



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 699 16 918 T2 2005.04.14**

(12)

Übersetzung der europäischen Patentschrift

(97) EP 0 939 093 B1

(21) Deutsches Aktenzeichen: **699 16 918.6**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **99 300 965.3**

(96) Europäischer Anmeldetag: **10.02.1999**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **01.09.1999**

(97) Veröffentlichungstag
der Patenterteilung beim EPA: **06.05.2004**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **14.04.2005**

(51) Int Cl.⁷: **C08G 63/19**
C08G 63/60

(30) Unionspriorität:
30076 25.02.1998 US

(84) Benannte Vertragsstaaten:
DE, ES, FR, GB, IT, NL

(73) Patentinhaber:
General Electric Co., Schenectady, N.Y., US

(72) Erfinder:
Webb, Jimmy Lynn, Ballston Lake, New York 12019, US; Carter, Randall Lee, Clifton Park, New York 12065, US; Siclovan, Tiberiu Mircea, Schenectady, New York 12308, US; Littlejohn, Matthew Hal, Green Island, New York 12183, US; Pickett, James Edward, Schenectady, New York 12304, US

(74) Vertreter:
Luderschmidt, Schüler & Partner, 65189 Wiesbaden

(54) Bezeichnung: **Witterungsbeständige Copolymeren**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelebt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

Beschreibung

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft eine witterungsbeständige Weichblock-Copolymerzusammensetzung.

[0002] Die meisten Polymere zersetzen sich bekanntermaßen bei anhaltender Einwirkung von Sonnenlicht oder anderen Formen von Licht. Einer der beobachteten Effekte ist die Vergilbung des Polymers oder seiner Mischungen. Dieses Problem wurde durch die Verwendung von Lichtabsorptionsmitteln oder Lichtblockern, die das Eindringen von Licht begrenzen und somit die Zersetzung auf die Polymeroberfläche minimieren, teilweise gemildert. Daher werden Ultraviolett-Lichtabsorptionsmittel (UVA) bekanntermaßen verwendet, um Polymere vor der Zersetzung auf Grund der Einwirkung verschiedener Lichtquellen zu schützen.

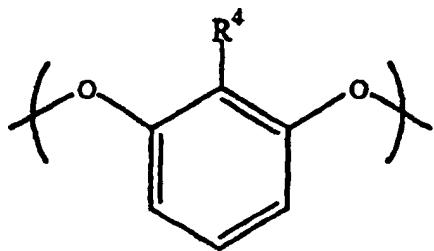
[0003] Die Verwendung von UVAs bietet jedoch keinen kompletten Schutz, da eine Zersetzung immer noch an der Oberfläche auftritt und letztendlich zur Verfärbung und Oberflächenversprödung führt, wenn auch mit einer verminderten Geschwindigkeit. Die Lebenszeit vieler Polymere in einer bewitternden Umgebung kann durch die Erhöhung der UVA-Beladung verlängert werden, wobei jedoch schließlich eine praktische Grenze erreicht wird, oberhalb der die physikalischen Eigenschaften des Polymers mit weiterer Zugabe der UVAs sich zu verschlechtern beginnen. Während eine hohe Beladung mit UVAs einen erhöhten Schutz bieten mag, abhängig von der Anwendung, können sie ebenso zu einer hohen Anfangsfärbung führen.

[0004] Eine Strategie zum Schutz vor lichtinduziertem Polymerabbau beinhaltet die Verwendung von latenten UVAs in Form aromatischer Polyarylate. Bei Einwirkung von Ultraviolettlicht unterliegen diese Zusammensetzungen der Photo-Friesumlagerung zur Bildung substituierter 2-Hydroxybenzophenon-Einheiten, die als UV-Absorber wirken, wie berichtet von S. B. Maerov in J. Polym. Sci. Part A, Vol. 3, S. 487–499, 1965, und schützen die Zusammensetzungen vor weiterer Zersetzung. Diese Polyarylate basieren im allgemeinen auf Estern von Bisphenolen, wie Bisphenol-A, mit Isophthalsäure und Terephthalsäure und besitzen eine hervorragende Beibehaltung von physikalischen Eigenschaften bei Bewitterung. Ein Beispiel eines solchen Polyarylates ist Ardel®D-100, das erhältlich ist von Union Carbide. Aus solchen Polymeren erzeugte 2-Hydroxybenzophenon-Einheiten sind jedoch sehr gelb und unerwünscht in Anwendungen, die während der Bewitterung eine geringe Farbänderung erfordern.

