

(19)



Bureau voor de
Industriële Eigendom
Nederland

(11) 1017774

(12) C OCTROOI²⁰

(21) Aanvraag om octrooi: 1017774

(22) Ingediend: 04.04.2001

(51) Int.Cl.⁷

C08K5/00, C08K5/16, C08L23/06,
C08L23/12

(30) Voorrang:
04.04.2000 EP 00810290

(41) Ingeschreven:
05.10.2001

(47) Dagtekening:
16.10.2001

(45) Uitgegeven:
03.12.2001 I.E. 2001/12

(73) Octrooihouder(s):
Ciba Specialty Chemicals Holding Inc. te Bazel,
Zwitserland (CH).

(72) Uitvinder(s):
François Gugumus te Allschwil (CH)

(74) Gemachtigde:
Dr. R. Jorritsma c.s. te 2517 KZ Den Haag.

(54) Synergistische mengsels van UV-absorptiemiddelen in polyalkenen.

- (57) De onderhavige uitvinding heeft betrekking op polyalkeensam stellingen die als UV-absorptiemiddel een synergistisch mengsel omvatten van;
- ten minste een hydroxybenzofenon en ten minste een 2-hydroxyfenylbenzotriazool, met dien verstande dat de polyalkeen polyetheen met hoge dichtheid van het 'Phillips'-type of eenpolyetheen van het metalloceen-type is;
 - ten minste een hydroxybenzofenon en ten minste een 2-hydroxyfenyltriazine, met dien verstande dat als de polyalkeen polypropeen is, geen polyvinylpyridine aanwezig is;
 - ten minste een hydroxybenzofenon en ten minste een oxanilide;
 - ten minste een 2-hydroxyfenylbenzotriazool en ten minste een oxanilide;
 - ten minste een 2-hydroxyfenyltriazine en ten minste een oxanilide;
 - ten minste een hydroxybenzofenon, ten minste een 2-hydroxyfenylbenzotriazool en ten minste een oxanilide;
 - ten minste een hydroxybenzofenon, ten minste een oxanilide en ten minste een 2hydroxyfenyltriazine;
 - ten minste een 2-hydroxyfenylbenzotriazool, ten minste een oxanilide en ten minste een 2-hydroxyfenyltriazine.

NL C 1017774

De inhoud van dit octrooi komt overeen met de oorspronkelijk ingediende beschrijving met conclusie(s) en eventuele tekeningen.

Synergistische mengsels van UV-absorptiemiddelen in polyalkenen

De onderhavige uitvinding heeft betrekking op nieuwe polyalkeensamenstellingen die mengsels van verschillende UV-absorptiemiddelen bevatten.

- 5 De effecten van atmosferische zuurstof, vocht en in het bijzonder UV-licht resulteren in de afbraak van polymeermateriaal. Dit uit zich bijvoorbeeld door een verlies van mechanische sterkte, veranderingen in kleur en tenslotte volledige afbraak van het voorwerp van polymeren. Zoals bekend is, is het mogelijk dergelijke afbraakprocessen in polyalkenen te vertragen door de toepassing van geschikte stabilisatoren en er zijn
- 10 talrijke documenten in de stand der techniek op dit gebied.

Op het gebied van bekledingen wordt in EP-A-0453396 beschreven dat mengsels van hydroxyfenylbenzotriazool- met hydroxybenzofenon- of met hydroxyfenyl-s-triazine-UV-absorptiemiddelen leiden tot synergistische mengsels die de levensduur van de bekledingen onverwacht lang tegen afbraak beschermen.

- 15 Hoewel er documenten uit de stand der techniek zijn, zoals FR 2619814, waarin generisch de gecombineerde toepassing van oxaalamide-UV-absorptiemiddelen, in het bijzonder in bekledingen, met benzofenon- of benzotriazool-UV-absorptiemiddelen wordt beschreven is er echter geen suggestie in de stand der techniek voor de onderhavige combinaties in polyalkenen.

- 20 Thans is gevonden dat bepaalde combinaties van UV-absorptiemiddelen met verschillende chemische structuren in staat zijn tot het in hoofdzaak voorkomen van de afbraak van polyalkenen.

- De combinaties volgens de onderhavige uitvinding verschaffen een onverwacht synergistisch stabilisatie-effect voor voorwerpen van polyalkenen. Het effect is niet
- 25 voorspelbaar uit de absorptiespectra en is niet waargenomen met andere combinaties van UV-absorptiemiddelen in polyalkenen.

Een onderwerp van de onderhavige uitvinding is een polyalkeensamenstelling die als UV-absorptiemiddel een mengsel omvat van

- a) ten minste een hydroxybenzofenon en ten minste een 2-hydroxyfenylbenzotriazool, met dien verstande dat de polyalkeen polyetheen met hoge dichtheid van
- 30 het "Phillips"-type of een polyetheen van het metallocen-type is;
- b) ten minste een hydroxybenzofenon en ten minste een 2-hydroxyfenyltriazine, met

dien verstande dat als de polyalkeen polypropeen is, geen polyvinylpyridine aanwezig is;

- c) ten minste een hydroxybenzofenon en ten minste een oxanilide;
- d) ten minste een 2-hydroxyfenylbenzotriazool en ten minste een oxanilide;
- 5 e) ten minste een 2-hydroxyfenyltriazine en ten minste een oxanilide;
- f) ten minste een hydroxybenzofenon, ten minste een 2-hydroxyfenylbenzotriazool en ten minste een oxanilide;
- g) ten minste een hydroxybenzofenon, ten minste een oxanilide en ten minste een 2-hydroxyfenyltriazine; of
- 10 h) ten minste een 2-hydroxyfenylbenzotriazool, ten minste een oxanilide en ten minste een 2-hydroxyfenyltriazine.

Geschikte polyalkenen worden hieronder genoemd.

1. Polymeren van mono- en dialkenen, bijvoorbeeld polypropeen, polyisobuteen, polybuteen-1, poly-4-methylpenteen-1, polyisopreen of polybutadieen, alsook polymere-
 15 ren van cycloalkenen, zoals bijvoorbeeld van cyclopenteen of norborneen; verder polyetheen (dat eventueel kan zijn verknoopt), bijvoorbeeld polyetheen met hoge dichtheid (HDPE), polyetheen met hoge dichtheid en een hoog molecuulgewicht (HDPE-HMW), polyetheen met hoge dichtheid en een ultrahoog molecuulgewicht (HDPE-UHMW), polyetheen met gemiddelde dichtheid (MDPE), polyetheen met lage dichtheid (LDPE),
 20 lineair polyetheen met lage dichtheid (LLDPE), (VLDPE) en (ULDPE), metallocceen-polyetheen (m-PE), in het bijzonder m-LLDPE, en metallocceen-polypropeen (m-PP).

Polyalkenen, d.w.z. de polymeren van monoalkenen die zijn weergegeven in de voorgaande alinea, in het bijzonder polyetheen en polypropeen, kunnen worden bereid volgens verschillende, en in het bijzonder de volgende, werkwijzen:

- 25 a) radikaal-polymerisatie (gewoonlijk onder hoge druk en bij verhoogde temperatuur).
- b) katalytische polymerisatie onder toepassing van een katalysator die gewoonlijk een of meer metalen uit de groepen IVb, Vb, VIb of VIII van het Periodiek Systeem bevat. Deze metalen hebben gewoonlijk een of meer liganden, zoals
 30 oxiden, halogeniden, alcoholaten, esters, ethers, aminen, alkylgroepen, alkenylgroepen en/of arylgroepen, die ofwel een π - of een σ -coördinatie kunnen hebben. Deze metaalcomplexen kunnen in de vrije vorm zijn of ze kunnen zijn geïxiceerd op dragers, zoals bijvoorbeeld op geactiveerd magnesiumchloride, ti-

taan(III)chloride, aluminiumoxide of siliciumoxide. Deze katalysatoren kunnen oplosbaar of onoplosbaar zijn in het polymerisatie-medium. De katalysatoren kunnen als zodanig bij de polymerisatie actief zijn of er kunnen verdere activeermiddelen worden gebruikt, zoals bijvoorbeeld metaalalkylen, metaalhydri-
 5 den, metaalalkylhalogeniden, metaalalkyloxiden of metaalalkyloxanen, waarbij deze metalen elementen zijn van de groepen Ia, IIa en/of IIIa van het Periodiek Systeem. De activeermiddelen kunnen bijvoorbeeld met verdere ester-, ether-, amine- of silylether-groepen zijn gemodificeerd. Deze katalysator-systemen worden gewoonlijk als Phillips-, Standard Oil Indiana-, Ziegler(-Natta)-, TNZ
 10 (DuPont)-, metallocen- of Single-Site-katalysatoren (SSC) aangeduid.

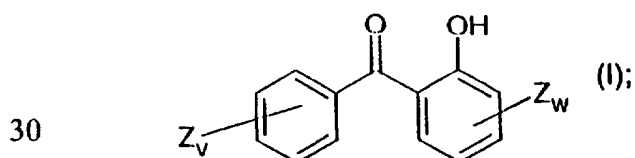
2. Mengsels van de polymeren die onder 1) zijn genoemd, bijvoorbeeld mengsels van polypropreen met polyisobuteen, polypropreen met polyetheen (bijvoorbeeld PP/HDPE, PP/LDPE) en mengsels van verschillende soorten polyetheen (bijvoorbeeld LDPE/HDPE), metallocen-soorten met gebruikelijke soorten (bijvoorbeeld m-PE/
 15 PE-LLD, m-PE/PE-LD, m-PP/gebruikelijk PP).

De polyalkeen is bij voorkeur polyetheen of polypropreen.

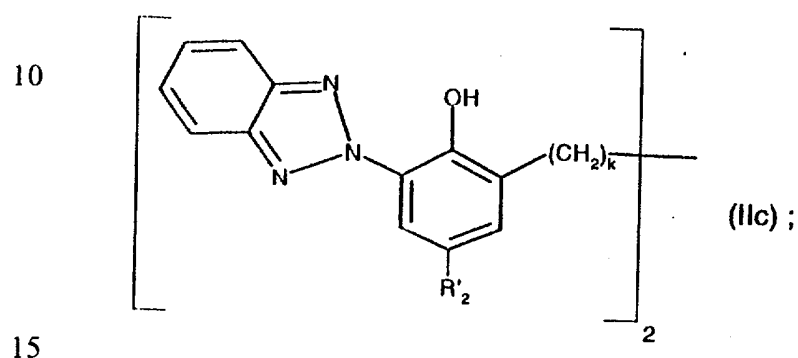
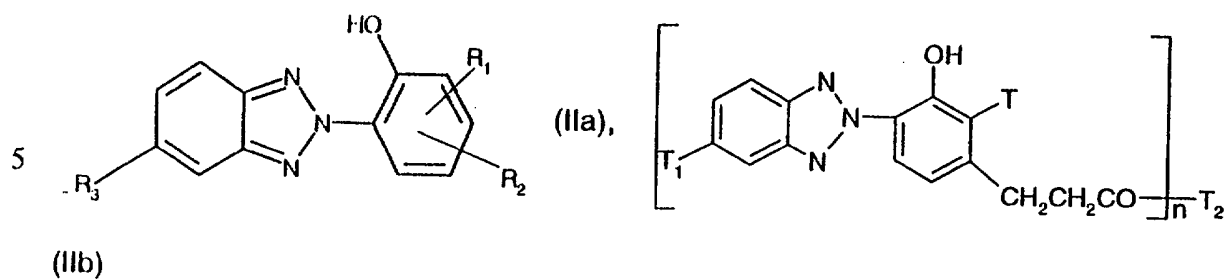
Mengsels van UV-absorptiemiddelen die de voorkeur hebben zijn:

- a) ten minste een hydroxybenzofenon en ten minste een 2-hydroxyfenylbenzotri-
 20 azool, met dien verstande dat de polyalkeen polyetheen met hoge dichtheid van het "Phillips"-type of een polyetheen van het metallocen-type is;
- b) ten minste een hydroxybenzofenon en ten minste een 2-hydroxyfenyltriazine, met dien verstande dat als de polyalkeen polypropreen is, geen polyvinylpyridine aanwezig is en;
- e) ten minste een 2-hydroxyfenyltriazine en ten minste een oxanilide.

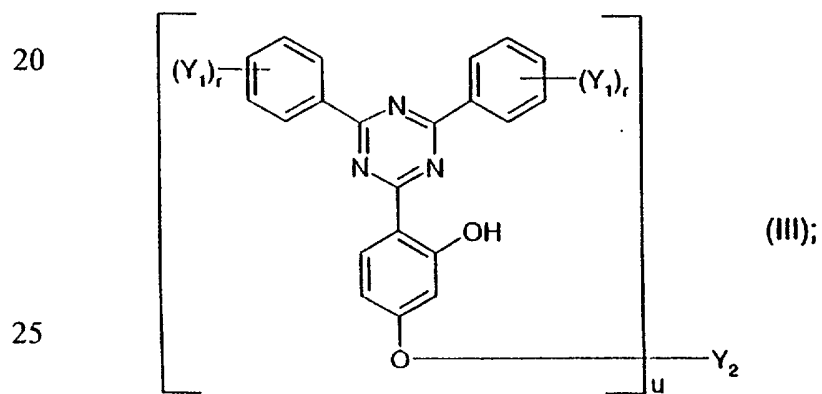
25 Polyalkeensamenstellingen die de voorkeur hebben zijn die waarbij het hydroxybenzofenon de formule I heeft



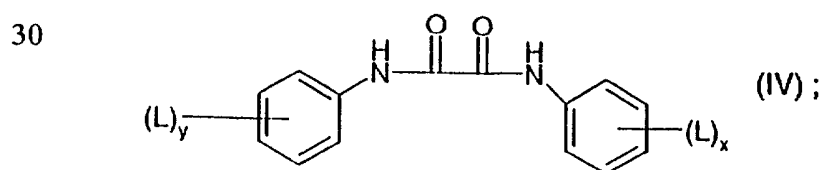
de 2-hydroxyfenylbenzotriazool de formule IIa, IIb of IIc heeft



het 2-hydroxyfenyltriazine de formule III heeft



en het oxanilide de formule (IV) heeft

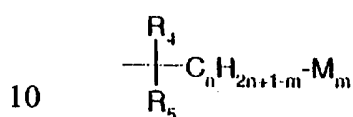


waarbij

in de verbindingen met de formule (I) v een geheel getal van 1 tot 3 is en w 1 of 2 is en de substituenten Z onafhankelijk van elkaar waterstof, halogeen, hydroxyl of alkoxy met 1 tot 12 koolstofatomen zijn;

5 in de verbindingen met de formule (IIa),

R₁ waterstof, alkyl met 1 tot 24 koolstofatomen, fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest, cycloalkyl met 5 tot 8 koolstofatomen of een rest met de formule



is, waarbij

R₄ en R₅ onafhankelijk van elkaar alkyl met in ieder geval 1 tot 5 koolstofatomen zijn, of R₄, samen met de rest C_nH_{2n+1-m}, een cycloalkylrest met 5 tot 12 koolstofatomen

15 vormt,

m 1 of 2 is, n een geheel getal van 2 tot 20 is en

M een rest met de formule -COOR₆ is, waarbij

R₆ waterstof, alkyl met 1 tot 12 koolstofatomen, alkoxyalkyl met in ieder geval 1 tot 20 koolstofatomen in de alkylrest en in de alkoxyrest of fenylalkyl met 1 tot 4 koolstof-
20 atomen in de alkylrest is,

R₂ waterstof, halogeen, alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen en fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest is en

R₃ waterstof, chloor, alkyl of alkoxy met in ieder geval 1 tot 4 koolstofatomen of -COOR₆ is, waarbij R₆ is zoals hierboven gedefinieerd, waarbij ten minste een van de

25 resten R₁ en R₂ geen waterstof is;

in de verbindingen met de formule (IIb)

T waterstof of alkyl met 1 tot 6 koolstofatomen is,

T₁ waterstof, chloor of alkyl of alkoxy met in ieder geval 1 tot 4 koolstofatomen is, n 1 of 2 is en

30 als n 1 is,

5 T_2 chloor of een rest met de formule $-OT_3$ of $\begin{array}{c} T_4 \\ \diagup \\ -N \\ \diagdown \\ T_5 \end{array}$ is en

