

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2008-520806  
(P2008-520806A)

(43) 公表日 平成20年6月19日(2008.6.19)

(51) Int.Cl.

**C08L 67/02 (2006.01)**  
**C08K 5/3435 (2006.01)**  
**C08K 5/3492 (2006.01)**  
**C08K 5/521 (2006.01)**

F 1

C08L 67/02  
C08K 5/3435  
C08K 5/3492  
C08K 5/521

テーマコード(参考)

4 J 002

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 52 頁)

(21) 出願番号 特願2007-543108 (P2007-543108)  
(86) (22) 出願日 平成17年11月7日 (2005.11.7)  
(85) 翻訳文提出日 平成19年7月18日 (2007.7.18)  
(86) 國際出願番号 PCT/US2005/040283  
(87) 國際公開番号 WO2006/055315  
(87) 國際公開日 平成18年5月26日 (2006.5.26)  
(31) 優先権主張番号 60/629,358  
(32) 優先日 平成16年11月19日 (2004.11.19)  
(33) 優先権主張国 米国(US)  
(31) 優先権主張番号 11/171,772  
(32) 優先日 平成17年6月30日 (2005.6.30)  
(33) 優先権主張国 米国(US)

(71) 出願人 594055158  
イーストマン ケミカル カンパニー  
アメリカ合衆国 37662 テネシー州  
キングスポート ウイルコックス ドラ  
イブ サウス 200  
(74) 代理人 100099759  
弁理士 青木 篤  
(74) 代理人 100077517  
弁理士 石田 敬  
(74) 代理人 100087413  
弁理士 古賀 哲次  
(72) 発明者 ピアソン, ジェイソン クレイ  
アメリカ合衆国, テネシー 37663,  
キングスポート, ピッケンズ コート 1  
16

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】安定化脂肪族ポリエステル組成物

## (57) 【要約】

屋外曝露の間に、低い脆化、ヘイズ生成及び退色を示す、脂肪族ポリエステル、HALS 及びトリス・アリール・S・トリアジンUV吸収剤を含む、安定化脂肪族ポリエステル組成物を開示する。また、屋外曝露の前に低い色を示すが、屋外曝露条件に露出した後に良好な透明性、色及び優れた衝撃強度を保有する、脂肪族ポリエステル、ヒンダードアミン光安定剤、トリアジンUV吸収剤及びホスファイトを含む脂肪族ポリエステル組成物も開示する。この脂肪族ポリエステル組成物は、造形物品、例えばフィルム、シート、ボトル、チューブ、異形材、繊維及び成形物品を製造するために使用することができる。

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

(A) 炭素数 2 ~ 18 の脂肪族ジカルボン酸及び炭素数 5 ~ 10 のシクロ脂肪族ジカルボン酸から選択された、少なくとも 1 種の置換又は非置換の、線状又は分枝状のジカルボン酸の残基並びに脂肪族ジオール、ポリアルキレンエーテルグリコール及びシクロ脂肪族ジオールから選択された、少なくとも 1 種の置換又は非置換の、線状又は分枝状の、炭素数 2 ~ 18 のジオールの残基を含んでなる少なくとも 1 種の脂肪族熱可塑性ポリエステル

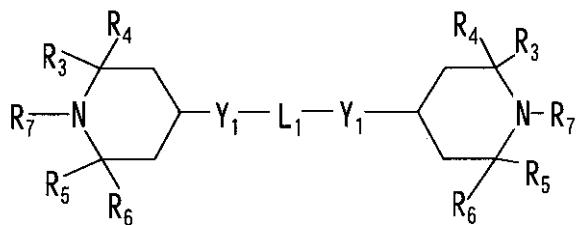
、  
(B) 少なくとも 1 種のヒンダードアミン光安定剤並びに

(C) 少なくとも 1 種のトリス - アリール - S - トリアジン UV 吸収剤を含んでなる安定化脂肪族ポリエステル組成物。  
10

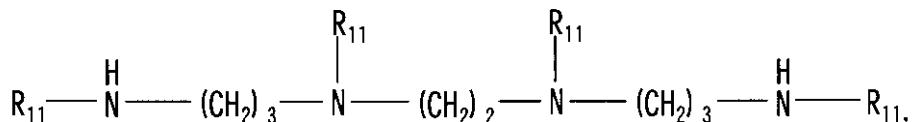
## 【請求項 2】

(D) 少なくとも 1 種のペンタエリスリトールジホスフェートを更に含み、前記少なくとも 1 種のヒンダードアミン光安定剤が、式 (1) 及び (3) :

## 【化 1】



(1)



(3)

[式中、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>及びR<sub>6</sub>はC<sub>1</sub> ~ C<sub>22</sub>アルキルであり、

R<sub>7</sub>及びR<sub>8</sub>は、独立に、水素、C<sub>1</sub> ~ C<sub>22</sub>アルキル及びC<sub>1</sub> ~ C<sub>22</sub>アルコキシから選択され、

Y<sub>1</sub>は-O-であり、

L<sub>1</sub>は2価の結合基-C(O)-L<sub>2</sub>-C(O)-であり、

L<sub>2</sub>はC<sub>1</sub> ~ C<sub>22</sub>アルキレンであり、そして

R<sub>11</sub>は水素、C<sub>1</sub> ~ C<sub>22</sub>アルキル、置換されたC<sub>1</sub> ~ C<sub>22</sub>アルキル及びラジカルA(但し、前記ラジカルAは、下記の構造：

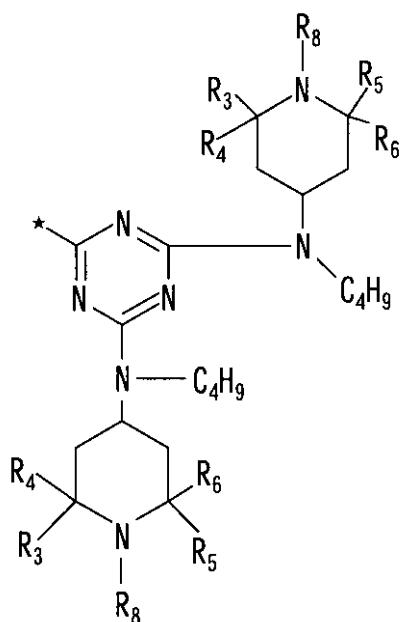
20

30

30

40

【化2】



ラジカルA

10

20

30

(式中、\*は、結合の位置を示す)

を有する)

から選択される]

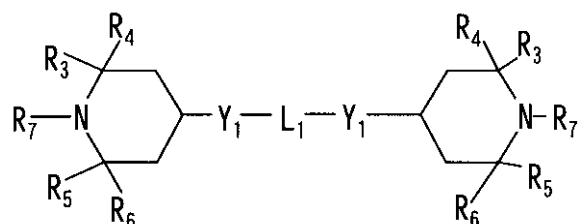
を有する1種又はそれ以上の化合物から選択される、請求項1に記載の安定化脂肪族ポリエステル組成物。

## 【請求項3】

(A) 前記少なくとも1種の熱可塑性脂肪族ポリエステルが、100モル%のジカルボン酸残基の合計基準で約80～100モル%の、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸及び1,3-シクロヘキサンジカルボン酸から選択された少なくとも1種のジカルボン酸の残基並びに100モル%のジオール残基の合計基準で約10～100モル%の、1,4-シクロヘキサンジメタノール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、1,3-シクロヘキサンジメタノール、1,4-ブタンジオール及び2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオールから選択された前記少なくとも1種のジオールの残基を含み、

(B) 前記組成物の全重量基準で約0.1～約2重量%の、式(1)：

【化3】



(1)

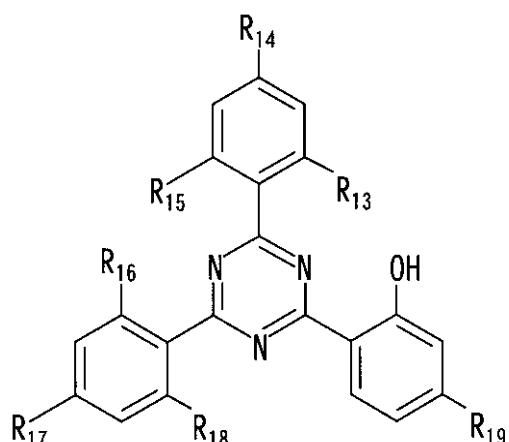
10

[式中、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>及びR<sub>6</sub>はメチル基であり、  
R<sub>7</sub>はメチル、C<sub>8</sub>H<sub>17</sub>O-又は水素であり、  
Y<sub>1</sub>は-O-であり、  
L<sub>1</sub>は2価の結合基-C(O)-L<sub>2</sub>-C(O)-であり、そして  
L<sub>2</sub>はC<sub>8</sub>アルキレンである]

を有する化合物から選択された、前記少なくとも1種のヒンダードアミン光安定剤、  
(C)前記組成物の全重量基準で約0.1~約6重量%の、式(5):

20

【化4】



(5)

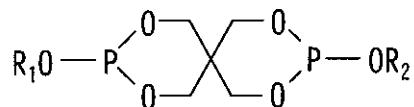
30

[式中、R<sub>15</sub>及びR<sub>16</sub>は水素であり、  
R<sub>13</sub>、R<sub>14</sub>、R<sub>17</sub>及びR<sub>18</sub>は水素又はメチルであり、そして  
R<sub>19</sub>は-O-C<sub>6</sub>H<sub>13</sub>又は-O-C<sub>8</sub>H<sub>17</sub>である]

40

を有する化合物から選択された前記少なくとも1種のトリス-アリール-S-トリアジン  
UV吸収剤並びに  
(D)前記組成物の全重量基準で約0.1~約2重量%の、式(6):

## 【化5】



(6)

10

(式中、R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は、それぞれ、イソデシル、オクタデシル又は2,4-ジ-tert-ブチルフェニルである)

を有する化合物から選択された少なくとも1種のペントエリスリトールジホスファイトを含む請求項1に記載の安定化脂肪族ポリエステル組成物。

## 【請求項4】

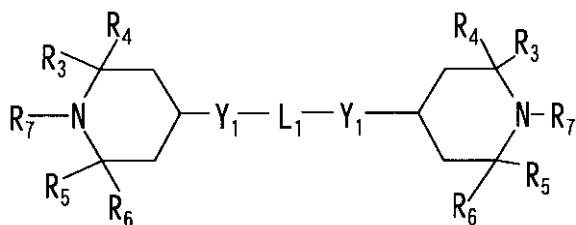
安定化脂肪族ポリエステル組成物の製造方法であって、

(A) 炭素数2~18の脂肪族ジカルボン酸及び炭素数5~10のシクロ脂肪族ジカルボン酸から選択された、少なくとも1種の置換又は非置換の、線状又は分枝状のジカルボン酸の残基並びに脂肪族ジオール、ポリアルキレンエーテルグリコール及びシクロ脂肪族ジオールから選択された、少なくとも1種の置換又は非置換の、線状又は分枝状の、炭素数2~18のジオールの残基を含む、少なくとも1種の脂肪族熱可塑性ポリエステル、

(B) 前記組成物の全重量基準で、約0.1~約2重量%の、式(1)：

## 【化6】

20



(1)

30

[式中、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>及びR<sub>6</sub>はメチル基であり、

R<sub>7</sub>はメチル、C<sub>8</sub>H<sub>17</sub>O-又は水素であり、

Y<sub>1</sub>は-O-であり、

L<sub>1</sub>は2価の結合基-C(O)-L<sub>2</sub>-C(O)-であり、そして

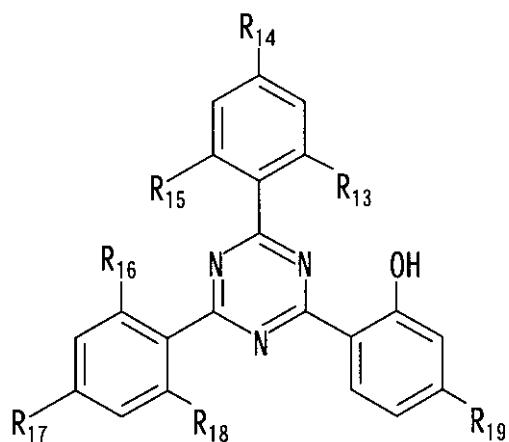
L<sub>2</sub>はC<sub>8</sub>アルキレンである]

40

を有する化合物から選択された、少なくとも1種のヒンダードアミン光安定剤、

(C) 前記組成物の全重量基準で、約0.1~約6重量%の、式(5)：

## 【化7】



(5)

10

20

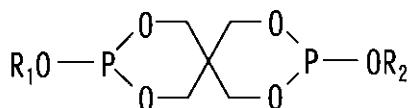
30

[式中、R<sub>15</sub>及びR<sub>16</sub>は水素であり、  
R<sub>13</sub>、R<sub>14</sub>、R<sub>17</sub>及びR<sub>18</sub>は水素又はメチルであり、そして  
R<sub>19</sub>は-O-C<sub>6</sub>H<sub>13</sub>又は-O-C<sub>8</sub>H<sub>17</sub>である]

を有する化合物から選択された少なくとも1種のトリス-アリール-S-トリアジンUV吸収剤並びに

(D)前記組成物の全重量基準で、約0.1～約2重量%の、式(6)：

## 【化8】



(6)

(式中、R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は、それぞれ、イソデシル、オクタデシル又は2,4-ジ-tert-ブチルフェニルである)

を有する化合物から選択された少なくとも1種のペンタエリスリトールジホスファイトをブレンドすることを含んでなる方法。

## 【請求項5】

前記ジカルボン酸がマロン酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、フマル酸、2,2-ジメチルグルタル酸、スペリン酸、1,3-シクロヘキサンジカルボン酸、2,6-デカヒドロナフタレンジカルボン酸、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸、1,12-ドデカンジオン酸、1,3-シクロヘキサンジカルボン酸、ジグリコール酸、イタコン酸、マレイン酸及び2,5-ノルボルナンジカルボン酸から選択された少なくとも1種のジカルボン酸を含む請求項1に記載のポリエステル組成物。

## 【請求項6】

前記ジカルボン酸がグルタル酸、ジグリコール酸、コハク酸、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸、アジピン酸、2,6-デカヒドロナフタレンジカルボン酸、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸、1,3-シクロヘキサンジカルボン酸及び2,5-ノルボルナ

40

50

ンジカルボン酸から選択された少なくとも1種のジカルボン酸の残基を含む請求項1及び2のいずれか1項に記載のポリエステル組成物。

【請求項7】

前記ジカルボン酸が1,4-シクロヘキサンジカルボン酸を含む請求項7に記載のポリエステル組成物。

【請求項8】

前記ジオールがエチレングリコール、ジエチレングリコール、1,3-プロパンジオール、2,2-ジメチル-1,3-プロパンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサンジオール、ポリ(エチレングリコール)、ジエチレングリコール、2,2,4-トリメチル-1,6-ヘキサンジオール、チオジエタノール、1,3-シクロヘキサンジメタノール、1,4-シクロヘキサンジメタノール、2,6-デカヒドロナフタレンジメタノール、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、ポリ(プロピレングリコール)、1,4:3,6-ジアンヒドロソルビトール及び4,4'-イソプロピリデンジシクロヘキサノールから選択された少なくとも1種のジオールを含む請求項1及び2のいずれか1項に記載のポリエステル組成物。

10

【請求項9】

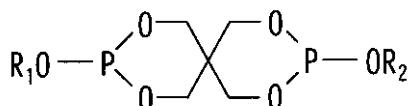
前記ジオールが1,4-ブタンジオール、1,3-プロパンジオール、エチレングリコール、1,6-ヘキサンジオール、ジエチレングリコール、1,3-シクロヘキサンジメタノール、1,4-シクロヘキサンジメタノール、2,6-デカヒドロナフタレンジメタノール及び2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオールから選択された少なくとも1種のジオールを含む請求項8に記載のポリエステル組成物。

20

【請求項10】

前記組成物の全重量基準で、約0.1~約2重量%の前記ペンタエリスリトールジホスファイトを含み、前記ペンタエリスリトールジホスファイトが式(6)：

【化9】



30

(6)

(式中、R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は、独立に、置換及び非置換のC<sub>1</sub>~C<sub>22</sub>アルキル、C<sub>3</sub>~C<sub>8</sub>シクロアルキル及びアリールから選択される)

を有する少なくとも1種の化合物を含む請求項2に記載のポリエステル組成物。

【請求項11】

前記ポリエステルが、ジカルボン酸残基の全モル数基準で、約80~100モル%の、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸、1,3-シクロヘキサンジカルボン酸又はこれらの混合物の残基及びジオール残基の全モル数基準で約10~100モル%の、1,4-シクロヘキサンジメタノール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、1,3-シクロヘキサンジメタノール、1,4-ブタンジオール、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール又はこれらの混合物の残基を含む請求項1及び9のいずれか1項に記載のポリエステル組成物。

40

【請求項12】

前記脂肪族ポリエステルが、ジカルボン酸残基の全モル数基準で、約95~100モル%の1,4-シクロヘキサンジカルボン酸の残基及び、ジオール残基の全モル数基準で、約95~100モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノールの残基を含む請求項7に記

50

載のポリエステル組成物。

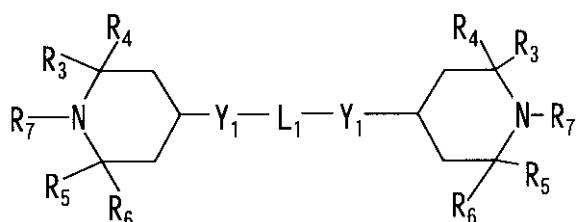
【請求項 1 3】

前記脂肪族ポリエステルがポリ(1,3-シクロヘキシレンジメチレン-1,3-シクロヘキサンジカルボキシレート)、ポリ(1,4-シクロヘキシレンジメチレン-1,4-シクロヘキサンジカルボキシレート)及びポリ(2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブチレン-1,4-シクロヘキサンジカルボキシレート)から選択された少なくとも1種のポリエステルを含む請求項1、2、3及び11のいずれか1項に記載のポリエステル組成物。