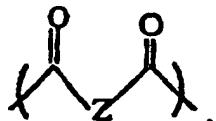
[0005] Versuche wurden durchgeführt, die Farbbildung durch Ersetzen der Bisphenol-Einheit in den Polyarylaten durch Resorcinol zu vermeiden, wie berichtet von S. M. Cohen, R. H. Young und A. H. Markhart in J. Polym. Sci. Part A-1, Vol. 9, S. 3263–3299, 1971. Obwohl die Verwendung von Resorcinol in einer sehr viel schwächeren Farbe bei Bestrahlung resultiert, wird von Polymeren, die auf Poly(resorcinolterephthalat) oder Poly(resorcinolisophthalat) basieren, berichtet, dass sie eine schlechte Löslichkeit besitzen und schwer bis zu einem hohen Molekulargewicht durch übliche Grenzflächen- oder Lösungsverfahren zu synthetisieren sind, auf Grund der Bildung hochkristalliner Oligomere. Zusätzlich müssen die Glasübergangstemperaturen solcher Zusammensetzungen hoch sein, vorzugsweise höher als etwa 100°C, so dass die Polymere in technischen thermoplastischen Anwendungen verwendet werden können. Das U.S. Patent Nr. 4,390,683 offenbart eine mono-axial oder biaxial gestreckte Filmstruktur, oder eine thermofixierte Struktur davon, für einen ungestreckten Film aus einem aromatischen Polyester des Poly-1,3-phenylterephthalat-Typs. Dieses Patent berichtet jedoch nicht über die Anfangsfärbung oder Bewitterungsfähigkeit der gestreckten Filmstrukturen.

[0006] Daher existiert ein Bedürfnis für hochmolekulargewichtige Polyarylat-Polymerzusammensetzungen, die leicht in hoher Ausbeute hergestellt werden können und die eine geringe Farbänderung bei Bestrahlung zeigen. Es existiert ebenso ein anhaltendes Bedürfnis für Polymere, die bei Einwirkung von Licht nicht die erwünschten physikalischen Eigenschaften des Polymers verlieren.

[0007] Die vorliegende Erfindung stellt eine witterungsbeständige Polyesterweichblock-Copolymerzusammensetzung zur Verfügung, umfassend Struktureinheiten der Formeln A, B und C:

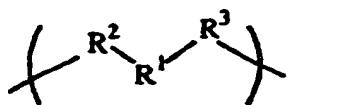


Formel A



Formel B

und



Formel C

worin R¹ geradkettiges C₃₋₂₀ Alkylen, verzweigtes C₃₋₁₀ Alkylen oder zyklisches oder bzyklisches C₄₋₁₀ Alkylen darstellt;

R²

oder -CH₂-O- darstellt;

R³

oder -CH₂-O- darstellt;R⁴ H, geradkettiges C₁₋₈, Alkyl oder verzweigtes C₄₋₈ Alkyl darstellt;

und Z 1,3-Phenylen, 1,4-Phenylen und/oder 2,6-Naphthylen darstellt;

worin die Formel B wenigstens etwa 40 Mol-% 1,3-Phenylen umfasst und die Formel C zwischen etwa 1 und etwa 45 Mol-% zu den Esterbindungen des Polyesters beiträgt.

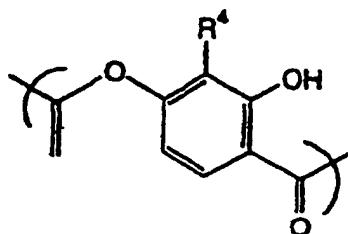
[0008] Der hier verwendete Begriff Weichblock-Copolymere gibt an, dass einige Segmente der Polymere aus nichtaromatischen Monomereinheiten hergestellt sind. Solche nichtaromatischen Monomereinheiten sind im allgemeinen aliphatisch und verleihen den Weichblockpolymeren bekanntermaßen Flexibilität. Chemische Einheiten innerhalb einer Klammer () stellen auch wiederholende Struktureinheiten dar, die zu dem Polyesterweichblock-Polymer dieser Erfindung beitragen.