10 als n 2 is, T_2 een rest met de formule $\begin{array}{c} \diagup \\ N \\ \diagdown \\ T_6 \end{array} - T_{10} - \begin{array}{c} \diagup \\ N \\ \diagdown \\ T_6 \end{array}$ of $-O-T_9-O-$ is, waarbij

15 T_3 waterstof, alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen dat ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met 1 tot 3 hydroxylgroepen of met $-OCOT_6$, alkyl met 3 tot 18 koolstofatomen, dat een keer of vaker onderbroken is door $-O-$ of $-NT_6-$ en ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met hydroxyl of $-OCOT_6$, cycloalkyl met 5 tot 12 koolstofatomen dat ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met hydroxyl en/of alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen, alkenyl met 2 tot 18 koolstofatomen dat ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met hydroxyl, fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest,

20 of een rest met de formule $-CH_2CH(OH)-T_7$ of $\begin{array}{c} O \\ \diagup \quad \diagdown \\ -C-CH-CH_2 \\ | \\ H_2 \end{array}$ is,

25 T_4 en T_5 onafhankelijk van elkaar waterstof, alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, alkyl met 3 tot 18 koolstofatomen dat een keer of vaker is onderbroken door $-O-$ of $-NT_6-$, cycloalkyl met 5 tot 12 koolstofatomen, fenyl, fenyl dat is gesubstitueerd met alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen, alkenyl met 3 tot 8 koolstofatomen, fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest of hydroxyalkyl met 2 tot 4 koolstofatomen zijn,

30 T_6 waterstof, alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, cycloalkyl met 5 tot 12 koolstofatomen, alkenyl met 3 tot 8 koolstofatomen, fenyl, fenyl dat is gesubstitueerd met alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen, fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest is,

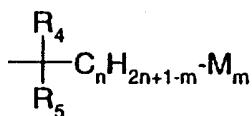
T_7 waterstof, alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, fenyl dat ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met hydroxyl, fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest of $-CH_2OT_8$ is,

- T_8 alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, alkenyl met 3 tot 8 koolstofatomen, cycloalkyl met 5 tot 10 koolstofatomen, fenyl, fenyl dat is gesubstitueerd met alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen, of fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest is,
- T_9 alkyleen met 2 tot 8 koolstofatomen, alkenyleen met 4 tot 8 koolstofatomen, alky-
 5 nyleen met 4 koolstofatomen, cyclohexyleen, alkyleen met 2 tot 8 koolstofatomen dat een keer of vaker onderbroken is door -O-, of een rest met de formule $-\text{CH}_2\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_2\text{OT}_{11}\text{OCH}_2\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_2-$ of $-\text{CH}_2-\text{C}(\text{CH}_2\text{OH})_2-\text{CH}_2-$ is,
- T_{10} alkyleen met 2 tot 20 koolstofatomen dat een keer of vaker onderbroken kan zijn door -O-, of cyclohexyleen is,
- 10 T_{11} alkyleen met 2 tot 8 koolstofatomen, alkyleen met 2 tot 18 koolstofatomen dat een keer of vaker is onderbroken door -O-, 1,3-cyclohexyleen, 1,4-cyclohexyleen, 1,3-fenyleen of 1,4-fenyleen is, of
- T_{10} en T_6 , samen met de twee stikstofatomen, een piperazinering zijn; in de verbindingen met de formule (IIc)
- 15 $R'_2 \text{ C}_1\text{-C}_{12}$ alkyl is en k een getal van 1 tot 4 is; in de verbindingen met de formule (III)
- u 1 of 2 is en r een geheel getal van 1 tot 3 is, de substituenten Y_1 onafhankelijk van elkaar waterstof, hydroxyl, halogeenmethyl, alkyl met 1 tot 12 koolstofatomen, alkoxy met 1 tot 18 koolstofatomen, of halogeen zijn,
- 20 als u 1 is,
- Y_2 alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, fenoxyl dat ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met hydroxyl, alkoxy met 1 tot 18 koolstofatomen, of halogeen is, of gesubstitueerd is met alkyl of alkoxy met in ieder geval 1 tot 18 koolstofatomen of halogeen, alkyl met 1 tot 12 koolstofatomen dat gesubstitueerd is met $-\text{COOH}$, $-\text{COOY}_8$, $-\text{CONH}_2$,
 25 $-\text{CONY}_9$, $-\text{CONY}_9\text{Y}_{10}$, $-\text{NH}_2$, $-\text{NHY}_9$, $-\text{NY}_9\text{Y}_{10}$, $-\text{NHCOY}_{11}$, $-\text{CN}$ en/of $-\text{OCOY}_{11}$ is, alkyl met 4 tot 20 koolstofatomen, dat is onderbroken door een of meer zuurstofatomen en ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met hydroxyl of alkoxy met 1 tot 12 koolstofatomen, alkenyl met 3 tot 6 koolstofatomen, glycidyl, cyclohexyl dat ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met hydroxyl, alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen en/of
 30 $-\text{OCOY}_{11}$, fenylalkyl met 1 tot 5 koolstofatomen in de alkylrest dat ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met hydroxyl, chloor en/of methyl, $-\text{COY}_{12}$ of $-\text{SO}_2\text{Y}_{13}$ is, of als u 2 is,

- Y₂ alkyleen met 2 tot 16 koolstofatomen, alkenyleen met 4 tot 12 koolstofatomen, xylyleen, alkyleen met 3 tot 20 koolstofatomen, dat is onderbroken door een of meer -O-atomen en/of is gesubstitueerd met hydroxyl,
 -CH₂CH(OH)CH₂-Y₁₅-OCH₂CH(OH)CH₂, -CO-Y₁₆-CO-, -CO-NH-Y₁₇-NH-CO- of
 5 -(CH₂)_m-CO₂-Y₁₈-OCO-(CH₂)_m is, waarbij
 m 1, 2 of 3 is,
- Y₈ alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, alkenyl met 3 tot 18 koolstofatomen, alkyl met 3 tot 20 koolstofatomen, dat is onderbroken door een of meer zuurstof- of zwavelatomen of -NT₆- en/of is gesubstitueerd met hydroxyl, alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen dat is
 10 gesubstitueerd met -P(O)(OY₁₄)₂, -NY₉Y₁₀ of -OCOY₁₁ en/of hydroxyl, alkenyl met 3 tot 18 koolstofatomen, glycidyl, of fenylalkyl met 1 tot 5 koolstofatomen in de alkylrest is,
- Y₉ en Y₁₀ onafhankelijk van elkaar alkyl met 1 tot 12 koolstofatomen, alkoxyalkyl met 3 tot 12 koolstofatomen, dialkylaminoalkyl met 4 tot 16 koolstofatomen of cyclohexyl
 15 met 5 tot 12 koolstofatomen zijn, of Y₉ en Y₁₀ samen alkyleen, oxa-alkyleen of aza-alkyleen met in ieder geval 3 tot 9 koolstofatomen zijn,
- Y₁₁ alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, alkenyl met 2 tot 18 koolstofatomen of fenyl is,
 Y₁₂ alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, alkenyl met 2 tot 18 koolstofatomen, fenyl, alkoxy met 1 tot 12 koolstofatomen, fenoxo, alkylamino met 1 tot 12 koolstofatomen of
 20 fenylamino is,
- Y₁₃ alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, fenyl of alkylfenyl met 1 tot 8 koolstofatomen in de alkylrest is,
- Y₁₄ alkyl met 1 tot 12 koolstofatomen of fenyl is,
- Y₁₅ alkyleen met 2 tot 10 koolstofatomen, fenyleen of een groep -fenyleen-M-fenyleen-
 25 is, waarbij M -O-, -S-, -SO₂-, -CH₂- of -C(CH₃)₂- is,
- Y₁₆ alkyleen, oxa-alkyleen of thia-alkyleen met in ieder geval 2 tot 10 koolstofatomen, fenyleen of alkenyleen met 2 tot 6 koolstofatomen is,
- Y₁₇ alkyleen met 2 tot 10 koolstofatomen, fenyleen of alkylfenyleen met 1 tot 11 koolstofatomen in de alkylrest is en
- 30 Y₁₈ alkyleen met 2 tot 10 koolstofatomen of alkyleen met 4 tot 20 koolstofatomen dat een keer of vaker is onderbroken door zuurstof is;

in de verbindingen met de formule (IV) x een geheel getal van 1 tot 3 is en de substituenten L onafhankelijk van elkaar waterstof, alkyl, alkoxy of alkylthio met in ieder geval 1 tot 22 koolstofatomen, fenoxo of fenylthio zijn.

In de verbindingen met de formule (IIa) kan R_1 waterstof of alkyl met 1 tot 24 koolstofatomen, zoals methyl, ethyl, propyl, butyl, hexyl, octyl, nonyl, dodecyl, tetradecyl, hexadecyl, octadecyl, nonadecyl en eicosyl en tevens de overeenkomstige vertakte isomeren, zijn. Verder kan R_1 , naast fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest zoals bijvoorbeeld benzyl, ook cycloalkyl met 5 tot 8 koolstofatomen, bijvoorbeeld cyclopentyl, cyclohexyl en cyclo-octyl, of een rest met de formule



zijn, waarbij R_4 en R_5 onafhankelijk van elkaar alkyl met in ieder geval 1 tot 5 koolstofatomen, in het bijzonder methyl, zijn, of R_4 , samen met de $C_n H_{2n+1-m}$ rest, een cycloalkylrest met 5 tot 12 koolstofatomen, bijvoorbeeld cyclohexyl, cyclo-octyl en cyclododecyl, vormt. M is een rest met de formule $-COOR_6$, waarbij R_6 niet alleen waterstof maar ook alkyl met 1 tot 12 koolstofatomen of alkoxyalkyl met 1 tot 20 koolstofatomen in elk van de alkyl- en alkoxyresten is. Geschikte alkylresten R_6 zijn die welke zijn opgesomd voor R_1 . Voorbeelden van geschikte alkoxyalkylgroepen zijn $-C_2H_4OC_2H_5$, $-C_2H_4OC_8H_{17}$ en $-C_4H_8OC_4H_9$. Als fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen is R_6 bijvoorbeeld benzyl, cumyl, α -methylbenzyl of fenylbutyl.

Naast waterstof en halogeen, bijvoorbeeld chloor en broom, kan R_2 ook alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen zijn. Voorbeelden van dergelijke alkylresten worden weergegeven in de definities van R_1 . R_2 kan ook fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest, bijvoorbeeld benzyl, α -methylbenzyl en cumyl, zijn.

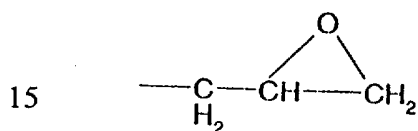
Halgeen als substituent betekent in alle gevallen fluor, chloor, broom of jood, bij voorkeur chloor of broom en met meer voorkeur chloor.

Ten minste een van de resten R_1 en R_2 dient geen waterstof te zijn.

Naast waterstof of chloor is R_3 tevens alkyl of alkoxy met in ieder geval 1 tot 4 koolstofatomen, bijvoorbeeld methyl, butyl, methoxy en ethoxy, en tevens $-COOR_6$.

In de verbindingen met de formule (IIb) is T waterstof of alkyl met 1 tot 6 koolstofatomen, zoals methyl en butyl, is T_1 niet alleen waterstof of chloor, maar tevens

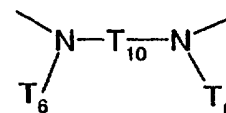
alkyl of alkoxy met in ieder geval 1 tot 4 koolstofatomen, bijvoorbeeld methyl, methoxy en butoxy, en, als $n = 1$ is, is T_2 chloor of een rest met de formule $-OT_3$ of $-NT_4T_5$. T_3 is hier waterstof of alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen (zie de definitie van R_1). Deze alkylresten kunnen gesubstitueerd zijn met 1 tot 3 hydroxylgroepen of met een rest
 5 $-OCOT_6$. Verder kan T_3 alkyl met 3 tot 18 koolstofatomen (zie de definitie van R_1) zijn dat een keer of vaker is onderbroken door $-O-$ of $-NT_6-$ en dat ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met hydroxyl of $-OCOT_6$. Voorbeelden van T_3 als cycloalkyl zijn cyclopentyl, cyclohexyl of cyclo-octyl. T_3 kan ook alkenyl met 2 tot 18 koolstofatomen zijn. Geschikte alkenylresten zijn afgeleid van de alkylresten die zijn opgesomd in de
 10 definities van R_1 . Deze alkenylresten kunnen gesubstitueerd zijn met hydroxyl. Voorbeelden van T_3 als fenylalkyl zijn benzyl, fenylethyl, cumyl, α -methylbenzyl of benzyl. T_3 kan ook een rest met de formule $-CH_2CH(OH)-T_7$ of



zijn.

Net als T_3 kunnen T_4 en T_5 onafhankelijk van elkaar niet alleen waterstof maar ook alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen of alkyl met 3 tot 18 koolstofatomen dat een
 20 keer of vaker is onderbroken door $-O-$ of $-NT_6-$. T_4 en T_5 kunnen ook cycloalkyl met 5 tot 12 koolstofatomen, bijvoorbeeld cyclopentyl, cyclohexyl en cyclo-octyl, zijn. Voorbeelden van T_4 en T_5 als alkenylgroepen kunnen worden gevonden in de illustraties van T_3 . Voorbeelden van T_4 en T_5 als fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest zijn benzyl of fenylbutyl. Tenslotte kunnen deze substituenten ook hydroxyalkyl met 1
 25 tot 3 koolstofatomen zijn.

Als $n = 2$ is, is T_2 een tweewaardige rest met de formule



30 of $-O-T_9-O-$.

Naast waterstof is T_6 (zie ook hierboven) alkyl, cycloalkyl, alkenyl, aryl of fenylalkyl; voorbeelden van dergelijke resten zijn hierboven reeds gegeven.

Naast waterstof en de fenylalkylresten en alkylresten met lange ketens die hierboven zijn genoemd kan T_7 fenyl of hydroxyfenyl en tevens $-CH_2OT_8$ zijn, waarbij T_8 een van de genoemde alkyl-, alkenyl-, cycloalkyl-, aryl- of fenylalkylresten.

De tweewaardige rest T_9 kan alkyleen met 2 tot 8 koolstofatomen zijn en dergelijke resten kunnen ook vertakt zijn. Dit geldt ook voor de alkenyleen- en alkynyleenresten T_9 . Naast cyclohexyleen kan T_9 ook een rest met de formule $-CH_2CH(OH)CH_2OT_{11}OCH_2CH(OH)CH_2-$ of $-CH_2-C(CH_2OH)_2-CH_2-$ zijn.

T_{10} is een tweewaardige rest en is, naast cyclohexyleen, tevens alkyleen met 2 tot 20 koolstofatomen dat een keer of vaker onderbroken kan zijn door $-O-$. Geschikte alkyleenresten zijn afgeleid van de alkylresten die zijn genoemd in de definities van R_1 .

T_{11} is eveneens een alkyleenrest. Deze bevat 2 tot 8 koolstofatomen of, als deze een keer of vaker onderbroken is door $-O-$, 4 tot 10 koolstofatomen. T_{11} is tevens 1,3-cyclohexyleen, 1,4-cyclohexyleen, 1,3-fenyleen of 1,4-fenyleen.

Samen met de twee stikstofatomen kunnen T_6 en T_{10} ook een piperazinering zijn. Voorbeelden van alkyl-, alkoxy-, fenylalkyl-, alkyleen-, alkenyleen-, alkoxyalkyl- en cycloalkylresten en tevens alkylthio-, oxa-alkyleen- of azoalkyleenresten in de verbindingen met de formules (2), (3) en (4) kunnen worden afgeleid uit de bovenstaande verklaringen.

De UV-absorptiemiddelen met de formules (I), (IIa), (IIb), (IIc), (III) en (IV) zijn als zodanig bekend en worden, samen met de bereiding daarvan, beschreven in bijvoorbeeld EP-A-323408, EP-A-57160 US 5736597 (EP-A-434608), US-A-4619956, DE-A-3135810 en GB-A-1336391. De voorkeursbetekenissen van substituenten en afzonderlijke verbindingen kunnen worden afgeleid uit de genoemde documenten.

