

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4632789号  
(P4632789)

(45) 発行日 平成23年2月16日(2011.2.16)

(24) 登録日 平成22年11月26日(2010.11.26)

(51) Int.Cl.	F 1
CO8L 101/00	(2006.01) CO8L 101/00
CO8F 283/12	(2006.01) CO8F 283/12
CO8F 293/00	(2006.01) CO8F 293/00
CO8L 51/00	(2006.01) CO8L 51/00
CO8L 53/00	(2006.01) CO8L 53/00

請求項の数 1 (全 36 頁)

(21) 出願番号	特願2004-538940 (P2004-538940)
(86) (22) 出願日	平成15年9月18日 (2003.9.18)
(65) 公表番号	特表2006-500449 (P2006-500449A)
(43) 公表日	平成18年1月5日 (2006.1.5)
(86) 国際出願番号	PCT/EP2003/010393
(87) 国際公開番号	W02004/029156
(87) 国際公開日	平成16年4月8日 (2004.4.8)
審査請求日	平成18年9月15日 (2006.9.15)
(31) 優先権主張番号	02405832.3
(32) 優先日	平成14年9月26日 (2002.9.26)
(33) 優先権主張国	欧洲特許庁 (EP)

(73) 特許権者	396023948 チバ ホールディング インコーポレーテ ッド C i b a H o l d i n g I n c . スイス国, 4057 バーゼル, クリベツ クシュトラーセ 141
(74) 代理人	100068618 弁理士 粟 経夫
(74) 代理人	100104145 弁理士 宮崎 嘉夫
(74) 代理人	100093193 弁理士 中村 善夫
(74) 代理人	100104385 弁理士 加藤 勉

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 向上したメルトフロー及び相溶性を持つ熱可塑性組成物

## (57) 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

A ) 热可塑性ポリマー、及び  
 B 1 ) 式 B - C - B で表わされるトリブロック - コポリマー、又は  
 B 2 ) ポリマーブロック B がポリマー C にグラフトされて、理想的な一般式 C - B ( n )  
 ( 式中、 n は 2 より大きい ) で表わされる櫛形コポリマーを形成するグラフトコポリマー  
 、  
 を含む組成物であって、

前記熱可塑性ポリマー A ) は、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、ポリア  
 クリレート、ポリメタクリレート、ポリ塩化ビニル、及びポリ酢酸ビニルからなる群から  
 選択され、そして

前記ポリマーブロック B は、ポリイソブレン、ポリブタジエン、ポリスチレン、ポリメ  
 タクリレート、及びポリアクリレートからなる群から選択され、そして

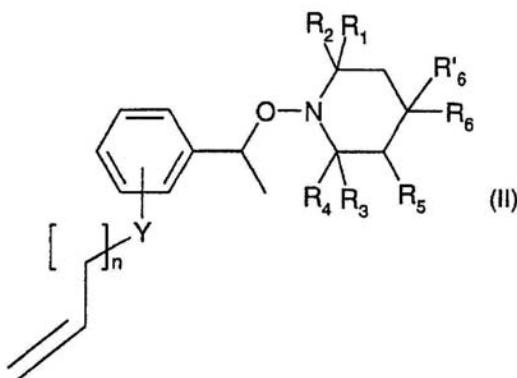
前記ポリマーブロック B は前記熱可塑性ポリマー A ) に対して相溶性であり、そして  
 前記ポリマーブロック C は前記熱可塑性ポリマー A ) のガラス転移温度より少なくとも  
 20 °K 低いガラス転移温度を有し、そして

前記トリブロック - コポリマー B 1 ) 又はグラフトされた前記櫛形コポリマー B 2 ) の  
 平均分子量  $M_w$  は 50000 未満であり、そして

前記式 B - C - B で表されるトリブロック - コポリマー又は前記理想的な一般式 C - B  
 ( n ) で表わされるグラフトコポリマーが、

a) 水素末端基を持つ又はポリマー骨格に懸下した水素原子を持つポリシロキサンを、次式(II)：

【化1】



10

[式中、

Yは直接結合、酸素原子、-NH-基、-C(O)O-基又は硫黄原子を表わし、

nは0ないし18の数を表わし、

R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>及びR<sub>4</sub>は互いに独立して炭素原子数1ないし4のアルキル基を表わし、

R<sub>5</sub>は水素原子又は炭素原子数1ないし4のアルキル基を表わし、

R<sub>6</sub>'は水素原子を表わし、そしてR<sub>6</sub>は水素原子、-OR<sub>10</sub>基、-NR<sub>10</sub>R<sub>11</sub>基、-O-C(O)-R<sub>10</sub>基又は-NR<sub>11</sub>-C(O)-R<sub>10</sub>基を表わし、

20

R<sub>10</sub>及びR<sub>11</sub>は互いに独立して水素原子、炭素原子数1ないし18のアルキル基、炭素原子数2ないし18のアルケニル基、炭素原子数2ないし18のアルキニル基又は、少なくとも一つのヒドロキシ基により置換された炭素原子数2ないし18のアルキル基を表わし、或いは、R<sub>6</sub>が-NR<sub>10</sub>R<sub>11</sub>基を表わすとき、一緒になって、炭素原子数2ないし12のアルキレン橋又は、少なくとも1個の酸素原子により中断された炭素原子数2ないし12のアルキレン橋を形成し、或いは

R<sub>6</sub>及びR<sub>6</sub>'は共に水素原子を表わし、又は一緒になって基=O若しくは基=N-O-R<sub>20</sub>{}式中、

R<sub>20</sub>は水素原子、直鎖状又は分岐鎖状の炭素原子数1ないし18のアルキル基、炭素原子数3ないし18のアルケニル基又は炭素原子数3ないし18のアルキニル基（これらは非置換であっても又は、-OH基、炭素原子数1ないし8のアルコキシ基、カルボキシ基、炭素原子数1ないし8のアルコキシカルボニル基で置換されていてもよい）；炭素原子数5ないし12のシクロアルキル基又は炭素原子数5ないし12のシクロアルケニル基；フェニル基、炭素原子数7ないし9のフェニルアルキル基又はナフチル基（これらは非置換であっても又は、炭素原子数1ないし8のアルキル基、ハロゲン原子、-OH基、炭素原子数1ないし8のアルコキシ基、カルボキシ基、炭素原子数1ないし8のアルコキシカルボニル基で置換されていてもよい）；-C(O)-炭素原子数1ないし36のアルキル基、或いは、3個ないし5個の炭素原子を有する，-不飽和カルボン酸又は7個ないし15個の炭素原子を有する芳香族カルボン酸のアシル部分；-SO<sub>3</sub><sup>-</sup>Q<sup>+</sup>基、-PO(O<sup>-</sup>Q<sup>+</sup>)<sub>2</sub>基、-P(O)(OR<sub>2</sub>)<sub>2</sub>基、-SO<sub>2</sub>-R<sub>2</sub>基、-CO-NH-R<sub>2</sub>基、-CO-NH<sub>2</sub>基、-COOR<sub>2</sub>基又は-Si(Me)<sub>3</sub>基を表わし、前記式中、Q<sup>+</sup>はH<sup>+</sup>、アンモニウム又はアルカリ金属カチオンを表わす。}を表わし、或いは、

30

R<sub>6</sub>及びR<sub>6</sub>'は独立して-O-炭素原子数1ないし12のアルキル基、-O-炭素原子数3ないし12のアルケニル基、-O-炭素原子数3ないし12のアルキニル基、-O-炭素原子数5ないし8のシクロアルキル基、-O-フェニル基、-O-ナフチル基、-O-炭素原子数7ないし9のフェニルアルキル基を表わし、或いは、

R<sub>6</sub>及びR<sub>6</sub>'は一緒になって二価基-O-C(R<sub>21</sub>)(R<sub>22</sub>)-CH(R<sub>23</sub>)-O-、-O-CH(R<sub>21</sub>)-CH<sub>2</sub>-C(R<sub>22</sub>)(R<sub>23</sub>)-O-、-O-CH(R<sub>22</sub>)-CH<sub>2</sub>-C(R<sub>21</sub>)(R<sub>23</sub>)-O-、-O-CH<sub>2</sub>-C(R<sub>21</sub>)(R<sub>23</sub>)-O-、-O-O-フェニレン-O-、-O-1,2-シクロヘキシリデン-O-、-O-CH<sub>2</sub>

40

50

- C H = C H - C H<sub>2</sub> - O - 又は

【化 2】



の一つを形成し、前記式中、

R<sub>21</sub>は水素原子、炭素原子数1ないし12のアルキル基、-COOH基、-COO-炭素原子数1ないし12のアルキル基又は-C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>OR<sub>24</sub>基を表わし、

R<sub>22</sub>及びR<sub>23</sub>は互いに独立して水素原子、メチル基、エチル基、-COOH基又は-COO-炭素原子数1ないし12のアルキル基を表わし、そして

R<sub>24</sub>は水素原子、炭素原子数1ないし12のアルキル基、ベンジル基又は、18個までの炭素原子を有する脂肪族、脂環式若しくは芳香族一価カルボン酸から誘導される一価アシル残基を表わす。】で表わされる官能性アルコキシアミンの存在下で反応させる段階、及び

b) 得られたアルコキシアミン末端閉鎖されたポリシロキサンを、60と160の間の温度でエチレン性不飽和モノマーと反応させる段階、

を含む制御されたフリーラジカル重合により製造されるところの組成物。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

20

本発明は、加工中に向上したメルトフローを持つ、熱可塑性ポリマーとトリブロック-コポリマー又はグラフト樹形コポリマーとの組成物に関するものである。本発明の別の観点は、トリブロック-コポリマー又はグラフト樹形コポリマー自体、それらの製造方法並びに、相溶化剤及びメルトフロー向上剤としてのそれらの使用である。本発明のまた別の観点は、前記トリブロック-コポリマー又は前記グラフト樹形コポリマーの製造のために有用な官能性アルコキシアミンである。

【背景技術】

【0002】

30

押出成形又は射出成形のような、熱可塑性材料の成形プロセス及びコンパウンド化プロセスの生産性は、しばしば、ポリマーの溶融粘度に関連し、即ち、該溶融粘度を減少させることにより、処理量が増加し得、そして、サイクル時間及びエネルギー消費が相当減少し得る。溶融粘度はポリマーの分子量に関連している。分子量の増加は、溶融粘度における増加を導く。

【0003】

他方、機械的強度のようなポリマーの他の重要な性質もポリマーの分子量に依存するので、減少された溶融粘度を得るために分子量を減少させることは不可能である。従って、機械的強度又は透明度のような他の材料特性に影響を及ぼさない低溶融粘度（又は、向上したメルトフロー）の材料の組み合わせに対する、プラスチック及び加工産業の明確な要求が存在する。

【0004】

40

特定のポリマーにおける上述の要件を少なくとも一部満たす添加剤は公知であり、そしてしばしば、潤滑剤（例えば、ポリエチレン、ポリテトラフルオロエチレン、アミドワックス）及び/又は加工助剤（フルオロポリマー、シリコーン）として言及されている。しかしながら、これらの添加剤の使用はしばしば、親ポリマーに対するそれらの固有の非相溶性の故に、曇り、装置への析出、減少した透明度及び“脂肪様”外観を生じさせる。

【0005】

例えば、米国特許第6331589号明細書は、メルトフロー向上剤として一つのポリシロキサンセグメント及びポリスチレン又はポリエチレンセグメント含む、ジブロック-コポリマーを開示している。

【特許文献1】米国特許第6331589号明細書

50

**【発明の開示】****【発明が解決しようとする課題】****【0006】**

本発明は、制御されたラジカル重合により好ましくは製造される、熱可塑性ポリマーとトリプロック・コポリマーとの組成物を提供する。前記トリプロック・コポリマーは前記熱可塑性ポリマーとの改善された相溶性を有し、そして前記熱可塑性ポリマーのメルトフローを向上させる。親ポリマーの機械的性質、光学的外観、表面特性及び色は、基本的に影響を受けない。

**【課題を解決するための手段】****【0007】**

10

本発明の一つの観点は、

A ) 熱可塑性ポリマー、及び

B 1 ) 式  $B - C - B$  で表わされるトリプロック・コポリマー、又は

B 2 ) ポリマーブロック B がポリマー C にグラフトされて、一般式  $C - B ( n )$  ( 式中、  $n$  は 2 より大きい ) で表わされる櫛形コポリマーを形成するグラフトコポリマー、を含む組成物であって、

前記ポリマーブロック B は前記熱可塑性ポリマー A ) に対して相溶性であり、そして

前記ポリマーブロック C は前記熱可塑性ポリマー A ) のガラス転移温度より少なくとも  $20^{\circ}K$  低いガラス転移温度を有し、そして

前記トリプロック・コポリマー B 1 ) 又はグラフトされた前記櫛形コポリマー B 2 ) の平均分子量  $M_w$  は 5 0 0 0 0 未満である組成物である。

本発明の別の観点は、

A ) 熱可塑性ポリマー、及び

B 1 ) 式  $B - C - B$  で表わされるトリプロック・コポリマー、又は

B 2 ) ポリマーブロック B がポリマー C にグラフトされて、理想的な一般式  $C - B ( n )$  ( 式中、  $n$  は 2 より大きい ) で表わされる櫛形コポリマーを形成するグラフトコポリマー、を含む組成物であって、

