

(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2005-530869  
(P2005-530869A)

(43) 公表日 平成17年10月13日(2005.10.13)

(51) Int.C1.<sup>7</sup>C09K 3/00  
C08K 5/12  
C08L 101/00

F 1

C09K 3/00  
C08K 5/12  
C08L 101/00

テーマコード(参考)

4J002

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 61 頁)

(21) 出願番号 特願2004-503549 (P2004-503549)  
 (86) (22) 出願日 平成15年5月12日 (2003.5.12)  
 (85) 翻訳文提出日 平成16年12月22日 (2004.12.22)  
 (86) 國際出願番号 PCT/IB2003/001908  
 (87) 國際公開番号 WO2003/095543  
 (87) 國際公開日 平成15年11月20日 (2003.11.20)  
 (31) 優先権主張番号 10/145,366  
 (32) 優先日 平成14年5月14日 (2002.5.14)  
 (33) 優先権主張国 米国(US)

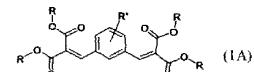
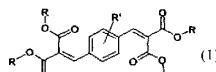
(71) 出願人 596081005  
 クラリアント・インターナショナル・リミテッド  
 スイス国、ツエーハー-4132・ムツテンツ、ロータウスシュトーレセ・61  
 (74) 代理人 100062007  
 弁理士 川口 義雄  
 (74) 代理人 100113332  
 弁理士 一入 章夫  
 (74) 代理人 100114188  
 弁理士 小野 誠  
 (74) 代理人 100103920  
 弁理士 大崎 勝真  
 (74) 代理人 100124855  
 弁理士 坪倉 道明

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】重合体基体の保護用安定剤混合物

## (57) 【要約】

一般式、(1) (1A) しかし好ましくは(1)の1つ以上の化合物の安定剤混合物であって、基Rは、独立して、アルキル-およびシクロアルキル-、アラルキル-、またはアリール基-残基を表し、その芳香族環は、同一であっても異なっていてもよい1つ以上の基R'によって場合によっては置換されてもよく、その基R'は、アリール基-、飽和または不飽和のアルキル-、アラルキル-またはシクロアルキル基、ならびに、ハロゲン、アミノ-、アミノアルキル-、アミノシクロアルキル-、シアノ-、チオシアノ-、またはニトロ基、および紫外線吸収剤、ヒンダードアミン安定剤、立体障害性フェノール、オルガノ亜リン酸塩、オルガノホスホナイト、オルガノホスフィンまたはそれの混合物であることができる。本発明は、重合体が長期間の貯蔵によって光曝露されるときの有害な影響から、様々な重合体の基体を保護するのに役立つ。この効果は、特にいわゆるエンジニアリングプラスチック(例えばP CおよびP E T、P B T、A B S、T P U等)において発揮される。

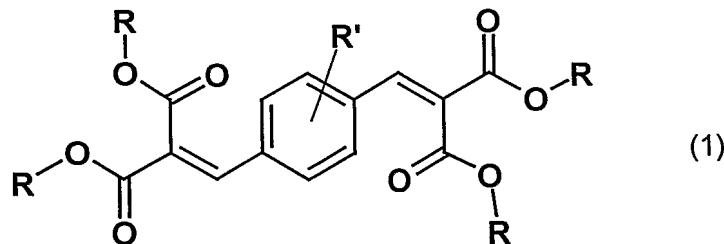


## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

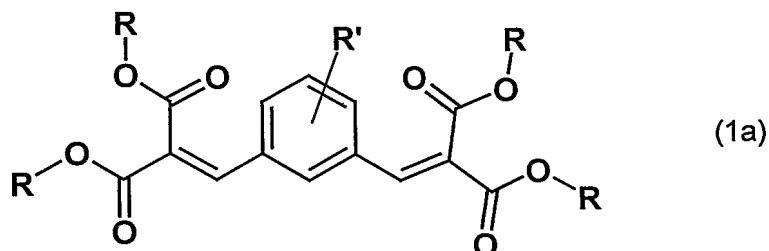
一般式 (1) を有する 1 つ以上の化合物を含む化合物の混合物であって、

## 【化 1】



10

or (1A)



20

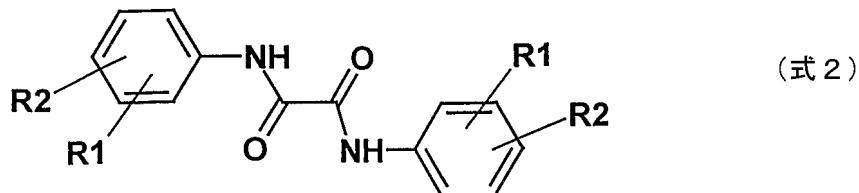
式中、基 R は、独立して、1 つのアルキル - 、シクロアルキル - 、アラルキル - 、またはアリール残基を表し、この芳香族環系は、1 つ以上の同一であっても異なっていてもよい基 R' によって場合によって置換されてもよく、その基 R' は、アリール - 、飽和または不飽和のアルキル - 、アラルキル - またはシクロアルキル - 基、ならびに、ハロゲン、アミノ - 、アミノアルキル - 、アミノシクロアルキル - 、またはシアノ - 、チオシアノ - 、ニトロ - 基であることができる化合物と、紫外線吸収剤、ヒンダードアミン安定剤、立体障害性フェノール、オルガノホスフイン、オルガノ - ホスファイト、オルガノホスホナイト、およびこれらの混合物からなる群から選択される化合物との混合物。

30

## 【請求項 2】

前記紫外線吸収剤が、式 2 の化合物である請求項 1 に記載の化合物の混合物：

## 【化 2】



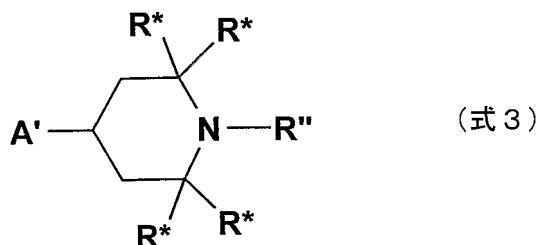
40

(式中、R<sub>1</sub> と R<sub>2</sub> は各々独立して、水素であるか、同一であるか、または直鎖および分岐しているアルキル - 、または、2 から 1 2 個の炭素原子および 1 から 4 個の酸素原子を有するアルコキシ - 基から選択された、異なる置換基である。)

## 【請求項 3】

前記ヒンダードアミン安定剤が、式 3 または 4 の化合物である請求項 1 に記載の化合物の混合物：

【化 3】



(式中、A'は、アミンである官能基を含むか、またはA'は加水分解性基、例えば、アミンを生成するアミドを含む、あるいはA'はアミドを生成する基であり、R<sup>\*</sup>は、メチルか、または他の低級な(C<sub>2</sub> - C<sub>4</sub>アルキル)であり、R"は、水素、1から3個の炭素のアルキルおよび-O-R<sub>3</sub>からなる群から選択され、このR<sub>3</sub>は、水素、メチル、および1から7個の炭素を含むアルキルからなる群から選択され、

【化4】

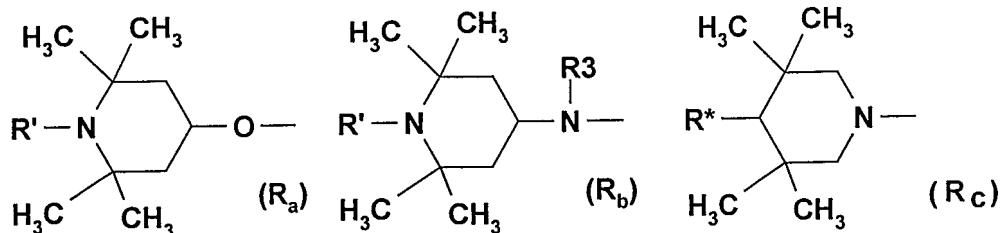


$n = 2, 3, \dots, 4$

20

式中、2量体と3量体を含み、R<sub>4</sub>の少なくとも1つは、-OH、-ORであり、また、R<sub>4</sub>の少なくとも1つはR<sub>a</sub>、R<sub>b</sub>またはR<sub>c</sub>であり、

【化 5】



30

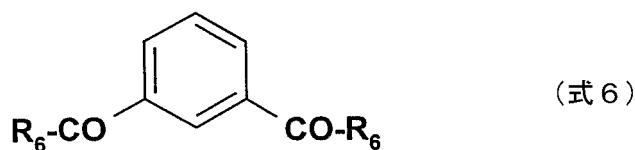
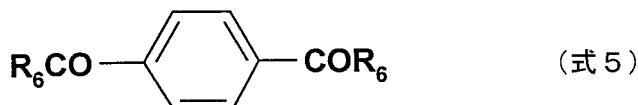
式中、 $R^*$  は上に定義されているものであり、 $R$  は上述の  $A$  と同じ意味を有する。

$R_5$  は、水素、アルキルまたは 1 から 6 個の炭素原子を有するシクロアルキルからなる群から選択される。)

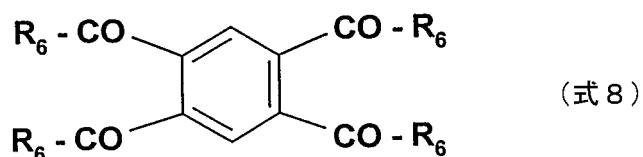
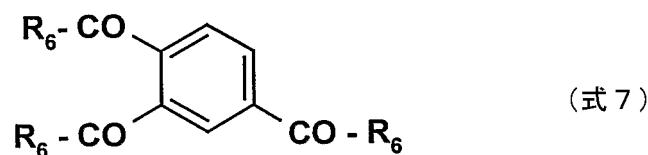
## 【請求項4】

前記ヒンダードアミンが、式(5)から(11)によって表わされる化合物である請求項3に記載の化合物の混合物：

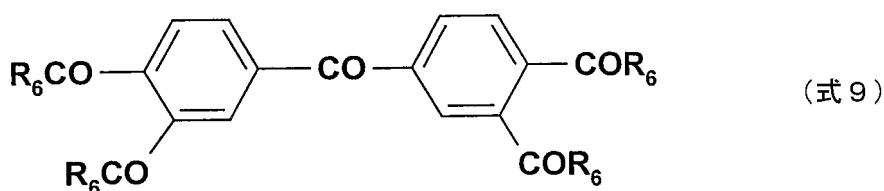
【化6】



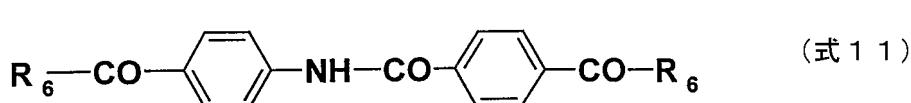
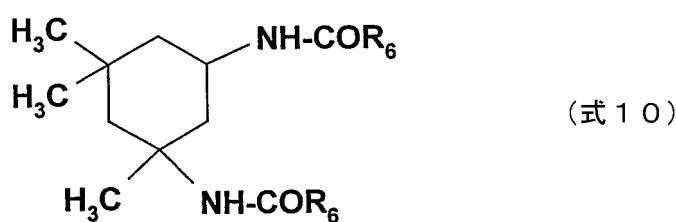
10



20



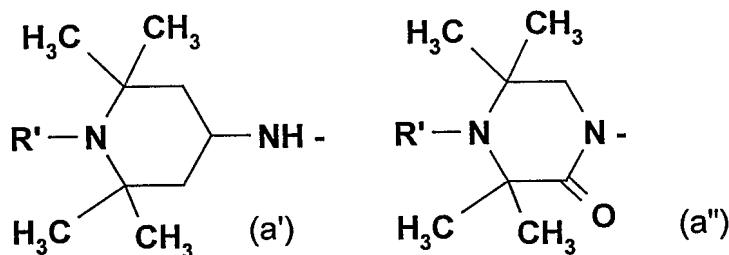
30



40

(式中、式5から11の式においては、R<sub>6</sub>は、式(a')または(a'')のいずれかであることができ、

【化 7】



10

式中、 $a'$  と  $a''$  の中の  $R'$  は、水素、 $C_{1-6}$  アルキルまたはシクロアルキル - 、例えば、 $-CH_3$ 、 $-CH_2CH_3$ 、 $C_{1-4}$  アルコキシ、例えば、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、または  $-CO-C_{1-4}$  アルキル、例えば、 $-O-CO-CH_3$ 、 $-O-CO-CH_2CH_3$  である。)

### 【請求項 5】

前記ヒンダードアミンが、以下のものから選択される化合物である請求項 3 に記載の化合物の混合物：

4 - アミノ - 2 , 2 ' , 6 , 6 ' - テトラメチルピペリジン、  
4 - アミノアルキル - 2 , 2 ' , 6 , 6 ' - テトラメチルピペリジン、  
4 - アミノアリール - 2 , 2 ' , 6 , 6 ' - テトラメチルピペリジン、  
3 - アミノアルキル - 2 , 2 ' , 6 , 6 ' - テトラメチルピペリジン、  
3 - アミノアリール - 2 , 2 ' , 6 , 6 ' - テトラメチルピペリジン、  
2 , 2 ' , 6 , 6 ' - テトラメチル - 4 - ピペリジン - アルキルカルボン酸、  
2 , 2 ' , 6 , 6 ' - テトラメチル - 4 - ピペリジンアリールカルボン酸、  
2 , 2 ' , 6 , 6 ' - テトラメチル - 3 - ピペリジンアルキルカルボン酸、  
2 , 2 ' , 6 , 6 ' - テトラメチル - 3 - ピペリジン - アリールカルボン酸。

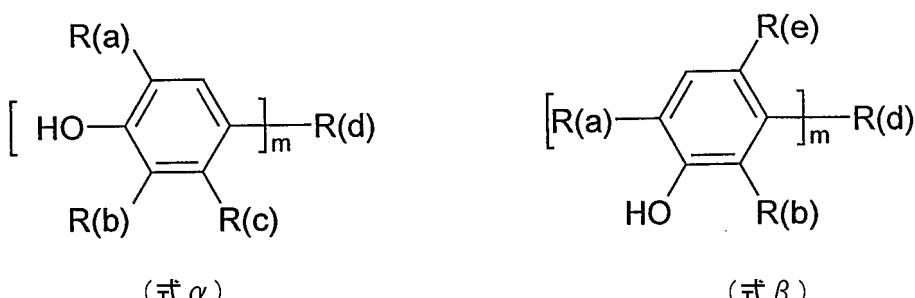
20

### 【請求項 6】

前記立体障害性フェノールが、式 、式 、およびこれらの混合物からなる群から選択される請求項 1 に記載の化合物の混合物：

【化 8 】

30



(式中、

$m$  は 1 または 3 の数字であり、

R ( a ) は、C<sub>1</sub> - C<sub>1-8</sub> アルキル、C<sub>5</sub> - C<sub>1-2</sub> - シクロ - アルキル、フェニル、またはC<sub>7</sub> - C<sub>9</sub> フェニル - アルキルであり、

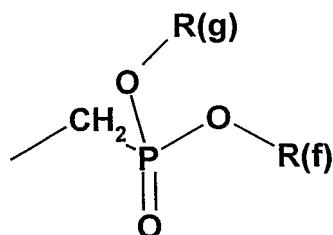
R (b) は、水素、C<sub>1</sub> - C<sub>18</sub> アルキル、C<sub>5</sub> - C<sub>12</sub> シクロ - アルキル、フェニル、またはC<sub>7</sub> - C<sub>9</sub> フェニル - アルキルであり、

R (c) は水素またはメチルであり；

$m$  が 1 である場合、 $R(d)$  は水素、 $C_1 \sim C_4$  アルキル、または、

40

【化9】

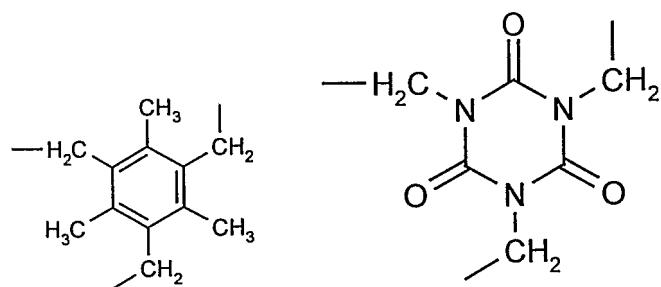


であり、

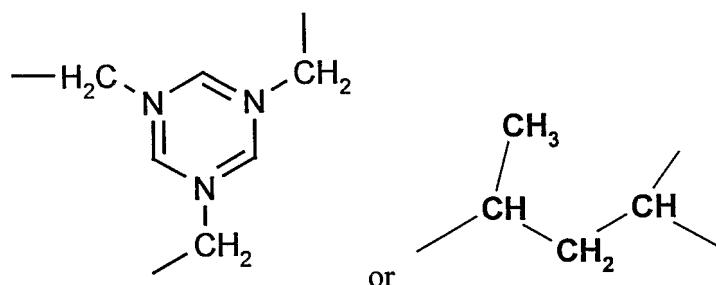
10

mが3である場合、R(d)は

【化10】



20



30

であり、

R(e)は水素またはメチルであり、

R(f)は水素、C<sub>1</sub> - C<sub>20</sub>アルキル、置換基を有さない、またはC<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>アルキル置換されたフェニルまたはナフチルであり、R(g)は、C<sub>1</sub> - C<sub>20</sub>アルキル、置換基を有さない、またはC<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>アルキル置換されたフェニルまたはナフチルであり、特に以下の化合物(I) - (VIII)である：

ビス-[3,3-ビス-(4'-ヒドロキシ-3'-tert-ブチル)-ブタン酸]グリコールエステル(I)、

4',4'',4'''-[ (2,4,6-トリメチル-1,3,5-ベンゼントリイル)トリス(メチレン)]-トリス[2,6-ビス(1,1-ジメチルエチル)フェノール](II)、

1,3,5-トリアジン-2,4,6(1H,3H,5H)-トリオン-1,3,5-トリス[ [4-(1,1-ジメチルエチル)-3-ヒドロキシ-2,6-ジメチルフェニル]メチル](III)、

フェノール、4',4'',4'''-(1-メチル-1-プロパニル-3-イリデン)トリス[2-(1,1-ジメチルエチル)-5-メチル(IV)、

フェノール、2,6-ビス[ [3-(1,1-ジメチルエチル)-2-ヒドロキシ-5-メチルフェニル]オクタ-ヒドロ-4,7-メタノ-1H-インデニル]-4-メチル(V)、

40

50

ベンゼンプロパン酸、3-(1,1-ジメチルエチル)-4-ヒドロキシ-5-メチル-2,4,8,10-テトラオキサ-スピロ[5.5]ウンデカン-3,9-ジイル-ビス(2,2-ジメチル-2,1-エタン-ジイル)エステル(VI),

テトラキスメチレン(3,5-ジ-tertブチル-4-ヒドロキシフェニル)-ヒドロシンナメート(VII)

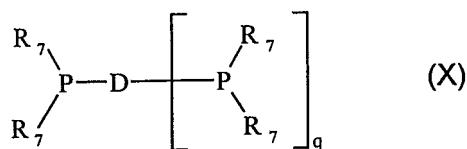
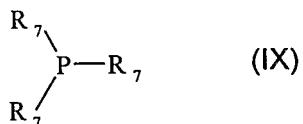
オクタデシル-3,5-ビス(1,1-ジメチルエチル)-4-ヒドロキシベンゼンプロパノエート(VIII)。)

【請求項7】

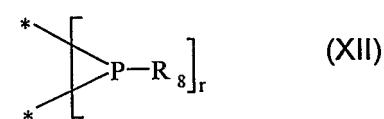
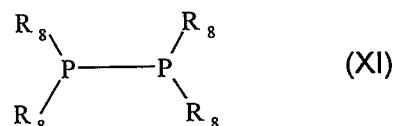
前記オルガノホスフィンが、次のものからなる群から選択される請求項1に記載の化合物の混合物:

10

【化11】



20



30

(式中、

$R_7$  は、 $C_{1-24}$  の直鎖または分岐しているアルキル(ヘテロ原子NおよびO、P、Sを含む場合においても)、 $C_{5-30}$  シクロアルキル(ヘテロ原子NおよびO、P、Sを含む場合においても)、 $C_{1-30}$  アルキルアリール、 $C_{6-24}$  アリール、 $C_{4-24}$  ヘテロアリール(单一のもしくは複数の(直鎖または分岐している) $C_{1-18}$  アルキルによって置換されている)、 $C_{5-12}$  シクロアルキルまたは $C_{1-18}$  アルコキシであり;

40

$R_8$  は、 $C_{4-24}$  の直鎖または分岐しているアルキル(ヘテロ原子NおよびO、P、Sを含む場合においても)、 $C_{5-30}$  シクロアルキル(ヘテロ原子NおよびO、P、Sを含む場合においても)、 $C_{1-30}$  のアルキルのアリール、 $C_{6-24}$  のアリール、 $C_{4-24}$  ヘテロアリール(单一のもしくは複数の(直鎖または分岐している) $C_{1-18}$  アルキルによって置換されている)、 $C_{5-12}$  のシクロアルキルまたは $C_{1-18}$  のアルコキシである。

Dは、直鎖または分岐している $C_{1-30}$  のアルキレン(ヘテロ原子NおよびO、P、Sを含む場合においても)、 $C_{2-30}$  アルキリデン(ヘテロ原子NおよびO、P、Sを含む場合においても)、 $C_{5-12}$  シクロアルキレン(ヘテロ原子NおよびO、P、Sを含む場合においても)、または $C_{6-24}$  のアリーレン/ $C_{4-24}$  ヘテロアリーレン(

