

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2004-525185

(P2004-525185A)

(43) 公表日 平成16年8月19日(2004.8.19)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>**C07D 211/94****C07D 401/12****C07D 401/14****C08K 5/3435****C08L 101/00**

F 1

C07D 211/94

C07D 401/12

C07D 401/14

C08K 5/3435

C08L 101/00

テーマコード(参考)

4 C054

4 C063

4 J002

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 148 頁)

(21) 出願番号 特願2002-582126 (P2002-582126)  
 (86) (22) 出願日 平成14年4月9日 (2002.4.9)  
 (85) 翻訳文提出日 平成15年10月17日 (2003.10.17)  
 (86) 國際出願番号 PCT/EP2002/003944  
 (87) 國際公開番号 WO2002/083781  
 (87) 國際公開日 平成14年10月24日 (2002.10.24)  
 (31) 優先権主張番号 09/836,100  
 (32) 優先日 平成13年4月17日 (2001.4.17)  
 (33) 優先権主張国 米国(US)

(71) 出願人 396023948  
 チバ スペシャルティ ケミカルズ ホーリデイニング インコーポレーテッド  
 Ciba Specialty Chemicals Holding Inc.  
 スイス国, 4057 バーゼル, クリベック  
 シュトラーセ 141  
 (74) 代理人 100078662  
 弁理士 津国 肇  
 (74) 代理人 100075225  
 弁理士 篠田 文雄  
 (72) 発明者 ウッド, マービン・ゲイル  
 アメリカ合衆国、ニューヨーク 1257  
 O、パークアッグ、ライム・リッジ・ロード 147

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】長鎖立体障害アミン及びこれにより安定化された組成物

## (57) 【要約】

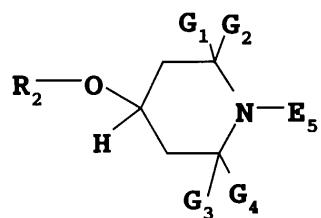
長鎖炭化水素鎖により置換されている立体障害アミン化合物は、該置換により与えられる溶解度又は相溶性が必要とされる多くの応用に有用である。これは、特に、長鎖立体障害アミン単独、又はUV吸収剤及び/又は酸化防止剤と組合せた同アミンを組み込むことにより、変色及び退色に対して効果的に安定化される、例えば、白色、着色、浸漬、無香及び/又は芳香口ウソク用ロウで検討される。

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

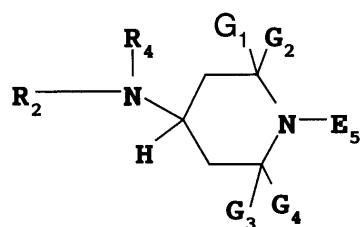
式(1)、(2)、(3)、(4)、(5)又は(6)：

## 【化 1】



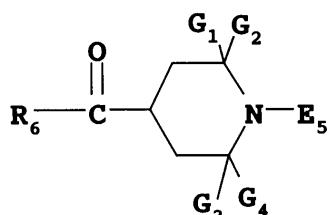
(1)

10



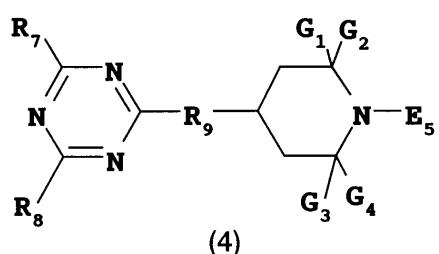
(2)

20

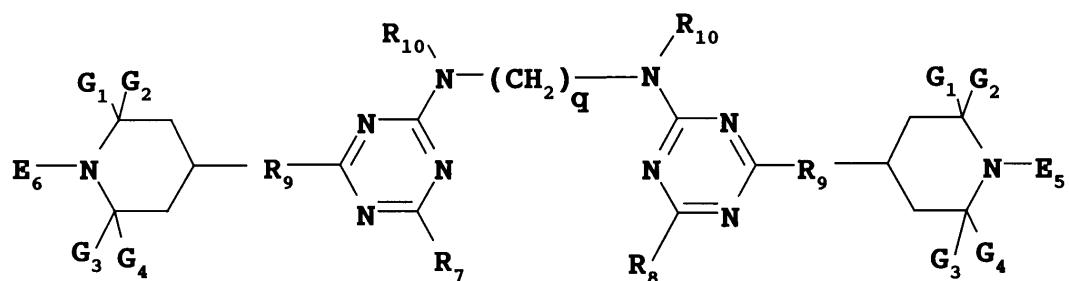


(3)

30

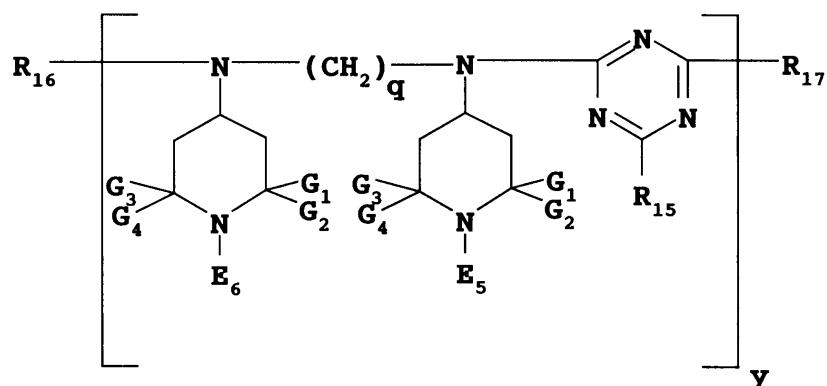


(4)



(5)

10



(6)

20

30

40

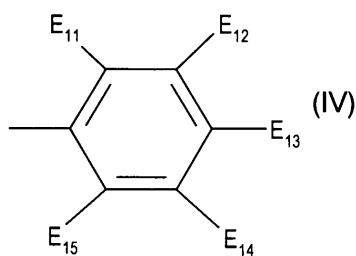
[式中、

$G_1$ 、 $G_2$ 、 $G_3$ 、及び $G_4$ は、独立に、1～8個の炭素原子のアルキルであるか、又は $G_1$ 及び $G_2$ が一緒になって、ペンタメチレンであるか、又は $G_3$ 及び $G_4$ が一緒になって、ペンタメチレンであり；

$E_5$ は、 $O E_9$ 又は $-O-E-(OH)_b$ であり；

$E_9$ は、1～24個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルキル、5～12個の炭素原子のシクロアルキル、3～24個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルケニル、5～12個の炭素原子のシクロアルケニル、7～15個の炭素原子のフェニルアルキル、7～15個の炭素原子の飽和又は不飽和の二環式又は三環式炭化水素のラジカル、6～10個の炭素原子のアリール又は1～4個の炭素原子のアルキル1～3個により置換されている該アリール；あるいは式(IV)：

【化2】



で示される基であり；

$E_{11}$ ～ $E_{15}$ は、独立に、水素、ハロゲン、ニトロ、シアノ、1～18個の炭素原子のアルキル、7～15個の炭素原子のフェニルアルキル、6～10個の炭素原子のアリール、ヒドロキシリル、カルボキシリル、1～18個の炭素原子のアルキルチオ、1～18個の炭素原子のアルコキシ、7～15個の炭素原子のフェニルアルコキシ、6～10個の炭素原子の

50

アリールオキシ、2～18個の炭素原子のアルキルカルボニルオキシ、1～18個の炭素原子のアルキルスルホニル、6～15個の炭素原子のアリールスルホニル、スルホ又はホスホノ、あるいは2つのビシナル置換基が一緒に結合して、単環又は多環式基を形成し；Eは、1～18個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルキレン、5～18個の炭素原子のシクロアルキレン、5～18個の炭素原子のシクロアルケニレン、1～4個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルキレン（フェニル又は1～4個の炭素原子のアルキル基1個若しくは2個により置換されたフェニルにより置換されている）であり；  
bは1、2又は3であり（ただし、bは、Eにおける炭素原子の数を超えることはできず、そしてbが、2又は3であるとき、各ヒドロキシリル基は、Eの異なる炭素原子に結合している）；

10

R<sub>2</sub>は、T<sub>1</sub>、-CO-T<sub>1</sub>、-CO-X-T<sub>1</sub>、-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X-T<sub>1</sub>、-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X-CO-T<sub>1</sub>、-CO-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X-T<sub>1</sub>、又は-CO-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X-CO-T<sub>1</sub>であり；

mは、1～12であり；

pは、1～12であり；

T<sub>1</sub>は、19～100個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、又は1個のヒドロキシリル基により置換されており、かつ1個のオキサ残基で中断されている該アルキル、又はこのようなアルキル残基の混合物であるか；あるいは

T<sub>1</sub>は、-(R-O)<sub>n</sub>-R-O G<sub>5</sub>（ここで、Rは、エチレン、プロピレン、トリメチレン、1,2-ブチレン又はテトラメチレンであり、そしてnは、T<sub>1</sub>における炭素原子の総数が少なくとも20であるような、4～49である）であり；  
20

G<sub>5</sub>は、水素、1～24個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、2～18個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルケニル、5～12個の炭素原子のシクロアルキル、7～15個の炭素原子のフェニルアルキル、フェニル、又はフェニル環上で1～4個の炭素原子のアルキル1～4個により置換されている該フェニル若しくは該フェニルアルキルであり；

X及びX<sub>1</sub>は、独立に-O-、又は-N-(R<sub>4</sub>)-であり；

R<sub>4</sub>は、水素、1～18個の炭素原子のアルキル又は2～6個の炭素原子のアシルであり；

R<sub>6</sub>は、T<sub>1</sub>、-X-T<sub>1</sub>、-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X-T<sub>1</sub>、-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X-CO-T<sub>1</sub>、X-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X<sub>1</sub>-T<sub>1</sub>、又はX-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X<sub>1</sub>-CO-T<sub>1</sub>であり；  
30

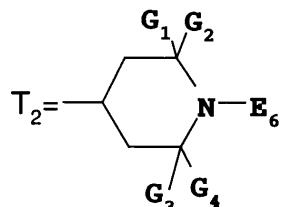
R<sub>7</sub>及びR<sub>8</sub>は、独立に、塩素、1～18個の炭素原子のアルコキシ、-O-T<sub>2</sub>、2-ヒドロキシエチルにより置換されているアミノ、1～18個の炭素原子の-NH（アルキル）、1～18個の炭素原子のアルキルを有する-N（アルキル）T<sub>2</sub>、2～36個の炭素原子の-N（アルキル）<sub>2</sub>、-X-T<sub>1</sub>、X-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X<sub>1</sub>-T<sub>1</sub>、又はX-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X<sub>1</sub>-CO-T<sub>1</sub>であり；

R<sub>9</sub>は、二価酸素原子であるか、又はR<sub>9</sub>は、水素、1～12個の炭素原子のアルキル若しくはT<sub>2</sub>のいずれかにより置換されている二価窒素原子であり；

T<sub>2</sub>は、下記式：

【化3】

40



で示され；

E<sub>6</sub>は、水素、オキシリル、ヒドロキシリル、1～24個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、3～24個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルケニル、ベンジル、アセチル、  
50

- C H<sub>2</sub> C H ( O H ) - E<sub>8</sub>、 - O E<sub>9</sub>、 又は - O E ( O H )<sub>b</sub> であり；

E<sub>8</sub> は、 水素、 メチル、 エチル又はフェニルであり；

R<sub>10</sub> は、 水素又は 1 ~ 18 個の炭素原子のアルキル基であり；

q は、 2 ~ 8 であり；

y は、 1 ~ 10 であり；

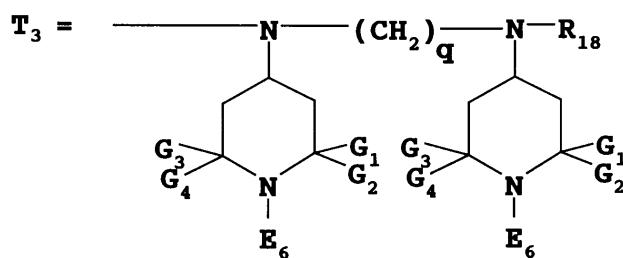
R<sub>15</sub> は、 モルホリノ、 ピペリジノ、 1 - ピペリジニル、 1 ~ 18 個の炭素原子のアルキルアミノ、 特に t e r t - オクチルアミノのような 3 ~ 8 個の炭素原子の分岐鎖アルキルアミノ、 1 ~ 8 個の炭素原子のアルキルを有する - N ( アルキル ) T<sub>2</sub>、 2 ~ 16 個の炭素原子の - N ( アルキル )<sub>2</sub>、 - X - T<sub>1</sub>、 X - ( C H<sub>2</sub> )<sub>m</sub> - C O - X<sub>1</sub> - T<sub>1</sub>、 又は X - ( C H<sub>2</sub> )<sub>p</sub> - X<sub>1</sub> - C O - T<sub>1</sub> であり；

R<sub>16</sub> は、 水素、 2 ~ 4 個の炭素原子のアシル、 1 ~ 4 個の炭素原子のアルキルにより置換されているカルバモイル、 塩素により 1 回及び R<sub>15</sub> により 1 回置換されている s - トリアジニル、 又は R<sub>15</sub> により 2 回置換されている s - トリアジニル（ただし、 2 個の R<sub>15</sub> 置換基は、 異なっていてもよい）であり；

R<sub>17</sub> は、 塩素、 1 ~ 18 個の炭素原子のアルキル若しくは T<sub>2</sub> により置換されているアミノ、 1 ~ 8 個の炭素原子のアルキルを有する - N ( アルキル ) T<sub>2</sub>、 2 ~ 16 個の炭素原子の - N ( アルキル )<sub>2</sub>、 又は T<sub>3</sub> 基であり；

T<sub>3</sub> は、 下記式：

【化 4】



で示され；

R<sub>18</sub> は、 水素、 2 ~ 4 個の炭素原子のアシル、 1 ~ 4 個の炭素原子のアルキルにより置換されているカルバモイル、 2 ~ 16 個の炭素原子の - N ( アルキル )<sub>2</sub> により 2 回置換されている s - トリアジニル又は 1 ~ 8 個の炭素原子のアルキルを有する - N ( アルキル ) T<sub>1</sub> により 2 回置換されている s - トリアジニルである（ただし、

R<sub>7</sub>、 R<sub>8</sub>、 又は R<sub>15</sub> の少なくとも 1 つは、 T<sub>1</sub> 残基を含む基である）] で示される化合物。

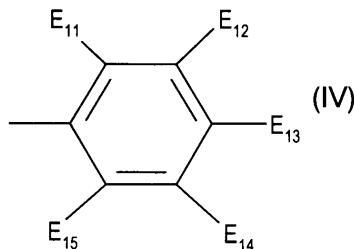
【請求項 2】

G<sub>1</sub>、 G<sub>2</sub>、 G<sub>3</sub>、 及び G<sub>4</sub> が、 それぞれメチルであり；

E<sub>5</sub> が、 O E<sub>9</sub> 又は - O - E - ( O H )<sub>b</sub> であり；

E<sub>9</sub> が、 1 ~ 18 個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルキル、 5 ~ 12 個の炭素原子のシクロアルキル、 3 ~ 24 個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルケニル、 5 ~ 12 個の炭素原子のシクロアルケニル、 あるいは式 (IV) :

【化 5】



で示される基であり；

10

20

30

40

50

$E_{11} \sim E_{15}$  が、独立に、水素、F、Cl、Br、ニトロ、シアノ、ヒドロキシル、カルボキシル、1～18個の炭素原子のアルキルチオ、又は1～18個の炭素原子のアルコキシであり；

bが、1であるとき、 $E-OH$ は、それぞれ、2-メチル-2-プロパノール、2-プロパノール、2,2-ジメチル-1-プロパノール、2-メチル-2-ブタノール、エタノール、1-プロパノール、1-ブタノール、1-ペントノール、1-ヘキサノール、1-ノナノール、1-デカノール、1-ドデカノール、1-オクタデカノール、2-ブタノール、2-ペントノール、2-エチル-1-ヘキサノール、シクロヘキサノール、シクロオクタノール、アリルアルコール、フェネチルアルコール又は1-フェニル-1-エタノールから形成される、炭素中心ラジカルであり；

10

bが、2であるとき、 $E-OH$ は、それぞれ、1,2-エタンジオール、1,2-プロパンジオール、1,3-プロパンジオール、1,2-ブタンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、2,2-ジメチル-1,3-プロパンジオール、1,2-シクロヘキサンジオール、1,3-シクロヘキサンジオール又は1,4-シクロヘキサンジオールから形成される、炭素中心ラジカル又はジラジカルであり；最も好ましくは、 $E-OH$ は、1,4-ブタンジオール、2,2-ジメチル-1,3-プロパンジオール、1,2-シクロヘキサンジオール、1,3-シクロヘキサンジオールから形成されるか、あるいは

bが、3であるとき、 $E-OH$ は、それぞれ、グリセロール、1,1,1-トリス(ヒドロキシメチル)メタン、2-エチル-2-ヒドロキシメチル-1,3-プロパンジオール、1,2,4-ブタントリオール又は1,2,6-ヘキサントリオールから形成される、炭素中心ラジカルであり；

20

$R_2$ が、 $-CO-T_1$ 、 $-CO-X-T_1$ 、 $-(CH_2)_m-CO-X-T_1$ 、又は $-(CH_2)_p-X-CO-T_1$ であり；

mが、1～4であり；

pが、1～4であり；

$T_1$ が、19～80個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、又はこののようなアルキル残基の混合物であるか；あるいは

$T_1$ が、 $-(R-O)_n-R-O G_5$ （ここで、Rは、エチレン、又はプロピレンであり、そしてnは、 $T_1$ における炭素原子の総数が少なくとも20であるような、6～49である）であり；

30

$G_5$ が、水素、1～24個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルキルであり；

X及び $X_1$ が、独立に-O-、又は-N-( $R_4$ )-であり；

$R_4$ が、水素、1～18個の炭素原子のアルキル又は2～6個の炭素原子のアシルであり；

$R_6$ が、 $-X-T_1$ 、 $X-(CH_2)_m-CO-X_1-T_1$ 、又は $X-(CH_2)_p-X_1-CO-T_1$ であり；

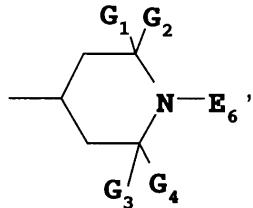
$R_7$ 及び $R_8$ が、独立に、1～18個の炭素原子のアルコキシ、-O-T<sub>2</sub>、2-ヒドロキシエチルにより置換されているアミノ、1～18個の炭素原子の-NH(アルキル)、1～18個の炭素原子のアルキルを有する-N(アルキル)T<sub>2</sub>、-X-T<sub>1</sub>、X-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X<sub>1</sub>-T<sub>1</sub>、又はX-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X<sub>1</sub>-CO-T<sub>1</sub>であり；

40

$R_9$ が、二価酸素原子であるか、又は $R_9$ が、水素、1～12個の炭素原子のアルキル若しくは $T_2$ のいずれかにより置換されている二価窒素原子であり；ここで

$T_2$ は、下記式：

## 【化6】



で示される基であり；

E<sub>6</sub>が、水素、ヒドロキシリ、1～24個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、3～24個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルケニル、ベンジル、アセチル、-O-E<sub>9</sub>、又は-O-E(OH)<sub>b</sub>であり； 10

R<sub>10</sub>が、水素又は1～18個の炭素原子のアルキル基であり；

qが、4～8であり；

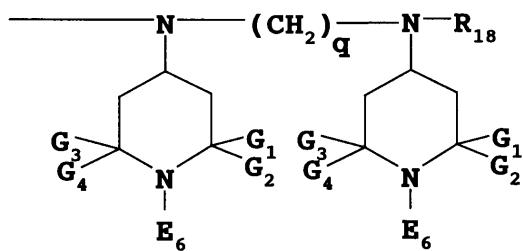
yが、1～10であり；

R<sub>15</sub>が、モルホリノ、ピペリジノ、1-ピペリジニル、1～8個の炭素原子のアルキルアミノ、特にtert-オクチルアミノのような3～8個の炭素原子の分岐鎖アルキルアミノ、-X-T<sub>1</sub>、X-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X<sub>1</sub>-T<sub>1</sub>、又はX-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X<sub>1</sub>-CO-T<sub>1</sub>であり；

R<sub>16</sub>が、水素、2～4個の炭素原子のアシル、1～4個の炭素原子のアルキルにより置換されているカルバモイル、塩素により1回及びR<sub>15</sub>により1回置換されているs-トリアジニルであり； 20

R<sub>17</sub>が、1～18個の炭素原子のアルキル若しくはT<sub>2</sub>により置換されているアミノ、1～8個の炭素原子のアルキルを有する-N(アルキル)T<sub>2</sub>、2～16個の炭素原子の-N(アルキル)<sub>2</sub>、又は下記式：

## 【化7】



で示される、T<sub>3</sub>基であり；そして

R<sub>18</sub>が、水素である、請求項1記載の化合物。

## 【請求項3】

G<sub>1</sub>、G<sub>2</sub>、G<sub>3</sub>、及びG<sub>4</sub>が、それぞれメチルであり；

E<sub>5</sub>が、OE<sub>9</sub>又は-O-E-(OH)<sub>b</sub>であり；

E<sub>9</sub>が、1～12個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、又は5～10個の炭素原子のシクロアルキルであり； 40

bが、1であり、かつE-OHが、2-メチル-2-プロパノールから形成される、炭素中心ラジカルであり；

R<sub>2</sub>が、-CO-T<sub>1</sub>であり；

T<sub>1</sub>が、19～60個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、又はこのようなアルキル残基の混合物であり；

R<sub>4</sub>が、水素又はメチルであり；

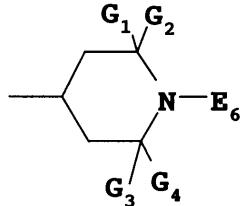
式(3)中のXが、-O-であり、かつR<sub>6</sub>が、-X-T<sub>1</sub>であり；

式(4)中のX及びX<sub>1</sub>が、独立に、-O-、又は-N-(R<sub>4</sub>)-であり；

R<sub>7</sub>及びR<sub>8</sub>が、独立に、-O-T<sub>2</sub>、1～18個の炭素原子のアルキルを有する-N(ア 50

ルキル)  $T_2$ 、 $-X-T_1$ 、又は  $X-(C_2H_5)_p-X_1-CO-T_1$  であり；  
 $R_9$  が、二価酸素原子であるか、又は  $R_9$  が、水素、1～12個の炭素原子のアルキル若しくは  $T_2$  のいずれかにより置換されている二価窒素原子であり；ここで  
 $T_2$  は、下記式：

## 【化8】



10

で示される基であり；そして

$E_6$  が、水素、ヒドロキシル、1～12個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、アセチル、 $-O-E_9$ 、又は  $-OEOH$  である、式(1)、(2)、(3)又は(4)の請求項1記載の化合物。

## 【請求項4】

- (a) 2,4-ビス[ $N-n$ -ブチル- $N-(1$ -シクロヘキシリオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)アミノ]-6-[2-( $C_{20}-C_{40}$ アルカノイルオキシ)エチル]アミノ-s-トリアジン；
- (b) 1-シクロヘキシリオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-4- $C_{20}-C_{40}$ アルカノイルオキシピペリジン；
- (c) 4- $C_{40}-C_{60}$ アルカノイルオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-1-メトキシピペリジン；
- (d) 4- $C_{20}-C_{40}$ アルカノイルオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-1-オクチルオキシピペリジン；
- (e) 4- $C_{20}-C_{40}$ アルカノイルオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-1-(2-メチル-2-ヒドロキシプロピルオキシ)ピペリジン；
- (f) 4- $C_{40}-C_{60}$ アルカノイルオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-1-(2-メチル-2-ヒドロキシプロピルオキシ)ピペリジン；
- (g) 4-( $N$ -メチル- $N-C_{20}-C_{40}$ アルカノイル)アミノ-2,2,6,6-テトラメチル-1-メトキシピペリジン；
- (h) 4-( $N$ -メチル- $N-C_{20}-C_{40}$ アルカノイル)アミノ-2,2,6,6-テトラメチル-1-(2-メチル-2-ヒドロキシプロピルオキシ)ピペリジン；
- (i) 1-メトキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イルカルボン酸 $C_{20}-C_{40}$ アルキル；
- (j) 1-シクロヘキシリオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イルカルボン酸 $C_{40}-C_{60}$ アルキル；
- (k) 1-(2-メチル-2-ヒドロキシプロピルオキシ)-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イルカルボン酸 $C_{20}-C_{40}$ アルキル；
- (l) 2,4-ビス[ $N-n$ -ブチル- $N-(1$ -メトキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)アミノ]-6-[2-( $C_{20}-C_{40}$ アルカノイルオキシ)エチル]アミノ-s-トリアジン；
- (m) 2,4-ビス(1-オクチルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イルオキシ)-6-( $C_{20}-C_{40}$ アルキルオキシ)-s-トリアジン；
- (n) 2,4-ビス{ $N-n$ -ブチル- $N-[1-(2-メチル-2-ヒドロキシプロピルオキシ)-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル]アミノ}-6-[2-( $C_{20}-C_{40}$ アルカノイルオキシ)エチル]アミノ-s-トリアジン；又は$
- (o) 2,4-ビス[1-(2-メチル-2-ヒドロキシプロピルオキシ)-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イルオキシ]-6-( $C_{40}-C_{60}$ アルキルオキシ)-s-トリアジンである、請求項1記載の化合物。

40

50

**【請求項 5】**

(a) 下記

i) 熱可塑性若しくは熱硬化性樹脂；

ii) 記録材料；又は

iii) 白色無香、若しくは白色芳香、又は着色無香、若しくは着色芳香、又は浸漬無香、若しくは浸漬芳香である、ロウソク用ロウ

である、有機材料、及び

(b) 請求項1記載の式(1)、(2)、(3)、(4)、(5)又は(6)の化合物を含むことを特徴とする組成物。

**【請求項 6】**

成分(a)が、ポリオレフィン、ポリアミド及びポリエステルから選択される熱可塑性樹脂、又はロウソク用ロウである、請求項5記載の組成物。 10

**【請求項 7】**

(a) 白色無香；白色芳香；着色無香；着色芳香；浸漬無香；又は浸漬芳香である、ロウソク用ロウ、及び追加の成分(c)として、UV吸収剤若しくは酸化防止剤、又はUV吸収剤と酸化防止剤を含み、ここで、成分(b)対(c)の重量比は、10:1~1:10であることを特徴とする、請求項5記載の組成物。

**【請求項 8】**

安定化組成物の0.01~5重量%の量で成分(b)を含む、請求項5記載の組成物。

**【請求項 9】**

追加の成分(c)として、UV吸収剤、酸化防止剤及び更に別の立体障害アミンから選択される添加剤を含む、請求項5記載の組成物。 20

**【請求項 10】**

追加の成分(c)が、ベンゾトリアゾール、ベンゾフェノン、-シアノアクリラート、オキサニリド、s-トリアジン、シンナマート、マロナート、ベンゾアート、サリチラート、又はこれらの混合物から選択される、UV吸収剤である、請求項9記載の組成物。

**【発明の詳細な説明】****【技術分野】****【0001】**

本発明は、長鎖炭化水素鎖により置換されており、そして該置換により与えられる溶解度又は相溶性が必要とされる多くの応用に有用な、立体障害アミン化合物に関する。これは、特に、長鎖立体障害アミン単独、又はUV吸収剤及び/又は酸化防止剤と組合せた同アミンを組み込むことにより、変色及び退色に対して効果的に安定化される、例えば、白色、着色、浸漬、無香及び/又は芳香ロウソク用ロウで検討される。 30

**【0002】****発明の背景**

ロウソクは、紀元前8世紀まで遡って何十世紀にもわたり知られている。ロウソクの性質は、「ウルマンの工業化学事典(Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry)」、A5巻、29-30ページに記述されているが、ここでロウソクは、基本材料としてパラフィン、ミツロウ及びステアリンから作られ、そしてそこに多数の添加剤も存在してよいことが判る。 40

**【0003】**

ロウソク及びロウがますます重要になるにつれ、どのように該材料を安定化するかということに注意が払われるようになったことは、驚くに当たらない。1994年ヒューストンにおける全国ロウソク協会会議(National Candle Association Meeting in Houston)において、R. van der Vennetは、酸化されてロウが黄変するのを防ぐための酸化防止剤としてのビタミンE(トコフェロール)の使用を勧める「ロウにおける酸化防止剤-BHTの代替品」に関する論文を発表した。WO 94/13736は、同じ発明を記述している。

**【0004】**

EP 359,488 A3及びEP 133,964 B1は、化粧品において使用される安定化ロウを記述してい 50

るが、ここでそのロウは、ロウソクで使用されるものと同じか類似したものである。

【0005】

EP 5,922 A1は、口唇用化粧品を記述しているが、ここでロウは、口紅において有用であり、そしてロウソクにおいて有用なロウと関連がある。

【0006】

米国特許第5,879,694号は、組成と構造の両方について透明ゲルロウソクを詳細に記述している。酸化防止剤としてBHTの使用が言及されている。

【0007】

1998年4月16日の全国ロウソク協会技術会議(National Candle Association Technical Meeting)において、F.A. Ballentineらは、「サイアソーブ(CYASORB)(登録商標)光吸收剤による着色ロウソクの退色の阻害」と題する論文を発表したが、ここでは、着色ロウソク用ロウの着色安定性に及ぼす光吸收剤の効果に関するデータに沿って、熱酸化及び光分解の一般理論が考察されている。比較した光吸收剤は、4-オクチルオキシ-2-ヒドロキシベンゾフェノンUV-531; 4-メトキシ-2-ヒドロキシベンゾフェノンUV-9; 2-(2-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)-2H-ベンゾトリアゾールUV-5365; 2-(2-ヒドロキシ-5-tert-オクチルフェニル)-2H-ベンゾトリアゾールUV-5411及び2-(2-ヒドロキシ-3,5-ジ-tert-アミルフェニル)-2H-ベンゾトリアゾールUV-2337である。

10

【0008】

米国特許第5,964,905号は、トリブロックコポリマー及び引火点の高い炭化水素油を含む、着色芳香ロウソクのゲルを教示している。この参考文献は、光(UV)吸収剤を、可視光又は紫外線に曝露される際のロウソクの色の貯蔵安定性を改善するために使用できることを教示している。2つの好ましい吸収剤は、p-メトキシケイ皮酸エチルヘキシル(パルソール(PARSOL)(登録商標)MCX、ロシュ(Roche))及び2-(2-ヒドロキシ-5-tert-オクチルフェニル)-2H-ベンゾトリアゾール(サイアソーブ(CYASORB)(登録商標)5411、サイテック(Cytec))である。

20

【0009】

WO 00/22037は、場合によりマロナート化合物構造の一部として立体障害アミン残基を含んでもよい、マロナートUV吸収剤を用いる、ロウソクを含む固体の成形した着色ロウ製品の安定化を教示している。このロウ製品は、種々の油溶性染料及び顔料で着色される。p-メトキシベンジリデンマロン酸ジメチルにより保護された試料は、選択されるベンゾトリアゾール又はベンゾフェノンUV吸収剤で安定化された試料よりも、変色に対して良好な耐性を示した。

30

【0010】

日本の特願平3-278554は、有機顔料により着色されたロウのクレヨン(素描材料)が、立体障害アミン及び/又はベンゾトリアゾールにより安定化できることを教示している。

40

【0011】

ロウの安定化に関して、選択される立体障害アミン及び/又はベンゾトリアゾールUV吸収剤の使用はまた、米国特許第3,530,084号; 4,379,721号; 4,616,051号、並びに5,964,905号及び同時係属出願の出願番号09/495,495、09/495,496及び09/741,583に示されるように、先行技術においても知られている。

40

【0012】

米国特許第4,046,737号; 4,021,432号及び4,049,647号は、1~20個の炭素原子のアルキル、アルケニル又はアルキニル基により置換されているピペリジン誘導体を教示している。

【0013】

日本の特開昭57-137,358は、N原子で、重合性二重結合を含む基により置換されたピペリジン誘導体を記述している。

【0014】

EP 300,160及び日本の特開平11-263,884は、4位で16~24個の炭素原子のモノカルボ

50

ン酸により置換されたピペリジン誘導体を記述している。得られる立体障害アミンは、潤滑油、化粧品及びポリオレフィンを安定化するのに有用である。

【0015】

米国特許第4,376,836号は、立体障害ピペリジン基により置換されたトリアジルアミノトリアジン（ここで、該分子における最長鎖は、18個の炭素原子を含む）を開示している。これらの分子は、ポリオレフィンを安定化するために使用される。

【0016】

米国特許第4,319,030号は、1～30個の炭素原子のアルキル基を含んでもよいアルキル化ジアザ-スピロデカンを教示している。これらの化合物は、ポリオレフィン用の安定剤として使用される。

10

【0017】

米国特許第4,986,932号は、ベンゾトリアゾール又はベンゾフェノンUV吸収剤、及び4位で16～24個の炭素原子を含むエステル基により置換された立体障害ピペリジンを含む、ポリオレフィン組成物を記述している。

【0018】

米国特許第4,308,362号は、ポリオレフィンの安定化に有用な、重合性立体障害ピペリジン誘導体のコポリマーを開示している。

【0019】

米国特許第4,198,334号は、1～20個の炭素原子のアルキル基で置換されていてもよい立体障害ピペリジン誘導体を含む、置換マロン酸誘導体を教示している。

20

【0020】

米国特許第4,496,649号は、分子内に立体障害ピペリジン誘導体を含む他、芳香族残基を含む、カラー写真記録材料を記述している。

【0021】

米国特許第4,141,883号は、4位で1～18個の炭素原子のアルキルオキシ又はアシルオキシ基により置換された2,2,6,6-テトラアルキルピペリジン化合物を開示している。これらの物質は、ポリオレフィンを安定化するのに有用である。

【0022】

米国特許第4,471,417号は、立体障害アミンピペリジン残基及び1～18個の炭素原子のアルキル基を含む、ポリ-ビス-トリアジニルイミドを教示している。これらの化合物は、ポリオレフィンを安定化するのに有用である。

30

【0023】

米国特許第4,533,688号は、1～18個の炭素原子のアルキル残基を含むトリス（ピペリジルアミノトリアジルアミノ）化合物を開示している。これらの化合物は、ポリオレフィンの安定化に有用である。

【0024】

米国特許第5,204,473号及び同時係属出願の出願番号09/257,711は、本化合物に関係するが、長鎖置換のない立体障害アミン化合物を記述している。

【0025】

これらの参考文献はいずれも、本長鎖立体障害アミン化合物自体、あるいは該長鎖立体障害アミン化合物が、ロウソク用ロウ及び他の分解を受けやすい組成物を安定化するために、単独又はUV吸収剤及び／若しくは酸化防止剤と共に使用されるとき提供される優れた性能を教示していない。

40

【0026】

発明の目的

本発明の目的は、長鎖炭化水素残基により置換された立体障害アミン化合物を提供することである。

【0027】

本発明の別の目的は、長鎖立体障害アミン又はUV吸収剤化合物単独、あるいはUV吸収剤及び／又は酸化防止剤との組合せにより安定化された、白色無香；白色芳香；着色無香

50

; 着色芳香 ; 浸漬無香 ; 又は浸漬芳香口ソク用口ウを提供することである。

【0028】

本発明の更に別の目的は、本立体障害アミンで安定化された熱可塑性樹脂組成物、特にポリオレフィン及びポリエステルである。

【0029】

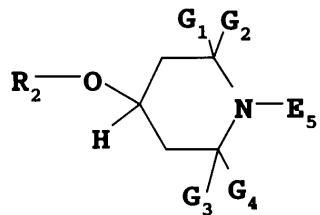
詳細な開示

本発明は、式(1)～(6)：

【0030】

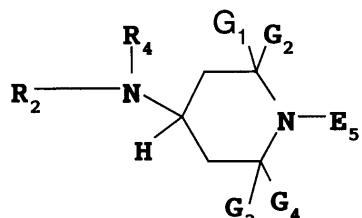
【化9】

10



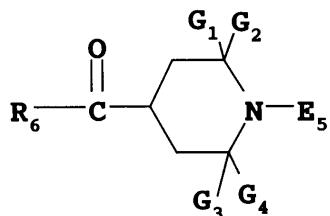
(1)

20



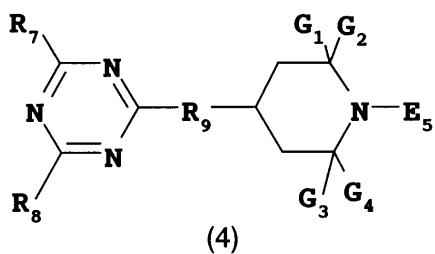
(2)

30

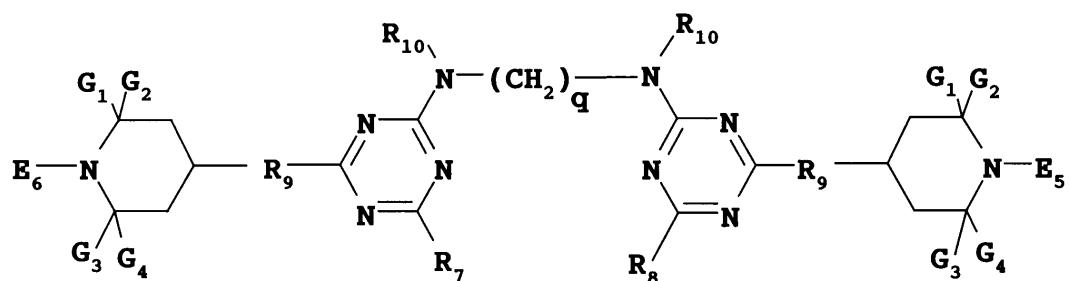


(3)

40

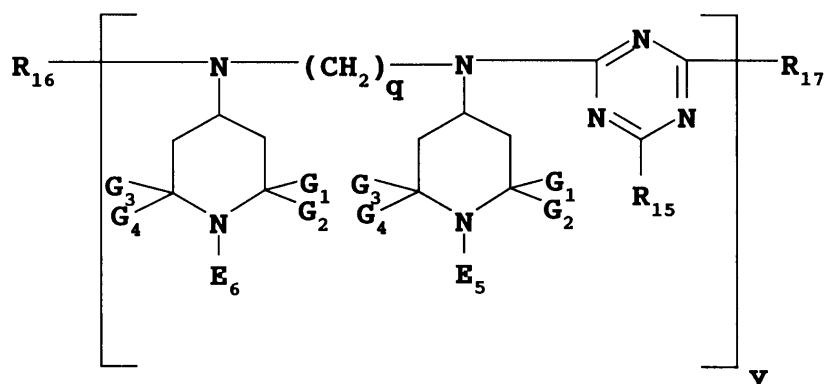


(4)



(5)

10



(6)

20

30

## 【0031】

[式中、

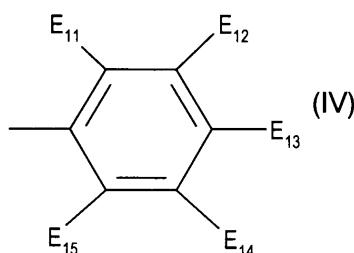
$G_1$ 、 $G_2$ 、 $G_3$ 、及び $G_4$ は、独立に、1～8個の炭素原子のアルキルであるか、又は $G_1$ 及び $G_2$ が一緒になって、ペンタメチレンであるか、又は $G_3$ 及び $G_4$ が一緒になって、ペンタメチレンであり；

$E_5$ は、 $O E_9$ 又は $-O-E-(OH)_n$ であり；

$E_9$ は、1～24個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルキル、5～12個の炭素原子のシクロアルキル、3～24個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルケニル、5～12個の炭素原子のシクロアルケニル、7～15個の炭素原子のフェニルアルキル、7～15個の炭素原子の飽和又は不飽和の二環式又は三環式炭化水素のラジカル、6～10個の炭素原子のアリール又は1～4個の炭素原子のアルキル1～3個により置換されている該アリール；あるいは式(IV)：

## 【0032】

【化10】



40

## 【0033】

で示される基であり；

$E_{11}$ ～ $E_{15}$ は、独立に、水素、ハロゲン、ニトロ、シアノ、1～18個の炭素原子のアル

50

キル、7～15個の炭素原子のフェニルアルキル、6～10個の炭素原子のアリール、ヒドロキシル、カルボキシル、1～18個の炭素原子のアルキルチオ、1～18個の炭素原子のアルコキシ、7～15個の炭素原子のフェニルアルコキシ、6～10個の炭素原子のアリールオキシ、2～18個の炭素原子のアルキルカルボニルオキシ、1～18個の炭素原子のアルキルスルホニル、6～15個の炭素原子のアリールスルホニル、スルホ又はホスホノ、あるいは2つのビシナル置換基が一緒に結合して、単環又は多環式基を形成し；Eは、1～18個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルキレン、5～18個の炭素原子のシクロアルキレン、5～18個の炭素原子のシクロアルケニレン、1～4個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルキレン（フェニル又は1～4個の炭素原子のアルキル基1個若しくは2個により置換されたフェニルにより置換されている）であり；

bは1、2又は3であり（ただし、bは、Eにおける炭素原子の数を超えることはできず、そしてbが、2又は3であるとき、各ヒドロキシル基は、Eの異なる炭素原子に結合している）；

R<sub>2</sub>は、T<sub>1</sub>、-CO-T<sub>1</sub>、-CO-X-T<sub>1</sub>、-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X-T<sub>1</sub>、-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X-CO-T<sub>1</sub>、-CO-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X-T<sub>1</sub>、又は-CO-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X-CO-T<sub>1</sub>であり；

mは、1～12であり；

pは、1～12であり；

T<sub>1</sub>は、19～100個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、又は1個のヒドロキシル基により置換されており、かつ1個のオキサ残基で中断されている該アルキル、又はこのようなアルキル残基の混合物であるか；あるいは

T<sub>1</sub>は、-(R-O)<sub>n</sub>-R-O G<sub>5</sub>（ここで、Rは、エチレン、プロピレン、トリメチレン、1，2-ブチレン又はテトラメチレンであり、そしてnは、T<sub>1</sub>における炭素原子の総数が少なくとも20であるような、4～49である）であり；

G<sub>5</sub>は、水素、1～24個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、2～18個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルケニル、5～12個の炭素原子のシクロアルキル、7～15個の炭素原子のフェニルアルキル、フェニル、又はフェニル環上で1～4個の炭素原子のアルキル1～4個により置換されている該フェニル若しくは該フェニルアルキルであり；

X及びX<sub>1</sub>は、独立に-O-、又は-N-(R<sub>4</sub>)-であり；

R<sub>4</sub>は、水素、1～18個の炭素原子のアルキル又は2～6個の炭素原子のアシルであり；

R<sub>6</sub>は、T<sub>1</sub>、-X-T<sub>1</sub>、-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X-T<sub>1</sub>、-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X-CO-T<sub>1</sub>、X-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X-T<sub>1</sub>、又はX-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X-T<sub>1</sub>であり；

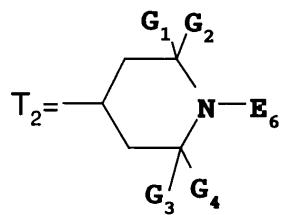
R<sub>7</sub>及びR<sub>8</sub>は、独立に、塩素、1～18個の炭素原子のアルコキシ、-O-T<sub>2</sub>、2-ヒドロキシエチルにより置換されているアミノ、1～18個の炭素原子の-NH（アルキル）、1～18個の炭素原子のアルキルを有する-N（アルキル）T<sub>2</sub>、2～36個の炭素原子の-N（アルキル）<sub>2</sub>、-X-T<sub>1</sub>、X-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X-T<sub>1</sub>、又はX-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X-T<sub>1</sub>であり；

R<sub>9</sub>は、二価酸素原子であるか、又はR<sub>9</sub>は、水素、1～12個の炭素原子のアルキル若しくはT<sub>2</sub>のいずれかにより置換されている二価窒素原子であり；

