

19



OFICINA ESPAÑOLA DE  
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 702 188**

51 Int. Cl.:

**C08L 67/03** (2006.01)

**C08K 3/00** (2008.01)

**C08K 9/00** (2006.01)

**C08G 63/86** (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **11.11.2014 PCT/KR2014/010813**

87 Fecha y número de publicación internacional: **21.05.2015 WO15072725**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **11.11.2014 E 14862128 (7)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **19.09.2018 EP 3072929**

54 Título: **Composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno**

30 Prioridad:

**12.11.2013 KR 20130137061**

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:

**27.02.2019**

73 Titular/es:

**SK CHEMICALS CO., LTD. (100.0%)  
310, Pangyo-ro Bundang-gu Seongnam-si  
Gyeonggi-do 13494, KR**

72 Inventor/es:

**PARK, KYU-TAE;  
KANG, MIN-GOO;  
LEE, TAE-WOONG y  
SHIN, JONG-WOOK**

74 Agente/Representante:

**CURELL AGUILÁ, Mireia**

ES 2 702 188 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín Europeo de Patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre Concesión de Patentes Europeas).

## DESCRIPCIÓN

Composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno.

### 5 **Campo técnico**

La presente invención se refiere a una composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno con reflectividad, resistencia térmica y resistencia al amarilleamiento mejorados.

### 10 **Antecedentes de la invención**

El tereftalato de policiclohexilendimetileno (PCT) está recibiendo una atención creciente como nuevo material que puede superar el problema de los materiales de poliéster, tales como el tereftalato de polietileno (PET), el tereftalato de polibutileno (PBT), etc., es decir, el problema de que sólo se han aplicado a usos restrictivos debido a su baja formabilidad y baja temperatura de deformación térmica debido a la lenta tasa de cristalización.

El PCT es un poliéster cristalino preparado mediante una reacción de esterificación o trans-esterificación del ácido tereftálico (en lo sucesivo, 'TPA') o tereftalato de dimetilo (en lo sucesivo, 'DMT') y 1,4-ciclohexanodimetanol (en lo sucesivo, 'CHDM') y presenta un punto de fusión ( $T_m$ ) elevado y una tasa de cristalización rápida. Debido a que el PCT fue desarrollado por primera vez en los años 1960, se ha utilizado principalmente para alfombras debido al característico tacto suave de la fibra de PCT, aunque la utilización del PCT se ha reducido gradualmente con la aparición de la poliamida. Simultáneamente, la formulación de compuesto de PCT se ha desarrollado en el campo de los plásticos de ingeniería en los 1980 y se ha utilizado el PCT para conectores y piezas de resistencia térmica en el campo de la industria eléctrica y electrónica y en el campo de la industria del automóvil que requieren una elevada resistencia al calor.

Por otra parte, el diodo emisor de luz (LED) ha tomado protagonismo al sustituir rápidamente un gran número de las fuentes de luz existentes debido a su excelente eficiencia energética y vida útil. Los LED están generalmente compuestos de una pieza emisora de luz compuesta de un semiconductor, cables de soldadura, una placa reflectante y un encapsulador transparente para encapsular el semiconductor. Entre ellos la placa reflectante se realizaba en diversos materiales, por ejemplo cerámica o plásticos termorresistentes, aunque la cerámica presentaba un problema de productividad y los plásticos termorresistentes, en la caída de la reflectividad óptica debida a la variación de color en el procedimiento de preparación de la placa reflectante, tal como el procedimiento de moldeo por inyección o el procedimiento para curar por calor el encapsulados bajo las condiciones ambientales de uso real del LED.

En particular, debido a que los LED muestran excelentes eficiencia energética y vida útil, se requieren niveles elevados de reflectividad y resistencia al calor para que la placa reflectante se utilice como piezas y accesorios para LED, por ejemplo, la caída de reflectividad tras un ensayo de amarilleamiento de aproximadamente 6000 horas a las temperaturas de referencia, tales como aproximadamente 25°C, aproximadamente 55°C, aproximadamente 85°C o la temperatura operativa real del LED, debe ser de aproximadamente 8% o inferior. Por lo tanto, se necesitan estudios sobre materiales que puedan mantener su elevada reflectividad incluso bajo condiciones severas.

### 45 **Descripción detallada de la invención**

#### Objetivo de la invención

Es un aspecto de la presente invención proporcionar una composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetilo que sea excelente en reflectividad, resistencia al calor y resistencia al amarilleamiento, y en particular, adecuada para la utilización como material reflectante LED.

#### Medios para conseguir el objetivo

Según una realización de la presente invención, se proporciona una composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetilo que incluye 40% a 95% en peso de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno, 1% a 50% en peso de un pigmento blanco, y 1% a 50% en peso de un relleno, en la que la cantidad de átomos de germanio (Ge) que permanecen en la resina de tereftalato de policiclohexilendimetilo es de 30 a 1000 ppm respecto al peso de la resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno.

Por ejemplo, la resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno en la que permanece una pequeña cantidad de átomos de germanio puede ser una resina polimerizada en presencia de un compuesto de germanio. Y, a título de ejemplo adicional, la resina de tereftalato de policiclohexilendimetilo puede ser lo polimerizado en presencia de compuesto de germanio y compuesto de titanio.

