

(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2009-527586

(P2009-527586A)

(43) 公表日 平成21年7月30日(2009.7.30)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>CO8L 69/00 (2006.01)</b>	CO8L 69/00	4H028
<b>CO8L 101/00 (2006.01)</b>	CO8L 101/00	4J002
<b>CO8K 5/521 (2006.01)</b>	CO8K 5/521	
<b>CO9K 21/12 (2006.01)</b>	CO9K 21/12	

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 43 頁)

(21) 出願番号	特願2008-554753 (P2008-554753)	(71) 出願人	396023948 チバ ホールディング インコーポレーテッド Ciba Holding Inc. スイス国, 4057 バーゼル, クリベツクシュトラーセ 141
(86) (22) 出願日	平成19年2月12日 (2007.2.12)	(74) 代理人	100068618 弁理士 粁 経夫
(85) 翻訳文提出日	平成20年10月14日 (2008.10.14)	(74) 代理人	100104145 弁理士 宮崎 嘉夫
(86) 国際出願番号	PCT/EP2007/051315	(74) 代理人	100104385 弁理士 加藤 勉
(87) 国際公開番号	W02007/096260	(74) 代理人	100156889 弁理士 小山 京子
(87) 国際公開日	平成19年8月30日 (2007.8.30)		
(31) 優先権主張番号	06110190.3		
(32) 優先日	平成18年2月21日 (2006.2.21)		
(33) 優先権主張国	欧州特許庁 (EP)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 芳香族リン酸エステル難燃剤組成物

(57) 【要約】

【課題】 芳香族リン酸エステル難燃剤組成物

【解決手段】 本発明は、少なくとも一つの芳香族リン酸エステル塩がポリカーボネート基材中に存在する難燃剤組成物に関する。該組成物は、光透過性などのポリカーボネートの優れた機械特性、化学特性及び熱的特性を維持しながら、UL-94（保険業者研究所対象94）による望ましいV-0等級、並びに、関連した試験方法における他の優良格付けを実現する。

【選択図】 なし

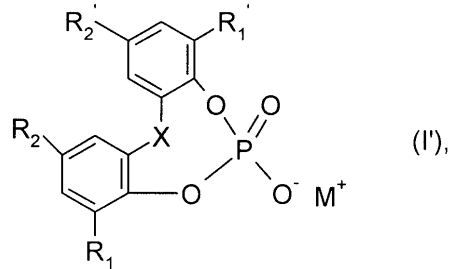


$M^{n+}$ は1つの正電荷を有するカチオンを表す；  
で表される少なくとも一つの芳香族リン酸エステル塩（I）  
を含む、請求項1記載の組成物。

【請求項3】

成分a)として、式

【化3】



10

（式中、

Xは炭素原子数1乃至4のアルキレン基を表し；

$R_1$ 及び $R_2$ の一つは水素原子、メチル基又は第三ブチル基を表し、そしてもう一つは第三ブチル基を表し；そして

$R_1'$ 及び $R_2'$ は $R_1$ 及び $R_2$ として定義されたものと同じものを表し；そして

$M^{n+}$ は1つの正電荷を有するカチオンを表す。）

20

で表される少なくとも一つの芳香族リン酸エステル塩を含む、請求項1記載の組成物。

【請求項4】

成分a)として、前記式（I'）中、

Xはメチレン基を表し；

$R_1$ 及び $R_2$ の一つはメチル基又は第三ブチル基を表し；そしてもう一つは第三ブチル基を表し；そして

$R_1'$ 及び $R_2'$ は $R_1$ 及び $R_2$ として定義されたものと同じものを表し；そして

$M^{n+}$ は1つの正電荷を有するカチオンを表す、

で表される少なくとも一つの芳香族リン酸エステル塩（I'）

を含む、請求項1記載の組成物。

30

【請求項5】

成分a)として、前記式（I'）中、

Xはメチレン基を表し；

$R_1$ 及び $R_2$ 及び $R_1'$ 及び $R_2'$ は第三ブチル基を表し；そして

$M^{n+}$ はナトリウムイオン又はカリウムイオンを表す、

で表される少なくとも一つの芳香族リン酸エステル塩（I'）

を含む、請求項1記載の組成物。

【請求項6】

更なる成分としてアンチドリップ剤を更に含む、請求項1記載の組成物。

【請求項7】

40

ポリマー安定剤及び更なる難燃剤からなる群から選択される更なる添加剤を更に含む、請求項1記載の組成物。

【請求項8】

ポリカーボネート又はポリカーボネートブレンドを含むポリマー基材に難燃性を付与方法であって、請求項1記載の式（I）で表される少なくとも一つの芳香族リン酸エステル塩を添加することを含む方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、少なくとも一つの芳香族リン酸エステル塩とポリカーボネートを含む難燃剤

50

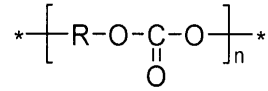
組成物、並びに、ポリカーボネートと少なくとも一つの芳香族リン酸エステル塩を含むポリマー基材に対して難燃性を付与する方法に関する。

【背景技術】

【0002】

ポリカーボネートは非常に強靱で、突出した透明性、幾つかのポリマーとの優れた相溶性、そして高い加熱耐変形性を有する熱可塑性ポリマーである。ポリカーボネートは一般式

【化1】



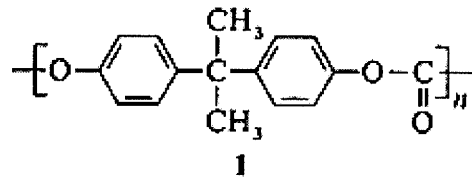
10

に対応する。

【0003】

経済的に最も重要なポリカーボネートは、ビスフェノールAポリカーボネート[24936-68-3](BPA-PC)とも呼ばれる、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパンポリカーボネート(1)である。

【化2】



20

参照 . Ullmann's Encyclopaedia of Industrial Chemistry, On-Line Edition, Wiley-VCH, DOI: 10.1002/14356007.a21\_207, 及び Polycarbonate を入力, Roempp On-line, www.roempp.com.

【0004】

ポリカーボネートの機械特性、化学特性及び熱的特性を改善する為の様々な添加剤が知られている。フッ化炭素末端のポリカーボネートは、有機材料の、好ましくはポリカーボネート、ポリエステル、ポリアクリレート又はポリメタクリレート、又はそれらの混合物、ブレンド又はアロイに対する、表面エネルギー低下剤、すなわち“表面改質剤”などの様々な技術的応用に対して有用である。表面エネルギーを減少させたポリマーは、例えば“洗浄容易”、“セルフクリーニング”、“耐汚れ性”、“ソイルリリース”、“耐落書き性”、“耐油性”、“耐溶剤性”、“耐薬品性”、“自己潤滑性”、“耐スクラッチ性”、“低水分吸収性”そして“疎水性”表面といった望ましい特性を保有する。特定の有用なフッ化炭素末端のポリカーボネートの製造は、国際出願 PCT/EP 2004/053331 号明細書に記載されている。

30

【0005】

難燃剤は、ポリマーの難燃特性を増強する為に(合成又は天然の)ポリマー材料に添加される。それらの組成によって、難燃剤は固体相、液体相、或いはガス相で作用し、化学的には、例えば窒素遊離による泡立ちとして、及び/又は物理的には、例えば泡の適用範囲を生成することによって作用する。難燃剤は、特に燃焼プロセスの段階において、例えば燃焼中、分解中、発火中又は燃焼の拡大中に妨げる。

40

【0006】

難燃剤のポリカーボネートへの添加は既知である; J. Troitzsche, Plastics Flammability Handbook, 第3版, Hanser Publishers, Munich 2004年, 158-172頁 (ISBN 3-446-21308-2) 参照。

【0007】

ポリカーボネート難燃剤組成物へのリン酸エステルの添加は既知である; 米国特許第 6

50

、756、433号明細書参照。

【0008】

試料厚さが1.6mmより薄いか又は同じであることが要求される用途において、UL-94（保険業者研究所対象94）によるV-0の難燃性は、ポリテトラフルオロエチレンなどの所謂アンチドリッピング剤の添加によって得られる。テトラフルオロエチレンポリマーを含むポリカーボネート難燃剤組成物への芳香族リン酸エステル塩の添加は、米国特許第4,649,168号明細書に記載されている。難燃剤への他の助添加剤は、例えばハロアリアルホスフェート（米国特許第5,478,874号明細書参照）又はグアニジン塩（米国特許第6,518,340号公報参照）などが提案されている。

【0009】

異なる構造を有するポリシロキサンの添加は、様々な文献に提案されている（米国特許第6,660,787号明細書、米国特許第6,727,302号明細書、又は米国特許第6,730,720号明細書参照）。これら添加剤の問題点は、実際にはV-0等級に到達させる為に難燃剤の濃度を増加させねばならないことであり、それは、ポリカーボネートの機械特性、化学特性及び熱的特性に対して有害となる。

【特許文献1】国際出願PCT/EP2004/053331号明細書

【特許文献2】米国特許第6,756,433号明細書

【特許文献3】米国特許第4,649,168号明細書

【特許文献4】米国特許第5,478,874号明細書

【特許文献5】米国特許第6,518,340号明細書

【特許文献6】米国特許第6,660,787号明細書

【特許文献7】米国特許第6,727,302号明細書

【特許文献8】米国特許第6,730,720号明細書

【非特許文献1】Ullmann's Encyclopaedia of Industrial Chemistry, On-Line Edition, Wiley-VCH, DOI: 10.1002/14356007.a21\_207, 及び Polycarbonate を入力, Roempp On-line, www.roempp.com

【非特許文献2】J. Troitzsche, Plastics Flammability Handbook, 第3版, Hanser Publishers, Munich 2004年, 158-172頁 (ISBN 3-446-21308-2)

【発明の開示】

【課題を解決するための手段】

【0010】

従って、本発明は、ポリカーボネートにおいて難燃剤として低濃度で適応可能な、適当な添加剤を見出すことに関する。驚くべきことに、所謂核形成剤として使用可能な選択された芳香族リン酸エステル塩が、低濃度であっても特に適する添加剤であることが見出された。核形成剤は、結晶化温度を上昇させること、及び/又は、結晶化速度を促進させること、及び/又は、球晶径を減少させそして流動分布を狭めることによって、結晶性ポリマーの結晶化特性を制御するポリマー添加剤である。

【0011】

他の第一選択の難燃剤のように、選択された芳香族リン酸エステル塩はポリカーボネート中に少量で存在し、そして低投薬レベルのために、ポリマー力学及び他の特性に顕著な悪影響を与えない。

【0012】

本発明は組成物、特に

a) 式

10

20

30

40

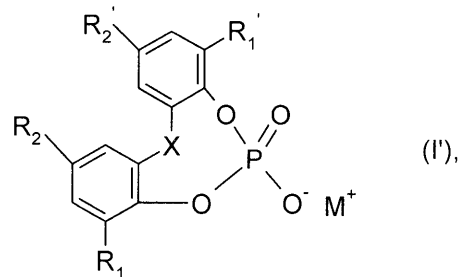


を含む、難燃剤組成物に関する。

【0014】

特に好ましい実施態様は組成物、特に、  
成分 a ) として、式

【化5】



10

(式中、

X は炭素原子数 1 乃至 4 のアルキレン基を表し；

R<sub>1</sub> 及び R<sub>2</sub> の一つは水素原子、メチル基又は第三ブチル基を表し、そしてもう一つは第三ブチル基を表し；そして

R<sub>1</sub>' 及び R<sub>2</sub>' は R<sub>1</sub> 及び R<sub>2</sub> として定義されたものと同じものを表し；そして

M<sup>n+</sup> は 1 つの正電荷を有するカチオンを表す。)

で表される少なくとも一つの芳香族リン酸エステル塩を含む、難燃剤組成物に関する。

20

【0015】

非常に好ましい実施態様は組成物、特に、

成分 a ) として、前記式 ( I ' ) 中、

X はメチレン基を表し；

R<sub>1</sub> 及び R<sub>2</sub> の一つはメチル基又は第三ブチル基を表し；そしてもう一つは第三ブチル基を表し；そして

R<sub>1</sub>' 及び R<sub>2</sub>' は R<sub>1</sub> 及び R<sub>2</sub> として定義されたものと同じものを表し；そして

M<sup>n+</sup> は 1 つの正電荷を有するカチオンを表す、

で表される少なくとも一つの芳香族リン酸エステル塩 ( I ' )

を含む、難燃剤組成物に関する。

30

【0016】

最も好ましいものは、

成分 a ) として、前記式 ( I ' ) 中、

X はメチレン基を表し；

R<sub>1</sub> 及び R<sub>2</sub> 及び R<sub>1</sub>' 及び R<sub>2</sub>' は第三ブチル基を表し；そして

M<sup>n+</sup> はナトリウムイオン又はカリウムイオンを表す、

で表される少なくとも一つの芳香族リン酸エステル塩 ( I ' )

を含む組成物である。

【発明の効果】

【0017】

40

本発明の組成物は、ポリカーボネートの優れた機械特性、化学特性及び熱的特性を維持しながら、UL-94 ( 保険業者研究所対象 94 ) による望ましい V-0 等級、並びに、関連する試験法において別の優れた等級を獲得する。

【発明を実施するための最良の形態】

【0018】

上述した該組成物は、以下の成分を含む：

成分 a )

芳香族リン酸エステル塩という用語は、好ましくは金属塩、例えばアルカリ金属塩 ( n = 1 ) 又はアルカリ土類金属塩、例えばナトリウム、カリウム、カルシウム塩をその範囲に含む。

50

## 【0019】

他の実施態様によれば、塩という用語は非金属の塩 ( $n = 1$ )、例えばアンモニウム、(炭素原子数 1 乃至 22 のアルキル)<sub>1-4</sub>アンモニウム、又は (2 - ヒドロキシエチル)<sub>1-4</sub>アンモニウム、例えばテトラメチルアンモニウム、テトラエチルアンモニウム又は 2 - ヒドロキシエチルトリメチルアンモニウム塩を含む。

## 【0020】

従って、上記式におけるカチオン  $M^+$  の定義は、アルカリ金属原子、例えばナトリウム又はカリウムイオン、アンモニウムイオン又はアミンから形成されたカチオン、例えば (炭素原子数 1 乃至 22 のアルキル)<sub>1-4</sub>アンモニウム又は (2 - ヒドロキシエチル)<sub>1-4</sub>アンモニウム、例えば、テトラメチルアンモニウム、テトラエチルアンモニウム、又は 2 - ヒドロキシエチルトリメチルアンモニウムイオンをその範囲に含む。

10

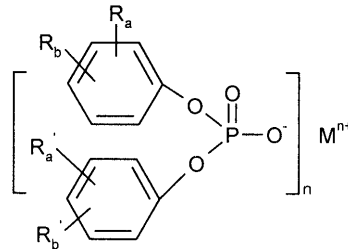
## 【0021】

芳香族リン酸エステル (I) において、 $R_1$  及び  $R_2$ 、並びに対応する  $R_1'$  及び  $R_2'$  に存在する炭素原子数 1 乃至 8 のアルキル基は、好ましくはメチル基、エチル基、 $n$ -プロピル基、イソプロピル基、 $n$ -ブチル基、イソブチル基又は第三ブチル基である。

## 【0022】

化合物 (I) は下記構造式で表される：

## 【化 6】



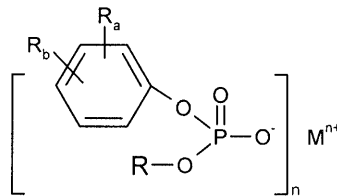
20

式中、 $R_a$  は水素原子又は炭素原子数 1 乃至 8 のアルキル基を表し、 $R_b$  は炭素原子数 1 乃至 8 のアルキル基を表し、そして  $R_a'$  及び  $R_b'$  は  $R_a$  及び  $R_b$  で定義されたものと同じものを表し、 $n$  は 1 又は 2 を表し、そして、 $n$  が 1 を表す場合には  $M^{n+}$  は 1 つの正電荷を有するカチオンを表し、或いは  $n$  が 2 を表す場合には  $M^{n+}$  は 2 つの正電荷を有するカチオンを表す；

30

## 【0023】

## 【化 7】

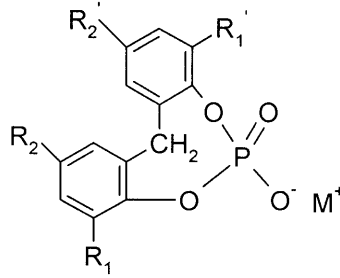


式中、 $R$  は炭素原子数 1 乃至 8 のアルキル基を表し、 $R_a$  は水素原子又は炭素原子数 1 乃至 8 のアルキル基を表し、 $R_b$  は炭素原子数 1 乃至 8 のアルキル基を表し、 $n$  は 1 又は 2 を表し、好ましくは 1 であり、そして、 $n$  が 1 を表す場合には  $M^{n+}$  は 1 つの正電荷を有するカチオンを表し、或いは  $n$  が 2 を表す場合には  $M^{n+}$  は 2 つの正電荷を有するカチオンを表す；

40

## 【0024】

## 【化 8】



式中、

$R_1$  及び  $R_2$  の一つが水素原子、メチル基又は第三ブチル基を表し、そしてもう一つが第三ブチル基を表し；そして

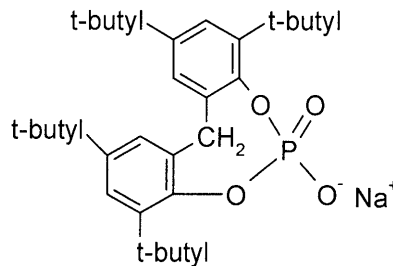
$R_1'$  及び  $R_2'$  は  $R_1$  及び  $R_2$  として定義されたものと同じものを表し；そして