T<sub>2</sub>は、下記式：

【0034】

【化11】



【 0 0 3 5 】

で示され；

$E_6$  は、水素、オキシリル、ヒドロキシリル、1～24個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、3～24個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルケニル、ベンジル、アセチル、 $-CH_2CH(OH)-E_8$ 、 $-OE_9$ 、又は $-OE(OH)_b$ であり；

$E_8$ は、水素、メチル、エチル又はフェニルであり；

$R_{10}$  は、水素又は 1 ~ 18 個の炭素原子のアルキル基であり；

$q$  は、2～8であり；

y は、1 ~ 10 であり；

$R_{15}$  は、モルホリノ、ピペリジノ、1-ピペリジニル、1~18個の炭素原子のアルキルアミノ、特にtert-オクチルアミノのような3~8個の炭素原子の分岐鎖アルキルアミノ、1~8個の炭素原子のアルキルを有する-N(アルキル)<sub>2</sub>、2~16個の炭素原子の-N(アルキル)<sub>2</sub>、-X-T<sub>1</sub>、X-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X<sub>1</sub>-T<sub>1</sub>、又はX-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X<sub>1</sub>-CO-T<sub>1</sub>であり；

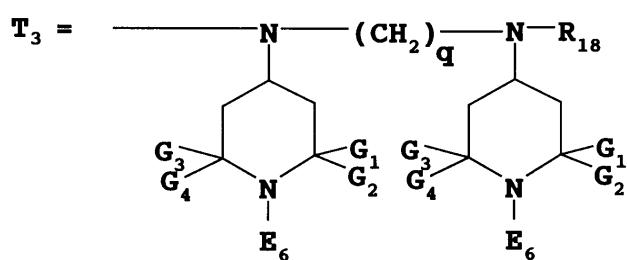
$R_{16}$  は、水素、2～4個の炭素原子のアシル、1～4個の炭素原子のアルキルにより置換されているカルバモイル、塩素により1回及び $R_{15}$ により1回置換されているs-トリアジニル、又は $R_{15}$ により2回置換されているs-トリアジニル（ただし、2個の $R_{15}$ 置換基は、異なっていてもよい）であり；

$R_{17}$  は、塩素、1～18個の炭素原子のアルキル若しくは $T_2$ により置換されているアミノ、1～8個の炭素原子のアルキルを有する $-N(\text{アルキル})T_2$ 、2～16個の炭素原子の $-N(\text{アルキル})_2$ 又は $T_2$ 基であり：

$T_3$  は、下記式：

[ 0 0 3 6 ]

【化 1 2】



【 0 0 3 7 】

で示され；

$R_{18}$  は、水素、2～4個の炭素原子のアシル、1～4個の炭素原子のアルキルにより置換されているカルバモイル、2～16個の炭素原子の $-N(\text{アルキル})_2$ により2回置換されている $s$ -トリアジニル又は1～8個の炭素原子のアルキルを有する $-N(\text{アルキル})T_1$ により2回置換されている $s$ -トリアジニルである（ただし、

R<sub>2</sub>、R<sub>6</sub>、R<sub>10</sub>

$T_1$ が、アルキル基であっても、 $- (R - O)_n - R - OG_5$ 基であっても、このような残

。

## 【0039】

Rが、エチレンであるとき、T<sub>1</sub>基は、-(CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>O)<sub>n</sub>-CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>OOG<sub>5</sub>(ここで、nは、9~49である)である。

## 【0040】

Rが、プロピレンであるとき、T<sub>1</sub>基は、-(CH(CH<sub>3</sub>)CH<sub>2</sub>O)<sub>n</sub>-CH(CH<sub>3</sub>)CH<sub>2</sub>OOG<sub>5</sub>(ここで、nは、6~32である)である。

## 【0041】

Rが、トリメチレンであるとき、T<sub>1</sub>基は、-(CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>O)<sub>n</sub>-CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>OOG<sub>5</sub>(ここで、nは、6~32である)である。 10

## 【0042】

Rが、テトラメチレンであるとき、T<sub>1</sub>基は、-(CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>O)<sub>n</sub>-CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>OOG<sub>5</sub>(ここで、nは、4~24である)である。また、T<sub>1</sub>が、-(CH(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)CH<sub>2</sub>O)<sub>n</sub>-CH(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)CH<sub>2</sub>OOG<sub>5</sub>(ここで、nは、4~24である)であるためには、Rは、1,2-ブチレンである。

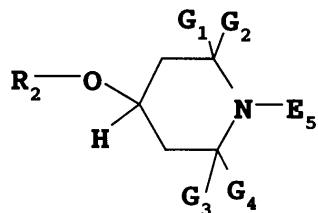
## 【0043】

式(1)の他の実施態様は、下記式(1)：

## 【0044】

## 【化13】

20



(1)

## 【0045】

[式中、

30

G<sub>1</sub>、G<sub>2</sub>、G<sub>3</sub>、及びG<sub>4</sub>は、それぞれメチルであり；

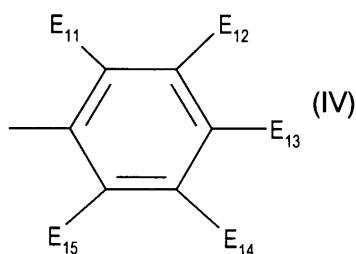
E<sub>5</sub>は、OEG<sub>9</sub>又は-O-E-(OH)<sub>b</sub>であり；

E<sub>9</sub>は、1~18個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルキル、5~12個の炭素原子のシクロアルキル、3~24個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルケニル、5~12個の炭素原子のシクロアルケニル、あるいは式(IV)：

## 【0046】

## 【化14】

40



## 【0047】

で示される基であり；

E<sub>11</sub>~E<sub>15</sub>は、独立に、水素、F、Cl、Br、ニトロ、シアノ、ヒドロキシル、カルボキシル、1~18個の炭素原子のアルキルチオ、又は1~18個の炭素原子のアルコキシであり；

50

bが、1であるとき、E-OHは、それぞれ、2-メチル-2-プロパノール、2-プロパノール、2,2-ジメチル-1-プロパノール、2-メチル-2-ブタノール、エタノール、1-プロパノール、1-ブタノール、1-ペンタノール、1-ヘキサノール、1-ノナノール、1-デカノール、1-ドデカノール、1-オクタデカノール、2-ブタノール、2-ペンタノール、2-エチル-1-ヘキサノール、シクロヘキサノール、シクロオクタノール、アリルアルコール、フェネチルアルコール又は1-フェニル-1-エタノールから形成される、炭素中心ラジカルであり；

bが、2であるとき、E-OHは、それぞれ、1,2-エタンジオール、1,2-プロパンジオール、1,3-プロパンジオール、1,2-ブタンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、2,2-ジメチル-1,3-プロパンジオール、1,2-シクロヘキサンジオール、1,3-シクロヘキサンジオール又は1,4-シクロヘキサンジオールから形成される、炭素中心ラジカル又はジラジカルであり；最も好ましくは、E-OHは、1,4-ブタンジオール、2,2-ジメチル-1,3-プロパンジオール、1,2-シクロヘキサンジオール、1,3-シクロヘキサンジオールから形成されるか、あるいは

bが、3であるとき、E-OHは、それぞれ、グリセロール、1,1,1-トリス(ヒドロキシメチル)メタン、2-エチル-2-ヒドロキシメチル-1,3-プロパンジオール、1,2,4-ブタントリオール又は1,2,6-ヘキサントリオールから形成される、炭素中心ラジカルであり；

$R_2$ は、 $-CO-T_1$ 、 $-CO-X-T_1$ 、 $-(CH_2)_m-CO-X-T_1$ 、又は $-(CH_2)_p-X-CO-T_1$ であり；

mは、1~4であり；

pは、1~4であり；

$T_1$ は、19~80個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、又はこのようなアルキル残基の混合物であるか；あるいは

$T_1$ は、 $-(R-O)_n-R-O G_5$ (ここで、Rは、エチレン、又はプロピレンであり、そしてnは、 $T_1$ における炭素原子の総数が少なくとも20であるような、6~49である)であり；

$G_5$ は、水素、1~24個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルキルであり；

X及び $X_1$ は、独立に $-O-$ 、又は $-N-(R_4)-$ であり；そして

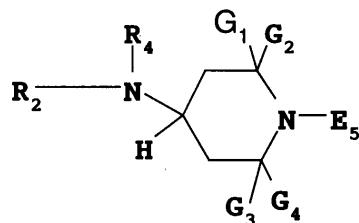
$R_4$ は、水素、1~18個の炭素原子のアルキル又は2~6個の炭素原子のアシルである]で示される。

#### 【0048】

式(2)の他の実施態様は、下記式：

#### 【0049】

#### 【化15】



#### 【0050】

[式中、

$G_1$ 、 $G_2$ 、 $G_3$ 、及び $G_4$ は、それぞれメチルであり；

$E_5$ は、 $O E_9$ 又は $-O-E-(OH)_b$ であり；

$E_9$ は、1~18個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルキル、5~12個の炭素原子のシクロアルキル、3~24個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルケニル、5~12個の炭素原子のシクロアルケニル、あるいは式(IV)：

10

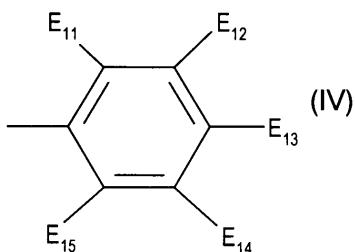
30

40

50

【0051】

【化16】



10

【0052】

で示される基であり；

$E_{11} \sim E_{15}$  は、独立に、水素、F、Cl、Br、ニトロ、シアノ、ヒドロキシル、カルボキシル、1～18個の炭素原子のアルキルチオ、又は1～18個の炭素原子のアルコキシであり；

bが、1であるとき、 $E-OH$ は、それぞれ、2-メチル-2-プロパノール、2-プロパノール、2,2-ジメチル-1-プロパノール、2-メチル-2-ブタノール、エタノール、1-ブロパノール、1-ブタノール、1-ペンタノール、1-ヘキサノール、1-ノナノール、1-デカノール、1-ドデカノール、1-オクタデカノール、2-ブタノール、2-ペンタノール、2-エチル-1-ヘキサノール、シクロヘキサノール、シクロオクタノール、アリルアルコール、フェネチルアルコール又は1-フェニル-1-エタノールから形成される、炭素中心ラジカルであり；

bが、2であるとき、 $E-OH$ は、それぞれ、1,2-エタンジオール、1,2-プロパンジオール、1,3-プロパンジオール、1,2-ブタンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、2,2-ジメチル-1,3-プロパンジオール、1,2-シクロヘキサンジオール、1,3-シクロヘキサンジオール又は1,4-シクロヘキサンジオールから形成される、炭素中心ラジカル又はジラジカルであり；

bが、3であるとき、 $E-OH$ は、それぞれ、グリセロール、1,1,1-トリス(ヒドロキシメチル)メタン、2-エチル-2-ヒドロキシメチル-1,3-プロパンジオール、1,2,4-ブタントリオール又は1,2,6-ヘキサントリオールから形成される、炭素中心ラジカルであり；

$R_2$ は、 $-CO-T_1$ 、 $-CO-X-T_1$ 、 $-(CH_2)_m-CO-X-T_1$ 、又は $-(CH_2)_p-X-CO-T_1$ であり；

$m$ は、1～4であり；

$p$ は、1～4であり；

$T_1$ は、19～80個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、又はこのようなアルキル残基の混合物であるか；あるいは

$T_1$ は、 $-(R-O)_n-R-O G_5$ (ここで、Rは、エチレン、又はプロピレンであり、そしてnは、 $T_1$ における炭素原子の総数が少なくとも20であるような、6～49である)であり；

$G_5$ は、水素、1～24個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルキルであり；

X及び $X_1$ は、独立に $-O-$ 、又は $-N-(R_4)-$ であり；そして

$R_4$ は、水素、1～18個の炭素原子のアルキル又は2～6個の炭素原子のアシルである]で示される。

【0053】

式(3)の他の実施態様は、下記式(3)：

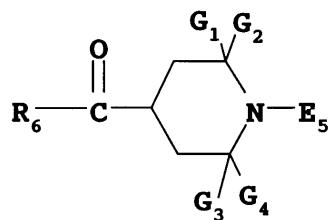
【0054】

【化17】

20

30

40



(3)

【0055】

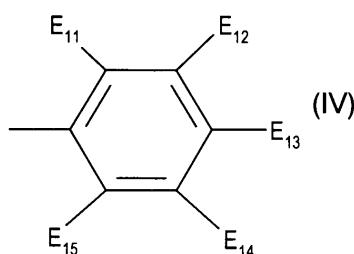
[式中、

10

 $G_1$ 、 $G_2$ 、 $G_3$ 、及び $G_4$ は、それぞれメチルであり； $E_5$ は、 $O E_9$ 又は $-O-E-(OH)_n$ であり； $E_9$ は、1～24個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルキル、5～12個の炭素原子のシクロアルキル、3～24個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルケニル、又は5～12個の炭素原子のシクロアルケニル、あるいは式(IV)：

【0056】

【化18】



20

【0057】

で示される基であり；

 $E_{11}$ ～ $E_{15}$ は、独立に、水素、F、Cl、Br、ニトロ、シアノ、ヒドロキシリル、カルボキシリル、1～18個の炭素原子のアルキルチオ、又は1～18個の炭素原子のアルコキシであり；

30

bが、1であるとき、 $E-OH$ は、それぞれ、2-メチル-2-プロパノール、2-プロパノール、2,2-ジメチル-1-プロパノール、2-メチル-2-ブタノール、エタノール、1-ブロパノール、1-ブタノール、1-ペンタノール、1-ヘキサノール、1-ノナノール、1-デカノール、1-ドデカノール、1-オクタデカノール、2-ブタノール、2-ペンタノール、2-エチル-1-ヘキサノール、シクロヘキサノール、シクロオクタノール、アリルアルコール、フェネチルアルコール又は1-フェニル-1-エタノールから形成される、炭素中心ラジカルであり；bが、2であるとき、 $E-OH$ は、それぞれ、1,2-エタンジオール、1,2-プロパンジオール、1,3-プロパンジオール、1,2-ブタンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、2,2-ジメチル-1,3-プロパンジオール、1,2-シクロヘキサンジオール、1,3-シクロヘキサンジオール又は1,4-シクロヘキサンジオールから形成される、炭素中心ラジカル又はジラジカルであり；

40

bが、3であるとき、 $E-OH$ は、それぞれ、グリセロール、1,1,1-トリス(ヒドロキシメチル)メタン、2-エチル-2-ヒドロキシメチル-1,3-プロパンジオール、1,2,4-ブタントリオール又は1,2,6-ヘキサントリオールから形成される、炭素中心ラジカルであり；

mは、1～4であり；

pは、1～4であり；

 $T_1$ は、19～80個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、又はこのようなアルキル残基の混合物であるか；あるいは

50

$T_1$  は、 $- (R - O)_n - R - OG_5$  (ここで、 $R$  は、エチレン、又はプロピレンであり、そして  $n$  は、 $T_1$  における炭素原子の総数が少なくとも 20 であるような、6 ~ 49 である) であり；

$G_5$  は、水素、又は 1 ~ 24 個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキルであり；

$X$  及び  $X_1$  は、独立に  $- O -$ 、又は  $- N - (R_4) -$  であり；

$R_4$  は、水素、1 ~ 18 個の炭素原子のアルキル又は 2 ~ 6 個の炭素原子のアシルであり；そして

$R_6$  は、 $- X - T_1$ 、 $X - (C H_2)_m - CO - X_1 - T_1$ 、又は  $X - (C H_2)_p - X_1 - CO - T_1$  である] で示される。

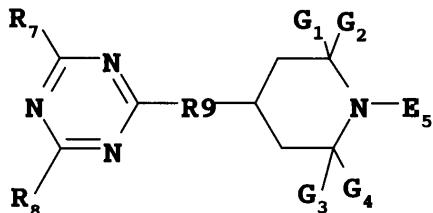
【0058】

10

式(4)の他の実施態様は、下記式(4)：

【0059】

【化19】



(4)

20

【0060】

[式中、

$G_1$ 、 $G_2$ 、 $G_3$ 、及び  $G_4$  は、それぞれメチルであり；

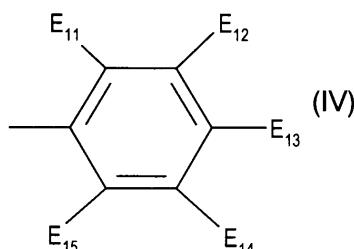
$E_5$  は、 $O E_9$  又は  $- O - E - (O H)_b$  であり；

$E_9$  は、1 ~ 24 個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルキル、5 ~ 12 個の炭素原子のシクロアルキル、3 ~ 24 個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルケニル、又は 5 ~ 12 個の炭素原子のシクロアルケニル、あるいは式(IV)：

【0061】

30

【化20】



【0062】

で示される基であり；

40

$E_{11} \sim E_{15}$  は、独立に、水素、F、Cl、Br、ニトロ、シアノ、ヒドロキシル、カルボキシル、1 ~ 18 個の炭素原子のアルキルチオ、1 ~ 18 個の炭素原子のアルコキシであり；

$b$  が、1 であるとき、 $E - OH$  は、それぞれ、2 - メチル - 2 - プロパノール、2 - プロパノール、2, 2 - ジメチル - 1 - プロパノール、2 - メチル - 2 - ブタノール、エタノール、1 - プロパノール、1 - ブタノール、1 - ペンタノール、1 - ヘキサノール、1 - ノナノール、1 - デカノール、1 - ドデカノール、1 - オクタデカノール、2 - ブタノール、2 - ペンタノール、2 - エチル - 1 - ヘキサノール、シクロヘキサノール、シクロオクタノール、アリルアルコール、フェネチルアルコール又は 1 - フェニル - 1 - エタノールから形成される、炭素中心ラジカルであり；

50

bが、2であるとき、E-OHは、それぞれ、1,2-エタンジオール、1,2-プロパンジオール、1,3-プロパンジオール、1,2-ブタンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、2,2-ジメチル-1,3-プロパンジオール、1,2-シクロヘキサンジオール、1,3-シクロヘキサンジオール又は1,4-シクロヘキサンジオールから形成される、炭素中心ラジカル又はジラジカルであり；

bが、3であるとき、E-OHは、それぞれ、グリセロール、1,1,1-トリス(ヒドロキシメチル)メタン、2-エチル-2-ヒドロキシメチル-1,3-プロパンジオール、1,2,4-ブタントリオール又は1,2,6-ヘキサントリオールから形成される、炭素中心ラジカルであり；

mは、1～4であり；

10

pは、1～4であり；

T<sub>1</sub>は、19～80個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、又はこのようなアルキル残基の混合物であるか；あるいは

T<sub>1</sub>は、-(R-O)<sub>n</sub>-R-O G<sub>5</sub>(ここで、Rは、エチレン、又はプロピレンであり、そしてnは、T<sub>1</sub>における炭素原子の総数が少なくとも20であるような、4～49である)であり；

G<sub>5</sub>は、水素、1～24個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルキルであり；

X及びX<sub>1</sub>は、独立に-O-、又は-N-(R<sub>4</sub>)-であり；

R<sub>4</sub>は、水素、1～18個の炭素原子のアルキル又は2～6個の炭素原子のアシルであり；

20

R<sub>7</sub>及びR<sub>8</sub>は、独立に、1～18個の炭素原子のアルコキシ、-O-T<sub>2</sub>、2-ヒドロキシエチルにより置換されているアミノ、1～18個の炭素原子のアルキルを有する-N(アルキル)T<sub>2</sub>、-X-T<sub>1</sub>、X-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X<sub>1</sub>-T<sub>1</sub>、又はX-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X<sub>1</sub>-CO-T<sub>1</sub>であるか；あるいはある場合には、1～18個の炭素原子の-NH(アルキル)を含み；

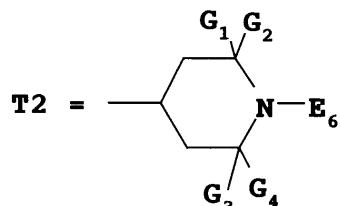
R<sub>9</sub>は、二価酸素原子であるか、又はR<sub>9</sub>は、水素、1～12個の炭素原子のアルキル若しくはT<sub>2</sub>のいずれかにより置換されている二価窒素原子であり；

T<sub>2</sub>は、下記式：

【0063】

30

【化21】



【0064】

で示され；そして

E<sub>6</sub>は、水素、ヒドロキシル、1～24個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、3～24個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルケニル、ベンジル、アセチル、-OE<sub>9</sub>、又は-OE(OH)<sub>b</sub>である]で示される。

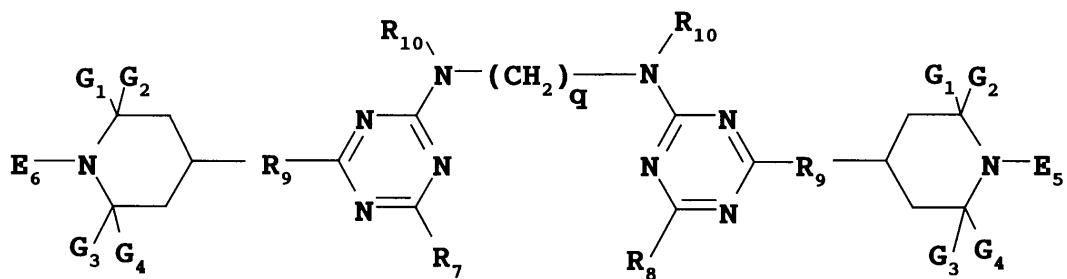
40

【0065】

構造(5)の他の実施態様は、下記式(5)：

【0066】

【化22】



(5)

10

## 【0067】

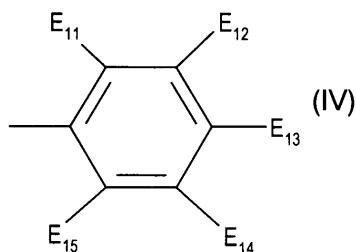
[式中、

 $G_1$ 、 $G_2$ 、 $G_3$ 、及び $G_4$ は、それぞれメチルであり； $E_5$ は、 $O E_9$ 又は $-O-E-(OH)_b$ であり； $E_9$ は、1～24個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルキル、5～12個の炭素原子のシクロアルキル、3～24個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルケニル、又は5～12個の炭素原子のシクロアルケニル、あるいは式(IV)：

## 【0068】

## 【化23】

20



## 【0069】

で示される基であり；

30

 $E_{11}$ ～ $E_{15}$ は、独立に、水素、F、Cl、Br、二トロ、シアノ、ヒドロキシリル、カルボキシリル、1～18個の炭素原子のアルキルチオ、又は1～18個の炭素原子のアルコキシであり； $b$ が、1であるとき、 $E-OH$ は、それぞれ、2-メチル-2-プロパノール、2-プロパノール、2,2-ジメチル-1-プロパノール、2-メチル-2-ブタノール、エタノール、1-プロパノール、1-ブタノール、1-ペンタノール、1-ヘキサノール、1-ノナノール、1-デカノール、1-ドデカノール、1-オクタデカノール、2-ブタノール、2-ペンタノール、2-エチル-1-ヘキサノール、シクロヘキサノール、シクロオクタノール、アリルアルコール、フェネチルアルコール又は1-フェニル-1-エタノールから形成される、炭素中心ラジカルであり；

40

 $b$ が、2であるとき、 $E-OH$ は、それぞれ、1,2-エタンジオール、1,2-プロパンジオール、1,3-プロパンジオール、1,2-ブタンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、2,2-ジメチル-1,3-プロパンジオール、1,2-シクロヘキサンジオール、1,3-シクロヘキサンジオール又は1,4-シクロヘキサンジオールから形成される、炭素中心ラジカル又はジラジカルであり； $b$ が、3であるとき、 $E-OH$ は、それぞれ、グリセロール、1,1,1-トリス(ヒドロキシメチル)メタン、2-エチル-2-ヒドロキシメチル-1,3-プロパンジオール、1,2,4-ブタントリオール又は1,2,6-ヘキサントリオールから形成される、炭素中心ラジカルであり； $m$ は、1～4であり；

50

p は、1 ~ 4 であり；

T<sub>1</sub>は、19 ~ 80 個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、又はこのようなアルキル残基の混合物であるか；あるいは

T<sub>1</sub>は、-(R-O)<sub>n</sub>-R-O G<sub>5</sub>（ここで、Rは、エチレン又はプロピレンであり、そしてnは、T<sub>1</sub>における炭素原子の総数が少なくとも20であるような、4 ~ 49である）であり；

G<sub>5</sub>は、水素、1 ~ 24 個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルキルであり；

X及びX<sub>1</sub>は、独立に-O-、又は-N-(R<sub>4</sub>)-であり；

R<sub>4</sub>は、水素、1 ~ 18 個の炭素原子のアルキルであり；

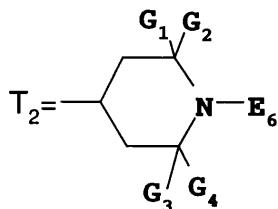
R<sub>7</sub>及びR<sub>8</sub>は、独立に、1 ~ 18 個の炭素原子のアルコキシ、-O-T<sub>2</sub>、2-ヒドロキシエチルにより置換されているアミノ、1 ~ 18 個の炭素原子の-NH（アルキル）、1 ~ 18 個の炭素原子のアルキルを有する-N（アルキル）T<sub>2</sub>、-X-T<sub>1</sub>、X-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X<sub>1</sub>-T<sub>1</sub>、又はX-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X<sub>1</sub>-CO-T<sub>1</sub>であり；

R<sub>9</sub>は、二価酸素原子であるか、又はR<sub>9</sub>は、水素、1 ~ 12 個の炭素原子のアルキル若しくはT<sub>2</sub>のいずれかにより置換されている二価窒素原子であり；

T<sub>2</sub>は、下記式：

【0070】

【化24】



【0071】

で示され；

E<sub>6</sub>は、水素、オキシリル、ヒドロキシリル、1 ~ 24 個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、3 ~ 24 個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルケニル、アセチル、-O-E<sub>9</sub>、又は-OE(OH)<sub>b</sub>であり；

R<sub>10</sub>は、水素又は1 ~ 18 個の炭素原子のアルキル基であり；そして

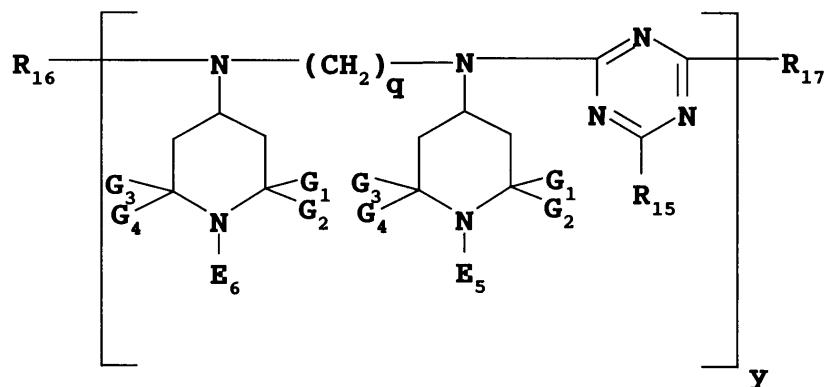
qは、4 ~ 8 である]で示される。

【0072】

構造(6)の他の実施態様は、下記式(6)：

【0073】

【化25】



(6)

【0074】

10

20

30

40

50

[式中、

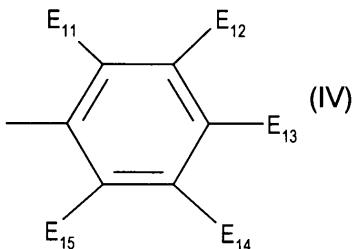
$G_1$ 、 $G_2$ 、 $G_3$ 、及び $G_4$ は、それぞれメチルであり；

$E_5$ は、 $O E_9$ 又は $-O-E-(OH)_b$ であり；

$E_9$ は、1～24個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルキル、5～12個の炭素原子のシクロアルキル、3～24個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルケニル、又は5～12個の炭素原子のシクロアルケニル、あるいは式(IV)：

【0075】

【化26】



10

【0076】

で示される基であり；

$E_{11}$ ～ $E_{15}$ は、独立に、水素、F、Cl、Br、ニトロ、シアノ、ヒドロキシル、カルボキシル、1～18個の炭素原子のアルキルチオ、又は1～18個の炭素原子のアルコキシ 20 であり；

bが、1であるとき、 $E-OH$ は、それぞれ、2-メチル-2-プロパノール、2-プロパノール、2,2-ジメチル-1-プロパノール、2-メチル-2-ブタノール、エタノール、1-プロパノール、1-ブタノール、1-ペンタノール、1-ヘキサノール、1-ノナノール、1-デカノール、1-ドデカノール、1-オクタデカノール、2-ブタノール、2-ペンタノール、2-エチル-1-ヘキサノール、シクロヘキサノール、シクロオクタノール、アリルアルコール、フェネチルアルコール又は1-フェニル-1-エタノールから形成される、炭素中心ラジカルであり；

bが、2であるとき、 $E-OH$ は、それぞれ、1,2-エタンジオール、1,2-プロパンジオール、1,3-プロパンジオール、1,2-ブタンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、2,2-ジメチル-1,3-プロパンジオール、1,2-シクロヘキサンジオール、1,3-シクロヘキサンジオール又は1,4-シクロヘキサンジオールから形成される、炭素中心ラジカル又はジラジカルであり；

bが、3であるとき、 $E-OH$ は、それぞれ、グリセロール、1,1,1-トリス(ヒドロキシメチル)メタン、2-エチル-2-ヒドロキシメチル-1,3-プロパンジオール、1,2,4-ブタントリオール又は1,2,6-ヘキサントリオールから形成される、炭素中心ラジカルであり；

mは、1～4であり；

pは、1～4であり；

$T_1$ は、19～80個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、又はこののようなアルキル残基の混合物であるか；あるいは

$T_1$ は、 $- (R-O)_n - R-O G_5$ (ここで、Rは、エチレン又はプロピレンであり、そしてnは、 $T_1$ における炭素原子の総数が少なくとも20であるような、4～49である)であり；

$G_5$ は、水素、1～24個の炭素原子の直鎖又は分岐鎖アルキルであり；

X及び $X_1$ は、独立に $-O-$ 、又は $-N-(R_4)-$ であり；

$R_4$ は、水素、1～18個の炭素原子のアルキルであり；

$R_7$ 及び $R_8$ は、独立に、1～18個の炭素原子のアルコキシ、 $-O-T_2$ 、2-ヒドロキシエチルにより置換されているアミノ、1～18個の炭素原子の $-NH$ (アルキル)、1～18個の炭素原子のアルキルを有する $-N$ (アルキル) $T_2$ 、 $-X-T_1$ 、 $X-(CH_2)$

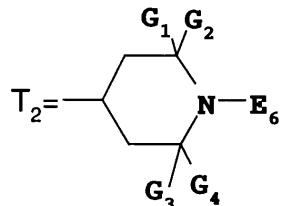
50

)<sub>m</sub> - C O - X<sub>1</sub> - T<sub>1</sub>、又は X - (C H<sub>2</sub>)<sub>p</sub> - X<sub>1</sub> - C O - T<sub>1</sub>であり； R<sub>9</sub>は、二価酸素原子であるか、又は R<sub>9</sub>は、水素、1～12個の炭素原子のアルキル若しくはT<sub>2</sub>のいずれかにより置換されている二価窒素原子であり；

T<sub>2</sub>は、下記式：

【0077】

【化27】



10

【0078】

で示され；

E<sub>6</sub>は、水素、オキシル、ヒドロキシル、1～24個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、3～24個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルケニル、アセチル、-O E<sub>9</sub>、又は-O E(OH)<sub>b</sub>であり；

R<sub>10</sub>は、水素又は1～18個の炭素原子のアルキル基であり；

qは、4～8であり；

yは、1～10であり；

R<sub>15</sub>は、モルホリノ、ピペリジノ、1-ピペリジニル、1～8個の炭素原子のアルキルアミノ、特にtert-オクチルアミノのような3～8個の炭素原子の分岐鎖アルキルアミノ、-X-T<sub>1</sub>、X-(C H<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-C O-X<sub>1</sub>-T<sub>1</sub>、又はX-(C H<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X<sub>1</sub>-C O-T<sub>1</sub>であり；

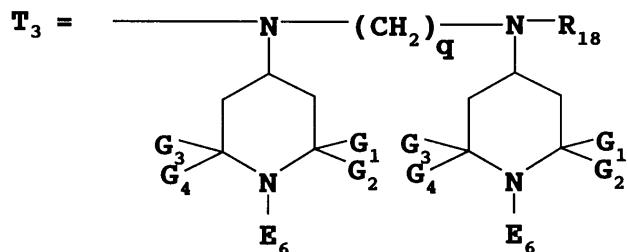
R<sub>16</sub>は、水素、2～4個の炭素原子のアシル、1～4個の炭素原子のアルキルにより置換されているカルバモイル、塩素により1回及びR<sub>15</sub>により1回置換されているs-トリアジニルであり；

R<sub>17</sub>は、1～18個の炭素原子のアルキル若しくはT<sub>2</sub>により置換されているアミノ、1～8個の炭素原子のアルキルを有する-N(アルキル)T<sub>2</sub>、2～16個の炭素原子の-N(アルキル)<sub>2</sub>、又はT<sub>3</sub>基であり；

T<sub>3</sub>は、下記式：

【0079】

【化28】



40

【0080】

で示され；そして

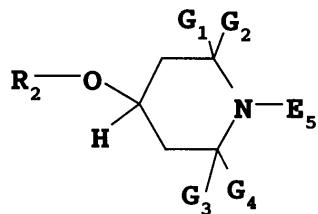
R<sub>18</sub>は、水素である]で示される。

【0081】

式(1)の更に他の実施態様は、下記式(1)：

【0082】

【化29】



【0083】

10

[式中、

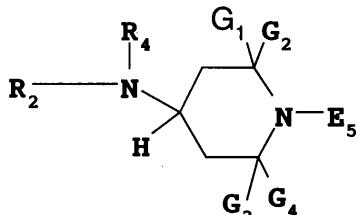
 $G_1$ 、 $G_2$ 、 $G_3$ 、及び $G_4$ は、それぞれメチルであり； $E_5$ は、 $O E_9$ 又は $-O-E-(OH)_b$ であり； $E_9$ は、1～12個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、又は5～10個の炭素原子のシクロアルキルであり； $b$ は、1であり； $b$ が、1であるとき、 $E-OH$ は、それぞれ2-メチル-2-プロパノールから形成される、炭素中心ラジカルであり； $R_2$ は、 $-CO-T_1$ であり； $T_1$ は、19～60個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、又はこのようなアルキル残基の混合物である]で示される。

【0084】

式(2)の更に別の実施態様は、下記式：

【0085】

【化30】



30

【0086】

[式中、

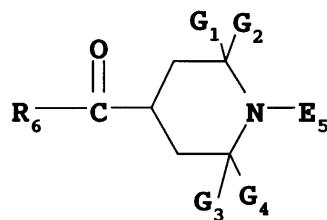
 $G_1$ 、 $G_2$ 、 $G_3$ 、及び $G_4$ は、それぞれメチルであり； $E_5$ は、 $O E_9$ 又は $-O-E-(OH)_b$ であり； $E_9$ は、1～12個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、又は5～10個の炭素原子のシクロアルキルであり； $b$ は、1であり； $b$ が、1であるとき、 $E-OH$ は、それぞれ2-メチル-2-プロパノールから形成される、炭素中心ラジカルであり； $R_2$ は、 $-CO-T_1$ であり； $T_1$ は、19～60個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、又はこのようなアルキル残基の混合物であり；そして $R_4$ は、水素又はメチルである]で示される。

【0087】

式(3)の更に別の実施態様は、下記式(3)：

【0088】

【化31】



(3)

## 【0089】

[式中、

10

 $G_1$ 、 $G_2$ 、 $G_3$ 、及び $G_4$ は、それぞれメチルであり； $E_5$ は、 $O E_9$ 又は $-O-E-(OH)_b$ であり； $E_9$ は、1～12個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、又は5～10個の炭素原子のシクロアルキルであり； $b$ は、1であり； $b$ が、1であるとき、 $E-OH$ は、それぞれ2-メチル-2-プロパノール又は2-プロパノールから形成される、炭素中心ラジカルであり； $T_1$ は、19～60個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、又はこのようなアルキル残基の混合物であり； $X$ は、 $-O-$ であり；そして

20

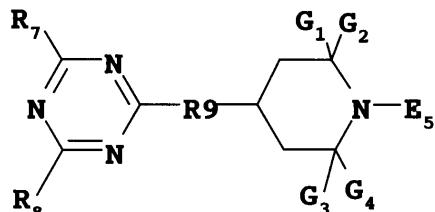
 $R_6$ は、 $-X-T_1$ である]で示される。

## 【0090】

式(4)の更に別の実施態様は、下記式(4)：

## 【0091】

## 【化32】



(4)

30

## 【0092】

[式中、

40

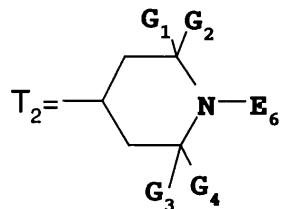
 $G_1$ 、 $G_2$ 、 $G_3$ 、及び $G_4$ は、それぞれメチルであり； $E_5$ は、 $O E_9$ 又は $-O-E-(OH)_b$ であり； $E_9$ は、1～12個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、又は5～10個の炭素原子のシクロアルキルであり； $b$ は、1であり； $b$ が、1であるとき、 $E-OH$ は、それぞれ2-メチル-2-プロパノールから形成される、炭素中心ラジカルであり； $T_1$ は、19～60個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、又はこのようなアルキル残基の混合物であり； $X$ 及び $X_1$ は、独立に $-O-$ 、又は $-N-(R_4)-$ であり； $R_4$ は、水素又はメチルであり； $R_7$ 及び $R_8$ は、独立に、 $-O-T_2$ 、1～18個の炭素原子のアルキルを有する $-N$ (アルキル) $T_2$ 、 $-X-T_1$ 、又は $X-(CH_2)_p-X_1-CO-T_1$ であり； $R_9$ は、二価酸素原子であるか、又は $R_9$ は、水素、1～12個の炭素原子のアルキル若しくは $T_2$ のいずれかにより置換されている二価窒素原子であり；

50

$T_2$  は、下記式：

【0093】

【化33】



10

【0094】

で示され；そして

$E_6$  は、水素、ヒドロキシル、1～12個の炭素原子の直鎖若しくは分岐鎖アルキル、アセチル、-O $E_9$ 、又は-O $E(OH)_b$ である]で示される。

【0095】

本発明の別の実施態様において、長鎖立体障害アミン化合物は、

- (a) 2,4-ビス [N-n-ブチル-N-(1-シクロヘキシリオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)アミノ]-6-[2-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカノイルオキシ)エチル]アミノ-s-トリアジン；
- (b) 1-シクロヘキシリオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-4-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカノイルオキシピペリジン；
- (c) 4-C<sub>40</sub>-C<sub>60</sub>アルカノイルオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-1-メトキシピペリジン；
- (d) 4-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカノイルオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-1-オクチルオキシピペリジン；
- (e) 4-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカノイルオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-1-(2-メチル-2-ヒドロキシプロピルオキシ)ピペリジン；
- (f) 4-C<sub>40</sub>-C<sub>60</sub>アルカノイルオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-1-(2-メチル-2-ヒドロキシプロピルオキシ)ピペリジン；
- (g) 4-(N-メチル-N-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカノイル)アミノ-2,2,6,6-テトラメチル-1-メトキシピペリジン；
- (h) 4-(N-メチル-N-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカノイル)アミノ-2,2,6,6-テトラメチル-1-(2-メチル-2-ヒドロキシプロピルオキシ)ピペリジン；
- (i) 1-メトキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イルカルボン酸C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルキル；
- (j) 1-シクロヘキシリオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イルカルボン酸C<sub>40</sub>-C<sub>60</sub>アルキル；
- (k) 1-(2-メチル-2-ヒドロキシプロピルオキシ)-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イルカルボン酸C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルキル；
- (l) 2,4-ビス [N-n-ブチル-N-(1-メトキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)アミノ]-6-[2-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカノイルオキシ)エチル]アミノ-s-トリアジン；
- (m) 2,4-ビス(1-オクチルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イルオキシ)-6-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルキルオキシ)-s-トリアジン；
- (o) 2,4-ビス{N-n-ブチル-N-[1-(2-メチル-2-ヒドロキシプロピルオキシ)-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル]アミノ}-6-[2-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカノイルオキシ)エチル]アミノ-s-トリアジン；又は
- (p) 2,4-ビス[1-(2-メチル-2-ヒドロキシプロピルオキシ)-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イルオキシ]-6-(C<sub>40</sub>-C<sub>60</sub>アルキルオキシ)-s-トリアジンである。

50

## 【0096】

本発明の更に別の実施態様において、長鎖立体障害アミン化合物は、

(a) 2,4-ビス[N-n-ブチル-N-(1-シクロヘキシリオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)アミノ]-6-[2-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカノイルオキシ)エチル]アミノ-s-トリアジン；又は

(b) 1-シクロヘキシリオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-4-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカノイルオキシピペリジンである。

## 【0097】

本発明は、

(a) 白色無香；白色芳香；着色無香；着色芳香；浸漬無香；又は浸漬芳香である、ロウソク用ロウ、及び

## (b) 有効安定化量の

(i) 上述の式(1)、(2)、(3)、(4)、(5)又は(6)の長鎖立体障害アミンピペリジン化合物；

(ii) UV吸収剤若しくは酸化防止剤、又はUV吸収剤と酸化防止剤

の組合せ（ここで、成分(i)対(ii)の重量比は、10:1~1:10である）を含むことを特徴とする、組成物に関する。

## 【0098】

本出願において詳細に記述される長鎖立体障害アミンは、2,2,6,6-テトラアルキルピペリジン残基から誘導されたものであるが、モルホリノン、ピペラジノン、ピペラジンジオン、オキサゾリジン、イミダゾリンなどを含むような他の型の立体障害アミンも、修飾して長鎖アルキル残基を結合させ、これによってポリオレフィン又はポリエステルのような熱可塑性樹脂の安定化及びロウソク用ロウの安定化に特に適したものにすることができよう。

## 【0099】

本発明の別の実施態様において、(i)対(ii)の重量比は、4:1~1:4である。

## 【0100】

本発明の別の実施態様は、(i)対(ii)の重量比が、2:1~1:2である場合である。

## 【0101】

本発明の更に別の実施態様において、ロウソク用ロウにおけるUV吸収剤+長鎖立体障害アミン化合物の有効量は、ロウに基づき0.01~10重量%である。

## 【0102】

本発明の別の実施態様は、ロウソク用ロウにおけるUV吸収剤+長鎖立体障害アミン化合物の有効量が、ロウに基づき0.1~2重量%である場合である。

## 【0103】

本発明の別の実施態様は、ロウソク用ロウにおけるUV吸収剤+長鎖立体障害アミン化合物の有効量が、ロウに基づき0.1~0.5重量%である場合である。

## 【0104】

成分(ii)のUV吸収剤は、ベンゾトリシアゾール、ベンゾフェノン、-シアノアクリラート、オキサンリド、s-トリアジン、シンナマート、マロナート、ベンゾアート若しくはサリチラート、又はこれらの混合物である。