50

(直鎖または分岐している)  $C_{1-18}$  アルキルによって置換されている)、 $C_{5-12}$  シクロアルキルまたは  $C_{1-18}$  アルコキシ、-O-、-S- であり；

Q は 1 から 5 であり；

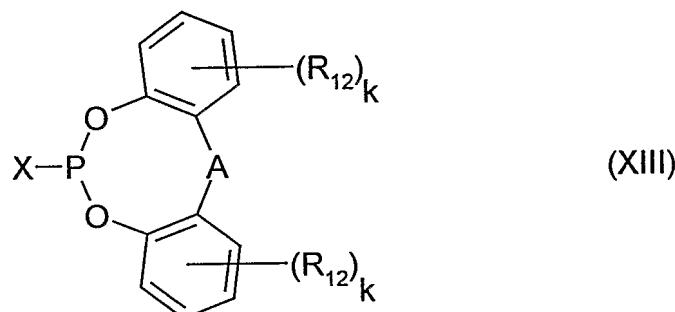
R は 3 から 6 であり；

式中、式(XII)の中の基  $P-R_8$  は、この P- 原子から来る結合で \* によって示される P を含んでいる環構造の部分であることができる。)

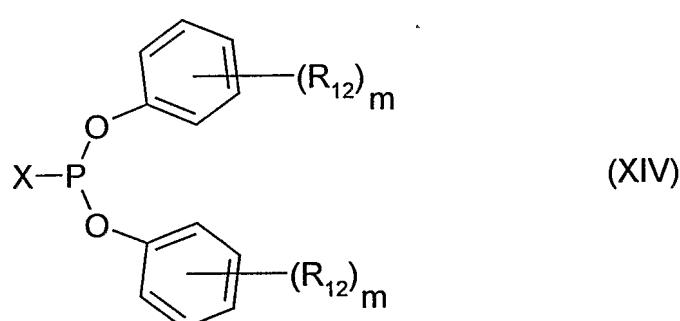
【請求項 8】

前記オルガノホスホナイトが、次のものからなる群から選択される請求項 1 に記載の化合物の混合物：

【化 12】

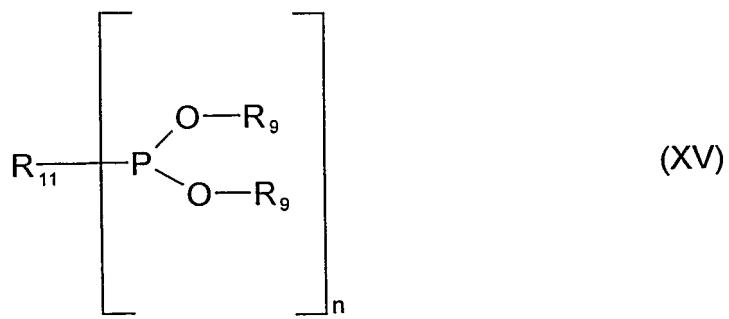


10



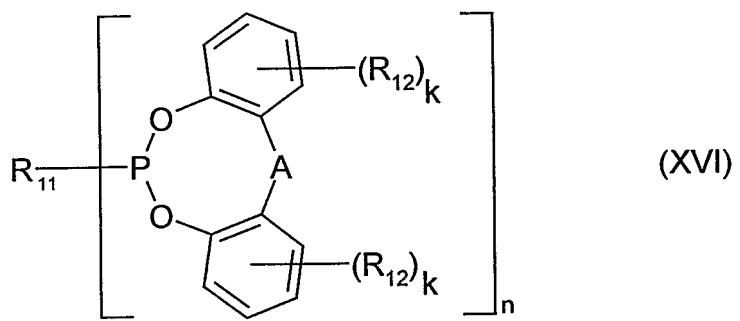
20

30



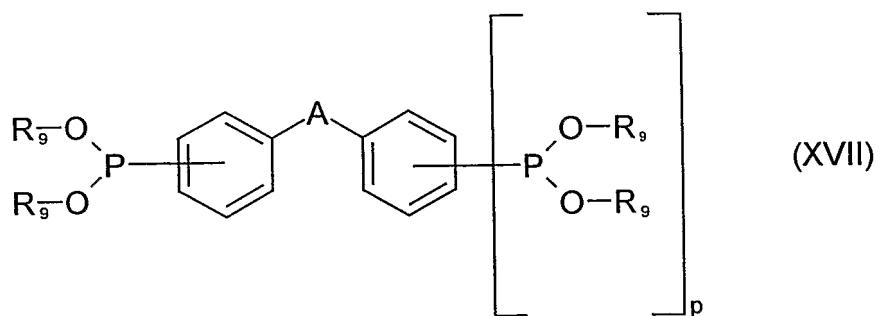
(XV)

10



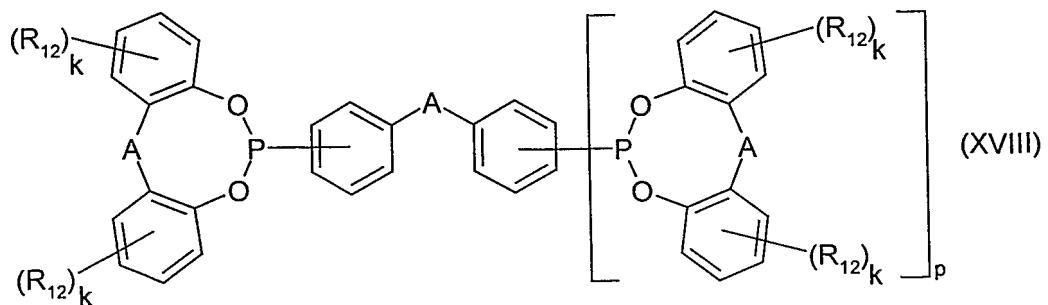
(XVI)

20



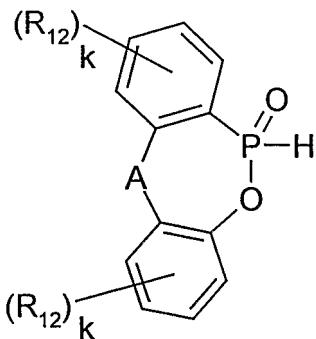
(XVII)

30



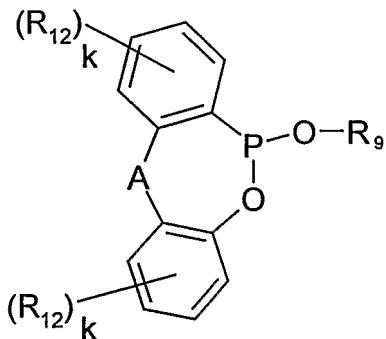
(XVIII)

40



(XIX)

10



(XX)

20

(式中、互いに独立して、

$R_9$  は、 $C_1 - C_{2-4}$  アルキル（直鎖、または分岐しており、適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $C_5 - C_{3-0}$  シクロアルキル、（適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $C_1 - C_{3-0}$  アルキルアリール、 $C_6 - C_{2-4}$  アリールまたはヘテロアリール、 $C_6 - C_{2-4}$  アリールまたはヘテロアリール（基 $C_1 - C_{1-8}$  アルキル（直鎖、または分岐している）、 $C_5 - C_{1-2}$  シクロアルキルまたは $C_1 - C_{1-8}$  アルコキシで置換されている）；

$R_{1-1}$  は、 $C_1 - C_{3-0}$  アルキレンタイプの  $n$  値の基、（直鎖、または分岐しており、適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $C_1 - C_{3-0}$  アルキリデン（適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $C_5 - C_{1-2}$  シクロアルキレンまたは $C_6 - C_{2-4}$  アリーレン（適切な位置で $C_1 - C_{1-8}$  アルキル（直鎖、または分岐している）、 $C_5 - C_{1-2}$  シクロアルキルまたは $C_1 - C_{1-8}$  アルコキシで置換されている）であり；

$R_{1-2}$  は、 $C_1 - C_{2-4}$  アルキル（直鎖、または分岐しており、適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $C_5 - C_{3-0}$  シクロアルキル（適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $C_1 - C_{3-0}$  アルキルアリール、 $C_6 - C_{2-4}$  アリールまたはヘテロアリール、 $C_6 - C_{2-4}$  アリールまたはヘテロアリール（ $C_1 - C_{1-8}$  アルキル（直鎖か分岐している）基で置換されている）、 $C_5 - C_{1-2}$  シクロアルキルまたは $C_1 - C_{1-8}$  アルコキシであり；

A は、直接の結合、 $C_1 - C_{3-0}$  アルキリデン（適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $> NH$ 、 $> NR_8$ 、 $-S-$ 、 $> S(O)$ 、 $> S(O)_2$ 、 $-O-$  であり；

X は、C1、Br、F、OH（結果的に得られる  $> P(O)H$  の互変異性体を含む）であり；

k は 0 から 4 であり；

n は 1 から 4 であり；

m は 0 から 5 であり；

p は 0 または 1 である。）

### 【請求項 9】

前記オルガノホスファイトが次のものからなる群から選択される請求項 1 に記載の化合

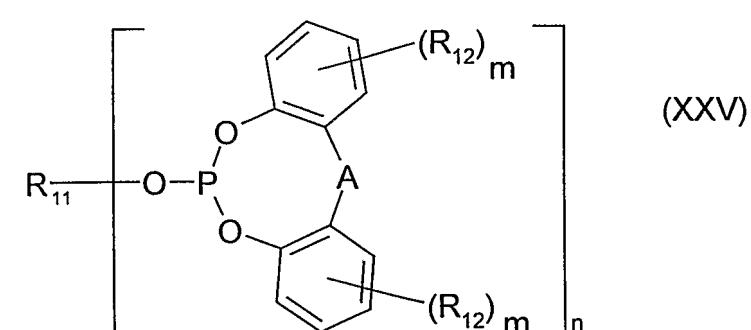
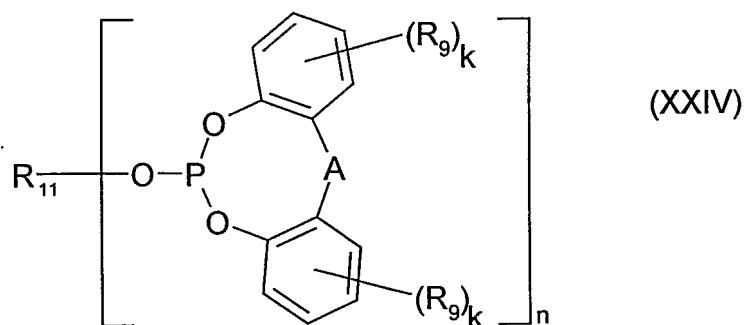
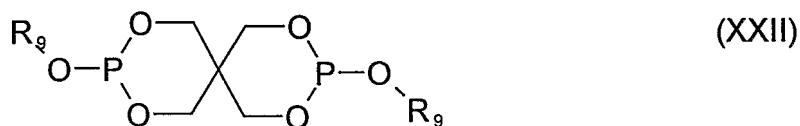
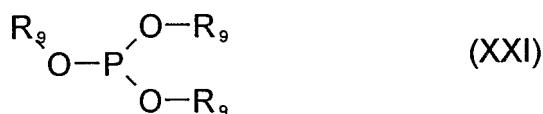
30

40

50

物の混合物：

【化13】



(式中、互いに独立して、

R<sub>9</sub>は、C<sub>1</sub> - C<sub>2-4</sub>アルキル(直鎖または分岐しており、適切な位置にヘテロ原子N、O、P、Sも含む)、C<sub>5</sub> - C<sub>3-0</sub>シクロアルキル、(適切な位置にヘテロ原子N、O、P、Sも含む)、C<sub>1</sub> - C<sub>3-0</sub>アルキルアリール、C<sub>6</sub> - C<sub>2-4</sub>アリールまたはヘテロアリール、C<sub>6</sub> - C<sub>2-4</sub>アリールまたはヘテロアリール(基C<sub>1</sub> - C<sub>1-8</sub>アルキル(直鎖または分岐している)、C<sub>5</sub> - C<sub>1-2</sub>シクロアルキルまたはC<sub>1</sub> - C<sub>1-8</sub>アルコキシで置換されている)であり；

R<sub>10</sub>は、H、C<sub>1</sub> - C<sub>2-4</sub>アルキル(直鎖または分岐しており、適切な位置にヘテロ原子N、O、P、Sも含む)、C<sub>5</sub> - C<sub>3-0</sub>シクロアルキル、(適切な位置にヘテロ原子N、O、P、Sも含む)、C<sub>1</sub> - C<sub>3-0</sub>アルキルアリール、C<sub>6</sub> - C<sub>2-4</sub>アリールまたはヘテロアリール、C<sub>6</sub> - C<sub>2-4</sub>アリールまたはヘテロアリール(基C<sub>1</sub> - C<sub>1-8</sub>アルキル

10

20

30

40

50

(直鎖または分岐している)、C<sub>5</sub> - C<sub>1-2</sub> シクロアルキルまたはC<sub>1</sub> - C<sub>1-8</sub> アルコキシで置換されている)であり;

R<sub>1-1</sub> は、C<sub>1</sub> - C<sub>3-0</sub> アルキレンタイプのn価の基(直鎖または分岐しており、適切な位置にヘテロ原子N、O、P、Sも含む)、C<sub>1</sub> - C<sub>3-0</sub> アルキリデン(適切な位置にヘテロ原子N、O、P、Sも含む)、C<sub>5</sub> - C<sub>1-2</sub> シクロアルキレンまたはC<sub>6</sub> - C<sub>2-4</sub> アリーレン(適切な位置でC<sub>1</sub> - C<sub>1-8</sub> アルキル(直鎖または分岐している)、C<sub>5</sub> - C<sub>1-2</sub> シクロアルキルまたはC<sub>1</sub> - C<sub>1-8</sub> アルコキシで置換されている)であり;

R<sub>1-2</sub> は、C<sub>1</sub> - C<sub>2-4</sub> アルキル(直鎖または分岐しており、適切な位置にヘテロ原子N、O、P、Sも含む)、C<sub>5</sub> - C<sub>3-0</sub> シクロアルキル(適切な位置にヘテロ原子N、O、P、Sも含む)、C<sub>1</sub> - C<sub>3-0</sub> アルキルアリール、C<sub>6</sub> - C<sub>2-4</sub> アリールまたはヘテロアリール、C<sub>6</sub> - C<sub>2-4</sub> アリールまたはヘテロアリール(C<sub>1</sub> - C<sub>1-8</sub> アルキル(直鎖または分岐している)、C<sub>5</sub> - C<sub>1-2</sub> シクロアルキルまたはC<sub>1</sub> - C<sub>1-8</sub> アルコキシ基で置換されている)であり;

Aは、直接の結合、C<sub>1</sub> - C<sub>3-0</sub> アルキリデン(適切な位置にヘテロ原子N、O、P、Sも含む)、>NH、>NR<sub>8</sub>、-S-、>S(O)、>S(O)<sub>2</sub>、-O-であり;

Xは、Cl、Br、F、OH(結果的に得られる>P(O)Hの互変異性体を含む)であり;

kは0から4であり;

nは1から4であり;

mは0から5であり;

pは0または1である。)

10

20

30

40

50

### 【請求項10】

式1の化合物が使用されている請求項1に記載の化合物の混合物。

### 【請求項11】

有機物基体へ請求項1に記載の化合物の混合物を添加するステップを含む有機物基体を安定化する方法。

### 【請求項12】

請求項11に記載のプロセスによって作られる安定化された有機物基体。

### 【請求項13】

請求項1に記載の化合物の混合物を含むエンジニアリングプラスチック。

### 【発明の詳細な説明】

#### 【技術分野】

#### 【0001】

本発明は、ベンジリデン-ビス-マロネート類の化合物を、他の安定剤、特に他の紫外線吸収剤、ヒンダードアミン安定剤、および立体障害性フェノールと組み合わせて使用する場合に得られる、驚くべき相乗効果に関し、その効果は重合体の長期間の貯蔵による光曝露の有害な影響から、様々な重合体の基体を保護する際に現れる。

#### 【背景技術】

#### 【0002】

ベンジリデン-ビス-マロネート類が紫外線吸収剤として働くことは知られている。このファミリーの化合物のほとんどのものは、UVA(320nmから360nm)のより低い波長、およびUVBスペクトル(290nmから320nm)のより高い波長の両方に重なるある限定されたある吸収スペクトル内で吸収を行う。ベンジリデン-ビス-マロネート類(下記の式1を参照)は、低揮発性であるとともに、色相的に中性であること、および高い吸光性を与える点において技術的な要求を満たし、これについては、米国特許3,634,320号に既に開示されている。

#### 【発明の開示】

#### 【発明が解決しようとする課題】

#### 【0003】

驚くべきことに、よく知られている安定剤および式1(以下に示す)の1つ以上の化合

物を含む混合物が、非常に広範囲な重合体基体の物性に対して改良された保護作用を有することが明らかになった。この発見は、最先端技術において重要な技術的な改良となる。

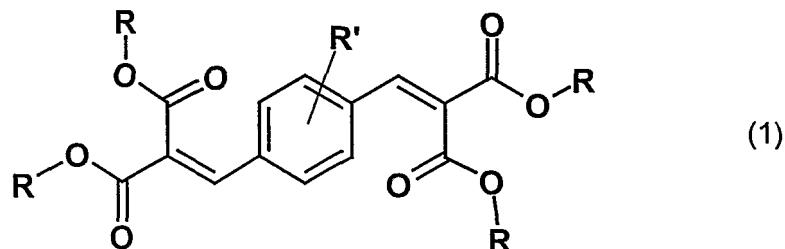
【課題を解決するための手段】

【0004】

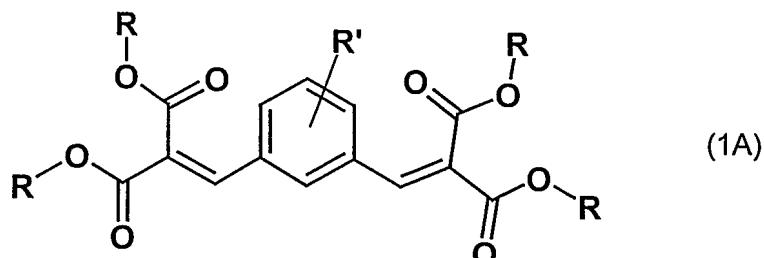
したがって、本発明は、一般式(1)の化合物、

【0005】

【化14】



and (1A)



しかし、好ましくは(1)の化合物であって、

式中、基Rは、独立して、アルキル-、シクロアルキル-、アラルキル-、またはアリール-残基を表わし、その芳香族環は、場合によっては、同一であるかまたは異なっていてもよい1つ以上の基R'によって置換されてもよく、その基R'は、アリール-、飽和または不飽和アルキル-、アラルキル-、またはシクロアルキル-基、ならびにハロゲン、アミノ-、アミノアルキル-、アミノシクロアルキル-、シアノ-、チオシアノ-、またはニトロ基である1つ以上の化合物と、

紫外線吸収剤、ヒンダードアミン安定剤、立体障害性フェノール、オルガノホスファイト、オルガノホスホナイト、オルガノホスフイン、またはこれらの混合物のうちの任意の1つとの混合物に関する。

【0006】

紫外線吸収剤類は、o-ヒドロキシ-ベンゾフェノン、またはo-ヒドロキシフェニル-ベンゾトリアゾール類、またはベンゾエート類、シンナメート類、オキサニリド類、またはサリチレート類である。ヒンダードアミン安定剤は、アミノ-テトラ-アルキル-ピペリジン類のよく知られている誘導体である。立体障害性フェノール類は重合体用に最も広く用いられている安定剤であり、置換基による立体障害、例えば、例えば、2-また6-位における第3級ブチル基は、中間体として生成するフェノキシ遊離基の安定性に影響を及ぼす。これらの化合物は、「プラスチック添加剤ハンドブック」(第5版)、編集、H. Zweifel、Hanser出版、Munich、Germany(2001)およびHanser Gardner出版、Cincinnati、米国(2000)(1.5、1.2章、11から13ページに記載されている。

【0007】

一般的な、かつ非限定的な本発明に有用なフェノール類は、式 および式 で与えられ

10

20

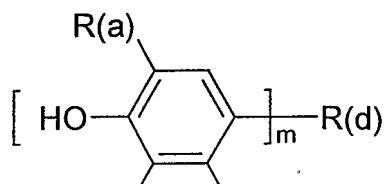
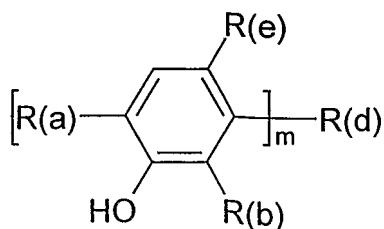
30

40

50

【 0 0 0 8 】

【 化 1 5 】

(式 $\alpha$ )(式 $\beta$ )

10

式中、

m は 1 または 3 であり、

R ( a ) は、C<sub>1</sub> - C<sub>18</sub> アルキル、C<sub>5</sub> - C<sub>12</sub> - シクロアルキル、フェニル、またはC<sub>7</sub> - C<sub>9</sub> フェニル - アルキルであり、R ( b ) は、水素、C<sub>1</sub> - C<sub>18</sub> アルキル、C<sub>5</sub> - C<sub>12</sub> シクロ - アルキル、フェニル、またはC<sub>7</sub> - C<sub>9</sub> フェニル - アルキルであり、