$M^+$  は 1 つの正電荷を有するカチオン、例えばナトリウム又はカリウムイオンを表す；

## 【 0 0 2 5】

特に化合物：

## 【化 9】



である。

## 【 0 0 2 6】

芳香族リン酸エステル及びそれらの塩は既知の化合物である。これらは既知の方法で製造可能である。式 I' で表される芳香族リン酸エステルの製造方法は欧州特許出願公開第 1 2 0 9 1 9 0 号明細書に記載されている。

## 【 0 0 2 7】

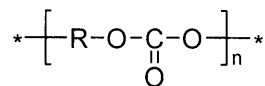
成分 b )

ポリカーボネート又はポリカーボネートブレンドを含むポリマー基材は、任意のグレードのものであり得、任意の既知の方法によって製造され得る。ポリマー基材という用語は、任意のポリカーボネートホモポリマー又はそれらのコポリマー、例えばポリエステルとのコポリマーをその範囲に含む。

## 【 0 0 2 8】

ポリカーボネートは一般式：

## 【化 1 0】



に対応する熱可塑性ポリマーである。

## 【 0 0 2 9】

ポリカーボネートは、界面プロセスによって又は溶融プロセス（触媒エステル交換）によって得られる。ポリカーボネートは分枝状又は線状の構造であり得、任意の官能性置換基を含み得る。ポリカーボネートコポリマー及びポリカーボネートブレンドもまた、本発明の範囲内である。ポリカーボネートという用語は、他の熱可塑性プラスチックとのコポリマー及びブレンドを含めたものとして解釈されるべきである。ポリカーボネートの製造方法は、例えば、米国特許第 3, 0 3 0, 3 3 1 号明細書；米国特許第 3, 1 6 9, 1 2 1 号明細書；米国特許第 4, 1 3 0, 4 5 8 号明細書、米国特許第 4, 2 6 3, 2 0 1

10

20

30

40

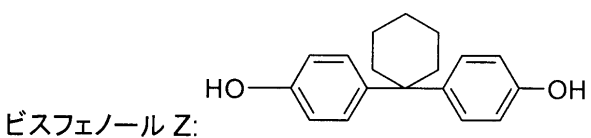
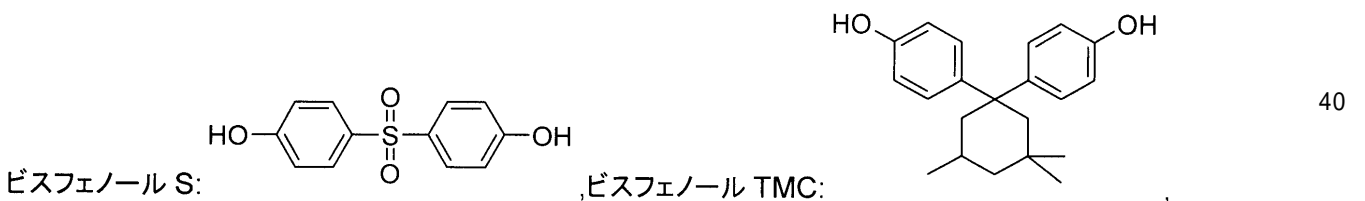
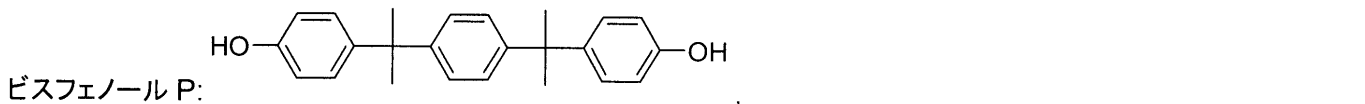
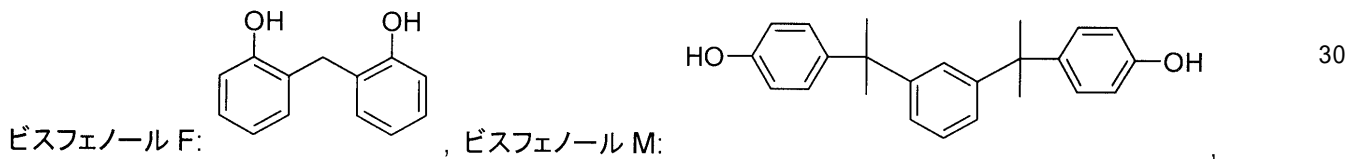
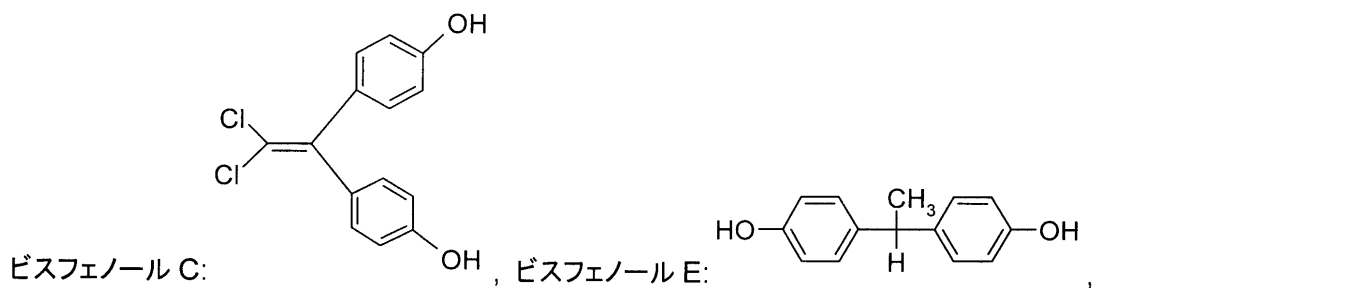
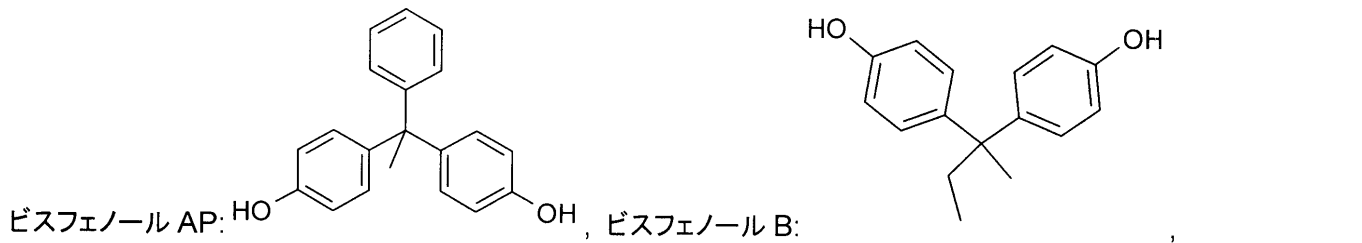
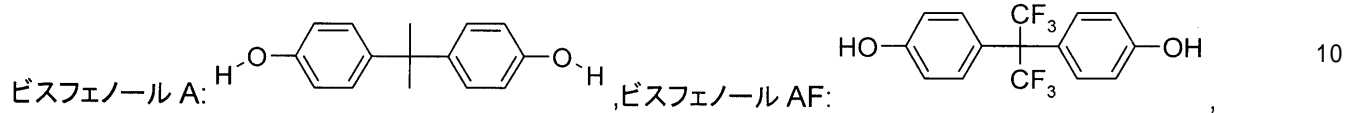
50

号明細書；米国特許第 4, 286, 083 号明細書；米国特許第 4, 552, 704 号明細書；米国特許第 5, 210, 268 号明細書及び米国特許第 5, 606, 007 号明細書などによって既知である。二種以上の異なる分子量を有するポリカーボネートの組み合わせが使用され得る。

## 【0030】

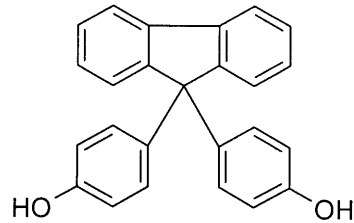
好ましいものは、ジフェノール、例えばビスフェノール A のカーボネート源との反応によって得られ得るポリカーボネートである。適当なジフェノールの例は：

## 【化 1 1】



4, 4' - (2 - ノルボルニリデン) ビス(2, 6 - ジクロロフェノール)；又はフルオレン - 9 - ビスフェノール：

## 【化 1 2】



である。

## 【 0 0 3 1】

10

該カーボネート源はカルボニルハライド、カーボネートエステル又はハロホルメートであり得る。適当なカーボネートハライドは、ホスゲン又はカルボニルブロミドである。適当なカーボネートエステルは、ジアルキルカーボネート、例えばジメチル - 又はジエチルカーボネート、ジフェニルカーボネート、フェニル - アルキルフェニルカーボネート、例えばフェニル - トリルカーボネート、ジアルキルカーボネート、例えばジメチル - 又はジエチルカーボネート、ジ - (ハロフェニル)カーボネート、例えばジ - (クロロフェニル)カーボネート、ジ - (プロモフェニル)カーボネート、ジ - (トリクロロフェニル)カーボネート又はジ(トリクロロフェニル)カーボネート、ジ - (アルキルフェニル)カーボネート、例えばジ - トリルカーボネート、ナフチルカーボネート、ジクロロナフチルカーボネートその他などである。

20

## 【 0 0 3 2】

他のプロセスの詳細、例えば分子量調整剤、酸受容体、触媒の添加は、上記文献に開示されている。

## 【 0 0 3 3】

更なる実施態様に基づいて、ポリカーボネート又はポリカーボネートブレンドを含むポリマー基材は、そこにはイソフタレート/テレフタレート - レゾルシノールセグメントが存在するポリカーボネートコポリマーである。そのようなポリカーボネートは市販されており、例えば、Lexan (登録商標) SLX (ゼネラル エレクトリック社、USA) である。成分 b) の他のポリマー基材は、混合物形態又はコポリマー形態で、例えばポリオレフィン、ポリスチレン、ポリエステル、ポリエーテル、ポリアミド、ポリ(メタ)アクリレート、熱可塑性ポリウレタン、ポリスルホン、ポリアセタール及びPVCなどの様々な合成ポリマーを、適当な親和性剤と共に、更に含み得る。例えば、ポリマー基材は、ポリオレフィン、熱可塑性ポリウレタン、スチレンポリマー及びそれらのコポリマーからなる樹脂群から選択される熱可塑性ポリマーを更に含み得る。具体的な実施態様としては、ポリプロピレン (PP)、ポリエチレン (PE)、ポリアミド (PA)、ポリブチレンテレフタレート (PBT)、ポリエチレンテレフタレート (PET)、グリコール変性ポリシクロヘキシレンメチレンテレフタレート (PCTG)、ポリスルホン (PSU)、ポリメチルメタクリレート (PMMA)、熱可塑性ポリウレタン (TPU)、アクリロニトリル - ブタジエン - スチレン (ABS)、アクリロニトリル - スチレン - アクリル酸エステル (ASA)、アクリロニトリル - エチレン - プロピレン - スチレン (AES)、スチレン - マレイン酸無水物 (SMA) 又は高衝撃ポリスチレン (HIPS) が挙げられる。

30

40

## 【 0 0 3 4】

適当な合成ポリマーの一覧は以下である：

1. モノオレフィン及びジオレフィンのポリマー、例えばポリプロピレン、ポリイソブチレン、ポリブテ - 1 - エン、ポリ - 4 - メチルペンテ - 1 - エン、ポリビニルシクロヘキサン、ポリイソプレン又はポリブタジエン、並びにシクロオレフィン、例えばシクロペンテン又はノルボルネンのポリマー、ポリエチレン (所望により架橋され得る)、例えば高密度ポリエチレン (HDPE)、高密度及び高分子量ポリエチレン (HDPE - HMW)、高密度及び超高分子量ポリエチレン (HDPE - UHMW)、中密度ポリエチレン (MDPE)、低密度ポリエチレン (LDPE)、線状低密度ポリエチレン (LLDPE)、

50

(VLDPE)及び(ULDPE)。

【0035】

ポリオレフィン、すなわち前の段落において例示したモノオレフィンのポリマー、望ましくはポリエチレン及びポリプロピレンは、異なる方法によりそしてとりわけ以下の方法により調製され得る：

a) ラジカル重合(通常は高圧下及び高温において)。

b) 通常、周期表のIVb、Vb、VIb又はVII群の金属の一種又はそれ以上を含む触媒を使用した触媒重合。これらの金属は通常、一つ又はそれ以上の配位子、典型的には -又は -配位し得るオキシド、ハロゲン化物、アルコレート、エステル、エーテル、アミン、アルキル、アルケニル及び/又はアリールを有する。これらの金属錯体は遊離形態であるか、又は基材に、典型的には活性化塩化マグネシウム、チタン(III)クロリド、アルミナ又は酸化ケイ素に固定され得る。これらの触媒は、重合媒体中に可溶又は不溶であり得る。該触媒は重合においてそのまま使用され得、又はさらなる活性剤、典型的には金属アルキル、金属ヒドリド、金属アルキルハライド、金属アルキルオキシド又は金属アルキルオキサンであって、前記金属が周期表のIa、IIa及び/又はIIIa群の元素であるものが使用され得る。活性剤は、他のエステル、エーテル、アミン又はシリルエーテル基で都合良く変性され得る。これらの触媒系は通常、フィリップス、スタンダードオイルインディアナ、チグラ(ナッタ)、TNZ(デュボン)、メタロセン又はシングルサイト触媒(SSC)と命名される。

10

【0036】

20

2.1)で言及されたポリマーの混合物、例えばポリプロピレンとポリイソブチレン、ポリプロピレンとポリエチレン(例えば、PP/HDPE、PP/LDPE)の混合物、及び異なる型のポリエチレンの混合物(例えば、LDPE/HDPE)。

【0037】

3.モノオレフィン及びジオレフィンの互いの又は他のビニルモノマーとのコポリマー、例えばエチレン/プロピレンコポリマー、線状低密度ポリエチレン(LLDPE)及びその低密度ポリエチレン(LDPE)との混合物、プロピレン/ブテ-1-エンコポリマー、プロピレン/イソブチレンコポリマー、エチレン/ブテ-1-エンコポリマー、エチレン/ヘキセンコポリマー、エチレン/メチルペンテンコポリマー、エチレン/ヘプテンコポリマー、エチレン/オクテンコポリマー、エチレン/ビニルシクロヘキサコポリマー、エチレン/シクロオレフィンコポリマー(例えばCOCの様な、エチレン/ノルボルネン)、1-オレフィンがその場で生成されるエチレン/1-オレフィンコポリマー；プロピレン/ブタジエンコポリマー、イソブチレン/イソブレンコポリマー、エチレン/ビニルシクロヘキセンコポリマー、エチレン/アルキルアクリレートコポリマー、エチレン/アルキルメタクリレートコポリマー、エチレン/酢酸ビニルコポリマー又はエチレン/アクリル酸コポリマー及びそれらの塩(アイオノマー)並びにエチレンとプロピレン及びヘキサジエン、ジシクロペンタジエン又はエチリデン-ノルボルネンなどのジエンとのターポリマー；及びそのようなコポリマーの互いの及び1)で上述したポリマーとの混合物、例えばポリプロピレン/エチレン-プロピレンコポリマー、LDPE/エチレン-酢酸ビニルコポリマー(EVA)、LDPE/エチレン-アクリル酸コポリマー(EAA)、LLDPE/EVA、LLDPE/EAA及び交互の又はランダムのパリアルキレン/一酸化炭素コポリマー及びそれらの他のポリマー、例えばポリアミドとの混合物。

30

40

【0038】

4.それらの水素化変性物(例えば粘着付与剤)を含むヒドロカーボン樹脂(例えば炭素原子数5乃至9の)及びパリアルキレンとでん粉の混合物。

【0039】

上述のホモポリマー及びコポリマーは、シンジオタクチック、アイソタクチック、ヘミ-アイソタクチックまたアタクチックなどの立体構造を有し得る；アタクチックポリマーが好ましい。立体ブロックポリマーもまた含まれる。

【0040】

50

5. ポリスチレン、ポリ(p-メチルスチレン)、ポリ(-メチルスチレン)。

【0041】

6. スチレン、-メチルスチレン、ビニルトルエンの全ての異性体、特にp-ビニルトルエン、エチルスチレンの全ての異性体、プロピルスチレン、ビニルビフェニル、ビニルナフチレン及びビニルアントラセン、並びにそれらの混合物などの、ビニル芳香族モノマー由来の芳香族ホモポリマー及びコポリマー。ホモポリマー及びコポリマーはシンジオタクチック、アイソタクチック、ヘミ-アイソタクチック、又はアタクチックなどの立体構造を有し得る；アタクチックポリマーが好ましい。立体ブロックコポリマーもまた含まれる：

a) エチレン、プロピレン、ジエン、ニトリル、酸、マレイン酸無水物、マレイミド、酢酸ビニル及びビニルクロリド又はアクリル酸誘導体及びそれらの混合物、例えばスチレン/ブタジエン、スチレン/アクリロニトリル、スチレン/エチレン(インターポリマー)、スチレン/アルキルメタクリレート、スチレン/ブタジエンアルキルアクリレート、スチレン-ブタジエン/アルキルメタクリレート、スチレン/マレイン酸無水物、スチレン/アクリロニトリル/メチルアクリレート；スチレンコポリマー及び他のポリマーの高衝撃スチレンの混合物、例えばポリアクリレート、ジエンポリマー又はエチレン/プロピレン/ジエンターポリマー；及びスチレン/ブタジエン/スチレン、スチレン/イソブレン/スチレン、スチレン/エチレン/ブチレン/スチレン又はスチレン/エチレン/プロピレン/スチレンなどのスチレンのブロックコポリマーから選択される、上述のビニル芳香族モノマー及びコモノマーを含むコポリマー。

b) 6.) で記述したポリマーの水素化より誘導された水素化芳香族ポリマー、特にアタクチックポリスチレンの水素化によって製造されたポリシクロヘキシルエチレン(PCH E)など、しばしばポリビニルシクロヘキサン(PVCH)として言及される。

c) 6a) に記述したポリマーの水素化より誘導された水素化芳香族ポリマー。ホモポリマー及びコポリマーはシンジオタクチック、アイソタクチック、ヘミ-アイソタクチック又はアタクチックなどの立体構造を有し得る；アタクチックポリマーが好ましい。立体ブロックポリマーもまた含まれる。

