

(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2016-503083

(P2016-503083A)

(43) 公表日 平成28年2月1日(2016.2.1)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>CO8L 69/00 (2006.01)</b>	CO8L 69/00	4F100
<b>B32B 27/18 (2006.01)</b>	B32B 27/18	Z 4J002
<b>CO8K 5/521 (2006.01)</b>	CO8K 5/521	
<b>CO8K 3/24 (2006.01)</b>	CO8K 3/24	
<b>CO8K 5/00 (2006.01)</b>	CO8K 5/00	

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 31 頁)

(21) 出願番号	特願2015-548468 (P2015-548468)	(71) 出願人	504037346
(86) (22) 出願日	平成25年12月18日 (2013.12.18)		バイエル・マテリアルサイエンス・アクチ エンゲゼルシャフト
(85) 翻訳文提出日	平成27年7月24日 (2015.7.24)		Bayer Material Science AG
(86) 国際出願番号	PCT/EP2013/077020		ドイツ連邦共和国デー-51368レーフ エルターゼン
(87) 国際公開番号	W02014/095954	(74) 代理人	100117787
(87) 国際公開日	平成26年6月26日 (2014.6.26)		弁理士 勝沼 宏仁
(31) 優先権主張番号	12198349.8	(74) 代理人	100126099
(32) 優先日	平成24年12月20日 (2012.12.20)		弁理士 反町 洋
(33) 優先権主張国	欧州特許庁 (EP)	(74) 代理人	100120617
			弁理士 浅野 真理
		(74) 代理人	100187207
			弁理士 末盛 崇明

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 IR-反射性顔料を含む、弱く (Subduedly) 着色されたポリカーボネート成形化合物

## (57) 【要約】

IR-反射性顔料を含む、弱く着色されたポリカーボネート成形化合物

本発明は、弱く着色された、赤外線-反射性の、高い融成物安定性と、IR領域における高反射率の組合せを有し、良好な耐候性を有し、少なくとも一種のIR-反射性無機顔料及び少なくとも一種の安定剤を含んでなるポリカーボネート成形化合物に、本発明の重合体化合物の製造及び使用に、及びそこから製造された、特に多層構造の製品にも関する。本発明は、さらに、本発明の重合体化合物自体の、特に建物、自動車及び鉄道車両に使用する、屋根、パネル、カバー及びフレームの製造に使用する。

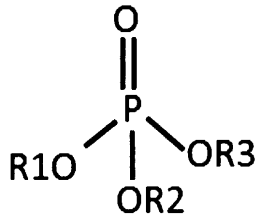
## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

高 I R - 反射性を有する重合体化合物であって、

- a) 他の成分と合わせて100重量%となる量の熱可塑性重合体と、
- b) 0.35 ~ 4.0重量%の量の、少なくとも一種の I R - 反射性顔料と、
- c) 下記の構造 ( I ) を有するホスファートをベースとする少なくとも一種の安定剤

## 【化 1】



10

(式中、R 1 ~ R 3 は、H、あるいは同一であるか、又は異なった、直鎖状、分岐鎖状、もしくは環状アルキル部分である)と、

を含んでなり、c)の含有量がゼロを超え、0.05重量%未満である、化合物。

## 【請求項 2】

下記の構成成分 d) ~ h)、即ち

- d) 前記化合物の総重量に対して、0.0重量% ~ 1.0重量%の一種以上の離型剤と、
- e) 前記化合物の総重量に対して、0.0重量% ~ 20.00重量%の一種以上の UV 吸収剤と、
- f) 前記化合物の総重量に対して、0.00重量% ~ 0.20重量%の、c)とは異なった一種以上の熱安定剤及び/又は加工安定剤と、
- g) 前記化合物の総重量に対して、0.0重量% ~ 5.0重量%の一種以上の他の添加剤と、
- h) 前記化合物の総重量に対して、0.0重量% ~ 1.0重量%の一種以上の、I R 領域で透明な着色剤と、を含んでなる、請求項 1 に記載の化合物。

20

## 【請求項 3】

それぞれの場合に、前記化合物の総重量に対して、下記の量の構成成分 b) ~ h)、即ち

- b) 0.4 ~ 3.0重量%の少なくとも一種の I R - 反射性顔料と、
- c) 0.00005重量% ~ 0.05重量%の少なくとも一種のホスファートをベースとする安定剤と、
- d) 前記化合物の総重量に対して、0.01重量% ~ 0.50重量%の一種以上の離型剤と、
- e) 前記化合物の総重量に対して、0.05重量% ~ 10.00重量%の一種以上の UV 吸収剤と、
- f) 前記化合物の総重量に対して、0.01重量% ~ 0.05重量%の、c)とは異なった一種以上の熱安定剤及び/又は加工安定剤と、
- g) 前記化合物の総重量に対して、0.01重量% ~ 1.00重量%の一種以上の他の添加剤と、
- h) 前記化合物の総重量に対して、0.01重量% ~ 1.00重量%の一種以上の、I R 領域で透明な着色剤と、を含んでなる、請求項 1 または 2 に記載の化合物。

30

## 【請求項 4】

前記熱可塑性重合体がポリカーボナートである、請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の化合物。

40

## 【請求項 5】

前記 I R - 反射性顔料が、

- Pigment Brown 29、酸化クロム鉄、(CAS12737-27-8) (Fe、Cr)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、
- 酸化クロムグリーンクロムグリーン黒赤鉄鉱 (CAS68909-79-5)、
- Pigment Green 50 (CAS68186-85-6) 酸化 Co / Ti / Ni / Zn、
- Pigment Blue 28 アルミン酸コバルトブルースピネル (CAS1345-16-0) 及び
- Pigment Blue 36 亜クロム酸コバルトブルースピネル (CAS68187-11-1)

からなる群から選択される、請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の化合物。

## 【請求項 6】

50

前記 I R - 反射性顔料が、

- Pigment Brown 29、酸化クロム鉄、(CAS12737-27-8) (Fe、Cr)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、
  - 酸化クロムグリーンクロムグリーン黒赤鉄鉱(CAS68909-79-5)、
- からなる群から選択される、請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の化合物。

【請求項 7】

成分 c) が、モノ-、ジ-、及びトリヘキシルホスファート、トリイソオクチルホスファート、及びトリノニルホスファートを含んでなる群から選択される、請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の化合物。

【請求項 8】

成分 c) が、トリイソオクチルホスファートである、請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載の化合物。 10

【請求項 9】

請求項 1 ~ 8 のいずれか 1 項に記載の化合物の一種から製造された成形品。

【請求項 10】

a) 請求項 1 ~ 8 のいずれか 1 項に記載の化合物から構成された基材層と、  
b) b 1) 透明性熱可塑性材料又は  
b 2) 透明性非熱可塑性材料  
から製造された少なくとも一つの外側層と、  
を含んでなる、多層構造。

【請求項 11】 20

配置が、対向する側面のそれぞれの上に外側層を有する、請求項 10 に記載の多層構造。

【請求項 12】

前記外側層が、前記基材層に直接結合している、請求項 10 又は 11 に記載の多層構造。

【請求項 13】

前記外側層が、層 c) を介して前記基材層に結合している、請求項 10 又は 11 に記載の多層構造。

【請求項 14】

前記外側層が、SiO<sub>2</sub> をベースとする耐引っかき性層である、請求項 10 ~ 13 のいずれか 1 項に記載の多層構造。 30

【請求項 15】

ベース層が、外側層としてシロキサンラッカーで、フローコーティング法により被覆されている、請求項 10 ~ 13 のいずれか 1 項に記載の多層構造。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、不透明に着色された、赤外線-反射性のポリカーボネート成形化合物であって、高熱安定性と、I R 領域における高反射率の組合せを有し、良好な耐候性を有し、かつ少なくとも一種の I R - 反射性無機顔料及び少なくとも一種の安定剤を含んでなるポリカーボネート成形化合物に関するものである。また、本発明の重合体化合物の製造及び使用に、及びそこから製造された、特に多層構造の製品にも関する。 40

【0002】

本発明は、さらに本発明の重合体化合物の、特に建物、自動車、及び鉄道車両の屋根、パネル、クラディング、フレームの製造のための使用に関する。

【0003】

さらに、本発明のポリカーボネート成形化合物は、熱可塑性プラスチック(例えばポリカーボネート又はポリメチル(メタ)アクリレート)の共押し出し層又は外側層として、もしくはバック射出成形における外側層として使用できる。

【0004】 50

ここで、再度、本発明の化合物は、適切な用途、例えば建設用途、例えば縦樋及び窓フレーム、自動車用途、例えば屋根モジュール、外装及び内装クラディング(パネル)、スポイラ、及びミラーハウジングにも使用できる。

【0005】

本発明の目的には、「不透明に着色された」の表現は、透明ではない材料を表す。特に、この表現は、光透過率が1%未満である成形化合物を表す。

【0006】

本発明は、さらに

a) a 1) 少なくとも一種の透明熱可塑性重合体、

a 2) 少なくとも一種の、

- Pigment Brown 29、酸化クロム鉄、(CAS12737-27-8) (Fe、Cr)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、
- 酸化クロムグリーンクロムグリーン黒赤鉄鉱(CAS68909-79-5)、
- Pigment Green 50 (CAS68186-85-6) 酸化Co/Ti/Ni/Zn、
- Pigment Blue 28 アルミン酸コバルトブルースピネル(CAS1345-16-0)及び
- Pigment Blue 36 亜クロム酸コバルトブルースピネル(CAS68187-11-1)

