a una temperatura de más de 100°C, preferiblemente de entre 100 y 150°C, y más preferiblemente de entre 130 y 150°C, para que así dicho metanol o etanol sea transesterificado con dichos grupos éster de dicho ftalato de dialquilo de fórmula (I) para formar preferiblemente al menos un 80% molar, más preferiblemente un 90% molar, y con la máxima preferencia un 95% molar, de un ftalato de dialquilo de fórmula (II)



siendo R¹ y R² metilo o etilo, y preferiblemente etilo, siendo el ftalato de dialquilo de fórmula (II) el dador interno, y

• recuperar dicho producto de transesterificación como la composición procatalizadora (componente (I)).

[0119] El aducto de fórmula MgCl₂*nROH, en donde R es metilo o etilo y n es un número de 1 a 6, es en una realización preferida fundido y luego la masa fundida es preferiblemente inyectada mediante un gas en un solvente enfriado o un gas enfriado, con lo cual el aducto es cristalizado para así quedar en una forma morfológicamente ventajosa, tal como por ejemplo se describe en la WO 87/07620.

[0120] Este aducto cristalizado es preferiblemente usado en calidad del soporte del catalizador, y se le hace reaccionar con el procatalizador que es útil en la presente invención como se describe en la WO 92/19658 y en la WO 92/19653.

[0121] Al ser el residuo catalizador retirado mediante extracción, es obtenido un aducto del soporte titanizado y del dador interno, en el cual ha cambiado el grupo derivado del alcohol de éster.

[0122] En caso de que quede sobre el soporte suficiente titanio, el mismo actuará como un elemento activo del procatalizador.

[0123] De lo contrario se repite la titanización tras haber sido realizado el tratamiento anteriormente indicado, a fin de asegurar una suficiente concentración de titanio y por consiguiente una suficiente actividad.

[0124] Preferiblemente el procatalizador que se usa según la invención contiene un 2,5% en peso de titanio como máximo, preferiblemente un 2,2% en peso como máximo, y más preferiblemente un 2,0% en peso como máximo. Su contenido de dador está preferiblemente situado entre un 4 y un 12% en peso, y más preferiblemente entre un 6 y un 10% en peso.

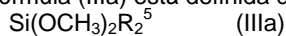
[0125] Más preferiblemente, el procatalizador que se usa según la invención ha sido producido usando etanol en calidad del alcohol y ftalato de dioctilo (DOP) como ftalato de dialquilo de fórmula (I), obteniéndose así ftalato de dietilo (DEP) en calidad del compuesto dador interno.

[0126] Aún más preferiblemente, el catalizador que se usa según la invención es el catalizador BCF20P de Borealis (preparado según la WO 92/19653 como se publica en la WO 99/24479; especialmente con el uso de ftalato de dioctilo como ftalato de dialquilo de fórmula (I) según la WO 92/19658) o bien el catalizador Polytrack 8502, que es suministrado comercialmente por Grace.

[0127] Para la producción del copolímero de propileno heterofásico (HECO) según la invención el sistema catalizador que se usa preferiblemente comprende, además del procatalizador especial de Ziegler-Natta, un cocatalizador organometálico como componente (II).

[0128] En consecuencia se prefiere seleccionar el cocatalizador de entre los miembros del grupo que consta de trialkilaluminio, tal como trietilaluminio (TEA), cloruro de dialquilaluminio y sesquicloruro de alquilaluminio.

[0129] El componente (III) del sistema catalizador que se usa es un dador externo representado por la fórmula (IIIa) o (IIIb). La fórmula (IIIa) está definida de la manera siguiente:



en donde R^5 representa a un grupo alquilo ramificado que tiene de 3 a 12 átomos de carbono, y preferiblemente a un grupo alquilo ramificado que tiene de 3 a 6 átomos de carbono, o a un cicloalquilo que tiene de 4 a 12 átomos de carbono, y preferiblemente a un cicloalquilo que tiene de 5 a 8 átomos de carbono.

[0130] Se prefiere en particular que R^5 sea seleccionado de entre los miembros del grupo que consta de isopropilo, isobutilo, isopentilo, terbutilo, teramilo, neopentilo, ciclopentilo, ciclohexilo, metilciclopentilo y cicloheptilo.

[0131] La fórmula (IIIb) está definida de la manera siguiente



en donde R^x y R^y pueden ser iguales o distintos y representan a un grupo hidrocarburo que tiene de 1 a 12 átomos de carbono.

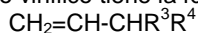
[0132] R^x y R^y son seleccionados independientemente de entre los miembros del grupo que consta de un grupo hidrocarburo alifático lineal que tiene de 1 a 12 átomos de carbono, un grupo hidrocarburo alifático ramificado que tiene de 1 a 12 átomos de carbono y un grupo hidrocarburo alifático cíclico que tiene de 1 a 12 átomos de carbono. Se prefiere en particular que R^x y R^y sean seleccionados independientemente de entre los miembros del grupo que consta de metilo, etilo, n-propilo, n-butilo, octilo, decanilo, isopropilo, isobutilo, isopentilo, terbutilo, teramilo, neopentilo, ciclopentilo, ciclohexilo, metilciclopentilo y cicloheptilo.

[0133] Más preferiblemente, R^x y R^y son ambos iguales, y aún más preferiblemente R^x y R^y son ambos un grupo etilo.

[0134] Más preferiblemente, el dador externo de fórmula (IIIb) es dietilaminotrietoxisilano.

[0135] Con la máxima preferencia, el dador externo es de fórmula (IIIa), tal como dicitolopentildimetoxisilano $[\text{Si}(\text{OCH}_3)_2(\text{ciclopentil})_2]$ o diisopropildimetoxisilano $[\text{Si}(\text{OCH}_3)_2(\text{CH}(\text{CH}_3)_2)_2]$.