前記ポリマーブロック B は前記熱可塑性ポリマー A ) に対して相溶性であり、そして

前記ポリマーブロック C は前記熱可塑性ポリマー A ) のガラス転移温度より少なくとも  $20^{\circ}K$  低いガラス転移温度を有し、そして

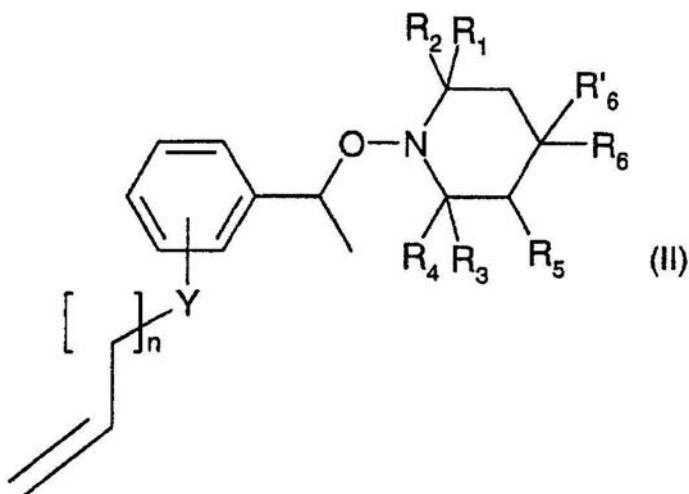
前記トリプロック・コポリマー B 1 ) 又はグラフトされた前記櫛形コポリマー B 2 ) の平均分子量  $M_w$  は 5 0 0 0 0 未満であり、そして

前記式  $B - C - B$  で表されるトリプロック・コポリマー又は前記理想的な一般式  $C - B ( n )$  で表わされるグラフトコポリマーが、

a ) ポリシロキサンを、次式 ( I I ) :

30

【化3】



10

[式中、

 $Y$  は直接結合、酸素原子、-NH-基、-C(O)O-基又は硫黄原子を表わし、 $n$  は0ないし18の数を表わし、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 及び $R_4$ は互いに独立して炭素原子数1ないし4のアルキル基を表わし、 $R_5$ は水素原子又は炭素原子数1ないし4のアルキル基を表わし、

20

 $R_6'$ は水素原子を表わし、そして $R_6$ は水素原子、-OR<sub>10</sub>基、-NR<sub>10</sub>R<sub>11</sub>基、-O-C(O)-R<sub>10</sub>基又は-NR<sub>11</sub>-C(O)-R<sub>10</sub>基を表わし、 $R_{10}$ 及び $R_{11}$ は互いに独立して水素原子、炭素原子数1ないし18のアルキル基、炭素原子数2ないし18のアルケニル基、炭素原子数2ないし18のアルキニル基又は、少なくとも一つのヒドロキシ基により置換された炭素原子数2ないし18のアルキル基を表わし、或いは、 $R_6$ が-NR<sub>10</sub>R<sub>11</sub>基を表わすとき、一緒になって、炭素原子数2ないし12のアルキレン橋又は、少なくとも1個の酸素原子により中断された炭素原子数2ないし12のアルキレン橋を形成し、或いは $R_6$ 及び $R_6'$ は共に水素原子を表わし、又は一緒になって基=O若しくは基=N-O-R<sub>20</sub> {式中、

30

 $R_{20}$ は水素原子、直鎖状又は分岐鎖状の炭素原子数1ないし18のアルキル基、炭素原子数3ないし18のアルケニル基又は炭素原子数3ないし18のアルキニル基（これらは非置換であっても又は、-OH基、炭素原子数1ないし8のアルコキシ基、カルボキシ基、炭素原子数1ないし8のアルコキシカルボニル基で置換されていてもよい）；炭素原子数5ないし12のシクロアルキル基又は炭素原子数5ないし12のシクロアルケニル基；フェニル基、炭素原子数7ないし9のフェニルアルキル基又はナフチル基（これらは非置換であっても又は、炭素原子数1ないし8のアルキル基、ハロゲン原子、-OH基、炭素原子数1ないし8のアルコキシ基、カルボキシ基、炭素原子数1ないし8のアルコキシカルボニル基で置換されていてもよい）；-C(O)-炭素原子数1ないし36のアルキル基、或いは、3個ないし5個の炭素原子を有する，-不飽和カルボン酸又は7個ないし15個の炭素原子を有する芳香族カルボン酸のアシル部分；-SO<sub>3</sub><sup>-</sup>Q<sup>+</sup>基、-PO(O<sup>-</sup>Q<sup>+</sup>)<sub>2</sub>基、-P(O)(OR<sub>2</sub>)<sub>2</sub>基、-SO<sub>2</sub>-R<sub>2</sub>基、-CO-NH-R<sub>2</sub>基、-CO-NH<sub>2</sub>基、-COOR<sub>2</sub>基又は-Si(Me)<sub>3</sub>基を表わし、前記式中、Q<sup>+</sup>はH<sup>+</sup>、アンモニウム又はアルカリ金属カチオンを表わす。}を表わし、或いは、

40

 $R_6$ 及び $R_6'$ は独立して-O-炭素原子数1ないし12のアルキル基、-O-炭素原子数3ないし12のアルケニル基、-O-炭素原子数3ないし12のアルキニル基、-O-炭素原子数5ないし8のシクロアルキル基、-O-フェニル基、-O-ナフチル基、-O-炭素原子数7ないし9のフェニルアルキル基を表わし、或いは、 $R_6$ 及び $R_6'$ は一緒になって二価基-O-C(R<sub>21</sub>)(R<sub>22</sub>)-CH(R<sub>23</sub>)-O-、-O-CH(R<sub>21</sub>)-CH<sub>2</sub>-C(R<sub>22</sub>)(R<sub>23</sub>)-O-、-O-CH(R<sub>22</sub>)-CH<sub>2</sub>-

50

$C(R_{21})(R_{23})-O-$ 、 $-O-CH_2-C(R_{21})(R_{22})-CH(R_{23})-O-$ 、  
 $-O-O-$ フェニレン- $O-$ 、 $-O-1,2$ -シクロヘキシリデン- $O-$ 、 $-O-CH_2$   
 $-CH=CH-CH_2-O-$ 又は

【化4】



の一つを形成し、前記式中、

$R_{21}$ は水素原子、炭素原子数1ないし12のアルキル基、 $-COOH$ 基、 $-COO-$ 炭素原子数1ないし12のアルキル基又は $-CH_2OR_{24}$ 基を表わし、  
 10

$R_{22}$ 及び $R_{23}$ は互いに独立して水素原子、メチル基、エチル基、 $-COOH$ 基又は $-COO-$ 炭素原子数1ないし12のアルキル基を表わし、そして

$R_{24}$ は水素原子、炭素原子数1ないし12のアルキル基、ベンジル基又は、18個までの炭素原子を有する脂肪族、脂環式若しくは芳香族一価カルボン酸から誘導される一価アシル残基を表わす。]で表わされる官能性アルコキシアミンの存在下で反応させる段階、及び

b) 得られたアルコキシアミン末端閉鎖されたポリシロキサンを、60と160の間の温度でエチレン性不飽和モノマーと反応させる段階、

を含む制御されたフリーラジカル重合により製造されるところの組成物である。  
 20

本発明のさらに別の観点は、

A) 熱可塑性ポリマー、及び

B1) 式 $B-C-B$ で表わされるトリブロック-コポリマー、又は

B2) ポリマーブロックBがポリマーCにグラフトされて、理想的な一般式 $C-B(n)$

(式中、 $n$ は2より大きい)で表わされる櫛形コポリマーを形成するグラフトコポリマー、

を含む組成物であって、

前記熱可塑性ポリマーA)は、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、ポリアクリレート、ポリメタクリレート、ポリ塩化ビニル、及びポリ酢酸ビニルからなる群から選択され、そして  
 30

前記ポリマーブロックBは、ポリイソブレン、ポリブタジエン、ポリスチレン、ポリメタクリレート、及びポリアクリレートからなる群から選択され、そして

前記ポリマーブロックBは前記熱可塑性ポリマーA)に対して相溶性であり、そして

前記ポリマーブロックCは前記熱可塑性ポリマーA)のガラス転移温度より少なくとも20°C低いガラス転移温度を有し、そして

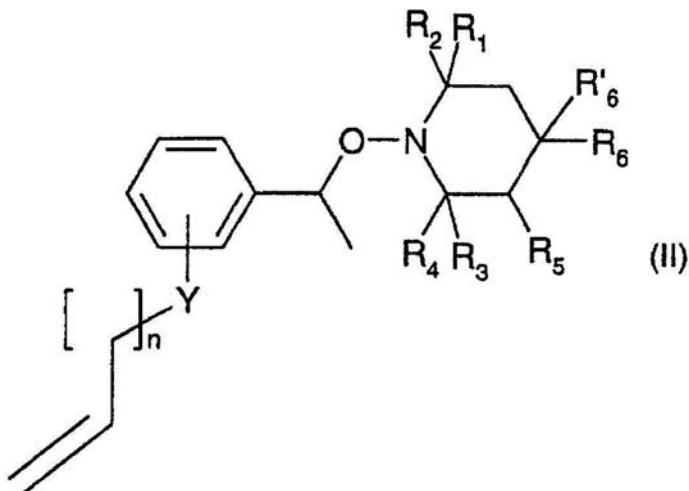
前記トリブロック-コポリマーB1)又はグラフトされた前記櫛形コポリマーB2)の平均分子量 $M_w$ は50000未満であり、そして

前記式 $B-C-B$ で表されるトリブロック-コポリマー又は前記理想的な一般式 $C-B(n)$ で表わされるグラフトコポリマーが、

a) 水素末端基を持つ又はポリマー骨格に懸下した水素原子を持つポリシロキサンを、次式(I)：

40

【化5】



〔式中、

Yは直接結合、酸素原子、-NH-基、-C(O)O-基又は硫黄原子を表わし、nは0ないし18の数を表わし、R1、R2、R3及びR4は互いに独立して炭素原子数1ないし4のアルキル基を表わし、R5は水素原子又は炭素原子数1ないし4のアルキル基を表わし、R6'は水素原子を表わし、そしてR6は水素原子、-OR10基、-NR10R11基、-O-C(O)-R10基又は-NR11-C(O)-R10基を表わし、R10及びR11は互いに独立して水素原子、炭素原子数1ないし18のアルキル基、炭素原子数2ないし18のアルケニル基、炭素原子数2ないし18のアルキニル基又は、少なくとも一つのヒドロキシ基により置換された炭素原子数2ないし18のアルキル基を表わし、或いは、R6が-NR10R11基を表わすとき、一緒になって、炭素原子数2ないし12のアルキレン橋又は、少なくとも1個の酸素原子により中断された炭素原子数2ないし12のアルキレン橋を形成し、或いはR6及びR6'は共に水素原子を表わし、又は一緒になって基=O若しくは基=N-O-R20}式中、R20は水素原子、直鎖状又は分岐鎖状の炭素原子数1ないし18のアルキル基、炭素原子数3ないし18のアルケニル基又は炭素原子数3ないし18のアルキニル基（これらは非置換であっても又は、-OH基、炭素原子数1ないし8のアルコキシ基、カルボキシ基、炭素原子数1ないし8のアルコキシカルボニル基で置換されていてもよい）；炭素原子数5ないし12のシクロアルキル基又は炭素原子数5ないし12のシクロアルケニル基；フェニル基、炭素原子数7ないし9のフェニルアルキル基又はナフチル基（これらは非置換であっても又は、炭素原子数1ないし8のアルキル基、ハロゲン原子、-OH基、炭素原子数1ないし8のアルコキシ基、カルボキシ基、炭素原子数1ないし8のアルコキシカルボニル基で置換されていてもよい）；-C(O)-炭素原子数1ないし36のアルキル基、或いは、3個ないし5個の炭素原子を有する，-不飽和カルボン酸又は7個ないし15個の炭素原子を有する芳香族カルボン酸のアシル部分；-SO3-Q+基、-PO(O-Q+)2基、-P(O)(OR2)2基、-SO2-R2基、-CO-NH-R2基、-CO-NH2基、-COOR2基又は-Si(Me)3基を表わし、前記式中、Q+はH+、アンモニウム又はアルカリ金属カチオンを表わす。}を表わし、或いは、R6及びR6'は独立して-O-炭素原子数1ないし12のアルキル基、-O-炭素原子数3ないし12のアルケニル基、-O-炭素原子数3ないし12のアルキニル基、-O-炭素原子数5ないし8のシクロアルキル基、-O-フェニル基、-O-ナフチル基、-O-炭素原子数7ないし9のフェニルアルキル基を表わし、或いは、R6及びR6'は一緒になって二価基-O-C(R21)(R22)-CH(R23)-O-、-O-CH(R21)-CH2-C(R22)(R23)-O-、-O-CH(R22)-CH2-