を含んでなる群から選択されたIR反射性顔料、

a 3) 少なくとも一種の安定剤

を含んでなる基材層と、

b) b 1) 透明な熱可塑性材料又は

b 2) 透明な非熱可塑性材料

から製造された少なくとも一つの外側層と、

を含んでなる多層構造に関する。

【0007】

外側層は、好ましくはSiO<sub>2</sub>をベースとする耐引っかき性層である。

【0008】

c) 多層構造は、所望によりプライマー層、好ましくは外側層と基材層との間に配置されたプライマー層を含んでなる。

【0009】

好ましい一実施態様では、多層構造は、層a)及びb)から構成され、その際、層a)及びb)は、互いに直接結合されている。

【0010】

別の好ましい実施態様では、多層構造は、層a)、b)、及びc)から構成され、その際、層a)とb)の間に層c)が配置される。

【0011】

本発明の目的には、好ましい実施態様を互いに組合せることもできる。

【0012】

本発明の化合物から得られる成形品は、従来の材料、例えば車両分野に使用するガラス、に対して多くの利点を有する。これらの中で、例えば破損の危険性の低下及び/又は重量の低下であり、自動車分野では、交通事故における乗客の安全性が非常に高くなり、燃料消費が低くなる。最後に、熱可塑性重合体を含んでなる材料は、成形性がより優れているために、より大きな設計の自由度を実質的に与える。

【0013】

自動車分野、鉄道車両分野、及び航空機分野、又はインフラストラクチャー分野で使用する外装部品に課せられるもう一つの必要条件は、長い寿命を有し、脆化が無く、色及び表面(光沢効果)に僅かな変化もないことである。もう一つの必要条件は、熱可塑性部品が十分な耐引っかき性を有することである。

【0014】

インフラストラクチャー分野又は輸送分野向けの構成要素は、比較的大きく、複雑な幾何学的構造を有する場合があります。熱可塑性材料は、射出成形製法、例えば特に射出-圧縮-成形法、で処理し、適切な成形品を与えるための十分な流動性を有することが必要であ

10

20

30

40

50

る。

【背景技術】

【0015】

I R 反射性顔料を含んでなる熱可塑性樹脂から製造された I R 反射性化合物は、原則的に、公知である。

【0016】

独国特許第102004058083号は、不透明に着色した、I R 領域で高反射性を有する P M M A をベースとする化合物を記載している。しかし、これらの化合物は、融成物安定性が不十分なため、ポリカーボネートに塗布できない。

【0017】

国際公開第2011/144429号パンフレットは、I R 領域で高い反射率を有し、好ましくは P M M A をベースとするコーティング系を記載しているが、I R 反射要素の選択と連携する安定剤に関する説明はない。

【0018】

独国特許第102007061052号は、様々な熱可塑性樹脂をベースとする特殊な着色剤から製造された化合物を記載しており、これらの化合物は、I R 領域における反射を示すが、使用する I R 反射性顔料は、ポリカーボネートでは効果的ではない。

【0019】

従って、先行技術は、どの I R 反射性添加剤がポリカーボネートに使用するのに適しているかが分からない。

【0020】

国際公開第2010/037071号パンフレットは、二酸化チタン及び他の着色剤を含んでなる重合体化合物を記載しているが、やはり顔料は、ポリカーボネートに使用するには適していない。

【0021】

独国特許第102006029613号は、I R 領域で高い反射率を有する P M M A 及び T P U からなるプラスチック複合体系を記載している。しかし、独国特許第102004058083号の場合と同様に、これらは、ポリカーボネート化合物には塗布できない。

【0022】

欧州特許第0548822号は、I R 反射性粒子を含んでなる化合物を含んでなる複合体系を記載している。これらの複合体系は、高二酸化チタン含有量を有する層を含んでなる。本願は、これらの複合体系とは関係ない。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0023】

従って、本発明の目的は、I R 領域で高い反射を示し、加工安定性が高く、融成物安定性も高いポリカーボネート成形化合物を提供することである。

【0024】

成形化合物及びそこから製造した構成部品は、その上、良好な知覚される黒色度を示し、このことは、自動車分野（屋根、パネル）又は消費者向けエレクトロニクス分野（T V フレーム等）における多くの用途で需要がある。特に望ましい特性は、知覚される深みのある黒さ、及びガラスのような深みのある光沢効果である。

【0025】

さらに、屋外用途では、高い耐候性を必要とする。

【0026】

本発明の別の目的は、上記の特性を有する多層熱可塑性構造の製造方法を提供することである。

【0027】

本発明の別の目的は、本発明の特性を有する、経済的に競争力のある I R 反射性化合物を提供することである。

10

20

30

40

50

## 【 0 0 2 8 】

この化合物の、780nmを超え、2300nmまでの I R 領域における反射率は、少なくとも20%、好ましくは30%である。

## 【 0 0 2 9 】

さらに、化合物及び成分は、可視領域における透過率（光透過率）が低く、好ましくは可視領域における透過率がゼロである。従って、これらの化合物は、完成した部分における不透明に着色された構造を与えることを意図している。

## 【 0 0 3 0 】

好ましくは、T D S 値は、5%未満、特に2%未満である。

## 【 課題を解決するための手段 】

## 【 0 0 3 1 】

本発明の請求項 1 に特許権請求する化合物が、これらの目的を達成することが分かった。

## 【 発明を実施するための形態 】

## 【 0 0 3 2 】

本発明の化合物は、下記の成分を含んでなる、即ち

a) 熱可塑性重合体、好ましくはポリカーボネート、コポリカーボネート、又はそれらの混合物、その際、熱可塑性重合体の添加された量が、成分 b) ~ c)、又は b) ~ h) と共に100重量%になるような量である、

b) 0.35 ~ 4.00重量%、好ましくは0.4 ~ 3.0重量%、及び特に好ましくは0.5 ~ 2.5重量%の量の、

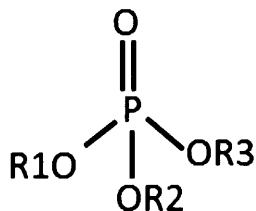
少なくとも一種の I R - 反射性無機顔料、好ましくは

- Pigment Brown 29、酸化クロム鉄、(CAS12737-27-8) (F e、C r)<sub>2</sub> O<sub>3</sub>、
- 酸化クロムグリーンクロムグリーン黒赤鉄鉱 (CAS68909-79-5)、
- Pigment Green 50 (CAS68186-85-6) 酸化 C o / T i / N i / Z n、
- Pigment Blue 28 アルミン酸コバルトブルースピネル (CAS1345-16-0) 及び
- Pigment Blue 36 亜クロム酸コバルトブルースピネル (CAS68187-11-1)
- 及びそれらの混合物

を含んでなる群から選択される、

c) 少なくとも一種の安定剤又は一種のホスファートをベースとする加工助剤。ホスファートは、下記の構造 (I) を有する。

## 【 化 1 】



## (1)

式中、R 1 ~ R 3 は、H、又は同一であるか、又は異なった、直鎖状、分岐鎖状、又は環状アルキル部分でよい。特に好ましくは C<sub>1</sub> ~ C<sub>13</sub> アルキル部分である。C<sub>1</sub> ~ C<sub>18</sub> アルキル部分は、例えばメチル、エチル、n-プロピル、イソプロピル、n-ブチル、sec-ブチル、tert-ブチル、n-ペンチル、1-メチルブチル、2-メチルブチル、3-メチルブチル、ネオペンチル、1-エチルプロピル、シクロヘキシル、シクロペンチル、n-ヘキシル、1,1-ジメチルプロピル、1,2-ジメチルプロピル、1,2-ジメチルプロピル、1-メチルペンチル、2-メチルペンチル、3-メチルペンチル、4-メチルペンチル、1,1-ジメチルブチル、1,2-ジメチルブチル、1,3-ジメチルブチル、2,2-ジメチルブチル、2,3-ジメチルブチル、3,3-ジメチルブチル、1-エチルブチル、2-エチルブチル、1,1,2-トリメチルプロピル、1,2,2-トリメチルプロピル、1-エチル-1-メチルプロピル、1-エチル-2-メチルプロピル、又は1-エ

10

20

30

40

50

チル-2-メチルプロピル、n-ヘプチル及びn-オクチル、ピナシル、アダマンチル、異性体状メンチル部分、n-ノニル、n-デシル、n-ドデシル、n-トリデシル、n-テトラデシル、n-ヘキサデシル又はn-オクタデシルである。

【0033】

本発明に好適なアルキルホスファートの例は、モノ-、ジ-、及びトリヘキシルホスファート、トリイソオクチルホスファート、及びトリノニルホスファートである。トリイソオクチルホスファート(トリス-2-エチルヘキシルホスファート)をアルキルホスファートとして使用するのが好ましい。様々なモノ-、ジ-、及びトリアルキルホスファートの混合物を使用することも可能である。

【0034】

アルキルホスファートの使用量は、化合物の総重量に対して、0.05重量%未満、好ましくは0.00005重量%~0.05000重量%、より好ましくは0.0002~0.05重量%、特に好ましくは0.0005重量%~0.03重量%、非常に好ましくは0.001~0.0120重量%である。

【0035】

他の所望により存在し得る成分は、

d) 化合物の総重量に対して、所望により0.0重量%~1.0重量%、好ましくは0.01重量%~0.50重量%、特に好ましくは0.01重量%~0.40重量%、の一種以上の離型剤、

e) 化合物の総重量に対して、所望により0.0重量%~20.00重量%、好ましくは0.05重量%~10.00重量%、より好ましくは0.10重量%~1.00重量%、さらに好ましくは0.10重量%~0.50重量%、特に好ましくは0.10重量%~0.30重量%の少なくとも一種以上のUV吸収剤、

f) 化合物の総重量に対して、0.00重量%~0.20重量%の一種以上の、好ましくはホスフィン、ホスファイト、及びフェノール系酸化防止剤、及びそれらの混合物の群から選択された、c)とは異なった熱安定剤及び/又は加工安定剤、その際