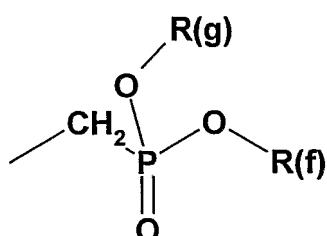
R ( c ) は水素またはメチルであり；

m が 1 である場合、R ( d ) は水素、C<sub>1</sub> - C<sub>4</sub> アルキル、または

20

【 0 0 0 9 】

【 化 1 6 】



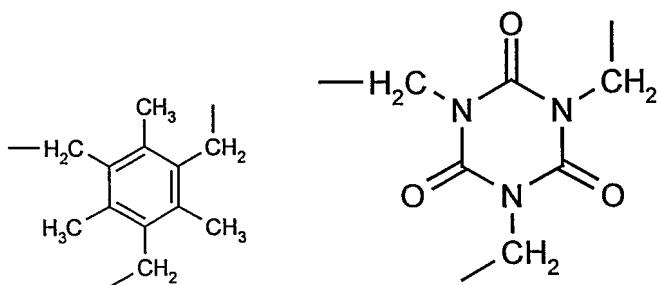
30

であります、

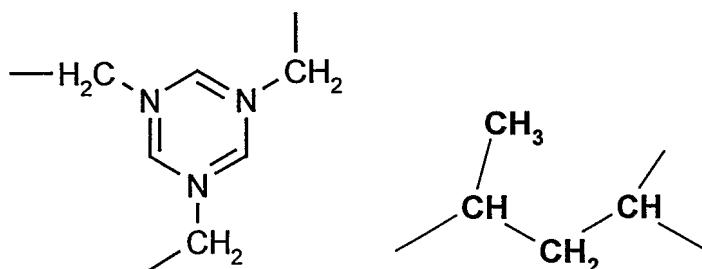
m が 3 である場合、R ( d ) は

【 0 0 1 0 】

【化17】



10



20

であり、

R (e) は水素またはメチルであり、

R (f) は水素、C<sub>1</sub> - C<sub>20</sub> アルキル、置換基を有さない、またはC<sub>1</sub> - C<sub>4</sub> アルキル置換されたフェニルまたはナフチルであり、R (g) は、C<sub>1</sub> - C<sub>20</sub> アルキル、置換基を有さない、またはC<sub>1</sub> - C<sub>4</sub> アルキル置換されたフェニルまたはナフチルである。

【0011】

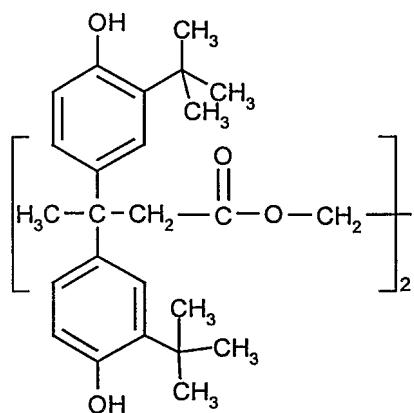
以下の立体障害性フェノール類（化合物I - VI II）は、単独でまたは混合物として使用することができる：

すなわち、

ビス-[3,3-ビス-(4'-ヒドロキシ-3'-tertブチル)-ブタン酸]グリコールエステル（I）、

【0012】

【化18】



40

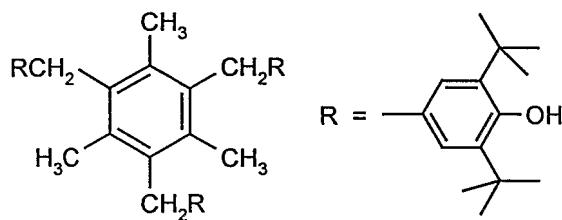
【0013】

4,4',4''-[ (2,4,6-トリメチル-1,3,5-ベンゼントリイル)トリス(メチレン)]-トリス[2,6-ビス(1,1-ジメチルエチル)フェノール]（I）。

【0014】

50

【化19】



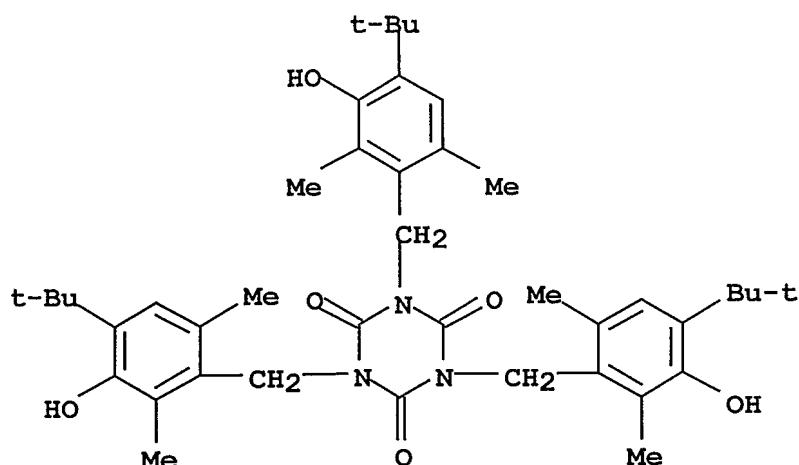
【0015】

10

1, 3, 5 - トリアジン - 2, 4, 6 ( 1 H, 3 H, 5 H ) - トリオン - 1, 3, 5 -  
トリス [ 4 - ( 1, 1 - ジメチルエチル ) - 3 - ヒドロキシ - 2, 6 - ジメチルフェニル  
] メチル ] ( III ) 、

【0016】

【化20】



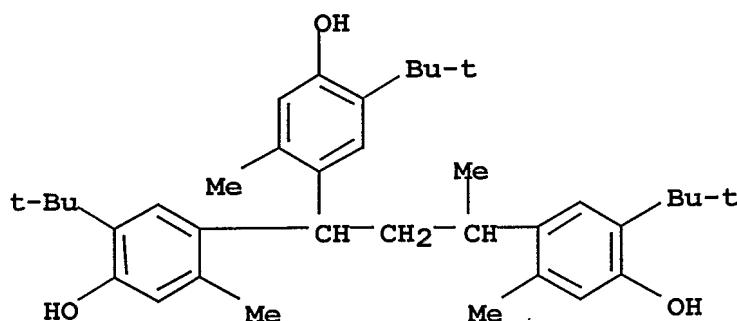
【0017】

30

フェノール、4', 4'' - ( 1 - メチル - 1 - プロパニル - 3 - イリデン ) トリス  
[ 2 - ( 1, 1 - ジメチルエチル ) - 5 - メチル ( IV ) 、

【0018】

【化21】



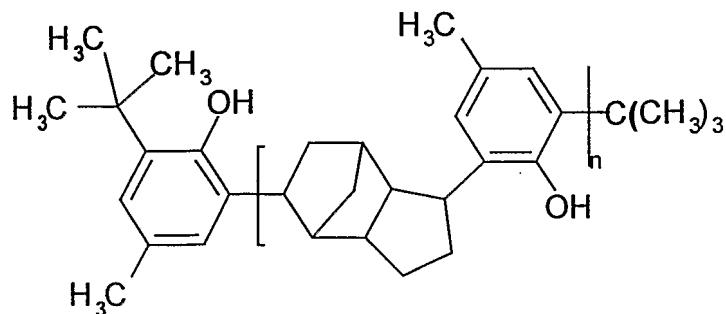
40

【0019】

フェノール、2, 6 - ビス [ [ 3 - ( 1, 1 - ジメチルエチル ) - 2 - ヒドロキシ - 5 - メチルフェニル ] オクタヒドロ - 4, 7 - メタノ - 1 H - インデニル ] - 4 - メチル ( V ) 、

【0020】

【化22】



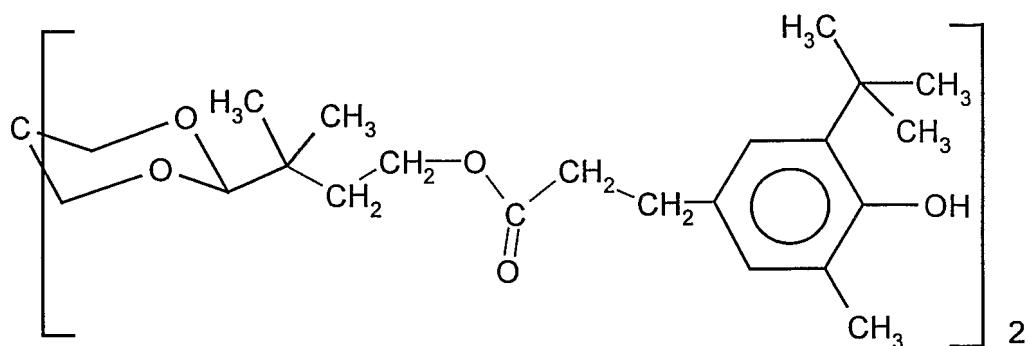
10

【0021】

ベンゼンプロパン酸, 3 - ( 1 , 1 - ジメチルエチル ) - 4 - ヒドロキシ - 5 - メチル - , 2 , 4 , 8 , 10 - テトラオキサ - スピロ [ 5 . 5 ] ウンデカン - 3 ( 9 - ジイル - ビス ( 2 , 2 - ジメチル - 2 , 1 - エタンジイル ) エステル ( V I ) 、

【0022】

【化23】



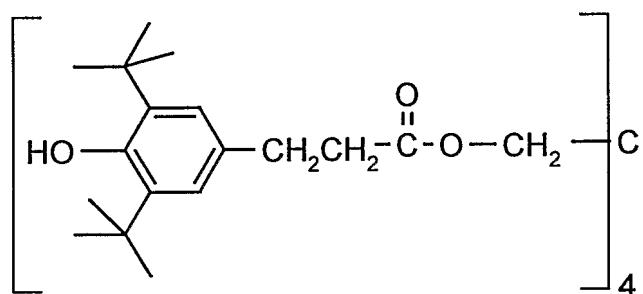
20

【0023】

テトラキスマチレン ( 3 , 5 - ジ - t e r t ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル ) - ヒドロシンナメート ( V I I ) 30

【0024】

【化24】



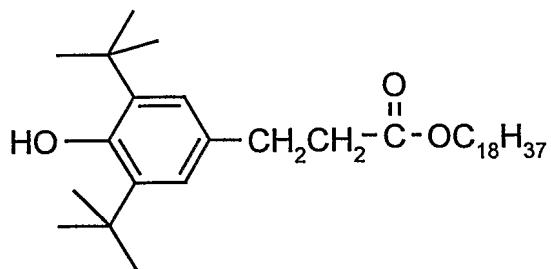
40

【0025】

オクタデシル - 3 , 5 - ビス ( 1 , 1 - ジメチルエチル ) - 4 - ヒドロキシベンゼンプロパノエート ( V I I I ) 、

【0026】

【化25】



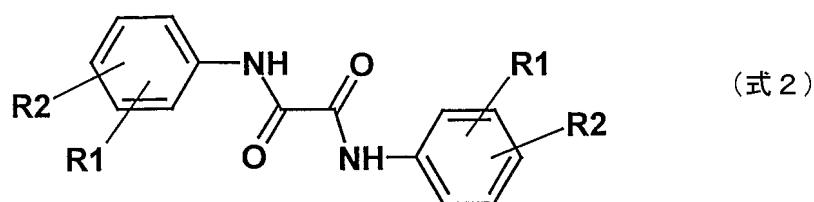
【0027】

10

好ましくは、式2のベンジリデン-ビスマロネート類および式2の化合物の混合物が本発明において用いられる。

【0028】

【化26】



20

式中、R<sub>1</sub>とR<sub>2</sub>は各々独立して、水素または2から12個の炭素原子を有する直鎖および分岐しているアルキル-またはアルコキシ-基とから、ならびに1から4個の酸素原子から選択される同一か異なる置換基である。

【0029】

好ましくは、それぞれ環の上の1つのR基は水素であり、一方はエチルであり、他方はC<sub>1</sub>からC<sub>4</sub>アルコキシ基である。

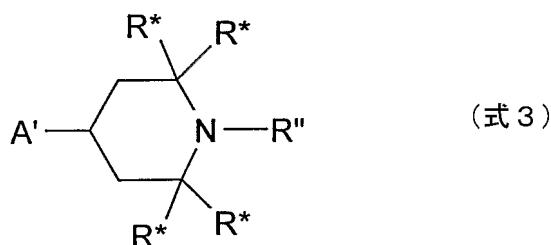
【0030】

30

特に好ましくは、ベンジリデン-ビスマロネート類と、以下に示す式(3)または(4)によって表わされる化合物の反応生成物との混合物が使用される。

【0031】

【化27】



40

式中、A'は、アミンである官能基を含むか、またはA'は、加水分解性基例えば、アミンを生成するアミドを含む、あるいはA'はアミドを生成する基であり、R\*は、メチルか、または他の低級な(C<sub>2</sub>からC<sub>4</sub>アルキル)であり、R''は、水素、1から8個の炭素のアルキルおよび-O-R<sub>3</sub>からなる群から選択され、このR<sub>3</sub>は、水素、メチル、および1から7個の炭素を含むアルキルからなる群から選択され；

【0032】

【化 2 8】



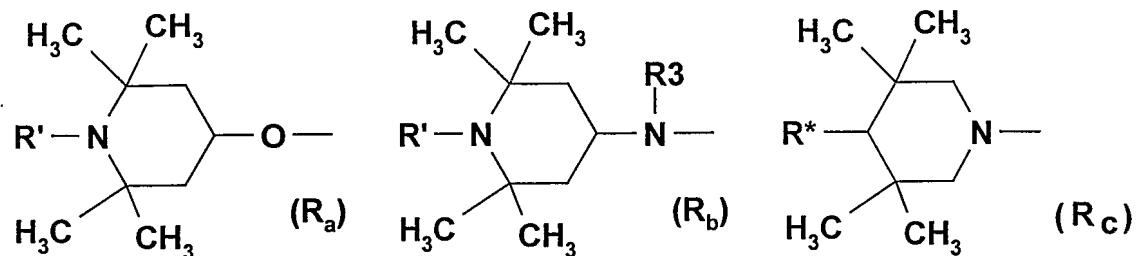
$n = 2, 3, \text{ または } 4$

式中、2量体および3量体を含み、 $R_4$ の少なくとも1つは、-OH、-ORであり、また、 $R_4$ の少なくとも1つは $R_a$ 、 $R_b$ または $R_c$ であり、

〔 0 0 3 3 〕

10

【化 2 9】



式中、 $R^*$  は上に定義されているものであり、 $R'$  は上述の  $A'$  と同じ意味を有する。 $R_5$  は、水素、アルキルまたは 1 から 6 個の炭素原子を有するシクロアルキルからなる群から選択される。

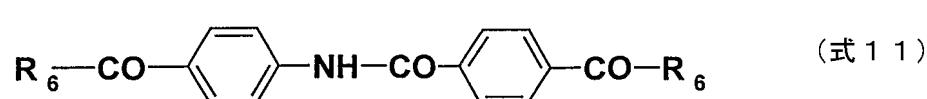
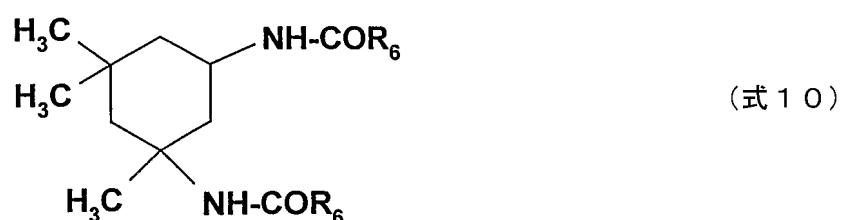
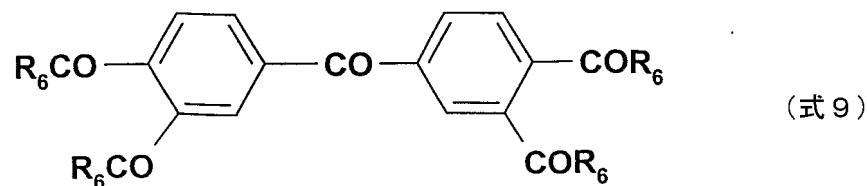
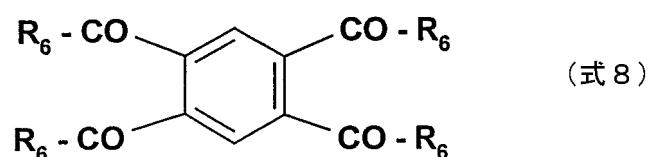
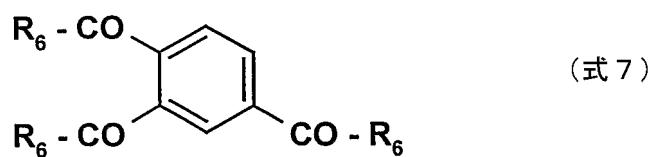
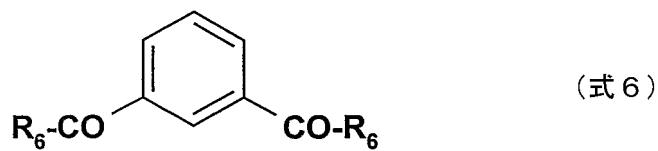
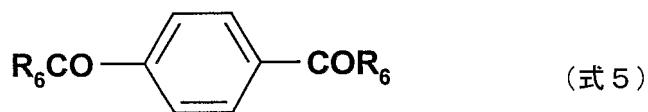
〔 0 0 3 4 〕

20

式 4 の化合物の非限定的な例は、式 (5) から (11) によって表わされる化合物である：

〔 0 0 3 5 〕

【化30】



式5から11の化合物では、R<sub>6</sub>は、式(a')または(a'')のいずれかであることが  
でき、

【0036】

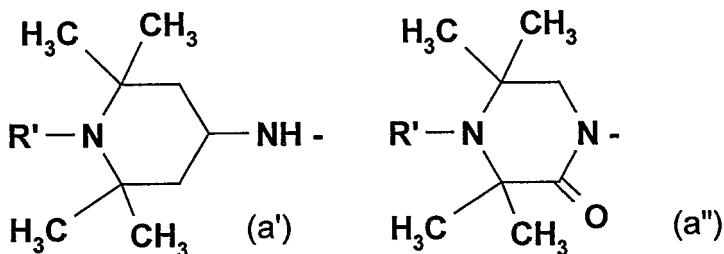
10

20

30

40

### 【化 3 1】



式中、 $a'$  と  $a''$  の中の  $R'$  は、水素、 $C_{1-8}$  アルキル、例えば、 $-CH_3$ 、 $-CH_2$ 、 $CH_3$ 、 $C_{1-4}$  アルコキシ、例えば  $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、または  $CO-C_1-4$  アルキル、例えば、 $O-CO-CH_3$  ( $-O-CO-CH_2CH_3$ ) である。

【 0 0 3 7 】

A' がアミノ官能性である場合、R' は、好ましくは以下の基から選択されるものである、すなわち、- (NH) R<sub>5</sub>、ただし R<sub>5</sub> は、水素または 1 から 8 個の炭素のアルキルであり；カルボキシリ；カルボン酸誘導体；- (CH<sub>2</sub>)<sub>x</sub> (NH) R'<sub>5</sub>、ただし、x は 1 から 6 の整数、また R'<sub>5</sub> は水素、または 1 から 8 個の炭素のアルキルであり；- (CH<sub>2</sub>)<sub>y</sub> COOH、ただし y は 1 から 6 の整数であり；- (CH<sub>2</sub>)<sub>y</sub> COOH の酸誘導体、ただし y は 1 から 6 の整数である。最も好ましくは、R' は -NH<sub>2</sub>、-COOH または -COOH の酸の誘導体である。好ましい -COOH 誘導体はイソフタル酸とテレフタル酸である。

【 0 0 3 8 】

極めて好ましくは、ベンジリデン-ビス-マロネート類と式3または4の化合物の反応生成物との混合物を使用することであり、その場合、式3の化合物は、以下の化合物の1つ以上である、すなわち：

3 - アミノ - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン、4 - アミノ - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン、4 - アミノアルキル - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン、4 - アミノアリール - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン、3 - アミノアルキル - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン、3 - アミノアリール - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン、1 , 2 , 2 , 6 , 6 - ペンタメチル - 4 - アミノピペリジン、1 - シクロヘキシロキシ - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチル - ピペリジン、1 - ヘキシロキシ - 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン、2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - アルキル - カルボン酸、2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - アリールカルボン酸、2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 3 - アルキルカルボン酸、2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチルピペリジン - 3 - アリールカルボン酸。

[ 0 0 3 9 ]

式4の好ましい誘導体はイソフタル酸とテレフタル酸である。本発明による混合物の別的好ましい群は、ベンジリデン-ビス-マロネート類と上述のような立体障害性フェノールとの混合物である。

( 0 0 4 0 )

本発明に使用するに適しているオルガノホスフィンはリスト1に挙げるものであるが、これに限定されるものではない。

[ 0 0 4 1 ]