10

20

30

40

50

C (R<sub>21</sub>) (R<sub>23</sub>) - O -、- O - C H<sub>2</sub> - C (R<sub>21</sub>) (R<sub>22</sub>) - C H (R<sub>23</sub>) - O -、  
- O - o - フェニレン - O -、- O - 1 , 2 - シクロヘキシリデン - O -、- O - C H<sub>2</sub>  
- C H = C H - C H<sub>2</sub> - O - 又は

【化6】



の一つを形成し、前記式中、

R<sub>21</sub>は水素原子、炭素原子数1ないし12のアルキル基、-COOH基、-COO-炭素原子数1ないし12のアルキル基又は-CH<sub>2</sub>OR<sub>24</sub>基を表わし、 10

R<sub>22</sub>及びR<sub>23</sub>は互いに独立して水素原子、メチル基、エチル基、-COOH基又は-COO-炭素原子数1ないし12のアルキル基を表わし、そして

R<sub>24</sub>は水素原子、炭素原子数1ないし12のアルキル基、ベンジル基又は、18個までの炭素原子を有する脂肪族、脂環式若しくは芳香族一価カルボン酸から誘導される一価アシル残基を表わす。】で表わされる官能性アルコキシアミンの存在下で反応させる段階、及び

b) 得られたアルコキシアミン末端閉鎖されたポリシロキサンを、60と160の間の温度でエチレン性不飽和モノマーと反応させる段階、

を含む制御されたフリーラジカル重合により製造されるところの組成物である。

10

20

【0008】

通常、トリブロック・コポリマーが好ましい。

【0009】

前記トリブロック・コポリマー及び前記グラフト樹形コポリマーの多分散性は、例えば、1.0と5.0の間、好ましくは1.1と3.0の間、そして特に1.1と2.0の間である。

【0010】

適する熱可塑性ポリマーは、下記のものである。

【0011】

30

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、ポリイソブレン又はポリブタジエン、並びにシクロオレフィンのポリマー、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ていてよい）、例えば高密度ポリエチレン（H D P E）、高密度及び高分子量ポリエチレン（H D P E - H M W）、高密度及び超高分子量ポリエチレン（H D P E - U H M W）、中密度ポリエチレン（M D P E）、低密度ポリエチレン（L D P E）、直鎖状低密度ポリエチレン（L L D P E）、（V L D P E）及び（U L D P E）。

【0012】

ポリオレフィン、すなわち先の段落で例示したモノオレフィンのポリマー、好ましくはポリエチレン及びポリプロピレンは、異なる方法により製造することができ、そして、とりわけ下記の方法により製造することができる。

40

【0013】

a) ラジカル重合（通常、高圧及び高められた温度の下で行われる。）。

【0014】

b) 通常、周期律表の族IVb, Vb, VIb又はVIIの1種又は1種よりも多くの金属を含む触媒を使用する触媒重合。前記金属は、通常1種又はそれより多くの配位子を有しており、典型的には - 又は - 配位されていてよい酸化物、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/又はアリールである。前記金属錯体は、遊離の形態にあってもよいし又は基材上に、典型的には活性化塩化マグネシウ

50

ム、三塩化チタン、アルミナ又は酸化珪素上に担持されていてもよい。前記触媒は、重合媒体に可溶性であってもよいし又は非可溶性であってもよい。前記触媒は重合の際に单独で使用してもよく、又は別の活性剤、典型的には金属アルキル、金属水素化物、金属アルキルハライド、金属アルキルオキシド若しくは金属アルキルオキサンを使用してもよく、前記金属は、周期律表の族 I a , II a 及び / 又は III a の元素である。活性剤は、別のエスチル、エーテル、アミン又はシリルエーテル類を用いて都合良く変性されていてよい。前記触媒系は、通常、フィリップス (Philips) 触媒、スタンダード・オイル・インディアナ (Standard Oil Indiana) 触媒、チーグラー (- ナッタ) [Ziegler (- Natta)] 触媒、TNZ [デュポン (DuPont)] 触媒、メタロセン触媒又はシングルサイト (single site) 触媒 (SSC) と呼ばれる。

【0015】

2. 1. で記述し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との混合物、ポリプロピレンとポリエチレンとの混合物 (例えば PP / HDPE, PP / LDPE) 及び異なる種類のポリエチレンの混合物 (例えば LDPE / HDPE)。

【0016】

3. モノオレフィンとジオレフィンとの互いの又はその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、直鎖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 / プテ - 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 / プテ - 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ンコポリマー、エチレン / シクロオレフィンコポリマー (例えばエチレン / ノルボルネン様 C<sub>9</sub>C)、エチレン / 1 - オレフィンコポリマー (1 - オレフィンは、その場所で生成される。)、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 (イオノマー)、並びにエチレンとプロピレン及びジエン例えばヘキサジエン、ジシクロペンタジエン又はエチリデン - ノルボルネンとのターポリマー；並びに前記コポリマーの互いの混合物及び前記コポリマーと上記 1. において記載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 及び交互又はランダムポリアルキレン / 一酸化炭素コポリマー並びにそれらの他のポリマー例えばポリアミドとの混合物。

【0017】

4. 炭化水素樹脂 (例えば炭素原子数 5 ないし 9) 及びその水素化変性体 (例えば粘着付与剤) 及びポリアルキレンと澱粉との混合物。

【0018】

上記 1. ないし 4. から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 - アイソタクチック又はアタクチックを包含するどのような立体構造を有していてもよく、アタクチックポリマーが好ましい。ステレオブロックポリマーも包含される。

【0019】

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)。

【0020】

6. スチレン、 - メチルスチレン、ビニルトルエンの全異性体、とりわけ p - ビニルトルエン；エチルスチレン、プロピルスチレン、ビニルビフェニル、ビニルナフタレン及びビニルアントラセンの全異性体、並びにそれらの混合物を包含するビニル芳香族モノマーから誘導された芳香族ホモポリマー及びコポリマー。前記ホモポリマー及びコポリマー

10

20

30

40

50

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を包含するどのような立体構造を有していてもよく、アタクチックポリマーが好ましい。ステレオブロックポリマーも包含される。

【0021】

6 a . 上記のビニル芳香族モノマーと、エチレン、プロピレン、ジエン、ニトリル、酸、無水マレイン酸、マレイミド、酢酸ビニル及び塩化ビニル又はアクリル誘導体並びにそれらの混合物から選択されるコモノマーを包含するコポリマー、例えばスチレン／ブタジエンコポリマー、スチレン／アクリロニトリルコポリマー、スチレン／エチレンコポリマー（インターポリマー）、スチレン／アルキルメタクリレートコポリマー、スチレン／ブタジエン／アルキルアクリレートコポリマー、スチレン／ブタジエン／アルキルメタクリレートコポリマー、スチレン／無水マレイン酸コポリマー、スチレン／アクリロニトリル／メチルアクリレートコポリマー；スチレンコポリマーとその他のポリマー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とからなる高い衝撃強度を有する混合物；及びスチレンのブロックコポリマー、例えばスチレン／ブタジエン／スチレンブロックコポリマー、スチレン／イソブレン／スチレンブロックコポリマー、スチレン／エチレン／ブチレン／スチレンブロックコポリマー又はスチレン／エチレン／プロピレン／スチレンブロックコポリマー。

【0022】

6 b . 上記 6 . の下に記載されたポリマーの水素添加から誘導された水素添加された芳香族ポリマー、該ポリマーはとりわけアタクチックポリスチレンを水素添加することにより製造されたポリシクロヘキシルエチレン（P C H E ）を包含し、それはしばしばポリビニルシクロヘキサン（P V C H ）としても記載される。

【0023】

6 c . 上記 6 a . の下に記載されたポリマーの水素添加から誘導された水素添加された芳香族ポリマー。

【0024】

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を包含するどのような立体構造を有していてもよく、アタクチックポリマーが好ましい。ステレオブロックポリマーも包含される。

【0025】

7 . スチレン又は - メチルスチレンのような芳香族モノマーのグラフトコポリマー、例えばポリブタジエンに対するスチレンのグラフトコポリマー、ポリブタジエン - スチレンコポリマー又はポリブタジエン - アクリロニトリルコポリマーに対するスチレンのグラフトコポリマー；ポリブタジエンに対する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）のグラフトコポリマー；ポリブタジエンに対するスチレン、アクリロニトリル及びメチルメタクリレートのグラフトコポリマー；ポリブタジエンに対するスチレン及び無水マレイン酸のグラフトコポリマー；ポリブタジエンに対するスチレン、アクリロニトリル及び無水マレイン酸又はマレイミドのグラフトコポリマー；ポリブタジエンに対するスチレン及びマレイミドのグラフトコポリマー；ポリブタジエンに対する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のグラフトコポリマー；エチレン／プロピレン／ジエンターポリマーに対するスチレン及びアクリロニトリルのグラフトコポリマー；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対するスチレン及びアクリロニトリルのグラフトコポリマー；アクリレート／ブタジエンコポリマーに対するスチレン及びアクリロニトリルのグラフトコポリマー、並びにそれらの上記 6 . の下に記載されたコポリマーとの混合物、例えばA B S ポリマー、M B S ポリマー、A S A ポリマー又はA E S ポリマーとして知られるコポリマー混合物。

【0026】

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）、塩素化又はスルホクロル化ポリエチレン、エチレンと塩素化エチレンとのコポリマー、エピクロロヒドリンモノ - 及び

10

20

30

40

50

コポリマー、とりわけハロゲン含有ビニル化合物からのポリマー、例えばポリ塩化ビニル、ポリ塩化ビニリデン、ポリ弗化ビニル、ポリ弗化ビニリデン、並びにそれらのコポリマー、例えば塩化ビニル／塩化ビニルデンコポリマー、塩化ビニル／酢酸ビニルコポリマー又は塩化ビニリデン／酢酸ビニルコポリマー。

## 【0027】

9. - 不飽和酸及びその誘導体から誘導されたポリマー、例えばポリアクリレート及びポリメタクリレート；ブチルアクリレートを用いて耐衝撃性を改良した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ロニトリル。

## 【0028】

10. 上記9. の下に記載されたモノマーの互いの又はその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／アルコキアルキルアクリレート又はアクリロニトリル／ハロゲン化ビニル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。

## 【0029】

11. 不飽和アルコール及びアミン又はそのアシル誘導体又はそのアセタールから誘導されたポリマー、例えばポリビニルアルコール、ポリ酢酸ビニル、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、ポリビニルブチラール、ポリアリルフタレート又はポリアリルメラミン；並びに上記1. において記載されたオレフィンとのそれらのコポリマー。

## 【0030】

12. 環状エーテルのホモポリマー及びコポリマー、例えば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又はビスグリシジルエーテルとのそれらのコポリマー。

## 【0031】

13. ポリアセタール、例えばポリオキシメチレン及びコモノマーとしてエチレンオキシドを含む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MBSを用いて変性されたポリアセタール。

## 【0032】

14. 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とステレンポリマー及びポリアミドとの混合物。

## 【0033】

15. 一成分としてのヒドロキシル基で末端閉鎖されたポリエーテル、ポリエステル又はポリブタジエンと、他成分としての脂肪族又は芳香族ポリイソシアネートとから誘導されたポリウレタン、並びにその前駆物質。

## 【0034】

16. ジアミン及びジカルボン酸から、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, 6/10, 6/9, 6/12, 4/6, 12/12、ポリアミド11、ポリアミド12、m-キシレンジアミンとアジピン酸とから出発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及び／又はテレフタル酸から、変性剤としてのエラストマーを用いて又は用いないで製造されたポリアミド、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；及び更に、前記ポリアミドとポリオレフィン、オレフィンコポリマー、イオノマー又は化学的に結合された若しく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；又はポリエーテル、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とのブロックコポリマー；並びにEPM又はABSを用いて変性されたポリアミド又はコポリアミド；及び加工中に縮合されたポリアミド（RIM-ポリアミド系）。

## 【0035】

10

20

30

40

50

17. 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。

【0036】

18. ジカルボン酸及びジオールから、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テレフタレート、ポリアルキレンナフタレート(PAN)及びポリヒドロキシベンゾエート、並びにヒドロキシリ基により末端閉鎖されたポリエーテルから誘導されたブロックポリエーテルエステル；及び更にポリカーボネート又はMBSを用いて変性されたポリエステル。

【0037】

19. ポリカーボネート及びポリエステルカーボネート。

【0038】

20. ポリケトン。

【0039】

21. 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。

【0040】

22. 上述のポリマーの配合物(ポリブレンド)、例えばPP/EPD、ポリアミド/EPD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、PM/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/PE/T/PC。

【0041】

好ましくは、前記熱可塑性ポリマーA)は、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、ポリアクリレート、ポリメタクリレート、ポリ塩化ビニル、ポリフェニレンオキシド、ポリ酢酸ビニル、ポリアミド及びポリエステルからなる群から選択される。

【0042】

特に、前記熱可塑性ポリマーA)は、ポリエチレン、ポリプロピレン及びポリスチレンからなる群から選択される。

【0043】

例えば、前記ポリマーブロックCは、ポリ-n-ブチルアクリレート、ポリイソブレン、ポリブタジエン、ポリエチルアクリレート及びポリシロキサンからなる群から選択される。