[0136] En una realización adicional, el procatalizador de Ziegler-Natta puede ser modificado polimerizando un compuesto vinílico en presencia del sistema catalizador, que comprende el procatalizador especial de Ziegler-Natta (componente (I)), un dador externo (componente (III)) y opcionalmente un cocatalizador (componente (III)), cuyo compuesto vinílico tiene la fórmula:



en donde R^3 y R^4 forman juntamente un anillo saturado, insaturado o aromático de 5 o 6 miembros, o bien representan independientemente a un grupo alquilo que comprende de 1 a 4 átomos de carbono, y el catalizador modificado es usado para la preparación del copolímero de propileno heterofásico según esta invención. El compuesto vinílico polimerizado puede actuar como un agente α -nucleante.

[0137] Con respecto a la modificación del catalizador, se hace referencia a las solicitudes internacionales WO 99/24478, WO 99/24479 y particularmente WO 00/68315, que quedan incorporadas a la presente por referencia con respecto a las condiciones de reacción que se refieren a la modificación del catalizador, así como con respecto a la reacción de polimerización.

[0138] Los aditivos como los que se han indicado anteriormente son añadidos después al copolímero de propileno heterofásico (HECO), que se toma del reactor final de la serie de reactores. Preferiblemente, estos aditivos son mezclados con la composición antes del proceso de extrusión o durante el mismo en un proceso de mezcla en un solo paso. Como alternativa puede hacerse una mezcla madre, en donde el copolímero de propileno heterofásico (HECO) es primeramente mezclado con tan sólo algunos de los aditivos.

[0139] Para la mezcla puede usarse un aparato amalgamador o mezclador convencional, como p. ej. una mezcladora Banbury, un mezclador de caucho de 2 rodillos, una amasadora Buss-co o una extrusionadora de doble husillo. Los materiales polímeros que se recuperan de la extrusionadora están habitualmente en forma de pellets. Estos pellets son entonces preferiblemente sometidos a adicional procesamiento con el primer y el segundo polietileno (PE1) y (PE2), p. ej. por moldeo por inyección para así generar artículos, tales como material de envasado, de la composición de polipropileno inventiva.

[0140] A continuación se ilustra adicionalmente la presente invención por medio de ejemplos.

EJEMPLOS

A. Métodos de medición

[0141] Las siguientes definiciones de términos y los siguientes métodos de determinación son de aplicación para la anterior descripción general de la invención, así como para los ejemplos que se dan a continuación, a no ser que se defina otra cosa. **Cálculo** del contenido de comonómeros de la segunda fracción de polipropileno (PP2):

$$\frac{C(R2) - w(PP1) \times C(PP1)}{w(PP2)} = C(PP2)$$

en donde

- 10 w(PP1) es la fracción en peso de la primera fracción de polipropileno (PP1), es decir, del producto del primer reactor (R1),
 w(PP2) es la fracción en peso de la segunda fracción de polipropileno (PP2), es decir, del polímero producido en el segundo reactor (R2),
 15 C(PP1) es el contenido de comonómeros [en % en peso] medido mediante espectroscopia de resonancia magnética nuclear de ¹³C de la primera fracción de polipropileno (PP1), es decir, del producto del primer reactor (R1),
 C(R2) es el contenido de comonómeros [en % en peso] medido mediante espectroscopia de resonancia magnética nuclear de ¹³C del producto obtenido en el segundo reactor (R2), es decir, de la mezcla de la primera fracción de polipropileno (PP1) y la segunda fracción de polipropileno (PP2),
 20 C(PP2) es el contenido de comonómeros calculado [en % en peso] del segundo polipropileno (PP2).

[0142] **Cálculo** del contenido de solubles en frío en xileno (XCS) de la segunda fracción de polipropileno (PP2):

$$\frac{XS(R2) - w(PP1) \times XS(PP1)}{w(PP2)} = XS(PP2)$$

en donde

- w(PP1) es la fracción en peso de la primera fracción de polipropileno (PP1), es decir, del producto del primer reactor (R1),
 w(PP2) es la fracción en peso de la segunda fracción de polipropileno (PP2), es decir, del polímero producido en el
 30 segundo reactor (R2),
 XS(PP1) es el contenido de solubles en frío en xileno (XCS) [en % en peso] según determinación efectuada a 23°C según la norma ISO 6427 de la primera fracción de polipropileno (PP1), es decir, del producto del primer reactor (R1),
 XS(R2) es el contenido de solubles en frío en xileno (XCS) [en % en peso] según determinación efectuada a 23°C
 35 según la norma ISO 6427 del producto obtenido en el segundo reactor (R2), es decir, de la mezcla de la primera fracción de polipropileno (PP1) y la segunda fracción de polipropileno (PP2),
 XS(PP2) es el contenido de solubles en frío en xileno (XCS) calculado [en % en peso] de la segunda fracción de polipropileno (PP2).

40 [0143] **Cálculo** del índice de fusión MFR₂ (a 230°C) de la segunda fracción de polipropileno (PP2):

$$MFR(PP2) = 10^{\left[\frac{\log(MFR(R2)) - w(PP1) \times \log(MFR(PP1))}{w(PP2)} \right]}$$

en donde

- w(PP1) es la fracción en peso de la primera fracción de polipropileno (PP1), es decir, del producto del primer reactor (R1),
 w(PP2) es la fracción en peso de la segunda fracción de polipropileno (PP2), es decir, del polímero producido en el segundo reactor (R2),
 50 MFR(PP1) es el índice de fusión MFR₂ (a 230°C) [en g/10 min.] medido según la norma ISO 1133 de la primera fracción de polipropileno (PP1), es decir, del producto del primer reactor (R1),
 MFR(R2) es el índice de fusión MFR₂ (a 230°C) [en g/10 min.] medido según la norma ISO 1133 del producto obtenido en el segundo reactor (R2), es decir, de la mezcla de la primera fracción de polipropileno (PP1) y la segunda fracción de polipropileno (PP2),
 55 MFR(PP2) es el índice de fusión MFR₂ (a 230°C) calculado en [en g/10 min.] de la segunda fracción de polipropileno (PP2).

