



(12)

Veröffentlichung

der internationalen Anmeldung mit der
(87) Veröffentlichungs-Nr.: **WO 2022/260076**
in der deutschen Übersetzung (Art. III § 8 Abs. 2
IntPatÜbkG)
(21) Deutsches Aktenzeichen: **11 2022 002 972.2**
(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/JP2022/023112**
(86) PCT-Anmeldetag: **08.06.2022**
(87) PCT-Veröffentlichungstag: **15.12.2022**
(43) Veröffentlichungstag der PCT Anmeldung
in deutscher Übersetzung: **21.03.2024**

(51) Int Cl.: **C08L 83/10** (2006.01)

C08L 83/04 (2006.01)
C08L 69/00 (2006.01)
C08J 5/00 (2006.01)
C08K 3/016 (2018.01)
C08K 5/523 (2006.01)

(30) Unionspriorität:
2021-096799 **09.06.2021** **JP**

(71) Anmelder:
IDEMITSU KOSAN CO., LTD., Tokyo, JP

(74) Vertreter:
HOFFMANN - EITL Patent- und Rechtsanwälte
PartmbB, 81925 München, DE

(72) Erfinder:
Yabukami, Minoru, Tokyo, JP; Hanioka, Yuto,
Tokyo, JP; Watanabe, Nobuhiro, Tokyo, JP;
Isozaki, Toshio, Tokyo, JP

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen.

(54) Bezeichnung: **Polycarbonat-Harzzusammensetzung und Formkörper**

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung stellt bereit: [1] eine Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis, umfassend: ein Harz auf Polycarbonatbasis (S), das ein Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) enthält, das einen Polyorganosiloxan-Block (A-1), der eine spezifische Struktureinheit umfasst, und einen Polycarbonat-Block (A-2), der eine spezifische Struktureinheit umfasst, aufweist; und einen Flammschutzmittel (B); und [2] ein Formkörper, der die Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß dem vorstehenden Punkt [1] umfasst.

Beschreibung

Technisches Gebiet

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft eine Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis und einen Formkörper.

Stand der Technik

[0002] Ein Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer hat Beachtung gefunden, weil dessen Eigenschaften, wie Schlagfestigkeit, chemische Beständigkeit und Flammhemmung, zufriedenstellend sind. Es ist entsprechend erwartet worden, dass das Copolymer weithin in verschiedenen Gebieten eingesetzt wird, einschließlich des Gebiets elektrischer und elektronischer Geräte sowie im Automobilbereich.

[0003] Technologien, die jeweils solch ein Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer betreffen, sind zum Beispiel in PTL 1 und 2 beschrieben.

[0004] In PTL 1 wird ein Verfahren zur Herstellung eines Polysiloxan/Polycarbonat-Block-Co-Kondensationsprodukts beschrieben, wobei das Verfahren das Umsetzen von (a) einem Hydroxyaryloxy-terminierten Dimethylsiloxan mit (b) einem Oligocarbonat, das ein gewichtsgemittelttes Molekulargewicht von 3.000 bis 24.000 und ein molares Verhältnis zwischen einer endständigen OH-Gruppe und einer endständigen Arylgruppe von 10:90 bis 70:30 aufweist, in geschmolzenen Zuständen in einem Gewichtsverhältnis von (a) zu (b) zwischen 1:99 und 40:60 bei einer Temperatur von 250°C bis 320°C und einem Druck von 0,01 Millibar und 100 Millibar umfasst.

[0005] In PTL 2 wird ein Verfahren zur Herstellung eines Polysiloxan-Polycarbonat-Block-Co-Kondensats beschrieben, das das Umsetzen eines Polydialkylsiloxans mit zumindest einer Art von endständigem Hydroxyaryl mit zumindest einer Art von Polycarbonat in einer Schmelze umfasst, wobei das Verfahren durch mindestens zwei Schritte in einer Kombination von Reaktoren durchgeführt wird, die zumindest von einem vorläufigen Reaktor, einem Hochviskositätsreaktor und einer Entladevorrichtung gebildet werden.

Literaturliste

Patentliteratur

PTL 1: JP 10-251408 A

PTL 2: JP 2016-532733 T

Zusammenfassung der Erfindung

Technisches Problem

[0006] Eine von den hiesigen Erfindern durchgeführte Untersuchung hat ergeben, dass eine Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis, die durch Vermischen solch eines Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymers, das unter Verwendung eines Polyorganosiloxans mit endständigem Aryl, wie zum Beispiel in jedem von PTL 1 und 2 beschrieben ist, mit einem Flammhemmer erhalten wird, zu einer Verbesserung der Balance zwischen den Zugeigenschaften und der Flammhemmung eines zu erhaltenden Formkörpers führen kann.

[0007] Die vorliegende Erfindung ist angesichts der vorstehend erwähnten Umstände gemacht worden und stellt eine Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis bereit, die einen bezüglich der Balance zwischen den Zugeigenschaften und der Flammhemmung verbesserten Formkörper bereitstellen kann.

[0008] Die vorliegende Erfindung stellt ferner einen Formkörper aus einem Harz auf Polycarbonatbasis bereit, der eine verbesserte Balance zwischen den Zugeigenschaften und der Flammhemmung aufweist.