本発明の特殊な一実施態様では、熱安定剤及び加工安定剤の使用量は、0.01重量%~0.05重量%、好ましくは0.015重量%~0.040重量%であり、

g) 化合物の総重量に対して、0.0重量%~5.0重量%、好ましくは0.01重量%~1.00重量%の一種以上の他の添加剤、

h) 所望により0.0重量%~1.0重量%、好ましくは0.01重量%~1.0重量%、特に好ましくは0.02重量%~0.50重量%の一種以上の、IR領域で透明な着色剤である。

【0036】

好ましい一実施態様では、化合物は、成分a)~c)、より好ましくはa)~h)から構成される。

【0037】

好ましい一実施態様では、重合体化合物は、カーボンブラックを含まない。

【0038】

別の好ましい実施態様では、重合体化合物は、TiO<sub>2</sub>を含まない。

【0039】

別の好ましい実施態様では、重合体化合物は、IR吸収剤、特に無機IR吸収剤、例えばホウ化ランタン、タングステン酸塩及びアンチモン-酸化物-系又はアンチモン-スズ-酸化物-系、を含まない。

【0040】

特別な一実施態様では、本発明の化合物から得られる成形品は、ラッカーを塗布し、ガラス状の、深みのある光沢効果を達成し、所望により、より高い耐候性を達成することができる。

【0041】

好ましい一実施態様では、成分b)は、

- Pigment Brown 29、酸化クロム鉄、(CAS12737-27-8)(Fe、Cr)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、
- 酸化クロムグリーン(クロムグリーン黒赤鉄鉱)(CAS68909-79-5)、又は
- これら2種類の顔料の混合物

10

20

30

40

50

である。

【0042】

本説明で、好ましいとして記載した実施態様のそれぞれは、個々に、又はどのような望ましい組合せにおいても存在できる。

【0043】

本発明の化合物から得られる成形品は、従来のポリカーボネートから製造された、カーボンブラック又は他の着色剤を含むことが多い、暗色又は黒色組成と比較して、著しく高いIR-反射率を有する。

【0044】

本発明のポリカーボネート成形化合物及びそこから得られる成形品及び構成部品は、日光に当たった時の加熱が明らかに少なく、一方、機械的及び物理的特性は変わらずに良好なままである。

10

【0045】

本発明の化合物は、少なくとも一種の、ホスファートをベースとする特殊な安定剤を含んでなる。ホスファートをベースとする特殊な添加剤だけが好適であり、ポリカーボネートに関する技術における当業者に良く知られている安定剤、即ち、フェノール系酸化防止剤又はホスファイトをベースとする、もしくはホスフィンをベースとする酸化防止剤、が効果を示さなかったことは驚くべきことであった。

【0046】

本発明の化合物及び構成部品の利点は、熱吸収が比較的低いことと連携して、熱膨張が比較的低いことであり、これは、特に比較的大きな構成部品(フレーム及びパネル)における適合性及び公差の精度を増大させる。

20

【0047】

構成部品 a)

本発明のプラスチック化合物を製造するのに好適な熱可塑性材料は、ポリカーボネート、ポリエステルカーボネート、及びポリエステルである。ポリエステルの中で、とりわけ、原料であるシクロヘキサジメタノール及び/又はテトラメチルシクロブタンジオールから構成される種類が好ましい。ポリエステルカーボネートの中では、原料としてヒドロキノン及び/又はテレフタル酸及び/又はイソフタル酸から構成される種類が好ましい。ポリカーボネートの中では、公知の全てのポリカーボネートが好適である。これには、ホモポリカーボネート及びコポリカーボネートが含まれる。

30

【0048】

ゴム変性したビニル(共)重合体及び/又は他のエラストマーも、ブレンド成分として好適である。

【0049】

好適なポリカーボネートの平均分子量  $M_w$  は、ポリカーボネート校正でゲル透過クロマトグラフィーにより測定して、好ましくは10000~50000g/mol、より好ましくは14000~40000g/mol、特に16000~32000g/molである。ポリカーボネートは、文献中に広範囲に記載されている、界面プロセス又はメルトエステル交換反応プロセスにより製造するのが好ましい。

40

【0050】

界面プロセスに関しては、例えばH. Schnell, 「Chemistry and Physics of Polycarbonates」, Polymer Review, vol. 9, Interscience Publishers, New York 1964, pp.33ff .、Polymer Reviews, vol.10, 「Condensation Polymers by Interfacial and Solution Methods」, Paul W. Morgan, Interscience Publishers, New York 1965, chapter VIII, p.325、Dres. U. Grigo, K. Kircher and P.R. Muller 「Polycarbonate」 in Becker/Braun, Kunststoff-Handbuch [プラスチックハンドブック], volume 3/1, Polycarbonate, Polyacetale, Polyester, Celluloseester [ポリカーボネート、ポリアセタール、ポリエステル、セルロースエステル], Carl Hanser Verlag Munich, Vienna, 1992, pp.118-145, 及び欧州特許出願公開第0517044A1号を参照。

50



## 【 0 0 5 1 】

メルトエステル交換反応プロセスは、例えばEncyclopedia of Polymer Science, vol. 10(1969), Chemistry and Physics of Polycarbonates, Polymer Review, H. Schnell, vol. 9, John Wiley & Sons, Inc.(1964)、及び独国特許出願公告第DE-B1031512号及び米国特許第US-B6228973号にも記載されている。

## 【 0 0 5 2 】

ポリカーボネートは、好ましくはビスフェノール化合物と炭酸化合物、特にホスゲン、又はメルトエステル化プロセスの場合には、ジフェニルカーボネート又はジメチルカーボネートの反応により製造する。

## 【 0 0 5 3 】

ビスフェノール - A をベースとするホモポリカーボネート及びモノマービスフェノール - A と1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサンをベースとするコポリカーボネートが、特に好ましい。

## 【 0 0 5 4 】

ポリカーボネート合成に使用できる、これらの、及び他のビスフェノール化合物又はジオール化合物は、とりわけ、国際公開第2008037364A1号パンフレット(7頁、21行目~10頁、5行目)、欧州特許出願公開第1582549A1号([0018]~[0034])、国際公開第2002026862A1号パンフレット(2頁、20行目~5頁、14行目)、国際公開第2005113639A1号パンフレット(2頁、1行目~7頁、20行目)に開示されている。

## 【 0 0 5 5 】

ポリカーボネートは、直鎖状又は分岐鎖状でよい。分岐鎖状及び非分岐鎖状ポリカーボネートの混合物を使用することもできる。

## 【 0 0 5 6 】

ポリカーボネート用の好適な枝分かれ剤は、文献から公知であり、例えば米国特許第4185009号及び独国特許出願公開第2500092A1号(本発明の3,3-ビス(4-ヒドロキシアリールオキシインドール)、それぞれの場合に文書全文を参照)、独国特許出願公開第4240313A1号(3頁、33~55行目参照)、独国特許出願公開第19943642A1号(5頁、25~34行目参照)及び米国特許第5367044号、及び引用した文献も参照。

## 【 0 0 5 7 】

その上、使用するポリカーボネートは、固有の枝分かれを有することもでき、この場合、ポリカーボネートを製造する際に、枝分かれ剤を全く加えない。メルトポリカーボネートに関する欧州特許出願公開第1506249A1号に開示されているFries構造として公知の構造は、固有枝分かれの一例である。

## 【 0 0 5 8 】

その上、ポリカーボネートを製造する際に、連鎖停止剤することも可能である。使用する連鎖停止剤は、好ましくはフェノール、例えばフェノール、アルキルフェノール、例えばクレゾール及び4-tert-ブチルフェノール、クロロフェノール、プロモフェノール、クミルフェノール、又はそれらの混合物である。

## 【 0 0 5 9 】

成分 b)

成分 b) は、IR-反射性顔料を含んでなり、ここで好ましい顔料は、

- Pigment Brown 29、酸化クロム鉄、(CAS12737-27-8) (Fe、Cr)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、密度約5.2 g/cm<sup>3</sup> 及びかさ密度約0.70g/cm<sup>3</sup>、

- 酸化クロムグリーンクロムグリーン黒赤鉄鉱(CAS68909-79-5)、好ましくは密度5.2g/cm<sup>3</sup> 及びかさ密度0.78kg/L、及びpH約8.8

である。

## 【 0 0 6 0 】

その上、密度5.2g/cm<sup>3</sup> 及びかさ密度0.77kg/L及びpH約5.2の製品も公知であり、同様に特に好ましい。

- Pigment Green 50 (CAS68186-85-6) 酸化Co/Ti/Ni/Zn、

10

20

30

40

50

- Pigment Blue 28 アルミン酸コバルトブルースピネル (CAS1345-16-0) 及び
- Pigment Blue 36 亜クロム酸コバルトブルースピネル (CAS68187-11-1)、
- 及びそれらの混合物。

## 【0061】

Pigment Brown 29、酸化クロム鉄及び酸化クロムグリーンクロムグリーン黒赤鉄鉱をIR-反射性顔料として使用するのが特に好ましい。

## 【0062】

所望により他のIR-反射性顔料、例えば二酸化チタン、を使用することもできる。

## 【0063】

成分c)

本発明で好適なアルキルホスファートは、上記のアルキルホスファート、例えばモノ-、ジ-、及びトリヘキシルホスファート、トリイソオクチルホスファート、及びトリノニルホスファートである。アルキルホスファートとしては、トリイソオクチルホスファート(トリス-2-エチルヘキシルホスファート)を使用するのが好ましい。各種のモノ-、ジ-、及びトリアルキルホスファートの混合物を使用することもできる。

## 【0064】

成分d)

化合物は、好ましくは脂肪酸エステル、好ましくはステアリン酸エステルをベースとする、特に好ましくはペンタエリトリールをベースとする離型剤を含んでなる。

## 【0065】

特別な一実施態様では、ペンタエリトリールテトラステアラート(PETS)及び/又はグリセロールモノステアラート(GMS)を使用する。

## 【0066】

成分e)