[0144] **Calculo** de la viscosidad intrínseca (IV) del segundo copolímero de propileno elastomérico (E2):

$$IV(E2) = 10^{\frac{\log(IV(HECO)) - w(E1) \times \log(IV(E1))}{w(E2)}}$$

en donde

- w(E1) es la fracción en peso del primer copolímero de propileno elastomérico (E1), es decir, la fracción en peso de la fracción amorfa de la fracción soluble en frío en xileno (XCS) del producto del tercer reactor (R3),
- w(E2) es la fracción en peso de la parte amorfa (AM) de la fracción soluble en frío en xileno (XCS) del producto producido en el cuarto reactor (R4), es decir, del segundo copolímero de propileno elastomérico (E2),
- 5 IV(HECO) es la viscosidad intrínseca (IV) [en dl/g] de la parte amorfa (AM) de la fracción soluble en frío en xileno (XCS) del copolímero de propileno heterofásico (HECO),
- IV(E1) es la viscosidad intrínseca (IV) [en dl/g] de la parte amorfa (AM) de la fracción soluble en frío en xileno (XCS) del producto del tercer reactor (R3), es decir, la viscosidad intrínseca (IV) [en dl/g] del primer copolímero de propileno elastomérico (E1),
- 10 IV(E2) es la viscosidad intrínseca (IV) calculada [en dl/g] de la parte amorfa (AM) de la fracción soluble en frío en xileno (XCS) producida en el cuarto reactor (R4), es decir que es la viscosidad intrínseca (IV) calculada [en dl/g] del segundo copolímero de propileno elastomérico (E2).

15 **[0145] Cálculo** del contenido de comonómeros del segundo copolímero de propileno elastomérico (E2):

$$CC(E2) = \frac{CC(HECO) - w(E1) \times CC(E1)}{w(E2)}$$

- en donde
- 20 w(E1) es la fracción en peso del primer copolímero de propileno elastomérico (E1), es decir, la fracción en peso de la fracción amorfa de la fracción soluble en frío en xileno (XCS) del producto del tercer reactor (R3),
- w(E2) es la fracción en peso de la parte amorfa (AM) de la fracción soluble en frío en xileno (XCS) del producto producido en el cuarto reactor (R4), es decir, del segundo copolímero de propileno elastomérico (E2),
- 25 CC(HECO) es el contenido de comonómeros [en % en peso] de la parte amorfa (AM) de la fracción soluble en frío en xileno (XCS) del copolímero de propileno heterofásico (HECO),
- CC(E1) es el contenido de comonómeros [en % en peso] de la parte amorfa (AM) de la fracción soluble en frío en xileno (XCS) del producto del tercer reactor (R3), es decir, el contenido de comonómeros [en % en peso] del primer copolímero de propileno elastomérico (E1),
- 30 CC(E2) es el contenido de comonómeros calculado [% en peso] de la parte amorfa (AM) de la fracción soluble en frío en xileno (XCS) producida en el cuarto reactor (R4), es decir que es el contenido de comonómeros calculado [en % en peso] del segundo copolímero de propileno elastomérico (E2).

Quantificación de la microestructura mediante espectroscopia de resonancia magnética nuclear (NMR)

35 **[0146]** Se usó espectroscopia de resonancia magnética nuclear (NMR) cuantitativa para cuantificar la isotacticidad, la regiorregularidad y el contenido de comonómeros de los polímeros.

40 **[0147]** Fueron registrados en el estado de solución espectros de NMR de $^{13}\text{C} \{^1\text{H}\}$ cuantitativa usando un espectrómetro de NMR Bruker Advance III 400 que operaba a 400,15 y 100,62 MHz para ^1H y ^{13}C respectivamente. Todos los espectros fueron registrados usando una cabeza de sonda de temperatura extendida de 10 mm optimizada para ^{13}C a 125°C usando gas nitrógeno para toda la neumática.

45 **[0148]** Para los homopolímeros de polipropileno aproximadamente 200 mg de material fueron disueltos en 1,2-tetracloroetano- d_2 (TCE- d_2). Para asegurar una solución homogénea, tras la preparación inicial de la muestra en un bloque de calor el tubo de NMR fue adicionalmente calentado en un horno rotativo por espacio de al menos 1 hora. Tras la introducción en el imán el tubo fue centrifugado a 10 Hz. Este sistema fue elegido primariamente por la alta resolución requerida para la cuantificación de la distribución de la tacticidad (Busico, V., Cipullo, R., Prog. Polym. Sci. 26 (2001) 443; Busico, V.; Cipullo, R., Monaco, G. Vacatello, M., Segre, A.L., Macromolecules 30 (1997) 6251). Se empleó excitación por impulsos individuales estándar utilizando el método de desacoplamiento NOE y WALTZ16 binivel (Zhou, Z., Kuemmerle, R., Qiu, X., Redwine, D., Cong, R., Taha, A., Baugh, D. Winniford, B., J. Mag. Reson, 187 (2007) 225; Busico, V., Carbonniere, P., Cipullo, R., Pellecchia, R., Severn, J., Talarico, G., Macromol. Rapid Commun. 2007, 28, 11289). Fueron adquiridos un total de 8192 (8k) transitorios por espectro.

55 **[0149]** Para los copolímeros de etileno-propileno aproximadamente 200 mg de material fueron disueltos en 3 ml de 1,2-tetracloroetano- d_2 (TCE- d_2) junto con acetilacetato de cromo (III) (Cr(acac) $_3$), obteniéndose como resultado de ello una solución 65mM de agente de relajación en solvente (Singh, G., Kothari, A., Gupta, V., Polymer Testing 28 5 (2009), 475). Para asegurar una solución homogénea, tras la preparación inicial de la muestra en un bloque de calor el tubo de NMR fue adicionalmente calentado en un horno rotativo por espacio de al menos 1 hora. Tras la introducción en el imán el tubo fue centrifugado a 10 Hz. Este sistema fue elegido primariamente por la alta resolución y cuantitatividad requerida para una precisa cuantificación del contenido de etileno. Se empleó excitación por impulsos individuales estándar sin NOE, usando un ángulo de punta optimizado, un retraso de reciclaje de 1 seg. y un procedimiento de desacoplamiento WALTZ16 binivel (Zhou, Z., Kuemmerle, R., Qiu, X., Redwine, D., Cong, R., Taha, A., Baugh, D. Winniford, B., J. Mag. Reson, 187 (2007) 225; Busico, V., Carbonniere, P., Cipullo, R., Pellecchia, R., Severn, J.,

Talarico, G., *Macromol. Rapid Commun.* 2007, 28, 11289). Fueron adquiridos un total de 6144 (6k) transitorios por espectro.

