

(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2007-511650**(P2007-511650A)**(43) 公表日 **平成19年5月10日(2007.5.10)**

(51) Int. Cl.		F I	テーマコード (参考)
CO8L 67/02 (2006.01)		CO8L 67/02	4J002
CO8K 3/00 (2006.01)		CO8K 3/00	
CO8K 5/00 (2006.01)		CO8K 5/00	
CO8L 69/00 (2006.01)		CO8L 69/00	
CO8L 51/00 (2006.01)		CO8L 51/00	
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 29 頁)			

(21) 出願番号	特願2006-540277 (P2006-540277)	(71) 出願人	504037346
(86) (22) 出願日	平成16年11月13日 (2004.11.13)		バイエル・マテリアルサイエンス・アクチ エンゲゼルシャフト
(85) 翻訳文提出日	平成18年7月18日 (2006.7.18)		Bayer Material Science AG
(86) 国際出願番号	PCT/EP2004/012901		ドイツ連邦共和国デー51368レーフ エルクーゼン
(87) 国際公開番号	W02005/049729	(74) 代理人	100062144
(87) 国際公開日	平成17年6月2日 (2005.6.2)		弁理士 青山 稔
(31) 優先権主張番号	10353830.5	(74) 代理人	100088801
(32) 優先日	平成15年11月18日 (2003.11.18)		弁理士 山本 宗雄
(33) 優先権主張国	ドイツ (DE)	(74) 代理人	100126789
(31) 優先権主張番号	102004022108.1		弁理士 後藤 裕子
(32) 優先日	平成16年5月5日 (2004.5.5)		
(33) 優先権主張国	ドイツ (DE)		
最終頁に続く			

(54) 【発明の名称】 耐衝撃強化ポリアルキレンテレフタレート／ポリカーボネートブレンドに基づく均質内部色の耐候安定組成物

(57) 【要約】

本発明は耐衝撃強化ポリアルキレンテレフタレート／ポリカーボネートブレンドに基づく着色耐候安定組成物および成形組成物、それから製造される半製品および成形品(それらは例えば、ノンラッカー形態または透明のクリアラッカーのみで被覆された形態で自動車外装用途に使用される)に関する。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

- A) 4～80重量部の少なくとも一つのポリアルキレンテレフタレート、
- B) 10～90重量部の少なくとも一つの芳香族ポリカーボネート、
- C) 1.5～30重量部のゴム成分としてゴム弾性のあるオレフィン系不飽和オレフィン(コ)ポリマーに基づく少なくとも一つのグラフトポリマー、
- D) 1.5～30重量部のゴム成分としてアクリレートに基づく少なくとも一つのグラフトポリマー、
- E) 0.01～5重量部の紫外線安定剤、
- F) 0.01～10重量部の着色剤、
- G) 0～5重量部の加水分解安定剤、
- H) 0～54重量部の少なくとも一つの粒状の鉱物充填材、
- I) 0～10重量部のさらなる添加剤

を含有する組成物。

10

【請求項 2】

C)が

C1) C2)のグラフトベースについている5～95 wt.%の少なくとも一つのビニルモノマー

C2) <-10 のゴム成分のガラス転移点を有し、ゴム弾性のあるオレフィン系不飽和オレフィン(コ)ポリマーに基づく95～5 wt.%の一以上のグラフトベースのグラフトポリマーからなる請求項 1 記載の組成物。

20

【請求項 3】

C)がゴム成分としてポリブタジエンに基づくグラフトポリマーである請求項 1 または 2 記載の組成物。

【請求項 4】

D)が

D1) D2)のグラフトベースについている5～95 wt.%の少なくとも一つのビニルモノマー

D2) <10 のゴム成分のガラス転移点を有し、アクリレートゴムに基づく95～5 wt.%の一以上のグラフトベース

のグラフトポリマーからなる請求項 1 または 2 記載の組成物。

30

【請求項 5】

ポリエチレンテレフタレートが成分Aとして用いられる上記の一以上の請求項記載の組成物。

【請求項 6】

成形品の製造のための上記の一以上の請求項記載の組成物の使用。

【請求項 7】

- A) 4～80重量部の少なくとも一つのポリアルキレンテレフタレート、
- B) 10～90重量部の少なくとも一つの芳香族ポリカーボネート、
- C) 1.5～30重量部のゴム成分としてポリブタジエンに基づく少なくとも一つのグラフトポリマー、
- D) 1.5～30重量部のゴム成分としてアクリレートに基づく少なくとも一つのグラフトポリマー、
- E) 0.01～5重量部の紫外線安定剤、
- F) 0.01～10重量部の着色剤、
- G) 0～5重量部の加水分解安定剤、
- H) 0～54重量部の少なくとも一つの粒状の鉱物充填材、
- I) 0～10重量部のさらなる添加剤

を含有する組成物で特徴づけられる成形品、成形組成物または半完成品の製造方法。

40

【請求項 8】

A) 4～80重量部の少なくとも一つのポリアルキレンテレフタレート、

B) 10～90重量部の少なくとも一つの芳香族ポリカーボネート、

50

- C) 1.5～30重量部のゴム成分としてポリブタジエンに基づく少なくとも一つのグラフトポリマー、
- D) 1.5～30重量部のゴム成分としてアクリレートに基づく少なくとも一つのグラフトポリマー、
- E) 0.01～5重量部の紫外線安定剤、
- F) 0.01～10重量部の着色剤、
- G) 0～5重量部の加水分解安定剤、
- H) 0～54重量部の少なくとも一つの粒状の鉱物充填材、
- I) 0～10重量部のさらなる添加剤

を含有する組成物から得られる成形組成物、半完成品、または成形品。

10

【請求項 9】

クリアラッカーが塗られたことを特徴とする請求項 8 記載の成形品。

【請求項 10】

自動車外装での請求項 8 および 9 記載の成形品の使用。

【発明の詳細な説明】

【発明の詳細な説明】

【0001】

本発明は耐衝撃強化ポリアルキレンテレフタレート／ポリカーボネートブレンドに基づく着色耐候安定組成物および成形組成物、それから製造される半製品および成形品(それらは例えば、ノンラッカー形態または透明のクリアラッカーのみで被覆された形態で自動車外装用途に使用される)に関する。

20

【0002】

部分的に結晶性のポリエステル、非晶質ポリカーボネートおよびグラフトコポリマーを含有する耐衝撃強化成形組成物が知られている。そのような成形組成物は、例えば、自動車分野で成形品(例えばバンパー、マッドガード、ラジエーターグリル、前照灯スクリーン、テールゲートスクリーン、シル、スポイラー、ドアハンドル、タンクキャップ、ライニング、水平構造部材(例えば、エンジンボンネットまたはルーフエレメント)、ドアモジュール等)に用いられる。自動車への塗布の用途に関して必要条件は高い加熱撓み温度、溶融液の状態での高い流動性、良好なラッカー密着性、高い耐薬品性、高い剛性、高い寸法安定性および低温での高い靱性である。

30

【0003】

耐衝撃強化ポリアルキレンテレフタレート／ポリカーボネートブレンドの成形品は二つの異なる手法により着色されることができる。従来は、成形品は着色ラッカー、いわゆるベースラッカーが塗られていた。成形品はベースラッカーの前に任意にさらに下塗剤および／または充填材で被覆されてきた。透明のクリアラッカーはさらに任意にベースラッカーに利用されることができる。これらの方式は以下で仕上げ塗り方式と呼ぶ。仕上げ塗り方式では着色がベースラッカーで行われるので成形組成物の固有の色は大体において不適切である。

【0004】

仕上げ塗り方式に代わる方式として、以下において内部色方式と呼ばれる方式がある。内部色方式では用いられる成形品の色は成形組成物の固有の色によって決められるので内部色方式は下塗剤、充填材または着色ベースラッカーを塗らない。しかしながら、内部色方式は要すれば透明のクリアラッカーで被覆されることができる。内部色方式の利点は、下塗剤および／または充填材で下塗りしたり、着色ベースラッカーを塗る作業段階および関連する乾燥作業が割愛されるので、コストの削減に存在する。

40

【0005】

自動車外装分野での耐衝撃強化ポリアルキレンテレフタレート／ポリカーボネートブレンドの成形品の使用は成形品の材料の耐候性に関して高い要求を必要とする。これに関して、紫外線照射による光酸化への耐性(以下において紫外線安定性と呼ばれる)および加水分解環境作用への材料の耐性(以下において加水分解安定度と呼ばれる)は主たる重要性を

50

有している。

【0006】

仕上げ塗り方式では有害な紫外線はベースラッカーによって十分に防がれる。一方、内部色方式では被覆ベースラッカーの紫外線遮断作用がない。せいぜい内部色方式では紫外線吸収クリアラッカーが有害な紫外線の多くを防ぎ得るだけである。それにもかかわらず、内部色方式に基づく成形組成物は高い紫外線安定性を有さなければならず、このために共役ジエンを使ったゴム(例えば、ABSまたはMBSゴムのブタジエン)に基づく耐衝撃性改良剤は単独では使用されない。

【0007】

耐候安定PC/ポリエステルブレンドはそれゆえに、例えば、DE-A 33 02 124に記述されるようにアクリレートゴム(acrylate rubber)を使用する。 10

【0008】

EP-B 0 787 769は耐候安定性が改善され、良好な靱性をもつ成形組成物を得るためのAESおよびアクリレートゴムとの組み合わせをもつPC/ポリエステルブレンドの使用を記述する。

【0009】

耐衝撃強化ポリアルキレンテレフタレート/ポリカーボネートブレンドの加水分解安定度は、これらの材料の成形品が自動車の耐用期間中に、高い外部温度および高い大気湿度の条件下で使用される場合に、特に必要とされる。

【0010】

US-A 5 354 791はエポキシド置換ポリアルキレンテレフタレート成形組成物を耐衝撃強化ポリアルキレンテレフタレート/ポリカーボネートブレンドに金属含有燐化合物と組み合わせて使用して、加水分解に対する安定性を改善することを記載する。加水分解安定度の改善はここでオートクレーブ中110 °Cの水の中に該材料を保管した後の熔融粘度の小さな変化で該文献に記述されている。紫外線耐性および表面の性質はUS-A 5 354 791の内容ではない。 20