本発明の化合物は、所望により紫外線吸収剤を含んでなる。本発明の重合体化合物に好適な紫外線吸収剤は、最小透過率が400nm未満、最大透過率が400nmを超える化合物である。この種の化合物及びその製造は、文献から公知であり、例えば欧州特許出願公開第0839623号、国際公開第96/15102号パンフレット、及び欧州特許出願公開第0500496号に記載されている。本発明の化合物に使用するのに特に好適な紫外線吸収剤は、ベンゾトリアゾール、トリアジン、ベンゾフェノン、及び/又はアリアル化されたシアノアクリラートである。

## 【0067】

特に好ましい一実施態様では、本発明の化合物がUV吸収剤を含んでなる。

## 【0068】

ここで好適な紫外線吸収剤の例は、ヒドロキシベンゾトリアゾール、例えば2-(3',5'-ビス(1,1-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(Tinuvin(登録商標)234、BASF AG、Ludwigshafen)、2-(2'-ヒドロキシ-5'-(tert-オクチル)フェニル)ベンゾトリアゾール(Tinuvin(登録商標)329、BASF AG、Ludwigshafen)、2-(2'-ヒドロキシ-3'-(2-ブチル)-5'-(tert-ブチル)フェニル)ベンゾトリアゾール(Tinuvin(登録商標)350、BASF AG、Ludwigshafen)、ビス(3-(2H-ベンズトリアゾール)-2-ヒドロキシ-5-tert-オクチル)メタン(Tinuvin(登録商標)360、BASF AG、Ludwigshafen)、2-(4,6-ジフェニル-1,3,5-トリアジン-2-イル)-5-(ヘキシルオキシ)フェノール(Tinuvin(登録商標)1577、BASF AG、Ludwigshafen)、及びベンゾフェノン2,4-ジヒドロキシベンゾフェノン(Chimassorb)(登録商標)22、BASF AG、Ludwigshafen)及び2-ヒドロキシ-4-(オクチルオキシ)ベンゾフェノン(Chimassorb)(登録商標)81、BASF AG、Ludwigshafen)、2-プロペン酸、2-シアノ-3,3-ジフェニル-、2,2-ビス[[[2-シアノ-1-オキソ-3,3-ジフェニル-2-プロペニル)オキシ]メチル]-1,3-プロパンジイルエステル(9CI)(Uvinul(登録商標)3030、BASF AG、Ludwigshafen)、2-[2-ヒドロキシ-4-(2-エチルヘキシル)オキシ]フェニル-4,6-ジ(4-フェニル)フェニル-1,3,5-トリアジン(CGX UVA 006、BASF AG、Ludwigshafen)、及びテトラエチル2,2'-(1,4-フェニレン-ジメチリデン)ビスマロナート(Hostavin(登録商標)B-Cap、Clariant AG)

10

20

30

40

50

である。

【0069】

これらの紫外線吸収剤の混合物を使用することもできる。

【0070】

成分 f)

好ましい一実施態様では、重合体化合物が、さらに少なくとも一種の他の熱安定剤又は加工安定剤を含んでなる。

【0071】

好ましい好適な化合物は、ホスファイト及びホスホナイト、及びホスフィンもそうである。例は、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、トリス(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トリ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トリールジホスファイト、ビス(2,4-ジ-tert-ブチルフェニル)ペンタエリトリールジホスファイト、ビス(2,4-ジ-tert-ブチルフェニル)ペンタエリトリ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)ペンタエリトリールジホスファイト、ジイソデシルオキシペンタエリトリ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)ペンタエリトリ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)ペンタエリトリールジホスファイト、トリ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'-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-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'-ビフェニル-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'-ビフェニル-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、ビス(2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェニル)ペンタエリトリールジホスファイト、トリフェニルホスフィン(TPP)、トリアルキルフェニルホスフィン、ビスジフェニルホスフィン

ノエタン、又はトリナフチルホスフィンである。トリフェニルホスフィン(TPP)、Irgafos(登録商標)168(トリス(2,4-ジ-tert-ブチルフェニル)ホスファイト)、及びトリス(ノニルフェニル)ホスファイト、又はそれらの混合物を使用するのが特に好ましい。

10

20

30

【0072】

さらに、フェノール系酸化防止剤、例えばアルキル化モノフェノール、アルキル化チオアルキルフェノール、ヒドロキノン、及びアルキル化ヒドロキノン、を使用することができる。Irganox(登録商標)1010(ペンタエリトリール3-(4-ヒドロキシ-3,5-ジ-tert-ブチルフェニル)プロピオネート、CAS:6683-19-8)及びIrganox 1076(登録商標)(2,6-ジ-tert-ブチル-4-(オクタデカンオキシカルボニルエチル)フェノール)を使用するのが特に好ましい。

40

【0073】

成分 g)

他の添加剤は、例えば欧州特許出願公開第0839623号、国際公開第96/15102号パンフレット、欧州特許出願公開第0500496号、又は「プラスチック添加剤ハンドブック(Plastics Additives Handbook)」Hans Zweifel, 第5版、Hanser Verlag, Munich、に記載されているような従来の重合体添加剤、例えば難燃剤、帯電防止剤、又は流動性改善剤、である。上記の成分 b) ~ f) 及び h) は、ここでは特に除外する。

【0074】

上記の量は、それぞれの場合に、重合体化合物全体に対してである。

【0075】

50

成分 h)

成分 h) の特に好適な着色剤は、アントラキノン、ペリノン、又はフタロシアニンをベースとする、又はそのような構造から誘導された着色剤である。特に好ましい着色剤は、国際公開第2012/080395A1号パンフレットに記載されている。さらに、着色剤としては、Macrolex Violet 3R (CAS 61951-89-1、Solvent Violet 36)、Macrolex Green 5B (CAS 128-80-3、Solvent Green 3、C.I.61565)、Amaplast Yellow GHS (CAS 13676-91-0、Solvent Yellow 163、C.I.58840)、Macrolex Orange 3G (CAS 6925-69-5、Solvent Orange 60、C.I.564100)、Macrolex Blue RR (CAS 32724-62-2、Solvent Blue 97、C.I.615290)、Keyplast Blue KR (CAS 116-75-6、Solvent Blue 104、C.I.61568)、Heliogen Blue types (例えばHeliogen Blue K 6911、CAS 147-14-8、Pigment Blue 15:1、C.I.74160)、Heliogen Green types (例えばHeliogen Green K 8730、CAS 1328-53-6、Pigment Green 7、C.I.74260)、及びMacrolex Green G (CAS 28198-05-2、Solvent Green 28、C.I.625580)を使用できる。

10

【0076】

これらの着色剤は、知覚される黒さの改良に貢献することができる。これらの着色剤は、IR-反射性顔料は、黒とは異なった固有の色を有することが多いので、知覚される黒さを改良することができる。

【0077】

IR領域で透明な着色剤は、IR-反射性顔料の固有の色を補償するために必要なことが多い2色の混合物で使用するのが好ましい。

20

【0078】

化合物は、光学特性、例えば深みのある光沢、又は加工の際の機械的特性を大きく変えることなく、熱可塑性樹脂に対して通常の温度、即ち300 を超える温度、例えば350、で加工可能でなければならない。

【0079】

上記の成分を含んでなる本発明の重合体化合物をベースとする成形品の製造は、組合せ、混合、及び均質化を経由して配合する良く知られている製法を使用し、特に均質化は、好ましくは融成物をせん断力にさらすことにより行う。このための好ましい方法では、ポリカーボナートを、適切であれば、重合体成形化合物の、好ましくはポリカーボナート成形化合物の、他の成分と、通常の融成物-混合装置、例えば単軸又は多軸押出機又はニーダー中で、通常の条件下における融成物で、緊密に混合し、押出し、及びペレット化する。材料を、適切な地点で、押出機の固体搬送区域に、又は重合体融成物中に、加える形態は、計量フィーダー又は補助供給装置を経由する個別ペレットの形態、又は計量ポンプによる高温の融成物の形態でよい。ペレットの形態におけるマスターバッチは、他の粒子状化合物と組合せ、プレミックスを与え、次いで一緒に、供給ホッパー又は補助供給装置により、押出機の固体搬送区域、又は押出機の重合体融成物中に導入する。配合装置は、二軸スクリュ-押出機、特に共回転するスクリュ-を備えた二軸スクリュ-押出機、であるのが好ましく、その際、二軸スクリュ-押出機のスクリュ-の長さ-直径比は、20対44、特に好ましくは28対40である。この型の二軸スクリュ-押出機は、均質化区域及び混合区域又は均質化と混合を組合わせた区域(この「均質化及び混合区域」に以下に使用する別の用語は、「ニーディング及び均質化区域」である)、及び所望により脱揮区域を含んでなり、絶対圧力  $p$  は好ましくは800mbar以下、より好ましくは500mbar以下、特に好ましくは200mbar以下に設定する。押出機内の混合物化合物の平均滞留時間は、好ましくは最長120s、より好ましくは最長80s、特に最長60sである。好ましい一実施態様では、押出機出口における重合体融成物又は重合体アロイの温度は、200 ~ 400 である。

