

(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2017-527679

(P2017-527679A)

(43) 公表日 平成29年9月21日(2017.9.21)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
CO8F 8/50 (2006.01)	CO8F 8/50	4J002
CO8F 8/00 (2006.01)	CO8F 8/00	4J011
CO8F 4/32 (2006.01)	CO8F 4/32	4J015
CO8F 2/38 (2006.01)	CO8F 2/38	4J100
CO8L 101/00 (2006.01)	CO8L 101/00	

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 47 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2017-515052 (P2017-515052)	(71) 出願人	503306168 フラウンホーファー・ゲゼルシャフト・ツ ール・フェルデルング・デア・アンゲヴァ ンテン・フォルシュング・エー・ファウ ドイツ連邦共和国、80686 ミュンヘ ン、ハンザストラーセ、27ツェー
(86) (22) 出願日	平成27年9月16日 (2015.9.16)	(74) 代理人	110000475 特許業務法人みのり特許事務所
(85) 翻訳文提出日	平成29年5月12日 (2017.5.12)	(72) 発明者	ブフェンドナー, ルドルフ ドイツ連邦共和国、64668 リムバッ ハ、ザックガッセ 3
(86) 国際出願番号	PCT/EP2015/071249	(72) 発明者	マズロースキー, マルクス ドイツ連邦共和国、65462 ギンスハ イム-グスタフ、ヴァイゼナウアーシュト ラーセ 2
(87) 国際公開番号	W02016/042038		
(87) 国際公開日	平成28年3月24日 (2016.3.24)		
(31) 優先権主張番号	102014218811.3		
(32) 優先日	平成26年9月18日 (2014.9.18)		
(33) 優先権主張国	ドイツ (DE)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 プラスチック材料中でのラジカル生成剤としての有機オキシイミドの使用、プラスチック材料中でのラジカル生成方法、及び前記方法の使用

(57) 【要約】

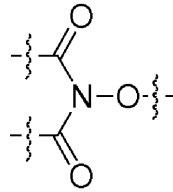
本発明は、以下に示す一般式 I によるリン含有-有機オキシイミドの、プラスチック材料のための難燃剤としての、プラスチック材料中でのラジカル生成剤としての、及び/又はプラスチック材料のための安定剤としての使用に関する。本発明は、さらに、前述のリン含有有機オキシイミドを含む難燃性プラスチック成形材料、及び前述のプラスチック材組成物の製造方法に関する。さらに、本発明は、前述の難燃性プラスチック材組成物からなる、成形品、塗料又はコーティングに関する。

【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

以下に示す式 I の構成要素を少なくとも 1 つ含む有機オキシイミドの、プラスチック材料におけるラジカル生成剤としての使用。



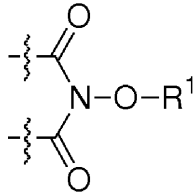
式 I

10

【請求項 2】

前記オキシイミドが、以下からなる群より選択されることを特徴とする、請求項 1 に記載の使用：

a) 以下の式 II の構成要素を少なくとも 1 つ含むオキシイミド

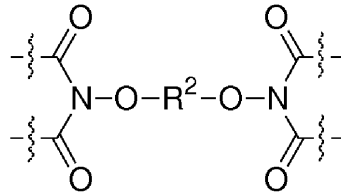


式 II

20

(上式にて、 R^1 は、水素、又は置換されていてもよい、アルキル-、シクロアルキル-、アリール-、ヘテロアリール-、又はアシル基を示す)、及び

b) 以下の式 III の構成要素を少なくとも 1 つ含む架橋オキシイミド



式 III

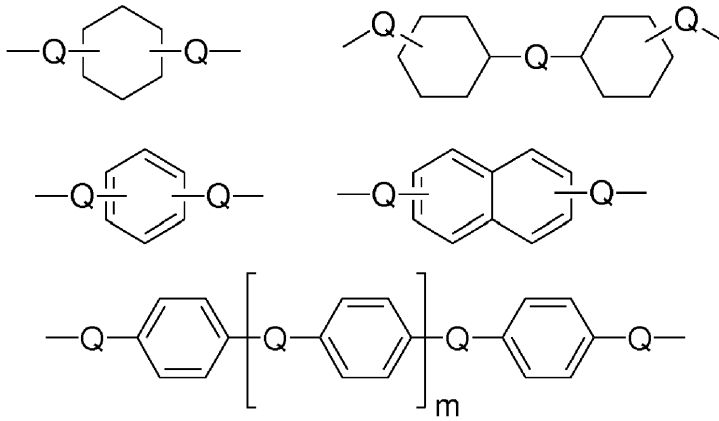
30

(上式にて、 R^2 は、置換されていてもよい、アルキレン-、シクロアルキレン-、アリーレン-、ヘテロアリーレン-、又は架橋アシル基を示す)。

【請求項 3】

R^2 が、 n が 1 ~ 18 である $-(CH_2)_n-$ 、 $-CH(CH_3)-$ 、 $-C(CH_3)_2-$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-SO_2-$ 、 $-NHCO-$ 、 $-CO-$ 、及び以下に示す基からなる群より選択されることを特徴とする、請求項 2 に記載の使用：

40



10

(上に示した基に含まれる脂環式又は芳香族環系は、非置換でも、又は一以上のアルキル基及び/又はアルコキシ基で置換されていてもよく、

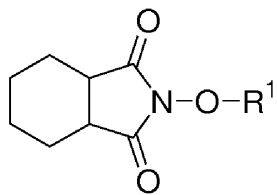
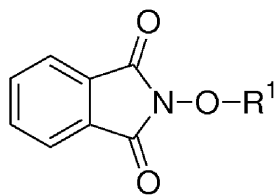
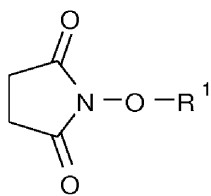
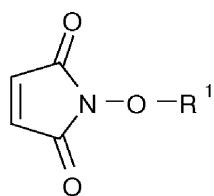
Qは、同じであるか異なるものであり、化学結合、及び、nが1～18である $-(CH_2)_n-$ 、 $-CH(CH_3)-$ 、 $-C(CH_3)_2-$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-SO_2-$ 、 $-NHCO-$ 、 $-CO-$ 、 $-O-C(O)-O-$ の基からなる群より選択され、且つ、

mは、0又は1～18である)。

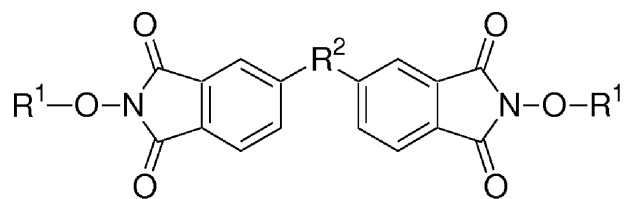
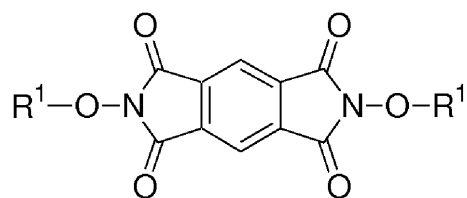
【請求項4】

前記有機オキシミドが、以下の式の1つを有することを特徴とする、請求項1～3のいずれか1項に記載の使用。

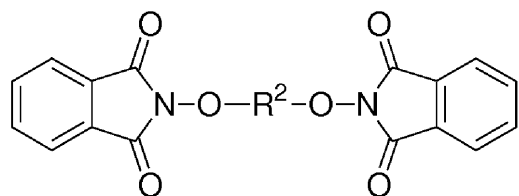
20



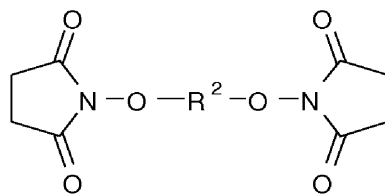
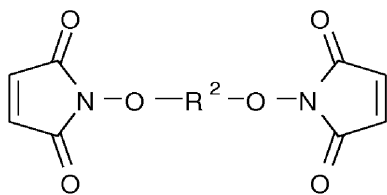
10

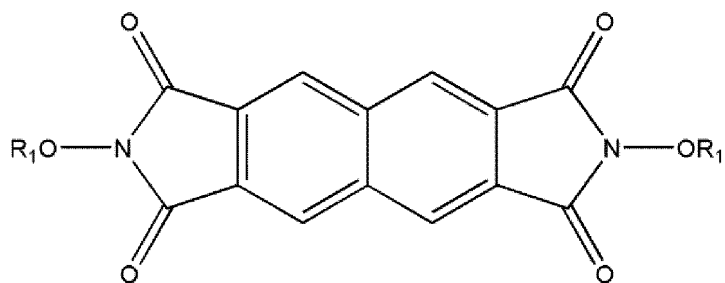
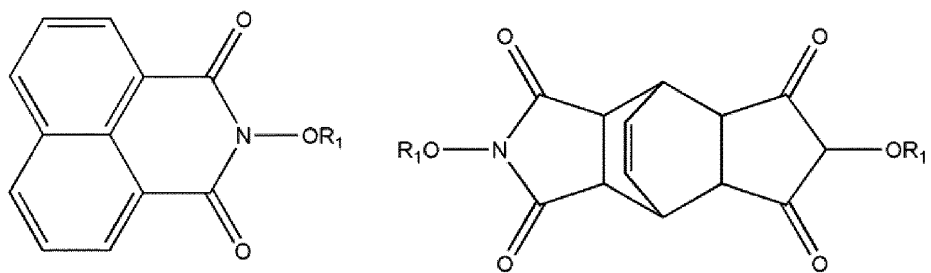


20

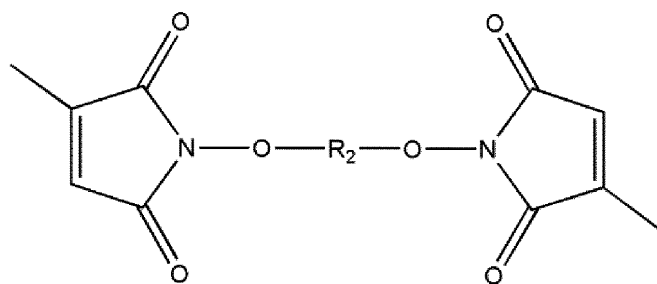


30

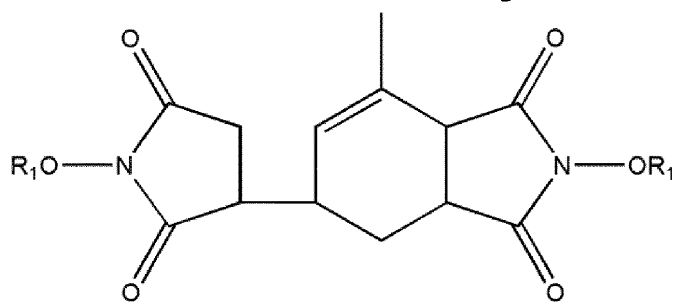




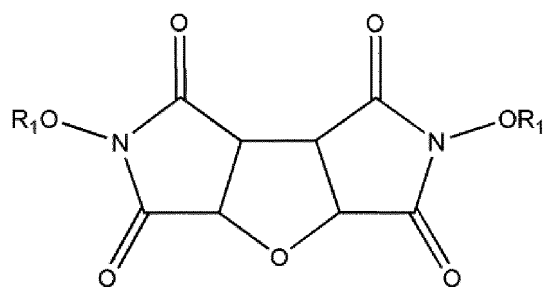
10



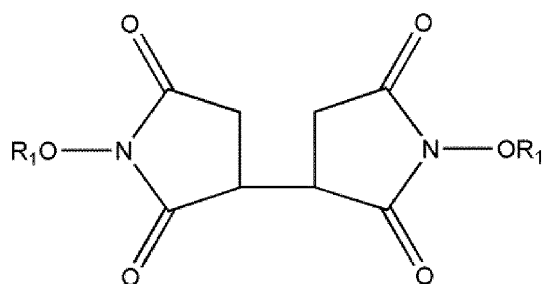
20

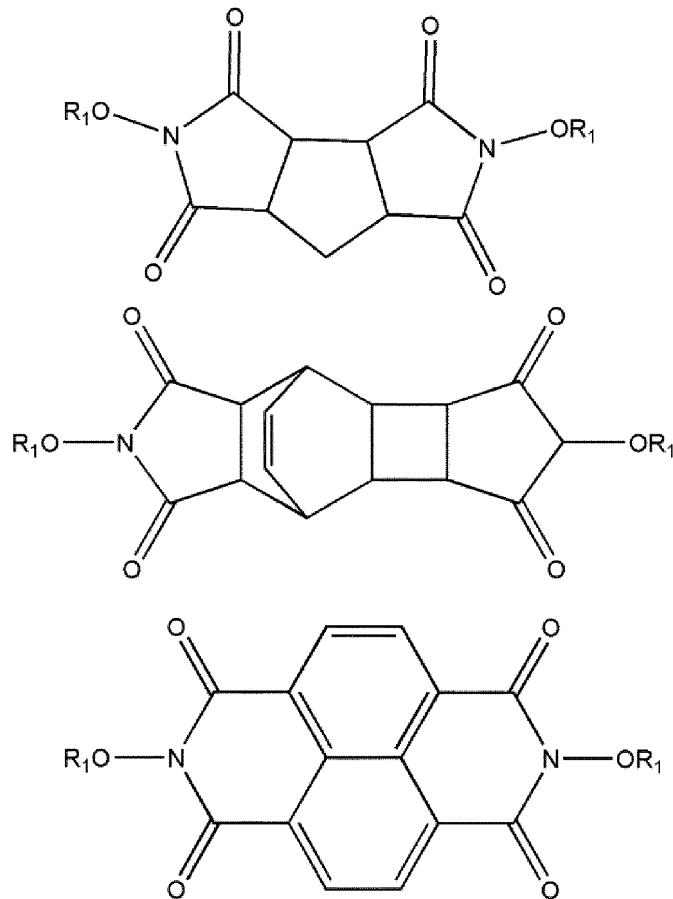


30



40





10

20

(上式にて、 R^1 と R^2 はそれぞれ、上記の意味を有する)

【請求項 5】

R^1 = 水素、 R^1 = アルキル基、又は R^1 = アシル基であることを特徴とする、請求項 2 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の使用。

【請求項 6】

式 I による前記有機オキシイミドが、少なくとも 1 種の連鎖移動剤、特に、チオール、ジスルフィド、リン酸エステル、ホスフィン、有機ハロゲン化物（例えば、ヨウ化物、臭化物、塩化物）、酸エステル、アルデヒド又は三級アミンからなる群より選択される少なくとも 1 種の連鎖移動剤、特にプラスチック材料の加工温度より高い沸点を有する連鎖移動剤と併用されることを特徴とする、請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の使用。

30

【請求項 7】

式 I による前記有機オキシイミドが、以下の群より選択される多官能性化合物の少なくとも 1 種と併用されることを特徴とする、請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の使用：

a) 反復不飽和オリゴマー及びポリマー（ポリブタジエン又はポリイソプレンをベースとするもの）、

40

b) ジ-及びポリ-ビニル化合物、例えば、ジビニル-ベンゼン、

c) ジ-及びポリ-アリル化合物、例えば、ポリアリルエーテル、又はポリアリルエステル、トリアリルイソシアヌレート、トリアリルシアヌレート、ジアリル-ビスフェノール A、

d) ジ-及びポリ-マレイミド、

e) ジ-及びポリアルコールのジ-及びポリ(メタ)アクリルエステル、及び/又は

f) 有機官能シラン。

【請求項 8】

式 I による前記有機オキシイミドが、少なくとも 1 種のニトロキシラジカルと併用されることを特徴とする、請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載の使用。