【0042】

7. ビニル芳香族モノマー、例えばスチレン又は-メチルスチレンのグラフトコポリマー、例えば、ポリブタジエンにスチレン、ポリブタエン-スチレン又はポリブタジエン-アクリロニトリルコポリマーにスチレン；ブタジエンにスチレン及びアクリロニトリル(又はメタクリロニトリル)；ポリブタジエンのスチレン、アクリロニトリル、及びメチルメタクリレート；ポリブタジエンにスチレン及びマレイン酸無水物；ポリブタジエンにスチレン、アクリロニトリル及びマレイン酸無水物又はマレイミド；ポリブタジエンにスチレン及びマレイミド；ポリブタジエンにスチレン及びアルキルアクリレート又はメタクリレート、エチレン/プロピレン/ジエンターポリマーにスチレン及びアクリロニトリル、ポリアルキルアクリレート又はポリアルキルメタクリレートにスチレン及びアクリロニトリル、アクリレート/ブタジエンコポリマーにスチレン及びアクリロニトリル、並びにそれらの6)に記載されたコポリマーとの混合物、例えばABS、MBS、ASA又はAESポリマーとして知られるコポリマー混合物。

【0043】

8. ハロゲン含有ポリマー、例えばポリクロロブレン、塩素化ゴム、イソブチレン-イソブレンの塩素化及び臭素化コポリマー(ハロブチルゴム)、塩素化又はスルホ塩素化ポリエチレン、エチレンと塩素化エチレンのコポリマー、エピクロロヒドリンホモ-及びコポリマー、特にハロゲン含有ビニル化合物のポリマー、例えばポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリフッ化ビニル、ポリフッ化ビニリデン、並びにそれらのコポリマー、例えば塩化ビニル/塩化ビニリデン、塩化ビニル/酢酸ビニル又は塩化ビニリデン/酢酸ビニルコポリマーなど。

【0044】

9. ポリアクリレート及びポリメタクリレートなどの, -不飽和酸及びそれらの誘導

10

20

30

40

50

体より誘導されたポリマー；ポリメチルメタクリレート、ポリアクリルアミド及びポリアクリルニトリル、ブチルアクリレートで衝撃変性されたもの。

【 0 0 4 5 】

1 0 . 9 ) に記述したモノマーの互いの又は他の不飽和モノマーとのコポリマー、例えばアクリロニトリル/ブタジエンコポリマー、アクリロニトリル/アルキルアクリレートコポリマー、アクリロニトリル/アルコキシアルキルアクリレート又はアクリロニトリル/ビニルハライドコポリマー、又はアクリロニトリル/アルキルメタクリレート/ブタジエンターポリマー。

【 0 0 4 6 】

1 1 . 不飽和アルコールとアミン又はアシル誘導体又はそれらのアセタールより誘導されたポリマー、例えばポリビニルアルコール、ポリビニルアセテート、ポリビニルステアレート、ポリビニルベンゾエート、ポリビニルマレート、ポリビニルブチレート、ポリアリルフタレート、又はポリアリルメラミン；並びにそれらと上記 1 . で記述したオレフィンとのコポリマー。

10

【 0 0 4 7 】

1 2 . ポリアルキレングリコール、ポリエチレンオキシド、ポリプロピレンオキシドなどの環状エーテルのホモポリマー及びコポリマー、又はそれらのビスグリシジルエーテルとのコポリマー。

【 0 0 4 8 】

1 3 . ポリアセタール、例えばポリオキシメチレン、並びにコモノマーとしてエチレンオキシドを含むそれらのポリオキシメチレン；熱可塑性ポリウレタン、アクリレート又は M B S で変性されたポリアセタール。

20

【 0 0 4 9 】

1 4 . ポリフェニレンオキシド及びスルフィド、並びにポリフェニレンオキシドのステレンポリマー又はポリアミドとの混合物。

【 0 0 5 0 】

1 5 . 一方がヒドロキシ末端ポリエーテル、ポリエステル又はポリブタジエンであり、他方が脂肪族又は芳香族ポリイソシアネートより誘導されたポリウレタン並びにそれらの前駆体。

【 0 0 5 1 】

1 6 . ジアミシとジカルボン酸から及び/又はアミノカルボン酸又は対応するラクタムから誘導されたポリアミド及びコポリアミド、例えばポリアミド 4、ポリアミド 6、ポリアミド 6 / 6、6 / 1 0、6 / 9、6 / 1 2、4 / 6、1 2 / 1 2、ポリアミド 1 1、ポリアミド 1 2、m - キシレンジアミン及びアジピン酸から開始した芳香族ポリアミド；ヘキサメチレンジアミン及びイソフタル酸又は/及びテレフタル酸から及び変性剤としてエラストマーを用いて又は用いずに調製されたポリアミド、例えばポリ - 2, 4, 4 - トリメチルヘキサメチレンテレフタルアミド又はポリ - m - フェニレンイソフタルアミド；及び上述されたポリアミドとポリオレフィン、オレフィンコポリマー、アイオノマー又は化学的に結合されたか又はグラフトされたエラストマーとのブロックコポリマー；又は例えばポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール又はポリテトラメチレングリコールなどのポリエーテルとのブロックコポリマー；並びに E P D M 又は A B S で変性されたポリアミド又はコポリアミド；及び加工の間に縮合されたポリアミド ( R I M ポリアミド系 )。

30

40

【 0 0 5 2 】

1 7 . ポリ尿素、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリエーテルイミド、ポリエステルイミド、ポリヒダントイン及びポリベンズイミダゾール。

【 0 0 5 3 】

1 8 . ジカルボン酸とジオールから、及び/又はヒドロキシカルボン酸又は対応するラクトンから誘導されたポリエステル、例えばポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリ - 1, 4 - ジメチロールシクロヘキサントテレフタレート、ポリアルキ

50

レンナフタレート (PAN) 及びポリヒドロキシベンゾエート、並びに、ヒドロキシ末端ポリエーテルから誘導されたブロックコポリエーテルエステル；及びまたポリカーボネート又はMBSで変性されたポリエステル。

【0054】

19. ポリケトン。

【0055】

20. ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、及びポリエーテルケトン。

【0056】

21. 上述したポリマーのブレンド (ポリブレンド)、例えばPP/EPDM、ポリアミド/EPDM又はABS、PVC/EVA、PVC/ABS、PVC/MBS、PC/ABS、PBTP/ABS、PC/ASA、PC/PBT、PVC/CPE、PVC/アクリレート、POM/熱可塑性PUR、PC/熱可塑性PUR、POM/アクリレート、POM/MBS、PPO/HIPS、PPO/PA6.6及びコポリマー、PA/HDPE、PA/PP、PA/PPO、PBT/PC/ABS又はPBT/PET/PC。

10

【0057】

成分a)は成分b)の基材に対して約0.001乃至5.0質量%、好ましくは0.01乃至2.0質量%、及び最も好ましくは0.04乃至0.5質量%の量で添加される。

【0058】

本発明の更なる実施態様は、ポリカーボネート又はポリカーボネートブレンドを含むポリマー基材に対して難燃性を付与する方法に関し、該方法は前記ポリマー基材に、上述で定義された式(I)で表される少なくともひとつの芳香族リン酸エステル塩を添加することを含む。

20

【0059】

#### 更なる成分

本発明はさらに、上述で定義された成分a)及びb)に加えて、所謂アンチドリッピング剤、ポリマー安定剤及びさらなる難燃剤、例えばリン含有難燃剤、窒素含有難燃剤、ハロゲン化難燃剤及び無機難燃剤などからなる群から選択される更なる添加剤を含む、組成物に関する。

【0060】

好ましい実施態様によれば、本発明は更なる成分としていわゆるアンチドリッピング剤をさらに含む組成物に関する。

30

【0061】

これらアンチドリッピング剤は、該ポリカーボネート組成物のメルトフローを下げ、高温におけるドロップ (落下) 形成を抑制する。様々な文献、例えば米国特許第4,263,201号明細書などに、ポリカーボネート難燃性組成物に対するアンチドリッピング剤の添加が記載されている。

【0062】

高温におけるドロップ形成を抑制する適当な添加剤としては、ガラスファイバー、ポリテトラフルオロエチレン (PTFE)、高温エラストマー、カーボンファイバー、ガラス球などが挙げられる。

40

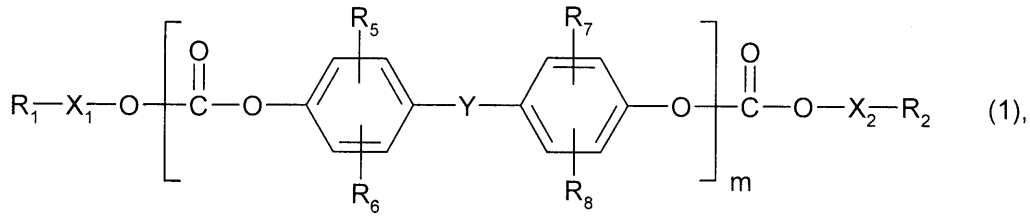
【0063】

異なる構造を有するポリシロキサンの添加が様々な文献において提案されている：米国特許第6,660,787号明細書、米国特許第6,727,302号明細書又は米国特許第6,730,720号明細書参照。

【0064】

本発明の特定の実施態様によれば、式(1)

【化 1 3】



式中、

R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は夫々互いに独立してフッ素原子によって置換された脂肪族基を表し；

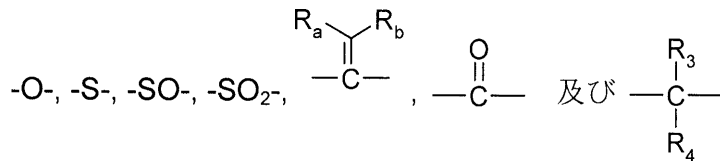
X<sub>1</sub>及びX<sub>2</sub>は夫々互いに独立して直接結合又は炭素原子数1乃至12のアルキレン基を表し；

mは1乃至1000の数字を表し；

R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>、R<sub>7</sub>及びR<sub>8</sub>は夫々互いに独立して水素原子、炭素原子数1乃至12のアルキル基又は炭素原子数3乃至12のアルケニル基を表し；そして

Yは直接結合又は、

【化 1 4】



からなる群から選択される二価の基を表す；

(式中、

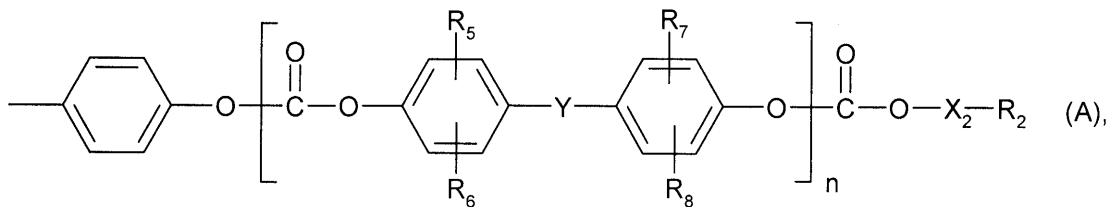
R<sub>a</sub>及びR<sub>b</sub>の双方が水素原子又はハロゲン原子を表し；又は

R<sub>a</sub>及びR<sub>b</sub>の一方が水素原子を、他方がハロゲン原子を表し；

R<sub>3</sub>及びR<sub>4</sub>はそれらが結合される炭素原子と一緒に、任意の置換基として1乃至3つの炭素原子数1乃至4のアルキル基と共に炭素原子数5乃至8のシクロアルキリデン基を形成し；又は

R<sub>3</sub>及びR<sub>4</sub>は夫々互いに独立して水素原子、フッ素原子で置換された脂肪族基、炭素原子数1乃至12のアルキル基、カルボキシ基で置換された炭素原子数1乃至12のアルキル基、炭素原子数2乃至12のアルケニル基、アリール基、又は、部分式

【化 1 5】



(式中、

nは0乃至10000の数字を表し；そして

X<sub>2</sub>、Y、R<sub>2</sub>、R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>、R<sub>7</sub>及びR<sub>8</sub>は上述に定義したとおりである。)を表す。)で表される(ポリ)カーボネート化合物である。

【0065】

(ポリ)カーボネート化合物(1)中、上述に定義されるように、置換基は以下のように定義される：

R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は夫々互いに独立してフッ素原子で置換された脂肪族基を表し；

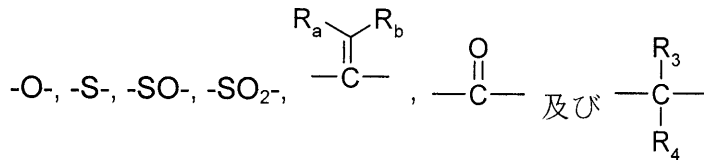
X<sub>1</sub>及びX<sub>2</sub>は夫々互いに独立して直接結合又は炭素原子数1乃至12のアルキレン基を表し；

mは1乃至1000の数字を表し；

R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>、R<sub>7</sub>及びR<sub>8</sub>は夫々互いに独立して水素原子、炭素原子数1乃至12のアルキル

基又は炭素原子数 3 乃至 12 のアルケニル基を表し；そして  
Y は直接結合又は

【化 16】



からなる群から選択される二価の基を表し；式中、

R<sub>a</sub> 及び R<sub>b</sub> の双方が水素原子又はハロゲン原子を表し；又は、

R<sub>a</sub> 及び R<sub>b</sub> の一方が水素原子を、他方がハロゲン原子を表し；

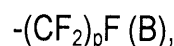
R<sub>3</sub> 及び R<sub>4</sub> はそれらが結合される炭素原子と一緒に、任意の置換基として 1 乃至 3 つの炭素原子数 1 乃至 4 のアルキル基と共に炭素原子数 5 乃至 8 のシクロアルキリデン基を形成し；又は

R<sub>3</sub> 及び R<sub>4</sub> は夫々互いに独立して、ハロゲン原子、フッ素原子で置換された脂肪族基、炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基、カルボキシ基で置換された炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基、炭素原子数 2 乃至 12 のアルケニル基、アリール基又は基 (A) を表し、上述に定義されるように、式中、n は 0 - 10000 の数字を表し、そして X<sub>2</sub>、Y、R<sub>2</sub>、R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>、R<sub>7</sub> 及び R<sub>8</sub> は上述に定義されたとおりである。

【0066】

フッ素原子で置換された脂肪族基として定義された R<sub>1</sub> 及び R<sub>2</sub> は、好ましくは直鎖又は分枝鎖又は炭化水素基であり、少なくとも一つのフッ素原子を有し、例えばフルオロ - 炭素原子数 1 乃至 25 のアルキル基であり、或いは、部分式

【化 17】



(式中、p は 1 乃至 100 の数字を表す) で表されるパーフルオロアルキル基である。

【0067】

フルオロ - 炭素原子数 1 乃至 25 のアルキル基は、例えば、モノ - 又はジフルオロメチル基、2 - フルオロエチル基、3 - フルオロプロピル基、4 - フルオロブチル基、5 - フルオロペンチル基、6 - フルオロヘキシル基、7 - フルオロヘプチル基、又はペンタフルオロブチル基である。

【0068】

パーフルオロアルキル基は、パーフルオロアルコール F(CF<sub>2</sub>)<sub>p</sub>-OH (式中、p は 1 乃至 50 の数字を表す) から誘導される基 (B) であり、例えば、トリフルオロメチル基 (p = 1) 又はペンタフルオロエチル基 (p = 2) である。好ましいパーフルオロアルキル基は、p が 5、8、9 又は 11 のパーフルオロアルコールから誘導される。

【0069】

炭素原子数 1 乃至 12 のアルキレン基として定義された X<sub>1</sub> 及び X<sub>2</sub> は、分枝した又は分枝していない二価の基であり、例えばメチレン基、エチレン基、プロピレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ペンタメチレン基、ヘキサメチレン基、ヘプタメチレン基、オクタメチレン基、デカメチレン基又はドデカメチレン基である。X<sub>1</sub> 及び X<sub>2</sub> の好ましい定義の一つは、炭素原子数 1 乃至 8 のアルキレン基、例えば、炭素原子数 2 乃至 8 のアルキレン基である。X<sub>1</sub> 及び X<sub>2</sub> の特に好ましい定義は、炭素原子数 2 乃至 4 のアルキレン基、例えばエチレン基である。

【0070】

炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基として定義された R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>、R<sub>7</sub> 及び R<sub>8</sub> は、直鎖又は、可能であれば分枝基であり、例えばメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、n - ブチル基、第二ブチル基、イソブチル基、第三ブチル基、2 - エチルブチル基、n - ペンチル基、イソペンチル基、1 - メチルペンチル基、1, 3 - ジメチルブチル基、