30

40

【0080】

特別な一実施態様では、本発明の化合物から得られる成形品は、ラッカー塗装する。ここで、下記の層構造が好ましい。

1) 本発明の化合物を含んでなるベース層の少なくとも片側に、

・ポリシロキサンを基剤とし、

50

i. 少なくとも一種のUV吸収剤  
を含んでなる耐引っかけ性コーティング、その際

ii. 耐引っかけ性層の厚さは、2~15 $\mu\text{m}$ 、特に好ましくは4.0~12.0 $\mu\text{m}$ である。

2) 所望により、好ましい一実施態様では、ベース層の上に、ベース層と耐引っかけ性層の間に配置された、

i. 少なくとも一種のUV吸収剤  
を含んでなる、少なくとも一つの接着促進層(プライマー層)、その際、

ii. プライマー層の厚さは、0.3~8 $\mu\text{m}$ 、特に好ましくは1.1~4.0 $\mu\text{m}$ である。

別の好ましい実施態様では、接着促進層及び耐引っかけ性層は、ベース層の両側に塗布する。

#### 【0081】

ポリカーボネート化合物から成形品を製造する方法は、上記のポリカーボネート及び添加剤を含んでなる配合材料を製造すること、対応する成形品を製造すること、及び所望により一又は二工程コーティングプロセスで成形品のコーティングを行うこと含んでなる。

#### 【0082】

対応する成形品を製造するためのプロセスの設計は、下記の通りである。

I. 成分b)及びc)、及びMVRが、ISO 1133(300 で1.2kg負荷)により $6\text{cm}^3/(10\text{min}) \sim 35\text{cm}^3/(10\text{min})$ 、好ましくは $6\text{cm}^3/(10\text{min}) \sim 25\text{cm}^3/(10\text{min})$ 、より好ましくは $9\text{cm}^3/(10\text{min}) \sim 21\text{cm}^3/(10\text{min})$ であるポリカーボネートから製造され、所望により他の熱安定剤、及び

0.1~0.5重量%の、特に好ましくは0.2~0.45重量%のPET Sを含んでなる配合材料を製造すること。

II. Iから、適切な幾何学的構造を有する成形品の、好ましくは金型温度60~150 における製造。

III. 成形品を、フローモールドイング法により、

- a) PCとポリシロキサン系ラッカーの間の接着を促進できる有機結合材料、
- b) 少なくとも一種のUV吸収剤、
- c) 溶剤

を含んでなるプライマー溶液でコーティングし、室温で10~60分間、成分の空気乾燥を行い、100~135 で5~60分間硬化させる。

IV. 成形品を、フローコーティング法により、

- a)  $R_n Si X_{4-n}$  (nは、1~4である)のオルガノシリコン化合物、Rは、脂肪族 $C_1 \sim C_{10}$ 部分、好ましくはメチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル及びイソブチルであり、及びアリアル部分、好ましくはフェニル及び置換されたアリアル部分であり、XはH、脂肪族 $C_1 \sim C_{10}$ 部分、好ましくはメチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル及びイソブチルであり、及びアリアル部分、好ましくはフェニル及び置換されたアリアル部分であるか、又はOHもしくはCl、又はそれらの部分的な縮合物であり、

b) 無機微粒化合物、好ましくは $SiO_2$ 、

c) アルコールをベースとする溶剤、

d) 少なくとも一種のUV吸収剤

を含んでなるシロキサンラッカーで、コーティングし、室温で10~60分間、成分の空気乾燥を行い、100~140 で10~120分間硬化させる。

#### 【0083】

成形品は、好ましくは自動車分野におけるパネルとして、例えばA、B、又はCカラム用のクラディングとして、又は例えば屋根領域におけるガラス素子向けの、UもしくはO字形、又は長方形フレームとして使用する。装飾用パネルも含まれる。定義は、その上、ガラス単位間を光学的に接続する介在素子、及びAカラム及びBカラム間の介在素子を含む。これらの成形品は、マルチメディアハウジング、例えばTVフレームにも好適である。他の用途分野は、建築用ガラスの分野、例えば窓フレーム、屋根パネル、及び建物用

10

20

30

40

50

クラディング、に見られる。

【0084】

化合物を本発明の成形品に変換する方法の工程IIで使用できる方法の例は、スピニング、吹込み成形、熱成形、押出し、射出成形、及びホットプレスである。ここでは、射出成形又は射出 - 圧縮成形が好ましい。

【0085】

射出成形法は、当業者には公知であり、例えば「Handbuch SpritzgieBen」[射出成形ハンドブック]、Friedrich Johannaber/Walter Michaeli, Munich, Vienna: Hanser, 2001、ISBN 3-446-15632-1又は「Anleitung zum Bau von SpritzgieBwerkzeugen」[射出金型の構築入門]、Menges/Michaeli/Mohren, Munich, Vienna: Hanser, 1999、ISBN 3-446-21258-2に記載されている。

10

【0086】

射出成形は、ここでは射出成形法、多成分射出成形及び射出 - 圧縮 - 成形法を含む全てを含んでなる。

【0087】

単一及び多成分プラスチック成形品は、プラスチック加工で公知の射出成形及び射出 - 圧縮 - 成形変形を使用することにより、製造される。射出 - 圧縮 - 成形技術を使用しない従来の射出成形法は、比較的小さな成形品の製造に使用され、流動経路が短く、操作が中程度の射出圧を使用できる。従来の射出成形法では、プラスチック化合物が、2個の閉じた固定された型プレート間に形成されたキャビティ中に射出され、該キャビティ中で固化する。

20

【0088】

射出 - 圧縮 - 成形法は、従来の射出法とは、射出及び/又は固化手順に、型プレート移動が関与する点で異なっている。公知の射出 - 圧縮 - 成形法では、型プレートが、射出手順の前に、その後続く固化の際に起こる収縮を相殺し、必要な射出圧力を下げるために、幾分開いている。従って、予備的に拡大したキャビティが、射出手順の開始前に存在する。型のフラッシュ面により、型プレートが幾分開いていても、予備的に拡大したキャビティが十分に漏れ防止になる。プラスチック化合物は、該予備的に拡大したキャビティ中に射出され、この手順の際に、又はそれに続いて、型が移動して閉じる時に、プラスチック化合物は、圧力にさらされる。射出 - 圧縮 - 成形技術は、より複雑であるが、特に大きな表面及び薄い壁を有し、長い流動経路を有する成形品の製造には、好ましい、又は不可欠な場合さえある。これは、大きな成形品に必要な射出圧力を下げる唯一の方法である。射出 - 圧縮 - 成形は、さらに、高射出圧力により引き起こされる射出成形物中の応力及び/又はひずみを回避することができる。光学プラスチック製品は、応力の不在に対する比較的厳しい必要条件に適合する必要があるために、このことは、光学プラスチック製品、例えば自動車用ガラス(窓)の製造に特に重要である。

30

【0089】

プラスチック製品上に耐引っかき性コーティングを製造するための様々な公知の方法がある。例えばエポキシ-、アクリル-、ポリシロキサン-、コロイド状シリカゲル-、又は無機/有機-(ハイブリッド-系)-をベースとするラッカーを使用することができる。これらの系は、例えばディップコーティングプロセス、スピンコーティング、スプレープロセス、又はフローコーティングにより塗布することができる。硬化は、熱的に、又はUV照射により達成することができる。単層又は多層系を使用することができる。耐引っかき性コーティングは、例えば、直接、又はプライマーを使用する基材表面の調製後に、塗布することができる。さらに、耐引っかき性コーティングは、例えばプラズマ支援、例えばSiO<sub>2</sub>プラズマ、による重合方法により、塗布することができる。かぶり防止又は反射防止コーティングも、プラズマプロセスにより製造することができる。さらに、特定の射出成形法を使用し、得られた成形品に耐引っかき性コーティングを塗布することが可能であり、例えば表面処理したホイルが関与するイン-モールド-コーティングプロセスである。耐引っかき性層には様々な添加剤、例えばトリアゾール又はトリアジンから誘導されるUV吸

40

50

収剤がある。

【 0 0 9 0 】

ポリカーボナートの場合に耐引っかき性ラッカーの接着性を改良するために、紫外吸収剤を含んでなるプライマーを使用するのが好ましい。プライマーは、他の安定剤、例えばHALS系(立体障害アミンをベースとする安定剤)、接着促進剤、流動性助剤を含むことができる。それぞれの樹脂は、広範囲な材料から選択することができ、例えばUllmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry、第五版、Vol. A18, pp.368-426, VCH, Weinheim 1991に記載されている。ポリアクリレート、ポリウレタン、フェノール系システム、メラミン系システム、エポキシシステム、及びアルキドシステム、又はそれらのシステムの混合物を使用することができる。樹脂は、多くの場合、好適な溶剤 - アルコールが多い - に溶解させる。硬化は、室温で、又は選択した樹脂が必要とする場合、高温で行うことができる。50 ~ 140 の温度を使用するのが好ましく、大部分の溶剤を室温で除去できるような短時間の後が多い。市販されているシステムの例は、Momentive Performance Materialsから市販のSHP470、SHP470FT、及びSHP401である。この種のコーティングは、例えば米国特許第6350512B1号、米国特許第5869185号、欧州特許第1308084号、国際公開第2006/108520号パンフレットに記載されている。

10

【 0 0 9 1 】

耐引っかき性ラッカー(硬質-塗り材料)は、好ましくはシロキサンから構成され、好ましくはUV吸収剤を含んでなる。耐引っかき性ラッカーは、好ましくはディップコーティングプロセス又はフロープロセスにより塗布する。硬化は、温度50 ~ 140 で達成される。市販されているシステムの例は、Momentive Performance Materialsから市販のAS4000、SHC5020、及びAS4700である。この種システムは、例えば米国特許第5041313号、独国特許第3121385号、米国特許第5391795号、国際公開第2008/109072号パンフレットに記載されている。これらの材料は、大部分、酸又は塩基による触媒で、アルコキシ-及び/又はアルキルアルコキシシランの縮合により合成される。所望により、ナノ粒子を配合することができる。好ましい溶剤は、アルコール、例えばブタノール、イソプロパノール、メタノール、エタノール、及びそれらの混合物である。