[0009] In einer Ausführungsform der vorliegenden Erfindung wird eine Zusammensetzung bereitgestellt, worin Z mindestens etwa 50 Mol-% 1,3-Phenylen umfasst. Eine weitere Ausführungsform stellt eine Zusammensetzung zur Verfügung, worin R¹ C₃₋₁₄ geradkettiges Alkylen oder C₅₋₆ Cycloalkylen darstellt und eine bevorzugte Zusammensetzung ist eine solche, worin R¹ C₆-Cycloalkylen oder C₃₋₁₀ geradkettiges Alkylen darstellt.

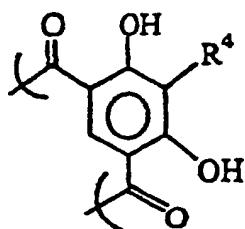
[0010] Zusätzliche Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung stellen eine Zusammensetzung zur Verfügung, worin die Formel C etwa 5 bis etwa 40 Mol-% zu den Esterverknüpfungen des Polyesters beiträgt, wo-

bei etwa 5 bis etwa 20 Mol-% besonders bevorzugt sind.

[0011] Ein weiterer Aspekt der vorliegenden Erfindung stellt eine witterungsbeständige Polyesterweichblock-Copolymerzusammensetzung zur Verfügung, die Struktureinheiten der Formel D umfasst und wahlweise Struktureinheiten der Formeln E und F umfasst:

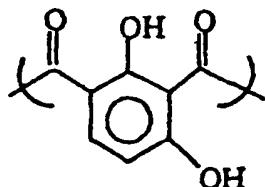


Formel D



Formel E

und



Formel F

worin R⁴ wie zuvor definiert ist.

[0012] Zusammensetzungen, die durch die Formeln A, B, C, D, E und F dargestellte Struktureinheiten umfassen, können hergestellt werden, indem man Zusammensetzungen, die durch die Formeln A, B und C dargestellte Struktureinheiten umfassen, dem Licht aussetzt. Diese Zusammensetzungen unterliegen der Fries-Umlagerung, wobei durch die Formel A dargestellte Struktureinheiten zumindest teilweise in durch die Formel D dargestellte Struktureinheiten überführt werden. Die Friesumlagerung überführt z. B. einen aromatischen Ester in ein Hydroxybenzophenon. Die Friesumlagerung kann ebenso durch die Formel A dargestellte Struktureinheiten in die Formel E und Formel F überführen. Es sollte beachtet werden, dass die Fries-Umlagerung ebenso unter thermischen Bedingungen auftreten kann, wie dem Fachmann bekannt ist.

[0013] Eine noch weitere Ausführungsform der vorliegenden Erfindung stellt Zusammensetzungen zur Verfügung, die durch die Formel A, B, C und D dargestellte Struktureinheiten umfassen, worin das Molverhältnis von durch die Formel A dargestellten Struktureinheiten zu durch die Formel D dargestellten Struktureinheiten im Bereich von etwa 99 : 1 bis 1 : 1 liegt. Eine weitere Ausführungsform stellt eine Zusammensetzung zur Verfügung, worin das Molverhältnis von durch die Formel A dargestellten Struktureinheiten zu durch die Formel D dargestellten Struktureinheiten von etwa 99 : 1 bis etwa 80 : 20 beträgt. Eine bevorzugte Ausführungsform stellt eine Zusammensetzung zur Verfügung, worin Z einen monozyklischen aromatischen Ring umfasst, in welcher mindestens 40 Mol-% des monozyklischen aromatischen Rings 1,3-Phenylen ist und der Rest 1,4-Phenylen ist.

