

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第3区分

【発行日】平成19年3月15日(2007.3.15)

【公表番号】特表2006-519917(P2006-519917A)

【公表日】平成18年8月31日(2006.8.31)

【年通号数】公開・登録公報2006-034

【出願番号】特願2006-509037(P2006-509037)

【国際特許分類】

C 08 L 69/00 (2006.01)

C 08 K 5/49 (2006.01)

C 08 K 5/3435 (2006.01)

C 08 K 5/3492 (2006.01)

【F I】

C 08 L 69/00

C 08 K 5/49

C 08 K 5/3435

C 08 K 5/3492

【手続補正書】

【提出日】平成19年1月23日(2007.1.23)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

(A)少なくとも一種のポリカーボネート、及び

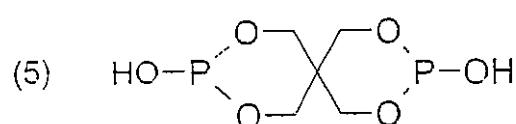
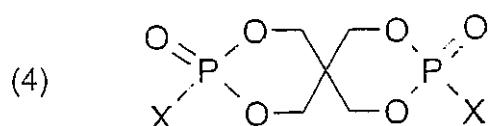
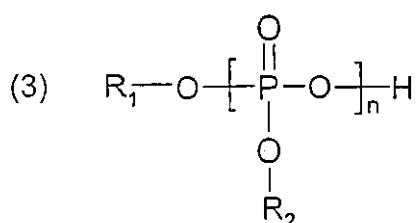
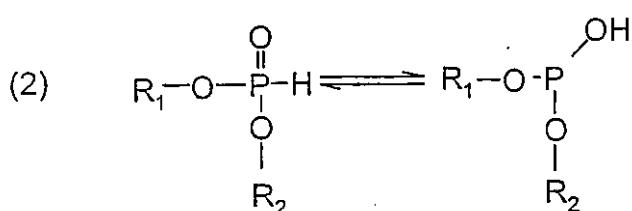
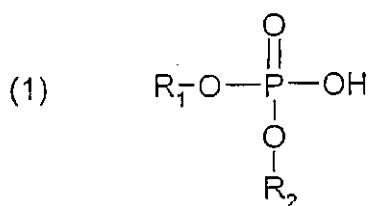
(B)ポリカーボネート組成物の全重量に対して0.01~0.25重量%の、一種以上の酸性のリン含有化合物と一種以上のヒンダードアミン光安定剤との反応によって調製される少なくとも一種の塩

を含んでなるポリマー組成物。

【請求項2】

前記酸性のリン含有化合物が下式:

【化1】



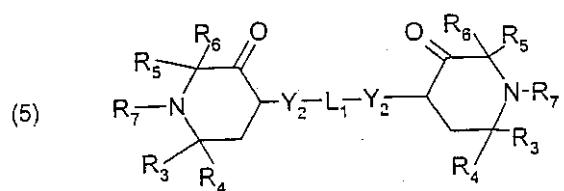
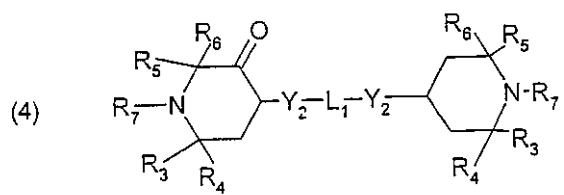
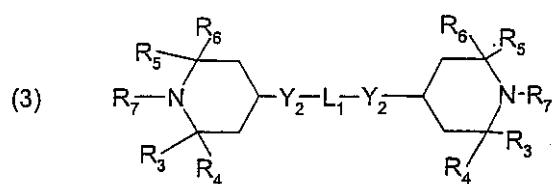
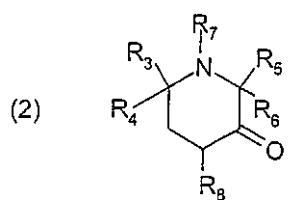
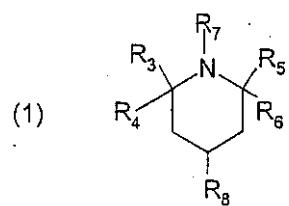
式中、

$\text{R}_1$  及び  $\text{R}_2$  は、独立して、水素、 $\text{C}_{1\sim 22}$  のアルキル、置換  $\text{C}_{1\sim 22}$  のアルキル、 $\text{C}_{3\sim 8}$  のシクロアルキル、置換  $\text{C}_{3\sim 8}$  のシクロアルキル、ヘテロアリール、及びアリールであり、