## 【0105】

本発明の別の実施態様において、UV吸収剤は、ベンゾトリシアゾール、ベンゾフェノン又はs-トリアジンである。

## 【0106】

本発明において有用なUV吸収剤の例は、

(a) 4-オクチルオキシ-2-ヒドロキシベンゾフェノン；

(b) 4-メトキシ-2-ヒドロキシベンゾフェノン；

(c) 2-(2-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)-2H-ベンゾトリシアゾール；

- (d) 2 - (2 - ヒドロキシ - 5 - tert - オクチルフェニル) - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (e) 2 - (2 - ヒドロキシ - 3 , 5 - ジ - tert - アミルフェニル) - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (f) 3 - (ベンゾトリアゾール - 2 - イル) - 5 - tert - プチル - 4 - ヒドロキシヒドロケイ皮酸オクチル；  
 (g) 2 - (2 - ヒドロキシ - 3 , 5 - ジ - tert - プチルフェニル) - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (h) 2 - (2 - ヒドロキシ - 5 - tert - プチルフェニル) - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (i) 5 - クロロ - 2 - (2 - ヒドロキシ - 3 , 5 - ジ - tert - プチルフェニル) - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (j) 5 - クロロ - 2 - (2 - ヒドロキシ - 3 - tert - プチル - 5 - メチルフェニル) - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (k) 2 - (2 - ヒドロキシ - 3 - sec - プチル - 5 - tert - プチルフェニル) - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (l) 2 - (2 - ヒドロキシ - 4 - オクチルオキシフェニル) - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (m) 2 - (2 - ヒドロキシ - 3 - ドデシル - 5 - メチルフェニル) - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (n) 2 - [2 - ヒドロキシ - 3 , 5 - ジ( , -ジメチルベンジル)フェニル] - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (o) 2 - [2 - ヒドロキシ - 3 - ( , -ジメチルベンジル) - 5 - tert - オクチルフェニル] - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (p) 2 - {2 - ヒドロキシ - 3 - tert - プチル - 5 - [2 - ( - ヒドロキシ - オクタ(エチレンオキシ)カルボニル)エチル] - フェニル} - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (q) 2 - {2 - ヒドロキシ - 3 - tert - プチル - 5 - [2 - (オクチルオキシ)カルボニル)エチル]フェニル} - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (r) p - メトキシケイ皮酸2 - エチルヘキシリル；  
 (s) 4 - メトキシ - 2 , 2 - ジヒドロキシベンゾフェノン；  
 (t) 4 , 4 - ジメトキシ - 2 , 2 - ジヒドロキシベンゾフェノン；  
 (u) 2 , 4 - ビス(2 , 4 - ジメチルフェニル) - 6 - (2 - ヒドロキシ - 4 - オクチルオキシフェニル) - s - トリアジン；  
 (v) 2 , 4 - ジフェニル - 6 - (2 - ヒドロキシ - 4 - ヘキシリルオキシフェニル) - s - トリアジン；  
 (w) 2 , 4 - ビス(2 , 4 - ジメチルフェニル) - 6 - [2 - ヒドロキシ - 4 - (3 - ド - / トリ - デシルオキシ - 2 - ヒドロキシプロポキシ) - フェニル] - s - トリアジン；  
 (x) 2 , 4 - ビス(2 , 4 - ジメチルフェニル) - 6 - [2 - ヒドロキシ - 4 - (3 - ド - / トリ - デシルオキシ - 2 - ヒドロキシプロポキシ) - 5 - クミルフェニル] - s - トリアジン；  
 (y) 2 , 4 , 6 - トリス(2 , 4 - ジヒドロキシフェニル) - s - トリアジンと - ハロ酢酸オクチルとの反応生成物、又は  
 (z) 3 , 3 ; 3 , 5 ; 5 , 5 - メチレン - ビス[2 , 4 - ビス(2 , 4 - ジメチルフェニル)] - 6 - [2 - ヒドロキシ - 4 - (3 - ブチルオキシ - 2 - ヒドロキシプロポキシフェニル)] - s - トリアジンの混合物である。

【0107】

本発明において有用なUV吸収剤の更に他の例は、

(a) 4 - オクチルオキシ - 2 - ヒドロキシベンゾフェノン；

10

20

30

40

50

(b) 4 - メトキシ - 2 - ヒドロキシベンゾフェノン；  
 (d) 2 - (2 - ヒドロキシ - 5 - tert - オクチルフェニル) - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (o) 2 - [2 - ヒドロキシ - 3 - ( , -ジメチルベンジル) - 5 - tert - オクチルフェニル] - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (p) 2 - {2 - ヒドロキシ - 3 - tert - ブチル - 5 - [2 - ( - ヒドロキシ - オクタ(エチレンオキシ)カルボニル)エチル] - フェニル} - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (q) 2 - {2 - ヒドロキシ - 3 - tert - ブチル - 5 - [2 - (オクチルオキシ)カルボニル)エチル]フェニル} - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (y) 2, 4, 6 - トリス(2, 4 - ジヒドロキシフェニル) - s - トリアジンと - ハロ酢酸オクチルとの反応生成物、又は  
 (z) 3, 3; 3, 5; 5, 5 - メチレン - ビス[2, 4 - ビス(2, 4 - ジメチルフェニル)] - 6 - [2 - ヒドロキシ - 4 - (3 - ブチルオキシ - 2 - ヒドロキシプロポキシフェニル)] - s - トリアジンの混合物である。

## 【0108】

本発明の別の実施態様は、酸化防止剤が、フェノール性酸化防止剤、亜リン酸エステル、ニトロン、アミンオキシド又はヒドロキシリアルアミン、あるいはこれらの混合物である、組成物を含む。

## 【0109】

上記実施態様の例は、長鎖立体障害アミン化合物及び酸化防止剤と組合せたUV吸収剤の有効量が、口ウに基づき0.01~10重量%である場合である。

## 【0110】

別の実施態様は、長鎖立体障害アミン化合物及び酸化防止剤と組合せたUV吸収剤の有効量が、口ウに基づき0.1~2重量%である場合である。

## 【0111】

更に別の実施態様は、長鎖立体障害アミン化合物及び酸化防止剤と組合せたUV吸収剤の有効量が、口ウに基づき0.1~0.5重量%である場合である。

## 【0112】

本発明において有用な酸化防止剤の例は、

3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシヒドロケイ皮酸n - オクタデシル、テトラキス(3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシヒドロケイ皮酸)ネオペンタンテトライル

3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシベンジルホスホン酸ジ - n - オクタデシル、

イソシアヌル酸1, 3, 5 - トリス(3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシベンジル)、

ビス(3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシヒドロケイ皮酸)チオジエチレン、

1, 3, 5 - トリメチル - 2, 4, 6 - トリス(3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシベンジル)ベンゼン、

ビス(3 - メチル - 5 - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシヒドロケイ皮酸)3, 6 - ジオキサオクタメチレン、

2, 6 - ジ - tert - ブチル - p - クレゾール、

2, 2 - エチリデン - ビス(4, 6 - ジ - tert - ブチルフェノール)、

イソシアヌル酸1, 3, 5 - トリス(2, 6 - ジメチル - 4 - tert - ブチル - 3 - ヒドロキシベンジル)、

1, 1, 3 - トリス(2 - メチル - 4 - ヒドロキシ - 5 - tert - ブチルフェニル)ブタン、

イソシアヌル酸1, 3, 5 - トリス[2 - (3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロ

10

20

30

40

50

キシヒドロシンナモイルオキシ)エチル]、  
 3,5-ジ-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)メシトール、  
 ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシヒドロケイ皮酸)ヘキサメチレン  
 、  
 1-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシアニリノ)-3,5-ジ(オクチ  
 ルチオ)-s-トリアジン、  
 N,N-ヘキサメチレン-ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシヒド  
 ロシンナムアミド)、  
 ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホン酸エチル)カル  
 シウム、  
 ビス[3,3-ジ(3-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)酪酸]エチレン、  
 3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジルメルカプト酢酸オクチル、  
 ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシヒドロシンナモイル)ヒドラジド  
 、  
 N,N-ジ-(C<sub>12</sub>-C<sub>24</sub>アルキル)-N-メチル-アミンオキシド、又は  
 ジ(水素化樹脂)アミンから直接酸化により調製されるN,N-ジアルキルヒドロキシリ  
 アミンである。

10

## 【0113】

本発明において有用な酸化防止剤の更に他の実施態様は、  
 テトラキス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシヒドロケイ皮酸)ネオペン 20  
 タンテトライル  
 3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシヒドロケイ皮酸n-オクタデシル、  
 1,3,5-トリメチル-2,4,6-トリス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒ  
 ドロキシベンジル)ベンゼン、  
 イソシアヌル酸1,3,5-トリス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベ  
 ジル)、  
 2,6-ジ-tert-ブチル-p-クレゾール、又は  
 2,2-エチリデン-ビス(4,6-ジ-tert-ブチルフェノール)である。

20

## 【0114】

本発明は、  
 (a)熱可塑性樹脂、及び  
 (b)有効安定化量の上述の式(1)、(2)、(3)、(4)、(5)又は(6)の長  
 鎮立体障害アミンピペリジン化合物  
 を含むことを特徴とする組成物に関する。

30

## 【0115】

好ましくは、有機材料は、天然、半合成又は合成ポリマー、特に熱可塑性ポリマーである  
 。

40

## 【0116】

最も好ましくは、ポリマーは、ポリオレフィン又はポリカーボネート、特にポリエチレン  
 又はポリプロピレン；最も好ましくはポリプロピレンである。

## 【0117】

本発明の別の好ましい実施態様において、有機材料は、熱硬化性アクリルメラミン樹脂、  
 アクリルウレタン樹脂、エポキシカルボキシ樹脂、シラン改質アクリルメラミン、メラミ  
 ンと架橋したカルバマートペンドント基を持つアクリル樹脂又はカルバマート基を含むメ  
 ラミンと架橋したアクリルポリオール樹脂である。

## 【0118】

最も好ましくは、樹脂は、熱硬化性アクリルメラミン樹脂又はアクリルウレタン樹脂である。

## 【0119】

本発明の更に別の好ましい実施態様において、有機材料は、記録材料である。 50

**【 0 1 2 0 】**

本発明の記録材料は、感圧コピーシステム、マイクロカプセルを用いるフォトコピーシステム、感熱コピーシステム、写真材料及びインクジェット印刷に適している。

**【 0 1 2 1 】**

本発明の記録材料は、好ましくは  $1 \sim 5000 \text{ mg/m}^2$ 、特に  $50 \sim 1200 \text{ mg/m}^2$  の式(1)、(2)、(3)、(4)、(5)又は(6)の化合物を含む。

**【 0 1 2 2 】**

既に言及したように、本発明の記録材料は、広い分野を包含する。式(1)、(2)、(3)、(4)、(5)又は(6)の化合物は、例えば、感圧コピーシステムにおいて利用することができる。これらは、紙の中のマイクロカプセル化された染料前駆体を光から保護するためにその紙の中に導入するか、又は現像層の結合剤の中で形成される染料を保護するためにその結合剤の中に導入することができる。

10

**【 0 1 2 3 】**

圧力により現像する感光性マイクロカプセルを用いるフォトコピーシステムは、米国特許第4,416,966号；4,483,912号；4,352,200号；4,535,050号；4,535,463号；4,551,407号；4,562,137号及び4,608,330号；並びにまたEP-A 139,479；EP-A 162,664；EP-A 164,931；EP-A 237,024；EP-A 237,025及びEP-A 260,129に記載されている。これら全てのシステムにおいて、本化合物は、染料受容層に加えることができる。しかし本化合物はまた、発色剤を光から保護するためにドナー層に加えることもできる。

20

**【 0 1 2 4 】**

安定化できる写真材料は、写真染料及びこのような染料又はその前駆体を含む層、例えば、写真印画紙及びフィルムである。適切な材料は、例えば、米国特許第5,364,749号（参照することにより本明細書に組み込まれる）に記載されている。カラー写真材料では、カップラー及び染料もまた、光化学分解に対して保護される。

30

**【 0 1 2 5 】**

本化合物は、全てのタイプのカラー写真材料に使用することができる。例えば、これらはカラー印画紙、カラーリバーサル印画紙、直接ポジカラー材料、カラーネガフィルム、カラーポジフィルム、カラーリバーサルフィルムなどに使用することができる。これらは、好ましくは特に、リバーサル下塗層を含むか、又はポジを形成するカラー写真材料に使用される。

30

**【 0 1 2 6 】**

カラー写真記録材料は、通常、支持体上に青感性及び/又は緑感性及び/又は赤感性ハロゲン化銀乳剤層、及び必要であれば保護層を含むが、本化合物は、好ましくは緑感性層又は赤感性層に、又は緑感性層と赤感性層の間の層に、又はハロゲン化銀乳剤層の上部の層のいずれかに存在させる。

40

**【 0 1 2 7 】**

式(1)、(2)、(3)、(4)、(5)又は(6)の化合物はまた、光重合、光可塑化の原理、又はマイクロカプセルの破裂に基づき、記録材料に使用することができるか、あるいは感熱性及び感光性ジアゾニウム塩、酸化剤を有するロイコ染料(Leuko dyes)又はルイス酸を有する染料ラクトンが使用される場合に使用することができる。

**【 0 1 2 8 】**

更に、本化合物は、染料拡散転写、熱転写及び非マトリックス印刷のための記録材料において、並びに静電、電気記録、電気泳動、磁力記録及びレーザー電子写真プリンター、及びペン-プロッターで使用するための記録材料において使用することができる。上記の中で、例えば、EP-A 507,734に記載されるような、拡散転写のための記録材料が好ましい。

**【 0 1 2 9 】**

本化合物はまた、インク、好ましくは、例えば、米国特許第5,098,477号（参照することにより本明細書に組み込まれる）に記載されるような、インクジェット印刷用のインクにおいて使用することができる。

**【 0 1 3 0 】**

50

本発明の化合物は、優れた加水分解安定性、取扱い及び貯蔵安定性、更には安定化組成物中に存在するとき抽出に対する良好な抵抗性を示す。

### 【0131】

本化合物を製造するための方法は、先行技術に記載されている。本化合物を製造するのに必要な中間体は、主として市販されている製品である。

### 【0132】

一般に、安定化することができるポリマーは、以下を含む。

1. モノオレフィン及びジオレフィンのポリマー、例えば、ポリプロピレン、ポリイソブチレン、ポリブタ-1-エン、ポリ-4-メチルペンタ-1-エン、ポリイソブレン又はポリブタジエン、更にはシクロオレフィン（例えば、シクロpenten又はノルボルネン）のポリマー、ポリエチレン（場合により架橋できる）、例えば、高密度ポリエチレン（H D P E）、低密度ポリエチレン（L D P E）、直鎖状低密度ポリエチレン（L L D P E）、分岐鎖状低密度ポリエチレン（B L D P E）。

### 【0133】

ポリオレフィン、即ち、前段落に例示されるモノオレフィンのポリマー、好ましくはポリエチレン及びポリプロピレンは、種々の、そして特に以下の方法により調製することができる：

a) ラジカル重合（通常高圧及び高温下で）

b) 通常、周期表のIVb、Vb、VIb又はVII族の1つ以上の金属を含む触媒を用いる、触媒重合。これらの金属は、通常1つ以上のリガンド、典型的には - 又は - 配位のいずれかであってよい、酸化物、ハロゲン化物、アルコラート、エステル、エーテル、アミン、アルキル、アルケニル及び / 又はアリールを有する。これらの金属錯体は、遊離型で、あるいは基体上、典型的には活性化塩化マグネシウム、塩化チタン（III）、アルミナ又は酸化ケイ素上に固定されていてよい。これらの触媒は、重合媒体に可溶性又は不溶性であってよい。触媒は、単独で重合に使用することができるか、あるいは更に別のアクチベーター、典型的には金属アルキル、金属水素化物、金属アルキルハロゲン化物、金属アルキル酸化物又は金属アルキルオキサン（該金属は、周期表のIa、IIa及び / 又はIIIA族の元素である）を使用してもよい。アクチベーターは、便利には更に別のエステル、エーテル、アミン又はシリルエーテル基で修飾してもよい。これらの触媒系は、通常フィリップス（Phillips）、スタンダード・オイル・インディアナ（Standard Oil Indiana）、ツィーグラー（-ナッタ）（Ziegler(-Natta)）、T N Z（デュポン（DuPont））、メタロセン又はシングルサイト触媒（S S C）と呼ばれる。

### 【0134】

2. 1) の下に言及されたポリマーの混合物、例えば、ポリプロピレンとポリイソブチレンとの混合物、ポリプロピレンとポリエチレン（例えば、P P / H D P E、P P / L D P E）との混合物、並びに異なる型のポリエチレンの混合物（例えば、L D P E / H D P E）。

### 【0135】

3. モノオレフィン及びジオレフィン相互の、又は他のビニルモノマーとのコポリマー、例えば、エチレン / プロピレンコポリマー、直鎖状低密度ポリエチレン（L L D P E）及びこれと低密度ポリエチレン（L D P E）との混合物、プロピレン / ブタ-1-エンコポリマー、プロピレン / イソブチレンコポリマー、エチレン / ブタ-1-エンコポリマー、エチレン / ヘキセンコポリマー、エチレン / メチルペンテンコポリマー、エチレン / ヘプテンコポリマー、エチレン / オクテンコポリマー、プロピレン / ブタジエンコポリマー、イソブチレン / イソブレンコポリマー、エチレン / アクリル酸アルキルコポリマー、エチレン / メタクリル酸アルキルコポリマー、エチレン / 酢酸ビニルコポリマー及びこれらの - 酸化炭素とのコポリマー又はエチレン / アクリル酸コポリマー及びこれらの塩（イオノマー）、更にはエチレンとプロピレン及びジエン（ヘキサジエン、ジシクロ pentenタジエン又はエチリデン - ノルボルネン）とのターポリマー；並びにこのようなコポリマー同士の混合物及び上記1) に言及されたポリマーとの混合物、例えば、ポリプロピレン / エチ

10

20

30

40

50

レン - プロピレンコポリマー、LDPE / エチレン - 酢酸ビニルコポリマー (EVA) 、LDPE / エチレン - アクリル酸コポリマー (EAA) 、LLDPE / EVA 、LLDPE / EAA 及び交互又はランダムのポリアルキレン / 一酸化炭素コポリマー及びこれと他のポリマー ( 例えば、ポリアミド ) の混合物。

## 【0136】

4 . 炭化水素樹脂 ( 例えば、C<sub>5</sub> - C<sub>9</sub> ) ( その水素化修飾物 ( 例えば、粘着性付与剤 ) を含む ) 及びポリアルキレンとデンプンの混合物。

## 【0137】

5 . ポリスチレン、ポリ ( p - メチルスチレン ) 、ポリ ( - メチルスチレン ) 。

## 【0138】

6 . スチレン又は - メチルスチレンとジエン又はアクリル酸誘導体とのコポリマー、例えば、スチレン / ブタジエン、スチレン / アクリロニトリル、スチレン / メタクリル酸アルキル、スチレン / ブタジエン / アクリル酸アルキル、スチレン / ブタジエン / メタクリル酸アルキル、スチレン / 無水マレイン酸、スチレン / アクリロニトリル / アクリル酸メチル ; 高耐衝撃性スチレンコポリマーと別のポリマー ( 例えば、ポリアクリレート、ジエンポリマー又はエチレン / プロピレン / ジエンターポリマー ) の混合物 ; 及びスチレン / ブタジエン / スチレン、スチレン / イソブレン / スチレン、スチレン / エチレン / ブチレン / スチレン又はスチレン / エチレン / プロピレン / スチレンのような、スチレンのブロックコポリマー。

## 【0139】

7 . スチレン又は - メチルスチレンのグラフトコポリマー、例えば、ポリブタジエンにスチレン、ポリブタジエン - スチレン又はポリブタジエン - アクリロニトリルコポリマーにスチレン ; ポリブタジエンにスチレン及びアクリロニトリル ( 又はメタクリロニトリル ) ; ポリブタジエンにスチレン、アクリロニトリル及びメタクリル酸メチル ; ポリブタジエンにスチレン及び無水マレイン酸 ; ポリブタジエンにスチレン、アクリロニトリル及び無水マレイン酸又はマレイミド ; ポリブタジエンにスチレン及びマレイミド ; ポリブタジエンにスチレン及びアクリル酸アルキル又はメタクリル酸アルキル ; エチレン / プロピレン / ジエンターポリマーにスチレン及びアクリロニトリル ; ポリアクリル酸アルキル又はポリメタクリル酸アルキルにスチレン及びアクリロニトリル、アクリレート / ブタジエンコポリマーにスチレン及びアクリロニトリル、更には 6 ) の下に列挙されたコポリマーとのこれらの混合物、例えば、ABS 、 MBS 、 ASA 又は AES ポリマーとして知られているコポリマー混合物。

## 【0140】

8 . ハロゲン含有ポリマー、例えば、ポリクロロブレン、塩化ゴム、塩素化又はスルホ塩素化ポリエチレン、エチレンと塩素化エチレンのコポリマー、エピクロロヒドリンホモ - 及びコポリマー、特にハロゲン含有ビニル化合物のポリマー、例えば、ポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリフッ化ビニル、ポリフッ化ビニリデン、更には塩化ビニル / 塩化ビニリデン、塩化ビニル / 酢酸ビニル又は塩化ビニリデン / 酢酸ビニルコポリマーのようなこれらのコポリマー。

## 【0141】

9 . , - 不飽和酸及びその誘導体から誘導されるポリマー、例えば、ポリアクリレート及びポリメタクリレート ; ポリメタクリル酸メチル、ポリアクリルアミド及びポリアクリロニトリル ( アクリル酸ブチルで耐衝撃性を改良した ) 。

## 【0142】

10 . 9 ) の下に言及されたモノマー相互の、又は他の不飽和モノマーとのコポリマー、例えば、アクリロニトリル / ブタジエンコポリマー、アクリロニトリル / アクリル酸アルキルコポリマー、アクリロニトリル / アクリル酸アルコキシアルキル若しくはアクリロニトリル / ハロゲン化ビニルコポリマー、又はアクリロニトリル / メタクリル酸アルキル / ブタジエンターポリマー。

## 【0143】

10

20

30

40

50

11. 不飽和アルコール及びアミン又はアシル誘導体若しくはそのアセタールから誘導されるポリマー、例えば、ポリビニルアルコール、ポリ酢酸ビニル、ポリステアリン酸ビニル、ポリ安息香酸ビニル、ポリマレイン酸ビニル、ポリビニルブチラール、ポリフタル酸アリル又はポリアリルメラミン；更には、上記1)に言及されたオレフィンとのこれらのコポリマー。

## 【0144】

12. 環状エーテルのホモポリマー及びコポリマー、例えば、ポリアルキレングリコール、ポリエチレンオキシド、ポリプロピレンオキシド又はビスグリシジルエーテルとのそのコポリマー。

## 【0145】

13. ポリオキシメチレンのようなポリアセタール及びコモノマーとしてエチレンオキシドを含むポリオキシメチレン；熱可塑性ポリウレタン、アクリレート又はMBSで改質されたポリアセタール。

## 【0146】

14. ポリフェニレンオキシド及びスルフィド、並びにポリフェニレンオキシドとスチレンポリマー又はポリアミドとの混合物。

## 【0147】

15. 一方ではヒドロキシル末端のポリエーテル、ポリエステル又はポリブタジエン、もう一方では脂肪族又は芳香族ポリイソシアナートから誘導されたポリウレタン、更にはその前駆体。

## 【0148】

16. ジアミンとジカルボン酸から、及び／又はアミノカルボン酸又は対応するラクタムから誘導されたポリアミド及びコポリアミド、例えば、ポリアミド4、ポリアミド6、ポリアミド6/6、6/10、6/9、6/12、4/6、12/12、ポリアミド11、ポリアミド12、m-キシレンジアミンとアジピン酸から出発した芳香族ポリアミド；ヘキサメチレンジアミンとイソフタル酸及び／又はテレフタル酸（改質剤としてエラストマーを伴うか、又は伴わない）から調製したポリアミド、例えば、ポリ-2,4,4-トリメチルヘキサメチレンテレフタルアミド又はポリ-m-フェニレンイソフタルアミド；また、前述のポリアミドと、ポリオレフィン、オレフィンコポリマー、イオノマー又は化学結合若しくはグラフトしたエラストマーとのブロックコポリマー；又はポリエーテルとの、例えば、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール若しくはポリテトラメチレングリコールとのブロックコポリマー；更には、EPDM又はABSで改質されたポリアミド又はコポリアミド；及び加工中に縮合したポリアミド（RIMポリアミド系）。

## 【0149】

17. ポリ尿素、ポリイミド、ポリアミド-イミド及びポリベンゾイミダゾール。

## 【0150】

18. ジカルボン酸とジオールから、及び／又はヒドロキシカルボン酸又は対応するラクトンから誘導されたポリエステル、例えば、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリ-1,4-ジメチロールシクロヘキサンテレフタレート及びポリヒドロキシベンゾエート、更には、ヒドロキシル末端ポリエーテルから誘導されたブロックコポリエーテルエステル；またポリカーボネート又はMBSで改質されたポリエステル。

## 【0151】

19. ポリカーボネート及びポリエステルカーボネート。

## 【0152】

20. ポリスルホン、ポリエーテルスルホン及びポリエーテルケトン。

## 【0153】

21. 一方ではアルデヒド、もう一方ではフェノール、尿素及びメラミンから誘導された架橋ポリマー、例えば、フェノール／ホルムアルデヒド樹脂、尿素／ホルムアルデヒド樹脂及びメラミン／ホルムアルデヒド樹脂。

10

20

30

40

50

## 【0154】

22. 乾燥性及び非乾燥性アルキド樹脂。

## 【0155】

23. 飽和及び不飽和ジカルボン酸と多価アルコール(及び架橋剤としてビニル化合物)とのコポリエステルから誘導された不飽和ポリエステル樹脂、また低引火性のそのハロゲン含有修飾物。

## 【0156】

24. 置換アクリレート、例えば、エポキシアクリレート、ウレタンアクリレート又はポリエステルアクリレートから誘導された架橋性アクリル樹脂。

## 【0157】

25. メラミン樹脂、尿素樹脂、ポリイソシアネート又はエポキシ樹脂と架橋された、アルキド樹脂、ポリエステル樹脂及びアクリル酸樹脂。

## 【0158】

26. ポリエポキシド、例えば、ビスグリシジルエーテル又は脂環式ジエポキシドから誘導された架橋エポキシ樹脂。

## 【0159】

27. セルロース、ゴム、ゼラチン及びその化学修飾相同誘導体のような、天然ポリマー、例えば、酢酸セルロース、プロピオン酸セルロース及び酪酸セルロース、又はメチルセルロースのようなセルロースエーテル；更には、ロジン及びその誘導体。

## 【0160】

28. 前述のポリマーのブレンド(ポリブレンド)、例えば、PP/E P D M、ポリアミド/E P D M又はA B S、P V C / E V A、P V C / A B S、P V C / M B S、P C / A B S、P B T P / A B S、P C / A S A、P C / P B T、P V C / C P E、P V C / アクリレート、P O M / 熱可塑性P U R、P C / 热可塑性P U R、P O M / アクリレート、P O M / M B S、P P O / H I P S、P P O / P A 6.6及びコポリマー、P A / H D P E、P A / P P、P A / P P O。

## 【0161】

29. 純粋なモノマー化合物又はこのような化合物の混合物である天然及び合成有機材料、例えば、鉛油、動物脂及び植物脂、油及びロウ、又は合成エステル(例えば、フタル酸、アジピン酸、リン酸又はトリメリト酸エステル)に基づく油、脂及びロウ、また合成エステルと鉛油との任意の重量比での混合物、典型的には紡糸用組成物として使用されるもの、更にはこのような材料の水性乳濁液。

## 【0162】

30. 天然又は合成ゴムの水性乳濁液、例えば、天然ラテックス又はカルボキシル化スチレン/ブタジエンコポリマーのラテックス。

## 【0163】

31. 軟質親水性ポリシロキサン(例えば、米国特許第4,259,467号に記載されている)などのポリシロキサン；及び硬質ポリオルガノシロキサン(例えば、米国特許第4,355,147号に記載されている)。

## 【0164】

32. 不飽和アクリルポリアセトアセテート樹脂と、又は不飽和アクリル樹脂と組合せた、ポリケチミン。不飽和アクリル樹脂は、ウレタンアクリレート、ポリエーテルアクリレート、ペンドント不飽和基を持つビニル又はアクリルコポリマー及びアクリル化メラミンを含む。ポリケチミンは、ポリアミンとケトンから酸触媒の存在下で調製される。

## 【0165】

33. エチレン性不飽和モノマー又はオリゴマー及び多価不飽和脂肪族オリゴマーを含む、放射線硬化組成物。

## 【0166】

34. L S E - 4 1 0 3(モンサント(Monsanto))のような、エポキシ官能基同時エーテル化ハイソリッドメラミン樹脂により架橋された光安定性エポキシ樹脂などの、エポ

10

20

30

40

50

キシメラミン樹脂。

【0167】

一般に、本発明の化合物は、安定化組成物の約0.01～約5重量%で使用されるが、この値は、特定の基体及び応用により変化する。有利な範囲は、約0.05～約3%、そして特に0.05～約1%である。

【0168】

本発明の安定剤は、従来法により有機ポリマー中に、そこから成形品の製造の前までの任意の便利な段階で、容易に組み込むことができる。例えば、本安定剤は、乾燥粉末の形状でポリマーと混合してもよいか、又は安定剤の懸濁液若しくは乳濁液をポリマーの溶液、懸濁液、若しくは乳濁液と混合物してもよい。得られる本発明の安定化ポリマー組成物は10、場合により、以下に列挙される物質、又はその混合物のような、種々の従来の添加剤を含んでもよい。

【0169】

1. 酸化防止剤

- 1.1. アルキル化モノフェノール、例えば、  
2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノール  
2-tert-ブチル-4,6-ジメチルフェノール  
2,6-ジ-tert-ブチル-4-エチルフェノール  
2,6-ジ-tert-ブチル-4-n-ブチルフェノール  
2,6-ジ-tert-ブチル-4-i-ブチルフェノール  
2,6-ジ-シクロペンチル-4-メチルフェノール  
2-( - メチルシクロヘキシル) - 4,6-ジメチルフェノール  
2,6-ジ-オクタデシル-4-メチルフェノール  
2,4,6-トリ-シクロヘキシルフェノール  
2,6-ジ-tert-ブチル-4-メトキシメチルフェノール

【0170】

- 1.2. アルキル化ヒドロキノン、例えば、  
2,6-ジ-tert-ブチル-4-メトキシフェノール  
2,5-ジ-tert-ブチル-ヒドロキノン  
2,5-ジ-tert-アミル-ヒドロキノン  
2,6-ジフェニル-4-オクタデシルオキシフェノール

【0171】

- 1.3. ヒドロキシル化チオジフェニルエーテル、例えば、  
2,2-チオ-ビス-(6-tert-ブチル-4-メチルフェノール)  
2,2-チオ-ビス-(4-オクチルフェノール)  
4,4-チオ-ビス-(6-tert-ブチル-3-メチルフェノール)  
4,4-チオ-ビス-(6-tert-ブチル-2-メチルフェノール)

【0172】

- 1.4. アルキリデン-ビスフェノール、例えば、  
2,2-メチレン-ビス-(6-tert-ブチル-4-メチルフェノール)  
2,2-メチレン-ビス-(6-tert-ブチル-4-エチルフェノール)  
2,2-メチレン-ビス-[4-メチル-6-( - メチルシクロヘキシル)-フェノール]  
2,2-メチレン-ビス-(4-メチル-6-シクロヘキシルフェノール)  
2,2-メチレン-ビス-(6-ノニル-4-メチルフェノール)  
2,2-メチレン-ビス-[6-( - メチルベンジル)-4-ノニルフェノール]  
2,2-メチレン-ビス-[6-( , -ジメチルベンジル)-4-ノニルフェノール]  
2,2-メチレン-ビス-(4,6-ジ-tert-ブチルフェノール)  
2,2-エチリデン-ビス-(4,6-ジ-tert-ブチルフェノール)

10

20

30

40

50

2 , 2 - エチリデン - ビス - ( 6 - tert - プチル - 4 - イソブチルフェノール )  
 4 , 4 - メチレン - ビス - ( 2 , 6 - ジ - tert - プチルフェノール )  
 4 , 4 - メチレン - ビス - ( 6 - tert - プチル - 2 - メチルフェノール )  
 1 , 1 - ビス - ( 5 - tert - プチル - 4 - ヒドロキシ - 2 - メチルフェニル ) - ブタ  
 ン  
 2 , 6 - ジ - ( 3 - tert - プチル - 5 - メチル - 2 - ヒドロキシベンジル ) - 4 - メ  
 チルフェノール  
 1 , 1 , 3 - トリス - ( 5 - tert - プチル - 4 - ヒドロキシ - 2 - メチルフェニル )  
 - ブタン  
 1 , 1 - ビス - ( 5 - tert - プチル - 4 - ヒドロキシ - 2 - メチルフェニル ) - 3 - 10  
 n - ドデシルメルカプトブタン  
 ビス - [ 3 , 3 - ビス - ( 3 - tert - プチル - 4 - ヒドロキシフェニル ) - 酪酸 ]  
 エチレングリコール  
 ジ - ( 3 - tert - プチル - 4 - ヒドロキシ - 5 - メチルフェニル ) - ジシクロペンタ  
 ディエン  
 テレフタル酸ジ - [ 2 - ( 3 - tert - プチル - 2 - ヒドロキシ - 5 - メチル -  
 ベンジル ) - 6 - tert - プチル - 4 - メチルフェニル ] 。  
 【0173】

1 . 5 . ベンジル化合物、例えば、  
 1 , 3 , 5 - トリ - ( 3 , 5 - ジ - tert - プチル - 4 - ヒドロキシベンジル ) - 2 , 20  
 4 , 6 - トリメチルベンゼン  
 硫化ジ - ( 3 , 5 - ジ - tert - プチル - 4 - ヒドロキシベンジル )  
 3 , 5 - ジ - tert - プチル - 4 - ヒドロキシベンジル - メルカプト - 酢酸イソオクチ  
 ルエステル  
 テレフタル酸ビス - ( 4 - tert - プチル - 3 - ヒドロキシ - 2 , 6 - ジメチルベンジ  
 ル ) ジチオール  
 イソシアヌル酸 1 , 3 , 5 - トリス - ( 3 , 5 - ジ - tert - プチル - 4 - ヒドロキシ  
 ベンジル )  
 イソシアヌル酸 1 , 3 , 5 - トリス - ( 4 - tert - プチル - 3 - ヒドロキシ - 2 , 6  
 - ジメチルベンジル ) 30  
 3 , 5 - ジ - tert - プチル - 4 - ヒドロキシベンジル - リン酸ジオクタデシルエステ  
 ル  
 3 , 5 - ジ - tert - プチル - 4 - ヒドロキシベンジル - リン酸モノエチルエステル、  
 カルシウム塩

【0174】  
 1 . 6 . アシリルアミノフェノール、例えば、  
 4 - ヒドロキシ - ラウリン酸アニリド  
 4 - ヒドロキシ - ステアリン酸アニリド  
 2 , 4 - ビス - オクチルメルカプト - 6 - ( 3 , 5 - ジ - tert - プチル - 4 - ヒドロ  
 キシアニリノ ) - s - トリアジン  
 N - ( 3 , 5 - ジ - tert - プチル - 4 - ヒドロキシフェニル ) - カルバミン酸オクチ  
 ル 40

【0175】  
 1 . 7 . - ( 3 , 5 - ジ - tert - プチル - 4 - ヒドロキシフェニル ) - プロピオ  
 ン酸と一価又は多価アルコール、例えば、  
 メタノール ジエチレングリコール  
 オクタデカノール トリエチレングリコール  
 1 , 6 - ヘキサンジオール ペンタエリトリトール  
 ネオペンチルグリコール イソシアヌル酸トリス - ヒドロキシエチル  
 チオジエチレングリコール ジ - ヒドロキシエチルシュウ酸ジアミド 50

トリエタノールアミン  
とのエステル

## 【0176】

1 . 8 . - ( 5 - t e r t - ブチル - 4 - ヒドロキシ - 3 - メチルフェニル ) - プロピオン酸と一価又は多価アルコール、例えば

メタノール	ジエチレングリコール
オクタデカノール	トリエチレングリコール
1 , 6 - ヘキサンジオール	ペンタエリトリトール
ネオペンチルグリコール	イソシアヌル酸トリス - ヒドロキシエチル
チオジエチレングリコール	ジ - ヒドロキシエチルシュウ酸ジアミド
トリエタノールアミン	トリスイソプロパノールアミン

とのエステル

## 【0177】

1 . 9 . - ( 3 , 5 - ジ - t e r t - ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル ) - プロピオン酸のアミド、例えば、

N , N - ジ - ( 3 , 5 - ジ - t e r t - ブチル - 4 - ヒドロキシフェニルプロピオニル ) - ヘキサメチレンジアミン

N , N - ジ - ( 3 , 5 - ジ - t e r t - ブチル - 4 - ヒドロキシフェニルプロピオニル ) - トリメチレンジアミン

N , N - ジ - ( 3 , 5 - ジ - t e r t - ブチル - 4 - ヒドロキシフェニルプロピオニル ) - ヒドラジン 20

## 【0178】

1 . 10 . ジアリールアミン、例えば、

ジフェニルアミン、N - フェニル - 1 - ナフチルアミン、N - ( 4 - t e r t - オクチルフェニル ) - 1 - ナフチルアミン、4 , 4 - ジ - t e r t - オクチル - ジフェニルアミン、N - フェニルベンジルアミンと2 , 4 , 4 - トリメチルペンテンの反応生成物、ジフェニルアミンと2 , 4 , 4 - トリメチルペンテンの反応生成物、N - フェニル - 1 - ナフチルアミンと2 , 4 , 4 - トリメチルペンテンの反応生成物。

## 【0179】

2 . UV 吸収剤及び光安定剤

2 . 1 . 2 - ( 2 - ヒドロキシフェニル ) - ベンゾトリアゾール、例えば、5 - メチル - 、3 , 5 - ジ - t e r t - ブチル - 、5 - t e r t - ブチル - 、5 - ( 1 , 1 , 3 , 3 - テトラメチルブチル ) - 、5 - クロロ - 3 , 5 - ジ - t e r t - ブチル - 、5 - クロロ - 3 - t e r t - ブチル - 5 - メチル - 、3 - sec - ブチル - 5 - t e r t - ブチル - 、4 - オクトキシ、3 , 5 - ジ - t e r t - アミル - 、3 , 5 - ビス - ( - ジメチルベンジル ) 、3 - t e r t - ブチル - 5 - ( 2 - ( - ヒドロキシ - オクタ - ( エチレンオキシ ) カルボニル - エチル ) - 、3 - ドデシル - 5 - メチル - 及び3 - t e r t - ブチル - 5 - ( 2 - オクチルオキシカルボニル ) エチル - 、及びドデシル化 - 5 - メチル誘導体。

## 【0180】

2 . 2 . 2 - ヒドロキシ - ベンゾフェノン、例えば、4 - ヒドロキシ - 、4 - メトキシ - 、4 - オクトキシ、4 - デシルオキシ - 、4 - ドデシルオキシ - 、4 - ベンジルオキシ - 、4 , 2 , 4 - トリヒドロキシ - 及び2 - ヒドロキシ - 4 , 4 - ジメトキシ誘導体。

## 【0181】

2 . 3 . 場合により置換された安息香酸のエステル、例えば、サリチル酸フェニル、サリチル酸4 - t e r t - ブチルフェニル、サリチル酸オクチルフェニル、ジベンゾイルレゾルシノール、ビス - ( 4 - t e r t - ブチルベンゾイル ) - レゾルシノール、ベンゾイルレゾルシノール、3 , 5 - ジ - t e r t - ブチル - 4 - ヒドロキシ安息香酸2 , 4 - ジ - t e r t - ブチルフェニルエステル及び3 , 5 - ジ - t e r t - ブチル - 4 - ヒドロキ

10

30

40

50

シ安息香酸ヘキサデシルエステル。

【0182】

2.4. アクリラート、例えば、-シアノ-, -ジフェニルアクリル酸エチルエステル又はイソオクチルエステル、-カルボメトキシ-ケイ皮酸メチルエステル、-シアノ--メチル-p-メトキシ-ケイ皮酸メチルエステル又はブチルエステル、-カルボメトキシ-p-メトキシ-ケイ皮酸メチルエステル、N-( -カルボメトキシ-シアノビニル)-2-メチル-インドリン。

【0183】

2.5. ニッケル化合物、例えば、2,2--チオ-ビス-[4-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)-フェノール]のニッケル錯体、1:1又は1:2錯体など(場合により、n-ブチルアミン、トリエタノールアミン又はN-シクロヘキシリ-ジエタノールアミンのような追加のリガンドを伴う)、ジブチルジチオカルバミン酸ニッケル、4-ヒドロキシ-3,5-ジ-tert-ブチルベンジルホスホン酸モノアルキルエステル(メチル、エチル又はブチルエステルなど)のニッケル塩、2-ヒドロキシ-4-メチル-フェニルウンデシルケトオキシムのようなケトオキシムのニッケル錯体、場合により追加のリガンドを伴う1-フェニル-4-ラウロイル-5-ヒドロキシ-ピラゾールのニッケル錯体。

【0184】

2.6. 立体障害アミン、例えば、セバシン酸ビス-(2,2,6,6-テトラメチルピペリジル)、セバシン酸ビス-(1,2,2,6,6-ペンタメチルピペリジル)、n-ブチル-3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジルマロン酸ビス-(1,2,2,6,6-ペンタメチルピペリジル)エステル、1-ヒドロキシエチル-2,2,6,6-テトラメチル-4-ヒドロキシピペリジンとコハク酸の縮合生成物、N,N-(2,2,6,6-テトラメチルピペリジル)-ヘキサメチレンジアミンと4-tert-オクチルアミノ-2,6-ジクロロ-s-トリアジンの縮合生成物、ニトリロ三酢酸トリス-(2,2,6,6-テトラメチルピペリジル)、1,2,3,4-ブタンテトラカルボン酸テラキス-(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)、1,1-(1,2-エタンジイル)-ビス-(3,3,5,5-テトラメチルピペラジノン)、セバシン酸ビス(1-オクチルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)。

【0185】

2.7. シュウ酸ジアミド、例えば、4,4--ジ-オクチルオキシ-オキサニリド、2,2--ジ-オクチルオキシ-5,5--ジ-tert-ブチル-オキサニリド、2,2--ジ-ドデシルオキシ-5,5--ジ-tert-ブチル-オキサニリド、2-エトキシ-2-エチル-オキサニリド、N,N--ビス(3-ジメチルアミノプロピル)-オキサルアミド、2-エトキシ-5-tert-ブチル-2-エチルオキサニリド及びその2-エトキシ-2-エチル-5,4--ジ-tert-ブチルオキサニリドとの混合物、並びにオルト-及びパラ-メトキシ-ジ置換オキサニリドの混合物、更にはo-及びp-エトキシ-ジ置換オキサニリドの混合物。

【0186】

2.8. ヒドロキシフェニル-s-トリアジン、例えば、2,6-ビス-(2,4-ジメチルフェニル)-4-(2-ヒドロキシ-4-オクチルオキシフェニル)-s-トリアジン；2,6-ビス-(2,4-ジメチルフェニル)-4-(2,4-ジヒドロキシフェニル)-s-トリアジン；2,4-ビス(2,4-ジヒドロキシフェニル)-6-(4-クロロフェニル)-s-トリアジン；2,4-ビス[2-ヒドロキシ-4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]-6-(4-クロロフェニル)-s-トリアジン；2,4-ビス[2-ヒドロキシ-4-(2-ヒドロキシ-4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル)]-6-(4-ブロモフェニル)-s-トリアジン；2,4-ビス[2-ヒドロキシ-4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]-6-(4-アセトキシエトキシ)フェニル]

10

20

30

40

50

- 6 - ( 4 - クロロフェニル ) - s - トリアジン ; 2 , 4 - ビス ( 2 , 4 - ジヒドロキシフェニル ) - 6 - ( 2 , 4 - ジメチルフェニル ) - s - トリアジン。

【 0187 】

3 . 金属不活性化剤、例えば、N , N - ジフェニルシュウ酸ジアミド、N - サリチラール - N - サリチロイル - ヒドラジン、N , N - ビス - サリチロイルヒドラジン、N , N - ビス - ( 3 , 5 - ジ - t e r t - ブチル - 4 - ヒドロキシフェニルプロピオニル ) - ヒドラジン、3 - サリチロイルアミノ - 1 , 2 , 4 - トリアゾール、ビス - ベンジリデン - シュウ酸ジヒドラジド。