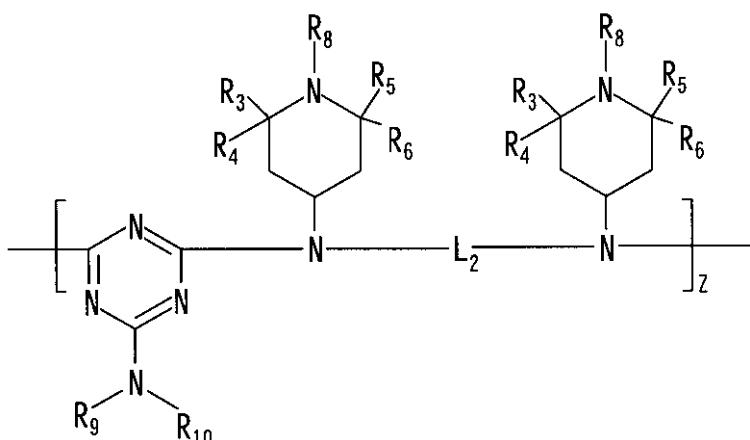
【請求項 1 4】

約0.05～約2重量%の前記ヒンダードアミン光安定剤を含み、前記ヒンダードアミン光安定剤が式(1～4)：

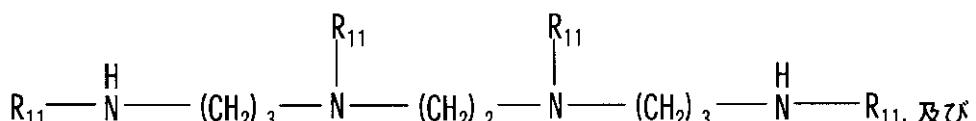
【化 1 0 】



(1)

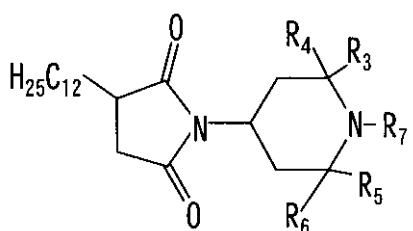


(2)



30

(3)



14

40

[式中、 $R_3$ 、 $R_4$ 、 $R_5$ 及び $R_6$ は $C_1 \sim C_{22}$ アルキルであり、

R<sub>7</sub>及びR<sub>8</sub>は、独立に、水素、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル及びC<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルコキシから選択され

Y<sub>1</sub> は = 0 = であり

しは2価の結合基 $-C(=O)-$ をもつ $-C(=O)-$ であり、

これは  $C_1 \approx C_{\infty}$  アルキレンであり

$R_9$  及び  $R_{10}$  は、独立に、水素、 $C_1 \sim C_{22}$  アルキル、 $C_3 \sim C_8$  シクロアルキル及び置換された  $C_3 \sim C_8$  シクロアルキルから選択され又は  $R_9$  及び  $R_{10}$  は、集合的に、モルホリン

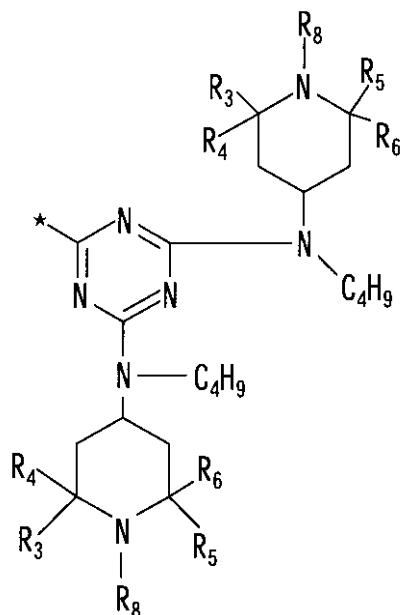
50

及び / 若しくはピペリジン環を形成する 2 値の基を表すことができ、

$z$  は 20 以下の正の整数であり、

$R_{11}$  は水素、  $C_1 \sim C_{22}$  アルキル、 置換された  $C_1 \sim C_{22}$  アルキル及びラジカル A ( 但し、 ラジカル A は下記の構造 :

【化 11】



ラジカル A

( 式中、  $\star$  は結合の位置を示す )

を有する )

から選択される ]

を有する 1 種又はそれ以上の化合物から選択される請求項 1 に記載のポリエステル組成物。

【請求項 15】

前記組成物の全重量基準で、 約 0.1 ~ 約 1 重量 % の前記ヒンダードアミン光安定剤を含む請求項 2 及び 14 のいずれか 1 項に記載のポリエステル組成物。

【請求項 16】

前記ヒンダードアミン光安定剤が式 (1) ( 式中、  $R_3$ 、  $R_4$ 、  $R_5$  及び  $R_6$  がメチル基であり、  $R_7$  がメチル、  $C_8H_{17}O$  - 又は水素であり、 そして  $L_2$  が  $C_8$  アルキレンである ) を有する少なくとも 1 種の化合物を含む請求項 2 及び 14 のいずれか 1 項に記載のポリエステル組成物。

【請求項 17】

$R_7$  が水素である請求項 16 に記載のポリエステル組成物。

【請求項 18】

$R_7$  が  $C_8H_{17}O$  - である請求項 16 に記載のポリエステル組成物。

【請求項 19】

$R_7$  がメチルである請求項 16 に記載のポリエステル組成物。

【請求項 20】

前記ヒンダードアミン光安定剤が式 (2) ( 式中、  $R_3$ 、  $R_4$ 、  $R_5$  及び  $R_6$  がメチル基であり、  $R_8$  がメチル基又は水素であり、  $(R_9)N(R_{10})$  が集合的にモルホリノ基を表し

10

20

30

40

50

、そして  $L_2$  が  $C_6$  アルキレンである) を有する化合物を含む請求項 1 4 に記載のポリエステル組成物。

【請求項 2 1】

前記ヒンダードアミン光安定剤が式 (2) (式中、 $R_3$ 、 $R_4$ 、 $R_5$  及び  $R_6$  がメチルであり、 $R_8$  及び  $R_9$  が水素であり、 $R_{10}$  が 2,4,4-トリメチル-2-ペンチルであり、そして  $L_2$  が  $C_6$  アルキレンである) を有する化合物を含む請求項 1 4 に記載のポリエステル組成物。

【請求項 2 2】

前記ヒンダードアミン光安定剤が式 (3) (式中、 $R_3$ 、 $R_4$ 、 $R_5$ 、 $R_6$  及び  $R_8$  がメチルであり、そして  $R_{11}$  がラジカル A である) を有する化合物を含む請求項 2 及び 1 4 のいずれか 1 項に記載のポリエステル組成物。

【請求項 2 3】

前記ヒンダードアミン光安定剤が式 (4) (式中、 $R_3$ 、 $R_4$ 、 $R_5$  及び  $R_6$  がメチルであり、そして  $R_7$  が水素又はメチルである) を有する化合物を含む請求項 1 4 に記載のポリエステル組成物。

【請求項 2 4】

前記組成物の全重量基準で、約 0.1 ~ 約 6 重量 % の前記トリス-アリール-S-トリアジン UV 吸収剤を含み、前記トリス-アリール-S-トリアジン UV 吸収剤が式 (5)

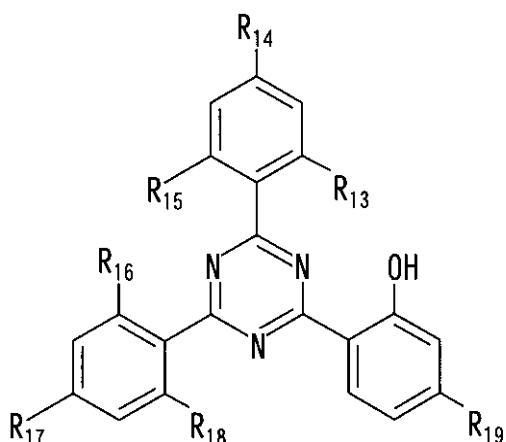
：

【化 1 2】

10

20

30



(5)

[式中、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$ 、 $R_{17}$  及び  $R_{18}$  は、独立に、水素、 $C_1$  ~  $C_{22}$  アルキル、置換された  $C_1$  ~  $C_{22}$  アルキル、 $C_3$  ~  $C_8$  シクロアルキル及び置換された  $C_3$  ~  $C_8$  シクロアルキルから選択され、そして

$R_{19}$  は水素、 $C_1$  ~  $C_{22}$  アルキル、置換された  $C_1$  ~  $C_{22}$  アルキル、 $C_3$  ~  $C_8$  シクロアルキル、置換された  $C_3$  ~  $C_8$  シクロアルキル及び -OR<sub>20</sub> (但し、 $R_{20}$  は水素、 $C_1$  ~  $C_{22}$  アルキル、置換された  $C_1$  ~  $C_{22}$  アルキル、 $C_3$  ~  $C_8$  シクロアルキル、置換された  $C_3$  ~  $C_8$  シクロアルキル、アリール及びヘテロアリールから選択される) から選択される]

によって表される少なくとも 1 種の化合物を含む請求項 1 及び 2 のいずれか 1 項に記載のポリエステル組成物。

【請求項 2 5】

$R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $R_{15}$ 、 $R_{16}$ 、 $R_{17}$  及び  $R_{18}$  が水素であり、そして  $R_{19}$  が -OC<sub>6</sub>H<sub>13</sub> である請求項 2 4 に記載のポリエステル組成物。

【請求項 2 6】

$R_{15}$  及び  $R_{16}$  が水素であり、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $R_{17}$  及び  $R_{18}$  がメチルであり、そして  $R_{19}$  が

50

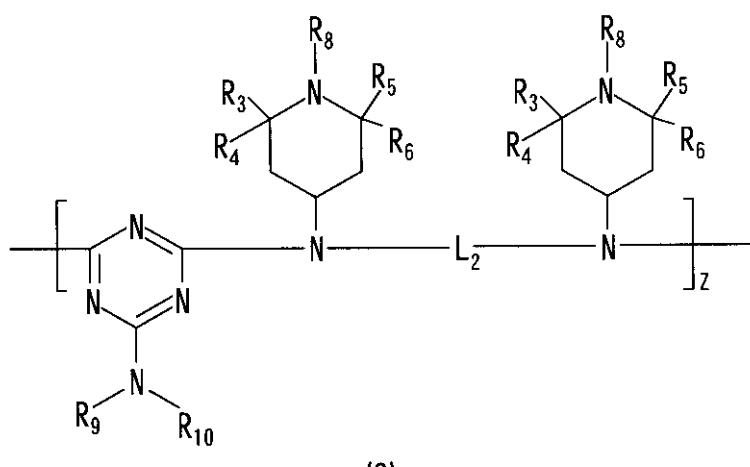
-  $\text{OC}_8\text{H}_{17}$  である請求項 24 に記載のポリエステル組成物。

【請求項 27】

前記ポリエステルが、ジカルボン酸残基の全モル数基準で、約 80 ~ 100 モル% の 1, 4 - シクロヘキサンジカルボン酸、1, 3 - シクロヘキサンジカルボン酸又は、これらの混合物の残基及びジオール残基の全モル数基準で、約 10 ~ 100 モル% の、1, 4 - シクロヘキサンジメタノール、エチレンギリコール、ジエチレンギリコール、1, 3 - シクロヘキサンジメタノール、1, 4 - ブタンジオール、2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブタンジオール又はこれらの混合物の残基を含み、そして前記ヒンダードアミン光安定剤が式 (2) :

【化 13】

10



20

(式中、 $R_3$ 、 $R_4$ 、 $R_5$  及び  $R_6$  はメチルであり、

$R_8$  及び  $R_9$  は水素であり、

$R_{10}$  は 2, 4, 4 - トリメチル - 2 - ペンチルであり、そして

$L_2$  は  $C_6$  アルキレンである)

30

を有する化合物を含み、前記ポリエステル組成物が約 0.1 ~ 約 2 重量% の、(式中、 $R_{15}$  及び  $R_{16}$  が水素であり、 $R_{13}$ 、 $R_{14}$ 、 $R_{17}$  及び  $R_{18}$  が、水素又はメチルであり、そして  $R_{19}$  が、 $-\text{OC}_6\text{H}_{13}$  又は  $-\text{OC}_8\text{H}_{17}$  である) 前記トリス - アリール - S - トリアジン UV 吸収剤を含む請求項 24 に記載のポリエステル組成物。

【請求項 28】

前記ポリエステルがポリ (1, 4 - シクロヘキシレンジメチレン - 1, 4 - シクロヘキサンジカルボキシレート)、ポリ (2, 2, 4, 4 - テトラメチル - 1, 3 - シクロブチレン - 1, 4 - シクロヘキサンジカルボキシレート) 又はこれらの混合物を含む請求項 27 に記載のポリエステル組成物。

40

【請求項 29】

$R_1$  及び  $R_2$  が、それぞれ、イソデシル、オクタデシル又は 2, 4 -ジ - tert - ブチルフェニルである請求項 2 に記載のポリエステル組成物。

【請求項 30】

$R_1$  及び  $R_2$  がそれぞれオクタデシルである請求項 29 に記載のポリエステル組成物。

【請求項 31】

前記脂肪族ポリエステルがポリ (1, 4 - シクロヘキシレンジメチレン - 1, 4 - シクロヘキサンジカルボキシレート) を含み、そして  $R_1$  及び  $R_2$  が、それぞれ、オクタデシルである請求項 13 に記載のポリエステル組成物。

【請求項 32】

50

請求項 2 に記載のポリエステル組成物を含んでなる造形物品。

【請求項 3 3】

シート、フィルム、チューブ、ボトル、繊維、異形材又は成形物品を含む請求項 3 2 記載の造形物品。

【請求項 3 4】

前記物品が 1 個又はそれ以上の層を含む請求項 3 3 に記載の造形物品。

【請求項 3 5】

前記ブレンドが溶融ブレンドによるものである請求項 3 4 に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

10

【0 0 0 1】

本発明は、一般的に、ヒンダードアミン光安定剤及び UV 吸収剤の或る種の組合せを含有する安定化脂肪族ポリエステル組成物に関する。更に詳しくは、本発明は、高い透明性を示し、そして優れた耐候性を示す、脂肪族ポリエステル、ヒンダードアミン光安定剤及びトリアジン UV 吸収剤を含む脂肪族ポリエステル組成物に関する。本発明は、また、屋外曝露の前に低い色を示す、脂肪族ポリエステル、ヒンダードアミン光安定剤、トリアジン UV 吸収剤及びホスファイトを含む脂肪族ポリエステル組成物に関する。

【背景技術】

【0 0 0 2】

UV 光吸収剤及び本明細書に於いて「HALS」として略記されるヒンダードアミン光安定剤はポリオレフィン用の有効な安定剤であることが知られている。ポリオレフィンに加えて、HALS は、芳香族繰り返し単位を含有するポリエステル、例えば線状ポリアルキレンテレフタレート、コポリエステルエラストマー、ポリカーボネート及びこれらのポリマーの混合物の耐候性改良するために使用してきた。HALS、UV 安定剤、ホスファイト及びヒンダードフェノール酸化防止剤の組合せを含む耐候性脂肪族コポリエステルエーテル組成物も知られている。

20

【0 0 0 3】

或る種の UV 吸収剤は、単独で及び HALS と組合せて使用するとき、しばしば、有効に制御せず、そして屋外曝露条件下で脂肪族ポリエステルのヘイズ、色及び脆性に於ける増加を起こすことがある。更に、HALS と UV 吸収剤との或る種の組合せは、しばしば、脂肪族ポリエステルと相溶性でなく、そしてこのポリマーを屋外曝露に露出させる前に、ポリエステル中にヘイズ及び色を出現させるおそれがある。時々、色を制御するためにはホスファイトが添加されるが、或る種の HALS とホスファイトとの組合せは、また、ヘイズを生ずるおそれがある。従って、屋外曝露の影響に対抗し得る安定化されたポリエステル組成物についての、当前記技術分野に於けるニーズが存在する。また、屋外曝露条件に露出する前に、高いレベルの色又はヘイズを示さない、UV 吸収剤及び HALS の組合せを有する安定化脂肪族ポリエステル組成物についてのニーズも存在する。このような安定化脂肪族ポリエステル組成物は、脂肪族ポリエステルが日光及び屋外環境に露出される領域に於いて、例えば、標識、包装、コンピュータタッチパッド及び金属ラミネートに於いて商業的応用を有するであろう。

30

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0 0 0 4】

或る種の HALS 及び UV 吸収剤との熱可塑性脂肪族ポリエステルの組合せが、屋外曝露の間に、低い脆化、ヘイズ生成及び退色を示す安定化脂肪族ポリエステル組成物を提供することが見出された。

【課題を解決するための手段】

【0 0 0 5】

従って、本発明は、

(A) 炭素数 2 ~ 18 の脂肪族ジカルボン酸及び炭素数 5 ~ 10 のシクロ脂肪族ジカル

40

50

ポン酸から選択された、少なくとも 1 種の置換又は非置換の線状又は分枝状のジカルボン酸の残基並びに脂肪族ジオール、ポリアルキレンエーテルグリコール及びシクロ脂肪族ジオールから選択された、少なくとも 1 種の置換又は非置換の線状又は分枝状の、炭素数 2 ~ 18 のジオールの残基を含んでなる少なくとも 1 種の脂肪族熱可塑性ポリエステル、

( B ) 少なくとも 1 種のヒンダードアミン光安定剤並びに

( C ) 少なくとも 1 種のトリス - アリール - S - トリアジン UV 吸収剤

を含んでなる安定化脂肪族ポリエステル組成物を提供する。

【 0 0 0 6 】

本発明の組成物は、屋外曝露条件に露出した後に、低いヘイズ、色及び優れた衝撃強度を示す。この脂肪族ポリエステルは、置換又は非置換の線状又は分枝状の、脂肪族及びシクロ脂肪族ジカルボン酸及びジオールの両方の残基を含んでいてよい。例えば、一つの態様に於いて、この脂肪族ポリエステルは、ジカルボン酸残基の全モル数基準で、約 80 ~ 100 モル % の 1 , 4 - シクロヘキサンジカルボン酸、1 , 3 - シクロヘキサンジカルボン酸又はこれらの混合物の残基及び、ジオール残基の全モル数基準で、約 10 ~ 100 モル % の 1 , 4 - シクロヘキサンジメタノール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、1 , 3 - シクロヘキサンジメタノール、1 , 4 - ブタンジオール、2 , 2 , 4 , 4 - テトラメチル - 1 , 3 - シクロブタンジオール又はこれらの混合物の残基からなっていてよい。

10

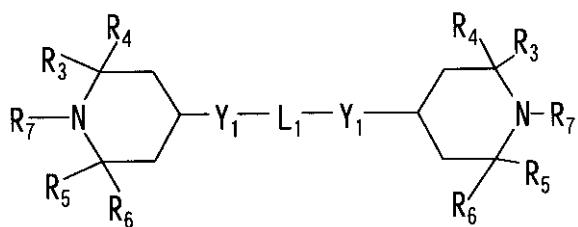
【 0 0 0 7 】

本発明の新規な組成物には、また、式 ( 1 ~ 4 ) :