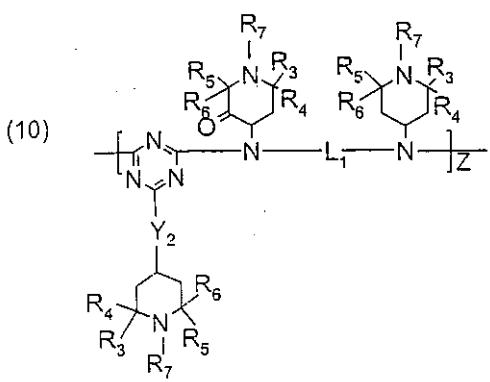
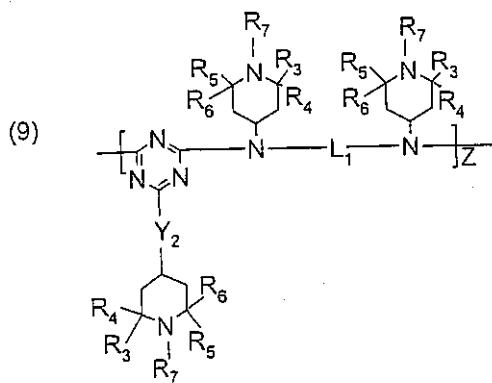
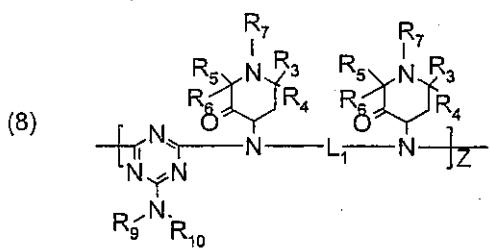
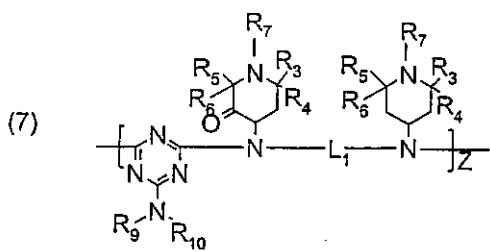
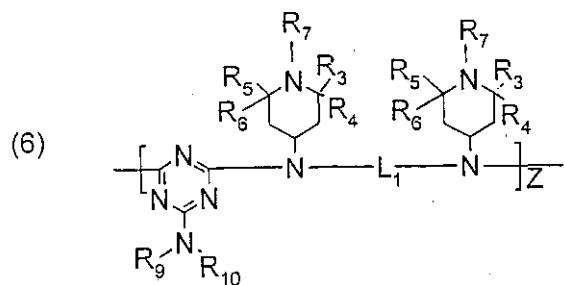
$n$  は、2 ~ 500 であり、及び

$X$  は、水素及びヒドロキシから選ばれる、  
を有する化合物から選ばれ、  
そして、前記ヒンダードアミン光安定剤が下式：

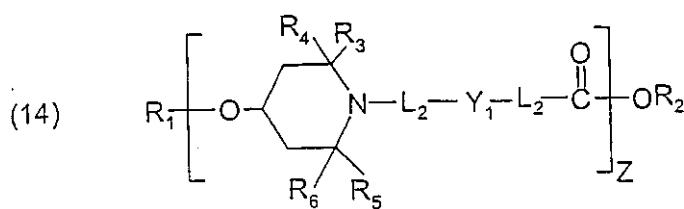
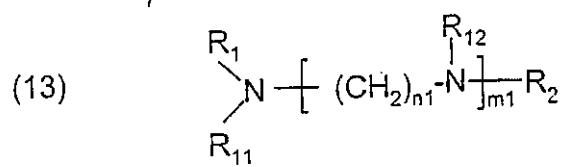
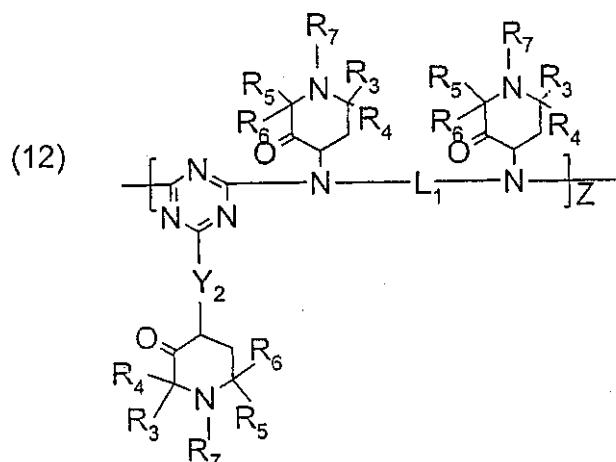
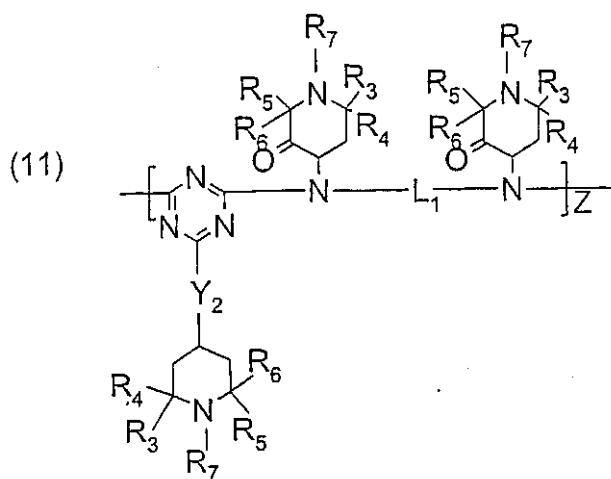
【化 2】