【0011】

内部色方式では、しかしながら、耐候安定性に加えて均質に着色される能力もまた非常に大きな重要性を持つ。正確には耐候性アクリレート耐衝撃性改良材を持つ衝撃強化PC/ポリエステルブレンドの場合、射出成形の場合、視覚的に明るい効果を有する少ししか着色されない部分と視覚的により暗いまたは色彩強調効果を有するより濃く着色される部分とが定期的に再発する望ましくない着色不均質性が射出成形操作中の流れの方向と垂直に形成され、これらはタイガーストライプ(tiger stripes)とも呼ばれる。最終用途(例えば、自動車外面スキン層-例えば、マッドガード、バンパー、テールゲート、前照灯スクリーン、スポイラー、空気取り入れ口グリル(air intake grills)、エンジンボンネット、カウル-自動車内装、電気外被(electrical housing)または電気学外被(electrics housing))で使用者によって視覚的に知覚される成形品に関して、これらのタイガーストライプ効果は容認できない。 30

【0012】

該目的はいわゆる内部色方式に使用するために改善された耐候性を持つ均質に着色された耐衝撃強化ポリアルキレンテレフタレート/ポリカーボネート成形組成物を開発することであった。成形組成物の着色が同時に使用時における最終成形品の着色外観と対応しているので、成形組成物または成形品の均質着色に関して要求が内部色方式において増加する。 40

【0013】

意外なことに、ポリアルキレンテレフタレート/ポリカーボネートに基づく成形組成物は、もし耐衝撃性改良剤として紫外線耐性を増加させる安定剤および加水分解抵抗性を改善させる安定剤との組み合わせで一方がアクリレートに基づき、もう一方がブタジエンに基づくグラフトコポリマー組成物に基づく少なくとも二つの異なる系が利用されるならば上述の目的を達成することが見いだされた。本発明による組成物からなる成形品は表面の 50

均質な概観および均質な着色の印象および優れた耐候安定性によって特徴づけられる。本発明による成形組成物はさらに高い加熱撓み温度、熔融液の良好な流動性、良好なラッカー密着性、高い耐薬品性、高い剛性、高い寸法安定性および低温での高い靱性によって特徴づけられる。

【0014】

本発明は

A) 4~80重量部、好ましくは10~60重量部、特に好ましくは12~50重量部、特に19~40重量部の少なくとも一つのポリアルキレンテレフタレート、好ましくはポリエチレンテレフタレートまたはポリブチレンテレフタレート、特に好ましくはポリブチレンテレフタレート、

10

B) 10~90重量部、好ましくは20~80重量部、特に好ましくは25~60重量部、特に30~60重量部の少なくとも一つの芳香族ポリカーボネート、

C) ゴム成分として1.5~30重量部、好ましくは3~25重量部、特に好ましくは4~20重量部、特に5~15重量部のゴム弾性のあるオレフィン系不飽和オレフィン(コ)ポリマー、好ましくはポリブタジエンに基づく少なくとも一つのグラフトポリマー、

D) ゴム成分として1.5~30重量部、好ましくは3~25重量部、特に好ましくは4~20重量部、特に5~15重量部のアクリレートに基づく少なくとも一つのグラフトポリマー、

E) 0.01~5重量部、好ましくは0.05~3重量部、特に好ましくは0.1~1重量部の紫外線安定剤、

F) 0.01~10重量部、好ましくは0.05~6重量部、特に好ましくは0.1~3重量部の着色剤、

20

G) 0~5重量部、好ましくは0.05~3重量部、特に好ましくは0.1~2重量部の、好ましくはエポキシド化合物に基づく加水分解安定剤、

H) 0~54重量部、好ましくは3~34重量部、特に好ましくは6~25重量部、特に8~21重量部の少なくとも一つの粒状の鉱物充填材、

I) 0~10重量部、好ましくは0.05~3重量部、特に好ましくは0.1~0.9重量部のさらなる添加剤

を含有する組成物を提供する。

【0015】

本発明によると、該組成物は成分Aとして一つのポリアルキレンテレフタレートまたは二つ以上の異なるポリアルキレンテレフタレートの混合物を含有する。本発明の明細書中のポリアルキレンテレフタレートはテレフタル酸(またはその反応性誘導体)とアルカンジオール(例えばエチレングリコール、プロピレングリコールまたはブタンジオールに基づく)から誘導されるポリアルキレンテレフタレートである。本発明によると、好ましくはポリブチレンテレフタレート、ポリトリメチレンテレフタレートおよび/またはポリエチレンテレフタレート、特に好ましくはポリブチレンテレフタレートおよび/またはポリエチレンテレフタレート、最も好ましくはポリブチレンテレフタレートが成分Aとして用いられる。

30

【0016】

本発明の明細書中のポリアルキレンテレフタレートは芳香族ジカルボン酸またはその反応性誘導体(例えばジメチルエステルまたは無水物)と脂肪族、脂環式または芳香脂肪族ジオールの反応生成物およびこれらの反応生成物の混合物である。

40

【0017】

好ましいポリアルキレンテレフタレートはテレフタル酸(またはその反応性誘導体)と2~10のC原子を有する脂肪族または脂環式ジオールから既知の方法(Kunststoff-Handbuch, vol. VIII, p. 695 et seq., Karl-Hanser-Verlag, Munich 1973)で調製されることができる。

【0018】

好ましいポリアルキレンテレフタレートはジカルボン酸に基づいて少なくとも80 mol%、好ましくは90 mol%のテレフタル酸基およびジオール成分に基づいて少なくとも80 mol%

50

、好ましくは少なくとも90 mol%のエチレングリコールおよび/またはプロパン-1,3-ジオールおよび/またはブタン-1,4-ジオール基を含有する。

【0019】

好ましいポリアルキレンテレフタレートはテレフタル酸基に加えて20 mol%までの8~14のC原子を有する他の芳香族ジカルボン酸基または4~12のC原子を有する脂肪族ジカルボン酸基(例えばフタル酸、イソフタル酸、ナフタレン-2,6-ジカルボン酸、4,4'-ジフェニルジカルボン酸、コハク酸、アジピン酸、セバシン酸、アゼライン酸、シクロヘキサジ酢酸またはシクロヘキサジカルボン酸基)を含有してもよい。

【0020】

好ましいポリアルキレンテレフタレートはエチレングリコールまたはプロパン-1,3-ジオールまたはブタン-1,4-ジオール基に加えて20 mol%までの3~12のC原子を有する他の脂肪族ジオールまたは6~21のC原子を有する脂環式ジオール基(例えば、プロパン-1,3-ジオール、2-エチルプロパン-1,3-ジオール、ネオペンチルグリコール、ペンタン-1,5-ジオール、ヘキサン-1,6-ジオール、シクロヘキサン-1,4-ジメタノール、3-メチルペンタン-2,4-ジオール、2-メチルペンタン-2,4-ジオール、2,2,4-トリメチルペンタン-1,3-ジオールおよび-1,6-ジオール、2-エチルヘキサン-1,3-ジオール、2,2-ジエチルプロパン-1,3-ジオール、ヘキサン-2,5-ジオール、1,4-ジ-(α -ヒドロキシエトキシ)-ベンゼン、2,2-ビス-(4-ヒドロキシシクロヘキシル)-プロパン、2,4-ジヒドロキシ-1,1,3,3-テトラメチル-シクロブタン、2,2-ビス-(3- α -ヒドロキシエトキシフェニル)-プロパンおよび2,2-ビス-(4-ヒドロキシプロポキシフェニル)-プロパン基)を含有してもよい。

【0021】

ポリアルキレンテレフタレートは相対的に少量の3-または4-水酸基アルコールまたは3-または4-塩基カルボン酸(例えばDE-A 19 00 270およびUS-A 3 692 744に記述されている)の組込によって分枝することができる。好ましい分枝剤の例はトリメシン酸、トリメリット酸、トリメチロールエタンおよび-プロパンおよびペンタエリトリールである。

【0022】

酸成分に基づいて1 mol%より多い分枝剤を使用しないことが望ましい。

【0023】

テレフタル酸およびその反応性誘導体(例えばそのジアルキルエステル)とエチレングリコールおよび/またはプロパン-1,3-ジオールおよび/またはブタン-1,4-ジオールから単独で調製されたポリアルキレンテレフタレート(ポリエチレンテレフタレートおよびポリブチレンテレフタレート)およびこれらのポリアルキレンテレフタレートの混合物は特に好ましい。

【0024】

少なくとも二つの上述の酸成分からおよび/または少なくとも二つの上述のアルコール成分から調製されるコポリエステルもまた好ましいポリアルキレンテレフタレートであり、特に好ましいコポリエステルはポリ-(エチレングリコール/ブタン-1,4-ジオール)テレフタレートである。

【0025】

一般のポリアルキレンテレフタレートはおよそ0.4~1.5、好ましくは0.5~1.3の極限粘度数を有する(それぞれフェノール/o-ジクロロベンゼン(1:1重量部)中25℃で測定された)。

【0026】

本発明による使用されるポリアルキレンテレフタレートは好ましくは他のポリエステルおよび/またはさらなるポリマーとの混合物で使用されることもできる。特に好ましくは、ポリアルキレンテレフタレートの他のポリエステルとの混合物、より特に好ましくはポリブチレンテレフタレートのポリエチレンテレフタレートとの混合物が用いられる。

【0027】

常套の添加剤(例えば離型剤、安定剤および/または流動剤)は溶融液の混合物に添加するか、または表面に適用してもよい。

10

20

30

40

50

【 0 0 2 8 】

本発明によると、本発明による組成物は成分Bとしてポリカーボネートまたはポリカーボネートの混合物を含有する。

【 0 0 2 9 】

好ましいポリカーボネートは一般式 (I)

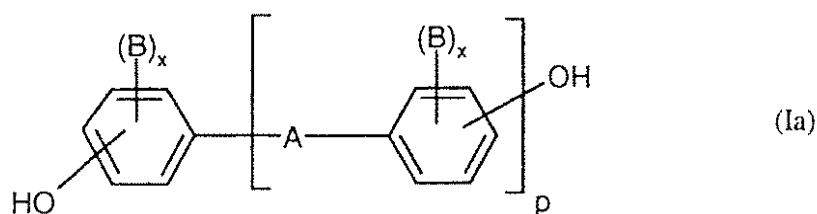


(式中、Zは一以上の芳香族基を含有する6~30のC原子を有する二価の有機基である。) のビスフェノールに基づくそれらのホモポリカーボネートおよびコポリカーボネートである。

【 0 0 3 0 】

式 (Ia)