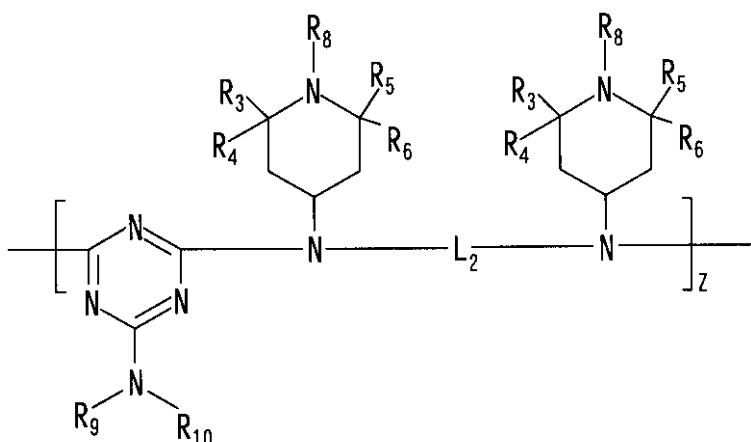
20

【 0 0 0 8 】

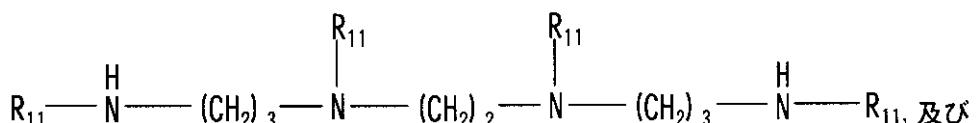
【化1】



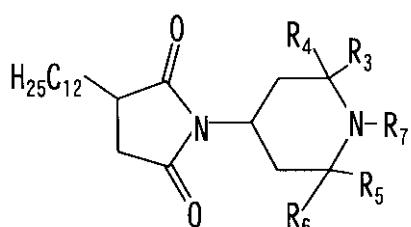
(1)



(2)



(3)



(4)

10

20

30

40

【0009】

[式中、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>及びR<sub>6</sub>はC<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキルであり、  
R<sub>7</sub>及びR<sub>8</sub>は、独立に、水素、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル及びC<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルコキシから選択され、

Y<sub>1</sub>は-O-であり、L<sub>1</sub>は2価の結合基-C(O)-L<sub>2</sub>-C(O)-であり、L<sub>2</sub>はC<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキレンであり、R<sub>9</sub>及びR<sub>10</sub>は、独立に、水素、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>シクロアルキル及び置換

50

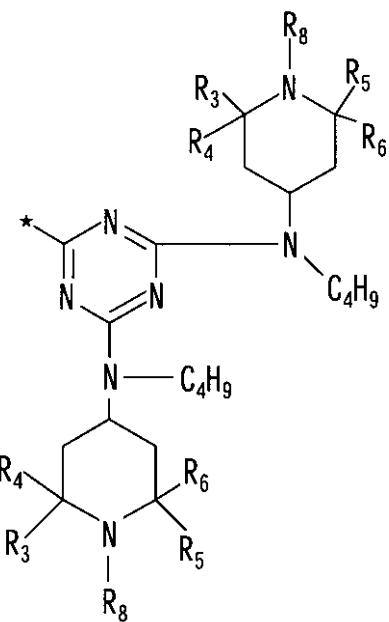
された  $C_3 \sim C_8$  シクロアルキルから選択され又は  $R_9$  及び  $R_{10}$  は、集合的に、モルホリン及び / 若しくはピペリジン環を形成する 2 個の基を表すことができ、

$z$  は、20 以下の正の整数であり、

$R_{11}$  は、水素、 $C_1 \sim C_{22}$  アルキル、置換された  $C_1 \sim C_{22}$  アルキル及びラジカル A ( 但し、ラジカル A は、下記の構造 :

【0 0 1 0】

【化 2】



ラジカル A

【0 0 1 1】

( 式中、\* は結合の位置を示す )

を有する )

から選択される ]

を有する 1 種又はそれ以上の化合物から選択された、1 種又はそれ以上のヒンダードアミン光安定剤が含有されている。

【0 0 1 2】

本発明の脂肪族ポリエステル組成物は、また、下記の式 :

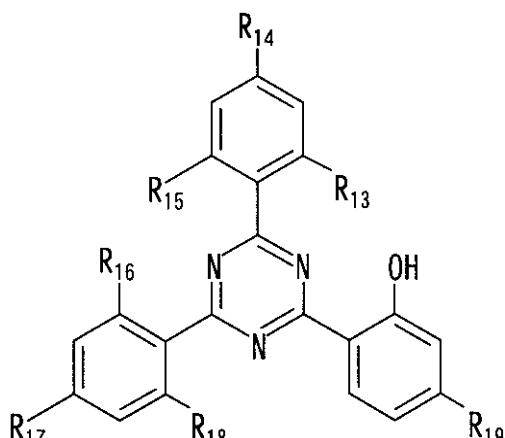
【0 0 1 3】

10

20

30

【化3】



(5)

10

20

30

40

【0014】

[式中、R<sub>13</sub>、R<sub>14</sub>、R<sub>15</sub>、R<sub>16</sub>、R<sub>17</sub>及びR<sub>18</sub>は、独立に、水素、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル、置換されたC<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>シクロアルキル及び置換されたC<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>シクロアルキルから選択され、そして

R<sub>19</sub>は水素、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル、置換されたC<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>シクロアルキル、置換されたC<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>シクロアルキル及び-O-R<sub>20</sub>（但し、R<sub>20</sub>は水素、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル、置換されたC<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>シクロアルキル、置換されたC<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>シクロアルキル、アリール及びヘテロアリールから選択される）から選択される]を有する少なくとも1種のトリス-アリール-S-トリアジンを含む。

【0015】

また、トリアジンUV吸収剤及びHALSとの組合せで、或る種のホスファイトの存在によって、屋外曝露条件に露出する前に高い透明性及び低い色を示す、安定化脂肪族ポリエステル組成物が提供されることが、予想外に見出された。

【0016】

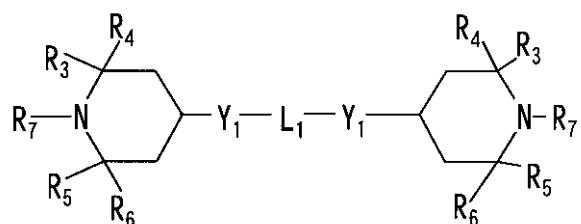
従って、本発明の別の面は、

(A) 炭素数2～18の脂肪族ジカルボン酸及び炭素数5～10のシクロ脂肪族ジカルボン酸から選択された、少なくとも1種の置換又は非置換の、線状又は分枝状のジカルボン酸の残基並びに脂肪族ジオール、ポリアルキレンエーテルグリコール及びシクロ脂肪族ジオールから選択された、少なくとも1種の置換又は非置換の、線状又は分枝状の、炭素数2～18のジオールの残基を含む少なくとも1種の脂肪族熱可塑性ポリエステル、

(B) 式(1)及び(3)：

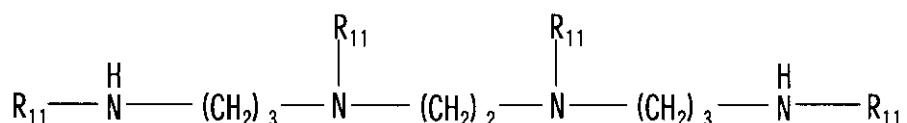
【0017】

【化4】



(1)

10



(3)

20

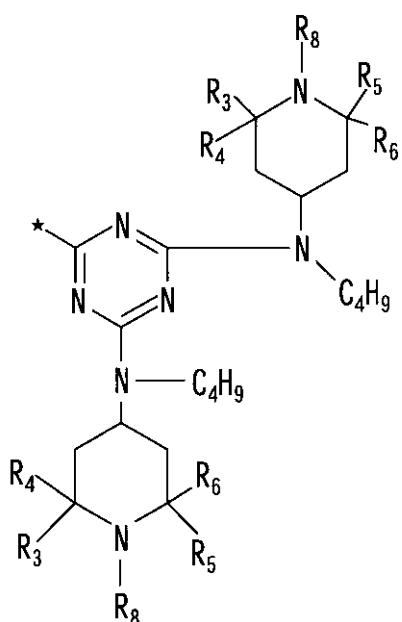
【0018】

〔式中、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>及びR<sub>6</sub>はC<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキルであり、R<sub>7</sub>及びR<sub>8</sub>は、独立に、水素、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル及びC<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルコキシから選択され、Y<sub>1</sub>は-O-であり、L<sub>1</sub>は2価の結合基-C(O)-L<sub>2</sub>-C(O)-であり、L<sub>2</sub>はC<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキレンであり、そしてR<sub>11</sub>は水素、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル、置換されたC<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル及びラジカルA（但し、ラジカルAは、下記の構造：

30

【0019】

## 【化5】



10

ラジカルA

20

## 【0020】

(式中、\*は結合の位置を示す)

を有する)

から選択される]

を有する1種又はそれ以上の化合物から選択された、少なくとも1種のヒンダードアミン光安定剤、

(C)少なくとも1種のトリス-アリール-S-トリアジンUV吸収剤並びに

30

(D)少なくとも1種のペンタエリスリトールジホスファイト

を含んでなる安定化脂肪族ポリエステル組成物である。

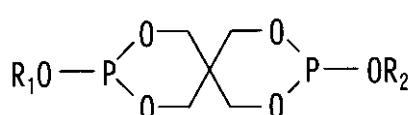
## 【0021】

このジホスファイトの存在によって、HALSとトリアジンUV吸収剤との組合せから形成され得る、初期のヘイズ及び色が減少する。例えば、上記のUV吸収剤及びHALSに加えて、この組成物は、約0.1～約2重量%の、式(6)：

## 【0022】

## 【化6】

40



(6)

## 【0023】

(式中、R1及びR2は、独立に、置換及び非置換のC1～C22アルキル、C3～C8シクロアルキル及びアリールから選択される)

50

を有する少なくとも1種の化合物を含むペンタエリスリトールジホスファイトを含有していてよい。

【発明を実施するための最良の形態】

【0024】

或る種のHALS及びトリアジンUV吸収剤との熱可塑性脂肪族ポリエステルの組合せによって、屋外曝露の間に、低い脆化、ヘイズ生成及び退色を示す安定化脂肪族ポリエステル組成物が提供される。

【0025】

従って、一般的な態様に於いて、本発明は、

(A) 炭素数2～18の脂肪族ジカルボン酸及び炭素数5～10のシクロ脂肪族ジカルボン酸から選択された、少なくとも1種の置換又は非置換の、線状又は分枝状のジカルボン酸の残基並びに脂肪族ジオール、ポリアルキレンエーテルグリコール及びシクロ脂肪族ジオールから選択された、少なくとも1種の置換又は非置換の、線状又は分枝状の、炭素数2～18のジオールの残基を含む少なくとも1種の脂肪族熱可塑性ポリエステル、

10

(B) 少なくとも1種のヒンダードアミン光安定剤並びに

(C) 少なくとも1種のトリス・アリール-S-トリアジンUV吸収剤

を含む安定化脂肪族ポリエステル組成物を提供する。

【0026】

更に、或る種のHALSとの組合せで、ジペンタエリスリトールホスファイトの存在によって、屋外曝露条件への全ての露出の前に発生し得る、過剰のヘイズ及び色の形成が回避されることが、予想外に見出された。

20

【0027】

従って、一つの面に於いて、本発明は、最初に、屋外曝露の前に、低いヘイズ、良好な色及び高い透明性を示し、そして屋外曝露条件に露出した際に、低い脆化、ヘイズ生成及び退色を示す、脂肪族ポリエステル組成物を提供する。脂肪族ポリエステル、HALS、UV吸収剤及びホスファイトに加えて、本発明の新規な組成物は、任意的に、当業者に公知である1種又はそれ以上の添加物、例えば酸化防止剤；有機又は無機の着色剤又は白色顔料、例えばTiO<sub>2</sub>、ZnO及びバライタ；リサイクルされたポリマー；耐衝撃性改良剤；可塑剤；ハロゲン化難燃剤；充填材；非ハロゲン化難燃剤並びに加工助剤を更に含有していてよい。

30

【0028】

他の方法で示さない限り、明細書及び特許請求の範囲に於いて使用される、成分の量、分子量のような特性、反応条件等を表す全ての数値は、全ての例に於いて、用語「約」によって修正されるとして理解されるべきである。従って、反対に示されない限り、明細書及び付属する特許請求の範囲に記載された数値パラメーターは、本発明によって得ることが探求されている所望の特性に依存して変化し得る近似値である。少なくとも、それぞれの数値パラメーターは、報告された意味のある数字の数に照らして、そして通常の丸め技術を適用することによって、少なくとも解釈すべきである。更に、この開示及び特許請求の範囲に記載された範囲は、特に、終点(単数又は複数)のみならず、全範囲を含めるように意図される。例えば、0～10であると記載された範囲は、0と10との間の全ての整数、例えば1、2、3、4等、0と10との間の全ての分数、例えば1.5、2.3、4.57、6.113等並びに終点0及び10を開示するように意図するものである。また、化学的置換基に付随する範囲、例えば「C<sub>1</sub>～C<sub>5</sub>炭化水素」は、C<sub>1</sub>及びC<sub>5</sub>炭化水素並びにC<sub>2</sub>、C<sub>3</sub>及びC<sub>4</sub>炭化水素を、特に含めそして開示するように、意図するものである。

40

【0029】

本発明の広い範囲を記載する数値範囲及びパラメータは近似値であるにもかかわらず、具体的な実施例に記載された数値は、できるだけ正確に報告される。しかしながら、全ての数値は、本来、それらのそれぞれの試験測定値に見出される標準偏差から必然的にもたらされる一定の誤差を含んでいる。本明細書及び付属する特許請求の範囲中で使用すると

50

き、単数形には、文脈が他の方法で明瞭に示していない限り、それらの複数の指示物が含まれる。例えば指示「ポリマー」又は「造形物品」は、複数のポリマー又は物品の加工又は製造を含むように意図するものである。「1種の」成分又は「1種の」ポリマーを含有する又は含む組成物に対する指示は、名称が記載されたものに加えて、それぞれ他の成分又は他のポリマーも含むように意図するものである。

【0030】

「含んでなる」又は「含有する」又は「含む」によって、本発明者らは、少なくとも名称が記載された化合物、要素、粒子又は方法工程等が、組成物又は物品又は方法中に存在するが、他の化合物、触媒、材料、粒子、方法工程等の存在を、このような他の化合物、材料、粒子、方法工程等が、名称が記載されたものと同じ機能を有するならば、特許請求の範囲に於いて明白に排除されていない限り、排除しないことを意味する。 10

【0031】

また、1個又はそれ以上的方法工程の記載は、組合された列挙された工程の前若しくは後の追加の方法工程又は明白に同定されたこれらの工程の間の介在する方法工程を排除しないことを理解されたい。更に、プロセス工程又は成分のレタリングは、別個の活性又は成分を同定するための便利な手段であり、そして列挙されたレタリングは、他の方法で示されていない限り、任意の順序でも配列することができる。

【0032】

用語「C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル」は、1～22個の炭素を含有し、そして直鎖又は分枝鎖であってよい飽和炭化水素基を示す。このようなC<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル基は、例えばメチル、エチル、プロピル、ブチル、ペンチル、ヘキシル、ヘプチル、イソプロピル、イソブチル、tert-ブチル、ネオペンチル、2-エチルヘプチル、2-エチルヘキシル等であつてよい。用語「置換されたC<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル」は、ヒドロキシ、ハロゲン、シアノ、アリール、ヘテロアリール、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>-シクロアルキル、置換されたC<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>シクロアルキル、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルコキシ、C<sub>2</sub>～C<sub>6</sub>アルカノイルオキシ等から選択された1種又はそれ以上の置換基によって置換されていてよい、前記のようなC<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル基を指す。 20

【0033】

用語「C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>シクロアルキル」は、3～8個の炭素原子を含有するシクロ脂肪族炭化水素基を示すために使用される。用語「置換されたC<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>シクロアルキル」は、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキル、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルコキシ、ヒドロキシ、ハロゲン等から選択された少なくとも1種の基を含有する、上記詳述したようなC<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>シクロアルキルを記載するために使用される。 30

【0034】

用語「アリール」は、共役芳香族環構造中に6個、10個又は14個の炭素原子を含有する芳香族基並びにC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキル；C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルコキシ；フェニル及びC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキル、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルコキシ、ハロゲン等によって置換されたフェニル；C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>シクロアルキル；ハロゲン；ヒドロキシ；シアノ；トリフルオロメチル等から選択された1種又はそれ以上の基によって置換されたこれらの基を示すために使用される。典型的なアリール基には、フェニル、ナフチル、フェニルナフチル、アントリル（アントラセニル）等が含まれる。用語「ヘテロアリール」は、2～約10個の炭素原子と組合せて、硫黄、酸素、窒素又はこれらの組合せから選択された少なくとも1種のヘテロ原子を含有する共役環式基並びにアリール基上の可能な置換基として上記した基によって置換されたこれらのヘテロアリール基を記載するために使用される。典型的なヘテロアリール基には、2-及び3-フリル、2-及び3-チエニル、2-及び3-ピロリル、2-、3-及び4-ピリジル、ベンゾチオフェン-2-イル、ベンゾチアゾール-2-イル、ベンゾオキサゾール-2-イル、ベンズイミダゾール-2-イル、1,3,4-オキサジアゾール-2-イル、1,3,4-チアジアゾール-2-イル、1,2,4-チアジアゾール-5-イル、イソチアゾール-5-イル、イミダゾール-2-イル、キノリル等が含まれる。 40

【0035】

用語「C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルコキシ」は、基-O-C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキル（但し、「C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキ

ル」は、1～6個の炭素原子を含有し、直鎖又は分枝鎖であってよく、そしてハロゲン、メトキシ、エトキシ、フェニル、ヒドロキシ、アセチルオキシ及びプロピオニルオキシから選択された1種又はそれ以上の基によって更に置換されていてよい飽和炭化水素を示す)を表すために使用される。用語「ハロゲン」は、フッ素、塩素、臭素及びヨウ素を表すために使用するが、塩素及び臭素が好ましい。