[0014] Weitere Ausführungsformen, worin die Polyesterzusammensetzung Struktureinheiten der Formel D und wahlweise der Formeln E und F umfasst, stellen eine Formulierung zur Verfügung, worin R¹, in Formel C,

C_{3-14} geradkettiges Alkylen oder C_{5-6} Cycloalkylen darstellt, wobei eine besonders bevorzugte Zusammensetzung eine solche ist, worin $R^1 C_6$ -Cycloalkylen oder C_{3-10} geradkettiges Alkylen darstellt.

EXPERIMENTELLE DETAILS

[0015] Die in der vorliegenden Erfindung beanspruchten Zusammensetzungen können durch Grenzflächen-Polykondensation, Schmelzpolykondensation, Festphasenpolymerisation oder andere Verfahren hergestellt werden, die dem Fachmann bekannt sind.

Verfahren A: Verwendung von aliphatischer Disäure als Weichblock

[0016] In einen 1 Liter 4-Halskolben, ausgerüstet mit einem mechanischen Rührer, Stickstoffeinlass, Rückflusskühler und zwei Druckausgleichszugabettichern, wurden Cetyl-Triethylammoniumbromid (1,82 g, 5,00 mmol), frisch destilliertes Resorcinol (11,01 g, 100 mmol), p-Cumylphenol (28,2–212 mg, 0,25–1 mol-%) als Kettenstopper und entgastes Dichlormethan (150 ml) gegeben. Der Kolben wurde mit Stickstoff bedeckt. Einer der Zugabetticher wurde mit Natriumhydroxid (NaOH)-Pellets (8,04 g, 200 mmol) und Wasser (50 ml) beladen. Die wässrige Natriumhydroxidlösung wurde gekühlt, während Stickstoff über 5 Minuten durch die Lösung geperlt wurde. Isophthaloylchlorid (18,27 g, 90 mmol), Sebacoylchlorid (2,41 g, 10,08 mmol) und Dichlormethan (100 ml) wurden in den zweiten Zugabetticher gegeben und die resultierende Säurechloridmischung wurde 5 Minuten entgast. Benzoylchlorid (0,25–1 Mol-%) können anstatt p-Cumylphenol der Säurechloridmischung zugegeben werden, um als Kettenstopper zu dienen. Die kalte (20°C) Natriumhydroxidlösung wurde zu den Kolbeninhalten gegeben, bei einer Rürgeschwindigkeit, die den Rückfluss des Lösungsmittels verhinderte, was zur Bildung einer weiß durchscheinenden Emulsion führte. Die Mischung der Säurechloride wurde dann zu der weiss durchscheinenden Emulsion mit einer solchen Geschwindigkeit gegeben, dass ein milder Rückfluss aufrechterhalten wurde und verhindert wurde, dass jegliches Azeotrop die Säurechloridlösung verschmutzt. Die weiße Emulsion wurde bei Raumtemperatur eine Stunde gerührt und das so gebildete Polymer wurde in kaltem (20°C) Methanol gefällt, mit Wasser gewaschen, mit Methanol gewaschen und im Vakuum getrocknet, um 26,6 g, 95 Mol-% eines weißen, faserförmigen polymeren Materials zu erhalten.

[0017] Eine Gelpermeationschromatographie (GPC)-Analyse (unter Verwendung von Chloroform/2 Vol.-% Isopropanol) zeigte eine bimodale Verteilung mit einem Höchstmolekulargewicht zwischen etwa 200.000 und etwa 30.000, abhängig von der Menge verwendeten Kettenstoppers, und einen zweiten Peak, der bei etwa 1200 zentriert war. Ein Polymer, das eine unimodale Molekulargewichtsverteilung zeigt, kann erhalten werden durch Erhitzen des weißen faserförmigen Polymermaterials über 5 Minuten bei 250°C.