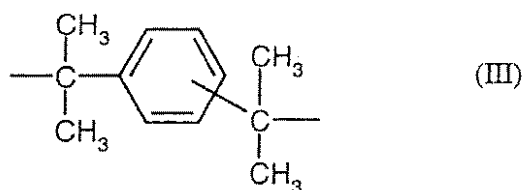
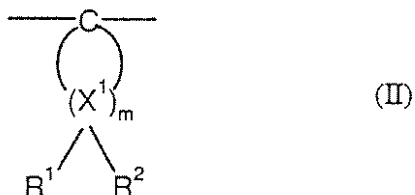
【 化 1 】



(式中、

Aは単結合、 $C_1 \sim C_5$ -アルキレン、 $C_2 \sim C_5$ -アルキリデン、 $C_5 \sim C_6$ -シクロアルキリデン、-O-、-SO-、-CO-、-S-、-SO₂-、 $C_6 \sim C_{12}$ -アリーレン(そこに任意に複素原子を含むさらなる芳香環を融合させることができる)、または式 (II) または (III)

【 化 2 】



の基を表し、

Bはそれぞれ $C_1 \sim C_{12}$ -アルキル、好ましくはメチル、またはハロゲン、好ましくは塩素および/または臭素を表し、

xはそれぞれ互いに独立して0、1または2を表し、

pは1または0を表し、

R^1 および R^2 は個々にそれぞれの X^1 に対して選択することができ、互いに独立して水素または $C_1 \sim C_6$ -アルキル、好ましくは水素、メチルまたはエチルを表し、

X^1 は炭素を表し、

mは4~7、好ましくは4~5の整数を表す(但し、少なくとも一つの原子 X^1 上で、 R^1 および R^2 は同時にアルキルを示す)。

のビスフェノールが好まれる。

【 0 0 3 1 】

10

20

30

40

50

一般式(1)によるビスフェノールの例は以下の群に属するビスフェノール:ジヒドロキシジフェニル、ビス-(ヒドロキシフェニル)-アルカン、ビス-(ヒドロキシフェニル)-シクロアルカン、インダンビスフェノール、ビス-(ヒドロキシフェニル)スルフィド、ビス-(ヒドロキシフェニル)エーテル、ビス-(ヒドロキシフェニル)ケトン、ビス-(ヒドロキシフェニル)スルホン、ビス-(ヒドロキシフェニル)スルホキシドおよび、'-ビス-(ヒドロキシフェニル)-ジイソプロピルベンゼンである。

【0032】

入手可能な上述のビスフェノールの誘導体(例えば、上述のビスフェノールの芳香環のアルキル化またはハロゲン化による)もまた一般式(1)によるビスフェノールの例である。

【0033】

一般式(1)によるビスフェノールの例は、特に、以下の化合物:ヒドロキノン、レソルシノール、4,4'-ジヒドロキシジフェニル、ビス-(4-ヒドロキシフェニル)スルフィド、ビス-(4-ヒドロキシフェニル)スルホン、ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)-メタン、ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)スルホン、1,1-ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)-p/m-ジイソプロピルベンゼン、1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-1-フェニル-エタン、1,1-ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)-シクロヘキサン、1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-3-メチルシクロヘキサン、1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-3,3-ジメチルシクロヘキサン、1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-4-メチルシクロヘキサン、1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-シクロヘキサン、1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサン、2,2-ビス-(3,5-ジクロロ-4-ヒドロキシフェニル)-プロパン、2,2-ビス-(3-メチル-4-ヒドロキシフェニル)-プロパン、2,2-ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)-プロパン、2,2-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-プロパン(すなわちビスフェノールA)、2,2-ビス-(3-クロロ-4-ヒドロキシフェニル)-プロパン、2,2-ビス-(3,5-ジブromo-4-ヒドロキシフェニル)-プロパン、2,4-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-2-メチルブタン、2,4-ビス-(3,5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)-2-メチルブタン、'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-o-ジイソプロピルベンゼン、'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-m-ジイソプロピルベンゼン(すなわちビスフェノールM)、'-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-p-ジイソプロピルベンゼンおよびインダンビスフェノールである。

【0034】

特に好ましいポリカーボネートはビスフェノールAに基づくホモポリカーボネート、1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサンに基づくホモポリカーボネートおよび二つのモノマービスフェノールAおよび1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサンに基づくコポリカーボネートである。

【0035】

一般式(1)による上述のビスフェノールは既知の方法(例えば対応するフェノールとケトンから)により調製されることができる。

【0036】

上述のビスフェノールおよびその調製方法は先行技術にある(同様に1,1-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサンおよびインダンビスフェノールも)。インダンビスフェノールは例えば、イソプロペニルフェノールまたはその誘導体から、もしくはイソプロペニルフェノールの二量体またはその誘導体からフリーデル-クラフツ触媒存在下、有機溶媒中で調製されることができる。

【0037】

ポリカーボネートは既知の方法で調製されることができる。ポリカーボネートの調製に関して好適な方法は、例えば、ビスフェノールとホスゲンから界面法(phase boundary process)による、またはビスフェノールとホスゲンから均質相での方法、いわゆるピリジン法による、またはビスフェノールとカルボン酸エステルから溶融エステル交換法(melt transesterification process)による調製である。これらの調製方法は例えばH. Schnell, "Chemistry and Physics of Polycarbonates", Polymer Reviews, volume 9, p. 31-76,

10

20

30

40

50

Interscience Publishers, New York, London, Sydney, 1964に記述されている。

【0038】

溶融エステル交換法は、特に、H. Schnell, "Chemistry and Physics of Polycarbonates", Polymer Reviews, volume 9, p. 44 to 51, Interscience Publishers, New York, London, Sydney, 1964に記述されている。

【0039】

ポリカーボネートの調製に不純物が少ない原料および補助剤が好ましく用いられる。特に溶融エステル交換法による調製では、用いられるビスフェノールおよび用いられるカルボン酸誘導体はアルカリ金属イオンおよびアルカリ土類金属イオンからできるだけフリーでなければならない。そのような純度の原料は、例えば、カルボン酸誘導体(例えば炭酸エステル)、およびビスフェノールの再結晶、洗浄または蒸留によって得ることができる。

【0040】

本発明による用いられるポリカーボネートは好ましくは10,000~200,000 g/molの重量平均分子量(M_w)(例えば超遠心分離または散乱光測定によって決定される)を有する。本発明の用いられるポリカーボネートは特に好ましくは12,000~80,000 g/mol、特別好ましくは20,000~35,000 g/molの重量平均分子量を有する。

【0041】

本発明による用いられるポリカーボネートの平均分子量は、例えば、適当な量の連鎖停止剤による既知の方法で確立されることができる。連鎖停止剤は個別にまたは種々の連鎖停止剤の混合物として用いることができる。

【0042】

好適な連鎖停止剤はモノフェノールおよびモノカルボン酸の両方である。好適なモノフェノールは例えばフェノール、p-クロロフェノール、p-tert-ブチルフェノール、クミルフェノールまたは2,4,6-トリプロモフェノール、および長鎖アルキルフェノール(例えば4-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)-フェノール)または全部で8~20のC原子をアルキル置換基に有するモノアルキルフェノールまたはジアルキルフェノール(例えば3,5-ジ-tert-ブチルフェノール、p-tert-オクチルフェノール、p-ドデシルフェノール、2-(3,5-ジメチル-ヘプチル)-フェノールまたは4-(3,5-ジメチル-ヘプチル)-フェノール)である。好適なモノカルボン酸は安息香酸、アルキル安息香酸およびハロゲン安息香酸である。

【0043】

好ましい連鎖停止剤はフェノール、p-tert-ブチルフェノール、4-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)-フェノールおよびクミルフェノールである。

【0044】

用いられる連鎖停止剤の量は好ましくは用いられる特定のビスフェノールの総量に基づいて、0.25と10 mol%の間である。

【0045】

本発明による用いられるポリカーボネートは既知の方法で分枝されることができ、特に好ましくは三官能価以上の分枝剤の混和によって分枝されることができる。好適な分枝剤は例えば三以上のフェノール基または三以上のカルボン酸基を有する分枝剤である。

【0046】

本発明による好適な分枝剤は、例えば、フロログルシノール、4,6-ジメチル-2,4,6-トリ-(4-ヒドロキシフェニル)-ヘプト-2-エン、4,6-ジメチル-2,4,6-トリ-(4-ヒドロキシフェニル)-ヘプタン、1,3,5-トリ-(4-ヒドロキシフェニル)-ベンゼン、1,1,1-トリ-(4-ヒドロキシフェニル)-エタン、トリ-(4-ヒドロキシフェニル)-フェニル-メタン、2,2-ビス-[4,4-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-シクロヘキシル]-プロパン、2,4-ビス-(4-ヒドロキシフェニル-イソプロピル)-フェノール、2,6-ビス-(2-ヒドロキシ-5'-メチル-ベンジル)-4-メチルフェノール、2-(4-ヒドロキシフェニル)-2-(2,4-ジヒドロキシフェニル)-プロパン、ヘキサ-(4-(4-ヒドロキシフェニル-イソプロピル)-フェニル)テレフタレート、テトラ-(4-ヒドロキシフェニル)-メタン、テトラ-(4-(4-ヒドロキシフェニル-イソプロピル)-

フェノキシ)-メタンおよび1,4-ビス-(4',4''-ジヒドロキシトリフェニル)-メチルベンゼンおよび2,4-ジヒドロキシ安息香酸、トリメシン酸、塩化シアヌル、3,3-ビス-(3-メチル-4-ヒドロキシフェニル)-2-オキソ-2,3-ジヒドロインドール、三塩化トリメシン酸および',''-tris-(4-ヒドロキシフェニル)-1,3,5-トリイソプロピルベンゼンである。

【0047】

好ましく用いられる分枝剤は1,1,1-tris-(4-ヒドロキシフェニル)-エタンおよび3,3-ビス-(3-メチル-4-ヒドロキシフェニル)-2-オキソ-2,3-ジヒドロインドールである。

【0048】

任意に用いられる分枝剤の量は用いられるビスフェノールのモルに基づいて好ましくは0.05 mol%~2 mol%である。

10

【0049】

界面法によるポリカーボネートの調製の場合、例えば、分枝剤は初めにビスフェノールおよび連鎖停止剤と共に水性のアルカリ性の相に導入される、または有機溶媒中にカルボン酸誘導体と共に溶液として添加してもよい。エステル交換法の場合、分枝剤は好ましくはジヒドロキシ芳香族化合物またはビスフェノールと共に計量添加される。