La composición de resina que presenta una reflectividad, resistencia a la intemperie y resistencia al

amarilleamiento mejoradas puede obtenerse mediante la utilización de 12% a 35% en peso del pigmento blanco. Y el pigmento blanco puede ser por lo menos uno seleccionado del grupo que consiste en óxido de titanio, óxido de cinc, litozona ( $\text{BaSO}_4 \cdot \text{ZnS}$ ), plomo blanco ( $2\text{PbCO}_3 \cdot \text{Pb}(\text{OH})_2$ ), carbonato de calcio y nitruro de boro. El pigmento blanco puede ser uno tratado inorgánicamente o uno tratado orgánicamente. Y el tamaño de partícula del pigmento blanco puede ser de 0,05 a 2,0  $\mu\text{m}$ .

La composición de resina que presenta una reflectividad, resistencia a la intemperie y resistencia al amarilleamiento mejoradas puede obtenerse mediante la utilización de 1% a 27% en peso del relleno. El relleno puede ser por lo menos uno seleccionado del grupo que consiste en fibras de vidrio, fibras de carbono, fibras de boro, perlas de vidrio, laminillas de vidrio, talco, wollastonita, fibrillas de titanato de calcio, fibrillas de ácido aluminobórico, fibrillas de óxido de cinc y fibrillas de calcio. Por ejemplo, resulta posible proporcionar una composición de resina que presenta una excelente resistencia mecánica mediante la utilización de fibras de vidrio de longitud media entre 0,1 y 20 mm y relación de aspecto de 10 a 1000 a modo de relleno.

En el caso de que se utilice 12% a 35% en peso del pigmento blanco y 1% a 27% en peso del relleno en la composición de resina, puede utilizarse 40% a 85% en peso de la resina de tereftalato de policiclohexilendimetilo para proporcionar a la composición de resina una reflectividad, resistencia a la intemperie y resistencia al amarilleamiento mejoradas.

La resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno puede obtenerse mediante la reacción de esterificación de ácidos dicarboxílicos y compuestos diol o mediante reacción de trans-esterificación de compuestos éster de ácido dicarboxílico y compuestos diol. Actualmente puede proporcionarse una composición de resina que presenta una resistencia a la intemperie y al amarilleamiento más excelentes mediante la utilización de la resina obtenida mediante la utilización de ácido tereftálico como el ácido dicarboxílico completo, la resina obtenida mediante la utilización de tereftalato de dimetilo como el compuesto éster de ácido dicarboxílico completo o la resina obtenida mediante la utilización de ciclohexano dimetanol como el compuesto diol completo.

Simultáneamente, según otra realización de la presente invención, se proporciona un artículo formado a partir de la composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetilo que incluye 40% a 95% en peso de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno, 1% a 50% en peso de un pigmento blanco, y 1% a 50% en peso de un relleno, en la que la cantidad de átomos de germanio (Ge) que permanecen en la resina de tereftalato de policiclohexilendimetilo es de 30 a 1000 ppm respecto al peso de la resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno. El artículo presenta excelente reflectividad, resistencia al calor y resistencia al amarilleamiento, y puede utilizarse como un reflector de LED que requiera dichas propiedades.

Específicamente, el valor de color b del artículo que se mide después del almacenamiento a 170°C durante 120 horas es 0 a 4 y, de esta manera, presenta una resistencia al amarilleamiento muy excelente.

Además, el artículo puede mostrar una reflectividad de 90% o superior que se mide con la luz de longitud de onda de 450 nm en modo de reflexión total (modo SCI). Y el artículo puede presentar una retención excelente de la reflectividad hasta el punto de satisfacer la Ecuación 1 a continuación debido a que presenta una resistencia al calor superior.

### [Ecuación 1]

$$93\% \leq Y = R^1/R^0 * 100$$

En la Ecuación 1, Y es la retención de la reflectividad,  $R^0$  es la reflectividad de la luz de 450 nm de longitud de onda medida en el modo de reflexión total (modo SCI) mediante la utilización del artículo, y  $R^1$  es la reflectividad a la luz de 450 nm de longitud de onda medida con el modo de reflexión total (modo SCI) tras almacenar el artículo a 170°C durante 120 horas.

Y el artículo presenta una resistencia a la intemperie superior y puede mantener su excelente reflectividad incluso bajo condiciones de alta temperatura y humedad. En concreto, la reflectividad a la luz de 450 nm de longitud de onda medida en modo de reflexión total (modo SCI) tras almacenar el artículo a una temperatura de 85°C y humedad relativa de 85% durante 500 horas puede ser de 90% o superior.

### Efectos de la invención

La composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno según la presente invención presenta una reflectividad, resistencia al calor y resistencia al amarilleamiento superiores y resulta adecuada para la utilización como placa reflectora y, en particular, resulta adecuada para la utilización como material reflectante de LED.

**Descripción detallada de la realización**

La presente invención puede modificarse diversamente y presenta diversos ejemplos, y se explican en la presente descripción ejemplos específicos de la presente invención.

Según una realización de la presente invención, se proporciona una composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetilo que incluye 40% a 95% en peso de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno, 1% a 50% en peso de un pigmento blanco, y 1% a 50% en peso de un relleno, en la que la cantidad de átomos de germanio (Ge) que permanecen en la resina de tereftalato de policiclohexilendimetilo es de 30 a 1000 ppm respecto al peso de la resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno.