Lösung des Problems

[0009] Die hiesigen Erfinder haben herausgefunden, dass eine Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis, die ein Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) mit einer spezifischen Struktur und einen Flamm-

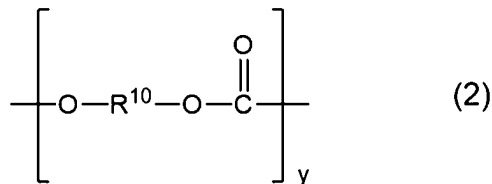
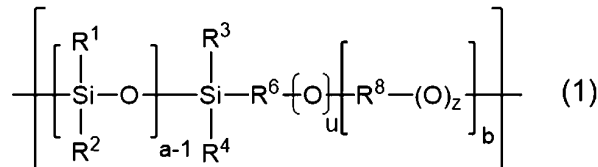
hemmer (B) umfasst, einen Formkörper mit verbesserter Balance zwischen den Zugeigenschaften und der Flammhemmung bereitstellen kann.

[0010] Das heißt, erfindungsgemäß werden die folgende Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis und der Formkörper bereitgestellt.

[1] Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis, umfassend:

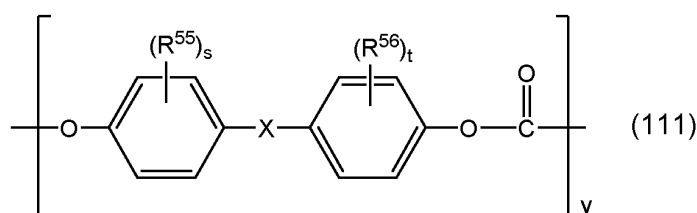
ein Harz auf Polycarbonatbasis (S), das ein Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) enthält,

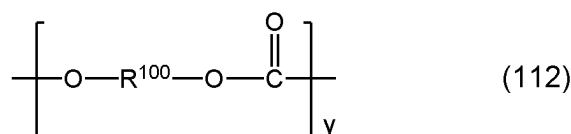
das einen Polyorganosiloxan-Block (A-1), der eine durch die Formel (1) dargestellte Struktureinheit umfasst, und einen Polycarbonat-Block (A-2), der eine durch die Formel (2) dargestellte Struktureinheit umfasst, aufweist; und einen Flammhemmer (B):



worin R¹ bis R⁴ jeweils unabhängig ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom, eine Alkylgruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen, eine Alkoxygruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen, eine Arylgruppe mit 6 bis 12 Kohlenstoffatomen oder eine Alkylarylgruppe mit 7 bis 22 Kohlenstoffatomen darstellen, R⁶ eine Arylgruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, eine Alkylengruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine Alkylarylengruppe mit 7 bis 22 Kohlenstoffatomen darstellt, und diese Gruppen jeweils in zumindest einem von einer Hauptkette oder einer Seitenkette hiervon zumindest eine Gruppe aufweisen können, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus: -O-; -COO-; -CO-; -S-; -NH- und -NR¹¹¹-, mehrere R⁸ gleich oder verschieden sein können und jeweils eine Arylgruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, eine Alkylengruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine Alkylarylengruppe mit 7 bis 22 Kohlenstoffatomen darstellen, und diese Gruppen jeweils in zumindest einem von einer Hauptkette oder einer Seitenkette hiervon zumindest eine Gruppe enthalten können, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus: -O-; -COO-; -CO-; -S-; -NH- und -NR¹¹¹-, R¹¹¹ eine Alkylgruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine Arylgruppe mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen darstellt, „z“ und „u“ jeweils 0 oder 1 darstellen, „a“ eine ganze Zahl von 2 bis 500 darstellt, „b“ eine ganze Zahl von 2 bis 200 darstellt, R¹⁰ eine divalente aliphatische Kohlenwasserstoffgruppe mit 2 bis 40 Kohlenstoffatomen, eine divalente alicyclische Kohlenwasserstoffgruppe mit 3 bis 40 Kohlenstoffatomen oder eine divalente aromatische Kohlenwasserstoffgruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen darstellt, und diese Gruppen jeweils mit einem Substituenten substituiert sein können und jeweils zumindest ein Atom enthalten können, das ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus: einem Sauerstoffatom; einem Stickstoffatom; einem Schwefelatom; und einem Halogenatom, und „y“ eine ganze Zahl von 10 bis 500 darstellt.