【化 3】



【化4】



式中、

R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は、独立して、水素、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、置換C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキル、置換C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキル、ヘテロアリール、及びアリールから選ばれ、

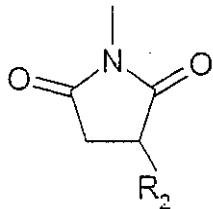
R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>、及びR<sub>6</sub>は、独立して、水素、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、置換C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキル、置換C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキル、ヘテロアリール

、及びアリールから選ばれ、

$R_7$ は、水素、-OR<sub>6</sub>、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、置換C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキル、置換C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキルから選ばれ、

$R_8$ は、水素、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、置換C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキル、置換C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキル、ヘテロアリール、アリール、-Y<sub>1</sub>-R<sub>1</sub>又は下式を有するスクシンイミド基から選ばれ、

【化5】



$R_9$ 及び $R_{10}$ は、独立して、水素、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、置換C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキル、及び置換C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキルから選ばれ、 $R_9$ と $R_{10}$ とは集合して、それらが結合している窒素原子と環を形成する二価の基、例えばモルフォリノ、ピペリジノなどを表してもよく、

$L_1$ は、C<sub>2</sub>～C<sub>22</sub>のアルキレン、-(CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-Y<sub>1</sub>)<sub>1-3</sub>-CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキレン、アリーレン、又は-CO-L<sub>2</sub>-OC-から選ばれる二価の結合基であり、

$L_2$ は、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキレン、アリーレン、-(CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-Y<sub>1</sub>)<sub>1-3</sub>-CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-及びC<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキレンから選ばれ、

Y<sub>1</sub>は、-OC(O)-、-NHC(O)-、-O-、-S-、-N(R<sub>1</sub>)-から選ばれ

Y<sub>2</sub>は、-O-又は-N(R<sub>1</sub>)-から選ばれ、

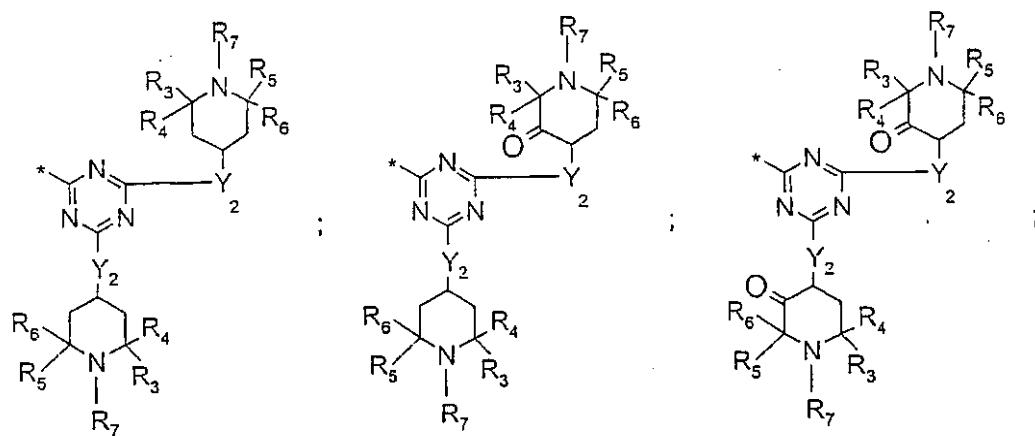
Zは、約20まで、好ましくは約6までの正の整数であり、

m<sub>1</sub>は、0～約10から選ばれ、

n<sub>1</sub>は、2～約12から選ばれる正の整数であり、

$R_{11}$ 及び $R_{12}$ は、独立して、水素、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、置換C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキル、置換C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキル、ヘテロアリール、アリール、及び基Aから選ばれ、ここで、基Aは、以下の構造から選ばれ、