De verbindingen kunnen aan de hand van gebruikelijke werkwijzen, die als zodanig bekend zijn, in polyalkenen worden opgenomen. De bereiding kan plaatsvinden op een wijze die als zodanig bekend is door mengen van de componenten en, desgewenst, verdere toevoegsels met het polymeer onder toepassing van inrichtingen die als zodanig bekend zijn, zoals kalanders, mengers, kneders, extrudeerinrichtingen en dergelijke. De toevoegsels kunnen afzonderlijk of gemengd met elkaar worden toegevoegd. Het is ook mogelijk zogenaamde stamsamenstellingen te gebruiken.

In bepaalde gevallen kan het voordelig zijn om zelfs een mengsel van verbindingen uit alle 4 klassen van UV-absorptiemiddelen (hydroxybenzofenon, 2-hydroxyfenyltriazine, oxanilide en 2-hydroxyfenylbenzotriazool) te gebruiken.

De polyalkeensamenstelling die verkregen kan worden volgens de ondehavige uitvinding kan op bekende wijze in de gewenste vorm worden gevormd. Dergelijke werkwijzen omvatten bijvoorbeeld malen, kalanderen, extruderen, spuitgieten, sinteren, compressie/sinteren of spinnen en tevens extrusie-blaasgieten.

- 5 De hoeveelheden UV-absorptiemiddel die gekozen dienen te worden kunnen afhangen van de aard van de polyalkeensamenstelling en de eisen voor de stabiliteit daarvan. De afzonderlijke UV-absorptiemiddelcomponenten kunnen afzonderlijk of als mengsel aan de desbetreffende polyalkeensamenstelling worden toegevoegd. De gebruikelijke andere toevoegsels, zoals verwerkingsstabilisatoren, antioxidantia en andere
10 licht-stabilisatoren, kunnen ook aan de polyalkeensamenstelling worden toegevoegd, zonder dat de beschermende werking van de volgens de uitvinding toegepaste UV-absorptiemiddelmengsels daarbij nadelig wordt beïnvloed.

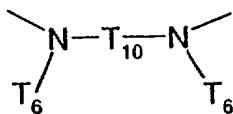
- Een polyalkeensamenstelling waarbij de substituent R_1 of R_2 in de verbindingen met de formule (IIa) zich op de ortho-plaats of para-plaats ten opzichte van de hydroxylgroep bevindt heeft de voorkeur.
15

- Ook heeft een polyalkeensamenstelling waarbij, in de verbindingen met de formule (IIa), R_1 waterstof of alkyl met 1 tot 20 koolstofatomen is, R_2 waterstof, alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen of fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest is en R_3 waterstof, chloor of alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen is de voorkeur. De voorkeur
20 wordt gegeven aan verbindingen waarbij R_1 zich op de ortho-plaats ten opzichte van de hydroxylgroep bevindt en waterstof of alkyl met 4 tot 12 koolstofatomen is, R_2 zich op de para-plaats ten opzichte van de hydroxylgroep bevindt en alkyl met 1 tot 6 koolstofatomen of cumyl is en R_3 waterstof of chloor is. Met meer voorkeur is R_1 alkyl met 8 tot 12 koolstofatomen, is R_2 alkyl met 4 tot 6 koolstofatomen en is R_3 waterstof.

- 25 Andere polyalkeensamenstellingen die de voorkeur hebben zijn die waarbij, in de verbindingen met de formule (IIb), T alkyl met 1 tot 6 koolstofatomen is, T_1 waterstof, chloor of alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen is, n 1 of 2 is en, als n 1 is, T_2 een van de

- 30 resten met de formule $-OT_3$ of $\begin{array}{c} T_4 \\ \diagup \\ N \\ \diagdown \\ T_5 \end{array}$ is en, als n 2 is, T_2 een rest met de formule

-O-T₉-O- of



is, waarbij T₃ waterstof, alkyl met 1 tot

5

18 koolstofatomen of alkyl met 3 tot 18 koolstofatomen dat een keer of vaker is onderbroken door -O- is, T₄ en T₅ onafhankelijk van elkaar waterstof, alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, alkenyl met 3 tot 8 koolstofatomen of hydroxyalkyl met 2 tot 4 koolstofatomen zijn, T₆ waterstof of alkyl met 1 tot 6 koolstofatomen zijn en T₉ en T₁₀ alkyleen met 2 tot 8 koolstofatomen, alkenyleen met 4 tot 8 koolstofatomen of alkyleen met 2 tot 18 koolstofatomen dat een keer of vaker is onderbroken door -O- zijn.

Met meer voorkeur waarbij T alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen is, T₁ waterstof of chloor is en T₂ een van de resten met de formule -OT₃ of -O-T₉-O- is, waarbij T₃ waterstof, alkyl met 1 tot 12 koolstofatomen of een rest met de formule -(OC₂H₄)₄₋₈-H is en T₉ alkyleen met 2 tot 8 koolstofatomen is.

Met de meeste voorkeur is T₂ een rest met de formule -OT₃ en is T₃ alkyl met 1 tot 12 koolstofatomen of een rest met de formule -(OC₂H₄)₄₋₈-H.

Verdere polyalkeensamenstellingen die de voorkeur hebben zijn die waarbij, in de verbindingen met de formule (III), de substituenten Y₁ waterstof, alkyl met 1 tot 12 koolstofatomen of halogeen zijn, als u 1 is, Y₂ alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, alkyl met 1 tot 12 koolstofatomen dat is gesubstitueerd met hydroxyl, alkoxy met 1 tot 18 koolstofatomen, -COOY₈, -CONY₉Y₁₀ en/of -OCOY₁₁, glycidyl of fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest is, of, als u 2 is, Y₂ alkyleen met 2 tot 16 koolstofatomen, alkenyleen met 4 tot 12 koolstofatomen, xylyleen of alkyleen met 3 tot 20 koolstofatomen, dat is onderbroken door een of meer -O- atomen en/of is gesubstitueerd met hydroxyl is, waarbij de substituenten Y₈ tot en met Y₁₁ zijn zoals hierboven gedefinieerd.

Bij voorkeur zijn Y₁ waterstof, alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen en chloor, als u 1 is, is Y₂ alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen dat ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met hydroxyl, alkoxy met 1 tot 18 koolstofatomen, -COOY₈, -CONY₉Y₁₀ en/of -OCOY₁₁, glycidyl of benzyl, of, als u 2 is, is Y₂ alkyleen met 6 tot 12 koolstofatomen, butenyleen, xylyleen of alkyleen met 3 tot 20 koolstofatomen, dat is onderbroken door een of meer -O- atomen en/of is gesubstitueerd met hydroxyl, waarbij Y₈ alkyl met 4

tot 12 koolstofatomen, alkenyleen met 12 tot 18 koolstofatomen of alkyl met 6 tot 20 koolstofatomen, dat is onderbroken door een of meer -O- atomen en/of is gesubstitueerd met hydroxyl is, Y_9 en Y_{10} onafhankelijk van elkaar alkyl met 4 tot 8 koolstofatomen zijn en Y_{11} alkyl met 1 tot 8 koolstofatomen of alkenyl met 2 of 3 koolstofatomen is.

Met meer voorkeur is u 1 en is r 2, is Y_1 alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen en is Y_2 alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen of alkyl met 1 tot 12 koolstofatomen dat is gesubstitueerd met hydroxyl, alkoxy met 1 tot 18 koolstofatomen, $-COOY_8$ en/of $-OCOY_{11}$, waarbij Y_8 alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, alkenyl met 3 tot 18 koolstofatomen of alkyl met 3 tot 20 koolstofatomen, dat is onderbroken door een of meer zuurstofatomen en/of is gesubstitueerd met hydroxyl is en waarbij Y_{11} alkenyl met 2 tot 18 koolstofatomen is.

Bijzondere voorkeur hebben de verbindingen met de formule (III) waarbij Y_2 alkyl met 1 tot 8 koolstofatomen of alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen dat is gesubstitueerd met hydroxyl, alkoxy met 12 tot 15 koolstofatomen, $-COOY_8$ en/of $-OCOY_{11}$ is, waarbij Y_8 alkyl met 8 tot 12 koolstofatomen, alkenyl met 12 tot 18 koolstofatomen of alkyl met 5 tot 10 koolstofatomen, dat is onderbroken door een zuurstofatomen en is gesubstitueerd met hydroxyl is en waarbij Y_{11} alkenyl met 2 tot 8 koolstofatomen is.

De meeste voorkeur hebben verbindingen met de formule (III) waarbij Y_1 methyl is en Y_2 een octylrest of alkyl met 1 tot 3 koolstofatomen dat is gesubstitueerd met hydroxyl, alkoxy met 13 of 15 koolstofatomen, $-COOY_8$ en/of $-OCOY_{11}$ is, waarbij Y_8 een decyl- of octadecenylrest of alkyl met 7 koolstofatomen dat is gesubstitueerd met hydroxyl en dat is onderbroken door een zuurstofatoom is en waarbij Y_{11} propenyl is.

Een verdere polyalkeensamenstelling die de voorkeur heeft is die waarbij, in de verbindingen met de formule (I), v en w onafhankelijk van elkaar 1 of 2 zijn en de substituenten Z onafhankelijk van elkaar waterstof, halogeen of alkoxy met 1 tot 12 koolstofatomen zijn.

Ook heeft een samenstelling de voorkeur waarbij, in de verbindingen met de formule (IV), x en y 1 of 2 zijn en de substituenten L onafhankelijk van elkaar waterstof of alkyl met in ieder geval 1 tot 12 koolstofatomen zijn.

Afzonderlijke UV-absorptiemiddelen die geschikt zijn bij de onderhavige uitvinding worden hierna gegeven.

2-hydroxybenzofenonen, zoals bijvoorbeeld het 4-hydroxy-, 4-methoxy-, 4-octyloxy-, 4-decyloxy-, 4-dodecyloxy-, 4-benzyloxy-, 4,2',4-trihydroxy- en 2'-hydroxy-4,4'-dimethoxy-derivaat.

2-(2'-hydroxyfenyl)benzotriazolen, zoals bijvoorbeeld 2-(2'-hydroxy-5'-methylfenyl)benzotriazool, 2-(3',5'-di-tert-butyl-2'-hydroxyfenyl)benzotriazool, 2-(5'-tert-butyl-2'-hydroxyfenyl)benzotriazool, 2-(2'-hydroxy-5'-(1,1,3,3-tetramethylbutyl)fenyl)benzotriazool, 2-(3',5'-di-tert-butyl-2'-hydroxyfenyl)-5-chloorbenzotriazool, 2-(3'-tert-butyl-2'-hydroxy-5'-methylfenyl)-5-chloorbenzotriazool, 2-(3'-sec-butyl-5'-tert-butyl-2'-hydroxyfenyl)benzotriazool, 2-(2'-hydroxy-4'-octyloxyfenyl)benzotriazool, 2-(3',5'-di-tert-amyl-2'-hydroxyfenyl)benzotriazool, 2-(3',5'-bis-(α,α -dimethylbenzyl)-2'-hydroxyfenyl)benzotriazool, 2-(3'-tert-butyl-2'-hydroxy-5'-(2-octyloxycarbonylethyl)fenyl)-5-chloorbenzotriazool, 2-(3'-tert-butyl-5'-[2-(2-ethylhexyloxy)carbonylethyl]-2'-hydroxyfenyl)-5-chloorbenzotriazool, 2-(3'-tert-butyl-2'-hydroxy-5'-(2-methoxycarbonylethyl)fenyl)-5-chloorbenzotriazool, 2-(3'-tert-butyl-2'-hydroxy-5'-(2-methoxycarbonylethyl)fenyl)benzotriazool, 2-(3'-tert-butyl-2'-hydroxy-5'-(2-octyloxycarbonylethyl)fenyl)benzotriazool, 2-(3'-tert-butyl-5'-[2-(2-ethylhexyloxy)carbonylethyl]-2'-hydroxyfenyl)benzotriazool, 2-(3'-dodecyl-2'-hydroxy-5'-methylfenyl)benzotriazool, 2-(3'-tert-butyl-2'-hydroxy-5'-(2-isooctyloxycarbonylethyl)fenyl)benzotriazool, 2,2'-methyleenbis[4-(1,1,3,3-tetramethylbutyl)-6-benzotriazool-2-ylfenol]; het omesteringsproduct van 2-[3'-tert-butyl-5'-(2-methoxycarbonylethyl)-2'-hydroxyfenyl]-2H-benzotriazool met polyethyleenglycol 300; $[R-CH_2CH_2-COO-CH_2CH_2]_2$ - met $R = 3'$ -tert-butyl-4'-hydroxy-5'-2H-benzotriazool-2-ylfenyl, 2-[2'-hydroxy-3'-(α,α -dimethylbenzyl)-5'-(1,1,3,3-tetramethylbutyl)fenyl]benzotriazool; 2-[2'-hydroxy-3'-(1,1,3,3-tetramethylbutyl)-5'-(α,α -dimethylbenzyl)fenyl]benzotriazool.

2-(2-hydroxyfenyl)-1,3,5-triazinen, zoals bijvoorbeeld 2,4,6-tris(2-hydroxy-4-octyloxyfenyl)-1,3,5-triazine, 2-(2-hydroxy-4-octyloxyfenyl)-4,6-bis(2,4-dimethylfenyl)-1,3,5-triazine, 2-(2,4-dihydroxyfenyl)-4,6-bis(2,4-dimethylfenyl)-1,3,5-triazine, 2,4-bis(2-hydroxy-4-propyloxyfenyl)-6-(2,4-dimethylfenyl)-1,3,5-triazine, 2-(2-hydroxy-4-octyloxyfenyl)-4,6-bis(4-methylfenyl)-1,3,5-triazine, 2-(2-hydroxy-4-dodecyloxyfenyl)-4,6-bis(2,4-dimethylfenyl)-1,3,5-triazine, 2-(2-hydroxy-4-tridecyloxyfenyl)-4,6-bis(2,4-dimethylfenyl)-1,3,5-triazine, 2-[2-hydroxy-4-(2-hydroxy-3-butyloxypropoxy)fenyl]-4,6-bis(2,4-dimethyl)-1,3,5-triazine, 2-[2-hydroxy-4-(2-hydroxy-3-octyloxypropyloxy)fenyl]-4,6-bis(2,4-dimethylfenyl)-1,3,5-triazine, 2-[4-(dodecyloxy/tri-

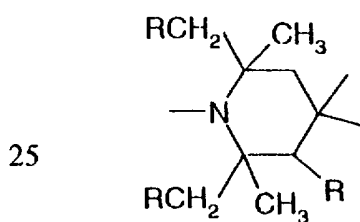
decyloxy-2-hydroxypropoxy)-2-hydroxyfenyl]-4,6-bis(2,4-dimethylfenyl)-1,3,5-triazine, 2-[2-hydroxy-4-(2-hydroxy-3-dodecyloxypropoxy)fenyl]-4,6-bis(2,4-dimethylfenyl)-1,3,5-triazine, 2-(2-hydroxy-4-hexyloxy)fenyl-4,6-difenyl-1,3,5-triazine, 2-(2-hydroxy-4-methoxyfenyl)-4,6-difenyl-1,3,5-triazine, 2,4,6-tris[2-hydroxy-4-(3-butoxy-2-hydroxypropoxy)fenyl]-1,3,5-triazine, 2-(2-hydroxyfenyl)-4-(4-methoxyfenyl)-6-fenyl-1,3,5-triazine, 2-{2-hydroxy-4-[3-(2-ethylhexyl-1-oxy)-2-hydroxypropyloxy]fenyl}-4,6-bis(2,4-dimethylfenyl)-1,3,5-triazine.

Oxaalzuurdiamiden, zoals bijvoorbeeld 4,4'-dioctyloxyoxanilide, 2,2'-diethoxyoxanilide, 2,2'-dioctyloxy-5,5'-di-tert-butyloxanilide, 2,2'-didodecyloxy-5,5'-di-tert-butoxanilide, 2-ethoxy-2'-ethylloxanilide, N,N'-bis(3-dimethylaminopropyl)oxamide, 2-ethoxy-5-tert-butyl-2'-ethoxanilide en het mengsel daarvan met 2-ethoxy-2'-ethyl-5,4'-di-tert-butoxanilide, mengsels van o- en p-methoxy- alsmede van o- en p-ethoxy-digesubstitueerde oxaniliden.

Bij voorkeur bedraagt de hoeveelheid van het afzonderlijke UV-absorptiemiddel in het mengsel 20% tot 80%, gebaseerd op het gewicht van het mengsel, met dien verstande, dat de som van de afzonderlijke componenten opgeteld 100% bedraagt.