Además, según otra realización de la presente invención, se proporciona un artículo formado de la composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno.

A continuación en la presente memoria, la composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetilo (en lo sucesivo, 'PCT') según una realización concreta de la presente invención se explica en mayor detalle.

Las cerámicas o plásticos termorresistentes actuales que se han utilizado para las placas reflectantes de LED presentan el problema de la caída de la reflectividad óptica debido a la variación en el color durante el procedimiento de preparación de la placa reflectante, tal como el procedimiento de moldeo por inyección y el procedimiento de curado térmico del encapsulado y bajo las condiciones ambientales de operación reales de los LED.

De acuerdo con lo anterior, los presentes inventores han reconocido el hecho de que la composición de resina de reflectividad, resistencia al calor y resistencia al amarilleamiento superiores y que resulta adecuada para la utilización como placa reflectora y en particular, que resulta adecuada para la utilización como material reflectante de LED, puede obtenerse mediante la mezcla de 1% a 50% en peso de un pigmento blanco y 1% a 50% en peso de un relleno con 40% a 95% en peso de resina de PCT en la que los átomos de germanio (Ge) permanecen en una cantidad de 30 a 1000 ppm respecto al peso de la resina de PCT, y han llevado a cabo la presente invención.

La resina de PCT puede obtenerse mediante una reacción de esterificación de ácidos dicarboxílicos y compuestos diol o mediante una reacción de trans-esterificación de compuestos éster de ácido dicarboxílico y compuestos diol, tal como es conocido en la técnica a la que se refiere la presente invención.

Pueden permanecer 30 a 1000 ppm, 30 a 800 ppm, 30 a 600 ppm, 30 a 500 ppm, 30 a 400 ppm o 50 a 350 ppm de átomos de germanio en la resina de PCT. En el caso de que la cantidad de átomos de resina que permanece en la resina sea inferior a dicho intervalo, la velocidad de la reacción de polimerización de la resina de PCR se reduce y, en consecuencia, el polímero obtenido a partir de la misma puede amarillarse fácilmente. En contraste, en el caso de que la cantidad de átomos de germanio que permanecen en la resina sea superior a dicho intervalo, se incrementa la velocidad de degradación térmica de la resina y, en consecuencia, no puede obtenerse una resina con un grado de polimerización del nivel deseado, o la transparencia de la resina puede resultar afectada negativamente debido que se incrementa el valor de opacidad debido al componente catalítico que permanece en la resina.

En concreto, puede obtenerse una resina de PCT en la que permanece una pequeña cantidad de átomos de germanio mediante la utilización de un compuesto de germanio como catalizador de la reacción de esterificación o de la reacción de trans-esterificación. El tipo específico de compuesto de germanio no se encuentra particularmente limitado, aunque, por ejemplo, puede utilizarse dióxido de germanio y similares.

Además, puede quedar una pequeña cantidad de átomos de titanio (Ti) en la resina de PCR. Específicamente, pueden quedar 20 ppm o menos, 0,1 a 20 ppm, o 5 a 15 ppm de átomos de titanio en la resina de PCT. La resina de PCT puede polimerizarse sin preocuparse de reacciones secundarias y el problema de que el peso molecular se reduzca durante el procedimiento de extrusión o moldeo por inyección puede evitarse mediante la inclusión de átomos de titanio dentro de dicho intervalo y, de esta manera, la resina puede presentar una excelente resistencia al amarilleamiento.

Tal como se ha dado a conocer anteriormente, puede obtenerse una resina de PCT en la que permanece una pequeña cantidad de átomos de germanio y titanio mediante la utilización de un compuesto de germanio y un compuesto de titanio como catalizadores de la reacción de esterificación o de la reacción de trans-esterificación. El tipo específico de compuesto de titanio que puede utilizarse como catalizador no se encuentra particularmente limitado, aunque puede utilizarse, por ejemplo, óxido de titanio, titanato de tetra-n-propilo, titanato de tetrakispropilo, titanato de tetra-n-butilo, titanato de tetra-isobutilo, titanato de butil-isopropilo y similares.

La resina de PCT puede obtenerse mediante la reacción de esterificación de ácidos dicarboxílicos y compuestos diol o mediante la reacción de trans-esterificación de compuestos éster de ácido dicarboxílico y compuestos diol

en presencia de dicho catalizador.

5 El ácido dicarboxílico puede incluir ácido tereftálico (TPA), ácido isoftálico (IPA), ácido 2,6-naftaleno-dicarboxílico (2,6-NDA) o una mezcla de los mismos. Por ejemplo, 90 partes en peso o más en el ácido dicarboxílico completo pueden ser de ácido tereftálico. Y 10 partes en peso o menos en el ácido dicarboxílico completo pueden ser otros ácidos dicarboxílicos aparte de ácido tereftálico. En particular, en el caso de que el ácido dicarboxílico completo sea ácido tereftálico, resulta posible proporcionar una composición de resina con excelente resistencia a la intemperie y resistencia al amarilleamiento.