5 [0150] Los espectros de NMR de ^{13}C $\{^1\text{H}\}$ cuantitativa fueron procesados e integrados, y las relevantes propiedades cuantitativas fueron determinadas a partir de las integrales usando programas informáticos especializados.

10 [0151] Para los copolímeros de etileno-propileno todos los desplazamientos químicos fueron indirectamente referenciados al grupo metileno central del bloque de etileno (EEE) a 30,00 ppm usando el desplazamiento químico del solvente. Este enfoque permitía una referenciación comparable incluso cuando no estaba presente esta unidad estructural.

[0152] Para los homopolímeros de polipropileno todos los desplazamientos químicos se referencian internamente a la pentada isotáctica de metilo (mmmm) a 21,85 ppm.

15 [0153] Se observaron señales características que correspondían a regiodefectos (Resconi, L., Cavallo, L., Fait, A., Piemontesi, F., *Chem. Rev.* 2000, 100, 1253; Wang, W-J., Zhu, S., *Macromolecules* 33 (2000), 1157; Cheng, H.N., *Macromolecules* 17 (1984), 1950) o a comonómero.

20 [0154] La distribución de la tacticidad fue cuantificada mediante integración de la región de metilo entre 23,6 y 19,7 ppm, corrigiendo para cualesquiera sitios no relacionados con las estereosecuencias de interés (Busico, V., Cipullo, R., *Prog. Polym. Sci.* 26 (2001) 443; Busico, V.; Cipullo, R., Monaco, G., Vacatello, M., Segre, A.L., *Macromolecules* 30 (1997) 6251).

25 [0155] Específicamente la influencia de los regiodefectos y del comonómero en la cuantificación de la distribución de la tacticidad fue corregida restando las integrales representativas de regiodefectos y comonómero de las específicas regiones integrales de las estereosecuencias.

[0156] La isotacticidad fue determinada al nivel de pentadas y se indicó como el porcentaje de secuencias de pentadas isotácticas (mmmm) con respecto a todas las secuencias de pentadas:

30
$$\% \text{ de [mmmm]} = 100 * (\text{mmmm} / \text{suma de todas las pentadas})$$

[0157] La presencia de 2,1 eritro regiodefectos fue indicada por la presencia de los dos sitios metilo a 17,7 y 17,2 ppm y confirmada por otros sitios característicos.

35 [0158] No fueron observadas señales características que correspondiesen a otros tipos de regiodefectos (Resconi, L., Cavallo, L., Fait, A., Piemontesi, F., *Chem. Rev.* 2000, 100, 1253).

[0159] La cantidad de 2,1 eritro regiodefectos fue cuantificada usando la integral media de los dos sitios metilo característicos a 17,7 y 17,2 ppm:

40
$$P_{21e} = (I_{e6} + I_{e8}) / 2$$

[0160] La cantidad de propeno insertado en inserción 1,2 primaria fue cuantificada sobre la base de la región de metilo efectuándose corrección para los sitios incluidos en esta región no relacionados con la inserción primaria y para los sitios de inserción primaria excluidos de esta región:

45
$$P_{12} = I_{\text{CH}_3} + P_{12e}$$

[0161] La cantidad total de propeno fue cuantificada como la suma de propeno insertado en inserción primaria y de todos los otros regiodefectos presentes:

50
$$P_{\text{total}} = P_{12} + P_{21e}$$

[0162] El porcentaje molar de 2,1 eritro regiodefectos fue cuantificado con respecto a todo el propeno:

$$[21e]\% \text{ molar} = 100 * (P_{21e} / P_{\text{total}})$$

55 [0163] Para los copolímeros fueron observadas señales características que correspondían a la incorporación de etileno (Cheng, H. N., *Macromolecules* 17 (1984), 1950).

[0164] Con los regiodefectos también observados (Resconi, L., Cavallo, L., Fait, A., Piemontesi, F., *Chem. Rev.* 2000, 100, 1253; Wang, W-J., Zhu, S., *Macromolecules* 33 (2000), 1157; Cheng, H. N., *Macromolecules* 17 (1984), 1950), fue necesaria una corrección para la influencia de tales defectos en el contenido de comonómeros.

60 [0165] La fracción molar de etileno en el polímero fue cuantificada usando el método de Wang et. al. (Wang, W-J., Zhu, S., *Macromolecules* 33 (2000), 1157) mediante la integración de múltiples señales en toda la región espectral de un espectro de ^{13}C $\{^1\text{H}\}$ adquirido usando condiciones definidas. Este método fue elegido por su precisión, por su naturaleza robusta y por su capacidad para dar cuenta de la presencia de regiodefectos cuando ello es necesario. Las

regiones integrales fueron ligeramente ajustadas para incrementar la aplicabilidad a una más amplia gama de contenidos de comonomeros.

[0166] La incorporación de comonomeros en porcentaje molar en el polímero fue calculada a partir de la fracción molar según la ecuación siguiente:

$$E [\% \text{ molar}] = 100 * fE$$

[0167] La incorporación de comonomeros en porcentaje en peso en el polímero fue calculada a partir de la fracción molar según la ecuación siguiente:

$$E [\% \text{ en peso}] = 100 * (fE * 28,05) / (fE * 28,05) + ((1-fE) * 42,08))$$

[0168] La distribución de secuencias de comonomeros a nivel de tríadas fue determinada usando el método de Kakugo et al. (Kakugo, M., Naito, Y., Mizunuma, K. Miyatake, T. Macromolecules 15 (1982) 1150) mediante la integración de múltiples señales en toda la región espectral de un espectro de $^{13}\text{C}\{^1\text{H}\}$ adquirido usando condiciones definidas. Este método fue elegido por su naturaleza robusta. Las regiones integrales fueron ligeramente ajustadas para incrementar la aplicabilidad a una más amplia gama de contenidos de comonomeros.