[2] Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß vorstehendem Punkt [1], worin der Polycarbonat-Block (A-2) zumindest eines von einer durch die Formel (111) dargestellten Struktureinheit oder einer durch die Formel (112) dargestellten Struktureinheit umfasst:

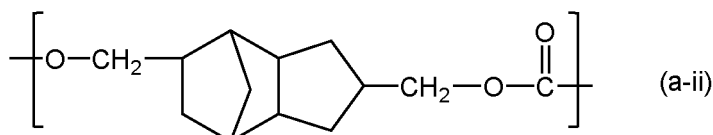
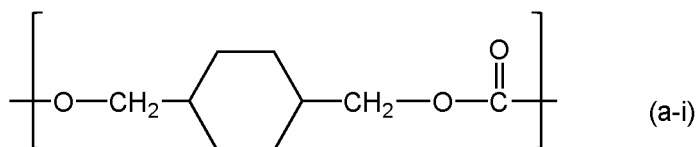


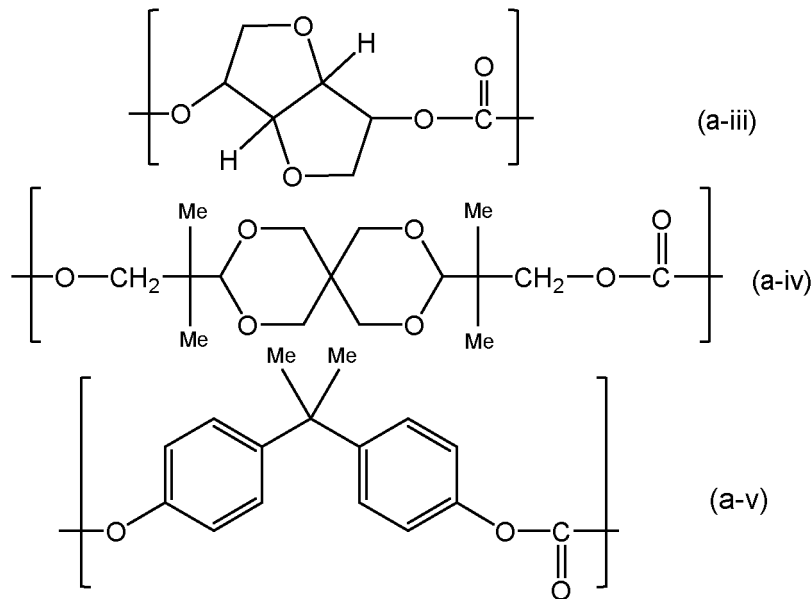


worin R⁵⁵ und R⁵⁶ jeweils unabhängig ein Halogenatom, eine Alkylgruppe mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder eine Alkoxygruppe mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen darstellen, X eine Einfachbindung, eine Alkylengruppe mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, eine Alkylidengruppe mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, eine Cycloalkylengruppe mit 5 bis 15 Kohlenstoffatomen, eine Arylengruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, eine Cycloalkylidengruppe mit 5 bis 15 Kohlenstoffatomen, eine Fluorendiylgruppe, eine Arylalkylengruppe mit 7 bis 15 Kohlenstoffatomen, eine Arylalkylidengruppe mit 7 bis 15 Kohlenstoffatomen, -S-, -SO-, -SO₂-, -O- oder -CO- darstellt, R¹⁰⁰ eine divalente aliphatische Kohlenwasserstoffgruppe mit 2 bis 40 Kohlenstoffatomen darstellt, und die divalente aliphatische Kohlenwasserstoffgruppe zumindest eines umfassen kann, das ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus: einer verzweigten Struktur; und einer cyclischen Struktur, und zumindest ein Atom enthalten kann, das ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus: einem Sauerstoffatom; einem Stickstoffatom; einem Schwefelatom; und einem Halogenatom, „y“ eine ganze Zahl von 10 bis 500 darstellt und „s“ und „t“ jeweils unabhängig eine ganze Zahl von 0 bis 4 darstellen.

[3] Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß vorstehendem Punkt [1] oder [2], worin der Polycarbonat-Block (A-2) eine Struktureinheit umfasst, die aus zumindest einer Verbindung abgeleitet ist, die ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus: 2,2-Bis(4-hydroxyphenyl)propan; 2,2-Bis(4-hydroxy-3-methylphenyl)propan; 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)cyclohexan; 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)-3-methylcyclohexan; 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan; 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)cyclododecan; Isosorbid; Cyclohexan-1,4-dimethanol; Tricyclodecandimethanol; 3,9-Bis(1,1-dimethyl-2-hydroxyethyl)-2,4,8,10-tetraoxaspiro[5.5]undecan; 1,3-Propandiol; und 1,4-Butandiol.

[4] Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Punkte [1] bis [3], worin der Polycarbonat-Block (A-2) zumindest eines umfasst, das ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus durch die Formeln (a-i) bis (a-v) dargestellten Struktureinheiten

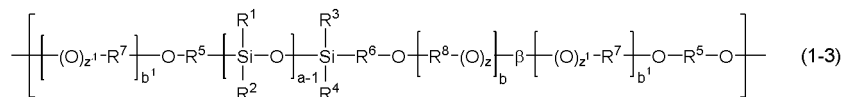
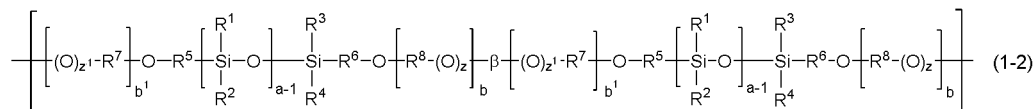
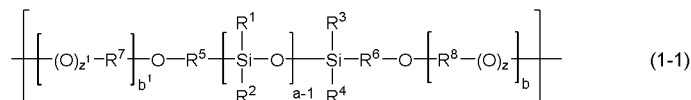




[5] Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Punkte [1] bis [4], worin das „a“ eine ganze Zahl von 2 oder größer und 300 oder kleiner darstellt.