【0036】

本明細書で使用する用語「ポリエステル」は、「ホモポリエステル」及び「コポリエステル」の両方を含むように意図され、1種又はそれ以上の二官能性カルボン酸と1種又はそれ以上の二官能性ヒドロキシル化合物との重縮合によって製造された合成ポリマーを意味すると理解されたい。本明細書で使用する用語「コポリエステル」は、2種又はそれ以上の非類似の酸及び/又はヒドロキシルモノマー残基を含有するポリエステルポリマーを意味するように理解されたい。典型的には、二官能性カルボン酸はジカルボン酸又はヒドロキシカルボン酸であり、そして二官能性ヒドロキシル化合物は二価アルコール、例えばグリコール及びジオールである。その代わりに、本発明のポリエステルはヒドロキシカルボン酸から製造することができ又は例えばその環式ラクチドから製造されたポリ乳酸若しくはカプロラクトンから生成されたポリカプロラクトンに於けるように、環式ラクトンの開環反応により生成することができる。

10

【0037】

本明細書で使用する用語「脂肪族ポリエステル」は脂肪族ジカルボン酸、シクロ脂肪族ジカルボン酸、脂肪族ジオール、シクロ脂肪族ジオール又はこれらの混合物からの残基を含むポリエステルを意味する。本発明のジカルボン酸、ジオール及びヒドロキシカルボン酸モノマーに関して本明細書で使用する用語「脂肪族」は、例えば主鎖として、事実上飽和されている若しくはパラフィン性であってよい、不飽和であってよい、即ち、非芳香族炭素-炭素二重結合を含有する又はアセチレン性であってよい、即ち、炭素-炭素三重結合を含有する、構成炭素原子の直鎖、分枝鎖又は環式配置を含有する、ジオール、二酸及びヒドロキシカルボン酸のような、脂肪族及びシクロ脂肪族構造の両方を含むように意図するものである。従って、本発明の説明及び特許請求の範囲に関連して、脂肪族は、線状及び分枝状の鎖構造並びに環式構造(本明細書に於いて、「脂環式」又は「シクロ脂肪族」ともいう)を含むように意図される。本発明に於いて、二官能性カルボン酸は、直鎖、分枝鎖又はシクロ脂肪族ジカルボン酸、例えば1,4-シクロヘキサンジカルボン酸、ヒドロキシカルボン酸、例えば乳酸であってよい。二官能性ヒドロキシル化合物は、シクロ脂肪族ジオール、例えば1,4-シクロヘキサンジメタノール、線状又は分枝状脂肪族ジオール、例えば1,4-ブタンジオール又は2,2-ジメチル-1,3-プロパンジオールであってよい。

20

【0038】

本発明の一つの態様に於いて、二官能性カルボン酸は、シクロ脂肪族ジカルボン酸、例えば1,4-シクロヘキサンジカルボン酸であってよく、そして二官能性ヒドロキシル化合物は、脂肪族又はシクロ脂肪族ジオール、例えばエチレングリコール又は1,4-シクロヘキサンジメタノールであってよい。本明細書で使用する用語「残基」は、対応するモノマーを含む、重縮合反応によってポリマーの中に含有される任意の有機構造を意味する。本明細書で使用する用語「繰り返し単位」は、カルボニルオキシ基によって結合された、ジカルボン酸残基及びジオール残基を有する有機構造を意味する。従って、ジカルボン酸残基は、ジカルボン酸モノマー又はその関連する酸ハライド、エステル、塩、無水物又はこれらの混合物から誘導することができる。従って、本明細書で使用する用語「ジカルボン酸」は、ジカルボン酸及び高分子量ポリエステルを製造するためのジオールとの重縮合工程に於いて有用である、その関連する酸ハライド、エステル、半エステル、塩、半塩、無水物、混合無水物又はこれらの混合物を含むジカルボン酸の任意の誘導体を含むように意図する。

30

【0039】

本発明に於いて使用される脂肪族ポリエステルは、典型的には、実質的に等しい比率で

40

50

反応し、そしてそれらの対応する残基としてポリエステルポリマーの中に含有される、ジカルボン酸及びジオールから製造される。従って、本発明の脂肪族ポリエステルは、繰り返し単位の全モル数が 100 モル% に等しいように、実質的に等しいモル比率の酸残基 (100 モル%) 及びジオール残基 (100 モル%) を含有している。従って、本明細書の開示中に示されるモル% は、酸残基の全モル数、ジオール残基の全モル数又は繰り返し単位の全モル数を基準にしている。例えば、全酸残基基準で 30 モル% の 1, 4 - シクロヘキサンジカルボン酸 (1, 4 - C H D A) を含有するポリエステルは、このポリエステルが、100 モル% の酸残基の合計から 30 モル% の 1, 4 - C H D A 残基を含有していることを意味する。従って、各 100 モルの酸残基の中に 30 モルの 1, 4 - C H D A 残基が存在する。別の例に於いて、全ジオール残基基準で 30 モル% の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール (1, 4 - C H D M) を含有するポリエステルは、このポリエステルが、100 モル% のジオール残基の合計から 30 モル% の 1, 4 - C H D M 残基を含有していることを意味する。従って、各 100 モルのジオール残基の中に 30 モルの 1, 4 - C H D M 残基が存在する。

10

## 【0040】

本発明に於いて参照される脂肪族ポリエステルには、1種又はそれ以上の脂肪族ジオール及び1種又はそれ以上の脂肪族ジカルボン酸から、一般的な重合技術によって製造される、線状の熱可塑性の結晶性又は無定形ポリエステルが含まれる。このポリエステルは、通常、成形又は纖維グレードであり、そして典型的には、約 0.5 ~ 約 1.2 d L / g、更に典型的には、約 0.55 ~ 約 0.85 d L / g のインヘレント粘度を有する。本明細書に於いて「I. V.」として略記されるインヘレント粘度は、60 重量% のフェノール及び 40 重量% のテトラクロロエタンからなる溶媒 50 mL 当たり、0.25 g のポリマーを使用して、25 で実施したインヘレント粘度決定値を指す。本発明の脂肪族ポリエステルによって示され得る I. V. 値の他の例は約 0.55 ~ 約 0.70 d L / g、約 0.55 ~ 約 0.65 d L / g 及び約 0.60 ~ 約 0.65 d L / g である。

20

## 【0041】

本発明の組成物は熱可塑性脂肪族ポリエステルを含む。この脂肪族ポリエステルは、炭素数 2 ~ 18 の脂肪族ジカルボン酸及び炭素数 5 ~ 10 のシクロ脂肪族ジカルボン酸から選択された、1種又はそれ以上の置換又は非置換の線状又は分枝状のジカルボン酸の残基を含む、線状のランダムポリエステル又は枝分かれした及び / 若しくは鎖延長されたポリエステルであってよい。脂肪族及びシクロ脂肪族ジカルボン酸の限定しない例には、マロン酸、コハク酸、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、フマル酸、2, 2 - ジメチルグルタル酸、スペリン酸、1, 3 - シクロヘキサンジカルボン酸、2, 6 - デカヒドロナフタレンジカルボン酸、1, 4 - シクロヘキサンジカルボン酸、1, 12 - ドデカンジオン酸、1, 3 - シクロヘキサンジカルボン酸、ジグリコール酸、イタコン酸、マレイイン酸、2, 5 - ノルボルナンジカルボン酸及びこれらの混合物が含まれる。例えばこの脂肪族ポリエステルはグルタル酸、ジグリコール酸、コハク酸、1, 4 - シクロヘキサンジカルボン酸及びアジピン酸から選択された、1種又はそれ以上の脂肪族ジカルボン酸の二酸残基を含んでいてよい。別の態様に於いて、脂肪族ポリエステルは 2, 6 - デカヒドロナフタレンジカルボン酸、1, 4 - シクロヘキサンジカルボン酸、1, 3 - シクロヘキサンジカルボン酸、2, 5 - ノルボルナンジカルボン酸から選択された、1種又はそれ以上の二酸の残基を含んでいてよい。更に別の例に於いて、脂肪族ポリエステルは 1, 4 - シクロヘキサンジカルボン酸の残基を含んでいてよい。

30

## 【0042】

この脂肪族ポリエステルは、また、脂肪族ジオール、ポリアルキレンエーテルグリコール及びシクロ脂肪族ジオールから選択された、1種又はそれ以上の炭素数 2 ~ 18 の置換又は非置換の、線状又は分枝状のジオールの残基を含有するジオール残基を含んでいてよい。置換ジオールは、典型的には、ハロ及び C<sub>1</sub> ~ C<sub>4</sub> アルコキシから独立に選択された 1 ~ 約 4 個の置換基を含有する。使用することができるジオールの例には、これらに限定するものではないが、エチレングリコール、ジエチレングリコール、1, 3 - プロパンジオ

40

50

ール、2,2-ジメチル-1,3-プロパンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサンジオール、ポリ(エチレングリコール)、ジエチレングリコール、2,2,4-トリメチル-1,6-ヘキサンジオール、チオジエタノール、1,3-シクロヘキサンジメタノール、1,4-シクロヘキサンジメタノール、2,6-デカヒドロナフタレンジメタノール、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、ポリ(プロピレングリコール)、1,4:3,6-ジアンヒドロソルビトル及び4,4'-イソプロピリデンジシクロヘキサノールが含まれる。シクロ脂肪族ジオールは、それらのシス若しくはトランス異性体として又は両方の形の混合物として使用することができる。例えば、一つの態様に於いて、この脂肪族ポリエステルは、1,4-ブタンジオール、1,3-プロパンジオール、エチレングリコール、1,6-ヘキサンジオール、ジエチレングリコール、1,3-シクロヘキサンジメタノール、1,4-シクロヘキサンジメタノール、2,6-デカヒドロナフタレンジメタノール及び2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオールから選択された、少なくとも1種のジオールの残基からなっていてよい。別の例に於いて、この脂肪族ポリエステルは、ジカルボン酸残基の全モル数基準で約95~100モル%の1,4-シクロヘキサンジカルボン酸の残基及び、ジオール残基の全モル数基準で、約95~100モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノールの残基からなっていてよい。

10

## 【0043】

本発明の脂肪族ポリエステルの追加の例には、ジカルボン酸残基の全モル数基準で約80~100モル%の、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸、1,3-シクロヘキサンジカルボン酸又はこれらの混合物の残基を含む二酸残基及び、ジオール残基の全モル数基準で、約10~100モル%の、1,4-シクロヘキサンジメタノール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、1,3-シクロヘキサンジメタノール、1,4-ブタンジオール、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール又はこれらの混合物の残基を有するポリエステルが含まれる。別の例に於いて、このポリエステルは、全酸残基基準で、約95~100%の1,4-シクロヘキサンジカルボン酸の残基及び、全ジオール残基基準で、約95~100モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノールの残基からなっていてよい。更に別の例に於いて、このシクロ脂肪族ポリエステルは、ポリ(1,3-シクロヘキレンジメチレン-1,3-シクロヘキサンジカルボキシレート)、ポリ(1,4-シクロヘキシンジメチレン-1,4-シクロヘキサンジカルボキシレート)及びポリ(2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブチレン-1,4-シクロヘキサンジカルボキシレート)から選択された、少なくとも1種のポリエステルであってよい。

20

## 【0044】

本発明のポリエステルは、適切なジカルボン酸、エステル、無水物又は塩及び適切なジオール又はジオール混合物から、典型的な重縮合反応条件を使用して、容易に製造することができる。従って、本発明のポリエステルのジカルボン酸成分は、ジカルボン酸、それらの対応するエステル又はこれらの混合物から誘導することができる。本発明に於いて有用であるジカルボン酸のエステルの例には、ジメチルエステル、ジブロピルエステル、ジイソプロピルエステル、ジブチルエステル及びジフェニルエステル等が含まれる。これらは、運転の連続方式、半連続方式及び回分方式によって製造することができ、種々の反応器形式を使用することができる。適切な反応器形式の例には、これらに限定するものではないが、攪拌槽、連続式攪拌槽、スラリー反応器、管型反応器、ワイプド薄膜(wiped-film)反応器、流下薄膜反応器又は押出反応器が含まれる。この工程は、有利には、経済的理由のために連続工程として、そして上昇した温度で反応器内に長すぎる期間滞留させられた場合には、ポリエステルは外観が悪くなり得るので、ポリマーの優れた着色をもたらすように運転する。

30

## 【0045】

本発明のポリエステルは、当業者に公知である手順によって製造される。ジオールとジ

40

50

カルボン酸との反応は、一般的なポリエステル重合条件を使用して又は溶融相工程により実施することができるが、十分な結晶化度を有するものは、溶融相及びこれに続く固相重縮合技術によって製造することができる。例えば、エステル交換反応の手段により、即ち、ジカルボン酸成分のエステル形からポリエステルを製造するとき、反応工程は2個の段階を含む。第一段階に於いて、ジオール成分とジカルボン酸成分とを、上昇した温度、典型的に、約150～約250で、約0.5～約8時間、約0.0 kPaゲージ～約414 kPaゲージ(60ポンド/平方インチ「psi」)の範囲内の圧力で反応させる。好ましくは、エステル交換反応のための温度は、好ましい圧力が約103 kPaゲージ(15 psi)～約276 kPaゲージ(40 psi)の範囲内であって、約1～約4時間、約180～約230の範囲内である。その後、反応生成物を、より高い温度下で且つ低下した圧力下で加熱して、ジオール(これは、これらの条件下で容易に揮発し、システムから除去される)の除去を伴ってポリエステルを生成させる。この第二段階又は重縮合段階は、より高い真空及び温度(これは、一般的に、約230～約350、好ましくは約250～約310、最も好ましくは約260～約290の範囲内である)下で、約0.1～約6時間、好ましくは約0.2～約2時間、インヘレント粘度によって決定したとき、所望の重合度を有するポリマーが得られるまで続けられる。この重縮合段階は、約53 kPa(400トール)～約0.013 kPa(0.1トール)の範囲内である低下した圧力下で実施することができる。適切な熱移動及び反応混合物の表面再生を確保するために、両段階に於いて、搅拌又は適切な条件が使用される。両段階の反応速度は、適切な触媒、例えばアルコキシチタン化合物、アルカリ金属水酸化物及びアルコラート、有機カルボン酸の塩、アルキルスズ化合物、金属酸化物等によって増加される。特に、酸及びエステルの混合したモノマー供給物を使用するとき、米国特許第5,290,631号明細書に記載されているものと類似の三段階製造手順を使用することもできる。

#### 【0046】

エステル交換反応によるジオール成分とジカルボン酸成分との反応が完結まで駆動されることを確保するために、ときには、1モルのジカルボン酸成分に対して、約1.05～約2.5モルのジオール成分使用することが望ましい。しかしながら、当業者は、ジオール成分のジカルボン酸成分に対する比が、一般的に、反応工程が起こる反応器の設計によって決定されることを理解しているであろう。

#### 【0047】

直接エステル化による、即ち、ジカルボン酸成分の酸形からのポリエステルの製造に於いて、ポリエステルは、ジカルボン酸又はジカルボン酸の混合物を、ジオール成分又はジオール成分の混合物と反応させることによって製造される。この反応は、約1.4～約10の平均重合度を有する低分子量ポリエステル生成物を製造するために、約7 kPaゲージ(1 psi)～約1379 kPaゲージ(200 psi)、好ましくは689 kPa(100 psi)よりも低い圧力で実施される。直接エステル化反応の間に使用される温度は、典型的に約180～約280の範囲内であり、更に好ましくは約220～約270の範囲内である。次いで、この低分子量ポリマーは、重縮合反応によって重合させることができる。

#### 【0048】

本発明の脂肪族ポリエステル組成物は、また、本明細書に於いて「HALS」として略記される、少なくとも1種のヒンダードアミン光安定剤からなっていてよい。本発明のHALSの多くは、公知の化合物であり、そして幾つかは市販されている。このHALSには、それらの塩、N-オキシド及びN-ヒドロキシドが含まれていてよい。一般的に、このHALSは、非芳香族複素環式環の一部を形成する炭素-窒素-炭素鎖中に含有されているアミノ窒素を有するとして記載することができ、この場合、この鎖の2個の炭素原子は、同じ若しくは異なっていてよい2個の低級アルキル基(それぞれの低級アルキル基は、1～22個の炭素原子を含有する)に又はアミンを立体的に束縛する3～8個の炭素原子を含有する脂環式基に結合されている。例えば、本発明の一つの態様に於いて、このH

10

20

30

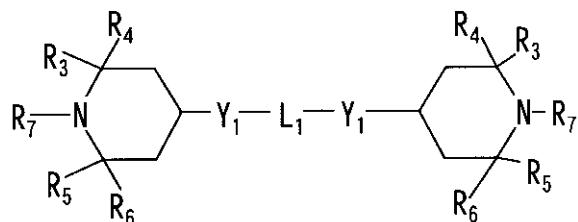
40

50

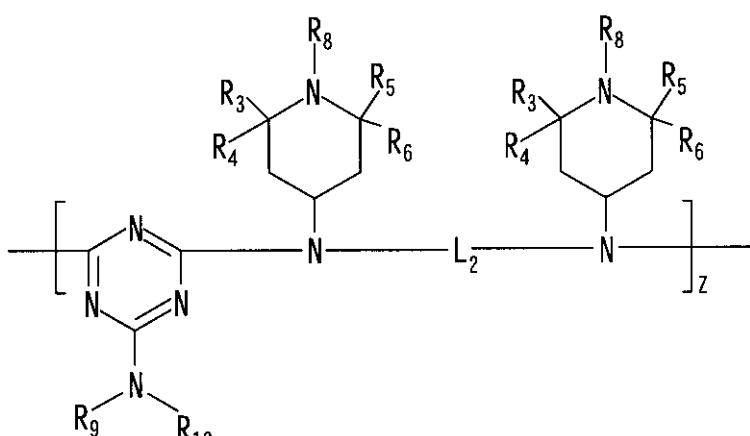
ALSは、2,2,6,6-テトラアルキルピペリジン、それらの酸付加塩又は金属化合物との錯体からなつていてよい。本発明に於いて使用することができるヒンダードアミン光安定剤の例は、式(1~4)：

【0049】

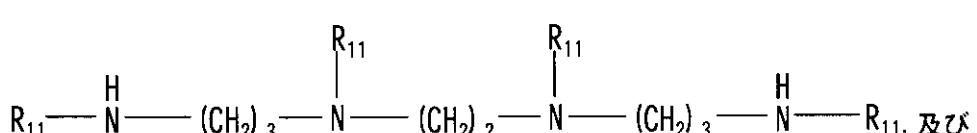
【化7】



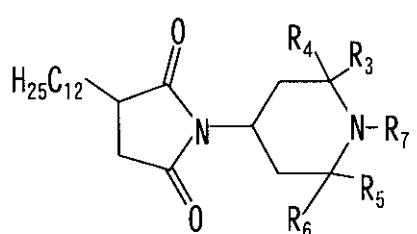
(1)