Bij voorkeur bedraagt de totale hoeveelheid van het mengsel van UV-absorptiemiddelen 0,005 tot 5%, gebaseerd op het gewicht van het polymeer.

Ook heeft een polyalkeensamenstelling de voorkeur, die bovendien ten minste een sterisch gehinderd amine, in het bijzonder een amine van dit type met ten minste een rest met de formule



waarbij R waterstof of methyl is, bevat.

Voorbeelden van dergelijke sterisch gehinderde aminen zijn bis(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl)sebacaat, bis(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl)succinaat, bis(1,2,2,6,6-pentamethyl-4-piperidyl)sebacaat, bis(1-octyloxy-2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl)sebacaat, n-butyl-3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzylmalonzuur-bis(1,2,2,6,6-pentamethyl-4-piperidyl)ester, het condensatieproduct van 1-(2-hydroxyethyl)-2,2,6,6-

tetramethyl-4-hydroxypiperidine en barnsteenzuur, lineaire of cyclische condensatieproducten van N,N'-bis(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl)hexamethyleendiamine en 4-tert-octylamino-2,6-dichloor-1,3,5-triazine, tris(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl)nitrilotriacetaat, tetrakis(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl)-1,2,3,4-butaantetracarboxylaat, 1,1'-
 5 (1,2-ethaandiyl)-bis(3,3,5,5-tetramethylpiperazinon), 4-benzoyl-2,2,6,6-tetramethylpiperidine, 4-stearyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidine, bis(1,2,2,6,6-pentamethylpiperidyl)-2-n-butyl-2-(2-hydroxy-3,5-di-tert-butylbenzyl)malonaat, 3-n-octyl-7,7,9,9-tetramethyl-1,3,8-triazaspiro[4.5]decaan-2,4-dion, bis(1-octyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidyl)sebacaat, bis(1-octyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidyl)succinaat, lineaire of
 10 cyclische condensatieproducten van N,N'-bis(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl)hexamethyleendiamine en 4-morfolino-2,6-dichloor-1,3,5-triazine, het condensatieproduct van 2-chloor-4,6-di(4-n-butylamino-2,2,6,6-tetramethylpiperidyl)-1,3,5-triazine en 1,2-bis(3-aminopropylamino)ethaan, het condensatieproduct van 2-chloor-4,6-di(4-n-butylamino-1,2,2,6,6-pentamethylpiperidyl)-1,3,5-triazine en 1,2-bis(3-aminopropylamino)-
 15 ethaan, 8-acetyl-3-dodecyl-7,7,9,9-tetramethyl-1,3,8-triazaspiro[4.5]decaan-2,4-dion, 3-dodecyl-1-(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl)pyrrolidine-2,5-dion, 3-dodecyl-1-(1,2,2,6,6-pentamethyl-4-piperidyl)pyrrolidine-2,5-dion, een mengsel van 4-hexadecyloxy- en 4-stearyloxy-2,2,6,6-tetramethylpiperidine, een condensatieproduct van N,N'-bis(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl)hexamethyleendiamine en 4-cyclohexylamino-2,6-
 20 dichloor-1,3,5-triazine, een condensatieproduct van 1,2-bis(3-aminopropylamino)ethaan en 2,4,6-trichloor-1,3,5-triazine, alsmede 4-butylamino-2,2,6,6-tetramethylpiperidine (CAS Reg. nr. [136504-96-6]); N-(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl)-n-dodecylsuccinimide, N-(1,2,2,6,6-pentamethyl-4-piperidyl)-n-dodecylsuccinimide, 2-undecyl-7,7,9,9-tetramethyl-1-oxa-3,8-diaza-4-oxospiro[4,5]decaan, een reactieproduct van
 25 7,7,9,9-tetramethyl-2-cycloundecyl-1-oxa-3,8-diaza-4-oxospiro[4,5]decaan en epichloorhydrine, 1,1-bis(1,2,2,6,6-pentamethyl-4-piperidyloxycarbonyl)-2-(4-methoxyfenyl)etheen, N,N'-bis-formyl-N,N'-bis(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl)hexamethyleendiamine, di-ester van 4-methoxymethyleenmalonzuur met 1,2,2,6,6-pentamethyl-4-hydroxypiperidine, poly[methylpropyl-3-oxy-4-(2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl)]-
 30 siloxaan, reactieproduct van maleïnezuuranhydride- α -alkeen-copolymeer met 2,2,6,6-tetramethyl-4-aminopiperidine of 1,2,2,6,6-pentamethyl-4-aminopiperidine.

De polyalkeensamenstelling kan verdere toevoegsels bevatten. Voorbeelden worden hierna gegeven.

1. Antioxidantia

1.1 Gealkyleerde monofenolen, bijvoorbeeld 2,6-di-tert-butyl-4-methylfenol, 2-tert-butyl-4,6-dimethylfenol, 2,6-di-tert-butyl-4-ethylfenol, 2,6-di-tert-butyl-4-n-butylfenol, 2,6-di-tert-butyl-4-isobutylfenol, 2,6-dicyclopentyl-4-methylfenol, 2-(α -methylcyclohexyl)-4,6-dimethylfenol, 2,6-dioctadecyl-4-methylfenol, 2,4,6-tricyclohexylfenol, 2,6-di-tert-butyl-4-methoxymethylfenol, lineaire of in de zijketen vertakte nonylfenolen, zoals b.v. 2,6-dinonyl-4-methylfenol, 2,4-dimethyl-6-(1'-methylundec-1'-yl)-fenol, 2,4-dimethyl-6-(1'-methylheptadec-1'-yl)fenol, 2,4-dimethyl-6-(1'-methyltridec-1'-yl)fenol en mengsels daarvan.

1.2 Alkylthiomethylfenolen, bijvoorbeeld 2,4-dioctylthiomethyl-6-tert-butylfenol, 2,4-dioctylthiomethyl-6-methylfenol, 2,4-dioctylthiomethyl-6-ethylfenol, 2,6-didodecylthiomethyl-4-nonylfenol.

1.3 Hydrochinonen en gealkyleerde hydrochinonen, bijvoorbeeld 2,6-di-tert-butyl-4-methoxyfenol, 2,5-di-tert-butylhydrochinon, 2,5-di-tert-amylhydrochinon, 2,6-difenyl-4-octadecyloxyfenol, 2,6-di-tert-butylhydrochinon, 2,5-di-tert-butyl-4-hydroxyanisol, 3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyanisol, 3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenylsteeraat, bis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenyl)adipaat.

1.4 Tocoferolen, bijvoorbeeld α -tocoferol, β -tocoferol, γ -tocoferol, δ -tocoferol en mengsels daarvan (vitamine E).

1.5 Gehydroxyleerde thiodifenylethers, bijvoorbeeld 2,2'-thiobis(6-tert-butyl-4-methylfenol), 2,2'-thiobis(4-octylfenol), 4,4'-thiobis(6-tert-butyl-3-methylfenol), 4,4'-thiobis(6-tert-butyl-2-methylfenol), 4,4'-thiobis(3,6-di-sec-amylfenol), 4,4'-bis(2,6-dimethyl-4-hydroxyfenyl)disulfide.

1.6 Alkylideenbisfenolen, bijvoorbeeld 2,2'-methyleenbis(6-tert-butyl-4-methylfenol), 2,2'-methyleenbis(6-tert-butyl-4-ethylfenol), 2,2'-methyleenbis[4-methyl-6-(α -methylcyclohexyl)fenol], 2,2'-methyleenbis(4-methyl-6-cyclohexylfenol), 2,2'-methyleenbis(6-nonyl-4-methylfenol), 2,2'-methyleenbis(4,6-di-tert-butylfenol), 2,2'-ethylideenbis(4,6-di-tert-butylfenol), 2,2'-ethylideenbis(6-tert-butyl-4-isobutylfenol), 2,2'-methyleenbis[6-(α -methylbenzyl)-4-nonylfenol], 2,2'-methyleenbis[6-(α,α -dimethylbenzyl)-4-nonylfenol], 4,4'-methyleenbis(2,6-di-tert-butylfenol), 4,4'-methyleenbis(6-tert-butyl-2-methylfenol), 1,1-bis(5-tert-butyl-4-hydroxy-2-methylfenyl)butaan, 2,6-bis(3-tert-butyl-5-methyl-2-hydroxybenzyl)-4-methylfenol, 1,1,3-tris(5-tert-butyl-4-hydroxy-2-methylfenyl)butaan, 1,1-bis(5-tert-butyl-4-hydroxy-2-

methyلفenyl)-3-n-dodecylmercaptobutaan, ethyleenglycol-bis[3,3-bis(3'-tert-butyl-4'-hydroxyfenyl)butyraat], bis(3-tert-butyl-4-hydroxy-5-methyلفenyl)dicyclopentadien, bis[2-(3'-tert-butyl-2'-hydroxy-5'-methylbenzyl)-6-tert-butyl-4-methyلفenyl]tereftalaat, 1,1-bis(3,5-dimethyl-2-hydroxyfenyl)butaan, 2,2-bis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenyl)-
 5 propaan, 2,2-bis(5-tert-butyl-4-hydroxy-2-methyلفenyl)-4-n-dodecylmercaptobutaan, 1,1,5,5-tetra(5-tert-butyl-4-hydroxy-2-methyلفenyl)pentaan.

1.7 O-, N- en S-benzylverbindingen, bijvoorbeeld 3,5,3',5'-tetra-tert-butyl-4,4'-dihydroxydibenzylether, octadecyl-4-hydroxy-3,5-dimethylbenzylmercaptoacetaat, tridecyl-4-hydroxy-3,5-di-tert-butylbenzylmercaptoacetaat, tris(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)amine, bis(4-tert-butyl-3-hydroxy-2,6-dimethylbenzyl)dithiotereftalaat, bis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)sulfide, isooctyl-3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzylmercaptoacetaat.
 10

1.8 Gehydroxybenzyleerde malonaten, bijvoorbeeld dioctadecyl-2,2-bis(3,5-di-tert-butyl-2-hydroxybenzyl)malonaat, dioctadecyl-2-(3-tert-butyl-4-hydroxy-5-methylbenzyl)malonaat, didodecylmercaptoethyl-2,2-bis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)-malonaat, di[4-(1,1,3,3-tetramethylbutyl)fenyl]-2,2-bis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)malonaat.
 15

1.9 Aromatische hydroxybenzyl-verbindingen, bijvoorbeeld 1,3,5-tris(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)-2,4,6-trimethylbenzeen, 1,4-bis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)-2,3,5,6-tetramethylbenzeen, 2,4,6-tris(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)fenol.
 20

1.10 Triazine-verbindingen, bijvoorbeeld 2,4-bis(octylmercapto)-6-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyanilino)-1,3,5-triazine, 2-octylmercapto-4,6-bis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyanilino)-1,3,5-triazine, 2-octylmercapto-4,6-bis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenoxy)-1,3,5-triazine, 2,4,6-tris(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenoxy)-1,2,3-triazine, 1,3,5-tris(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)isocyanuraat, 1,3,5-tris(4-tert-butyl-3-hydroxy-2,6-dimethylbenzyl)isocyanuraat, 2,4,6-tris(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenylethyl)-1,3,5-triazine, 1,3,5-tris(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenylpropionyl)hexahydro-1,3,5-triazine, 1,3,5-tris(3,5-dicyclohexyl-4-hydroxybenzyl)isocyanuraat.
 25

1.11 Benzylfosfonaten, bijvoorbeeld dimethyl-2,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzylfosfonaat, diethyl-3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzylfosfonaat, dioctadecyl-3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzylfosfonaat, dioctadecyl-5-tert-butyl-4-hydroxy-3-methylbenzylfosfonaat, het Ca-zout van de monoethylester van 3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzylfosfonzuur.
 30

1.12 Acylaminofenolen, b.v. 4-hydroxylaurinezuuranilide, 4-hydroxystearinezuuranilide, N-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenyl)carbaminezuur-octylester.

1.13 Esters van β -(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenyl)propionzuur met een- of
meerwaardige alcoholen, zoals b.v. met methanol, ethanol, n-octanol, iso-octanol, octa-
5 decanol, 1,6-hexaandiol, 1,9-nonaandiol, ethyleenglycol, 1,2-propaandiol, neopentyl-
glycol, thiodiethyleenglycol, diethyleenglycol, triethyleenglycol, pentaerythritol, tris-
(hydroxyethyl)isocyanuraat, N,N'-bis(hydroxyethyl)oxaalzuurdiamide, 3-thiaundeca-
nol, 3-thiapentadecanol, trimethylhexaandiol, trimethylolpropaan, 4-hydroxymethyl-1-
fosfa-2,6,7-trioxabicyclo[2.2.2]octaan.

10 1.14 Esters van β -(5-tert-butyl-4-hydroxy-3-methylfenyl)propionzuur met een- of
meerwaardige alcoholen, zoals b.v. met methanol, ethanol, n-octanol, iso-octanol, octa-
decanol, 1,6-hexaandiol, 1,9-nonaandiol, ethyleenglycol, 1,2-propaandiol, neopentyl-
glycol, thiodiethyleenglycol, diethyleenglycol, triethyleenglycol, pentaerythritol, tris-
(hydroxyethyl)isocyanuraat, N,N'-bis(hydroxyethyl)oxaalzuurdiamide, 3-thiaundeca-
15 nol, 3-thiapentadecanol, trimethylhexaandiol, trimethylolpropaan, 4-hydroxymethyl-1-
fosfa-2,6,7-trioxabicyclo[2.2.2]octaan.

1.15 Esters van β -(3,5-dicyclohexyl-4-hydroxyfenyl)propionzuur met een- of
meerwaardige alcoholen, zoals b.v. met methanol, ethanol, octanol, octadecanol, 1,6-
hexaandiol, 1,9-nonaandiol, ethyleenglycol, 1,2-propaandiol, neopentylglycol, thio-
20 diethyleenglycol, diethyleenglycol, triethyleenglycol, pentaerythritol, tris(hydroxy-
ethyl)isocyanuraat, N,N'-bis(hydroxyethyl)oxaalzuurdiamide, 3-thiaundecanol, 3-
thiapentadecanol, trimethylhexaandiol, trimethylolpropaan, 4-hydroxymethyl-1-fosfa-
2,6,7-trioxabicyclo[2.2.2]octaan.

1.16 Esters van 3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenylazijnzuur met een- of meerwaar-
25 dige alcoholen, zoals b.v. met methanol, ethanol, octanol, octadecanol, 1,6-hexaandiol,
1,9-nonaandiol, ethyleenglycol, 1,2-propaandiol, neopentylglycol, thiodiethyleenglycol,
diethyleenglycol, triethyleenglycol, pentaerythritol, tris(hydroxyethyl)isocyanuraat,
N,N'-bis(hydroxyethyl)oxaalzuurdiamide, 3-thiaundecanol, 3-thiapentadecanol, tri-
methylhexaandiol, trimethylolpropaan, 4-hydroxymethyl-1-fosfa-2,6,7-trioxabicyclo-
30 [2.2.2]octaan.

1.17 Amiden van β -(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenyl)propionzuur, zoals b.v.
N,N'-bis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenylpropionyl)hexamethyleendiamine, N,N'-
bis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenylpropionyl)trimethyleendiamine, N,N'-bis(3,5-di-

tert-butyl-4-hydroxyfenylpropionyl)hydrazide, N,N'-bis[2-(3-[3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenyl]propionyloxy)ethyl]oxamide (Naugard® XL-1, geleverd door Uniroyal).