Verfahren B: Verwendung von aliphatischem Diol als Weichblock

[0018] In einen 1 Liter 4-Halskolben, ausgerüstet mit einem mechanischen Rührer, Stickstoffeinlass, Rückflusskühler und zwei Druckausgleichszugabettichern, wurden Cetyltrimethylammoniumbromid (1,640 g, 4,5 mmol) und Resorcinol (11,01 g, 100 mmol) gegeben. Der Kolben wurde mit Stickstoff überdeckt. Einer der Zugabetticher wurde mit 50 ml trockenem Dichlormethan, Hexandiol (10 mmol) und trockenem Triethylamin (3 ml, 22 mmol) beladen. Eine Lösung von Isophthaloylchlorid (20,302 g, 100 mmol) in 50 ml trockenem Trichlormethan wurde anschließend in den obigen Zugabetticher gegeben und die resultierende gelbliche Mischung wurde gelegentlich unter einer trockenen Stickstoffatmosphäre gerührt. Währenddessen wurde der zweite Zugabetticher mit einer Lösung aus Natriumhydroxid (7,2 g, 185 mmol) in entionisiertem Wasser (45 ml) beladen. Diese wässrige Natriumhydroxidlösung wurde mittels Durchperlen von Stickstoff entgast. Bei Verschwinden der gelben Farbe, die anfänglich in dem das Säurechlorid enthaltenden Trichter gebildet wurde, aber nicht früher als 30 Minuten nach der Säurechlorid (Isophthaloylchlorid)-Zugabe wurde der Kolben, der Cetyltrimethylammoniumbromid und Resorcinol enthielt, mit Dichlormethan (150 ml) beladen. Während Rühren wurde die wässrige Natriumhydroxidlösung zu den Inhalten des Kolbens gegeben. Eine weiße, durchscheinende Emulsion bildete sich. Die Säurechlorid enthaltende Lösung wurde anschließend zu der weißen durchscheinenden Emulsion gegeben, bei einer solchen Geschwindigkeit, dass nur ein moderater Rückfluss resultierte, was die durchscheinende Emulsion in eine undurchsichtige Polymeremulsion verwandelte. Die weiße, undurchsichtige Emulsion wurde weiterhin bei Raumtemperatur über eine Stunde gerührt. Das so erhaltene Polymer wurde unter den gleichen Bedingungen aufgearbeitet, die auch bei der typischen Grenzflächenpolykondensation, wie zuvor beschrieben, verwendet wurden.

Verfahren C: Verwendung von aliphatischer ω -Hydroxycarbonsäure als Weichblock

[0019] In einen trockenen 100 ml Dreihalskolben, ausgerüstet mit einem Rückflusskühler, magnetischem

Rührer und einem mit Teflon ausgekleideten Septum wurden Isophthaloylchlorid (18,272 g, 90 mmol) und die ω -Hydroxydodecansäure (10 mmol) gegeben. Die Mischung wurde eine halbe Stunde auf 85–90°C gehalten, währenddessen sich eine homogene Lösung bildete und gasförmige Chlorwasserstoffsäure wurde gebildet. Thionylchlorid (1,5 ml, 22 mmol) wurden anschließend zu der Mischung gegeben und die Mischung wurde weiterhin für eine halbe Stunde bei dieser Temperatur gerührt. Vakuum wurde anschließend aufgebracht, um überschüssiges Thionylchlorid wie auch das Chlorwasserstoffgas zu entfernen. Die Entgasung wurde bei Erreichen des Siedepunktes von Isophthaloylchlorid gestoppt. Die Mischung wurde unter trockenem Stickstoff gekühlt und in einen trockenen Druckausgleichs-Zugabetticher als Lösung in trockenem Dichlormethan (100 ml) gegeben.

[0020] Die Polymerisation wurde durchgeführt wie im Verfahren 1 für das typische Grenzflächenverfahren beschrieben, unter Verwendung von Cetyltrimethylammoniumbromid (1,640 g, 4,5 mmol) und Resorcinol (9,910 g, 90 mmol) in Dichlormethan (140 ml) und Natriumhydroxid (7,20 g, 185 mmol) in entionisiertem Wasser (45 ml). Das so erhaltene Polymer wurde aufgearbeitet, wie zuvor für das typische Grenzflächenverfahren beschrieben.