50

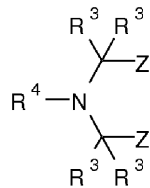
【請求項 9】

式 I による前記有機オキシイミドが、少なくとも 1 種の触媒性化合物、特に、遷移金属（例えば、銅、マンガン又は鉄）の金属塩、例えば、酢酸塩の形態のもの（例えば、酢酸 Cu(I)）からなる群より選択される触媒性化合物と併用されることを特徴とする、請求項 1 ~ 8 のいずれか 1 項に記載の使用。

【請求項 10】

式 I による前記有機オキシイミドが、少なくとも 1 種のさらなるラジカル形成剤、好ましくは、N-アルコキシアミン、-C-C-ラジカル形成剤、アゾ基(-N=N-)を有するラジカル形成剤、ヒドラジン基(-NH-HN-)を有するラジカル形成剤、ヒドラゾン基(>C=N-NH-)を有するラジカル形成剤、アジン基(>C=N-N=C<)を有するラジカル形成剤、トリアゼン基(-N=N-N<)を有するラジカル形成剤、ジスルフィド-又はポリスルフィド基(-S-S-)を有するラジカル形成剤、チオール基(-S-H)を有するラジカル形成剤、チウラムスルフィド、ジチオカルバメ-ト、メルカプトベンゾチアゾール、スルフェンアミドからなる群より選択されるラジカル形成剤、特に、以下からなる群より選択されるラジカル形成剤と併用されることを特徴とする、請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項に記載の使用：

a) 以下に示す構造式の N-アルコキシアミン



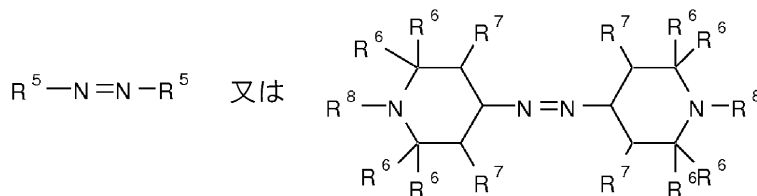
(上式にて、

R³は、水素又は、置換されていてもよい、アルキル-、シクロアルキル-、アリール-、ヘテロアリール-又はアシル基を示し、特に、C 1 ~ C 4 アルキル基であり、

R⁴は、アルコキシ-、アリールオキシ-、シクロアルコキシ-、アルアルコキシ-又はアシルオキシ基を示し、

Zは、水素又は、置換されていてもよい、アルキル-、シクロアルキル-、アリール-、ヘテロアリール-又はアシル基を示し、ここで、2つの基Zは閉じた環を形成することができ、この環はエステル-、エーテル-、アミン-、アミド-、カルボキシ-又はウレタン基によって置換されていてもよい)

b) 以下に示す構造式のアゾ化合物



(上式にて、

R⁵は、アルキル-、シクロアルキル-又はアリール基を意味し、

R⁶は、同じであるか異なるものであり、線状又は分枝したアルキル基を意味し、

R⁷は、同じであるか異なるものであり、水素又は、線状又は分枝したアルキル基を意味し、及び、

R⁸は、同じであるか異なるものであり、アルキル-、アルコキシ-、アリールオキシ-、シクロアルキルオキシ-、アルアルコキシ-又はアシルオキシ基を意味する)

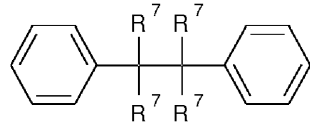
c) 以下に示す構造式のジクミル

10

20

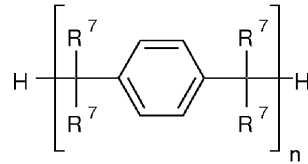
30

40



(上式にて、 R^7 は、上記の意味を有し、好ましくはメチルである)

d) 及び/又は、以下に示す構造式のポリクミル



10

(上式にて、 R^7 は、上記の意味を有し、好ましくはメチルであり、且つ、 $2 < n < 100$ である)。

【請求項11】

前記プラスチック材料が、熱可塑性、エラストマー性又は熱硬化性のポリマーであり、好ましくは前記プラスチック材料は熱可塑性ポリマーであり、特に、以下からなる群より選択されることを特徴とする、請求項1～10のいずれか1項に記載の使用：

a) オレフィン又はジオレフィンからなるポリマー、例えば、ポリエチレン(LDPE、LLDPE、VLDPE、ULDPE、MDPE、HDPE、UHMWPE)、メタロセン-PE(m-PE)、ポリプロピレン、ポリイソブチレン、ポリ-4-メチルペンテン-1、ポリブタジエン、ポリイソプレン、ポリシクロオクテン、ポリアルキレン- α -酸化炭素コポリマー、及び、統計的又はブロック構造の形状のコポリマー、例えば、ポリプロピレン-ポリエチレン(EP)、EPM又はEPDM、エチレン-ビニルアセテート(EVA)、エチレン-アクリル酸エステル、例えば、エチレン-ブチルアクリレート、エチレン-アクリル酸及びそれらの塩(イオノマー)、及び、ターポリマー、例えば、エチレン-アクリル酸-グリシジルアクリレート、グラフトポリマー、例えば、ポリプロピレン-グラフト-無水マレイン酸、ポリプロピレン-グラフト-アクリル酸、ポリエチレン-グラフト-アクリル酸、ポリエチレン-ポリブチルアクリレート-グラフト-無水マレイン酸

20

b) ポリスチレン、ポリメチルスチレン、ポリビニルナフタレン、スチレン-ブタジエン(SB)、スチレン-ブタジエン-スチレン(SBS)、スチレン-エチレン-ブチレン-スチレン(SEBS)、スチレン-エチレン-プロピレン-スチレン、スチレン-イソプレン、スチレン-イソプレン-スチレン(SIS)、スチレン-ブタジエン-アクリロニトリル(ABS)、スチレン-アクリロニトリル-アクリレート(ASA)、スチレン-エチレン、スチレン-無水マレイン酸ポリマー、これらには、対応するグラフトコポリマーが含まれる、例えば、ブタジエン上のスチレン、SBS又はSEBS上の無水マレイン酸、及び、メチルメタクリレート、スチレン-ブタジエン及びABSからなるグラフトコポリマー(MABS)、

30

c) ハロゲン含有ポリマー、例えば、ポリビニルクロリド(PVC)、ポリクロロブレン及びポリビニリデンクロリド(PVDC)、ビニルクロリドとビニリデンクロリドからなる、又はビニルクロリドとビニルアセテートからなるコポリマー、塩素化ポリエチレン、ポリビニリデンフルオリド、

40

d) 不飽和エステルのポリマー、例えば、ポリメチルメタクリレート(PMMA)、ポリブチルアクリレート、ポリラウリルアクリレート、ポリステアリルアクリレートのようなポリアクリレート及びポリメタクリレート、ポリアクリロニトリル、ポリアクリルアミド、コポリマー、例えば、ポリアクリロニトリル-ポリアルキルアクリレート、

e) 不飽和アルコール及び誘導体からなるポリマー、例えば、ポリビニルアルコール、ポリビニルアセテート、ポリビニルブチラール、

f) ポリアセタール、例えば、ポリオキシメチレン(POM)、又は例えばブタナールとのコポリマー、

g) ポリフェニレンオキシド、及び、ポリスチレン又はポリアミドとの混和物、

50

- h) 環状エーテルのポリマー、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、ポリエチレンオキシド、ポリプロピレンオキシド、ポリテトラヒドロフラン、
- i) ヒドロキシ末端ポリエーテル又はポリエステルと、芳香族又は脂肪族イソシアネートからなるポリウレタン、特に、線状ポリウレタン、ポリウレア、
- j) ポリアミド、例えば、ポリアミド-6、6.6、6.10、4.6、4.10、6.12、12.12、ポリアミド11、ポリアミド12、及び、(部分)芳香族ポリアミド、例えば、ポリフタルアミド、例えば、テレフタル酸及び/又はイソフタル酸と、脂肪族ジアミンから製造されるもの、又は、例えばアジピン酸あるいはセバシン酸などの脂肪族ジカルボン酸と、例えば1,4-又は1,3-ジアミノベンゼンなどの芳香族ジアミンから製造されるもの、例えばPA-6とPA6.6のような異なるポリアミドの混和物、又は例えばPA/PPのようなポリアミドとポリオレフィンの混和物、
- k) 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(エーテル)ケトン、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリアリーールスルホン、ポリフェニレンスルフィド、ポリベンゾイミダゾール、ポリヒダントイン、
- l) 脂肪族又は芳香族ジカルボン酸とジオールからなる、又は、ヒドロキシカルボン酸からなるポリエステル、例えば、ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリブチレンテレフタレート(PBT)、ポリプロピレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリ-1,4-ジメチロールシクロヘキサントレフタレート、ポリヒドロキシベンゾエート、ポリヒドロキシナフタレート、ポリ乳酸、
- m) ポリカーボネート、ポリエステルカーボネート、及び混和物、例えばPC/ABS、PC/PBT、PC/PET/PBT、PC/PA、
- n) セルロース誘導体、例えば、セルロースナイトレート、セルロースアセテート、セルロースプロピオネート、セルロースブチレート、
- o) 非熱可塑性又は熱硬化性プラスチック材料、
- p) 及び、前述のポリマー2種以上からなる、混合物、組み合わせ、又は混和物。

10

20

30

40

50

【請求項12】

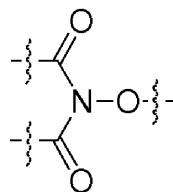
前記有機オキシイミドが、前記プラスチック材料に対して、0.01~30重量%、好ましくは0.1~10重量%、特に好ましくは0.2~5重量%で使用されることを特徴とする、請求項1~11のいずれか1項に記載の使用。

【請求項13】

前記ラジカルの生成が、プラスチック材料の改質のため、プラスチック材料の分子量増加のため、プラスチック材料の分岐又は架橋のため、プラスチック材料の分子量低下のため、プラスチック材料の分子量分布に影響を与えるため、プラスチック材料への不飽和モノマーのグラフティングのために使用される、請求項1~12のいずれか1項に記載の使用。

【請求項14】

プラスチック材料中でラジカルを生成するための方法であって、以下に示す式Iの構成要素を少なくとも1つ含む少なくとも1種の有機オキシイミドが、



式I

プラスチック材料又は少なくとも1種のプラスチック材料を含む成形材料と混合され、活性化される、方法。

【請求項15】

前記活性化が熱的に又は照射によって行われることを特徴とする、請求項14に記載の

方法。

【請求項 16】

前記活性化は、プラスチック材料を、あるいは少なくとも 1 種のプラスチック材料を含む成形材料を成形する方法の間に行われ、当該成形方法が特に射出成形又は押出であることを特徴とする、請求項 14 又は 15 に記載の方法。

【請求項 17】

プラスチック材料の改質のため、プラスチック材料の分子量増加のため、プラスチック材料の分岐又は架橋のため、プラスチック材料の分子量低下のため、プラスチック材料の分子量分布に影響を与えるため、又は、プラスチック材料への不飽和モノマーのグラフティングのための、請求項 14 ~ 16 のいずれか 1 項に記載の方法の使用。

10

【請求項 18】

ポリプロピレンの分子量低下のため、又はポリエチレンの架橋のための、請求項 17 に記載の使用。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、プラスチック材料中でのラジカル生成剤としての有機オキシミドの使用に関する。さらに、本発明は、プラスチック材料中でのラジカルの生成方法、特に、プラスチック材料あるいはポリマーの分解-、架橋-及びグラフト反応のための方法、及びこの方法の使用に関する。

20

【背景技術】

【0002】

様々なポリマー種の、特にポリオレフィン種（種々の分子量、熔融粘度、分子量分布、密度を有するもの）の制御製造は、一方では合成の間に、しかしその後のステップにおいても、例えば押出あるいは射出成形による加工の間にも行われることができる。確立した方法は、ラジカル形成剤の添加であり、これはこれに応じて、加工温度でラジカル反応を開始し、その後、ポリマー構造に応じてポリマーの分解、すなわち、分子量の減少を、又はポリマーの増加を、すなわち、分子量の増加から、分岐及び架橋（クロスリンク）までを、もたらす。

【0003】

商業上重要な方法は、より小さい分子量及びより狭い分子量分布を有する生成物を形成する、ポリプロピレンの分解（いわゆる、ビスブレーキング）である（いわゆる、「制御レオロジー PP」又は「CR (controlled rheology)- PP」）。その結果生じる生成物は、例えば、ポリプロピレン繊維の製造（「メルトブロー」又は「スパンボンド」法）に使用され、又は、易流動性の薄肉射出成形品（薄肉射出成形）のために使用される。この方法のために使用される標準的なラジカル生成剤は、有機過酸化物である（例えば、D. Munteanu in H. Zweifel, *Plastics Additives Handbook*, Munich 2001, p. 725 - 811 参照）。有機過酸化物は、しかしながら、ハンドリングの際に、大規模な安全装置を必要とし、望ましくない二次反応及び過酸化物の分解生成物をもたらす、これらはポリマーの特性、例えば長期間安定性に悪い影響を与えうる。水性の過酸化水素の使用により改良が見られるが（WO 2012/000022）、技術的安全性に関してそのハンドリングは同様に挑戦的であり、且つ、一般に入手可能な加工装置では実施できない。ポリプロピレン分解方法における、ラジカル生成剤の他の既知の代替案は、ヒドロキシピペリジンエステル（WO 0190113）、非対称型アゾ化合物（WO 2006/106059）、又はイミノキシトリアジン（WO 2014/064064）である。これらの化合物は、しかしながら、合成で入手困難な場合が多いため、それらは商業的に重要ではない。

30

40

【0004】

さらなる工業的に主要なプロセスは、ラジカル形成剤を用いたポリエチレン（例えば、LDPE、LLDPE、MDPE）の架橋である。過酸化物の添加を用いるこれらの方法は、パイプ及びケーブルの製造の際によく使用される。さらに、前述した安全面が考慮さ

50

れるべきことは、再び同じであり、制御できない二次反応が望ましくないゲル形成及び加工上の問題を引き起こす。

【0005】

さらなる工業的に重要なプロセスは、有機過酸化物の存在下での、既存のポリマー鎖上へのモノマー又は不飽和オリゴマーのグラフティング(grafting)である。これらのプロセスは、とりわけ、無水マレイン酸でグラフトされた又はアクリル酸でグラフトされたポリエチレンあるいはポリプロピレン、ポリオレフィン-コ-及びターポリマー、及び、無水マレイン酸でグラフトされたスチレン-ブタジエン又はスチレン-ブタジエン-スチレン-ブロックコポリマー、及びその水素化二次生成物の製造のために重要である。ここで、過酸化物の比較的低い分解温度の結果として、分解、ゲル形成及び/又は変色などの望ましくない二次反応が生じうる。

10

【0006】

それゆえ、今なお、それによって開始されるラジカルプロセスに関する向上した制御性、調節可能な開始温度、高いプロセス安全性、及びシンプルな合成による入手可能性を有し、さらに押し出し機のような一般的な加工機への添加剤として使用できるラジカル生成剤に対する需要がある。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