【 0188 】

4 . 亜リン酸及び亜ホスホン酸エステル、例えば、亜リン酸トリフェニル、亜リン酸ジフェニルアルキル、亜リン酸フェニルジアルキル、亜リン酸トリ - ( ノニルフェニル ) 、亜リン酸トリラウリル、亜リン酸トリオクタデシル、二亜リン酸ジ - ステアリル - ペンタエリトリトール、亜リン酸トリス - ( 2 , 4 - ジ - t e r t - ブチルフェニル ) 、二亜リン酸ジ - イソデシル - ペンタエリトリトール、二亜リン酸ジ - ( 2 , 4 , 6 - ト r i - t e r t - ブチルフェニル ) - ペンタエリトリトール、二亜リン酸ジ - ( 2 , 4 - ジ - t e r t - ブチル - 6 - メチルフェニル ) - ペンタエリトリトール、二亜リン酸ジ - ( 2 , 4 - ジ - t e r t - ブチルフェニル ) ペンタエリトリトール、三亜リン酸トリステアリル - ソルビトール、4 , 4 - ジフェニリレン二亜ホスホン酸テトラキス - ( 2 , 4 - ジ - t e r t - ブチルフェニル ) 。

【 0189 】

5 . 過酸化物を分解する化合物、例えば、 - チオジプロピオン酸のエステル、例えば、ラウリル、ステアリル、ミリスチル又はトリデシルエステル、メルカプト - ベンゾイミダゾール又は2 - メルカプトベンゾイミダゾールの亜鉛塩、ジブチル - ジチオカルバミン酸亜鉛、二硫化ジオクタデシル、テトラキス - ( - ドデシルメルカプト ) - プロピオン酸ベンタエリトリトール。

【 0190 】

6 . ヒドロキシルアミン、例えば、N , N - ジベンジルヒドロキシルアミン、N , N - ジエチルヒドロキシルアミン、N , N - ジオクチルヒドロキシルアミン、N , N - ジラウリルヒドロキシルアミン、N , N - ジテトラデシルヒドロキシルアミン、N , N - ジヘキサデシルヒドロキシルアミン、N , N - ジオクタデシルヒドロキシルアミン、N - ヘキサデシル - N - オクタデシルヒドロキシルアミン、N - ヘプタデシル - N - オクタデシルヒドロキシルアミン、水素化黒脂アミンから誘導されたN , N - ジアルキルヒドロキシルアミン。

【 0191 】

7 . ニトロン、例えば、N - ベンジル - - フェニルニトロン、N - エチル - - メチルニトロン、N - オクチル - - ヘプチルニトロン、N - ラウリル - - ウンデシルニトロン、N - テトラデシル - - トリデシルニトロン、N - ヘキサデシル - - ペンタデシルニトロン、N - オクタデシル - - ヘプタデシルニトロン、N - ヘキサデシル - - ヘプタデシルニトロン、N - オクタデシル - - ペンタデシルニトロン、N - ヘプタデシル - - ヘキサデシルニトロン、N - オクタデシル - - ヘキサデシルニトロン、水素化黒脂アミンから誘導されたN , N - ジアルキルヒドロキシルアミンから誘導されたニトロン。

【 0192 】

8 . ポリアミド安定剤、例えば、ヨウ化物及び / 又はリン化合物と組合せた銅塩、並びに二価マンガンの塩。

【 0193 】

9 . 塩基性補助安定剤、例えば、メラミン、ポリビニルピロリドン、ジアンジアミド、シアヌル酸トリアリル、尿素誘導体、ヒドラジン誘導体、アミン、ポリアミド、ポリウレタン、高級脂肪酸のアルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩、例えば、ステアリン酸C<sub>a</sub>、ステアリン酸Zn、ステアリン酸Mg、リシノール酸Na及びパルミチン酸K、アン

10

20

30

40

50

チモンピロカテコラート又は亜鉛ピロカテコラート。

【0194】

10. 核剤、例えば、4-tert-ブチル-安息香酸、アジピン酸、ジフェニル酢酸。  
。

【0195】

11. 充填剤及び補強剤、例えば、炭酸カルシウム、ケイ酸塩、ガラス繊維、石綿、タルク、カオリン、雲母、硫酸バリウム、金属酸化物及び水酸化物、カーボンブラック、黒鉛。

【0196】

12. 他の添加剤、例えば、可塑剤、滑沢剤、乳化剤、顔料、蛍光増白剤、防炎剤、静電防止剤、発泡剤及びチオ相乗剤 (thiosynergists) (チオジプロピオン酸ジラウリル又はチオジプロピオン酸ジステアリルなど)。 10

【0197】

13. ベンゾフラノン及びインドリノン、例えば、US-A-4325863、US-A-4338244若しくはUS-A-5175312に開示されているもの、又は3-[4-(2-アセトキシエトキシ)フェニル]-5,7-ジ-tert-ブチル-ベンゾフラン-2-オン、5,7-ジ-tert-ブチル-3-[4-(2-ステアロイルオキシエトキシ)フェニル]ベンゾフラン-2-オン、3,3-ビス[5,7-ジ-tert-ブチル-3-(4-[2-ヒドロキシエトキシ]フェニル)ベンゾフラン-2-オン]、5,7-ジ-tert-ブチル-3-(4-エトキシフェニル)ベンゾフラン-2-オン、3-(4-アセトキシ-3,5-ジメチルフェニル)-5,7-ジ-tert-ブチル-ベンゾフラン-2-オン、3-(3,5-ジメチル-4-ピバロイルオキシフェニル)-5,7-ジ-tert-ブチル-ベンゾフラン-2-オン。 20

【0198】

13の下に列挙されるベンゾフラノンを除いて、補助安定剤は、安定化すべき材料の総重量に対して、例えば、0.01~10%の濃度で加えられる；好ましい用量は、安定化すべき材料の重量の約0.01~約5%、更に好ましくは約0.025~約2%、そして特に約0.1~約1%である。 20

【0199】

更に別の好ましい組成物は、成分(a)及び(b)の他に、更に別の添加剤、特にフェノール性酸化防止剤、光安定剤又は加工安定剤を含むことを特徴とする。 30

【0200】

特に好ましい添加剤は、フェノール性酸化防止剤(リストの項目1)、立体障害アミン(リストの項目2.6)、亜リン酸及び亜ホスホン酸エステル(リストの項目4)並びに過酸化物分解性化合物(リストの項目5)である。

【0201】

また特に好ましい追加の添加剤(安定剤)は、例えば、US-A-4,325,863、US-A-4,338,244又はUS-A-5,175,312に記載されているような、ベンゾフラン-2-オンである。

【0202】

特に重要なフェノール性酸化防止剤は、3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシヒドロケイ皮酸n-オクタデシル、テトラキス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシヒドロケイ皮酸)ネオペンタンテトライル、3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホン酸ジ-n-オクタデシル、イソシアヌル酸1,3,5-トリス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシヒドロケイ皮酸)チオジエチレン、1,3,5-トリメチル-2,4,6-トリス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン、ビス(3-メチル-5-tert-ブチル-4-ヒドロキシヒドロケイ皮酸)3,6-ジオキサオクタメチレン、2,6-ジ-tert-ブチル-p-クレゾール、2,2-エチリデン-ビス(4,6-ジ-tert-ブチルフェノール)、イソシアヌル酸1,3,5-トリス(2,6-ジメチル-4-tert-ブチル-3-ヒドロキシベ 40

50

ンジル)、1, 1, 3 - トリス(2 - メチル - 4 - ヒドロキシ - 5 - tert - プチルフェニル)ブタン、イソシアヌル酸1, 3, 5 - トリス[2 - (3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシヒドロシンナモイルオキシ)エチル]、3, 5 - ジ - (3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシベンジル)メシトール、ビス(3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシヒドロケイ皮酸)ヘキサメチレン、1 - (3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシアニリノ) - 3, 5 - ジ(オクチルチオ) - s - トリアジン、N, N - ヘキサメチレン - ビス(3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシヒドロシンナムアミド)、ビス(3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシベンジルホスホン酸エチル)カルシウム、ビス[3, 3 - ジ(3 - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル)酪酸]エチレン、3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシベンジルメルカプト酢酸オクチル、ビス(3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシヒドロシンナモイル)ヒドラジド、及びN, N - ビス[2 - (3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシヒドロシンナモイルオキシ) - エチル] - オキサミドよりなる群から選択される。  
10

## 【0203】

最も好ましいフェノール性酸化防止剤は、テトラキス(3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシヒドロケイ皮酸)ネオペンタンテトライル、3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシヒドロケイ皮酸n - オクタデシル、1, 3, 5 - トリメチル - 2, 4, 6 - トリス(3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシベンジル)ベンゼン、イソシアヌル酸1, 3, 5 - トリス(3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシベンジル)、2, 6 - ジ - tert - ブチル - p - クレゾール又は2, 2 - エチリデン - ビス(4, 6 - ジ - tert - ブチルフェノール)である。  
20

## 【0204】

特に重要な立体障害アミンは、セバシン酸ビス(2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル)、セバシン酸ビス(1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチルピペリジン - 4 - イル)、(3, 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシベンジル)ブチルマロン酸ジ(1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチルピペリジン - 4 - イル)、4 - ベンゾイル - 2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジン、4 - ステアリルオキシ - 2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジン、3 - n - オクチル - 7, 7, 9, 9 - テトラメチル - 1, 3, 8 - トリアザ - スピロ[4.5]デカン - 2, 4 - ジオン、ニトリロ三酢酸トリス(2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル)、1, 2 - ビス(2, 2, 6, 6 - テトラメチル - 3 - オキソピペラジン - 4 - イル)エタン、2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 7 - オキサ - 3, 20 - ジアザ - 21 - オキソジスピロ[5.1.11.2]ヘンエイコサン、2, 4 - ジクロロ - 6 - tert - オクチルアミノ - s - トリアジンと4, 4 - ヘキサメチレンビス(アミノ - 2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジン)の重縮合生成物、1 - (2 - ヒドロキシエチル) - 2, 2, 6, 6 - テトラメチル - 4 - ヒドロキシピペリジンとコハク酸の重縮合生成物、4, 4 - ヘキサメチレンビス - (アミノ - 2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジン)と1, 2 - ジプロモエタンの重縮合生成物、1, 2, 3, 4 - ブタンテトラカルボン酸テトラキス(2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル)、1, 2, 3, 4 - ブタンテトラカルボン酸テトラキス(1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチルピペリジン - 4 - イル)、2, 4 - ジクロロ - 6 - モルホリノ - s - トリアジンと4, 4 - ヘキサメチレンビス(アミノ - 2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジン)の重縮合生成物、N, N, N, N - テトラキス[(4, 6 - ビス(ブチル - 1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチルピペリジン - 4 - イル) - アミノ - s - トリアジン - 2 - イル) - 1, 10 - ジアミノ - 4, 7 - ジアザデカン、混合1, 2, 3, 4 - ブタンテトラカルボン酸[2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル / , , , - テトラメチル - 3, 9 - (2, 4, 8, 10 - テトラオキサスピロ[5.5]ウンデカン)ジエチル]、混合1, 2, 3, 4 - ブタンテトラカルボン酸[1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチルピペリジン - 4 - イル / , , , - テトラメチル - 3, 9 - (2, 4, 8, 10 - テトラオキサスピロ[5.5]ウンデカン)ジエチル]、ビス(40

2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - カルボン酸) オクタメチレン、4 , 4 - エチレンビス(2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペラジン - 3 - オン)、N - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル - n - ドデシルスクシンイミド、N - 1 , 2 , 2 , 6 , 6 - ペンタメチルピペリジン - 4 - イル - n - ドデシルスクシンイミド、N - 1 - アセチル - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル - n - ドデシルスクシンイミド、1 - アセチル - 3 - ドデシル - 7 , 7 , 9 , 9 - テトラメチル - 1 , 3 , 8 - トリアザスピロ[4 . 5]デカン - 2 , 4 - ジオン、セバシン酸ジ-(1 - オクチルオキシ - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル)、コハク酸ジ-(1 - シクロヘキシルオキシ - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル)、1 - オクチルオキシ - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチル - 4 - ヒドロキシ - ピペリジン、ポリ-{[6 - tert - オクチルアミノ - s - トリアジン - 2 , 4 - ジイル] [2 - (1 - シクロヘキシルオキシ - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル) イミノ - ヘキサメチレン - [4 - (1 - シクロヘキシルオキシ - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル) イミノ]}、及び2 , 4 , 6 - トリス[N - (1 - シクロヘキシルオキシ - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル) - n - プチルアミノ] - s - トリアジン、セバシン酸ビス[1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル] ; グルタル酸ビス[1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル]とアジピン酸ビス[1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル]の混合物；1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 4 - オクタデカノイルオキシ - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン；アジピン酸ビス[1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル]；グルタル酸ビス[1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル]；コハク酸ビス[1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル]；グルタル酸ビス[1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル]とコハク酸ビス[1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル]の混合物；1 - (4 - オクタデカノイルオキシ - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 1 - イルオキシ) - 2 - オクタデカノイルオキシ - 2 - メチルプロパン；1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 4 - [9 - (メトキシ - カルボニル) - ノナノイルオキシ] - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン；1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 4 - [5 - (メトキシ - カルボニル) ペンタノイルオキシ] - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン；1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 4 - [4 - (メトキシ - カルボニル) ブチリルオキシ] - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン；4 - ヒドロキシ - 1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジンとジイソシアヌ酸ヘキサメチレンとのメトキシを末端にした縮合生成物；4 - ヒドロキシ - 1 - (2 - ヒドロキシ - エトキシ) - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジンとジイソシアヌ酸ヘキサメチレンとのメトキシを末端にした縮合生成物；4 - ヒドロキシ - 1 - (2 - ヒドロキシ - 1 - フェネトキシ) - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチル - ピペリジンとジイソシアヌ酸ヘキサメチレンとのメトキシを末端にした縮合生成物；1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 4 - ヘキサデカノイルオキシ - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン；又は1 - (2 - ヒドロキシ - 2 - メチルプロポキシ) - 4 - ヒドロキシ - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジンよりなる群から選択される。

## 【0205】

最も好ましい立体障害アミン化合物は、セバシン酸ビス(2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル)、セバシン酸ビス(1 , 2 , 2 , 6 , 6 - ペンタメチルピペリジン - 4 - イル)、(3 , 5 - ジ - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシベンジル) ブチルマ

10

20

30

40

50

ロン酸ジ(1,2,2,6,6-ペンタメチルピペリジン-4-イル)、1-(2-ヒドロキシエチル)-2,2,6,6-テトラメチル-4-ヒドロキシピペリジンとコハク酸の重縮合生成物、2,4-ジクロロ-6-tert-オクチルアミノ-s-トリアジンと4,4-ヘキサメチレンビス(アミノ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン)の重縮合生成物、N,N,N,N-テトラキス[(4,6-ビス(ブチル-(1,2,2,6,6-ペンタメチルピペリジン-4-イル)-アミノ)-s-トリアジン-2-イル]-1,10-ジアミノ-4,7-ジアザデカン、セバシン酸ジ-(1-オクチルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)、コハク酸ジ-(1-シクロヘキシルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)、1-オクチルオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-4-ヒドロキシ-ピペリジン、ポリ-{[6-tert-オクチルアミノ-s-トリアジン-2,4-ジイル][2-(1-シクロヘキシルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)イミノ-ヘキサメチレン-[4-(1-シクロヘキシルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)イミノ]}、又は2,4,6-トリス[N-(1-シクロヘキシルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)-n-ブチルアミノ]-s-トリアジン、セバシン酸ビス[1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル]；グルタル酸ビス[1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル]とアジピン酸ビス[1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル]の混合物；1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-4-オクタデカノイルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン；アジピン酸ビス[1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル]；グルタル酸ビス[1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル]；コハク酸ビス[1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル]；グルタル酸ビス[1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル]とコハク酸ビス[1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル]の混合物；1-(4-オクタデカノイルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-1-イルオキシ)-2-オクタデカノイルオキシ-2-メチルプロパン；1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-4-[9-(メトキシ-カルボニル)-ノナノイルオキシ]-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン；1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-4-[5-(メトキシ-カルボニル)ペンタノイルオキシ]-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン；1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-4-[3-(メトキシ-カルボニル)プロピオニルオキシ]-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン；1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-4-[4-(メトキシ-カルボニル)ブチリルオキシ]-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン；4-ヒドロキシ-1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-2,2,6,6-テトラメチルピペリジンとジイソシアヌ酸ヘキサメチレンとのメトキシを末端にした縮合生成物；4-ヒドロキシ-1-(2-ヒドロキシ-エトキシ)-2,2,6,6-テトラメチルピペリジンとジイソシアヌ酸ヘキサメチレンとのメトキシを末端にした縮合生成物；4-ヒドロキシ-1-(2-ヒドロキシ-1-フェネトキシ)-2,2,6,6-テトラメチルピペリジンとジイソシアヌ酸ヘキサメチレンとのメトキシを末端にした縮合生成物；1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-4-ヘキサデカノイルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン；又は1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-4-ヒドロキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジンである。

## 【0206】

本組成物は、s-トリアジン、オキサンリド、ヒドロキシベンゾフェノン、ベンゾアート及び-シアノアクリラートよりなる群から選択されるUV吸収剤を追加的に含んでもよい。

10

20

30

40

50

## 【0207】

特に、本組成物は、有効安定化量の少なくとも1つの他の2-ヒドロキシフェニル-2H-ベンゾトリアゾール；別のトリス-アリール-s-トリアジン；又は立体障害アミンあるいはこれらの混合物を追加的に含んでもよい。

## 【0208】

好ましくは、2-ヒドロキシフェニル-2H-ベンゾトリアゾールは、  
2-(2-ヒドロキシ-3,5-ジ-tert-アミルフェニル)-2H-ベンゾトリアゾール；  
2-[2-ヒドロキシ-3,5-ジ(, -ジメチルベンジル)フェニル]-2H-ベンゾトリアゾール；  
2-[2-ヒドロキシ-3-(, -ジメチルベンジル)-5-オクチルフェニル]-2H-ベンゾトリアゾール；  
2-{2-ヒドロキシ-3-tert-ブチル-5-[2-(, -ヒドロキシ-オクタ(エチレンオキシ)カルボニル)エチル]フェニル}-2H-ベンゾトリアゾール；及び  
2-{2-ヒドロキシ-3-tert-ブチル-5-[2-(オクチルオキシ)カルボニル)エチル]フェニル}-2H-ベンゾトリアゾールよりなる群から選択される。  
10

## 【0209】

好ましくは、他のトリス-アリール-s-トリアジンは、  
2,4-ビス(2,4-ジメチルフェニル)-6-(2-ヒドロキシ-4-オクチルオキシフェニル)-s-トリアジン；  
2,4-ジフェニル-6-(2-ヒドロキシ-4-ヘキシルオキシフェニル)-s-トリアジン；  
2,4-ビス(2,4-ジメチルフェニル)-6-[2-ヒドロキシ-4-(3-ド-/トリ-デシルオキシ-2-ヒドロキシプロポキシ)フェニル]-s-トリアジン；及び  
2-(2-ヒドロキシエチルアミノ)-4,6-ビス[N-ブチル-N-(1-シクロヘキシルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)アミノ]-s-トリアジンよりなる群から選択される。  
20

## 【0210】

本発明により光及び水分の作用に対して安定化することができるアルキド樹脂ラッカーは、特に自動車を塗装するのに使用される従来の焼付ラッカー(自動車仕上塗ラッカー)、例えば、アルキド/メラミン樹脂及びアルキド/アクリル/メラミン樹脂に基づくラッカーである(H. WagnerとH.F. Sarx, "Lackkunstharze" (1977), pages 99-123を参照のこと)。他の架橋剤は、グリコールウリル樹脂、ブロック化イソシアネート又はエポキシ樹脂を含む。  
30

## 【0211】

本発明により安定化されるラッカーは、金属仕上塗装及び単一色仕上げの両方に、特に修正仕上の場合に、更には種々のコイルコーティング応用に適している。本発明により安定化されるラッカーは、好ましくは2つの方法、単層法又は二層法のいずれかにより従来法で適用される。後者の方法では、顔料含有ベースコートが最初に適用され、次いで透明ラッカーの被覆がその上に適用される。  
40

## 【0212】

また、本発明の化合物は、エポキシ、エポキシ-ポリエステル、ビニル、アルキド、アクリル及びポリエステル樹脂(場合により、ケイ素、イソシアネート又はイソシアヌラートで改質されている)のような、非酸触媒熱硬化性樹脂での使用にも適用可能であることに注意すべきである。エポキシ及びエポキシ-ポリエステル樹脂は、酸、酸無水物、アミドなどのような従来の架橋剤で架橋される。同様に、エポキシドは、基本骨格構造上の反応性基の存在により修飾されている、種々のアクリル又はポリエステル樹脂系の架橋剤として利用することができる。

## 【0213】

二層仕上において使用するとき、本発明の化合物は、透明コート又は透明コートと顔料入  
50

リベースコートの両方に組み込むことができる。

【0214】

水溶性、水混和性又は水分散性コーティングが望まれるとき、樹脂中に存在する酸基のアンモニウム塩が形成される。粉末コーティング組成物は、メタクリル酸グリシジルを選択したアルコール成分と反応させることにより調製することができる。

【0215】

本発明はまた、

(a) 写真材料、及び

(b) 有効安定化量の上記と同義の式(1)、(2)、(3)、(4)、(5)又は(6)の化合物

を含むことを特徴とする、光により誘導される分解に対して安定化された写真材料に関する。10

【0216】

本発明は更に、

(a) 热硬化性組成物、及び

(b) 有効安定化量の上記と同義の式(1)、(2)、(3)、(4)、(5)又は(6)の化合物

を含むことを特徴とする、熱、酸素又は光により誘導される分解に対して安定化された組成物に関する。20

【0217】

成分(a)の熱硬化性樹脂は、熱硬化性アクリルメラミン樹脂、アクリルウレタン樹脂、エポキシカルボキシ樹脂、シラン改質アクリルメラミン、メラミンと架橋したカルバマートペンダント基を持つアクリル樹脂又はカルバマート基を含むメラミンと架橋したアクリルポリオールよりなる群から選択される。

【0218】

本発明は更に、

(a) 热可塑性組成物、及び

(b) 有効安定化量の上記と同義の式(1)、(2)、(3)、(4)、(5)又は(6)の化合物

を含むことを特徴とする、熱、酸素又は光により誘導される分解に対して安定化された組成物に関する。30

【0219】

成分(a)の熱可塑性樹脂は、ポリオレフィン、ポリカーボネート、スチレン系ABS、ポリアミド(ナイロン)、ポリエステル、ポリウレタン、ポリアクリレート、ポリイミド、ゴム改質スチレン樹脂、ポリ(塩化ビニル)、ポリ(ビニルブチラール)、ポリアセタール(ポリオキシメチレン)、又はポリ(エチレン/1,4-シクロヘキシレンジメチレンテレフタレート)PETGのようなブレンド若しくはコポリマー、又はエチレン/アクリル酸コポリマー若しくはその塩(イオノマー)を含む。

【0220】

熱可塑性樹脂の更に別の実施態様は、ポリ(エチレンテレフタレート)、ポリ(ブチレンテレフタレート)若しくはポリ(2,5-ナフタレンジカルボン酸エチレン)PENである、ポリエステル、又はコポリマーのポリ(エチレン/1,4-シクロヘキシレンジメチレンテレフタレート)PETGである。40

【0221】

熱可塑性樹脂の更に別の実施態様は、ポリエチレン若しくはポリプロピレンであるポリオレフィン；又はポリプロピレンである。

【0222】

成分(a)の熱可塑性樹脂は、ポリ(m-フェニレンイソフタルアミド)、ナイロン6又はナイロン66である、ポリアミドである。

【0223】

10

20

30

40

50

成分( a )の熱可塑性樹脂は、ポリ( p - フェニレンピロメリトイミド)である、ポリイミドである。

【 0 2 2 4 】

本発明は更に、

( a )染色又は着色されたポリプロピレン、ポリアミド又はポリエステル纖維、及び

( b )有効安定化量の上記と同義の式( 1 )、( 2 )、( 3 )、( 4 )、( 5 )又は( 6 )の化合物

を含むことを特徴とする、熱、酸素又は光により誘導される分解に対して安定化された組成物に関する。

【 0 2 2 5 】

本発明の1つの実施態様は、成分( a )の纖維が、着色されたポリプロピレン纖維である場合である。

【 0 2 2 6 】

ロウソクは、多数の種々の成分を含むことに注意すべきである。基礎材料は、以下のものから構成される：

パラフィンロウ、

天然油、

ポリアミド + 脂肪酸 / エステル、

ステアリンのような脂肪酸、

乳白剤、

ミツロウ、

グリセリド + 酸化ロウ、

アルコール、及び

エチレンオリゴマー。

【 0 2 2 7 】

ロウソクはまた、幾つかの以下のような添加剤を含む：

離型剤、

芳香剤、

昆虫忌避剤又は殺虫剤、

硬化剤、

結晶改質剤、

清澄剤、

たれ溝抑制剤( guttering reducers )、

着色料、

凝固点制御剤、

延伸適性改善剤、

ゲル化剤、

押出補助剤、及び

渦抑制剤。

【 0 2 2 8 】

種々の成分のそれぞれは、適切な燃焼を保証し、溝切りを抑制し、均質な溶融を助けるなどのため、ロウソクの性質を制御又は改質することを意図する。着色料及び芳香剤は明らかに、適切な色、香り又は他の美的訴求力を提供するために存在する。

【 0 2 2 9 】

重要性が高まっているのは、透明なガラスのように見えるが、古典的なロウソクのように燃焼する透明ゲルロウソクである。詳細には米国特許第5,879,694号(この該当する部分は、参照することにより本明細書に組み込まれる)に考察されているように、これらのゲルロウソクは通常、硬質及び軟質セグメントの両方を含む、少なくとも2つの熱力学的に不適合のセグメントから古典的には構成される、トリプロック、放射プロック、ジプロック又はマルチプロックコポリマーよりなる群から選択されるコポリマーを含む。このよう

10

20

30

40

50

なブロックコポリマーの典型は、スチレンモノマー単位とゴムモノマー又はコモノマー単位のブロックセグメントよりなる、クラトン (KRATON) (登録商標) (シェル化学 (Shell Chemical Co.)) である。クラトン (登録商標) D シリーズに見い出される最も普通の構造は、スチレン - ブタジエン - スチレン (SBS) 又はスチレン - イソブレン - スチレン (SIS) を持つ直鎖状ABAブロックである。

## 【0230】

以下の実施例は、説明目的のみ予定されているのであって、本発明を少しでも限定する解釈してはならない。

## 【0231】

## 原料

10

ロウの試料は、キャンドルライト社 (Candle-Lite Corporation) により供給される。これらの試料は、染料及び芳香剤を含む。UV吸収剤及び立体障害アミン安定剤は、チバスペシャルティケミカルズ社 (Ciba Speciality Chemicals Corporation) から得られる。

## 【0232】

## 試料調製

キャンドルライト社から得られたロウの試料は、既に染料及び芳香剤 (香料) を含む。これらの場合に、ロウは、溶融して、適切な安定剤を加え、溶融したロウに溶解する。次いでこの安定化ロウを、5個のロウ円盤が得られる5個の直径44mmのアルミニウムパンに注ぎ入れる。

## 【0233】

20

## 試料曝露

各円盤の三重測定用試料は、並置された6個の白色蛍光灯 (40ワット) の下で、又は368nmの波長を有する並置された6個のUVランプの下で、試料をランプの下方12インチ (30.48cm) に置いて曝露する。

## 【0234】

染料の退色 (又は変色) は、6インチ積分球を持つマクベス・カラーアイ分光光度計 (Macbeth ColorEye Spectrophotometer) により測定する。条件は、観測器10度; D65光源及び視角8度である。

## 【0235】

最初の色測定は、上記パラメーターを用いて行われる。L、a及びb値は、反射率値からCIEシステムを用いて算出される。Y1は、L、a及びb値から算出する。続いての測定は、規定間隔で行われる。デルタ、L、a、b及びY1値は、単に初期値と各間隔での値との間の差である。デルタ (ΔE) は、以下のとおり算出される:

$$[(\Delta L)^2 + (\Delta a)^2 + (\Delta b)^2]^{1/2} = \Delta E$$

## 【0236】

## 実施例1

2,4-ビス [N-n-ブチル-N-(1-シクロヘキシリオキシ-2,2,6,6-テトラメチルビペリジン-4-イル)アミノ]-6-[2-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカノイルオキシ)エチル]アミノ-s-トリアジン

2,4-ビス [N-n-ブチル-N-(1-シクロヘキシリオキシ-2,2,6,6-テトラメチルビペリジン-4-イル)アミノ]-6-(2-ヒドロキシエチル)アミノ-s-トリアジン (19.0g、0.025mol)、パーフォマシッド (performacid) 350 (12.0g、0.025mol)、ベーカー・ペトロライト (Baker-Petrolite)、C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカン酸)、トルエン (430g、4.67mol)、ジシクロヘキシリカルボジイミド (5.5g、0.027mol) 及びジメチルアミノピリジン (0.4g、0.003mol) を実験室の反応器に充填した。反応器内容物を95~100℃に加熱して、そのまま6時間保持した。反応塊は、シリカゲルの小パッドにより熱濾過した。蒸留により溶媒を除去して、アセトン300mLで置換した。得られた溶液を熱濾過して、アセトンを減圧下で留去した。標題化合物を、3つの融点範囲32~38℃; 47℃及び56℃を持つ白色の固体溶融物として17.5g (58%) の収量で得た。構造は、種々の鎖長のエステルの

30

40

50

混合物に一致し、そして<sup>1</sup>H NMR 及び質量分析により確認した。

【0237】

実施例2

1 - シクロヘキシルオキシ - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチル - 4 - C<sub>20</sub> - C<sub>40</sub> アルカノイルオキシペリジン

1 - シクロヘキシルオキシ - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチル - 4 - ヒドロキシペリジン (12.8 g、0.05 mol) 及びパーフォマシッド (performacid) 350 (24 g、0.05 mol、C<sub>20</sub> - C<sub>40</sub> アルカン酸、ベーカー・ペトロライト (Baker-Petrolite)) を、実施例1の手順により一緒にして反応させた。標題化合物を、35 ~ 41 の融点範囲を持つ白色の固体として9 g (25%) の収量で得た。構造は、種々の鎖長のエステルの混合物に一致し、そして<sup>1</sup>H NMR 及び質量分析により検証した。

【0238】

実施例3

UVランプ曝露下のピンク色の芳香口ウソク用口ウの退色

UVランプ曝露下の、キャンドルライト社 (Candle-Lite Corporation) から入手したピンク色の芳香口ウソク用口ウにおいて種々の異なる安定剤を評価した。E値は、所定日数の曝露後の色の変化を表す。E値が低いほど色の変化が少なく、そして大いに望ましい。

【0239】

試料* (添加重量%)	32日後のΔE
プランク (添加なし)	21.10
A (0.3%)	7.97
D (0.3%)	16.24
B (0.15%) +	
C (0.15%)	11.15
A (0.15%) +	
E (0.15%)	5.72
A (0.15%) +	
E (0.3%)	3.76

10

20

30

40

40

【0240】

\* Aは、3 - (ベンゾトリアゾール - 2 - イル) - 5 - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシヒドロケイ皮酸オクチル、チヌビン (TINUVIN) (登録商標) 384、チバ (CIBA) である。

Bは、2 - (2 - ヒドロキシ - 5 - tert - オクチルフェニル) - 2H - ベンゾトリアゾール、チヌビン (TINUVIN) (登録商標) 329、チバ (CIBA) である。

Cは、4 - オクチルオキシ - 2 - ヒドロキシベンゾフェノン、キマソーブ (CHIMMASORB) (登録商標) 81、チバ (CIBA) である。

Dは、セバシン酸ビス (1 , 2 , 2 , 6 , 6 - ペンタメチルピペリジン - 4 - イル)、チヌビン (TINUVIN) (登録商標) 292、チバ (CIBA) である。

Eは、2 , 4 - ビス [N - n - ブチル - N - (1 - シクロヘキシルオキシ - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - イル) アミノ] - 6 - [2 - (C<sub>20</sub> - C<sub>40</sub> アルカノイルオキシ) エチル] アミノ - s - トリアジン、本実施例1の化合物である。

【0241】

これらのデータは、UV吸収剤と組合せた本化合物 (化合物E) が、ピンク色の芳香口ウソク用口ウを有害な変色から、従来の安定剤システムよりもはるかによく保護することを

50

示した。

【0242】

実施例4

蛍光灯曝露下の灰色の芳香口ウソク用ロウの退色

蛍光灯曝露下の、キャンドルライト社 (Candle-Lite Corporation) から入手した灰色の芳香ロウソク用ロウにおいて種々の異なる安定剤を評価した。E値は、所定日数の曝露後の色の変化を表す。E値が低いほど色の変化が少なく、そして大いに望ましい。

【0243】

試料* (添加重量%)	29日後の△E	
プランク (添加なし)	15.72	10
A (0.3%)	9.88	
B (0.15%) + C (0.15%)	8.01	
A (0.15%) + E (0.15%)	3.58	
A (0.15%) + F (0.15%)	3.87	
G (0.15%) + E (0.15%)	6.12	
G (0.15%) + F (0.15%)	6.02	
G (0.15%) + F (0.3%)	6.54	20

【0244】

\*Aは、3-(ベンゾトリアゾール-2-イル)-5-tert-ブチル-4-ヒドロキシヒドロケイ皮酸オクチル、チヌビン (TINUVIN) (登録商標) 384、チバ (CIBA) である。

Bは、2-(2-ヒドロキシ-5-tert-オクチルフェニル)-2H-ベンゾトリアゾール、チヌビン (TINUVIN) (登録商標) 329、チバ (CIBA) である。

Cは、4-オクチルオキシ-2-ヒドロキシベンゾフェノン、キマソーブ (CHIMMASORB) (登録商標) 81、チバ (CIBA) である。30

Eは、2,4-ビス [N-n-ブチル-N-(1-シクロヘキシリオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)アミノ]-6-[2-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカノイルオキシ)エチル]アミノ-s-トリアジン、本実施例1の化合物である。

Fは、1-シクロヘキシリオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-4-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカノイルオキシペリジン、本実施例2の化合物である。

Gは、2,4-ビス(2,4-ジメチルフェニル)-6-[2-ヒドロキシ-4-(3-ド-/トリ-デシリオキシ-2-ヒドロキシプロポキシ)フェニル]-s-トリアジン、チヌビン (TINUVIN) (登録商標) 400、チバ (CIBA) である。

【0245】

これらのデータは、UV吸収剤 (特にベンゾトリアゾールUV吸収剤) と組合せた本化合物 (化合物E又はF) が、灰色の芳香ロウソク用ロウを有害な変色から、従来の安定剤システムよりもはるかによく保護することを示した。40

【0246】

実施例5

UVランプ曝露下の灰色の芳香ロウソク用ロウの退色

蛍光灯曝露下の、キャンドルライト社 (Candle-Lite Corporation) から入手した灰色の芳香ロウソク用ロウにおいて種々の異なる安定剤を評価した。E値は、所定日数の曝露後の色の変化を表す。E値が低いほど色の変化が少なく、そして大いに望ましい。

【0247】

試料* (添加重量%)	18日後のΔE
プランク (添加なし)	29.97
A (0.3%)	8.82
B (0.15%) + C (0.15%)	10.21
A (0.15%) + H (0.15%)	5.04
A (0.15%) + E (0.15%)	4.29
A (0.15%) + F (0.15%)	4.76

10

## 【0248】

\* Aは、3-(ベンゾトリアゾール-2-イル)-5-tert-ブチル-4-ヒドロキシヒドロケイ皮酸オクチル、チヌビン(TINUVIN)（登録商標）384、チバ(CIBA)である。

Bは、2-(2-ヒドロキシ-5-tert-オクチルフェニル)-2H-ベンゾトリアゾール、チヌビン(TINUVIN)（登録商標）329、チバ(CIBA)である。

Cは、4-オクチルオキシ-2-ヒドロキシベンゾフェノン、キマソーブ(CHIMMASORB)（登録商標）81、チバ(CIBA)である。

Eは、2,4-ビス[N-n-ブチル-N-(1-シクロヘキシリオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)アミノ]-6-[2-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカノイルオキシ)エチル]アミノ-s-トリアジン、本実施例1の化合物である。 20

Fは、1-シクロヘキシリオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-4-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカノイルオキシピペリジン、本実施例2の化合物である。

Hは、セバシン酸ビス(1-オクチルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)、チヌビン(TINUVIN)（登録商標）123、チバ(CIBA)である。

## 【0249】

これらのデータは、ベンゾトリアゾールUV吸収剤と組合せた本化合物（化合物E又はF）が、灰色の芳香口ウソク用ロウを有害な変色から、従来の安定剤システムよりもはるかによく保護することを示した。 30

## 【0250】

## 実施例6

## 蛍光灯曝露下の白色の芳香口ウソク用ロウの退色

蛍光灯曝露下の、キャンドルライト社(Candle-Lite Corporation)から入手した白色の芳香口ウソク用ロウにおいて種々の異なる安定剤を評価した。E値は、所定日数の曝露後の色の変化を表す。E値が低いほど色の変化が少なく、そして大いに望ましい。

## 【0251】

試料* (添加重量%)	24日後のΔE	
プランク (添加なし)	34.34	
D (0.3%)	32.33	
A (0.3%)	29.16	
B (0.15%) + C (0.15%)	20.08	
A (0.15%) + D (0.15%)	31.06	
A (0.15%) + F (0.15%)	15.33	10
G (0.15%) + E (0.15%)	12.82	
G (0.15%) + F (0.15%)	16.82	
G (0.15%) + F (0.3%)	12.96	
A (0.15%) + E (0.15%)	10.99	
A (0.15%) + E (0.3%)	7.29	

## 【0252】

\* Aは、3-(ベンゾトリアゾール-2-イル)-5-tert-ブチル-4-ヒドロキシヒドロケイ皮酸オクチル、チヌビン(TINUVIN)（登録商標）384、チバ(CIBA)である。 20

Bは、2-(2-ヒドロキシ-5-tert-オクチルフェニル)-2H-ベンゾトリアゾール、チヌビン(TINUVIN)（登録商標）329、チバ(CIBA)である。

Cは、4-オクチルオキシ-2-ヒドロキシベンゾフェノン、キマソーブ(CHIMMASORB)（登録商標）81、チバ(CIBA)である。

Dは、セバシン酸ビス(1,2,2,6,6-ペンタメチルピペリジン-4-イル)、チヌビン(TINUVIN)（登録商標）292、チバ(CIBA)である。

Eは、2,4-ビス[N-n-ブチル-N-(1-シクロヘキシルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)アミノ]-6-[2-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカノイルオキシ)エチル]アミノ-s-トリアジン、本実施例1の化合物である。 30

Fは、1-シクロヘキシルオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-4-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカノイルオキシピペリジン、本実施例2の化合物である。

Gは、2,4-ビス(2,4-ジメチルフェニル)-6-[2-ヒドロキシ-4-(3-ド-/トリ-デシルオキシ-2-ヒドロキシプロポキシ)フェニル]-s-トリアジン、チヌビン(TINUVIN)（登録商標）400、チバ(CIBA)である。

## 【0253】

これらのデータは、UV吸収剤(特にベンゾトリアゾールUV吸収剤)と組合せた本化合物(化合物E又はF)が、白色の芳香口ウソク用口ウを有害な変色から、従来の安定剤システムよりもはるかによく保護することを示した。 40

## 【0254】

## 実施例7

UVランプ曝露下の白色の芳香口ウソク用口ウの退色

UVランプ曝露下の、キャンドルライト社(Candle-Lite Corporation)から入手した白色の芳香口ウソク用口ウにおいて種々の異なる安定剤を評価した。E値は、所定日数の曝露後の色の変化を表す。E値が低いほど色の変化が少なく、そして大いに望ましい。

## 【0255】

試料* (添加重量%)	25日後のΔE
プランク (添加なし)	45.09
D (0.3%)	32.03
A (0.3%)	25.50
B (0.15%) + C (0.15%)	30.11
A (0.15%) + D (0.15%)	29.74
G (0.15%) + E (0.15%)	24.89
A (0.15%) + F (0.15%)	20.14
A (0.15%) + E (0.15%)	17.13
A (0.15%) + E (0.3%)	14.66

## 【0256】

\* Aは、3-(ベンゾトリアゾール-2-イル)-5-tert-ブチル-4-ヒドロキシヒドロケイ皮酸オクチル、チヌビン(TINUVIN)（登録商標）384、チバ(CIBA)である。

Bは、2-(2-ヒドロキシ-5-tert-オクチルフェニル)-2H-ベンゾトリアゾール、チヌビン(TINUVIN)（登録商標）329、チバ(CIBA)である。 20

Cは、4-オクチルオキシ-2-ヒドロキシベンゾフェノン、キマソーブ(CHIMMASORB)（登録商標）81、チバ(CIBA)である。

Dは、セバシン酸ビス(1,2,2,6,6-ペンタメチルピペリジン-4-イル)、チヌビン(TINUVIN)（登録商標）292、チバ(CIBA)である。

Eは、2,4-ビス[N-n-ブチル-N-(1-シクロヘキシリオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)アミノ]-6-[2-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカノイルオキシ)エチル]アミノ-s-トリアジン、本実施例1の化合物である。

Fは、1-シクロヘキシリオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-4-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>アルカノイルオキシピペリジン、本実施例2の化合物である。 30

Gは、2,4-ビス(2,4-ジメチルフェニル)-6-[2-ヒドロキシ-4-(3-ドノトリ-デシルオキシ-2-ヒドロキシプロポキシ)フェニル]-s-トリアジン、チヌビン(TINUVIN)（登録商標）400、チバ(CIBA)である。

## 【0257】

これらのデータは、UV吸収剤(特にベンゾトリアゾールUV吸収剤)と組合せた本化合物(化合物E又はF)が、白色の芳香口ウソク用ロウを有害な変色から、従来の安定剤システムよりもはるかによく保護することを示した。

## 【0258】

## 実施例8

## 本化合物の熱耐久性

本化合物は、市販の立体障害アミン安定剤、チヌビン(TINUVIN)（登録商標）770に比較したその熱耐久性を測定するために、熱重量分析に供した。 40

## 【0259】

化合物	10%重量減少時の温度(℃)	50%重量減少時の温度(℃)
チヌビン770*	255	297
実施例1	284	368

## 【0260】

\*チヌビン(TINUVIN)（登録商標）770は、セバシン酸ビス(2,2,6,6-テトラ 50

メチルピペリジン-4-イル)、チバ(CIBA)である。

【0261】

これらのデータは、市販の立体障害アミン安定剤、チヌビン(TINUVIN)(登録商標)770と比較して、本化合物の熱耐久性が改善していることを示した。

【0262】

実施例9

HALS移行値のためのLDPEフィルムの調製

粉碎した低密度ポリエチレン粉末(ダウ(Dow)6401)は、目的量の被験長鎖立体障害アミン(HALS)及び0.30重量%のスупーフロス(Superfloss)粘着防止剤とタンブルブレンドした。このブレンドした樹脂は、450°F(232°C)で二軸スクリューで混合した。得られたペレットは、400°F(204°C)で約3ミリ厚の単層フィルムにプロー成形した。10

【0263】

プロー成形したフィルムは、フィルムの内側からフィルム表面への被験HALSの移行を試験するために使用した。移行する添加剤は、フィルム表面上に容易に削り落とすことができる白色の沈着を作りやすい。これは、ブルーミングと呼ばれる現象である。添加剤が、フィルムの表面へブルームして、容易にそこから除去されるならば、これが、フィルム自体を保護するというその目的に適わないことは明らかである。