テロ原子NおよびO、P、Sを含む場合においても)、C<sub>1-3</sub>アルキルアリール、C<sub>6-24</sub>アリール、C<sub>4-24</sub>ヘテロアリール(单一のもしくは複数の(直鎖または分岐している)C<sub>1-18</sub>アルキルによって置換されている)、C<sub>5-12</sub>シクロアルキルまたはC<sub>1-18</sub>アルコキシである。Dは、直鎖または分岐しているC<sub>1-3</sub>アルキレン(ヘテロ原子NおよびO、P、Sを含む場合においても)、C<sub>2-3</sub>アルキリデン(ヘテロ原子NおよびO、P、Sを含む場合においても)、C<sub>5-12</sub>シクロアルキレン(ヘテロ原子NおよびO、P、Sを含む場合においても)、またはC<sub>6-24</sub>アリーレン/C<sub>4-24</sub>ヘテロアリーレン((直鎖または分岐している)C<sub>1-18</sub>アルキルによって置換されている)、C<sub>5-12</sub>シクロアルキルまたはC<sub>1-18</sub>アルコキシ、-O-、-S-であり;

10

Qは1から5であり;Rは3から6であり;ただし、式(XII)の中の基P-R<sub>8</sub>は、このP-原子から来る結合で\*によって示されるPを含んでいる環構造の部分であることができる。

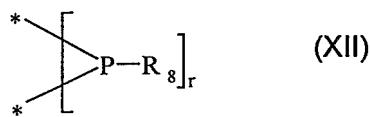
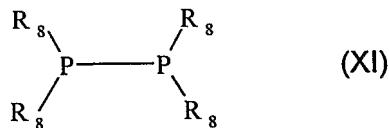
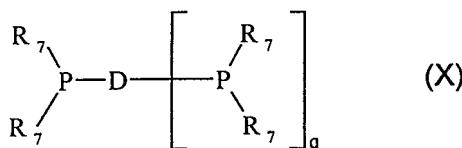
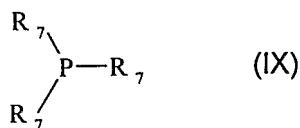
20

【0042】

リスト1

【0043】

【化32】



30

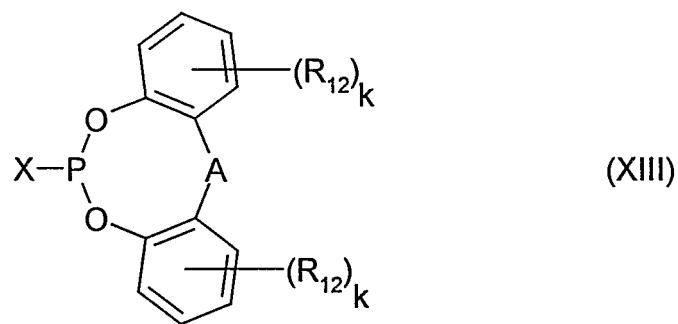
【0044】

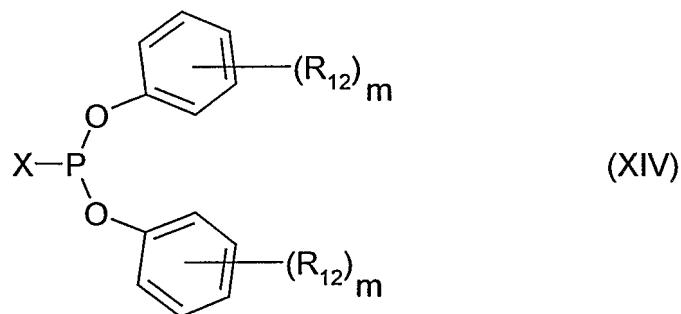
本発明に有用であり得るオルガノホスホナイトの非限定的な例としては、以下のものが挙げられる。すなわち、

40

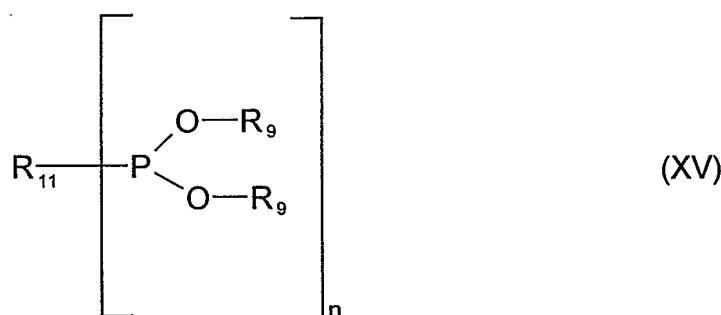
【0045】

【化33】

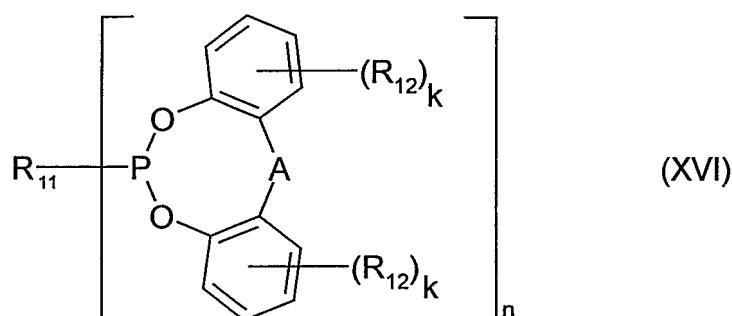




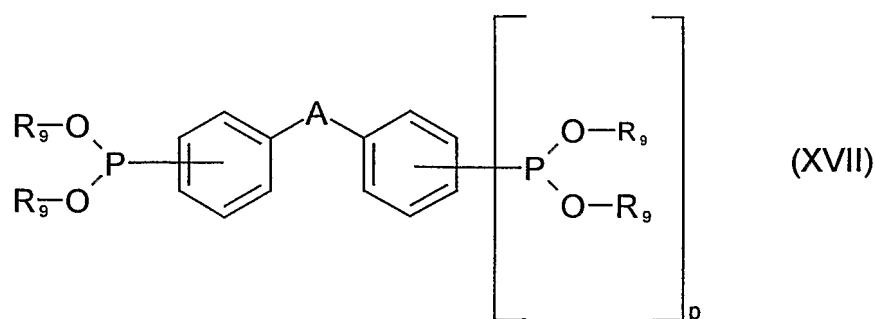
10



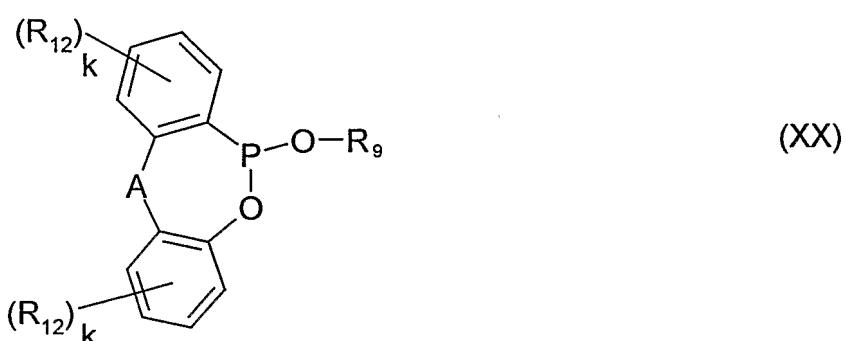
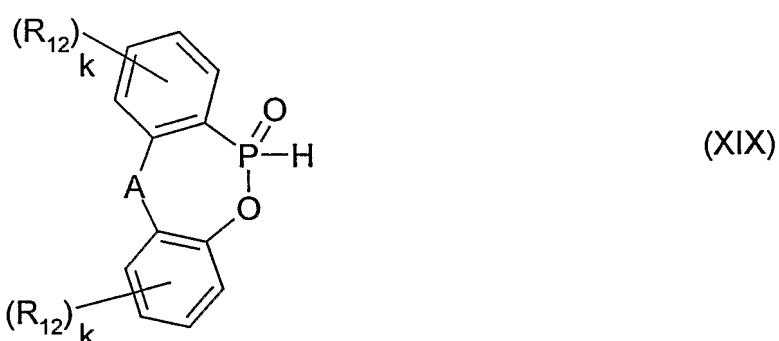
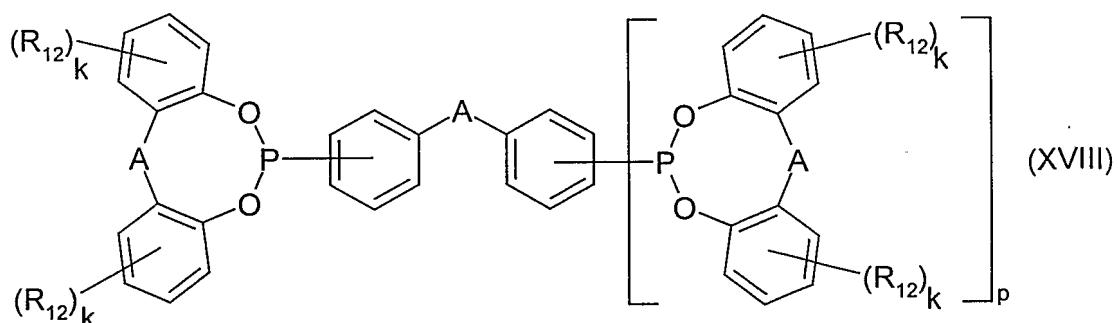
20



30



40



式中、互いに独立して、

$R_9$  は、 $C_1 - C_{2-4}$  アルキル（直鎖または分岐しており、適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $C_5 - C_{3-0}$  シクロアルキル、（適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $C_1 - C_{3-0}$  アルキルアリール、 $C_6 - C_{2-4}$  アリールまたはヘテロアリール、 $C_6 - C_{2-4}$  アリールまたはヘテロアリール（基 $C_1 - C_{1-8}$  アルキル（直鎖または分岐している）、 $C_5 - C_{1-2}$  シクロアルキルまたは $C_1 - C_{1-8}$  アルコキシで置換されている）であり；

$R_{11}$  は、 $C_1 - C_{3-0}$  アルキレンタイプの  $n$  値の基（直鎖または分岐しており、適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $C_1 - C_{3-0}$  アルキリデン（適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $C_5 - C_{1-2}$  シクロアルキレンまたは $C_6 - C_{2-4}$  アリーレン（適切な位置で $C_1 - C_{1-8}$  アルキル（直鎖または分岐している）、 $C_5 - C_{1-2}$  シクロアルキルまたは $C_1 - C_{1-8}$  アルコキシで置換されている）であり；

$R_{12}$  は、 $C_1 - C_{2-4}$  アルキル（直鎖または分岐しており、適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $C_5 - C_{3-0}$  シクロアルキル（適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $C_1 - C_{3-0}$  アルキルアリール、 $C_6 - C_{2-4}$  アリールまたはヘテロアリール、 $C_6 - C_{2-4}$  アリールまたはヘテロアリール（ $C_1 - C_{1-8}$  アルキル（直鎖か分岐している）基で置換されている）、 $C_5 - C_{1-2}$  シクロアルキルまたは $C_1 - C_{1-8}$

40

50

アルコキシ) であり;

A は、直接の結合、C<sub>1</sub> - C<sub>3</sub> 0 アルキリデン（適切な位置にヘテロ原子N、O、P、Sを含む）> N-H > N-Bu<sub>2</sub> - S - > S (O) > S (O) 0 - O - であり：

Xは、C1、Br、F、OH（結果的に得られる $\text{P}(\text{O})\text{H}$ の互変異性体を含む）であり；

$k$  は 0 から 4 であり；

$n$  は 1 から 4 であり；

$m$  は 0 から 5 であり；

$p$  は 0 または 1 である。

【 0 0 4 6 】

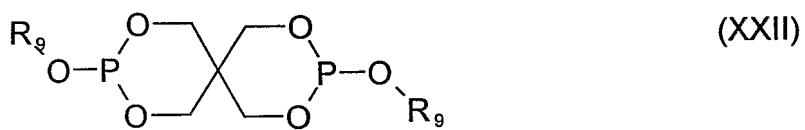
本発明に有用であり得るオルガノホスファイトの非限定的な例としては、以下のものが挙げられる。すなわち、

【 0 0 4 7 】

【化 3 4】



(xxi)



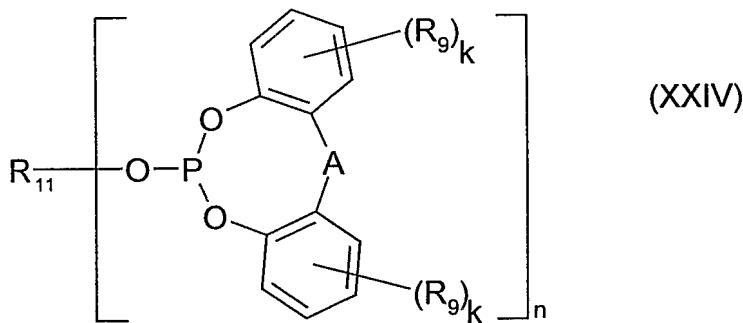
(XXII)



(XXIII)

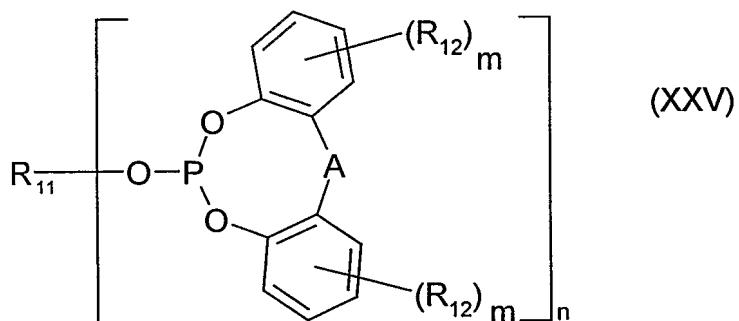
20

30



(XXIV)

10



(XXV)

20

式中、 $R_9$ 、 $R_{11}$ 、 $R_{12}$ 、 $A$ 、 $X$ 、 $k$ 、 $n$ および $p$ は前記定義の通りであり、

$R_{10}$ は、H、 $C_1 - C_{24}$ アルキル（直鎖または分岐しており、適切な位置にヘテロ原子N、O、P、Sも含む）、 $C_5 - C_{30}$ シクロアルキル（適切な位置にヘテロ原子N、O、P、Sも含む）、 $C_1 - C_{30}$ アルキルアリール、 $C_6 - C_{24}$ アリールまたはヘテロアリール、 $C_6 - C_{24}$ アリールまたはヘテロアリール（ $C_1 - C_{18}$ アルキル（直鎖または分岐している）、 $C_5 - C_{12}$ シクロアルキルまたは $C_1 - C_{18}$ -アルコキシの基で置換されている）である。

#### 【0048】

本発明による混合物中の2つの構成成分に使用される比率は、大幅に変動させることができ、使用する化合物および用途条件に依存して、1:99から99:1、好ましくは、1:10から10:1、より好ましくは、1:2から2:1であることができる。

#### 【0049】

使用する好ましい混合物の量は、特定の重合体基体の量に対して、重合体の100の部当たり0.001部から3.000部までである。

#### 【0050】

特に好ましい量は、重合体の100部につき0.01から1.00部である。

#### 【0051】

本発明による混合物は、いわゆる「エンジニアリング」プラスチックと称される重合体基体の安定化に特に適しており、この例として、以下のものが挙げられる。すなわち、ポリエステル類、ポリアミド類、ポリカーボネート類、ポリスチレンおよびスチレンの共重合体、特にポリアクリロニトリルブタジエンスチレン（ABS）、ポリウレタン類および特に熱可塑性ポリウレタン樹脂類（TPU）、ポリアセタール類、ポリアリールスルフィド類およびポリアリールスルホン類、ポリイミド類、特に熱可塑性ポリイミド類、ポリエーテルイミド類、ポリアクリレート類およびポリメタクリレート類（PMMA）、エチレン-アクリルおよびメタクリル共重合体およびそれらの金属塩（「アイオノマー」）、ポリアリールエーテルケトン類およびポリフェニレンエーテルブレンド物、ポリベンズイミダゾール類、ポリシロキサン類、液体の結晶性重合体類、コポリエステルアミド、熱可塑性加硫物、ポリビニルピリジン、セルロースエステル。

#### 【0052】

30

40

50

本発明を使用することによって得られる特に有利な効果は、以下の「エンジニアリング」プラスチックでも得られる。すなわち、ポリエステル類、ポリカーボネート類、ポリアクリロニトリルブタジエンスチレン（A B S）、熱可塑性ポリウレタン樹脂類（T P U）、ポリアセタール類、ポリアリールスルフィド類およびポリアリールスルホン類、熱可塑性ポリイミド樹脂類、ポリアクリレート類およびポリメタクリレート類（P M M A）、エチレン-アクリルおよびメタクリル共重合体およびそれらの金属塩類（「アイオノマー」）、ポリアリールエーテルケトン類、ポリフェニレンエーテルブレンド物、ポリベンズイミダゾール類、ポリシロキサン類、液体結晶性重合体、コポリエステルアミド類、熱可塑性加硫物、ポリビニルピリジン類、セルロースエステル類。

## 【0053】

10

しかしながら、本発明による混合物はいかなる高分子材料をも安定させるために使用してもよく、これらの非限定的な例としては以下のものが挙げられる：

1. モノおよびオレフィン重合体類、例えば、ポリプロピレン、ポリイソブチレン、ポリブト-1-エン、ポリ-4-メチルペント-1-エン、ポリイソブレンまたはポリブタジエンおよびシクロペンテンまたはノルボルネン等のシクロオレフィンの重合体；さらにポリエチレン（場合によっては架橋されてもよい）、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）、鎖状低密度ポリエチレン（L L D P E）、分岐している低密度ポリエチレン（B L D P E）。ポリオレフィン、すなわちモノオレフィンの重合体、特に、ポリエチレンとポリプロピレンは特に下記方法によって様々なプロセスによって調製することができる：

a) フリーラジカル法（通常高圧と高温下で）。

## 【0054】

20

b) 触媒を使用する方法。該触媒は、通常I V b、V b、V I bまたはV I I I 族の1つ以上の金属を含む。これらの金属は、通常1つ以上の、酸化物、ハロゲン化物、アルコキシド類、エステル類、エーテル類、アミン類、アルキル、アルケニル類および/またはアリール類等のリガンドを有し、これらは、または位のいずれかに配位しているものとする。これらの金属錯体はフリーであっても、または担持体に固定されていてもよく、これらの例としては、活性化塩化マグネシウム、塩化チタン、酸化アルミニウムまたはシリコン酸化物がある。これらの触媒は、重合媒体に可溶でも不溶でもあることができる。この触媒は、重合中等に活性であることができ、または他の活性体を使用することができ、例えば金属アルキル類、金属水素化物類、金属ハロゲン化アルキル類、金属アルキル酸化物類または金属アルキルオキサン類であり、この金属は、I a、I I aおよび/またはI I I a族の元素である金属である。この活性体は、さらにエステル、エーテル、アミンまたはシリルエーテルの基と共に変性されていることができる。これらの触媒系は、Phillips、Standard Oil Indiana、Ziegler（Natta）、TNZ（DuPont）、メタロセンまたはシングルサイト触媒（SSC）と通常称されている。

30

## 【0055】

2. 上記1で述べた重合体の混合物、例えば、ポリイソブチレンとポリプロピレン、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）、および異なるタイプのポリエチレン（例えばL D P E / H D P E）の混合物。

40

## 【0056】

3. モノまたはオレフィン類の互いとの、または他のビニルモノマーとの共重合体、例えばエチレン-プロピレン共重合体、鎖状低密度ポリエチレン（L L D P E）およびこれらの混合物と以下のものとの共重合体、すなわち、低密度ポリエチレン（L D P E）およびプロピレン-ブト-1-エン共重合体類、プロピレン-イソブチレン共重合体類、エチレン-ブト-1-エン共重合体類、エチレン-ヘキセン共重合体類、エチレン-メチルペンテン共重合体類、エチレン-ヘプテン共重合体類、エチレン-オクテン共重合体類、プロピレン-ブタジエン共重合体類、イソブチレンおよびイソブレン共重合体類、エチレン-アルキルアクリレート共重合体類、エチレンアルキルメタクリレート共重合体類、エチ

50

レン-酢酸ビニル共重合体類、およびこれらの共重合体と一酸化炭素またはエチレン-アクリル酸共重合体、およびそれらの塩類(アイオノマー)、ならびに、エチレンとプロピレン、およびヘキサジエン、ジシクロペニタジエンまたはエチリデンノルボルネンのようなジエンとのターポリマー類；さらに、この種の互いの、および1で述べた重合体との共重合体の混合物、例えば1で述べた重合体としては、以下のものがあり、すなわち、ポリプロピレン/エチレン-プロピレン共重合体類、LDPE-エチレン-酢酸ビニル共重合体類、LDPE/エチレン-アクリル酸共重合体類、LLDPE/エチレン-酢酸ビニル共重合体類、LLDPE/エチレン-アクリル酸共重合体類および、交互またはランダムポリアルキレン-一酸化炭素共重合体類、ポリアミド類等の他の重合体とこれらの混合物である。