本発明の目的は、それゆえ、前述した問題を回避できる、プラスチック材料のためのさらなるラジカル生成剤を示すことである。

20

【課題を解決するための手段】

【0008】

この目的は、請求項1の特徴を有する、プラスチック材料中でのラジカル生成剤としての有機オキシイミドの使用によって、請求項14の特徴を有するプラスチック材料中でのラジカルの生成方法によって、及び、請求項17の特徴を有するこの方法の使用目的によって、達成される。残りの独立請求項は、有利な発展形態を示している。

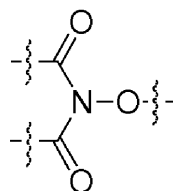
【発明を実施するための形態】

【0009】

本発明は、プラスチック材料における、ラジカル生成剤としての有機オキシイミドの使用に関する。本発明によれば、以下に示す式Iの構成要素を少なくとも1つ含む有機オキシイミドの使用が、プラスチック材料中でラジカル生成剤として適切であることが分かる。

30

【化1】



式I

40

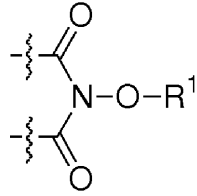
【0010】

式Iによって、前記有機オキシイミドに、上に示す構成要素が含まれることが理解されるべきである。本発明によって使用されるオキシイミドは、イソシアヌレート又はそれから派生した化合物あるいは化合物種と同義と見なされるべきではない。

【0011】

本発明の好ましい実施形態によれば、特に、以下の式IIの構成要素を少なくとも1つ含むオキシイミドが、プラスチック材料のためのラジカル生成剤として使用される。

【化 2】



式II

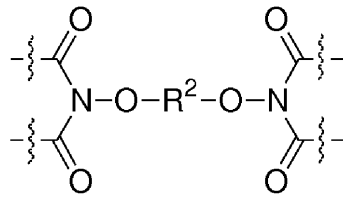
(上式にて、 R^1 は、水素、又は置換されていてもよい、アルキル-、シクロアルキル-、アリール-、ヘテロアリール-、又はアシル基を示す)

10

【0012】

前述の好ましい変異体に代えて、又はそれと組み合わせて、同様に、以下の式IIIの構成要素を少なくとも1つ含む架橋オキシイミドも使用される。

【化 3】



式III

20

(上式にて、 R^2 は、置換されていてもよい、アルキレン-、シクロアルキレン-、アリーレン-、ヘテロアリーレン-、又は架橋アシル基を示す)

【0013】

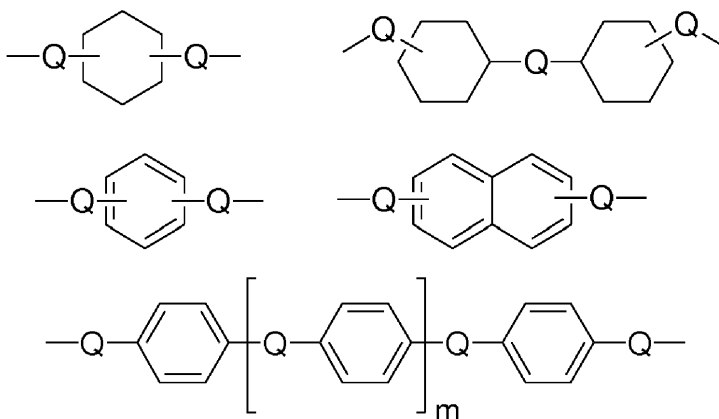
本発明によって使用されるオキシイミドは、ハロゲンフリーであること、すなわち、対応する化合物がハロゲン原子を含んでいないことが、同様に好ましい。

【0014】

好ましい変異体によれば、 R^2 が、 n が1~18である $-(CH_2)_n-$ 、 $-CH(CH_3)-$ 、 $-C(CH_3)_2-$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-SO_2-$ 、 $-NHCO-$ 、 $-CO-$ 、 $-O-C(O)-O-$ 、及び以下に示す基からなる群より選択され、

30

【化 4】



40

ここで、

上に示した基に含まれる脂環式又は芳香族環系は、非置換でも、又は一以上のアルキル基及び/又はアルコキシ基で置換されていてもよく、

Qは、同じであるか異なるものであり、化学結合、及び、 n が1~18である $-(CH_2)_n-$ 、 $-CH(CH_3)-$ 、 $-C(CH_3)_2-$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-SO_2-$ 、 $-NHCO-$ 、

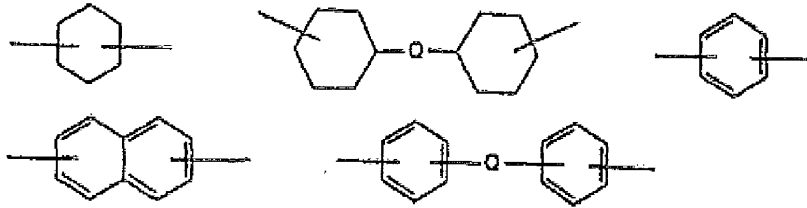
50

- O - C(O) - O - 、 - CO - の基、からなる群より選択され、
mは、0又は1～18である。

【0015】

特に好ましくは、基 R²は、以下に示す構成要素によって表され、ここで、Qは上記の意味を有する：

【化5】

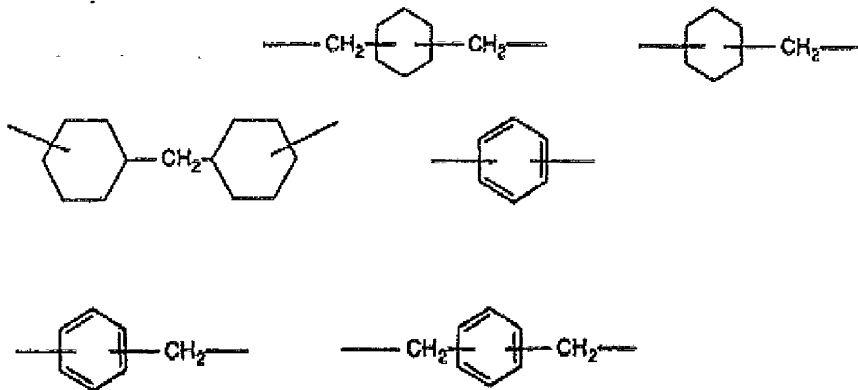


10

【0016】

特に、基 R²は、以下の構成要素によって表される：

【化6】



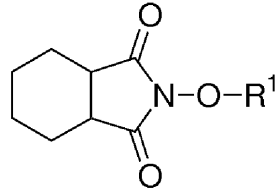
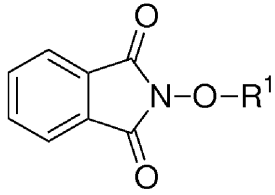
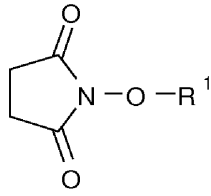
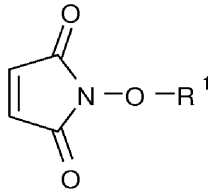
20

【0017】

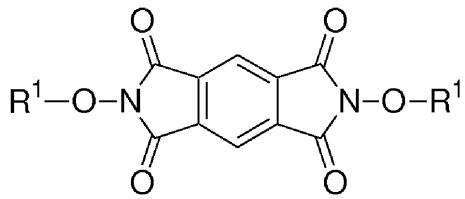
特に好ましい実施形態によれば、本発明のこのような変異体において、有機オキシイミドは以下の構造式の1つを有する：

30

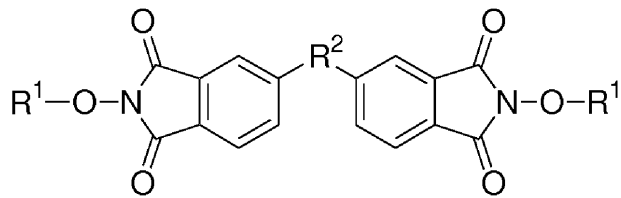
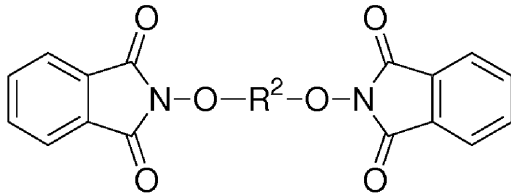
【化 7】



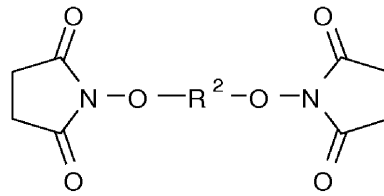
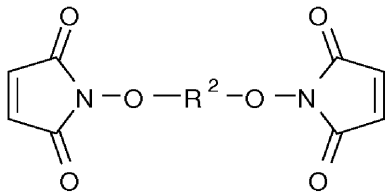
10



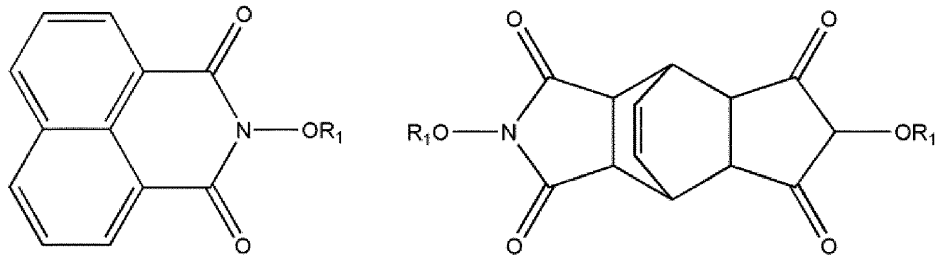
20



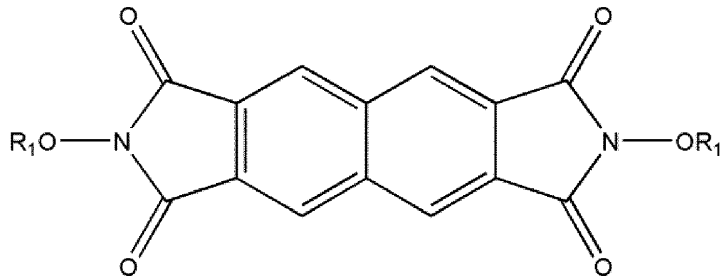
30



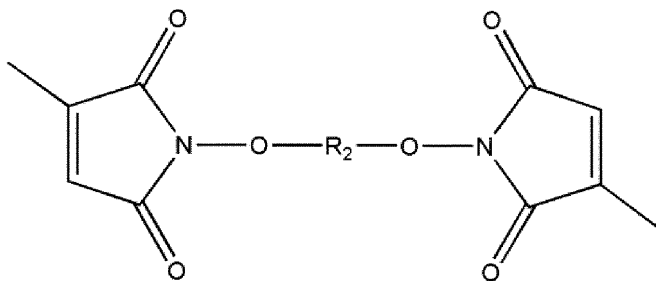
【化 8】



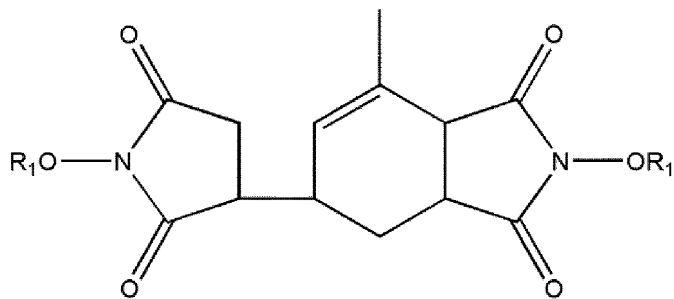
10



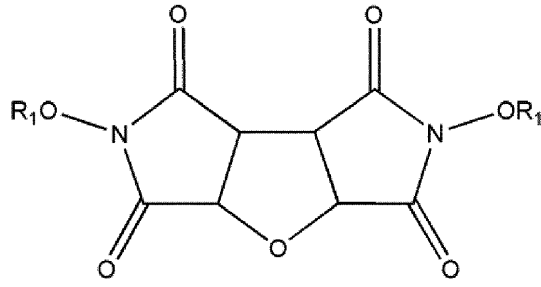
20



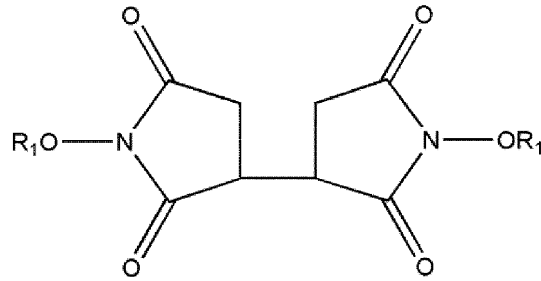
30



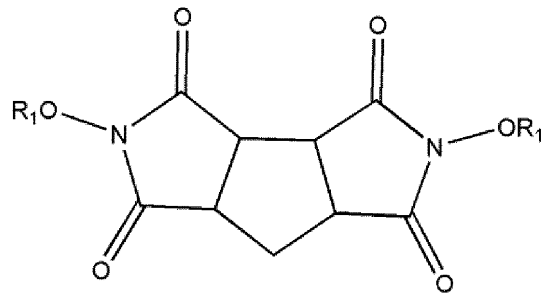
【化 9】



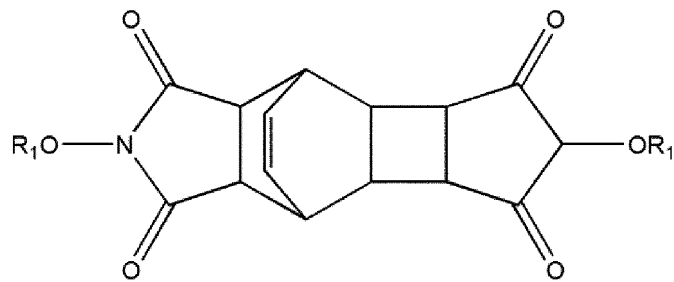
10



20

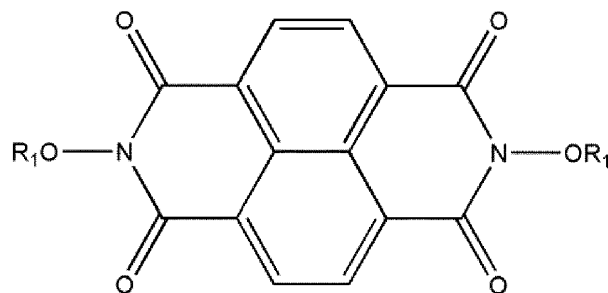


30



40

【化 10】



(上式にて、 R^1 と R^2 はそれぞれ、上記の意味を有し、 R^1 と R_1 あるいは R^2 と R_2 は同じ意味を有する)