20

【 0 0 9 2 】

プライマー/耐引っかき性コーティング組合せの代わりに、一成分ハイブリッドシステムを使用することができる。このシステムは、例えば欧州特許第0570165号又は国際公開第2008/071363号パンフレット又は独国特許第2804283号に記載されている。市販されているハイブリッドシステムの例は、Momentive Performance Materialsから市販のPHC587、PHC587C、及びUVHC3000である。

30

【 0 0 9 3 】

特に好ましい一実施態様では、ラッカーをフロー-コーティングプロセスで塗布するが、このプロセスは、高光学品質のコーティングした部品を与えるためである。

【 0 0 9 4 】

フロー-コーティングプロセスは、ホース又は適当なコーティングヘッドを使用して手作業で、又はフロー-コーティング-ロボットノズル及び所望によりスロットノズルにより通過の際に自動的に行うことができる。

40

【 0 0 9 5 】

構成部品は、吊るした状態で、又は適切なラック中に支えた状態で、塗装することができる。

【 0 0 9 6 】

比較的大きな、及び/又は3D構成部品の場合、塗装すべき部品は、吊るすか、又は適当なラック中に入れる。

【 0 0 9 7 】

小さな部品の場合、塗装は、手作業で行うことができる。この場合、コーティングを形成する液体プライマー溶液又はラッカー溶液は、シートの上に注ぎ、小さな部品の上側縁部から開始し、該シートの長さ方向で、シート上にラッカーを塗布した地点を、同時に、

50

シートの幅を横切って左から右へ移動させる。ラッカーを塗布したシートは、クランプから垂直に吊るした状態で、空気乾燥させ、それぞれの製造業者の指示に従って、硬化させる。

【0098】

本発明の多層構造は、特に好ましくは、自動車、鉄道車両、及び航空機におけるガラスモジュール用フレームとして使用することができる。他のフレーム部品も好ましい。

【0099】

本発明の多層構造は、例えば自動車分野における外装用の黒色パネルに好適である。これらの透明な部品は、例えばフレーム、ガラス部品、例えばガラス又はスライドルーフ又はヘッドランプを含む。深みのある光沢を持った黒色外観は、屋根、例えばパノラマルーフ、の全体がガラス製に見えるので、ガラス区域を大きく見せる。装飾パネルも、この材料から製造することができる。ガラス単位間を光学的に接続する介在素子、及び自動車分野におけるAカラム及びBカラム間の介在素子も含まれる。

10

【実施例】

【0100】

以下に本発明を、実施態様を参照しながら、より詳細に説明するが、他に指示が無い限り、ここに記載する測定方法は、本発明で対応する全ての変数に使用する。

【0101】

メルトポリユームレート

メルトポリユームレート(MVR)は、ISO 1133により、表中に記載する条件下で測定する。

20

【0102】

光透過率(Ty)

透過率測定は、Perkin Elmerから市販のLambda 900スペクトル光度計を使用し、ISO 13468-2による光度計球を使用して行った(即ち、拡散透過率及び直接透過率を測定することにより、総透過率を決定する)。

【0103】

それぞれの場合に3試料シートを測定に使用し、対応する平均値を、3シートから計算し、平均表面欠陥率を求めた。測定は、塗装していない試料シートで行った。

【0104】

光の可視領域(可視放射線)は、波長380~780nmの領域を含み、IR領域は、780nmを超え、2300nmの領域を含む。

30

【0105】

TDS値(太陽光直接透過率)及びRDS値(太陽光直接反射率)の測定

【0106】

透過率及び反射率測定は、Perkin Elmerから市販の光度計球を有するLambda 900スペクトル光度計で行った。全ての値は、320nmから2300nmを含む波長で、5nmの で測定した。

【0107】

「太陽光直接透過率」TDS及び「太陽光直接反射率」RDSは、ISO1387、計算方法協定「A」により計算した。

40

【0108】

知覚される黒色度

知覚される黒色度とは、試料が黒さの目視外観を有しており、背景を認識することは不可能であり、780nmにおける厚さ2mmの試料シートの透過率が0.01%未満(透過率測定に関しては上記参照)であれば、十分であると考えられる。

【0109】

試験試料の製造用材料

・直鎖状ビスフェノールAポリカーボナートペレット、末端基を有し、MVR9.5cm<sup>3</sup>/10minのフェノールをベースとする、300 、1.2kg負荷で測定(ISO1033により)、他の添加剤

50



を含まない、以下、「PC1」と呼ぶ。

・直鎖状ビスフェノールAポリカーボナート粉体、末端基を有し、MVR6cm<sup>3</sup>/10minのフェノールをベースとする、300、1.2kg負荷で測定(ISO1033により)、他の添加剤を含まない、以下、「PC2」と呼ぶ。

・直鎖状ビスフェノールAポリカーボナート、末端基を有し、MVR12cm<sup>3</sup>/10minのフェノールをベースとする、300、1.2kg負荷で測定(ISO1033により)、トリフェニレンホスフィン、及びベンゾトリアゾールをベースとするUV吸収剤、及び離型剤ペンタエリトリールテトラステアレート(CAS115-83-3)を含んでなる、以下、「PC3」と呼ぶ。PC3は、100ppmのトリイソオクチルホスファートも含んでなる。

・トリイソオクチルホスファート(トリス-2-エチルヘキシルホスファート、CAS31570-04-4)(TOF)、Lanxess(51369 Leverkusen、独国)から市販、を、本発明のホスファートをベースとする安定剤として使用した。

・Irgafos 168(トリス(2,4-ジ-tert-ブチルフェニル)ホスファイト、CAS31570-04-4)、及びこの場合、BASF(67056 Ludwigshafen、独国)を、本発明に従わない安定剤として使用した。

・BASF(67056 Ludwigshafen、独国)の製品Sicopal Black K 0095を、本発明の、酸化鉄クロム(Pigment Brown 29、CAS12737-27-8)をベースとするIR-反射性顔料として使用した。

・Shepherd(B-9230 Wetteren、ベルギー)の製品Black 10P922を、本発明の、酸化クロムグリーン(Pigment Green 17、CAS68909-79-5)をベースとするIR-反射性顔料として使用した。

・Shepherd(B-9230 Wetteren、ベルギー)の製品Black 30C940を、本発明の、酸化クロムグリーン(Pigment Green 17、CAS68909-79-5)をベースとするIR-反射性顔料として使用した。

・Shepherd(B-9230 Wetteren、ベルギー)の製品Black 376Aを、本発明に従わない、クロム鉄ニッケルスピネル(Pigment Black 30、CAS71631-15-7)をベースとするIR-反射性顔料として使用した。

・Shepherd(B-9230 Wetteren、ベルギー)の製品Black 444を、本発明に従わない、マンガンフェライトスピネル(Pigment Black 26、CAS68186-94-7)をベースとするIR-反射性顔料として使用した。

【0110】

#### 配合による熱可塑性重合体化合物の製造

重合体化合物は、KraussMaffei Berstorffから市販のZE25二軸スクリュウ押出機、胴温度260、融成物温度270、回転速度100rpm、処理量10kg/h、中で、例中に記載する成分の量を使用して、配合した。

【0111】

#### 試験試料の製造

ペレットを、真空中、120で5時間乾燥させ、次いで融成物温度300、及び型温度90で、Arburg 370射出成形機械で、25射出単位で加工し、直径80mm、厚さ2.0mmの光学ディスクを製造した。

【0112】

10

20

30

40

## 【表 1】

表 1 I R-反射性顔料を含むポリカーボネート化合物

	例 1 (比較)	例 2 (本発明)	例 3 (比較)
PC 1	95 重量%.	95 重量%.	95 重量%.
Sicopal Black K 0095	1.50 重量%.	1.50 重量%.	1.50 重量%
PC 2	3.50 重量%	3.49 重量%	3.47 重量%
TOF	-	0.01 重量%	-
Irgafos 168	-	-	0,03 重量%

10

## 【 0 1 1 3 】

## 【表 2】

表 2 例 1 及び 2 に対する融成物安定性 (M V R の測定)

	例 1 (比較)	例 2 (本発明)	例 3 (比較)
300°C; 5 分間	10.92	8.94	9.03
300°C; 20 分間	12.95	9.00	9.72
300°C; 30 分間	13.60	8.99	10.09
320°C; 5 分間	21.26	15.38	16.24
320 °C; 20 分間	24.51	15.42	18.22
320°C; 30 分間	25.50	15.61	19.62

20

30

## 【 0 1 1 4 】

本発明の化合物は、比較例よりも、特に高温において高い融成物安定性を有する。驚くべきことに、独国特許第102006029613号に記載されている、P M M Aをベースとする化合物に好適な処方物は、ポリカーボネートに塗布できなかった。ポリカーボネートに従来使用されている安定剤、例えばホスファイトをベースとする安定剤、例えばトリス(2,4-ジ-tert-ブチルフェニル)ホスファイト(Irgafos168)は、驚くべきことに、効果が低かった。

40

## 【 0 1 1 5 】

## 【表 3】

表 3 他の I R-反射性顔料を使用する処方物

	本発明の例 4	本発明の例 5	例 6 比較	例 7 比較
PC 3	95.0	95.0	95.0	95.0
PC 2	4.0	4.0	4.0	4.0
Shepherd Black 10P922	1.0	-	-	-
Shepherd Black 30C940	-	1.0	-	-
Shepherd Black 376A	-	-	1.0	-
Shepherd Black 444	-	-	-	1.0

10

20

## 【 0 1 1 6 】

## 【表 4】

表 4 例 2 ~ 7 から得た光学データ

	例 2	例 4	例 5	例 6	例 7
Ty (D65 10°) [%]	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
RDS [%]	20.2	17.6	18.1	6.2	10.7
TDS [%]	0.2	1.3	1.3	0.0	0.4