10

## 【0057】

4. 水素化変性体(例えば粘着付与剤樹脂)ポリアルキレンとデンプンとの混合物を含む炭化水素樹脂(例えばC<sub>5</sub>-C<sub>9</sub>)。

## 【0058】

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)。

## 【0059】

6. スチレンまたは-メチルスチレンの以下のものとの共重合体類、すなわち、ジエンまたはアクリルの誘導体類、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-アルキルメタクリレート、スチレン-ブタジエン-アルキルアクリレート、スチレン-ブタジエン-アルキルメタクリレート、スチレン-無水マレイン酸、スチレン-アクリロニトリルメタクリレート；スチレン共重合体と別の重合体の高耐衝撃性混合物、例えば、ポリアクリレート、ジエン重合体、またはエチレン-プロピレン-ジエンターポリマー；スチレンのブロック共重合体、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、またはスチレン-エチレン/プロピレン-スチレン。

20

## 【0060】

7. スチレンまたは-メチルスチレンのグラフト共重合体、例えば、ポリブタジエンに対してスチレン、ポリブタジエン-スチレン、ポリブタジエン-アクリロニトリル共重合体に対してスチレン、ポリブタジエンに対してスチレンおよびアクリロニトリル(またはメタクリロニトリル)；ポリブタジエンに対してスチレン、アクリロニトリルおよびメタクリル酸メチル；ポリブタジエンに対してスチレンおよび無水マレイン酸；ポリブタジエンに対してスチレン、アクリロニトリル、および無水マレイン酸、またはマレインイミド；ポリブタジエンに対してスチレンおよびマレインイミド；ポリブタジエンに対してスチレンおよびアルキルアクリレート、またはアルキルメタクリレート、エチレンプロピレンジエンターポリマーに対してスチレンおよびアクリロニトリル。ポリアルキルアクリレート、またはポリアルキルメタクリレートに対してスチレンおよびアクリロニトリル、アクリレートブタジエン共重合体に対してスチレンおよびアクリロニトリルのグラフト共重合体、ならびに、例えば、ABS、MBS、ASA、またはAES重合体として知られている6で述べた共重合体とこれらの混合物。

30

## 【0061】

8. ポリクロロブレン、塩素化ゴム、塩素化またはスルホ塩素化ポリエチレン等のハロゲン含有重合体類、エチレンと塩素化エチレン、エピクロロヒドリンホモおよび共重合体との共重合体類、特にハロゲン含有ビニル化合物の重合体類、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；ならびに、これらの塩化ビニル-塩化ビニリデン、塩化ビニル-酢酸ビニル、または塩化ビニリデン-酢酸ビニル等共重合体類。

40

## 【0062】

9. 不飽和酸およびこれらの誘導体に由来する重合体類、例えば、ポリアクリレートおよびポリメタクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリルアミドおよび耐衝撃性ブチルアクリレート変性ポリアクリロニトリル。

50

## 【0063】

10.9で述べたモノマーの互い同士のまたは以下に述べる他の不飽和モノマーとの共重合体類、すなわち、例えば、アクリロニトリル-ブタジエン共重合体類、アクリロニトリル-アルキルアクリレート共重合体類、アクリロニトリル-アルコキシルアルキルアクリレート共重合体類、アクリロニトリル-ビニルハロゲン化物共重合体類、またはアクリロニトリル-アルキルメタクリレート-ブタジエンターポリマー。

## 【0064】

11.不飽和アルコールとアミン類に由来する重合体類、またはアシル誘導体、またはこれらのアセタール類、例えば、ポリビニルアルコール、ポリ酢酸ビニル、ポリビニルステアレート、ポリビニルベンゾエート、ポリビニルマレエート、ポリビニルブチラール、ポリアリルフタレート、またはポリアリルメラミン；ならびに、1で述べたオレフィンとの共重合体類。

## 【0065】

12.環状エーテルのホモポリマー類および共重合体類、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、またはこれらのビスグリシルエーテルとの共重合体。

## 【0066】

13.ポリオキシメチレン、およびエチレンオキシド等のコモノマーを含むポリオキシメチレン類等のポリアセタール類；熱可塑性ポリウレタン樹脂、アクリレートまたはMB Sで変性したポリアセタール類。

## 【0067】

14.ポリフェニレンオキシド類およびポリフェニレンスルフィド類、およびスチレン重合体またはポリアミド類とのこれらの混合物。

## 【0068】

15.一方の末端に水酸基末端を有し、他の末端に脂肪族芳香族ポリイソシアネートを有するポリエーテル、ポリエステルおよびポリブタジエンから誘導されたポリウレタン類、ならびにこれらのブリカーサ類。

## 【0069】

16.ジアミン類およびジカルボン酸類および/またはアミノのカルボン酸類、または対応するラクタム類から誘導されたポリアミド類およびコポリアミド類、例えば、ナイロン4、ナイロン6、ナイロン6/6、6/10、6/9、6/12、4/6、12/12、ナイロン11、ナイロン12、m-キシレン、ジアミンおよびアジピン酸を開始化合物とする芳香族ポリアミド類；ヘキサメチレンジアミンおよびイソフタル/および/またはテレフタル酸から調製され、改質剤としてのエラストマーを添加したまたはしていないポリアミド類、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またはポリ-m-フェニレンイソフタルアミド、前述のポリアミドとポリオレフィン、オレフィン共重合体類、アイオノマー類、化学結合された、またはグラフト結合したエラストマーとのブロック共重合体類；またはポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコールまたはポリテトラメチレングリコール等のポリエーテル類とのブロック共重合体。加えて、ポリアミド類またはE P D MまたはA B Sで変性されたコポリアミド類、および(「R I Mポリアミドシステム」)処理中に縮合したポリアミド類。

## 【0070】

17.ポリ尿素類、ポリイミド類、ポリアミドイミド類およびポリベンズイミダゾール類。

## 【0071】

18.ジカルボン酸類、ジアルコール類からおよび/またはヒドロキシカルボン酸類または対応するラクトン類から誘導されたポリエステル類、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-ジメチルシクロヘキサンテレフタレート、ポリヒドロキシベンゾエート、ならびに、水酸基末端のポリエーテルから誘導されたブロックポリエーテルエステル類；さらにポリカーボネートまたはM B Sで変性した

10

20

30

40

50

ポリエステル類。

【0072】

19. ポリカーボネート類およびポリエステル炭酸エステル類。

【0073】

20. ポリスルホン類、ポリエーテルスルホン類およびポリエーテルケトン類。

【0074】

21. 一方の末端にアルデヒド、別の末端にフェノール、尿素、またはメラミンを有するものから誘導される橋架重合体類、例えば、フェノール・ホルムアルデヒド樹脂類、ユリア・ホルムアルデヒド樹脂類、およびメラミン・ホルムアルデヒド樹脂類。

【0075】

22. 乾性および非乾性アルキド樹脂類。

【0076】

23. 飽和および不飽和のジカルボン酸のコポリエステルと、架橋剤としての多価アルコール類およびビニル化合物、およびまたそのハロゲン含有低燃焼性変性体とから誘導される不飽和ポリエステル樹脂類。

【0077】

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

【0078】

25. メラミン樹脂類、尿素樹脂類、ポリイソシアナール類、またはエポキシ樹脂類と架橋しているアルキド樹脂、ポリエステル樹脂、およびアクリレート樹脂。

【0079】

26. ポリエポキシド類から、例えば、ビス・グリシジルエーテル脂環式のジエポキシド類から誘導された架橋エポキシ樹脂類。

【0080】

27. 天然高分子類、例えば、ポリマー同族体法によって化学的に変性されたセルロース、天然ゴム、ゼラチンおよびこれらの誘導体、例えばセルロースアセテート、セルロースプロピオナート、およびセルロースブチレート、またはメチルセルロース等のセルロースエーテル；ならびにロジン類および誘導体。

【0081】

28. 前述の重合体の混合物（ポリブレンド）、例えば、PP/EPDM、ポリアミド/EPDMまたはABS、PVC/EVA、PVC/ABS、PVC/MBS、PC/ABS、PBTP/ABS、PC/ASA、PC/PBT、PVC/CPE、PVC/アクリレート類、POM/加熱可塑性PUR、PC/加熱可塑性PUR、POM/アクリレート、POM/MBS、PPO/HIPS、PPO/PA 6.6 および共重合体類、PA/HDPE、PA/PP、PA/PPO。

【0082】

29. 天然もしくは合成の有機物であって、純粋なモノマーの化合物またはその混合物を構成するもの、例えば、鉱物油類、動物または植物性油脂類、油脂類すなわちワックス類、また、合成エステル（例えばフタレート類、アジペート類、ホスフェート類、またはトリメリテート類）に基づく油類、ワックス類および脂肪類、ならびに合成エステル類の重量で任意の好ましい割合での鉱物油との例えば、紡糸油剤として使用するブレンド物またそれの水性エマルジョン。

【0083】

30. 天然または合成ゴムの水性エマルジョン類、天然ゴムラテックス、またはカルボキシル化スチレン・ブタジエン共重合体のラテックス類。

【0084】

例えばこれらの重合体では、以下に述べるさらなる添加剤を存在させてもよい、すなわち：

1. 酸化防止剤

10

20

30

40

50

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-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-イソブチルフェノール、2,6-ジシクロペニチル-4-メチルフェノール、24a-メチルシクロヘキシリル)-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-トリシクロヘキシリルフェノール、2,6-ジ-tert-ブチル-4-メトキシメチルフェノール、2,6-ジノニル-4-メチルフェノール、2,4-ジメチル-6-(1'-メチルウンデカ-1'-イル)フェノール、2,4-ジメチル-6-(1'-メチルヘプタデシル)フェノール、2,4-ジメチル-6-(1'-メチルトリデカ-1'-イル)フェノールおよびこれらの混合物。  
10

## 【0085】

1.2 アルキルチオメチルフェノール、例えば、2,4-ジオクチルチオメチル-6-tert-ブチル-フェノール、2,4-ジオクチルチオメチル-6-メチルフェノール、2,4-ジオクチルチオメチル-6-エチルフェノール、2,6-ジ-ドデシル-チオメチル-4-ノニルフェノール。

## 【0086】

1.3 ヒドロキノンおよび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、2,6-ジ-tert-ブチルヒドロキノン、2,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-アニソール、3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシアニソール、3,5-ジ-1er-ブチル-4-ヒドロキシフェニルステアレート、ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)アジペート。  
20

## 【0087】

1.4 トコフェロール、例えば、-トコフェロール、-トコフェロール、-トコフェロール、-トコフェロールおよびこれらの混合物(ビタミンE)。

## 【0088】

1.5 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(3,6-ジ-sec-アミルフェノール)、4,4'-ビス(2,6-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)ジスルフィック。  
30

## 【0089】

1.6 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-(1-メチル-シクロヘキシリル)フェノール]、2,2'-メチレンビス(4-メチル-6-シクロ-ヘキシリルフェノール)、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(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)、2,2'-エチリデンビス(6-tert-ブチル-4-イソブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス[6-(1-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-(1-ジメチルベンジル)-4-ノニルフェノール]、4,4'-メチレンビス(2,6-ジ-tert-ブチルフェノール)、4,4'-メチレンビス(6-tert-ブチル-1-2-メチルフェノール)、1,1-ビス(5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)ブタン、2,6-ビス(3-tert-ブチル-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-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)ブタン、1,1-ビス(5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)50

t - プチル - 4 - ヒドロキシ - 2 - メチルフェニル) 3 - n - ドデシル - メルカブトブタン、エチレングリコールビス[3,3-ビス'(3'-tert-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)ブチレート]、ビス(3-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)ジシクロペンタジエン、ビス[2-(3'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-メチルベンジル)-6-tert-ブチル-4-メチルフェニル]テレフタレート、1,1-ビス(3,5-ジ-メチル-2-ヒドロキシフェニル)ブタン、2,2-ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2,2-ビス(5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)-4-n-ドデシルメルカブトブタン、1,1,5,5-テトラ-(5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)ペンタン。

10

## 【0090】

1.7 O-、N-およびS-ベンジル化合物、例えば、3,5,3',5'-テトラ-tert-ブチル-4,4'-ジヒドロキシジベンジルエーテル、オクタデシル4-ヒドロキシ-3.5-ジメチルベンジルメルカブトアセテート、トリス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)アミン、ビス(4-tert-ブチル-3-ヒドロキシ-2,6-ジ-メチル-ベンジル)ジチオテレフタレート、ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)スルフィド、イソオクチル3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジルメルカブトアセテート。

## 【0091】

1.8 ヒドロキシベンジル化マロネート、例えば、ジオクタデシル2,2-ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-2-ヒドロキシベンジル)マロネート、ジオクタデシル2-(3-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチル-ベンジル)-マロネート、ジドデシルメルカブトエチル-2,2-ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)マロネート、ジ[4-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)フェニル]、2,2-ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)マロネート。

## 【0092】

1.9 芳香族ヒドロキシベンジル化合物、例えば、1,3,5-トリス(3,5-ジ-tert-ブチル)-4-ヒドロキシベンジル)-2,4,6-トリメチルベンゼン、1,4-ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-2,3,5,6-テトラメチルベンゾット、2,4,6-トリス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)フェノール。

## 【0093】

1.10 トリアジン化合物、例えば、2,4-ビス-オクチルメルカブト-6-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシアニリノ)-1,3,5-トリアジン、2-オクチルメルカブト-4,6-ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシアニリノ)-1,3,5-トリアジン、2-オクチル-メルカブト-4,6-ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェノキシ)-1,3,5-トリアジン、2,4,6-トリス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェノキシ)-1,2,3-トリアジン、1,3,5-トリス-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)イソシアヌレート、1,3,5-トリス(4-tert-ブチル-3-ヒドロキシ-2,6-ジメチルベンジル)イソシアヌレート、2,4,6-トリス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニルエチル)-1,3,5-トリアジン、1,3,5-トリス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニルプロピオニル)ヘキサヒドロ-1,3,5-トリアジン、1,3,5-トリス(3,5-ジシクロヘキシル-4-ヒドロキシベンジル)イソシアヌレート。

## 【0094】

1.11 ベンジルホスホネート、例えば、ジメチル2,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホネート、ジエチル3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジルホスホネート、ジオクタデシル3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒ

50

ドロキシベンジルホスホネート、ジオクタデシル 5 - tert - プチル - 4 - ヒドロキシ - 3 - メチル - ベンジルホスホネート、3, 5 - ジ - tert - プチル - 4 - ヒドロキシベンジルホスホン酸のモノエチルエステルの Ca 塩。

## 【0095】

1. 12 アシルアミノフェノール、4 - ヒドロキシラウラミド、4 - ヒドロキシステアラニリド、オクチルN - (3, 5 - ジ - tert - プチル - 4 - ヒドロキシフェニル)カルバメート。

## 【0096】

1. 13 - (3, 5 - ジ - tert - プチル - 4 - ヒドロキシフェニル) プロピオン酸と1価または多価アルコール、例えば、メタノール、エタノール、オクタノール、オクタデカノール、1, 6 - ヘキサンジオール、1, 9 - ノナンジオール、エチレングリコール、1, 2 - プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ペタエリスリトール、トリス(ヒドロキシエチル)イソシアヌレート、N, N' - ビス(ヒドロキシエチル)オキサルアミド、3 - チアウンデカノール、3 - チアペンタデカノール、トリメチル - ヘキサンジオール、トリメチロールプロパン、4 - ヒドロキシメチル - 1 - ホスファ - 2, 6, 7 - トリオキサビシクロ - [2. 2. 2] オクタンとのエステル。

## 【0097】

1. 14 - (5 - tert - プチル - 4 - ヒドロキシ - 3 - メチルフェニル) プロピオン酸と1価または多価アルコール、例えば、メタノール、エタノール、オクタノール、オクタデカノール、1, 6 - ヘキサンジオール、1, 9 - ノナンジオール、エチレングリコール、1, 2 - プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ペタエリスリトール、トリス(ヒドロキシエチル)イソシアヌレート、N, N' - ビス(ヒドロキシエチル)オキサルアミド、3 - チアウンデカノール、3 - チアペンタデカノール、トリメチルヘキサンジオール、トリメチロールプロパン、4 - ヒドロキシメチル - 1 - ホスファ - 2, 6, 7 - トリオキサビシクロ - [2. 2. 2] オクタンとのエステル。

## 【0098】

1. 15 - (3, 5 - ジシクロヘキシル - 4 - ヒドロキシ - フェニル) プロピオン酸と1価または多価アルコール、例えば、メタノール、エタノール、オクタノール、オクタデカノール、1, 6 - ヘキサンジオール、1, 9 - ノナンジオール、エチレングリコール、1, 2 - プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ペタエリスリトール、トリス(ヒドロキシエチル)イソシアヌレート、N, N' - ビス(ヒドロキシエチル)オキサルアミド、3 - チアウンデカノール、3 - チアペンタデカノール、トリメチル - ヘキサンジオール、トリメチロールプロパン、4 - ヒドロキシメチル - 1 - ホスファ - 2, 6, 7 - トリオキサビシクロ - [2. 2. 2] オクタンとのエステル。

## 【0099】

1. 16 3, 5 - ジ - tert - プチル - 4 - ヒドロキシフェニル酢酸と1価または多価アルコール、例えば、メタノール、エタノール、オクタノール、オクタデカノール、1, 6 - ヘキサンジオール、1, 9 - ノナンジオール、エチレングリコール、1, 2 - プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ペタエリスリトール、トリス(ヒドロキシエチル)イソシアヌレート、N, N - ビス - (ヒドロキシエチル)オキサルアミド、3 - チア - ウンデカノール、3 - チアペンタデカノール、トリメチル - ヘキサンジオール、トリメチロールプロパン、4 - ヒドロキシメチル - 1 - ホスファ - 2, 6, 7 - トリオキサビシクロ - [2. 2. 2] オクタンとのエステル。

## 【0100】

1. 17 - (3, 5 - ジ - tert - プチル - 4 - ヒドロキシ - フェニル) プロピオン酸、例えば、N, N' - ビス - (3, 5 - ジ - tert - プチル - 4 - ヒドロキシ

10

20

30

40

50

エニルプロピオニル)ヘキサメチレンジアミン、N,N'-ビス(3,5-ジ-tert-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'-ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-フェニルプロピオニル)ヒドランジンのアミド。

## 【0101】

## 2. UV吸収剤および光安定剤

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、2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)-ベンゾトリアゾール、2-(3',5'-ジ-tert-ブチル-2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール。2-(5'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-5'-(1,1.3,3-テトラメチル-ブチル)フェニル)ベンゾ-トリアゾール、2-(3',5'-ジ-tert-ブチル-2'-ヒドロキシフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(3-tert-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(3'-sec-ブチル-5'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシ-フェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-4'-オクトキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(3',5'-ジ-tert-アミル-2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(3',5'-ビス(2,-ジメチルベンジル-2'-ヒドロキシフェニル)-ベンゾトリアゾール、2-(3'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-オクチルオキシカルボニルエチル)-フェニル)-5-クロロベンゾトリアゾールと、2-(3'-tert-ブチル-5'-[2-(2-エチルヘキシルオキシ)カルボニルエチル]-2'-ヒドロキシフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾールと、2-(3'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-メトキシカルボニルエチル)フェニル)-5-クロロベンゾトリアゾールと、2-(3'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-メトキシカルボニル-エチル)フェニル)ベンゾトリアゾールと、2-(3'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-オクチルオキシカルボニルエチル)-フェニル)ベンゾトリアゾールと、2-(3'-tert-ブチル-5'-[2-(2-エチルヘキシルオキシ)カルボニルエチル]-2'-ヒドロキシ-フェニル)ベンゾトリアゾールと、2-(3'-ドデシル-2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾールと、2-(3'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-イソオクチルオキシカルボニルエチル)フェニル-ベンゾトリアゾールとの混合物、2,2'-メチレン-ビス[4(1,1,3,3-テトラメチルブチル)-6-ベンゾトリアゾール-2-イルフェノール]；2-[3-tert-ブチル-5'-(2-メトキシカルボニルエチル)-2'-ヒドロキシ-フェニル]ベンゾトリアゾールとポリエチレングリコール300とのエステル交換生成物、[R-CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-COO(CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>]<sub>2</sub>(R=3'-tert-ブチル-4'-ヒドロキシ-5'-2H-ベンゾトリアゾール-2-イル-フェニル)。

## 【0102】

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'-トリヒドロキシおよび2'-ヒドロキシ-4,4'-ジメトキシ誘導体。

## 【0103】

2.3 置換または非置換安息香酸のエステル、例えば、サリチル酸4-tert-ブチル-フェニル、サリチル酸フェニル、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-tert-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、2,4-ジ-tert-ブチルフェニル3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート、ヘキサデシル3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート、オクタデシル3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート、2-メチル-4,6-ジ-tert-ブチル-フェニル3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-ベンゾエート。

10

20

30

40

50

## 【0104】

2.4 アクリレート、例えば、エチル - シアノ - , - ジフェニルアクリレートまたはイソオクチル - シアノ - , - ジフェニルアクリレート、メチル - カルボメトキシシンナメート、メチル - シアノ - - メチル - p - メトキシシンナメートまたはブチル - シアノ - - メチル - p - メトキシシンナメート、メチル - カルボ - メトキシ - p - メトキシシンナメートおよびN - ( - カルボメトキシ - - シアノビニル) - 2 - メチルインドリン。

## 【0105】

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、例えば、1:1または1:2錯体、  
n - ブチルアミン、トリエタノールアミンまたはN - シクロヘキシリジエタノールアミンなどの追加の配位子ありまたはなし、ニッケルジブチルジチオカルバメート、メチルまたはエチルエステルなどのモノアルキルエステルの、4 - ヒドロキシ - 3,5 - ジ - tert - ブチルベンジルホスホン酸のニッケル塩、ケトキシムの、例えば、2 - ヒドロキシ - 4 - メチルフェニルウンデカイルケトキシムのニッケル錯体、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、追加の配位子ありまたはなし。  
10