1.18 Ascorbinezuur (vitamine C).

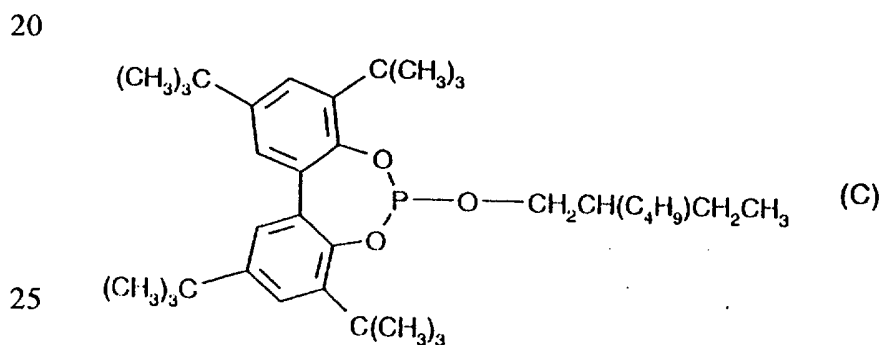
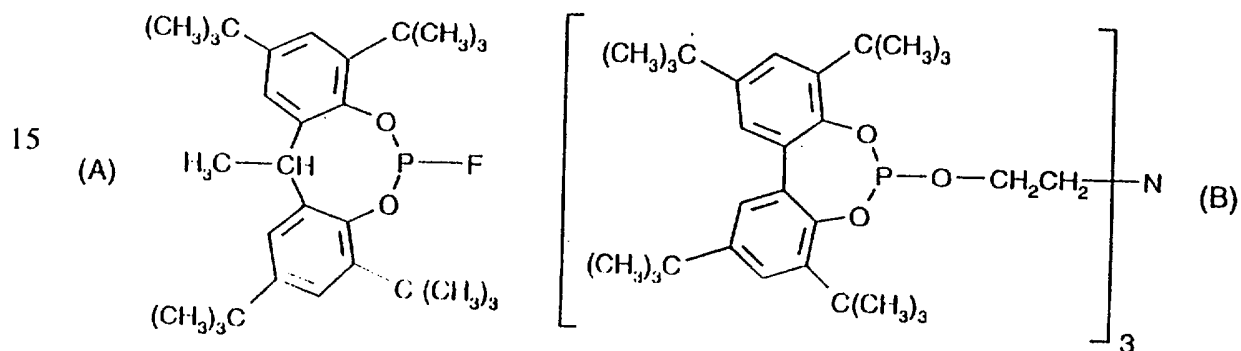
1.19 Amine-antioxidantia, zoals b.v. N,N'-diisopropyl-p-fenyleendiamine, N,N'-di-sec-butyl-p-fenyleendiamine, N,N'-bis(1,4-dimethylpentyl)-p-fenyleendiamine, N,N'-bis(1-ethyl-3-methylpentyl)-p-fenyleendiamine, N,N'-bis(1-methylheptyl)-p-fenyleendiamine, N,N'-dicyclohexyl-p-fenyleendiamine, N,N'-difenyl-p-fenyleendiamine, N,N'-di(2-naftyl)-p-fenyleendiamine, N-isopropyl-N'-fenyl-p-fenyleendiamine, N-(1,3-dimethylbutyl)-N'-fenyl-p-fenyleendiamine, N-(1-methylheptyl)-N'-fenyl-p-fenyleendiamine, N-cyclohexyl-N'-fenyl-p-fenyleendiamine, 4-(p-tolueensulfamoyl)-difenylamine, N,N'-dimethyl-N,N'-di-sec-butyl-p-fenyleendiamine, difenylamine, N-allyldifenylamine, 4-isopropoxydifenylamine, N-fenyl-1-naftylamine, N-(4-tert-octylfenyl)-1-naftylamine, N-fenyl-2-naftylamine, geoctyleerd difenylamine, b.v. p,p'-di-tert-octyldifenylamine, 4-n-butylaminofenol, 4-butyrylaminofenol, 4-nonanoylaminofenol, 4-dodecanoylaminofenol, 4-octadecanoylaminofenol, di(4-methoxyfenyl)amine, 2,6-di-tert-butyl-4-dimethylaminomethylfenol, 2,4'-diaminodifenylmethaan, 4,4'-diaminodifenylmethaan, N,N,N',N'-tetramethyl-4,4'-diaminodifenylmethaan, 1,2-di[(2-methylfenyl)amino]ethaan, 1,2-di(fenylamino)propaan, (o-tolyl)biguanide, di[4-(1,3'-dimethylbutyl)fenyl]amine, tert-geoctyleerd N-fenyl-1-naftylamine, mengsel van mono- en di-gealkyleerde tert-butyl/tert-octyldifenylaminen, mengsel van mono- en di-gealkyleerde nonyldifenylaminen, mengsel van mono- en di-gealkyleerde dodecyl-difenylaminen, mengsel van mono- en di-gealkyleerde isopropyl/isohexyldifenylaminen, mengsel van mono- en di-gealkyleerde tert-butyldifenylaminen, 2,3-dihydro-3,3-dimethyl-4H-1,4-benzothiazine, fenothiazine, mengsel van mono- en di-gealkyleerde tert-butyl/tert-octylfenothiazinen, mengsel van mono- en di-gealkyleerde tert-octylfenothiazinen, N-allylfenothiazine, N,N,N',N'-tetrafenyl-1,4-diaminobut-2-een, N,N-bis(2,2,6,6-tetramethylpiperidine-4-yl)hexamethyleendiamine, bis(2,2,6,6-tetramethylpiperidine-4-yl)sebacaat, 2,2,6,6-tetramethylpiperidine-4-on, 2,2,6,6-tetramethylpiperidine-4-ol.

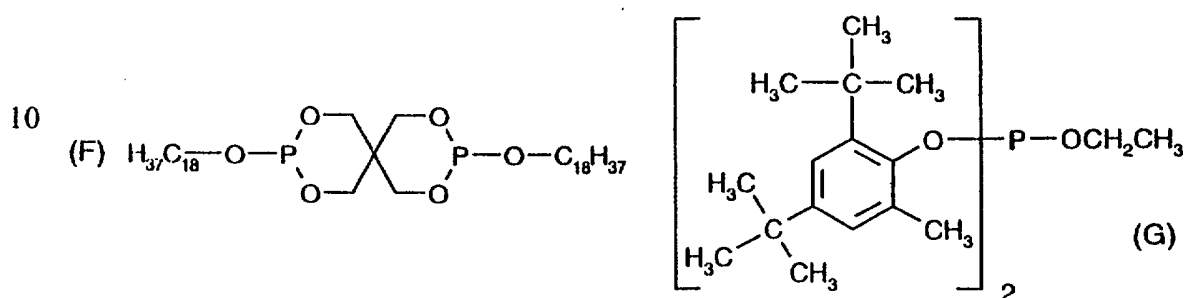
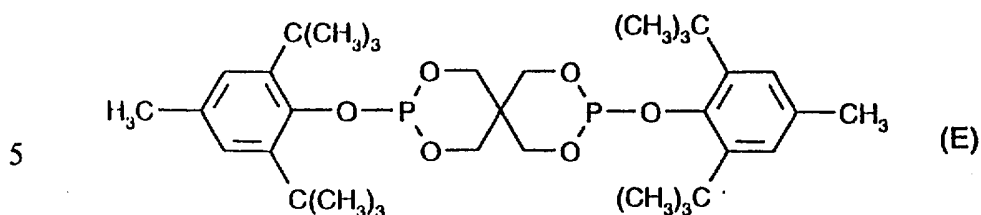
2. Fosfieten en fosfonieten, zoals bijvoorbeeld trifenylfosfiet, difenylalkylfosfieten, fenyldialkylfosfieten, tris(nonylfenyl)fosfiet, trilaurylfosfiet, trioctadecylfosfiet, distearyl-pentaerythritoldifosfiet, tris(2,4-di-tert-butylfenyl)fosfiet, diisodecylpentaerythritoldifosfiet, bis(2,4-di-tert-butylfenyl)pentaerythritoldifosfiet, bis(2,6-di-tert-butyl-

4-methylfenyl)pentaerythritoldifosfiet, diisodecyloxy-pentaerythritoldifosfiet, bis(2,4-di-tert-butyl-6-methylfenyl)pentaerythritoldifosfiet, bis(2,4,6-tris(tert-butylfenyl)pentaerythritoldifosfiet, tristearylsorbitoltrifosfiet, tetrakis(2,4-di-tert-butylfenyl)-4,4'-bifenylenedifosfoniet, 6-iso-octyloxy-2,4,8,10-tetra-tert-butyl-12H-dibenz[d,g]-1,3,2-dioxafosfocine, 6-fluor-2,4,8,10-tetra-tert-butyl-12-methyl-dibenz[d,g]-1,3,2-dioxafosfocine, bis(2,4-di-tert-butyl-6-methylfenyl)methylfosfiet, bis(2,4-di-tert-butyl-6-methylfenyl)ethylfosfiet, 2,2',2''-nitrilo[triethyltris(3,3',5,5'-tetra-tert-butyl-1,1'-bifenyl-2,2'-diyl)fosfiet], 2-ethylhexyl(3,3',5,5'-tetra-tert-butyl-1,1'-bifenyl-2,2'-diyl)fosfiet.

De volgende fosfieten hebben bijzondere voorkeur:

10 Tris(2,4-di-tert-butylfenyl)fosfiet (Irgafos[®] 168, Ciba-Geigy), tris(nonylfenyl)fosfiet,





15

3. Hydroxylaminen, zoals bijvoorbeeld N,N-dibenzylhydroxylamine, N,N-diethylhydroxylamine, N,N-dioctylhydroxylamine, N,N-dilaurylhydroxylamine, N,N-ditetradecylhydroxylamine, N,N-dihexadecylhydroxylamine, N,N-dioctadecylhydroxylamine, N-hexadecyl-N-octadecylhydroxylamine, N-heptadecyl-N-octadecylhydroxylamine, N,N-dialkylhydroxylamine uit gehydrogeneerde talgvetaminen.

20

4. Nitronen, zoals bijvoorbeeld N-benzyl-alfa-fenylnitron, N-ethyl-alfa-methylnitron, N-octyl-alfa-heptylnitron, N-lauryl-alfa-undecylnitron, N-tetradecyl-alfa-tridecylnitron, N-hexadecyl-alfa-pentadecylnitron, N-octadecyl-alfa-heptadecylnitron, N-hexadecyl-alfa-heptadecylnitron, N-octadecyl-alfa-pentadecylnitron, N-heptadecyl-alfa-heptadecylnitron, N-octadecyl-alfa-hexadecylnitron, nitronen die zijn afgeleid van N,N-dialkylhydroxylamine dat is bereid uit gehydrogeneerd talgvetamine.

25

5. Kiemvormende middelen, zoals bijvoorbeeld anorganische stoffen, zoals b.v. talk, metaaloxiden zoals titaandioxide of magnesiumoxide, fosfaten, carbonaten of sulfaten van bij voorkeur aardalkalimetalen; organische verbindingen zoals mono- of polycarbonzuren, alsmede de zouten daarvan, zoals b.v. 4-tert-butylbenzoëzuur, adipinezuur, difenylazijnzuur, natriumsuccinaat of natriumbenzoaat; polymeren, zoals b.v. ionogene copolymeren ("ionomeren").

30

6. Vulstoffen en versterkingsmiddelen, zoals bijvoorbeeld calciumcarbonaat, sili-

katen, glasvezels, glazen kogels, asbest, talk, kaolien, mica, bariumsulfaat, metaaloxiden en -hydroxiden, roet, grafiet, houtmeel en meelsoorten of vezels van andere natuurproducten, synthetische vezels.

5 7. Overige toevoegsels, zoals bijvoorbeeld weekmakers, glijmiddelen, emulgatoren, pigmenten, rheologie-toevoegsels, katalysatoren, verloop-hulpmiddelen, optische bleekmiddelen, vlamwerende middelen, antistatische middelen en opblaasmiddelen.

10 8. Benzofuranonen resp. indolinonen, zoals bijvoorbeeld degene die zijn beschreven in US-A-4325863, US-A-4338244, US-A-5175312, US-A-5216052, US-A-5252643, DE-A-4316611, DE-A-4316622, DE-A-4316876, EP-A-0589839 of EP-A-0591102, of 3-[4-(2-acetoxyethoxy)fenyl]-5,7-di-tert-butylbenzofuran-2-on, 5,7-di-tert-butyl-3-[4-(2-stearoyloxyethoxy)fenyl]benzofuran-2-on, 3,3'-bis[5,7-di-tert-butyl-3-(4-[2-hydroxyethoxy]fenyl)benzofuran-2-on], 5,7-di-tert-butyl-3-(4-ethoxyfenyl)benzofuran-2-on, 3-(4-acetoxy-3,5-dimethylfenyl)-5,7-di-tert-butylbenzofuran-2-on, 3-(3,5-dimethyl-4-pivaloyloxyfenyl)-5,7-di-tert-butylbenzofuran-2-on, 3-(3,4-dimethylfenyl)-
15 5,7-di-tert-butylbenzofuran-2-on, 3-(2,3-dimethylfenyl)-5,7-di-tert-butylbenzofuran-2-on.

Een verder onderwerp van de uitvinding is de toepassing van een mengsel van UV-absorptiemiddelen zoals hierboven gedefinieerd voor de stabilisatie van polyalkenen.

20 De uitvinding wordt geïllustreerd in de volgende voorbeelden.

Voorbeeld I: Licht-stabilisatie van PP-homopolymeerfilms

100 delen ongestabiliseerd polypropeenpoeder (smeltvloei-index 3,2 g/10 minuten, 230°C/2160 g) wordt 10 minuten bij 200°C in een Brabender-plastograaf gehomogeniseerd met 0,05 delen pentaerythryl-tetrakis-3-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenyl)-propionaat, 0,05 delen tris(2,4-di-tert-butylfenyl)fosfiet, 0,1 deel Ca-stearaat en de hoeveelheid licht-stabilisator die wordt weergegeven in tabel A. Het aldus verkregen materiaal wordt 6 minuten bij 260°C tussen twee aluminiumfoelies in een laboratoriumpers tot een 0,5 mm dikke film geperst, die onmiddellijk in een met water gekoelde pers tot kamertemperatuur wordt afgekoeld. Uit deze 0,5 mm dikke films werden monsters van 60 x 25 mm gesneden en blootgesteld in een WEATHER-OMETER Ci 65
30 (temperatuur van de zwarte achtergrond 63±2°C, zonder sproeien met water).

Deze monsters worden periodiek uit de blootstellingsinrichting verwijderd en het carbonylgehalte daarvan wordt gemeten met een infrarood-spectrofotometer.

De blootstellingstijd die overeenkomt met de vorming van een carbonylabsorptie van 0,1 is een maat voor de stabilisatie-efficiëntie van de licht-stabilisator. De verkregen waarden worden samengevat in de volgende tabel (tabel A).

Tabel A: Werking in 0,5 mm dikke films van PP-homopolymeer

Stabilisatie	T0,1: (uur) WEATHER- OMETER Ci 65	Berekend additief effect van combinaties
Controle	120	-
0,2% CHIMASSORB 81	410	-
0,2% TINUVIN 326	430	-
0,2% TINUVIN 1577	570	-
0,2% TINUVIN 315	905	-
0,1% CHIMASSORB 81 + 0,1% TINUVIN 1577	650	490
0,1% CHIMASSORB 81 + 0,1% TINUVIN 315	770	657
0,1% TINUVIN 326 + 0,1% TINUVIN 315	705	667
0,1% TINUVIN 1577 + 0,1% TINUVIN 315	810	737

Voorbeeld II: Licht-stabilisatie van PP-homopolymeerfilms

10

100 delen ongestabiliseerd polypropreenpoeder (smeltvloei-index 12 g/10 minuten, 230°C/2160 g) wordt 10 minuten bij 200°C in een Brabender-plastograaf gehomogeniseerd met 0,05 delen pentaerythryl-tetrakis-3-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenyl)-propionaat, 0,05 delen tris(2,4-di-tert-butylfenyl)fosfiet, 0,1 deel Ca-stearaat en de hoeveelheid licht-stabilisator die wordt weergegeven in tabel B. Het aldus verkregen materiaal wordt 6 minuten bij 260°C tussen twee aluminiumfoelies in een laboratoriumpers tot een 0,1 mm dikke film geperst, die onmiddellijk in een met water gekoelde pers tot kamertemperatuur wordt afgekoeld. Uit deze 0,1 mm dikke films worden monsters van 60 x 25 mm gesneden en blootgesteld in een XENOTEST 1200 (temperatuur van de zwarte achtergrond 53±2°C, zonder sproeien met water).

20

Deze monsters worden periodiek uit de blootstellingsinrichting verwijderd en het carbonylgehalte daarvan wordt gemeten met een infrarood-spectrofotometer.

De blootstellingstijd die overeenkomt met de vorming van een carbonylabsorptie van 0,1 is een maat voor de stabilisatie-efficiëntie van de licht-stabilisator. De verkregen waarden worden samengevat in de volgende tabel (tabel B).