【化 6】



基Aの構造：\*は、結合の位置を示す。

式中、 $R_{11}$  及び  $R_{12}$  の少なくとも一つは、基 A であり、そして、HALS における塩基性の窒素原子の数に対する酸性のリン含有化合物におけるリン原子の数の比は、0.25~2、好ましくは0.5~1.1である。

を有する化合物から選ばれる、請求項 1 に記載のポリマー組成物。

### 【請求項3】

( A ) 少なくとも一種のポリカーボネート、及び

(B) ポリカーボネート組成物の全重量に対して0.01~0.25重量%の、亜リン酸、リン酸及びポリリン酸から選ばれる一種以上の酸性のリン含有化合物と請求項2に記載の一種以上のヒンダートアミン光安定剤との反応によって調製される少なくとも一種の塩、

を含んでなるポリマー組成物。

## 【請求項4】

前記成分 (B) が、ポリカーボネート組成物の全重量に対して 0.05 ~ 0.15 重量 % の少なくとも一種の前記塩を含み、当該式中の R<sub>7</sub> が水素又はアルキルであって、かつ当該塩を形成するヒンダードアミン光安定剤化合物における塩基性の窒素原子の数に対する酸性のリン含有化合物におけるリン原子の数の比が、0.25 ~ 1.1 である、請求項 3 に記載のポリマー組成物。

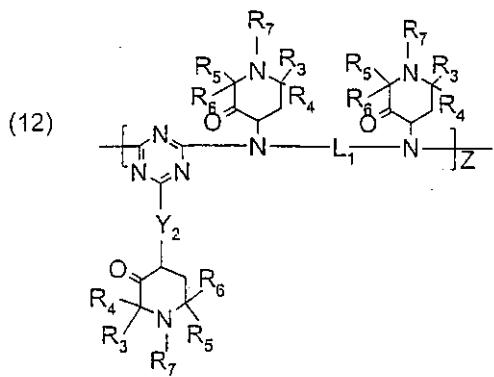
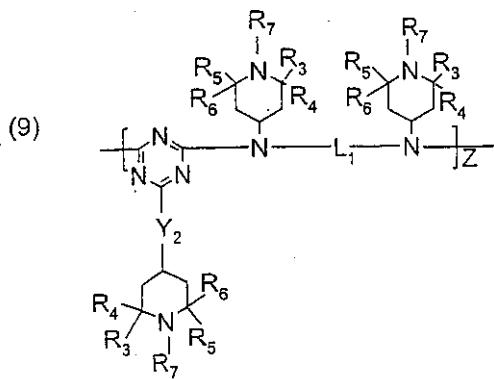
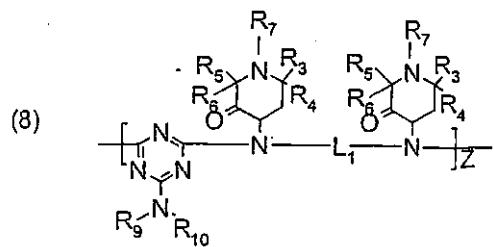
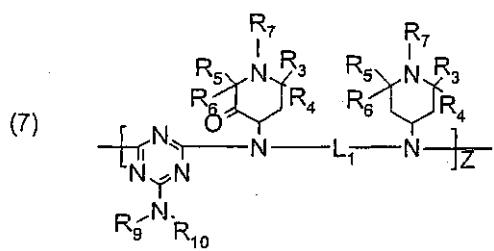
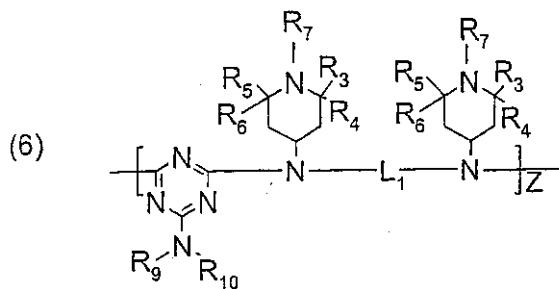
### 【請求項 5】