【0050】

溶融エステル交換法によるポリカーボネートの調製で好ましく用いられる触媒は文献から知られているアンモニウム塩およびホスホニウム塩である。

【0051】

本発明によるとコポリカーボネートもまた使用することができる。本発明の細書中のコポリカーボネートは特に、重量平均分子量(M_w)が好ましくは10,000~200,000 g/mol、特に好ましくは20,000~80,000 g/mol(光散乱測定または超遠心分離による事前の校正後のゲル透過クロマトグラフィーによって測定した)のポリジオルガノシロキサン/ポリカーボネートブロックコポリマーである。ポリジオルガノシロキサン/ポリカーボネートブロックコポリマーの中の芳香族カーボネート構造単位の含量は好ましくは75~97.5 wt.%、特に好ましくは85~97 wt.%である。ポリジオルガノシロキサン/ポリカーボネートブロックコポリマーの中のポリジオルガノシロキサン構造単位の含量は好ましくは25~2.5 wt.%、特に好ましくは15~3 wt.%である。ポリジオルガノシロキサン/ポリカーボネートブロックコポリマーは、例えば、 $\text{--Si(CH}_3\text{)}_2\text{--}$ -ビスヒドロキシアリールオキシ末端基を含有し、好ましくは $P_n = 5 \sim 100$ 、特に好ましくは $P_n = 20 \sim 80$ の平均重合度を有するポリジオルガノシロキサンを根幹として調製してもよい。

20

30

【0052】

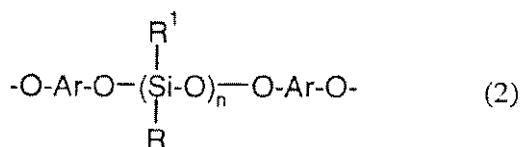
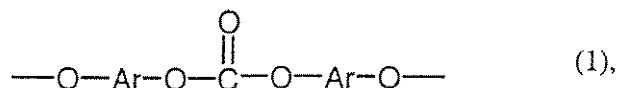
ポリジオルガノシロキサン/ポリカーボネートブロックポリマーはポリジオルガノシロキサン/ポリカーボネートブロックコポリマーと常套のポリシロキサンフリー熱可塑性樹脂ポリカーボネートとの混合物であってもよく、この混合物の中のポリジオルガノシロキサン構造単位の全体の含量は好ましくは2.5~25 wt.%である。

【0053】

そのようなポリジオルガノシロキサン/ポリカーボネートブロックコポリマーは高分子鎖に一方では芳香族カーボネート構造単位(1)および他方ではアリールオキシ末端基を含むポリジオルガノシロキサン(2)

40

【化 3】



10

(式中、

Arは同一のまたは異なる二官能価の芳香族基であり

RおよびR¹は同一または異なって、直鎖アルキル、分枝アルキル、アルケニル、ハロゲン化直鎖アルキル、ハロゲン化分枝アルキル、アリールまたはハロゲン化アリール、好ましくはメチルを示し、

nは好ましくは5~100、特に好ましくは20~80の平均重合度を示す。))

を含むことを特徴とする。

【0054】

上記の式(2)のアルキルは好ましくはC₁~C₂₀-アルキルであり、上記の式(2)のアルケニルは好ましくはC₂~C₆-アルケニルであり;上記の式(1)および(2)のアリールは好ましくはC₆~C₁₄-アリールである。上記の式でハロゲン化は部分的にまたは完全に塩化、臭化、またはフッ化を意味する。

20

【0055】

アルキル、アルケニル、アリール、ハロゲン化アルキルおよびハロゲン化アリールの例はメチル、エチル、プロピル、n-ブチル、tert-ブチル、ビニル、フェニル、ナフチル、クロロメチル、過フルオロブチル、過フルオロオクチルおよびクロロフェニルである。

【0056】

そのようなポリジオルガノシロキサン/ポリカーボネートブロックコポリマーおよびその調製は先行技術にある。

30

【0057】

好ましいポリジオルガノシロキサン/ポリカーボネートブロックコポリマーは例えば任意に常套の量での分枝剤の共同使用で、-ビスヒドロキシアリールオキシ末端基を含有するポリジオルガノシロキサンを他のビスフェノールと(例えば二相界面法(例えばH. Schnell, "Chemistry and Physics of Polycarbonates", Polymer Reviews, volume 9, p. 31-76, Interscience Publishers, New York, London, Sydney, 1964に記述されているように)によって)反応させることにより調製することができる。この合成および調製に関して抽出物として用いられる、-ビスヒドロキシアリールオキシ末端基を含むポリジオルガノシロキサンは例えば、US-A 3 419 634に記述されている。

【0058】

常套の添加剤(例えば離型剤)はポリカーボネートの熔融液に混ぜるかまたは表面に適用してもよい。使用されるポリカーボネートは好ましくは本発明による成形組成物の他の成分と混ぜ合わせる前にすでに離型剤を含む。

40

【0059】

本発明によると、少なくとも一つのビニルモノマーをオレフィン系不飽和オレフィンポリマーまたはオレフィン系不飽和オレフィンコポリマーに基づくグラフトベースの上にグラフト重合することによって得られるグラフトポリマーまたは二以上のグラフトコポリマーの混合物が成分C)として用いられる。

【0060】

本発明によると、

50

C1) 2)のグラフトベースについている5~95 wt.%, 好ましくは10~80 wt.%, 特に20~50 wt.%の少なくとも一つのビニルモノマー

C2) <-10 、好ましくは <-20 、特に好ましくは <-30 のゴム成分のガラス転移点を有し、ゴム弾性のオレフィン系不飽和オレフィン(コ)ポリマーに基づく95~5 wt.%, 好ましくは90~20、特に80~20 wt.%の一以上グラフトベースのグラフトポリマーが成分C)として用いられている。

【0061】

一般にグラフトベースC2)は0.05~5 μm 、好ましくは0.10~2 μm 、特に好ましくは0.15~1 μm の平均粒度(d_{50} 値)を有する。

【0062】

モノマーC1)は好ましくは

C1.1) 50~99重量部、好ましくは60~80重量部のビニル芳香族および/または環を置換したビニル芳香族(例えばスチレン、 α -メチルスチレン、 p -メチルスチレンまたは p -クロロスチレン等)、および/またはアクリル酸($C_1 \sim C_8$)-アルキルエステルおよび/またはメタクリル酸($C_1 \sim C_8$)-アルキルエステル(例えばメタクリル酸メチルおよびメタクリル酸エチル)、および

C1.2) 1~50重量部、好ましくは40~20重量部のビニルシアニド(不飽和ニトリル、例えばアクリロニトリルおよびメタクリロニトリル)および/またはメタクリル酸($C_1 \sim C_8$)-アルキルエステル、アクリル酸($C_1 \sim C_8$)-アルキルエステル(例えばメタクリル酸メチル、アクリル酸 n -ブチルおよびアクリル酸 t -ブチル)、および/または不飽和カルボン酸の誘導体(例えば無水物およびイミド)(例えば無水マレイン酸および N -フェニルマレイミド)の混合物である。

【0063】

特に好ましいモノマーC1.1)はモノマースチレン、 α -メチルスチレンおよびメタクリル酸メチルの内の少なくとも一つから選択され、および特に好ましいモノマーC1.2)はモノマーアクリロニトリル、無水マレイン酸およびメタクリル酸メチルの内の少なくとも一つから選択される。

【0064】

特に好ましいモノマーはC1.1スチレンおよびC1.2アクリロニトリルおよびC1.1スチレンおよびC1.2メタクリル酸メチルである。

【0065】

好ましいグラフトベースC2は成分C2のガラス転移温度が <-10 、好ましくは <-20 、特に好ましくは <-30 より下であり、グラフトベースはオレフィン系不飽和基を有するという条件付でジエンゴム(例えばブタジエン、イソプレン等に基づく)またはジエンゴムの混合物またはジエンゴムのさらなる共重合性単量体(例えばC1.1およびC1.2による)とのコポリマーまたはそれらの混合物である。

【0066】

純粋なポリブタジエンゴムは特に好ましく用いられる。

【0067】

特に好ましいポリマーCは例えば(例えば文献(例えばUllmann, Enzyklopaedie der Technischen Chemie, vol. 19 (1980), p. 280 et seq.から)から当業者に知られている)ABSポリマー(乳化、塊状、および懸濁ABS)である。グラフトベースC2のゲル含量は少なくとも30 wt.%, 好ましくは少なくとも40 wt.%(トルエン中で測定)である。

【0068】

グラフトコポリマーC)はラジカル重合にて(例えば乳化、懸濁、溶液、または塊状重合によって、好ましくは乳化または塊状重合によって)調製される。

【0069】

US-A 4 937 285に従って有機ヒドロペルオキシドおよびアスコルビン酸の開始剤系でドックス開始によって調製されるABSポリマーもまた特に好適なグラフトゴムである。

【0070】

10

20

30

40

50

グラフト反応で知られているようにグラフトモノマーは必ずしも完全にグラフトベースにグラフトしているわけではないので、本発明によるとグラフトポリマーC)はグラフトベース存在下でグラフトモノマーの(共)重合によって得られる生成物およびワーキングアップの間に共に得られる生成物を意味しているとも理解される。

【0071】

MBSゴム(例えばRohm und HaasによってParaloid^(登録商標) EXL 2600、Paraloid EXL 2650、またはParaloid^(登録商標) EXL 2691という名で市場で取引されているものおよび例えばEP-A 0 985 682に記述されているもの)として当業者に知られている製品は特にポリマーC)として好ましい。

【0072】

本発明によると、ゴム-弾性のあるアクリレートポリマーまたはゴム-弾性のあるアクリレートコポリマーに基づくグラフトベースに少なくとも一つのビニルモノマーのグラフト重合することによって得られる一つのグラフトコポリマーまたは二つ以上のグラフトポリマーの混合物が成分D)として用いられる。

【0073】

本発明によると

D1) D2)のグラフトベースについている5~95 wt.%, 好ましくは10~80 wt.%, 特に20~50 wt.%の少なくとも一つのビニルモノマー

D2) <10、好ましくは<0、特に好ましくは<-10 のゴム成分のガラス転移点を有し、ゴム-弾性のあるアクリレートポリマーまたはアクリレートコポリマーに基づく95~5 wt.%, 好ましくは90~20、特に80~20 wt.%の一つ以上のグラフトベースのグラフトポリマーが成分D)として用いられる。