10 El compuesto éster de ácido dicarboxílico puede incluir tereftalato de dimetilo, isoftalato de dimetilo (DMI), dicarboxilato de dimetil-2,6-naftaleno (2,6-NDC) o una mezcla de los mismos. Por ejemplo, 90 partes en peso o más en el compuesto éster de ácido dicarboxílico completo pueden ser de tereftalato de dimetilo. Y 10 partes en peso o menos en el compuesto éster de ácido dicarboxílico completo pueden ser otros compuestos éster de ácido dicarboxílico. En particular, en el caso de que el compuesto éster de ácido dicarboxílico completo sea tereftalato de dimetilo, resulta posible proporcionar una composición de resina con excelente resistencia a la intemperie y al amarilleamiento.

20 El compuesto diol puede incluir por lo menos un compuesto seleccionado del grupo que consiste en ciclohexano dimetanol, etilenglicol, dietilenglicol, 1,4-butanodiol, 1,3-propanodiol y neopentilglicol. Por ejemplo, 90 partes en peso o más en el compuesto diol pueden ser de ciclohexano dimetanol. Y 10 partes en peso o menos en el compuesto diol completo pueden ser otros compuestos diol aparte de ciclohexano dimetanol. En particular, en el caso de un compuesto diol, en el caso de que el compuesto diol completo sea ciclohexano dimetanol, resulta posible proporcionar una composición de resina con resistencias a la intemperie y al amarilleamiento más excelentes.

25 Simultáneamente resulta posible preparar la resina de PCT mediante la adición de un estabilizador a base de fósforo a la misma en la etapa inicial de la reacción de esterificación o de la reacción de trans-esterificación. En consecuencia, resulta posible suprimir la reacción lateral que puede producirse durante la reacción de esterificación o la reacción de trans-esterificación de alta temperatura.

30 Como estabilizador a base de fósforo que puede utilizarse en la reacción anterior, puede utilizarse un compuesto a base de ácido fosfórico, tal como ácido fosfórico y ácido fosforoso, y un compuesto a base de fosfato, tal como fosfato de trietilo, fosfato de trimetilo, fosfato de trifenilo, fosfonoacetato de trietilo y similares.

35 La resina de PCT también puede polimerizarse utilizando además otros aditivos que se utilizan comúnmente en la técnica a la que se refiere la presente invención, además de los compuestos dados a conocer anteriormente. Y la resina de PCT puede polimerizarse mediante la utilización de tales componentes según un método utilizado comúnmente en la técnica a la que se refiere la presente invención. A título de ejemplo no limitativo, la resina de PCT puede prepararse mediante las etapas de realización de la reacción de esterificación de ácidos dicarboxílicos y compuestos diol o la reacción de trans-esterificación de compuestos éster de ácido dicarboxílico y compuestos diol en presencia de dicho catalizador, y llevando a cabo la reacción de policondensación del producto de la reacción anterior. Además, el método de preparación de la resina de PCT puede incluir además las etapas de preparar el producto de la reacción de policondensación en forma de pellets y/o cristalizar el producto de la reacción de policondensación o los pellets y llevar a cabo una polimerización en estado sólido de los mismos.

40 Dicha resina de PCT puede utilizarse en una cantidad de 40% a 95% en peso, de 40% a 90% en peso o de 40% a 85% en peso respecto al peso total de la composición de resina. La composición de resina con reflectividad, resistencia al calor y resistencia al amarilleamiento superiores puede prepararse mediante la mezcla de la resina de PCT con el pigmento blanco y el relleno dentro de dicho intervalo.

45 El pigmento blanco puede ser, por ejemplo, por lo menos uno seleccionado del grupo que consiste en óxido de titanio, óxido de cinc, litozona ( $\text{BaSO}_4 \cdot \text{ZnS}$ ), plomo blanco ( $2\text{PbCO}_3 \cdot \text{Pb(OH)}_2$ ), carbonato de calcio y nitruro de boro. En particular, en el caso de que se utilice óxido de titanio ( $\text{TiO}_2$ ) como el pigmento blanco, puede proporcionarse una composición de resina que presenta características ópticas mejoradas, tales como la reflectividad y camuflado. Además, puede utilizarse un óxido de titanio de tipo rutilo como el óxido de titanio con el fin de maximizar dicho efecto.

60 El tamaño de partícula del pigmento blanco no se encuentra limitado particularmente, aunque, por ejemplo, el diámetro de partícula puede ser de 0,05 a 2,0  $\mu\text{m}$ .

65 Y el pigmento blanco puede ser uno tratado inorgánicamente o uno tratado orgánicamente. Específicamente, el pigmento blanco tratado inorgánicamente puede ser un pigmento que es tratado con un agente inorgánico de tratamiento de superficie, tal como alúmina ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ), sílice ( $\text{SiO}_2$ ), circonita ( $\text{ZrO}_2$ ), silicato sódico, aluminato sódico, aluminosilicato sódico, óxido de cinc, mica o una mezcla de los mismos, por ejemplo. Además, el pigmento blanco tratado orgánicamente puede ser un pigmento que es tratado con un agente orgánico de

tratamiento de superficie, tal como poldimetilsiloxano, trimetilpropano (TMP), pentaeritritol o una mezcla de los mismos, por ejemplo. El pigmento tratado en superficie puede proporcionarse mediante la utilización de aproximadamente 0,3 a 10 partes en peso del agente de tratamiento de superficie inorgánico u orgánico por cada 100 partes en peso del pigmento blanco. Por ejemplo, resulta posible utilizar óxido de titanio, la superficie del cual se trata con alúmina, menos de aproximadamente 5 partes en peso por cada 100 partes en peso del óxido de titanio como pigmento blanco, con el fin de obtener los efectos de reflectividad, resistencia al calor y resistencia al amarilleamiento que son el objetivo de la presente invención. Además, la superficie de óxido de titanio tratada con alúmina puede modificarse adicionalmente con el agente orgánico de tratamiento de superficie o el agente orgánico de tratamiento de superficie.