( A ) 少なくとも一種のポリカーボネート、及び

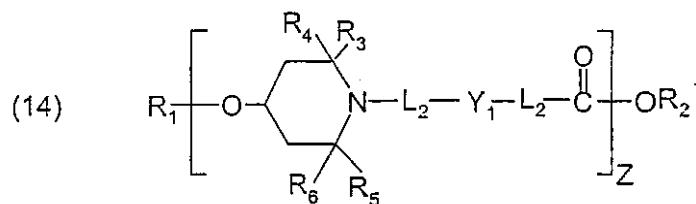
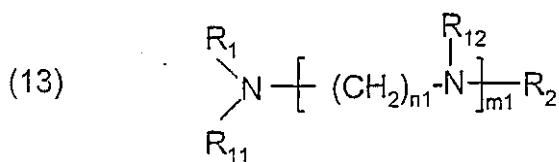
(B) ポリカーボネート組成物の全重量に対して0.01~0.25重量%の、亜リン酸と下式を有するヒンダートアミン光安定剤との反応によって調製される少なくとも一種の塩、

を含んでなるポリマー組成物。

【化 7】



【化8】



式中、

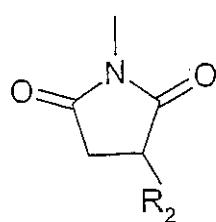
R<sub>1</sub>及びR<sub>2</sub>は、独立して、水素、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、置換C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキル、置換C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキル、ヘテロアリール、及びアリールから選ばれ、

R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>、及びR<sub>6</sub>は、独立して、水素、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、置換C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキル、置換C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキル、ヘテロアリール、及びアリールから選ばれ、

R<sub>7</sub>は、水素、-OR<sub>6</sub>、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、置換C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキル、置換C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキルから選ばれ、

R<sub>8</sub>は、水素、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、置換C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキル、置換C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキル、ヘテロアリール、アリール、-Y<sub>1</sub>-R<sub>1</sub>又は下式を有するスクシンイミド基から選ばれ、

【化9】



R<sub>9</sub>及びR<sub>10</sub>は、独立して、水素、C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、置換C<sub>1</sub>～C<sub>22</sub>のアルキル、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキル、及び置換C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキルから選ばれ、R<sub>9</sub>とR<sub>10</sub>とは集合して、それらが結合している窒素原子と環を形成する二価の基、例えばモルフォリノ、ピペリジノなどを表してもよく、

L<sub>1</sub>は、C<sub>2</sub>～C<sub>22</sub>のアルキレン、-(CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-Y<sub>1</sub>)<sub>1～3</sub>-CH<sub>2</sub>CH<sub>2</sub>-、C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のシクロアルキレン、アリーレン、又は-CO-L<sub>2</sub>-OC-から選ばれる二価の結合基であり、

$L_2$  は、  $C_1 \sim C_{22}$  のアルキレン、アリーレン、 $-(CH_2CH_2-Y_1)_1 \sim -(CH_2CH_2-$  及び  $C_3 \sim C_8$  のシクロアルキレンから選ばれ、

$Y_1$  は、  $-OC(O)-$ 、 $-NHC(O)-$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-N(R_1)-$  から選ばれ