[6] Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Punkte [1] bis [5], worin das „b“ 10 oder größer darstellt.

[7] Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Punkte [1] bis [6], worin der Polyorganosiloxan-Block (A-1) zumindest eines umfasst, das ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus den durch die Formeln (1-1) bis (1-3) dargestellten Struktureinheiten:



worin R¹ bis R⁴, R⁶, R⁸, „z“, „a“ und „b“ jeweils die gleiche Bedeutung wie vorstehend beschrieben darstellen, R⁵ eine Arylengruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, eine Alkylengruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine Alkylarylengruppe mit 7 bis 22 Kohlenstoffatomen darstellt und diese Gruppen jeweils in zumindest einem von einer Hauptkette oder einer Seitenkette hiervon zumindest eine Gruppe enthalten können, die ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus: -O-; -COO-; -CO-; -S-; -NH- und -NR¹¹¹-, R⁷ eine Arylengruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, eine Alkylengruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine Alkylarylengruppe mit 7 bis 22 Kohlenstoffatomen darstellt und diese Gruppen jeweils in zumindest einem von einer Hauptkette oder einer Seitenkette hiervon zumindest eine Gruppe enthalten können, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus: -O-; -COO-; -CO-; -S-; -NH- und -NR¹¹¹, R¹¹¹ eine Alkylgruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine Arylgruppe mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen darstellt, z¹ 0 oder 1 darstellt, b¹ eine ganze Zahl von 2 bis 200 darstellt und β eine aus einer Diisocyanatverbindung abgeleitete divalente Gruppe oder eine aus einer Dicarbonsäure oder einem Dicarbonsäurehalogenid abgeleitete divalente Gruppe darstellt.

[8] Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Punkte [1] bis [7], worin alle von R¹ bis R⁴ Methylgruppen darstellen.

[9] Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Punkte [1] bis [8], worin R⁶ eine Trimethylengruppe darstellt.

[10] Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Punkte [1] bis [9], worin R⁸ eine Dimethylengruppe, eine Methyl-substituierte Dimethylengruppe (-CH₂CHMe-) oder eine Trimethylengruppe darstellt und das „z“ 1 darstellt.

[11] Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Punkte [1] bis [10], worin der Anteil des Polyorganosiloxan-Blocks (A-1) an dem Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) 0,1 Masse-% oder mehr und 60 Masse-% oder weniger beträgt.

[12] Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Punkte [1] bis [11], worin das Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) ein viskositätsgemittelttes Molekulargewicht (Mv) von 5.000 oder größer und 50.000 oder kleiner aufweist.

[13] Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Punkte [1] bis [12], worin ein Formstück mit einer Gesamtlänge von 75 mm, einer Länge eines parallelen Bereichs von 30 mm, einer Endbereichsbreite von 10 mm, einer Breite des zentralen Parallelbereichs von 5 mm und einer Dicke von 2 mm eines hantelförmigen Zug-Teststück vom Typ A22 gemäß JIS K 7139:2009, welches durch Formen der Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis erhalten ist, ein Zug-Elastizitätsmodul von 2.400 MPa oder mehr aufweist, gemessen unter Bedingungen einer Zuggeschwindigkeit von 25 mm/min, einer Messtemperatur von 23°C und einem Futterabstand (chuck-to-chuck distance) von 57 mm.

[14] Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Punkte [1] bis [12], worin ein Formstück mit einer Gesamtlänge von 75 mm, einer Länge eines parallelen Bereichs von 30 mm, einer Endbereichsbreite von 10 mm, einer Breite des zentralen Parallelbereichs von 5 mm und einer Dicke von 2 mm eines hantelförmigen Zug-Teststück vom Typ A22 gemäß JIS K 7139:2009, welches durch Formen der Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis erhalten ist, eine Streckspannung von 55 MPa oder größer aufweist, gemessen unter Bedingungen einer Zuggeschwindigkeit von 25 mm/min, einer Messtemperatur von 23°C und einem Futterabstand (chuck-to-chuck distance) von 57 mm.

[15] Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Punkte [1] bis [14], worin der Anteil des Flammschutts (B) 0,01 Masseteile oder mehr und 40 Masseteile oder weniger beträgt, bezogen auf 100 Masseteile des Harzes auf Polycarbonatbasis (S).

[16] Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Punkte [1] bis [15], worin der Flammschutts (B) einen Flammschutts auf Phosphorbasis umfasst und worin der Anteil des Flammschutts (B) 1,0 Masseteile oder mehr und 40 Masseteile oder weniger beträgt, bezogen auf 100 Masseteile des Harzes auf Polycarbonatbasis (S).

[17] Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Punkte [1] bis [16], worin der Flammschutts (B) einen Flammschutts auf Metallsalzbasis umfasst, und worin der Anteil des Flammschutts (B) 0,01 Masseteile oder mehr und 1,0 Masseteile oder weniger beträgt, bezogen auf 100 Masseteile des Harzes auf Polycarbonatbasis (S).