Dicho pigmento blanco puede utilizarse en una cantidad de 1% a 50% en peso, de 5% a 40% en peso o de 12% a 35% en peso respecto al peso total de la composición de resina. En el caso de que la cantidad del pigmento blanco sea inferior a dicho intervalo, puede reducirse la reflectividad y resistencia al amarilleamiento, y en el caso de que la cantidad sea mayor que dicho intervalo, puede reducirse la resistencia a impactos.

Como relleno, puede utilizarse cualquier relleno orgánico o inorgánico utilizado comúnmente en la técnica a la que se refiere la presente invención. Dicho relleno, por ejemplo, puede ser por lo menos uno seleccionado del grupo que consiste en fibras de vidrio, fibras de carbono, fibras de boro, perlas de vidrio, laminillas de vidrio, talco, wollastonita, fibrillas de titanato de calcio, fibrillas de ácido aluminobórico, fibrillas de óxido de cinc y fibrillas de calcio.

Por ejemplo, pueden utilizarse rellenos de tipo fibrilla como el relleno con el fin de proporcionar un artículo con una propiedad excelente de nivelación superficial. Particularmente pueden utilizarse fibras de vidrio, wollastonita, fibrillas de titanato de calcio, fibrillas de ácido aluminobórico, o una mezcla de las mismas, como relleno con el fin de proporcionar un artículo que sea blanco y con una propiedad superior de nivelación de la superficie. Además, la formabilidad de la composición y las propiedades mecánicas, tales como la resistencia a la tracción, la resistencia a flexión, el módulo de flexión y similares, y la resistencia al calor, tal como la temperatura de distorsión térmica del artículo, pueden mejorarse mediante la utilización de fibras de vidrio, entre otros.

En el caso de que se utilice fibra de vidrio como el relleno, pueden utilizarse fibras de vidrio con una longitud media de 0,1 a 20 mm o 0,3 a 10 mm. Además, puede proporcionarse una composición de resina con excelente resistencia mecánica mediante la utilización de fibras de vidrio con una relación de aspecto  $[L(\text{longitud media de las fibras})/D(\text{diámetro medio de las fibras})]$  de 10 a 2000 o de 30 a 1000.

Dicho relleno puede utilizarse en una cantidad de 1% a 50% en peso, de 1% a 40% en peso o de 1% a 27% en peso respecto al peso total de la composición de resina. Resulta posible proporcionar una composición de resina con excelentes propiedades mecánicas y resistencia al calor mediante la utilización del relleno dentro de dicho intervalo.

En una realización, la composición de resina con reflectividad, resistencia a la intemperie y resistencia al amarilleamiento mejoradas puede proporcionarse mediante la utilización de 40% a 85% en peso de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno, 12% a 35% en peso de pigmento blanco y 1% a 27% en peso de relleno.

La composición de resina puede incluir además otros aditivos que se utilizan comúnmente en la técnica a la que se refiere la presente invención además de la resina de PCT, el pigmento blanco y el relleno. A título de ejemplo no limitativo, la composición de resina puede incluir además por lo menos un aditivo seleccionado del grupo que consiste en un antioxidante primario, un antioxidante secundario, un estabilizador térmico, un estabilizador frente a UV, un estabilizador de hidrólisis, un agente de nucleación, un espesante, un agente de liberación, un lubricante, un agente blanqueador fluorescente, un agente de refuerzo de propiedad, un extensor de cadena, un pigmento y un colorante.

Tal como se ha dado a conocer anteriormente, la composición de resina según una realización de la presente invención presenta excelente resistencia al calor y a la humedad, y puede utilizarse como el material para los artículos que requieran tales propiedades. Particularmente, la composición de resina presenta una reflectividad superior debido a que incluye una cantidad adecuada de pigmento blanco y presenta las características de que la reducción de reflectividad es pequeña y el fenómeno del amarilleamiento apenas aparece incluso al dejarlo bajo condiciones de altas temperatura y humedad. Por lo tanto, la composición de resina resulta adecuada para la utilización como material del reflector de LED que se expone continuamente a condiciones de alta temperatura.

Además, según otra realización de la presente invención, se proporciona un artículo formado a partir de la composición de resina. El método de preparación del artículo a partir de la composición de resina es bien conocido en la técnica a la que se refiere la presente invención y, de esta manera, se omiten los detalles del mismo en la presente descripción.

El artículo puede mostrar una elevada reflectividad debido a que incluye la resina de PCT, que incluye una pequeña cantidad de átomos de germanio, el pigmento blanco y el relleno. Específicamente, el artículo puede

mostrar una reflectividad inicial de 90% o superior, de 93% o superior, o de 94% o superior, medida con una luz de 450 nm de longitud de onda en un modo de reflexión total (modo 'Super Component Inclusion') después de la preparación. La reflectividad inicial puede ser el valor medido mediante la utilización del artículo formado a partir de la composición de resina. Se proporciona una descripción detallada del método para medir la reflectividad en Ejemplos dados a conocer posteriormente.