$Y_2$  は、 $-O-$  又は  $-N(R_1)-$  から選ばれ、

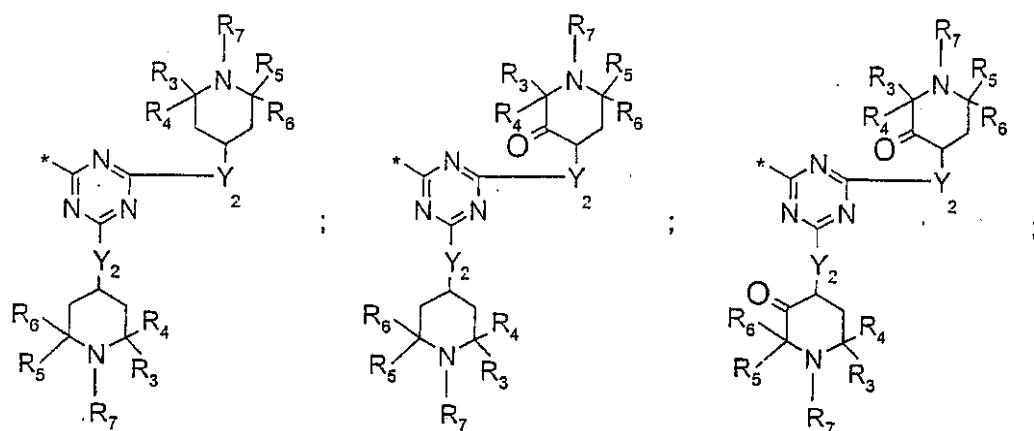
$Z$  は、約 20まで、好ましくは約 6までの正の整数であり、

$m_1$  は、0 ~ 約 10 から選ばれ、

$n_1$  は、2 ~ 約 12 から選ばれる正の整数であり、

$R_{11}$  及び  $R_{12}$  は、独立して、水素、 $C_1 \sim C_{22}$  のアルキル、置換  $C_1 \sim C_{22}$  のアルキル、 $C_3 \sim C_8$  のシクロアルキル、置換  $C_3 \sim C_8$  のシクロアルキル、ヘテロアリール、アリール、及び基 A から選ばれ、ここで、基 A は、以下の構造から選ばれ、

【化 10】



基 A の構造：\*は、結合の位置を示す。

式中、 $R_{11}$  及び  $R_{12}$  の少なくとも一つは、基 A であり、そして、HALS における塩基性の窒素原子の数に対する酸性のリン含有化合物におけるリン原子の数の比は、0.25 ~ 2 である。

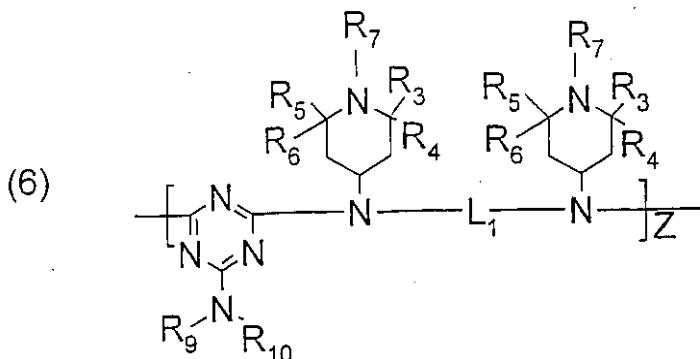
【請求項 6】

(A) 少なくとも一種のポリカーボネート、及び

(B) ポリカーボネート組成物の全重量に対して 0.01 ~ 0.25 重量% の、亜リン酸と下式を有するヒンダートアミン光安定剤との反応によって調製される少なくとも一種の塩、

を含んでなるポリマー組成物。

## 【化11】



式中、

$R_1$ は、独立して、水素、 $C_1 \sim C_{22}$ のアルキル、置換 $C_1 \sim C_{22}$ のアルキル、 $C_3 \sim C_8$ のシクロアルキル、置換 $C_3 \sim C_8$ のシクロアルキル、ヘテロアリール、及びアリールから選ばれ、

$R_3$ 、 $R_4$ 、 $R_5$ 、及び $R_6$ は、独立して、水素、 $C_1 \sim C_{22}$ のアルキル、置換 $C_1 \sim C_{22}$ のアルキル、 $C_3 \sim C_8$ のシクロアルキル、置換 $C_3 \sim C_8$ のシクロアルキル、ヘテロアリール、及びアリールから選ばれ、

$R_7$ は、水素又は $C_1 \sim C_{22}$ のアルキルから選ばれ、

$R_9$ 及び $R_{10}$ は、独立して、水素、 $C_1 \sim C_{22}$ のアルキル、置換 $C_1 \sim C_{22}$ のアルキル、 $C_3 \sim C_8$ のシクロアルキル、及び置換 $C_3 \sim C_8$ のシクロアルキルから選ばれ、 $R_9$ と $R_{10}$ の少なくとも一つは、水素以外の置換基であり、 $R_9$ と $R_{10}$ とは集合して、それらが結合している窒素原子と環を形成する二価の基を表してもよく、

$L_1$ は、 $C_2 \sim C_{22}$ のアルキレン、 $-(CH_2CH_2-Y_1)_{1 \sim 3}-CH_2CH_2-$ 、 $C_3 \sim C_8$ のシクロアルキレン、アリーレン、又は $-CO-L_2-O-C-$ から選ばれる二価の結合基であり、