【0018】

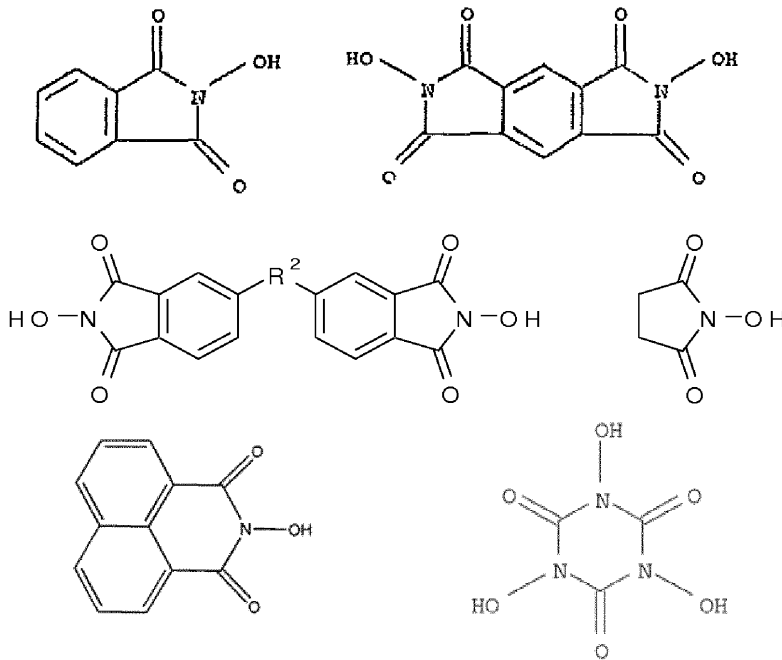
50

特に好ましい基 R^1 は、水素、アルキル-又はアシル基である。

【0019】

プラスチック材料中でのラジカル生成剤として、特に、以下に示す化合物が適切である。

【化11】



10

20

(上式にて、 R^2 は上記の意味を有する)

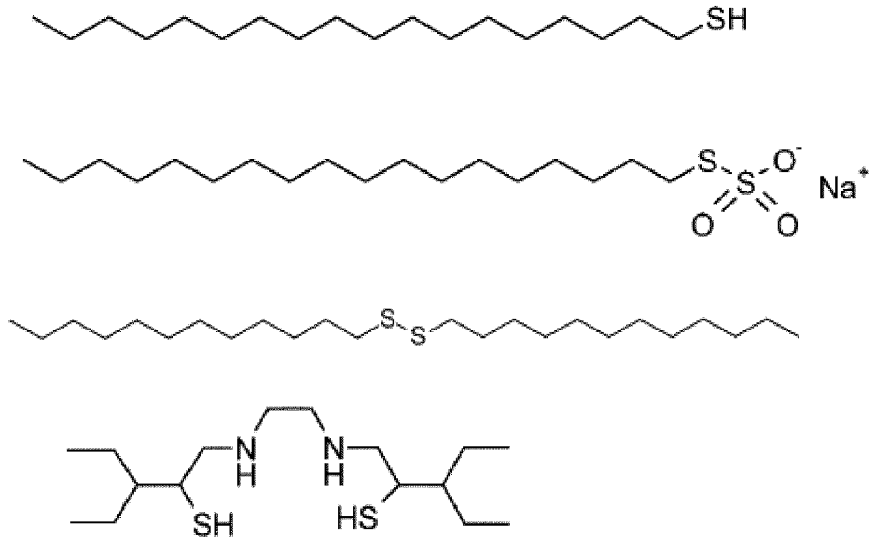
【0020】

適切なラジカル生成剤の選択は、反応及びそれぞれの加工方法のために十分な範囲において、それぞれのポリマーの加工温度で、ラジカル形成が生じるように、行われる。ラジカル形成が生じる温度は、例えばDSC(示差走査熱量測定)によって測定できる。選択のためのさらなる判断基準は、反応生成物の形成であり、それが例えば揮発性であれば、容易に生成物から除去することができ、又は高分子であれば、生成物中に不利益なく残存することができる。プラスチック材料加工方法のための、それぞれの加工工程及び温度は、当業者には公知である。しかしながら、プラスチック材料加工工程及び、それに関する温度は、技術文献、例えば、H.Dominghaus, P.Elsner, P. Eyerer, T.Hirth, kunststoffe(Plastic Materials), 8th edition, Springer 2012等から推定することもできる。特に分解方法のために、連鎖移動剤(電荷移動剤)のさらなる添加が有利となりうる。考えられる連鎖移動剤は、チオール、ジスルフィド、リン酸エステル、ホスフィン、有機ハロゲン化物(例えば、ヨウ化物、臭化物、塩化物)、酸エステル、アルデヒド又は三級アミンのクラスから選択することができる。好ましくは、前記連鎖移動剤は、それぞれのポリマーの加工温度より高い沸点を有する。特に好ましいのは、チオールやジスルフィドのような硫黄誘導体である。適切な連鎖移動剤は、例えば次のものである：

30

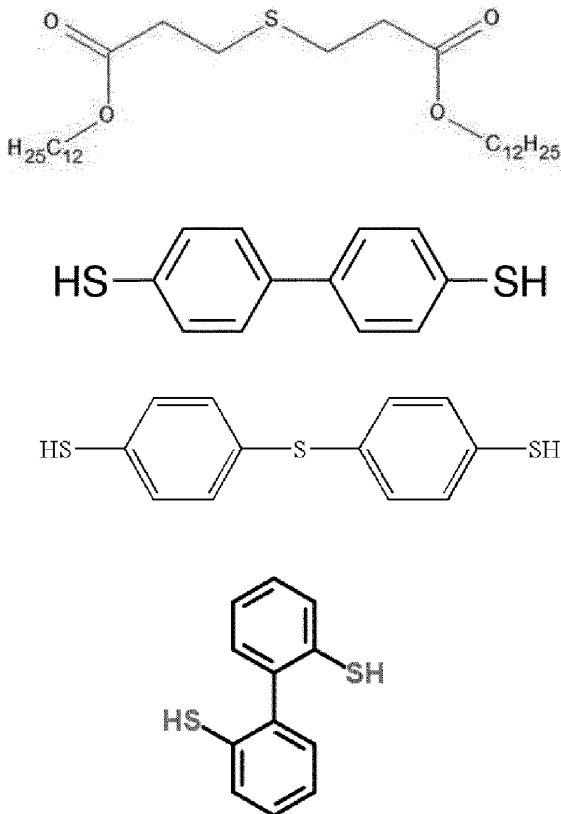
40

【化 1 2】



10

【化 1 3】



20

30

【0021】

40

特に、分子量増加反応のため、及び架橋反応のために、ラジカル生成剤に及び前記ポリマーに加えて、さらなる多官能性化合物を添加することが有利となり得る。適切な化合物には、以下の種類が含まれる

- 反復不飽和オリゴマー及びポリマー（ポリブタジエン又はポリイソプレンをベースとするもの）、
- ジ-及びポリ-ビニル化合物、例えば、ジビニル-ベンゼン、
- ジ-及びポリ-アリル化合物、例えば、ポリアリルエーテル、又はポリアリルエステル、トリスアリルイソシアヌレート、トリスアリルシアヌレート、ジアリル-ビスフェノールA、
- ジ-及びポリ-マレイミド、

50

e) ジ-及びポリアルコールのジ-及びポリ(メタ)アクリルエステル、及び/又は
f) 有機官能シラン。

【0022】

有機官能シランの代表的な例は、次のものである：

【化14】



式中、 $n = 0 \sim 3$; $Y = CH_2=CH-$, $CH_2=C(CH_3)COO-$, NH_2- , $SH-$, $Cl-$;

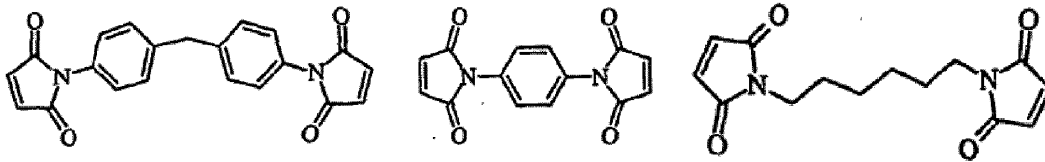


10

【0023】

ジ-及びポリマレイミドの代表的な例は、次のものである：

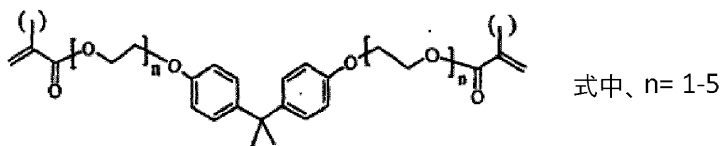
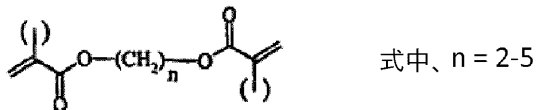
【化15】



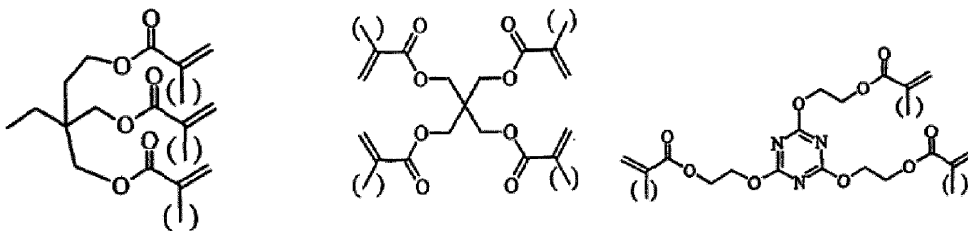
【0024】

ジ-及びポリオール(ジ-及びポリ(メタ)アクリルエステル)の代表的な例は、次のものである： 20

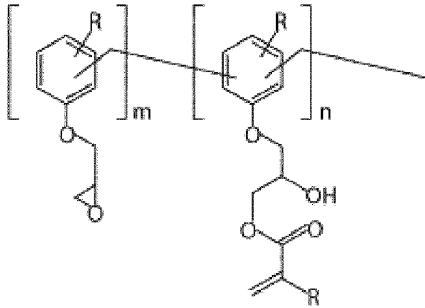
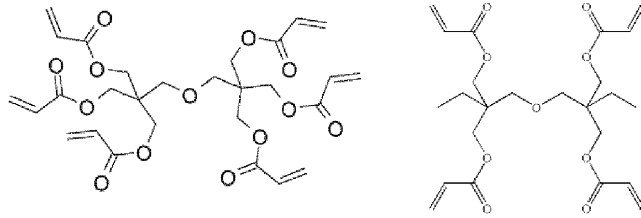
【化16】



30



【化17】



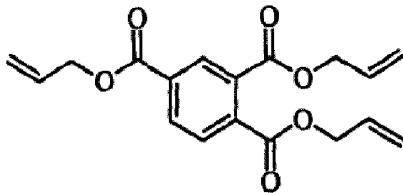
式中、R=H 又はメチル
及び $m=0-10$, $n=2-10$

10

【0025】

アリル化合物の代表的な例は、次のものである：

【化18】



20

【0026】

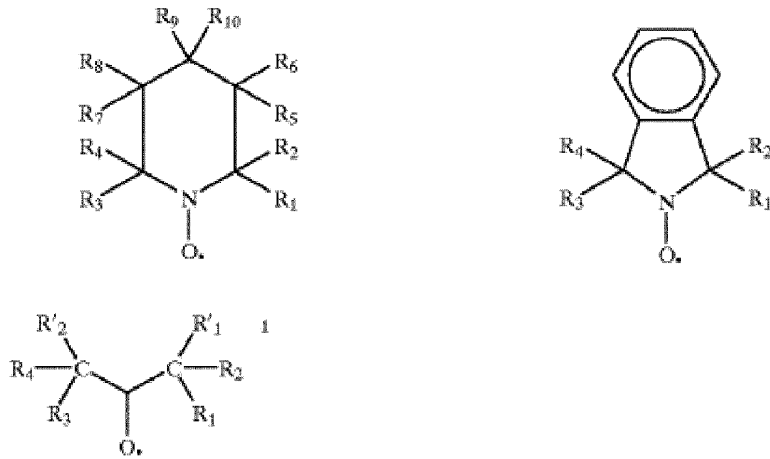
本発明に係るラジカル形成剤で開始されるグラフト反応は、不飽和モノマーの存在下で実施され、当該不飽和モノマーは、反応によって、化学結合にてポリマー骨格に結合される。適切な不飽和モノマーは、特に無水マレイン酸、無水イタコン酸、N-アルキルマレイミド、アクリル酸、メタクリル酸、アクリル酸エステル、メタクリル酸エステル、例えば、ラウリル(メタ)アクリレート、ステアリル(メタ)アクリレート、グリシジル(メタ)アクリレート、ヒドロキシエチル(メタ)アクリレートである。

30

【0027】

さらに、さらなるニトロキシルラジカルの存在下で架橋反応又はグラフト反応を行うことが、有利となりうる。ニトロキシルラジカルの添加によって、架橋反応又はグラフト反応を改変することができ、すなわち、反応過程を良好にコントロールでき、当該過程の二次反応をより少なくすることができる。適切なニトロキシルラジカルは、例えば次のものである：

【化19】



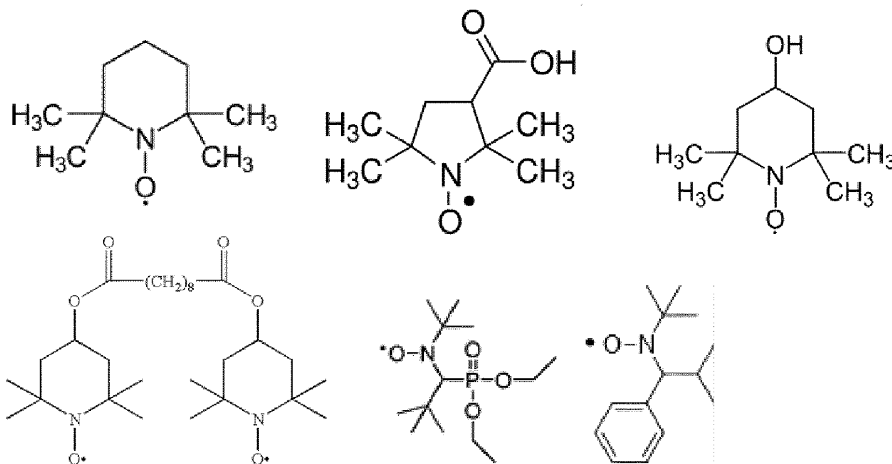
10

上式にて、R1～R10は、置換されていてもよい、アルキル基、フェニル、ヒドロキシル、アルコキシ又はエステル基を示し、例えば、TEMPO、ヒドロキシ-TEMPO、又はオキソ-TEMPOの名称で市場で入手可能である。

【0028】

特に好ましいのは、以下のニトロキシルラジカルである：

【化20】



20

30

【0029】

さらに、本発明に係るオキシイミドの分解-、架橋-又はグラフト-反応は、触媒作用を有する化合物のさらなる添加とともに行われることで有利となり得る。このような化合物は、例えば、遷移金属（例えば、銅、マンガン又は鉄）の金属塩、例えば、酢酸塩の形態（例えば、酢酸Cu(I)）であってもよい。

【0030】

さらに、本発明に係るラジカル形成剤と、少なくとも1種のさらなるラジカル形成剤（例えば、異なる種類のラジカル形成剤及び/又は分解温度の異なるラジカル形成剤）を併用することが有利になり得る。ラジカルが形成される温度は、それぞれのポリマーの加工温度でその形成が生じるように選択される。異なる分解温度を有するラジカル形成剤の組み合わせは、例えば、低い温度ではプレ架橋(pre-crosslinking)を、及び高い温度ではポリエチレンのさらなる架橋を生じさせることができるため、多段階プロセスの際に有利である。