10

20

30

40

50

n - ヘキシル基、1 - メチルヘキシル基、n - ヘプチル基、イソヘプチル基、1, 1, 3, 3 - テトラメチルブチル基、1 - メチルヘプチル基、3 - メチルヘプチル基、n - オクチル基、2 - エチルヘキシル基、1, 1, 3 - トリメチルヘキシル基、1, 1, 3, 3 - テトラメチルペンチル基、n - ノニル基、n - デシル基、n - ウンデシル基、1 - メチルウンデシル基又は n - ドデシル基である。好ましい定義の一つは、例えば、炭素原子数 1 乃至 8 のアルキル基、例えば炭素原子数 1 乃至 4 のアルキル基、例えばメチル基である。

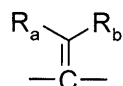
【0071】

炭素原子数 3 乃至 12 のアルケニル基として定義される  $R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$  及び  $R_8$  は、直鎖又は可能であれば分枝基であり、例えばアリル基、2 - ブテニル基、3 - ブテニル基、イソブテニル基、n - 2, 4 - ペンタジエニル基、3 - メチル - 2 - ブテニル基、n - 2 - オクテニル基、n - 2 - ドデセニル基又はイソドデセニル基である。

【0072】

部分式

【化18】



で表される二価の基として定義される Y は、好ましくはメチレン基 ( $\text{CH}_2 =$ 、 $R_a$  及び  $R_b = \text{H}$ ) である。別の実施態様によれば、 $R_a$  及び  $R_b$  の双方が水素原子又はハロゲン原子、例えば塩素原子又は臭素原子を表し、或いは、 $R_a$  及び  $R_b$  の一方が水素原子を、他方がハロゲン原子を表す。

【0073】

任意の置換基として 1 乃至 3 つの炭素原子数 1 乃至 4 のアルキル基を有する、炭素原子数 5 乃至 8 のシクロアルキリデン基として定義される  $R_3$  及び  $R_4$  は、例えば、シクロペンチリデン基、メチルシクロペンチリデン基、ジメチルシクロペンチリデン基、シクロヘキシリデン基、メチルシクロヘキシリデン基、ジメチルシクロヘキシリデン基、トリメチルシクロヘキシリデン基、第三ブチルシクロヘキシリデン基、シクロヘプチリデン基、又はシクロオクチリデン基である。好ましいものはシクロヘキシリデン基である。

【0074】

フッ素原子で置換された脂肪族基として定義された  $R_3$  及び  $R_4$  は、上述に定義したように、例えばフルオロ - 炭素原子数 1 乃至 25 のアルキル基であり、或いは上述のパーフルオロアルキル基 (B) ( $p$  は 1 乃至 50 を表す) である。

【0075】

炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基として定義された  $R_3$  及び  $R_4$  は、 $R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$  及び  $R_8$  に関して上述に定義されたとおりのものである。

【0076】

カルボキシ基で置換された炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基として定義された  $R_3$  及び  $R_4$  は、例えば、カルボキシメチル基又は 1 - 又は 2 - カルボキシエチル基である。

【0077】

アリール基として定義された  $R_3$  及び  $R_4$  は、好ましくはフェニル基又は 1 - 又は 2 - ナフチル基である。

【0078】

基 (A) において、指数  $n$  は 0 - 10000 の数字を表し、そして  $X_2$ 、 $Y$ 、 $R_2$ 、 $R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$  及び  $R_8$  は上述に定義したとおりである。

【0079】

特に興味深いものは、式中、

$R_1$  及び  $R_2$  は夫々互いに独立してフッ素原子で置換された脂肪族基を表し；

$X_1$  及び  $X_2$  は夫々互いに独立して炭素原子数 1 乃至 12 のアルキレン基を表し；

$m$  は 1 乃至 1000 の数字を表し；

$R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$  及び  $R_8$  は水素原子を表し；

10

20

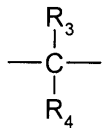
30

40

50

Y は二価の基

【化 19】



を表し、

式中、夫々互いに独立して  $R_3$  及び  $R_4$  は水素原子、 $-CF_3$  基、炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基、フェニル基又は基 (A) (式中 n は 0 乃至 10000 の数字を表しそして  $X_2$ 、Y、 $R_2$ 、 $R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$  及び  $R_8$  は上述に定義されたものを表す) を表すか、又は  $R_3$  及び  $R_4$  はそれらが結合される炭素原子と一緒にあって、任意の置換基として 1 乃至 3 つの炭素原子数 1 乃至 4 のアルキル基と共にシクロヘキシリデン基を形成する、(ポリ)カーボネート化合物 (1) である。

10

【0080】

特に興味深いものは、式中、 $R_1$  及び  $R_2$  は夫々互いに独立して基 (B) を表す (式中、p は 1 乃至 50 の数字を表す)、(ポリ)カーボネート化合物 (1) である。

【0081】

非常に興味深いものは、式中 p が 4 乃至 15 を表す、(ポリ)カーボネート化合物 (1) である。

【0082】

20

非常に特に興味深いものは、式中、

$R_1$  及び  $R_2$  は夫々互いに独立して基 (B) を表し (式中、p は 1 乃至 50 の数字を表す)

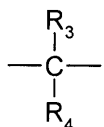
$X_1$  及び  $X_2$  は夫々互いに独立して炭素原子数 2 乃至 8 のアルキレン基を表し；

m は 1 乃至 1000 の数字を表し；

$R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$  及び  $R_8$  は水素原子を表し；

Y は二価の基

【化 20】



30

を表し、

式中、 $R_3$  は水素原子、 $-CF_3$  基、炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基、フェニル基又は基 (A) (式中 n は 0 乃至 10000 の数字を表しそして  $X_2$ 、Y、 $R_2$ 、 $R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$  及び  $R_8$  は上述に定義されたものを表す) を表すか、又は

$R_3$  及び  $R_4$  はそれらが結合される炭素原子と一緒にあって、任意の置換基として 1 乃至 3 つの炭素原子数 1 乃至 4 のアルキル基と共にシクロヘキシリデン基を形成する、(ポリ)カーボネート化合物 (1) である。

【0083】

40

高い興味があるものは、式中、 $R_3$  及び  $R_4$  は夫々互いに独立して水素原子又は炭素原子数 1 乃至 4 のアルキル基を表し；或いは、 $R_3$  及び  $R_4$  はそれらが結合される炭素原子と一緒にあって、シクロヘキシリデン基を形成する、(ポリ)カーボネート化合物 (1) である。

【0084】

特に好ましいものはまた、式中 m が 1 乃至 50 の数字を表し、n が 0 乃至 50 の数字を表す、(ポリ)カーボネート化合物 (1) である。

【0085】

(ポリ)カーボネート化合物 (1) は、既知の方法で製造される。フルオロアルコールをビス (2, 4 - ジニトロフェニル) カーボネート (DNPC) で処理して、2, 4 - ジ

50

ニトロフェニルカーボネートのフルオロアルコール物をそのまま得る。この誘導体は、例えば、様々な分子量のヒドロキシ末端ビスフェノールAオリゴマーによって、単離及び分離可能である。

【0086】

Brunelleら (Macromolecules 1991年、24、3035-3044) は、ビスフェノールAのダイマー及び環状オリゴマーの製造のための、ビス(2,4-ジニトロフェニル)カーボネートの使用を開示している。カップリング反応もまた、ホスゲン又はカルボニルジイミダゾール(CDI)などの、カーボネート結合形成試薬によって実施可能である。

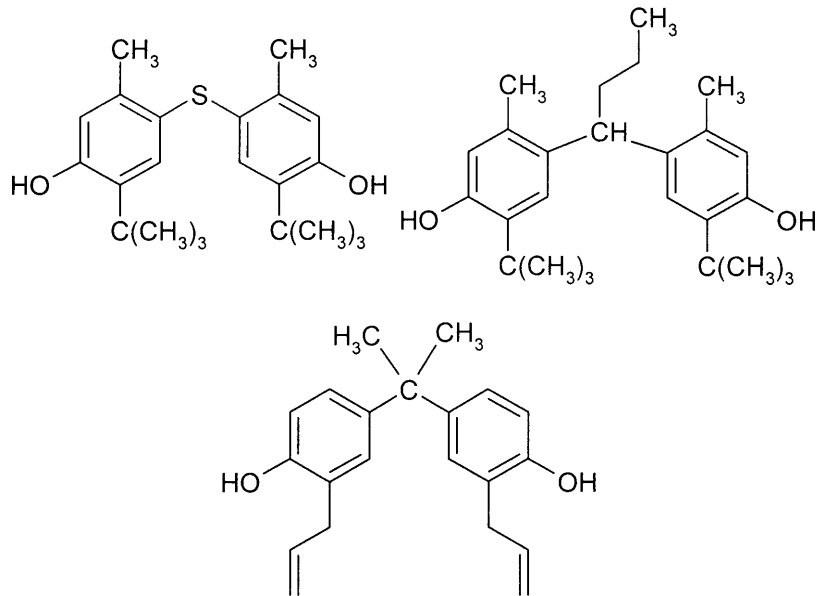
【0087】

好ましいフルオロアルコールは、例えば、所謂フルオロテロマーアルコールである。これらは、例えば、デュポン社又はアルドリッチ社よりZonyl(登録商標)BA-Lとして市販されている。

【0088】

好ましいビスフェノール出発材料は、例えばビスフェノールA及び下記式で表される化合物である：

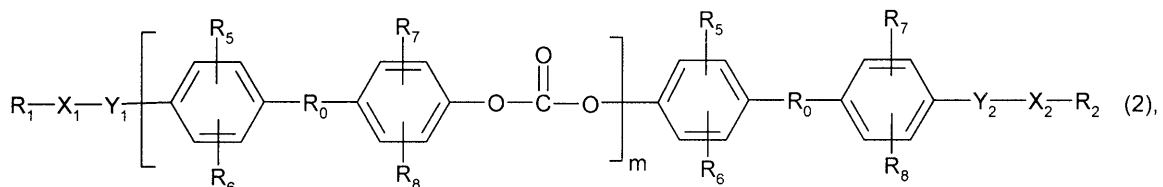
【化21】



【0089】

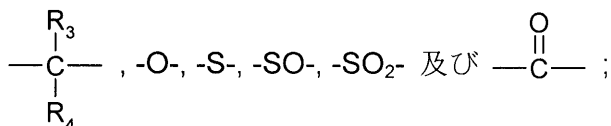
別の実施態様によれば、式

【化22】



で表される(ポリ)カーボネート化合物が添加され、式中、 $R_0$ は直接結合又は

【化23】



からなる群から選択される二価の基を表し；

$R_1$ 及び $R_2$ は夫々互いに独立してケイ素含有基を表し；

10

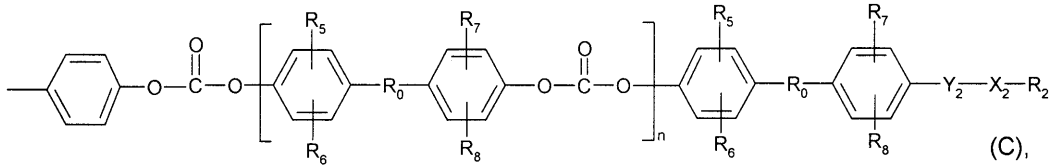
20

30

40

50

R<sub>3</sub>及びR<sub>4</sub>は夫々互いに独立して水素原子、フッ素原子で置換された脂肪族基、ケイ素含有基、炭素原子数1乃至12のアルキル基、カルボキシ基で置換された炭素原子数1乃至12のアルキル基、炭素原子数2乃至12のアルケニル基、アリアル基又は部分式【化24】



で表される基を表すか、又は

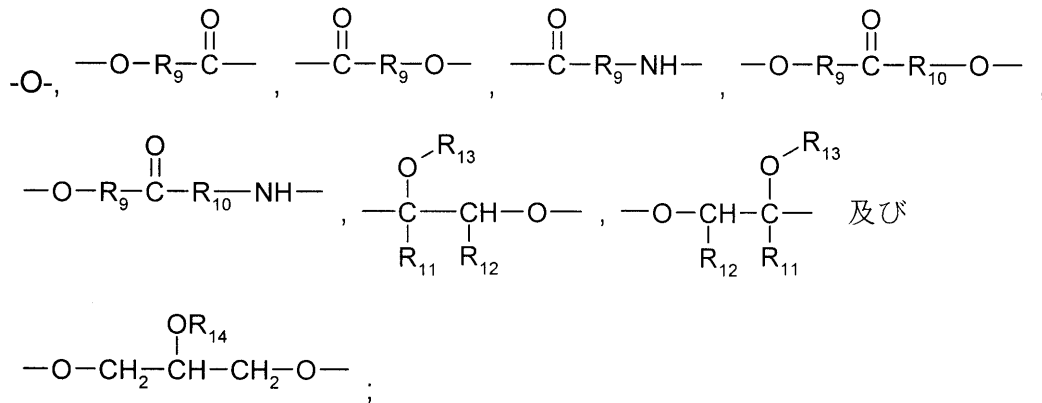
R<sub>3</sub>及びR<sub>4</sub>はそれらが結合される炭素原子と一緒に、炭素原子数5乃至8のシクロアルキリデン基又は、1乃至3つの炭素原子数1乃至4のアルキル基で置換された炭素原子数5乃至8のシクロアルキリデン基を表し；

R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>、R<sub>7</sub>及びR<sub>8</sub>は夫々互いに独立して水素原子、炭素原子数1乃至12のアルキル基又は炭素原子数3乃至12のアルケニル基を表し；

X<sub>1</sub>及びX<sub>2</sub>は夫々互いに独立して直接結合、炭素原子数1乃至12のアルキレン基又は-O-基で中断された炭素原子数4乃至25のアルキレン基を表し；

Y<sub>1</sub>及びY<sub>2</sub>は夫々互いに独立して直接結合又は

【化25】



からなる群から選択される二価の基を表し；

R<sub>9</sub>及びR<sub>10</sub>は夫々互いに独立して直接結合又は炭素原子数1乃至4のアルキレン基を表し；

R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub>及びR<sub>13</sub>は夫々互いに独立して水素原子、炭素原子数1乃至12のアルキル基又は炭素原子数3乃至12のアルケニル基を表し；

R<sub>14</sub>は水素原子、炭素原子数1乃至12のアルキル基又はケイ素含有基を表し；

mは0乃至10000の数字を表し；そして、

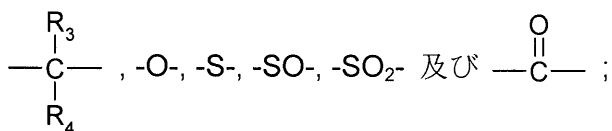
nは0乃至10000の数字を表す。

【0090】

(ポリ)カーボネート化合物(2)において、上述に定義したように、置換基は以下のとおりに定義される：

R<sub>0</sub>は直接結合又は

【化26】



からなる群から選択される二価の基を表し；

R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は夫々互いに独立してケイ素含有基を表し；

R<sub>3</sub>及びR<sub>4</sub>は夫々互いに独立して水素原子、フッ素原子で置換された脂肪族基、ケイ素含

10

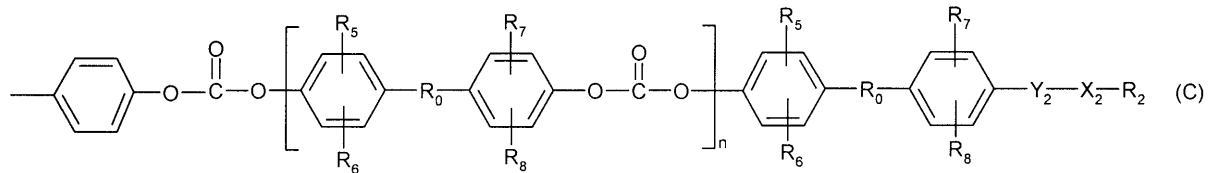
20

30

40

50

有基、炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基、カルボキシ基で置換された炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基、炭素原子数 2 乃至 12 のアルケニル基、アリール基、又は部分式  
【化 27】



で表される基を表し、又は

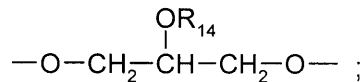
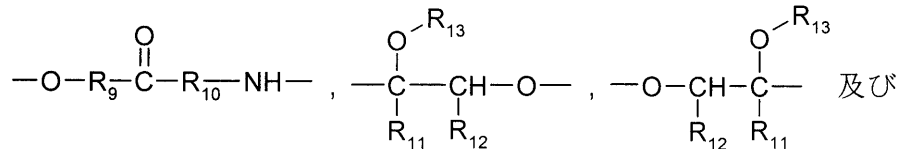
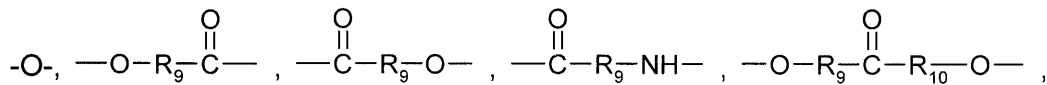
$\text{R}_3$  及び  $\text{R}_4$  はそれらが結合される炭素原子と一緒に、炭素原子数 5 乃至のシクロアルキリデン基又は 1 乃至 3 つの炭素原子数 1 乃至 4 のアルキル基で置換された炭素原子数 5 乃至のシクロアルキリデン基を表し；

$\text{R}_5$ 、 $\text{R}_6$ 、 $\text{R}_7$  及び  $\text{R}_8$  は夫々互いに独立して水素原子、炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基又は炭素原子数 3 乃至 12 のアルケニル基を表し；