【0074】

一般にグラフトベースD2)は0.05~5 μm、好ましくは0.10~2 μm、特に好ましくは0.15~1 μmの平均粒度(d_{50} 値)を有する。

【0075】

モノマーD1)は好ましくは

D1.1) 50~99、好ましくは60~80重量部のビニル芳香族および/または環を置換したビニル芳香族(例えばスチレン、*i*-メチルスチレン、*p*-メチルスチレン、または*p*-クロロスチレン)および/またはアクリル酸($C_1 \sim C_8$)-アルキルエステルおよび/またはメタクリル酸($C_1 \sim C_8$)-アルキルエステル(例えばメタクリル酸メチルおよびメタクリル酸エチル)、と

D1.2) 1~50、好ましくは40~20重量部のシアン化ビニル(不飽和ニトリル、例えばアクリロニトリルおよびメタクリロニトリル)および/またはメタクリル酸($C_1 \sim C_8$)-アルキルエステルおよび/またはアクリル酸($C_1 \sim C_8$)-アルキルエステル(例えばメタクリル酸メチル、アクリル酸*n*-ブチルおよびアクリル酸*t*-ブチル)および/または不飽和カルボン酸の誘導体(例えば無水物およびイミド)(例えば無水マレイン酸および*N*-フェニルマレイミド)

の混合物である。

【0076】

特に好ましいモノマーD1.1)はモノマースチレン、*i*-メチルスチレンおよびメタクリル酸メチルの少なくとも一つから選択され、特に好ましいモノマーD1.2)はモノマーアクリロニトリル、無水マレイン酸およびメタクリル酸メチルの少なくとも一つから選択される。

【0077】

特に好ましいモノマーはD1.1スチレンおよびD1.2アクリロニトリルである。

【0078】

ポリマーD)のD2)による好適なアクリレートゴムは、好ましくは、アクリル酸アルキルエステルのポリマー(D2)に基づいて任意に40 wt.%までの他の重合性の、エチレン系不飽和モノマーを含んでもよい)である。好ましい重合性のアクリル酸エステルは $C_1 \sim C_8$ -アルキル

10

20

30

40

50

エステル(例えばメチル、エチル、ブチル、*n*-オクチルおよび2-エチルヘキシルエステル)、ハロゲンアルキルエステル、好ましくはハロゲン-C₁~C₈-アルキルエステル(例えばアクリル酸クロロエチル)およびこれらのモノマーの混合物を含む。

【0079】

架橋に関して、一つより多い重合性二重結合を有するモノマーが共重合されることができ。架橋モノマーの好ましい例は3~8のC原子を有する不飽和モノカルボン酸のエステルおよび3~12のC原子を有する不飽和一価アルコール、または2~4のOH基および2~20のC原子を有する飽和ポリオール(例えばエチレングリコールジメタクリレートおよびメタクリル酸アリル);ポリ不飽和複素環化合物(例えばトリビニルおよびシアヌル酸トリアリル);多官能価のビニル化合物(例えばジ-およびトリビニルベンゼン、ジシクロペンタジエンおよび5-エチリデンノルボルネン);およびトリアリルホスフェートおよびフタル酸ジアリルである。

10

【0080】

好ましい架橋モノマーはメタクリル酸アリル、エチレングリコールジメタクリレート、フタル酸ジアリルおよび少なくとも3つのエチレン系不飽和基を有する複素環化合物である。

【0081】

特に好ましい架橋モノマーは環状モノマーシアヌル酸トリアリル、イソシアヌル酸トリアリル、トリアクリロイルヘキサヒドロ-s-トリアジンおよびトリアリルベンゼンである。架橋モノマーの量はグラフトベースD2に基づいて好ましくは0.02~5、特に0.05~2 wt. %である。

20

【0082】

少なくとも3つのエチレン系不飽和基を有する環状の架橋モノマーの場合、グラフトベースD2の1 wt.%より少ない量に制限すると都合がよい。

【0083】

非環式酸エステルに加えて、任意にグラフトベースD2の調製に用いられてもよい、好ましい「他の」重合性の、エチレン系不飽和モノマーは例えばアクリロニトリル、スチレン、*n*-メチルスチレン、アクリルアミド、ビニルC₁~C₆-アルキルエーテルおよびメタクリル酸メチルである。グラフトベースD2として好ましいアクリル酸ゴムは少なくとも60 wt.%のゲル含量を有する乳化ポリマーである。グラフトベースD2の調製は一段階または数段階で行われる。本説明による種々のグラフトベースの混合物もまたグラフト反応に用いられる。特に、平均粒度の異なる種々のグラフトベースもまた用いられることができる。

30

【0084】

ASAゴム(例えばWO 2000046296に、EP 0960145にまたはDE 4229913に記述されている)は本発明による成分D)として特に好ましい。

【0085】

本発明による組成物は成分E)として既知の紫外線安定剤(例えばGaechter, Mueller, Kunststoff-Additive, 3rd edition, Hanser-Verlag, Munich, Vienna, 1989におよびPlastics Additives Handbook, 5th edition, Hanser-Verlag, Munich, 2001, p. 97-137, 141-154, 178-183, 188-192, 369-372 and 389-394に記述されている)を含有する。紫外線安定剤はそれ自身でまたは混合物の中でまたはマスターバッチの形態で用いられ得る。

40

【0086】

本発明で用いられる好ましい紫外線安定剤は立体障害のあるフェノール、立体障害のあるアミン(HALS = hindered amine light stabilizer)、ヒドロキノン、芳香族第二級アミン(例えばジフェニルアミン、置換レソルシノール、サリチル酸エステル、ベンゾトリアゾールおよびベンゾフェノン)およびこれらの群の種々の置換類似物およびそれらの混合物である。

【0087】

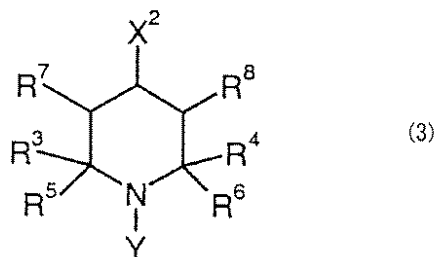
HALS型の立体障害のあるアミン、ベンゾトリアゾール、ベンゾトリアジンおよびベンゾピリミジンは特に好ましい。

50

【 0 0 8 8 】

好ましく用いられるHALS型の立体障害のあるアミンは(3)

【 化 4 】



10

(この式中、基はそれぞれ互いに独立して：

Y: H、アシル、0ラジカル、アルキル、アルケニル、アルコシアルキル、アリアルアルキル、

X²: -OR、NR₂、マレイミド、

R⁷およびR⁸は互いに独立して = H、アルキル、アルケニル、アリアルアルキル、好ましくは = H

R³、R⁴、R⁵、R⁶は互いに独立してH、アルキル、フェニル、アルキルアリアル、酸素、硫黄または窒素を含む芳香族複素環基；好ましくはR³ ~ R⁶はメチルである。)

に示される一般構造から誘導され得る。

20

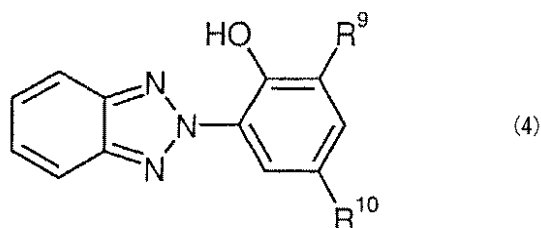
【 0 0 8 9 】

好ましく用いられるHALS安定剤は例えばUS 4895901、US 4210612およびUS 5015682に記述されている。

【 0 0 9 0 】

好ましく用いられるベンゾトリアゾールは一般的に(4)

【 化 5 】



30

に示される構造から誘導され得る。

【 0 0 9 1 】

この式中、R⁹およびR¹⁰は互いに独立してH、アルキル(特にメチル、エチル、プロピル)、シクロアルキル、ハロゲン、ハロアルキル、アルコシ、アルキレン、アリアル、アルキル-アリアルまたはこれらの組み合わせからなる群から選択され得る。

【 0 0 9 2 】

特に好ましくは、R⁹ = R¹⁰ = (2-フェニル)-イソプロピル、R⁹ = HおよびR¹⁰ = 2-(2,4,4-トリメチル)-ペンチル、R⁹ = HおよびR¹⁰ = メチル、R⁹ = R¹⁰ = t-ブチル、R⁹ = t-ブチルおよびR¹⁰ = メチル、R⁹ = R¹⁰ = 2-(2-メチル)-ブチル、R⁹ = iso-ブチルおよびR¹⁰ = 2-(2,4,4-トリメチル)-ペンチルである。

40

【 0 0 9 3 】

本発明による好ましく用いられる記述されているベンゾトリアゾールは市場で取引されている(例えばCiba Spezialchemikalien, Basle, SwitzerlandによってTinuvin^(登録商標)という商品名で)。

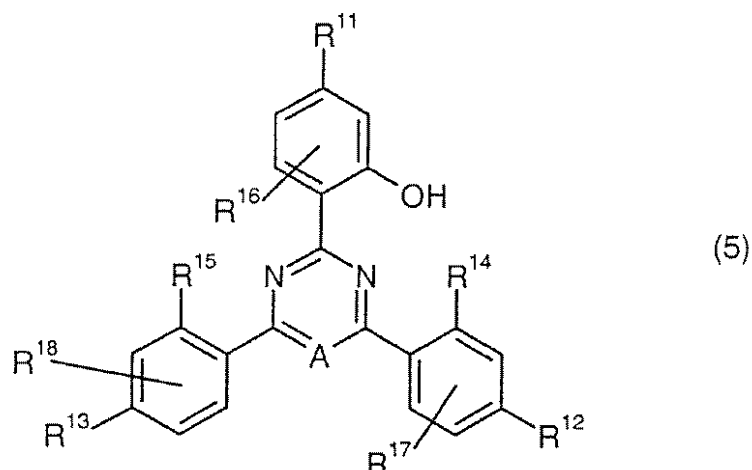
【 0 0 9 4 】

好ましくは用いられるヒドロキシフェニルtriaジンおよび-ピリミジン紫外線安定剤

50

はUS 6 239 276およびUS 5 597 854に記述されるようにトリアジンまたはピリミジン環に結合している二つのフェニル基および一つのレソルシノール基からなる。好ましく用いられるヒドロキシフェニルトリアジンおよび-ピリミジンは一般に(5)