【0264】

フィルム表面の視認評価は、約30日間隔で375日まで実施した。フィルムは室温で貯蔵した。20

【0265】

本長鎖立体障害アミン化合物は、その非移行性のため、ブルーミングの防止においてLDPEフィルム中で特に有効であった。

【0266】

実施例10

PETボトル

本長鎖立体障害アミン化合物のポリ(エチレンテレフタレート)(PET)濃縮物(10重量%)は、イースタパック(Eastapak)9921W PETを用いて、27mm二軸スクリュー押出機で275の押出型での操作温度で調製した。この濃縮物をベースの樹脂で緩めて、樹脂に基づき0.3重量%の最終添加物量とした。PETは、プレフォーム成形前に、真空下で240°Fで少なくとも4時間乾燥した。プレフォームは、濁りや結晶性のない部品を得るのに必要な、最低射出温度及び背圧を用いて、単位キャビティーアルバーグ(Arburg)プレスで成形した。ボトルのプロー成形は、上述のプレフォームを使用し、サイデル(Sidel)SBO 2/3プロー成形機を用いて行った。0.015~0.016インチのボトル壁厚を達成した。30

【0267】

本化合物は、ボトル内容物への移行なしに樹脂を有害な分解から保護するその能力のため、特に有効であった。

【0268】

実施例11

0.5重量%の本長鎖立体障害アミンを含む別々のポリ(エチレンテレフタレート)(PET)樹脂配合物に、0.5重量%の下記ベンゾトリニアゾール安定剤それぞれを加えた:(a)5-クロロ-2-(2-ヒドロキシ-3--クミル-5-tert-オクチルフェニル)-2H-ベンゾトリニアゾール;

(b)3-(5-クロロ-2H-ベンゾトリニアゾール-2-イル)-5-tert-ブチル-4-ヒドロキシヒドロケイ皮酸イソオクチル;

(c)2-(2-ヒドロキシ-3--クミル-5-tert-オクチルフェニル)-2H-ベンゾトリニアゾール;

(d)5-トリフルオロメチル-2-(2-ヒドロキシ-3--クミル-5-tert-40

- オクチルフェニル) - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (e) 5 - ブチルスルホニル - 2 - (2 - ヒドロキシ - 3 - - クミル - 5 - tert -  
 オクチルフェニル) - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (f) 5 - トリフルオロメチル - 2 - (2 - ヒドロキシ - 3 - - クミル - 5 - tert  
 - ブチルフェニル) - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (g) 5 - トリフルオロメチル - 2 - (2 - ヒドロキシ - 5 - tert - オクチルフェニル) - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (h) 5 - トリフルオロメチル - 2 - (2 - ヒドロキシ - 3 , 5 -ジ - tert - オクチルフェニル) - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (i) 5 - トリフルオロメチル - 2 - (2 - ヒドロキシ - 3 , 5 -ジ - tert - ブチルフェニル) - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (j) 5 - トリフルオロメチル - 2 - (2 - ヒドロキシ - 3 , 5 -ジ - - クミルフェニル) - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (k) 5 - ブチルスルホニル - 2 - (2 - ヒドロキシ - 3 , 5 -ジ - tert - ブチルフェニル) - 2 H - ベンゾトリアゾール；  
 (l) 5 - フェニルスルホニル - 2 - (2 - ヒドロキシ - 3 , 5 -ジ - tert - ブチルフェニル) - 2 H - ベンゾトリアゾール；又は  
 (m) 3 - (5 - トリフルオロメチル - 2 H - ベンゾトリアゾール - 2 - イル) - 5 - tert - ブチル - 4 - ヒドロキシヒドロケイ皮酸メチル。

## 【0269】

20

次にそれぞれの安定化樹脂組成物は、中にそれぞれのUV吸収剤が組み込まれたPETボトルへとプロー又は射出成形した。このPETボトルは、UV線から内容物を保護するのに特に有効であり、ボトルに含まれる製品は長い貯蔵寿命が得られた。

## 【0270】

20

## 実施例12

0.5重量%の本長鎖立体障害アミンを含む別々のポリ(エチレンテレフタレート)(PET)樹脂配合物に、0.5重量%の下記ベンゾトリアゾール安定剤それぞれを加えた：  
 (i) 2 , 4 - ビス(4 - ビフェニリル) - 6 - (2 - ヒドロキシ - 4 - オクチルオキシカルボニルエチリデンオキシフェニル) - s - トリアジン；  
 (ii) 2 - フェニル - 4 - [2 - ヒドロキシ - 4 - (3 - sec - ブチルオキシ - 2 - ヒドロキシプロピルオキシ)フェニル] - 6 - [2 - ヒドロキシ - 4 - (3 - sec - アミルオキシ - 2 - ヒドロキシプロピルオキシ)フェニル] - s - トリアジン；  
 (iii) 2 , 4 - ビス(2 , 4 - ジメチルフェニル) - 6 - [2 - ヒドロキシ - 4 - (3 - ベンジルオキシ - 2 - ヒドロキシプロピルオキシ)フェニル] - s - トリアジン；  
 (iv) 2 , 4 - ビス(2 - ヒドロキシ - 4 - n - ブチルオキシフェニル) - 6 - (2 , 4 - ジ - n - ブチルオキシフェニル) - s - トリアジン；  
 (v) 2 , 4 - ビス(2 , 4 - ジメチルフェニル) - 6 - [2 - ヒドロキシ - 4 - (3 - ノニルオキシ - 2 - ヒドロキシプロピルオキシ) - 5 - - クミルフェニル] - s - トリアジン；( \* は、オクチルオキシ、ノニルオキシ及びデシルオキシ基の混合物を意味する)  
 (vi) メチレンビス - [2 , 4 - ビス(2 , 4 - ジメチルフェニル) - 6 - [2 - ヒドロキシ - 4 - (3 - ブチルオキシ - 2 - ヒドロキシプロピルオキシ)フェニル] - s - トリアジン、メチレン架橋二量体混合物(3 : 5 、5 : 5 及び3 : 3 位で5 : 4 : 1の比で架橋)；  
 (vii) 2 , 4 , 6 - トリス(2 - ヒドロキシ - 4 - イソオクチルオキシカルボニルイソプロピリデンオキシフェニル) - s - トリアジン；  
 (viii) 2 , 4 - ビス(2 , 4 - ジメチルフェニル) - 6 - (2 - ヒドロキシ - 4 - ヘキシリオキシ - 5 - - クミルフェニル) - s - トリアジン；  
 (ix) 2 , 4 - ビス(2 , 4 - ジメチルフェニル) - 6 - (2 - ヒドロキシ - 4 - オクチルオキシ - フェニル) - s - トリアジン；サイアソーブ(CYASORB)(登録商標) 116

40

50

4、サイテック(Cytec)；

(x) 2-(2,4,6-トリメチルフェニル)-4,6-ビス[2-ヒドロキシ-4-(3-ブチルオキシ-2-ヒドロキシプロピルオキシ)フェニル]-s-トリアジン；又は

(xi) 2,4,6-トリス[2-ヒドロキシ-4-(3-s e c-ブチルオキシ-2-ヒドロキシプロピルオキシ)フェニル]-s-トリアジン。

【0271】

次にそれぞれの安定化樹脂組成物は、中にそれぞれのUV吸収剤が組み込まれたP E Tボトルへとプレー又は射出成形した。このP E Tボトルは、UV線から内容物を保護するのに特に有効であり、ボトルに含まれる製品は長い貯蔵寿命が得られた。

10

【0272】

実施例13

外層及びボトル内容物に接触している最内層がP E Tからなり、そしてバリアー層も含む、多層ボトルを調製した。実施例11及び12に列挙された1つ以上のベンゾトリアゾール又はs-トリアジンUV吸収剤、並びに本長鎖立体障害アミンを、3層のいずれかに、樹脂の重量に基づき0.5重量%で組み込むと、ボトルの内容物は、UV線から効果的に保護された。

【0273】

実施例14

外層及びボトル内容物に接触している最内層がH D P E(高密度ポリエチレン)からなり、そしてバリアー層も含む、多層ボトルを調製した。実施例11及び12に列挙された1つ以上のベンゾトリアゾール又はs-トリアジンUV吸収剤、並びに本長鎖立体障害アミンを、3層のいずれかに、樹脂の重量に基づき0.5重量%で組み込むと、ボトルの内容物は、UV線から効果的に保護された。

20

【0274】

実施例15

外層及びボトル内容物に接触している最内層がポリプロピレンからなり、そしてバリアー層も含む、多層ボトルを調製した。実施例11及び12に列挙された1つ以上のベンゾトリアゾール又はs-トリアジンUV吸収剤、並びに本長鎖立体障害アミンを、3層のいずれかに、樹脂の重量に基づき0.5重量%で組み込むと、ボトルの内容物は、UV線から効果的に保護された。

30

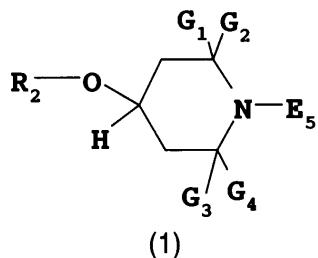
【0275】

実施例16～46の下に列挙される化合物は、実施例1及び2並びに米国特許第5,204,473号；5,216,156号；5,844,026号及び6,166,212号に見い出される一般法により調製した。

実施例16～24

【0276】

【化34】



<u>Ex*</u>	<u>E<sub>5</sub></u>	<u>E<sub>9</sub></u>	<u>E**</u>	<u>R<sub>2</sub>**</u>	<u>T<sub>1</sub></u>	
16	OE <sub>9</sub>	メチル	--	-COT <sub>1</sub>	C <sub>40</sub> -C <sub>60</sub> -	10
17	OE <sub>9</sub>	オクチル	--	-COT <sub>1</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub> -	
18	OE <sub>9</sub>	ベンジル	--	-COT <sub>1</sub>	C <sub>80</sub> -C <sub>100</sub> -	
19	OE <sub>9</sub>	シクロ ヘキセニル	--	A	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub> X は -O-	m は 4;
20*	OE <sub>9</sub>	オクタデシル	--	B	C <sub>80</sub> -C <sub>100</sub> X は NCH <sub>3</sub>	p は 10;
21	OE(OH) <sub>b</sub>	-	C	-COT <sub>1</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub>	b は 1
22*	OE(OH) <sub>b</sub>	-	D	-COT <sub>1</sub>	C <sub>60</sub> -C <sub>80</sub>	b は 2
23	OE(OH) <sub>b</sub>	-	C	-COXT <sub>1</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub>	b は 1
24	OE(OH) <sub>b</sub>	-	C	-COT <sub>1</sub>	C <sub>40</sub> -C <sub>60</sub>	b は 1

## 【0277】

\* 他に記載がなければ、G<sub>1</sub> ~ G<sub>4</sub> は、それぞれメチルである。

実施例 20 では、G<sub>1</sub> 及び G<sub>3</sub> は、それぞれメチルであり、そして G<sub>2</sub> 及び G<sub>4</sub> は、それぞれエチルである。

実施例 22 では、G<sub>1</sub> ~ G<sub>4</sub> は、n-プロピルである。

\*\* A は、-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>CO-X-T<sub>1</sub> である。

B は、-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X-CO-T<sub>1</sub> である。

C は、-CH<sub>2</sub>C(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>-OH である。

D は、-CH<sub>2</sub>CH(OH)-CH<sub>2</sub>OH である。

実施例 25 ~ 32

## 【0278】

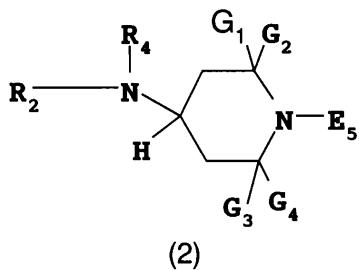
## 【化35】

10

20

30

40



<u>Ex*</u>	<u>E<sub>5</sub></u>	<u>E<sub>2</sub></u>	<u>E**</u>	<u>R<sub>2</sub>**</u>	<u>T<sub>1</sub></u>		
25	OE <sub>9</sub>	メチル	--	-COT <sub>1</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub>	R <sub>4</sub> は CH <sub>3</sub>	10
26	OE <sub>9</sub>	シクロヘキシリル	--	-COT <sub>1</sub>	C <sub>40</sub> -C <sub>60</sub>	R <sub>4</sub> は H	
27	OE <sub>9</sub>	オクチル	--	-COT <sub>1</sub>	C <sub>80</sub> -C <sub>100</sub>	R <sub>4</sub> =C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	
28	OE <sub>9</sub>	フェニル	--	E	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub> X は -O-; R <sub>4</sub> は H	m は 6;	
29*	OE(OH) <sub>b</sub>	-	C	-COT <sub>1</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub> b は 1	R <sub>4</sub> は CH <sub>3</sub> ;	20
30*	OE(OH) <sub>b</sub>	-	D	T <sub>1</sub>	C <sub>40</sub> -C <sub>60</sub> R <sub>4</sub> は H	b は 2;	
31	OE(OH) <sub>b</sub>	-	C	A	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub> R <sub>4</sub> は H; p は 3	b は 1;	
32	OE(OH) <sub>b</sub>	-	C	F	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub> R <sub>4</sub> は CH <sub>3</sub> ; p は 6	b は 1;	30

## 【 0 2 7 9 】

\* 他に記載がなければ、G<sub>1</sub> ~ G<sub>4</sub> は、それぞれメチルである。

実施例 30 では、G<sub>1</sub> 及び G<sub>3</sub> は、それぞれオクチルであり、そして G<sub>2</sub> 及び G<sub>4</sub> は、それぞれメチルである。

\*\* A は、- (CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub> CO - X - T<sub>1</sub> である。

C は、- CH<sub>2</sub> C (CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub> - OH である。

D は、- CH<sub>2</sub> CH (OH) - CH<sub>2</sub> OH である。

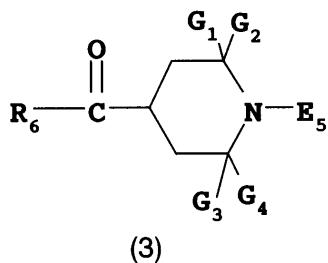
E は、- (CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub> - CO - T<sub>1</sub> である。

F は、- CO - (CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub> - X - CO - T<sub>1</sub> である。

実施例 33 ~ 40

## 【 0 2 8 0 】

## 【 化 3 6 】



<u>Ex*</u>	<u>E<sub>5</sub></u>	<u>E<sub>6</sub></u>	<u>E**</u>	<u>R<sub>6</sub>**</u>	<u>T<sub>1</sub></u>	<u>X</u> は	
33	OE <sub>9</sub>	メチル	--	-XT <sub>1</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub>	-O-	10
34	OE <sub>9</sub>	シクロ ヘキシリ	--	-XT <sub>1</sub>	C <sub>40</sub> -C <sub>60</sub>	-O-	
35	OE <sub>9</sub>	オクチル	--	-XT <sub>1</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub>	-NH-	
36	OE <sub>9</sub>	フェニル	--	G	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub>	m は 6; X は -O-; X <sub>1</sub> は -O-	
37	OE <sub>9</sub>	アリル	--	-XT <sub>1</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub>	-O-	20
38	OE(OH) <sub>b</sub>	-	C	-XT <sub>1</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub>	b は 1	
39	OE(OH) <sub>b</sub>	-	C	-XT <sub>1</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub>	b は 1; X は NCH <sub>3</sub>	
40	OE(OH) <sub>b</sub>	-	H	I	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub>	b は 2; p は 3; X は NCH <sub>3</sub> ; X <sub>1</sub> は -O-	

30

30

## 【0 2 8 1】

\* 他に記載がなければ、G<sub>1</sub> ~ G<sub>4</sub> は、それぞれメチルである。

\*\*

C は、-CH<sub>2</sub>CO(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>-OH である。

G は、-X-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X<sub>1</sub>-T<sub>1</sub> である。

H は、-CH<sub>2</sub>-CH(OH)-CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>OH である。

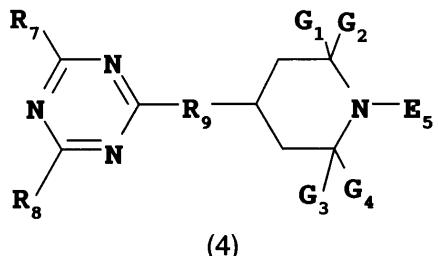
I は、-X-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X<sub>1</sub>-CO-T<sub>1</sub> である。

実施例 41 ~ 46

## 【0 2 8 2】

## 【化 3 7】

40



<u>E<sub>x</sub>*</u>	<u>E<sub>5</sub></u>	<u>E<sub>9</sub></u>	<u>E**</u>	<u>R<sub>7</sub>**</u>	<u>I<sub>1</sub></u>		
41	OE <sub>9</sub>	メチル	--		C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub>	X は -O-;	10
					X <sub>1</sub> は -NH-;		
					p は 2;		
					R <sub>8</sub> は NHT <sub>2</sub> ;		
					R <sub>9</sub> は NC <sub>4</sub> H <sub>9</sub>		
42	OE <sub>9</sub>	オクチル	--	-XT <sub>1</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub>	X は -O-;	
					R <sub>8</sub> は -OT <sub>2</sub> ;		
					R <sub>9</sub> は -O-		
43	OE <sub>9</sub>	アリル	--	-XT <sub>1</sub>	C <sub>40</sub> -C <sub>60</sub>	X は -O-;	20
					R <sub>8</sub> は -XT <sub>1</sub>		
44	OE <sub>9</sub>	シクロ	--	G	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub>	m は 3;	
					X は -O-;		
					X <sub>1</sub> は NCH <sub>3</sub> ;		
					R <sub>8</sub> =NC <sub>4</sub> H <sub>9</sub> T <sub>2</sub> ;		
					R <sub>9</sub> =NC <sub>4</sub> H <sub>9</sub>		
45	OE(OH) <sub>b</sub>	-	C		C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub>	X <sub>1</sub> は -O-;	
					b は 1;		
					p は 2;		
					X は -NH-'		
					R <sub>8</sub> =NC <sub>4</sub> H <sub>9</sub> T <sub>2</sub> ;		
					R <sub>9</sub> =NC <sub>4</sub> H <sub>9</sub>		
46	OE(OH) <sub>b</sub>	-	C	-XT <sub>1</sub>	C <sub>40</sub> -C <sub>60</sub>	b は 1	
					R <sub>8</sub> は -OT <sub>2</sub> ;		
					R <sub>9</sub> は -O-;		
					X は -O-		

【 0 2 8 3 】

40

\* 他に記載がなければ、G<sub>1</sub> ~ G<sub>4</sub> は、それぞれメチルである。

\*\*

C は、-CH<sub>2</sub>CH(C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>2</sub>-OH である。G は、-X-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X<sub>1</sub>-T<sub>1</sub> である。I は、-X-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X<sub>1</sub>-CO-T<sub>1</sub> である。

## 【国際公開パンフレット】

(12) INTERNATIONAL APPLICATION PUBLISHED UNDER THE PATENT COOPERATION TREATY (PCT)

(19) World Intellectual Property Organization  
International Bureau(43) International Publication Date  
24 October 2002 (24.10.2002)

PCT

(10) International Publication Number  
**WO 02/083781 A1**(51) International Patent Classification<sup>5</sup>: C08K 5/3475,  
5/00, 5/103, 5/345CZ, DU, DK, DM, DZ, EC, HU, IS, IT, GB, GD, GE, GH,  
GM, IIR, IUU, ID, II, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC,  
LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW,  
MX, MZ, NO, NZ, OM, PI, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG,  
SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, UZ, VN,  
YU, ZA, ZM, ZW.

(21) International Application Number: PCT/EP02/03944

(22) International Filing Date: 9 April 2002 (09.04.2002)

(25) Filing Language:

English

(84) Designated States (regional): ARIPO patent (GH, GM,  
KI, LS, MW, MZ, SD, SI, SZ, TZ, UG, ZM, ZW),  
Bahrain patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM),  
European patent (AT, BE, CL, CY, DE, DK, ES, FI, FR,  
GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI patent  
(BJ, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR,  
NE, SN, TD, TG).

(26) Publication Language:

English

(30) Priority Data:  
09/836,100 17 April 2001 (17.04.2001) US

Published:

— with international search report  
before the expiration of the time limit for amending the  
claims and to be republished in the event of receipt of  
amendments(71) Applicant: CIBA SPECIALITY CHEMICALS HOLDING INC. [CH/CH]: Klybeckstrasse 141, CH-4057 Basel  
(CH).(72) Inventors: WOOD, Mervin, Gale; 147 Lime Ridge Road,  
Poughquag, NY 12570 (US), SMITH, Andrea, R.; 10  
Hoyt Road, Wingdale, NY 12594 (US), GALBO, James,  
Peter; 28 White Farm Road, Wingdale, NY 12594 (US).(81) Designated States (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU,  
AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU,For two-letter codes and other abbreviations, refer to the "Guide-  
ance Notes on Codes and Abbreviations" appearing at the begin-  
ning of each regular issue of the PCT Gazette.**WO 02/083781 A1**

(54) Title: LONG CHAIN HINDERED AMINOS AND COMPOSITIONS STABILIZED THEREWITH

(57) Abstract: Hindered amine compounds which are substituted by a long hydrocarbon chain are useful in a number of applications where the solubility or compatibility afforded by said substitution is needed. This is seen particularly for example with white, dyed, dipped unscented and/or scented candle wax which is effectively stabilized against discoloration and fading by the incorporation therein of a long chain hindered amine alone or in combination with a UV absorber and/or an antioxidant.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 1 -

LONG CHAIN HINDERED AMINES AND COMPOSITIONS STABILIZED THEREWITH

This invention pertains to hindered amine compounds which are substituted by a long hydrocarbon chain and which are useful in a number of applications where the solubility or compatibility afforded by said substitution is needed. This is seen particularly for example with white, dyed, dipped, unscented and/or scented candle wax which is effectively stabilized against discoloration and fading by the incorporation therein of a long chain hindered amine alone or in combination with a UV absorber and/or an antioxidant.

Background of the Invention

Candles have been known for many centuries going back to the eighth century B.C. The nature of candles is described in Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, Volume A5 at pages 29-30 where it is seen that candles are made from paraffin, beeswax and stearin as basic materials, and where a host of additives may also be present.

It is not surprising that with candles and wax becoming increasingly more important attention was paid as to how to stabilize the said materials. At the National Candle Association Meeting in Houston, 1994, R. van der Vennet presented a paper on "Antioxidants in Wax - Replacement of BHT" touting the use of Vitamin E (tocopherol) as an antioxidant to prevent the yellowing of wax when oxidized. WO 94/13736 describes the same invention.

EP 359,488 A3 and EP 133,964 B1 describe stabilized waxes used in cosmetics where the waxes are the same or similar to those used in candles.

EP 5,922 A1 describes lip cosmetics where the waxes are useful in lipsticks and are related to those useful in candles.

United States Patent No. 5,879,694 describes in detail transparent gel candles both in composition and structure. The use of BHT as an antioxidant is mentioned.

At the National Candle Association Technical Meeting on April 16, 1998, F. A. Ballentine et al., presented a paper entitled "Inhibiting Color Fading of Dyed Candles with CYASORB®

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 2 -

"Light Absorbers" In which the general theories of thermal oxidation and photodegradation are discussed along with data on the effect of light absorbers on color stability of dyed candle waxes. The light absorbers compared are 4-octyloxy-2-hydroxybenzophenone UV-531; 4-methoxy-2-hydroxybenzophenone UV-9; 2-(2-hydroxy-5-methylphenyl)-2H-benzotriazole UV-5365; 2-(2-hydroxy-5-tert-octylphenyl)-2H-benzotriazole UV-5411 and 2-(2-hydroxy-3,5-di-tert-amylphenyl)-2H-benzotriazole UV-2337).

United States Patent No. 5,964,905 teaches dyed and scented candle gels containing triblock copolymers and a hydrocarbon oil of high flash point. This reference teaches that a light (UV) absorber may be used to improve the shelf stability of the candle color when exposed to visible or ultraviolet light. Two preferred absorbers are ethylhexyl p-methoxycinnamate (PARSOL® MCX, Roche) and 2-(2-hydroxy-5-tert-octylphenyl)-2H-benzotriazole (CYASORB® 5411, Cytel).

WO 00/22037 teaches the stabilization of solid, shaped and colored wax articles, including candles, using a malonate UV absorber which may optionally contain a hindered amine moiety as part of the malonate compound structure. The wax articles are dyed with a variety of oil soluble dyes and pigments. The samples protected by dimethyl p-methoxybenzylidinemalonate exhibited better resistance to discoloration than did samples stabilized with selected benzotriazole or benzophenone UV absorbers.

Japanese Hei 3-278554 teaches that wax crayons (drawing materials) colored by organic pigments can be stabilized by a hindered amine and/or benzotriazole.

In respect to wax stabilization, the use of selected hindered amines and/or benzotriazole UV absorbers is also known in the prior art as seen in United States Patent Nos. 3,530,084; 4,379,721; 4,616,051 and 5,964,905 and copending applications Serial Nos. 09/495,495, 09/495,496 and 09/741,583.

United States Patent Nos. 4,046,737; 4,021,432 and 4,049,647 teach piperidine derivatives having substituted by alkyl, alkenyl or alkynyl groups of 1 to 20 carbon atoms.

Japanese Sho 57-137,358 describes piperidine derivatives substituted on the N-atom by a group containing a polymerizable double bond.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 3 -

EP 300,160 and Japanese Hei 11-263,884 depict piperidine derivatives substituted on the 4-position by a monocarboxylic acid of 16 to 24 carbon atoms. The resulting hindered amine is useful for stabilizing lubricating oils, cosmetics and polyolefins.

United States Patent No. 4,376,836 disclose triazylaminotriazines substituted by hindered piperidine groups where the longest chain in said molecules contain 18 carbon atoms. These molecules are used to stabilize polyolefins.

United States Patent No. 4,319,030 teaches alkylated diaza-spirodecanes which may contain alkyl groups of 1 to 30 carbon atoms. These compounds are used as stabilizers for polyolefins.

United States Patent No. 4,986,932 describes polyolefin compositions containing a benzotriazole or benzophenone UV absorber and a hindered piperidine substituted on the 4-position by a ester group containing 16-24 carbon atoms.

United States Patent No. 4,308,362 discloses copolymers of polymerizable hindered piperidine derivatives which are useful for the stabilization of polyolefins.

United States Patent No. 4,198,334 teaches substituted malonic acid derivatives containing hindered piperidine derivatives which may be substituted with alkyl groups of 1 to 20 carbon atoms.

United States Patent No. 4,496,849 describes color photographic recording material containing hindered piperidine derivatives, but containing aromatic moieties in the molecules.

United States Patent No. 4,141,883 discloses 2,2,6,6-tetraalkylpiperidine compounds substituted on the 4-position by an alkyloxy or acyloxy group of 1 to 18 carbon atoms. These materials are useful for stabilizing polyolefins.

United States Patent No. 4,471,417 teaches poly-bis-triazinylimides which contain hindered amine piperidine moieties and alkyl groups of 1 to 18 carbon atoms. These compounds are useful for stabilizing polyolefins.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 4 -

United States Patent No. 4,533,688 discloses tris(piperidylaminotriazylamino) compounds which contain alkyl moieties of 1 to 18 carbon atoms. These compounds are useful for the stabilization of polyolefins.

United States Patent No. 5,204,473 and copending application Serial No. 09/257,711 describe hindered amine compounds related to the instant compounds, but without the long chain substitution.

None of these references teach the instant long chain hindered amine compounds themselves or the superior performance provided when said long chain hindered amine compounds are used alone or in conjunction with a UV absorber and/or antioxidant to stabilize candle wax and other compositions subject to degradation.

#### Objects of the Invention

The object of the invention is to provide for hindered amine compounds substituted by a long chain hydrocarbon moiety.

Another object of the invention is to provide for a white and unscented; white and scented; dyed and unscented; dyed and scented; dipped and unscented; or dipped and scented candle wax stabilized by a long chain hindered amine or UV absorber compound alone or in combination with a UV absorber and/or antioxidant.

Still another object of the invention is thermoplastic resin compositions stabilized with the instant hindered amines, particularly polyolefins and polyesters.

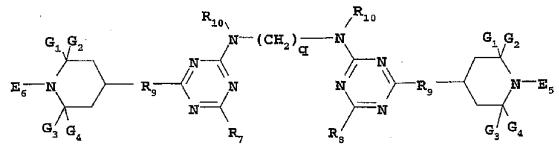
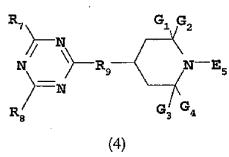
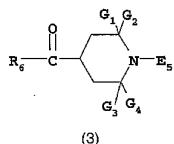
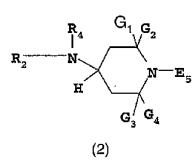
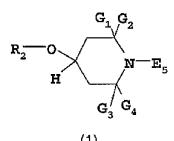
#### Detailed Disclosure

The instant invention pertains to a compound of formula 1 to 6

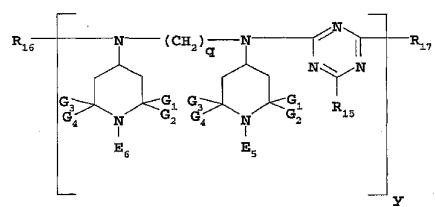
WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 5 -



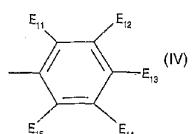
(5)



$G_1$ ,  $G_2$ ,  $G_3$ , and  $G_4$  are independently alkyl of 1 to 8 carbon atoms, or  $G_1$  and  $G_2$  together are pentamethylene, or  $G_3$  and  $G_4$  together are pentamethylene;

$E_5$  is  $OE_8$  or  $-O-E-(OH)_n-$ ;

$E_6$  is straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms, cycloalkyl of 5 to 12 carbon atoms, straight or branched chain alkenyl of 3 to 24 carbon atoms, cycloalkenyl of 5 to 12 carbon atoms, phenylalkyl of 7 to 15 carbon atoms, a radical of a saturated or unsaturated bicyclic or tricyclic hydrocarbon of 7 to 15 carbon atoms, aryl of 6 to 10 carbon atoms or said aryl substituted by one to three alkyl of 1 to 4 carbon atoms; or a group of formula IV



WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 7 -

$E_1$  to  $E_6$  are independently hydrogen, halogen, nitro, cyano, alkyl of 1 to 18 carbon atoms, phenylalkyl of 7 to 15 carbon atoms, aryl of 6 to 10 carbon atoms, hydroxyl, carboxyl, alkythio of 1 to 18 carbon atoms, alkoxy or 1 to 18 carbon atoms, phenylalkoxy of 7 to 15 carbon atoms, aryloxy of 6 to 10 carbon atoms, alkylcarbonyloxy of 2 to 18 carbon atoms, alkylsulfonyl of 1 to 18 carbon atoms, arylsulfonyl of 6 to 15 carbon atoms, sulfo or phosphono, or any two vicinal substituents connected together to form a mono- or polycyclic ring;

$E$  is a straight or branched chain alkylene of 1 to 18 carbon atoms, cycloalkylene of 5 to 18 carbon atoms, cycloalkenylene of 5 to 18 carbon atoms, a straight or branched chain alkylene of 1 to 4 carbon atoms substituted by phenyl or by phenyl substituted by one or two alkyl groups of 1 to 4 carbon atoms;

$b$  is 1, 2 or 3 with the proviso that  $b$  cannot exceed the number of carbon atoms in  $E$ , and when  $b$  is 2 or 3, each hydroxyl group is attached to a different carbon atom of  $E$ ;

$R_2$  is  $T_1$ ,  $-CO-T_1$ ,  $-CO-X-T_1$ ,  $-(CH_2)_m-CO-X-T_1$ ,  $-(CH_2)_p-X-CO-T_1$ ,  $-CO-(CH_2)_m-CO-X-T_1$ , or  $-CO-(CH_2)_p-X-CO-T_1$ ;

$m$  is 1 to 12;

$p$  is 1 to 12;

$T_1$  is straight or branched chain alkyl of 19 to 100 carbon atoms, or said alkyl substituted by one hydroxyl group and interrupted by one oxa moiety, or a mixture of such alkyl moieties; or

$T_1$  is  $-(R-O)_n-R-OG_5$  where  $R$  is ethylene, propylene, trimethylene, 1,2-butylene or tetramethylene, and  $n$  is 4 to 49 so that the total number of carbon atoms in  $T_1$  is at least 20;

$G_5$  is hydrogen, straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms, straight or branched chain alkenyl of 2 to 18 carbon atoms, cycloalkyl of 5 to 12 carbon atoms, phenylalkyl of 7 to 15 carbon atoms, phenyl, or said phenyl or said phenylalkyl substituted on the phenyl ring by 1 to 4 alkyl of 1 to 4 carbon atoms;

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 8 -

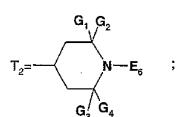
X and X<sub>1</sub> are independently -O-, or -N-(R<sub>4</sub>)-;

R<sub>4</sub> is hydrogen, alkyl of 1 to 18 carbon atoms or acyl of 2 to 6 carbon atoms;

R<sub>5</sub> is T<sub>1</sub>, -X-T<sub>1</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>n</sub>-CO-X-T<sub>1</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X-CO-T<sub>1</sub>, X-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X-T<sub>1</sub>, or X-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X<sub>1</sub>-CO-T<sub>1</sub>;

R<sub>7</sub> and R<sub>8</sub> are independently chlorine, alkoxy of 1 to 18 carbon atoms, -O-T<sub>2</sub>, amino substituted by 2-hydroxyethyl, -NH(alkyl) of 1 to 18 carbon atoms, -N(alkyl)T<sub>2</sub> with alkyl of 1 to 18 carbon atoms, -N(alkyl)<sub>2</sub> of 2 to 36 carbon atoms, -X-T<sub>1</sub>, X-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X-T<sub>1</sub>, or X-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X<sub>1</sub>-CO-T<sub>1</sub>;

R<sub>9</sub> is a divalent oxygen atom, or R<sub>9</sub> is a divalent nitrogen atom substituted by either hydrogen, alkyl of 1 to 12 carbon atoms or T<sub>2</sub>



E<sub>6</sub> is hydrogen, oxy, hydroxyl, straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms, straight or branched chain alkenyl of 3 to 24 carbon atoms, benzyl, acetyl, -CH<sub>2</sub>CH(OH)-E<sub>6</sub>, -OE<sub>6</sub>, or, -OE(OH)<sub>b</sub>;

E<sub>8</sub> is hydrogen, methyl, ethyl or phenyl;

R<sub>10</sub> is hydrogen or an alkyl group of 1 to 18 carbon atoms;

q is 2 to 8;

y is 1 to 10;

WO 02/083781

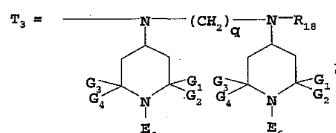
PCT/EP02/03944

- 9 -

$R_{16}$  is morpholino, piperidino, 1-piperiziny, alkylamino of 1 to 18 carbon atoms, especially branched alkylamino of 3 to 8 carbon atoms such as tert-octylamino,  $-N(alkyl)T_2$  with alkyl of 1 to 8 carbon atoms,  $-N(alkyl)_2$  of 2 to 16 carbon atoms,  $-X-T_1$ ,  $X-(CH_2)_m-CO-X_1-T_1$ , or  $X-(CH_2)_p-X_1-CO-T_1$ ;

$R_{16}$  is hydrogen, acyl of 2 to 4 carbon atoms, carbamoyl substituted by alkyl of 1 to 4 carbon atoms, s-triazinyl substituted once by chlorine and once by  $R_{16}$ , or s-triazinyl substituted twice by  $R_{16}$  with the condition that the two  $R_{16}$  substituents may be different;

$R_{17}$  is chlorine, amino substituted by alkyl of 1 to 18 carbon atoms or by  $T_2$ ,  $-N(alkyl)T_2$  with alkyl of 1 to 8 carbon atoms,  $-N(alkyl)_2$  of 2 to 16 carbon atoms, or the group  $T_3$



$R_{18}$  is hydrogen, acyl of 2 to 4 carbon atoms, carbamoyl substituted by alkyl of 1 to 4 carbon atoms, s-triazinyl substituted twice by  $-N(alkyl)_2$  of 2 to 16 carbon atoms or s-triazinyl substituted twice by  $-N(alkyl)T_1$  with alkyl of 1 to 8 carbon atoms;

with the proviso that at least one of  $R_2$ ,  $R_5$ ,  $R_7$ ,  $R_8$ , or  $R_{16}$  is a group which contains a  $T_1$  moiety.

It is understood that whether  $T_1$  is an alkyl group or a  $-(R-O)_n-R-OG_5$  group that such moieties are usually a mixture of molecular weights falling within the scope of the total number of atoms indicated.

When R is ethylene, the group  $T_1$  is  $-(CH_2CH_2O)_n-CH_2CH_2OG_5$  where n is 9 to 49.

When R is propylene, the group  $T_1$  is  $-(CH(CH_3)CH_2O)_n-CH(CH_3)CH_2OG_5$  where n is 6 to 32.

WO 02/083781

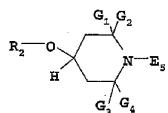
PCT/EP02/03944

- 10 -

When R is trimethylene, the group T<sub>1</sub> is -(CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>O)<sub>n</sub>-CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>OG<sub>5</sub> where n is 6 to 32.

When R is tetramethylene, the group T<sub>1</sub> is -(CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>O)<sub>n</sub>-CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>OG<sub>5</sub> where n is 4 to 24. Also R is also 1,2-butylene so that T<sub>1</sub> is -(CH(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)CH<sub>2</sub>O)<sub>n</sub>-CH(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)CH<sub>2</sub>OG<sub>5</sub> where n is 4 to 24.

Other embodiments of formula (1) are

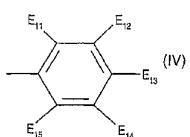


(1)

G<sub>1</sub>, G<sub>2</sub>, G<sub>3</sub>, and G<sub>4</sub> are each methyl;

E<sub>5</sub> is OE<sub>8</sub> or -O-E-(OH)<sub>5</sub>;

E<sub>8</sub> is straight or branched chain alkyl of 1 to 18 carbon atoms, cycloalkyl of 5 to 12 carbon atoms, straight or branched chain alkenyl of 3 to 24 carbon atoms, cycloalkenyl of 5 to 12 carbon atoms; or a group of formula IV



WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 11 -

$E_{11}$  to  $E_{15}$  are independently hydrogen, F, Cl, Br, nitro, cyano, hydroxyl, carboxyl, alkylthio of 1 to 18 carbon atoms, or alkoxy or 1 to 18 carbon atoms;

when b is 1,  $E\text{-OH}$  is respectively a carbon-centered radical formed from 2-methyl-2-propanol, 2-propanol, 2,2-dimethyl-1-propanol, 2-methyl-2-butanol, ethanol, 1-propanol, 1-butanol, 1-pentanol, 1-hexanol, 1-nonanol, 1-decanol, 1-dodecanol, 1-octadecanol, 2-butanol, 2-pentanol, 2-ethyl-1-hexanol, cyclohexanol, cyclooctanol, allyl alcohol, phenethyl alcohol or 1-phenyl-1-ethanol;

when b is 2,  $E\text{-OH}$  is respectively a carbon-centered radical or diradical formed from 1,2-ethanediol, 1,2-propanediol, 1,3-propanediol, 1,2-butanediol, 1,3-butanediol, 1,4-butanediol, 2,2-dimethyl-1,3-propanediol, 1,2-cyclohexanediol, 1,3-cyclohexanediol or 1,4-cyclohexanediol; most preferably  $E\text{-OH}$  is formed from 1,4-butanediol, 2,2-dimethyl-1,3-propanediol, 1,2-cyclohexanediol, 1,3-cyclohexanediol or

when b is 3,  $E\text{-OH}$  is respectively a carbon-centered radical formed from glycerol, 1,1,1-tris(hydroxymethyl)methane, 2-ethyl-2-(hydroxymethyl)-1,3-propanediol, 1,2,4-butanetriol or 1,2,6-hexanetriol;

$R_2$  is  $-\text{CO-}T_1$ ,  $-\text{CO-X-}T_1$ ,  $-(\text{CH}_2)_m\text{-CO-X-}T_1$ , or  $-(\text{CH}_2)_p\text{-X-CO-}T_1$ ;

m is 1 to 4;

p is 1 to 4;

$T_1$  is straight or branched chain alkyl of 19 to 80 carbon atoms, or a mixture of such alkyl moieties; or

$T_1$  is  $-(R\text{-O})_n\text{-R-}OG_5$  where R is ethylene, or propylene, and n is 6 to 49 so that the total number of carbon atoms in  $T_1$  is at least 20;

$G_5$  is hydrogen, straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms;

X and  $X_1$  are independently  $-\text{O-}$ , or  $-\text{N-}(R_4)\text{-}$ ; and

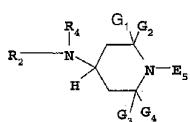
WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 12 -

R<sub>4</sub> is hydrogen, alkyl of 1 to 18 carbon atoms or acyl of 2 to 6 carbon atoms.

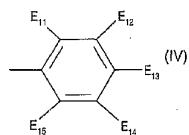
Other embodiments of formula (2) are



G<sub>1</sub>, G<sub>2</sub>, G<sub>3</sub>, and G<sub>4</sub> are each methyl;

E<sub>5</sub> is O E<sub>9</sub> or -O-E-(OH)<sub>b</sub>;

E<sub>9</sub> is straight or branched chain alkyl of 1 to 18 carbon atoms, cycloalkyl of 5 to 12 carbon atoms, straight or branched chain alkenyl of 3 to 24 carbon atoms, cycloalkenyl of 5 to 12 carbon atoms; or a group of formula IV



E<sub>11</sub> to E<sub>15</sub> are independently hydrogen, F, Cl, Br, nitro, cyano, hydroxyl, carboxyl, alkylthio of 1 to 18 carbon atoms, or alkoxy or 1 to 18 carbon atoms;

when b is 1, E-OH is respectively a carbon-centered radical formed from 2-methyl-2-propanol, 2-propanol, 2,2-dimethyl-1-propanol, 2-methyl-2-butanol, ethanol, 1-propanol, 1-butanol, 1-pentanol, 1-hexanol, 1-nonanol, 1-decanol, 1-dodecanol, 1-octadecanol, 2-butanol, 2-pentanol, 2-ethyl-1-hexanol, cyclohexanol, cyclooctanol, allyl alcohol, phenethyl alcohol or 1-phenyl-1-ethanol;

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 13 -

when b is 2, E-OH is respectively a carbon-centered radical or diradical formed from 1,2-ethanediol, 1,2-propanediol, 1,3-propanediol, 1,2-butanediol, 1,3-butanediol, 1,4-butanediol, 2,2-dimethyl-1,3-propanediol, 1,2-cyclohexanediol, 1,3-cyclohexanediol or 1,4-cyclohexanediol;

when b is 3, E-OH is respectively a carbon-centered radical formed from glycerol, 1,1,1-tris(hydroxymethyl)methane, 2-ethyl-2-(hydroxymethyl)-1,3-propanediol, 1,2,4-butanetriol or 1,2,6-hexanetriol;

R<sub>2</sub> is -CO-T<sub>1</sub>, -CO-X-T<sub>1</sub>, -(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X-T<sub>1</sub>, or -(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>X-CO-T<sub>1</sub>;

m is 1 to 4;

p is 1 to 4;

T<sub>1</sub> is straight or branched chain alkyl of 19 to 80 carbon atoms, or a mixture of such alkyl moieties; or

T<sub>1</sub> is -(R-O)<sub>n</sub>-R-OG<sub>5</sub> where R is ethylene, or propylene, and n is 6 to 49 so that the total number of carbon atoms in T<sub>1</sub> is at least 20;

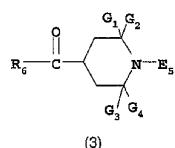
G<sub>5</sub> is hydrogen, straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms;

X and X<sub>1</sub> are independently -O-, or -N-(R<sub>4</sub>)-; and

R<sub>4</sub> is hydrogen, alkyl of 1 to 18 carbon atoms or acyl of 2 to 6 carbon atoms.