$L_2$ は、 $C_1 \sim C_{22}$ のアルキレン、アリーレン、 $-(CH_2CH_2-Y_1)_{1 \sim 3}-CH_2CH_2-$ 及び $C_3 \sim C_8$ のシクロアルキレンから選ばれ、

$Y_1$ は、 $-O-C(O)-$ 、 $-NHC(O)-$ 、 $-O-$ 、 $-S-$ 、 $-N(R_1)-$ から選ばれ、そして

$Z$ は、約6までの正の整数である。

## 【請求項7】

成分(B)が、ポリカーボネート組成物の全重量に対して0.05~0.15重量%の前記塩を含み、前記式中の $R_3=R_4=R_5=R_6=R_7$ がメチルであり、 $L_1$ がヘキサメチレンであり、そして $(R_9)(R_{10})N-$ が集合してモルフォリノ基を表し、かつ当該塩を形成するヒンダードアミン光安定剤における塩基性の窒素原子の数に対する亜磷酸におけるリン原子の数の比が0.25~1.1である、請求項6に記載のポリマー組成物。

## 【請求項8】

成分(B)が、ポリカーボネート組成物の全重量に対して0.05~0.15重量%の少なくとも一種の前記塩を含み、かつ当該塩を形成するヒンダードアミン光安定剤における塩基性の窒素原子の数に対する亜磷酸におけるリン原子の数の比が0.25~0.6である、請求項7に記載のポリマー組成物。

## 【請求項9】

少なくとも一種のヒンダートアミン光安定剤が、1,3,5-トリアジン-2,4,6-トリアミン、 $N,N'$ -1,2-エタン-ジイル-ビス[[4,6-ビス-[ブチル-(1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジニル)アミノ]-1,3,5-トリアジン-2-イル]

アミノ] - 3, 1 - プロパンジイル]】ビス[N, N" - ジブチルN, N" ビス - (1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチル - 4 - ピペリジニル)である、請求項 1 に記載のポリマー組成物。

**【請求項 10】**

成分 (A) のポリエステルが、60 / 40 重量比のフェノール / テトラクロロエタン中 25 で測定して 0.4 ~ 0.8 dL / g のインヘレント濃度を有し、かつ、

(1) 80 ~ 100 モル % のテトラフタル酸残基及び 0 ~ 20 モル % のイソフタル酸残基を含むジ酸残基と、

(2) 55 ~ 80 モル % の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール残基及び 20 ~ 45 モル % のエチレングリコール残基を含むジオール残基とを含んでなり、そして、

成分 (B) が、ポリマー組成物の全重量に対して 0.05 ~ 0.15 重量 % の、ヒンダードアミン光安定剤における塩基性の窒素原子の数に対する酸性のリン含有化合物におけるリン原子の数の比が 0.25 ~ 1.1 である請求項 1 に規定される少なくとも一種の塩を含んでなる、

請求項 1 に記載のポリマー組成物。

**【請求項 11】**

成分 (A) のポリエステルが、60 / 40 重量比のフェノール / テトラクロロエタン中 25 で測定して 0.4 ~ 0.8 dL / g のインヘレント濃度を有し、かつ、

(1) 70 ~ 80 モル % のテトラフタル酸残基及び 30 ~ 20 モル % のイソフタル酸残基を含むジ酸残基と、

(2) 90 ~ 100 モル % の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール残基及び 0 ~ 10 モル % のエチレングリコール残基を含むジオール残基とを含んでなり、そして、

成分 (B) が、ポリマー組成物の全重量に対して 0.05 ~ 0.15 重量 % の、ヒンダードアミン光安定剤における塩基性の窒素原子の数に対する酸性のリン含有化合物におけるリン原子の数の比が 0.25 ~ 1.1 である請求項 1 に規定される少なくとも一種の塩を含んでなる、

請求項 1 に記載のポリマー組成物。

**【請求項 12】**

成分 (A) のポリエステルが、60 / 40 重量比のフェノール / テトラクロロエタン中 25 で測定して 0.4 ~ 0.8 dL / g のインヘレント濃度を有し、かつ、

(1) 少なくとも 90 モル % の 1, 4 - シクロヘキサンジカルボン酸残基と、

(2) 少なくとも 90 モル % の 1, 4 - シクロヘキサンジメタノール残基とを含んでなり、そして、

成分 (B) が、ポリマー組成物の全重量に対して 0.05 ~ 0.15 重量 % の、ヒンダードアミン光安定剤における塩基性の窒素原子の数に対する酸性のリン含有化合物におけるリン原子の数の比が 0.25 ~ 1.1 である請求項 1 に規定される少なくとも一種の塩を含んでなる、