【0044】

例えば、前記ポリマーブロックBは、ポリイソブレン、ポリブタジエン、ポリスチレン、ポリメタクリレート及びポリアクリレートからなる群から選択される。

【0045】

本発明の典型的な実施態様において、

前記熱可塑性ポリマーA)と前記トリブロック-コポリマーB-C-Bは、

ポリスチレンとポリスチレン-ポリ-n-ブチルアクリレート-ポリスチレン、

ポリスチレンとポリスチレン-ポリイソブレン-ポリスチレン、

ポリスチレンとポリスチレン-ポリブタジエン-ポリスチレン、

ポリスチレンとポリスチレン-ポリシロキサン-ポリスチレン、

ポリスチレンとポリスチレン-ポリエチルアクリレート-ポリスチレン、

ポリエチレンとポリイソブレン-ポリシロキサン-ポリイソブレン、

ポリプロピレンとポリイソブレン-ポリシロキサン-ポリイソブレン、

ポリメチルメタクリレートとポリメチルアクリレート-ポリシロキサン-ポリメチルアクリレート、

ポリアミドとポリエチルアクリレート-ポリシロキサン-ポリエチルアクリレート、

ポリエステルとポリエチルアクリレート-ポリシロキサン-ポリエチルアクリレート、

10

20

30

40

50

ポリ塩化ビニルとポリエチルアクリレート - ポリシロキサン - ポリエチルアクリレート  
 ポリ塩化ビニルとポリ - n - プチルアクリレート - ポリシロキサン - ポリ - n - プチル  
 アクリレート、  
 ポリフェニレンオキシドとポリスチレン - ポリシロキサン - ポリスチレン、又は  
 ポリ酢酸ビニルとポリメチルアクリレート - ポリシロキサン - ポリメチルアクリレート  
 である。

## 【0046】

例えば、前記ポリマーブロックCのガラス転移温度は前記熱可塑性ポリマーA)のガラ  
 斯転移温度よりも50°K低い。

10

## 【0047】

好ましくは、前記トリブロック - コポリマー又は前記グラフトコポリマーの平均分子量  
 $M_w$  は30000未満である。

## 【0048】

それぞれの個々のブロックは、例えば、2000ないし20000、特に2000ないし10000、但し、全体は50000未満、好ましくは30000未満の平均分子量 $M_w$ を有する。

## 【0049】

特に、前記ポリマーブロックCはポリシロキサンである。

## 【0050】

典型的には、前記トリブロック - コポリマー又は前記グラフトコポリマーは、前記熱可塑性ポリマーA)の重量に基づいて、0.1ないし10重量%、好ましくは0.5ないし5重量%、そして特に0.5ないし3重量%の量存在する。

20

## 【0051】

前記組成物は、例えば、光安定剤、紫外線吸収剤、加工安定剤、顔料又は染料などのよ  
 うな別の添加剤を含み得る。例を以下に示す。

## 【0052】

1. 酸化防止剤

## 【0053】

1. 1. アルキル化モノフェノール、例えば

30

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-(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-ジ第三ブチル-4-メトキシメチルフェノール、直鎖状又は側鎖が分岐しているノニルフェノール、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。

40

## 【0054】

1. 2. 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-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。

## 【0055】

1. 3. 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

50

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。

【0056】

#### 1.4. トコフェロール

例えば - トコフェロール、- トコフェロール、- トコフェロール、- トコフェロール及びこれらの混合物(ビタミンE)。

【0057】

#### 1.5. 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-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。

【0058】

#### 1.6. 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-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'-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)ジシクロペントジエン、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-メルカプトフェニル)ベンタン。

【0059】

#### 1.7. O-, N- 及び S-ベンジル化合物

例えば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。

【0060】

10

20

30

40

50

1. 8. ヒドロキシベンジル化マロネート

例えはジオクタデシル - 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。

【 0 0 6 1 】

1. 9. 芳香族ヒドロキシベンジル化合物

例えは 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。

【 0 0 6 2 】

1. 10. トリアジン化合物

例えは 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。

【 0 0 6 3 】

1. 11. ベンジルホスホネート

例えはジメチル - 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モノエチルエステルのカルシウム塩。

【 0 0 6 4 】

1. 12. アシリルアミノフェノール

例えは 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。

【 0 0 6 5 】

1. 13. - ( 3 , 5 - ジ第三ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル ) プロピオン酸の下記の一価又は多価アルコールとのエステル

例えはメタノール、エタノール、n - オクタノール、イソオクタノール、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。

【 0 0 6 6 】

10

20

30

40

50

1.14. - (5 - 第三ブチル - 4 - ヒドロキシ - 3 - メチルフェニル) プロピオン酸の下記の一価又は多価アルコールとのエステル

例えばメタノール、エタノール、n-オクタノール、イソオクタノール、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、エチレンギリコール、1,2-プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレンギリコール、ジエチレンギリコール、トリエチレンギリコール、ペンタエリトリトール、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-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。  
10

【0067】

1.15. - (3,5-ジシクロヘキシル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオン酸の下記の一価又は多価アルコールとのエステル

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、エチレンギリコール、1,2-プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレンギリコール、ジエチレンギリコール、トリエチレンギリコール、ペンタエリトリトール、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。  
20

【0068】

1.16.3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシフェニル酢酸の下記の一価又は多価アルコールとのエステル

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、エチレンギリコール、1,2-プロパンジオール、ネオペンチルグリコール、チオジエチレンギリコール、ジエチレンギリコール、トリエチレンギリコール、ペンタエリトリトール、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。  
30

【0069】

1.17. - (3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオン酸アミド

例えば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[ユニロイヤル(Union Royal)社により供給されるナウガードXL-1(Naughard XL-1)(登録商標)]。  
40

【0070】

1.18. アスコルビン酸(ビタミンC)

【0071】

1.19. アミン酸化防止剤

例えばN,N'-ジイソプロピル-p-フェニレンジアミン、N,N'-ジ第二ブチル-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  
50

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-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'-第二ブチル-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-第三オクチルフェニル)-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'-ジ第三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-ジ第三ブチル-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)ビグアニド、ビス[4-(1',3'-ジメチルブチル)フェニル]アミン、第三オクチル化N-フェニル-1-ナフチルアミン、モノ-及びジアルキル化第三ブチル/第三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-及びジアルキル化第三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-及びジアルキル化第三ブチル/第三オクチルフェノチアジンの混合物、モノ-及びジアルキル化第三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-ジアミノブテ-2-エン、N,N-ビス(2,2,6,6-テトラメチルピペリジ-4-イル)ヘキサメチレンジアミン、ビス(2,2,6,6-テトラメチルピペリジ-4-イル)セバケート、2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-オン、2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-4-オール。

【0072】

## 2. 紫外線吸収剤及び光安定剤

【0073】

### 2.1.2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール

例えば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)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-(2'-ヒドロキシ-4'-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',5'-ジ第三アミル-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-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)-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-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-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) ベンゾトリシアゾ - 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) ベンゾトリシアゾ - ル、 2 - ( 3 ' - ドデシル - 2 ' - ヒドロキシ - 5 ' - メチルフェニル) ベンゾトリシアゾ - 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シアゾ - ル、 2 , 2 ' - メチレン - ビス [ 4 - ( 1 , 1 , 3 , 3 - テトラメチルブチル) - 6 - ベンゾトリシアゾ - 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] - 2 H - ベンゾトリシアゾ - 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 - C H<sub>2</sub> C H<sub>2</sub> - C O O - C H<sub>2</sub> C H<sub>2</sub> - ]<sub>2</sub> ( 式中、 R は 3 ' - 第三ブチル - 4 ' - ヒドロキシ - 5 ' - 2 H - ベンゾトリシアゾール - 2 - イルフェニル基を表わす。 ) 、 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] ベンゾトリシアゾ - 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] ベンゾトリシアゾ - ル。

## 【 0074 】

2.2.2 - ヒドロキシベンゾフェノン

例えば 4 - ヒドロキシ - 、 4 - メトキシ - 、 4 - オクトキシ - 、 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。

## 【 0075 】

2.3. 置換された及び非置換の安息香酸のエステル

例えば 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。

## 【 0076 】

2.4. アクリルレート

例えば - 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。

## 【 0077 】

2.5. ニッケル化合物

例えば付加的な配位子、例えば n - ブチルアミン、トリエタノールアミン又は N - シクロヘキシルジエタノールアミンを有するか又は有しない、 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、例えば 1 : 1 又は 1 : 2 錯体；ニッケルジブチルジチオカルバメート、 4 - ヒドロキシ - 3 , 5 - ジ第三ブチルベンジルホスホン酸のモノアルキルエステル例えばメチル又はエチルエステルのニッケル塩、ケトキシム例えば 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、付加的な配位子を有するか又は有しない、 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。

## 【 0078 】

2.6. 立体障害アミン

例えばビス ( 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチル - 4 - ピペリジル ) セバケート、ビス ( 2 , 2 , 6 , 6 - テトラメチル - 4 - ピペリジル ) スクシネート、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 ,

10

20

30

40

50

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 - ジ第三ブチル - 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との縮合生成物; N, N' - (2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジル) ヘキサメチレンジアミンと 4 - 第三オクチルアミノ - 2, 6 - ジクロロ - 1, 3, 5 - トリアジンとの直鎖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) 10  
 、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、ビス(1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチルピペリジル) - 2 - n - ブチル - 2 - (2 - ヒドロキシ - 3, 5 - ジ第三ブチルベンジル) マロネート、3 - n - オクチル - 7, 7, 9, 9 - テトラメチル - 1, 3, 8 - トリアザスピロ[4.5]デカン - 2, 4 - ジオン、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 - テトラメチルピペリジル) スクシネート; 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 - トリアジンとの直鎖状又は環状縮合生成物; 2 - クロロ - 4, 6 - ビス(4 - n - ブチルアミノ - 2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジル) - 1, 3, 5 - トリアジンと 1, 2 - ビス(3 - アミノプロピルアミノ) エタンとの縮合生成物; 2 - クロロ - 4, 6 - ジ(4 - n - ブチルアミノ - 1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチルピペリジル) - 1, 3, 5 - トリアジンと 1, 2 - ビス(3 - アミノプロピルアミノ) エタンとの縮合生成物; 8 - アセチル - 3 - ドデシル - 7, 7, 9, 9 - テトラメチル - 1, 3, 8 - トリアザスピロ[4.5]デカン - 2, 4 - ジオン、3 - ドデシル - 1 - (2, 2, 6, 6 - テトラメチル - 4 - ピペリジル) ピロリジン - 2, 5 - ジオン、3 - ドデシル - 1 - (1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチル - 4 - ピペリジル) ピロリジン - 2, 5 - ジオン; 4 - ヘキサデシルオキシ - 及び 4 - ステアリルオキシ - 2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジン混合物; 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 - シクロヘキシルアミノ - 2, 6 - ジクロロ - 1, 3, 5 - トリアジンとの縮合生成物; 1, 2 - ビス(3 - アミノプロピルアミノ) エタンと 2, 4, 6 - ト 30  
 リクロロ - 1, 3, 5 - トリアジン並びに 4 - ブチルアミノ - 2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジンの縮合生成物 [CAS Reg. No. (136504 - 96 - 6)]; 1, 6 - ヘキサンジアミンと 2, 4, 6 - トリクロロ - 1, 3, 5 - トリアジン並びに N, N - ジブチルアミン及び 4 - ブチルアミノ - 2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジンの縮合生成物 [CAS Reg. No. (192268 - 64 - 7)]; N - (2, 2, 6, 6 - テトラメチル - 4 - ピペリジル) - n - ドデシルスクシンイミド、N - (1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチル - 4 - ピペリジル) - n - ドデシルスクシンイミド、2 - ウンデシル - 7, 7, 9, 9 - テトラメチル - 1 - オキサ - 3, 8 - ジアザ - 4 - オキソ - スピロ[4.5]デカン; 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との反応生成物、1, 1 - ビス(1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチル - 4 - ピペリジルオキシカルボニル) - 2 - (4 - メトキシフェニル) エタン、N, N' - ビスホルミル - 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、4 - メトキシメチレンマロン酸と 1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチル - 4 - ヒドロキシピペリジンとのジエステル、ポリ[メチルプロピル - 3 - オキシ - 4 - (2, 2, 6, 6 - テトラメチル - 4 - ピペリジル)] シロキサン、マレイン酸無水物 - - オレフィン - コポリマーと 2, 2, 6, 6 - テトラメチル - 4 - アミノピペリジン又は 1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチル - 4 - アミノピペリジンとの反応生成物。 40

【0079】

2.7. オキサミド

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。

## 【0080】

2. 8. 2 - (2 - ヒドロキシフェニル) - 1, 3, 5 - トリアジン

例えば2, 4, 6 - ト里斯(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 - ジヒドロキシフェニル) - 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 - 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、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 - プチルオキシ - 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 - [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。

## 【0081】

3. 金属奪活剤

例えば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、オキサニリド、イソフタル酸ジヒドラジド、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。

## 【0082】

4. ホスフィット及びホスホナイト

例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ト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トールジホスフィット、ビス(2, 4 - ジ第三ブチルフェニル)ペンタエリトリトールジホ