[0169] El porcentaje molar de una determinada secuencia de tríadas de comonomeros en el polímero fue calculado a partir de la fracción molar determinada por el método de Kakugo et al. (Kakugo, M., Naito, Y., Mizunuma, K. Miyatake, T. Macromolecules 15 (1982) 1150) según la ecuación siguiente:

$$\text{XXX} [\% \text{ molar}] = 100 * f\text{XXX}$$

[0170] La incorporación de comonomeros en fracción molar en el polímero, según determinación efectuada a partir de la distribución de secuencias de comonomeros a nivel de tríadas, fue calculada a partir de la distribución de tríadas usando conocidas relaciones necesarias (Randall, J. Macromol. Sci., Rev. Macromol. Chem. Phys. 1989, C29, 201):

$$f\text{XEX} = f\text{EEE} + f\text{PEE} + f\text{PEP}$$

$$f\text{XPX} = f\text{PPP} + f\text{EPP} + f\text{EPE}$$

donde PEE y EPP representa la suma de las secuencias reversibles PEE/EEP y EPP/PPE respectivamente.

[0171] La aleatoriedad de la distribución de comonomeros fue cuantificada como la cantidad relativa de secuencias aisladas de etileno en comparación con todo el etileno incorporado. La aleatoriedad fue calculada a partir de la distribución de secuencias de tríadas usando la relación:

$$R(E) [\%] = 100 * (f\text{PEP} / f\text{XEX})$$

[0172] El peso molecular medio en número (M_n), el peso molecular medio en peso (M_w) y la distribución del peso molecular (MWD) se determinan mediante Cromatografía de Permeación en Gel (GPC) según el método siguiente:

El peso molecular medio en peso M_w y la distribución del peso molecular (MWD = M_w/M_n en donde M_n es el peso molecular medio en número y M_w es el peso molecular medio en peso) se miden por un método basado en la norma ISO 1604-1:2003 y la norma ISO 16014-4:2003. Un aparato de medida Waters Alliance GPCV 2000, equipado con detector del índice refractivo y viscosímetro en línea, fue usado con 3 columnas de gel TSK (GMHXL-HT) de TosohHaas y 1,2,4-triclorobenceno (TCB, estabilizado con 200 mg/l de 2,6-di-terbutil-4-metilfenol) como solvente a 145°C y a razón de un caudal constante de 1 ml/min. Fueron inyectados por análisis 216,5 µl de solución de muestra. El conjunto de columnas fue calibrado usando calibración relativa con 19 patrones de poliestireno (PS) con una estrecha MWD dentro de la gama de valores que va desde 0,5 kg/mol hasta 11500 kg/mol y un conjunto de patrones de polipropileno con amplia distribución y perfectamente caracterizados. Todas las muestras fueron preparadas disolviendo 5 - 10 mg de polímero en 10 ml (a 160°C) de TCB estabilizado (igual como la fase móvil) y manteniendo un sacudimiento continuo por espacio de 3 horas antes de pasar las muestras al aparato de medida por GPC.

[0173] La densidad se mide según la norma ISO 1183-187. La preparación de las muestras se hace por moldeo por compresión según la norma ISO 1872-2:2007.

[0174] El MFR_2 (a 230°C) se mide según la norma ISO 1133 (a 230°C, con una carga 2,16 kg).

[0175] El MFR_2 (a 190°C) se mide según la norma ISO 1133 (a 190°C, con una carga 2,16 kg).

Solubles en hexano

[0176] FDA, parte 177.1520

1 g de una película de polímero de 100 µm de espesor es añadido a 400 ml de hexano a 50°C por espacio de 2 horas mientras se efectúa agitación con un refrigerador de reflujo.

[0177] Tras haber transcurrido 2 horas la mezcla es inmediatamente filtrada en un papel filtro N° 41.

[0178] El precipitado es recogido en un recipiente de aluminio y el hexano residual es evaporado en un baño de vapor bajo flujo de N₂.

Fracción soluble en frío en xileno (XCS, % en peso)

5

[0179] La fracción soluble en frío en xileno (XCS) se determina a 23°C según la norma ISO 6427.

10

[0180] El contenido de fracción amorfa (AM) se mide separando la fracción soluble en frío en xileno (XCS) anteriormente mencionada y precipitando la parte amorfa con acetona. El precipitado fue filtrado y secado en un horno de vacío a 90°C.

$$AM\% = \frac{100 \times m1 \times v0}{m0 \times v1}$$

15

en donde

“AM%” es la fracción amorfa,

“m0” es la cantidad de polímero inicial (g)

“m1” es el peso de precipitado (g)

20

“v0” es el volumen inicial (ml)

“v1” es el volumen de la muestra analizada (ml)

[0181] La viscosidad intrínseca se mide según la norma DNI ISO 1628/1, de octubre de 1999 (en decalina a 135°C).

25

[0182] Temperatura de fusión (T_m) y calor de fusión (H_f), temperatura de cristalización (T_c) y calor de cristalización (H_c): Se miden con calorimetría diferencial de barrido (DSC) Mettler TA820 en muestras de 5 a 10 mg. La DSC se lleva a cabo según la norma ISO 3146 / parte 3 / método C2 en un ciclo de calor / frío / calor con una velocidad de barrido de 10°C/min. dentro de la gama de temperaturas que va desde +23 hasta +210°C. La temperatura de cristalización y el calor de cristalización (H_c) se determinan a partir del paso de enfriamiento, mientras que la temperatura de fusión y el calor de fusión (H_f) se determinan a partir del segundo paso de calentamiento.

30

[0183] El módulo de elasticidad a la tracción y la deformación de rotura por tracción se miden según la norma ISO 527-2 (velocidad del cabezal = 1 mm/min.; a 23°C) usando probetas moldeadas por inyección como las que se describen en EN ISO 1873-2 (con forma de hueso de perro, de 4 mm de espesor).