Other embodiments of formula (3) are

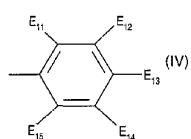
- 14 -



$G_1$ ,  $G_2$ ,  $G_3$ , and  $G_4$  are each methyl;

$E_5$  is  $OE_6$  or  $-O-E-(OH)_n-$ ;

$E_6$  is straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms, cycloalkyl of 5 to 12 carbon atoms, straight or branched chain alkenyl of 3 to 24 carbon atoms, or cycloalkenyl of 5 to 12 carbon atoms; or a group of formula IV



$E_{11}$  to  $E_{15}$  are independently hydrogen, F, Cl, Br, nitro, cyano, hydroxyl, carboxyl, alkylthio of 1 to 18 carbon atoms; or alkoxy or 1 to 18 carbon atoms;

when b is 1,  $E-OH$  is respectively a carbon-centered radical formed from 2-methyl-2-propanol, 2-propanol, 2,2-dimethyl-1-propanol, 2-methyl-2-butanol, ethanol, 1-propanol, 1-butanol, 1-pentanol, 1-hexanol, 1-nonanol, 1-decanol, 1-dodecanol, 1-octadecanol, 2-butanol, 2-pentanol, 2-ethyl-1-hexanol, cyclohexanol, cyclooctanol, allyl alcohol, phenethyl alcohol or 1-phenyl-1-ethanol;

when b is 2,  $E-OH$  is respectively a carbon-centered radical or diradical formed from 1,2-ethanediol, 1,2-propanediol, 1,3-propanediol, 1,2-butanediol, 1,3-butanediol, 1,4-butanediol, 2,2-dimethyl-1,3-propanediol, 1,2-cyclohexanediol, 1,3-cyclohexanediol or 1,4-cyclohexanediol;

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 15 -

when b is 3, E-OH is respectively a carbon-centered radical formed from glycerol, 1,1,1-tris(hydroxymethyl)methane, 2-ethyl-2-(hydroxymethyl)-1,3-propanediol, 1,2,4-butanetriol or 1,2,6-hexanetriol;

m is 1 to 4;

p is 1 to 4;

T<sub>1</sub> is straight or branched chain alkyl of 19 to 80 carbon atoms, or a mixture of such alkyl moieties; or

T<sub>1</sub> is -(R-O)<sub>n</sub>-R-OG<sub>5</sub> where R is ethylene, or propylene, and n is 6 to 49 so that the total number of carbon atoms in T<sub>1</sub> is at least 20;

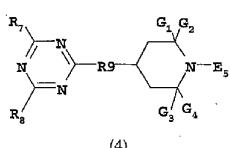
G<sub>5</sub> is hydrogen, or straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms;

X and X<sub>1</sub> are independently -O-, or -N-(R<sub>4</sub>)-;

R<sub>4</sub> is hydrogen, alkyl of 1 to 18 carbon atoms or acyl of 2 to 6 carbon atoms; and

R<sub>6</sub> is -X-T<sub>1</sub>, X-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X<sub>1</sub>-T<sub>1</sub>, or X-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X<sub>1</sub>-CO-T<sub>1</sub>.

Other embodiments of formula (4) are



G<sub>1</sub>, G<sub>2</sub>, G<sub>3</sub>, and G<sub>4</sub> are each methyl;

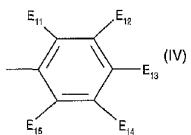
WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 16 -

 $E_5$  is  $OE_6$  or  $-O-E-(OH)_b-$ ;

$E_9$  is straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms, cycloalkyl of 5 to 12 carbon atoms, straight or branched chain alkenyl of 3 to 24 carbon atoms, or cycloalkenyl of 5 to 12 carbon atoms; or a group of formula IV



$E_{11}$  to  $E_{15}$  are independently hydrogen, F, Cl, Br, nitro, cyano, hydroxyl, carboxyl, alkylthio of 1 to 18 carbon atoms, alkoxy or 1 to 18 carbon atoms;

when b is 1,  $E-OH$  is respectively a carbon-centered radical formed from 2-methyl-2-propanol, 2,2-dimethyl-1-propanol, 2-methyl-2-butanol, ethanol, 1-propanol, 1-butanol, 1-pentanol, 1-hexanol, 1-nonal, 1-decanol, 1-dodecanol, 1-octadecanol, 2-butanol, 2-pentanol, 2-ethyl-1-hexanol, cyclohexanol, cyclooctanol, allyl alcohol, phenethyl alcohol or 1-phenyl-1-ethanol;

when b is 2,  $E-OH$  is respectively a carbon-centered radical or diradical formed from 1,2-ethanediol, 1,2-propanediol, 1,3-propanediol, 1,2-butanediol, 1,3-butanediol, 1,4-butanediol, 2,2-dimethyl-1,3-propanediol, 1,2-cyclohexanediol, 1,3-cyclohexanediol or 1,4-cyclohexanediol;

when b is 3,  $E-OH$  is respectively a carbon-centered radical formed from glycerol, 1,1,1-tris(hydroxymethyl)methane, 2-ethyl-2-hydroxymethyl-1,3-propanediol, 1,2,4-butanetriol or 1,2,6-hexanetriol;

m is 1 to 4;

p is 1 to 4;

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 17 -

$T_1$  is straight or branched chain alkyl of 19 to 80 carbon atoms, or a mixture of such alkyl moieties; or

$T_1$  is  $-(R-O)_n-R-OG_5$  where R is ethylene, or propylene and n is 4 to 49 so that the total number of carbon atoms in  $T_1$  is at least 20;

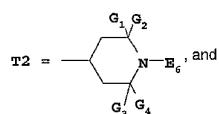
$G_5$  is hydrogen, straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms;

X and  $X_1$  are independently  $-O-$ , or  $-N-(R_4)-$ ;

$R_4$  is hydrogen, alkyl of 1 to 18 carbon atoms or acyl of 2 to 6 carbon atoms;

$R_7$  and  $R_8$  are independently alkoxy of 1 to 18 carbon atoms,  $-O-T_2$ , amino substituted by 2-hydroxyethyl,  $-N(alkyl)T_2$  with alkyl of 1 to 18 carbon atoms,  $-X-T_1$ ,  $X-(CH_2)_n-CO-X_1-T_1$ , or  $X-(CH_2)_n-X_1-CO-T_1$ ; or in some cases include  $-NH(alkyl)$  of 1 to 18 carbon atoms;

$R_9$  is a divalent oxygen atom, or  $R_9$  is a divalent nitrogen atom substituted by either hydrogen, alkyl of 1 to 12 carbon atoms or  $T_2$ .



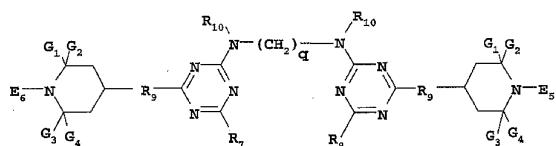
$E_6$  is hydrogen, hydroxyl, straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms, straight or branched chain alkenyl of 3 to 24 carbon atoms, benzyl, acetyl,  $-OE_6$ , or  $-OE(OH)_5$ .

Other embodiments of structure (5) are

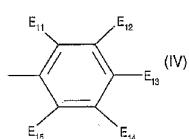
WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 18 -

 $G_1$ ,  $G_2$ ,  $G_3$ , and  $G_4$  are each methyl; $E_5$  is  $OE_9$  or  $-O-E-(OH)_b-$ ;

$E_9$  is straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms, cycloalkyl of 5 to 12 carbon atoms, straight or branched chain alkenyl of 3 to 24 carbon atoms, or cycloalkenyl of 5 to 12 carbon atoms; or a group of formula IV



$E_{11}$  to  $E_{15}$  are independently hydrogen, F, Cl, Br, nitro, cyano, hydroxyl, carboxyl, alkylthio of 1 to 18 carbon atoms, or alkoxy or 1 to 18 carbon atoms;

when  $b$  is 1,  $E-OH$  is respectively a carbon-centered radical formed from 2-methyl-2-propanol, 2-propanol, 2,2-dimethyl-1-propanol, 2-methyl-2-butanol, ethanol, 1-propanol, 1-butanol, 1-pentanol, 1-hexanol, 1-nonanol, 1-decanol, 1-dodecanol, 1-octadecanol, 2-butanol, 2-pentanol, 2-ethyl-1-hexanol, cyclohexanol, cyclooctanol, allyl alcohol, phenethyl alcohol or 1-phenyl-1-ethanol;

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 19 -

when b is 2, E-OH is respectively a carbon-centered radical or diradical formed from 1,2-ethanediol, 1,2-propanediol, 1,3-propanediol, 1,2-butanediol, 1,3-butanediol, 1,4-butanediol, 2,2-dimethyl-1,3-propanediol, 1,2-cyclohexanediol, 1,3-cyclohexanediol or 1,4-cyclohexanediol;

when b is 3, E-OH is respectively a carbon-centered radical formed from glycerol, 1,1,1-tris(hydroxymethyl)methane, 2-ethyl-2-hydroxymethyl-1,3-propanediol, 1,2,4-butanetriol or 1,2,6-hexanetriol;

m is 1 to 4;

p is 1 to 4;

T<sub>1</sub> is straight or branched chain alkyl of 19 to 80 carbon atoms or a mixture of such alkyl moieties; or

T<sub>1</sub> is -(R-O)<sub>n</sub>-R-OG<sub>5</sub> where R is ethylene or propylene and n is 4 to 49 so that the total number of carbon atoms in T<sub>1</sub> is at least 20;

G<sub>5</sub> is hydrogen, straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms;

X and X<sub>1</sub> are independently -O-, or -N-(R<sub>4</sub>)-;

R<sub>4</sub> is hydrogen, alkyl of 1 to 18 carbon atoms;

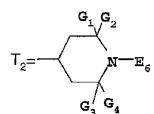
R<sub>7</sub> and R<sub>8</sub> are independently alkoxy of 1 to 18 carbon atoms, -O-T<sub>2</sub>, amino substituted by 2-hydroxyethyl, -NH(alkyl) of 1 to 18 carbon atoms, -N(alkyl)T<sub>2</sub> with alkyl of 1 to 18 carbon atoms, -X-T<sub>1</sub>, X-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X<sub>1</sub>-T<sub>1</sub>, or X-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X<sub>1</sub>-CO-T<sub>1</sub>;

R<sub>9</sub> is a divalent oxygen atom, or R<sub>9</sub> is a divalent nitrogen atom substituted by either hydrogen, alkyl of 1 to 12 carbon atoms or T<sub>2</sub>

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 20 -

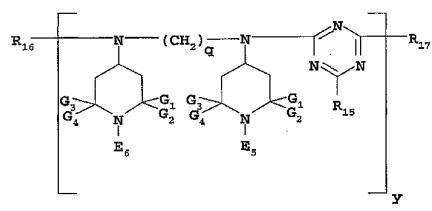


$E_6$  is hydrogen, oxyl, hydroxyl, straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms, straight or branched chain alkenyl of 3 to 24 carbon atoms, acetyl,  $-OE_9$ , or,  $-OE(OH)_b$ ;

$R_{10}$  is hydrogen or an alkyl group of 1 to 18 carbon atoms, and

$q$  is 4 to 8.

Other embodiments of structure (6) are



(6)

$G_1$ ,  $G_2$ ,  $G_3$ , and  $G_4$  are each methyl;

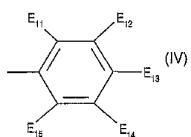
$E_5$  is  $OE_9$  or  $-O-E-(OH)_b$ ;

$E_6$  is straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms, cycloalkyl of 5 to 12 carbon atoms, straight or branched chain alkenyl of 3 to 24 carbon atoms, or cycloalkenyl of 5 to 12 carbon atoms; or a group of formula IV

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

-21-



$E_{11}$  to  $E_{15}$  are independently hydrogen, F, Cl, Br, nitro, cyano, hydroxyl, carboxyl, alkylthio of 1 to 18 carbon atoms, or alkoxy or 1 to 18 carbon atoms;

when b is 1,  $E\text{-OH}$  is respectively a carbon-centered radical formed from 2-methyl-2-propanol, 2-propanol, 2,2-dimethyl-1-propanol, 2-methyl-2-butanol, ethanol, 1-propanol, 1-butanol, 1-pentanol, 1-hexanol, 1-nonanol, 1-decanol, 1-dodecanol, 1-octadecanol, 2-butanol, 2-pentanol, 2-ethyl-1-hexanol, cyclohexanol, cyclooctanol, allyl alcohol, phenethyl alcohol or 1-phenyl-1-ethanol;

when b is 2,  $E\text{-OH}$  is respectively a carbon-centered radical or diradical formed from 1,2-ethanediol, 1,2-propanediol, 1,3-propanediol, 1,2-butanediol, 1,3-butanediol, 1,4-butanediol, 2,2-dimethyl-1,3-propanediol, 1,2-cyclohexanediol, 1,3-cyclohexanediol or 1,4-cyclohexanediol;

when b is 3,  $E\text{-OH}$  is respectively a carbon-centered radical formed from glycerol, 1,1,1-tris(hydroxymethyl)methane, 2-ethyl-2-hydroxymethyl-1,3-propanediol, 1,2,4-butanetriol or 1,2,6-hexanetriol;

m is 1 to 4;

p is 1 to 4;

$T_1$  is straight or branched chain alkyl of 19 to 80 carbon atoms or a mixture of such alkyl moieties; or

$T_1$  is  $-(R-O)_n-R-OG_5$  where R is ethylene or propylene and n is 4 to 49 so that the total number of carbon atoms in  $T_1$  is at least 20;

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 22 -

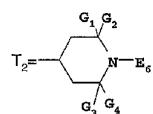
$G_6$  is hydrogen, straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms;

$X$  and  $X_1$  are independently -O-, or -N-( $R_4$ )-;

$R_4$  is hydrogen, alkyl of 1 to 18 carbon atoms;

$R_7$  and  $R_8$  are independently alkoxy of 1 to 18 carbon atoms, -O- $T_2$ , amino substituted by 2-hydroxyethyl, -NH(alkyl) of 1 to 18 carbon atoms, -N(alkyl) $T_2$  with alkyl of 1 to 18 carbon atoms, -X- $T_1$ , X-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X<sub>1</sub>- $T_1$ , or X-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X<sub>1</sub>-CO-T<sub>1</sub>;

$R_9$  is a divalent oxygen atom, or  $R_9$  is a divalent nitrogen atom substituted by either hydrogen, alkyl of 1 to 12 carbon atoms or  $T_2$



$E_6$  is hydrogen, oxyl, hydroxyl, straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms, straight or branched chain alkenyl of 3 to 24 carbon atoms, acetyl, -OE<sub>3</sub>, or, -OE(OH)<sub>2</sub>;

$R_{10}$  is hydrogen or an alkyl group of 1 to 18 carbon atoms,

$q$  is 4 to 8;

$y$  is 1 to 10;

$R_{15}$  is morpholino, piperidino, 1-piperiziny, alkylamino of 1 to 8 carbon atoms, especially branched alkylamino of 3 to 8 carbon atoms such as tert-octylamino, -X- $T_1$ , X-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X<sub>1</sub>- $T_1$ , or X-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X<sub>1</sub>-CO-T<sub>1</sub>;

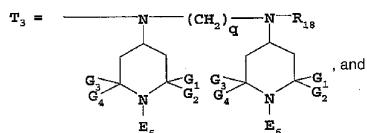
$R_{16}$  is hydrogen, acyl of 2 to 4 carbon atoms, carbamoyl substituted by alkyl of 1 to 4 carbon atoms, s-triazinyl substituted once by chlorine and once by  $R_{15}$ ;

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

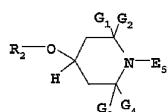
- 23 -

$R_{17}$  is amino substituted by alkyl of 1 to 18 carbon atoms or by  $T_2$ ,  $-N(alkyl)T_2$  with alkyl of 1 to 8 carbon atoms,  $-N(alkyl)_2$  of 2 to 16 carbon atoms, or the group  $T_3$



$R_{18}$  is hydrogen.

Still other embodiments of formula (1) are



(1)

$G_1$ ,  $G_2$ ,  $G_3$ , and  $G_4$  are each methyl:

$E = \text{QF}_\text{er} \cdot \text{QF}(\text{OH})$ :

E<sub>9</sub> is straight or branched chain alkyl of 1 to 12 carbon atoms, or cycloalkyl of 5 to 10

144

when b is 1, E-OH is respectively a carbon-centered radical formed from 2-methyl-2-

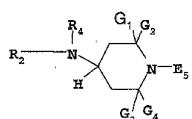
WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 24 -

 $R_2$  is  $-CO-T_1$ ; $T_1$  is straight or branched chain alkyl of 19 to 60 carbon atoms, or a mixture of such alkyl moieties.

Still other embodiments of formula (2) are

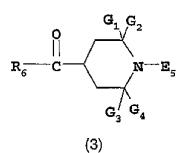
 $G_1$ ,  $G_2$ ,  $G_3$ , and  $G_4$  are each methyl; $E_5$  is  $OE_g$  or  $-O-E-(OH)_b$ ; $E_g$  is straight or branched chain alkyl of 1 to 12 carbon atoms, or cycloalkyl of 5 to 10 carbon atoms; $b$  is 1;when  $b$  is 1,  $E-OH$  is respectively a carbon-centered radical formed from 2-methyl-2-propanol; $R_2$  is  $-CO-T_1$ ; $T_1$  is straight or branched chain alkyl of 19 to 60 carbon atoms, or a mixture of such alkyl moieties; or $R_4$  is hydrogen or methyl.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 25 -

Still other embodiments of formula (3) are

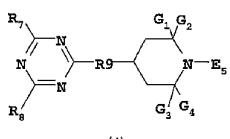
 $G_1$ ,  $G_2$ ,  $G_3$ , and  $G_4$  are each methyl; $E_s$  is  $OE_b$  or  $-O-E-(OH)_b$ ; $E_s$  is straight or branched chain alkyl of 1 to 12 carbon atoms, or cycloalkyl of 5 to 10 carbon atoms, $b$  is 1;when  $b$  is 1,  $E-OH$  is respectively a carbon-centered radical formed from 2-methyl-2-propanol or 2-propanol; $T_1$  is straight or branched chain alkyl of 19 to 60 carbon atoms, or a mixture of such alkyl moieties; $X$  is  $-O-$ ; and $R_6$  is  $-X-T_1$ .

Still other embodiments of formula (4) are

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

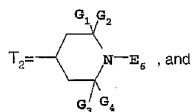
- 26 -

 $G_1$ ,  $G_2$ ,  $G_3$ , and  $G_4$  are each methyl; $E_5$  is  $OE_6$  or  $-O-E-(OH)_b$ ; $E_5$  is straight or branched chain alkyl of 1 to 12 carbon atoms, or cycloalkyl of 5 to 10 carbon atoms, $b$  is 1;when  $b$  is 1,  $E-OH$  is respectively a carbon-centered radical formed from 2-methyl-2-propanol; $T_1$  is straight or branched chain alkyl of 19 to 60 carbon atoms, or a mixture of such alkyl moieties; or $X$  and  $X_1$  are independently  $-O-$ , or  $-N-(R_4)-$ ; $R_4$  is hydrogen or methyl; $R_7$  and  $R_8$  are independently  $-O-T_2$ ,  $-N(alkyl)T_2$  with alkyl of 1 to 18 carbon atoms,  $-X-T_1$ , or  $X-(CH_2)_p-X_1-CO-T_1$ ; $R_9$  is a divalent oxygen atom, or  $R_9$  is a divalent nitrogen atom substituted by either hydrogen, alkyl of 1 to 12 carbon atoms or  $T_2$

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 27 -



$E_6$  is hydrogen, hydroxyl, straight or branched chain alkyl of 1 to 12 carbon atoms, acetyl,  $-OE_9$ , or  $-OE(OH)_n$ .

In another embodiment of the instant invention, the long chain hindered amine compound is

- (a) 2,4-bis[N-n-butyl-N-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)amino]-6-[2-( $C_{20}$ - $C_{40}$ alkanoyloxy)ethyl]amino-s-triazine;
- (b) 1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-4- $C_{20}$ - $C_{40}$ alkanoyloxy-piperidine;
- (c) 4- $C_{40}$ - $C_{60}$ alkanoyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-1-methoxypiperidine;
- (d) 4- $C_{20}$ - $C_{40}$ alkanoyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-1-octyloxypiperidine;
- (e) 4- $C_{20}$ - $C_{40}$ alkanoyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-1-(2-methyl-2-hydroxypropyloxy)piperidine;
- (f) 4- $C_{40}$ - $C_{60}$ alkanoyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-1-(2-methyl-2-hydroxypropyloxy)piperidine;
- (g) 4-(N-methyl-N- $C_{20}$ - $C_{40}$ alkanoyl)amino-2,2,6,6-tetramethyl-1-methoxypiperidine;
- (h) 4-(N-methyl-N- $C_{20}$ - $C_{40}$ alkanoyl)amino-2,2,6,6-tetramethyl-1-(2-methyl-2-hydroxypropyloxy)piperidine;
- (i)  $C_{20}$ - $C_{40}$ alkyl 1-methoxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-ylcarboxylate;
- (j)  $C_{40}$ - $C_{60}$ alkyl 1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-ylcarboxylate;
- (k)  $C_{20}$ - $C_{40}$ alkyl 1-(2-methyl-2-hydroxypropyloxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-ylcarboxylate;
- (l) 2,4-bis[N-n-butyl-N-(1-methoxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)amino]-6-[2-( $C_{20}$ - $C_{40}$ alkanoyloxy)ethyl]amino-s-triazine;
- (m) 2,4-bis(1-octyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yloxy)-6-( $C_{20}$ - $C_{40}$ alkyloxy)-s-triazine;
- (o) 2,4-bis[N-n-butyl-N-[1-(2-methyl-2-hydroxypropyloxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl]amino]-6-[2-( $C_{20}$ - $C_{40}$ alkanoyloxy)ethyl]amino-s-triazine; or
- (p) 2,4-bis[1-(2-methyl-2-hydroxypropyloxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yloxy]-6-( $C_{20}$ - $C_{40}$ alkyloxy)-s-triazine.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 28 -

In still another embodiment of the instant invention, the long chain hindered amine compound is

- (a) 2,4-bis[N-n-butyl-N-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)amino]-6-[2-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyloxy)ethyl]amino-5-triazine; or
- (b) 1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-4-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyloxy-piperidine.

The instant invention pertains to a composition which comprises

(a) candle wax which is white and unscented; white and scented; dyed and unscented; dyed and scented; dipped and unscented; or dipped and scented, and

(b) an effective stabilizing amount of a combination of

(i) a long chain hindered amine piperidine compound of formula 1, 2, 3, 4, 5 or 6 as described above;

(ii) a UV absorber or an antioxidant, or a UV absorber and an antioxidant

wherein the ratio by weight of (i) to (ii) is from 10:1 to 1:10.

It should be noted that, although the long chain hindered amines described in detail in this application are those derived from 2,2,6,6-tetraalkylpiperidine moieties, other types of hindered amines such as those containing morpholinones, piperazinones, piperazindiones, oxazolidines, imidazolines and the like could also be modified to attached long chain alkyl moieties which would make them particularly suitable for the stabilization of thermoplastic resins such as polyolefins or polyesters and the stabilization of candle wax.

In another embodiment of the invention, the ratio by weight of (i) to (ii) is from 4:1 to 1:4.

Another embodiment of the invention is where the ratio by weight of (i) to (ii) is from 2:1 to 1:2.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 29 -

In still another embodiment of the invention, the effective amount of the UV absorber plus the long chain hindered amine compound in the candle wax is 0.01 to 10% by weight based on the wax.

Another embodiment of the invention is where the effective amount of the UV absorber plus long chain hindered amine compound in the candle wax is 0.1 to 2 % by weight based on the wax.

Another embodiment of the invention is where the effective amount of the UV absorber plus long chain hindered amine compound in the candle wax is 0.1 to 0.5% by weight based on the wax.

The UV absorber of component (ii) is a benzotriazole, a benzophenone, an  $\alpha$ -cyanoacrylate, an oxanilide, an s-triazine, a cinnamate, a malonate, a benzoate or a salicylate, or a mixture thereof.

In another embodiment of the invention, the UV absorber is a benzotriazole, a benzophenone or an s-triazine.

Examples of the UV absorbers useful in the instant invention are

- (a) 4-octyloxy-2-hydroxybenzophenone;
- (b) 4-methoxy-2-hydroxybenzophenone;
- (c) 2-(2-hydroxy-5-methylphenyl)-2H-benzotriazole;
- (d) 2-(2-hydroxy-5-tert-octylphenyl)-2H-benzotriazole;
- (e) 2-(2-hydroxy-3,5-di-tert-amylphenyl)-2H-benzotriazole;
- (f) octyl 3-(benzotriazol-2-yl)-5-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate;
- (g) 2-(2-hydroxy-3,5-di-tert-butylphenyl)-2H-benzotriazole;
- (h) 2-(2-hydroxy-5-tert-butylphenyl)-2H-benzotriazole;
- (i) 5-chloro-2-(2-hydroxy-3,5-di-tert-butylphenyl)-2H-benzotriazole;
- (j) 5-chloro-2-(2-hydroxy-3-tert-butyl-5-methylphenyl)-2H-benzotriazole;
- (k) 2-(2-hydroxy-3-sec-butyl-5-tert-butylphenyl)-2H-benzotriazole;
- (l) 2-(2-hydroxy-4-octyloxyphenyl)-2H-benzotriazole;
- (m) 2-(2-hydroxy-3-dodecyl-5-methylphenyl)-2H-benzotriazole;

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 30 -

- (n) 2-[2-hydroxy-3,5-di( $\alpha,\alpha$ -dimethylbenzyl)phenyl]-2H-benzotriazole;
  - (o) 2-[2-hydroxy-3-( $\alpha,\alpha$ -dimethylbenzyl)-5-tert-octylphenyl]-2H-benzotriazole;
  - (p) 2-[2-hydroxy-3-tert-butyl-5-[2-(omega-hydroxy-octa(ethyleneoxy)carbonyl)ethyl]-phenyl]-2H-benzotriazole;
  - (q) 2-[2-hydroxy-3-tert-butyl-5-[2-(octyloxy)carbonyl]ethyl]phenyl]-2H-benzotriazole.
  - (r) 2-ethylhexyl p-methoxycinnamate;
  - (s) 4-methoxy-2,2'-dihydroxybenzophenone;
  - (t) 4,4'dimethoxy-2,2'-dihydroxybenzophenone;
  - (u) 2,4-bis(2,4-dimethylphenyl)-6-(2-hydroxy-4-octyloxyphenyl)-s-triazine;
  - (v) 2,4-diphenyl-6-(2-hydroxy-4-hexyloxyphenyl)-s-triazine;
  - (w) 2,4-bis(2,4-dimethylphenyl)-6-[2-hydroxy-4-(3-do-/tri-decyloxy-2-hydroxypropoxy)-phenyl]-s-triazine;
  - (x) 2,4-bis(2,4-dimethylphenyl)-6-[2-hydroxy-4-(3-do-/tri-decyloxy-2-hydroxypropoxy)-5- $\alpha$ -cumylphenyl]-s-triazine;
  - (y) reaction product of 2,4,6-tris(2,4-dihydroxyphenyl)-s-triazine with octyl  $\alpha$ -haloacetate;
- or
- (z) the mixture of 3,3;3,5;5,5-methylene-bis[2,4-bis(2,4-dimethylphenyl)]-6-[2-hydroxy-4-(3-butyloxy-2-hydroxypropoxyphenyl)]-s-triazine.

Still other examples of UV absorbers useful in the instant invention are

- (a) 4-octyloxy-2-hydroxybenzophenone;
  - (b) 4-methoxy-2-hydroxybenzophenone;
  - (d) 2-(2-hydroxy-5-tert-octylphenyl)-2H-benzotriazole;
  - (e) 2-[2-hydroxy-3-( $\alpha,\alpha$ -dimethylbenzyl)-5-tert-octylphenyl]-2H-benzotriazole;
  - (f) 2-[2-hydroxy-3-tert-butyl-5-[2-(omega-hydroxy-octa(ethyleneoxy)carbonyl)ethyl]-phenyl]-2H-benzotriazole;
  - (g) 2-[2-hydroxy-3-tert-butyl-5-[2-(octyloxy)carbonyl]ethyl]phenyl]-2H-benzotriazole;
  - (h) reaction product of 2,4,6-tris(2,4-dihydroxyphenyl)-s-triazine with octyl  $\alpha$ -haloacetate;
- or
- (i) the mixture of 3,3;3,5;5,5-methylene-bis[2,4-bis(2,4-dimethylphenyl)]-6-[2-hydroxy-4-(3-butyloxy-2-hydroxypropoxyphenyl)]-s-triazine.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 31 -

Another embodiment of the instant invention involves a composition wherein the antioxidant is a phenolic antioxidant, phosphite, nitrone, amine oxide or hydroxylamine, or mixture thereof.

Examples of the above-embodiment are wherein the effective amount of UV absorber in combination with the long chain hindered amine compound and an antioxidant is 0.01 to 10% by weight based on the wax.

Another embodiment is where the effective amount of UV absorber in combination with the long chain hindered amine compound and an antioxidant is 0.1 to 2% by weight based on the wax.

Still another embodiment is where the effective amount of UV absorber in combination with the long chain hindered amine compound and an antioxidant is 0.1 to 0.5% by weight based on the wax.

Examples of the antioxidants useful in this invention are

n-octadecyl 3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate,  
neopentanetetrayl tetrakis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate),  
di-n-octadecyl 3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzylphosphonate,  
1,3,5-tris(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)isocyanurate,  
thiodiethylene bis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate),  
1,3,5-trimethyl-2,4,6-tris(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)benzene,  
3,6-dioxaoctamethylene bis(3-methyl-5-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate),  
2,6-di-tert-butyl-p-cresol,  
2,2-ethylenidene-bis(4,6-di-tert-butylphenol),  
1,3,5-tris(2,6-dimethyl-4-tert-butyl-3-hydroxybenzyl) isocyanurate,  
1,1,3,-tris(2-methyl-4-hydroxy-5-tert-butylphenyl)butane,  
1,3,5-tris[2-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamoyloxy)ethyl] isocyanurate,  
3,5-di-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)mesitol,  
hexamethylene bis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate),  
1-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyanilino)-3,5-di(octylthio)-s-triazine,  
N,N'-hexamethylene-bis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamamide),

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 32 -

calcium bis(ethyl 3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzylphosphonate),  
ethylene bis[3,3-di(3-tert-butyl-4-hydroxyphenyl)butyrate],  
octyl 3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzylmercaptoacetate,  
bis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamoyl)hydrazide,  
N,N-di-(C<sub>12</sub>-C<sub>24</sub>alkyl)-N-methyl-amine oxide, or  
N,N-dialkylhydroxylamine prepared from di(hydrogenated tallow)amine by direct oxidation.

Still other embodiments of antioxidants useful in the instant invention are

neopentanetetrakis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate),  
n-octadecyl 3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate,  
1,3,5-trimethyl-2,4,6-tris(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)benzene,  
1,3,5-tris(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)isocyanurate,  
2,6-di-tert-butyl-p-cresol, or  
2,2'-ethyldiene-bis(4,6-di-tert-butylphenol).

The instant invention pertains to a composition which comprises

- (a) a thermoplastic resin, and
- (b) an effective stabilizing amount of a combination of a long chain hindered amine piperidine compound of formula 1, 2, 3, 4, 5 or 6 as described above.

Preferably, the organic material is a natural, semi-synthetic or synthetic polymer, especially a thermoplastic polymer.

Most preferably, the polymer is a polyolefin or polycarbonate, especially polyethylene or polypropylene; most especially polypropylene.

In another preferred embodiment of the instant invention, the organic material is a resin selected from the group consisting of a thermoset acrylic melamine resin, an acrylic urethane resin, an epoxy carboxy resin, a silane modified acrylic melamine, an acrylic resin with carbamate pendant groups crosslinked with melamine or an acrylic polyol resin crosslinked with melamine containing carbamate groups.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 33 -

Most preferably, the resin is a thermoset acrylic melamine resin or an acrylic urethane resin.

In yet another preferred embodiment of the instant invention, the organic material is a recording material.

The recording materials according to the invention are suitable for pressure-sensitive copying systems, photocopying systems using microcapsules, heat-sensitive copying systems, photographic materials and ink jet printing.

The recording material according to this invention preferably contains 1 to 5000 mg/m<sup>2</sup>, in particular 50-1200 mg/m<sup>2</sup>, of a compound of formula 1,2,3,4,5 or 6.

As already mentioned, the recording materials according to the invention embrace a wide field. The compounds of formula 1,2,3,4,5 or 6 can, for example, be employed in pressure-sensitive copying systems. They can be introduced either into the paper in order to protect the microencapsulated dye precursors there from light, or into the binder of the developer layer in order to protect the dyes formed there.

Photocopying systems using light-sensitive microcapsules which are developed by means of pressure are described in United States Patent Nos. 4,416,966; 4,483,912; 4,352,200; 4,535,050; 4,535,463; 4,551,407; 4,562,137 and 4,608,330; and also in EP-A 139,479; EP-A 162,664; EP-A 164,931; EP-A 237,024; EP-A 237,025 and EP-A 260,129. In all these systems, the compounds can be put into the dye-receiving layer. The compounds can, however, also be put into the donor layer in order to protect the color formers from light.

Photographic materials which can be stabilized are photographic dyes and layers containing such dyes or precursors thereof, for example, photographic paper and films. Suitable materials are, for example, described in United States Patent No. 5,364,749 which is incorporated herein by reference. In color photographic materials, couplers and dyes are also protected against photochemical decomposition.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 34 -

The instant compounds can be used for all types of color photographic materials. For example, they can be employed for color paper, color reversal paper, direct-positive color material, color negative film, color positive film, color reversal film and the like. They are preferably used inter alia for photographic color material which contains a reversal substrate or form positives.

Color-photographic recording materials usually contain, on a support, a blue-sensitive and/or a green-sensitive and/or a red-sensitive silver halide emulsion layer and, if desired, a protection layer, with the instant compounds being, preferably, either in the green-sensitive or the red-sensitive layer or in a layer between the green-sensitive and the red-sensitive layer or in a layer on top of the silver halide emulsion layers.

The compounds of formula 1,2,3,4,5 or 6 can also be employed in recording materials based on the principles of photopolymerization, photoplasticization or the rupture of microcapsules, or in cases where heat-sensitive and light-sensitive diazonium salts, leuko dyes having an oxidizing agent or dye lactones having Lewis acids are used.

Furthermore, the instant compounds can be employed in recording materials for dye diffusion transfer printing, thermal wax transfer printing and non-matrix printing and for use with electrostatic, electrographic, electrophoretic, magnetographic and laser-electrophotographic printers and pen-plotters. Of the above, recording materials for dye diffusion transfer printing are preferred, for example, as described in EP-A 507,734.

The instant compounds can also be employed in inks, preferably for ink jet printing, for example, as described in United States Patent No. 5,098,477 which is incorporated herein by reference.

The compounds of this invention exhibit superior hydrolytic stability, handling and storage stability as well as good resistance to extractability when present in a stabilized composition.

The methodology to make the instant compounds is described in the prior art. The intermediates needed to make the instant compounds are largely items of commerce.

In general polymers which can be stabilized include

1. Polymers of monoolefins and diolefins, for example polypropylene, polyisobutylene, polybut-1-ene, poly-4-methylpent-1-ene, polyisoprene or polybutadiene, as well as polymers of cycloolefins, for instance of cyclopentene or norbornene, polyethylene (which optionally can be crosslinked), for example high density polyethylene (HDPE), low density polyethylene (LDPE), linear low density polyethylene (LLDPE), branched low density polyethylene (BLDPE).

Polyolefins, i.e. the polymers of monoolefins exemplified in the preceding paragraph, preferably polyethylene and polypropylene, can be prepared by different, and especially by the following, methods:

- a) radical polymerisation (normally under high pressure and at elevated temperature).
- b) catalytic polymerisation using a catalyst that normally contains one or more than one metal of groups IVb, Vb, VIb or VIII of the Periodic Table. These metals usually have one or more than one ligand, typically oxides, halides, alcoholates, esters, ethers, amines, alkyls, alkenyls and/or aryls that may be either  $\pi$ - or  $\sigma$ -coordinated. These metal complexes may be in the free form or fixed on substrates, typically on activated magnesium chloride, titanium(III) chloride, alumina or silicon oxide. These catalysts may be soluble or insoluble in the polymerisation medium. The catalysts can be used by themselves in the polymerisation or further activators may be used, typically metal alkyls, metal hydrides, metal alkyl halides, metal alkyl oxides or metal alkyloxanes, said metals being elements of groups Ia, IIa and/or IIIa of the Periodic Table. The activators may be modified conveniently with further ester, ether, amine or silyl ether groups. These catalyst systems are usually termed Phillips, Standard Oil Indiana, Ziegler (-Natta), TNZ (DuPont), metallocene or single site catalysts (SSC).

2. Mixtures of the polymers mentioned under 1), for example mixtures of polypropylene with polyisobutylene, polypropylene with polyethylene (for example PP/HDPE, PP/LDPE) and mixtures of different types of polyethylene (for example LDPE/HDPE).

3. Copolymers of monoolefins and diolefins with each other or with other vinyl monomers, for example ethylene/propylene copolymers, linear low density polyethylene (LLDPE) and mixtures thereof with low density polyethylene (LDPE), propylene/but-1-ene copolymers, propylene/iso-butylene copolymers, ethylene/but-1-ene copolymers, ethylene/hexene copolymers,

ethylene/methylpentene copolymers, ethylene/heptene copolymers, ethylene/octene copolymers, propylene/butadiene copolymers, isobutylene/isoprene copolymers, ethylene/alkyl acrylate copolymers, ethylene/alkyl methacrylate copolymers, ethylene/vinyl acetate copolymers and their copolymers with carbon monoxide or ethylene/acrylic acid copolymers and their salts (ionomers) as well as terpolymers of ethylene with propylene and a diene such as hexadiene, dicyclopentadiene or ethyldiene-norbornene; and mixtures of such copolymers with one another and with polymers mentioned in 1) above, for example polypropylene/ethylene-propylene copolymers, LDPE/ethylene-vinyl acetate copolymers (EVA), LDPE/ethylene-acrylic acid co-polymers (EAA), LLDPE/EVA, LLDPE/EAA and alternating or random polyalkylene/carbon monoxide copolymers and mixtures thereof with other polymers, for example polyamides.

4. Hydrocarbon resins (for example C<sub>5</sub>-C<sub>9</sub>) including hydrogenated modifications thereof (e.g. tackifiers) and mixtures of polyalkylenes and starch.

5. Polystyrene, poly(p-methylstyrene), poly( $\alpha$ -methylstyrene).

6. Copolymers of styrene or  $\alpha$ -methylstyrene with dienes or acrylic derivatives, for example styrene/butadiene, styrene/acrylonitrile, styrene/alkyl methacrylate, styrene/butadiene/alkyl acrylate, styrene/butadiene/alkyl methacrylate, styrene/maleic anhydride, styrene/acrylonitrile/methyl acrylate; mixtures of high impact strength of styrene copolymers and another polymer, for example a polyacrylate, a diene polymer or an ethylene/propylene/diene terpolymer; and block copolymers of styrene such as styrene/butadiene/styrene, styrene/isoprene/styrene, styrene/ethylene/butylene/styrene or styrene/ethylene/propylene/styrene.

7. Graft copolymers of styrene or  $\alpha$ -methylstyrene, for example styrene on polybutadiene, styrene on polybutadiene-styrene or polybutadiene-acrylonitrile copolymers; styrene and acrylonitrile (or methacrylonitrile) on polybutadiene; styrene, acrylonitrile and methyl methacrylate on polybutadiene; styrene and maleic anhydride on polybutadiene; styrene, acrylonitrile and maleic anhydride or maleimide on polybutadiene; styrene and maleimide on polybutadiene; styrene and alkyl acrylates or methacrylates on polybutadiene; styrene and acrylonitrile on ethylene/propylene/diene terpolymers; styrene and acrylonitrile on polyalkyl acrylates or polyalkyl methacrylates, styrene and acrylonitrile on acrylate/butadiene copolymers, as well as

mixtures thereof with the copolymers listed under 6), for example the copolymer mixtures known as ABS, MBS, ASA or AES polymers.

8. Halogen-containing polymers such as polychloroprene, chlorinated rubbers, chlorinated or sulfochlorinated polyethylene, copolymers of ethylene and chlorinated ethylene, epichlorohydrin homo- and copolymers, especially polymers of halogen-containing vinyl compounds, for example polyvinyl chloride, polyvinylidene chloride, polyvinyl fluoride, polyvinylidene fluoride, as well as copolymers thereof such as vinyl chloride/vinylidene chloride, vinyl chloride/vinyl acetate or vinylidene chloride/vinyl acetate copolymers.

9. Polymers derived from  $\alpha,\beta$ -unsaturated acids and derivatives thereof such as polyacrylates and polymethacrylates; polymethyl methacrylates, polyacrylamides and polyacrylonitriles, impact-modified with butyl acrylate.

10. Copolymers of the monomers mentioned under 9) with each other or with other unsaturated monomers, for example acrylonitrile/butadiene copolymers, acrylonitrile/alkyl acrylate copolymers, acrylonitrile/alkoxyalkyl acrylate or acrylonitrile/vinyl halide copolymers or acrylonitrile/alkyl methacrylate/butadiene terpolymers.

11. Polymers derived from unsaturated alcohols and amines or the acyl derivatives or acetals thereof, for example polyvinyl alcohol, polyvinyl acetate, polyvinyl stearate, polyvinyl benzoate, polyvinyl maleate, polyvinyl butyral, polyallyl phthalate or polyallyl melamine; as well as their copolymers with olefins mentioned in 1) above.

12. Homopolymers and copolymers of cyclic ethers such as polyalkylene glycols, polyethylene oxide, polypropylene oxide or copolymers thereof with bisglycidyl ethers.

13. Polyacetals such as polyoxymethylene and those polyoxymethylenes which contain ethylene oxide as a comonomer; polyacetals modified with thermoplastic polyurethanes, acrylates or MBS.

14. Polyphenylene oxides and sulfides, and mixtures of polyphenylene oxides with styrene polymers or polyamides.

15. Polyurethanes derived from hydroxyl-terminated polyethers, polyesters or polybutadienes on the one hand and aliphatic or aromatic polyisocyanates on the other, as well as precursors thereof.
16. Polyamides and copolyamides derived from diamines and dicarboxylic acids and/or from aminocarboxylic acids or the corresponding lactams, for example polyamide 4, polyamide 6, polyamide 6/6, 6/10, 6/9, 6/12, 4/6, 12/12, polyamide 11, polyamide 12, aromatic polyamides starting from m-xylene diamine and adipic acid; polyamides prepared from hexa-methylenediamine and isophthalic or/and terephthalic acid and with or without an elastomer as modifier, for example poly-2,4,4,-trimethylhexamethylene terephthalamide or poly-m-phenylene isophthalamide; and also block copolymers of the aforementioned polyamides with polyolefins, olefin copolymers, ionomers or chemically bonded or grafted elastomers; or with polyethers, e.g. with polyethylene glycol, polypropylene glycol or polytetramethylene glycol; as well as polyamides or copolyamides modified with EPDM or ABS; and polyamides condensed during processing (RIM polyamide systems).
17. Polyureas, polyimides, polyamide-imides and polybenzimidazoles.
18. Polyesters derived from dicarboxylic acids and diols and/or from hydroxycarboxylic acids or the corresponding lactones, for example polyethylene terephthalate, polybutylene terephthalate, poly-1,4-dimethylcyclohexane terephthalate and polyhydroxybenzoates, as well as block copolyether esters derived from hydroxyl-terminated polyethers; and also polyesters modified with polycarbonates or MBS.
19. Polycarbonates and polyester carbonates.
20. Polysulfones, polyether sulfones and polyether ketones.
21. Crosslinked polymers derived from aldehydes on the one hand and phenols, ureas and melamines on the other hand, such as phenol/formaldehyde resins, urea/formaldehyde resins and melamine/formaldehyde resins.
22. Drying and non-drying alkyd resins.