40

【0031】

本発明の意味においてラジカル形成剤は、熱-及び光-誘導された開裂によりラジカルを生じさせることができる化合物である。ここに示されている用途に適したラジカル形成剤は、分解、架橋又はグラフトが行われるプラスチック材料-又はコーティング加工工程の

50

ために、反応に十分な量のラジカルを産出するものである。

【 0 0 3 2 】

前記のさらなるラジカル形成剤は、好ましくは、過酸化物、N-アルコキシアミン、-C-C-ラジカル形成剤、アゾ基(-N=N-)を有するラジカル形成剤、ヒドラジン基(-NH-HN-)を有するラジカル形成剤、ヒドラゾン基(>C=N-NH-)を有するラジカル形成剤、アジン基(>C=N-N=C<)を有するラジカル形成剤、トリアゼン基(-N=N-N<)を有するラジカル形成剤、及びイミノキシトリアジンからなる群より選ばれる。

【 0 0 3 3 】

適切なアゾ化合物の製造は、例えば、M.Aubert等, Macromol.Sci.Eng. 2007, 292, 707-714又はWO 2008101845に記載されており、ヒドラゾン及びアジンの製造は、M.Aubert等, Pol.Adv.Technol. 2011, 22, 1529-1538に記載されており、トリアゼンの製造は、W.Pawelec等, Pol.Degr.Stab. 2012, 97, 948-954に記載されている。イミノキシトリアジンの合成は、WO 2014/064064に記載されている。

【 0 0 3 4 】

過酸化物は、市場で入手可能な化合物であり、例えば、United Initiatorsから入手できる。適切な過酸化物は、例えば次のものである：

2,5-ジメチル2,5-ジ(t-ブチルペルオキシ)ヘキサン、2,5-ジメチル2,5-ジ(t-ブチルペルオキシ)ヘキシン-3,3,6,6,9,9-ペンタメチル-3-(エチルアセテート)-1,2,4,5-テトラオキシシクロノナン、t-ブチルヒドロペルオキシド、過酸化水素、ジクミルペルオキシド、t-ブチルペルオキシイソプロピルカーボネート、ジ-t-ブチルペルオキシド、p-クロロベンゾイルペルオキシド、ジベンゾイルジペルオキシド、t-ブチルクミルペルオキシド、t-ブチルヒドロキシエチルペルオキシド、ジ-t-アミルペルオキシド、2,5-ジメチルヘキセン-2,5-ジペルイソノナノエート、アセチルシクロヘキサンスルホニルペルオキシド、ジイソプロピルペルオキシジカーボネート、tert-アミルペルネオデカノエート、tert-ブチル-ペルネオデカノエート、tert-ブチルペルピバレート、tert-アミルペルピバレート、ビス(2,4-ジクロロベンゾイル)ペルオキシド、ジイソノノイルペルオキシド、ジデカノイルペルオキシド、ジオクタノイルペルオキシド、ジラウロイルペルオキシド、ビス(2-メチルベンゾイル)ペルオキシド、ジスクシノイルペルオキシド、ジアセチルペルオキシド、ジベンゾイルペルオキシド、tert-ブチルペル-2-エチルヘキサノエート、ビス(4-クロロベンゾイル)ペルオキシド、tert-ブチルペルイソブチレート、tert-ブチルペルマレエート、1,1-ビス(tert-ブチルペルオキシ)-3,5,5-トリメチルシクロヘキサン、1,1-ビス(tert-ブチルペルヒドロペルオキシド)。

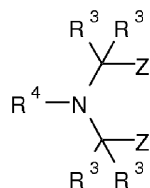
【 0 0 3 5 】

前記少なくとも1種のさらなるラジカル形成剤は、特に好ましくは、以下のa)~d)からなる群より選択される：

【 0 0 3 6 】

a) 以下に示す構造式のN-アルコキシアミン

【化21】



上式にて、

R³は、水素又は、置換されていてもよい、アルキル-、シクロアルキル-、アリール-、ヘテロアリール-又はアシル基を示し、特に、C1~C4アルキル基であり、

R⁴は、アルコキシ-、アリールオキシ-、シクロアルコキシ-、アルアルコキシ(aralkoxy)-又はアシルオキシ基を示し、

10

20

30

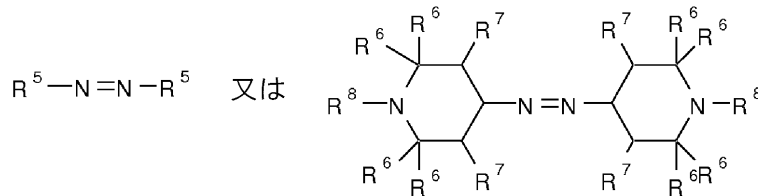
40

50

Zは、水素又は、置換されていてもよい、アルキル-、シクロアルキル-、アリール-、ヘテロアリール-又はアシル基を示し、ここで、2つの基Zは閉じた環を形成することができ、この環はエステル-、エーテル-、アミン-、アミド-、カルボキシ-又はウレタン基によって置換されていてもよい、

【0037】

b) 以下に示す構造式のアゾ化合物
【化22】



10

上式にて、

R⁵は、アルキル-、シクロアルキル-又はアリール基を意味し、

R⁶は、同じであるか異なるものであり、線状又は分枝したアルキル基を意味し、

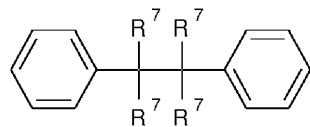
R⁷は、同じであるか異なるものであり、水素又は、線状又は分枝したアルキル基を意味し、及び、

R⁸は、同じであるか異なるものであり、アルキル-、アルコキシ-、アリールオキシ-、シクロアルキルオキシ-、アルアルコキシ-又はアシルオキシ基を意味する、

20

【0038】

c) 以下に示す構造式のジクミル
【化23】

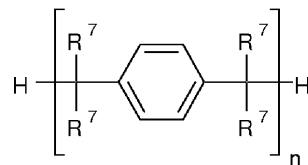


上式にて、R⁷は、上記の意味を有し、好ましくはメチルである、

30

【0039】

d) 及び/又は、以下に示す構造式のポリクミル
【化24】



上式にて、R⁷は、上記の意味を有し、好ましくはメチルであり、且つ、2 < n < 100である。

40

【0040】

前記構造の前述のN-アルコキシアミンの典型的な例は、以下のものである。

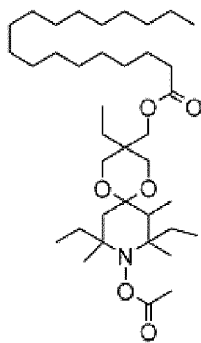
【0041】

1-シクロヘキシルオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-4-オクタデシルアミノピペリジン；ビス(1-オクチルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)セバケート；2,4-ビス[(1-シクロヘキシルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)ブチルアミノ]-6-(2-ヒドロキシエチルアミノ-S-トリアジン；ビス(1-シクロヘキシルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)アジペート；2,4-ビス[(1-シクロヘキシルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-イル)ブチルアミノ]-6-クロロ-S-トリアジン；1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-4-ヒドロキシ-2,

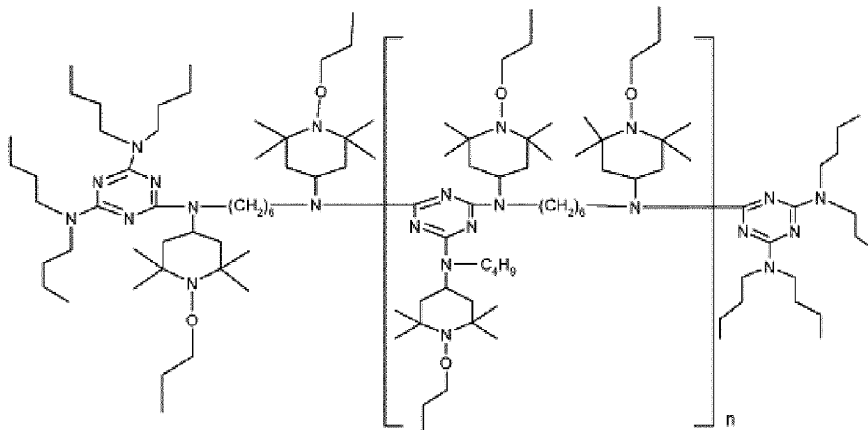
50

2, 6, 6-テトラメチルピペリジン; 1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-4-オキソ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン; 1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-4-オクタデカノイルオキシ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン; ビス(1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン-4-イル)セバケート; ビス(1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン-4-イル)アジペート; 2, 4-ビス{N-[1-(2-ヒドロキシ-2-メチルプロポキシ)-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン-4-イル]-N-ブチルアミノ}-6-(2-ヒドロキシエチルアミノ)-S-トリアジン}; 4-ピペリジノール、2, 2, 6, 6-テトラメチル-1-(ウンデシルオキシ)-4, 4'-カーボネート; 2, 4-ビス[(1-シクロヘキシルオキシ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン-4-イル)ブチルアミノ]-6-クロロ-S-トリアジンとN,N'-ビス(3-アミノプロピルエチレンジアミン)との反応生成物; 4, 4'-ヘキサメチレン-ビス(アミノ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン)と2, 4-ジクロロ-6-[(1-シクロヘキシルオキシ-2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-イル)ブチルアミノ]-S-トリアジンの縮合生成物であるオリゴマー化合物で、2-クロロ-4, 6-ビス(ジブチルアミノ)-S-トリアジンにより末端位置が閉じられているもの; 脂肪族ヒドロキシルアミン、例えば、ジステアリルヒドロキシルアミン; 及び、下記式の化合物(当該式において、 $n = 1 - 15$)。

【化25】



又は



【0042】

上記の化合物は、一部は市販の製品であり、以下の商品名で市販されている。BASF SEからのFLAMESTAB NOR 116(登録商標)、TINUVIN NOR 371(登録商標)、IRGATEC CR 76(登録商標)、ClariantからのHostavin NOW(登録商標)、又はAdekaからのADK Stab LA 81(登録商標)。ジクミル及びポリクミルは、例えばUnited Initiatorsから入手可能な市販製品である。

【0043】

好ましくは、前記プラスチック材料は、一般的な添加剤を含むことができ、例えば、UV吸収剤、光安定剤、安定剤、ヒドロキシルアミン、ベンゾフラノン、難燃剤、核生成剤、衝撃強度増加剤、可塑剤、潤滑剤、レオロジー改変剤、加工助剤、顔料、着色剤、蛍光

増白剤、抗菌活性物質、帯電防止剤、スリッパ剤、ブロッキング防止剤、カップリング剤、鎖延長剤、分散剤、相溶剤、酸素捕集剤、酸捕集剤、マーキング剤又は防曇剤からなる群より選択される添加剤が使用される。好ましい実施形態では、前記組成物は特に、酸捕集剤、例えば長鎖の酸の塩（例えば、ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸マグネシウム、ステアリン酸亜鉛、乳酸カルシウム、カルシウムステアロイル-2-ラクチレート）をベースとするもの又はヒドロタルサイトをベースとするもの、及び/又は、フェノール性酸化防止剤及びホスファイトのグループからの安定剤、及び/又は、ヒンダードアミン(HALS)及び/又は分散剤のグループからの光安定剤を含む。

【0044】

適切な光安定剤は、例えば、次のものをベースとする化合物である：2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-ヒドロキシベンゾフェノン、安息香酸のエステル、アクリレート、オキサミド、及び2-(2-ヒドロキシフェニル)-1,3,5-トリアジン。

10

【0045】

適切な2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾールは、例えば、次のものである：
 2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(3',5'-ジ-tert-ブチル-2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(5'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-5'-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)フェニル)ベンゾトリアゾール、2-(3',5'-ジ-tert-ブチル-2'-ヒドロキシフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(3'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(3'-sec-ブチル-5'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-4'-オクチルオキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(3',5'-ジ-tert-アミル-2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(3',5'-ビス(, -ジメチルベンジル)-2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(3'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-オクチルオキシカルボニルエチル)フェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(3'-tert-ブチル-5'-[2-(2-エチルヘキシルオキシ)カルボニルエチル]-2'-ヒドロキシフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(3'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-メトキシカルボニルエチル)フェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(3'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-メトキシカルボニルエチル)フェニル)ベンゾトリアゾール、2-(3'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-オクチルオキシカルボニルエチル)フェニル)ベンゾトリアゾール、2-(3'-tert-ブチル-5'-[2-(2-エチルヘキシルオキシ)カルボニルエチル]-2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、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'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-(2-イソオクチルオキシカルボニルエチル)フェニル)ベンゾトリアゾール、2,2'-メチレンビス[4-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)-6-ベンゾトリアゾール-2-イルフェノール]；2-[3'-tert-ブチル-5'-(2-メトキシカルボニルエチル)-2'-ヒドロキシフェニル]-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； $[R-CH_2CH_2-COO-CH_2CH_2-]_2$ 、式中、R = 3'-tert-ブチル-4'-ヒドロキシ-5'-2H-ベンゾトリアゾール-2-イルフェニル、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。

20

30

40

【0046】

適切な2-ヒドロキシベンゾフェノンは、例えば、2-ヒドロキシベンゾフェノンの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'-ジメチオキシ-誘導体である。

【0047】

適切なアクリレートは、例えば、エチル- -シアノ- , -ジフェニルアクリレート、

50

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-メチルインドリンである。

【0048】

適切な安息香酸のエステルは、例えば、4-tert-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-tert-ブチルベンゾイル)レゾルシノール、ベンゾイルレゾルシノール、2,4-ジ-tert-ブチルフェニル-3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート、ヘキサデシル-3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート、オクタデシル-3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート、2-メチル-4,6-ジ-tert-ブチルフェニル-3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンゾエートである。

10

【0049】

適切なオキサミドは、例えば、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-tert-ブトキシオキサニリド、2,2'-ジドデシルオキシ-5,5'-ジ-tert-ブトキシオキサニリド、2-エトキシ-2'-エチルオキサニリド、N,N'-ビス(3-ジメチルアミノプロピル)オキサミド、2-エトキシ-5-tert-ブチル-2'-エトキシオキサニリド、及びこれらの2-エトキシ-2'-エチル-5,4'-ジ-tert-ブトキシオ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、及びo-及びp-エトキシ-二置換オキサニリドの混合物である。

20

【0050】

適切な2-(2-ヒドロキシフェニル)-1,3,5-トリアジン、例えば、次のものである：
 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、
 2-4-ビス(2-ヒドロキシ-4-プロピルオキシフェニル)-6-(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。

30

40

【0051】

適切な金属不活性化剤は、例えば、次のものである：
 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-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニルプロピオニル)ヒドラジン、
 3-サリチロイルアミノ-1,2,4-トリアゾール、
 ビス(ベンジリデン)オキサリルジヒドラジド、
 オキサニリド、
 イソフタロイルジヒドラジド、
 セバコイルビスフェニルヒド