[18] Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Punkte [1] bis [17], worin das Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) ein Copolymer ist, das durch ein Schmelz-Polymerisationsverfahren erhalten ist.

[19] Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Punkte [1] bis [18], worin das Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) ein Copolymer ist, das unter Verwendung eines Diol-Monomers (a1) erhalten ist.

[20] Formkörper, umfassend die Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Punkte [1] bis [19].

Vorteilhafte Wirkungen der Erfindung

[0011] Erfindungsgemäß können die Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis, die einen Formkörper bereitstellen kann, der eine verbesserte Balance zwischen der Zugeigenschaft und der Flammschutz aufweist, als auch ein Formkörper aus dem Harz auf Polycarbonatbasis, der bezüglich der Balance zwischen dessen Zugeigenschaften und der Flammschutz verbessert ist, bereitgestellt werden.

Beschreibung von Ausführungsformen

[0012] Nachstehend werden im Detail die erfindungsgemäße Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis und der Formkörper beschrieben. Hierin kann ein Merkmal, das als bevorzugt angegeben ist, nach Belieben realisiert werden, und eine Kombination von bevorzugten Merkmalen kann als stärker bevorzugt bezeichnet werden. Der Ausdruck „XX bis YY“, wie er hier verwendet wird, bezeichnet „XX oder mehr und YY oder weniger“.

[0013] Wenn es für einen technischen Gegenstand mehrere untere Grenzwerte, wie zum Beispiel „,x“ oder „mehr“ gibt, oder wenn es hierfür mehrere obere Grenzwerte gibt, wie zum Beispiel „,y“ oder „weniger“, können aus den oberen Grenzwerten und den unteren Grenzwerten willkürlich ausgewählte Werte kombiniert werden.

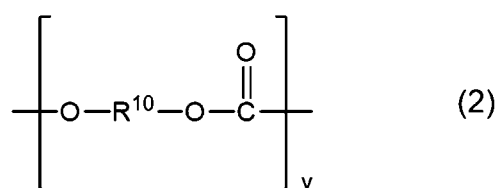
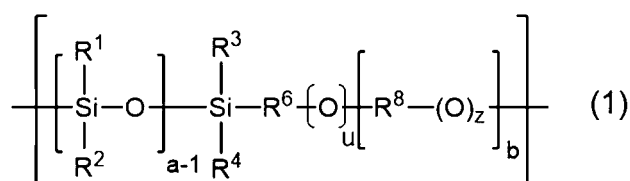
1. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis

[0014] Die erfindungsgemäße Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis umfasst: ein Harz auf Polycarbonatbasis (S), das ein Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) enthält, das einen Polyorganosiloxan-Block (A-1), der eine durch die Formel (1) dargestellte Struktureinheit umfasst, und einen Polycarbonat-Block (A-2), der eine durch die Formel (2) dargestellte Struktureinheit umfasst, aufweist; und einen Flammschutzmittel (B).

[0015] Die erfindungsgemäße Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis kann einen Formkörper mit verbesserter Balance zwischen den Zugeigenschaften und der Flammschutzmittel bereitstellen.

<Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A)>

[0016] Das Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) weist den Polyorganosiloxan-Block (A-1), der eine durch die Formel (1) dargestellte Struktureinheit umfasst, und den Polycarbonat-Block (A-2), der die durch die Formel (2) dargestellte Struktureinheit umfasst, auf:



worin R¹ bis R⁴ jeweils unabhängig ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom, eine Alkylgruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen, eine Alkoxygruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen, eine Arylgruppe mit 6 bis 12 Kohlenstoffatomen oder eine Alkylarylgruppe mit 7 bis 22 Kohlenstoffatomen darstellen, R⁶ eine Arylgruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, eine Alkylgruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine Alkylarylgruppe mit 7 bis 22 Kohlenstoffatomen darstellt, und diese Gruppen jeweils in zumindest einem von einer Hauptkette oder einer Seitenkette hiervon zumindest eine Gruppe aufweisen können, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus: -O-; -COO-; -CO-; -S-; -NH- und -NR¹¹¹-, mehrere R⁸ gleich oder verschieden sein können und jeweils eine Arylgruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, eine Alkylgruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine Alkylarylgruppe mit 7 bis 22 Kohlenstoffatomen darstellen, und diese Gruppen jeweils in zumindest einem von einer Hauptkette oder einer Seitenkette hiervon zumindest eine Gruppe enthalten können, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus: -O-; -COO-; -CO-; -S-; -NH- und -NR¹¹¹-, R¹¹¹ eine Alkylgruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine Arylgruppe mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen darstellt, „z“ und „u“ jeweils 0 oder 1 darstellen, „a“ eine ganze Zahl von 2 bis 500 darstellt, „b“ eine ganze Zahl von 2 bis 200 darstellt, R¹⁰ eine divalente aliphatische Kohlenwasserstoffgruppe mit 2 bis 40 Kohlenstoffatomen, eine divalente alicyclische Kohlenwasserstoffgruppe mit 3 bis 40 Kohlenstoffatomen oder eine divalente aromatische Kohlenwasserstoffgruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen darstellt, und diese Gruppen jeweils mit einem Sub-

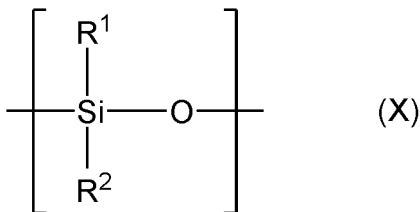
stituenten substituiert sein können und jeweils zumindest ein Atom enthalten können, das ausgewählt ist aus der Gruppe, bestehend aus: einem Sauerstoffatom; einem Stickstoffatom; einem Schwefelatom; und einem Halogenatom, und „y“ eine ganze Zahl von 10 bis 500 darstellt.