10

20

30

40

50

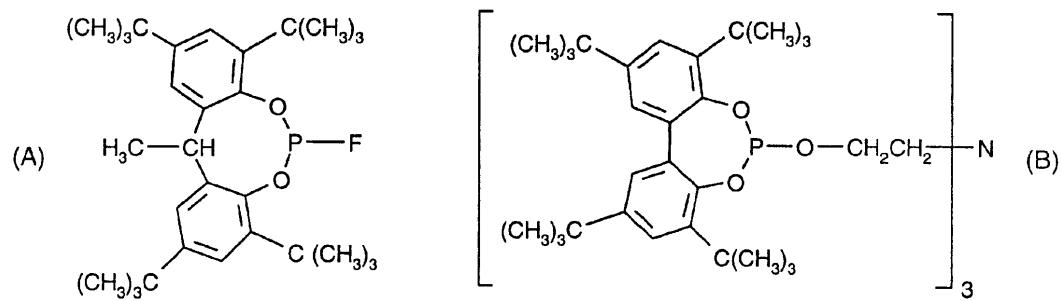
スフィット、ビス(2,4-ジクミルフェニル)ペンタエリトリトールジホスフィット、  
ビス(2,6-ジ第三ブチル-4-メチルフェニル)ペンタエリトリトールジホスフィット、ジイソデシルオキシペンタエリトリトールジホスフィット、ビス(2,4-ジ第三ブチル-6-メチルフェニル)ペンタエリトリトールジホスフィット、ビス(2,4,6-トリス(第三ブチルフェニル)ペンタエリトリトール)ジホスフィット、トリステアリルソルビトールトリホスフィット、テトラキス(2,4-ジ第三ブチルフェニル)4,4'-  
-ビフェニレンジホスホナイト、6-イソオクチルオキシ-2,4,8,10-テトラ第三ブチル-12H-ジベンズ[d,g]-1,3,2-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-エチルヘキシリ  
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

## 【0083】

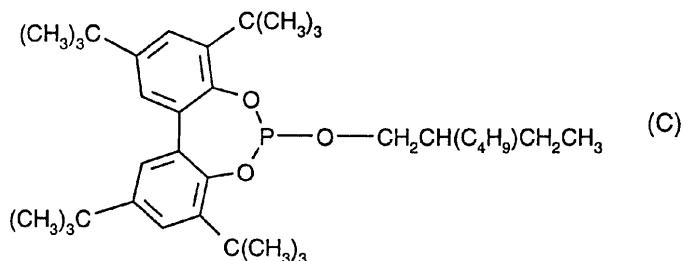
下記のホスフィットはとりわけ好ましい。

トリス(2,4-ジ第三ブチルフェニル)ホスフィット〔チバ-ガイギー社製のイルガ  
フォス168(Irgafos 168)(登録商標名)〕、トリス(ノニルフェニル)ホ  
スフィット。  
20

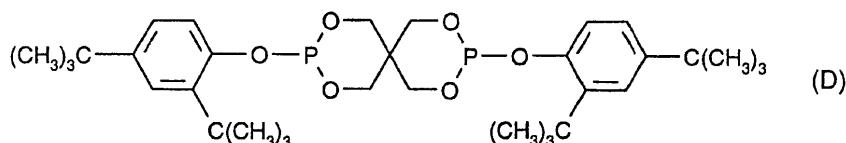
## 【化7】



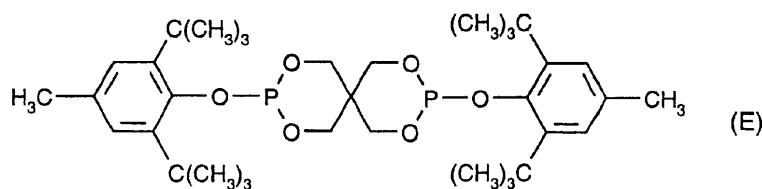
10



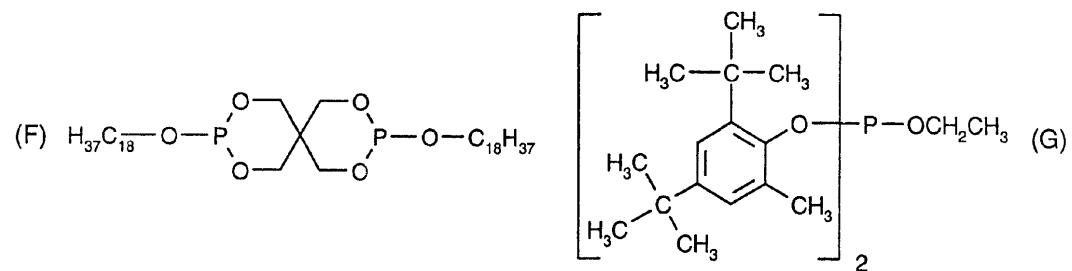
20



30



## 【化8】



40

## 【0084】

## 5. ヒドロキシルアミン

例えばN, N - ジベンジルヒドロキシルアミン、N, N - ジエチルヒドロキシルアミン、N, N - ジオクチ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 - ジテトラデシルヒドロキシルアミン、N, N - ジヘキサデシルヒドロキシルアミン、N, N - ジオクタデシルヒドロキシルアミン、N - ヘプタデシル - N - オクタデシルヒドロキシルアミン、水素化獣脂アミンから誘導されたN, N - ジアルキルヒドロキシルアミン。

## 【0085】

50

6. ニトロン

例えばN-ベンジル- - -フェニルニトロン、N-エチル- - -メチルニトロン、N-オクチル- - -ヘプチルニトロン、N-ラウリル- - -ウンデシルニトロン、N-テトラデシル- - -トリデシルニトロン、N-ヘキサデシル- - -ペンタデシルニトロン、N-オクタデシル- - -ヘプタデシルニトロン、N-ヘキサデシル- - -ヘプタデシルニトロン、N-オクタデシル- - -ペンタデシルニトロン、N-ヘプタデシルニトロン、N-オクタデシル- - -ヘキサデシルニトロン、水素化獣脂アミンから誘導されたN,N-ジアルキルヒドロキシルアミンから誘導されたニトロン。

【0086】

7. チオ相乗剤

例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。

【0087】

8. 過酸化物掃去剤

例えば-チオジプロピオン酸エステル、例えばラウリル、ステアリル、ミリスチル又はトリデシルエステル、メルカプトベンゾイミダゾール又は2-メルカプトベンゾイミダゾール亜鉛塩、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、ペントエリトリトルテトラキス(-ドデシルメルカプト)プロピオネート。

【0088】

9. ポリアミド安定剤

例えば、沃化物及び/又は燐化合物及び二価マンガン塩と組み合わせた銅塩。

【0089】

10. 塩基性補助安定剤

例えばメラミン、ポリビニルピロリドン、ジアンジアミド、トリアリルシアヌレート、尿素誘導体、ヒドラジン誘導体、アミン、ポリアミド、ポリウレタン、高級脂肪酸のアルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩、例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、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。

【0090】

11. 核剤

例えば無機物質、例えば滑石、金属酸化物、例えば二酸化チタン又は酸化マグネシウム、好ましくはアルカリ土類金属の燐酸塩、炭酸塩又は硫酸塩；有機化合物、例えばモノ-又はポリカルボン酸及びその塩、例えば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；ポリマー状化合物、例えばイオン性コポリマー(イオノマー)。とりわけ好ましいものは、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)ソルビトールである。

【0091】

12. 充填材及び強化材

例えば炭酸カルシウム、珪酸塩、ガラス繊維、ガラス球、アスベスト、滑石、陶土、雲母、硫酸バリウム、金属酸化物及び水酸化物、カーボンブラック、黒鉛、木粉及び他の天然産品の細粉又は繊維、合成繊維。

【0092】

13. その他の添加剤

例えば可塑剤、潤滑剤、乳化剤、顔料、レオロジー添加剤、触媒、流れ調整剤、蛍光増白剤、防炎加工剤、帯電防止剤及び発泡剤。

【0093】

14. ベンゾフラノン及びインドリノン

例えば米国特許第4325863号明細書；米国特許第4338244号明細書；米国特許第5175312号明細書；米国特許第5216052号明細書；米国特許第5252643号明細書；ドイツ国特許公開第4316611号公報；ドイツ国特許出願公開第

10

20

30

40

50

4 3 1 6 6 2 2 号明細書；ドイツ国特許出願公開第 4 3 1 6 8 7 6 号明細書；欧州特許出願公開第 0 5 8 9 8 3 9 号明細書又は欧州特許出願公開第 0 5 9 1 1 0 2 号明細書に開示されたもの、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 - ベンゾフラン - 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 ] ベンゾフラン - 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 ) ベンゾフラン - 2 - オン ] 、5 , 7 - ジ第三ブチル - 3 - ( 4 - エトキシフェニル ) ベンゾフラン - 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 - ベンゾフラン - 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 - ベンゾフラン - 2 - オン、3 - ( 3 , 4 - ジメチルフェニル ) - 5 , 7 - ジ第三ブチル - ベンゾフラン - 2 - オン、3 - ( 2 , 3 - ジメチルフェニル ) - 5 , 7 - ジ第三ブチル - ベンゾフラン - 2 - オン。 10

【 0 0 9 4 】

本発明のトリプロック - コポリマー又はグラフト樹形コポリマー及び所望による別の成分は、個別に又は互いに混合されて、熱可塑性ポリマー材料に添加され得る。望まれる場合は、個々の成分は、前記ポリマーに配合される前に、例えば乾式混合、圧縮により、又は溶融状態で、互いに混合され得る。

【 0 0 9 5 】

本発明のトリプロック - コポリマー又はグラフト樹形コポリマー及び所望による別の成分のポリマーへの配合は、公知方法、例えば粉末形態における乾式混合、或いは、例えば不活性溶媒、水又は油中の溶液、分散液又は懸濁液の形態における湿式混合、により行われる。本発明の添加剤及び所望による別の添加剤は、例えば、成形の前後に配合し得、又は、溶解又は分散された添加剤又は添加剤混合物をポリマー材料に適用し、溶剤又は懸濁 / 分散剤を次いで蒸発させ又は蒸発させずに配合することもできる。それらは、加工装置（例えば、押出機、内部ミキサー等）に、例えば乾燥混合物又は粉末として、或いは溶液又は分散液又は懸濁液又は溶融物として、直接添加され得る。 20

【 0 0 9 6 】

前記配合は、攪拌機を備えたどの様な加熱可能な容器内でも、例えば、混練機、ミキサー又は攪拌槽のような密閉された装置内でも、行われ得る。前記配合は好ましくは、押出機内で又は混練機内で行われる。加工が不活性雰囲気中で又は酸素の存在下で行われるかどうかは重要でない。 30

【 0 0 9 7 】

ポリマーに対する添加剤又は添加剤ブレンドの添加は、ポリマーが添加剤と溶融及び混合される全ての慣用の混合装置内で行われ得る。適する装置は当業者に公知である。それらは、主にミキサー、混練機及び押出機である。

【 0 0 9 8 】

前記方法は好ましくは、加工中に添加剤を導入することにより、押出機内で行われる。

【 0 0 9 9 】

特に好ましい加工装置は、単軸押出機、反対方向に回転する又は同一方向に回転する二軸押出機、遊星ギア押出機、リング押出機又は共混練機である。真空を適用し得る少なくとも一つのガス除去区画を備えた加工装置を使用することも可能である。 40

【 0 1 0 0 】

適する押出機及び混練機は、例えば、「合成物質押出のハンドブック ( H a n d b u c h d e r K u n s t s t o f f e x t r u s i o n ) 」、第 1 卷基礎、編集者エフ . ヘンゼン ( F . H e n s e n ) 、ヴェー . クナッペ ( W . K n a p p e ) 、ハー . ポテンテ ( H . P o t e n t e ) 、1989 年、第 3 ~ 7 頁、I S B N : 3 - 4 4 6 - 1 4 3 3 9 - 4 [ 第 2 卷押出基礎 ( E x t r u s i o n s a n l a g e n ) 1986 年、I S B N 3 - 4 4 6 - 1 4 3 2 9 - 7 ] に記載されている。

【 0 1 0 1 】

例えば、スクリューの長さはスクリュー直径の 1 ~ 6 0 倍、好ましくはスクリュー直径 50

の35～48倍である。スクリューの回転速度は好ましくは、10～600／分、非常に特別に好ましくは25～300／分である。

【0102】

最大処理量はスクリュー直径、回転速度及び駆動力に依存する。本発明の方法は、記載されたパラメーターを変更することにより、又は、投与量を移送するために重い装置を使用することにより、最大処理量より低いレベルにおいても行い得る。

【0103】

多数の成分が添加されるとき、それらは予め混合されるか又は個別に添加される。

【0104】

本発明のトリプロック・コポリマー又はグラフト樹形コポリマー及び所望による別の成分は、前記ポリマーに、例えば、約1重量%ないし約40重量%、そして好ましくは2重量%ないし約20重量%の濃度で配合された成分を含むマスターバッチ（“濃厚液”）の形態でも添加され得る。このポリマーは、最終的に添加剤が添加されるポリマーと同一の構造である必要はない。この様な操作において、ポリマーは、粉末、顆粒、溶液、懸濁液の形態で又はラテックスの形態で、使用され得る。