Tabel B: Licht-stabilisatie van PP-homopolymeerfilms

Stabilisatie	T0,1: (uur) XENOTEST 1200	Berekend additief effect van combinaties
Controle	300	-
0,6% CHIMASSORB 81	3120	-
0,6% TINUVIN 327	440	-
0,6% TINUVIN 315	1090	-
0,3% CHIMASSORB 81 + 0,3% TINUVIN 315	2650	2105
0,3% TINUVIN 327 + 0,3% TINUVIN 315	940	765
0,2% CHIMASSORB 81 + 0,2% TINUVIN 327 + 0,2% TINUVIN 315	1870	1550
0,4% CHIMASSORB 81 + 0,1% TINUVIN 327 + 0,1% TINUVIN 315	2925	2335
0,3% CHIMASSORB 81 + 0,15% TINUVIN 327 + 0,15% TINUVIN 315	2720	2030

Voorbeeld III: Licht-stabilisatie van PE-HD-films (Phillips-type)

10

100 delen van een polyetheenpoeder met hoge dichtheid van het Phillips-type (dichtheid: 0,965, smeltvloeindex 6,0 g/10 minuten, 190°C/2160 g) dat is gestabiliseerd met 0,05 delen pentaerythryl-tetrakis-3-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenyl)-propionaat en 0,1 deel Ca-stearaat wordt 10 minuten bij 180°C in een Brabender-plastograaf gehomogeniseerd met de hoeveelheid licht-stabilisator en co-toevoegsels die worden weergegeven in tabel C. Op overeenkomstige wijze wordt 100 delen van een polyetheenpoeder met hoge dichtheid van het Ziegler-type (dichtheid: 0,961, smeltvloeindex 6,0 g/10 minuten, 190°C/2160 g) dat is gestabiliseerd met 0,05 delen

pentaerythrityl-tetrakis-3-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenyl)propionaat, 0,05 delen tris(2,4-di-tert-butylfenyl)fosfiet en 0,1 deel Ca-stearaat 10 minuten bij 180 °C in een Brabender-plastograaf gehomogeniseerd met de hoeveelheid licht-stabilisator en co-toevoegsels die worden weergegeven in tabel Ca.

- 5 Het aldus verkregen materiaal wordt 6 minuten bij 210°C tussen twee aluminium-foelies in een laboratoriumpers tot een 0,2 mm dikke film geperst, die onmiddellijk in een met water gekoelde pers tot kamertemperatuur wordt afgekoeld. Uit deze 0,2 mm dikke films worden monsters van 60 x 25 mm gesneden en blootgesteld in een XENO-TEST 1200 (temperatuur van de zwarte achtergrond $53 \pm 2^\circ\text{C}$, zonder sproeien met water).
10. Deze monsters worden periodiek uit de blootstellingsinrichting verwijderd en het carbonylgehalte daarvan wordt gemeten met een infrarood-spectrofotometer. De blootstellingstijd die overeenkomt met de vorming van een carbonylabsorptie van 0,1 is een maat voor de stabilisatie-efficiëntie van de licht-stabilisator. De verkregen waarden worden samengevat in de volgende tabellen C en Ca.

15

Tabel C: Licht-stabilisatie van 0,2 mm dikke PE-HD-films (Phillips-type)

Stabilisatie	T0,1: (uur)	Berekend
	XENOTEST	additief effect
	1200	van combinaties
Controle	360	-
0,3% CHIMASSORB 81	2230	-
0,3% TINUVIN 327	1240	-
0,3% TINUVIN 315	2020	-
0,15% CHIMASSORB 81 + 0,15% TINUVIN 327	3000	1735
0,15% CHIMASSORB 81 + 0,15% TINUVIN 315	2650	2125
0,15% TINUVIN 327 + 0,15% TINUVIN 315	3060	1630
0,1% CHIMASSORB 81 + 0,1% TINUVIN 327	3150	1830
+ 0,1% TINUVIN 315		

Tabel Ca: Licht-stabilisatie van 0,2 mm dikke PE-HD-films (Ziegler-type)

Stabilisatie	T _{0,1} : (uur) XENOTEST	Berekend additief effect van combinaties
Vergelijkend experiment	1200	
Controle	190	-
0,3% CHIMASSORB 81	1540	-
0,3% TINUVIN 327	700	-
0,15% CHIMASSORB 81 + 0,15% TINUVIN 327	940	1120

Voorbeeld IV: Licht-stabilisatie van PE-LD-films

5 100 delen ongestabiliseerd polyetheenpoeder met lage dichtheid (dichtheid: 0,918, smeltvloeï-index 0,3 g/10 minuten bij 190°C/2160 g) wordt 10 minuten bij 180°C in een Brabender-plastograaf gehomogeniseerd met 0,02 delen octadecyl-3-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenyl)propionaar, 0,08 delen tris(2,4-di-tert-butylfenyl)fosfiet en de hoeveelheid licht-stabilisator die wordt weergegeven in tabel. Het aldus verkregen

10 materiaal wordt 6 minuten bij 170°C tussen twee aluminiumfoelies in een laboratoriumpers tot een 0,5 mm dikke film geperst, die onmiddellijk in koud water wordt afgekoeld. Uit deze 0,5 mm dikke films worden monsters van 60 x 25 mm gesneden en blootgesteld in een WEATHER-OMETER Ci 65 (temperatuur van de zwarte achtergrond 63±2°C, zonder sproeien met water).

15 Deze monsters worden periodiek uit de blootstellingsinrichting verwijderd en het carbonylgehalte daarvan wordt gemeten met een infrarood-spectrofotometer.

De blootstellingstijd die overeenkomt met de vorming van een carbonylabsorptie van 0,1 is een maat voor de stabilisatie-efficiëntie van de licht-stabilisator. De verkregen waarden worden samengevat in de volgende tabel.

D: Licht-stabilisatie van PE-LD-films

Stabilisatie	T0,1: (uur) WEATHER- OMETER Ci 65	Berekend additief effect van combinaties
Controle	150	-
0,1% CHIMASSORB 81	430	-
0,2% CHIMASSORB 81	665	-
0,1% TINUVIN 326	760	-
0,2% TINUVIN 326	1150	-
0,1% TINUVIN 1577	815	-
0,2% TINUVIN 1577	1100	-
0,1% TINUVIN 315	705	-
0,2% TINUVIN 315	2000	-
0,05% CHIMASSORB 81 + 0,05% TINUVIN 1577	665	622
0,05% CHIMASSORB 81 + 0,05% TINUVIN 315	780	567
0,05% TINUVIN 326 + 0,05% TINUVIN 315	795	732
0,05% TINUVIN 1577 + 0,05% TINUVIN 315	830	760
0,1% CHIMASSORB 81 + 0,1% TINUVIN 1577	920	882
0,1% CHIMASSORB 81 + 0,1% TINUVIN 315	1660	1332

Voorbeeld V: Licht-stabilisatie van PE-LLD-films

- 5 100 delen ongestabiliseerd lineair polyetheenpoeder met lage dichtheid (PE-LLD) (dichtheid: 0,920, smeltvloeï-index 1,0 g/10 minuten bij 190°C/2160 g) wordt 10 minuten bij 180°C in een Brabender-plastograaf gehomogeniseerd met 0,02 delen octadecyl-3-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenyl)propionaat, 0,08 delen tris(2,4-di-tert-butylfenyl)fosfiet, 0,1 deel Ca-stearaat en de hoeveelheid licht-stabilisator die wordt weer-
- 10 gegeven in tabel E. Op overeenkomstige wijze wordt 100 delen metallocen-polyetheenpoeder (dichtheid: 0,905, 10% buteen-comonomeer, smeltvloeï-index 1,4 g/10 minuten bij 190°C/2160 g) 10 minuten bij 180°C in een Brabender-plastograaf gehomogeniseerd met 0,02 delen octadecyl-3-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenyl)propio-

naat, 0,08 delen tris(2,4-di-tert-butylfenyl)fosfiet, 0,1 deel Ca-stearaat en de hoeveelheid licht-stabilisator die wordt weergegeven in tabel Ea (zie ook voorbeeld VI). Het aldus verkregen materiaal wordt 6 minuten bij 170°C tussen twee aluminiumfoelies in een laboratoriumpers tot een 0,5 mm dikke film geperst, die onmiddellijk wordt afgeschrikt in koud water. Uit deze 0,5 mm dikke films worden monsters van 60 x 25 mm gesneden en blootgesteld in een WEATHER-OMETER Ci 65 (temperatuur van de zwarte achtergrond $63 \pm 2^\circ\text{C}$, zonder sproeien met water).

Deze monsters worden periodiek uit de blootstellingsinrichting verwijderd en het carbonylgehalte daarvan wordt gemeten met een infrarood-spectrofotometer.

De blootstellingstijd die overeenkomt met de vorming van een carbonylabsorptie van 0,1 is een maat voor de stabilisatie-efficiëntie van de licht-stabilisator. De verkregen waarden worden samengevat in de volgende tabellen E en Ea.

Tabel E: Licht-stabilisatie van PE-LLD van het gebruikelijke type

Stabilisatie	T _{0,1} : (uur)	Berekend
	WEATHER- OMETER Ci 65	additief effect van combinaties
Controle	260	-
0,2% CHIMASSORB 81	2260	-
0,2% TINUVIN 326	1350	-
0,2% TINUVIN 1577	1600	-
0,2% TINUVIN 315	2840	-
0,1% CHIMASSORB 81 + 0,1% TINUVIN 315	3300	2550
0,1% TINUVIN 326 + 0,1% TINUVIN 315	2820	2095
0,1% TINUVIN 1577 + 0,1% TINUVIN 315	2920	2220

Tabel Ea: Vergelijking tussen PE-LLD van het metallocen-type en gebruikelijk PE-LLD voor combinaties van benzofenon/benzotriazool-UV-absorptiemiddel (gegevens voor een deel uit tabel E en F)

Stabilisatie	T0,1: (uur)	Berekend
metallocen-Pe_LLD	WEATHER- OMETER Ci 65	additief effect van combinaties
Controle	365	-
0,2% CHIMASSORB 81	1920	-
0,2% TINUVIN 326	1480	-
0,1% CHIMASSORB 81 + 0,1% TINUVIN 326	1880	1700
Vergelijkend voorbeeld met gebruikelijk PE-LLD		
Controle	260	-
0,2% CHIMASSORB 81	2260	-
0,2% TINUVIN 326	1350	-
0,1% CHIMASSORB 81 + 0,1% TINUVIN 326	1390	1805

5 Voorbeeld VI: Licht-stabilisatie van metallocen-PE-films

100 delen ongestabiliseerd metallocen-polyetheenpoeder (dichtheid: 0,905, 10% buteen-comonomeer) wordt 10 minuten bij 180°C in een Brabender-plastograaf gehomogeniseerd met 0,02 delen octadecyl-3-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyfenyl)propionaat, 0,08 delen tris(2,4-di-tert-butylfenyl)fosfiet, 0,1 deel Ca-stearaat en de hoeveelheid licht-stabilisator die wordt weergegeven in de tabel. Het aldus verkregen materiaal wordt 6 minuten bij 170°C tussen twee aluminiumfoelies in een laboratoriumpers tot een 0,2 mm dikke film geperst, die onmiddellijk wordt afgeschrikt in koud water. Uit deze 0,2 mm dikke films worden monsters van 60 x 25 mm gesneden en blootgesteld in een WEATHER-OMETER Ci 65 (temperatuur van de zwarte achtergrond 63±2°C, zonder sproeien met water).

Deze monsters worden periodiek uit de blootstellingsinrichting verwijderd en het carbonylgehalte daarvan wordt gemeten met een infrarood-spectrofotometer.

De blootstellingstijd die overeenkomt met de vorming van een carbonylabsorptie van 0,1 is een maat voor de stabilisatie-efficiëntie van de licht-stabilisator. De verkregen waarden worden samengevat in de volgende tabel.

Tabel F: Licht-stabilisatie van metallocceen-polyetheen (m-PE-LLD)

Stabilisatie	T _{0,1} : (uur) WEATHER- OMETER Ci 65	Berekend additief effect van combinaties
Controle	365	-
0,2% CHIMASSORB 81	1920	-
0,2% TINUVIN 326	1480	-
0,2% TINUVIN 1577	1800	-
0,2% TINUVIN 315	3380	-
0,1% CHIMASSORB 81 + 0,1% TINUVIN 326	1880	1700
0,1% CHIMASSORB 81 + 0,1% TINUVIN 1577	2060	1860
0,1% CHIMASSORB 81 + 0,1% TINUVIN 315	3440	2650

Voorbeeld VII: Licht-stabilisatie van PE-HD-films

5

100 delen ongestabiliseerd polyetheenpoeder met hoge dichtheid (dichtheid: 0,965, smeltvloeï-index 2,9 g/10 minuten, 190°C/5 kg) wordt 10 minuten bij 180°C in een Brabender-plastograaf gehomogeniseerd met de hoeveelheid licht-stabilisator die wordt weergegeven in de tabel. Het aldus verkregen materiaal wordt 6 minuten bij 210°C tussen twee aluminiumfoelies in een laboratoriumpers tot een 0,2 mm dikke film geperst, die onmiddellijk in een met water gekoelde pers wordt afgekoeld tot kamertemperatuur. Uit deze 0,2 mm dikke films worden monsters van 60 x 25 mm gesneden en blootgesteld in een WEATHER-OMETER Ci 65 (temperatuur van de zwarte achtergrond 63±2°C, zonder sproeien met water).

15

Deze monsters worden periodiek uit de blootstellingsinrichting verwijderd en het carbonylgehalte daarvan wordt gemeten met een infrarood-spectrofotometer.

De blootstellingstijd die overeenkomt met de vorming van een carbonylabsorptie van 0,1 is een maat voor de stabilisatie-efficiëntie van de licht-stabilisator. De verkregen waarden worden samengevat in de volgende tabel.

20

Tabel G: Licht-stabilisatie van 0,2 mm dikke PE-HD-films

Stabilisatie	T0,1: (uur) WEATHER- OMETER Ci 65	Berekend additief effect van combinaties
Controle	280	-
0,3% CHIMASSORB 81	4021	-
0,3% TINUVIN 327	580	-
0,3% TINUVIN 315	2223	-
0,3% TINUVIN 1577	476	-
0,15% CHIMASSORB 81 + 0,15% TINUVIN 315	3616	3122
0,15% CHIMASSORB 81 + 0,15% TINUVIN 1577	2560	2248
0,15% TINUVIN 327 + 0,15% TINUVIN 315	2496	1401
0,15% TINUVIN 315 + 0,15% TINUVIN 1577	3208	1349
0,1% CHIMASSORB 81 + 0,1% TINUVIN 327 + 0,1% TINUVIN 315	3136	2275
0,1% CHIMASSORB 81 + 0,1% TINUVIN 1577 + 0,1% TINUVIN 315	3314	2240
0,1% TINUVIN 327 + 0,1% TINUVIN 1577 + 0,1% TINUVIN 315	1948	1093

Voorbeeld VIII: Licht-stabilisatie van metallocen-PE-LLD-films

- 5 100 delen ongestabiliseerd metallocen-polyetheenpoeder (dichtheid: 0,934, smeltvloei-index 6,0 g/10 minuten, 190°C/2160 g) wordt 10 minuten bij 180°C in een Brabender-plastograaf gehomogeniseerd met de hoeveelheid licht-stabilisator die wordt weergegeven in de tabel. Het aldus verkregen materiaal wordt 6 minuten bij 170°C tussen twee aluminiumfoelies in een laboratoriumpers tot een 0,2 mm dikke film geperst,
- 10 die onmiddellijk wordt afgeschrikt in koud water. Uit deze 0,2 mm dikke films worden monsters van 60 x 25 mm gesneden en blootgesteld in een WEATHER-OMETER Ci 65 (temperatuur van de zwarte achtergrond 63±2°C, zonder sproeien met water).

Deze monsters worden periodiek uit de blootstellingsinrichting verwijderd en het carbonylgehalte daarvan wordt gemeten met een infrarood-spectrofotometer.

De blootstellingstijd die overeenkomt met de vorming van een carbonylabsorptie van 0,1 is een maat voor de stabilisatie-efficiëntie van de licht-stabilisator. De verkregen waarden worden samengevat in de volgende tabel.