35

[0184] La resistencia al impacto con probeta entallada según Charpy se determina según la norma ISO 179 / 1A a 23°C y a -20°C usando probetas moldeadas por inyección como las que se describen en EN ISO 1873-2 (de 80 x 10 x 4 mm).

40

[0185] La turbidez y la transparencia fueron determinadas según la norma ASTM D1003 en placas de 1,0 mm y 0,5 mm, respectivamente.

2. Ejemplos

45

[0186] El sistema catalizador era un catalizador modificado con vinilciclohexilo (VHC) preparado según el Ejemplo 1 de la WO 99/24479, en combinación con cocatalizador de trietilaluminio (TEA) y dicitlopentildimetoxisilano (dador D) como dador externo.

Tabla 1: Propiedades del copolímero de propileno heterofásico (HECO)

Bucle		HECO
Relación Al/dador	[moles/moles]	5
MFR ₂	[g/10 min.]	71
XCS	[% en peso]	1,2
GPR 1		
MFR ₂	[g/10 min.]	64
XCS	[% en peso]	2,3
C2	[% en peso]	1,0
GPR2		
MFR ₂	[g/10 min.]	52
XCS	[% en peso]	14,3
AM	[% en peso]	13,2
C2 de la AM	[% en peso]	57,7
Viscosidad de la AM	[dl/g]	1,7
C2	[% en peso]	10,6
Relación C2/C3	[moles/kmoles]	1830
Relación H2/C2	[moles/kmoles]	580
GPR3		
C2	[% en peso]	11,8
XCS	[% en peso]	18,4
AM	[% en peso]	17,2
C2 de la AM	[% en peso]	44,3
Viscosidad de la AM	[dl/g]	1,8
MFR ₂	[g/10 min.]	43,3
Relación C2/C3	[moles/kmoles]	370
Relación H2/C2	[moles/kmoles]	480
Tm	[°C]	162
Tc	[°C]	127

Tabla 2: Propiedades del PE1 y del PE2

	Unidades	PE 2	PE 1
octeno	[% en peso]	6,3	-
MFR (2,16 kg/190°C)	[g/10 min]	150	15
Densidad	[g/cm ³]	0,932	0,915
Módulo de elasticidad a la tracción	[MPa]	360	115
NIS (23°C)	[kJ/m ²]	6,6	-
NIS (-20°C)	[kJ/m ²]	3,2	-
Mw	[kg/mol]	31	518
MWD	[-]	3,1	30,7

PE1 es el homopolímero de etileno comercial "CA9150" de la Borealis AG

PE2 es el polietileno lineal comercial de baja densidad preparado con catalizador de sitio único con octeno (sLLDPE) "SURPASS IF932-R" de la NOVA Chemicals

Tabla 3: Propiedades de los productos

Propiedades		CE1	CE2	IE1	CE3
HECO	[% en peso]	84,8	84,8	84,8	
NA	[% en peso]	0,2	0,2	0,2	
PE1	[% en peso]	15	0	7,5	
PE2	[% en peso]	0	15	7,5	
MFR	[g/10 min]	37	47	42	25
Módulo de elasticidad a la tracción	[MPa]	1140	1240	1215	1003,4
Resistencia al impacto (a 23°C)	[kJ/m ²]	6	5	6	7,5
Resistencia al impacto (a 0°C)	[kJ/m ²]	3,5	2,5	3	4,5
Resistencia al impacto (a -20°C)	[kJ/m ²]	2	1	2	2
Transparencia (1 mm)	[%]	83	80	82	83
Turbidez (1 mm)	[%]	47	36	39	41
Transparencia (0,5 mm)	[%]	89	89	89	89
Turbidez (0,5 mm)	[%]	20	12	15	19
Solubles en C6	[% en peso]	3,6	4,3	4,3	

CE3 es el polímero heterofásico aleatorio comercial "SG930MO" de Borealis, que tiene un índice de fusión MFR₂ (a 230°C) de 25 g/10 min.,

NA es el agente α -nucleante comercial basado en fósforo ADK STAB NA-21 de la Adeka Corporation.