Además, el artículo presenta una excelente resistencia al calor y puede retener su excelente reflectividad aunque se deje bajo condiciones de temperatura elevada. Por ejemplo, el artículo puede presentar una reflectividad muy elevada, de 86,5% o superior, de 90% o superior, o de 91% o superior, que se mide con luz de 450 nm de longitud de onda en modo de reflexión total (modo SCI) tras almacenarlo a 170°C durante 120 h. Particularmente, el artículo puede mostrar una excelente retención de la reflectividad hasta el punto de satisfacer la Ecuación 1 siguiente.

**[Ecuación 1]**

$$93\% \leq Y = R^t/R^0 * 100$$

En la Ecuación 1, Y es la retención de la reflectividad, R<sup>0</sup> es la reflectividad a la luz de 450 nm de longitud de onda medida en modo de reflexión total (modo SCI) mediante la utilización del artículo, y R<sup>t</sup> es la reflectividad a la luz de 450 nm de longitud de onda medida en modo de reflexión total (modo SCI) tras almacenar el artículo a 170°C durante 120 h. La reflectividad puede ser el valor medido mediante el mismo método de medición de la reflectividad inicial dado a conocer anteriormente.

Además, el artículo presenta una excelente resistencia a la intemperie y puede retener su elevada reflectividad incluso bajo condiciones de elevadas temperatura y humedad. Por ejemplo, el artículo puede presentar una reflectividad de 90% o superior, o de 93% o superior medida para la luz de 450 nm de longitud de onda en modo de reflexión total (modo SCI) tras almacenarlo a la temperatura de 85°C y humedad relativa de 85% durante 500 h.

Tal como se ha dado a conocer anteriormente, el artículo presenta una elevada reflectividad y puede mantener su elevada reflectividad incluso bajo condiciones severas debido a que también presenta excelentes resistencias al calor y a la intemperie. Por lo tanto, se espera que el artículo se utilice como reflectores de dispositivos emisores de luz, tales como dispositivos de iluminación interior, dispositivos de iluminación exterior, dispositivos de iluminación de automoción, dispositivos de visualización, faros de automóvil, y otros, y puede proporcionar productos con una vida útil larga.

Particularmente, el artículo presenta una resistencia al amarilleamiento muy excelente. Por ejemplo, el valor de color-b del artículo que se mide tras el almacenamiento del mismo a 170°C durante 120 h puede ser de entre aproximadamente 0 y aproximadamente 4, de entre aproximadamente 0 y aproximadamente 3 o de entre aproximadamente 0 y aproximadamente 2,7. Además, el valor de color-L que se mide tras el almacenamiento del mismo bajo dichas condiciones puede ser de 87 o superior. Por lo tanto, el artículo puede utilizarse convenientemente con un reflector de LED que requiera resistencias elevadas al calor, a la intemperie y al amarilleamiento, incluso bajo condiciones de temperatura elevada.

En lo sucesivo en la presente memoria, se explican en mayor detalle Ejemplos preferentes de la presente invención. Sin embargo, los Ejemplos a continuación son meramente ilustrativos de la presente invención.

**Ejemplos y Ejemplos comparativos**

Se prepararon las composiciones de resina que incluyen los ingredientes de las Tablas 1 y 2 a continuación. Y las composiciones de resina se fundieron, se mezclaron y se utilizaron para preparar pellets mediante la utilización de un extrusor doble a una temperatura de 240°C a 330°C.

[Tabla 1]

Tipos		Ejemplos								
		1	2	3	4	5	6	7	8	9
PCT	PCT-A	60							60	
	PCT-B		60				80			45
	PCT-C			60				60		
	PCT-D									
	PCT-E									
	PCT-F									
	PCT-G				60					
	PCT-H					60				

Tipos	Ejemplos								
	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Pigmento blanco	20	20	20	20	20	10	30	10	30
Relleno	20	20	20	20	20	10	10	30	25

[Tabla 2]

Tipos	Ejemplos comparativos						
	1	2	3	4	5	6	7
PCT	PCT-A						
	PCT-B						
	PCT-C						
	PCT-D	60				60	
	PCT-E		60		80		60
	PCT-F			60			45
	PCT-G						
	PCT-H						
Pigmento blanco	20	20	20	10	30	10	30
Relleno	20	20	20	10	10	30	25

5 Las resinas de PCT (tereftalato de policiclohexilendimetileno) de las Tablas 1 y 2 se prepararon mediante el método siguiente; el pigmento blanco era dióxido de titanio (grado 17008) de Resino Co., y el relleno era fibra de vidrio (grado CS321) de KCC Co.

10 PCT-A: resina de PCT polimerizada a partir de ciclohexano dimetanol (CHDM) y ácido tereftálico (TPA) mediante la utilización de compuesto de titanio y compuesto de germanio como catalizadores, en la que la cantidad de átomos de titanio (Ti) retenidos en la resina de PCT polimerizada es de 10 ppm y la cantidad de átomos de germanio (Ge) es de 75 ppm, respecto al peso de la resina de PCT.