(2)



(3)



(4)

【0050】

【式中、R3、R4、R5及びR6はC1~C22アルキルであり、

R7及びR8は、独立に、水素、C1~C22アルキル及びC1~C22アルコキシから選択され、

10

20

30

40

50

$Y_1$  は - O - であり、

$L_1$  は 2 倍の結合基 - C ( O ) -  $L_2$  - C ( O ) - であり、

$L_2$  は  $C_1$  ~  $C_{22}$  アルキレンであり、

$R_9$  及び  $R_{10}$  は、独立に、水素、 $C_1$  ~  $C_{22}$  アルキル、 $C_3$  ~  $C_8$  シクロアルキル及び置換された  $C_3$  ~  $C_8$  シクロアルキルから選択され又は  $R_9$  及び  $R_{10}$  は、集合的に、モルホリン及び / 若しくはピペリジン環を形成する 2 倍の基を表すことができ、

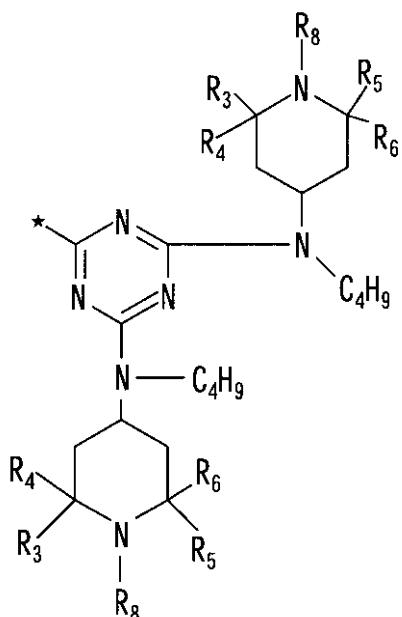
$z$  は 20 以下の正の整数であり、

$R_{11}$  は、水素、 $C_1$  ~  $C_{22}$  アルキル、置換された  $C_1$  ~  $C_{22}$  アルキル及びラジカル A ( 但し、ラジカル A は、下記の構造 :

【0051】

【化8】

10



ラジカル A

20

30

【0052】

( 式中、 \* は結合の位置を示す )

を有する )

から選択される ]

によって表される。

【0053】

典型的には、本発明のポリエステル組成物は、約 0.05 ~ 約 2 重量 %、更に典型的には、約 0.1 ~ 約 1 重量 % の、少なくとも 1 種の HALS を含むであろう。HALS の追加の例は、式 (1) ( 式中、  $R_3$ 、  $R_4$ 、  $R_5$  及び  $R_6$  がメチルであり、  $R_7$  がメチル、  $C_8H_{17}O$  - 又は水素であり、そして  $L_2$  が  $C_8$  アルキレンである ) を有する化合物である。

【0054】

別の態様に於いて、この HALS は、上記式 (1) ( 式中、  $R_3$ 、  $R_4$ 、  $R_5$  及び  $R_6$  がメチルであり、  $R_7$  が水素であり、そして  $L_2$  が  $C_8$  アルキレンである ) によって表すことができる。別の例に於いて、  $R_3$ 、  $R_4$ 、  $R_5$  及び  $R_6$  はメチルであり、  $R_7$  はオクチルオキシ基、  $C_8H_{17}O$  - であり、そして  $L_2$  は  $C_8$  アルキレンである。更に別の例に於いて、  $R_3$ 、  $R_4$ 、  $R_5$ 、  $R_6$  及び  $R_7$  はメチルであり、そして  $L_2$  は  $C_8$  アルキレンである。HALS の追加の例は、式 (2) ( 式中、  $R_3$ 、  $R_4$ 、  $R_5$  及び  $R_6$  がメチル基であり、  $R_8$  がメチル基又

40

50

は水素であり、(R<sub>9</sub>)N(R<sub>10</sub>)が集合的にモルホリノ基を表し、そしてL<sub>2</sub>がC<sub>6</sub>アルキレンである)によって表すことができ又は別の例に於いて、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>及びR<sub>6</sub>はメチル基であり、R<sub>8</sub>及びR<sub>9</sub>は水素であり、R<sub>10</sub>は2,4,4-トリメチル-2-ペンチルであり、そしてL<sub>2</sub>はC<sub>6</sub>アルキレンである。更に別の態様に於いて、このHALSは、式(3)(式中、R<sub>11</sub>がラジカルAであり、そしてR<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>及びR<sub>8</sub>がそれぞれメチルである)を有する少なくとも1種の化合物からなっていてよい。更に別の例に於いて、このHALSは、式(4)(式中、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>及びR<sub>6</sub>が、それぞれ、メチルであり、そしてR<sub>7</sub>が水素又はメチルである)を有する化合物からなっていてよい。

【0055】

これらの化合物は当前記技術分野で公知であり、そして幾つかは、例えば商品名サイアソルブ(CYASORB)(登録商標)UV-3529(サイテック・インダストリーズ社(Cytac Industries)、CAS#193098-40-7、式(2)(式中、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>及びR<sub>8</sub>がメチルであり、(R<sub>9</sub>)N(R<sub>10</sub>)が集合的にモルホリノ基を表し、そしてL<sub>2</sub>がC<sub>6</sub>アルキレンである)によって表される)、サイアソルブ(登録商標)UV-3346(サイテック・インダストリーズ社、CAS#90751-07-8、式(2)(式中、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>がメチルであり、R<sub>8</sub>が水素であり、(R<sub>9</sub>)N(R<sub>10</sub>)が集合的にモルホリノ基を表し、そしてL<sub>2</sub>がC<sub>6</sub>アルキレンである)によって表される)、チヌービン(TINUVIN)(登録商標)770(チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社(Ciba Specialty Chemicals)、CAS#52829-07-9、式(1)(式中、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>及びR<sub>6</sub>がメチルであり、R<sub>7</sub>が水素であり、そしてL<sub>2</sub>がC<sub>8</sub>アルキレンである)によって表される)、チヌービン(登録商標)123(チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社、CAS#129757-67-1、式(1)(式中、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>及びR<sub>6</sub>がメチルであり、R<sub>7</sub>が-OCH<sub>2</sub>H<sub>17</sub>であり、そしてL<sub>2</sub>がC<sub>8</sub>アルキレンである)によって表される)、チマッソルブ(CHIMASSORB)(登録商標)119(チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社、CAS#106990-43-6、式(3)(式中、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>及びR<sub>8</sub>がメチルであり、そしてR<sub>11</sub>がラジカルAである)によって表される)、ロウライイト(LOWILITE)76(グレート・レイクス・ケミカル社(Great Lakes Chemical Corp.)、CAS#41556-26-7、式(1)(式中、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>がメチルであり、そしてL<sub>2</sub>がC<sub>8</sub>アルキレンである)によって表される)及びサイアソルブ(登録商標)UV-3581(サイテック・インダストリーズ社、CAS#193098-40-7、式(4)(式中、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>及びR<sub>6</sub>がメチルであり、そしてR<sub>7</sub>が水素である)によって表される)として市販されている。追加の好ましいヒンダードアミン光安定剤は、プラスチック添加物ハンドブック(Plastic Additives Handbook)、第5版(ハンサー・ガードナー出版社(Hanser Gardner Publications, Inc.)、米国オハイオ州シンシナティ(Cincinnati)、2001年)中に記載されている。

【0056】

トリス-アリール-S-トリアジンUV吸収剤が、本発明の組成物中で低い色及びヘイズをもたらすことが見出された。従って、本発明の別の態様に於いて、脂肪族ポリエステル組成物は、また、式(5)：

【0057】

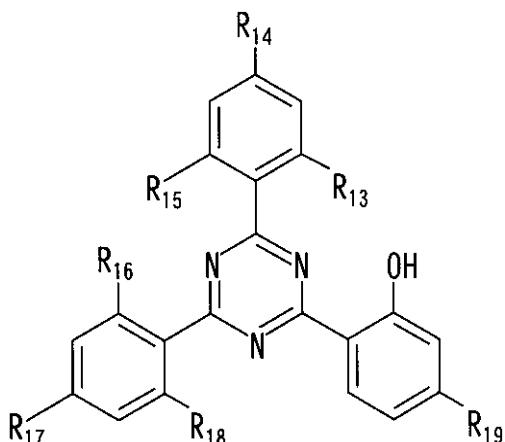
10

20

30

40

【化 9】



(5)

10

〔 0 0 5 8 〕

[式中、R<sub>13</sub>、R<sub>14</sub>、R<sub>15</sub>、R<sub>16</sub>、R<sub>17</sub>及びR<sub>18</sub>は、独立に、水素、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル、置換されたC<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>シクロアルキル及び置換されたC<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>シクロアルキルから選択され、そして

$R_{19}$  は水素、 $C_1 \sim C_{22}$  アルキル、置換された  $C_1 \sim C_{22}$  アルキル、 $C_3 \sim C_8$  シクロアルキル、置換された  $C_3 \sim C_8$  シクロアルキル及び  $-OR_{20}$  (但し、 $R_{20}$  は、水素、 $C_1 \sim C_{22}$  アルキル、置換された  $C_1 \sim C_{22}$  アルキル、 $C_3 \sim C_8$  シクロアルキル、置換された  $C_3 \sim C_8$  シクロアルキル、アリール及びヘテロアリールから選択される) から選択される] によって表される少なくとも 1 種のトリス・アリール・S・トリアジン UV 吸収剤を含む

[ 0 0 5 9 ]

用語「UV光吸收剤」は、400nmと700nmとの間の最小吸光度で290～400nmの範囲内の光を吸収し、そしてポリマー組成物の耐候性を改良する、1種の化合物又は化合物の混合物として定義される。好ましくは、ポリエステル組成物は、組成物の全重量基準で、約0.1～約6重量%の少なくとも1種のトリス・アリール-S-トリアジンUV吸収剤からなる。UV吸収剤の他の範囲は、約0.2～約4重量%及び約0.5～約2重量%である。UV吸収剤の更なる例は、上記式(5)(式中、R<sub>13</sub>、R<sub>14</sub>、R<sub>15</sub>、R<sub>16</sub>、R<sub>17</sub>及びR<sub>18</sub>が水素であり、そしてR<sub>19</sub>が-OC<sub>6</sub>H<sub>13</sub>である)によって表される化合物並びに上記式(5)(式中、R<sub>15</sub>及びR<sub>16</sub>が水素であり、R<sub>13</sub>、R<sub>14</sub>、R<sub>17</sub>及びR<sub>18</sub>がメチルであり、そしてR<sub>19</sub>が-OC<sub>8</sub>H<sub>17</sub>である)によって表される化合物である。これらのUV吸収剤は、当業者に公知であり、幾つかは、例えば商品名サイアソルブ(登録商標)UV-1164(サイテック・インダストリーズ社、CAS#2725-22-6、式(5)(式中、R<sub>15</sub>及びR<sub>16</sub>が水素であり、R<sub>13</sub>、R<sub>14</sub>、R<sub>17</sub>及びR<sub>18</sub>がメチルであり、そしてR<sub>19</sub>が-OC<sub>8</sub>H<sub>17</sub>である))及びチヌービン(登録商標)1577(チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社、CAS#147315-50-2、式(5)(式中、R<sub>13</sub>、R<sub>14</sub>、R<sub>15</sub>、R<sub>16</sub>、R<sub>17</sub>及びR<sub>18</sub>が水素であり、そしてR<sub>19</sub>が-OC<sub>6</sub>H<sub>13</sub>である))で市販されている。

[ 0 0 6 0 ]

一つの態様に於いて、例えば、このポリエステル組成物は、ジカルボン酸残基の全モル数基準で約80～100モル%の、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸、1,3-シクロヘキサンジカルボン酸又はこれらの混合物の残基及びジオール残基の全モル数基準で約10～100モル%の、1,4-シクロヘキサンジメタノール、エチレングリコール、ジ

20

30

40

50

エチレングリコール、1,3-シクロヘキサンジメタノール、1,4-ブタンジオール、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブantanジオール又はこれらの混合物の残基を有するポリエステルを含み、そしてヒンダードアミン光安定剤は、式(2) (式中、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>及びR<sub>6</sub>がメチル基であり、R<sub>8</sub>及びR<sub>9</sub>が水素であり、R<sub>10</sub>が2,4,4-トリメチル-2-ペンチルであり、そしてL<sub>2</sub>がC<sub>6</sub>アルキレンである)を有する化合物を含む。このポリエステル組成物は、また、約0.1～約2重量%の、式(5) (式中、R<sub>15</sub>及びR<sub>16</sub>が水素であり、R<sub>13</sub>、R<sub>14</sub>、R<sub>17</sub>及びR<sub>18</sub>が水素又はメチルであり、そしてR<sub>19</sub>が-O-C<sub>6</sub>H<sub>13</sub>又は-O-C<sub>8</sub>H<sub>17</sub>である)によって表されるトリス-アリール-S-トリアジンUV吸収剤を含む。別の例に於いて、このポリエステルは、(1,4-シクロヘキシレンジメチレン-1,4-シクロヘキサンジカルボキシレート)、ポリ(2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブチレン-1,4-シクロヘキサンジカルボキシレート)又はこれらの混合物からなっていてよい。  
10

## 【0061】

本発明の新規な脂肪族組成物は、更に、或る種のHALSの存在下で、安定化された組成物が屋外曝露の前に発生し得る、初期ヘイズ及び色を回避する、ジペンタエリスリトルジホスファイトからなっていてよい。

## 【0062】

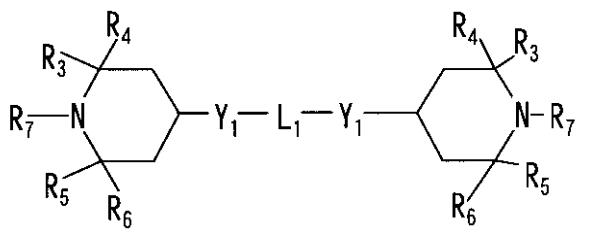
従って、本発明の別の面は、

(A) 炭素数2～18の脂肪族ジカルボン酸及び炭素数5～10のシクロ脂肪族ジカルボン酸から選択された、少なくとも1種の置換又は非置換の、線状又は分枝状のジカルボン酸の残基並びに脂肪族ジオール、ポリアルキレンエーテルグリコール及びシクロ脂肪族ジオールから選択された、少なくとも1種の置換又は非置換の、線状又は分枝状の、炭素数2～18のジオールの残基を含む、少なくとも1種の脂肪族熱可塑性ポリエステル、  
20

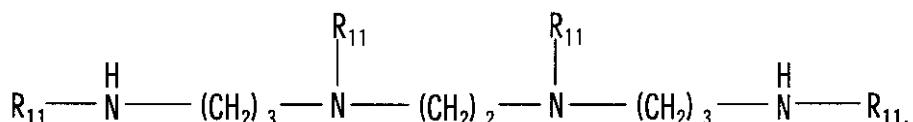
(B) 式(1)及び(3)：

## 【0063】

## 【化10】



(1)



(3)

## 【0064】

[式中、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>及びR<sub>6</sub>はC<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキルであり、

R<sub>7</sub>及びR<sub>8</sub>は、独立に、水素、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル及びC<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルコキシから選択され、

Y<sub>1</sub>は-O-であり、

30

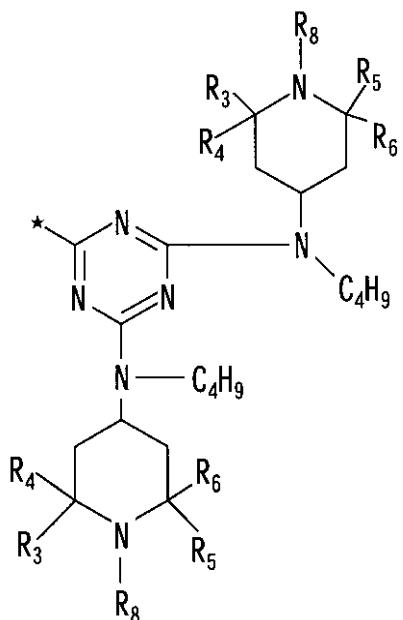
40

50

$L_1$  は 2 値の結合基 - C ( O ) -  $L_2$  - C ( O ) - であり、  
 $L_2$  は  $C_1$  ~  $C_{22}$  アルキレンであり、そして  
 $R_{11}$  は水素、 $C_1$  ~  $C_{22}$  アルキル、置換された  $C_1$  ~  $C_{22}$  アルキル及びラジカル A ( 但し  
、ラジカル A は、下記の構造 ) :

【 0 0 6 5 】

【 化 1 1 】



ラジカル A

10

20

30

40

【 0 0 6 6 】

( 式中、 は結合の位置を示す )

を有する )

から選択される ]

を有する 1 種又はそれ以上の化合物から選択された、少なくとも 1 種のヒンダードアミン  
光安定剤並びに

( C ) 少なくとも 1 種のトリス - アリール - S - トリアジン UV 吸収剤並びに

( D ) 少なくとも 1 種のペンタエリスリトールジホスファイト

を含む安定化脂肪族ポリエステル組成物である。

【 0 0 6 7 】

典型的には、この組成物は、前記組成物の全重量基準で、約 0 . 1 ~ 約 2 重量 % のペン  
タエリスリトールジホスファイトを含む。ペンタエリスリトールジホスファイトについて  
の重量 % 範囲の他の例は、約 0 . 1 ~ 約 1 . 5 重量 % 及び約 0 . 1 ~ 約 1 重量 % である。

典型的には、ペンタエリスリトールジホスファイトは、式 ( 6 ) :

【 0 0 6 8 】

## 【化12】



(6)

10

## 【0069】

(式中、R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は、独立に、置換及び非置換のC<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>アルキル、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>シクロアルキル及びアリールから選択される)

によって表される少なくとも1種の化合物を含んでいてよい。

例えば、R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は、それぞれ、イソデシル、オクタデシル又は2,4-ジ-tert-ブチルフェニルであってよい。別の例に於いて、R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は、それぞれオクタデシルである。これらの化合物は、当前記技術分野で公知であり、そして幾つかは、例えば、商品名アルカノックス(ALKANOX)(登録商標)P-24(グレート・レイクス・ケミカルズ社、CAS No. 26741-53-7、R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は、それぞれ、2,4-ジ-tert-ブチルフェニルである)、ドーバー・ホス(DOVERPHOS)(登録商標)1220(ドーバー・ケミカル社(Dover Chemical)、CAS No. 26544-27-4、R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は、それぞれ、イソデシルである)、ウェ斯顿(WESTON)(登録商標)618及びウェ斯顿(登録商標)619(ジーイー・スペシャルティ・ケミカルズ社(GE Specialty Chemicals)、CAS No. 3806-34-6及びCAS No. 122-20-3、R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は、それぞれオクタデシルである)として市販されている。