## 【0106】

2.6 立体ヒンダードアミン、例えば、ビス(2,2,6,6 - テトラメチルピペリジル)セバケート、ビス(2,2,6,6 - テトラメチルピペリジル)スクシネート、ビス(1,2,2,6,6 - ペンタメチルピペリジル)セバケート、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 - マロネート、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との縮合生成物、N,N' - ビス - (2,2,6,6 - テトラメチル - 4 - 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 - 1,3,5 - s - トリアジンとの縮合生成物、トリス - (2,2,6,6 - テトラメチル - 4 - ピペリジル)ニトリロトリアセテート、テトラキス(2,2,6,6 - テトラメチル - 4 - ピペリジル)1,2,3,4 - ブタンテトラオエート、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)、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、ビス(1,2,2,6,6 - ペンタ - メチルピペリジル)2 - n - ブチル - 2 - (2 - ヒドロキシ - 3,5 - ジ - tert - ブチルベンジル)マロネート、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、ビス(1 - オクチルオキシ - 2,2,6,6 - テトラメチルピペリジル)コハク酸、N,N' - ビス(2,2,6,6 - テトラ - メチル - 4 - ピペリジル)ヘキサメチレンジアミンと4 - モルホリノ - 2,6 - ジクロロ - 1,3,5 - トリアジンとの縮合生成物、2 - クロロ - 4,6 - ジ - (4 - n - ブチルアミノ - 2,2,6,6 - テトラメチルピペリジル) - 1,3,5 - トリアジンと1,2 - ビス - (3 - アミノプロピルアミノ)エタンとの縮合生成物、2 - クロロ - 4,6 - ジ - (4 - n - ブチルアミノ - 1,2,2,6,6 - ペンタメチルピペリジル) - 1,3,5 - トリアジンと1,2 - ビス - (3 - アミノプロピルアミノ)エタンとの縮合生成物、8 - 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、3 - ドデシル - 1 - (2,2,6,6 - テトラ - メチル - 4 - ピペリジル)ピロリジン - 2,5 - ジオン、3 - ドデシル - 1 - (1,2,2,6,6 - ペンタメチル - 4 - ピペリジル)ピロリジン - 2,5 - ジオン。  
20  
30  
40

## 【0107】

2.7 オキサルアミド、例えば、4,4' - ジオクチルオキシオキサリド、2,2' - ジエトキシオキサリド、2,2' - ジオクチルオキシ - 5,5' - ジ - tert - ブチルオキサリド、2,2' - ジドデシルオキシ - 5,5' - ジ - tert - ブチル -  
50

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および2-エトキシ-2'-エチル-5,4'-ジ-tert-ブチルオキサニリドとのその混合物、ならびにo-およびp-メトキシ-二置換オキサニリドとo-およびp-エトキシ-二置換オキサニリドとの混合物。

## 【0108】

2.8 2-(2-ヒドロキシフェニル)-1,3,5-トリアジン、例えば、2,4,6-トリス(2-ヒドロキシ-4-オクチルオキシフェニル)-1,3,5-トリアジン、2-(2-ヒドロキシ-4-オクチルオキシフェニル)-4,6-ビス(2,4-ジメチルフェニル)-1,3,5-トリアジン、2-(2,4-ジヒドロキシフェニル)-4,6-ビス(2,4-ジメチルフェニル)-1,3,5-トリアジン、2-(2-ヒドロキシ-4-オクチルオキシフェニル)-4,6-ビス(4-メチルフェニル)-1,3,5-トリアジン、2-(2-ヒドロキシ-4-ドデシルオキシフェニル)-4,6-ビス(2,4-ジメチルフェニル)-1,3,5-トリアジン、2-[2-ヒドロキシ-4-(2-ヒドロキシ-3-ブチルオキシプロピルオキシ)フェニル]-4,6-ビス(2,4ジメチルフェニル)-1,3,5-トリアジン、2-[2-ヒドロキシ-4-(2-ヒドロキシ-3-オクチルオキシプロピル-オキシ)フェニル]-4,6-ビス(2,4-ジメチルフェニル)-1,3,5-トリアジン。

10

20

30

40

## 【0109】

3. 金属奪活剤、例えば、N,N'-ジフェニルオキサルアミド、N-サリチラル-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-tert-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)-オキサリルジヒドラジド、オキサニリド、イソフタロイルジヒドラジド、セバコイルビスフェニルヒドラジド、N,N'-ジアセチルアジボイルジヒドラジド、N,N'-ビス(サリチロイル)オキサリルジヒドラジド、N,N'-ビス(サリチロイル)チオプロピオニルジヒドラジド。

## 【0110】

4. ホスファイトおよびホスホナイト、例えば、トリフェニルホスファイト、ジフェニルアルキルホスファイト、フェニルジアルキルホスファイト、トリス(ノニルフェニル)ホスファイト、トリラウリルホスファイト、トリオクタデシルホスファイト、ジステアリルペンタエリスリトールジホスファイト、トリス(2,4-ジ-tert-ブチルフェニル)ホスファイト、ジイソデシルペンタエリスリトールジホスファイト、ビス(2,4-ジ-tert-ブチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス(2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、ビスイソデシルオキシペンタエリスリトールジホスファイト、ビス(2,4-ジ-tert-ブチル-6-メチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス(2,4,6-トリ-tert-ブチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、トリステアリルソルビトールトリホスファイト、テトラキス(2,4-ジ-tert-ブチルフェニル)4,4'-ビフェニレンジホスホナイト、6-イソオクチルオキシ2,4,8,10-テトラ-tert-ブチル-12H-ジベンゾ[d,g]-1,3,2-ジオキサホスホシン、6-フルオロ-2,4,8,10-テトラ-tert-ブチル-12-メチル-ジベンゾ[d,g]-1,3,2-ジオキサホスホシン、ビス(2,4-ジ-tert-ブチル-6-メチルフェニル)メチルホスファイト、ビス(2,4-ジ-tert-ブチル-6-メチルフェニル)エチルホスファイト。

## 【0111】

5. -チオジプロピオン酸のエステル類等の過酸化物スカベンジャー類、例えばラウリル、ステアリル、ミリスチルまたはトリデシルエステル、メルカプトベンズイミダゾ-

50

ル、2-メルカプトベンズ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塩、ジオクタデシルジ硫化物(ベンタエリトリトールテトラキス( - - ドデシルメルカプト)プロピオネート)。

【0112】

6. ヨウ化物および/またはリン化合物および二価のマンガンの塩と組み合わせた銅塩類等のポリアミド安定剤。

【0113】

7. 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類およびアルカリ土類金属塩類、例えばCaステアレート、Znステアレート、Mgベヘナート、Mgステアレート、Naリシノーレート、Kパルミテート、アンチモンピロカテコレート、または錫ピロカテコレート。

【0114】

8. 安息香酸、4-tert-ブチル安息香酸、アジピン酸等の成核剤類；ジフェニル酢酸とそれらの塩類、ホスフェート類、 fosfophosphate類および fosfinate類、およびそれらのエステルおよび塩、またはジベンジリデンソルビトールの誘導体等のクラリファイヤー類。

【0115】

9. 炭酸カルシウム、ケイ酸塩、ガラス纖維、石綿、滑石、カオリン、雲母、硫酸バリウム、金属酸化膜および水酸化物、カーボンブラック、黒鉛等のフィラー類と補強剤類。

【0116】

10. 可塑剤、滑剤、乳化剤、ピグメント、蛍光増白剤、防炎加工剤、帯電防止、発泡剤等の他の添加剤類。

【0117】

いかなる付加的な添加剤も、本発明の安定剤混合物の添加の前に、ともに、または後に重合体に添加することができる。この場合、本発明のこれらの添加剤および安定剤混合物は、固体として、溶液で、または溶融状態で、ならびに、固体または液体の混合物、またはマスターバッチ/濃縮物の形態で添加することができる。

【0118】

本発明による混合物の有利な作用を、以下の例によって示すが、同様の分野への適用可能性をこれによって限定するものではない。

【実施例1】

【0119】

ポリブチレンテレフタレート(PBT)中の効果

PBTでマスターバッチを溶融調合し、このマスターバッチをPBT樹脂へ混合して安定化し、次いで紡糸した。次いで、ファイバー中の添加剤濃度の分析を行ってから、紫外線曝露を行った。未加工の無着色のバルク連続フィラメント(BCF)の紡糸を265で行い、3.5:1の比でインラインで延伸した。

【0120】

UVB-313ランプを備えているQ(石英)U.V.促進耐候試験装置中でASTM D-4329-84に従ってこのファイバーのカードラップの一方の側を曝露した。このサイクルでは、60で8時間の紫外線曝露工程および50で4時間の凝縮工程を交互に行った。それぞれの配合で多数の試験片を試験に使用し、評価中に周期的な間隔で取り出した。

【0121】

同様に、UVA-340ランプを装備した促進耐候試験装置中でカードラップのPBTファイバーの曝露を行った。試験手順は、同様にASTM D-4329-84に基づいて行った。UVA-340ランプを装備したQUV機は、60で8時間のUV照射、また40で4時間の凝縮と設定した。このセットの条件は、24時間当たり紫外線曝露16時間、および湿雰囲気8時間になる。試験時間は720時間の総使用時間が推奨さ

10

20

30

40

50

れた。それぞれのサンプルの色の測定は、分光光度計測定でデルタ  $b^*$  変色で行った。

【0122】

QUV促進耐候試験装置は、日光、雨および結露によって引き起こされる損傷を再生することができる。QUVでは、制御された高温で、光と湿気のサイクルを交互に繰り返し、材料を曝露することによってその材料を試験する。QUVでは、蛍光性の紫外線(UV)ランプで日光の影響をシミュレートする。この試験は、湿度を凝縮させ、散水することで、結露および雨をシミュレートする。曝露条件は、様々な最終用途環境をシミュレートするために変動させることができる。

【0123】

表1Aおよび1Bに結果を示す。170、311および488時間の露光時間後の、個々の配合と、変色の測定値として対応する  $b^*$  値とをともに示す。

【0124】

【表1】

表1A

QUV313機器の通常ウェットおよびドライサイクルを使用する

PBTチップ-UV安定化検討におけるPBTファイバーMB低下

	170時間	311時間	485時間
安定剤の組み合わせ	$\Delta b^*$		
対照A	9.84	14.67	24.02
対照B	9.23	15.96	21.16
0.23%SEED	8.82	15.04	27.47
0.19%SEEDおよび0.26%化合物1	7.57	12.99	25.22
0.24%SEEDおよび0.31%化合物1	7.37	12.99	25.39
0.25%化合物1	8.24	13.07	25.57
0.21%SEEDおよび0.58%化合物1		12.37	20.07
0.59%化合物1		12.87	24.94

20

30

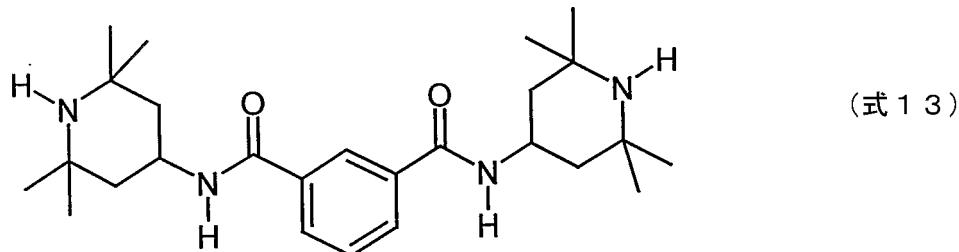
40

【0125】

SEEDは、1,3-ベンゼンジカルボキサミド、N,N'-ビス-(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジニル(式13)を表す。

【0126】

【化35】



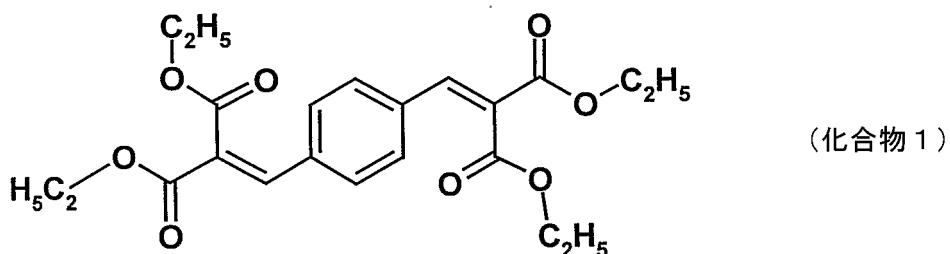
【0127】

化合物1は以下の式を有する。

50

【0128】

【化36】



10

【0129】

【表2】

表1B

QUV340機器の通常ウェットおよびドライサイクルを使用するPBTチップ-UV安定化検討におけるPBTファイバーMB低下

	170時間	311時間	485時間
サンプル :	$\Delta b^*$		
対照A	7.81	10.13	16.43
対照B	6.62	8.91	14.13
0.55%化合物1	6.36	8.87	13.51
0.19%SEEDおよび0.26%化合物1	4.76	6.78	12.77
0.59%化合物1	4.9	12.87	24.94
0.21%SEEDおよび0.58%化合物1	4.31	6.18	11.93

20

30

【実施例2】

【0130】

射出成形ポリエチレンテレフタレート(PET)への影響

230から280(ランピングモード)に加熱されている8つの温度帯を装備する单軸押出機中で、ポリエチレンテレフタレート、商品名、Arnit e(生産者DSM、Netherlands)100部と、オルガノ亜リン酸塩系安定剤トリス-(2,4-ジ-tert-ブチル亜リン酸塩)商品名Hostanox PAR 24の0.2部と、フェノールオクタデシル-3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシリヒドロシンナメート、商品名、Hostanox O 16の0.05部と、紫外線吸収剤または2元紫外線吸収剤複合剤(1:1)0.025部とを混合した。85毎分回転数の回転数とした。次いで、個々の混合物を、回転数20 rpm、210の温度で单軸押し出し機タイプHaendle中で予備押し出しした。あらかじめ押し出した配合物を使用して、タイプArburgの射出成形機を使用して、50バールの圧力、300、減圧(20バール)と冷却期間19.5秒として、合計成形時間27.3秒以内で射出成形を行い、サンプル板(寸法75×50×1mm)を調製した。

40

【0131】

紫外線照射下のエージングによる処理を行い、様々な紫外線吸収剤および紫外線吸収剤複合剤の影響を検討した。このため、ASTM D 5208、サイクルAによるUV-

50

C O N A 処理を使用して光放射  $\leq 340\text{ nm}$  の蛍光ランプで行った。このサイクルは、水凝縮なしで 50 で 20 時間の曝露、次いで水凝縮ありで 40 で 4 時間の期間という方式である。

【 0 1 3 2 】

他の試験では、人工老化サンプルの物理的な評価を、「プラスチックフィルムおよび固体プラスチックの鏡面光沢の標準試験法」A S T M 規定 D 2457 - 97 の規則による光沢測定で行った。この方法は、プラスチック用 A S T M 委員会 D - 20 の規則に則っており、光学的性質に関する小委員会 D 20 . 40 の直接の責任下にある。現行版は 1997 年 1 月 10 日 (1997 年 5 月に公表された) に承認された。本方法は、プラスチックフィルムおよび固体のプラスチックの不透明、透明の双方の光沢の測定の工程について記述しており、異なる光沢角度を含む。使用する機器は、光沢計タイプ微細 - T R I 光沢 ( 生産者 Byk - Gardener ) とした。

【 0 1 3 3 】

実際のシリーズでは、60 度および 85 度の反射の入射角とし、白色バックグラウンドと比較した。

【 0 1 3 4 】

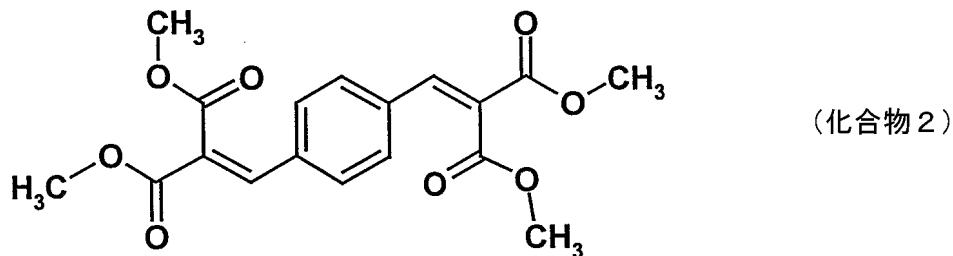
表 2 A および 2 B に、U V - A 処理の継続時間に依存する、異なる配合物の結果を示す。これらの結果から、化合物 2 と、ここでは V S U と略称する 2 - エチル - 2 ' - エトキシ - オキサラニリド (商品名 Sanduvor V S U) 等他の紫外線吸収剤との複合剤が改良された光沢を示すことが判る。

【 0 1 3 5 】

化合物 2 は以下の式を有する。

【 0 1 3 6 】

【 化 3 7 】



【 0 1 3 7 】

10

20

30

【表3】

表2A

紫外線吸収剤を含むP E T配合物の光沢（入射角60度）に対する

UV-A曝露の影響

紫外線吸収剤（複数可）/%	UV-A曝露継続時間/時間	光沢
0.025 VSU	600	129
0.0125化合物2、0.0125%VSU	600	131
0.025 VSU	1050	79
0.0125化合物2、0.0125%VSU	1050	102
0.025 VSU	1800	32
0.0125化合物2、0.0125%VSU	1800	42
0.025 VSU	2200	16
0.0125化合物2、0.0125%VSU	2200	29
0.025 VSU	3000	12
0.0125化合物2、0.0125%VSU	3000	23

サンプルは、さらにすべてHostanox PAR 24の0.200%と、  
Hostanox O 16の0.050%とを含む。

【0138】

10

20

30

【表4】

表2b

紫外線吸収剤を含むP E T配合物の光沢（入射角85度）に対する

UV-A曝露の影響

紫外線吸収剤（複数可）/%	UV-A曝露継続時間/時間	光沢
0.025 VSU	1050	73
0.0125化合物2、0.0125%VSU	1050	83
0.025 VSU	1500	65
0.0125化合物2、0.0125%VSU	1500	67
0.025 VSU	2200	30
0.0125化合物2、0.0125%VSU	2200	69

サンプルは、すべてHostanox PAR 24の0.200%と、  
Hostanox O 16の0.05%とを含む。

10

20

30

【0139】

他の物理的、技術的に重要なパラメーターは透明度であり、これはある長期にわたる使用期間にできるだけ高い水準で維持されなければならないものである。光沢測定と同様に、P E Tサンプルを人工UV-A曝露の前後で検討した。透明度測定は、「プラスチックシートの透明度の標準試験法」によって行った。この方法は以下のものである。ASTM規準D 1746-96；現行版1996年8月10日（公表1997年2月）承認され、もとはD 1746-60として公表されたものである。測定に関しては、分光光度計（タイプMinolta CM 3500 D）を700nmの波長で使用した。

【0140】

この結果は、表2Cに要約する。

【0141】

表2Cを見れば、ビス-ベンジリデンマロネット、および本発明による他の紫外線吸収剤を使用すれば、改良された透明度が得られることが判る。

【0142】

【表5】

表2C

紫外線吸収剤を含むP E T配合物の透明度に対するUV-A曝露の影響

紫外線吸収剤(複数可) /%	UV-A曝露 継続時間/時間	波長700nm における透明度
0.025 VSU	0	87.14
0.0125化合物2、0.0125%VSU	0	87.19
0.025 VSU	150	87.42
0.0125化合物2、0.0125%VSU	150	87.49
0.025 VSU	300	87.54
0.0125化合物2、0.0125%VSU	300	87.58
0.025 VSU	600	87.37
0.0125化合物2、0.0125%VSU	600	87.53
0.025 VSU	1200	86.06
0.0125化合物2、0.0125%VSU	1200	86.11
0.025 VSU	1500	82.37
0.0125化合物2、0.0125%VSU	1500	83.64
0.025 VSU	1800	82.01
0.0125化合物2、0.0125%VSU	1800	85.01
0.025 VSU	3000	81.96
0.0125化合物2、0.0125%VSU	3000	84.31

サンプルはすべて、Hostanox PAR 24の0.200%と、

Hostanox O16の0.05%とを含む。

10

20

30

40

【0143】

他の重要な技術的な考察は、黄色度指数(YI)の制御であり、これは、プラスチックが光への長期被曝で黄色化する傾向の尺度である。この測定のプロセスは、DIN 6167(「ほぼ白色の材料またはほぼ無色の材料の黄色度の解説」)に開示されており、この方法をこの実施例のサンプルに適用した。透明度測定において既に言及したように、この試験に使用した機器は分光光度計Minolta CM 3500 Dタイプである。表2Dに、単一の紫外線吸収剤VSUと、またベンジリデン-ビス-マロネート化合物2との複合剤とのデータを比較するYI値を示す。