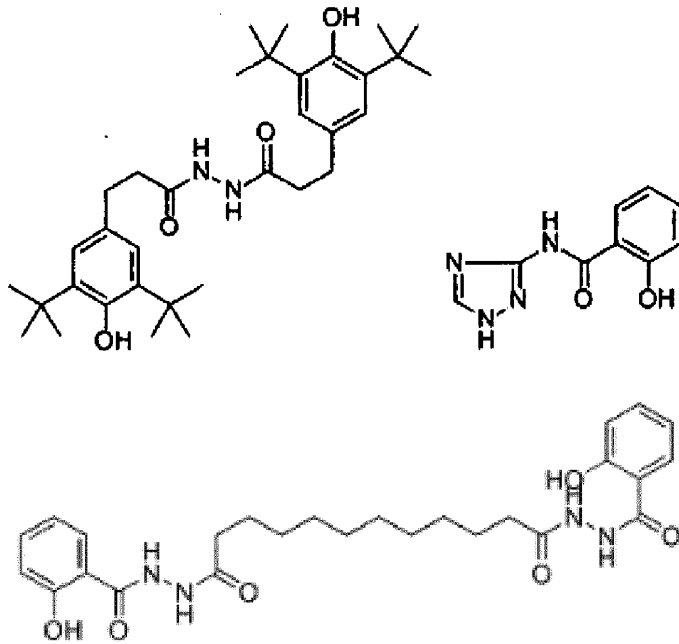
50

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)オキシリルジヒドラジド、N,N'-ビス(サリチロイル)チオプロピオニルジヒドラジド。

【0052】

特に、次の構造のものが、金属不活性化剤として適切である：

【化26】



10

20

【0053】

適切なフェノール系酸化防止剤は、例えば、次のものである：

アルキル化モノフェノール、例えば、2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノール、2-tert-ブチル-4,6-ジメチルフェノール、2,6-ジ-tert-ブチル-4-エチルフェノール、2,6-ジ-tert-ブチル-4-n-ブチルフェノール、2,6-ジ-tert-ブチル-4-イソブチルフェノール、2,6-ジシクロペンチル-4-メチルフェノール、2-(1-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-tert-ブチル-4-メトキシメチルフェノール、線状又は分岐したノニルフェノール、例えば、2,6-ジノニル-4-メチルフェノール、2,4-ジメチル-6-(1'-メチルウンデカ-1'-イル)フェノール、2,4-ジメチル-6-(1'-メチルヘプタデカ-1'-イル)フェノール、2,4-ジメチル-6-(1'-メチルトリデカ-1'-イル)フェノール、及びこれらの混合物；

30

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

ヒドロキノン及びアルキル化ヒドロキノン、例えば、2,6-ジ-tert-ブチル-4-メトキシフェノール、2,5-ジ-tert-ブチルヒドロキノン、2,5-ジ-tert-アミルヒドロキノン、2,6-ジフェニル-4-オクタデシルオキシフェノール、2,6-ジ-tert-ブチルヒドロキノン、2,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシアニソール、3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシアニソール、3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニルステアレート、ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)アジペート；

40

トコフェロール、例えば、α-、β-、γ-、δ-トコフェロール、及びこれらの混合物（ビタミンE）；

ヒドロキシル化チオジフェニルエーテル、例えば、2,2'-チオビス(6-tert-ブチル-4-メチルフェノール)、2,2'-チオビス(4-オクチルフェノール)、4,4'-チオビス(6-tert-ブチル-3-メチルフェノール)、4,4'-チオビス(6-tert-ブチル-2-メチルフェノール)、4,4'-チオビス(3,6-ジ-sec-アミルフェノール)、4,4'-ビス(2,6-

50

ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)ジスルフィド；

アルキリデンビスフェノール、例えば、2,2'-メチレンビス(6-tert-ブチル-4-メチルフェノール)、2,2'-メチレンビス(6-tert-ブチル-4-エチルフェノール)、2,2'-メチレンビス[4-メチル-6-(-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-tert-ブチルフェノール)、2,2'-エチリデンビス(4,6-ジ-tert-ブチルフェノール)、2,2'-エチリデンビス(6-tert-ブチル-4-イソブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス[6-(-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-tert-ブチルフェノール)、4,4'-メチレンビス(6-tert-ブチル-2-メチルフェノール)、1,1-ビス(5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)ブタン、2,6-ビス(3-tert-ブチル-5-メチル-2-ヒドロキシベンジル)-4-メチルフェノール、1,1,3-トリス(5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)ブタン、1,1-ビス(5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)-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'-tert-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)ブチレート]、ビス(3-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)ジシクロペンタジエン、ビス[2-(3'-tert-ブチル-2'-ヒドロキシ-5'-メチルベンジル)6-tert-ブチル-4-メチルフェニル]テレフタレート、1,1-ビス(3,5-ジメチル-2-ヒドロキシフェニル)ブタン、2,2-ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2,2-ビス(5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)-4-n-ドデシルメルカプトブタン、1,1,5,5-テトラ(5-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-2-メチルフェニル)ペンタン；

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

ヒドロキシベンジル化マロネート、例えば、ジオクタデシル-2,2-ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-2-ヒドロキシベンジル)マロネート、ジオクタデシル-2-(3-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)マロネート、ジドデシルメルカプトエチル-2,2-ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)マロネート、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-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)マロネート；

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

トリアジン化合物、例えば、2,4-ビス(オクチルメルカプト)-6-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシアニリノ)-1,3,5-トリアジン、2-オクチルメルカプト-4,6-ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシアニリノ)-1,3,5-トリアジン、2-オクチルメルカプト-4,6-ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェノキシ)-1,3,5-トリアジン、2,4,6-トリス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェノキシ)-1,2,3-トリアジン、1,3,5-トリス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)イソシアヌレート、1,3,5-トリス(4-tert-ブチル-3-ヒドロキシ-2,6-ジメチルベンジル)イソシアヌレート、2,4,6-トリス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニルエチル)-1,3,5-トリアジン、1,3,5-トリス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニルプロピオン)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；

10

20

30

40

50

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

アシルアミノフェノール、例えば、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-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)カルバメート；

-(3,5-ジ-tert-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のアルコールとのエステル、アルコールは例えば、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、ペンタエリスリトール、トリス(ヒドロキシエチル)イソシアヌレート、N,N'-ビス(ヒドロキシエチル)オキサミド、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]オクタンである；

-(5-tert-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のアルコールとのエステル、アルコールは例えば、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、ペンタエリスリトール、トリス(ヒドロキシエチル)イソシアヌレート、N,N'-ビス(ヒドロキシエチル)オキサミド、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、3,9-ビス[2-{3-(3-tert-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]ウンデカンである；

-(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のアルコールとのエステル、アルコールは例えば、メタノール、エタノール、オクタノール、オクタデカノール、1,6-ヘキサンジオール、1,9-ノナンジオール、エチレングリコール、1,2-プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ペンタエリスリトール、トリス(ヒドロキシエチル)イソシアヌレート、N,N'-ビス(ヒドロキシエチル)オキサミド、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]オクタンである；

(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)酢酸と一価又は多価のアルコールとのエステル、アルコールは例えば、メタノール、エタノール、オクタノール、オクタデカノール、1,6-ヘキサンジオール、1,9-ノナンジオール、エチレングリコール、1,2-プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、ペンタエリスリトール、トリス(ヒドロキシエチル)イソシアヌレート、N,N'-ビス(ヒドロキシエチル)オキサミド、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]オクタンである；

-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオン酸のアミド、例えば、N,N'-ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニルプロピオニル)ヘキサメチレンジアミド、N,N'-ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニルプロピオニル)ヘキサメチレンジアミド、N,N'-ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニルプロピオニル)ヘキサメチレンジアミド、N,N'-ビス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロ

10

20

30

40

50

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-tert-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(Uniroyal社によって上市されているNaugard(登録商標)XL-1)；

アスコルビン酸(ビタミンC)。

【0054】

特に好ましいフェノール系酸化防止剤は次のものである：

オクタデシル-3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、ペンタエリスリトール-テトラキス[3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、トリス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)イソシアヌレート、1,3,5-トリメチル-2,4,6-トリス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)イソシアヌレート、1,3,5-トリメチル-2,4,6-トリス(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン、トリエチレングリコール-ビス[3-(3-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)プロピオネート、N,N'-ヘキサン-1,6-ジイル-ビス[3-(3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオン酸アミド。

10

【0055】

適切なホスファイト(ホスフィットとも称される：phosphite)/ホスホナイト(ホスホニットとも称される：phosphonite)は、例えば、次のものである：

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

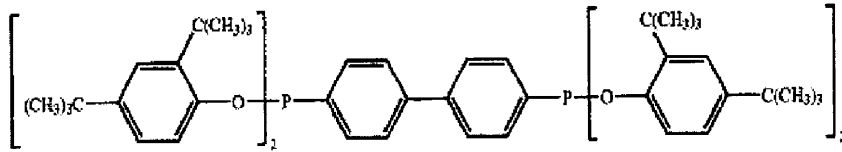
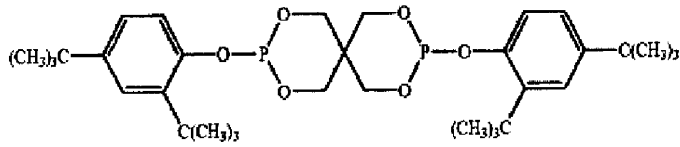
20

30

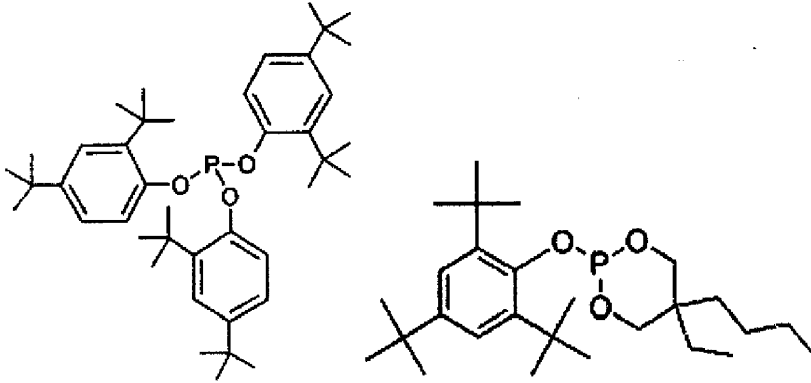
【0056】

特に好ましいホスファイト/ホスホナイトは次のものである：

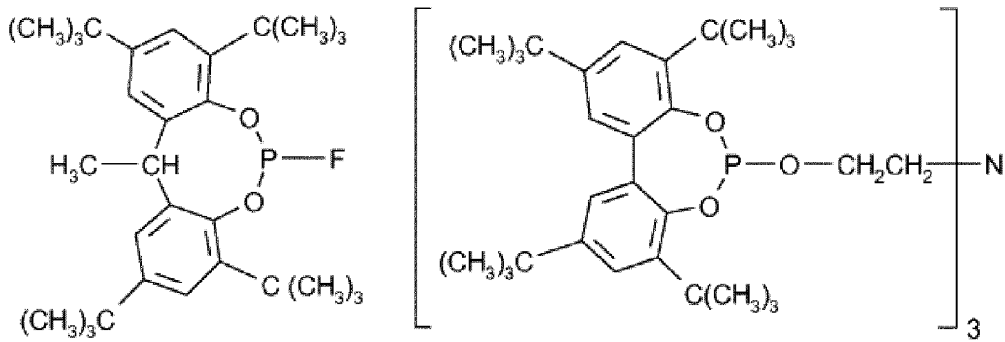
【化 2 7】



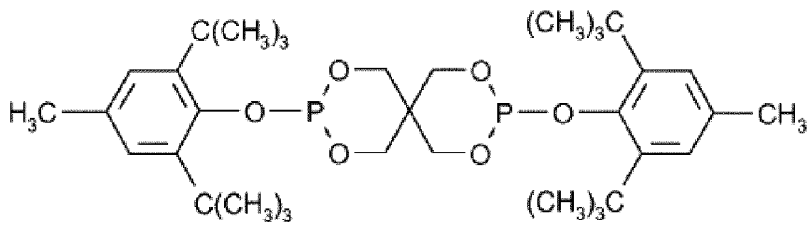
10



20

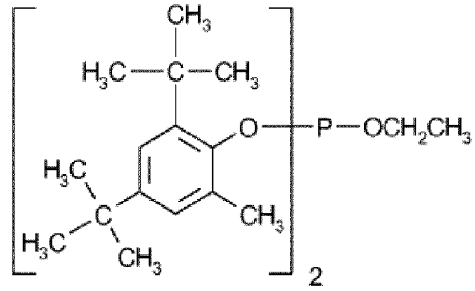


30

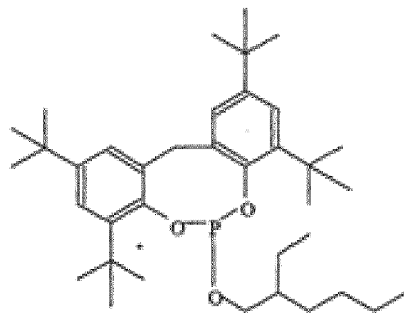


40

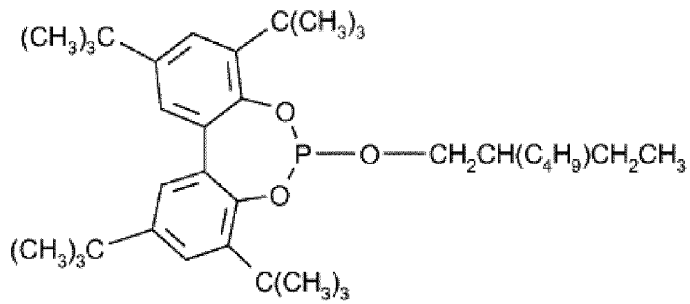
【化 2 8】



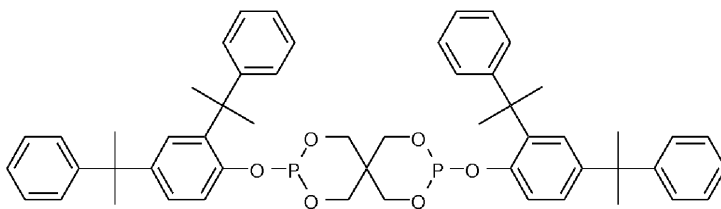
10



20

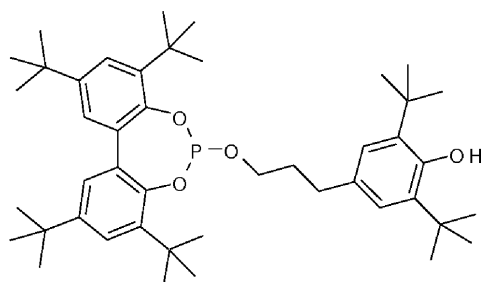


30



40

【化 2 9】



50

【 0 0 5 7 】

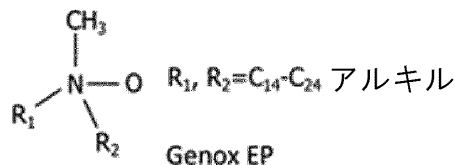
さらに適切な安定剤は、アミン系酸化防止剤である。適切なアミン系酸化防止剤は、例えば、次のものである：