[0017] Die Gegenwart der durch die Formel (1) dargestellten Struktureinheit kann die Affinität zwischen dem Polycarbonat-Block (A-2) und der Polyorganosiloxan-Strukturgruppe des Polyorganosiloxan-Blocks (A-1) verbessern. Es wird angenommen, dass als ein Ergebnis des Vorstehenden die Trennung zwischen den Komponenten verringert werden kann, und so wird ein Formkörper mit verbesserter Balance zwischen der Zugeigenschaft und der Flammhemmung erhalten.

[0018] Ferner wird zum Zeitpunkt der Herstellung des Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymers (A) die Kompatibilität des Monomers mit jeglichen anderen Ausgangsmaterialkomponenten verbessert, wenn ein Monomer, aus dem der Polyorganosiloxan-Block (A-1) erhalten wird, die durch die Formel (1) dargestellte Struktureinheit umfasst. Die hiesigen Erfinder haben angenommen, dass als Ergebnis des Vorstehenden das Reaktionsverhältnis des Monomers verbessert wird, und somit eine Polyorganosiloxanstruktur in das Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) mit einer großen Zufälligkeit (statistischen Verteilung) eingebaut werden kann. Es wird angenommen, dass die Zugeigenschaft des zu erhaltenden Formkörpers und die Harzfluidität verbessert werden können, weil die Gegenwart der durch die Formel (1) dargestellten Struktureinheit die Mengen an nicht-reagiertem Polyorganosiloxan, das nicht der Copolymerisation unterworfen werden konnte, verringert werden kann und das Copolymer hierin eingearbeitet eine größere Menge des Polyorganosiloxans aufweist, und als Ergebnis kann die Trennung zwischen den Komponenten, die durch diese Komponenten verursacht wird, verringert werden.

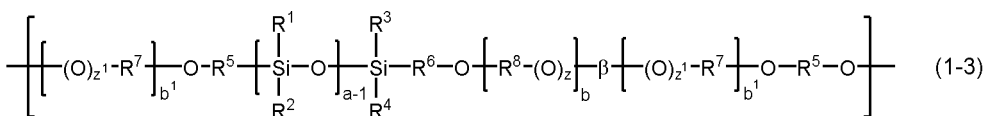
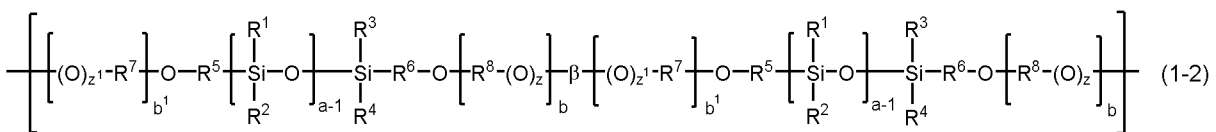
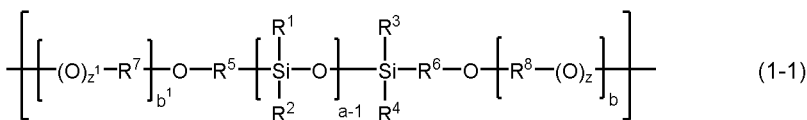
[0019] Der Polyorganosiloxan-Block (A-1), der als eine Aufbaueinheit des Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymers (A) dient, umfasst die durch die Formel (1) dargestellte Struktureinheit.

[0020] Der Polyorganosiloxan-Block (A-1) ist eine Struktureinheit, die zwischen zwei Polycarbonatbindungen vorliegt, die an der Hauptkette des Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymers (A) am nächsten zueinander vorliegen, und umfasst zumindest eine durch die folgende Formel (X) dargestellte Wiederholungseinheit:



worin R¹ und R² jeweils die gleiche Bedeutung wie vorstehend beschrieben aufweisen.