【化6】



10

に示される一般構造から誘導されることができる。

【0095】

20

式(5)中、AはNまたはCHであり、R¹¹ ~ R¹⁸は互いに独立してH、アルキル(特にメチル、エチル、プロピル)、シクロアルキル、ハロゲン、ハロアルキル、アルコキシ、アルキレン、アリール、アルキル-アリールまたはこれらの組み合わせからなる群から選択されることができる。

【0096】

好ましく用いられる商業的に入手可能なヒドロキシフェニルトリアジン類似物の例はTinuvin^(登録商標) 1577 (CASナンバー147315-50-2, Ciba Spezialchemikalien, Basle, Switzerland)またはCyasorb^(登録商標) UV 1164 (Cyctec Industries)である。

【0097】

本発明による組成物は成分F)として常套の着色剤および/または顔料(例えば二酸化チタン、群青、酸化鉄、カーボンブラック、フタロシアニン、キナクリドン、ペリレン、ニグロシンおよびアントラキノンおよびそれらの誘導体)を含む。US-A 6 476 158に記述されている着色剤もまた、特に、屋外暴露後の光沢の改良に好適である。着色剤および/または顔料は物質としてまたはマスターバッチとして(例えば成分A)、成分B)、成分C)、ポリエチレン、ポリプロピレン、ワックスまたはパラフィン中に)添加されることができる。

30

【0098】

本発明による用いられる着色剤もまた例えばPlastics Additives Handbook, 5th edition, Hanser-Verlag, Munich, 2001, p. 822-850に記述されている。

【0099】

40

本発明によると、該組成物は成分G)として少なくとも一つのエポキシド基を有する少なくとも二官能価の、低分子量およびオリゴマー化合物からなる。

【0100】

成分Gとして好ましいエポキシド-含有化合物は、一般に:

【0101】

1. 少なくとも二つの遊離アルコール性のまたはフェノール性のヒドロキシル基および/またはフェノール性のヒドロキシル基およびアルカリ条件下または酸触媒の存在下、続くアルカリでの処理で適当に置換されたエピクロロヒドリンを有する化合物の反応によって得られるポリグリシジルまたはポリ-(-メチルグリシジル)エーテル。

【0102】

50

この型のエーテルは例えば非環式アルコールから(例えばエチレングリコール、ジエチレングリコール、およびより高いポリ-(オキシエチレン)グリコール、プロパン-1,2-ジオールまたはポリ-(オキシプロピレン)グリコール、プロパン-1,3-ジオール、ブタン1,4-ジオール、ポリ-(オキシテトラメチレン)グリコール、ペンタン-1,5-ジオール、ヘキサン-1,6-ジオール、ヘキサン-2,4,6-トリオール、グリセロール、1,1,1-トリメチロールプロパン、ビストリメチロールプロパン、ペンタエリトリールおよびソルビトール)およびポリエピクロロヒドリンから誘導される。

【0103】

しかしながら、それらは例えば脂環式アルコール(例えば1,3-または1,4-ジヒドロキシシクロヘキサン、ビス-(4-ヒドロキシシクロヘキシル)-メタン、2,2-ビス-(4-ヒドロキシシクロヘキシル)-プロパンまたは1,1-ビス-(ヒドロキシメチル)-シクロヘキサ-3-エン)からも誘導される、または芳香環(例えばN,N-ビス-(2-ヒドロキシエチル)-アニリンまたはp,p'-ビス-(2-ヒドロキシエチル-アミノ)-ジフェニルメタン)を有する。

10

【0104】

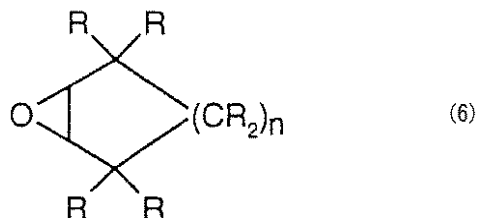
エポキシド化合物もまた単環フェノール(例えば、レスルシノールまたはヒドロキノン)から誘導されることができ、または多環フェノール(例えば、ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-メタン、2,2-ビス-(4-ヒドロキシフェニル)-プロパン、2,2-ビス-(3,5-ジブromo-4-ヒドロキシフェニル)-プロパンまたは4,4'-ジヒドロキシジフェニルスルホン、または酸性条件下で得られるフェノールのホルムアルデヒドとの濃縮物(例えばフェノール-ノボラック)に基づく。

20

【0105】

2. (6)

【化7】



30

(式(6)中、それぞれRは互いに独立してH、アルキル、アリール、ハロゲン、ハロゲノアルキル、アルコキシ、カルボアルコキシおよびカルボニルからなる群から選択されることができ、nは0~8、好ましくは0~2から選択されることができ。)
に示される構造断片を含む二官能価の、脂環式のエポキシドを含む化合物。

【0106】

本発明に基づいて任意に用いられてもよい脂環式エポキシドを含む化合物の種類からの好ましい例は3,4-エポキシシクロヘキシル3,4-エポキシシクロヘキシルカルボキシレート(Union Carbideからの商品ERL 4221)、ビス-(3,4-エポキシシクロヘキシルメチル)アジペート、ビニルシクロヘキセンジエポキシド、3,4-エポキシ-6-メチル-シクロヘキシルメチル3',4'-エポキシ-6'-メチルシクロヘキサンカルボキシレート、2,3-エポキシシクロヘキシル3,4-エポキシシクロヘキシルカルボキシレート、4-(3,4-エポキシ-5-メチルシクロヘキシル)-ブチル3',4'-エポキシシクロヘキシルカルボキシレートおよび3,4-エポキシ-シクロヘキシル-エチレンオキシドである。

40

【0107】

3. エピクロロヒドリンのアミンとの反応生成物の脱塩酸によって得られるポリ-(N-グリシジル)化合物。これらのアミンは、例えばアニリン、トルイジン、n-ブチルアミン、bis-(4-アミノフェニル)-メタン、m-キシリレンジアミンまたはbis-(4-メチルアミノフェニル)-メタン、さらにN,N,0-トリグリシジル-m-アミノフェノールまたはN,N,0-トリグリシジル-p-アミノフェノールである。

【0108】

50

ポリ-(N-グリシジル)化合物は、しかしながら、シクロアルキレン-尿素(例えばエチレン-尿素または1,3-プロピレン-尿素)のN,N'-ジグリシジル誘導体およびヒダントイン(例えば5,5-ジメチルヒダントイン)のN,N'-ジグリシジル誘導体も含む。

【0109】

好ましく用いられる窒素化合物は窒素を含む複素環化合物(例えばトリアジン、バルバピツル酸、ヒダントイン、ウラシル、ピロメリット酸ジイミド、ピペリジン、ピペラジン、ピペラジンジオンおよびイソシアヌレート)でもある。

【0110】

熱可塑性成形組成物は成分H)として一つの充填材または補強材または二以上の異なる充填材および/または補強材の混合物(例えば、タルク、雲母、シリケート、石英、二酸化チタン、ウォラストナイト、カオリン、非晶質シリカ、炭酸マグネシウム、白亜、長石、硫化バリウムおよびガラスビーズに基づく)および/または炭素繊維および/またはガラス繊維に基づく繊維充填材および/または繊維状補強材を含有してもよい。タルク、雲母、シリケート、石英、二酸化チタン、ウォラストナイト、カオリン、非晶質シリカ、炭酸マグネシウム、白亜、長石、硫化バリウムおよび/またはガラス繊維に基づく鉱物の粒状充填材が好ましく用いられる。本発明によると、タルク、ウォラストナイトおよび/またはガラス繊維に基づく鉱物の粒状充填材が特に好ましい。タルクに基づく充填材は最も好ましい。

10

【0111】

特に寸法安定性で等方性および高い熱寸法安定性が必要とされる使用(例えば、自動車の車体外装構成部分に関する使用)で鉱物充填材が好ましく、特に好ましくはタルク、ウォラストナイトまたはカオリンが用いられる。

20

【0112】

針状の鉱物充填材もまた特に好ましい。本発明によると、針状の鉱物充填材は大いに顕著な針状の特性をもつ鉱物充填材を意味するものとして理解される。針状のウォラストナイトは例として言及され得る。該鉱物は好ましくは2:1~35:1、特に好ましくは3:1~19:1、最も好ましくは4:1~12:1の長さ:直径比を有する。

【0113】

本発明による該針状鉱物の平均粒度は好ましくは20 μm よりも小さく、特に好ましくは15 μm よりも小さく、特別に好ましくは10 μm よりも小さく、最も好ましくは5 μm よりも小さい(CILAS GRANULOMETERで測定された)。

30

【0114】

タルクに基づく鉱物充填材は成分H)として最も好ましい。本発明の明細書では、タルクに基づく可能な鉱物充填材は当業者がタルクまたは滑石粉(talcum)と結びつく全ての粒状の充填材である。商業的に入手可能であり特徴としてタルクまたは滑石粉という用語を含む製品の記述を有する全ての粒状の充填材も可能である。

【0115】

DIN 55920による充填材の総重量に基づいて50 wt.%より大きい、好ましくは80 wt.%より大きい、特に好ましくは95 wt.%よりも大きいおよび特別に好ましくは98 wt.%より大きいタルクの含量を有する鉱物充填材が好ましい。

40

【0116】

タルクに基づく鉱物充填材もまた表面に処理される。例えば、それらは(例えばシランに基づく)定着剤系で仕上げることができる。

【0117】

本発明によるタルクに基づく用いられる鉱物充填材は好ましくは50 μm より小さく、好ましくは10 μm より小さく、特に好ましくは6 μm より小さく、および特別に好ましくは2.5 μm よりも小さい粒度または粗粒サイズの上限d97を有する。選択される平均粒度d50は好ましくは10 μm よりも小さく、好ましくは6 μm より小さく、特に好ましくは2 μm より小さく、および特別に好ましくは1 μm より小さい値である。充填材のd97とd50値はSEDIG RAPH D 5 000沈降分析またはDIN 66 165篩分け試験によって測定される。

50

【0118】

タルクに基づく粒状の充填材の平均アスペクト比(直径対厚さ)は好ましくは1~100、特に好ましくは2~25および特別に好ましくは5~25の範囲にあり、完成品の超薄形材の電子顕微鏡写真および見本量(およそ50)の充填材粒子の測定によって決定した。

【0119】

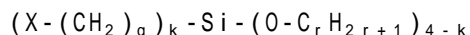
充填材および/または補強材は必要に応じて表面を例えば定着剤または定着剤系(例えばシランに基づく)で変性してもよい。しかしながら、前処理は絶対不可欠ではない。特に、もしガラス繊維が用いられるならば、ポリマー分散体、被膜形成剤、分枝剤および/またはガラス繊維加工助剤がシランに加えて使用されてもよい。