N, N'-ジ-イソプロピル-p-フェニレンジアミン、N, N'-ジ-sec-ブチル-p-フェニレンジアミン、N, N'-ビス(1,4-ジメチルペンチル)-p-フェニレンジアミン、N, N'-ビス(1-エチル-3-メチルペンチル)-p-フェニレンジアミン、N, N'-ビス(1-メチルヘプチル)-p-フェニレンジアミン、N, N'-ジシクロヘキシル-p-フェニレンジアミン、N, N'-ジフェニル-p-フェニレンジアミン、N, N'-ビス(2-ナフチル)-p-フェニレンジアミン、N-イソプロピル-N'-フェニル-p-フェニレンジアミン、N-(1,3-ジメチルブチル)-N'-フェニル-p-フェニレンジアミン、N-(1-メチルヘプチル)-N'-フェニル-p-フェニレンジアミン、N-シクロヘキシル-N'-フェニル-p-フェニレンジアミン、4-(p-トルエンスルファモイル)ジフェニルアミン、N, N'-ジメチル-N, N'-ジ-sec-ブチル-p-フェニレンジアミン、ジフェニルアミン、N-アリルジフェニルアミン、4-イソプロポキシジフェニルアミン、N-フェニル-1-ナフチルアミン、N-(4-tert-オクチルフェニル)-1-ナフチルアミン、N-フェニル-2-ナフチルアミン、オクチル化ジフェニルアミン（例えば、p, p'-ジ-tert-オクチルジフェニルアミン）、4-n-ブチルアミノフェノール、4-ブチリルアミノフェノール、4-ノナノイルアミノフェノール、4-ドデカノイルアミノフェノール、4-オクタデカノイルアミノフェノール、ビス(4-メトキシフェニル)アミン、2,6-ジ-tert-ブチル-4-ジメチルアミノメチルフェノール、2,4'-ジアミノジフェニルメタン、4,4'-ジアミノジフェニルメタン、N, N, N', N'-テトラメチル-4,4'-ジアミノジフェニルメタン、1,2-ビス[(2-メチルフェニル)アミノ]エタン、1,2-ビス(フェニルアミノ)プロパン、(o-トリル)ピグアニド、ビス[4-(1',3'-ジメチルブチル)フェニル]アミン、tert-オクチル化N-フェニル-1-ナフチルアミン、モノ-及びジアルキル化tert-ブチル/tert-オクチルジフェニルアミンの混合物、モノ-及びジアルキル化ノニルジフェニルアミンの混合物、モノ-及びジアルキル化ドデシルジフェニルアミンの混合物、モノ-及びジアルキル化イソプロピル/イソヘキシルジフェニルアミンの混合物、モノ-及びジアルキル化tert-ブチルジフェニルアミンの混合物、2,3-ジヒドロ-3,3-ジメチル-4H-1,4-ベンゾチアジン、フェノチアジン、モノ-及びジアルキル化tert-ブチル/tert-オクチルフェノチアジンの混合物、モノ-及びジアルキル化tert-オクチルフェノチアジンの混合物、N-アリルフェノチアジン、N, N, N', N'-テトラフェニル-1,4-ジアミノプト-2-エン、及びこれらの混合物又は組み合わせ。

【 0 0 5 8 】

さらなる適切なアミン系酸化防止剤は、ヒドロキシルアミン、又はN-オキシド(ニトロ)であり、例えば、N, N-ジアルキルヒドロキシルアミン、N, N-ジベンジルヒドロキシルアミン、N, N-ジラウリルヒドロキシルアミン、N, N-ジステアリルヒドロキシルアミン、N-ベンジル-フェニルニトロ、N-オクタデシル-ヘキサデシルニトロ、及び次の式のGenox EP(Addivant)である：

【 化 3 0 】



【 0 0 5 9 】

さらなる適切な安定剤は、チオ相乗剤である。適切なチオ相乗剤は、例えば、ジステアリルチオジプロピオネート、ジラウリルジプロピオネート、又は次の式に示す化合物である：

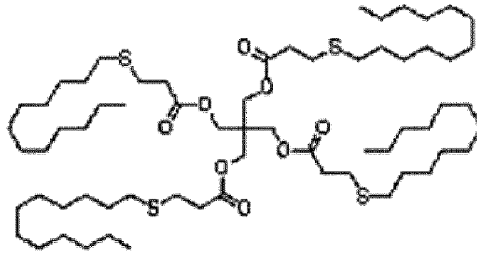
10

20

30

40

【化 3 1】



【 0 0 6 0】

10

特にポリアミド用のさらなる適切な安定剤は、銅塩であり、例えば、ヨウ化銅(I)、臭化銅(I)、又は銅錯体、例えば、トリフェニルホスフィン-銅(I)錯体である。

【 0 0 6 1】

適切なヒンダードアミンは、例えば、次のものである：

1,1-ビス(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)サクシネート、ビス(1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル)セバケート、ビス(1-オクチルオキシ-2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)セバケート、ビス(1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル)-n-ブチル-3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジルマロネート、1-(2-ヒドロキシエチル)-2,2,6,6-テトラメチル-4-ヒドロキシピペリジンとコハク酸の縮合生成物、N,N'-ビス(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)ヘキサメチレンジアミンと4-tert-オクチルアミノ-2,6-ジ-クロロ-1,3,5-トリアジンの線状又は環状縮合生成物、トリス(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)ニトリロトリアセテート、テトラキス(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)-1,2,3,4-ブタンテトラカルボキシレート、1,1'-(1,2-エタンジイル)-ビス(3,3,5,5-テトラメチルピペラジノン)、4-ベンゾイル-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン、4-ステアリルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン、N,N'-ビス(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)ヘキサメチレンジアミンと4-モルホリノ-2,6-ジクロロ-1,3,5-トリアジンの線状又は環状縮合生成物、7,7,9,9-テトラメチル-2-シクロウンデシル-1-オキサ-3,8-ジアザ-4-オキソスピロ-[4,5]デカンとエピクロロヒドリンの反応生成物。

20

【 0 0 6 2】

30

適切な難燃剤は、例えば、次のものである：

a) 無機の難燃剤、例えば、 $Al(OH)_3$ 、 $Mg(OH)_2$ 、 $AlO(OH)$ 、 $MgCO_3$ 、層状シリケート、例えば、モンモリロナイト又はセピオライト、非改質の又は有機的に改質した複塩、例えば、 $Mg-Al$ シリケート、 $POSS$ (ポリヘドラルオリゴマー性シルセスキオキサン)化合物、ハントライト、ヒドロマグネサイト又はハロイサイト及び、 Sb_2O_3 、 Sb_2O_5 、 MoO_3 、スズ酸亜鉛、ヒドロキシスズ酸亜鉛、

b) 窒素含有難燃剤、例えば、メラミン、メレム(melem)、メラム(melam)、メロン(melon)、メラミン誘導体、メラミン縮合生成物又はメラミン塩、ベンゾグアナミン、ポリイソシアヌレート、アラントイン、(ポリ)ホスファセン、特に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、メラミンポリホスフェート、メラミンメタンホスホネート、メラミン-金属ホスフェート、例えば、メラミンアルミニウムホスフェート、メラミン亜鉛ホスフェート、メラミンマグネシウムホスフェート、及び対応するピロホスフェート及びポリホスフェート、エチレンジアミン-メタンホスホネート、ポリ-[2,4-(ピペラジン-1,4-イル)-6-(モルホリン-4-イル)-1,3,5-トリアジン]、アンモニウムポリホスフェート、メラミンボレート、メラミンヒドロブロミド、

40

c) リン含有難燃剤、例えば、無機又は有機ホスホネート、例えば、アルミニウムホスホネート、ホスホネートエステル、メタンホスホン酸のオリゴマー及びポリマー誘導体、赤リン、ホスフェート、例えば、レゾルシンジホスフェート、ビスフェノール-A-ジホスフェート及びそれらのオリゴマー、トリフェニルホスフェート、エチレンジアミンジホス

50

フェート、ホスフィネート（ホスフィン酸塩）、例えば、次亜リン酸及びその誘導体の塩、例えばアルキルホスフィネート塩、例えばジエチルホスフィネートアルミニウム又はジエチルホスフィネート亜鉛又はアルミニウムホスフィネート、アルミニウムホスファイト、アルミニウムホスフェート、9, 10-ジヒドロ-9-オキサ-10-ホスホリルフェナントレン-10-オキシド（DOPPO）及びこれらの置換化合物、

d) 塩素及び臭素をベースとするハロゲン含有難燃剤、例えば、ポリ臭素化ジフェニルオキシド、例えば、デカブROMOジフェニルオキシド、トリス(3-ブROMO-2, 2-ビス(ブROMOメチル)プロピルホスフェート、トリス(トリブROMOネオペンチル)ホスフェート、テトラブROMOフタル酸、1, 2-ビス(トリブROMOフェノキシ)エタン、ヘキサブROMOシクロデカン、臭素化ジフェニルエタン、トリス-(2, 3-ジブROMOプロピル)イソシアヌレート、エチレン-ビス(テトラブROMOフタルイミド)、テトラブROMOビスフェノールA-ビス(2, 3-ジブROMOプロピルエーテル)、テトラブROMOビスフェノールA、臭素化ポリスチレン、臭素化ポリブタジエン又はポリスチレン-臭素化ポリブタジエン-コポリマー、臭素化エポキシ樹脂、ポリペンタブROMOベンジルアクリレート、臭素化ポリフェニレンエーテル、任意で、 Sb_2O_3 及び/又は Sb_2O_5 との組み合わせ、

e) ホウ酸塩、例えば、ホウ酸亜鉛又はホウ酸カルシウムで、これらは、シリカ等のキャリア材料上にあってもよい、

f) 硫黄含有化合物、例えば、元素としての硫黄、ジスルフィド及びポリスルフィド、チウラムスルフィド、ジチオカルバメート、メルカプトベンゾチアゾール及びスルフェンアミド、

g) アンチドリップ(防滴)剤、例えば、ポリテトラフルオロエチレン、

h) シリコン含有化合物、例えば、ポリフェニルシロキサン、

i) 炭素改変物、例えば、カーボンナノチューブ(CNT)又はグラフェン及び、それらの組み合わせ又は混合物。

【0063】

適切な分散剤は、例えば、次のものである：

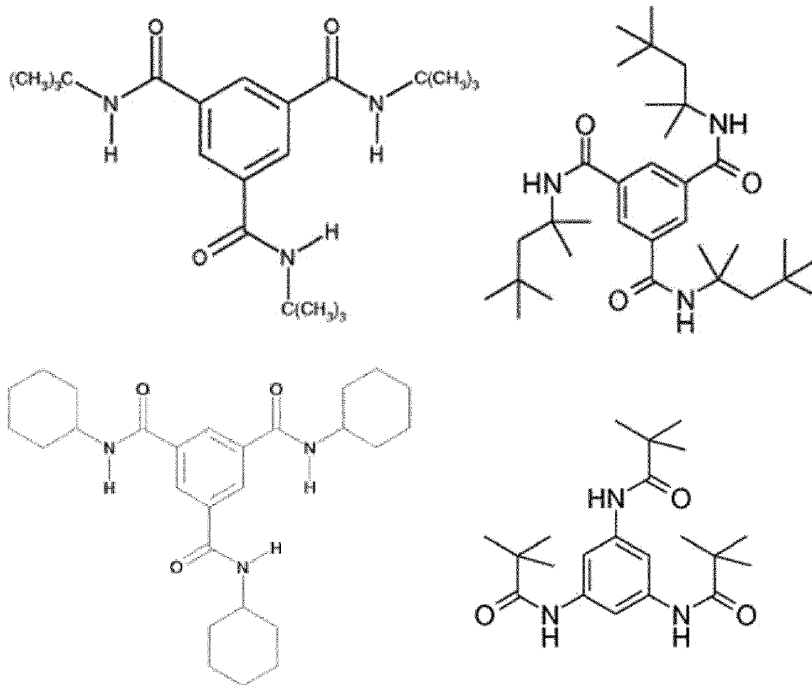
ポリアクリレート、例えば、長鎖の側基を有するコポリマー、ポリアクリレートブロックコポリマー、アルキルアミド、例えば、N, N'-1, 2-エタンジイルビスオクタデカンアミドソルビタンエステル、例えば、モノステアリルソルビタンエステル、チタネート及びジルコネート、官能基を有する反応性コポリマー、例えば、ポリプロピレン-コ-アクリル酸、ポリプロピレン-コ-無水マレイン酸、ポリエチレン-コ-グリシジルメタクリレート、ポリスチレン-alt-無水マレイン酸-ポリシロキサン、例えば、ジメチルシランジオール-エチレンオキシドコポリマー、ポリフェニルシロキサンコポリマー、両親媒性コポリマー、例えば、ポリエチレン-ブロック-ポリエチレンオキシド、デンドリマー、例えば、ヒドロキシル基含有デンドリマー。

【0064】

適切な核生成剤は、例えば、次のものである：

タルク、一官能性及び多官能性のカルボン酸（例えば、安息香酸、コハク酸、アジピン酸）のアルカリ塩又はアルカリ土類塩、例えば、安息香酸ナトリウム、亜鉛グリセロレート、アルミニウムヒドロキシ-ビス(4-tert-ブチル)ベンゾエート、ベンジリデンソルビトール、例えば、1, 3:2, 4-ビス(ベンジリデン)ソルビトール又は1, 3:2, 4-ビス(4-メチルベンジリデン)ソルビトール、2, 2'-メチレン-ビス(4, 6-ジ-tert-ブチルフェニル)ホスフェート、及びトリアミド、例えば、次の構造に従うもの。

【化 3 2】



10

20

【0065】

適切なフィラー及び強化材は、例えば合成物質又は天然物質であり、例えば、炭酸カルシウム、シリケート、ガラス繊維、ガラス球（中実又は中空）、タルク、マイカ、カオリン、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、カーボンナノチューブ、グラフェン、天然物のおがくず又は繊維、例えば、セルロース、合成繊維又は金属繊維である。さらなる適切なフィラーは、ヒドロタルサイト又はゼオライト又は層状シリケート、例えば、モンモリロナイト、ベントナイト、バイデライト、マイカ、ヘクトライト、サポナイト、パーミキュライト、レディカイト(ledikite)、マガディアイト(magadiite)、イライト、カオリナイト、ウォラストナイト、アタパルガイトである。

30

【0066】

ポリエステルやポリアミド等の重縮合ポリマーの線状の分子量増加のために適切な鎖延長剤は、例えば、ジエポキシド、ビス-オキサゾリン、ビス-オキサゾロン、ビス-オキサジン、ジイソシアネート、ジアンヒドリド、ビス-アシルラクタム、ビス-マレイミド、ジシアネート、カルボジイミドである。さらなる適切な鎖延長剤は、ポリマー化合物、例えば、ポリスチレン-ポリアクリレート-ポリグリシジル(メタ)アクリレートコポリマー、ポリスチレン-無水マレイン酸コポリマー及びポリエチレン-無水マレイン酸コポリマーである。

【0067】

適切な顔料は、無機性であっても有機性であってもよい。適切な無機顔料は、例えば、二酸化チタン、酸化亜鉛、硫化亜鉛、酸化鉄、ウルトラマリン、カーボンブラックである。適切な有機顔料は、例えば、アントラキノン、アンサンスロン、ベンズイミダゾロン、キナクリドン、ジケトピロ-ロピロール、ジオキサジン、インダンスロン、イソインドリノン、アゾ化合物、ペリレン、フタロシアニン又はピランスロンである。さらなる適切な顔料は、金属をベースとする有効顔料又は、金属酸化物をベースとする真珠光沢顔料である。