[0021] Der Polyorganosiloxan-Block (A-1), der die durch die Formel (1) dargestellte Struktureinheit umfasst, umfasst bevorzugt zumindest eines, das ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus Struktureinheiten, die durch die Formeln (1-1) bis (1-3) dargestellt sind, und umfasst stärker bevorzugt die durch die Formel (1-1) dargestellte Struktureinheit:



worin R¹ bis R⁴, R⁶, R⁸, „z“, „a“ und „b“ jeweils die gleiche Bedeutung wie vorstehend beschrieben darstellen, R⁵ eine Arylengruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, eine Alkylengruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine Alkylarylengruppe mit 7 bis 22 Kohlenstoffatomen darstellt, und diese Gruppen jeweils in zumindest einem von einer Hauptkette oder einer Seitenkette hiervon zumindest eine Gruppe enthalten können, die ausgewählt ist aus der Gruppe, bestehend aus: -O-; -COO-; -CO-; -S-; -NH- und -NR¹¹¹-, R⁷ eine Arylengruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, eine Alkylengruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine Alkylarylengruppe mit 7 bis 22 Kohlenstoffatomen darstellt und diese Gruppen jeweils in zumindest einem von einer Hauptkette oder einer Seitenkette hiervon zumindest eine Gruppe enthalten können, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus: -O-; -COO-; -CO-; -S-; -NH- und -NR¹¹¹-, R¹¹¹ eine Alkylgruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine Arylgruppe mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen darstellt, z¹ 0 oder 1 darstellt, b¹ eine ganze Zahl von 2 bis 200 darstellt und β eine aus einer Diisocyanatverbindung abgeleitete divalente Gruppe oder eine aus einer Dicarbonsäure oder einem Dicarbonsäurehalogenid abgeleitete divalente Gruppe darstellt.

[0022] Beispiele des Halogenatoms, das in den Formeln durch irgendeines von R¹ bis R⁴ dargestellt wird, umfassen ein Fluoratom, ein Chloratom, ein Bromatom und ein Iodatom. Beispiele der Alkylgruppen mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen, die durch irgendeines von R¹ bis R⁴ dargestellt wird, umfassen eine Methylgruppe, eine Ethylgruppe, eine n-Propylgruppe, eine Isopropylgruppe, verschiedene Butylgruppen, verschiedene Pentylgruppen und verschiedene Hexylgruppen (der Ausdruck „verschiedene“, wie er hier verwendet wird, bezeichnet, dass eine lineare Gruppe und alle Arten von verzweigten Gruppen umfasst sind, und das gleiche gilt im Folgenden). Die Alkoxygruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen, die durch irgendeines von R¹ bis R⁴ dargestellt wird, ist zum Beispiel eine Alkoxygruppe, deren Alkylgruppeneinheit die gleiche ist wie die Alkylgruppe. Beispiele der Arylgruppe mit 6 bis 12 Kohlenstoffatomen, die durch irgendeines von R¹ bis R⁴ dargestellt wird, umfassen eine Phenylgruppe und eine Naphthylgruppe. Die Alkylarylgruppe mit 7 bis 22 Kohlenstoffatomen, die durch irgendeines von R¹ bis R⁴ dargestellt wird, ist zum Beispiel eine Alkylarylgruppe, deren Alkylgruppeneinheit die gleiche ist wie die Alkylgruppe und deren Arylgruppeneinheit die gleiche ist wie die Arylgruppe.

[0023] R¹ bis R⁴ stellen jeweils bevorzugt ein Wasserstoffatom, eine Alkylgruppe mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, eine Alkoxygruppe mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, eine Arylgruppe mit 6 bis 12 Kohlenstoffatomen oder eine Arylalkylgruppe mit 7 bis 22 Kohlenstoffatomen dar, jeweils stärker bevorzugt stellen sie eine Alkylgruppe mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen dar, und weiter stärker bevorzugt stellen sie jeweils eine Methylgruppe dar.

[0024] Beispiele der Arylengruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, die durch R⁵, R⁶, R⁷ oder R⁸ dargestellt wird, umfassen eine Phenylengruppe und eine Naphthylengruppe. Beispiele der Alkylengruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen, die durch R⁵, R⁶, R⁷ oder R⁸ dargestellt wird, umfassen eine Methylengruppe, eine Dimethylengruppe, eine Trimethylengruppe, eine Methyl-substituierte Dimethylengruppe und verschiedene Butylengruppen. Unter den verschiedenen Butylengruppen ist eine Tetramethylengruppe bevorzugt. Die durch R⁵, R⁶, R⁷ oder R⁸ dargestellte Alkylarylengruppe ist zum Beispiel eine Alkylarylengruppe, deren Alkylgruppeneinheit die gleiche ist wie die Alkylengruppe und deren Arylgruppeneinheit die gleiche ist wie die Arylengruppe. Diese Gruppen können jedoch jeweils in zumindest in einer Hauptkette oder einer Seitenkette hiervon zumindest eine Gruppe enthalten, die ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus: -O-; -COO- (die Gruppe kann irgendeine von -C(=O)O- und -OC(=O)- sein); -CO-; -S-; -NH- und -NR¹¹¹-. R¹¹¹ stellt eine Alkylgruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine Arylgruppe mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen dar. Beispiele der Alkylgruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen, die durch R¹¹¹ dargestellt wird, umfassen eine Methylgruppe, eine Ethylgruppe, eine n-Propylgruppe, eine Isopropylgruppe, verschiedene Butylgruppen, verschiedene Pentylgruppen und verschiedene Hexylgruppen. Beispiele der Arylgruppe mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen, die durch R¹¹¹ dargestellt wird, umfassen eine Phenylgruppe und eine Naphthylgruppe. R⁵, R⁶, R⁷ und R⁸ stellen jeweils bevorzugt eine Alkylengruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen, stärker bevorzugt eine Alkylengruppe mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen, weiter stärker bevorzugt eine Dimethylengruppe, eine Methyl-substituierte Dimethylengruppe (-CH₂CHMe- oder -CHMeCH₂-) oder eine Trimethylengruppe dar. R⁵ und R⁶ stellen jeweils stärker bevorzugt eine Trimethylengruppe dar. R⁷ und R⁸ stellen jeweils stärker bevorzugt eine Dimethylengruppe dar.