10

【0105】

配合は、成形操作の前又は間に、或いは、溶解された又は分散された化合物をポリマーに適用し、次いで溶剤を蒸発させ又は蒸発させることなく、起こり得る。

【0106】

本明細書に記載された本発明のトリプロック・コポリマー又はグラフト樹形コポリマーを含む材料は、成形品、回転成形品、射出成形品、ブロー成形品、フィルム、テープ、モノフィラメント、繊維、不織布、異形材、接着剤又はパテ、表面塗料等の製造のために使用され得る。

20

【0107】

前記トリプロック・コポリマーは、例えば、個々のブロックのアニオン重合のような標準重合法に従って製造され得る。この様な方法は、例えば、米国特許第6331589号明細書に、ポリエチレンとポリシロキサンとのジプロック・コポリマーに関して記載されている。

【0108】

アニオン重合によるトリプロック・コポリマーの合成は周知であり、且つ、例えば、ホウベン・ヴェイル（Houben-Weyl）著、「有機化学の方法（Methoden der organischen Chemie）」、第E20巻、第132頁、シュツッガルト、1987年、に記載されている。

30

【0109】

合成は、第一のモノマーが、例えば2-ブチルリチウムにより重合を開始され（ブロックB）、その後、第二のモノマーが添加され（その結果、B-Cブロックを得る）、そして最後に、第一のモノマーが再び添加される（その結果、B-C-Bブロックを得る）、3段階法により行われ得る。2段階法は、二官能性開始剤、例えばナフタレンナトリウムTHF錯体を使用することにより達成され、この場合、ブロックCが最初に合成され、その後、第二のモノマーが添加され、両方のBブロックが同時に形成される。2段階法の別の可能性は、一官能性開始剤により第一のモノマーの重合を開始し、その後第二のモノマーを添加し、そしてカップリング剤、例えば、ジクロロ化合物又はジクロルジメチルシランを添加することにより、リビング鎖端にカップリングされることである。アニオン重合による樹形ポリマーは、ポリマー鎖例えばポリブタジエンを、ブチルリチウム-1,2-ビス（ジメチルアミノ）エタン錯体を用いて金属化し、その後、金属（Li）含有ポリマー骨核から第二のモノマーの重合を開始することにより合成され得る。

40

【0110】

B-C-Bブロックコポリマーを合成する別の方法は、個々のブロックの官能性末端基の間の縮合反応による方法である。例えば、ブロックCの両端におけるジメチルアミノ末端閉鎖されたポリシロキサンは、ヒドロキシ末端閉鎖されたブロックBと、縮合反応によ

50

り反応し得る [ 例えば、前記のホウベン - ヴェイル、第 E 20 卷、第 2232 頁を参照 ]  
。

【 0111 】

好ましい方法において、ブロック重合は、ジブロックに関して、「ポリマー プレプリント (Polymer Preprints)」、第 40 (2) 卷、1999 年、第 370 ~ 371 頁、に記載された方法と同様の方法で、ニトロキシリ仲介 (mediated) ラジカル重合の存在下で行われる。

【 0112 】

ニトロキシリ仲介重合による B - C ブロックコポリマーの合成は、例えば、国際特許出願公開第 02/48205 号パンフレットに記載されたように行われる。

10

【 0113 】

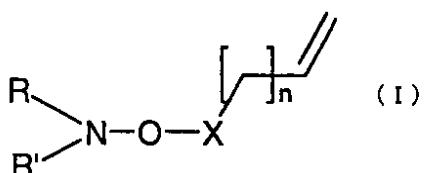
ニトロキシリ仲介重合による B - C - B ブロックコポリマーの合成は、モノマー B から出発し、その後モノマー C とブロックコポリマーを形成させ、そして再びモノマー B とブロックコポリマーを形成させることにより、なされ得る。別の可能性は、例えば米国特許第 5627248 号明細書に記載されているように、二官能性ニトロキシリ開始剤を使用し、最初にモノマー C を重合させ、その後モノマー B を重合させることであり、モノマー B は両端において成長し、B - C - B 構造を生じさせる。

【 0114 】

従って、本発明の別の観点は、  
a) ポリシロキサンを、次式 (I) :

20

【 化 7 】

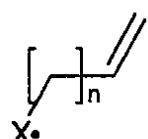


〔前記式中、

X は、少なくとも 1 個の炭素原子を有し、そして次式 :

【 化 8 】

30



で表わされる遊離基がエチレン性不飽和モノマーの重合を開始し得るような基であり、

n は 0 ないし 18 の数を表わし、

R 及び R' は独立して、非置換或いは一つ若しくはそれより多くの電子吸引性基により又はフェニル基により置換された第三級結合された炭素原子数 4 ないし 28 のアルキル基を表わし、或いは

40

R 及び R' は一緒にになって、少なくとも 4 個の炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基により置換された 5 又は 6 員ヘテロ環式環を形成し、そして別の窒素原子又は酸素原子により中断され得る。] で表わされる官能性アルコキシアミンの存在下、ヒドロシリレーション (hydroxylation) 条件下で反応させる段階、及び

b) 得られたアルコキシアミン末端閉鎖されたポリシロキサンを、60 と 160 の間の温度でエチレン性不飽和モノマーと反応させる段階、

を含む制御されたフリーラジカル重合によるトリブロック - コポリマー又はグラフトコポリマーの製造方法である。

【 0115 】

式 I で表わされる化合物のための前駆体として適するニトロキシリラジカルは公知であ

50

り、そして下記文献に開示されている。

【0116】

1994年6月21日に刊行されたジョージズ(Georges)他による米国特許第5322912号明細書は、ホモポリマー及びニトロキシル基により末端閉鎖されたプロックコポリマーの合成のための、遊離基開始剤、重合性モノマー化合物及び基本構造R'-R"NO<sup>·</sup>の安定な遊離基剤を使用する重合方法を開示している。

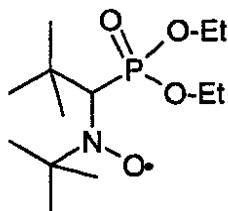
【0117】

ごく最近、別のニトロキシル基及びニトロキシルエーテルが記載されている。例えば、国際特許出願公開第98/13392号パンフレットは、対称的な置換形式を有し、そしてNO<sub>2</sub>ガスから又はニトロソ化合物から誘導される閉鎖アルコキシアミン化合物を記載している。

【0118】

国際特許出願公開第96/24620号パンフレットは、例えば、次式：

【化11】



10

20

で表わされるような、非常に具体的な安定な遊離基剤が使用される重合方法を記載している。

【0119】

国際特許出願公開第98/30601号パンフレットは、イミダゾリジノンをベースとする特定のニトロキシル基を開示している。

【0120】

国際特許出願公開第98/44008号パンフレットは、モルホリノン、ピペラジノン及びピペラジンジオンをベースとする特定のニトロキシル基を開示している。

【0121】

30

閉鎖ニトロキシル基の製造は、例えば、国際特許出願公開第98/03894号パンフレットにも又は国際特許出願公開第00/07981号パンフレットにも記載されている。テトラアルキルピペリジンをベースとするニトロキシル基は、例えば、イギリス国特許第23351290号明細書に又はイギリス国特許第2361235号明細書に記載されている。別のヘテロ環式ニトロキシル基は、イギリス国特許第2342649号明細書に記載されている。

【0122】

これらの先行技術のニトロキシル基は全て、本発明の官能性アルコキシアミンのための適する前駆体である。それらは、国際特許出願公開第02/48109号パンフレットに開示されたエポキシ官能化アルコキシアミンと同様にして製造され得る。

40

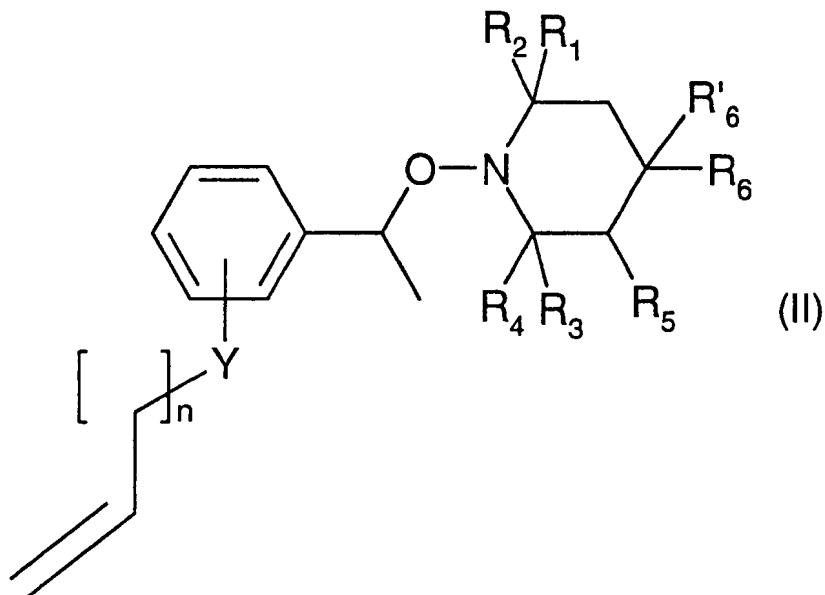
【0123】

原則的に、ヒドロキシ官能性アルコキシアミンは、例えば臭化アリルのような、末端基として二重結合を有するハロゲンアルケンと反応される。

【0124】

好ましくは、官能性アルコキシアミンは、次式(I1)：

【化12】



10

[式中、

 $\text{Y}$  は 直接結合、酸素原子、 $-\text{NH}-$  基、 $-\text{C}(\text{O})\text{O}-$  基又は硫黄原子を表わし、

20

 $n$  は 0 ないし 18 の数を表わし、 $\text{R}_1$ 、 $\text{R}_2$ 、 $\text{R}_3$  及び  $\text{R}_4$  は互いに独立して炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基を表わし、 $\text{R}_5$  は水素原子又は炭素原子数 1 ないし 4 のアルキル基を表わし、 $\text{R}_6'$  は水素原子を表わし、そして  $\text{R}_6$  は水素原子、 $-\text{OR}_{10}$  基、 $-\text{NR}_{10}\text{R}_{11}$  基、 $-\text{O}-\text{C}(\text{O})-\text{R}_{10}$  基又は $-\text{NR}_{11}-\text{C}(\text{O})-\text{R}_{10}$  基を表わし、 $\text{R}_{10}$  及び  $\text{R}_{11}$  は互いに独立して水素原子、炭素原子数 1 ないし 18 のアルキル基、炭素原子数 2 ないし 18 のアルケニル基、炭素原子数 2 ないし 18 のアルキニル基又は、少なくとも一つのヒドロキシ基により置換された炭素原子数 2 ないし 18 のアルキル基を表わし、或いは、 $\text{R}_6$  が $-\text{NR}_{10}\text{R}_{11}$  基を表わすとき、一緒になって、炭素原子数 2 ないし 12 のアルキレン橋又は、少なくとも 1 個の酸素原子により中断された炭素原子数 2 ないし 12 のアルキレン橋を形成し、或いは

30

 $\text{R}_6$  及び  $\text{R}_6'$  は共に水素原子を表わし、又は一緒になって基 =  $\text{O}$  若しくは基 =  $\text{N}-\text{O}-\text{R}_{20}$  } 式中、 $\text{R}_{20}$  は水素原子、直鎖状又は分岐鎖状の炭素原子数 1 ないし 18 のアルキル基、炭素原子数 3 ないし 18 のアルケニル基又は炭素原子数 3 ないし 18 のアルキニル基（これらは非置換であっても又は、 $-\text{OH}$  基、炭素原子数 1 ないし 8 のアルコキシ基、カルボキシ基、炭素原子数 1 ないし 8 のアルコキシカルボニル基で置換されていてもよい）；炭素原子数 5 ないし 12 のシクロアルキル基又は炭素原子数 5 ないし 12 のシクロアルケニル基；フェニル基、炭素原子数 7 ないし 9 のフェニルアルキル基又はナフチル基（これらは非置換であっても又は、炭素原子数 1 ないし 8 のアルキル基、ハロゲン原子、 $-\text{OH}$  基、炭素原子数 1 ないし 8 のアルコキシ基、カルボキシ基、炭素原子数 1 ないし 8 のアルコキシカルボニル基で置換されていてもよい）； $-\text{C}(\text{O})-$  炭素原子数 1 ないし 36 のアルキル基、或いは、3 個ないし 5 個の炭素原子を有する  $-\text{C}(\text{O})-$  不飽和カルボン酸又は 7 個ないし 15 個の炭素原子を有する芳香族カルボン酸のアシル部分； $-\text{SO}_3^-\text{Q}^+$  基、 $-\text{PO}(\text{O}^-\text{Q}^+)_2$  基、 $-\text{P}(\text{O})(\text{OR}_2)_2$  基、 $-\text{SO}_2-\text{R}_2$  基、 $-\text{CO}-\text{NH}-\text{R}_2$  基、 $-\text{CONH}_2$  基、 $-\text{COOR}_2$  基又は $-\text{Si}(\text{Me})_3$  基を表わし、前記式中、 $\text{Q}^+$  は  $\text{H}^+$ 、アンモニウム又はアルカリ金属カチオンを表わす。} を表わし、或いは、