【0120】

本発明によると、一般に7と18 μm の間、好ましくは9と15 μm の間の繊維直径を有すガラス繊維も特に好ましく用いられ得る。これらは連続繊維としてまたはカットまたはすりれたガラス繊維として添加されることができ、繊維にとって好適なサイズ系でおよび定着剤または定着剤系(例えばシランに基づく)と共に仕上げるのが可能である。

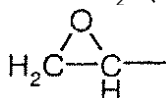
【0121】

前処理に関するあるサイズ系をもっている通常のシラン化合物は例えば一般式



(式中、置換基は以下の意味を有する:

x NH_2- 、 $\text{HO}-$ 、



q 2~10、好ましくは3~4の整数

r 1~5、好ましくは1~2の整数

k 1~3、好ましくは1の整数。)

を有する。

【0122】

好ましいシラン化合物はアミノプロピルトリメトキシシラン、アミノブチルトリメトキシシラン、アミノプロピルトリエトキシシラン、アミノブチルトリエトキシシランおよび置換基Xとしてグリシジル基を含む類似するシランである。

【0123】

該シラン化合物は鉱物充填材に基づいて0.05~2 wt.%, 好ましくは0.5~1.5 wt.%および特に0.8~1 wt.%の量で一般的に表面塗に使用されることができる。

【0124】

成形組成物または造形品を生み出す処理のおかげで、粒状充填材は成形組成物でまたは造形品で元来用いられる充填材よりも低いd97またはd50値を有することができる。成形組成物または造形品を生み出す処理のおかげで、ガラス繊維は生成組成物でまたは造形品で元来用いられるよりもより短い長さ分布を有することができる。

【0125】

完成品での粒子の直径は現在、例えば、ポリマー混合物の薄形材の電子顕微鏡写真記録および測定のための少なくとも25、好ましくは少なくとも50の充填材粒子の使用によって測定される。

【0126】

本発明による組成物はさらに成分I)として一般に成形組成物の総重量に基づいて15 wt.%まで、好ましくは0.01~10 wt.%, 特に好ましくは0.05~5 wt.%, 特別に好ましくは0.1~3 wt.%の量で添加されることができる常套の添加物を含有してもよい。

【0127】

全ての常套の添加物(例えば安定剤(例えば熱安定剤)、帯電防止剤、流動剤、離型剤、防火加工添加剤、乳化剤、核剤、可塑剤、滑剤、pHを低くさせる添加剤(例えばカルボキシル基を含む化合物)および導電率を上げる添加剤)はここで可能性がある。ここで挙げた

10

20

30

40

50

添加剤およびさらに好適な添加剤は例えばGaechter, Mueller, Kunststoff-Additive, 3rd edition, Hanser-Verlag, Munich, Vienna, 1989に記述されている。該添加剤はそれ自身でまたは混合物としてまたはマスターバッチの形態で用いられ得る。該添加物は混合および/または表面に適用され得る。

【0128】

用いられることができる安定剤は、例えば立体障害のあるフェノールおよび/またはホスフィット、ヒドロキノン、芳香族第二級アミン(例えばジフェニルアミン)、置換レソルシノール、サリチル酸エステル、ベンゾトリアゾールおよびベンゾフェノン、およびこれらの群の種々に置換された類似物およびそれらの混合物である。

【0129】

用いられることができる核剤は例えばナトリウムフェニルホスフィネート(sodium phenyl phosphinate)、酸化アルミニウム、二酸化ケイ素および、好ましくはタルクおよび上記の核剤である。

【0130】

用いられることができる滑剤および離型剤はエステルワックス、ステアリン酸ペンタエリスリチル(PETS)、長鎖脂肪酸(例えばステアリン酸またはベヘン酸)、それらの塩(例えばステアリン酸CaまたはZn)およびアミド誘導体(例えばエチレン-ビス-ステアリルアミド)またはモンタンワックス(28~32のC原子を有する直鎖、飽和カルボン酸の混合物)および低分子量ポリエチレンまたはポリプロピレンワックスである。

【0131】

用いられることができる可塑剤は、例えば、フタル酸ジオクチルエステル、フタル酸ジベンジルエステル、フタル酸ブチルベンジルエステル、炭化水素油およびN-(n-ブチル)ベンゼンスルホンアミドである。

【0132】

導電性の成形組成物を得るために、カーボンブラック、導電率ブラック(conductivity blacks)、炭素繊維、ナノスケールの黒鉛繊維(ナノチューブ)、黒鉛、導電性ポリマー、金属繊維および他の導電性増加に関する常套の添加物が添加されることができる。

【0133】

用いられることができる防災加工剤は協力剤を含む商業的に入手可能な有機ハロゲン化合物または商業的に入手可能な有機窒素化合物または有機/無機燐化合物(個々にまたは混合物で)である。無機の防災加工添加剤(例えば水酸化マグネシウムまたは炭酸Ca/Mg水和物(例えばDE-A 4 236 122))もまた用いられることができる。言及され得るハロゲンを含む化合物、特に臭化および塩化化合物の例は:エチレン-1,2-ビステトラプロモフタルイミド、エポキシ化テトラプロモビスフェノールA樹脂、テトラプロモビスフェノールAオリゴカーボネート、テトラクロロビスフェノールAオリゴカーボネート、ペンタプロモポリアクリレートおよび臭化ポリスチレンである。好適な有機燐化合物はWO-A 98/17720による燐化合物(例えばトリフェニルホスフェート(TPP))、オリゴマーを含むレソルシノールビス-(ジフェニルホスフェート)およびオリゴマーを含むビスフェノールAビス-ジフェニルホスフェート(例えばEP-A 0 363 608およびEP-A 0 640 655参照)、メラミンホスフェート、メラミンピロホスフェート、メラミンポリホスフェートおよびそれらの混合物である。可能な窒素化合物は、特に、メラミンおよびメラミンシアヌレートである。好適な協力剤は例えばアンチモン化合物(特に三酸化アンチモンおよび五酸化アンチモン)亜鉛化合物、錫化合物(例えば錫化錫(tin stannate)およびホウ化錫)である。炭素を形作る薬品(carbon-forming agents)およびテトラフルオロエチレンポリマーを添加することができる。任意に協力剤(例えばアンチモン化合物)を含んでもよい防災加工剤および防滴剤、は一般的に30 wt.%, 好ましくは20 wt.%までの量で用いられる(組成物の総量に基づいて)。

【0134】

補強材(例えばガラス繊維の形態で)もまた添加剤として添加することができる。

【0135】

本発明はさらに組成物の調製方法、半完成品および成形品の製造のための本発明による

10

20

30

40

50

組成物の使用およびこれらから製造される半完成品および成形品も提供する。

【0136】

本発明による組成物は成分を混ぜることによる既知の方法で調製される。個々の成分を前もって混ぜ合わせることは都合がよいかもしれない。前もって混ぜ合わせることはここでドライブレンドとしておよび成分の接合部混練、押出または練りによるもの両方で行うことができる。個々の成分を混ぜ合わせることは、特に安定剤、添加剤および着色剤は、さらにすでに本発明による用いられるポリマーの合成中に行われることができる。成分A～Dおよびさらなる成分の混合は好ましくは220～330の温度で成分の接合部混練、押出または練りによって達成される。

【0137】

本発明による組成物は常套の方法によって全ての型の半完成品または成形品に加工できる。言及され得る加工方法の例は押出方法および射出成形方法である。言及され得る半完成品の例はフィルムおよびシートである。

【0138】

高い色の均質性のため、成形品は視覚的におよび光学的に重要な用途に特に好適である。本発明によると、該成形品はノンラッカー形態にまたは透明のクリアラッカー系で被覆された形態に用いられることができる。しかしながら、該成形品はもちろん着色ベースラッカーを塗られてもよい。該成形品は小さい部品でも大きい部品でもよく、外装用途にも内装用途にも用いられ得る。好ましくは、大きい部品形成品は乗り物構造、特に自動車の分野のために供給される。特に車体外装部品(例えばマッドガード、テールゲート、エンジンボンネット、バンパー、ローディングエリア/loading area)、ローディングエリアのカバー、カールーフ、エアインテークグリル(air intake grill)、スポイラーまたは他の車体部品)もまた本発明による該成形組成物から製造されることができる。

【0139】

本発明による成形組成物/組成物からの成形品または半完成品もまたさらなる材料(例えば金属またはプラスチック)を含む複合材料であり得る。本発明による成形組成物または本発明による成形組成物からの成形品/半完成品は完成品(例えば車体外装部品)の製造のために他の材料またはそれら自身を含む複合材料で用いられることができる(いくつかの成分または部品の結合および接合の常套の技術(例えば同時押出、フィルムの下での押出成形、埋封成分の周りでの押出成形、接着、溶接、スクリーディング(screwing)または締め付け)によって)。

【0140】

本発明による成形組成物もまたさらなる非常に多くの用途に用いられ得る。言及され得る例は電気工学(electrical and electronics engineering)でおよび構造分野での使用である。本発明による成形組成物からの成形品は言及される用途(例えばランプカバーとして、安全ガラス(safety pane)として、電子機器に関するハウジング材料として、家庭向きの機器に関するハウジング材料としておよびカバーの生産に関するシートとして)の分野で用いられることができる。

【0141】

本発明による組成物は非常に良好な色彩均質性によっておよび非常に良好な耐候安定性によって特徴づけられる。それらはさらに加工安定性、熔融液の流動性、靱性、低温での靱性、剛性、加熱撓み温度、熱膨張、表面の品質、ラッカー可能性、耐薬品性および耐燃料油性について高い要求を満たす。

【0142】

実施例

成分A

ポリブチレンテレフタレートタイプA1:成分Aは0.93 cm³/gの極限粘度数IVを有する、Bayer AG, Leverkusenからの工業製品Pocan^(登録商標)B1300ポリブチレンテレフタレートである。

【0143】

極限粘度数はフェノール/ο-ジクロロベンゼン(1:1重量部)の中で25 で測定した。

【0144】

成分B

ポリカーボネートタイプB1:

およそ1.29(測定条件:1リットルの塩化メチレンあたり5 gポリカーボネート、25)の rel.の粘度およびおよそ29,000 g/mol(ポリカーボネート標準に対してGPC方法によって測定した)の分子量Mwを有するビスフェノールAに基づく直鎖ポリカーボネート(Bayer AG, Leverkusen, GermanyからのMakrolon^(登録商標) 2405)。