[0021] Tetrabutylammoniumhalogenid kann anstatt Cetyltrimethylammoniumbromid in den obigen Verfahren eingesetzt werden. Weitere Tetraalkylammoniumhalogenid-Phasentransferreagenzien, die dem Fachmann bekannt sind, können ebenso verwendet werden. Die Alkylgruppe stellt typischerweise C_{1-16} Alkyl dar.

[0022] Die Tabellen 1A und 1B listet die verschiedenen Zusammensetzungen auf, die durch die oben skizzierten allgemeinen Verfahren hergestellt wurden.

Tabelle 1A: Dicarboxylat-Weichblöcke. Das Diol ist in allen Fällen Resorcinol (außer Eintrag 27)

Eintrag #	% Isophthalat	% Hartblock #2	% Weichblock	max. Molgewicht	Tg
1	100	0	0	ausgefallen während der Reaktion	
2	90	0	10 Sebacat	91500	116
3	80	0	20 Sebacat	122500	99
4	70	0	30 Sebacat	143500	78
5	60	0	40 Sebacat	78500	59
6	50	0	50 Sebacat	95500	44
7	90	0	10 1,4-Cyclohexandicarboxylat	504000	143
8	80	0	20 1,4-Cyclohexandicarboxylat	79500	130
9	70	0	30 1,4-Cyclohexandicarboxylat	37000	129
10	60	0	40 1,4-Cyclohexandicarboxylat	56000	126
11	50	0	50 1,4-Cyclohexandicarboxylat	107000	122
12	80	10 Terephthalat	10 Sebacat	45000	120
13	70	20 Terephthalat	10 Sebacat	45000	120
14	60	30 Terephthalat	10 Sebacat	89500	121
15	50	40 Terephthalat	10 Sebacat	55000	120
16	50	48 Terephthalat	2 Sebacat	158000	142
17	50	45 Terephthalat	5 Sebacat	63000	131
18	40	50 Terephthalat	10 Sebacat	125500	123
19	30	60 Terephthalat	10 Sebacat	91500	126
20	0	90 Terephthalat	10 Sebacat	31500	130**
21	80	10 2,6-Naphthalindicarboxylat	10 Sebacat	63500	122
22	70	20 2,6-Naphthalindicarboxylat	10 Sebacat	57000	123
23	60	30 2,6-Naphthalindicarboxylat	10 Sebacat	112000	133
24	50	40 2,6-Naphthalindicarboxylat	10 Sebacat	145500	139
25	40	50 2,6-Naphthalindicarboxylat	10 Sebacat	373000	145
26	10	80 2,6-Naphthalindicarboxylat	10 Sebacat	ausgefallen während der Reaktion	
27*	90	0	10 Sebacat	81750	135

* verwendete 2-Methyl Resorcinol anstatt Resorcinol
 ** Polymer zeigte ebenso einen Schmelzpunkt von 278°C

Tabelle 1B: Diol und Säure-Alkohol-Weichblöcke

Eintrag #	% Isophthalat	% Resorcinol	% Weichblock	max. Molgewicht.	Tg(°C)
28	100	90	10 1,6-Hexandiol	81.500	136
29	100	90	10 1,10-Decandiol	52.750	119
30	100	90	10 1,4-Cyclohexandimethanol	82.500	125
31	95	95	10 12-Hydroxydodecanoat	42.300	113

Physikalische Eigenschaften und Bewitterungsfähigkeit

[0023] Skizziert in Tabelle 1A sind die Glasübergangstemperaturen (Tg) für eine Serie von Polymeren mit variierenden Verhältnissen von aliphatischen Weichblöcken. Die Tg des Copolymers kann eingestellt werden durch die Identität und Konzentration der Weichblockkomponente, wodurch man Copolymeren erzielt, die leicht in der Schmelze verarbeitet werden können, ohne das man die unerwünschte Eigenschaft einer hohen Farbbildung bei Bewitterung einführt, wie angegeben durch einen YI-Wert von gleich oder weniger als die Hälfte im Vergleich zu dem YI-Wert der Referenz in Tabelle 2.