15 PCT-B: resina de PCT preparada mediante el mismo método que PCT-A, excepto en que las cantidades del compuesto de titanio y del compuesto de germanio se han modificado, en la que la cantidad de átomos de titanio (Ti) retenidos en la resina de PCT polimerizada es de 10 ppm y la cantidad de átomos de germanio (Ge) es de 150 ppm, respecto al peso de la resina de PCT.

20 PCT-C: resina de PCT preparada mediante el mismo método que PCT-A, excepto en que se utilizó compuesto de germanio como catalizador, en la que la cantidad de átomos de germanio (Ge) retenidos en la resina de PCT polimerizada es de 300 ppm respecto al peso de la resina de PCT.

25 PCT-D: resina de PCT preparada mediante el mismo método que PCT-A, excepto en que se utilizó compuesto de titanio como el catalizador, en la que la cantidad de átomos de titanio (ti) retenidos en la resina de PCT polimerizada es de 15 ppm respecto al peso de la resina de PCT.

30 PCT-E: resina de PCT preparada mediante el mismo método que PCT-A, excepto en que se utilizó compuesto de titanio como el catalizador, en la que la cantidad de átomos de titanio (ti) retenidos en la resina de PCT polimerizada es de 15 ppm respecto al peso de la resina de PCT.

35 PCT-C: resina de PCT preparada mediante el mismo método que PCT-A, excepto en que se utilizó compuesto de antimonio como catalizador, en la que la cantidad de átomos de antimonio (Sb) retenidos en la resina de PCT polimerizada es de 300 ppm respecto al peso de la resina de PCT.

35 PCT-G: resina de PCT preparada mediante el mismo método que PCT-B, excepto en que se utilizaron 90 partes en peso de ciclohexano dimetanol y 10 partes en peso de etilenglicol como compuesto diol.

40 PCT-H: resina de PCT preparada mediante el mismo método que PCT-B, excepto en que se utilizaron 90 partes en peso de ácido tereftálico y 10 partes en peso de ácido isoftálico como ácido dicarboxílico.

### Ejemplos experimentales

45 Cada uno de los pellets obtenidos en los Ejemplos y Ejemplos comparativos se moldeó por inyección formando un panel plano a una temperatura de entre 280°C y 300°C. Se midieron las propiedades mecánicas y reflectividad de los especímenes obtenidos de esta manera, mediante los métodos siguientes, y se proporcionan los resultados en las Tablas 3 y 4.

(1) Reflectividad inicial: el espécimen se expuso a luz de 370 a 740 nm de longitud de onda y se midió la reflectividad la luz de 450 nm de longitud de onda mediante la utilización de un espectrómetro de UV-vis-

NIR (espectrofotómetro Konica Minolta «CM-3600d»). Se midió la reflectividad en modo de reflexión total (modo 'Specular Component Inclusion' (SCI)) de medición de la reflexión difusa, incluyendo la reflexión especular.

5 (2) Resistencia al calor: tras almacenar el espécimen a 170°C durante 120 h, se expuso el espécimen a luz de 370 a 740 nm de longitud de onda y se midió la reflectividad a la luz de 450 nm de longitud de onda mediante la utilización de un espectrómetro de UV-vis-NIR (espectrofotómetro Konica Minolta «CM-3600d»). Se midió la reflectividad en modo de reflexión total (modo SCI) de medición de la reflexión difusa, incluyendo la reflexión especular.

10 (3) Retención de la reflectividad: se midió la retención de la reflectividad según la Ecuación 2 a continuación.

**[Ecuación 2]**

$$Y = R^t/R^0 * 100$$

15 dicho R<sup>0</sup> es la reflectividad obtenida mediante el método de medición de (1) reflectividad inicial, y R<sup>t</sup> es la reflectividad tras el almacenamiento a temperatura elevada obtenido mediante el método de medición de (2) la resistencia al calor.

20 (4) Resistencia a la intemperie: tras almacenar el espécimen a 85°C y una humedad relativa de 85% durante 500 h, se expuso el espécimen a luz de 370 a 740 nm de longitud de onda y se midió la reflectividad a la luz de 450 nm de longitud de onda mediante la utilización de un espectrómetro de UV-vis-NIR (espectrofotómetro Konica Minolta «CM-3600d»). Se midió la reflectividad en modo de reflexión total (modo SCI) de medición de la reflexión difusa, incluyendo la reflexión especular.

25 (5) Resistencia al amarilleamiento: tras almacenar el espécimen a 170°C durante 120 h, se observó el grado de amarilleamiento a partir del color-b (estándar de Hunter Lab) mediante la utilización de un medidor de la diferencia de color. Un valor de color-b más alto significa que se ha producido más fenómeno de amarilleamiento.