30

40

## 【 0 1 1 7 】

驚くべきことに、独国特許第102004058083号又は独国特許第102007061052号に、I R-反射に対して好適であるとして記載されている(及びPCに対して好適としても記載されている)I R-反射性顔料(例6)は、ポリカーボネートにおけるI R-反射に対して効果的ではないことが分かった。同じことが、国際公開第201003707号パンフレットに好適であるとして記載されている顔料(例7)にも当てはまる。やはり、驚くべきことに、この種の顔料は、ポリカーボネートにおいては効果的ではない。これと対照的に、例2、4、及び5における顔料タイプは、良好なI R-反射性を示す。

## 【 0 1 1 8 】

50

## 【表 5】

表 5 例 4～7 に対する融成物安定性 (MVR) の測定

	例 4	例 5	例 6	例 7
300°C; 5 分間	11.624	11.545	37.269	12.996
300°C; 20 分間	12.144	12.129	44.502	16.296
300°C; 30 分間	12.621	12.300	n.m.*	17.877

\*粘度が極端に低く、測定できなかった

## 【0119】

驚くべきことに、例 6 及び 7 における融成物安定性は、4 及び 5 におけるよりも著しく低かった。驚くべきことに、安定性は、ここでは効果的ではないことが立証された。

## 【0120】

これらの例から、安定性は、IR-反射性顔料の幾つかで効果的であること、従って、対応する顔料は、PC に使用するのに好適であることが明らかである。具体的に選択した顔料、及び安定剤化合物は、以前には公知ではなく、知り得る先行技術から推論することもできなかった。従って、暗着色したポリカーボネート及びそれぞれの、そこから得た高 IR-反射性成形品を理解することができる。

## 【0121】

## 【表 6】

表 6 ポリカーボネート化合物、例 2 と同様であるが、IR-反射性顔料濃度が異なる

	例 8 比較
PC 3	95.00 重量%
PC 2	4.97 重量%
Sicopal Black K0095	0.3 重量%

## 【0122】

10

20

30

## 【表 7】

表 7 光学特性(例 8)

	例 8
Ty (D65 10°) [%]	0.70
RDS [%]	16.9
TDS [%]	7.1

10

## 【0123】

低濃度の IR - 反射性顔料(例 8)は、比較的高い TDS 値をもたらす(TDS > 5)。低濃度の IR - 反射性顔料にも関わらず、反射率は例 2 における反射率と類似していることから、これは驚くべきことである。エネルギー透過は好ましくないので、特定濃度の IR - 反射性顔料を使用しなければならない。他の手段、例えば少量の吸収性顔料、例えばカーボンブラック又は IR 吸収剤の使用(TDS 値を下げるために)は、反射率を劇的に下げるので、好ましくない。従って、目的は、特定濃度の本発明の化合物によってのみ達成される。

20

## 【0124】

あるいは、特定の多層構造の選択により、高い反射率値を達成することが可能である。0.35重量%の含有量を有する本発明のプラスチック成形品化合物を、別の反射性層、例えば該プラスチック層の後ろに金属層がある場合、この目的のために使用することができる。

## 【0125】

下記の例 9 及び 10 は、反射率値が増加することにより、表面温度が低下することを示す。

30

## 【0126】

例 9 及び 10

試験試料(直径 80mm 及び厚さ 2.0mm の光学ディスク)の温度増加を、試験試料の上、距離 30cm に配置した 150W 赤外線ランプ(Infrared PAR 38E 150 W E27 230 V ICT、Philips、R95)で試験した。表面温度を、自己接着性センサー(中央に配置)により検出した。外界温度は 22、相対湿度は 33% であった。

## 【0127】

照射の 15 分後における初期温度及び表面温度を検出した。

## 【0128】

40

【表 8】

	初期表面温度	最終表面温度
例 9 (比較)  黒色顔料としてカーボン ブラック 0.08 重量% を含んでなるポリカーボ ナート	22.5 °C	73.5 °C
例 10 (本発明)  黒色顔料としてSicopal Black K 0095 を1.0重量% 及びTOFを0.01重量%を 含んでなる	23.2 °C	57.7 °C

10

20

## 【0129】

本発明の化合物を使用する試験試料の表面温度は、比較例のそれよりも著しく低いことが分かる。

## 【手続補正書】

【提出日】平成27年8月24日(2015.8.24)

## 【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】

高IR - 反射性を有する重合体化合物であって、

a) 他の成分と合わせて100重量%となる量のポリカーボナートと、

b) 0.35~4.0重量%の量の、少なくとも一種のIR - 反射性顔料であって、

- Pigment Brown 29、酸化クロム鉄、(CAS12737-27-8) (Fe、Cr)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、

- 酸化クロムグリーンクロムグリーン黒赤鉄鉱(CAS68909-79-5)、

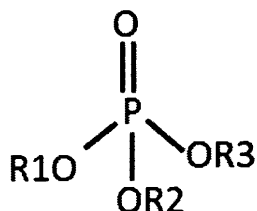
- Pigment Green 50 (CAS68186-85-6) 酸化Co/Ti/Ni/Zn、

- Pigment Blue 28アルミン酸コバルトブルースピネル(CAS1345-16-0)及び

- Pigment Blue 36亜クロム酸コバルトブルースピネル(CAS68187-11-1)

からなる群から選択されるIR - 反射性顔料と、

c) 下記の構造(I)を有するホスファートをベースとする少なくとも一種の安定剤



(式中、R 1 ~ R 3 は、H、あるいは同一であるか、又は異なった、直鎖状、分岐鎖状、もしくは環状アルキル部分である)と、  
を含んでなり、c)の含有量がゼロを超え、0.05重量%未満である、化合物。

【請求項 2】

下記の構成成分 d) ~ h)、即ち

- d) 前記化合物の総重量に対して、0.0重量% ~ 1.0重量%の一種以上の離型剤と、
- e) 前記化合物の総重量に対して、0.0重量% ~ 20.00重量%の一種以上のUV吸収剤と、
- f) 前記化合物の総重量に対して、0.00重量% ~ 0.20重量%の、c)とは異なった一種以上の熱安定剤及び/又は加工安定剤と、
- g) 前記化合物の総重量に対して、0.0重量% ~ 5.0重量%の一種以上の他の添加剤と、
- h) 前記化合物の総重量に対して、0.0重量% ~ 1.0重量%の一種以上の、IR領域で透明な着色剤と、を含んでなる、請求項 1 に記載の化合物。

【請求項 3】

- それぞれの場合に、前記化合物の総重量に対して、下記の量の構成成分 b) ~ h)、即ち
- b) 0.4 ~ 3.0重量%の少なくとも一種のIR - 反射性顔料と、
  - c) 0.00005重量% ~ 0.05重量%の少なくとも一種のホスファートをベースとする安定剤と、
  - d) 前記化合物の総重量に対して、0.01重量% ~ 0.50重量%の一種以上の離型剤と、
  - e) 前記化合物の総重量に対して、0.05重量% ~ 10.00重量%の一種以上のUV吸収剤と、
  - f) 前記化合物の総重量に対して、0.01重量% ~ 0.05重量%の、c)とは異なった一種以上の熱安定剤及び/又は加工安定剤と、
  - g) 前記化合物の総重量に対して、0.01重量% ~ 1.00重量%の一種以上の他の添加剤と、
  - h) 前記化合物の総重量に対して、0.01重量% ~ 1.00重量%の一種以上の、IR領域で透明な着色剤と、を含んでなる、請求項 1 または 2 に記載の化合物。

【請求項 4】

- 前記IR - 反射性顔料が、
- Pigment Brown 29、酸化クロム鉄、(CAS12737-27-8) (Fe、Cr)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、
  - 酸化クロムグリーンクロムグリーン黒赤鉄鉱(CAS68909-79-5)、
- からなる群から選択される、請求項 1 ~ 3のいずれか 1 項に記載の化合物。

【請求項 5】

成分 c) が、モノ-、ジ-、及びトリヘキシルホスファート、トリスオクチルホスファート、及びトリノニルホスファートを含んでなる群から選択される、請求項 1 ~ 4のいずれか 1 項に記載の化合物。

【請求項 6】

成分 c) が、トリスオクチルホスファートである、請求項 1 ~ 5のいずれか 1 項に記載の化合物。

【請求項 7】

請求項 1 ~ 6のいずれか 1 項に記載の化合物の一種から製造された成形品。

【請求項 8】

- a) 請求項 1 ~ 6のいずれか 1 項に記載の化合物から構成された基材層と、
- b) b 1) 透明性熱可塑性材料又は

b 2 ) 透明性非熱可塑性材料  
から製造された少なくとも一つの外側層と、  
を含んでなる、多層構造。

【請求項 9】

配置が、対向する側面のそれぞれの上に外側層を有する、請求項 8に記載の多層構造。

【請求項 10】

前記外側層が、前記基材層に直接結合している、請求項 8 又は 9に記載の多層構造。

【請求項 11】

前記外側層が、層 c ) を介して前記基材層に結合している、請求項 8 又は 9に記載の多層構造。

【請求項 12】

前記外側層が、 $\text{SiO}_2$  をベースとする耐引っかき性層である、請求項 8 ~ 11のいずれか 1 項に記載の多層構造。

【請求項 13】

ベース層が、外側層としてシロキサンラッカーで、フローコーティング法により被覆されている、請求項 8 ~ 11のいずれか 1 項に記載の多層構造。



## 【 国際調査報告 】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No PCT/EP2013/077020
---

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> INV. C08K5/00 C08K5/521 C08K3/00 ADD. C08L69/00		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C08K C08L		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) EPO-Internal, WPI Data		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2011/038842 A1 (BAYER MATERIALSCIENCE AG [DE]; WEHRMANN ROLF [DE]; HEUER HELMUT-WERNER) 7 April 2011 (2011-04-07) page 1, paragraph 2 - paragraph 3 page 3, paragraph 2 - page 4, paragraph 3 page 6, paragraph 4; claims 1-6, 13-15 -----	1,4-10
Y	WO 2011/144429 A1 (EVONIK ROEHM GMBH [DE]; CLAMER ELISABETH [DE]; ENDERS MICHAEL [DE]; NE) 24 November 2011 (2011-11-24) cited in the application page 7, paragraph 3 page 9, line 15 - page 11, line 20; claims 1,3,4,11; example 2 ----- -/--	1,4-10
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents : "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
19 February 2014		26/02/2014
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
		Engel, Hermann

5

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/EP2013/077020

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 1 857 424 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO LTD [JP]) 21 November 2007 (2007-11-21) page 2, line 47 - line 51; examples; table 1 paragraph [0022]; claims 1-3,5 -----	1-3,7-12
A	DE 20 2012 005548 U1 (AUTOMOTIVE LIGHTING REUTLINGEN [DE]) 2 July 2012 (2012-07-02) paragraph [0033]; claims 1,4,7 -----	1,4,9,10
A	WO 2007/067462 A1 (GEN ELECTRIC [US]; KUVSHINNIKOVA OLGA I [US]; STAFIE NELA [NL]; PATEL) 14 June 2007 (2007-06-14) page 21, paragraph 3 - page 22, paragraph 6; claims 1,7,8,11-13,18,19; examples; tables -----	1,4-6,9
A	EP 0 205 192 A1 (TEIJIN CHEMICALS LTD [JP]) 17 December 1986 (1986-12-17) claims 1-5 -----	1,4,9

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2013/077020

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 2011038842 A1	07-04-2011	CN 102575063 A	11-07-2012
		DE 102009043510 A1	31-03-2011
		EP 2483344 A1	08-08-2012
		JP 2013506720 A	28-02-2013
		KR 20120090051 A	16-08-2012
		TW 201122018 A	01-07-2011
		US 2012208936 A1	16-08-2012
		WO 2011038842 A1	07-04-2011
WO 2011144429 A1	24-11-2011	CA 2799828 A1	24-11-2011
		CN 102844184 A	26-12-2012
		DE 102010029169 A1	24-11-2011
		EP 2571687 A1	27-03-2013
		JP 2013532076 A	15-08-2013
		KR 20130093509 A	22-08-2013
		SG 184788 A1	29-11-2012
		TW 201213118 A	01-04-2012
		US 2013011662 A1	10-01-2013
		WO 2011144429 A1	24-11-2011
EP 1857424 A1	21-11-2007	AU 2006219485 A1	08-09-2006
		BR P10607698 A2	16-03-2010
		CA 2595046 A1	08-09-2006
		CN 101128403 A	20-02-2008
		EP 1857424 A1	21-11-2007
		JP 2006240893 A	14-09-2006
		KR 20070106619 A	02-11-2007
		RU 2379196 C2	20-01-2010
		US 2009162671 A1	25-06-2009
		WO 2006092923 A1	08-09-2006
DE 202012005548 U1	02-07-2012	DE 202012005548 U1	02-07-2012
		EP 2672170 A2	11-12-2013
WO 2007067462 A1	14-06-2007	AT 496964 T	15-02-2011
		AU 2006322112 A1	14-06-2007
		BR P10619441 A2	04-10-2011
		CN 101336268 A	31-12-2008
		EP 1957568 A1	20-08-2008
		JP 5107932 B2	26-12-2012
		JP 2009518515 A	07-05-2009
		KR 20080082962 A	12-09-2008
		US 2007129470 A1	07-06-2007
		US 2007129482 A1	07-06-2007
WO 2007067462 A1	14-06-2007		
EP 0205192 A1	17-12-1986	AU 577950 B2	06-10-1988
		AU 5871686 A	15-01-1987
		CA 1279941 C	05-02-1991
		DE 3665474 D1	12-10-1989
		EP 0205192 A1	17-12-1986
		JP H0123498 B2	02-05-1989
		JP 561287954 A	18-12-1986
		US 4762873 A	09-08-1988
		ZA 8604473 A	25-02-1987

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2013/077020

<b>A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES</b> INV. C08K5/00 C08K5/521 C08K3/00 ADD. C08L69/00		
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC		
<b>B. RECHERCHIERTE GEBIETE</b> Recherchiertes Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) C08K C08L		
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		
<b>C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN</b>		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	WO 2011/038842 A1 (BAYER MATERIALSCIENCE AG [DE]; WEHRMANN ROLF [DE]; HEUER HELMUT-WERNER) 7. April 2011 (2011-04-07) Seite 1, Absatz 2 - Absatz 3 Seite 3, Absatz 2 - Seite 4, Absatz 3 Seite 6, Absatz 4; Ansprüche 1-6, 13-15 -----	1,4-10
Y	WO 2011/144429 A1 (EVONIK ROEHM GMBH [DE]; CLAMER ELISABETH [DE]; ENDERS MICHAEL [DE]; NE) 24. November 2011 (2011-11-24) in der Anmeldung erwähnt Seite 7, Absatz 3 Seite 9, Zeile 15 - Seite 11, Zeile 20; Ansprüche 1,3,4,11; Beispiel 2 ----- -/--	1,4-10
<input checked="" 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 19. Februar 2014		Absendedatum des internationalen Recherchenberichts 26/02/2014
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 Engel, Hermann

5

Formblatt PCT/ISA/210 (Blatt 2) (April 2005)

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2013/077020

C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 1 857 424 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO LTD [JP]) 21. November 2007 (2007-11-21) Seite 2, Zeile 47 - Zeile 51; Beispiele; Tabelle 1 Absatz [0022]; Ansprüche 1-3,5 -----	1-3,7-12
A	DE 20 2012 005548 U1 (AUTOMOTIVE LIGHTING REUTLINGEN [DE]) 2. Juli 2012 (2012-07-02) Absatz [0033]; Ansprüche 1,4,7 -----	1,4,9,10
A	WO 2007/067462 A1 (GEN ELECTRIC [US]; KUVSHINNIKOVA OLGA I [US]; STAFIE NELA [NL]; PATEL) 14. Juni 2007 (2007-06-14) Seite 21, Absatz 3 - Seite 22, Absatz 6; Ansprüche 1,7,8,11-13,18,19; Beispiele; Tabellen -----	1,4-6,9
A	EP 0 205 192 A1 (TEIJIN CHEMICALS LTD [JP]) 17. Dezember 1986 (1986-12-17) Ansprüche 1-5 -----	1,4,9

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2013/077020

Im Recherchenbericht angeführtes Patentedokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 2011038842 A1	07-04-2011	CN 102575063 A	11-07-2012
		DE 102009043510 A1	31-03-2011
		EP 2483344 A1	08-08-2012
		JP 2013506720 A	28-02-2013
		KR 20120090051 A	16-08-2012
		TW 201122018 A	01-07-2011
		US 2012208936 A1	16-08-2012
		WO 2011038842 A1	07-04-2011
WO 2011144429 A1	24-11-2011	CA 2799828 A1	24-11-2011
		CN 102844184 A	26-12-2012
		DE 102010029169 A1	24-11-2011
		EP 2571687 A1	27-03-2013
		JP 2013532076 A	15-08-2013
		KR 20130093509 A	22-08-2013
		SG 184788 A1	29-11-2012
		TW 201213118 A	01-04-2012
		US 2013011662 A1	10-01-2013
		WO 2011144429 A1	24-11-2011
EP 1857424 A1	21-11-2007	AU 2006219485 A1	08-09-2006
		BR P10607698 A2	16-03-2010
		CA 2595046 A1	08-09-2006
		CN 101128403 A	20-02-2008
		EP 1857424 A1	21-11-2007
		JP 2006240893 A	14-09-2006
		KR 20070106619 A	02-11-2007
		RU 2379196 C2	20-01-2010
		US 2009162671 A1	25-06-2009
		WO 2006092923 A1	08-09-2006
DE 202012005548 U1	02-07-2012	DE 202012005548 U1	02-07-2012
		EP 2672170 A2	11-12-2013
WO 2007067462 A1	14-06-2007	AT 496964 T	15-02-2011
		AU 2006322112 A1	14-06-2007
		BR P10619441 A2	04-10-2011
		CN 101336268 A	31-12-2008
		EP 1957568 A1	20-08-2008
		JP 5107932 B2	26-12-2012
		JP 2009518515 A	07-05-2009
		KR 20080082962 A	12-09-2008
		US 2007129470 A1	07-06-2007
		US 2007129482 A1	07-06-2007
		WO 2007067462 A1	14-06-2007
EP 0205192 A1	17-12-1986	AU 577950 B2	06-10-1988
		AU 5871686 A	15-01-1987
		CA 1279941 C	05-02-1991
		DE 3665474 D1	12-10-1989
		EP 0205192 A1	17-12-1986
		JP H0123498 B2	02-05-1989
		JP 561287954 A	18-12-1986
		US 4762873 A	09-08-1988
		ZA 8604473 A	25-02-1987

## フロントページの続き

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, 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, LT, 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

(72) 発明者 アレクサンダー、マイヤー  
ドイツ連邦共和国デュッセルドルフ、ハインリヒ - パルブレール - ベーク、4 2

(72) 発明者 イェルク、ライヒェナウアー  
ドイツ連邦共和国クレーフェルト、ライトベーク、5 4

(72) 発明者 ラファエル、オーザー  
ドイツ連邦共和国クレーフェルト、アン、クラインヒュッテン、6

F ターム(参考) 4F100 AA20D AK01A AK01B AK01C AK45A AL05A BA04 BA10A BA10C BA10D  
CA05A CA07A CA13A EH46 GB32 JB16A JB16B JD10A JK09D JK12D  
JL09 JN01C  
4J002 AA011 CG001 DE187 EE039 EJ019 EU179 EW046 EW069 EW139 FD020  
FD036 FD039 FD059 FD097 FD100 FD130 FD168 FD207 GF00 GL00  
GN00