【0144】

【表6】

表2D

紫外線吸収剤を含むP E T配合物の黄色度指数(YI)に対する

UV-A曝露の影響

紫外線吸収剤(複数可) /%	UV-A曝露 継続時間/時間	YI
0.025 VSU	150	2.77
0.0125化合物2、0.0125%VSU	150	2.41
0.025 VSU	300	3.26
0.0125化合物2、0.0125%VSU	300	2.7
0.025 VSU	600	4.29
0.0125化合物2、0.0125%VSU	600	3.39
0.025 VSU	900	5.03
0.0125化合物2、0.0125%VSU	900	4.27
0.025 VSU	1200	6.37
0.0125化合物2、0.0125%VSU	1200	5.62
0.025 VSU	1500	9.16
0.0125化合物2、0.0125%VSU	1500	7.12
0.025 VSU	1800	10.87
0.0125化合物2、0.0125%VSU	1800	7.36
0.025 VSU	3000	10.8
0.0125化合物2、0.0125%VSU	3000	8.4

サンプルは、すべてHostanox PAR 24の0.200%と、

Hostanox O16の0.05%とを含む。

10

20

30

40

50

【実施例3】

【0145】

アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン(ABS)中における効果

本発明による立体障害性フェノールと組み合わせたベンジリデン-ビス-マロネットの印象的な有効性を、ABSを使用して実証する。ABSはアクリロニトリル、ブタジエンおよびスチレンの共重合体であると知られている。ABSは、標準的なプラスチック(PVC、ポリエチレン、ポリスチレンなど)とエンジニアリングプラスチック(ポリアクリル、ナイロン、ポリアセタールなど)の間で、コストおよび性能における境界に位置するものとしてしばしば使用される。ABSは、ほぼ1000の異なるグレードで市販されて

おり、モノマーの成分および分子レベル結合の比率に依存してある範囲の物性を与えることができる。正しい安定剤の選択が、重要なプラスチック材料としてABSの使用的なファクターである。これには、ポリマーバックボーンからの水素の引き抜きを防ぐことができる立体障害性フェノールを使用することによって得られる、熱・酸化分解反応に対する長期的な保護が挙げられ、これは従来の文献から知られている[例えば、「大気中の酸化および酸化防止剤」G.スコット、第1版、Elsevier Publisher社、London(1965)参照]。立体障害性フェノールを使用する際の欠点としては、キノン構造との転位生成物の形成による基体の黄色度指数(YI)の増加によって、測定可能な連続的な変色がある。この生成反応は、使用するフェノールの置換パターンに依存する。[P. P. Klemchuk and P. L. Hornung, Polym. Degrad. Stab. 34, 333ページ(1991)参照]。 10

#### 【0146】

驚くべきことに、ベンジリデン-ビス-マロネート類を添加すると、上述の変色を抑制することが明らかになった。この有利な効果を以下に(表3)実証する。

#### 【0147】

実験は以下のように行った。

#### 【0148】

230から280(ランピングモード)に加熱されている8つの温度帯を装備する単軸押出機中で、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン-共重合体(ABS)タイプ3513(サプライヤーClarient)100部と、フェノールオクタデシル-3,5-ジ-tertブチル-4-ヒドロキシルヒドロシンナメート、商品名Hostanox O 16の0.05部と、または紫外線吸収剤0.05部と、または2つの紫外線吸収剤の2元(1:1)複合剤0.05部と、または1つの紫外線吸収剤および上記立体障害性フェノール(1:1)とを混合した。85毎分回転数の回転数とした。次いで、個々の混合物を、50rpmの回転数、220の温度で単軸押出機タイプHaendle中で予備押し出しした。 20

#### 【0149】

あらかじめ押し出した配合物を使用して、タイプArrburgの射出成形機を使用して、50バールの圧力、240、減圧(20バール)と冷却期間19.5秒として、合計成形時間27.3秒以内で射出成形を行い、サンプル板(寸法75×50×1mm)を調製した。 30

#### 【0150】

サンプル板は、強制空気ドラフトオーブン(Memmerタイプ)で、T=80まで加熱した。毎日、計画的に取り出して、黄色度指数YIのオーブン中熱処理前の初期値に対する変動を分光光度計、タイプMinolta CM 3500Dを使って測定した。

#### 【0151】

表3に示す結果より、立体障害性フェノール類とベンジリデン-ビス-マロネート類の予期しない相乗効果の挙動が明白に判る。

#### 【0152】

【表7】

表3

## ABSサンプル板の変色に対するT=80°Cでのオープン老化の影響

配合	変色ΔE=2に達する時間/日	129日後の変色ΔE
0.05%Hostanox O 16	21	11.7
0.05%化合物1	86.1	2.4
0.05%Hostanox O 16の0.025%+化合物1	> 129	1.89
0.05%化合物2	123	2.1
0.05%Hostanox O 16の0.025%+化合物1	> 129	1.82

10

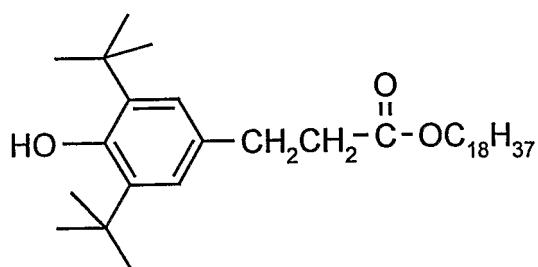
20

【0153】

実施例中で使用するHostanox O 16は以下の式を有する。

【0154】

【化38】



【手続補正書】

【提出日】平成16年11月11日(2004.11.11)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

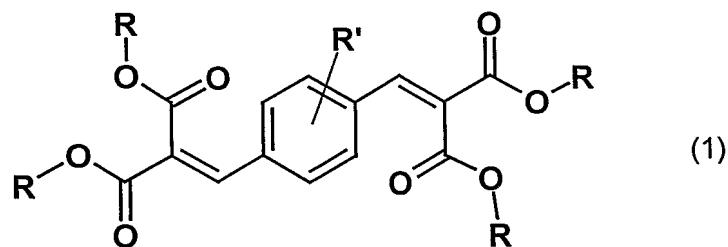
【補正の内容】

【特許請求の範囲】

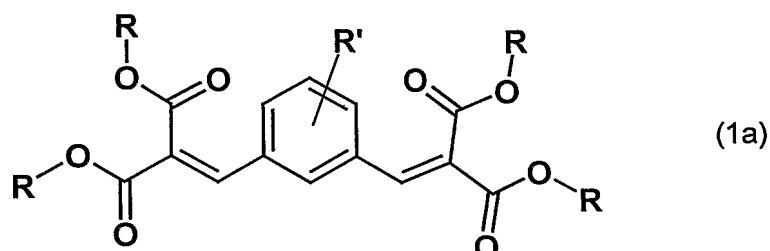
【請求項1】

一般式(1)を有する1つ以上の化合物を含む化合物であって、

## 【化1】



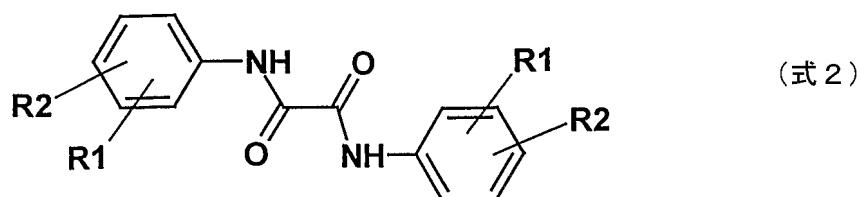
or (1A)



式中、基Rは、独立して、1つのアルキル-、シクロアルキル-、アラルキル-、またはアリール残基を表し、この芳香族環系は、1つ以上の同一であっても異なっていてもよい基R'によって場合によって置換されてもよく、その基R'は、アリール-、飽和または不飽和のアルキル-、アラルキル-またはシクロアルキル-基、ならびに、ハロゲン、アミノ-、アミノアルキル-、アミノシクロアルキル-、またはシアノ-、チオシアノ-、ニトロ-基であることができる化合物と、

式2

## 【化2】

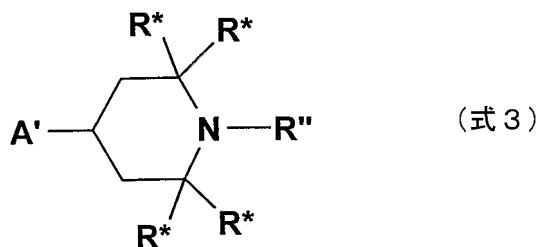


(式中、R<sub>1</sub>とR<sub>2</sub>は各々独立して、水素であるか、同一であるか、または直鎖および分岐しているアルキル-、または、2から12個の炭素原子および1から4個の酸素原子を有するアルコキシ-基から選択された、異なる置換基である。)の紫外線吸収剤、ヒンダードアミン安定剤、立体障害性フェノール、オルガノホスフイン、オルガノ-ホスファイト、オルガノホスホナイト、およびこれらの混合物からなる群から選択される化合物との混合物。

## 【請求項2】

前記ヒンダードアミン安定剤が、式3または4の化合物である請求項1に記載の化合物の混合物：

【化 3】



(式中、A'は、アミンである官能基を含むか、またはA'は加水分解性基、例えば、アミンを生成するアミドを含む、あるいはA'はアミドを生成する基であり、R\*は、メチルか、または他の低級な(C<sub>2</sub> - C<sub>4</sub>アルキル)であり、R"は、水素、1から3個の炭素のアルキルおよび-OR<sub>3</sub>からなる群から選択され、このR<sub>3</sub>は、水素、メチル、および1から7個の炭素を含むアルキルからなる群から選択され、

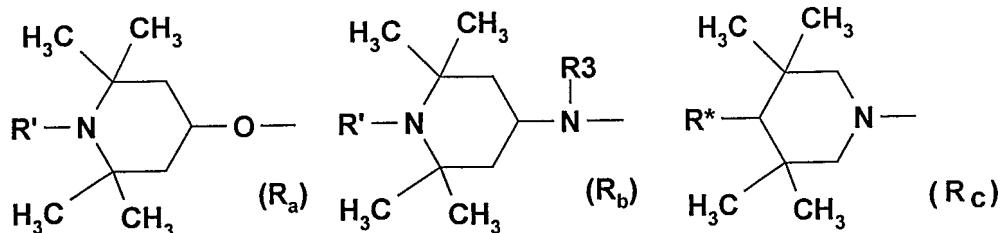
【化4】



$n = 2, 3, \dots, 4$

式中、2量体と3量体を含み、R<sub>4</sub>の少なくとも1つは、-OH、-ORであり、また、R<sub>4</sub>の少なくとも1つはR<sub>a</sub>、R<sub>b</sub>またはR<sub>c</sub>であり、

【化 5】



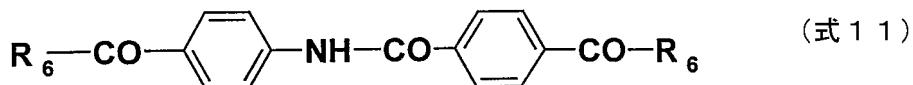
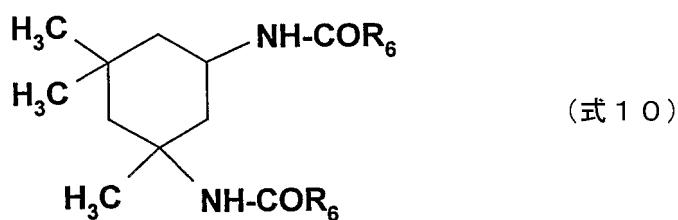
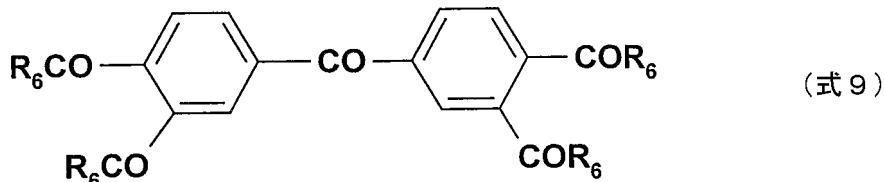
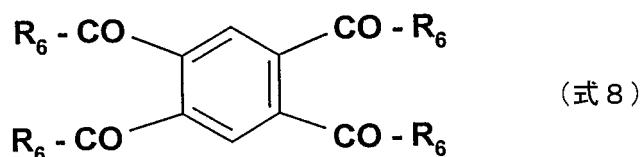
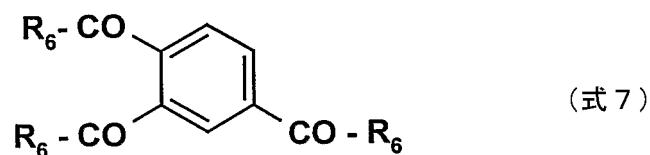
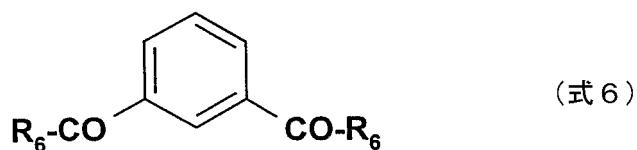
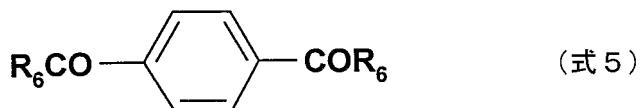
式中、 $R^*$  は上に定義されているものであり、 $R$  は上述の  $A$  と同じ意味を有する。

$R_5$  は、水素、アルキルまたは 1 から 6 個の炭素原子を有するシクロアルキルからなる群から選択される。)

### 【請求項3】

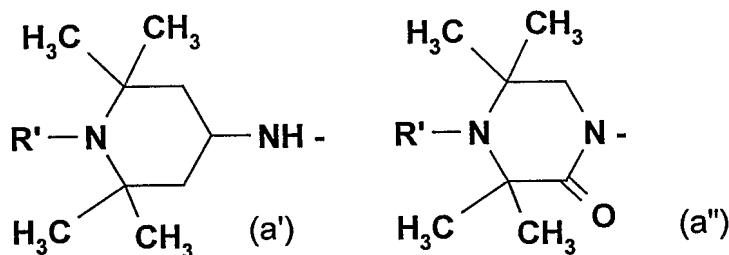
前記ヒンダードアミンが、式(5)から(11)によって表わされる化合物である請求項3に記載の化合物の混合物：

【化6】



(式中、式5から11の式においては、R<sub>6</sub>は、式(a')または(a'')のいずれかであることができ、

【化 7】



式中、 $a'$  と  $a''$  の中の  $R'$  は、水素、 $C_{1-6}$  アルキルまたはシクロアルキル - 、例えば、 $-CH_3$ 、 $-CH_2-CH_3$ 、 $C_{1-4}$  アルコキシ、例えば、 $-OCH_3$ 、 $-OCH_2CH_3$ 、または  $-CO-C_{1-4}$  アルキル、例えば、 $-O-CO-CH_3$ 、 $-O-CO-CH_2CH_3$  である。)

【請求項4】

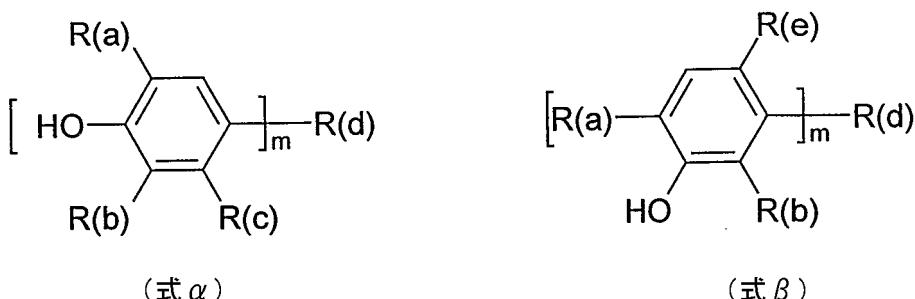
前記ヒンダードアミンが、以下のものから選択される化合物である請求項 3 に記載の化合物の混合物：

4 - アミノ - 2 , 2 ' , 6 , 6 ' - テトラメチルピペリジン、  
4 - アミノアルキル - 2 , 2 ' , 6 , 6 ' - テトラメチルピペリジン、  
4 - アミノアリール - 2 , 2 ' , 6 , 6 ' - テトラメチルピペリジン、  
3 - アミノアルキル - 2 , 2 ' , 6 , 6 ' - テトラメチルピペリジン、  
3 - アミノアリール - 2 , 2 ' , 6 , 6 ' - テトラメチルピペリジン、  
2 , 2 ' , 6 , 6 ' - テトラメチル - 4 - ピペリジン - アルキルカルボン酸、  
2 , 2 ' , 6 , 6 ' - テトラメチル - 4 - ピペリジンアリールカルボン酸、  
2 , 2 ' , 6 , 6 ' - テトラメチル - 3 - ピペリジンアルキルカルボン酸、  
2 , 2 ' , 6 , 6 ' - テトラメチル - 3 - ピペリジン - アリールカルボン酸。

### 【請求項5】

前記立体障害性フェノールが、式 、式 、およびこれらの混合物からなる群から選択される請求項 1 に記載の化合物の混合物：

【化 8 】



(式中、

$m$  は 1 または 3 の数字であり、

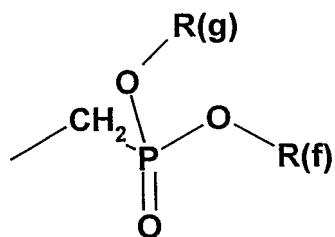
R ( a ) は、C<sub>1</sub> - C<sub>1-8</sub> アルキル、C<sub>5</sub> - C<sub>1-2</sub> - シクロ - アルキル、フェニル、またはC<sub>7</sub> - C<sub>9</sub> フェニル - アルキルであり、

R (b) は、水素、C<sub>1</sub> - C<sub>18</sub> アルキル、C<sub>5</sub> - C<sub>12</sub> シクロ - アルキル、フェニル、またはC<sub>7</sub> - C<sub>9</sub> フェニル - アルキルであり、

R ( c ) は水素またはメチルであり；

$m$  が 1 である場合、 $R(d)$  は水素、 $C_1 - C_4$  アルキル、または、

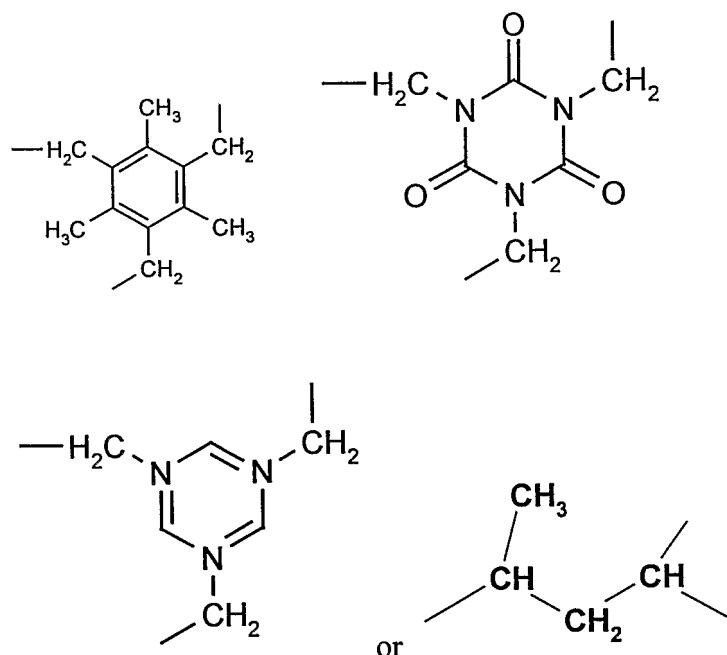
【化9】



であり、

mが3である場合、R(d)は

【化10】



であり、

R(e)は水素またはメチルであり、

R(f)は水素、C<sub>1</sub> - C<sub>20</sub>アルキル、置換基を有さない、またはC<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>アルキル置換されたフェニルまたはナフチルであり、R(g)は、C<sub>1</sub> - C<sub>20</sub>アルキル、置換基を有さない、またはC<sub>1</sub> - C<sub>4</sub>アルキル置換されたフェニルまたはナフチルであり、特に以下の化合物(I) - (VIII)である：

ビス-[3,3-ビス-(4'-ヒドロキシ-3'-tert-ブチル)-ブタン酸]グリコールエステル(I)、

4',4'',4'''-[ (2,4,6-トリメチル-1,3,5-ベンゼントリイル)トリス(メチレン)]-トリス[2,6-ビス(1,1-ジメチルエチル)フェノール](II)、

1,3,5-トリアジン-2,4,6(1H,3H,5H)-トリオン-1,3,5-トリス[ [4-(1,1-ジメチルエチル)-3-ヒドロキシ-2,6-ジメチルフェニル]メチル](III)、

フェノール、4',4'',4'''-(1-メチル-1-プロパニル-3-イリデン)トリス[2-(1,1-ジメチルエチル)-5-メチル(IV)、

フェノール、2,6-ビス[ [3-(1,1-ジメチルエチル)-2-ヒドロキシ-5-メチルフェニル]オクタ-ヒドロ-4,7-メタノ-1H-インデニル]-4-メチル(V)、

ベンゼンプロパン酸、3-(1,1-ジメチルエチル)-4-ヒドロキシ-5-メチル-2,4,8,10-テトラオキサ-スピロ[5.5]ウンデカン-3,9-ジイル-ビス(2,2-ジメチル-2,1-エタン-ジイル)エステル(VI),