23. Unsaturated polyester resins derived from copolymers of saturated and unsaturated dicarboxylic acids with polyhydric alcohols and vinyl compounds as crosslinking agents, and also halogen-containing modifications thereof of low flammability.
24. Crosslinkable acrylic resins derived from substituted acrylates, for example epoxy acrylates, urethane acrylates or polyester acrylates.
25. Alkyd resins, polyester resins and acrylate resins crosslinked with melamine resins, urea resins, polyisocyanates or epoxy resins.
26. Crosslinked epoxy resins derived from polyepoxides, for example from bisglycidyl ethers or from cycloaliphatic diepoxides.
27. Natural polymers such as cellulose, rubber, gelatin and chemically modified homologous derivatives thereof, for example cellulose acetates, cellulose propionates and cellulose butyrates, or the cellulose ethers such as methyl cellulose; as well as rosins and their derivatives.
28. Blends of the aforementioned polymers (polyblends), for example PP/EPDM, Polyamide/-EPDM or ABS, PVC/EVA, PVC/ABS, PVC/MBS, PC/ABS, PBTP/ABS, PC/ASA, PC/PBT, PVC/CPE, PVC/acrylates, POM/thermoplastic PUR, PC/thermoplastic PUR, POM/acrylate, POM/MBS, PPO/HIPS, PPO/PA 6.6 and copolymers, PA/HDPE, PA/PP, PA/PPO.
29. Naturally occurring and synthetic organic materials which are pure monomeric compounds or mixtures of such compounds, for example mineral oils, animal and vegetable fats, oil and waxes, or oils, fats and waxes based on synthetic esters (e.g. phthalates, adipates, phosphates or trimellitates) and also mixtures of synthetic esters with mineral oils in any weight ratios, typically those used as spinning compositions, as well as aqueous emulsions of such materials.
30. Aqueous emulsions of natural or synthetic rubber, e.g. natural latex or latices of carboxylated styrene/butadiene copolymers.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 40 -

31. Polysiloxanes such as the soft, hydrophilic polysiloxanes described, for example, in U.S. Patent No. 4,259,467; and the hard polyorganosiloxanes described, for example, in U.S. Patent No. 4,355,147.

32. Polyketimines in combination with unsaturated acrylic polyacetoacetate resins or with unsaturated acrylic resins. The unsaturated acrylic resins include the urethane acrylates, polyether acrylates, vinyl or acryl copolymers with pendant unsaturated groups and the acrylated melamines. The polyketimines are prepared from polyamines and ketones in the presence of an acid catalyst.

33. Radiation curable compositions containing ethylenically unsaturated monomers or oligomers and a polyunsaturated aliphatic oligomer.

34. Epoxymelamine resins such as light-stable epoxy resins crosslinked by an epoxy functional coetherified high solids melamine resin such as LSE-4103 (Monsanto).

In general, the compounds of the present invention are employed in from about 0.01 to about 5% by weight of the stabilized composition, although this will vary with the particular substrate and application. An advantageous range is from about 0.05 to about 3%, and especially 0.05 to about 1%.

The stabilizers of the instant invention may readily be incorporated into the organic polymers by conventional techniques, at any convenient stage prior to the manufacture of shaped articles therefrom. For example, the stabilizer may be mixed with the polymer in dry powder form, or a suspension or emulsion of the stabilizer may be mixed with a solution, suspension, or emulsion of the polymer. The resulting stabilized polymer compositions of the invention may optionally also contain various conventional additives, such as the materials listed below, or mixtures thereof.

#### 1. Antioxidants

##### 1.1. Alkylated monophenols, for example,

2,6-di-*tert*-butyl-4-methylphenol

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 41 -

2-tert-butyl-4,6-dimethylphenol  
2,6-di-tert-butyl-4-ethylphenol  
2,6-di-tert-butyl-4-n-butylphenol  
2,6-di-tert-butyl-4-i-butylphenol  
2,6-di-cyclopentyl-4-methylphenol  
2-( $\alpha$ -methylcyclohexyl)-4-dimethylphenol  
2,6-di-octadecyl-4-methylphenol  
2,4,6-tri-cyclohexylphenol  
2,6-di-tert-butyl-4-methoxymethylphenol

1.2. Alkylated hydroquinones, for example,

2,6-di-tert-butyl-4-methoxyphenol  
2,5-di-tert-butyl-hydroquinone  
2,5-di-tert-amyl-hydroquinone  
2,6-diphenyl-4-octadecyloxyphenol

1.3. Hydroxylated thiadiphenyl ethers, for example,

2,2'-thio-bis-(6-tert-butyl-4-methylphenol)  
2,2'-thio-bis-(4-octylphenol)  
4,4'-thio-bis-(6-tert-butyl-3-methylphenol)  
4,4'-thio-bis-(6-tert-butyl-2-methylphenol)

1.4. Alkylidene-bisphenols, for example,

2,2'-methylen-bis-(6-tert-butyl-4-methylphenol)  
2,2'-methylen-bis-(6-tert-butyl-4-ethylphenol)  
2,2'-methylen-bis-[4-methyl-6-( $\alpha$ -methylcyclohexyl)-phenol]  
2,2'-methylen-bis-(4-methyl-6-cyclohexylphenol)  
2,2'-methylen-bis-(6-nonyl-4-methylphenol)  
2,2'-methylen-bis-[6-( $\alpha$ -methylbenzyl)-4-nonylphenol]  
2,2'-methylen-bis-[6-( $\alpha$ , $\alpha$ -dimethylbenzyl)-4-nonylphenol]

2,2'-methylene-bis-(4,6-di-tert-butylphenol)  
2,2'-ethylidene-bis-(4,6-di-tert-butylphenol)  
2,2'-ethylidene-bis-(6-tert-butyl-4-isobutylphenol)  
4,4'-methyleno-bis-(2,6-di-tert-butylphenol)  
4,4'-methyleno-bis-(6-tert-butyl-2-methylphenol)  
1,1-bis-(5-tert-butyl-4-hydroxy-2-methylphenyl)-butane  
2,6-di-(3-tert-butyl-5-methyl-2-hydroxybenzyl)-4-methylphenol  
1,1,3-tris-(5-tert-butyl-4-hydroxy-2-methylphenyl)-butane  
1,1-bis-(5-tert-butyl-4-hydroxy-2-methylphenyl)-3-n-dodecylmercaptobutane  
ethyleneglycol bis-[3,3-bis-(3'-tert-butyl-4'-hydroxyphenyl)-butyrate]  
di-(3-tert-butyl-4-hydroxy-5-methylphenyl)-dicyclopentadiene  
di-[2-(3'-tert-butyl-2'-hydroxy-5'-methyl-benzyl)-6-tert-butyl-4-methylphenyl] terephthalate.

1.5. Benzyl compounds, for example,

1,3,5-tri-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)-2,4,6-trimethylbenzene  
di-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl) sulfide  
3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl-mercapto-acetic acid isoctyl ester  
bis-(4-tert-butyl-3-hydroxy-2,6-dimethylbenzyl)dithiol terephthalate  
1,3,5-tris-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl) isocyanurate  
1,3,5-tris-(4-tert-butyl-3-hydroxy-2,6-dimethylbenzyl) isocyanurate  
3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl-phosphoric acid dioctadecyl ester  
3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl-phosphoric acid monoethyl ester, calcium-salt

1.6. Acylaminophenols, for example,

4-hydroxy-lauric acid anilide  
4-hydroxy-stearic acid anilide  
2,4-bis-octylmercapto-6-(3,5-tert-butyl-4-hydroxyanilino)-s-triazine  
octyl-N-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl)-carbamate

1.7. Esters of  $\beta$ -(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl)-propionic acid with monohydric or polyhydric alcohols, for example,

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 43 -

methanol	diethylene glycol
octadecanol	triethylene glycol
1,6-hexanediol	pentaerythritol
neopentyl glycol	tris-hydroxyethyl isocyanurate
thiodiethylene glycol	di-hydroxyethyl oxalic acid diamide
triethanolamine	trisopropanolamine

1.8. Esters of  $\beta$ -(5-tert-butyl-4-hydroxy-3-methylphenyl)-propionic acid with monohydric or polyhydric alcohols, for example,

methanol	diethylene glycol
octadecanol	triethylene glycol
1,6-hexanediol	pentaerythritol
neopentyl glycol	tris-hydroxyethyl isocyanurate
thiodiethylene glycol	di-hydroxyethyl oxalic acid diamide
triethanolamine	trisopropanolamine

1.9. Amides of  $\beta$ -(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl)-propionic acid for example,

N,N'-di-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenylpropionyl)-hexamethylenediamine  
 N,N'-di-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenylpropionyl)-trimethylenediamine  
 N,N'-di-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenylpropionyl)-hydrazine

1.10 Diarylamines, for example,  
 diphenylamine, N-phenyl-1-naphthylamine, N-(4-tert-octylphenyl)-1-naphthylamine, 4,4'-di-tert-octyl-diphenylamine, reaction product of N-phenylbenzylamine and 2,4,4-trimethylpentene,  
 reaction product of diphenylamine and 2,4,4-trimethylpentene, reaction product of N-phenyl-1-naphthylamine and 2,4,4-trimethylpentene.

## 2. UV absorbers and light stabilizers

2.1. 2-(2'-Hydroxyphenyl)-benzotriazoles, for example, the 5'-methyl-, 3',5'-di-tert-butyl-, 5'-tert-butyl-, 5'-(1,1,3,3-tetramethylbutyl)-, 5-chloro-3',5'-di-tert-butyl-, 5-chloro-3'-tert-butyl-5'-methyl-,

3'-sec-butyl-5'-tert-butyl-, 4'-octoxy, 3',5'-di-tert-amyl-, 3',5'-bis-( $\alpha,\alpha$ -dimethylbenzyl), 3'-tert-butyl-5'-(2-(omega-hydroxy-octa-(ethyleneoxy)carbonyl-ethyl)-, 3'-dodecyl-5'-methyl-, and 3'-tert-butyl-5'-(2-octyloxy carbonyl)ethyl-, and dodecylated-5'-methyl derivatives.

**2.2. 2-Hydroxy-benzophenones**, for example, the 4-hydroxy-, 4-methoxy-, 4-octoxy, 4-decyloxy-, 4-dodecyloxy-, 4-benzylxy, 4,2,4'-trihydroxy- and 2'-hydroxy-4,4'-dimethoxy derivatives.

**2.3. Esters of optionally substituted benzoic acids** for example, phenyl salicylate, 4-tert-butylphenyl salicylate, octylphenyl salicylate, dibenzoylresorcinol, bis-(4-tert-butylbenzoyl)-resorcinol, benzoylresorcinol, 3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzoic acid 2,4-di-tert-butylphenyl ester and 3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzoic acid hexadecyl ester.

**2.4. Acrylates**, for example,  $\alpha$ -cyano- $\beta,\beta$ -diphenylacrylic acid ethyl ester or isoctyl ester,  $\alpha$ -carbomethoxy-cinnamic acid methyl ester,  $\alpha$ -cyano- $\beta$ -methyl-p-methoxy-cinnamic acid methyl ester or butyl ester,  $\alpha$ -carbomethoxy-p-methoxy-cinnamic acid methyl ester, N-( $\beta$ -carbomethoxy- $\beta$ -cyanovinyl)-2-methyl-indoline.

**2.5. Nickel compounds**, for example, nickel complexes of 2,2'-thio-bis-[4-(1,1,3,3-tetramethylbutyl)-phenol], such as the 1:1 or 1:2 complex, optionally with additional ligands such as n-butylamine, triethanolamine or N-cyclohexyl-diethanolamine, nickel dibutylthiocarbamate, nickel salts of 4-hydroxy-3,5-di-tert-butylbenzylphosphonic acid monoalkyl esters, such as of the methyl, ethyl or butyl ester, nickel complexes of ketoximes such as of 2-hydroxy-4-methyl-phenyl undecyl ketoxime, nickel complexes of 1-phenyl-4-lauroyl-5-hydroxy-pyrazole, optionally with additional ligands.

**2.6. Sterically hindered amines**, for example bis-(2,2,6,6-tetramethylpiperidyl) sebacate, bis-(1,2,2,6,6-pentamethylpiperidyl) sebacate, n-butyl-3,5-di-tert.butyl-4-hydroxybenzyl malonic acid bis-(1,2,2,6,6-pantanemethylpiperidyl)ester, condensation product of 1-hydroxyethyl-2,2,6,6-tetramethyl-4-hydroxypiperidine and succinic acid, condensation product of N,N'-(2,2,6,6-tetramethylpiperidyl)-hexamethylenediamine and 4-tert-octylamino-2,6-dichloro-s-triazine, tris-(2,2,6,6-tetramethylpiperidyl)-nitrilotriacetate, tetrakis-(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl) 1,2,3,4-butanetetracarboxylate, 1,1'(1,2-ethanediyl)-bis-(3,3,5,5-tetramethylpiperazinone), bis(1-octyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl) sebacate.

2.7. Oxalic acid diamides, for example, 4,4'-di-octyloxy-oxanilide, 2,2'-di-octyloxy-5,5'-di-tert-butyl-oxanilide, 2,2'-di-dodecyloxy-5,5'-di-tert-butyl-oxanilide, 2-ethoxy-2'-ethyl-oxanilide, N,N'-bis(3-dimethylaminopropyl)-oxalamide, 2-ethoxy-5-tert-butyl-2'-ethyloxanilide and its mixture with 2-ethoxy-2'-ethyl-5,4'-di-tert-butyl-oxanilide and mixtures of ortho- and para-methoxy- as well as of o- and p-ethoxy-disubstituted oxanilides.

2.8. Hydroxyphenyl-s-triazines, for example 2,6-bis-(2,4-dimethylphenyl)-4-(2-hydroxy-4-octyloxyphenyl)-s-triazine; 2,6-bis-(2,4-dimethylphenyl)-4-(2,4-dihydroxyphenyl)-s-triazine; 2,4-bis(2,4-dihydroxyphenyl)-6-(4-chlorophenyl)-s-triazine; 2,4-bis[2-hydroxy-4-(2-hydroxyethoxy)phenyl]-6-(4-chlorophenyl)-s-triazine; 2,4-bis[2-hydroxy-4-(2-hydroxyethoxy)phenyl]-6-(2,4-dimethylphenyl)-s-triazine; 2,4-bis[2-hydroxy-4-(2-acetoxyethoxy)phenyl]-6-(4-bromophenyl)-s-triazine; 2,4-bis[2-hydroxy-4-(2-acetoxyethoxy)phenyl]-6-(4-chlorophenyl)-s-triazine, 2,4-bis(2,4-dihydroxyphenyl)-6-(2,4-dimethylphenyl)-s-triazine.

3. Metal deactivators, for example, N,N'-diphenyloxalic acid diamide, N-salicylal-N'-salicyloyl-hydrazine, N,N'-bis-salicyloylhdydrazine, N,N'-bis-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenylpropionyl)-hydrazine, 3-salicyloylamino-1,2,4-triazole, bis-benzylidene-oxalic acid dihydrazide.

4. Phosphites and phosphonites, for example, triphenyl phosphite, diphenylalkyl phosphites, phenylalkyl phosphites, tri-(nonylphenyl) phosphite, triauryl phosphite, trioctadecyl phosphite, di-stearyl-pentaerythritol diphosphite, tris-(2,4-di-tert-butylphenyl) phosphite, di-isodecyl-pentaerythritol diphosphite, dl-(2,4,6-tri-tert-butylphenyl)-pentaerythritol diphosphite, di-(2,4-di-tert-butyl-6-methylphenyl)-pentaerythritol diphosphite, di-(2,4-di-tert-butylphenyl)pentaerythritol diphosphite, tristearyl-sorbitol triphosphite, tetrakis-(2,4-di-tert-butylphenyl) 4,4"-diphenylylenediphosphonite.

5. Compounds which destroy peroxide, for example, esters of  $\beta$ -thiodipropionic acid, for example the lauryl, stearyl, myristyl or tridecyl esters, mercapto-benzimidazole or the zinc salt of 2-mercaptopbenzimidazole, zinc dibutyl-dithiocarbamate, dioctadecyl disulfide, pentaerythritol tetrakis-( $\beta$ -dodecylmercapto)-propionate.

6. Hydroxylamines, for example, N,N-dibenzylhydroxylamine, N,N-diethylhydroxylamine, N,N-diethylhydroxylamine, N,N-dilaurylhydroxylamine, N,N-ditetradecylhydroxylamine, N,N-

dihexadecylhydroxylamine, N,N-di octadecylhydroxylamine, N-hexadecyl-N-octadecylhydroxylamine, N-heptadecyl-N-octadecylhydroxylamine, N,N-dialkylhydroxylamine derived from hydrogenated tallow amine.

**7. Nitrones**, for example, N-benzyl-alpha-phenyl nitrone, N-ethyl-alpha-methyl nitrone, N-octyl-alpha-heptyl nitrone, N-lauryl-alpha-undecyl nitrone, N-tetradecyl-alpha-tridecyl nitrone, N-hexadecyl-alpha-pentadecyl nitrone, N-octadecyl-alpha-heptadecylnitrone, N-hexadecyl-alpha-heptadecyl nitrone, N-octadecyl-alpha-pentadecyl nitrone, N-heptadecyl-alpha-heptadecyl nitrone, N-octadecyl-alpha-hexadecyl nitrone, nitrone derived from N,N-dialkylhydroxylamine derived from hydrogenated tallow amine.

**8. Polyamide stabilizers**, for example copper salts in combination with iodides and/or phosphorus compounds and salts of divalent manganese.

**9. Basic co-stabilizers**, for example, melamine, polyvinylpyrrolidone, dicyandiamide, triallyl cyanurate, urea derivatives, hydrazine derivatives, amines, polyamides, polyurethanes, alkali metal salts and alkaline earth metal salts of higher fatty acids for example Ca stearate, Zn stearate, Mg stearate, Na ricinoleate and K palmitate, antimony pyrocatecholate or zinc pyrocatecholate.

**10. Nucleating agents**, for example, 4-tert-butyl-benzoic acid, adipic acid, diphenylacetic acid.

**11. Fillers and reinforcing agents**, for example, calcium carbonate, silicates, glass fibers, asbestos, talc, kaolin, mica, barium sulfate, metal oxides and hydroxides, carbon black, graphite.

**12. Other additives**, for example, plasticizers, lubricants, emulsifiers, pigments, optical brighteners, flameproofing agents, anti-static agents, blowing agents and thiosynergists such as dilauryl thiiodipropionate or distearyl thioldipropionate.

**13. Benzofuranones and indolinones**, for example those disclosed in US-A-4325863, US-A-4336244 or US-A-5175312, or 3-[4-(2-acetoxyethoxy)phenyl]-5,7-di-tert-butyl-benzofuran-2-one, 5,7-di-tert-butyl-3-[4-(2-stearoyloxyethoxy)phenyl]benzofuran-2-one, 3,3'-bis[5,7-di-tert-butyl-3-(4-[2-hydroxyethoxy]phenyl)benzofuran-2-one], 5,7-di-tert-butyl-3-(4-ethoxyphenyl)benzofuran-

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 47 -

2-one, 3-(4-acetoxy-3,5-dimethylphenyl)-5,7-di-tert-butyl-benzofuran-2-one, 3-(3,5-dimethyl-4-pivaloyloxyphenyl)-5,7-di-tert-butyl-benzofuran-2-one.

The co-stabilizers, with the exception of the benzofuranones listed under 13, are added for example in concentrations of 0.01 to 10%, relative to the total weight of the material to be stabilized; preferred dosages are from about 0.01 to about 5%, more preferably from about 0.025 to about 2%, and especially from about 0.1 to about 1% by weight of the material to be stabilized.

Further preferred compositions comprise, in addition to components (a) and (b) further additives, in particular phenolic antioxidants, light stabilizers or processing stabilizers.

Particularly preferred additives are phenolic antioxidants (item 1 of the list), sterically hindered amines (item 2.6 of the list), phosphites and phosphonites (item 4 of the list) and peroxide-destroying compounds (item 5.) of the list.

Additional additives (stabilizers) which are also particularly preferred are benzofuran-2-ones, such as described, for example, in US-A-4 325 863, US-A-4,338 244 or US-A-5175312.

The phenolic antioxidant of particular interest is selected from the group consisting of n-octadecyl 3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate, neopentanetetrail tetrakis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate), di-n-octadecyl 3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzylphosphonate, 1,3,5-tris(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)isocyanurate, thioldiethylene bis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate), 1,3,5-trimethyl-2,4,6-tris(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)benzene, 3,6-dioxaoctamethylene bis(3-methyl-5-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate), 2,6-di-tert-butyl-p-cresol, 2,2'-ethylidene-bis(4,6-di-tert-butylphenol), 1,3,5-tris(2,6-dimethyl-4-tert-butyl-3-hydroxybenzyl)isocynurate, 1,1,3-tris(2-methyl-4-hydroxy-5-tert-butylphenyl)butane, 1,3,5-tris[2-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamoyloxy)ethyl]isocyanurate, 3,5-di-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)mesitol, hexamethylene bis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate), 1-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyanilino)-3,5-di(octylthio)-s-triazine, N,N'-hexamethylene-bis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamamide), calcium bis(ethyl 3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl-phosphonate), ethylene bis[3,3-di(3-tert-butyl-4-hydroxyphenyl)butyrate], octyl 3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzylmercaptoacetate, bis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamoyl)hydrazide, and N,N'-bis[2-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamoyloxy)-ethyl]oxamide.

A most preferred phenolic antioxidant is neopentanetetrayl tetrakis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate), n-octadecyl 3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate, 1,3,5-trimethyl-2,4,6-tris(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)benzene, 1,3,5-tris(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)isocyanurate, 2,6-di-tert-butyl-p-cresol or 2,2'-ethylidene-bis(4,6-di-tert-butylphenol).

The hindered amine compound of particular interest is selected from the group consisting of bis(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl) sebacate, bis(1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin-4-yl) sebacate, di(1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin-4-yl) (3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)butylmalonate, 4-benzoyl-2,2,6,6-tetramethylpiperidine, 4-stearylxyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidine, 3-n-octyl-7,7,9,9-tetramethyl-1,3,8-triaza-spiro[4.5]decane-2,4-dione, tris(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl) nitrilotriacetate, 1,2-bis(2,2,6,6-tetramethyl-3-oxopiperazin-4-yl)ethane, 2,2,4,4-tetramethyl-7-oxa-3,20-diaza-21-oxodispiro[5.1.11.2]heneicosane, polycondensation product of 2,4-dichloro-6-tert-octylamino-s-triazine and 4,4'-hexamethylenebis(amino-2,2,6,6-tetramethylpiperidine), polycondensation product of 1-(2-hydroxyethyl)-2,2,6,6-tetramethyl-4-hydroxypiperidine and succinic acid, polycondensation product of 4,4'-hexamethylenebis-(amino-2,2,6,6-tetramethylpiperidine) and 1,2-dibromoethane, tetrakis(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl) 1,2,3,4-butanetetracarboxylate, tetrakis(1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin-4-yl) 1,2,3,4-butanetetracarboxylate, polycondensation product of 2,4-dichloro-6-morpholino-s-triazine and 4,4'-hexamethylenebis(amino-2,2,6,6-tetramethylpiperidine), N,N',N'',N'''-tetraakis[(4,6-bis(butyl)-1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin-4-yl)-amino-s-triazin-2-yl]-1,10-diamino-4,7-diazadecane, mixed [2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl]β,β,β',β'-tetramethyl-3,9-(2,4,8,10-tetraoxaspiro[5.5]-undecane) diethyl 1,2,3,4-butanetetracarboxylate, mixed [1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin-4-yl]β,β,β',β'-tetramethyl-3,9-(2,4,8,10-tetraoxaspiro[5.5]-undecane)diethyl 1,2,3,4-butanetetracarboxylate, octamethylene bis(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-carboxylate), 4,4'-ethylenebis(2,2,6,6-tetramethylpiperazin-3-one), N-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl-n-dodecylsuccinimide, N-1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin-4-yl-n-dodecylsuccinimide, N-1-acetyl-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl-n-dodecylsuccinimide, 1-acetyl-3-dodecyl-7,7,9,9-tetramethyl-1,3,8-triaza-spiro[4.5]decane-2,4-dione, di-(1-octyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)

sebacate, di-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl) succinate, 1-octyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-4-hydroxy-piperidine, poly-[{6-tert-octylamino-s-triazin-2,4-diy][2-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)imino-hexamethylene-[4-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)imino], and 2,4,6-tris[N-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-n-butylamino]-s-triazine, bis[1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl] sebacate; a mixture of bis[1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl] glutarate and bis[1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl] adipate; 1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-4-octadecanoyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidine; bis[1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl] adipate; bis[1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl] glutarate; bis[1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl] succinate; a mixture of bis[1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl] glutarate and bis[1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl] succinate; 1-(4-octadecanoyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-1-yloxy)-2-octadecanoyloxy-2-methylpropane; 1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-4-[9-(methoxy-carbonyl)-nonanoyloxy]-2,2,6,6-tetramethylpiperidine; 1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-4-[5-(methoxy-carbonyl)pentanoyloxy]-2,2,6,6-tetramethylpiperidine; 1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-4-[3-(methoxy-carbonyl)propionyloxy]-2,2,6,6-tetramethylpiperidine; 1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-4-[4-(methoxy-carbonyl)butyryloxy]-2,2,6,6-tetramethylpiperidine; condensation product of 4-hydroxy-1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidine with hexamethylene diisocyanate and terminated with methoxy; condensation product of 4-hydroxy-1-(2-hydroxyethoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidine with hexamethylene diisocyanate and terminated with methoxy; condensation product of 4-hydroxy-1-(2-hydroxy-1-phenethoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidine with hexamethylene diisocyanate and terminated with methoxy; 1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-4-hexadecanoyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidine; or 1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-4-hydroxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidine.

A most preferred hindered amine compound is bis(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl) sebacate, bis(1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin-4-yl) sebacate, di(1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin-4-yl) (3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)butylmalonate, the polycondensation product of 1-(2-hydroxyethyl)-2,2,6,6-tetramethyl-4-hydroxypiperidine and succinic acid, the polycondensation product of 2,4-dichloro-6-tert-octylamino-s-triazine and 4,4'-hexamethylenebis(amino-2,2,6,6-tetramethylpiperidine), N,N',N'',N'''-tetraakis[(4,6-bis(butyl-(1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin-4-yl)amino)-s-triazine-2-yl)-1,10-diamino-4,7-diazadecane. di-(1-octyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl) sebacate, di-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl) succinate, 1-

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 50 -

octyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-4-hydroxy-piperidine, poly-[{6-tert-octylamino-s-triazin-2,4-diy][2-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)imino-hexamethylene-[4-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)imino]}, or 2,4,6-tris[N-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)-n-butylamino]-s-triazine, bis[1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl] sebacate; a mixture of bis[1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl] glutarate; and bis[1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl] adipate; 1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-4-octadecanoyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidine; bis[1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl] adipate; bis[1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl] glutarate; bis[1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl] succinate; a mixture of bis[1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl] glutarate and bis[1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl] succinate; 1-(4-octadecanoyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-1-yloxy)-2-octadecanoyloxy-2-methylpropane; 1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-4-[9-(methoxy-carbonyl)-nonanoyloxy]-2,2,6,6-tetramethylpiperidine; 1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-4-[3-(methoxy-carbonyl)propionyloxy]-2,2,6,6-tetramethylpiperidine; 1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-4-[4-(methoxy-carbonyl)butyryloxy]-2,2,6,6-tetramethylpiperidine; condensation product of 4-hydroxy-1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidine with hexamethylene diisocyanate and terminated with methoxy; condensation product of 4-hydroxy-1-(2-hydroxyethoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidine with hexamethylene diisocyanate and terminated with methoxy; condensation product of 4-hydroxy-1-(2-hydroxy-1-phenethoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidine with hexamethylene diisocyanate and terminated with methoxy; 1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-4-hexadecanoyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidine; or 1-(2-hydroxy-2-methylpropoxy)-4-hydroxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidine.

The instant composition can additionally contain a UV absorber selected from the group consisting of the s-triazines, the oxanilides, the hydroxybenzophenones, benzozates and the  $\alpha$ -cyanoacrylates.

Particularly, the instant composition may additionally contain an effective stabilizing amount of at least one other 2-hydroxyphenyl-2H-benzotriazole; another tris-aryl-s-triazine; or hindered amine or mixtures thereof.

Preferably, the 2-hydroxyphenyl-2H-benzotriazole is selected from the group consisting of

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 51 -

2-(2-hydroxy-3,5-di-tert-amylphenyl)-2H-benzotriazole;  
2-[2-hydroxy-3,5-di( $\alpha,\alpha$ -dimethylbenzyl)phenyl]-2H-benzotriazole;  
2-[2-hydroxy-3-( $\alpha,\alpha$ -dimethylbenzyl)-5-octylphenyl]-2H-benzotriazole;  
2-[2-hydroxy-3-tert-butyl-5-[2-(omega-hydroxy-octa(ethyleneoxy)carbonyl)ethyl]phenyl]-2H-benzotriazole; and  
2-[2-hydroxy-3-tert-butyl-5-[2-(octyloxy)carbonyl]ethyl]phenyl]-2H-benzotriazole.

Preferably, the other tri-aryl-s-triazine is selected from the group consisting of 2,4-bis(2,4-dimethylphenyl)-6-(2-hydroxy-4-octyloxyphenyl)-s-triazine; 2,4-diphenyl-6-(2-hydroxy-4-hexyloxyphenyl)-s-triazine; 2,4-bis(2,4-dimethylphenyl)-6-[2-hydroxy-4-(3-do-/tri-decyloxy-2-hydroxypropoxy)phenyl]-s-triazine; and 2-(2-hydroxyethylamino)-4,6-bis[N-butyl-N-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)amino]-s-triazine.

The alkyd resin lacquers which can be stabilized against the action of light and moisture in accordance with the instant invention are the conventional stoving lacquers which are used in particular for coating automobiles (automobile finishing lacquers), for example lacquers based on alkyd/melamine resins and alkyd/acrylic/melamine resins (see H. Wagner and H. F. Sarx, "Lackkunstharze" (1977), pages 99-123). Other crosslinking agents include glycouril resins, blocked isocyanates or epoxy resins.

The lacquers stabilized in accordance with the invention are suitable both for metal finish coatings and solid shade finishes, especially in the case of retouching finishes, as well as various coil coating applications. The lacquers stabilized in accordance with the invention are preferably applied in the conventional manner by two methods, either by the single-coat method or by the two-coat method. In the latter method, the pigment-containing base coat is applied first and then a covering coat of clear lacquer over it.

It is also to be noted that the compounds of the present invention are applicable for use in non-acid catalyzed thermoset resins such as epoxy, epoxy-polyester, vinyl, alkyd, acrylic and polyester resins, optionally modified with silicon, isocyanates or isocyanurates. The epoxy and epoxy-polyester resins are crosslinked with conventional crosslinkers such as acids, acid anhydrides, amines and the like. Correspondingly, the epoxide may be utilized as the

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 52 -

crosslinking agent for various acrylic or polyester resin systems that have been modified by the presence of reactive groups on the backbone structure.

When used in two-coat finishes, the compounds of the instant invention can be incorporated in the clear coat or both in the clear coat and in the pigmented base coat.

When water-soluble, water miscible or water dispersible coating are desired ammonium salts of acid groups present in the resin are formed. Powder coating composition can be prepared by reacting glycidyl methacrylate with selected alcohol components.

The instant invention also pertains to a photographic material stabilized against degradation induced by light which comprises

(a) a photographic material, and

(b) an effective stabilizing amount of a compound of formula 1,2,3,4,5 or 6 as defined above.

The instant invention additionally pertains to a composition stabilized against degradation induced by heat, oxygen or light which comprises

(a) a thermoset composition, and

(b) an effective stabilizing amount of a compound of formula 1,2,3,4,5 or 6 as defined above.

The thermoset resins of component (a) are selected from the group consisting of a thermoset acrylic melamine resin, an acrylic urethane resin, an epoxy carboxy resin, a silane modified acrylic melamine, an acrylic resin with carbamate pendant groups crosslinked with melamine or an acrylic polyol crosslinked with melamine containing carbamate groups.

The instant invention additionally pertains to a composition stabilized against degradation induced by heat, oxygen or light which comprises

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 53 -

(a) a thermoplastic composition, and

(b) an effective stabilizing amount of a compound of formula 1,2,3,4,5 or 6 as defined above.

The thermoplastic resin of component (a) includes a polyolefin, polycarbonate, a styrenic, ABS, a polyamide (nylon), a polyester, a polyurethane, a polyacrylate, a polyimide, a rubber modified styrene resin, poly(vinyl chloride), poly(vinyl butyral), polyacetal (polycoxymethylene), or blends or copolymers such as poly(ethylene/1,4-cyclohexylenedimethylene terephthalate) PETG or an ethylene/acrylic acid copolymer or salt thereof (ionomer).

Still another embodiment of the thermoplastic resin is a polyester which is poly(ethylene terephthalate), poly(butylene terephthalate) or poly(ethylene 2,5-naphthalenedicarboxylate) PEN or a copolymer poly(ethylene/1,4-cyclohexylenedimethylene terephthalate) PETG.

Still another embodiment of the thermoplastic resin is a polyolefin which is polyethylene or polypropylene; or is polypropylene.

The thermoplastic resin of component (a) is a polyamide which is poly(m-phenylene isophthalamide), nylon 6 or nylon 66.

The thermoplastic resin of component (a) is a polyimide which is poly(p-phenylene pyromellitimide).

The instant invention additionally pertains to a composition stabilized against degradation induced by heat, oxygen or light which comprises

(a) dyed or pigmented polypropylene, polyamide or polyester fibers, and

(b) an effective stabilizing amount of a compound of formula 1,2,3,4,5 or 6 as defined above.

One embodiment of the invention is where the fibers of component (a) are pigmented polypropylene fibers.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 54 -

It should be noted that candles contain a host of various components. The base materials may be made up of the following:

- paraffin wax,
- natural oils,
- polyamide plus fatty acid/ester,
- fatty acids such as stearin,
- opacifiers,
- beeswax,
- glycerides plus oxidized wax,
- alcohols, and
- ethylene oligomers.

Candles also contain a number of additives such as the following:

- mold release agents,
- fragrances,
- insect repellants or insecticides,
- hardeners,
- crystal modifiers,
- clarifiers,
- guttering reducers,
- colorants;
- f.p. control agents,
- stretchability improvers,
- gelling agents,
- extrusion aids, and
- vortex reducers.

Each of the various components are meant to control or modify the properties of the candle to insure proper burning, reduce channelling, aid in uniform melting, and the like. The colorants and fragrances obviously are there to provide the proper color, scent or other aesthetic appeal.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 55 -

Of increasing importance are the transparent gel candles which look like clear glass, but which burn like a classical candle. As is discussed in detail in United States Patent No. 5,879,694, the relevant parts of which are incorporated herein by reference, these gel candles usually contain a copolymer selected from the group consisting of a triblock, radial block, diblock or multiblock copolymer classically made up of at least two thermodynamically incompatible segments containing both hard and soft segments. Typical of such block copolymers is KRATON® (Shell Chemical Co.) which consists of block segments of styrene monomer units and rubber monomer or comonomer units. The most common structure found in KRATON® D series is a linear ABA block with styrene-butadiene-styrene (SBS) or styrene-isoprene-styrene (SIS).

The following examples are meant for illustrative purposes only and are not to be construed to limit the instant invention in any manner whatsoever.

#### Raw Materials

Wax samples are supplied by the Candle-Lite Corporation. These samples contain dyes and fragrances. The UV absorbers and hindered amine stabilizers are obtained from the Ciba Specialty Chemicals Corporation.

#### Sample Preparation

The wax samples obtained from the Candle-Lite Corporation already contain a dye and a fragrance (scent). In these cases, the wax is melted and the appropriate stabilizer(s) is (are) added and dissolved in the molten wax. The stabilized wax is then poured into five (5) 44 mm diameter aluminum pans giving five (5) wax disks.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 56 -

Sample Exposure

Triplicate samples of each disk are exposed under a bank of six (6) cool-white fluorescent lamps (40 watts) or under a bank of six (6) UV lamps having a wavelength of 368 nm with the test samples being twelve (12) inches (30.48 cm) below the lamps.

Dye color fade (or color change) is measured by a Macbeth ColorEye Spectrophotometer with a 6 inch integrating sphere. The conditions are: 10 degree observer; D65 illuminant and 8 degree viewing angle.

Initial color measurements are taken using the above parameters. The L, a and b values are calculated using the CIE system from the reflectance values. YI is calculated from the L, a and b values. Subsequent measurements are taken at specified intervals. Delta L, a, b and YI values are simply the difference between the initial values and the values at each interval. Delta( $\Delta$ ) E is calculated as follows:

$$[(\Delta L)^2 + (\Delta a)^2 + (\Delta b)^2]^{1/2} = \Delta E.$$

Example 1

2,4-Bis[N-n-butyl-N-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)amino]-6-[2-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyloxy)ethyl]amino-s-triazine

2,4-Bis[N-n-butyl-N-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)amino]-6-(2-hydroxyethyl)amino-s-triazine (19.0 g, 0.025 mol), performic acid 350 (12.0 g, 0.025 mol, Baker-Petrolite, C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub> alkanic acid), toluene (430 g, 4.67 mols), dicyclohexylcarbodiimide (5.5 g, 0.027 mol) and dimethylaminopyridine (0.4 g, 0.003 mol) are charged to a laboratory reactor. The reactor contents are heated to 95-100°C and held there for six hours. The reaction mass is filtered hot through a small pad of silica gel. The solvent is removed by distillation and replaced with 300 mL of acetone. The resultant solution is filtered hot and the acetone is distilled off under reduced pressure. The title compound is obtained in a yield of 17.5 g, (58%) as a white solid melting with three melting point ranges 32-38°C; 47°C and 56°C. The structure is consistent with a mixture of esters of varying chain lengths and is confirmed by <sup>1</sup>Hnmr and mass spectrometry.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 57 -

Example 21-Cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-4-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyloxy piperidine

1-Cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-4-hydroxypiperidine (12.8 g, 0.05 mol) and performic acid 350 (24 g, 0.05 mol, C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoic acid, Baker-Petrolite) are reacted together following the procedure of Example 1. The title compound is obtained in a yield of 9 g (25%) as a white solid with a melting point range of 35-41°C. The structure is consistent with a mixture of esters of varying chain lengths and is verified by <sup>1</sup>Hnmr and mass spectrometry.

Example 3

## Color Fade of Pink Scented Candle Wax under UV Lamp Exposure

A variety of different stabilizers are evaluated in pink scented candle wax obtained from the Candle-Lite Corporation under UV lamp exposure. The ΔE values represent the change in color after the indicated days of exposure. A low ΔE value indicates less change in color and is highly desired.

Sample* (wt% add)	ΔE after 32 days
Blank (no add)	21.10
A (0.3%)	7.97
D (0.3%)	16.24
B (0.15%) +	
C (0.15%)	11.15
A (0.15%) +	
E (0.15%)	5.72
A (0.15%) +	
E (0.3%)	3.76

\*A is octyl 3-(benzotriazol-2-yl)-5-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate, TINUVIN® 384, CIBA.

B is 2-(2-hydroxy-5-tert-octylphenyl)-2H-benzotriazole, TINUVIN® 329, CIBA.  
 C is 4-octyloxy-2-hydroxybenzophenone, CHIMMASORB® 81, CIBA.  
 D is bis(1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin-4-yl) sebacate, TINUVIN® 292, CIBA.  
 E is 2,4-bis[N-n-butyl-N-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)amino]-6-[2-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyloxy)ethyl]amino-s-triazine, the compound of instant Example 1

These data show that the instant compound (Compound E) in combination with a UV absorber protects the pink scented candle wax from unwanted discoloration far better than conventional stabilizer systems.

#### Example 4

##### Color Fade of Gray Scented Candle Wax under Fluorescent Lamp Exposure

A variety of different stabilizers are evaluated in gray scented candle wax obtained from the Candle-Lite Corporation under fluorescent lamp exposure. The ΔE values represent the change in color after the indicated days of exposure. A low ΔE value indicates less change in color and is highly desired.

<u>Sample* (wt% add)</u>	<u>ΔE after 29 days</u>
Blank (no add)	15.72
A (0.3%)	9.88
B (0.15%) + C (0.15%)	8.01
A (0.15%) + E (0.15%)	3.58
A (0.15%) + F (0.15%)	3.87
G (0.15%) + E (0.15%)	6.12
G (0.15%) + F (0.15%)	6.02
G (0.15%) + F (0.3%)	6.54

\*A is octyl 3-(benzotriazol-2-yl)-5-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate, TINUVIN® 384, CIBA.  
 B is 2-(2-hydroxy-5-tert-octylphenyl)-2H-benzotriazole, TINUVIN® 329, CIBA.  
 C is 4-octyloxy-2-hydroxybenzophenone, CHIMMASORB® 81, CIBA.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 59 -

E is 2,4-bis[N-n-butyl-N-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)amino]-6-[2-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyloxy)ethyl]amino-s-triazine, the compound of instant Example 1.  
 F is 1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-4-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyloxy-piperidine, the compound of instant Example 2.  
 G is 2,4-bis(2,4-dimethylphenyl)-6-[2-hydroxy-4-(3-do-/tri-decyloxy-2-hydroxypropoxy)phényl]-s-triazine, TINUVIN® 400, CIBA.

These data show that an instant compound (Compound E or F) in combination with a UV absorber, particularly a benzotriazole UV absorber, protects the gray scented candle wax from unwanted discoloration far better than conventional stabilizer systems.

#### Example 5

##### Color Fade of Gray Scented Candle Wax under UV Lamp Exposure

A variety of different stabilizers are evaluated in gray scented candle wax obtained from the Candle-Lite Corporation under fluorescent lamp exposure. The ΔE values represent the change in color after the indicated days of exposure. A low ΔE value indicates less change in color and is highly desired.

Sample* (wt% add)	ΔE after 18 days
Blank (no add)	29.97
A (0.3%)	8.82
B (0.15%) + C (0.15%)	10.21
A (0.15%) + H (0.15%)	5.04
A (0.15%) + E (0.15%)	4.29
A (0.15%) + F (0.15%)	4.76

\*A is octyl 3-(benzotriazol-2-yl)-5-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate, TINUVIN® 384, CIBA.

B is 2-(2-hydroxy-5-tert-octylphenyl)-2H-benzotriazole, TINUVIN® 329, CIBA.

C is 4-octyloxy-2-hydroxybenzophenone, CHIMMASORB® 81, CIBA.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 60 -

E is 2,4-bis[N-n-butyl-N-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)amino]-6-[2-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyloxy)ethyl]amino-s-triazine, the compound of instant Example 1.  
 F is 1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-4-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyloxy-piperidine, the compound of instant Example 2.  
 H is bis(1-octyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl) sebacate, TINUVIN® 123, CIBA.

These data show that an instant compound (Compound E or F) in combination with a benzotriazole UV absorber protects the gray scented candle wax from unwanted discoloration far better than conventional stabilizer systems.

#### Example 6

##### Color Fade of White Scented Candle Wax under Fluorescent Lamp Exposure

A variety of different stabilizers are evaluated in white scented candle wax obtained from the Candle-Lite Corporation under fluorescent lamp exposure. The ΔE values represent the change in color after the indicated days of exposure. A low ΔE value indicates less change in color and is highly desired.

<u>Sample*</u> (wt% add)	<u>ΔE after</u> <u>24 days</u>
Blank (no add)	34.34
D (0.3%)	32.33
A (0.3%)	29.16
B (0.15%) + C (0.15%)	20.08
A (0.15%) + D (0.15%)	31.06
A (0.15%) + F (0.15%)	15.33
G (0.15%) + E (0.15%)	12.82
G (0.15%) + F (0.15%)	16.82
G (0.15%) + F (0.3%)	12.96
A (0.15%) + E (0.15%)	10.99
A (0.15%) + E (0.3%)	7.29

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 81 -

- \*A is octyl 3-(benzotriazol-2-yl)-5-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate, TINUVIN® 384, CIBA.
- B is 2-(2-hydroxy-5-tert-octylphenyl)-2H-benzotriazole, TINUVIN® 329, CIBA.
- C is 4-octyloxy-2-hydroxybenzophenone, CHIMMASORB® 81, CIBA.
- D is bis(1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin-4-yl) sebacate, TINUVIN® 292, CIBA.
- E is 2,4-bis[N-n-butyl-N-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)amino]-6-[2-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyloxy)ethyl]amino-s-triazine, the compound of instant Example 1.
- F is 1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-4-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyloxy piperidine, the compound of instant Example 2.
- G is 2,4-bis(2,4-dimethylphenyl)-6-[2-hydroxy-4-(3-do-/tri-decyloxy-2-hydroxypropoxy)phenyl]-s-triazine, TINUVIN® 400, CIBA.