REIVINDICACIONES

1. Composición de polipropileno que tiene un índice de fusión MFR_2 (a 230°C) según medición efectuada de acuerdo con lo indicado en la norma ISO 1133 de un valor igual o superior a 15 g/10 min. y que comprende
- 5 (a) una matriz de polipropileno cristalino (M-PP)
 (b) una fase de copolímero de propileno elastomérico (E) que tiene
 (I) un contenido de propileno situado dentro de la gama de valores que va de un 40 a un 80% en peso, y
 (II) una viscosidad intrínseca (IV) medida según la norma ISO 1628-1 (a 135°C en decalina) situada dentro de la
 10 gama de valores que va desde más de 0,7 hasta un valor inferior o igual a 2,5 dl/g,
 (c) un primer polietileno (PE1) que tiene
 (I) una densidad medida según la norma ISO 1183-187 situada dentro de la gama de valores que va desde 905 hasta 925 kg/m³, y
 (II) un índice de fusión MFR_2 (a 190°C) medido según la norma ISO 1133 igual o inferior a 30 g/10 min.,
 (d) un segundo polietileno (PE2) que tiene
 15 (I) una densidad medida según la norma ISO 1183-1187 de más de 915 kg/m³, y
 (II) un índice de fusión MFR_2 (a 190°C) medido según la norma ISO 1133 igual o superior a 30 g/10 min.
2. Composición de polipropileno según la reivindicación 1, en donde la matriz de polipropileno cristalino (M-PP) tiene
- 20 (a) un índice de fusión MFR_2 (a 230°C) medido según la norma ISO 1133 situado dentro de la gama de valores que va desde 30 hasta 100 g/10 min.,
 y/o
 (b) un contenido de solubles en frío en xileno (XCS) de un valor igual o inferior a un 4,0% en peso, y/o
 (c) una temperatura de fusión T_m determinada mediante calorimetría diferencial de barrido (DSC) de al menos
 25 145°C.
3. Composición de polipropileno según la reivindicación 1 o 2, en donde la matriz de polipropileno cristalino (M-PP)
- 30 (a) tiene un contenido de comonómeros de un valor igual o inferior al de un 4,0% en peso, y/o
 (b) comprende al menos dos distintas fracciones de polipropileno cristalino, diferenciándose dichas fracciones en el contenido de comonómeros.
4. Composición de polipropileno según la reivindicación 3, en donde la matriz de polipropileno cristalino (M-PP) comprende
- 35 (a) al menos una fracción de homopolímero de propileno y/o al menos una fracción de copolímero de propileno aleatorio, y/o
 (b) un homopolímero de propileno (H-PP) y un copolímero de propileno aleatorio (R-PP), en donde adicionalmente la relación en peso (H-PP/R-PP) entre el homopolímero de propileno (H-PP) y el copolímero de propileno aleatorio (R-PP) es preferiblemente de 70/30 a 30/70.
- 40 5. Composición de polipropileno según cualquiera de las reivindicaciones precedentes, en donde la fase de copolímero de propileno elastomérico (E) comprende un primer copolímero de propileno elastomérico (E1) y un segundo copolímero de propileno elastomérico (E2), diferenciándose el primer copolímero de propileno elastomérico (E1) y el segundo copolímero de propileno elastomérico (E2) en su viscosidad intrínseca medida según la norma ISO 1628-1 (a 135°C en decalina).
- 45 6. Composición de polipropileno según la reivindicación 5, en donde la relación en peso (E1/E2) entre el primer copolímero de propileno elastomérico (E1) y el segundo copolímero de propileno elastomérico (E2) es de 80/20 a 20/80.
- 50 7. Composición de polipropileno según la anterior reivindicación 5 o 6, en donde el primer copolímero de propileno elastomérico (E1) tiene
 (I) un contenido de propileno situado dentro de la gama de valores que va desde un 25 hasta un 60% en peso, y
 (II) una viscosidad intrínseca (IV) medida según la norma ISO 1628-1 (a 135°C en decalina) situada dentro de la
 55 gama de valores que va desde el igual o superior al de 0,5 hasta 2,5 dl/g.
8. Composición de polipropileno según cualquiera de las anteriores reivindicaciones 5 a 7, en donde el segundo copolímero de propileno elastomérico (E2) tiene
 (I) un contenido de propileno situado dentro de la gama de valores que va desde un 50 hasta un 85% en peso, y
 (II) una viscosidad intrínseca (IV) medida según la norma ISO 1628-1 (a 135°C en decalina) situada dentro de la
 60 gama de valores que va desde el igual o superior al de 1,0 hasta el de menos de 3,0 dl/g.
9. Composición de polipropileno según cualquiera de las reivindicaciones precedentes, en donde el primer polietileno (PE1) tiene
 (a) un contenido de etileno de al menos un 80% en peso,

- y/o
 (b) una distribución del peso molecular según determinación efectuada mediante cromatografía de permeación en gel (GPC) de al menos 10.
- 5 10. Composición de polipropileno según cualquiera de las reivindicaciones precedentes, en donde el segundo polietileno (PE2) tiene
 (a) un contenido de etileno de al menos un 80% en peso,
 y/o
 10 (b) una distribución del peso molecular según determinación efectuada mediante cromatografía de permeación en gel (GPC) de menos de 10.
11. Composición de polipropileno según cualquiera de las reivindicaciones precedentes, en donde la fase de copolímero de propileno elastomérico (E) es preferiblemente el primer copolímero de propileno elastomérico (E1) y el segundo copolímero de propileno elastomérico (E2), dispersados dentro de la matriz de polipropileno cristalino (M-PP).
 15
12. Composición de polipropileno según cualquiera de las reivindicaciones precedentes, en donde la composición de polipropileno comprende adicionalmente un agente α -nucleante (NA).
 20
13. Composición de polipropileno según cualquiera de las reivindicaciones precedentes, en donde la composición comprende
 (a1) de un 55 a un 80% en peso de la matriz de polipropileno cristalino (M-PP)
 (b1) de un 7,5 a un 30% en peso de la fase de copolímero de propileno elastomérico (E),
 25 (c1) de un 2,5 a un 15% en peso del primer polietileno (PE1),
 (d1) de un 2,5 a un 15% en peso del segundo polietileno (PE2), y
 (e1) de un 0,0005 a un 1,0% en peso del agente α -nucleante (NA),
 o bien
 (a2) de un 55 a un 80% en peso de la matriz de polipropileno cristalino (M-PP)
 (b2) de un 2,5 a un 20% en peso del primer copolímero de propileno elastomérico (E1),
 30 (c2) de un 2,5 a un 20% en peso del segundo copolímero de propileno elastomérico (E2),
 (d2) de un 2,5 a un 15% en peso del primer polietileno (PE1),
 (e2) de un 2,5 a un 15% en peso del segundo polietileno (PE2), y
 (f2) de un 0,0005 a un 1,0% en peso del agente α -nucleante (NA),
 o bien
 35 (a3) de un 15 a un 55% en peso de una primera fracción de polipropileno cristalino que es parte de la matriz de polipropileno cristalino (M-PP),
 (b3) de un 15 a un 55% en peso de una segunda fracción de polipropileno cristalino que es parte de la matriz polipropileno cristalino (M-PP),
 (c3) de un 2,5 a un 20% en peso del primer copolímero de propileno elastomérico (E1),
 40 (d3) de un 2,5 a un 20% en peso del segundo copolímero de propileno elastomérico (E2),
 (e3) de un 2,5 a un 15% en peso del primer polietileno (PE1),
 (f3) de un 2,5 a un 15% en peso del segundo polietileno (PE2), y
 (g3) de un 0,0005 a un 1,0% en peso del agente α -nucleante (NA).
 45
14. Artículo moldeado por inyección que comprende una composición de polipropileno según cualquiera de las reivindicaciones precedentes.
15. Proceso que es para la preparación de una composición de polipropileno según cualquiera de las reivindicaciones precedentes y comprende los pasos de mezclar en una extrusionadora una composición que comprende la matriz de polipropileno (M-PP) y la fase de copolímero de propileno elastomérico (E), el primer polietileno (PE1), el segundo polietileno (PE2) y opcionalmente el agente α -nucleante (NA).
 50