40

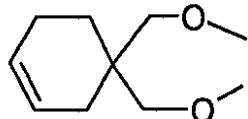
 $\text{R}_6$  及び  $\text{R}_6'$  は独立して $-\text{O}-$  炭素原子数 1 ないし 12 のアルキル基、 $-\text{O}-$  炭素原子数 3 ないし 12 のアルケニル基、 $-\text{O}-$  炭素原子数 3 ないし 12 のアルキニル基、 $-\text{O}$ 

50

- 炭素原子数 5 ないし 8 のシクロアルキル基、 - O - フェニル基、 - O - ナフチル基、 - O - 炭素原子数 7 ないし 9 のフェニルアルキル基を表わし、或いは、

R<sub>6</sub> 及び R<sub>6</sub>' は一緒になって二価基 - O - C (R<sub>21</sub>) (R<sub>22</sub>) - C H (R<sub>23</sub>) - O - 、 - O - C H (R<sub>21</sub>) - C H<sub>2</sub> - C (R<sub>22</sub>) (R<sub>23</sub>) - O - 、 - O - C H (R<sub>22</sub>) - C H<sub>2</sub> - C (R<sub>21</sub>) (R<sub>23</sub>) - O - 、 - O - C H<sub>2</sub> - C (R<sub>21</sub>) (R<sub>22</sub>) - C H (R<sub>23</sub>) - O - 、 - O - o - フェニレン - O - 、 - O - 1, 2 - シクロヘキシリデン - O - 、 - O - C H<sub>2</sub> - C H = C H - C H<sub>2</sub> - O - 又は

【化 13】



10

の一つを形成し、前記式中、

R<sub>21</sub> は水素原子、炭素原子数 1 ないし 12 のアルキル基、 - COOH 基、 - COO - 炭素原子数 1 ないし 12 のアルキル基又は - CH<sub>2</sub> OR<sub>24</sub> 基を表わし、

R<sub>22</sub> 及び R<sub>23</sub> は互いに独立して水素原子、メチル基、エチル基、 - COOH 基又は - COO - 炭素原子数 1 ないし 12 のアルキル基を表わし、そして

R<sub>24</sub> は水素原子、炭素原子数 1 ないし 12 のアルキル基、ベンジル基又は、18 個までの炭素原子を有する脂肪族、脂環式若しくは芳香族一価カルボン酸から誘導される一価アシル残基を表わす。】で表わされる。

【0125】

好みしくは、Y は酸素原子を表わし、そして n は数 1 ないし 4 を表わす。

【0126】

炭素原子数 1 ないし 18 のアルキル基は、直鎖状又は分岐鎖状であり得る。例はメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、2 - ブチル基、イソブチル基、第三ブチル基、ペンチル基、2 - ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、2 - エチルヘキシル基、第三オクチル基、ノニル基、デシル基、ウンデシル基、ドデシル基又はオクタデシル基である。炭素原子数 36 までのアルキル基が可能であり、炭素原子数 1 ないし 18 のアルキル基が好みしい。基 - COOH により置換されたアルキル基は、例えれば、 - CH<sub>2</sub> - COOH 基、 - CH<sub>2</sub> CH<sub>2</sub> - COOH 基、 - (CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub> - COOH 基又は - CH<sub>2</sub> - CH COOH - CH<sub>2</sub> CH<sub>3</sub> 基である。

【0127】

ヒドロキシル - 又はアルコキシカルボニル置換された炭素原子数 1 ないし 18 のアルキル基は、例えれば、2 - ヒドロキシエチル基、2 - ヒドロキシプロピル基、メトキシカルボニルメチル基又は 2 - エトキシカルボニルエチル基であり得る。

【0128】

2 個ないし 18 個の炭素原子を有するアルケニル基は分岐鎖状又は非分岐鎖状基、例えれば、プロペニル基、2 - プテニル基、3 - プテニル基、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、イソドデセニル基である。

【0129】

2 個ないし 18 個の炭素原子を有するアルキニル基は分岐鎖状又は非分岐鎖状基、例えれば、プロピニル基、2 - ブチニル基、3 - ブチニル基、イソブチニル基、n - 2, 4 - ペンタジイニル基、3 - メチル - 2 - ブチニル基、n - 2 - オクチニル基、n - 2 - ドデシニル基、イソドデシニル基である。

【0130】

アルコキシ基の例は、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、ペントキシ基、イソペントキシ基、ヘキソキシ基、ヘプトキシ基又はオクトキシ基である。

20

30

40

50

## 【0131】

炭素原子数 7 ないし 9 のフェニルアルキル基は、例えば、ベンジル基、-メチルベンジル基、-ジメチルベンジル基又は 2 - フェニルエチル基であり、ベンジル基が好ましい。

## 【0132】

炭素原子数 5 ないし 12 のシクロアルキル基は、例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基、シクロヘプチル基、メチルシクロペンチル基又はシクロオクチル基である。

## 【0133】

炭素原子数 5 ないし 12 のシクロアルケニル基の例は、例えば、3 - シクロペンテニル基、3 - シクロヘキセニル基又は 3 - シクロヘプテニル基である。

10

## 【0134】

18 個までの炭素原子を有するモノカルボン酸の例は、蟻酸、酢酸、プロピオン酸、吉草酸の異性体、メチルエチル酢酸、トリメチル酢酸、カプロン酸、ラウリン酸又はステアリン酸である。不飽和脂肪族系酸の例は、アクリル酸、メタクリル酸、クロトン酸、リノール酸及びオレイン酸である。

## 【0135】

脂環式カルボン酸の典型例は、シクロヘキサンカルボン酸又はシクロペンタンカルボン酸である。

## 【0136】

芳香族カルボン酸の例は、安息香酸、サリチル酸又は桂皮酸である。

20

ハロゲン原子は弗素原子、塩素原子、臭素原子又は沃素原子である。

## 【0137】

炭素原子数 1 ないし 18 のアルキレン基は分岐鎖状又は非分岐鎖状基、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。

## 【0138】

少なくとも 1 個の酸素原子により中断された炭素原子数 2 ないし 12 のアルキレン橋は、例えば、-CH<sub>2</sub>-O-CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-基、-CH<sub>2</sub>-O-CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-基、-CH<sub>2</sub>-O-CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-基、-CH<sub>2</sub>-O-CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-O-CH<sub>2</sub>-基である。

30

## 【0139】

アルコキシカルボニル基は、例えば、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、プロポキシカルボニル基である。

## 【0140】

好ましくは、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub> はメチル基を表わし、又は、R<sub>1</sub> 及び R<sub>3</sub> はエチル基を表わし且つ R<sub>2</sub> 及び R<sub>4</sub> はメチル基を表わし、又は、R<sub>1</sub> 及び R<sub>2</sub> はエチル基を表わし且つ R<sub>3</sub> 及び R<sub>4</sub> はメチル基を表わす。

## 【0141】

例えば、R<sub>5</sub> は水素原子又はメチル基を表わす。

40

## 【0142】

特に、R<sub>6</sub> ' は水素原子を表わし、そして R<sub>6</sub> は水素原子、-OR<sub>10</sub> 基、-NR<sub>10</sub>R<sub>11</sub> 基、-O-C(O)-R<sub>10</sub> 基又は -NR<sub>11</sub>-C(O)-R<sub>10</sub> 基を表わし、

R<sub>10</sub> 及び R<sub>11</sub> は互いに独立して水素原子、炭素原子数 1 ないし 18 のアルキル基、炭素原子数 2 ないし 18 のアルケニル基、炭素原子数 2 ないし 18 のアルキニル基又は、少なくとも一つのヒドロキシ基により置換された炭素原子数 2 ないし 18 のアルキル基を表わし、或いは、R<sub>6</sub> が -NR<sub>10</sub>R<sub>11</sub> 基を表わすとき、一緒になって、炭素原子数 2 ないし 12 のアルキレン橋又は、少なくとも 1 個の酸素原子により中断された炭素原子数 2 ないし 12 のアルキレン橋を形成し、或いは

R<sub>6</sub> 及び R<sub>6</sub> ' は共に水素原子を表わし、又は一緒になって基 = O 若しくは基 = N - O

50

- R<sub>20</sub> (式中、R<sub>20</sub>は水素原子、直鎖状又は分岐鎖状の炭素原子数1ないし18のアルキル基を表わす。)を表わす。

【0143】

本発明の他の好ましい態様において、R<sub>6</sub> 及びR<sub>6</sub>' は一緒になって二価基 - O - C (R<sub>21</sub>) (R<sub>22</sub>) - C H (R<sub>23</sub>) - O - 、 - O - C H (R<sub>21</sub>) - C H<sub>22</sub> - C (R<sub>22</sub>) (R<sub>23</sub>) - O - 、 - O - C H (R<sub>22</sub>) - C H<sub>2</sub> - C (R<sub>21</sub>) (R<sub>23</sub>) - O - 、 - O - C H<sub>2</sub> - C (R<sub>21</sub>) (R<sub>22</sub>) - C H (R<sub>23</sub>) - O - の一つを表わし、そしてR<sub>21</sub>、R<sub>22</sub>及びR<sub>23</sub>は上記において定義されたものと同じ意味を表わす。

【0144】

第一段階において、例えば、環状シロキサンの開環により、ポリシロキサンが製造される。

10

【0145】

水素末端基を持つ又はポリマー骨核に懸下した水素原子を持つポリシロキサンは公知であり、そして市販品を入手可能である。前記水素基と不飽和二重結合とを反応させる方法はヒドロシリル化として公知であり、そして例えば、「有機金属化学における進歩 (Advances in Organometallic Chemistry)」、第17巻、第407~447頁、1979年、に記載されている。

【0146】

ヒドロシリル化工程の間、例えばアリル官能基を有するアルコキシアミン、特に式IIで表わされる化合物が添加され、そして、ポリシロキサン骨核の両端に又は該骨核に沿ってアルコキシアミンが結合したポリシロキサンが得られる。工程条件及び添加されるアルコキシアミンの量に応じて、2個を超えるペンドントアルコキシアミン基を持つ櫛形ポリマーが得られる。

20

【0147】

第二段階において、アルコキシアミンで末端閉鎖されたポリシロキサンは、不飽和モノマーと更に反応される。不飽和モノマーの例は、エチレン、プロピレン、n-ブチレン、イソブチレン、スチレン、置換されたスチレン、共役ジエン、アクロレイン、酢酸ビニル、ビニルピロリドン、ビニルイミダゾール、無水マレイン酸、(アルキル)アクリル酸無水物、(アルキル)アクリル酸塩、(アルキル)アクリルエステル、(メタ)アクリロニトリル、(アルキル)アクリルアミド、ハロゲン化ビニル又はハロゲン化ビニリデンである。

30

【0148】

好ましいエチレン性不飽和モノマーは、スチレン、メチルアクリレート、エチルアクリレート、ブチルアクリレート、イソブチルアクリレート、第三ブチルアクリレート、ヒドロキシエチルアクリレート、ヒドロキシプロピルアクリレート、ジメチルアミノエチルアクリレート、グリシジルアクリレート、メチル(メタ)アクリレート、エチル(メタ)アクリレート、ブチル(メタ)アクリレート、ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート、ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート、ジメチルアミノエチル(メタ)アクリレート、グリシジル(メタ)アクリレート、アクリロニトリル、アクリルアミド、メタクリルアミド又はジメチルアミノプロピル-メタクリルアミドである。

40

【0149】

特に好ましいものは、スチレン、メチルアクリレート、エチルアクリレート、ブチルアクリレート、イソブチルアクリレート、第三ブチルアクリレート、メチル(メタ)アクリレート、エチル(メタ)アクリレート及び、ブチル(メタ)アクリレートの異性体である。

【0150】

更に本発明の対象は、上述の方法に基づく制御されたフリーラジカル重合により得られたトリプロック-コポリマー又はグラフトコポリマー自体である。

【0151】

式IIで表わされる化合物は新規である。それらは、国際特許出願公開第99/462

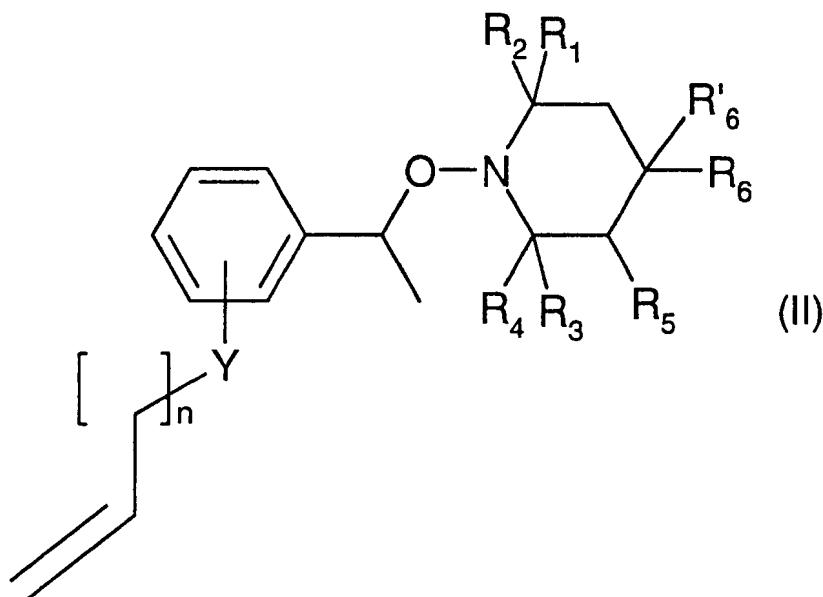
50

61号パンフレット、国際特許出願公開第02/48109号パンフレット又は米国特許第5721320号明細書に記載されたエポキシ官能性化合物と同様にして製造され得る。前記文献に記載されたヒドロキシ官能性中間体は、例えば、臭化アリルと反応されて表題化合物を得る。