【0145】

成分C1

成分C1はRohm und Haas Deutschland GmbH, FrankfurtからのParaloid^(登録商標) EXL 2650である。

10

【0146】

成分C2

成分C2は75 wt.%のポリブタジエン含量およびシェル中28 wt.%のスチレン含量を有するBayer AG, Leverkusenの中間生成物、ポリブタジエンのグラフトベース上のアクリロニトリルおよびスチレンのグラフトコポリマーである。

【0147】

類似成分V1

類似成分V1はCrompton Corporation, Crompton GmbH Deutschland, BergkamenからのAESゴムRoyaltuf^(登録商標) 970 E(以前の名称Blendex^(登録商標) WX 270)である。

20

【0148】

成分D1

成分D1は部分的に架橋したポリアクリル酸ブチルのグラフトベース上のアクリロニトリルおよびスチレンのグラフトコポリマー、Bayer Corp., Pittsburghの中間生成物Centrex^(登録商標) 57 WBAである。

【0149】

成分D2

成分D2はRohm & Haas Deutschland, FrankfurtからのParaloid^(登録商標) EXL 3361(部分的に架橋したアクリレートコアに基づくコア/シェル耐衝撃性改良剤)である。

30

【0150】

成分E

成分EはCiba Geigy, BasleからのTinuvin^(登録商標) 350である。

【0151】

成分F

成分FはCabot GmbH, Hanauからのカーボンブラック、タイプBlack Pearls^(登録商標) 800である。

【0152】

成分G

成分GはHuntsman Advanced Materials Deutschland GmbH, BergkamenからのAraldit^(登録商標) GT 7071(フェノール/エピクロロヒドリン反応生成物に基づく加水分解安定剤)である。

40

【0153】

加えて、商業的に入手可能な加工助剤が添加剤として用いられる。

【0154】

配合作業は250~290 の熔融温度でタイプZSK32 (Werner und Pfleiderer)の二軸スクリュウ押出機で行った。

【0155】

試験片はタイプArburg 320-210-500の射出成形機で260~280 の熔融温度および70~90の成形温度で射出成形された。

50

【0156】

本発明による成形組成物は以下の方法：

ビカー (Vicat) B: DIN ISO 306/B 120によるシリコン油の中での加熱撓み安定性または加熱撓み温度

アイゾッド衝撃強さ: ISO 180メソッド1 Uによる -30 °Cでの靱性

ノッチ付アイゾッド衝撃強さ: ISO 180メソッド1 Aによる23 °Cでの靱性

DIN / EN / ISO 527-2/1Aによる引張E弾性率および引張強さ

MVR: DIN/ISO 1133による260 °Cおよび5 kgでの流動性

色彩均質性: 視覚評価による表面の色彩均質性の測定

「+」は流れの方向と垂直な色彩強度の少ないすじ(タイガーストライプ)の形成がない均質の色彩を意味する 10

「0」は流れの方向と垂直な色彩強度の少ないわずかなすじの形成がある大部分は均質の色彩を意味する

「-」は流れの方向と垂直な激しいすじの形成がある非均質の彩色を意味する

色彩の均質性の評価は270 °Cの溶融温度、80 °Cの成形温度および105 mm辺のフィルムゲートを通して50 mm/sの充填速度で生産された150×105×1.6 mmのシートで行われた試験された。

【0157】

表1からわかるように本発明による成形組成物は非常に良好な色彩の均質性および良好な加水分解安定性(加水分解後初期の引張強度の>60%)と同時に良好な機械的性質の要求される組み合わせを有する。比較例2および3と比較して、本発明による成形組成物は紫外線に対してより大きく安定である、なぜならば紫外線敏感成分Cが大きく少ないからである。 20

【0158】

本発明による組成物および熱可塑性成形組成物の性質は表1からわかる。

【表 1】

Table 1

実施例		実施例1	実施例2	実施例3	組成物1	組成物2	組成物3	組成物4	組成物5	組成物6
成分A、PBT	[%]	35.9	35.9	34.4	34.4	34.4	35.9	35.9	35.9	35.9
成分B、PC	[%]	50.0	50.0	50.0	50.0	50.0	50.0	50.0	50.0	50.0
成分C1	[%]	6	--	6	--	12	--	--	--	--
成分C2	[%]	--	6	--	--	--	12	--	--	--
成分V1	[%]	--	--	--	6	--	--	12	--	--
成分D1	[%]	6	6	--	--	--	--	--	12	--
成分D2	[%]	--	--	6	6	--	--	--	--	12
成分E	[%]	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
成分F	[%]	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
成分G	[%]	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
添加剤	[%]	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
ビカーB	[°C]	116	116	114	119	91	114	115	119	120
アイソッド衝撃強さ -30°C	[kJ/m ²]	n.b.*)	n.b.*)	9 x n.b.*) 1 x 120	9 x n.b.*) 1 x 47	n.b.*)	n.b.*)	9 x n.b.*) 1 x 128	n.b.*)	9 x n.b.*) 1 x 139
ノッチ付き アイソッド衝撃強さ 23°C	[kJ/m ²]	31.4	34.9	20	38	32.7	40.4	37.7	16.1	42.9
引張弾性率	[MPa]	2270	2270	2220	2230	2130	2230	2230	2340	2170
引張強さ	[MPa]	57.1	55.2	57	52.7	55	54.6	50.8	56.6	54.8
加水分解後の 引張強さ (100% r.h., 100°C, 10 d)	[MPa]	46.1	38.1	58.2	34.3	59.5	39.9	14.2	58.0	56.4
MVR (260°C/5 kg)	[cm ³ /10 mm]	19.3	15.0	21.7	21.3	12.4	18.2	17.4	12.9	22
色彩の均質性		+	+	0	-	+	+	-	0	0

*n.b. = 非破断

10

20

30

40

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.
PCT/EP2004/012901

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
IPC 7	C08L67/02	C08L69/00 C08K5/3462 C08K3/00
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	C08L	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, WPI Data		
G. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP 0 787 769 A (GENERAL ELECTRIC COMPANY) 6 August 1997 (1997-08-06) cited in the application	1-10
Y	page 5, line 15 - line 23; claims 1-10; example 1; table 1	1-10
Y	US 5 461 092 A (LAUGHNER ET AL) 24 October 1995 (1995-10-24)	1-10
Y	claims 1-20; example 1; table 1	1-10
<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 *G* document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the international search report
30 March 2005		06/04/2005
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel: (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer Feldmann, G

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP2004/012901

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0787769	A	06-08-1997	DE 69715695 D1	31-10-2002
			DE 69715695 T2	26-02-2004
			EP 0787769 A2	06-08-1997
			ES 2184028 T3	01-04-2003
			JP 9302206 A	25-11-1997
US 5461092	A	24-10-1995	US 5369154 A	29-11-1994
			US 5308894 A	03-05-1994
			AU 652559 B2	01-09-1994
			AU 7671491 A	11-11-1991
			BR 9106347 A	20-04-1993
			CA 2080356 A1	13-10-1991
			DE 69117504 D1	04-04-1996
			DE 69117504 T2	11-07-1996
			EP 0525051 A1	03-02-1993
			JP 3208485 B2	10-09-2001
			JP 5506264 T	16-09-1993
			WO 9116379 A1	31-10-1991

INTERNATIONALER RESEARCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2004/012901

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 7 C08L67/02 C08L69/00 C08K5/3462 C08K3/00		
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK		
B. RESEARCHIERTE GEBIETE		
Researchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPK 7 C08L C08K		
Researchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die researchierten Gebiete fallen		
Während der Internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) EPO-Internal, WPI Data		
C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	EP 0 787 769 A (GENERAL ELECTRIC COMPANY) 6. August 1997 (1997-08-06) in der Anmeldung erwähnt	1-10
Y	Seite 5, Zeile 15 - Zeile 23; Ansprüche 1-10; Beispiel 1; Tabelle 1	1-10
Y	US 5 461 092 A (LAUGHNER ET AL) 24. Oktober 1995 (1995-10-24)	1-10
Y	Ansprüche 1-20; Beispiel 1; Tabelle 1	1-10
<input type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen <input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie		
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : *A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist *E* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist *L* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) *O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht *P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist *T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist *X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden *Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist *Z* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist		
Datum des Abschlusses der Internationalen Recherche 30. März 2005		Absenddatum des Internationalen Recherchenberichts 06/04/2005
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Bediensteter Feldmann, G

INTERNATIONALE RESEARCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2004/012901

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0787769 A	06-08-1997	DE 69715695 D1	31-10-2002
		DE 69715695 T2	26-02-2004
		EP 0787769 A2	06-08-1997
		ES 2184028 T3	01-04-2003
		JP 9302206 A	25-11-1997
US 5461092 A	24-10-1995	US 5369154 A	29-11-1994
		US 5308894 A	03-05-1994
		AU 652559 B2	01-09-1994
		AU 7671491 A	11-11-1991
		BR 9106347 A	20-04-1993
		CA 2080356 A1	13-10-1991
		DE 69117504 D1	04-04-1996
		DE 69117504 T2	11-07-1996
		EP 0525051 A1	03-02-1993
		JP 3208485 B2	10-09-2001
		JP 5506264 T	16-09-1993
		WO 9116379 A1	31-10-1991

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, 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, IS, IT, LU, MC, NL, PL, 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, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, 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, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW

(72)発明者 ペーター・ペルジゲール

中華人民共和国 2 1 4 1 2 1 ジャンス、ウシ、ウシ・タイフ・ベニス・ガーデン、ベニス 4 2 番

(72)発明者 フリーデマン・パウル

ドイツ連邦共和国デー - 5 1 4 6 9 ベルギッシュ・グラートバッハ、ペーター - ヴァルターシャイト - シュトラッセ 6 5 番

(72)発明者 ウルス - ペーター・ドルシュ

ドイツ連邦共和国デー - 4 1 5 4 0 ドルマゲン、プファウエンシュトラッセ 3 8 番

(72)発明者 ハンス - ユルゲン・ティーム

ドイツ連邦共和国デー - 4 1 5 3 9 ドルマゲン、ケーニヒスベルガー・シュトラッセ 1 1 番

F ターム(参考) 4J002 BN063 BN124 CF05W CG01X CG02X DE077 DJ007 DJ017 DJ047 DJ057

EJ016 EN006 EU176 EU186 FD017 FD056