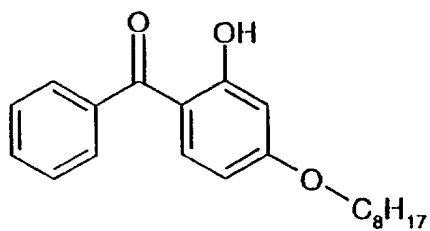
Tabel H: Licht-stabilisatie van metallocen-polyetheen

Stabilisatie	T0,1: (uur) WEATHER- OMETER Ci 65	Berekend additief effect van combinaties
Controle	136	-
0,3% CHIMASSORB 81	1803	-
0,3% TINUVIN 327	473	-
0,3% TINUVIN 1577	324	-
0,3% TINUVIN 315	1903	-
0,15% CHIMASSORB 81 + 0,15% TINUVIN 1577	1196	1063
0,15% CHIMASSORB 81 + 0,15% TINUVIN 315	2293	1853
0,15% TINUVIN 327 + 0,15% TINUVIN 315	1311	1188
0,1% CHIMASSORB 81 + 0,1% TINUVIN 327 + 0,1% TINUVIN 315	1637	1393

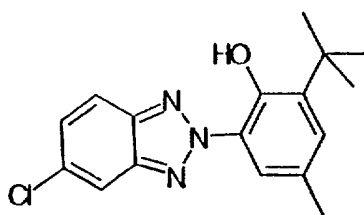
Alle toegepaste vervbindingen zijn UV-absorptiemiddelen die in de handel verkrijgbaar zijn bij Ciba Specialty Chemicals Inc. en de handelsmerken zijn geregistreerde handelsmerken.

Chimassorb® 81

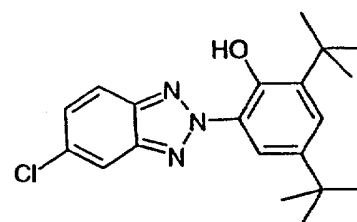
5



10 Tinuvin® 326

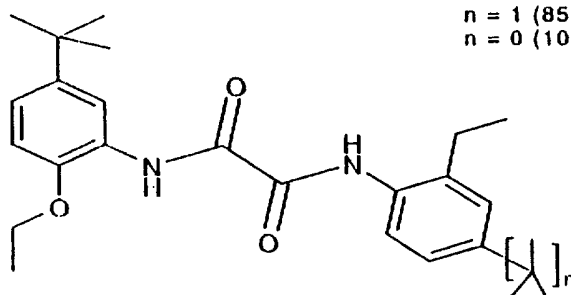


, Tinuvin® 327



15

Tinuvin® 315

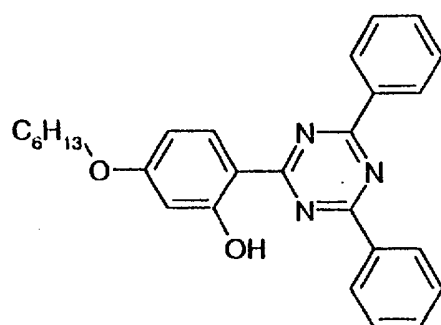


$n = 1$ (85-90%)
 $n = 0$ (10-15%)

20

Tinuvin® 1577

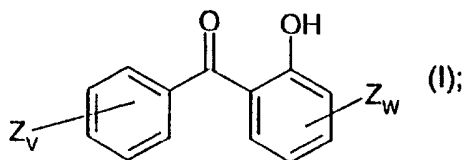
25



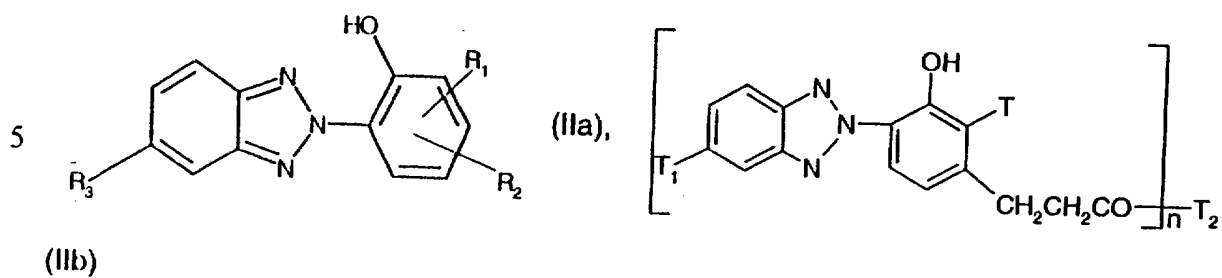
Conclusies

1. Polyalkeensamenstelling die als UV-absorptiemiddel een mengsel omvat van
- a) ten minste een hydroxybenzofenon en ten minste een 2-hydroxyfenylbenzo-
 - 5 triazool, met dien verstande dat de polyalkeen polyetheen met hoge dichtheid van het "Phillips"-type of een polyetheen van het metallocceen-type is;
 - b) ten minste een hydroxybenzofenon en ten minste een 2-hydroxyfenyltriazine, met dien verstande dat als de polyalkeen polypropeen is, geen polyvinylpyridine aanwezig is;
 - 10 c) ten minste een hydroxybenzofenon en ten minste een oxanilide;
 - d) ten minste een 2-hydroxyfenylbenzotriazool en ten minste een oxanilide;
 - e) ten minste een 2-hydroxyfenyltriazine en ten minste een oxanilide;
 - f) ten minste een hydroxybenzofenon, ten minste een 2-hydroxyfenylbenzotriazool en ten minste een oxanilide;
 - 15 g) ten minste een hydroxybenzofenon, ten minste een oxanilide en ten minste een 2-hydroxyfenyltriazine; of
 - h) ten minste een 2-hydroxyfenylbenzotriazool, ten minste een oxanilide en ten minste een 2-hydroxyfenyltriazine.
- 20 2. Polyalkeensamenstelling volgens conclusie 1, waarbij de polyalkeen polyetheen of polypropeen is.

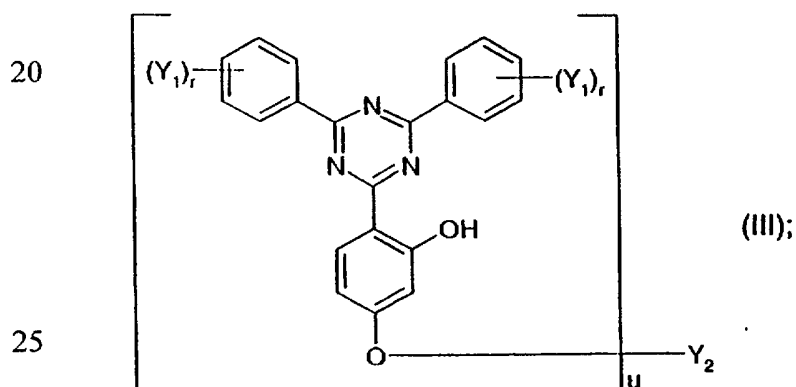
3. Polyalkeensamenstelling volgens conclusie 1, waarbij het hydroxybenzofenon de formule I heeft



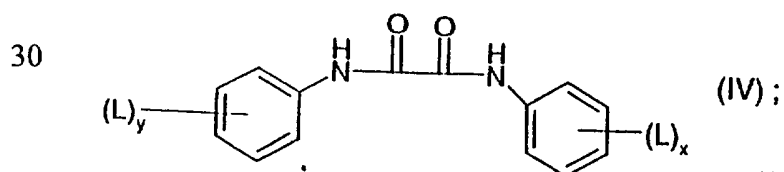
30 de 2-hydroxyfenylbenzotriazoolde formule IIa, IIb of IIc heeft



het 2-hydroxyfenyltriazine de formule III heeft



en het oxanilide de formule (IV) heeft

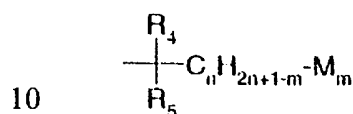


waarbij

in de verbindingen met de formule (I) v een geheel getal van 1 tot 3 is en w 1 of 2 is en de substituenten Z onafhankelijk van elkaar waterstof, halogeen, hydroxyl of alkoxy met 1 tot 12 koolstofatomen zijn;

5 in de verbindingen met de formule (IIa),

R₁ waterstof, alkyl met 1 tot 24 koolstofatomen, fenylalkyl, met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest, cycloalkyl met 5 tot 8 koolstofatomen of een rest met de formule



is, waarbij

R₄ en R₅ onafhankelijk van elkaar alkyl met in ieder geval 1 tot 5 koolstofatomen zijn, of R₄, samen met de rest C_nH_{2n+1-m}, een cycloalkylrest met 5 tot 12 koolstofatomen

15 vormt,

m 1 of 2 is, n een geheel getal van 2 tot 20 is en

M een rest met de formule -COOR₆ is, waarbij

R₆ waterstof, alkyl met 1 tot 12 koolstofatomen, alkoxyalkyl met in ieder geval 1 tot 20 koolstofatomen in de alkylrest en in de alkoxyrest of fenylalkyl met 1 tot 4 koolstof-
20 atomen in de alkylrest is,

R₂ waterstof, halogeen, alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen en fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest is en

R₃ waterstof, chloor, alkyl of alkoxy met in ieder geval 1 tot 4 koolstofatomen of -COOR₆ is, waarbij R₆ is zoals hierboven gedefinieerd, waarbij ten minste een van de

25 resten R₁ en R₂ geen waterstof is;

in de verbindingen met de formule (IIb)

T waterstof of alkyl met 1 tot 6 koolstofatomen is,

T₁ waterstof, chloor of alkyl of alkoxy met in ieder geval 1 tot 4 koolstofatomen is, n 1 of 2 is en

30 als n 1 is,

5 T_2 chloor of een rest met de formule $-OT_3$ of $\text{---N} \begin{matrix} T_4 \\ T_5 \end{matrix}$ is en

10 als $n = 2$ is, T_2 een rest met de formule $\begin{matrix} \text{---N} & \text{---} T_{10} & \text{---N} \\ T_6 & & T_6 \end{matrix}$ of $-O-T_9-O-$ is, waarbij

T_3 waterstof, alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen dat ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met 1 tot 3 hydroxylgroepen of met $-OCOT_6$, alkyl met 3 tot 18 koolstofatomen, dat een keer of vaker onderbroken is door $-O-$ of $-NT_6-$ en ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met hydroxyl of $-OCOT_6$, cycloalkyl met 5 tot 12 koolstofatomen dat ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met hydroxyl en/of alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen, alkenyl met 2 tot 18 koolstofatomen dat ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met hydroxyl, fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest,

20 of een rest met de formule $-\text{CH}_2\text{CH}(\text{OH})-T_7$ of $\text{---C} \begin{matrix} \text{H}_2 \end{matrix} \text{---CH} \begin{matrix} \text{O} \\ \diagup \quad \diagdown \\ \text{CH} \quad \text{CH}_2 \end{matrix}$ is,

T_4 en T_5 onafhankelijk van elkaar waterstof, alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, alkyl met 3 tot 18 koolstofatomen dat een keer of vaker is onderbroken door $-O-$ of $-NT_6-$, cycloalkyl met 5 tot 12 koolstofatomen, fenyl, fenyl dat is gesubstitueerd met alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen, alkenyl met 3 tot 8 koolstofatomen, fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest of hydroxyalkyl met 2 tot 4 koolstofatomen zijn,

T_6 waterstof, alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, cycloalkyl met 5 tot 12 koolstofatomen, alkenyl met 3 tot 8 koolstofatomen, fenyl, fenyl dat is gesubstitueerd met alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen, fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest is,

T_7 waterstof, alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, fenyl dat ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met hydroxyl, fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest of $-\text{CH}_2OT_8$ is,

- T_8 alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, alkenyl met 3 tot 8 koolstofatomen, cycloalkyl met 5 tot 10 koolstofatomen, fenyl, fenyl dat is gesubstitueerd met alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen, of fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest is,
- T_9 alkyleen met 2 tot 8 koolstofatomen, alkenyleen met 4 tot 8 koolstofatomen, alky-
 5 nyleen met 4 koolstofatomen, cyclohexyleen, alkyleen met 2 tot 8 koolstofatomen dat een keer of vaker onderbroken is door -O-, of een rest met de formule $-\text{CH}_2\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_2\text{OT}_{11}\text{OCH}_2\text{CH}(\text{OH})\text{CH}_2-$ of $-\text{CH}_2-\text{C}(\text{CH}_2\text{OH})_2-\text{CH}_2-$ is,
- T_{10} alkyleen met 2 tot 20 koolstofatomen dat een keer of vaker onderbroken kan zijn door -O-, of cyclohexyleen is,
- 10 T_{11} alkyleen met 2 tot 8 koolstofatomen, alkyleen met 2 tot 18 koolstofatomen dat een keer of vaker is onderbroken door -O-, 1,3-cyclohexyleen, 1,4-cyclohexyleen, 1,3-fenyleen of 1,4-fenyleen is, of
- T_{10} en T_6 , samen met de twee stikstofatomen, een piperazinerings zijn;
 in de verbindingen met de formule (IIc)
- 15 $R'_2 \text{ C}_1\text{-C}_{12}$ alkyl is en k een getal van 1 tot 4 is;
 in de verbindingen met de formule (III)
- u 1 of 2 is en r een geheel getal van 1 tot 3 is, de substituenten
- Y_1 onafhankelijk van elkaar waterstof, hydroxyl, halogeenmethyl, alkyl met 1 tot 12 koolstofatomen, alkoxy met 1 tot 18 koolstofatomen, of halogeen zijn,
- 20 als u 1 is,
- Y_2 alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, fenoxyl dat ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met hydroxyl, alkoxy met 1 tot 18 koolstofatomen, of halogeen is, of gesubstitueerd is met alkyl of alkoxy met in ieder geval 1 tot 18 koolstofatomen of halogeen, alkyl met 1 tot 12 koolstofatomen dat gesubstitueerd is met $-\text{COOH}$, $-\text{COOY}_8$, $-\text{CONH}_2$,
 25 $-\text{CONY}_9$, $-\text{CONY}_9\text{Y}_{10}$, $-\text{NH}_2$, $-\text{NHY}_9$, $-\text{NY}_9\text{Y}_{10}$, $-\text{NHCOY}_{11}$, $-\text{CN}$ en/of $-\text{OCOY}_{11}$ is, alkyl met 4 tot 20 koolstofatomen, dat is onderbroken door een of meer zuurstofatomen en ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met hydroxyl of alkoxy met 1 tot 12 koolstofatomen, alkenyl met 3 tot 6 koolstofatomen, glycidyl, cyclohexyl dat ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met hydroxyl, alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen en/of
 30 $-\text{OCOY}_{11}$, fenylalkyl met 1 tot 5 koolstofatomen in de alkylrest dat ongesubstitueerd is of gesubstitueerd is met hydroxyl, chloor en/of methyl, $-\text{COY}_{12}$ of $-\text{SO}_2\text{Y}_{13}$ is, of als u 2 is,

- Y₂ alkyleen met 2 tot 16 koolstofatomen, alkenyleen met 4 tot 12 koolstofatomen, xylyleen, alkyleen met 3 tot 20 koolstofatomen, dat is onderbroken door een of meer -O-atomen en/of is gesubstitueerd met hydroxyl,
 -CH₂CH(OH)CH₂-Y₁₅-OCH₂CH(OH)CH₂, -CO-Y₁₆-CO-, -CO-NH-Y₁₇-NH-CO- of
 5 -(CH₂)_m-CO₂-Y₁₈-OCO-(CH₂)_m is, waarbij
 m 1, 2 of 3 is,
 Y₈ alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, alkenyl met 3 tot 18 koolstofatomen, alkyl met 3 tot 20 koolstofatomen, dat is onderbroken door een of meer zuurstof- of zwavelatomen of -NT₆- en/of is gesubstitueerd met hydroxyl, alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen dat is
 10 gesubstitueerd met -P(O)(OY₁₄)₂, -NY₉Y₁₀ of -OCOY₁₁ en/of hydroxyl, alkenyl met 3 tot 18 koolstofatomen, glycidyl, of fenylalkyl met 1 tot 5 koolstofatomen in de alkylrest is,
 Y₉ en Y₁₀ onafhankelijk van elkaar alkyl met 1 tot 12 koolstofatomen, alkoxyalkyl met 3 tot 12 koolstofatomen, dialkylaminoalkyl met 4 tot 16 koolstofatomen of cyclohexyl
 15 met 5 tot 12 koolstofatomen zijn, of Y₉ en Y₁₀ samen alkyleen, oxa-alkyleen of aza-alkyleen met in ieder geval 3 tot 9 koolstofatomen zijn,
 Y₁₁ alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, alkenyl met 2 tot 18 koolstofatomen of fenyl is,
 Y₁₂ alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, alkenyl met 2 tot 18 koolstofatomen, fenyl, alkoksymet 1 tot 12 koolstofatomen, fenoxyl, alkylamino met 1 tot 12 koolstofatomen of
 20 fenylamino is,
 Y₁₃ alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, fenyl of alkylfenyl met 1 tot 8 koolstofatomen in de alkylrest is,
 Y₁₄ alkyl met 1 tot 12 koolstofatomen of fenyl is,
 Y₁₅ alkyleen met 2 tot 10 koolstofatomen, fenyleen of een groep -fenyleen-M-fenyleen-
 25 is, waarbij M -O-, -S-, -SO₂-, -CH₂- of -C(CH₃)₂- is,
 Y₁₆ alkyleen, oxa-alkyleen of thia-alkyleen met in ieder geval 2 tot 10 koolstofatomen, fenyleen of alkenyleen met 2 tot 6 koolstofatomen is,
 Y₁₇ alkyleen met 2 tot 10 koolstofatomen, fenyleen of alkylfenyleen met 1 tot 11 koolstofatomen in de alkylrest is en
 30 Y₁₈ alkyleen met 2 tot 10 koolstofatomen of alkyleen met 4 tot 20 koolstofatomen dat een keer of vaker is onderbroken door zuurstof is;

in de verbindingen met de formule (IV) x een geheel getal van 1 tot 3 is en de substituenten L onafhankelijk van elkaar waterstof, alkyl, alkoxy of alkylthio met in ieder geval 1 tot 22 koolstofatomen, fenoxo of fenylthio zijn.