20

## 【0070】

この脂肪族ポリエステル、式(1)及び(3)によって表されるHALS並びにUV吸収剤の種々の態様は前記の通りである。例えば脂肪族ポリエステルは、グルタル酸、ジグリコール酸、コハク酸、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸、アジピン酸、2,6-デカヒドロナフタレンジカルボン酸、1,3-シクロヘキサンジカルボン酸及び2,5-ノルボルナンジカルボン酸から選択された、1種又はそれ以上の脂肪族ジカルボン酸の二酸残基を含んでいてよい。更に別の態様に於いて、この脂肪族ポリエステルは、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸の残基を含んでいてよい。別の例に於いて、この脂肪族ポリエステルはエチレングリコール、ジエチレングリコール、1,3-プロパンジオール、2,2-ジメチル-1,3-プロパンジオール、1,3-ブタンジオール、1,4-ブタンジオール、1,5-ペンタンジオール、1,6-ヘキサンジオール、ポリ(エチレングリコール)、ジエチレングリコール、2,2,4-トリメチル-1,6-ヘキサンジオール、チオジエタノール、1,3-シクロヘキサンジメタノール、1,4-シクロヘキサンジメタノール、2,6-デカヒドロナフタレンジメタノール、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、ポリ(プロピレングリコール)、1,4:3,6-ジアンヒドロソルビトール及び4,4'-イソプロピリデンジシクロヘキサノールから選択された、少なくとも1種のジオールの残基を含んでいてよい。更に別の例に於いて、この脂肪族ポリエステルは、約95～100モル%の1,4-シクロヘキサンジカルボン酸の残基及びジオール残基の全モル数基準で約95～100モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノールの残基を含む。本発明の脂肪族ポリエステルの追加の例には、ジカルボン酸残基の全モル数基準で、約80～100モル%の、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸、1,3-シクロヘキサンジカルボン酸又はこれらの混合物の残基を含む二酸残基及び、ジオール残基の全モル数基準で、約10～100モル%の、1,4-シクロヘキサンジメタノール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、1,3-シクロヘキサンジメタノール、1,4-ブタンジオール

30

40

40

50

、2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオール又はこれらの混合物の残基を有するポリエステルが含まれる。更に別の例に於いて、この脂肪族ポリエステルは、ポリ(1,3-シクロヘキシレンジメチレン-1,3-シクロヘキサンジカルボキシレート)、ポリ(1,4-シクロヘキシレンジメチレン-1,4-シクロヘキサンジカルボキシレート)及びポリ(2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブチレン-1,4-シクロヘキサンジカルボキシレート)から選択された、少なくとも1種のポリエステルを含んでいてよい。脂肪族ポリエステルに加えて、HALS及びUV吸収剤は、前記した通りであり、そして式(1)及び(3)によって表すことができる。例えば、この脂肪族ポリエステルは、約0.1~約1重量%の式(1)及び(3)によって表されるHALSを含んでいてよい。更に、当業者は、本発明が、ポリエステル、式(1)及び(3)によって表されるHALS、UV吸収剤並びに前記したホスファイトの任意の組合せからなっていてよいことを理解されたい。

10

## 【0071】

本発明は、また、安定化脂肪族ポリエステル組成物であって、

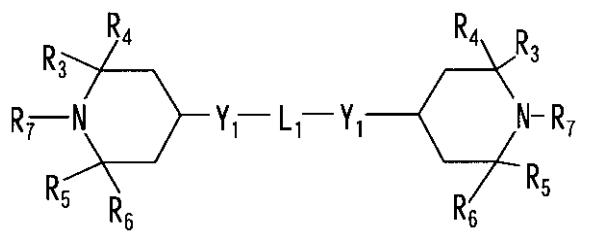
(A) 100モル%のジカルボン酸残基の合計基準で、約80~100モル%の、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸及び1,3-シクロヘキサンジカルボン酸から選択された少なくとも1種のジカルボン酸の残基並びに100モル%のジオール残基の合計基準で約10~100モル%の、1,4-シクロヘキサンジメタノール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、1,3-シクロヘキサンジメタノール、1,4-ブタンジオール及び2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブタンジオールから選択された少なくとも1種のジオールの残基を含む、少なくとも1種の熱可塑性脂肪族ポリエステル、

20

(B) 前記組成物の全重量基準で、約0.1~約2重量%の、式(1)：

## 【0072】

## 【化13】



30

(1)

## 【0073】

[式中、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>及びR<sub>6</sub>はメチル基であり、

R<sub>7</sub>はメチル、C<sub>8</sub>H<sub>17</sub>O-又は水素であり、

Y<sub>1</sub>は-O-であり、

40

L<sub>1</sub>は2価の結合基-C(O)-L<sub>2</sub>-C(O)-であり、そして

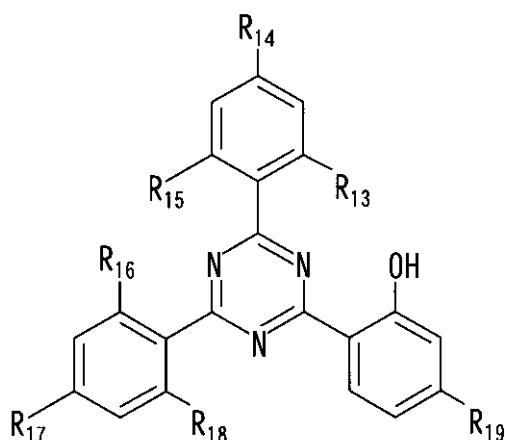
L<sub>2</sub>はC<sub>8</sub>アルキレンである]

を有する化合物から選択された、少なくとも1種のヒンダードアミン光安定剤、

(C) 前記組成物の全重量基準で、約0.1~約6重量%の、式(5)：

## 【0074】

## 【化14】



(5)

10

20

30

40

50

## 【0075】

[式中、R<sub>15</sub>及びR<sub>16</sub>は水素であり、R<sub>13</sub>、R<sub>14</sub>、R<sub>17</sub>及びR<sub>18</sub>は水素又はメチルであり、そしてR<sub>19</sub>は-O-C<sub>6</sub>H<sub>13</sub>又は-O-C<sub>8</sub>H<sub>17</sub>である]

を有する化合物から選択された少なくとも1種のトリス・アリール-S-トリアジンUV吸収剤並びに

(D)前記組成物の全重量基準で、約0.1～約2重量%の、式(6)：

## 【0076】

## 【化15】



(6)

## 【0077】

(式中、R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は、それぞれ、イソデシル、オクタデシル又は2,4-ジ-tert-ブチルフェニルである)

を有する化合物から選択された少なくとも1種のペンタエリスリトールジホスファイトからなる組成物を提供する。

## 【0078】

脂肪族ポリエステルの代表的な例には、これらに限定するものではないが、ポリ(1,3-シクロヘキシレンジメチレン-1,3-シクロヘキサンジカルボキシレート)、ポリ(1,4-シクロヘキシレンジメチレン-1,4-シクロヘキサンジカルボキシレート)、ポリ(2,2,4,4-テトラメチル-1,3-シクロブチレン-1,4-シクロヘキサンジカルボキシレート)及びこれらのポリエステルの1種又はそれ以上の混合物が含まれる。例えば、脂肪族ポリエステルはポリ(1,4-シクロヘキシレンジメチレン-1,4-シクロヘキサンジカルボキシレート)からなっていてよく、そしてペンタエリスリトールジホスファイトは構造(6)(式中、R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>はそれぞれオクタデシルである)によって表すことができる。

## 【0079】

例えば、本発明の一つの態様に於いて、ホスファイトはウエストン（登録商標）619からなっていてよく、UV吸収剤はチヌービン（登録商標）1577又はサイアソルブ（登録商標）UV-1164からなっていてよく、そしてHALSはロワイライト（登録商標）76からなっていてよい。別の例に於いて、脂肪族ポリエステルはポリ（1,4-シクロヘキシレンジメチレン-1,4-シクロヘキサンジカルボキシレート）からなっていてよく、ホスファイトはウエストン（登録商標）618又はウエストン（登録商標）619からなっていてよく、UV吸収剤はチヌービン（登録商標）1577又はサイアソルブ（登録商標）UV-1164からなっていてよく、そしてHALSはチヌービン（登録商標）770からなっていてよい。脂肪族ポリエステル、ホスファイト、UV吸収剤及びHALSの他の組合せが可能であり、そして本発明の範囲内に含まれることを理解されたい。

## 【0080】

更に、この脂肪族ポリエステル組成物は、更に、1種又はそれ以上の下記の物質、即ち酸化防止剤、溶融強度増強剤、分岐剤（例えばグリセロール、トリメリット酸及び無水物）、連鎖延長剤、難燃剤、充填材、酸スカベンジャー、染料、着色剤、顔料、粘着防止剤、流動増強剤、耐衝撃性改良剤、耐電防止剤、加工助剤、離型添加剤、可塑剤、スリップ剤、安定剤、ワックス、UV吸収剤、蛍光増白剤、滑剤、ピニング添加剤(pinning additives)、発泡剤、静電防止剤、核剤、ガラスビーズ、金属球、セラミックビーズ、カーボンブラック、架橋ポリスチレンビーズ等を含んでいてよい。ときにはトナーとして参照される着色剤を添加して、ポリエステルに所望の中性色相及び/又は明度を与えることができる。例えば、このポリエステル組成物は、組成物の表面特性を変えるために、そして/又は流動を増強するために、0～約30重量%の1種又はそれ以上の加工助剤を含んでいてよい。加工助剤の代表的例には、炭酸カルシウム、タルク、クレー、雲母、ゼオライト、ワラストナイト、カオリン、珪藻土、TiO<sub>2</sub>、NH<sub>4</sub>Cl、シリカ、酸化カルシウム、硫酸ナトリウム及びリン酸カルシウムが含まれる。例えば、フィルムの白度を制御するために、又は着色物品を製造するために、二酸化チタン及び他の顔料及び染料の使用が含まれる。耐電防止剤又は他の皮膜を物品の表面に適用することもできる。

## 【0081】

添加物の更なる例には、有機又は無機着色剤、ヒンダードフェノール系酸化防止剤、耐衝撃性改良剤、ハロゲン化難燃剤、非ハロゲン化難燃剤及びリサイクルしたポリマーから選択された1種又はそれ以上の添加物が含まれる。用語「フェノール系酸化防止剤」及び「ヒンダードフェノール」は、当業者に公知である一次酸化防止剤であり、そしてプラスチック添加物ハンドブック、第5版（ハンサー・ガードナー出版社、米国オハイオ州シンシナティ、2001年）中の第98～108頁に列挙されている構造によって表すことができる。好ましい例は、サイアノックス(CYANOX)（登録商標）1741及びサイアノックス（登録商標）1790（サイテック・インダストリーズ社、CAS#27676-62-6及び同40601-76-1）、イルガノックス(IRGANOX)（登録商標）1010（チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社、CAS#6683-19-8）及びイルガノックス（登録商標）1330（チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社、CAS#1709-70-2）である。用語「ハロゲン化難燃剤」は、1種又はそれ以上の下記の物質、即ち、フッ素、塩素、臭素及びヨウ素を含有し得る化合物として定義され、これは、このポリマー組成物の易燃性を減少させるための方式で作用する。臭素を含有する化合物、例えば臭素化ポリカーボネート、臭素化ナフタレン、臭素化ビスフェノール-A、臭素化ビフェニル、臭素化ポリスチレン等が更に好ましい。

## 【0082】

前記の脂肪族ポリエステル組成物は、造形物品、例えばフィルム、シート、ボトル、チューブ、異形材、繊維及び成形物品を製作するために使用することができる。このような物品は、当業者に公知である任意の手段により、例えば押出、カレンダリング、熱成形、吹込成形、押出吹込成形、流延、紡糸、延伸、幅出し又はフリープローにより製造するこ

とができる。この造形物品は、1個又はそれ以上の層からなっていてよく、例えば少なくとも2個の層を有するフィルムであってよい。

【0083】

別の例に於いて、前記の脂肪族ポリエステル組成物は、当前記技術分野で公知の任意の技術によって、フィルム又はシートに製作することができる。例えば、この脂肪族ポリエステル組成物は、厚手シート、押出シート用のキャップ層(cap layer)、押出フィルム用のキャップ層、熱成形可能シート製品、射出成形製品、薄手フィルム、厚手フィルム、薄手フィルムを使用して製造された物品、厚手フィルムを使用して製造された物品、厚手シートを使用して製造された物品等のために使用することができる。フィルムの製造は、例えば米国特許第4,880,592号明細書に記載されているような溶融押出により、米国特許第4,427,614号明細書に記載されているような圧縮成形により又は任意の他の適当な方法により達成することができる。例えば、フィルムは、公知の流延フィルム、インフレーション及び押出被覆技術により製造することができ、後者には、基体の上への押出が含まれる。このような基体には、また、タイ層(tie-layer)が含まれてよい。溶融流延又はインフレーションによって製造されたフィルムは、熱的に結合するか又は接着剤を使用して基体にシールすることができる。この組成物は、当前記技術分野で公知の任意の技術により、単層又は多層フィルムに製作することができる。例えば単層又は多層フィルムは、公知の流延フィルム、インフレーション及び押出被覆技術により製造することができ、後者には、基体の上への押出が含まれる。好ましい基体には、織布及び不織布が含まれる。溶融流延又はインフレーションによって製造された単層又は多層フィルムは、熱的に結合するか又は接着剤を使用して基体にシールすることができる。

10

20

30

40

50

【0084】

別の例に於いて、造形物品は纖維であってよい。この纖維は、造形された断面を有する、ステープル、モノフィラメント又はマルチフィラメント纖維であってよい。本発明の目的のために、用語「纖維」は、二次元又は三次元物品、例えば織布又は不織布に成形することができる高いアスペクト比の造形ポリマー体を指す。更に、纖維は、当業者に公知である種々の形態の何れをもととができるフィラメント、即ちモノフィラメント、マルチフィラメント、トウ、ステープル又はカット纖維、ステープルヤーン、コード、織布、タフテッド布及び編み布、不織布(ブロー布(blown fabric)及びスパンボンド布及び多層不織布を含む)、ラミネート並びにこのような纖維からのコンポジットを指す。本発明の纖維は、モノフィラメント、マルチフィラメント又は二成分纖維であってよい。本発明の新規な纖維は、ステープル、ヤーン、コード又は直接紡糸不織布として製造することができる。

【0085】

モノフィラメント纖維は、一般的に、サイズが約20～約8000デニール/フィラメント(本明細書に於いて「d/f」として略記する)の範囲内であり、そして抄紙機クロシング(clothing)応用に於いて特に有用である。好ましい纖維は、約500～約5000の範囲内のd/f値を有するであろう。このようなモノフィラメントは、一成分又は二成分纖維の形であってよい。二成分纖維は、シース/コア、並列又は当業者に公知の他の形状を有してよい。他の多成分形状も可能である。二成分纖維の製造方法も公知であり、米国特許第3,589,956号明細書に記載されている。二成分纖維に於いて、この安定化脂肪族ポリエステル組成物は、約10～約90重量%の量で存在し、そして一般的にシース/コア纖維のシース部分中に使用される。他の成分は、これらに限定するものではないが、ポリエステル、例えばポリ(エチレンテレフタレート)、ポリ(ブチレンテレフタレート)、ポリ(トリエチレンテレフタレート)、ポリラクチド等並びにポリオレフィン、セルロースエステル及びポリアミドを含む、広範囲の他のポリマー材料からであってよい。熱収縮に於ける顕著な差異を有する並列組合せは、螺旋捲縮の発生のために利用することができる。捲縮を所望する場合、鋸歯又はスタッファーボックス捲縮が、多くの応用のために一般的に適している。第二ポリエステルがシース/コア形状のコア中に存在する場合、このようなコアを任意に安定化させることができる。

〔 0 0 8 6 〕

本発明のマルチフィラメント繊維について、そのサイズは、溶融プローウエブについて約2マイクロメートルから、ステーブル繊維について約0.5～約50d/f、そしてモノフィラメント繊維について約5000d/fまでの範囲であってよい。マルチフィラメント繊維は、また、捲縮された又は捲縮されないヤーン及びトウとして使用することができる。溶融紡糸された及び溶融プローされたウェブ布に使用される繊維は、マイクロデニールサイズで製造することができる。

【 0 0 8 7 】

寸法安定性と結びついたモジュラスに於ける多様性のために、纖維を広範囲の製品中で同様に使用することができる。本発明の脂肪族ポリエステル組成物から製造された纖維は、それらの屈折率が他の芳香族ポリエステルよりも低いので、それらを、光導波管及び光ファイバーのような応用のための良好な候補にする優れた光学を有すると期待される。

[ 0 0 8 8 ]

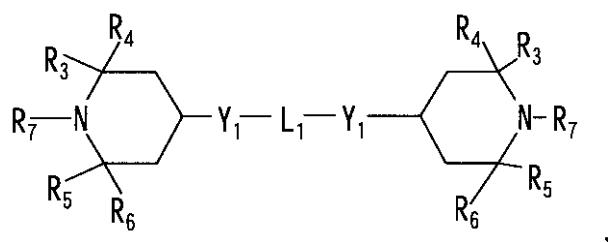
本発明は、また、安定化脂肪族ポリエステル組成物の製造方法であって、

(A) 炭素数2～18の脂肪族ジカルボン酸及び炭素数5～10のシクロ脂肪族ジカルボン酸から選択された、少なくとも1種の置換又は非置換の、線状又は分枝状のジカルボン酸の残基並びに脂肪族ジオール、ポリアルキレンエーテルグリコール及びシクロ脂肪族ジオールから選択された、少なくとも1種の置換又は非置換の、線状又は分枝状の、炭素数2～18のジオールの残基を含む、少なくとも1種の脂肪族熱可塑性ポリエステル、

(B) 前記組成物の全重量基準で約 0.1 ~ 約 2 重量 % の、式 (1) に示す

[ 0 0 8 9 ]