These data show that an instant compound (Compound E or F) in combination with a UV absorber, particularly a benzotriazole UV absorber, protects the white scented candle wax from unwanted discoloration far better than conventional stabilizer systems.

#### Example 7

##### Color Fade of White Scented Candle Wax under UV Lamp Exposure

A variety of different stabilizers are evaluated in white scented candle wax obtained from the Candle-Lite Corporation under UV lamp exposure. The ΔE values represent the change in color after the indicated days of exposure. A low ΔE value indicates less change in color and is highly desired.

<u>Sample*</u> (wt% add)	ΔE after 25 days
Blank (no add)	45.09
D (0.3%)	32.03
A (0.3%)	25.50
B (0.15%) + C (0.15%)	30.11
A (0.15%) + D (0.15%)	29.74
G (0.15%) + E (0.15%)	24.89
A (0.15%) + F (0.15%)	20.14
A (0.15%) + E (0.15%)	17.13
A (0.15%) + E (0.3%)	14.66

\*A is octyl 3-(benzotriazol-2-yl)-5-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate, TINUVIN® 384, CIBA.  
 B is 2-(2-hydroxy-5-tert-octyphenyl)-2H-benzotriazole, TINUVIN® 329, CIBA.  
 C is 4-octyloxy-2-hydroxybenzophenone, CHIMMASORB® 81, CIBA.  
 D is bis(1,2,2,6,6-pentamethylpiperidin-4-yl) sebacate, TINUVIN® 292, CIBA.  
 E is 2,4-bis[N-n-butyl-N-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)amino]-6-[2-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyloxy)ethyl]amino-s-triazine, the compound of instant Example 1.  
 F is 1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-4-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyloxpiperidine, the compound of instant Example 2.  
 G is 2,4-bis(2,4-dimethylphenyl)-6-[2-hydroxy-4-(3-do-/tri-decyloxy-2-hydroxypropoxy)phenyl]-s-triazine, TINUVIN® 400, CIBA.

These data show that an instant compound (Compound E or F) in combination with a UV absorber, particularly a benzotriazole UV absorber, protects the white scented candle wax from unwanted discoloration far better than conventional stabilizer systems.

#### Example 8

##### Thermal Permanence of the Instant Compounds

The instant compounds are subjected to thermogravimetric analysis to measure their thermal permanence relative to the commercial hindered amine stabilizer, TINUVIN® 770.

<u>Compound</u>	Temperature °C	
	<u>at 10% wt loss</u>	<u>at 50% wt loss</u>
TINUVIN® 770*	255	297
Example 1	284	368

\*TINUVIN® 770 is bis(2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl) sebacate, CIBA.

These data show the improved thermal permanence of the instant compounds compared to the commercial hindered amine stabilizer TINUVIN® 770.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 63 -

Example 9

## Preparation of LDPE Films for HALS Migration Values

Ground low density polyethylene powder (Dow 640 I) is tumble blended with the desired quantity of test long chain hindered amine (HALS) and 0.30% by weight of Superfloss antiblock agent. The blended resin is twin-screw compounded at 450°F (232°C). The resulting pellets are blown at 400°F (204°C) into a monolayer film of approximately 3 mil thickness.

Blown films are used to study the migration of the test HALS from the interior of the film to the film surface. Additives that migrate tend to produce a white deposit on the film surface which can be easily scraped off. This is the phenomenon called blooming. It is clear that, if the additive blooms on to the surface of the film and is easily removed therefrom, it cannot serve to protect the film itself which is its purpose.

Visual assessment of the film surface is performed at approximately 30 day intervals up to 375 days. The films are stored at room temperature.

The instant long chain hindered amine compounds are particularly effective in LDPE films in the prevention of blooming because of their non-migration properties.

Example 10

## PET Bottles

Poly(ethylene terephthalate), PET, concentrates (10% by weight) of the instant long chain hindered amine compounds are prepared using Eastapak 9921W PET, on a 27 mm twin screw extruder at an operating temperature at the die of 275°C. The concentrates are let down with base resin to the final additives loading of 0.3% by weight based on resin. PET is dried under vacuum for at least four hours at 240°F prior to preform molding. Preforms are molded on a unit cavity Arburg press using the minimum injection temperature and back pressure necessary to obtain parts free of haze and crystallinity. Bottle blow molding is conducted using a Sidel SBO 2/3 blow molding machine, using preforms described above. Bottle wall thickness of 0.015-0.016 inches is achieved.

The instant compounds are particular efficacious because of their ability to protect the resin from unwanted degradation and without migration into the bottle contents.

Example 11

To separate poly(ethylene terephthalate), PET, resin formulations containing 0.5% by weight of the instant long chain hindered amine are added 0.5% by weight of each of the following benzotriazole stabilizers:

- (a) 5-chloro-2-(2-hydroxy-3- $\alpha$ -cumyl-5-tert-octylphenyl)-2H-benzotriazole;
- (b) isoctyl 3-(5-chloro-2H-benzotriazol-2-yl)-5-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate;
- (c) 2-(2-hydroxy-3- $\alpha$ -cumyl-5-tert-octylphenyl)-2H-benzotriazole;
- (d) 5-trifluoromethyl-2-(2-hydroxy-3- $\alpha$ -cumyl-5-tert-octylphenyl)-2H-benzotriazole;
- (e) 5-butylsulfonyl-2-(2-hydroxy-3- $\alpha$ -cumyl-5-tert-octylphenyl)-2H-benzotriazole;
- (f) 5-trifluoromethyl-2-(2-hydroxy-3- $\alpha$ -cumyl-5-tert-butylphenyl)-2H-benzotriazole;
- (g) 5-trifluoromethyl-2-(2-hydroxy-5-tert-octylphenyl)-2H-benzotriazole;
- (h) 5-trifluoromethyl-2-(2-hydroxy-3,5-di-tert-octylphenyl)-2H-benzotriazole;
- (i) 5-trifluoromethyl-2-(2-hydroxy-3,5-di-tert-butylphenyl)-2H-benzotriazole;
- (j) 5-trifluoromethyl-2-(2-hydroxy-3,5-di- $\alpha$ -cumylphenyl)-2H-benzotriazole;
- (k) 5-butylsulfonyl-2-(2-hydroxy-3,5-di-tert-butylphenyl)-2H-benzotriazole;
- (l) 5-phenylsulfonyl-2-(2-hydroxy-3,5-di-tert-butylphenyl)-2H-benzotriazole; or
- (m) methyl 3-(5-trifluoromethyl-2H-benzotriazol-2-yl)-5-tert-butyl-4-hydroxyhydrocinnamate.

Each of the stabilized resin compositions are then blow or injection molded into a PET bottle having incorporated therein each of the respective UV absorbers. The PET bottles are especially effective at protecting the contents therein from UV radiation allowing for a longer shelf life for the product contained in the bottle.

Example 12

To separate poly(ethylene terephthalate), PET, resin formulations containing 0.5% by weight of the instant long chain hindered amine are added 0.5% by weight of each of the following benzotriazole stabilizers:

- (i) 2,4-bis(4-biphenyl)-6-(2-hydroxy-4-octyloxycarbonylhexyldeneoxyphenyl)-s-triazine;
- (ii) 2-phenyl-4-[2-hydroxy-4-(3-sec-butyl-2-hydroxypropoxy)phenyl]-6-[2-hydroxy-4-(3-sec-amyl-2-hydroxypropoxy)phenyl]-s-triazine;
- (iii) 2,4-bis(2,4-dimethylphenyl)-6-[2-hydroxy-4-(3-benzyl-2-hydroxypropoxy)phenyl]-s-triazine;
- (iv) 2,4-bis(2-hydroxy-4-n-butyl-2-hydroxyphenyl)-6-(2,4-di-n-butyl-2-hydroxyphenyl)-s-triazine;
- (v) 2,4-bis(2,4-dimethylphenyl)-6-[2-hydroxy-4-(3-nonyloxy-2-hydroxypropoxy)-5- $\alpha$ -cumylphenyl]-s-triazine; (\* denotes a mixture of octyloxy, nonyloxy and decyloxy groups)
- (vi) methylenebis-[2,4-bis(2,4-dimethylphenyl)-6-[2-hydroxy-4-(3-butyl-2-hydroxypropoxy)phenyl]-s-triazine, methylene bridged dimer mixture bridged in the 3:5', 5:5' and 3:3' positions in a 5:4:1 ratio;
- (vii) 2,4,6-tris(2-hydroxy-4-isooctyloxycarbonylisopropylideneoxyphenyl)-s-triazine;
- (viii) 2,4-bis(2,4-dimethylphenyl)-6-(2-hydroxy-4-hexyloxy-5- $\alpha$ -cumylphenyl)-s-triazine;
- (ix) 2,4-bis(2,4-dimethylphenyl)-6-(2-hydroxy-4-octyloxy-phenyl)-s-triazine; CYASORB® 1164, Cytec;
- (x) 2-(2,4,6-trimethylphenyl)-4,6-bis[2-hydroxy-4-(3-butyl-2-hydroxypropoxy)phenyl]-s-triazine; or
- (xi) 2,4,6-tris[2-hydroxy-4-(3-sec-butyl-2-hydroxypropoxy)phenyl]-s-triazine.

Each of the stabilized resin compositions are then blow or injection molded into a PET bottle having incorporated therein each of the respective UV absorbers. The PET bottles are especially effective at protecting the contents therein from UV radiation allowing for a longer shelf life for the product contained in the bottle.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 66 -

Example 13

A multi-layer bottle is prepared wherein the exterior layer and the innermost layer contacting the bottle contents are composed of PET and which also comprises a barrier layer. When one or more of the benzotriazoles or s-triazine UV absorbers listed in Examples 11 and 12 and an instant long chain hindered amine are incorporated into any of the three layers at 0.5% by weight based on the weight of the resin, the contents of the bottle are effectively protected from UV radiation.

Example 14

A multi-layer bottle is prepared wherein the exterior layer and the innermost layer contacting the bottle contents are composed of HDPE (high density polyethylene) and which also comprises a barrier layer. When one or more of the benzotriazoles or s-triazine UV absorbers listed in Examples 11 and 12 and an instant long chain hindered amine are incorporated into any of the three layers at 0.5% by weight based on the weight of the resin, the contents of the bottle are effectively protected from UV radiation.

Example 15

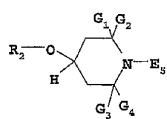
A multi-layer bottle is prepared wherein the exterior layer and the innermost layer contacting the bottle contents are composed of polypropylene and which also comprises a barrier layer. When one or more of the benzotriazoles or s-triazine UV absorbers listed in Examples 11 and 12 and an instant long chain hindered amine are incorporated into any of the three layers at 0.5% by weight based on the weight of the resin, the contents of the bottle are effectively protected from UV radiation.

The compounds listed under Examples 16 to 46 are prepared following the general procedures found in Examples 1 and 2 and in the United States Patent Nos. 5,204,473; 5,216,156; 5,844,026 and 6,166,212.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

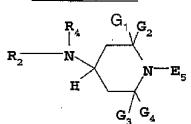
- 67 -

Examples 16-24

<u>Ex*</u>	<u>E<sub>5</sub></u>	<u>E<sub>6</sub></u>	<u>E**</u>	<u>R<sub>6</sub>**</u>	<u>T<sub>1</sub></u>
16	OE <sub>9</sub> methyl	--	-COT <sub>1</sub>	C <sub>40</sub> -C <sub>60</sub>	
17	OE <sub>9</sub> octyl	--	-COT <sub>1</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub>	
18	OE <sub>9</sub> benzyl	--	-COT <sub>1</sub>	C <sub>80</sub> -C <sub>100</sub>	
19	OE <sub>9</sub> cyclo-hexenyl	--	A	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub> X is -O-	m is 4; X is -O-
20*	OE <sub>9</sub> octadecyl	--	B	C <sub>60</sub> -C <sub>100</sub> X is NCH <sub>3</sub>	p is 10;
21	OE(OH) <sub>b</sub>	-	C	-COT <sub>1</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub>
22*	OE(OH) <sub>b</sub>	-	D	-COT <sub>1</sub>	C <sub>60</sub> -C <sub>80</sub>
23	OE(OH) <sub>b</sub>	-	C	-COXT <sub>1</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub>
24	OE(OH) <sub>b</sub>	-	C	-COT <sub>1</sub>	C <sub>40</sub> -C <sub>60</sub>

\*Unless otherwise noted, G<sub>1</sub> to G<sub>4</sub> are each methyl.In Example 20, G<sub>1</sub> and G<sub>3</sub> are each methyl, and G<sub>2</sub> and G<sub>4</sub> are each ethyl.In Example 22, G<sub>1</sub> to G<sub>4</sub> are n-propyl.\*\*A is -(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>CO-X-T<sub>1</sub>.

B is  $-(\text{CH}_2)_p\text{X-CO-T}_1$ .  
 C is  $-\text{CH}_2\text{C}(\text{CH}_3)_2\text{OH}$ .  
 D is  $-\text{CH}_2\text{CH(OH)-CH}_2\text{OH}$ .

Examples 25-32

(2)

<u>Ex*</u>	<u>E<sub>5</sub></u>	<u>E<sub>9</sub></u>	<u>E**</u>	<u>R<sub>2</sub>**</u>	<u>T<sub>1</sub></u>	
25	OE <sub>9</sub>	methyl	--	-COT <sub>1</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub>	R <sub>4</sub> is CH <sub>3</sub>
26	OE <sub>9</sub>	cyclo-hexyl	--	-COT <sub>1</sub>	C <sub>40</sub> -C <sub>60</sub>	R <sub>4</sub> is H
27	OE <sub>9</sub>	octyl	--	-COT <sub>1</sub>	C <sub>80</sub> -C <sub>100</sub>	R <sub>4</sub> =C <sub>8</sub> H <sub>17</sub>
28	OE <sub>9</sub>	phenyl	--	E	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub> X is -O-; R <sub>4</sub> is H	m is 6;
29*	OE(OH) <sub>b</sub>	-	C	-COT <sub>1</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub> b is 1	R <sub>4</sub> is CH <sub>3</sub> ;
30*	OE(OH) <sub>b</sub>	-	D	T <sub>1</sub>	C <sub>40</sub> -C <sub>60</sub> R <sub>4</sub> is H	b is 2;
31	OE(OH) <sub>b</sub>	-	C	A	C <sub>20</sub> -C <sub>40</sub> R <sub>4</sub> is H; p is 3	b is 1;

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 69 -

32  $OE(OH)_b$  C F  $C_{20}-C_{40}$  b is 1;  
 $R_4$  is  $CH_3$ ;  
 $p$  is 6

\*Unless otherwise noted,  $G_1$  to  $G_4$  are each methyl.

In Example 30,  $G_1$  and  $G_3$  are each octyl, and  $G_2$  and  $G_4$  are each methyl.

\*\*A is  $-(CH_2)_mCO-X-T_1$ .

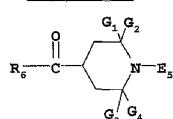
C is  $-CH_2C(CH_3)_2OH$ .

D is  $-CH_2CH(OH)-CH_2OH$ .

E is  $-(CH_2)_nCO-T_1$ .

F is  $-CO-(CH_2)_p-X-CO-T_1$ .

Examples 33-40



(3)

<u>Ex*</u>	<u>E<sub>5</sub></u>	<u>E<sub>9</sub></u>	<u>E<sup>**</sup></u>	<u>R<sub>6</sub><sup>**</sup></u>	<u>T<sub>1</sub></u>	
33	$OE_9$	methyl	--	$-XT_1$	$C_{20}-C_{40}$	X is -O-
34	$OE_9$	cyclo-hexyl	--	$-XT_1$	$C_{40}-C_{60}$	X is -O-
35	$OE_9$	octyl	--	$-XT_1$	$C_{20}-C_{40}$	X is -NH-
36	$OE_9$	phenyl	--	G	$C_{20}-C_{40}$	m is 6; X is -O-; X <sub>1</sub> is -O-
37	$OE_9$	allyl	--	$-XT_1$	$C_{20}-C_{40}$	X is -O-

WO 02/083781

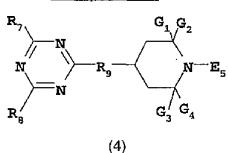
PCT/EP02/03944

- 70 -

38	$OE(OH)_b$	-	C	$-XT_1$	$C_{20}-C_{40}$	b is 1
39	$OE(OH)_b$	-	C	$-XT_1$	$C_{20}-C_{40}$	b is 1; X is $NCH_3$
40	$OE(OH)_b$	-	H	I	$C_{20}-C_{40}$	b is 2; p is 3; X is $NCH_3$ ; $X_1$ is -O-

\*Unless otherwise noted,  $G_1$  to  $G_4$  are each methyl.

\*\*

C is  $-CH_2C(CH_3)_2-OH$ .G is  $-X-(CH_2)_n-CO-X_1-T_1$ .H is  $-CH_2-CH(OH)-CH_2CH_2OH$ .I is  $-X-(CH_2)_p-X-CO-T_1$ .Examples 41-46

Ex*	$E_5$	$E_6$	$E_8$	$E^{**}$	$R_7^{**}$	$T_1$	—
41	$OE_9$	methyl	--	I	$C_{20}-C_{40}$	X is -O-; $X_1$ is -NH-; p is 2; $R_6$ is $NHT_2$ ; $R_9$ is $NC_4H_9$	
42	$OE_9$	octyl	--	$-XT_1$	$C_{20}-C_{40}$	X is -O-;	

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 71 -

R<sub>8</sub> is -OT<sub>2</sub>;

45	$\text{OE(OH)}_b$	-	C	I	$\text{C}_{30}\text{-C}_{40}$	$\text{X}_1 \text{ is } -\text{O}-$ ;
					b is 1;	
					p is 2;	
					X is $-\text{NH}^-$ ;	
					$\text{R}_8=\text{NC}_4\text{H}_9\text{T}_2$ ;	
					$\text{R}=\text{NC}_2\text{H}_5$	

\*Unless otherwise noted, G<sub>1</sub> to G<sub>4</sub> are each methyl.

☆☆

C is  $\text{-CH}_2\text{C}(\text{CH}_3)_2\text{-OH}$ .

G is  $-X-(CH_2)_m-CO-X_1-T_1$ .

1 is  $-X-(CH_2)_p-X_1-CO-T_1$ .

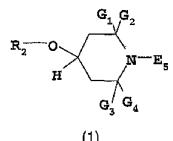
WO 02/083781

PCT/EP02/03944

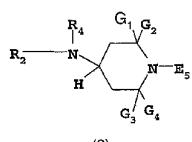
- 72 -

## WHAT IS CLAIMED IS:

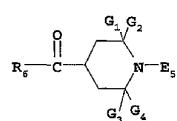
1. A compound of formula 1, 2, 3, 4, 5 or 6



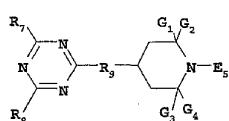
(1)



(2)



(3)

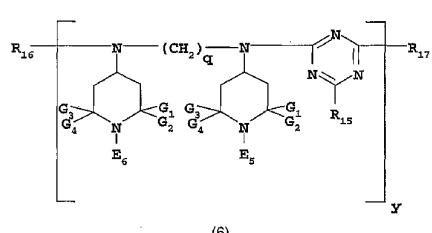
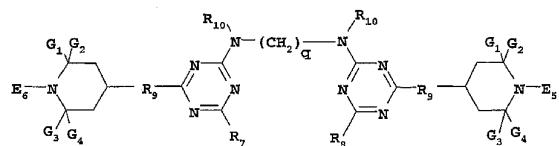


(4)

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 73 -



wherein

$G_1$ ,  $G_2$ ,  $G_3$ , and  $G_4$  are independently alkyl of 1 to 8 carbon atoms, or  $G_1$  and  $G_2$  together are pentamethylene, or  $G_3$  and  $G_4$  together are pentamethylene;

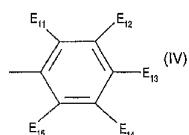
$E_6$  is  $OE_6$  or  $-O-E-(OH)_5$ ;

$E_9$  is straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms, cycloalkyl of 5 to 12 carbon atoms, straight or branched chain alkenyl of 3 to 24 carbon atoms, cycloalkenyl of 5 to 12 carbon atoms, phenylalkyl of 7 to 15 carbon atoms, a radical of a saturated or unsaturated bicyclic or tricyclic hydrocarbon of 7 to 15 carbon atoms, aryl of 6 to 10 carbon atoms or said aryl substituted by one to three alkyl of 1 to 4 carbon atoms; or a group of formula IV

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 74 -



$E_{11}$  to  $E_{15}$  are independently hydrogen, halogen, nitro, cyano, alkyl of 1 to 18 carbon atoms, phenylalkyl of 7 to 15 carbon atoms, aryl of 6 to 10 carbon atoms, hydroxyl, carboxyl, alkylthio of 1 to 18 carbon atoms, alkoxy or 1 to 18 carbon atoms, phenylalkoxy of 7 to 15 carbon atoms, aryloxy of 6 to 10 carbon atoms, alkylcarbonyloxy of 2 to 18 carbon atoms, alkylsulfonyl of 1 to 18 carbon atoms, arylsulfonyl of 6 to 15 carbon atoms, sulfo or phosphono, or any two vicinal substituents connected together to form a mono- or polycyclic ring;

$E$  is a straight or branched chain alkylene of 1 to 18 carbon atoms, cycloalkylene of 5 to 18 carbon atoms, cycloalkenylene of 5 to 18 carbon atoms, a straight or branched chain alkylene of 1 to 4 carbon atoms substituted by phenyl or by phenyl substituted by one or two alkyl groups of 1 to 4 carbon atoms;

$b$  is 1, 2 or 3 with the proviso that  $b$  cannot exceed the number of carbon atoms in  $E$ , and when  $b$  is 2 or 3, each hydroxyl group is attached to a different carbon atom of  $E$ ;

$R_2$  is  $T_1$ ,  $-CO-T_1$ ,  $-CO-X-T_1$ ,  $-(CH_2)_m-CO-X-T_1$ ,  $-(CH_2)_p-X-CO-T_1$ ,  $-CO-(CH_2)_m-CO-X-T_1$ , or  $-CO-(CH_2)_p-X-CO-T_1$ ;

$m$  is 1 to 12;

$p$  is 1 to 12;

$T_1$  is straight or branched chain alkyl of 19 to 100 carbon atoms, or said alkyl substituted by one hydroxyl group and interrupted by one oxa moiety, or a mixture of such alkyl moieties; or

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 75 -

$T_1$  is  $-(R-O)_n-R-OG_6$  where R is ethylene, propylene, trimethylene, 1,2-butylene or tetramethylene, and n is 4 to 49 so that the total number of carbon atoms in  $T_1$  is at least 20;

$G_6$  is hydrogen, straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms, straight or branched chain alkenyl of 2 to 18 carbon atoms, cycloalkyl of 5 to 12 carbon atoms, phenylalkyl of 7 to 15 carbon atoms, phenyl, or said phenyl or said phenylalkyl substituted on the phenyl ring by 1 to 4 alkyl of 1 to 4 carbon atoms;

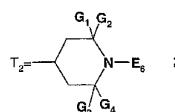
X and  $X_1$  are independently -O-, or  $-N-(R_4)-$ ;

$R_4$  is hydrogen, alkyl of 1 to 18 carbon atoms or acyl of 2 to 6 carbon atoms;

$R_6$  is  $T_1$ ,  $-X-T_1$ ,  $-(CH_2)_m-CO-X-T_1$ ,  $-(CH_2)_p-X-CO-T_1$ ,  $X-(CH_2)_m-CO-X_1-T_1$ , or  $X-(CH_2)_p-X_1-CO-T_1$ ;

$R_7$  and  $R_8$  are independently chlorine, alkoxy of 1 to 18 carbon atoms,  $-O-T_2$ , amino substituted by 2-hydroxyethyl,  $-NH(alkyl)$  of 1 to 18 carbon atoms,  $-N(alkyl)T_2$  with alkyl of 1 to 18 carbon atoms,  $-N(alkyl)_2$  of 2 to 36 carbon atoms,  $-X-T_1$ ,  $X-(CH_2)_m-CO-X-T_1$ , or  $X-(CH_2)_p-X-CO-T_1$ ;

$R_9$  is a divalent oxygen atom, or  $R_9$  is a divalent nitrogen atom substituted by either hydrogen, alkyl of 1 to 12 carbon atoms or  $T_2$



$E_6$  is hydrogen, oxyf, hydroxyl, straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms, straight or branched chain alkenyl of 3 to 24 carbon atoms, benzyl, acetyl,  $-CH_2CH(OH)-E_6$ ,  $-OE_6$ , or  $-OE(OH)_6$ ;

$E_6$  is hydrogen, methyl, ethyl or phenyl;

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 76 -

R<sub>10</sub> is hydrogen or an alkyl group of 1 to 18 carbon atoms;

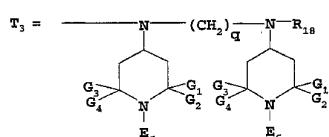
q is 2 to 8;

y is 1 to 10;

R<sub>15</sub> is morpholino, piperidino, 1-piperizinyl, alkylamino of 1 to 18 carbon atoms, especially branched alkylamino of 3 to 8 carbon atoms such as tert-octylamino, -N(alkyl)T<sub>2</sub> with alkyl of 1 to 8 carbon atoms, -N(alkyl)<sub>2</sub> of 2 to 16 carbon atoms, -X-T<sub>1</sub>, X-(CH<sub>2</sub>)<sub>m</sub>-CO-X<sub>1</sub>-T<sub>1</sub>, or X-(CH<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-X<sub>1</sub>-CO-T<sub>1</sub>;

R<sub>16</sub> is hydrogen, acyl of 2 to 4 carbon atoms, carbamoyl substituted by alkyl of 1 to 4 carbon atoms, s-triazinyl substituted once by chlorine and once by R<sub>15</sub>, or s-triazinyl substituted twice by R<sub>15</sub> with the condition that the two R<sub>15</sub> substituents may be different;

R<sub>17</sub> is chlorine, amino substituted by alkyl of 1 to 18 carbon atoms or by T<sub>2</sub>, -N(alkyl)T<sub>2</sub> with alkyl of 1 to 8 carbon atoms, -N(alkyl)<sub>2</sub> of 2 to 16 carbon atoms, or the group T<sub>3</sub>



R<sub>18</sub> is hydrogen, acyl of 2 to 4 carbon atoms, carbamoyl substituted by alkyl of 1 to 4 carbon atoms, s-triazinyl substituted twice by -N(alkyl)<sub>2</sub> of 2 to 16 carbon atoms or s-triazinyl substituted twice by -N(alkyl)T<sub>1</sub> with alkyl of 1 to 8 carbon atoms;

with the proviso that at least one of R<sub>7</sub>, R<sub>8</sub>, or R<sub>15</sub> is a group which contains a T<sub>1</sub> moiety.

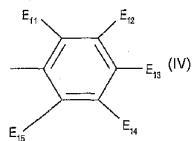
2. A compound according to claim 1, wherein

G<sub>1</sub>, G<sub>2</sub>, G<sub>3</sub>, and G<sub>4</sub> are each methyl;

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 77 -

 $E_5$  is  $OE_9$  or  $-O-E-(OH)_b$ ; $E_6$  is straight or branched chain alkyl of 1 to 18 carbon atoms, cycloalkyl of 5 to 12 carbon atoms, straight or branched chain alkenyl of 3 to 24 carbon atoms, cycloalkenyl of 5 to 12 carbon atoms; or a group of formula IV $E_{11}$  to  $E_{15}$  are independently hydrogen, F, Cl, Br, nitro, cyano, hydroxyl, carboxyl, alkylthio of 1 to 18 carbon atoms, or alkoxy or 1 to 18 carbon atoms;

when b is 1,  $E-OH$  is respectively a carbon-centered radical formed from 2-methyl-2-propanol, 2-propanol, 2,2-dimethyl-1-propanol, 2-methyl-2-butanol, ethanol, 1-propanol, 1-butanol, 1-pentanol, 1-hexanol, 1-nonanol, 1-decanol, 1-dodecanol, 1-octadecanol, 2-butanol, 2-pentanol, 2-ethyl-1-hexanol, cyclohexanol, cyclooctanol, allyl alcohol, phenethyl alcohol or 1-phenyl-1-ethanol;

when b is 2,  $E-OH$  is respectively a carbon-centered radical or diradical formed from 1,2-ethanediol, 1,2-propanediol, 1,3-propanediol, 1,2-butanediol, 1,3-butanediol, 1,4-butanediol, 2,2-dimethyl-1,3-propanediol, 1,2-cyclohexanediol, 1,3-cyclohexanediol or 1,4-cyclohexanediol; most preferably  $E-OH$  is formed from 1,4-butanediol, 2,2-dimethyl-1,3-propanediol, 1,2-cyclohexanediol, 1,3-cyclohexanediol or

when b is 3,  $E-OH$  is respectively a carbon-centered radical formed from glycerol, 1,1,1-tris(hydroxymethyl)methane, 2-ethyl-2-(hydroxymethyl)-1,3-propanediol, 1,2,4-butanetriol or 1,2,6-hexanetriol;

 $R_2$  is  $-CO-T_1$ ,  $-CO-X-T_1$ ,  $-(CH_2)_m-CO-X-T_1$ , or  $-(CH_2)_p-X-CO-T_1$ ; $m$  is 1 to 4; $p$  is 1 to 4;

$T_1$  is straight or branched chain alkyl of 19 to 80 carbon atoms, or a mixture of such alkyl moieties; or

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 78 -

$T_1$  is  $-(R-O)_n-R-OG_5$  where R is ethylene, or propylene, and n is 6 to 49 so that the total number of carbon atoms in  $T_1$  is at least 20;

$G_5$  is hydrogen, straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms;

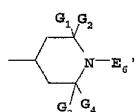
X and  $X_1$  are independently  $-O-$ , or  $-N-(R_4)-$ ;

$R_4$  is hydrogen, alkyl of 1 to 18 carbon atoms or acyl of 2 to 6 carbon atoms;

$R_6$  is  $-X-T_1$ ,  $X-(CH_2)_m-CO-X_1-T_1$ , or  $X-(CH_2)_p-X_1-CO-T_1$ ;

$R_7$  and  $R_8$  are independently alkoxy of 1 to 18 carbon atoms,  $-O-T_2$ , amino substituted by 2-hydroxyethyl,  $-NH(alkyl)$  of 1 to 18 carbon atoms,  $-N(alkyl)T_2$  with alkyl of 1 to 18 carbon atoms,  $-X-T_1$ ,  $X-(CH_2)_m-CO-X_1-T_1$ , or  $X-(CH_2)_p-X_1-CO-T_1$ ;

$R_9$  is a divalent oxygen atom, or  $R_9$  is a divalent nitrogen atom substituted by either hydrogen, alkyl of 1 to 12 carbon atoms or  $T_2$ , where  $T_2$  is a group of the formula



$E_6$  is hydrogen, hydroxyl, straight or branched chain alkyl of 1 to 24 carbon atoms, straight or branched chain alkenyl of 3 to 24 carbon atoms, benzyl, acetyl,  $-OE_5$ , or  $-OE(OH)_5$ ;

$R_{10}$  is hydrogen or an alkyl group of 1 to 18 carbon atoms;

q is 4 to 8;

y is 1 to 10;

$R_{15}$  is morpholino, piperidino, 1-piperiziny, alkylamino of 1 to 8 carbon atoms, especially branched alkylamino of 3 to 8 carbon atoms such as tert-octylamino,  $-X-T_1$ ,  $X-(CH_2)_m-CO-X_1-T_1$ , or  $X-(CH_2)_p-X_1-CO-T_1$ ;

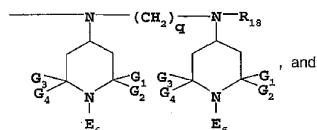
$R_{16}$  is hydrogen, acyl of 2 to 4 carbon atoms, carbamoyl substituted by alkyl of 1 to 4 carbon atoms, s-triazinyl substituted once by chlorine and once by  $R_{15}$ ;

$R_{17}$  is amino substituted by alkyl of 1 to 18 carbon atoms or by  $T_2$ ,  $-N(alkyl)T_2$  with alkyl of 1 to 8 carbon atoms,  $-N(alkyl)_2$  of 2 to 16 carbon atoms, or the group  $T_3$  of the formula

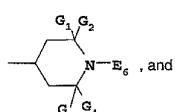
WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 79 -

 $R_{18}$  is hydrogen.

3. A compound according to claim 1 of formula 1, 2, 3 or 4, wherein

 $G_1$ ,  $G_2$ ,  $G_3$ , and  $G_4$  are each methyl; $E_5$  is  $OE_9$  or  $-O-E-(OH)_b$ ; $E_6$  is straight or branched chain alkyl of 1 to 12 carbon atoms, or cycloalkyl of 5 to 10 carbon atoms; $b$  is 1 and  $E-OH$  is a carbon-centered radical formed from 2-methyl-2-propanol; $R_2$  is  $-CO-T_1$ ; $T_1$  is straight or branched chain alkyl of 19 to 60 carbon atoms, or a mixture of such alkyl moieties; $R_4$  is hydrogen or methyl; $X$  in formula 3 is  $-O-$  and  $R_6$  is  $-X-T_1$ ; $X$  and  $X_1$  in formula 4 are independently  $-O-$ , or  $-N(R_4)-$ ; $R_7$  and  $R_8$  are independently  $-O-T_2$ ,  $-N(alkyl)T_2$  with alkyl of 1 to 18 carbon atoms,  $-X-T_1$ , or  $X-(CH_2)_p-X-CO-T_1$ ; $R_9$  is a divalent oxygen atom, or  $R_9$  is a divalent nitrogen atom substituted by either hydrogen, alkyl of 1 to 12 carbon atoms or  $T_2$ , where  $T_2$  is a group of the formula $E_6$  is hydrogen, hydroxyl, straight or branched chain alkyl of 1 to 12 carbon atoms, acetyl,  $OE_9$ , or  $OEOH$ .

4. A compound according to claim 1 which is

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 80 -

- (a) 2,4-bis[N-n-butyl-N-(1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)amino]-6-[2-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyloxy)ethyl]amino-s-triazine;
- (b) 1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-4-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyloxy)piperidine;
  - (c) 4-C<sub>40</sub>-C<sub>60</sub>alkanoyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-1-methoxypiperidine;
  - (d) 4-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-1-octyloxypiperidine;
  - (e) 4-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-1-(2-methyl-2-hydroxypropoxy)piperidine;
  - (f) 4-C<sub>40</sub>-C<sub>60</sub>alkanoyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-1-(2-methyl-2-hydroxypropoxy)piperidine;
  - (g) 4-(N-methyl-N-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyl)amino-2,2,6,6-tetramethyl-1-methoxypiperidine;
  - (h) 4-(N-methyl-N-C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyl)amino-2,2,6,6-tetramethyl-1-(2-methyl-2-hydroxypropoxy)piperidine;
  - (i) C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkyl 1-methoxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-ylcarboxylate;
  - (j) C<sub>40</sub>-C<sub>60</sub>alkyl 1-cyclohexyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-ylcarboxylate;
  - (k) C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkyl 1-(2-methyl-2-hydroxypropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl-carboxylate;
  - (l) 2,4-bis[N-n-butyl-N-(1-methoxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl)amino]-6-[2-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyloxy)ethyl]amino-s-triazine;
  - (m) 2,4-bis(1-octyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yloxy)-6-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkyloxy)-s-triazine;
  - (n) 2,4-bis(N-n-butyl-N-[1-(2-methyl-2-hydroxypropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yl]amino)-6-[2-(C<sub>20</sub>-C<sub>40</sub>alkanoyloxy)ethyl]amino-s-triazine; or
  - (p) 2,4-bis[1-(2-methyl-2-hydroxypropoxy)-2,2,6,6-tetramethylpiperidin-4-yloxy]-6-(C<sub>40</sub>-C<sub>60</sub>alkyloxy)-s-triazine.

## 5. A composition which comprises

- (a) an organic material which is
  - i) a thermoplastic or thermoset resin;
  - ii) a recording material; or
  - iii) candle wax which is white and unscented, or white and scented, or dyed and unscented, or dyed and scented, or dipped and unscented, or dipped and scented, and
- (b) a compound of formula 1, 2, 3, 4, 5 or 6 according to claim 1.

6. A composition according to claim 5 wherein component (a) is a thermoplastic resin selected from polyolefin, polyamide and polyester, or candle wax.

WO 02/083781

PCT/EP02/03944

- 81 -

7. A composition according to claim 5 which comprises
  - (a) candle wax which is white and unscented; white and scented; dyed and unscented; dyed and scented; dipped and unscented; or dipped and scented, and, as additional component (c), a UV absorber or an antioxidant, or a UV absorber and an antioxidant, and wherein the ratio by weight of component (b) to (c) is from 10:1 to 1:10.
8. A composition according to claim 5 containing component (b) in an amount from 0.01 to 5% by weight of the stabilized composition.
9. A composition according to claim 5 containing, as additional component (c), an additive selected from UV absorbers, antioxidants and further sterically hindered amines.
10. A composition according to claim 9 where the additional component (c) is a UV absorber selected from benzotriazoles, benzophenones,  $\alpha$ -cyanoacrylates, oxanilides, s-triazines, cinnamates, malonates, benzoates, salicylates, or mixtures thereof.

## 【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International Application No PCT/EP 02/03944
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 C08K5/3475 C08K5/00 C08K5/103 C08K5/3435		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 C08K		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 5 859 098 A (TAKAGAKI HITOHISA ET AL) 12 January 1999 (1999-01-12) column 2, line 1-6 column 3, line 33 - line 62 abstract; claims 1,5,6 -----	1-10
X	DE 40 03 129 A (SUMITOMO CHEMICAL CO) 9 August 1990 (1990-08-09) page 2, line 19 - line 25 page 2, line 65 -page 3, line 33 abstract; claims 1,5 -----	1-10
X	EP 0 226 453 A (SUMITOMO CHEMICAL CO) 24 June 1987 (1987-06-24) page 2, line 20 -page 3, line 23 page 7, line 12 -page 8, line 3 abstract; claim 1 -----	1-10
	-/-	-/-
<input checked="" type="checkbox"/>	Further documents are listed in the continuation of box C.	<input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.
* Special categories of cited documents :		
*A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance		
*E* earlier document but published on or after the international filing date		
*L* document which may throw doubt on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)		
*O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means		
*P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		
*T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention		
*V* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone		
*W* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art		
*X* document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report	
17 September 2002	27/09/2002	
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5616 Patentian 2 NL - 2200 RJ Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized office G10mn, B	

Form PCT/ISA/210 (second edition) July 1992

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International Application No PCT/EP 02/03944
C(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 172 691 A (POLYPLASTICS CO) 26 February 1986 (1986-02-26) page 5, line 30 -page 6, line 28 abstract; claims 1,3 -----	1-10
X	US 4 524 165 A (MUSSER HARRY R ET AL) 18 June 1985 (1985-06-18) column 1, line 51 -column 2, line 44 column 6, line 65 -column 7, line 15 abstract; claims 1,27 -----	1-10
X	US 4 472 564 A (LOCKHART THOMAS P) 18 September 1984 (1984-09-18) column 4, line 32 -column 5, line 6 column 6, line 28 - line 41 abstract; claim 1 -----	1-10
X	GB 1 582 280 A (STAMICARBON) 7 January 1981 (1981-01-07) page 1, line 43 -page 2, line 17 page 4, line 52 -page 5, line 42 abstract; claims 1,19-22 -----	1-10
X	US 3 909 333 A (EASTMAN ERNEST FRANCIS) 30 September 1975 (1975-09-30) column 2, line 44 -column 3, line 45 column 18, line 5 - line 15 abstract; claim 1 -----	1-10

Form PCT/GBA210 (continuation of second sheet) (July 1998)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT			
Information on patent family members			
International Application No. PCT/EP 02/03944			
Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 5859098	A 12-01-1999	JP 1965284 C JP 5070664 B JP 61047744 A CA 1284541 A1 DE 3565844 D1 EP 0172691 A1	25-08-1995 05-10-1993 08-03-1986 28-05-1991 01-12-1988 26-02-1986
DE 4003129	A 09-08-1990	JP 2206642 A DE 4003129 A1	16-08-1990 09-08-1990
EP 0226453	A 24-06-1987	JP 6006645 B JP 62138542 A CA 1298021 A1 DE 3684111 D1 EP 0226453 A2	26-01-1994 22-06-1987 24-03-1992 09-04-1992 24-06-1987
EP 0172691	A 26-02-1986	JP 1965284 C JP 5070664 B JP 61047744 A CA 1284541 A1 DE 3565844 D1 EP 0172691 A1 US 5859098 A	25-08-1995 05-10-1993 08-03-1986 28-05-1991 01-12-1988 26-02-1986 12-01-1999
US 4524165	A 18-06-1985	NONE	
US 4472564	A 18-09-1984	CA 1248265 A1 DE 3411657 A1 FR 2543561 A1 GB 2137645 A JP 1768981 C JP 4055459 B JP 59213763 A JP 5093138 A	03-01-1989 04-10-1984 05-10-1984 10-10-1984 30-06-1993 03-09-1992 03-12-1984 16-04-1993
GB 1582280	A 07-01-1981	NL 7610403 A BE 858875 A2 DE 2742363 A1 FR 2364947 A1	22-03-1978 20-03-1978 23-03-1978 14-04-1978
US 3909333	A 30-09-1975	CA 1040783 A1 DE 2428251 A1 FR 2233369 A1 IT 1019654 B JP 50028551 A	17-10-1978 16-01-1975 10-01-1975 30-11-1977 24-03-1975

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (July 1999)

---

フロントページの続き

(81)指定国 AP(GH,GM,KE,LS,MW,MZ,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM),EP(AT, BE,CH,CY,DE,DK,ES,FI,FR,GB,GR,IE,IT,LU,MC,NL,PT,SE,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN, TD,TG),AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ,EC,EE,ES,FI,GB,GD,GE, GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KP,KR,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,MA,MD,MG,MK,MN,MW,MX,MZ,NO,NZ,OM,PH,P L,PT,RO,RU,SD,SE,SG,SI,SK,SL,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,UZ,VN,YU,ZA,ZM,ZW

(72)発明者 スミス , アンドレア・アール

アメリカ合衆国、ニューヨーク 12594、ウイングデール、ホイト・ロード 10

(72)発明者 ガルボ , ジェームス・ピーター

アメリカ合衆国、ニューヨーク 12594、ウイングデール、ホワイト・ファーム・ロード 2  
8

F ターム(参考) 4C054 AA02 CC07 DD04 DD08 EE01 FF25 FF33 FF38  
4C063 AA01 AA03 BB08 BB09 CC29 DD10 EE10  
4J002 AB011 AC011 AC091 AC101 AC121 AD011 AE031 AF021 BA001 BB021  
BB031 BB051 BB061 BB071 BB081 BB111 BB141 BB151 BB181 BB271  
BC031 BC051 BC061 BC071 BC081 BC091 BD031 BD081 BD101 BE021  
BE061 BF011 BF021 BF041 BF051 BG041 BG051 BG101 BG131 BK001  
BL011 BL021 BN071 BN121 BN151 BN161 BP011 CB001 CC031 CC161  
CC181 CD001 CD201 CF011 CF031 CF051 CF061 CF071 CF181 CF211  
CG001 CH021 CH041 CH071 CH091 CK011 CK021 CL011 CL031 CL051  
CL081 CL091 CM041 CN011 CN031 CP031 EE037 EH077 EH097 EH127  
EJ027 EJ037 EJ047 EJ067 EN027 ES007 ET007 EU076 EU086 EU177  
EU186 EU187 EV067 EW067 EW127 FD036 FD057 FD077 GC00