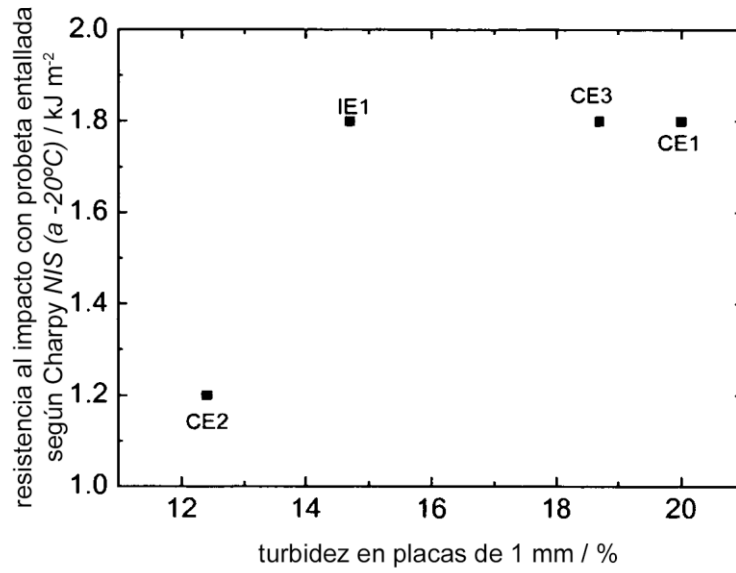


Figura 1:

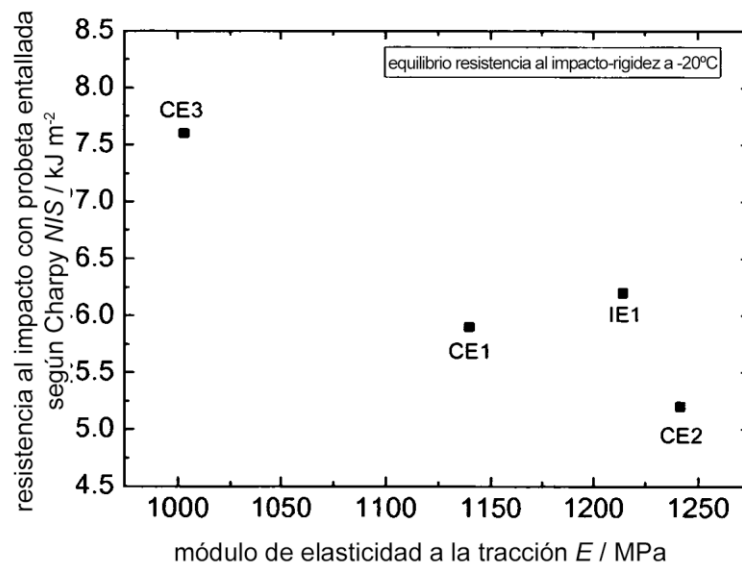


Figura 2:

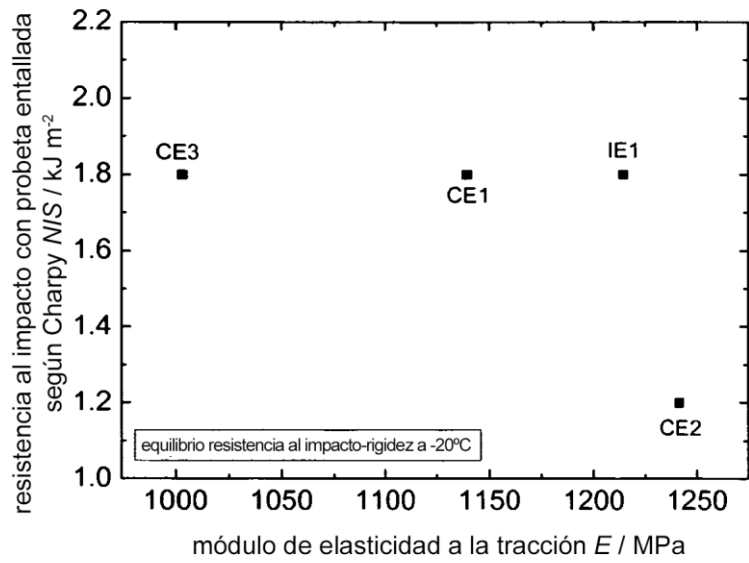


Figura 3:

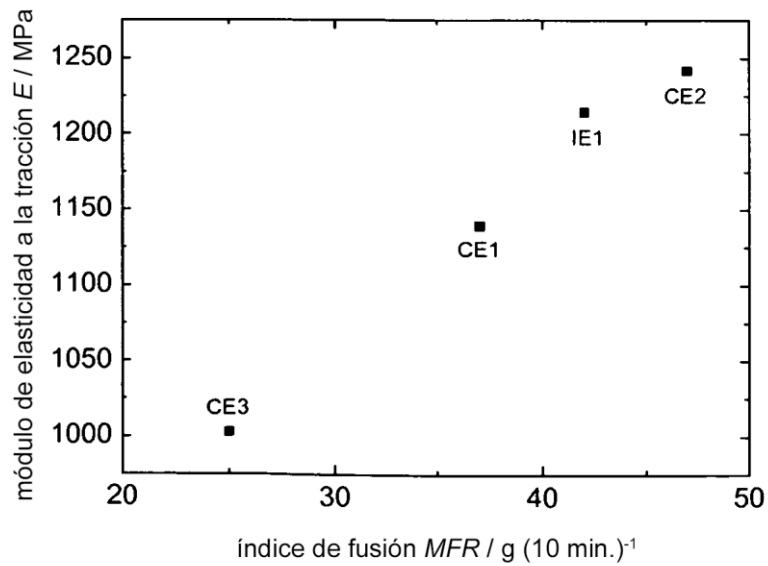


Figura 4: