

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号  
特許第7503545号  
(P7503545)

(45)発行日 令和6年6月20日(2024.6.20)

(24)登録日 令和6年6月12日(2024.6.12)

(51)国際特許分類

F I

C 0 8 L 101/00 (2006.01)	C 0 8 L 101/00	
C 0 8 J 3/20 (2006.01)	C 0 8 J 3/20	C C E Y
C 0 8 J 3/22 (2006.01)	C 0 8 J 3/22	
C 0 8 K 5/08 (2006.01)	C 0 8 K 5/08	
C 0 8 K 5/23 (2006.01)	C 0 8 K 5/23	

請求項の数 34 (全24頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2021-522365(P2021-522365)  
 (86)(22)出願日 令和1年10月25日(2019.10.25)  
 (65)公表番号 特表2022-512799(P2022-512799 A)  
 (43)公表日 令和4年2月7日(2022.2.7)  
 (86)国際出願番号 PCT/EP2019/079147  
 (87)国際公開番号 WO2020/084108  
 (87)国際公開日 令和2年4月30日(2020.4.30)  
 審査請求日 令和4年10月19日(2022.10.19)  
 (31)優先権主張番号 1859963  
 (32)優先日 平成30年10月26日(2018.10.26)  
 (33)優先権主張国・地域又は機関 フランス(FR)

(73)特許権者 510288530  
 トリンゼオ ヨーロッパ ゲゼルシャフト  
 ミット ベシュレンクテル ハフツング  
 スイス国, 8 8 0 8 プフェフィコーン  
 , グバットシュトラッセ 1 5  
 (74)代理人 110002077  
 園田・小林弁理士法人  
 (72)発明者 アンドレ, ブノワ  
 フランス国 2 7 4 7 0 セルキニー,  
 ルート デュ リルサン, アルケマ フラ  
 ンス - セルダト  
 (72)発明者 キュルエル, シルヴァン  
 フランス国 2 7 4 7 0 セルキニー,  
 ルート デュ リルサン, アルケマ フラ  
 ンス - セルダト

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 粒子及び着色剤を含むポリマー組成物、その調製方法及びその使用

(57)【特許請求の範囲】

【請求項 1】

- a) ポリマー P 1、
- b) 1 μm から 1 0 0 μm の間の重量平均粒径を有するポリマー粒子 P P 1、
- c) 着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub>

を含むポリマー組成物 P C 1 であって、

着色剤が、組成物 P C 1 において、n > 1 である着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub> の混合物であること及び着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub> が、2, 4 - ジヒドロ - 5 - メチル - 2 - フェニル - 4 - (フェニルアゾ) - 3 H - ピラゾール - 3 - オン; 1 2 H - フタロペリン - 1 2 - オン、C A S 番号 [ 6 9 2 5 - 6 9 - 5 ] ; 8 , 9 , 1 0 , 1 1 - テトラクロロ - 1 2 H - フタロペリン - 1 2 - オン; 3 - ヒドロキシ - N - ( o - トリル) - 4 - [ ( 2 , 4 , 5 - トリクロロフェニル) アゾ ] ナフタレン - 2 - カルボキサミド; 1 , 4 - ジアミノ - 2 , 3 - ジフェノキシアントラキノン; 1 - ヒドロキシ - 4 - ( p - トリルアミノ) アントラセン - 9 , 1 0 - ジオン; 1 , 4 - ビス ( 2 , 4 , 6 - トリメチルアニリノ) - 9 , 1 0 - アントラキノン; 1 , 4 - ビス ( p - トリルアミノ) アントラキノンから選択されることを特徴とするポリマー組成物 P C 1。

【請求項 2】

ポリマー P 1 が、(メタ)アクリルポリマー A P 1 であることを特徴とする、請求項 1 に記載のポリマー組成物 P C 1。

【請求項 3】

着色剤の混合物が灰色を有することを特徴とする、請求項 1 又は 2 に記載のポリマー組成物 P C 1。

【請求項 4】

着色剤の混合物が、C I E L A B システムにおける以下の値： $20 < L^* < 80$ 、 $-20 < a^* < 20$ 、 $-20 < b^* < 20$ を有することを特徴とする、請求項 1 から 3 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 P C 1。

【請求項 5】

着色剤の混合物がポリマー P 1 又は (メタ) アクリルポリマー A P 1 のみとブレンドされた場合、400 nm - 700 nm の波長間隔において均質な規格 A S T M D 1 0 0 3 に従って測定される光透過率を得ることを特徴とする、請求項 1 から 4 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 P C 1。

10

【請求項 6】

着色剤の混合物がポリマー P 1 又は (メタ) アクリルポリマー A P 1 のみとブレンドされた場合、400 nm - 700 nm の波長間隔において 10 % から 30 % の間の規格 A S T M D 1 0 0 3 に従って測定される光透過率を得るように、前記組成物中の着色剤の混合物の量が選択されることを特徴とする、請求項 1 から 4 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 P C 1。

【請求項 7】

着色剤 C A<sub>1</sub> から C A<sub>n</sub> が着色剤 C A<sub>1</sub> から C A<sub>n</sub> の混合物であり、値 n が  $1 < n < 10$  であることを特徴とする、請求項 1 から 6 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 P C 1。

20

【請求項 8】

着色剤 C A<sub>1</sub> から C A<sub>n</sub> が、メタン、ピラゾロン、キノフタロン、ペリノン、アゾ、アントラキノン、クマリンの誘導体であることを特徴とする、請求項 1 から 7 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 P C 1。

【請求項 9】

光透過率が、着色剤 C A<sub>1</sub> から C A<sub>n</sub> を含み、厚さ 2 mm を有する (メタ) アクリルポリマー A P 1 のシートでは、400 nm - 700 nm の波長間隔において、5 % から 40 % の間であるように、着色剤 C A<sub>1</sub> から C A<sub>n</sub> が選択されることを特徴とする、請求項 1 から 8 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 P C 1。

【請求項 10】

光透過率の変動が、絶対値の 30 % 未満の間隔で変動することを特徴とする、請求項 9 に記載のポリマー組成物 P C 1。

30

【請求項 11】

着色剤 C A<sub>1</sub> から C A<sub>n</sub> は、1 つの着色剤 C A<sub>1</sub> が、赤又は黄色又はオレンジ又は緑又は青又は紫であり、他の着色剤 C A<sub>2</sub> が、赤又は黄色又はオレンジ又は緑又は青又は紫であるが、着色剤 C A<sub>1</sub> とは異なる色を有するように選択され；可能性のあるさらに別の着色剤 C A<sub>3</sub> が、赤又は黄色又はオレンジ又は緑又は青又は紫であるが、着色剤 C A<sub>1</sub> 及び C A<sub>2</sub> とは異なる色を有するように選択され；着色剤 C<sub>n</sub> まで同様に選択される、請求項 1 から 10 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 P C 1。

【請求項 12】

n が 2 から 9 の間であることを特徴とする、請求項 1 から 11 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 P C 1。

40

【請求項 13】

n が 2 から 6 の間であることを特徴とする、請求項 1 から 11 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 P C 1。

【請求項 14】

ポリマー組成物 P C 1 中の着色剤 C A<sub>1</sub> から C A<sub>n</sub> の量が、ポリマー P 1 に対して 10 重量 ppm から 10000 重量 ppm の間であることを特徴とする、請求項 1 から 13 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 P C 1。

【請求項 15】

50

ポリマー組成物 P C 1 が、ポリマー組成物 P C 1 中にすでに存在する着色剤 C A<sub>1</sub> から C A<sub>n</sub> のいずれかとも異なる、少なくとも 1 つの追加の着色剤 C B を含むことを特徴とする、請求項 1 から 1 4 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 P C 1。

【請求項 1 6】

着色剤が顔料と染料の混合物であることを特徴とする、請求項 1 から 1 5 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 P C 1。

【請求項 1 7】

着色剤が染料の混合物であることを特徴とする、請求項 1 から 1 5 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 P C 1。

【請求項 1 8】

着色剤が顔料の混合物であることを特徴とする、請求項 1 から 1 5 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 P C 1。

【請求項 1 9】

(メタ)アクリルポリマー A P 1 が、(メタ)アクリルブロックコポリマー M B C 又は (メタ)アクリルポリマー組成物 M P 1 であることを特徴とする、請求項 2 に記載のポリマー組成物 P C 1。

【請求項 2 0】

ポリマー粒子 P P 1 が、シリコーン粒子、(メタ)アクリル粒子、スチレン粒子、及びそれらの混合物から選択されることを特徴とする、請求項 1 から 1 9 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 P C 1。

【請求項 2 1】

ポリマー粒子 P P 1 が、1 μm から 1 0 0 μm の間の重量平均粒径を有することを特徴とする、請求項 1 から 2 0 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 P C 1。

【請求項 2 2】

方法が、

i )

a ) ポリマー P 1、

b ) 1 μm から 1 0 0 μm の間の重量平均粒径を有するポリマー粒子 P P 1、

c ) 着色剤 C A<sub>1</sub> から C A<sub>n</sub>

を提供する工程、

i i ) 3 つの成分 a )、b )、c ) をブレンドする工程

を含むことを特徴とする、請求項 1 から 2 1 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 P C 1 を製造するための方法。

【請求項 2 3】

ブレンドが配合又は混合によって行われることを特徴とする、請求項 2 2 に記載の方法。

【請求項 2 4】

着色剤 C A<sub>1</sub> から C A<sub>n</sub> のマスターバッチが使用されることを特徴とする、請求項 2 2 に記載の方法。

【請求項 2 5】

請求項 1 から 2 1 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 P C 1 を変形及び / 又は加工することによって物体を作製するための方法。

【請求項 2 6】

変形が、射出成形、共射出成形、表面成形と組み合わせた射出成形、押出成形、共押出成形又は押出 / ブロー成形によって行われることを特徴とする、請求項 2 5 に記載の方法。

【請求項 2 7】

方法が、

i ) 請求項 1 から 2 1 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 P C 1 を提供する工程

i i ) ポリマー組成物 P C 1 を備える照明装置用のカバーを作製する工程

i i i ) 前記カバーを光源と組み合わせる工程

を含む、照明装置を製造するための方法。

10

20

30

40

50

**【請求項 28】**

照明用途又は照明装置における請求項 1 から 2.1 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 PC1 の使用。

**【請求項 29】**

物体を作製するための、請求項 1 から 2.1 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 PC1 の使用。

**【請求項 30】**

物体が発光装置用のカバー又はプレートであることを特徴とする、請求項 2.9 に記載の使用。

**【請求項 31】**

請求項 1 から 2.1 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 PC1 から作製された物体。

**【請求項 32】**

請求項 1 から 2.1 のいずれか一項に記載のポリマー組成物 PC1 を備える照明装置。

**【請求項 33】**

光源として LED を備える、請求項 3.2 に記載の照明装置。

**【請求項 34】**

LED が白色 LED であることを特徴とする、請求項 3.3 に記載の照明装置。

**【発明の詳細な説明】****【技術分野】****【0001】**

本発明は、ポリマー粒子及び着色剤を含むポリマー組成物に関する。

**【0002】**

特に、本発明は、ポリマー粒子及び着色剤の混合物を含むポリマー（メタ）アクリル組成物に関する。

**【0003】**

本発明はまた、照明用途における、ポリマー粒子及び着色剤の混合物を含むそのようなポリマー組成物又はポリマー（メタ）アクリル組成物の使用に関する。

**【0004】**

本発明はまた、ポリマー粒子及び着色剤の混合物を含むポリマー組成物又は（メタ）アクリル組成物を作製するための方法に関する。

**【0005】****[技術的課題]**

熱可塑性ポリマー、特に（メタ）アクリルポリマーは、照明用途を含め、広く使用されている。これは主に、紫外線や耐候性に優れた、透明度の高いポリマー材料としての特性によるものである。そのため、（メタ）アクリルポリマーは、例えば、ランプ、照明器具、照明カバー、ディスプレイ、照明付き柵、表面、照明標識に使用される。

**【0006】**

照明用途には、光透過率、拡散力としての（メタ）アクリルポリマー又は（メタ）アクリルポリマーをベースにした組成物に対する様々な要求がある。（メタ）アクリルポリマーをベースとするこれらの組成物は、一般的に、多かれ少なかれ球状粒子を含み、それらはまた、ポリマー粒子又は他の有機粒子又は無機粒子である。

**【0007】**

さらに、光源を隠し、光源がオンになったときに光又は着色光が透過し、拡散する、光透過率と拡散特性との間に良好な妥協性を有するポリマー組成物を有することも興味深い。最後のポイントは、例えば、光源がオフになっているか、必ずしもオンになっていない昼間だけでなく、光源がオンになっている場合、夜間、又は薄暗がりでも、標識が見えることが要求される、照明用途にとって特に重要である。

**【0008】**

この妥協点は、ポリマー組成物中のそれぞれの粒子及びポリマー組成物中の着色剤の正しい又は最適な量に基づいている。

10

20

30

40

50

## 【0009】

したがって、光源を隠すことができ、光源がオンになっているときに光又は着色光が透過及び拡散するLEDを備える照明装置において使用することができるポリマー粒子及び着色剤を含むポリマー組成物を有することが重要である。

## 【0010】

本発明の目的は、照明用途に適したポリマー粒子及び着色剤を含むポリマー組成物を提供することである。

## 【0011】

本発明のさらなる目的は、同じポリマー組成物を使用することにより、照明源の色とは無関係なアスペクトコントラスト及び/又は色コントラストを与える、照明用途のためのポリマー粒子及び着色剤を含むポリマー組成物を提供することである。

10

## 【0012】

本発明の別の目的は、組成物が、照明用途で使用され、光源が点灯される場合、前記組成物を備える照明装置が、可視光の波長の全範囲にわたって光を透過させることができる、ポリマー粒子及び着色剤を含むポリマー組成物を提供することである。

## 【0013】

再び、本発明のさらに別の目的は、光源と、光源が点灯しているときに隠され、可視光の波長の全範囲にわたって光を透過させることができるポリマー粒子及び着色剤を含むポリマー組成物を備える、発光装置を提供することである。

## 【背景技術】

20

## 【0014】

先行技術

相対拡散力及び隠蔽力を増加させる光の拡散は、通常、組成物に散乱粒子を加えることによって増加する。

## 【0015】

文献EP1864274は、LEDと拡散シートとを組み合わせた照明装置を開示している。発光装置は、少なくとも1つの発光ダイオードと、発光ダイオードによって放射された光を散乱する粒子が分散されている透明なプラスチックから作製された少なくとも1つのカバーとを備える。

## 【0016】

30

文献EP1927098は、白色LEDと拡散シートとを組み合わせた照明装置を開示している。発光装置は、少なくとも1つの白色発光ダイオードと、発光ダイオードによって放射された光を散乱する粒子が分散されている透明なプラスチックから作製された少なくとも1つのカバーとを備える。

## 【0017】

文献米国特許出願公開第2016/0245954号は、LED照明用の光拡散ブレンド材料を開示している。拡散ブレンドは、無機粒子と有機粒子の混合物を含む。

## 【0018】

文献国際公開第2004/098857号は、光拡散成形品を製造するための射出成形法を開示している。成形材料は、ポリメチルメタクリレートのマトリックスと、粒子サイズが1から24 $\mu\text{m}$ の球形プラスチック粒子を含む。

40

## 【0019】

従来技術は、ポリマー粒子と着色剤の混合物を同時に含むポリマー組成物を開示していない。

## 【発明の概要】

## 【0020】

驚くべきことに、

- a) ポリマーP1、
- b) 1 $\mu\text{m}$ から100 $\mu\text{m}$ の間の重量平均粒径を有するポリマー粒子PP1、
- c) 着色剤CA<sub>1</sub>からCA<sub>n</sub>

50

を含むポリマー組成物 P C 1 であって、

着色剤が、組成物 P C 1 において、 $n > 1$  である着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub> の混合物であることを特徴とするポリマー組成物 P C 1 が、  
照明用途において十分な隠蔽力を有し、均質な光拡散を提供することが見いだされている。

【 0 0 2 1 】

驚くべきことに、

- a ) ポリマー P 1、
- b ) 1  $\mu$ m から 1 0 0  $\mu$ m の間の重量平均粒径を有するポリマー粒子 P P 1、
- c ) 着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub>

を含むポリマー組成物 P C 1 であって、

着色剤が、組成物 P C 1 において、 $n > 1$  である着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub> の混合物であることを特徴とするポリマー組成物 P C 1 が、  
十分な隠蔽力と均質な光拡散を提供する照明用途におけるカバーに適していることが見いだされている。

【 0 0 2 2 】

驚くべきことに、

- a ) ポリマー A P 1、
- b ) 1  $\mu$ m から 1 0 0  $\mu$ m の間の重量平均粒径を有するポリマー粒子 P P 1、
- c ) 着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub>

を含むポリマー組成物 P C 1 であって、

着色剤が、組成物 P C 1 において、 $n > 1$  である着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub> の混合物であることを特徴とするポリマー組成物 P C 1 が、  
十分な隠蔽力と均質な光拡散を提供するための照明用途に使用することができるが見いだされている。

【 0 0 2 3 】

また、

- a ) ポリマー P 1、
- b ) 1  $\mu$ m から 1 0 0  $\mu$ m の間の重量平均粒径を有するポリマー粒子 P P 1、
- c ) 着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub>

を含むポリマー組成物 P C 1 であって、

着色剤が、ポリマー組成物 P C 1 において、 $n > 1$  である着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub> の混合物であることを特徴とするポリマー組成物 P C 1 を得るための方法は、

i )

- a ) (メタ)アクリルポリマー A P 1、
- b ) 1  $\mu$ m から 1 0 0  $\mu$ m の間の重量平均粒径を有するポリマー粒子 P P 1、
- c ) 着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub>

を提供する工程、

i i ) 3つの成分 a )、b )、c ) をブレンドする工程

を含み、

前記方法により、照明用途において十分な隠蔽力と均質な光拡散を提供するポリマー組成物を得ることが見いだされている。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 2 4 】

【 図 1 】 光透過率を示す。

【 図 2 】 正規化された光強度を示す。

【 図 3 】 正規化された光強度を示す。

【 発明を実施するための形態 】

【 0 0 2 5 】

第 1 の態様によれば、本発明は、

- a ) ポリマー P 1、

- b) 1  $\mu\text{m}$  から 100  $\mu\text{m}$  の間の重量平均粒径を有するポリマー粒子 P P 1、
- c) 着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub>

を含むポリマー組成物 P C 1 であって、

着色剤が、組成物 P C 1 において、 $n > 1$  である着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub> の混合物であることを特徴とするポリマー組成物 P C 1 に関する。

【0026】

第2の態様によれば、本発明は、

- a) (メタ)アクリルポリマー A P 1、
- b) 1  $\mu\text{m}$  から 100  $\mu\text{m}$  の間の重量平均粒径を有するポリマー粒子 P P 1、
- c) 着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub>

を含むポリマー組成物 P C 1 であって、

着色剤が、組成物 P C 1 において、 $n > 1$  である着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub> の混合物であることを特徴とするポリマー組成物 P C 1 に関する。

【0027】

第3の態様によれば、本発明は、

- a) ポリマー P 1、
- b) 1  $\mu\text{m}$  から 100  $\mu\text{m}$  の間の重量平均粒径を有するポリマー粒子 P P 1、
- c) 着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub>

を含むポリマー組成物 P C 1 であって、

着色剤が、ポリマー組成物 P C 1 において、 $n > 1$  である着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub> の混合物であることを特徴とするポリマー組成物 P C 1 を製造するための方法が、

i)

- a) ポリマー P 1、
- b) 1  $\mu\text{m}$  から 100  $\mu\text{m}$  の間の重量平均粒径を有するポリマー粒子 P P 1、
- c) 着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub>

を提供する工程、

ii) 3つの成分 a)、b)、c) をブレンドする工程

を含む方法に関する。

【0028】

第4の態様によれば、本発明は、

- a) ポリマー P 1、
- b) 1  $\mu\text{m}$  から 100  $\mu\text{m}$  の間の重量平均粒径を有するポリマー粒子 P P 1、
- c) 着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub>

を含むポリマー組成物 P C 1 であって、

照明用途において、ポリマー組成物 P C 1 において、着色剤が、 $n > 1$  である着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub> の混合物であることを特徴とするポリマー組成物 P C 1 の使用に関する。

【0029】

第5の態様によれば、本発明は、

- a) ポリマー P 1、
- b) 1  $\mu\text{m}$  から 100  $\mu\text{m}$  の間の重量平均粒径を有するポリマー粒子 P P 1、
- c) 着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub>

を含むポリマー組成物 P C 1 であって、

着色剤が、組成物 P C 1 において、 $n > 1$  である着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub> の混合物であることを特徴とするポリマー組成物 P C 1 を備える照明装置に関する。

【0030】

さらに別の態様によれば、本発明は、照明装置を製造するための方法であって、

i)

- a) ポリマー P 1
- b) 1  $\mu\text{m}$  から 100  $\mu\text{m}$  の間の重量平均粒径を有するポリマー粒子 P P 1
- c) 着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub>

10

20

30

40

50

を含むポリマー組成物 P C 1 であって、

着色剤が、組成物 P C 1 において、 $n > 1$  である着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub> の混合物であることを特徴とするポリマー組成物 P C 1 を提供する工程

i i ) ポリマー組成物 P C 1 を備える照明装置用のカバーを作製する工程

i i i ) 前記カバーを光源と組み合わせる工程

を含む方法に関する。

【 0 0 3 1 】

使用される用語「アルキル(メタ)アクリレート」は、アルキルアクリレートとアルキルメタクリレートの両方を意味する。

【 0 0 3 2 】

使用される用語「コポリマー」は、少なくとも2つの異なるモノマーからなるポリマーを意味する。

【 0 0 3 3 】

本明細書で使用される用語「部」は、「重量部」を意味する。

【 0 0 3 4 】

使用される用語「熱可塑性ポリマー」は、加熱時に、液体に変化するか、又はより多くの流動性若しくはより少ない粘度を有するポリマー、及び熱と圧力の適用により新しい形状をとることができるポリマーを意味する。

【 0 0 3 5 】

本発明で使用される用語「(メタ)アクリルポリマー」は、(メタ)アクリルポリマー内部のアクリル又はメタクリルモノマーの重量比が少なくとも50重量%であるポリマーを意味する。

【 0 0 3 6 】

本発明で使用される用語「P M M A」は、メチルメタクリレート(M M A)のホモポリマー又はコポリマーを意味し、M M Aのコポリマーの場合、P M M A内部のM M Aの重量比は少なくとも50重量%である。

【 0 0 3 7 】

使用される用語「マスターバッチ」は、担体材料中に高濃度の添加剤を含む組成物と理解される。添加剤は、担体材料中に分散している。

【 0 0 3 8 】

本発明においてxからyの範囲とは、この範囲の上限及び下限が含まれることを意味し、少なくともxからyまでと等しい。

【 0 0 3 9 】

本発明においてxからyの間の範囲とは、この範囲の上限及び下限が除外されることを意味し、x超y未満と等しい。

【 0 0 4 0 】

本発明によるポリマー組成物 P C 1 に関して、それは、ポリマー P 1、1 μ m から 1 0 0 μ m の間の重量平均粒径を有するポリマー粒子 P P 1、及び着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub> を含み、該着色剤は、組成物 P C 1 において、 $n > 1$  である着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub> の混合物であることを特徴とする。言い換えれば、ポリマー組成物 P C 1 には、少なくとも2つの異なる着色剤 C A <sub>1</sub> 及び C A <sub>2</sub> が存在する。

【 0 0 4 1 】

ポリマー P 1 は、(メタ)アクリルポリマー、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリエステル、ポリ塩化ビニル(P C V)、環状オレフィンコポリマー、スチレンメチルメタクリレート(S M M A)、スチレンアクリロニトリル(S A N)、ポリフッ化ビニリデン(P V D F)及びそれらの混合物から選択できる。

【 0 0 4 2 】

好ましくは、ポリマー P 1 は、(メタ)アクリルポリマーから選択され、その結果、ポリマー P 1 は、(メタ)アクリルポリマー A P 1 である。

【 0 0 4 3 】

10

20

30

40

50

第1の好ましい実施態様では、ポリマー組成物PC1は、a)(メタ)アクリルポリマーAP1、b)1 $\mu$ mから100 $\mu$ mの間の重量平均粒径を有するポリマー粒子PP1及びc)着色剤CA<sub>1</sub>からCA<sub>n</sub>を含み、粒子PP1が、成分a)、b)及びc)を含むポリマー組成物PC1の0.05重量%から50重量%の間を占めることを特徴とする。しかしながら、成分b)の粒子の重量比は、2つの成分a)とb)のみの合計に基づいて計算される。より好ましくは、第1の好ましい実施態様によれば、粒子PP1は、2つの成分a)とb)のみの合計に基づいて計算される、組成物PC1の0.1重量%から40重量%の間、さらにより好ましくは0.7重量%から30重量%の間、有利には0.8重量%から20重量%の間を占める。

【0044】

a)及びb)を含む組成物の厚さ3mmのシートの光透過率は、少なくとも80%である。光透過率は、規格ASTMD1003に従って測定される。

【0045】

第2の好ましい実施態様では、ポリマー組成物PC1は、ポリマー組成物PC1中にすでに存在する着色剤CA<sub>1</sub>からCA<sub>n</sub>のいずれかと異なる場合、少なくとも1つの追加の着色剤CBを含む。

【0046】

第3の好ましい実施態様では、ポリマー組成物PC1は、a)(メタ)アクリルポリマーAP1、b)1 $\mu$ mから100 $\mu$ mの間の重量平均粒径を有するポリマー粒子PP1、及びc)着色剤CA<sub>1</sub>からCA<sub>n</sub>及び、ポリマー組成物PC1中にすでに存在する着色剤CA<sub>1</sub>からCA<sub>n</sub>のいずれかと異なる場合、少なくとも1つの追加の着色剤CBを含み、粒子PP1は、2つの成分a)及びb)のみの合計に基づいて計算される、成分a)、b)及びc)を含むポリマー組成物PC1の0.05重量%から50重量%の間を占めることを特徴とする。

【0047】

(メタ)アクリルポリマーAP1に関しては、それは(メタ)アクリルブロックコポリマーMBC又は(メタ)アクリルポリマーMP1である。

【0048】

第1の好ましい実施態様では、(メタ)アクリルポリマーAP1は、(メタ)アクリルポリマー組成物MP1である。

【0049】

(メタ)アクリルポリマー組成物MP1は、アクリルモノマー及び/又はメタクリルモノマー由来の、少なくとも50重量%のモノマーを含む重合ポリマー鎖を含む。(メタ)アクリルポリマーはまた、2つ以上の(メタ)アクリルポリマーMP1からMPxの混合物であり得る。

【0050】

アクリルモノマー及び/又はメタクリルモノマーは、アクリル酸、メタクリル酸、アクリル酸のエステル、メタクリル酸のエステル、アルキルアクリルモノマー、アルキルメタクリルモノマー及びそれらの混合物から選択される。

【0051】

好ましくは、モノマーは、アクリル酸、メタクリル酸、アルキルアクリルモノマー、アルキルメタクリルモノマー及びそれらの混合物、直鎖状、分枝状又は環状のいずれかの1から22個の炭素を有するアルキル基；好ましくは、直鎖状、分枝状又は環状のいずれかの1から12個の炭素を有するアルキル基から選択される。

【0052】

有利には、(メタ)アクリルモノマーは、メチルメタクリレート、エチルメタクリレート、メチルアクリレート、エチルアクリレート、メタクリル酸、アクリル酸、n-ブチルアクリレート、イソブチルアクリレート、n-ブチルメタクリレート、イソブチルメタクリレート、シクロヘキシルアクリレート、シクロヘキシルメタクリレート、イソボルニルアクリレート、イソボルニルメタクリレート及びこれらの混合物から選択される。

10

20

30

40

50

## 【 0 0 5 3 】

(メタ)アクリルポリマー A P 1 が、そのポリマー鎖中にアクリルモノマー及びノ又はメタクリルモノマー由来の、少なくとも 5 0 重量%のモノマーを含む限り、他のコモノマーをアクリルモノマー及びノ又はメタクリルモノマーと共重合させることができる。他のコモノマーは、スチレン又はスチレン誘導体などのスチレン系モノマー、アクリロニトリル、酢酸ビニルなどのビニルエステルから選択することができる。これらのコモノマーの量は、0 重量%から 5 0 重量%、好ましくは 0 重量%から 4 0 重量%、より好ましくは 0 重量%から 3 0 重量%、有利には 0 重量%から 2 0 重量%である。

## 【 0 0 5 4 】

第 1 の好ましい実施態様では、(メタ)アクリルポリマー組成物 M P 1 は、少なくとも 5 0 重量%、好ましくは少なくとも 6 0 重量%、有利には少なくとも 7 0 重量%、より有利には少なくとも 8 0 重量%のメチルメタクリレートを含む、メチルメタクリレート (M M A) のホモポリマー又はコポリマーである。

10

## 【 0 0 5 5 】

メチルメタクリレート (M M A) のコポリマーは、5 0 重量%から 9 9 . 9 重量%のメチルメタクリレートと、0 . 1 から 5 0 重量%の、メチルメタクリレートと共重合することができる少なくとも 1 つのエチレン不飽和を有する少なくとも 1 つのモノマーを含む。

## 【 0 0 5 6 】

これらのモノマーはよく知られており、アクリル酸及びメタクリル酸、並びに、特にアルキル基が 1 から 1 2 個の炭素原子を有するアルキル (メタ) アクリレートを挙げるができる。例として、メチルアクリレート、エチル、ブチル又は 2 - エチルヘキシル (メタ) アクリレートを挙げるができる。好ましくは、コモノマーは、アルキル基が 1 から 4 個の炭素原子を有するアルキルアクリレートである。

20

## 【 0 0 5 7 】

第 1 のより好ましい実施態様によれば、メチルメタクリレート (M M A) のコポリマーは、8 0 重量%から 9 9 . 8 重量%、有利には 9 0 重量%から 9 9 . 7 重量%、より有利には 9 0 重量%から 9 9 . 5 重量%のメチルメタクリレート、及び 0 . 2 重量%から 2 0 重量%、有利には 0 . 3 重量%から 1 0 重量%、より有利には 0 . 5 重量%から 1 0 重量%の、メチルメタクリレートと共重合可能な少なくとも 1 つのエチレン性不飽和を有する少なくとも 1 つのモノマーを含む。好ましくは、コモノマーは、メチルアクリレート又はエチルアクリレート又はこれらの混合物から選択される。

30

## 【 0 0 5 8 】

(メタ)アクリルポリマー組成物 M P 1 は、I S O 1 1 3 3 によるメルトフローインデックス (M F I) (2 3 0 / 3 . 8 k g) が、0 . 1 g / 1 0 分から 2 0 g / 1 0 分の間である。好ましくは、メルトフローインデックスは 0 . 2 g / 1 0 分から 1 8 g / 1 0 分の間であり、より好ましくは 0 . 3 g / 1 0 分から 1 6 g / 1 0 分の間であり、有利には 0 . 4 g / 1 0 分から 1 3 g / 1 0 分の間である。

## 【 0 0 5 9 】

(メタ)アクリルポリマー組成物 M P 1 は、1 . 4 6 から 1 . 5 2 の間、好ましくは 1 . 4 7 から 1 . 5 2 の間、より好ましくは 1 . 4 8 から 1 . 5 2 の間の屈折率を有する。

40

## 【 0 0 6 0 】

(メタ)アクリルポリマー組成物 M P 1 は、A S T M D - 1 0 0 3 (厚さ 3 m m のシート) による光透過率が少なくとも 8 5 %、好ましくは 8 6 %、より好ましくは 8 7 % である。

## 【 0 0 6 1 】

(メタ)アクリルポリマー組成物 M P 1 は、少なくとも 9 0 のピカット軟化温度を有する。ピカット軟化温度は、I S O 3 0 6 : 2 0 1 3 (B 5 0 法) に従って測定される。

## 【 0 0 6 2 】

本発明による組成物は、(メタ)アクリルポリマー M P 1 のほかに、(メタ)アクリルポリマー M P 2 も含むことができる。(メタ)アクリルポリマー M P 1 と (メタ)アクリ

50

ルポリマーMP2は、混合物又はブレンドを形成する。この混合物又はブレンドは、MMAの少なくとも1つのホモポリマーと少なくとも1つのコポリマーからなるか、又は異なる平均分子量を有するMMAの少なくとも2つのホモポリマー若しくはコポリマーの混合物、又は異なるモノマー組成を有するMMAの少なくとも2つのコポリマーの混合物からなる。

【0063】

第2の好ましい実施態様によれば、(メタ)アクリルポリマーAP1は、(メタ)アクリルブロックコポリマーMBCである。

【0064】

(メタ)アクリルブロックコポリマーMBCは、アクリルモノマー及び/又はメタクリルモノマー由来の、少なくとも50%のモノマーを含む。

10

【0065】

(メタ)アクリルブロックコポリマーMBCは、20未満、好ましくは10未満、より好ましくは0未満、有利には-5未満、より有利には-10未満のガラス転移温度を有する少なくとも1つのブロックを含む。

【0066】

好ましくは、(メタ)アクリルブロックコポリマーMBCは、(メタ)アクリルブロックである少なくとも1つのブロックを含む。これは、このブロック内部のモノマーの少なくとも50重量%が、重合されたアルキル(メタ)アクリレートモノマーであることを意味する。

20

【0067】

最も好ましくは、(メタ)アクリルブロックコポリマーMBCは、(メタ)アクリルブロックコポリマーMBC内部に、少なくとも50重量%の、重合されたアルキル(メタ)アクリレートモノマーであるモノマーを含む。

【0068】

(メタ)アクリルブロックコポリマーMBCは、一般式(A)<sub>n</sub>Bを有し、式中、

- ・ nは1以上の整数であり、
- ・ Aは、50を超える、好ましくは80を超えるT<sub>g</sub>を有するアクリル若しくはメタクリルホモ-又はコポリマー、又はポリスチレン、又はアクリル/スチレン若しくはメタクリル/スチレンコポリマーである。好ましくは、Aは、メチルメタクリレート(MMA)、フェニルメタクリレート、ベンジルメタクリレート又はイソボルニルメタクリレートから選択される。好ましくは、ブロックAは、アクリル又はメタクリルモノマーで修飾されたPMMA又はPMMAである；
- ・ Bは、20未満のT<sub>g</sub>を有するアクリル若しくはメタクリルホモ又はコポリマーであり、好ましくは、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(BuA)、エチルヘキシルアクリレート、スチレン(Sty)又はブチルメタクリレート、より好ましくはブチルアクリレートから選択されるモノマーを含み、前記モノマーは、Bの少なくとも50重量%、好ましくは70重量%を構成する。

30

【0069】

有利には、(メタ)アクリルブロックコポリマーMBCは非晶質である。

40

【0070】

好ましくは、ブロックAにおいて、モノマーは、メチルメタクリレート(MMA)、フェニルメタクリレート、ベンジルメタクリレート、イソボルニルメタクリレート、スチレン(Sty)若しくはアルファ-メチルスチレン又はそれらの混合物から選択される。より好ましくは、ブロックAは、アクリル若しくはメタクリルモノマー又はポリスチレン(PS)又はスチレンモノマーで修飾されたPSと共重合されたPMMA又はPMMAである。

【0071】

好ましくは、ブロックBは、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(BuA)、エチルヘキシルアクリレート又はブチルメタクリレート及びそれらの

50

混合物、より好ましくはブチルアクリレートから選択されるモノマーを含み、前記モノマーは、ブロックBの少なくとも50重量%、好ましくは70重量%を構成する。

【0072】

さらに、ブロックA及び/又はBは、当業者に知られている様々な化学官能基、例えば、酸、アミド、アミン、ヒドロキシル、エポキシ又はアルコキシ官能基を有する他のアクリル又はメタクリルモノマーを含むことができる。ブロックAは、その温度安定性を高めるために、アクリル酸又はメタクリル酸(MAA)などの基を組み込むことができる。

【0073】

ブロックAの屈折率を不一致にするために、スチレンのようなモノマーをブロックBに組み込むこともできる。

【0074】

好ましくは、前記熱可塑性アクリルブロックコポリマーは、ABA、AB、A<sub>3</sub>B及びA<sub>4</sub>Bから選択される構造を有する。

【0075】

(メタ)アクリルブロックコポリマーMBCは、例えば、以下のトリブロックコポリマーうちの1つであり得る：pMMA-pBuA-pMMA、p(MMAcoMAA)-pBuA-p(MMAcoMAA)、p(MMAcoMAA)-p(BuAcoSty)-p(MMAcoMAA)及びp(MMAcoAA)-pBuA-p(MMAcoAA)。第1の好ましい実施態様では、(メタ)アクリルブロックコポリマーMBCは、p(MMAcoMAA)-p(BuAcoSty)-p(MMAcoMAA)である。

【0076】

当業者には、PMMAタイプのポリマーは、その温度安定性を改善するために、少量のアクリレートモノマーを含むことができることが知られている。少量とは、ポリマーの9重量%未満、好ましくは7重量%未満、より好ましくは6重量%未満を意味する。

【0077】

ブロックBは、ブロックコポリマーMBCの総重量の10%から85%、好ましくは15%から80%を占める。

【0078】

ブロックBは、10000g/モルから500000g/モルの間、好ましくは20000g/モルから300000g/モルの間の重量平均モル質量を有する。重量平均モル質量は、サイズ排除クロマトグラフィー(SEC)によって測定することができる。

【0079】

(メタ)アクリルブロックコポリマーは、制御ラジカル重合(CRP)によって、又はアニオン重合によって得ることができ；製造されるコポリマーの種類に応じて最適な方法が選択されるであろう。

【0080】

好ましくは、(A)<sub>n</sub>Bタイプの(A)<sub>n</sub>Bタイプの(メタ)アクリルブロックコポリマーの場合は、特に窒素酸化物の存在下でのCRP、トリブロックコポリマーMAMなどのABAタイプの構造体の場合は、アニオン性又はニトロキシドラジカル重合となるであろう。制御ラジカル重合は、ブロックコポリマーを得るための文書、すなわち国際公開第03/062293号に記載されている。

【0081】

(メタ)アクリルブロックコポリマーMBCは、押出成形又は射出成形によって物体の形に変形させることができる。

【0082】

第3の好ましい実施態様によれば、(メタ)アクリルポリマーAP1は、(メタ)アクリルブロックコポリマーMBCと(メタ)アクリルポリマーMP1とのブレンドである。

【0083】

ポリマー粒子PP1に関して、それは、1µmから100µmの間の重量平均粒径、好ましくは1µmから90µmの間、より好ましくは1µmから80µmの間、有利には1

10

20

30

40

50

$\mu\text{m}$ から $70\ \mu\text{m}$ の間、最も有利には $1\ \mu\text{m}$ から $60\ \mu\text{m}$ の間の重量平均粒径を有する。

【0084】

ポリマー粒子PP1はまた、異なる種類の粒子の混合物であり得る。いずれも、重量平均粒径が $1\ \mu\text{m}$ から $100\ \mu\text{m}$ の範囲内にある限り、異なる重量平均粒径を有する同じ化学的性質の粒子であってもよい。また、いずれも、重量平均粒径が $1\ \mu\text{m}$ から $100\ \mu\text{m}$ の範囲内にある限り、同じ又は異なる重量平均粒径を有する異なる化学的性質の粒子であってもよい。

【0085】

ポリマー粒子PP1に関して、それらは、シリコーン粒子、(メタ)アクリル粒子、スチレン粒子及びそれらの混合物から選択することができる。粒子は、架橋されていてもよいし、部分的に架橋されていてもよい。ポリマー粒子PP1は、異なる種類の粒子の混合物であり得る。

10

【0086】

ポリマー粒子PP1としてのポリマーシリコーン粒子に関して、それは $1\ \mu\text{m}$ から $20\ \mu\text{m}$ の間の重量平均粒径を有する。第1の好ましい実施態様では、シリコーン粒子PP1は、シリコーン-酸素骨格鎖を有するポリシロキサン鎖を含む。

【0087】

ポリマーシリコーン粒子PP1は、 $1.30$ から $1.45$ の間、好ましくは $1.35$ から $1.45$ の間、有利には $1.36$ から $1.44$ の間の屈折率を有する。

【0088】

第1の好ましい実施態様では、ポリマーシリコーン粒子PP1の重量平均粒径は、好ましくは $1\ \mu\text{m}$ から $15\ \mu\text{m}$ の間であり、より好ましくは $1\ \mu\text{m}$ から $8\ \mu\text{m}$ の間、さらにより好ましくは $1\ \mu\text{m}$ から $7\ \mu\text{m}$ の間、さらにより好ましくは $1\ \mu\text{m}$ から $6\ \mu\text{m}$ の間、有利には $1\ \mu\text{m}$ から $5\ \mu\text{m}$ の間、より有利には $1\ \mu\text{m}$ から $4\ \mu\text{m}$ の間である。

20

【0089】

ポリマーシリコーン粒子PP1の粉末のかさ密度は、 $0.1\ \text{g/ml}$ から $0.5\ \text{g/ml}$ の間、好ましくは $0.151\ \text{g/ml}$ から $0.47\ \text{g/ml}$ の間である。

【0090】

ポリマーシリコーン粒子PP1は、例えば、米国特許出願公開第2008/124549号に従って調製することができる。

30

【0091】

ポリマーシリコーン粒子はまた、全てのシリコーン粒子が前述の特性を有する限り、2つ以上の異なるシリコーン粒子PP1a、PP1b...のブレンドであり得る。

【0092】

ポリマー粒子PP1としてのポリマー(メタ)アクリル粒子に関して、それらは、 $1\ \mu\text{m}$ から $100\ \mu\text{m}$ の間の重量平均粒径を有し、ポリマー粒子PP2のポリマー鎖中にアクリル及び/又はメタクリルモノマーに由来するモノマーを少なくとも50重量%含む。

【0093】

第1の好ましい実施態様では、ポリマー(メタ)アクリル粒子PP1は、少なくとも50重量%、好ましくは少なくとも60重量%、有利には少なくとも65重量%、及びより有利には少なくとも70重量%のメチルメタクリレートを含む、メチルメタクリレート(MMA)のホモ又はコポリマーである。

40

【0094】

ポリマー(メタ)アクリル粒子PP1の重量平均粒径は、好ましくは $1\ \mu\text{m}$ から $90\ \mu\text{m}$ の間、より好ましくは $2\ \mu\text{m}$ から $80\ \mu\text{m}$ の間、有利には $2\ \mu\text{m}$ から $60\ \mu\text{m}$ の間である。

【0095】

好ましくは、ポリマー(メタ)アクリル粒子PP1は架橋されている。(メタ)アクリル粒子PP1中の架橋剤の重量比は5重量%未満である。架橋剤は、好ましくは、少なくとも1つのアクリル又はメタクリル官能基と、同様に重合することができる第2の二重結

50

合とを有する有機化合物から選択される。

【0096】

ポリマー(メタ)アクリル粒子PP1は、1.49から1.56の間、好ましくは1.50から1.55の間の屈折率を有する。

【0097】

ポリマー(メタ)アクリル粒子PP1は、懸濁重合に従って調製することができる。

【0098】

ポリマー(メタ)アクリル粒子はまた、全ての粒子が前述の特性を有する限り、2つ以上の異なる(メタ)アクリル粒子PP1a、PP1b...のブレンドであり得る。

【0099】

着色剤CA又はCA<sub>1</sub>からCA<sub>n</sub>に関して、それは、顔料又は染料、或いは顔料と染料の混合物であり得る。顔料は、無機顔料又は有機顔料であり得る。

【0100】

第1の好ましい実施態様では、着色剤CA又はCA<sub>1</sub>からCA<sub>n</sub>は、顔料と染料の混合物である。

【0101】

第2の好ましい実施態様では、着色剤CA又はCA<sub>1</sub>からCA<sub>n</sub>は、染料の混合物である。

【0102】

第3の好ましい実施態様では、着色剤CA又はCA<sub>1</sub>からCA<sub>n</sub>は、顔料の混合物である。

【0103】

着色剤CAは、 $n > 1$ である着色剤CA<sub>1</sub>からCA<sub>n</sub>の混合物である。好ましくは、値nは $1 < n < 10$ であり、より好ましくは $1 < n < 9$ であり、より好ましくは、nは自然数である。

【0104】

第1のさらにより好ましい実施態様では、値nは $1 < n < 8$ である。

【0105】

第2のさらにより好ましい実施態様では、値nは $2 < n < 9$ である。

【0106】

第3のさらにより好ましい実施態様では、値nは $2 < n < 8$ である。

【0107】

第4のさらにより好ましい実施態様では、値nは $1 < n < 6$ である。

【0108】

第5のさらにより好ましい実施態様では、値nは $2 < n < 6$ である。

【0109】

着色剤CA<sub>1</sub>からCA<sub>n</sub>は、1つの着色剤CA<sub>1</sub>が、赤又は黄色又はオレンジ又は緑又は青又は紫であり、他の着色剤CA<sub>2</sub>が、赤又は黄色又はオレンジ又は緑又は青又は紫であるが、着色剤CA<sub>1</sub>とは異なる色を有するように選択され；可能性のあるさらに別の着色剤CA<sub>3</sub>が、赤又は黄色又はオレンジ又は緑又は青又は紫であるが、着色剤CA<sub>1</sub>及びCA<sub>2</sub>とは異なる色を有するように選択され；着色剤CA<sub>n</sub>まで同様に選択される。

【0110】

第1の好ましい実施態様では、着色剤CA<sub>1</sub>からCA<sub>n</sub>は、全て異なる色を有する。

【0111】

着色剤CA<sub>1</sub>からCA<sub>n</sub>の混合物は、好ましくは灰色を生じる。着色剤CA<sub>1</sub>からCA<sub>n</sub>の混合物は、好ましくは、以下の値： $20 < L^* < 80$ 、 $-20 < a^* < 20$ 、 $-20 < b^* < 20$ 、より好ましくは $30 < L^* < 70$ 、 $-10 < a^* < 10$ 、 $-10 < b^* < 10$ 、さらにより好ましくは $30 < L^* < 70$ 、 $-5 < a^* < 5$ 、 $-5 < b^* < 5$ を有する。

【0112】

3つの値L、a\*、b\*は、CIE L A Bシステムにおける主色を特徴づけるために使

10

20

30

40

50

用される。Lは明度を表し、0（黒）から100（白）に及ぶ。値 $a^*$ は、色の赤及び緑を測定し、緑に向かう色は負の $a^*$ 値を有し、赤に向かう色は正の $a^*$ 値を有する。 $b^*$ 値は、色の青及び黄色を測定し、黄色に向かう色は正の $b^*$ 値を有し、青に向かう色は負の $b^*$ 値を有する。L、 $a^*$ 、 $b^*$ 値は、スペクトル比色計（特に規格ASTM E308による）を使用して測定される。

#### 【0113】

着色剤CA<sub>1</sub>からCA<sub>n</sub>の混合物は、ポリマーP1としての透明材料とブレンドされたときに、着色剤を含む透明材料から作製されたシートが、400nmから700nmの可視光の全スペクトルにわたって均質に吸収するように選択される。均質とは、光透過率の変動が小さく、絶対値の30%未満の間隔でのみ変動することを意味する。好ましくは、この変動は25%未満、有利には20%未満である。これは、例えば（メタ）アクリルポリマーAP1について図1に示されている。最高値は19%、最低値は9%であり、これにより、光透過率の絶対値の10%の変動をもたらす。

10

#### 【0114】

好ましくは、光透過率は、着色剤CA<sub>1</sub>からCA<sub>n</sub>を含み、厚さ2mmを有する（メタ）アクリルポリマーAP1のシートでは、400nm - 700nmの波長間隔において、5%から40%の間、より好ましくは10%から30%の間である。

#### 【0115】

ポリマー用の着色剤は知られており、例えば、Lanxess、Clariant、Synthesia、又はBASFの顔料及び染料用の製品ラインから選択することができる。LanxessのMACROLEX（登録商標）染料には、Yellow 6G Gran、Yellow 3G Gran、Yellow G Gran、Yellow E2R Gran、Orange 3G Gran、Orange R Gran、Red E2G Gran、Red A、Red EG Gran、Red B、Red 5B Gran、Violet、3R Gran、Violet B Gran、Blue 3R、Blue RR Gran、Green 5B Gran及びGreen Gがある。ClariantのSolvaperm（登録商標）染料とPolysynthren（登録商標）ポリマー着色剤には、Yellow 3G、Yellow 2G、Orange 3G、Red 2G、Red G、RED PFS、RED BB、Red Violet R、Violet RSB、Blue 2B、Green、GSB、Green G、Yellow G G、Yellow NG、Red GFP、Violet G、Blue R、Blue RLS、Brown 3RL及びBrown Rがある。

20

30

#### 【0116】

着色剤は、例えば、メタン、ピラゾロン、キノフタロン、ペリノン、アゾ、アントラキノン、クマリンの誘導体である。

#### 【0117】

着色剤は、例えば、

2, 4 - ジヒドロ - 5 - メチル - 2 - フェニル - 4 - (フェニルアゾ) - 3H - ピラゾール - 3 - オン、CAS番号[4314 - 14 - 1] ;

12H - フタロペリン - 12 - オン、CAS番号[6925 - 69 - 5] ;

40

8, 9, 10, 11 - テトラクロロ - 12H - フタロペリン - 12 - オン、CAS番号[20749 - 68 - 2] ;

3 - ヒドロキシ - N - (o - トリル) - 4 - [(2, 4, 5 - トリクロロフェニル)アゾ]ナフタレン - 2 - カルボキサミド、CAS番号[6535 - 46 - 2] ;

1, 4 - ジアミノ - 2, 3 - ジフェノキシアントラキノン、CAS番号[6408 - 72 - 6] ;

1 - ヒドロキシ - 4 - (p - トリルアミノ)アントラセン - 9, 10 - ジオン、CAS番号[81 - 48 - 3] ;

1, 4 - ビス(2, 4, 6 - トリメチルアニリノ) - 9, 10 - アントラキノン、CAS番号[116 - 75 - 6] ;

50

1, 4 - ビス ( p - トリルアミノ ) アントラキノン [ 1 2 8 - 8 0 - 3 ]  
であり得る。

【 0 1 1 8 】

ポリマー組成物 P C 1 中の着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub> の量は、ポリマー P 1 に対して 1 0 重量 p p m から 1 0 0 0 0 重量 p p m の間、好ましくは 2 0 重量 p p m から 8 0 0 0 重量 p p m の間、より好ましくは 5 0 重量 p p m から 5 0 0 0 重量 p p m の間である。それぞれの着色剤の量は、着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub> の混合物が、前に定義したように、好ましくは灰色を有し、着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub> の混合物をポリマー P 1 としての透明材料とブレンドされたときに、着色剤を含む透明材料から作られたシートが、前に定義したように、4 0 0 n m から 7 0 0 n m の可視光の全スペクトルにわたって均質に吸収するように選択される。

10

【 0 1 1 9 】

着色剤の量は、その相対的な色 ( 色合い ) の強さの関数に基づいて選択される。この値は、市販のパンフレット又は材料データシート ( D I N 5 3 2 3 5 に準拠し、S D 1 / 3 - 国際標準の深さ 1 / 3 に縮小した色合いで表される ) に見出すことができる。

【 0 1 2 0 】

着色剤 C B に関して、第 2 の好ましい実施態様のポリマー組成物 P C 1 又は第 3 の好ましい実施態様のポリマー組成物 P C 1 は、顔料若しくは染料、又は顔料と染料の混合物であり得る。顔料は、無機顔料又は有機顔料であり得る。着色剤 C B は、着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub> と同じ着色剤から選択することができる。

20

【 0 1 2 1 】

本発明によるポリマー組成物 P C 1 を調製するための方法に関して、それは、成分 a ) 、 b ) 及び c ) を提供し、ブレンドする工程を含む。

【 0 1 2 2 】

より詳細には、ポリマー組成物 P C 1 を製造するための方法であって、前記組成物 P C 1 が、

- a ) ポリマー P 1 、
- b ) 1 μ m から 1 0 0 μ m の間の重量平均粒径を有するポリマー粒子 P P 1 、
- c ) 着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub>

を含み、

30

着色剤が、組成物 P C 1 において、n > 1 である着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub> の混合物であることを特徴とし；

前記方法が、

- i )
  - a ) ポリマー A P 1 、
  - b ) 1 μ m から 1 0 0 μ m の間の重量平均粒径を有するポリマー粒子 P P 1 、及び
  - c ) 着色剤 C A <sub>1</sub> から C A <sub>n</sub>

を提供する工程、

- ii ) 3 つの成分 a ) 、 b ) 、 c ) をブレンドする工程

を含む方法に関する。

40

【 0 1 2 3 】

ブレンドは、化合物 b ) を最初に化合物 a ) に添加し、その後に化合物 c ) を添加するか、又は化合物 c ) を最初に化合物 a ) に添加し、その後に化合物 b ) を添加するか、又は化合物 b ) と c ) を同時に一緒に添加するかのうちの任意の順序で行うことができる。

【 0 1 2 4 】

任意選択で、着色剤 C B を添加する。

【 0 1 2 5 】

好ましくは、本方法のブレンド工程 ii ) は、配合又は混合によって行われる。

【 0 1 2 6 】

成分 a ) 、 b ) 及び c ) 並びにそれらの好ましい実施態様は、前に定義したものと同一

50

である。

【0127】

ポリマー組成物PC1を製造するための前記方法は、好ましくは、着色剤CA<sub>1</sub>からCA<sub>n</sub>のマスターバッチ又は液体色を使用する。マスターバッチ又は液体色は、100重量ppmから50重量%の着色剤を含む。

【0128】

ポリマー組成物PC1を調製するための方法の第1の好ましい実施態様では、マスターバッチが使用される。

【0129】

ポリマー組成物PC1を調製するための第2の好ましい実施態様では、液体色が使用される。液体色濃縮物の例は、文献米国特許出願公開第2009/0156732号に記載されている。

10

【0130】

さらなる態様によれば、本発明は、本発明によるポリマー組成物PC1を変形及び/又は加工することによって物体を作製するための方法に関する。

【0131】

変形は、射出成形、共射出成形、表面成形と組み合わせた射出成形、押出成形、共押出成形又は押出/ブロー成形によって行うことができる。好ましくは、変形は、射出成形又は押出成形によって行われる。

【0132】

変形方法は、同じポリマー組成物を使用することにより、ポリマー粒子及び着色剤を含むポリマー組成物の発光効果、すなわち、照明源の色とは無関係なアスペクトコントラスト及び/又は色コントラストに影響を及ぼさない。

20

【0133】

物体を作製するための方法の第1の好ましい実施態様では、射出成形によって作製される。成形物体が得られる。

【0134】

本発明による成形物体を作製するための方法は、以下の工程

- ポリマーP1、ポリマー粒子PP1及び着色剤を含むポリマー組成物PC1を溶融する工程

30

- 溶融組成物を鋳型に注入する工程

- 少なくとも鋳型が溶融組成物で完全に満たされるまで、鋳型に圧力を加える工程を含む。

【0135】

物体を作製するための方法の第2の好ましい実施態様では、変形方法は、押出成形によって行われる。

【0136】

本発明による成形物体を作製するための方法は、以下の工程

- ポリマーP1、ポリマー粒子PP1及び着色剤を含むポリマー組成物PC1を押出機に供給する工程、

40

- 押出機中で(メタ)アクリルコポリマーを含む組成物を溶融する工程

- 溶融組成物を押し出す工程

を含む。

【0137】

物体を作製するための方法の第3の好ましい実施態様では、オーバーモールドを含む射出成形によって作製される。

【0138】

さらに別の態様によれば、本発明は、物体又は成形物体を作製するためのポリマー組成物PC1の使用に関する。

【0139】

50

本発明による組成物 P C 1 は、物体若しくは成形物体若しくは物品を作製するために使用することができ、又は物品の一部として使用することができる。好ましくは、本発明による組成物から作製された成形物体若しくは物品、又は物品の一部として使用されるものは、50  $\mu$ m を超える、より好ましくは 100  $\mu$ m を超える、さらにより好ましくは 500  $\mu$ m を超える厚さを有する。

【0140】

本発明による方法によって得られた組成物 P C 1 は、物品若しくは物体に直接変形するために使用することができ、又は物品若しくは物体の一部であり得る。

【0141】

さらに別の態様によれば、本発明は、本発明によるポリマー組成物 P C 1 から作製される物体又は成形物体に関する。

10

【0142】

本発明の物体又は成形物体は、シート、ブロック、フィルム、チューブ、又はプロファイル要素の形態であり得る。好ましくは、成形された物体は、平坦であっても、わずかに曲がっていても、湾曲していてもよいシートである。

【0143】

物体又は成形物体又は物品の例は、発光装置用のカバー又はプレートである。

【0144】

一実施態様では、成形物体は、光源用のカバーである。カバーは、一般に、0.001 cm から 15 cm の間、好ましくは 0.01 cm から 10 cm の間、より好ましくは 0.05 cm から 7 cm の間、より好ましくは 0.1 cm から 5 cm の間、さらにより好ましくは 0.2 cm から 4 cm の間の厚さを有する。

20

【0145】

さらに、本発明の別の態様によれば、本発明によるポリマー組成物 P C 1 から得られる組成物は、点光源のためのカバーとして使用することができる。光源とカバーは、照明装置を形成する。カバーは、単層であってもよいし、多層構造であってもよい。カバーは、0.1 cm から 50 cm の間、好ましくは 1 から 40 cm の間、好ましくは 2 から 20 cm の間、さらにより好ましくは 3 から 20 cm の間の距離だけ光源から分離されている。

【0146】

さらに別の実施態様では、照明装置は、本発明によるポリマー組成物 P C 1 を備える。

30

【0147】

発光装置又は照明装置は、光源を備える。好ましくは、光源は LED である。光源は、白色又は着色 LED とすることができる。

【0148】

組成物 P C 1 の第 1 の好ましい実施態様によるポリマー組成物 P C 1 を備える照明装置の場合、光源は、白色であっても着色されていてもよい。

【0149】

組成物 P C 1 の第 2 又は第 3 の好ましい実施態様によるポリマー組成物 P C 1 を備える照明装置の場合、光源は、好ましくは白色光源である。

【0150】

本発明による照明装置は、例えば、以下のような様々な用途を有する：

40

- 屋内照明（アンビエント照明、リビングルームランプ、オフィスランプなど）；
- 屋外照明（街灯、公園又は庭のランプ）；
- 家電用照明又はディスプレイ；
- 電気用品及び電子用品用の照明又はディスプレイ
- 広告表示；
- 照明標識（この場合、カバーは、特に、文字、数字、記号又は任意の他の標識の形態を有し得る）；
- 産業用照明；
- 自動車の室内照明（シグネチャー照明、アンビエント照明、表示標識、インストルメ

50

ントパネル、インテリアディスプレイ)；

- 自動車の外部照明、例えば、発光装置は、ヘッドランプ、デイランニングライト(DRL)、フォグランプ、リアランプ、方向指示器、ストップライト、シグネチャーライト、又は外部ディスプレイであり得る。

【0151】

方法

ポリマーの光学特性は、以下の方法に従って測定される：光透過率及びヘイズは、規格ASTM D1003に従い、成形サンプルについて厚さ2mmのシートで測定される。BYK-Gardnerのヘイズガードプラス装置を使用する。光沢は、ASTM D523に従って測定される。

10

【0152】

屈折率は、屈折計を用いて測定される。

【0153】

粒子サイズ：粒子径は、コールターカウンターを用いてレーザー回折によって測定される。

【0154】

3つの値L、a\*、b\*は、光源がオフの場合は反射法により、光源がオンの場合は透過法により、色分光法により測定される。BYK-Gardnerの色分光計「Color Sphere」を使用する。

【実施例】

20

【0155】

ポリマーP1の(メタ)アクリルポリマーAP1として、メルトフローインデックスが8g/10分のメチルメタクリレートのコポリマーを使用する。

【0156】

第1のポリマー粒子PP1bとして、Rohm and HaasのParaloid EXL5137を使用する。重量平均粒径は4µmから6µmであり、5µmの重量平均粒径を有するバッチを使用した。

【0157】

実施例における第2のポリマー(メタ)アクリル粒子PP1aとして、一般に35µmから60µmの間の重量平均粒径を有するALTUGLAS BS110からの市販品を使用し、50µmの重量平均粒径を有するバッチを使用した。

30

【0158】

着色剤：着色剤はマスターバッチ：MBgris及びMBRed18242の形態で添加される。MBgrisは、3つの着色剤CA<sub>1</sub>からCA<sub>1</sub>を含む灰色を有するマスターバッチである。

【0159】

着色剤CA<sub>1</sub>：BASFのRedSolvent135、CAS[20749-68-2]、8,9,10,11-テトラクロロ-12h-フタロペリン-12-オン

【0160】

着色剤CA<sub>2</sub>：BASFのSolventGreen28、CAS[28198-05-2]、1,4-ビス[(4-ブチルフェニル)アミノ]-5,8-ジヒドロキシ-アントラセン-9,10-ジオン

40

【0161】

着色剤CA<sub>3</sub>：Violet solvent13、CAS[81-48-3]、1-ヒドロキシ-4-(p-トリルアミノ)アントラセン-9,10-ジオン

【0162】

着色剤CB1は、赤色マスターバッチRED18242である。

【0163】

着色剤CA<sub>1</sub>からCA<sub>3</sub>は、マスターバッチMB1中に、総着色剤2500ppmの重量レベルと一緒にブレンドされる。このマスターバッチMB1は灰色であり、3.7ph

50

rで(メタ)アクリルポリマーAP1とブレンドされた場合、厚さ3mmのシートは、400nm-700nmの波長間隔にわたって10%から20%の間の光透過率を有する。これを図1に示す。

【0164】

例1及び2は、3.7phrの灰色マスターバッチMB1とブレンドした表1に示す組成を有する。例3及び4は、それぞれ1及び2と同じ組成を有するが、さらに1phrの着色剤CB1のマスターバッチを含む。比較例は、任意の着色剤を含まない。

【0165】

表1 本発明によるポリマー組成物PC1及び比較組成物の例示された組成

	Ex1 <sup>i)</sup>	Ex2	Ex3	Ex4	CEx1 <sup>i)</sup>	CEx2
AP1	82	82	82	82	82	82
PP1a	18	13	18	13	18	13
PP1b	—	5	—	5	—	5

i)Ex=例、CEx=比較例

10

【0166】

それぞれのサンプルの組成物を、100mm\*100mm、厚さ2mm及び3mmを有するシートに変形する。

【0167】

これらのシートは、4つのLED光源を含む100mm\*100mm\*100mmの立方体内の拡散シートとして使用され、LED光源は拡散プレートから30mmの距離を有するように配置される。輝度又は発光を測定する。

【0168】

図2は、例1(ひし形)と例2(三角形)の3mmのシートの光透過スペクトルと、ピークで100に正規化されたLED(正方形)のスペクトルの比較を示す。この図は、LEDのスペクトルが拡散シートによって影響されないこと、及び拡散光の色が、白色又は着色LEDを使用した場合、光源の色と同一であることを証明している。

【0169】

図3は、例3(ひし形)と例4(三角形)の3mmのシートの光透過率のスペクトルと、ピークで100に正規化されたLED(正方形)のスペクトルの比較を示す。この図は、白色LEDを使用した場合、拡散シートによって赤色光が透過することを証明している。

【0170】

表2 厚さ2mmのサンプルシートの透過率モード

	Ex*1	Ex*2	Ex*3	Ex*4	CEx*1	CEx*2
L*Trans (D65/2°)	59.5	54.8	27	25.3	—	—
a*Trans (D65/2°)	-1.0	-0.6	48.0	46.4	—	—
b*Trans (D65/2°)	0.8	1.5	43.3	41.4	—	—

40

【0171】

50

表3 - 厚さ2mmのサンプルシートの反射率

	Ex*1	Ex*2	Ex*3	Ex*4	CEx*1	CEx*2
L*Reflect (D65/2°)	27.1	26.2	23.7	23.7	—	—
a*Reflect (D65/2°)	-0.4	-0.3	2.7	2.3	—	—
b*Reflect (D65/2°)	-0.6	-0.7	0.4	0.2	—	—

10

## 【0172】

表4 - 厚さ2mmのサンプルシートのカラーシフト

	Ex*1	Ex*2	Ex*3	Ex*4	CEx*1	CEx*2
$\Delta L^*$ (D65/2°)	32.3	28.6	3.3	1.7	—	—
$\Delta a^*$ (D65/2°)	-0.6	-0.3	45.3	44.1	—	—
$\Delta b^*$ (D65/2°)	1.4	2.2	42.9	41.2	—	—

20

## 【0173】

例1及び2では、明度値 $L^*$ の有意な変動が、色成分 $a^*$ 及び $b^*$ の非常に低い変動と共に観察される。これは、暗から明への変化に対応する。

## 【0174】

赤色着色剤を含む例3及び4では、明度値 $L^*$ の非常に低い変動が、色成分 $a^*$ 及び $b^*$ の非常に大きな変動と共に観察される。これは、光源がない状態では色がほとんど見えず、光源をオンにすると赤色が見えることに対応する。

30

## 【0175】

表5 - 厚さ3mmのサンプルシートの透過率モード

	Ex*1	Ex*2	Ex*3	Ex*4	CEx*1	CEx*2
L*Trans (D65/2°)	44.3	39.3	16.7	14.3	92.3	87.5
a*Trans (D65/2°)	-1.2	-0.7	38.5	35.6	0.5	0.7
b*Trans (D65/2°)	1.7	1.9	28.5	24.4	4.4	4.4

40

## 【0176】

50

表6 - 厚さ3mmのサンプルシートの反射率

	Ex*1	Ex*2	Ex*3	Ex*4	CEx*1	CEx*2
L*Reflect (D65/2°)	24.8	24.5	23.3	23.4	47.3	47.8
a*Reflect (D65/2°)	-0.3	0.2	0.9	0.8	0.3	0.1
b*Reflect (D65/2°)	-0.9	-1.0	-0.3	-0.3	0.6	0.7

10

## 【0177】

表7 - 厚さ3mmのサンプルシートのカラーシフト

	Ex*1	Ex*2	Ex*3	Ex*4	CEx*1	CEx*2
$\Delta L^*$ (D65/2°)	19.5	14.8	-6.6	-9.1	45.1	39.7
$\Delta a^*$ (D65/2°)	-0.8	-0.5	37.5	34.8	0.1	0.6
$\Delta b^*$ (D65/2°)	2.6	2.9	28.8	24.7	3.8	3.6

20

## 【0178】

例1から4は、厚さ2mmのシートと同じ性能を示す。3mmの比較例はすでに高い輝度を示しているので、暗から明への変化は得られない。

## 【0179】

また、例1から4までの組成物の2mmのシートを、押出成形、射出成形、及びオーバーモールド射出成形によって調製した。オーバーモールドは、AL TUGLASからの1mmの純粋な(メタ)アクリル樹脂V825Tを用いて行った。

30

## 【0180】

規格ASTM D523に基づく60°での光沢を測定する。

## 【0181】

表8 - 厚さ2mm又は3mmのサンプルシートの60°での光沢

	60°での光沢/[GU]			
	Ex1	Ex2	Ex3	Ex4
押出シート	7	12	7	12
射出シート	33	29	35	36
射出及びオーバーモールドシート	88	88	85	85

40

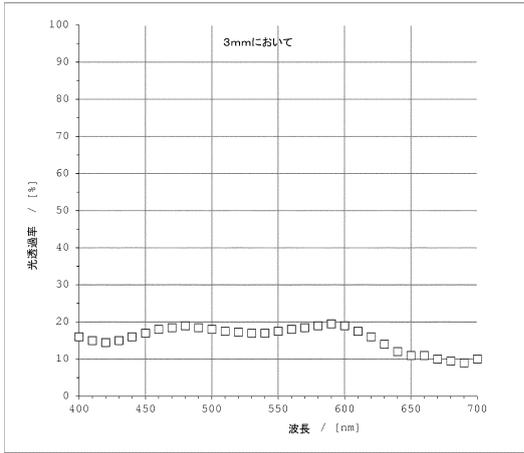
## 【0182】

表8の例は、本発明による組成物の変形方法に従って光沢を変化させることができることを示す。押出成形により低光沢、射出成形により中光沢。高光沢を得るためには、サンプルをオーバーモールドする必要がある。

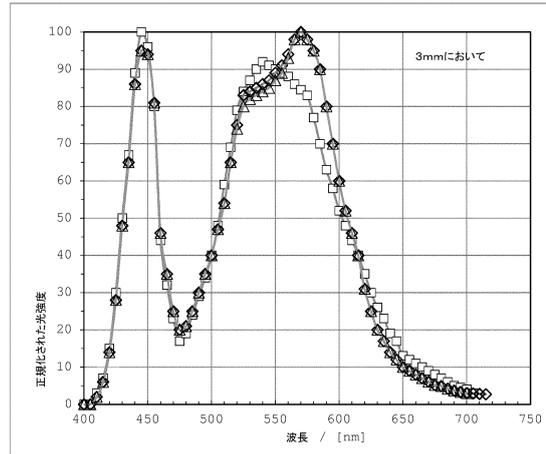
50

【図面】

【図 1】

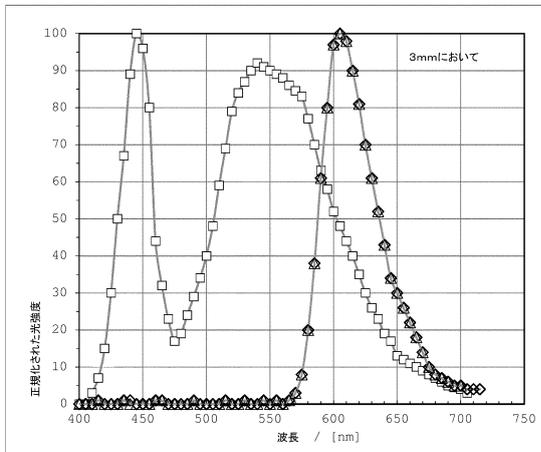


【図 2】



10

【図 3】



20

30

40

50

## フロントページの続き

## (51)国際特許分類

		F I		
C 0 8 L	33/04 (2006.01)	C 0 8 L	33/04	
C 0 8 L	83/00 (2006.01)	C 0 8 L	83/00	
F 2 1 V	3/00 (2015.01)	F 2 1 V	3/00	3 2 0
F 2 1 V	3/06 (2018.01)	F 2 1 V	3/06	1 1 0
F 2 1 Y	115/10 (2016.01)	F 2 1 V	3/06	1 3 0
		F 2 1 Y	115:10	

(72)発明者 プロッテス, ピーター

オランダ国 エヌエル - 8 8 6 2 エルエー - ハルリンゲン, ネーデルラント, デ レーウェリ  
ク 3 8

(72)発明者 ブティリエ, ジャン - マルク

フランス国 6 4 1 7 0 ラック, ビーピー 3 4, アルケマ フランス - ジーアールエル

審査官 宮内 弘剛

## (56)参考文献

特開平 0 6 - 1 1 1 6 1 2 ( J P , A )  
 特開 2 0 1 2 - 2 0 8 4 6 5 ( J P , A )  
 特開 2 0 1 6 - 1 0 3 0 1 7 ( J P , A )  
 特開 2 0 1 8 - 0 9 5 7 2 2 ( J P , A )  
 特開 2 0 0 4 - 0 5 0 6 0 7 ( J P , A )  
 特表 2 0 1 9 - 5 2 3 3 2 6 ( J P , A )  
 特表 2 0 2 0 - 5 1 7 7 5 6 ( J P , A )  
 特開 2 0 0 5 - 2 6 7 9 7 1 ( J P , A )  
 米国特許出願公開第 2 0 1 5 / 0 2 6 7 8 9 1 ( U S , A 1 )  
 国際公開第 0 2 / 0 0 7 7 2 ( W O , A 1 )

## (58)調査した分野 (Int.Cl., D B名)

C 0 8 K  
 C 0 8 L  
 C 0 8 J 3 / 2 0  
 C 0 8 J 3 / 2 2  
 F 2 1 V 3 / 0 0  
 F 2 1 V 3 / 0 6  
 F 2 1 Y 1 1 5 / 1 0  
 C A p l u s / R E G I S T R Y ( S T N )