$\text{X}_1$  及び  $\text{X}_2$  は夫々互いに独立して直接結合、炭素原子数 1 乃至 12 のアルキレン基又は -O- 基で中断された炭素原子数 4 乃至 25 のアルキレン基を表し；

$\text{Y}_1$  及び  $\text{Y}_2$  は夫々互いに独立して直接結合又は

【化 28】



からなる群から選択される二価の基を表し；

$\text{R}_9$  及び  $\text{R}_{10}$  は夫々互いに独立して直接結合又は炭素原子数 1 乃至 4 のアルキレン基を表し；

$\text{R}_{11}$ 、 $\text{R}_{12}$  及び  $\text{R}_{13}$  は夫々互いに独立して水素原子、炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基又は炭素原子数 3 乃至 12 のアルケニル基を表し；

$\text{R}_{14}$  は水素原子、炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基又はケイ素含有基を表し；

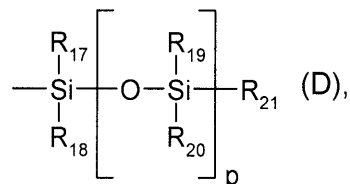
$m$  は 0 乃至 10000 の数字を表し；そして

$n$  は 0 乃至 10000 の数字を表す。

【0091】

ケイ素含有基は、好ましくは部分式

【化 29】



で表される基を表し、式中、

$\text{R}_{17}$ 、 $\text{R}_{18}$ 、 $\text{R}_{19}$  及び  $\text{R}_{20}$  は夫々互いに独立して炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基、ヒドロキシ基又はアミノ基で置換された炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基； -O- 基で中断されたヒドロキシ - 炭素原子数 4 乃至 12 のアルキル基；又は部分式

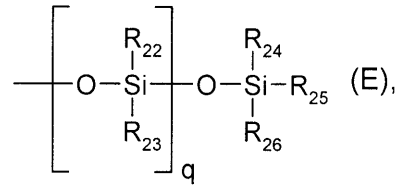
10

20

30

40

## 【化 3 0】

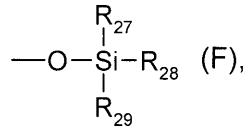


で表される基を表し、

式中、

$\text{R}_{21}$  は炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基又は部分式

## 【化 3 1】



を表し、

$\text{R}_{22}$ 、 $\text{R}_{23}$ 、 $\text{R}_{24}$ 、 $\text{R}_{25}$ 、 $\text{R}_{26}$ 、 $\text{R}_{27}$ 、 $\text{R}_{28}$  及び  $\text{R}_{29}$  は夫々互いに独立して炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基又はヒドロキシ基又はアミノ基で置換された炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基を表し；

$p$  は 0 乃至 200 を表し；そして

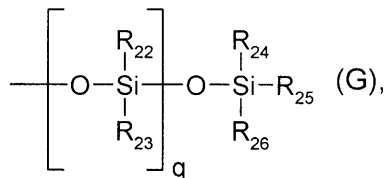
$q$  は 0 乃至 200 を表す。

## 【0092】

ケイ素含有基として特に興味あるものは、式中、

$\text{R}_{17}$ 、 $\text{R}_{18}$ 、 $\text{R}_{19}$  及び  $\text{R}_{20}$  は夫々互いに独立してメチル基又は部分式

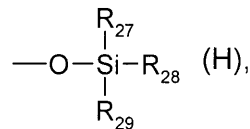
## 【化 3 2】



で表される基を表し、

$\text{R}_{21}$  はメチル基又は部分式

## 【化 3 3】



で表される基を表し、

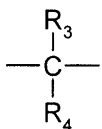
$\text{R}_{22}$ 、 $\text{R}_{23}$ 、 $\text{R}_{24}$ 、 $\text{R}_{25}$ 、 $\text{R}_{26}$ 、 $\text{R}_{27}$ 、 $\text{R}_{28}$  及び  $\text{R}_{29}$  はメチル基を表し；そして、 $p$  及び  $q$  は夫々互いに独立して 0 乃至 100 を表す、部分式 (D) で表される基である。

## 【0093】

特に興味のあるものは、式中、

$\text{R}_0$  は二価の基

## 【化 3 4】



を表し；

$\text{R}_1$  及び  $\text{R}_2$  は夫々互いに独立してケイ素含有基を表し；

$\text{R}_3$  及び  $\text{R}_4$  は夫々互いに独立して水素原子、トリフルオロメチル基、ケイ素含有基、炭素

10

20

30

40

50

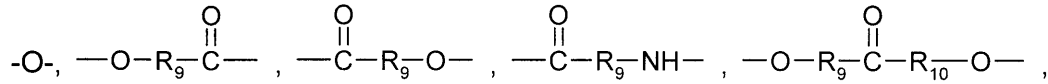
原子数 1 乃至 12 のアルキル基、フェニル基又は基 (C) を表し ; あるいは、  
 $R_3$  及び  $R_4$  はそれらが結合される炭素原子と一緒に、炭素原子数 5 乃至 8 のシクロ  
 アルキリデン基又は 1 乃至 3 つの炭素原子数 1 乃至 4 のアルキル基で置換された炭素原子  
 数 5 乃至 8 のシクロアルキリデン基を表し ;

$R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$  及び  $R_8$  は水素原子を表し ;

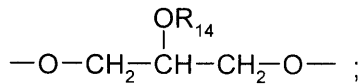
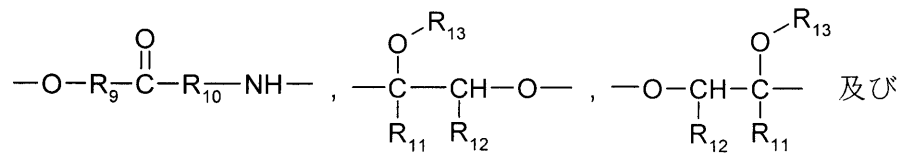
$X_1$  及び  $X_2$  は夫々互いに独立して炭素原子数 1 乃至 12 のアルキレン基又は - O - 基で中  
 断された炭素原子数 4 乃至 25 のアルキレン基を表し ;

$Y_1$  及び  $Y_2$  は夫々互いに独立して直接結合又は

【化 3 5】



10



からなる群から選択される二価の基を表し ;

20

$R_9$  及び  $R_{10}$  は夫々互いに独立して直接結合又はメチレン基を表し ;

$R_{11}$ 、 $R_{12}$  及び  $R_{13}$  は夫々互いに独立して水素原子、炭素原子数 1 乃至 4 のアルキル基、  
 炭素原子数 3 乃至 4 のアルケニル基を表し ;

$R_{14}$  は水素原子又は炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基を表し ;

$m$  は 0 乃至 10000 を表し ; そして

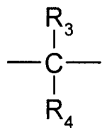
$n$  は 0 乃至 10000 を表す、(ポリ)カーボネート化合物 (2) である。

【0094】

非常に特別な興味のあるものは、式中、

$R_0$  は二価の基

【化 3 6】



30

を表し、

$R_3$  は水素原子、-CF<sub>3</sub>基、炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基、フェニル基又は基 (C)  
 ) を表し ;

$R_4$  は -CF<sub>3</sub>基、炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基又はフェニル基を表し ; 或いは、  
 $R_3$  及び  $R_4$  はそれらが結合される炭素原子と一緒に、炭素原子数 5 乃至 8 のシクロ  
 アルキリデン基又は 1 乃至 3 つの炭素原子数 1 乃至 4 のアルキル基で置換された炭素原子  
 数 5 乃至 8 のシクロアルキリデン基を表し ;

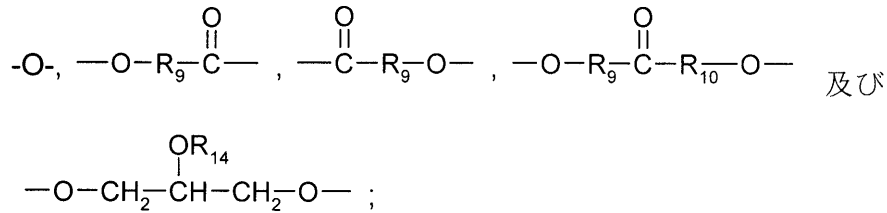
40

$R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$  及び  $R_8$  は水素原子を表し ;

$X_1$  及び  $X_2$  は夫々互いに独立して炭素原子数 1 乃至 12 のアルキレン基又は - O - 基で中  
 断された炭素原子数 4 乃至 25 のアルキレン基を表し ;

$Y_1$  及び  $Y_2$  は夫々互いに独立して直接結合又は

## 【化 3 7】



からなる群から選択される二価の基を表し；

$R_9$  及び  $R_{10}$  は夫々互いに独立して直接結合又はメチレン基を表し；

$R_{14}$  は水素原子又は炭素原子数 1 乃至 12 のアルキル基を表し；

$m$  は 0 乃至 10000 を表し；そして

$n$  は 0 乃至 10000 を表す、(ポリ)カーボネート化合物(2)である。

## 【0095】

興味のあるものはまた、式中、

$R_3$  及び  $R_4$  が夫々独立して水素原子又は炭素原子数 1 乃至 4 のアルキル基を表し；或いは

$R_3$  及び  $R_4$  が結合される炭素原子と一緒にあってシクロヘキシリデン基を形成する、

(ポリ)カーボネート化合物(2)である。

## 【0096】

好ましいものは、式中、 $X_1$  及び  $X_2$  が夫々互いに独立して炭素原子数 2 乃至 8 のアルキレン基又は -O- 基で中断された炭素原子数 4 乃至 25 のアルキレン基を表す、(ポリ)カーボネート化合物(2)である。

## 【0097】

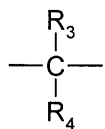
また好ましいものは、式中、 $m$  が 0 乃至 100 を表し、そして  $n$  が 0 乃至 100 を表す、(ポリ)カーボネート化合物(2)である。

## 【0098】

非常に特別な興味あるものは、式中、

$R_0$  は二価の基

## 【化 3 8】



を表し；

$R_3$  及び  $R_4$  は夫々互いに独立して炭素原子数 1 乃至 4 のアルキル基を表し；あるいは、

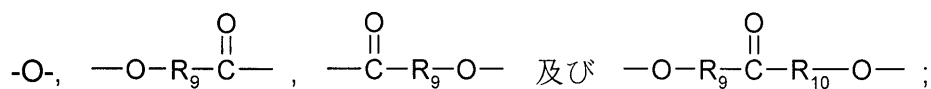
$R_3$  及び  $R_4$  はそれらが結合される炭素原子と一緒にあってシクロヘキシリデン基を形成し

$R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$  及び  $R_8$  は水素原子を表し；

$X_1$  及び  $X_2$  は夫々互いに独立して炭素原子数 2 乃至 4 のアルキレン基又は -O- 基で中断された炭素原子数 4 乃至 25 のアルキレン基を表し；

$Y_1$  及び  $Y_2$  は夫々互いに独立して直接結合又は

## 【化 3 9】



からなる群から選択される二価の基を表し；

$R_9$  及び  $R_{10}$  は夫々互いに独立して直接結合又はメチレン基を表し；

$m$  は 0 乃至 100 を表し、そして

$n$  は 0 乃至 100 を表す、(ポリ)カーボネート化合物(2)である。

## 【0099】

10

20

30

40

50

(ポリ)カーボネート化合物(2)において、炭素原子数1乃至12のアルキル基は直鎖、可能であれば分枝状のアルキル基を表し、(ポリ)カーボネート化合物(1)に関して上記に定義されたものと同様である。

## 【0100】

カルボキシ基で置換された炭素原子数1乃至12のアルキル基として定義される $R_3$ 及び $R_4$ は、好ましくはカルボキシメチル基又は1-又は2-カルボキシエチル基である。

## 【0101】

アリール基として定義された $R_3$ 及び $R_4$ は、好ましくはフェニル基又は1乃至3つの炭素原子数1乃至4のアルキル基、例えばメチル基で置換されたフェニル基を表す。

## 【0102】

炭素原子数2乃至12のアルケニル基として定義される $R_3$ 、 $R_4$ 、 $R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$ 及び $R_8$ は、直鎖又は可能であれば分枝状のアルケニル基であり、(ポリ)カーボネート化合物(1)に関して上記に定義されたものと同様である。

## 【0103】

炭素原子数5乃至8のシクロアルキリデン基又は1乃至3つの炭素原子数1乃至4のアルキル基で置換された炭素原子数5乃至8のシクロアルキリデン基として定義される $R_3$ 及び $R_4$ は、(ポリ)カーボネート化合物(1)に関して上述に定義されたとおりである。

## 【0104】

炭素原子数1乃至12のアルキレン基として定義された $X_1$ 及び $X_2$ 、並びに炭素原子数1乃至4のアルキレン基として定義された $R_9$ 及び $R_{10}$ は、(ポリ)カーボネート化合物(1)に関して上述に定義されたような、直鎖又は可能であれば分枝状のアルキレン基である。

## 【0105】

-O-基で中断された炭素原子数4乃至25のアルキレン基として定義された $X_1$ 及び $X_2$ は、直鎖又は可能であれば分枝状であり、例えば、 $-CH_2CH_2-O-CH_2CH_2-$ 基、 $-CH_2CH_2CH_2-O-CH_2CH_2-$ 基、 $-CH_2CH_2CH_2-O-CH_2CH_2CH_2-$ 基又は $-CH_2CH_2-O-CH_2CH_2-O-CH_2CH_2-$ 基である。

## 【0106】

ヒドロキシ基又はアミノ基で置換された炭素原子数1乃至12のアルキル基は、例えば、ヒドロキシメチル基、1-又は2-ヒドロキシエチル基、又はアミノメチル基、1-又は2-アミノエチル基である。

## 【0107】

-O-基で中断されたヒドロキシ-炭素原子数4乃至12のアルキル基は、例えば $-CH_2CH_2-O-CH_2CH_2OH$ 基又は $-CH_2CH_2-O-CH_2CH_2-O-CH_2CH_2OH$ 基である。

## 【0108】

フッ素含有基は、分枝又は非分枝基であり、少なくとも一つのフッ素原子を含み、例えばフルオロ-炭素原子数1乃至25のアルキル基であり：あるいは、 $p$ が1乃至50である基(B)である。

## 【0109】

フルオロ-炭素原子数1乃至25のアルキル基は、例えば、フルオロメチル基、2-フルオロエチル基、3-フルオロプロピル基、4-フルオロブチル基、ペンタフルオロブチル基、5-フルオロペンチル基、6-フルオロヘキシル基、7-フルオロヘプチル基、ジフルオロメチル基又はペンタフルオロブチル基である。

## 【0110】

$p$ が1乃至50である基(B)は、例えばトリフルオロメチル基又はペンタフルオロメチル基である。

## 【0111】

(ポリ)カーボネート化合物(2)は、既知の方法で得られる。ケイ素アルコールをビ

10

20

30

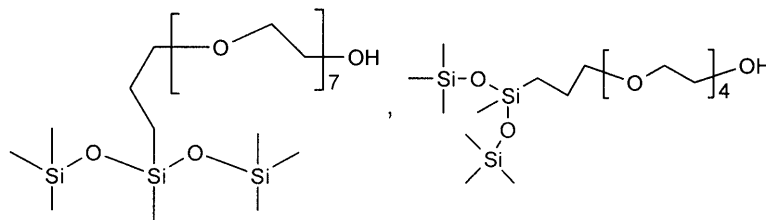
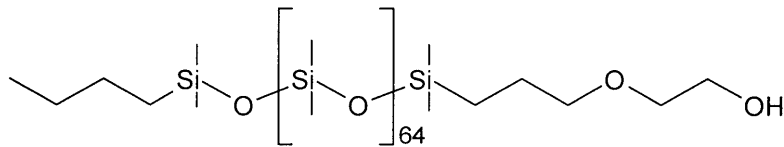
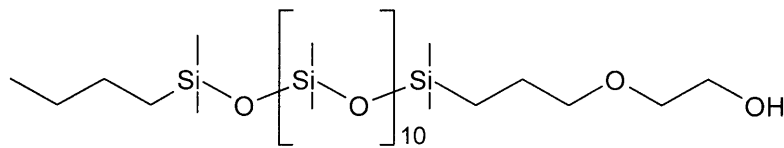
40

50

ス(2,4-ジニトロフェニル)カーボネート(DNPC)で処理して2,4-ジニトロフェニルカーボネートのケイ素アルコール物をそのまま得る。この誘導体は、例えば様々な分子量のヒドロキシ末端ビスフェノールAオリゴマーによって単離又は分離可能である。Brunelleら(Macromolecules 1991, 24, 3035-3044)はビスフェノールAのダイマー及び環状オリゴマーの製造のためのビス(2,4-ジニトロフェニル)カーボネートの使用を開示している。カップリング反応もまた、ホスゲン又はカルボニルジイミダゾール(CDI)などのカーボネート結合形成試薬によって実施可能である。

【0112】

特に好ましいケイ素含有基は、 $p = 10$ であるモノヒドロキシポリシロキサン； $p = 64$ であるポリシロキサン；ポリアルキレンオキシド変性ヘプタメチルトリシロキサン；又は3-(ポリオキシエチレン)プロピルヘプタメチルトリシロキサンから誘導される。代表的な構造式を以下に示す：



【0113】

好ましいビスフェノール出発物質は、(ポリ)カーボネート化合物(1)の製造に関して上述に示したものと同様である。

【0114】

(ポリ)カーボネート化合物(1)又は(2)は、成分b)の基材に対して0.01乃至5.0質量%、好ましくは0.25乃至1.0質量%の量で添加される。(ポリ)カーボネート化合物(1)又は(2)の混合物の添加が提案される。