請求項 1 に記載のポリマー組成物。

**【請求項 13】**

(A) 60 / 40 重量比のフェノール / テトラクロロエタン中 25 で測定して 0.4 ~ 1.2 dL / g のインヘレント濃度を有し、かつ、

(1) 少なくとも 50 モル % のテトラフタル酸残基を含むジ酸残基と、

(2) 少なくとも 50 モル % のエチレングリコール残基、シクロヘキサンジメタノール残基、又はそれらの混合物を含むジオール残基とを含み、更に、

当該ジ酸残基の全量が 100 モル % に等しく且つ当該ジオール残基の全量も 100 モル % に等しい場合に 10 ~ 200 ppm 重量の、少なくとも一種の Ti、Co 又は Mn 残留物を含有する少なくとも一種のポリエステル、及び、

(B) ポリマー組成物の全重量に対して 0.01 ~ 0.25 重量 % の、請求項 5 に記載の亜リン酸とヒンダードアミン光安定剤との反応によって調製される少なくとも一種の塩を含んでなる、ポリマー組成物。

**【手続補正 2】**

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0054

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0054】

実施例11～14 CHIMASSORB 119の亜リン酸塩

亜リン酸とChimassorb 119とを、表3に従って大きな乳鉢と乳棒に添加した。Chimassorb 119（登録商標）の構造は、「Journal of Materials Science」、第36巻、2001号、4421頁に開示されている。Chimassorb 119（登録商標）の化学名は、「Journal of Materials Science」、第36巻、2001号、4420頁の開示によると、1,3,5-トリアジン-2,4,6-トリアミン, N,N'-1,2-エタン-ジイル-ビス[[4,6-ビス-[ブチル-(1,2,2,6,6-ペントメチル-4-ペリジニル)アミノ]-1,3,5-トリアジン-2-イル]アミノ]-3,1-プロパンジイル]]ビス[N,N"-ジブチルN,N"ビス-(1,2,2,6,6-ペントメチル-4-ペリジニル)である。当該固体を微粉体に磨り潰して、これを真空オーブン中に、僅かに乾燥窒素を導入しつつ、70℃下に、一晩置いた。この固体を、放置して室温まで冷却し、再度、乳鉢と乳棒を用いて微粉体に磨り潰した。前記のようにして、それぞれ0.03重量%及び0.06重量%の亜リン酸塩を含有するブレンドを調製した。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0058

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0058】

実施例18 CYASORB UV-3346の亜リン酸塩

機械的攪拌機及び添加漏斗を備えた、清浄な乾燥した5Lの三つ口丸底フラスコに、200gのCyasorb UV-3346（HALS、Cytec Industries社により供給）と1kgのトルエンとを添加した。Cyasorb UV-3346は、一般に、前記で規定した式(6)（式中、R<sub>3</sub>=R<sub>4</sub>=R<sub>5</sub>=R<sub>6</sub>はメチルで、R<sub>7</sub>は水素、L<sub>1</sub>はヘキサメチレンで、そして(R<sub>9</sub>)(R<sub>10</sub>)N-は環化してモルフォリノ基を表す。）のアミン化合物に一致すると思われるポリマーのヒンダードアミン光安定剤である。当該混合物を、均一溶液が得られるまで攪拌した。清浄な乾燥した1Lビーカーに、30.69gの亜リン酸と200gのイソプロピルアルコールを添加した。当該混合物を、均一溶液が得られるまで攪拌した。この亜リン酸溶液を、添加漏斗に加え、そして約13mL/分の速度で、前記攪拌した反応容器に送入した。沈殿の生成が開始した。約30分間攪拌を続け、亜リン酸溶液の添加を完了した。当該反応混合物に、ヘプタン(1kg)を滴下速度で加えて、生成物を沈殿させた。固体物質を吸引濾過により収集し、100mLのヘプタンで二度洗浄し、その後、濾紙上で一晩乾燥させた。固体ケーキを、バラバラに砕き、これを12インチ×7インチ×2インチのアルミニウム製のパンに置き、真空オーブン中で、僅かに乾燥窒素を導入しつつ、70℃、約15mmHg下に、24時間乾燥して、230.05gの物質（100%の理論収率）を得た。前記のようにして、それぞれ0.03重量%及び0.06重量%の亜リン酸塩を含有するブレンドを調製した。