30 [Tabla 3]

	Ejemplos								
	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Reflectividad inicial [%]	94,2	94,5	94,8	94,0	94,1	93,0	95,7	92,6	95,0
Resistencia al calor [%]	90,7	91,7	92,4	91,0	90,8	87,5	92,4	86,58	91,6
Retención de la reflectividad [%]	96,3	97,0	97,5	96,8	96,5	94,1	96,6	93,5	96,4
Resistencia a la intemperie [%]	93,6	93,8	94,0	92,0	91,8	90,7	95,0	90,1	94,2
Resistencia al amarilleamiento	2,7	2,7	2,4	2,8	2,8	2,9	2,0	3,0	2,4

[Tabla 4]

	Ejemplos comparativos						
	1	2	3	4	5	6	7
Reflectividad inicial [%]	93,0	92,5	83,6	91,8	94,0	90,1	84,6
Resistencia al calor [%]	86,3	83,5	75,7	80,6	85,7	77,5	78,3
Retención de la reflectividad [%]	92,8	90,3	90,6	87,8	91,2	86,0	92,6
Resistencia a la intemperie [%]	91,2	90,6	81,0	89,6	92,5	87,8	83,9
Resistencia al amarilleamiento	2,9	3,1	7,0	3,1	2,7	3,5	5,1

35 En referencia a las Tablas 3 y 4, es reconocible que la composición de resina según una realización de la presente invención presenta reflectividad, resistencia al calor, retención de la reflectividad, resistencia a la intemperie y resistencia al amarilleamiento superiores, y particularmente resulta adecuada para la utilización como el material para reflectores de LED.

40

**REIVINDICACIONES**

1. Composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno, que incluye:

5           40% a 95% en peso de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno,  
           1% a 50% en peso de un pigmento blanco, y  
           1% a 50% en peso de un relleno,

10       en la que la cantidad de átomos de germanio (Ge) que permanece en la resina de tereftalato de  
 policiclohexilendimetileno es de 30 a 1000 ppm respecto al peso de la resina de tereftalato de  
 policiclohexilendimetileno.

15       2. Composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno según la reivindicación 1, en la que la  
 resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno es una resina polimerizada en presencia de un compuesto de  
 germanio.

20       3. Composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno según la reivindicación 1, en la que la  
 resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno es una resina polimerizada en presencia de compuesto de  
 germanio y compuesto de titanio.

25       4. Composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno según la reivindicación 1, en la que el  
 contenido del pigmento blanco es de 12% a 35% en peso.

30       5. Composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno según la reivindicación 1, en la que el  
 pigmento blanco es por lo menos uno seleccionado del grupo que consiste en óxido de titanio, óxido de cinc,  
 litopona (BaSO<sub>4</sub>·ZnS), plomo blanco (2PbCO<sub>3</sub>·Pb(OH)<sub>2</sub>), carbonato de calcio y nitruro de boro.

35       6. Composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno según la reivindicación 1, en la que el  
 contenido del relleno es de 1% a 27% en peso.

40       7. Composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno según la reivindicación 1, en la que el  
 relleno es por lo menos uno seleccionado del grupo que consiste en fibras de vidrio, fibras de carbono, fibras de  
 boro, perlas de vidrio, laminillas de vidrio, talco, wollastonita, fibrillas de titanato de calcio, fibrillas de ácido  
 alumino-bórico, fibrillas de óxido de cinc y fibrillas de calcio.

45       8. Composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno según la reivindicación 1, en la que la  
 resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno se obtiene mediante reacción de esterificación de ácidos  
 dicarboxílicos y compuestos diol o mediante reacción de trans-esterificación de compuestos éster de ácido  
 dicarboxílico y compuestos diol, y el ácido dicarboxílico completo es ácido tereftálico o el compuesto éster de  
 ácido dicarboxílico completo es tereftalato de dimetilo.

50       9. Composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno según la reivindicación 1, en la que la  
 resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno se obtiene mediante reacción de esterificación de ácidos  
 dicarboxílicos y compuestos diol o mediante reacción de trans-esterificación de compuestos éster de ácido  
 dicarboxílico y compuestos diol, y el compuesto diol completo es ciclohexano dimetanol.

10. Artículo, formado a partir de la composición de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno, que incluye:

55           40% a 95% en peso de resina de tereftalato de policiclohexilendimetileno,  
           1% a 50% en peso de un pigmento blanco, y  
           1% a 50% en peso de un relleno,

60       en la que la cantidad de átomos de germanio (Ge) que permanece en la resina de tereftalato de  
 policiclohexilendimetileno es de 30 a 1000 ppm respecto al peso de la resina de tereftalato de  
 policiclohexilendimetileno.

11. Artículo según la reivindicación 10, que se utiliza como un reflector de LED.

65       12. Artículo según la reivindicación 10, el valor de color-b del cual medido tras el almacenamiento del mismo a  
 170°C durante 120 horas es de 0 a 4.

13. Artículo según la reivindicación 10, la reflectividad del cual a la luz de 450 nm de longitud de onda medida en  
 modo de reflexión total es de 90% o superior.

14. Artículo según la reivindicación 10, que satisface la Ecuación 1 a continuación:

**[Ecuación 1]**

$$93\% \leq Y = R^1/R^0 * 100$$

En la Ecuación 1,

5 Y es la retención de la reflectividad,

R<sup>0</sup> es la reflectividad a la luz de 450 nm de longitud de onda medida en modo de reflexión total mediante la utilización del artículo, y

10 R<sup>1</sup> es la reflectividad a la luz de 450 nm de longitud de onda medida en modo de reflexión total tras el almacenamiento del artículo a 170°C durante 12 horas.

15. Artículo según la reivindicación 10, la reflectividad del cual a la luz de 450 nm de longitud de onda medida en modo de reflexión total tras el almacenamiento del artículo a 85°C y humedad relativa de 85% durante 500 h es de 90% o superior.