【0115】

別の実施態様によれば、本発明は、ポリマー安定剤並びに更なる難燃剤からなる群から選択される更なる添加剤をさらに含む組成物に関する。

【0116】

安定剤は好ましくはハロゲンを含まず、ニトロキシ安定剤、ニトロン安定剤、アミノオキシド安定剤、ベンゾフラノン安定剤、ホスフィット及びホスホナイト安定剤、キノンメチド安定剤及び2,2'-アルキリデンビスフェノールのモノアクリレートエステル安定剤から選択される。

【0117】

現在の成分における更なる難燃剤は既知の成分、市販品であり、或いは既知の方法で得

10

20

30

40

50

られる。

【0118】

成分b)に関して上述に定義されたものに加えて、代表的なリン含有難燃剤は、例えば

：  
テトラフェニルレゾルシノールジホスフィット（FYROL FLEX（登録商標）RDP、アクゾノーベル社）、テトラキス（ヒドロキシメチル）ホスホニウムスルフィド、トリフェニルホスフェート、ジエチル-N,N-ビス（2-ヒドロキシエチル）-アミノメチルホスホネート、リン酸のヒドロキシアルキルエステル、アンモニウムポリホスフェート（APP）又は（HOSTAFLAM（登録商標）AP750）、レゾルシノールジホスフェートオリゴマー（RDP）、ホスファゼン難燃剤及びエチレンジアミンジホスフェート（EDAP）である。

10

【0119】

窒素含有難燃剤は、例えば、イソシアヌレート難燃剤、例えばポリイソシアヌレート、イソシアヌル酸又はイソシアヌレートのエステルである。代表例は、ヒドロキシアルキルイソシアヌレート、例えばトリス-（2-ヒドロキシエチル）イソシアヌレート、トリス（ヒドロキシメチル）イソシアヌレート、トリス（3-ヒドロキシ-n-プロピル）イソシアヌレート又はトリグリシジルイソシアヌレートである。

【0120】

窒素含有難燃剤としては、メラミンベースの難燃剤が挙げられる。代表例は：メラミンシアヌレート、メラミンボレート、メラミンホスフェート、メラミンポリホスフェート、メラミンピロホスフェート、メラミンアンモニウムポリホスフェート及びメラミンアンモニウムピロホスフェートである。

20

【0121】

更なる例は：ベンゾグアナミン、トリス（ヒドロキシエチル）イソシアヌレート、アラントイン、グルコールウリル、メラミンシアヌレート、メラミンホスフェート、ジメラミンホスフェート、メラミンピロホスフェート、尿素シアヌレート、メラミンポリホスフェート、メラミンボレート、アンモニウムポリホスフェート、メラミンアンモニウムポリホスフェート又はメラミンアンモニウムピロホスフェート、メレム、メラム、メロンシリーズからのメラミン縮合生成物、及び/又は高縮合化合物、又はメラミンのリン酸との反応生成物、及び/又はメラミン縮合生成物とリン酸との反応生成物又はそれらの混合物である。

30

【0122】

特に強調すべきは：ジメラミンピロホスフェート、メラミンポリホスフェート、メレムポリホスフェート、メラムポリホスフェート及び/又はそのような種類の混合ポリ塩で、より特別にはメラミンポリホスフェートである。

【0123】

代表的なオルガノハロゲン難燃剤は、例えば：ポリ臭素化ジフェニルオキシド（DE-60F、グレートレイクス社）、デカブロモジフェニルオキシド（DBDPO；SAYTEX（登録商標）102E）、トリス[3-プロモ-2,2-ビス（プロモメチル）プロピル]ホスフェート（PB370（登録商標）、FMCコーポレーション）、トリス（2,3-ジプロモプロピル）ホスフェート、トリス（2,3-ジクロロプロピル）ホスフェート、クロレンド酸、テトラクロロフタル酸、テトラプロモフタル酸、ポリ-クロロエチルトリホスホネート混合物、テトラプロモビスフェノールAビス（2,3-ジプロモプロピルエーテル）（PE68）、臭素化エポキシ樹脂、エチレン-ビス（テトラプロモフタルイミド）（SAYTEX（登録商標）BT-93）、ビス（ヘキサクロロシクロペンタジエノ）-シクロオクタン（DECLORANE PLUS（登録商標））、塩素化パラフィン、オクタプロモジフェニルエーテル、ヘキサクロロシクロペンタジエン誘導体、1,2-ビス（トリプロモフェノキシ）エタン（FF680）、テトラプロモビスフェノールA（SAYTEX（登録商標）RB100）、エチレンビス-（ジプロモ-ノルボルナンジカルボキシイミド）（SAYTEX（登録商標）BN-451）、ビス-（ヘキ

40

50

サクロシクロエンタデノ)シクロオクタン、PTFE、トリス-(2,3-ジブロモプロピル)-イソシアヌレート、及びエチレン-ビス-テトラブロモフタルイミドである。

【0124】

上述の難燃剤は、無機酸化相乗剤と共にごく普通に組み合わせられる。この使用のために最も一般的なものは、酸化亜鉛又は酸化アンチモン、例えば $Sb_2O_3$ 又は $Sb_2O_5$ である。ホウ素化合物もまた適当である。

【0125】

上述の更なる難燃剤類は、有機ポリマー基材の約0.5質量%乃至約45.0質量%；例えば約1.0質量%乃至約40.0質量%；例えば約5.0質量%乃至約35.0質量%の量で、本発明の組成物中に有利に含まれる。

10

【0126】

上述したように、本発明の組成物は更に一種以上の慣用の添加剤を含み得、例えば、顔料、染料、可塑剤、抗酸化剤、チキソトロップ剤、レベリング助剤、塩基性補助安定剤、金属不動態化剤、金属酸化物、有機リン化合物、更なる光安定剤及びこれらの混合物、特に顔料、フェノール性抗酸化剤、ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸亜鉛、2-ヒドロキシ-ベンゾフェノン、2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール及び/又は2-(2-ヒドロキシフェニル)-1,3,5-トリアジン群の紫外線吸収剤から選択される。より具体的な例は以下の成分である：

【0127】

1. 抗酸化剤

20

アルキル化モノフェノール、

たとえば、2,6-ジ-第三ブチル-4-メチルフェノール、2-第三ブチル-4,6-ジメチルフェノール、2,6-ジ-第三ブチル-4-エチルフェノール、2,6-ジ-第三ブチル-4-n-ブチルフェノール、2,6-ジ-第三ブチル-4-イソブチルフェノール、2,6-ジシクロペンチル-4-メチルフェノール、2-( -メチルシクロヘキシル)-4,6-ジメチルフェノール、2,6-ジオクタデシル-4-メチルフェノール、2,4,6-トリシクロヘキシルフェノール、2,6-ジ-第三ブチル-4-メトキシメチルフェノール、直線状若しくは側鎖で分岐したノニルフェノール、たとえば、2,6-ジ-ノニル-4-メチルフェノール、2,4-ジメチル-6-(1'-メチルウンデシ-1'-イル)フェノール、2,4-ジメチル-6-(1'-メチルヘプタデシ-1'-イル)フェノール、2,4-ジメチル-6-(1'-メチルトリデシ-1'-イル)フェノール及びそれらの混合物。

30

【0128】

アルキルチオメチルフェノール、

たとえば、2,4-ジオクチルチオメチル-6-第三ブチルフェノール、2,4-ジオクチルチオメチル-6-メチルフェノール、2,4-ジオクチルチオメチル-6-エチルフェノール、2,6-ジ-ドデシルチオメチル-4-ノニルフェノール。

【0129】

ヒドロキノン及びアルキル化ヒドロキノン、

たとえば、2,6-ジ-第三ブチル-4-メトキシフェノール、2,5-ジ-第三ブチルヒドロキノン、2,5-ジ-第三アミルヒドロキノン、2,6-ジフェニル-4-オクタデシルオキシフェノール、2,6-ジ-第三ブチルヒドロキノン、2,5-ジ-第三ブチル-4-ヒドロキシアニソール、3,5-ジ-第三ブチル-4-ヒドロキシフェニルステアレート、ビス(3,5-ジ-第三ブチル-4-ヒドロキシフェニル)アジペート。

40

【0130】

トコフェロール、

たとえば、 -、 -、 -、 - トコフェロール、及びそれらの混合物(ビタミンE)。

【0131】

50

ヒドロキシ化チオジフェニルエーテル、

たとえば、2, 2' - チオビス (6 - 第三ブチル - 4 - メチルフェノール)、2, 2' - チオビス (4 - オクチルフェノール)、4, 4' - チオビス (6 - 第三ブチル - 3 - メチルフェノール)、4, 4' - チオビス (6 - 第三ブチル - 2 - メチルフェノール)、4, 4' - チオビス (3, 6 - ジ - 第二アミルフェノール)、4, 4' - ビス (2, 6 - ジメチル - 4 - ヒドロキシフェニル) ジスルフィド。

## 【0132】

アルキリデンビスフェノール、

たとえば、2, 2' - メチレンビス (6 - 第三ブチル - 4 - メチルフェノール)、2, 2' - メチレンビス (6 - 第三ブチル - 4 - エチルフェノール)、2, 2' - メチレンビス [4 - メチル - 6 - ( - メチルシクロヘキシル) - フェノール]、2, 2' - メチレンビス (4 - メチル - 6 - シクロヘキシルフェノール)、2, 2' - メチレンビス (6 - ノニル - 4 - メチルフェノール)、2, 2' - メチレンビス (4, 6 - ジ - 第三ブチルフェノール)、2, 2' - エチリデンビス (4, 6 - ジ - 第三ブチルフェノール)、2, 2' - エチリデンビス (6 - 第三ブチル - 4 - イソブチルフェノール)、2, 2' - メチレンビス [6 - ( - メチルベンジル) - 4 - ノニルフェノール]、2, 2' - メチレンビス [6 - ( , - ジメチルベンジル) - 4 - ノニルフェノール]、4, 4' - メチレンビス (2, 6 - ジ - 第三ブチルフェノール)、4, 4' - メチレンビス (6 - 第三ブチル - 2 - メチルフェノール)、1, 1 - ビス (5 - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシ - 2 - メチルフェニル) ブタン、2, 6 - ビス (3 - 第三ブチル - 5 - メチル - 2 - ヒドロキシベンジル) - 4 - メチルフェノール、1, 1, 3 - トリス (5 - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシ - 2 - メチルフェニル) ブタン、1, 1 - ビス (5 - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシ - 2 - メチルフェニル) - 3 - n - ドデシルメルカプトブタン、エチレングリコールビス [3, 3 - ビス (3' - 第三ブチル - 4' - ヒドロキシフェニル) ブチレート]、ビス (3 - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシ - 5 - メチルフェニル) ジシクロペンタジエン、ビス [2 - (3' - 第三ブチル - 2' - ヒドロキシ - 5' - メチルベンジル) - 6 - 第三ブチル - 4 - メチルフェニル] テレフタレート、1, 1 - ビス (3, 5 - ジメチル - 2 - ヒドロキシフェニル) ブタン、2, 2 - ビス (3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル) プロパン、2, 2 - ビス (5 - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシ - 2 - メチルフェニル) - 4 - n - ドデシルメルカプトブタン、1, 1, 5, 5 - テトラ (5 - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシ - 2 - メチルフェニル) ペンタン。

## 【0133】

O -、N -、及び S - ベンジル化合物、

たとえば、3, 5, 3', 5' - テトラ - 第三ブチル - 4, 4' - ジヒドロキシジベンジルエーテル、オクタデシル - 4 - ヒドロキシ - 3, 5 - ジメチルベンジルメルカプトアセテート、トリデシル - 4 - ヒドロキシ - 3, 5 - ジ - 第三ブチルベンジルメルカプトアセテート、トリス (3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシベンジル) アミン、ビス (4 - 第三ブチル - 3 - ヒドロキシ - 2, 6 - ジメチルベンジル) ジチオテレフタレート、ビス (3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシベンジル) スルフィド、イソオクチル - 3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシベンジルメルカプトアセテート。

## 【0134】

ヒドロキシベンジル化マロネート、

たとえば、ジオクタデシル - 2, 2 - ビス - (3, 5 - ジ - 第三ブチル - 2 - ヒドロキシベンジル) マロネート、ジ - オクタデシル - 2 - (3 - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシ - 5 - メチルベンジル) マロネート、ジ - ドデシルメルカプトエチル - 2, 2 - ビス - (3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシベンジル) マロネート、ビス [4 - (1, 1, 3, 3 - テトラメチルブチル) フェニル] - 2, 2 - ビス (3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシベンジル) マロネート。

## 【0135】

芳香族ヒドロキシベンジル化合物、

10

20

30

40

50

たとえば、1, 3, 5 - トリス (3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシベンジル) - 2, 4, 6 - トリメチルベンゼン、1, 4 - ビス (3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシベンジル) - 2, 3, 5, 6 - テトラメチルベンゼン、2, 4, 6 - トリス (3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシベンジル) フェノール。

【0136】

トリアジン化合物、

たとえば、2, 4 - ビス (オクチルメルカプト) - 6 - (3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシアニリノ) - 1, 3, 5 - トリアジン、2 - オクチルメルカプト - 4, 6 - ビス (3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシアニリノ) - 1, 3, 5 - トリアジン、2 - オクチルメルカプト - 4, 6 - ビス (3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシフェノキシ) - 1, 3, 5 - トリアジン、2, 4, 6 - トリス (3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシフェノキシ) - 1, 2, 3 - トリアジン、1, 3, 5 - トリス - (3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシベンジル) イソシアヌレート、1, 3, 5 - トリス (4 - 第三ブチル - 3 - ヒドロキシ - 2, 6 - ジメチルベンジル) イソシアヌレート、2, 4, 6 - トリス (3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシフェニルエチル) - 1, 3, 5 - トリアジン、1, 3, 5 - トリス (3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシフェニルプロピオニル) - ヘキサヒドロ - 1, 3, 5 - トリアジン、1, 3, 5 - トリス (3, 5 - ジシクロヘキシル - 4 - ヒドロキシベンジル) イソシアヌレート。

【0137】

ベンジルホスホネート

たとえば、ジメチル - 2, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシベンジルホスホネート、ジエチル - 3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシベンジルホスホネート、ジオクタデシル - 3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシベンジルホスホネート、ジオクタデシル - 5 - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシ - 3 - メチルベンジルホスホネート、3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシベンジルホスホン酸のモノエチルエステルのカルシウム塩。

【0138】

アシルアミノフェノール、

たとえば、4 - ヒドロキシラウラニリド、4 - ヒドロキシステアラニリド、オクチル N - (3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル) - カルバメート。

【0139】

- (3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル) プロピオン酸と一価又は多価アルコールとのエステル、

たとえば、メタノール、エタノール、n - オクタノール、i - オクタノール、オクタデカノール、1, 6 - ヘキサンジオール、1, 9 - ノナンジオール、エチレングリコール、1, 2 - プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ペンタエリトリール、トリス (ヒドロキシエチル) イソシアヌレート、N, N' - ビス (ヒドロキシエチル) オキサミド、3 - チアウンデカノール、3 - チアペンタデカノール、トリメチルヘキサンジオール、トリメチロールプロパン、4 - ヒドロキシメチル - 1 - ホスファ - 2, 6, 7 - トリオキサビシクロ [2.2.2] オクタンとのエステル、例えば I r g a n o x (登録商標) 1076 などの市販品。

【0140】

- (5 - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシ - 3 - メチルフェニル) プロピオン酸と一価又は多価アルコールとのエステル、

たとえば、メタノール、エタノール、n - オクタノール、i - オクタノール、オクタデカノール、1, 6 - ヘキサンジオール、1, 9 - ノナンジオール、エチレングリコール、1, 2 - プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ペンタエリトリール、トリス (ヒドロキシエチル) イソシアヌレート、N, N' - ビス (ヒドロキシエチル) オキサミド、3 - チアウンデカノール、3 - チアペンタデカノール、トリメチルヘキサンジオール、トリメチロ

10

20

30

40

50

ールプロパン、4 - ヒドロキシメチル - 1 - ホスファ - 2 , 6 , 7 - トリオキサビシクロ [ 2 . 2 . 2 ] オクタンとのエステル ; 3 , 9 - ビス [ 2 - { 3 - ( 3 - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシ - 5 - メチルフェニル ) プロピオニルオキシ } - 1 , 1 - ジメチルエチル ] - 2 , 4 , 8 , 10 - テトラオキサスピロ [ 5 . 5 ] - ウンデカン。

【 0 1 4 1 】

- ( 3 , 5 - ジシクロヘキシル - 4 - ヒドロキシフェニル ) プロピオン酸と一価又は多価アルコールとのエステル、

たとえば、メタノール、エタノール、オクタノール、オクタデカノール、1 , 6 - ヘキサンジオール、1 , 9 - ノナンジオール、エチレングリコール、1 , 2 - プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ペンタエリトリール、トリス ( ヒドロキシエチル ) イソシアヌレート、N , N ' - ビス ( ヒドロキシエチル ) オキサミド、3 - チアウンデカノール、3 - チアペンタデカノール、トリメチルヘキサンジオール、トリメチロールプロパン、4 - ヒドロキシメチル - 1 - ホスファ - 2 , 6 , 7 - トリオキサビシクロ [ 2 . 2 . 2 ] オクタンとのエステル。