5 4. Polyalkeensamenstelling volgens conclusie 3, waarbij, in de verbindingen met de formule (IIa), R_1 waterstof of alkyl met 1 tot 20 koolstofatomen is, R_2 waterstof, alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen of fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest is en R_3 waterstof, chloor of alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen is.

10 5. Polyalkeensamenstelling volgens conclusie 4, waarbij R_1 zich op de ortho-plaats ten opzichte van de hydroxylgroep bevindt en waterstof of alkyl met 4 tot 12 koolstofatomen is, R_2 zich op de para-plaats ten opzichte van de hydroxylgroep bevindt en alkyl met 1 tot 6 koolstofatomen of cumyl is en R_3 waterstof of chloor is.

15 6. Polyalkeensamenstelling volgens conclusie 3, waarbij, in de verbindingen met de formule (IIb), T alkyl met 1 tot 6 koolstofatomen is, T_1 waterstof, chloor of alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen is, n 1 of 2 is en, als n 1 is, T_2 een van de res-

20 ten met de formule $-OT_3$ of $\text{---N} \begin{matrix} T_4 \\ T_5 \end{matrix}$ is en, als n 2 is, T_2 een rest met de formule

-O- T_9 -O- of $\text{---N} \begin{matrix} T_6 \end{matrix} \text{---} T_{10} \text{---} \text{N} \begin{matrix} T_6 \end{matrix}$ is, waarbij T_3 waterstof, alkyl met 1 tot

25 18 koolstofatomen of alkyl met 3 tot 18 koolstofatomen dat een keer of vaker is onderbroken door -O- is, T_4 en T_5 onafhankelijk van elkaar waterstof, alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, alkenyl met 3 tot 8 koolstofatomen of hydroxyalkyl met 2 tot 4 koolstofatomen zijn, T_6 waterstof of alkyl met 1 tot 6 koolstofatomen zijn en T_9 en T_{10}
30 alkyleen met 2 tot 8 koolstofatomen, alkenyleen met 4 tot 8 koolstofatomen of alkyleen met 2 tot 18 koolstofatomen dat een keer of vaker is onderbroken door -O- zijn.

7. Polyalkeensamenstelling volgens conclusie 3, waarbij, in de verbindingen met de formule (III), de substituenten Y_1 waterstof, alkyl met 1 tot 12 koolstofatomen of halogeen zijn, als u 1 is, Y_2 alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, alkyl met 1 tot 12 koolstofatomen dat is gesubstitueerd met hydroxyl, alkoxy met 1 tot 18 koolstofatomen, -COOY₈, -CONY₉Y₁₀ en/of -OCOY₁₁, glycidyl of fenylalkyl met 1 tot 4 koolstofatomen in de alkylrest is, of, als u 2 is, Y_2 alkyleen met 2 tot 16 koolstofatomen, alkenyleen met 4 tot 12 koolstofatomen, xylyleen of alkyleen met 3 tot 20 koolstofatomen, dat is onderbroken door een of meer -O- atomen en/of is gesubstitueerd met hydroxyl is, waarbij de substituenten Y_8 tot en met Y_{11} zijn zoals gedefinieerd in conclusie 3.

10

8. Polyalkeensamenstelling volgens conclusie 7, waarbij u 1 is en r 2 is, Y_1 alkyl met 1 tot 4 koolstofatomen is en Y_2 alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen of alkyl met 1 tot 12 koolstofatomen dat is gesubstitueerd met hydroxyl, alkoxy met 1 tot 18 koolstofatomen, -COOY₈ en/of -OCOY₁₁ is, waarbij Y_8 alkyl met 1 tot 18 koolstofatomen, alkenyl met 3 tot 18 koolstofatomen of alkyl met 3 tot 20 koolstofatomen, dat is onderbroken door een of meer zuurstofatomen en/of is gesubstitueerd met hydroxyl is en waarbij Y_{11} alkenyl met 2 tot 18 koolstofatomen is.

9. Polyalkeensamenstelling volgens conclusie 8, waarbij Y_1 methyl is en Y_2 een octylrest of alkyl met 1 tot 3 koolstofatomen dat is gesubstitueerd met hydroxyl, alkoxy met 13 of 15 koolstofatomen, -COOY₈ en/of -OCOY₁₁ is, waarbij Y_8 een decyl- of octadecenylrest of alkyl met 7 koolstofatomen dat is gesubstitueerd met hydroxyl en dat is onderbroken door een zuurstofatoom is en waarbij Y_{11} propenyl is.

10. Polyalkeensamenstelling volgens conclusie 3, waarbij, in de verbindingen met de formule (I), v en w onafhankelijk van elkaar 1 of 2 zijn en de substituenten Z onafhankelijk van elkaar waterstof, halogeen of alkoxy met 1 tot 12 koolstofatomen zijn.

11. Polyalkeensamenstelling volgens conclusie 3, waarbij, in de verbindingen met de formule (IV), x en y 1 of 2 zijn en de substituenten L onafhankelijk van elkaar waterstof of alkyl met in ieder geval 1 tot 12 koolstofatomen zijn.

12. Polyalkeensamenstelling volgens conclusie 1, waarbij de hoeveelheid van het afzonderlijke UV-absorptiemiddel in het mengsel 20% tot 80% bedraagt, gebaseerd op het gewicht van het mengsel, met dien verstande, dat de som van de afzonderlijke componenten opgeteld 100% bedraagt.

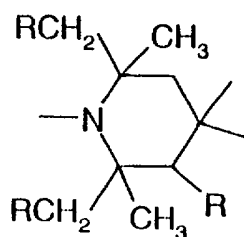
5

13. Polyalkeensamenstelling volgens conclusie 1, waarbij de totale hoeveelheid van het UV-absorptiemiddel 0,005 tot 5% bedraagt, gebaseerd op het gewicht van het polymeer.

10

14. Polyalkeensamenstelling volgens conclusie 1, die bovendien ten minste een sterisch gehinderd amine, in het bijzonder een amine van dit type met ten minste een rest met de formule

15



waarbij R waterstof of methyl is, bevat.

20

15. Toepassing van een mengsel van absorptiemiddelen volgens conclusie 1 voor de stabilisatie van polyalkenen.

RAPPORT BETREFFENDE HET ONDERZOEK NAAR DE STAND VAN DE TECHNIEK

Van belang zijnde literatuur			
Categorie ¹	Vermelding van literatuur met aanduiding, voor zover nodig, van speciaal van belang zijnde tekstgedeelten of figuren.	Van belang voor conclusie(s) Nr.:	International Patent Classification (IPC)
D, Y	EP-A 0.453.396 (Ciba-Geigy AG)	1-15	C08K5/00
Y	EP-A 0.490.819 (Ciba Geigy AG)	1-6, 10, 12, 13, 15	C08K5/16 C08L23/06 C08L23/12
Y	EP-A 0.095.078 (Borg-Warner Chemicals Inc.)	1-6, 12, 13, 15	
D, Y	US 5.736.597 (Ciba Geigy Corp.)	1-3, 7-9, 12-15	
D, Y	GB 1.336.391 (Ciba Geigy AG)	1-3, 10, 12, 13, 15	Onderzochte gebieden van de techniek, gedefinieerd volgens IPC 7
Y	US 3.529.982 (Ciba Ltd)	1-3, 11-13, 15	C08K C08L
D, A	US 4.619.956 (American Cyanamid)		Computerbestanden
A	US 4.228.067 (Bayer AG) * kol. 4, r. 26-57 *		Epodoc WPI CAPlus
A	EP-A 0.698.637 (Ciba Geigy AG)		

Indien gewijzigde conclusies zijn ingediend, heeft dit rapport betrekking op de conclusies ingediend op:

Omvang van het onderzoek

Volledig

Onderzochte conclusies: Alle

Niet (volledig) onderzochte conclusies met redenen: ²

Datum waarop het onderzoek werd voltooid: 08 augustus 2001

Vooronderzoeker: Drs. R.B. Boers

¹ Verklaring van de categorie-aanduiding: zie apart blad.

² Op grond van artikel 3:45 j° de artikelen 6:4 en 6:7 van de Algemene wet bestuursrecht, kan aanvrager tegen de niet-eenheidsbeslissing bezwaar maken bij het Bureau voor de Industriële Eigendom, binnen 6 weken na de bekendmaking van deze beslissing.

Categorie van de vermelde literatuur:

- X: op zichzelf van bijzonder belang zijnde stand van de techniek
- Y: in samenhang met andere geciteerde literatuur van bijzonder belang zijnde stand van de techniek
- A: niet tot de categorie X of Y behorende van belang zijnde stand van de techniek
- O: verwijzend naar niet op schrift gestelde stand van de techniek
- P: literatuur gepubliceerd tussen voorrangs- en indieningsdatum
- T: niet tijdig gepubliceerde literatuur over theorie of principe ten grondslag liggend aan de uitvinding
- E: colliderende octrooiaanvraag
- D: in de aanvraag genoemd
- L: om andere redenen vermelde literatuur
- &: lid van dezelfde octrooifamilie; corresponderende literatuur

**AANHANGSEL BEHORENDE BIJ HET RAPPORT BETREFFENDE HET ONDERZOEK NAAR DE
STAND VAN DE TECHNIEK, UITGEVOERD IN OCTROOIAANVRAGE NR. 1017774**

Het aanhangsel bevat een opgave van elders gepubliceerde octrooiaanvragen of octrooien (zogenaamde leden van dezelfde octrooifamilie), die overeenkomen met octrooigeschriften genoemd in het rapport.

De opgave is samengesteld aan de hand van gegevens uit het computerbestand van het Europees Octrooibureau 14 augustus 2001

De juistheid en volledigheid van deze opgave wordt noch door het Europees Octrooibureau, noch door het Bureau voor de Industriële Eigendom gegarandeerd; de gegevens worden verstrekt voor informatiedoeleinden.

In het rapport genoemd octrooi- geschrift	datum van publicatie	overeenkomend(e) geschrift(en)	datum van publicatie
EP0453396 AB	1991-10-23	CA2039405 A	1991-10-01
		CS9100882 A	1991-10-15
		BR9101254 A	1991-11-05
		US5106891 A	1992-04-21
		MX171974 B	1993-11-25
		JP6093217 A	1994-04-05
		DE59107052D D	1996-01-25
		ES2081458T T	1996-03-01
		HK1004566 A	1998-11-27
		KR168054 B	1999-01-15
		SK279724 B	1999-02-11
EP0490819 AB	1992-06-17	BR9105355 A	1992-08-25
		ZA9109795 A	1992-08-26
		JP4339885 A	1992-11-26
		AT127870T T	1995-09-15
		DE59106479D D	1995-10-19
		US5498345 A	1996-03-12
EP0095078 AB	1983-11-30	US4403053 A	1983-09-06
		US4413078 A	1983-11-01
		JP58204038 A	1983-11-28
		JP6023277B B	1994-03-30

Algemene informatie over dit aanhangsel is gepubliceerd in de 'Official Journal' van het Europees Octrooibureau nr 12/82 blz 448 ev

In het rapport genoemd octrooi- geschrift		datum van publicatie	overeenkomend(e) geschrift(en)	datum van publicatie
			CA1183295 A	1985-02-26
			CA1184331 A	1985-03-19
			DE3364367D D	1986-08-07
US5736597	A	1998-04-07		
			CA2031400 A	1991-06-06
			EP0434608 AB	1991-06-26
			BR9006145 A	1991-09-24
			JP4154772 A	1992-05-27
			JP2779981B2 B	1998-07-23
			MX23578 A	1993-11-01
			AT151097T T	1997-04-15
			DE69030362D D	1997-05-07
			ES2100878T T	1997-07-01
			DE69030362T T	1997-10-23
			SK279412 B	1998-11-04
			SK600390 A	1998-11-04
			HK1004562 A	1998-11-27
			KR177040 B	1999-05-15
			SG49847 A	1999-07-20
			CZ9103387 A	2000-08-16
			SK338791 A	2000-10-09
			SK281004 B	2000-10-09
			CZ287307 B	2000-10-11
			US6187919 B	2001-02-13
GB1336391	A	1973-11-07		
			DE2109304 A	1971-09-09
			FR2079104 A	1971-11-05
			CA962793 A	1975-02-11
US3529982	A	1970-09-22		
			BE693605 A	1967-08-03
			NL6701776 A	1967-08-08
			NL153595B B	1977-06-15
			NL6701777 A	1967-08-08
			NL159955B B	1979-04-17
			NL159955C C	1979-09-17
			ES336503 A	1968-01-01
			FR1516276 A	1968-06-19

Algemene informatie over dit aanhangsel is gepubliceerd in de 'Official Journal' van het Europees Octrooibureau nr 12/82 blz 448 ev

In het rapport genoemd octrooi- geschrift		datum van publicatie	overeenkomend(e) geschrift(en)	datum van publicatie
			CH480867 A	1969-11-15
			GB1177094 A	1970-01-07
			GB1177095 A	1970-01-07
			CH503695 A	1971-02-28
			CH512933 A	1971-09-30
			DE1618197 A	1971-12-09
			DE1618196 A	1971-12-09
			US3661606 A	1972-05-09
			SE346103 B	1972-06-26
			SE347959 B	1972-08-21
			US4003875 A	1977-01-18
US4619956	A	1986-10-28	EP0200190 AB	1986-11-05
			JP61293239 A	1986-12-24
			BR8601978 A	1987-01-06
			ES8706763 A	1987-09-16
			US4740542 A	1988-04-26
			CA1263525 A	1989-12-05
			AT68804T T	1991-11-15
			DE3682106 A	1991-11-28
			DE3682106D D	1991-11-28
			MX165852 B	1992-12-08
			KR9410222 B	1994-10-22
US4228067	A	1980-10-14	BE811621 A	1974-08-27
			NL7402753 A	1974-09-03
			NL170530B B	1982-06-16
			NL170530C C	1982-11-16
			DE2310135 ABC	1974-09-05
			FR2219930 AB	1974-09-27
			JP50008844 A	1975-01-29
			JP59045687B B	1984-11-08
			JP1267943C C	1985-06-10
			GB1416415 A	1975-12-03
			IT1015822 B	1977-05-20
			CA1029389 A	1978-04-11

Algemene informatie over dit aanhangsel is gepubliceerd in de 'Official Journal' van het Europees Octrooibureau nr 12/82 blz 448 ev

In het rapport. genoemd octrooi- geschrift	datum van publicatie	overeenkomend(e) geschrift(en)	datum van publicatie
EP0698637 A	1996-02-28		
		CA2156475 A	1996-02-23
		JP8067813 A	1996-03-12
		BR9503740 A	1996-04-09