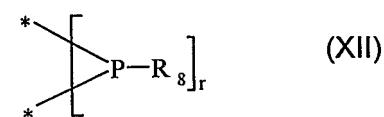
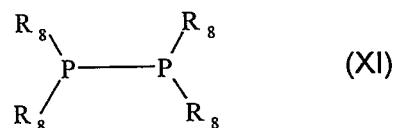
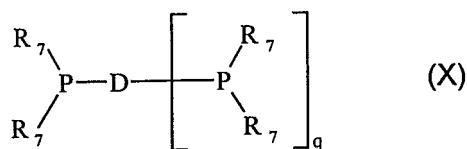
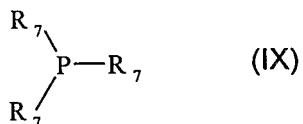
テトラキスメチレン(3,5-ジ-tertブチル-4-ヒドロキシフェニル)-ヒドロシンナメート(VII)

オクタデシル-3,5-ビス(1,1-ジメチルエチル)-4-ヒドロキシベンゼンプロパノエート(VIII)。)

【請求項6】

前記オルガノホスフィンが、次のものからなる群から選択される請求項1に記載の化合物の混合物:

【化11】



(式中、

$R_7$  は、 $C_{1-24}$  の直鎖または分岐しているアルキル(ヘテロ原子NおよびO、P、Sを含む場合においても)、 $C_{5-30}$  シクロアルキル(ヘテロ原子NおよびO、P、Sを含む場合においても)、 $C_{1-30}$  アルキルアリール、 $C_{6-24}$  アリール、 $C_{4-24}$  ヘテロアリール(单一のもしくは複数の(直鎖または分岐している) $C_{1-18}$  アルキルによって置換されている)、 $C_{5-12}$  シクロアルキルまたは $C_{1-18}$  アルコキシであり;

$R_8$  は、 $C_{4-24}$  の直鎖または分岐しているアルキル(ヘテロ原子NおよびO、P、Sを含む場合においても)、 $C_{5-30}$  シクロアルキル(ヘテロ原子NおよびO、P、Sを含む場合においても)、 $C_{1-30}$  のアルキルのアリール、 $C_{6-24}$  のアリール、 $C_{4-24}$  ヘテロアリール(单一のもしくは複数の(直鎖または分岐している) $C_{1-18}$  アルキルによって置換されている)、 $C_{5-12}$  のシクロアルキルまたは $C_{1-18}$  のアルコキシである。

Dは、直鎖または分岐している $C_{1-30}$  のアルキレン(ヘテロ原子NおよびO、P、Sを含む場合においても)、 $C_{2-30}$  アルキリデン(ヘテロ原子NおよびO、P、Sを含む場合においても)、 $C_{5-12}$  シクロアルキレン(ヘテロ原子NおよびO、P、Sを含む場合においても)、または $C_{6-24}$  のアリーレン/ $C_{4-24}$  ヘテロアリーレン(

(直鎖または分岐している)  $C_{1-18}$  アルキルによって置換されている)、 $C_{5-12}$  シクロアルキルまたは  $C_{1-18}$  アルコキシ、-O-、-S- であり；

Q は 1 から 5 であり；

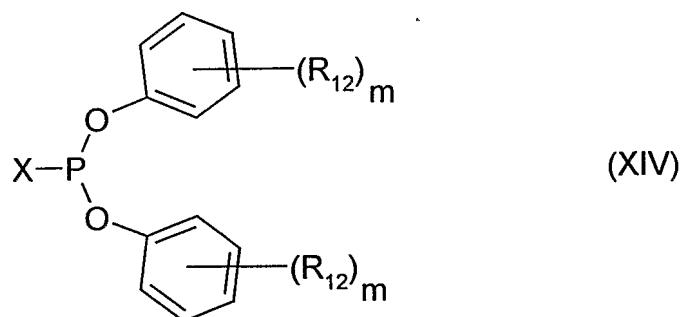
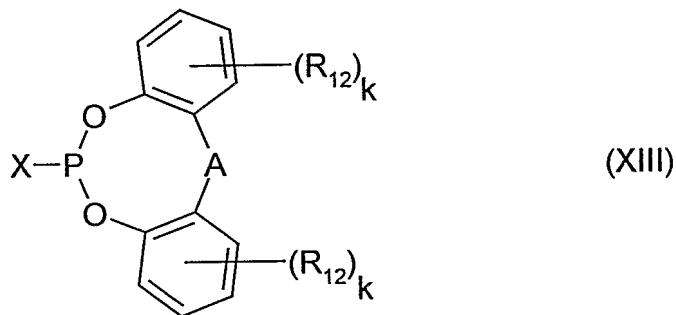
R は 3 から 6 であり；

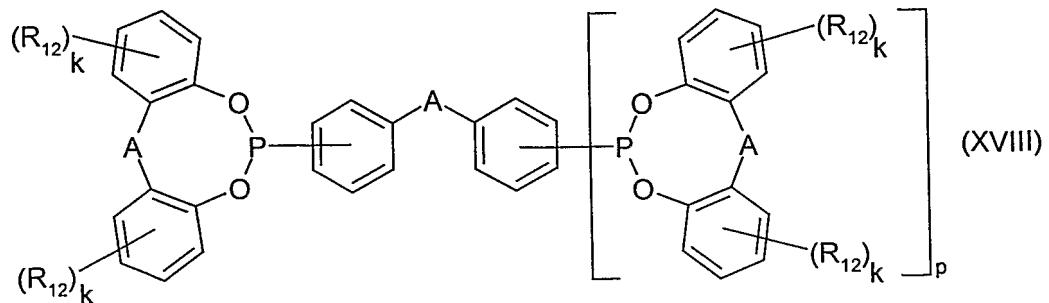
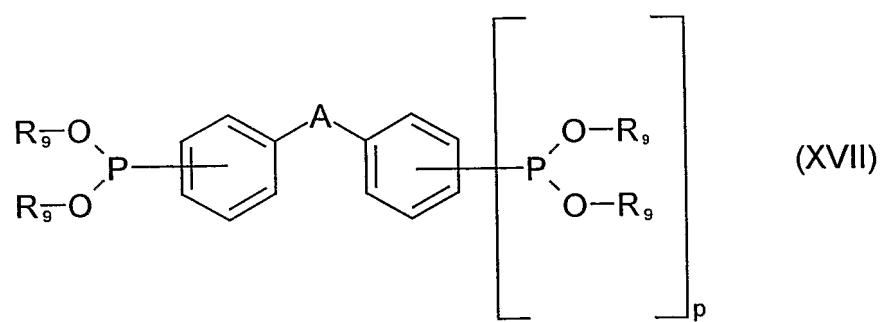
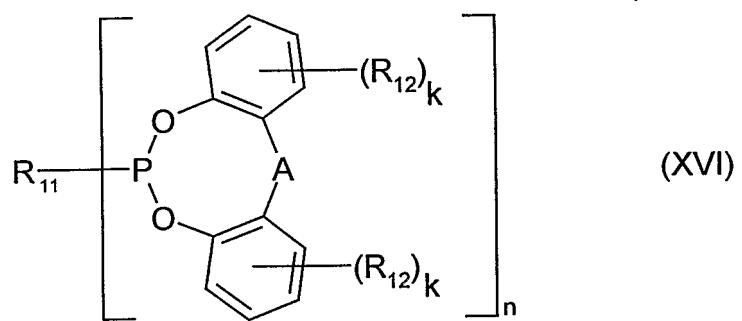
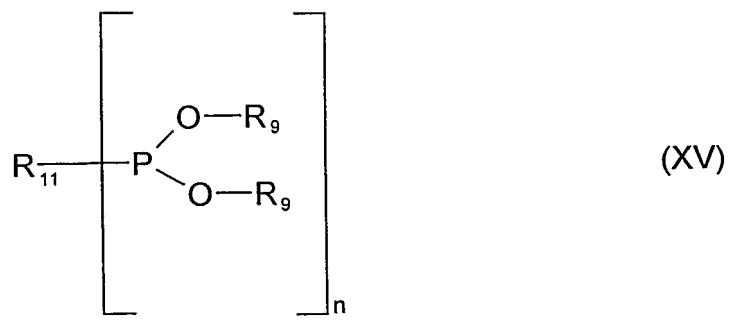
式中、式 (XII) の中の基  $P-R_8$  は、この P- 原子から来る結合で \* によって示される P を含んでいる環構造の部分であることができる。)

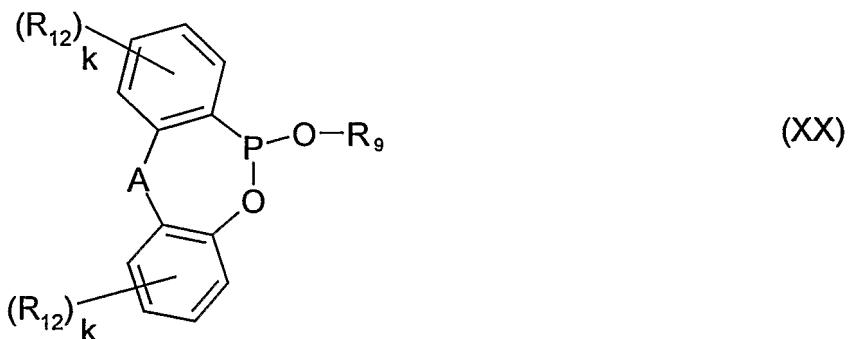
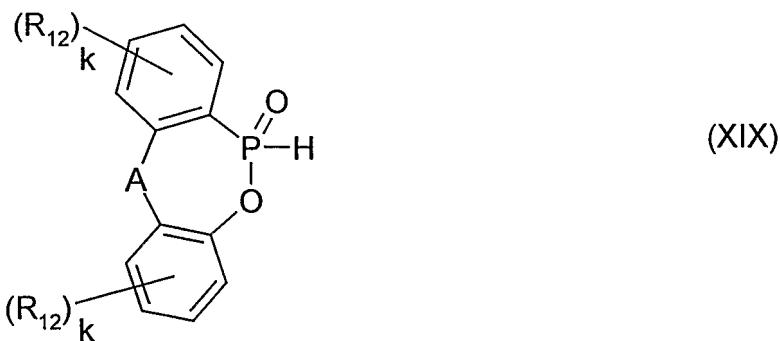
【請求項 7】

前記オルガノホスホナイトが、次のものからなる群から選択される請求項 1 に記載の化合物の混合物：

【化 12】







(式中、互いに独立して、

$R_9$  は、 $C_1 - C_{2-4}$  アルキル（直鎖、または分岐しており、適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $C_5 - C_{3-0}$  シクロアルキル、（適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $C_1 - C_{3-0}$  アルキルアリール、 $C_6 - C_{2-4}$  アリールまたはヘテロアリール、 $C_6 - C_{2-4}$  アリールまたはヘテロアリール（基 $C_1 - C_{1-8}$  アルキル（直鎖、または分岐している）、 $C_5 - C_{1-2}$  シクロアルキルまたは $C_1 - C_{1-8}$  アルコキシで置換されている）；

$R_{1-1}$  は、 $C_1 - C_{3-0}$  アルキレンタイプの  $n$  値の基、（直鎖、または分岐しており、適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $C_1 - C_{3-0}$  アルキリデン（適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $C_5 - C_{1-2}$  シクロアルキレンまたは $C_6 - C_{2-4}$  アリーレン（適切な位置で $C_1 - C_{1-8}$  アルキル（直鎖、または分岐している）、 $C_5 - C_{1-2}$  シクロアルキルまたは $C_1 - C_{1-8}$  アルコキシで置換されている）であり；

$R_{1-2}$  は、 $C_1 - C_{2-4}$  アルキル（直鎖、または分岐しており、適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $C_5 - C_{3-0}$  シクロアルキル（適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $C_1 - C_{3-0}$  アルキルアリール、 $C_6 - C_{2-4}$  アリールまたはヘテロアリール、 $C_6 - C_{2-4}$  アリールまたはヘテロアリール（ $C_1 - C_{1-8}$  アルキル（直鎖か分岐している）基で置換されている）、 $C_5 - C_{1-2}$  シクロアルキルまたは $C_1 - C_{1-8}$  アルコキシであり；

A は、直接の結合、 $C_1 - C_{3-0}$  アルキリデン（適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $> NH$ 、 $> NR_8$ 、 $-S-$ 、 $> S(O)$ 、 $> S(O)_2$ 、 $-O-$  であり；

X は、Cl、Br、F、OH（結果的に得られる  $> P(O)H$  の互変異性体を含む）であり；

$k$  は 0 から 4 であり；

$n$  は 1 から 4 であり；

$m$  は 0 から 5 であり；

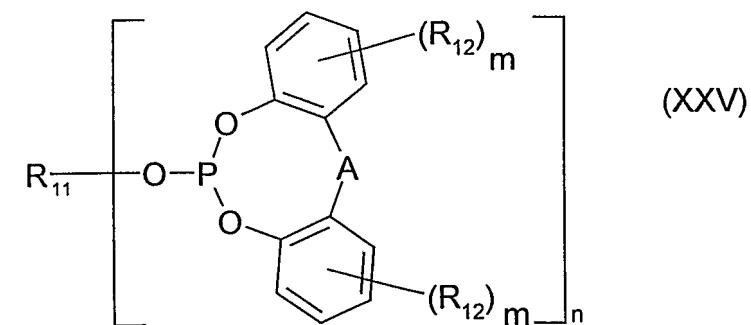
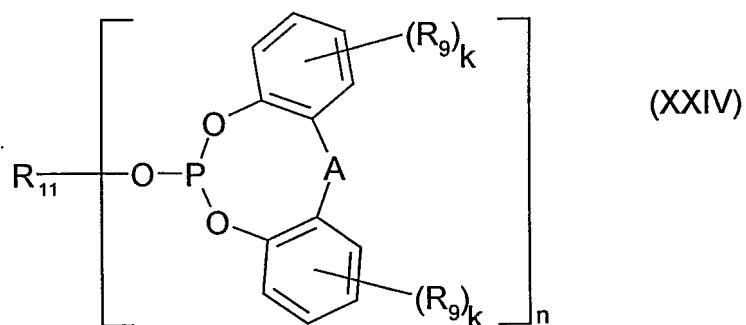
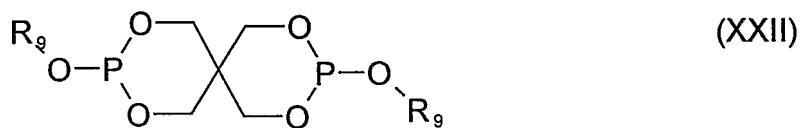
$p$  は 0 または 1 である。）

#### 【請求項 8】

前記オルガノホスファイトが次のものからなる群から選択される請求項 1 に記載の化合

物の混合物：

【化13】



(式中、互いに独立して、

$\text{R}_9$  は、 $\text{C}_1 - \text{C}_{2-4}$  アルキル（直鎖または分岐しており、適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $\text{C}_5 - \text{C}_{3-0}$  シクロアルキル、（適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $\text{C}_1 - \text{C}_{3-0}$  アルキルアリール、 $\text{C}_6 - \text{C}_{2-4}$  アリールまたはヘテロアリール、 $\text{C}_6 - \text{C}_{2-4}$  アリールまたはヘテロアリール（基 $\text{C}_1 - \text{C}_{1-8}$  アルキル（直鎖または分岐している）、 $\text{C}_5 - \text{C}_{1-2}$  シクロアルキルまたは $\text{C}_1 - \text{C}_{1-8}$  アルコキシで置換されている）であり；

$\text{R}_{10}$  は、H、 $\text{C}_1 - \text{C}_{2-4}$  アルキル（直鎖または分岐しており、適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $\text{C}_5 - \text{C}_{3-0}$  シクロアルキル、（適切な位置にヘテロ原子 N、O、P、S も含む）、 $\text{C}_1 - \text{C}_{3-0}$  アルキルアリール、 $\text{C}_6 - \text{C}_{2-4}$  アリールまたはヘテロアリール、 $\text{C}_6 - \text{C}_{2-4}$  アリールまたはヘテロアリール（基 $\text{C}_1 - \text{C}_{1-8}$  アルキル

(直鎖または分岐している)、C<sub>5</sub> - C<sub>1-2</sub> シクロアルキルまたはC<sub>1</sub> - C<sub>1-8</sub> アルコキシで置換されている)であり;

R<sub>1-1</sub> は、C<sub>1</sub> - C<sub>3-0</sub> アルキレンタイプのn価の基(直鎖または分岐しており、適切な位置にヘテロ原子N、O、P、Sも含む)、C<sub>1</sub> - C<sub>3-0</sub> アルキリデン(適切な位置にヘテロ原子N、O、P、Sも含む)、C<sub>5</sub> - C<sub>1-2</sub> シクロアルキレンまたはC<sub>6</sub> - C<sub>2-4</sub> アリーレン(適切な位置でC<sub>1</sub> - C<sub>1-8</sub> アルキル(直鎖または分岐している)、C<sub>5</sub> - C<sub>1-2</sub> シクロアルキルまたはC<sub>1</sub> - C<sub>1-8</sub> アルコキシで置換されている)であり;

R<sub>1-2</sub> は、C<sub>1</sub> - C<sub>2-4</sub> アルキル(直鎖または分岐しており、適切な位置にヘテロ原子N、O、P、Sも含む)、C<sub>5</sub> - C<sub>3-0</sub> シクロアルキル(適切な位置にヘテロ原子N、O、P、Sも含む)、C<sub>1</sub> - C<sub>3-0</sub> アルキルアリール、C<sub>6</sub> - C<sub>2-4</sub> アリールまたはヘテロアリール、C<sub>6</sub> - C<sub>2-4</sub> アリールまたはヘテロアリール(C<sub>1</sub> - C<sub>1-8</sub> アルキル(直鎖または分岐している)、C<sub>5</sub> - C<sub>1-2</sub> シクロアルキルまたはC<sub>1</sub> - C<sub>1-8</sub> アルコキシ基で置換されている)であり;

Aは、直接の結合、C<sub>1</sub> - C<sub>3-0</sub> アルキリデン(適切な位置にヘテロ原子N、O、P、Sも含む)、>NH、>NR<sub>8</sub>、-S-、>S(O)、>S(O)<sub>2</sub>、-O-であり;

Xは、Cl、Br、F、OH(結果的に得られる>P(O)Hの互変異性体を含む)であり;

kは0から4であり;

nは1から4であり;

mは0から5であり;

pは0または1である。)

#### 【請求項9】

式1の化合物が使用されている請求項1に記載の化合物の混合物。

#### 【請求項10】

有機物基体へ請求項1に記載の化合物の混合物を添加するステップを含む有機物基体を安定化する方法。

#### 【請求項11】

請求項11に記載のプロセスによって作られる安定化された有機物基体。

#### 【請求項12】

請求項1に記載の化合物の混合物を含むエンジニアリングプラスチック。

## 【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International Application No PCT/IB 03/01908
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 7 C08K5/101		
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 C09K 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, CHEM ABS Data, WPI Data, PAJ		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 4 726 942 A (LANG GERARD ET AL) 23 February 1988 (1988-02-23) claims -----	1,10
A	US 3 634 320 A (METZNER WOLFGANG ET AL) 11 January 1972 (1972-01-11) cited in the application claims & US 4 293 468 A (RODY JEAN) 6 October 1981 (1981-10-06) column 2, line 47 - line 53 column 7, lines 20-34 -----	1-13
A		1-13
<input 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 doubts 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 *X* 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 *Y* document of particular relevance; the claimed invention 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 *&* document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search  10 November 2004		Date of mailing of the international search report  16/11/2004
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5618 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl. Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer  Andriollo, G

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/IB 03/01908

Patent document cited in search report	Publication date		Patent family member(s)		Publication date
US 4726942	A 23-02-1988	FR	2540380 A1		10-08-1984
		DE	3403846 A1		09-08-1984
		GB	2134390 A ,B		15-08-1984
US 3634320	A 11-01-1972	DE	1801221 A1		21-05-1970
		AT	292315 B		25-08-1971
		BE	739825 A		16-03-1970
		CH	491991 A		15-06-1970
		FR	2019952 A5		10-07-1970
		GB	1244785 A		02-09-1971
		NL	6914785 A		07-04-1970
US 4293468	A 06-10-1981	AU	2482777 A		09-11-1978
		BE	854197 A1		03-11-1977
		CA	1091235 A1		09-12-1980
		DE	2718458 A1		24-11-1977
		FR	2350342 A1		02-12-1977
		GB	1573770 A		28-08-1980
		IT	1115519 B		03-02-1986
		JP	1615686 C		30-08-1991
		JP	2032298 B		19-07-1990
		JP	52133990 A		09-11-1977
		NL	7704920 A		08-11-1977
		SU	797589 A3		15-01-1981
		US	4369275 A		18-01-1983

## 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, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, 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, NI, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW

(72) 発明者 アバール, ラヨシユ

スイス国、ツエー・ハー・4105、ビール-ベンケン、ブルツクマツト・1

(72) 発明者 グロンマイヤー, エルнст

スイス国、ツエー・ハー・4123、オールシユウイル、バーゼルマツトウエヒ・103

(72) 発明者 クレーンケ, クリストフ

ドイツ国、79206・ブライザハ、クラインガツセ・23

(72) 発明者 ウエブスター, ジヨーセフ・レーニ

アメリカ合衆国、ノース・カロライナ・28277、シヤーロット、サミット・ツリー・コート・10705

F ターム(参考) 4J002 AA001 EH076 FD056

## 【要約の続き】