【 0 1 4 2 】

3 , 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル酢酸と一価又は多価アルコールとのエステル、

たとえば、メタノール、エタノール、オクタノール、オクタデカノール、1 , 6 - ヘキサンジオール、1 , 9 - ノナンジオール、エチレングリコール、1 , 2 - プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ペンタエリトリール、トリス ( ヒドロキシエチル ) イソシアヌレート、N , N ' - ビス ( ヒドロキシエチル ) オキサミド、3 - チアウンデカノール、3 - チアペンタデカノール、トリメチルヘキサンジオール、トリメチロールプロパン、4 - ヒドロキシメチル - 1 - ホスファ - 2 , 6 , 7 - トリオキサビシクロ [ 2 . 2 . 2 ] オクタンとのエステル。

【 0 1 4 3 】

- ( 3 , 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル ) プロピオン酸のアミド

たとえば、N , N ' - ビス ( 3 , 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシフェニルプロピオニル ) ヘキサメチレンジアミド、N , N ' - ビス ( 3 , 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシフェニルプロピオニル ) トリメチレンジアミド、N , N ' - ビス ( 3 , 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシフェニルプロピオニル ) ヒドラジド、N , N ' - ビス [ 2 - ( 3 - [ 3 , 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル ] プロピオニルオキシ ) エチル ] オキサミド ( ユニロイナルによって供給されるナウガード X L - 1 ( 登録商標 N a u g a r d ) ) 。

【 0 1 4 4 】

アスコルビン酸 ( ビタミン C )

【 0 1 4 5 】

2 . 光安定剤

2 - ( 2 ' - ヒドロキシフェニル ) ベンゾトリアゾール、

たとえば、

2 - ( 2 ' - ヒドロキシ - 5 ' - メチルフェニル ) ベンゾトリアゾール、2 - ( 3 ' , 5 ' - ジ - 第三ブチル - 2 ' - ヒドロキシフェニル ) ベンゾトリアゾール、2 - ( 5 ' - 第三ブチル - 2 ' - ヒドロキシフェニル ) ベンゾトリアゾール、2 - ( 2 ' - ヒドロキシ - 5 ' - ( 1 , 1 , 3 , 3 - テトラメチルブチル ) フェニル ) ベンゾトリアゾール、2 - ( 3 ' , 5 ' - ジ - 第三ブチル - 2 ' - ヒドロキシフェニル ) - 5 - クロロベンゾトリアゾール、2 - ( 3 ' - 第三ブチル - 2 ' - ヒドロキシ - 5 ' - メチルフェニル ) - 5 - クロロベンゾトリアゾール、2 - ( 3 ' - 第二ブチル - 5 ' - 第三ブチル - 2 ' - ヒドロキシフェニル ) ベンゾトリアゾール、2 - ( 2 ' - ヒドロキシ - 4 ' - オクチルオキシフェニル ) ベンゾトリアゾール、2 - ( 3 ' , 5 ' - ジ - 第三アミル - 2 ' - ヒドロキシフェニル )

10

20

30

40

50

ル)ベンゾトリアゾール、2-(3',5'-ビス( , -ジメチルベンジル)-2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(3'-第三ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-オクチルオキシカルボニルエチル)フェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(3'-第三ブチル-5'-[2-(2-エチルヘキシルオキシ)カルボニルエチル]-2'-ヒドロキシフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(3'-第三ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-メトキシカルボニルエチル)フェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(3'-第三ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-メトキシカルボニルエチル)フェニル)ベンゾトリアゾール、2-(3'-第三ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-オクチルオキシカルボニルエチル)フェニル)ベンゾトリアゾール、2-(3'-第三ブチル-5'-[2-(2-エチルヘキシルオキシ)カルボニルエチル]-2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(3'-ドデシル-2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(3'-第三ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-イソオクチルオキシカルボニルエチル)フェニル)ベンゾトリアゾール、2,2'-メチレンビス[4-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)-6-ベンゾトリアゾール-2-イルフェノール]; 2-[3'-第三ブチル-5'-(2-メトキシカルボニルエチル)-2'-ヒドロキシフェニル]-2H-ベンゾトリアゾールとポリエチレングリコール300とのエステル交換生成物;

10

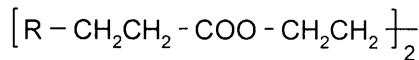
20

30

40

50

【化41】



(式中、Rは3'-第三ブチル-4'-ヒドロキシ-5'-2H-ベンゾトリアゾール-2-イルフェニル基を表す)、2-[2'-ヒドロキシ-3'-( , -ジメチルベンジル)-5'-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)フェニル]ベンゾトリアゾール; 2-[2'-ヒドロキシ-3'-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)-5'-( , -ジメチルベンジル)フェニル]ベンゾトリアゾール、例えば、TINUVIN 234、326、329、350、360又はTINUVIN 1577などのTinuvin(登録商標)シリーズからの市販の光安定剤。

【0146】

2-ヒドロキシベンゾフェノン、

たとえば、4-ヒドロキシ、4-メトキシ、4-オクチルオキシ、4-デシルオキシ、4-ドデシルオキシ、4-ベンジルオキシ、4,2',4'-トリヒドロキシ、及び2'-ヒドロキシ-4,4'-ジメトキシ誘導体。

【0147】

置換及び非置換の安息香酸のエステル、

たとえば、4-第三ブチル-フェニルサリチレート、フェニルサリチレート、オクチルフェニルサリチレート、ジベンゾイルレゾルシノール、ビス(4-第三ブチルベンゾイル)レゾルシノール、ベンゾイルレゾルシノール、2,4-ジ-第三ブチルフェニル-3,5-ジ-第三ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート、ヘキサデシル-3,5-ジ-第三ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート、オクタデシル-3,5-ジ-第三ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート、2-メチル-4,6-ジ-第三ブチルフェニル-3,5-ジ-第三ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート。

【0148】

アクリレート、

たとえば、エチル -シアノ- , -ジフェニルアクリレート、イソオクチル -シアノ- , -ジフェニルアクリレート、メチル -カルボメトキシシンナメート、メチル -シアノ- -メチル-p-メトキシシンナメート、ブチル -シアノ- -メチル-p-メトキシシンナメート、メチル -カルボメトキシ-p-メトキシシンナメート及びN-( -カルボメトキシ- -シアノビニル)-2-メチルインドリン。

【0149】

ニッケル化合物

たとえば、n - ブチルアミン、トリエタノールアミン、若しくはN - シクロヘキシルジエタノールアミンといった付加配位子を伴うか若しくは伴わない、1 : 1又は1 : 2の錯体といった、2, 2' - チオ - ビス [ 4 - ( 1, 1, 3, 3 - テトラメチルブチル ) フェノール ] のニッケル錯体、ニッケルジブチルジチオカルバメート、モノアルキルエステルのニッケル塩、たとえば、4 - ヒドロキシ - 3, 5 - ジ - 第三ブチルベンジルホスホン酸のメチル若しくはエチルエステル、ケトキシム、たとえば、2 - ヒドロキシ - 4 - メチルフェニルウンデシルケトキシムのニッケル錯体、付加的な配位子を伴うか若しくは伴わない1 - フェニル - 4 - ラウロイル - 5 - ヒドロキシピラゾールのニッケル錯体。

【 0 1 5 0 】

オキサミド、

たとえば、4, 4' - ジオクチルオキシオキサニリド、2, 2' - ジエトキシオキサニリド、2, 2' - ジオクチルオキシ - 5, 5' - ジ - 第三ブトキサニリド、2, 2' - ジドデシルオキシ - 5, 5' - ジ - 第三ブトキサニリド、2 - エトキシ - 2' - エチルオキサニリド、N, N' - ビス ( 3 - ジメチルアミノプロピル ) オキサミド、2 - エトキシ - 5 - 第三ブチル - 2' - エトキサニリド及びその2 - エトキシ - 2' - エチル - 5, 4' - ジ - 第三ブトキサニリドとの混合物、o - 及びp - メトキシ - 二置換オキサニリドの混合物、並びに、o - 及びp - エトキシ - 二置換オキサニリドの混合物。

【 0 1 5 1 】

2 - ( 2 - ヒドロキシフェニル ) - 1, 3, 5 - トリアジン、

たとえば、2, 4, 6 - トリス ( 2 - ヒドロキシ - 4 - オクチルオキシフェニル ) - 1, 3, 5 - トリアジン、2 - ( 2 - ヒドロキシ - 4 - オクチルオキシフェニル ) - 4, 6 - ビス ( 2, 4 - ジメチルフェニル ) - 1, 3, 5 - トリアジン、2 - ( 2, 4 - ジヒドロキシフェニル ) - 4, 6 - ビス ( 2, 4 - ジメチルフェニル ) - 1, 3, 5 - トリアジン、2 - ( 2, 4 - ジメチルフェニル ) - 1, 3, 5 - トリアジン、2 - ( 2 - ヒドロキシ - 4 - オクチルオキシフェニル ) - 4, 6 - ビス ( 4 - メチルフェニル ) - 1, 3, 5 - トリアジン、2 - ( 2 - ヒドロキシ - 4 - ドデシルオキシフェニル ) - 4, 6 - ビス ( 2, 4 - ジメチルフェニル ) - 1, 3, 5 - トリアジン、2 - ( 2 - ヒドロキシ - 4 - トリデシルオキシフェニル ) - 4, 6 - ビス ( 2, 4 - ジメチルフェニル ) - 1, 3, 5 - トリアジン、2 - [ 2 - ヒドロキシ - 4 - ( 2 - ヒドロキシ - 3 - ブチルオキシプロポキシ ) フェニル ] - 4, 6 - ビス ( 2, 4 - ジメチル ) - 1, 3, 5 - トリアジン、2 - [ 2 - ヒドロキシ - 4 - ( 2 - ヒドロキシ - 3 - オクチルオキシプロピルオキシ ) フェニル ] - 4, 6 - ビス ( 2, 4 - ジメチル ) - 1, 3, 5 - トリアジン、2 - [ 4 - ( ドデシルオキシ / トリデシルオキシ - 2 - ヒドロキシプロポキシ ) - 2 - ヒドロキシフェニル ] - 4, 6 - ビス ( 2, 4 - ジメチルフェニル ) - 1, 3, 5 - トリアジン、2 - [ 2 - ヒドロキシ - 4 - ( 2 - ヒドロキシ - 3 - ドデシルオキシプロポキシ ) フェニル ] - 4, 6 - ビス ( 2, 4 - ジメチルフェニル ) - 1, 3, 5 - トリアジン、2 - ( 2 - ヒドロキシ - 4 - ヘキシルオキシ ) フェニル - 4, 6 - ジフェニル - 1, 3, 5 - トリアジン、2 - ( 2 - ヒドロキシ - 4 - メトキシフェニル ) - 4, 6 - ジフェニル - 1, 3, 5 - トリアジン、2, 4, 6 - トリス [ 2 - ヒドロキシ - 4 - ( 3 - ブトキシ - 2 - ヒドロキシプロポキシ ) フェニル ] - 1, 3, 5 - トリアジン、2 - ( 2 - ヒドロキシフェニル ) - 4 - ( 4 - メトキシフェニル ) - 6 - フェニル - 1, 3, 5 - トリアジン、2 - [ 2 - ヒドロキシ - 4 - [ 3 - ( 2 - エチルヘキシル - 1 - オキシ ) - 2 - ヒドロキシプロピルオキシ ] フェニル ] - 4, 6 - ビス ( 2, 4 - ジメチルフェニル ) - 1, 3, 5 - トリアジン。

【 0 1 5 2 】

3 . 金属奪活剤

たとえば、N, N' - ジフェニルオキサミド、N - サリチラル - N' - サリチロイルヒドラジン、N, N' - ビス ( サリチロイル ) ヒドラジン、N, N' - ビス ( 3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシフェニルプロピオニル ) ヒドラジン、3 - サリチロイルアミノ - 1, 2, 4 - トリアゾール、ビス ( ベンジリデン ) オキサリルジヒドラジド、オキサニ

10

20

30

40

50

リド、イソフタロイルジヒドラジド、セバコイルビスフェニルヒドラジド、N, N' - ジアセチルアジポイルジヒドラジド、N, N' - ビス(サリチロイル)オキサリルジヒドラジド、N, N' - ビス(サリチロイル)チオプロピオニルジヒドラジド。

【0153】

4. 更なるホスフィット及びホスホナイト、

たとえば、トリフェニルホスフィット、ジフェニルアルキルホスフィット、フェニルジア  
 ルキルホスフィット、トリス(ノニルフェニル)ホスフィット、トリラウリルホスフィ  
 ット、トリオクタデシルホスフィット、ジステアリルペンタエリトリールジホスフィ  
 ット、トリス(2, 4 - ジ - 第三ブチルフェニル)ホスフィット、ジイソデシルペンタエリ  
 トリールジホスフィット、ビス(2, 4 - ジ - 第三ブチルフェニル)ペンタエリトリール  
 ジホスフィット、ビス(2, 4 - ジクミルフェニル)ペンタエリトリールジホスフィ  
 ット、ビス(2, 6 - ジ - 第三ブチル - 4 - メチルフェニル) - ペンタエリトリールジ  
 ホスフィット、ジイソデシルオキシペンタエリトリールジホスフィット、ビス(2, 4  
 - ジ - 第三ブチル - 6 - メチルフェニル)ペンタエリトリールジホスフィット、ビス(2, 4, 6 - トリス(第三ブチルフェニル)ペンタエリトリールジホスフィット、トリス  
 ステアリルソルビトールトリホスフィット、テトラキス(2, 4 - ジ - 第三ブチルフェニ  
 ル)4, 4' - ビフェニレンジホスホナイト、6 - イソオクチルオキシ - 2, 4, 8, 1  
 0 - テトラ - 第三ブチル - 12H - ジベンズ[d, g] - 1, 3, 2 - ジオキサホスホシ  
 ン、ビス(2, 4 - ジ - 第三ブチル - 6 - メチルフェニル)メチルホスフィット、ビス(2, 4 - ジ - 第三ブチル - 6 - メチルフェニル)エチルホスフィット、6 - フルオロ - 2  
 , 4, 8, 10 - テトラ - 第三ブチル - 12 - メチル - ジベンズ[d, g] - 1, 3, 2  
 - ジオキサホスホシン、2, 2', 2'' - ニトリロ[トリエチルトリス(3, 3'', 5  
 , 5' - テトラ - 第三ブチル - 1, 1' - ビフェニル - 2, 2' - ジイル)ホスフィット  
 ]、2 - エチルヘキシル(3, 3', 5, 5' - テトラ - 第三ブチル - 1, 1' - ビフェ  
 ニル - 2, 2' - ジイル)ホスフィット、5 - ブチル - 5 - エチル - 2 - (2, 4, 6 -  
 トリ - 第三ブチルフェノキシ) - 1, 3, 2 - ジオキサホスフィラン。

10

20

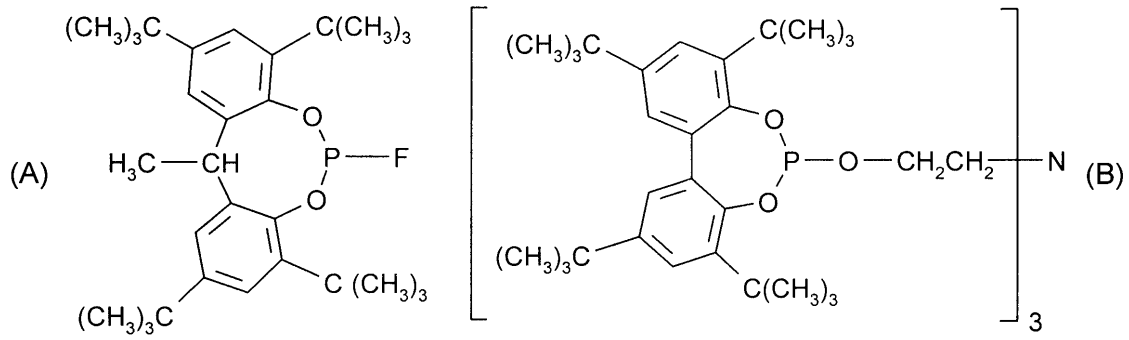
【0154】

特に好まれるのは以下のホスフィットである：

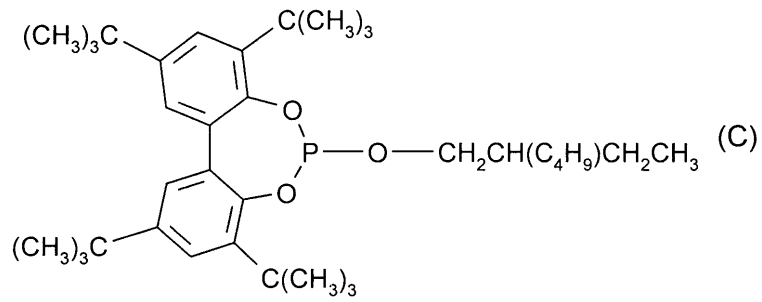
トリス(2, 4 - ジ - 第三ブチルフェニル)ホスフィット(イルガフォス168、チバ・  
 スペシャルティ・ケミカルズ社(登録商標：I r g a f o s))、トリス(ノニルフェニ  
 ル)ホスフィット、

30

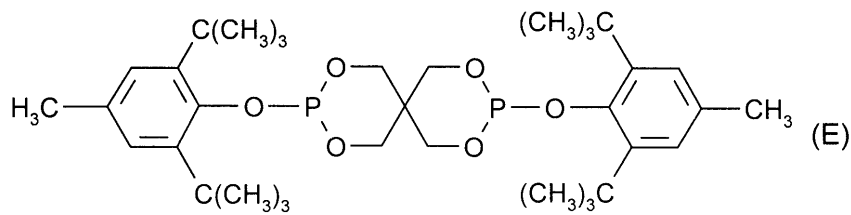
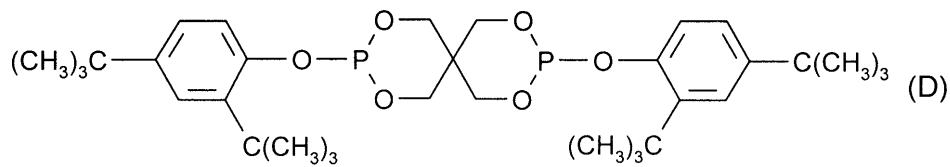
【化 4 2】