### 【化 1 6】



【 0 0 9 0 】

[式中、 $R_3$ 、 $R_4$ 、 $R_5$ 及び $R_6$ はメチル基であり、

$R_7$  はメチル、 $C_8H_{17}O$  - 又は水素であり、

Y<sub>1</sub> は - O - であり、

$L_1$  は 2 値の結合基 - C ( 0 ) -  $L_2$  - C ( 0 ) - であり、そして

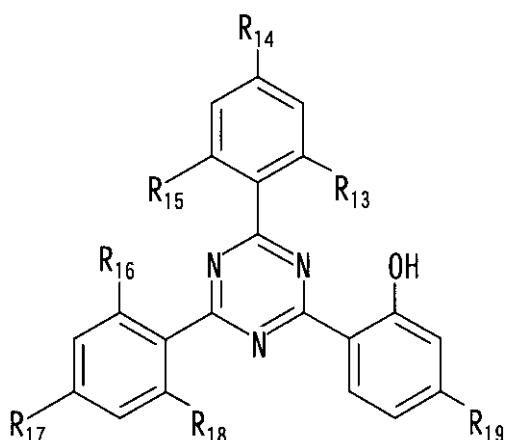
L<sub>2</sub>はC<sub>8</sub>アルキレンである]

を有する化合物から選択された、少なくとも1種のヒンダードアミン光安定剤、

(C) 前記組成物の全重量基準で、約 0.1 ~ 約 6 重量 % の、式 (5) :

【 0 0 9 1 】

【化17】



(5)

10

20

30

40

50

【0092】

[式中、R<sub>15</sub>及びR<sub>16</sub>は水素であり、R<sub>13</sub>、R<sub>14</sub>、R<sub>17</sub>及びR<sub>18</sub>は水素又はメチルであり、そしてR<sub>19</sub>は-O-C<sub>6</sub>H<sub>13</sub>又は-O-C<sub>8</sub>H<sub>17</sub>である]

を有する化合物から選択された少なくとも1種のトリス・アリール-S-トリアジンUV吸収剤並びに

(D)前記組成物の全重量基準で、約0.1～約2重量%の、式(6)：

【0093】

【化18】



(6)

【0094】

(式中、R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は、それぞれ、イソデシル、オクタデシル又は2,4-ジ-tert-ブチルフェニルである)

を有する化合物から選択された少なくとも1種のペンタエリスリトールジホスファイトをブレンドすることを含む方法を提供する。

【0095】

この方法は、当業者に公知の任意の有効なブレンド手段を使用して実施することができる。典型的な一般的なブレンド技術には、溶融方法及び溶液製造方法が含まれる。他の適当なブレンド技術には、ドライブレンド及び/又は押出が含まれる。この脂肪族ポリエステル組成物の成分を、例えば一軸スクリュー押出機、二軸スクリュー押出機又はバンパリーミキサーを使用することによって、溶融物で配合することができる。これらは、また、溶液中でブレンドすることによって製造することができる。追加の成分、例えば安定剤、難燃剤、着色剤、滑剤、離型剤、耐衝撃性改良剤等を、配合物の中に含有させることもできる。例えば、このポリエステル組成物成分は、約25～350の温度で、均一な組

成物を形成するために十分な時間ブレンドすることができる。

【0096】

溶融ブレンド方法には、ポリエステルを溶融するために十分な温度で、成分をブレンドし、次いで、この組成物を所望の温度まで冷却することが含まれる。本明細書で使用する用語「溶融」には、これらに限定するものではないが、脂肪族ポリエステルを単に軟化させることが含まれる。ポリマー技術分野に於いて一般的に公知である溶融混合方法について、「ポリマーの混合及び配合(Mixing and Compounding of Polymers)」(I. Mans - Zloczower & Z. Tadmor 編、カール・ハンサー出版社(Carl Hanser Verlag publisher)刊行、ニューヨーク、1994年)参照。

【0097】

溶液製造方法には、適切な重量/重量比の成分及び脂肪族ポリエステルを、適切な有機溶媒、例えば塩化メチレン又は塩化メチレンとヘキサフルオロイソプロパノールとの70/30混合物中に溶解させ、この溶液を混合し、そして溶媒を蒸発させることが含まれる。溶液製造ブレンド方法はポリマー技術分野に於いて一般的に公知である。

【0098】

溶融ブレンド方法は、本発明の脂肪族ポリエステル組成物を製造するための好ましい方法である。溶媒を使用しないので、溶融方法は、溶液方法よりも、一層経済的であり且つ危険性が低い。

【実施例】

【0099】

概要：本発明を、下記の実施例によって、更に説明し、そして例示する。ポリマーフィルムの色及びヘイズ%は、ハンター・アソシエーツ・ラボラトリー(Hunter Associates Laboratory, Inc.)、バージニア州レストン(Reston)によって製作された、ハンターラブ・ウルトラスキャン(HunterLab ULTRASCAN)（登録商標）比色計を使用する、一般的な方法で決定した。この計器は、ハンターラブ・ユニバーサル・ソフトウェア(HunterLab Universal Software)（バージョン3.8）を使用して操作した。この計器の較正及び操作は、ハンターラブ・ユーザー・マニュアルに従い、ユニバーサル・ソフトウェアによって大きく指示されている。この計器は、その使用説明書に従って操作し、下記の試験パラメーターを使用した。即ち、D65光源（昼光6500°K色温度）、反射率モード、大面積視野、鏡面反射含有(Specular Included)、CIE10°オブザーバー、出力は、CIE L、a、bである。正のb値に於ける増加は黄色度を示し、一方、bの数値に於ける減少は、黄色度に於ける減少を示す。色測定及び実施は、「実用色測定(Practical Color Measurement)」、ウィリー社(Wiley)、ニューヨーク、第39-56頁及び第91-98頁(1994年)に、Annmarie Berger-Schunnによって検討されている。

【0100】

全ての脂肪族ポリエステル組成物は、60重量%のフェノール及び40重量%のテトラクロロエタンを含有する溶媒混合物50mL当たり、0.25gのポリマーを使用して、25で決定したとき、約1.0のインヘレント粘度を有する、100モル%の1,4-シクロヘキサンジカルボン酸残基及び100モル%の1,4-シクロヘキサンジメタノール残基を含む脂肪族ポリエステルを押し出すことによって製造した。このポリエステルには、約70ppmw（重量で100万当たりの部）のチタン金属が含有されていた。この脂肪族ポリエステルを、真空オーブン（モデル5851、ナショナル・アプライアンス社(National Appliance Company)、オレゴン州ポートランド(Portland)）内で、70で120トール圧力で乾燥室素を僅かに入れて、約24時間乾燥させた。

【0101】

実施例に於いて下記の添加物を使用した。チヌービン（登録商標）1577、式(5)（式中、R<sub>13</sub>～R<sub>18</sub>が、それぞれ水素であり、そしてR<sub>19</sub>が-O-C<sub>6</sub>H<sub>13</sub>である）を有するトリス-アリール-S-トリアジンUV吸収剤；サイアソルブ（登録商標）UV-3638、非トリアジンUV吸収剤；サイアソルブ（登録商標）UV-3529、式(2)（

10

20

30

40

50

式中、 $R_3$ 、 $R_4$ 、 $R_5$ 、 $R_6$ 及び $R_8$ がメチル基であり、 $(R_9)N(R_{10})$ が集合的にモルホリノ基を表し、そして $L_2$ が $C_6$ アルキレンである)を有するHALS；サイアソルブ(登録商標)UV-3581、式(4)(式中、 $R_3$ 、 $R_4$ 、 $R_5$ 及び $R_6$ がメチル基であり、そして $R_7$ が水素である)を有するHALS；サイアソルブ(登録商標)UV-3346、式(2)(式中、 $R_3$ 、 $R_4$ 、 $R_5$ 及び $R_6$ がメチル基であり、 $R_8$ が水素であり、そして $(R_9)N(R_{10})$ が集合的にモルホリノ基である)を有するHALS；チヌービン(登録商標)770、式(1)(式中、 $R_3$ 、 $R_4$ 、 $R_5$ 及び $R_6$ がメチル基であり、 $R_7$ が水素であり、そして $L_2$ が $C_8$ アルキレンである)によって表されるHALS；チマッソルブ(登録商標)119、式(3)(式中、 $R_3$ 、 $R_4$ 、 $R_5$ 、 $R_6$ 及び $R_8$ がメチル基であり、そして $R_{11}$ がラジカルAである)によって表されるHALS；ロウイライト76、式(1)(式中、 $R_3$ 、 $R_4$ 、 $R_5$ 、 $R_6$ 及び $R_7$ がメチル基であり、そして $L_2$ が $C_8$ アルキレンである)によって表されるHALS；ロウイライト94(チマッソルブ(登録商標)944としても入手可能)、式(2)(式中、 $R_3$ 、 $R_4$ 、 $R_5$ 及び $R_6$ がメチル基であり、 $R_8$ 及び $R_9$ が水素であり、 $R_{10}$ が2,4,4-トリメチル-2-ペンチルであり、そして $L_2$ が $C_6$ アルキレンである)によって表されるHALS及びウエストン(登録商標)619、式(6)(式中、 $R_1$ 及び $R_2$ が、それぞれオクタデシルである)によって表されるペンタエリスリトールジホスファイト。

10

## 【0102】

全ての添加物は、「バッグブレンド」(袋の中で材料を一緒に振盪すること)によって、ポリエステルと混合した。このポリエステル組成物を、中間混合スクリューを取り付けた18mm二軸スクリュー押出機(エイピーヴィ・ケミカル・マシナリー社(APV Chemical Machinery Inc.)、ミシガン州サギノー(Saginaw)、48601)を使用して押し出した。全てのゾーンの温度は、250に設定したゾーン1以外は275に設定した。入口ポートを循環水によって冷却し、そしてスクリュー速度を200回転/分(rpm)に設定した。アキュ-レイト(ACCU-RATE)(登録商標)(アキュ-レイト社(ACCU-RATE Inc.)、ウイスコンシン州ホワイトウォーター(Whitewater))乾燥材料供給機を使用して、ポリマー及び添加物を、3.0の設定添加速度で押出機の中に供給した。押し出されたロッドを、1.37メートル(4.5フィート)長さの氷-水浴に通過させることによって冷却し、次いで5~8の速度に設定したベルリン・ペレタイザー(ザ・ベルリン社(The Berlin Corp.)、マサチューセッツ州ウォーセスター(Worcester))を使用して細断した。押出機が適切にバージされたことを確保するために、最初の5分間の押出物を集めなかった。添加物の同じ混合物の複数の濃度のものを押し出すとき、添加物のより低い濃度のものを、常に最初に押し出した。押出機を、少なくとも300gのポリエステルブレンドでバージし、その後、次の添加物を評価した。サンプル組成を表Iに示す。

20

## 【0103】

配合したポリマーを、ニューバリー(Newbury)射出成形機を使用して、260で、2.5"×0.5"×1/16"の衝撃試験片及び3.5"×3.5"×1/8"のブラックに射出成形した。この衝撃試験片を使用して、人工的屋外曝露の前及び中の機械的特性を評価した。ブラックをそれぞれの間隔で取り出し、そして色及びヘイズを測定するために使用し、次いでウェザロメーター(WEATHER-OMETER)(登録商標)に戻した。

30

## 【0104】

射出成形したサンプルを、Ci65Aウェザロメーター(登録商標)内で、ASTM G155サイクル1条件(340nmで0.35W/m<sup>2</sup>/nmの放射照度、102分間の光及び18分間の水スプレーを伴う光)下で屋外曝露した。ランプはキセノンアークであり、ホウケイ酸塩内側及び外側フィルターを使用した。ブラックパネル温度は63度あり、そして環境温度は42度であった。相対湿度は55%であった。

40

## 【0105】

2個の衝撃試験片を、機械的特性試験のために、それぞれの屋外曝露間隔で取り出した。衝撃強度は、試験片を通常のアイソット方法に対して90°に配向させた、即ち、ハンマーが、縁ではなくて試験片の0.5インチ幅の面に当たる以外は、アイソット試験のた

50

めの A S T M D 2 5 6 に従って、衝撃試験片に衝撃を与えることによって決定した。上記のようにしてウェザロメーター（登録商標）内で曝露したサンプルの場合に、衝撃強度測定は、曝露された面がハンマーによって当てられるようにして実施した。それぞれの衝撃試験片を、4回の評価に付した。ここで引用した衝撃エネルギー値は、 $f t - l b s / in^2$ での8回の衝撃の平均値である。

【 0 1 0 6 】

脂肪族ポリエスチルフィルムは、下記の手順に従って製造した。押し出したペレットサンプルを、真空オーブン（モデル 5851、ナショナル・アプライアンス社、オレゴン州ポートランド）内で、70で 20 mmHg で乾燥窒素を僅かに入れて、約24時間乾燥させた。フィルム（20ミル）は、PHIフィルムプレス（モデル PW-220-X-X 1-4、パサデナ・ハイドローリック社(Pasadena Hydraulic Inc.)、カリフォルニア州）を使用して、圧縮成形によって製造した。除去した 6" × 6" 中心部分を有するステンレススチールの 7" × 7" × 20ミル厚さの片を、プレス金型として使用した。2枚の中実 7" × 7" × 10ミルステンレススチール板を、この金型のためのボトム及びトップとして機能させた。PHIフィルムプレスを 250 ~ 275 に予熱し、次いで1枚の 7" × 7" × 10ミルのステンレススチール板をフィルムプレスの上に置き、続いてカプトン(KAPTON)（登録商標）フィルム（アクティブ・インダストリーズ社(Active Industries)）の 7" × 7" × 5ミル片を置いた。7" × 7" × 20ミル厚さのシムを、カプトンフィルムの上に置き、続いて約 12.5 g のポリマー・ペレットを、金型の中心に向けて置いた。フィルムプレスの油圧ポンプを使用して、プレスのボトムとトップとを約 0.5" の接近にし、そしてこの位置で約 90 秒間維持した。油圧を開放することによって、プレスボトム板を下げ、そしてカプトンフィルムの他の 7" × 7" × 5ミル片を軟化したポリマー・ペレットの頂部上に置き、続いて他の 7" × 7" × 10ミルステンレススチール板を置いた。フィルムプレスの油圧ポンプを使用して、プレスのボトムとトップとを、圧力計が移動し始めるまで一緒にした。ポリマーを、プレス上で約 45 秒間加熱した。油圧ポンプを使用して、この板を、約 20,000 psi の圧力まで押し付けた。プレス板を加圧下で約 30 秒間保持し、そして油圧を開放することによって、ボトム板を下げた。金型を一対のプライヤーで把持し、そして氷水のバケツの中に約 25 秒間浸漬して、ポリマー及び金型を冷却した。板を分離し、そしてカプトンフィルムをポリマーから剥がして、6" × 6" × 20ミル（500ミクロン）厚さのポリマー・フィルムを得た。

【 0 1 0 7 】

他の方法で示さない限り、全ての重量 % は、ポリマー組成物の全重量基準である。他の方法で記載しない限り、CIE b は、初期値から、ウェザロメーター（登録商標）内で曝露した後に得られた値までの絶対変化を決定することによって計算した。

【 0 1 0 8 】

例 1 ~ 1 7

ポリエスチル組成物を、前記の一般的手順に従って製造した。これらの組成を、下記の表 I に記載する。圧縮成形ポリエスチルフィルム（20ミル）を、表 I 中の例 1 ~ 17 の脂肪族ポリエスチル組成物から製造し、そして前記の手順に従って、250 KJ 及び 2500 KJ の露出後のヘイズ % 並びに 2500 KJ の屋外曝露後の b 色について分析した。分析データを、表 I I に示す。

【 0 1 0 9 】

10

20

30

40

【表1】

表1

## 安定化脂肪族ポリエステル組成物

| 例番号 | 脂肪族<br>ポリエステル | チヌービン1577<br>(UV吸収剤) | サイアソルブUV-3638<br>(UV吸収剤) | チマッソルブ944<br>(HALS) |
|-----|---------------|----------------------|--------------------------|---------------------|
| 1   | 500 g         |                      |                          |                     |
| 2   | 497.5 g       | 2.5 g (0.5wt%)       |                          |                     |
| 3   | 495 g         | 5 g (1wt%)           |                          |                     |
| 4   | 490 g         | 10 g (2wt%)          |                          |                     |
| 5   | 497.5 g       |                      | 2.5 g (0.5wt%)           |                     |
| 6   | 495 g         |                      | 5 g (1wt%)               |                     |
| 7   | 490 g         |                      | 10 g (2wt%)              |                     |
| 8   | 499.75 g      |                      |                          | 250mg (0.05wt%)     |
| 9   | 499.5 g       |                      |                          | 500mg (0.1wt%)      |
| 10  | 498.75 g      |                      |                          | 1.25 g (0.25wt%)    |
| 11  | 497.5 g       |                      |                          | 2.5 g (0.5wt%)      |
| 12  | 497 g         | 2.5 g (0.5wt%)       |                          | 500mg (0.1wt%)      |
| 13  | 494.5 g       | 5 g (1wt%)           |                          | 500mg (0.1wt%)      |
| 14  | 489.5 g       | 10 g (2wt%)          |                          | 500mg (0.1wt%)      |
| 15  | 495 g         | 2.5 g (0.5wt%)       |                          | 2.5 g (0.5wt%)      |
| 16  | 492.5 g       | 5 g (1wt%)           |                          | 2.5 g (0.5wt%)      |
| 17  | 487.5 g       | 10 g (2wt%)          |                          | 2.5 g (0.5wt%)      |

(wt% = 重量%)

【0 1 1 0】

10

20

30

【表2】

表II

## 脂肪族ポリエステル組成物についての屋外曝露データ

| 例番号 | 2500KJの屋外曝露後の△b*色 | 250KJの露出後に測定したヘイズ% | 2500KJの露出後に測定したヘイズ% |
|-----|-------------------|--------------------|---------------------|
| 1   | 3.64              | 2.83               | 37.67               |
| 2   | 3.11              | 1.46               | 13.53               |
| 3   | 1.96              | 1.49               | 7.24                |
| 4   | 1.19              | 1.19               | 3.93                |
| 5   | 21.95             | 2.52               | 8.97                |
| 6   | 27.88             | 2.05               | 17.29               |
| 7   | 34.48             | 6.64               | 28.61               |
| 8   | 3.12              | 1.08               | 11.37               |
| 9   | 2.51              | 1.34               | 7.65                |
| 10  | 2.47              | 1.63               | 3.5                 |
| 11  | 1.03              | 1.53               | 2.53                |
| 12  | 1.04              | 2.1                | 4.46                |
| 13  | 0.13              | 1.26               | 2.29                |
| 14  | 0.45              | 2.25               | 2.48                |
| 15  | 0.19              | 1.51               | 2.47                |
| 16  | 0.04              | 1.21               | 2.09                |
| 17  | 0.3               | 1.42               | 2.57                |