Witterungsbeständigkeit

[0024] Die überlegene Farbbeibehaltung der hier beanspruchten Zusammensetzungen kann gezeigt werden durch Beobachtung der Farbbildung in dünnen Filmen, die beschleunigten Bewitterungsbedingungen ausgesetzt sind. Filme von annähernd 60 Micron Dicke wurden gebildet durch Pressen von Proben beispielhafter Zusammensetzungen. Alle Zusammensetzungen ergaben feste, im wesentlichen transparente und farblose Filme. Diese Filme wurden in einem Atlas Ci35a Xenonbogen-Bewitterungsapparat® belichtet, der mit inneren und äußeren Borsilikatfiltern versehen war. Der Lichtzyklus war 160 Minuten lang, bei einer Einstrahlung von 0,77 Watt pro Quadratmeter (W/m²) bei 340 nm mit einer Black-Panel-Temperatur von 70°C und einer Dry-bulb-Temperatur von 45°C. Der Dunkelzyklus war 20 Minuten lang mit einer Wasserbesprühung während der letzten 15 Minuten. Die Belichtung wurde gemessen in Gesamtkilojoule pro Quadratmeter (kJ/m²) bei einer Bestrahlung bei 340 nm. Die Transmissionsfarbe wurde als Vergilbungsindeks (YI), gemessen gemäß ASTM D1925 an einem Gardner XL-835-Colorimeter, bestimmt. Die Änderungen in YI nach 713 kJ/m² Belichtung sind in Tabelle 2 gezeigt. Bei dieser Menge Belichtung erreichten die Farbverschiebungen einen nahezu konstanten Wert.

Tabelle 2

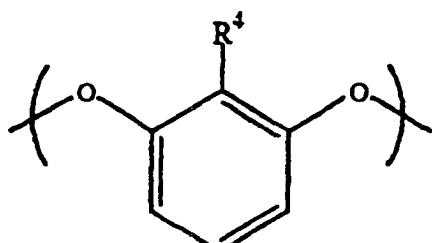
Eintrag	Anfängliches YI	Delta YI nach 713 kJ/m ² Belichtung
Referenz *	1,4	12,6
2	2,6	3,3
7	6,5	4,9
18	3,4	3,9
21	3,5	6,3

Ardel® D-100: Bisphenol-A Iso/Terephthalat

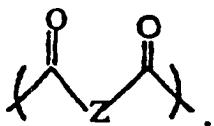
[0025] Die obigen Daten zeigen, dass die Farbverschiebungen der Weichblock-enthaltenden Resorcinol-basierten Polyarylate, Bsp. 2, 7, 18 und 21, ganz klar geringer sind, als bei dem kommerziellen Ardel®-Polyarylät auf Basis von Bisphenol-A, der Referenzprobe.

Patentansprüche

1. Eine witterungsbeständige Polyesterweichblock-Copolymerzusammensetzung umfassend Struktureinheiten der Formeln A, B und C:

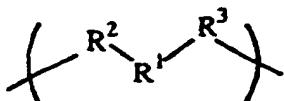


Formel A



Formel B

und



Formel C

worin R^1 geradkettiges C_{3-20} Alkylen, verzweigtes C_{3-10} Alkylen oder zyklisches oder bizyklisches C_{4-10} Alkylen darstellt;

 R^2 oder $-CH_2-O-$ darstellt; R^3 oder $-CH_2-O-$ darstellt; R^4 H, geradkettiges C_{1-8} Alkyl oder verzweigtes C_{4-8} Alkyl darstellt;und Z 1,3-Phenylen, 1,4-Phenylen und/oder 2,6-Naphthylen darstellt;

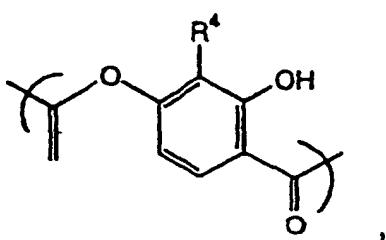
worin die Formel B wenigstens 40 Mol-% 1,3-Phenylen umfasst und die Formel C zwischen 1 und 45 Mol-% zu den Esterbindungen des Polyesters beiträgt.

2. Zusammensetzung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Formel C von 5 bis 40 Mol-% zu den Esterbindungen des Polyesters beiträgt.