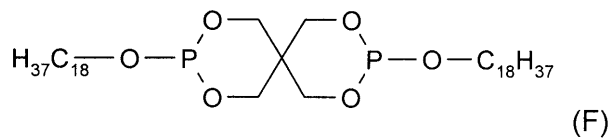
10



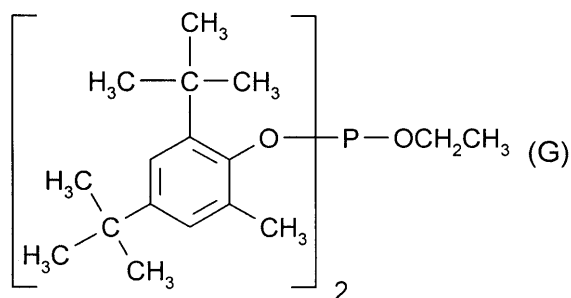
20



30



40



【 0 1 5 5】

5. さ ら な る ニ ト ロ ン、

50

たとえば、N - ベンジル - アルファ - フェニルニトロン、N - エチル - アルファ - メチルニトロン、N - オクチル - アルファ - ヘプチルニトロン、N - ラウリル - アルファ - ウンデシルニトロン、N - テトラデシル - アルファ - トリデシルニトロン、N - ヘキサデシル - アルファ - ペンタデシルニトロン、N - オクタデシル - アルファ - ヘプタデシルニトロン、N - ヘキサデシル - アルファ - ヘプタデシルニトロン、N - オクタデシル - アルファ - ペンタデシルニトロン、N - ヘプタデシル - アルファ - ヘプタデシルニトロン、N - オクタデシル - アルファ - ヘキサデシルニトロン、水素化牛脂アミン由来のN, N - ジアルキルヒドロキシルアミン由来のニトロン。

【0156】

6 . チオ相乗剤、

たとえば、ジラウリルチオジプロピオネート又はジステアリルチオジプロピオネート。

【0157】

7 . 過酸化物捕捉剤、

たとえば、 - チオジプロピオン酸のエステル、たとえばラウリル、ステアリル、ミリスチル、若しくはトリデシルエステル、メルカプトベンゾイミダゾール若しくは2 - メルカプトベンゾイミダゾールの亜鉛塩、亜鉛ジブチルジチオカルバメート、ジオクタデシルジスルフィド、ペンタエリトリールテトラキス( - ドデシルメルカプト)プロピオネート。

【0158】

8 . ポリアミド安定剤、

たとえば、ヨウ化物及び/又はリン化合物と組合せた銅塩、及び、二価マンガン塩。

【0159】

9 . 塩基性補助安定剤、

たとえば、メラミン、ポリビニルピロリドン、ジシアンジアミド、トリアリルシアヌレート、尿素誘導体、ポリアミド、ポリウレタン、たとえばカルシウムステアレート、亜鉛ステアレート、マグネシウムベヘネート、マグネシウムステアレート、ナトリウムリシノレート、及びカリウムパルミテートなどの高級脂肪酸のアルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩、アンチモンピロカテコレート、又は亜鉛ピロカテコレート。

【0160】

10 . 核剤、

たとえば、タルクなどの無機物質、二酸化チタン又は酸化マグネシウムなどの金属酸化物、好ましくはアルカリ土類金属のリン酸塩、炭酸塩、又は硫酸塩；モノあるいはポリカルボン酸などの有機化合物及びそれらの塩、たとえば、4 - 第三ブチル安息香酸、アジピン酸、ジフェニル酢酸、コハク酸ナトリウム又は安息香酸ナトリウム；イオン化コポリマー(アイオノマー)などのポリマー化合物。特に好ましいのは、1, 3 : 2, 4 - ビス(3', 4' - ジメチルベンジリデン)ソルビトール、1, 3 : 2, 4 - ジ(パラメチルジベンジリデン)ソルビトール、及び1, 3 : 2, 4 - ジ(ベンジリデン)ソルビトール。

【0161】

11 . 更なる充填剤及び強化剤、

たとえば、炭酸カルシウム、シリケート、ガラスファイバー、ガラス球、ステンレススチールファイバー、アラミドファイバー、アスベスト、タルク、カオリン、マイカ、硫酸バリウム、金属酸化物及び金属水酸化物、カーボンブラック、グラファイト、木粉及び他の天然物の粉末又は繊維、合成繊維。

【0162】

12 . その他の添加剤、

たとえば、ブレンド相溶化剤、可塑剤、滑剤、乳化剤、顔料、レオロジー添加剤、触媒、流量調整剤、蛍光増白剤、防炎剤、帯電防止剤、及び発泡剤。

【0163】

13 . 更なるベンゾフラノン及びインドリノン、

たとえば、米国特許第4, 325, 863号明細書；米国特許第4, 338, 244号明

10

20

30

40

50

細書；米国特許第 5, 175, 312 号明細書；米国特許第 5, 216, 052 号明細書；又は米国特許第 5, 252, 643 号明細書；独国特許出願公開第 4316611 号明細書；独国特許出願公開第 4316622 号明細書；独国特許出願公開第 4316876 号明細書；欧州特許出願公開第 0589839 号明細書又は欧州特許出願公開第 0591102 号明細書に開示されるもの、又は、3 - [ 4 - ( 2 - アセトキシエトキシ ) - フェニル ] - 5, 7 - ジ - 第三ブチル - ベンゾフラノ - 2 - オン、5, 7 - ジ - 第三ブチル - 3 - [ 4 - ( 2 - ステアロイルオキシエトキシ ) フェニル ] ベンゾフラノ - 2 - オン、3, 3' - ビス [ 5, 7 - ジ - 第三ブチル - 3 - ( 4 - [ 2 - ヒドロキシエトキシ ] フェニル ) ベンゾフラノ - 2 - オン ]、5, 7 - ジ - 第三ブチル - 3 - ( 4 - エトキシフェニル ) ベンゾフラノ - 2 - オン、3 - ( 4 - アセトキシ - 3, 5 - ジメチルフェニル ) - 5, 7 - ジ - 第三ブチルベンゾフラノ - 2 - オン、3 - ( 3, 5 - ジメチル - 4 - ピバロイルオキシフェニル ) - 5, 7 - ジ - 第三ブチルベンゾフラノ - 2 - オン、3 - ( 3, 4 - ジメチルフェニル ) - 5, 7 - ジ - 第三ブチルベンゾフラノ - 2 - オン、3 - ( 2, 3 - ジメチルフェニル ) - 5, 7 - ジ - 第三ブチルベンゾフラノ - 2 - オン。

【 0 1 6 4 】

上述に定義したように組成物への更なる好ましい添加剤は、プロセス安定剤、例えば上述に定義したホスフィット及びフェノール性抗酸化剤、並びに光安定剤、例えばベンゾトリアゾールである。好ましい具体的な抗酸化剤としては、オクタデシル - 3 - ( 3, 5 - ジ - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル ) - プロピオネート ( I R G A N O X 1076 ) が挙げられる。具体的なプロセス安定剤としては、トリス ( 2, 4 - ジ - 第三ブチルフェニル ) ホスフィット ( I R G A F O S 168 ) 及びテトラキス ( 2, 4 - ジ - 第三ブチルフェニル ) [ 1, 1 - ビフェニル ] - 4, 4' - ジイルビスホスホナイト ( I R G A F O S P - E P Q ) が挙げられる。具体的な光安定剤としては、2 - ( 2 H - ベンゾトリアゾール - 2 - イル ) - 4, 6 - ビス ( 1 - メチル - 1 - フェニルエチル ) フェノール ( T I N U V I N 234 )、2 - ( 5 - クロロ ( 2 H ) - ベンゾトリアゾール - 2 - イル ) - 4 - ( メチル ) - 6 - ( 第三ブチル ) - フェノール ( T I N U V I N 326 )、2 - ( 2 H - ベンゾトリアゾール - 2 - イル ) - 4 - ( 1, 1, 3, 3 - テトラメチルブチル ) フェノール ( T I N U V I N 329 )、2 - ( 2 H - ベンゾトリアゾール - 2 - イル ) - 4 - ( 第三ブチル ) - 6 - ( 第二ブチル ) フェノール ( T I N U V I N 350 )、2, 2' - メチレンビス ( 6 - ( 2 H - ベンゾトリアゾール - 2 - イル ) - 4 - ( 1, 1, 3, 3 - テトラメチルブチル ) フェノール ) ( T I N U V I N 360 )、及び 2 - ( 4, 6 - ジフェニル - 1, 3, 5 - トリアジン - 2 - イル ) - 5 - [ ( ヘキシル ) オキシ ] - フェノール ( T I N U V I N 1577 ) である。

【 0 1 6 5 】

上述の添加剤は、ポリマー成分 b ) の質量に対して、好ましくは 0.01 乃至 10 質量 %、特に 0.05 乃至 5.0 質量 % の量で含まれる。

【 0 1 6 6 】

添加剤成分 a ) 及び所望により更なる成分のポリマー成分への混和は、既知の方法で、例えばパウダー形態でのドライ混合、又は例えば不活性な溶媒、分散液又は懸濁液の形態で、例えば水又はオイルの溶液中のウェット混合で、実施される。添加剤成分 a ) 及び所望により更なる添加剤は、例えば、成形の前後、又は溶解又は分散させた添加剤又は添加剤混合物をポリマー材料に加えることによって、その後の溶媒又は懸濁剤 / 分散剤の蒸発を伴うか又は伴わずに、混和され得る。これらは、例えばドライ混合物又はパウダーとして、或いは、溶液又や分散液又は懸濁液又は溶融物として、処理装置 ( 例えば押出機、内部ミキサーなど ) へ直接加えられ得る。

【 0 1 6 7 】

添加剤成分のポリマー b ) への添加は、ポリマーが溶融し添加剤と混合されるような慣習的な混合装置の中で実施可能である。適当な装置は当業者に既知である。これらは主にミキサー、ニーダー及び押出機である。

【 0 1 6 8 】

10

20

30

40

50

本方法は、好ましくは、工程中に押出機内で添加剤を導入することによって実施される。

【0169】

特に好ましい処理装置は、単軸押出機、二重反転及び共回転二軸押出機、遊星ギア押出機、環状押出機又は共ニーダーである。真空が適用できる少なくとも一種のガス除去区画を備えた処理装置の使用もまた可能である。

【0170】

適当な押出機及びニーダーは、例えば、Handbuch der Kunststoffextrusion, 1巻 Grundlagen, 編者 F. ハンセン, W. クナッペ, H. ポテンテ, 1989年, 3 - 7頁, ISBN: 3 - 446 - 14339 - 4 (2巻 Extrusionsanlagen 1986年, ISBN: 3 - 446 - 14329 - 7) に記載されている。

10

【0171】

例えば、スクリュウ長はスクリュウ径1 - 60であり、好ましくはスクリュウ径35 - 48である。スクリュウの回転速度は、好ましくは10 - 600回転/分(rpm)、好ましくは25 - 300rpmである。

【0172】

最大スループットは、スクリュウ径、回転速度及び駆動力によって決まる。本発明の方法はまた、上述のパラメーターの変動又は投与量を分配する計量機の採用によって、最大スループットより低いレベルでも実施され得る。

20

【0173】

多量の成分が添加される場合、事前混合又は個々に添加され得る。

【0174】

添加剤成分a)及び所望により更なる添加剤はまた、ポリマー基材b)上に噴霧され得る。添加剤混合物は、ポリマー基材上にこれら他の添加剤と共に噴霧可能とするために、例えば上述した従来の添加剤やその溶融物などのほかの添加剤で希釈される。重合触媒の非活性化の間の噴霧による添加は、特に有利である；この場合、発生した蒸気が触媒の非活性化に使用され得る。球状に重合されたポリオレフィンの場合には、例えば、所望により他の添加剤と共に本発明の添加剤を噴霧によって適用することは有利であり得る。

30

【0175】

添加剤成分a)及び所望により更なる添加剤はまた、例えば約1.0質量%乃至約40.0質量%、好ましくは2.0質量%乃至約20.0質量%の濃度でポリマー中に混和された成分を含む、マスターバッチ(“濃縮物”)の形態で、ポリマーに同様に添加可能である。該ポリマーは、添加剤が最後に添加されたポリマーと同一構造を有する必要はない。この方法において、ポリマーは、パウダー、顆粒、溶液及び懸濁液形態で、又は格子形態で使用可能である。

【0176】

混和は、成型操作の前又はその間に実施される。本書に記載された本発明の添加剤を含む材料は、好ましくは、成形物品、例えば回転成形物品、射出成形物品、プロファイルやそのようなものなど、特に繊維、スパンメルト不織布、フィルム又はフォームの製造に使用される。

40

【0177】

従って、本発明はさらに、本発明の組成物を含む成形又は押出物品、繊維、スパンメルト不織布またはフォームに関する。

【実施例】

【0178】

以下の実施例は本発明を説明する：

実施例

材料及び方法

PC145樹脂(GEプラスチック社)を8時間120 で真空乾燥し、イルガフォ

50

ス (IRGAFOS) (登録商標) P-EPQ (チバ スペシャルティ ケミカルズ社) で安定化させた。ダイネオン (Dyneon) PA5931 (= PTFE) をアンチドリッピング剤として用いた。

表 1 に示すポリカーボネート組成物を、Haake TW-100 上に 280 で押し出し、ストランド造粒でペレット化した。120、12 時間の乾燥後、造粒した組成物を 290 で、保険業者研究所難燃性基準 UL-94 に従って、1.6 mm 又は 3.2 mm 厚さのブランクに射出成形した。

UL-94 に従って、垂直モードで試験した。

【0179】

【表 1】

10

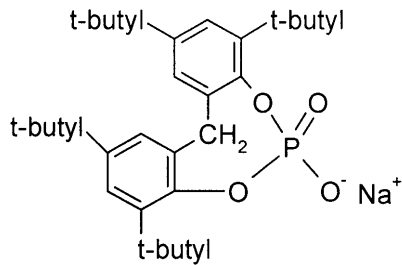
実施例	PC 145 樹脂 [質量-%]	IRGAFOS [質量-%]	FR [質量-%]	PTFE [質量-%]	UL-94
1	99.57	0.08	0.1	0.25	V-0 (1.6mm)
2	99.82	0.08	0.1	0	V-0 (3.2mm)
比較例	99.92	0.08	—	—	V-2 (1.6mm)

【0180】

難燃剤 (FR) は組成物中に存在している：

20

【化 43】



(イルガスタブ (登録商標) NA11)

30

## 【 国際調査報告 】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/EP2007/051315

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER INV. C08K5/523 C08L69/00 C08K5/521		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C08K C08L		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the International search (name of data base and, where practical, search terms used) EPO-Internal		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 342 696 A2 (TEIJIN CHEMICALS LTD [JP]) 23 November 1989 (1989-11-23) page 3, line 47 - page 4, line 13; claims 1,2; examples 2,11; compound II	1-8
X	EP 0 522 432 A2 (TEIJIN CHEMICALS LTD [JP]) 13 January 1993 (1993-01-13) page 4, lines 11-14; claims 1-5	1-8
X	DE 198 28 535 A1 (BAYER AG [DE]) 30 December 1999 (1999-12-30) page 9, lines 42-58; claims 1-15; example 7	1,2,6-8
<input 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:		
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "Z" document member of the same patent family
Date of the actual completion of the international search <b>1 June 2007</b>		Date of mailing of the international search report <b>12/06/2007</b>
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel: (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer <b>Sperry, Pascal</b>

2

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2007/051315

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0342696	A2	23-11-1989	DE 68925751 D1	04-04-1996
			DE 68925751 T2	01-08-1996
			JP 2180956 A	13-07-1990
			JP 2888860 B2	10-05-1999
			US 5013776 A	07-05-1991
EP 0522432	A2	13-01-1993	DE 69222894 D1	04-12-1997
			DE 69222894 T2	26-03-1998
			JP 2812821 B2	22-10-1998
			JP 5009371 A	19-01-1993
			US 5234980 A	10-08-1993
DE 19828535	A1	30-12-1999	AU 4609299 A	17-01-2000
			BR 9911577 A	20-03-2001
			CA 2335946 A1	06-01-2000
			CN 1307610 A	08-08-2001
			DK 1095099 T3	21-07-2003
			WO 0000544 A1	06-01-2000
			EP 1095099 A1	02-05-2001
			ES 2192059 T3	16-09-2003
			JP 2002519464 T	02-07-2002
			US 6613822 B1	02-09-2003

## 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, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW

(74)代理人 100109690

弁理士 小野塚 薫

(74)代理人 100135035

弁理士 田上 明夫

(74)代理人 100131266

弁理士 高 昌宏

(74)代理人 100146237

弁理士 森 則雄

(74)代理人 100153475

弁理士 山田 清治

(72)発明者 ブライナー, クリスティン

ドイツ国, 6 9 5 1 4 ラオデンバッハ, リースリングシュトラッセ 5 3

Fターム(参考) 4H028 AA22 AA34 AA35 BA06

4J002 BD152 CG001 CG011 EW046 FD010 FD030 FD040 FD070 FD132 FD136

GK01