10

20

30

40

50

## 【0111】

サイアソルブUV-3638、非トリアジンUV吸収剤を含有するサンプルは、非安定化脂肪族ポリエステルに対して、より高い黄色化速度を示した（例5～7対例1）。反対に、チヌービン1577、トリアジンUV吸収剤を含有するサンプルは、全ての濃度で、より低いヘイズ生成及び退色を示した（例2～4対例1）。チマッソルブ944、ポリマーセンタードアミン光安定剤（HALS）もまた、0.1重量パーセント（重量%）で減少したヘイズ生成及び退色を示し、そして0.25重量%及び0.5重量%で一層有効であった（例8～11対例1）。チマッソルブ944とチヌービン1577との組合せは、人工的屋外曝露の後に、色及びヘイズの最低値を示した（例12～17）。HALSと組合せたトリアジンUV吸収剤は、より高い含有量で単独で使用したときよりも低いヘイズ及び色を示した。トリアジンUV吸収剤及びHALSの両方を含有したサンプルのみが、2500KJの曝露後に延性のままであった。

## 【0112】

## 例18～49

チマッソルブ944によって安定化された脂肪族ポリエステル組成物から製造されたフィルムは、最初に、屋外曝露で改良された乳白色の視覚外観を有していた。初期の色及びヘイズへのホスファイトの影響を検査するために、下記の表IIに記載した通りの、トリアジンUV吸収剤、チヌービン（登録商標）1577、ウエ斯顿（登録商標）619（ペントエリスリトールジホスファイト）及び種々のHALSを含有する脂肪族ポリエステル組成物を、脂肪族ポリエステル中に添加物を含有する10重量%コンセントレートを脂肪族ポリエステルとバッグブレンドし、その後、標準的条件下で押し出すことによって

製造した。この安定化ポリエステル組成物を、標準的条件下でブラック及び屋外曝露試験片に射出成形し、次いで、キセノン・アークウェザロメーター（登録商標）内の屋外曝露に付した。この組成及び屋外曝露データを表Ⅲ及びⅤに示し、そして衝撃データを表Ⅴに示す。

【0113】

【表3】

表Ⅲ

安定化脂肪族ポリエステル組成物

10

| 例番号 | 脂肪族<br>ポリエステル | UV吸収剤          | HALS          | ホスファイト      |
|-----|---------------|----------------|---------------|-------------|
|     |               | チヌービン1577      | サイアソルブUV-3529 | ウエストン619G   |
| 18  | 1000g         | なし             | なし            | なし          |
| 19  | 997.5g        | 2.5g (0.25wt%) | なし            | なし          |
| 20  | 995g          | 5g (0.5wt%)    | なし            | なし          |
| 21  | 995g          | なし             | なし            | 5g (0.5wt%) |
| 22  | 990g          | 5g (0.5wt%)    | なし            | 5g (0.5wt%) |
| 23  | 995g          | なし             | 5g (0.5wt%)   | なし          |
| 24  | 990g          | 5g (0.5wt%)    | 5g (0.5wt%)   | なし          |
| 25  | 985g          | 5g (0.5wt%)    | 5g (0.5wt%)   | 5g (0.5wt%) |
| 26  | 990g          | なし             | 5g (0.5wt%)   | 5g (0.5wt%) |
|     |               | チヌービン1577      | チヌービン770      | ウエストン619G   |
| 27  | 995g          | なし             | 5g (0.5wt%)   | なし          |
| 28  | 990g          | 5g (0.5wt%)    | 5g (0.5wt%)   | なし          |
| 29  | 985g          | 5g (0.5wt%)    | 5g (0.5wt%)   | 5g (0.5wt%) |
| 30  | 990g          | なし             | 5g (0.5wt%)   | 5g (0.5wt%) |
|     |               | チヌービン1577      | サイアソルブUV-3581 | ウエストン619G   |
| 31  | 995g          | なし             | 5g (0.5wt%)   | なし          |
| 32  | 990g          | 5g (0.5wt%)    | 5g (0.5wt%)   | なし          |
| 33  | 985g          | 5g (0.5wt%)    | 5g (0.5wt%)   | 5g (0.5wt%) |
|     |               | チヌービン1577      | サイアソルブUV-3346 | ウエストン619G   |
| 34  | 995g          | なし             | 5g (0.5wt%)   | なし          |

20

30

【0114】

【表4】

表III (つづき)

| 例番号 | 脂肪族<br>ポリエステル | UV吸収剤       | HALS        | ホスファイト      |
|-----|---------------|-------------|-------------|-------------|
| 35  | 990g          | 5g (0.5wt%) | 5g (0.5wt%) | なし          |
| 36  | 985g          | 5g (0.5wt%) | 5g (0.5wt%) | 5g (0.5wt%) |
| 37  | 990g          | なし          | 5g (0.5wt%) | 5g (0.5wt%) |
|     |               | チヌービン1577   | チマソルブ119    | ウエストン619G   |
| 38  | 995g          | なし          | 5g (0.5wt%) | なし          |
| 39  | 990g          | 5g (0.5wt%) | 5g (0.5wt%) | なし          |
| 40  | 985g          | 5g (0.5wt%) | 5g (0.5wt%) | 5g (0.5wt%) |
| 41  | 990g          | なし          | 5g (0.5wt%) | 5g (0.5wt%) |
|     |               | チヌービン1577   | ロヴィライト94    | ウエストン619G   |
| 42  | 995g          | なし          | 5g (0.5wt%) | なし          |
| 43  | 990g          | 5g (0.5wt%) | 5g (0.5wt%) | なし          |
| 44  | 985g          | 5g (0.5wt%) | 5g (0.5wt%) | 5g (0.5wt%) |
| 45  | 990g          | なし          | 5g (0.5wt%) | 5g (0.5wt%) |
|     |               | チヌービン1577   | ロヴィライト76    | ウエストン619G   |
| 46  | 995g          | なし          | 5g (0.5wt%) | なし          |
| 47  | 990g          | 5g (0.5wt%) | 5g (0.5wt%) | なし          |
| 48  | 985g          | 5g (0.5wt%) | 5g (0.5wt%) | 5g (0.5wt%) |
| 49  | 990g          | なし          | 5g (0.5wt%) | 5g (0.5wt%) |

【0115】

ウエストン619及びサイアソルブ3529、サイアソルブ3346又はロヴィライト94を含有する、表I V中の例26、37及び45は、最初に、乳白色の外観を有しており、これらのサンプルについて更なる試験を実施しなかった。全てのサンプルに於いて、ホスファイトの添加によって、HALS及びトリアジンからなるブレンドの初期の色が改良された(例28対29;例32対33;例35対36;例39対40;例43対44及び例47対48)。しかしながら、HALSとホスファイトとの或る種の組合せは、例23対例26;例34対例37及び例42対例45によって示されるように、HALSを含有する組成物に比較して、より高いヘイズの初期レベルを示すことが見出された。反対に、HALS、ホスファイト及びトリアジンからなる例29、33、40及び48は、全て、屋外曝露の前及び後の両方で低い色及びヘイズを示し、そして屋外曝露後に延性のままであった。

【0116】

10

20

30

40

【表5】

表IV

## 脂肪族ポリエステル組成物についての、色及びヘイズ屋外曝露データ

| 例番号 | 初期ヘイズ%<br>測定値 | 3000KJの露出後の<br>ヘイズ%測定値 | 初期CIE<br>b* 色 | 3000KJの露出後の<br>b* 色測定値 |
|-----|---------------|------------------------|---------------|------------------------|
| 18  | 1.43          | 3.74                   | 2.34          | 3.65                   |
| 19  | 0.42          | 2.27                   | 7.27          | 7.71                   |
| 20  | 0.56          | 2.13                   | 10.95         | 9.76                   |
| 21  | 0.84          | 5.80                   | 0.73          | 2.69                   |
| 22  | 2.92          | 5.18                   | 1.35          | 2.94                   |
| 23  | 1.78          | 3.45                   | 6.89          | 8.61                   |
| 24  | 1.13          | 2.25                   | 3.09          | 6.44                   |
| 25  | 3.26          | 4.58                   | 8.18          | 7.61                   |
| 26  | 2.73          | 非常にくもり<br>(目視)         | 3.66          | 測定せず                   |
| 27  | 0.88          | 2.07                   | 3.79          | 5.98                   |
| 28  | 1.17          | 2.09                   | 10.02         | 8.0                    |
| 29  | 1.03          | 1.8                    | 7.5           | 6.45                   |
| 30  | 1.16          | 1.97                   | 2.01          | 5.74                   |
| 31  | 0.93          | 2.4                    | 3.69          | 6.77                   |
| 32  | 1.16          | 1.59                   | 10.43         | 8.46                   |
| 33  | 2.48          | 3.68                   | 6.67          | 6.14                   |
| 34  | 0.78          | 2.31                   | 3.5           | 6.62                   |
| 35  | 1.13          | 1.47                   | 10.54         | 8.11                   |
| 36  | 8.01          | 非常にくもり<br>(目視)         | 8.91          | 測定せず                   |
| 37  | 2.26          | 非常にくもり<br>(目視)         | 2.58          | 測定せず                   |
| 38  | 0.68          | 1.39                   | 3.1           | 6.72                   |
| 39  | 1.16          | 1.85                   | 9.46          | 8.38                   |
| 40  | 1.69          | 2.64                   | 5.91          | 5.45                   |

10

20

30

【0117】

【表6】

表IV (つづき)

| 例番号 | 初期ヘイズ%<br>測定値 | 3000KJの露出後の<br>ヘイズ%測定値 | 初期CIE<br>b* 色 | 3000KJの露出後の<br>b* 色測定値 |
|-----|---------------|------------------------|---------------|------------------------|
| 41  | 3.81          | 3.80                   | 4.0           | 5.61                   |
| 42  | 2.60          | 3.78                   | 5.81          | 8.17                   |
| 43  | 1.83          | 2.55                   | 12.26         | 9.85                   |
| 44  | 10.89         | 非常にくもり<br>(目視)         | 9.29          | 測定せず                   |
| 45  | 9.32          | 非常にくもり<br>(目視)         | 4.12          | 測定せず                   |
| 46  | 0.73          | 1.66                   | 3.87          | 6.63                   |
| 47  | 1.13          | 1.92                   | 10.81         | 8.39                   |
| 48  | 1.71          | 2.44                   | 8.17          | 6.8                    |
| 49  | 1.86          | 2.10                   | 2.44          | 5.74                   |

10

20

【0118】

【表7】

表V

## 脂肪族ポリエステル組成物についての衝撃屋外曝露データ

| 例番号 | 初期衝撃強度<br>(ft-lbt/in <sup>2</sup> ) | 3000KJ後の衝撃<br>(ft-lbt/in <sup>2</sup> ) |
|-----|-------------------------------------|---|
| 18  | 12.6                                | 0.46                                    |
| 19  | 12.6                                | 0.44                                    |
| 20  | 12.9                                | 0.55                                    |
| 21  | 13.0                                | 0.22                                    |
| 22  | 13.1                                | 0.28                                    |
| 23  | 12.8                                | 11.5                                    |
| 24  | 13.1                                | 13.2                                    |
| 25  | 12.9                                | 12.6                                    |
| 27  | 12.8                                | 13.1                                    |
| 28  | 13.0                                | 13.4                                    |

30

40

【0119】

【表8】

表V (つづき)

| 例番号 | 初期衝撃強度<br>(ft-lbt/in <sup>2</sup> ) | 3000KJ後の衝撃<br>(ft-lbt/in <sup>2</sup> ) |
|-----|-------------------------------------|---|
| 29  | 12.8                                | 13.1                                    |
| 30  | 12.9                                | 12.8                                    |
| 31  | 12.6                                | 13.2                                    |
| 32  | 12.7                                | 13.1                                    |
| 33  | 12.7                                | 13.3                                    |
| 34  | 12.7                                | 11.9                                    |
| 35  | 13.0                                | 13.1                                    |
| 38  | 12.6                                | 13.4                                    |
| 39  | 12.5                                | 12.9                                    |
| 40  | 13.2                                | 12.4                                    |
| 41  | 12.9                                | 11.7                                    |
| 42  | 12.6                                | 10.1                                    |
| 43  | 12.6                                | 13.3                                    |
| 46  | 12.4                                | 11.7                                    |
| 47  | 12.6                                | 13.3                                    |
| 48  | 12.7                                | 13.8                                    |
| 49  | 12.6                                | 13.5                                    |

10

20

30

【0120】

H A L S 又はトリアジンを含有する例 18、19 及び 23 は、人工的屋外曝露の際に、脆性になり、そして衝撃強度を失った。H A L S 及びトリアジンを含有する全ての例は、人工的屋外曝露の際に衝撃強度を保有していた。

## 【国際調査報告】

|   |  |  |  |                                     |
|---|--|--|--|-------------------------------------|
| INTERNATIONAL PCT/US2005/040283   |  |  |  |                                     |
| International application No<br>PCT/US2005/040283   |  |  |  | /                                   |
| A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER<br>C08K5/3435 C08K5/3492 C08K5/524 C08K5/00 C08G63/199  |  |  |  |                                     |
| According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPO   |  |  |  |                                     |
| B. FIELDS SEARCHED<br>Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)<br>C08K C08G  |  |  |  |                                     |
| Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched   |  |  |  |                                     |
| Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)<br>EPO-Internal, WPI Data, PAJ   |  |  |  |                                     |
| C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT  |  |  |  |                                     |
| Category  | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages   |  |  | Relevant to claim No.               |
| P, X  | WO 2005/061580 A (EASTMAN CHEMICAL COMPANY) 7 July 2005 (2005-07-07) paragraphs [0030], [0059], [0072], [0074]; claims 1,12,14-18; examples 25,30-32; table V<br>-----           |  |  | 1-35                                |
| X   | EP 1 302 309 A (GENERAL ELECTRIC COMPANY) 16 April 2003 (2003-04-16)<br>paragraphs [0007] - [0010], [0016], [0021] - [0031], [0101]; claim 1; examples 1,3,5-7; table 1<br>----- |  |  | 1,5-9,<br>11-15,<br>23-26,<br>31-35 |
| Y   | US 4 524 165 A (MUSSER ET AL) 18 June 1985 (1985-06-18)<br>column 5, line 66 - column 7, line 15; claims 1-3; examples 39,40,42,43,50<br>-----                                   |  |  | 1-35                                |
|   |  |  |  | -/-                                 |
| <input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C.  |  | <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.         |  |                                     |
| * Special categories of cited documents :<br>*A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance<br>*E* earlier document but published on or after the international filing date<br>*L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)<br>*O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means<br>*P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed<br>*T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention<br>*X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone<br>*Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.<br>*&* document member of the same patent family |  |  |  |                                     |
| Date of the actual completion of the international search<br><br>20 February 2006   |  | Date of mailing of the international search report<br><br>27/02/2006 |  |                                     |
| Name and mailing address of the ISA/<br>European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2<br>NL- 2280 HV Rijswijk<br>Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 81 651 epo nl,<br>Fax: (+31-70) 340-3016  |  | Authorized officer<br><br>Dury, O                                    |  |                                     |



INTERNATIONAL PCT/US2005/040283 T

International application No  
PCT/US2005/040283

2

## C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages   | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------|
| Y         | US 6 136 441 A (MACGREGOR ET AL)<br>24 October 2000 (2000-10-24)<br>claims 1,11,18<br>column 2, line 62 - column 5, line 13<br>column 5, line 40 - column 7, line 12;<br>table 6<br>-----<br>US 6 051 164 A (SAMUELS ET AL)<br>18 April 2000 (2000-04-18)<br>claims 1,7,8,12,18<br>column 9, lines 3-46<br>column 10, lines 11-28<br>column 10, lines 32-36,44,45<br>----- | 1-35                  |
| Y         |  | 1-35                  |

1

## INTERNATIONAL PCT/US2005/040283 IT

Information on patent family members

International application No  
PCT/US2005/040283

3

| Patent document cited in search report |   | Publication date |      | Patent family member(s) |  | Publication date |
|--|---|------------------|------|-------------------------|--|------------------|
| WO 2005061580                          | A | 07-07-2005       | NONE |                         |  |                  |
| EP 1302309                             | A | 16-04-2003       | JP   | 2003182013 A            |  | 03-07-2003       |
| US 4524165                             | A | 18-06-1985       | NONE |                         |  |                  |
| US 6136441                             | A | 24-10-2000       | EP   | 1087870 A1              |  | 04-04-2001       |
|  |   |                  | JP   | 2002507504 T            |  | 12-03-2002       |
|  |   |                  | WO   | 9948685 A1              |  | 30-09-1999       |
| US 6051164                             | A | 18-04-2000       | AT   | 282061 T                |  | 15-11-2004       |
|  |   |                  | AU   | 740494 B2               |  | 08-11-2001       |
|  |   |                  | AU   | 3215399 A               |  | 23-11-1999       |
|  |   |                  | BR   | 9910062 A               |  | 26-12-2000       |
|  |   |                  | CA   | 2330422 A1              |  | 11-11-1999       |
|  |   |                  | CN   | 1299391 A               |  | 13-06-2001       |
|  |   |                  | DE   | 69921806 D1             |  | 16-12-2004       |
|  |   |                  | DE   | 69921806 T2             |  | 17-03-2005       |
|  |   |                  | EP   | 1080147 A1              |  | 07-03-2001       |
|  |   |                  | ES   | 2233030 T3              |  | 01-06-2005       |
|  |   |                  | JP   | 2002513832 T            |  | 14-05-2002       |
|  |   |                  | NO   | 20005413 A              |  | 27-10-2000       |
|  |   |                  | PT   | 1080147 T               |  | 31-03-2005       |
|  |   |                  | RU   | 2222560 C2              |  | 27-01-2004       |
|  |   |                  | TW   | 555798 B                |  | 01-10-2003       |
|  |   |                  | WO   | 9957189 A1              |  | 11-11-1999       |
|  |   |                  | ZA   | 9903008 A               |  | 29-10-1999       |

---

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LS,MW,MZ,NA,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM),EP(AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,NL,PL,PT,RO,SE,SI,SK,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KM,KN,KP,KR,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,LY,MA,MD,MG,MK,MN,MW,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PG,PH,PL,PT,RO,RU,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,SY,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,UZ,VC,VN,YU,ZA,ZM,ZW

(72)発明者 アイリック, ゲザー, ジュニア

アメリカ合衆国, テネシー 37615, グレイ, サウス パトリック ドライブ 113

F ターム(参考) 4J002 CF031 EU086 EU187 EW048 FD038 FD046 FD057