40

【0068】

蛍光増白剤(光学的光沢剤)は、例えば、ビスベンゾオキサゾール、フェニルクマリン、又はビス(スチリル)ピフェニルであり、特に、次の式の蛍光増白剤である。

f) ポリアセタール、例えば、ポリオキシメチレン(POM)又は例えばブタナールとのコポリマー、

g) ポリフェニレンオキシド、及び、ポリスチレン又はポリアミドとの混和物、

h) 環状エーテルのポリマー、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、ポリエチレンオキシド、ポリプロピレンオキシド、

i) ヒドロキシ末端ポリエーテル又はポリエステルと、芳香族又は脂肪族イソシアネートからなるポリウレタン、特に、線状ポリウレタン、ポリウレア、

j) ポリアミド、例えば、ポリアミド-6、6.6、6.10、4.6、4.10、6.12、12.12、ポリアミド11、ポリアミド12、及び、(部分)芳香族ポリアミド、例えば、ポリフタルアミド、例えば、テレフタル酸及び/又はイソフタル酸と、脂肪族ジアミンから製造されるもの、又は、例えばアジピン酸あるいはセバシン酸などの脂肪族ジカルボン酸と、例えば1,4-又は1,3-ジアミノベンゼンなどの芳香族ジアミンから製造されるもの、例えばPA-6とPA6.6のような異なるポリアミドの混和物、又は例えばPA/PPのようなポリアミドとポリオレフィンの混和物、

k) 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(エーテル)ケトン、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリアリーールスルホン、ポリフェニレンスルフィド、ポリベンゾイミダゾール、ポリヒダントイン、

l) 脂肪族又は芳香族ジカルボン酸とジオールからなる、又は、ヒドロキシカルボン酸からなるポリエステル、例えば、ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリブチレンテレフタレート(PBT)、ポリプロピレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、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、ポリヒドロキシベンゾエート、ポリヒドロキシナフタレート、ポリ乳酸(PLA)、ポリヒドロキシブチレート(PHB)、ポリヒドロキシバレレート(PVH)、

m) ポリカーボネート、ポリエステルカーボネート、及び混和物、例えばPC/ABS、PC/PBT、PC/PET/PBT、PC/PA、

n) セルロース誘導体、例えば、セルロースナイトレート、セルロースアセテート、セルロースプロピオネート、セルロースブチレート、

o) 及び、前述のポリマー2種以上からなる、混合物、組み合わせ、又は混和物。

【0072】

a) ~ n) に示すポリマーがコポリマーである場合、これらは、統計的(ランダム)、ブロック-又は「テーパード(tapered)」構造の形で存在することができる。

【0073】

a) ~ n) に示すポリマーが、立体規則性ポリマーである場合、これらは、アイソタクチック、ステレオタクチックの形態で存在することができ、アタクチックの形態、又はステレオブロック構造であってもよい。

【0074】

さらに、a) ~ n) に示すポリマーは、非晶質形態、及び(部分)結晶性形態のどちらも有することができる。

【0075】

前述のポリマーa) ~ n) は、バージン材料だけでなく、例えば、製造廃棄物として又は役に立つ材料集積物(「使用済みの」リサイクル)からのリサイクルの形態で存在してもよい。

【0076】

本発明によれば、初めに挙げられた式Iによるオキシイミドは、特に、以下の熱硬化性又はエラストマー性、非熱可塑性のプラスチック材料中で、ラジカル生成剤として使用できる：

a) エポキシ樹脂、例えば、アミン、無水物、ジシアノジアミド、メルカプタン、イソシアネート又は触媒的に活性な硬化剤を主剤とする硬化剤と組み合わせた二-又は多官能エポキシ化合物からなるエポキシ樹脂、

b) フェノール樹脂、例えば、フェノール-ホルムアルデヒド樹脂、ユリア-ホルムアル

10

20

30

40

50

デヒド樹脂、メラミン-ホルムアルデヒド樹脂、

c) 不飽和ジカルボン酸とジオールからなる不飽和ポリエステル樹脂、

d) シリコン、

e) ニ-又は多官能性イソシアネートと、ポリオールからなる反応生成物としてのポリウレタン、ポリウレア

f) アルキド樹脂、アリル樹脂。

【0077】

非常に好ましくは、本発明に係るラジカル生成剤は、ポリオレフィン（好ましくはポリプロピレン及び/又はポリエチレン、及びそれらのコポリマー及び混和物）、及び不飽和ポリエステル樹脂の改質のために使用される。

10

【0078】

非常に好ましくは、本発明に係るラジカル生成剤は、好ましくは、ポリプロピレンの分子量低下のため及び/又はポリエチレンあるいは不飽和ポリエステル樹脂、及びそれらのコポリマー及び混和物の架橋のため、及び、ポリプロピレンあるいはポリエチレン上への不飽和モノマーのグラフティングのために使用される。架橋反応のためには、ヒドロキシイミド及びヒドロキシイミドエーテルが特に好ましい。

【0079】

特に、本発明により使用されるオキシイミドと、少なくとも1種の追加のラジカル形成剤との組み合わせにおいて、相乗効果が生じる。追加のラジカル形成剤は、好ましくは、上述した好ましく使用されるラジカル形成剤からなる群より選択される。繰り返しを避けるために、前述した実施形態が、追加のラジカル形成剤のために参照される。

20

【0080】

本発明で使用されるオキシイミドと、少なくとも1種のさらなるラジカル形成剤を併用する場合、本発明では、前述の化合物を99:1~1:99、好ましくは5:95~95:5、特に好ましくは10:90~90:10の重量比（オキシイミド:さらなるラジカル形成剤）で使用することが好ましい。

【0081】

本発明において、さらに、有機オキシイミドが、プラスチック材料に対して、0.01~30重量%、好ましくは0.1~10重量%、特に好ましくは0.5~5重量%で使用されることが有利である。

30

【0082】

さらに、本発明は、プラスチック材料中でラジカルを生成するための方法に関し、当該方法では、前述の式Iの構成要素を少なくとも1つ含む少なくとも1種の有機オキシイミドが、プラスチック材料と又は少なくとも1種のプラスチック材料を含む少なくとも1種の成形材料と混合され、活性化される。前記活性化において、ラジカルが放出される。特に、前記活性化は、熱的に又は照射によって行われる。特に好ましくは、前記活性化は、プラスチック材料を、あるいはプラスチック材料を含む成形材料を成形する方法、特に射出成形や押出の間に、同時に行われる。これらの方法では、前記プラスチック材料は、それらの可塑化温度（その温度から、プラスチック材料又はプラスチック材料を含む成形材料が可塑化した状態で存在する）を超える温度で加熱される。

40

【0083】

さらに、本発明は、プラスチック材料を改質するための、前述した方法の使用に関する。

【0084】

特に好ましくは、本発明に係るオキシイミドは、ポリマー（特に、ポリオレフィン、特にポリプロピレン）の制御分解のため、あるいはポリマー（特に、ポリオレフィン又は不飽和ポリエステル）を架橋するためのラジカル生成剤として、ポリマー（特にポリオレフィン）上へ不飽和化合物をグラフトするためのラジカル形成剤として、使用される。

【0085】

本発明に係る方法で、あるいは当該方法の使用目的において使用できる前記有機オキシ

50

イミドの具体的詳細に関して、前記の実施形態が参照される。前述した好ましい実施形態の全てが、前述した本発明に係る方法又は本発明に係る方法の本発明に係る使用にも、制限なく、同様に適用される。

【0086】

以下の実施形態を参照して本発明をより詳細に説明するが、本発明は、当該実施例に限定されるものではない。

【0087】

実施例1：ポリプロピレンの分子量の低減

ラジカル生成剤の添加の下で、ポリプロピレンサンプル (Moplen HP 500N) の押出を、11mmの二軸押し機 (Thermo Scientific社のProcess 11) により、表記の温度、スクリーン回転速度400rpmにて行う。所望の比率のポリマーと添加剤が最初に混合によって均質化され、容積計測器を経て押し機に供給される。続いて、造粒された押しサンプルのMVR (メルトボリュームレート) を、ISO1133に従って230 / 2.16kgで測定し、分子量の平均重量を高温ゲル浸透クロマトグラフィーによって測定した。

【0088】

【表1】

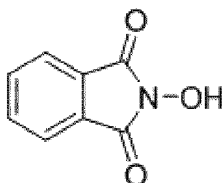
表1:ポリプロピレンの組成、及び、メルトボリュームフローレートと分子量の分析結果

試験番号	添加剤	押し温度 [°C]	MVR	Mw
比較例1	無し	240	14	400,000
比較例2	無し	260	15	381,000
比較例3	無し	280	22	362,000
比較例4	無し	300	25	n.d.
本発明の 実施例1	0.1% オキシイミド1	280	45	n.d.
実施例2	0.2% オキシイミド1	280	61	244,000
実施例3	0.5% オキシイミド1	280	84	n.d.
実施例4	0.2% オキシイミド1	240	25	346,000
実施例5	0.2% オキシイミド1	260	30	317,000
実施例6	0.2% オキシイミド1	300	>200	n.d.
実施例7	0.1% オキシイミド2	280	27	n.d.

n.d.=測定せず

【0089】

オキシイミド1 = N-ヒドロキシフタルイミド



10

20

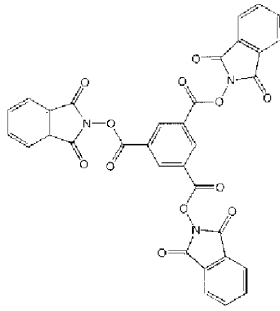
30

40

50

【0090】

オキシイミド 2 (WO 2014/154636 に従って製造)



10

【0091】

驚くべきことに、本発明のオキシイミドを含む組成物は、比較例と比べて、より高いMVR (=より低い分子量)、及び、同じくGPC-測定においてより低い分子量を有することが示される。オキシイミドの濃度の増加及び加工温度の増加につれて、分子量はさらに低下する。

【0092】

実施例 2 : ポリエチレンの分子量の増加

N-ヒドロキシフタルイミド (NHPI) を用いた反応性の押出によって、PE-タイプ (ExxonMobil から入手可能) の分子量増加を、11 mm の二軸押出し機 (Thermo Scientific 社の Process 11) により、200 、スクリー速度 300 rpm にて行った。メルトボリュームフローレート (MVR) の分析は、ISO 1133 に従って、温度 190 、重量 5 kg 又は 10 kg で行った。

20

【0093】

【表 2】

表2: ポリエチレンの組成、及びメルトボリュームフローレートの分析結果

例	組成		MVR(5 kg、190°C) / cm ³ *min ⁻¹	MVR (10 kg、190°C) / cm ³ *min ⁻¹		
比較例 1	LDPE (LD 185 BW)	100%	10.2	31.7	10	
	NHPI	0%				
本発明の 実施例1	LDPE (LD 185 BW)	99.80%	9.9	-		
	NHPI	0.20%				
本発明の 実施例2	LDPE (LD 185 BW)	99.60%	9.7	-		
	NHPI	0.40%				
本発明の 実施例3	LDPE (LD 185 BW)	99.20%	9.0	31.2		20
	NHPI	0.80%				
比較例2	HDPE (HTA 108)	100%	-	12.9		
	NHPI	0%				
本発明の 実施例4	HDPE (HTA 108)	99.20%	-	12.5		
	NHPI	0.80%				

【 0 0 9 4 】

比較例に対する本発明の実施例のMVR値の有意な低下によって、分子量の増加に起因する溶融粘度の増加が明らかになる。このように、本出願中に記載された方法によって、分子量の制御された増加が、確認できる。

30

【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No PCT/EP2015/071249

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER INV. C08K5/3417 ADD.		
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		
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 practicable, search terms used) EPO-Internal, WPI Data		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 4 409 367 A (BEIJLEVELD WILHELMUS M [NL] ET AL) 11 October 1983 (1983-10-11) column 2, lines 18-26; claim 5; table I -----	1-3,5-8, 10-18
X	WO 2007/028731 A1 (CIBA SC HOLDING AG [CH]; CIBA SPEC CHEM SPA [IT]; SALA MASSIMILIANO [I]) 15 March 2007 (2007-03-15) claims 1, 3, 4, 15, 22-27; examples -----	1-6,8-18
<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 application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search		Date of mailing of the international search report
18 November 2015		27/11/2015
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer Lohner, Pierre

1

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2015/071249

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 4409367	A	11-10-1983	CA 1188042 A 28-05-1985
			DE 3263803 D1 04-07-1985
			EP 0056674 A1 28-07-1982
			JP S57139130 A 27-08-1982
			US 4409367 A 11-10-1983

WO 2007028731	A1	15-03-2007	AR 058031 A1 23-01-2008
			AU 2006289187 A1 15-03-2007
			BR P10616728 A2 28-06-2011
			CA 2621184 A1 15-03-2007
			CN 101258194 A 03-09-2008
			EP 1922359 A1 21-05-2008
			JP 2009507116 A 19-02-2009
			KR 20080045691 A 23-05-2008
			US 2009286060 A1 19-11-2009
			WO 2007028731 A1 15-03-2007
			ZA 200801336 A 29-07-2009

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2015/071249

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES INV. C08K5/3417 ADD.		
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC		
B. RECHERCHIERTE GEBIETE Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) C08K		
Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen		
Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) EPO-Internal, WPI Data		
C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 4 409 367 A (BEIJLEVELD WILHELMUS M [NL] ET AL) 11. Oktober 1983 (1983-10-11) Spalte 2, Zeilen 18-26; Anspruch 5; Tabelle I	1-3,5-8, 10-18
X	WO 2007/028731 A1 (CIBA SC HOLDING AG [CH]; CIBA SPEC CHEM SPA [IT]; SALA MASSIMILIANO [I]) 15. März 2007 (2007-03-15) Ansprüche 1, 3, 4, 15, 22-27; Beispiele	1-6,8-18
<input type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen <input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie		
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : *A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist *E* frühere Anmeldung oder Patent, die bzw. das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist *L* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) *O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht *P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist *T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist *X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden *Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist *Z* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist		
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche		Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
18. November 2015		27/11/2015
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Bediensteter Lohner, Pierre

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2015/071249

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 4409367	A	11-10-1983	CA 1188042 A 28-05-1985
			DE 3263803 D1 04-07-1985
			EP 0056674 A1 28-07-1982
			JP S57139130 A 27-08-1982
			US 4409367 A 11-10-1983

WO 2007028731	A1	15-03-2007	AR 058031 A1 23-01-2008
			AU 2006289187 A1 15-03-2007
			BR P10616728 A2 28-06-2011
			CA 2621184 A1 15-03-2007
			CN 101258194 A 03-09-2008
			EP 1922359 A1 21-05-2008
			JP 2009507116 A 19-02-2009
			KR 20080045691 A 23-05-2008
			US 2009286060 A1 19-11-2009
			WO 2007028731 A1 15-03-2007
			ZA 200801336 A 29-07-2009

フロントページの続き

(51) Int.Cl. F I テーマコード(参考)
C 0 8 K 5/32 (2006.01) C 0 8 K 5/32

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

Fターム(参考) 4J002 AA001 AB011 AB021 AC031 AC061 BB021 BB061 BB071 BB081 BB111
 BB151 BB171 BB211 BC011 BC031 BC041 BC081 BC091 BD031 BD101
 BD141 BE021 BE061 BN051 BP011 BP031 CB001 CF031 CF051 CF061
 CF071 CF081 CF181 CF191 CG011 CG021 CH021 CH071 CK011 CK021
 CL011 CL031 CL061 CM041 CN011 CN031 ES006 FD146
 4J011 NA02 NA13 NA24 NA25 NA27 NA28 NA30 NB04
 4J015 BA03 BA13
 4J100 AA02P AA03P HA51 HA53 HC61