【0152】

従って、本発明の別の観点は、次式II：

【化14】



10

20

〔式中、

Yは直接結合、酸素原子、-NH-基、-C(O)O-基又は硫黄原子を表わし、

nは0ないし18の数を表わし、

R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>及びR<sub>4</sub>は互いに独立して炭素原子数1ないし4のアルキル基を表わし、

R<sub>5</sub>は水素原子又は炭素原子数1ないし4のアルキル基を表わし、

R<sub>6</sub>は水素原子を表わし、そしてR<sub>6</sub>は水素原子、-OR<sub>10</sub>基、-NR<sub>10</sub>R<sub>11</sub>基、-O-C(O)-R<sub>10</sub>基又は-NR<sub>11</sub>-C(O)-R<sub>10</sub>基を表わし、

R<sub>10</sub>及びR<sub>11</sub>は互いに独立して水素原子、炭素原子数1ないし18のアルキル基、炭素原子数2ないし18のアルケニル基、炭素原子数2ないし18のアルキニル基又は、少なくとも一つのヒドロキシ基により置換された炭素原子数2ないし18のアルキル基を表わし、或いは、R<sub>6</sub>が-NR<sub>10</sub>R<sub>11</sub>基を表わすとき、一緒になって、炭素原子数2ないし12のアルキレン橋又は、少なくとも1個の酸素原子により中断された炭素原子数2ないし12のアルキレン橋を形成し、或いは

R<sub>6</sub>及びR<sub>6</sub>は共に水素原子を表わし、又は一緒になって基=O若しくは基=N-O-R<sub>20</sub>〔式中、

R<sub>20</sub>は水素原子、直鎖状又は分岐鎖状の炭素原子数1ないし18のアルキル基、炭素原子数3ないし18のアルケニル基又は炭素原子数3ないし18のアルキニル基（これらは非置換であっても又は、-OH基、炭素原子数1ないし8のアルコキシ基、カルボキシ基、炭素原子数1ないし8のアルコキシカルボニル基で置換されていてもよい）；炭素原子数5ないし12のシクロアルキル基又は炭素原子数5ないし12のシクロアルケニル基；フェニル基、炭素原子数7ないし9のフェニルアルキル基又はナフチル基（これらは非置換であっても又は、炭素原子数1ないし8のアルキル基、ハロゲン原子、-OH基、炭素原子数1ないし8のアルコキシ基、カルボキシ基、炭素原子数1ないし8のアルコキシカルボニル基で置換されていてもよい）；-C(O)-炭素原子数1ないし36のアルキル基、或いは、3個ないし5個の炭素原子を有する，-不飽和カルボン酸又は7個ない

30

40

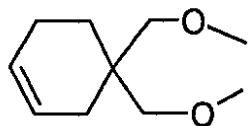
50

し 15 個の炭素原子を有する芳香族カルボン酸のアシリル部分 ; -  $\text{SO}_3^- \text{Q}^+$  基、 -  $\text{PO}(\text{O}^- \text{Q}^+)_2$  基、 -  $\text{P}(\text{O})(\text{OR}_2)_2$  基、 -  $\text{SO}_2^- \text{R}_2$  基、 -  $\text{CO}-\text{NH}-\text{R}_2$  基、 -  $\text{CONH}_2$  基、 -  $\text{COOR}_2$  基又は -  $\text{Si}(\text{Me})_3$  基を表わし、前記式中、  $\text{Q}^+$  は  $\text{H}^+$  、アンモニウム又はアルカリ金属カチオンを表わす。} を表わし、或いは、

$\text{R}_6$  及び  $\text{R}'_6$  は独立して -  $\text{O}$  - 炭素原子数 1 ないし 12 のアルキル基、 -  $\text{O}$  - 炭素原子数 3 ないし 12 のアルケニル基、 -  $\text{O}$  - 炭素原子数 3 ないし 12 のアルキニル基、 -  $\text{O}$  - 炭素原子数 5 ないし 8 のシクロアルキル基、 -  $\text{O}$  - フェニル基、 -  $\text{O}$  - ナフチル基、 -  $\text{O}$  - 炭素原子数 7 ないし 9 のフェニルアルキル基を表わし、或いは、

$\text{R}_6$  及び  $\text{R}'_6$  は一緒になって二価基 -  $\text{O}-\text{C}(\text{R}_{21})(\text{R}_{22})-\text{CH}(\text{R}_{23})-\text{O}-$  、 -  $\text{O}-\text{CH}(\text{R}_{21})-\text{CH}_{22}-\text{C}(\text{R}_{22})(\text{R}_{23})-\text{O}-$  、 -  $\text{O}-\text{CH}(\text{R}_{22})-\text{CH}_{2}-\text{C}(\text{R}_{21})(\text{R}_{23})-\text{O}-$  、 -  $\text{O}-\text{O}-\text{フェニレン}-\text{O}-$  、 -  $\text{O}-1,2-\text{シクロヘキシリデン}-\text{O}-$  、 -  $\text{O}-\text{C}\text{H}_2-\text{CH}-\text{CH}_2-\text{O}$  又は

【化 15】



の一つを形成し、前記式中、

20

$\text{R}_{21}$  は水素原子、炭素原子数 1 ないし 12 のアルキル基、 -  $\text{COOH}$  基、 -  $\text{COO}-$  炭素原子数 1 ないし 12 のアルキル基又は -  $\text{CH}_2\text{OR}_{24}$  基を表わし、

$\text{R}_{22}$  及び  $\text{R}_{23}$  は互いに独立して水素原子、メチル基、エチル基、 -  $\text{COOH}$  基又は -  $\text{COO}-$  炭素原子数 1 ないし 12 のアルキル基を表わし、そして

$\text{R}_{24}$  は水素原子、炭素原子数 1 ないし 12 のアルキル基、ベンジル基又は、18 個までの炭素原子を有する脂肪族、脂環式若しくは芳香族一価カルボン酸から誘導される一価アシリル残基を表わす。] で表わされる化合物である。

【0153】

個々の置換基の例及び好ましいものは既に記載されており、それらは前記化合物に対しても適用される。

30

【0154】

本発明のまた別の観点は、トリプロック - コポリマー又はグラフトコポリマーが上記方法に基づく制御されたフリーラジカル重合により製造される組成物、及び、加工中の熱可塑性ポリマーのメルトフローを向上させるための添加剤としての、トリプロック - コポリマー又はグラフトコポリマーの使用である。

【実施例】

【0155】

下記実施例により、本発明を説明する。

【0156】

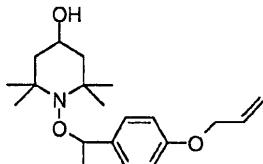
A) 官能性アルコキシアミンの合成

40

実施例 1 (化合物 101)

国際特許出願公開第 02 / 48109 号パンフレットに記載された 1 - [1 - (4 - ヒドロキシフェニル)エトキシ] - 2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジン - 4 - オール 15 g (51 ミリモル)、  $\text{K}_2\text{CO}_3$  14 g (102 ミリモル)、臭化アリル 8.6 mL (102 ミリモル) 及びアセトン 50 mL を 12 時間、還流した。この反応混合物を濾過し、そして溶剤を溜去した。残渣をペンタン 20 mL から再結晶した。融点 66 ~ 67 を持つ白色結晶として、化合物 101、11.3 g (収率 66.4 %) が得られた。

【表1】

化合物番号	構造
101	

10

元素分析：

$C_{20}H_{31}NO_3$  としての計算値：C 72.03%、H 9.37%、N 4.20%；測定値：C 71.46%、H 9.36%、N 4.27%

【0157】

#### B) NOR末端閉鎖されたポリシロキサンの合成

2種の市販のポリシロキサンを、化合物101の存在下で、ヒドロシリル化反応により変性した。B-C-B型のNOR末端閉鎖されたポリシロキサン及び、C-(B)<sub>n</sub>型のグラフトされたポリシロキサンが得られた。

20

【0158】

#### C) 実施例1～4のブロックコポリマーB-C-Bの合成

乾燥した、アルゴンバージされたシュレンク管中で、NOR末端閉鎖されたポリシロキサンを、新たに蒸溜したステレン10倍量に溶解した。この溶液を、3回の冷凍・解凍サイクルにて脱ガスし、その後、アルゴンでバージした。攪拌された混合物を油浴中に浸漬し、そして、130℃で24時間重合させた。重合後、残渣モノマーを、真空下60℃で除去した。最終的に得られたブロックコポリマーを、一定重量が達成されるまで、真空下60℃で乾燥した。

【0159】

30

分子量及び分子量分布は、溶出液としてのTHF及び、狭い分子量分布のポリスチレン標準[ポリマー ラボラトリーズ(Polymer Laboratories)社製]を用いて較正されたカラムの組み合わせを使用し、HPLC液体クロマトグラフ[ソフトウェア:winGPC/ドイツ国、マイントのポリマー スタンダード サービシズ(Polymer Standard Services)製]上で、サイズ排除クロマトグラフィー(SEC)により決定された。結果を下記表1に示す。

【表2】

表1

実施例のブロックコポリマー	出発物質	[g]	ステレン[g]	転換率[%]	$M_w$	PD
PS-PSi-PS(実施例1、3)	NOR末端閉鎖ポリシロキサン	5.0	50	67.6	7100	4.8
PS-グラフト-PSi(実施例2、4)	NOR末端閉鎖ポリシロキサン	5.0	50	53.1	8000	1.7

40

【0160】

#### 加工及び試験条件

上記の合成されたブロックコポリマーをクリスタルポリスチレンにブレンドし、そして螺旋状(直径:1.5mm)に射出成形し、この螺旋の長さを流動性の尺度として使用した。加えて、射出成形された螺旋の透明度を目視により検査した。本発明の実施例の改善

50

されたメルトフロー及び透明度の結果を、下記表 2 に掲示する。

【表1】

表2

	添加剤	[%]	メルトフロー 増加率 [%]	外観
比較例 実施例1	なし	0	0	透明、無色
比較例 実施例2	テゴマー(Tegomer) (登録商標) v-si 2250	1.0	5.3	白色、不透明、不均質
比較例 実施例3	テゴマー(Tegomer) (登録商標) h-si 6440	1.0	0.3	白色、不透明
比較例 実施例6	テゴマー(Tegomer) (登録商標) h-si 6440	2.0	7.7	白色、不透明
比較例 実施例7	テゴマー(Tegomer) (登録商標) v-si 2250	2.0	5.0	白色、不透明、不均質
実施例1	ps- ポリシロキサン-ps ブロックコポリマー	1.0	1.2	透明、無色
実施例2	ポリシロキサン - グラフト - ps	1.0	5.0	透明、無色
実施例3	ps- ポリシロキサン-ps ブロックコポリマー	2.0	3.2	透明、無色
実施例4	ポリシロキサン - グラフト - ps	2.0	6.2	透明、無色

【 0 1 6 1 】

比較例の市販のポリシロキサンに比べて、本発明の実施例は、メルトフローの向上及び同時に、無色透明な生成物であることにより実証された優れた相溶性を示す。ポリスチレン（PS）のガラス転位温度は373Kであり、ポリシロキサンのガラス転位温度は146Kである。

---

フロントページの続き

(74)代理人 100109690  
弁理士 小野塚 薫  
(74)代理人 100131266  
弁理士 高 昌宏  
(74)代理人 100093414  
弁理士 村越 祐輔  
(74)代理人 100131141  
弁理士 小宮 知明  
(72)発明者 プフェンドナー, ルドルフ  
ドイツ国, 6 4 6 6 8 リムバッハ, ザックガッセ 3  
(72)発明者 フィンク, ヨッヒエン  
ドイツ国, 6 9 2 2 6 ヌスロッホ, クルト - シューマッハー - シュトラーセ 16  
(72)発明者 ヴンダーリッヒ - ヴィッパート, ヴィープケ  
ドイツ国, 7 9 5 4 1 レラッハ, リッターシュトラーセ 2  
(72)発明者 クラマー, アンドレアス  
スイス国, ツェーハー - 3 2 8 0 メイリーツ, リュ オスカー - パッティ 45

審査官 車谷 治樹

(56)参考文献 特開平07-018140 (JP, A)  
特開平05-209129 (JP, A)  
特開昭63-057642 (JP, A)  
特開平05-179095 (JP, A)  
米国特許第03691257 (US, A)  
国際公開第01/002345 (WO, A1)  
特表2003-503474 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

IPC C08K 3/00-13/08  
C08L 1/00-101/14  
DB名 CAplus(STN)  
REGISTRY(STN)