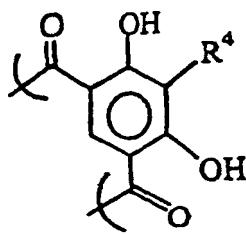
3. Zusammensetzung nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, dass die Formel C von 5 bis 30 Mol-% zu den Esterbindungen beiträgt.

4. Zusammensetzung nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Formel B wenigstens 50 Mol-% 1,3-Phenylen umfasst.

5. Zusammensetzung nach einem der vorhergehenden Ansprüche, weiterhin umfassend Struktureinheiten, dargestellt durch Formel D und optional durch Formeln E und F:

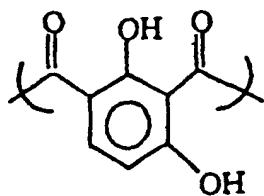


Formel D



Formel E

und



Formel F

worin:

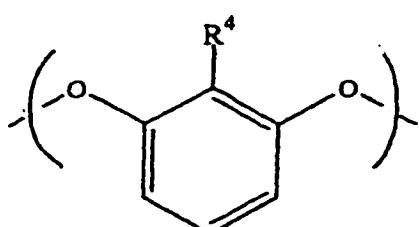
R⁴ H, geradkettiges C₁₋₈ Alkyl oder verzweigtes C₄₋₈ Alkyl darstellt.

6. Zusammensetzung nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, dass das molare Verhältnis von Struktureinheiten dargestellt durch Formel A zu Struktureinheiten dargestellt durch Formel D im Bereich von 99 : 1 bis 80 : 20 liegt.

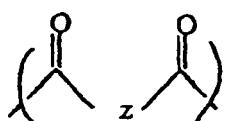
7. Zusammensetzung nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass wenigstens 40 Mol-% der Formel B 1,3-Phenylen umfasst und die restlichen 1,4-Phenylen sind.

8. Zusammensetzung nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass R¹ geradkettiges C₃₋₁₀ Alkylen oder C_{5-C₆} Zykloalkylen darstellt.

9. Witterungsbeständige Polyesterweichblock-Copolymerzusammensetzung umfassend Struktureinheiten der Formeln A, B und C:

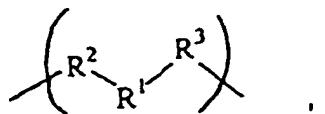


Formel A



Formel B

und



Formel C

worin R^1 geradkettiges C_{3-10} Alkylen oder C_6 Cycloalkylen darstellt;
 R^2

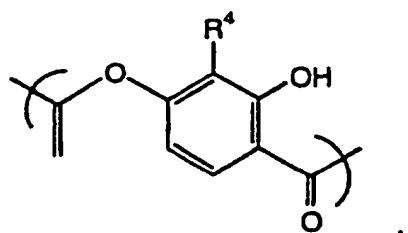


oder $-CH_2-O-$ darstellt;
 R^3

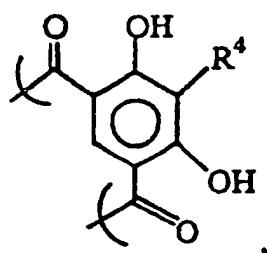


oder $-CH_2-O-$ darstellt;
 R^4 H oder CH_3 darstellt; und
Z 1,3-Phenylen, 1,4-Phenylen und/oder 2,6-Naphthylen darstellt;
wobei Formel B wenigstens 40 Mol-% 1,3-Phenylen umfasst und Formel C von 5 bis 20 Mol-% zu den Esterbindungen des Polyesters beiträgt.

10. Zusammensetzung nach Anspruch 9, weiterhin umfassend Struktureinheiten dargestellt durch Formel D und ggf. durch Formeln E und F:

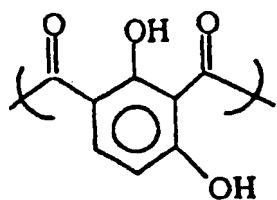


Formel D



Formel E

und



Formel F

Es folgt kein Blatt Zeichnungen