[0025] In dieser Beschreibung stellt das Symbol „-Me“ eine Methylgruppe (-CH₃-Gruppe) dar.

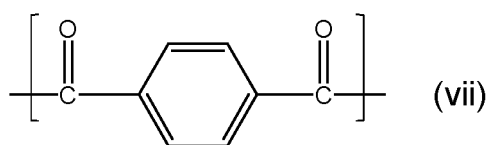
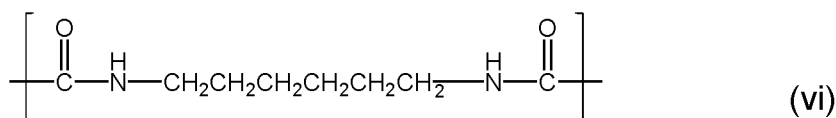
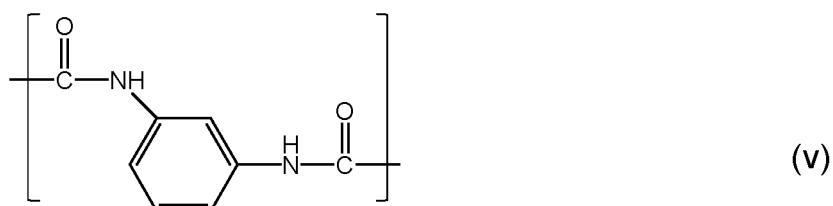
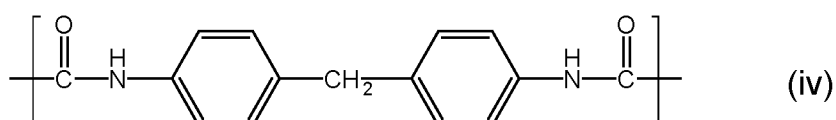
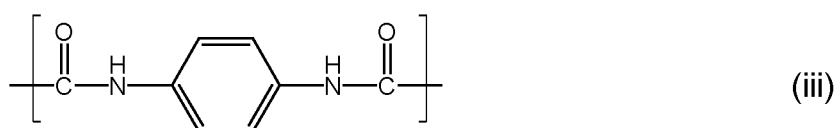
[0026] Es ist bevorzugt, dass „z“ und z¹ jeweils 1 darstellen, und es ist stärker bevorzugt, dass beide von „z“ und z¹ 1 darstellen.

[0027] Wenn irgendeines von R¹ bis R⁸, „z“ und z¹, „a“, „b“ und b¹ mehrmals vorliegt, können die mehreren Symbole identisch oder voneinander verschieden sein.

[0028] In der Formel (1) ist es weiter stärker bevorzugt, dass R¹ bis R⁴ jeweils eine Methylgruppe darstellen, R⁶ eine Trimethylengruppe darstellt, R⁸ eine Dimethylengruppe darstellt und „z“ 1 darstellt, und es ist weiter stärker bevorzugt, dass R¹ bis R⁴ jeweils eine Methylgruppe darstellen, R⁶ eine Trimethylengruppe darstellt, R⁸ eine Dimethylengruppe darstellt, „z“ 1 darstellt und „u“ 1 darstellt.

[0029] In den Formeln (1-1) bis (1-3) ist es weiter stärker bevorzugt, dass R¹ bis R⁴ jeweils eine Methylgruppe darstellen, R⁵ und R⁶ jeweils eine Trimethylengruppe darstellen, R⁷ und R⁸ jeweils eine Dimethylengruppe darstellen und „z“ und z¹ jeweils 1 darstellen.

[0030] Beispiele der aus einer Diisocyanatverbindung abgeleiteten divalenten Gruppe oder der aus einer Dicarbonsäure oder einem Dicarbonsäurehalogenid abgeleiteten divalenten Gruppe, die durch β dargestellt wird, umfassen die durch die folgenden Formeln (iii) bis (vii) dargestellten divalenten Gruppen.



[0031] „a“ stellt die Anzahl der Wiederholungseinheiten des Polyorganosiloxans dar und stellt eine ganze Zahl von bevorzugt 2 oder größer, stärker bevorzugt 10 oder größer, weiter stärker bevorzugt 15 oder größer, weiter stärker bevorzugt 20 oder größer, weiter stärker bevorzugt 35 oder größer, und bevorzugt 500 oder weniger, stärker bevorzugt 300 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 100 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 70 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 65 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 50 oder weniger, dar.

[0032] Die mittlere Anzahl der Wiederholungseinheiten des Polyorganosiloxans, die der Mittelwert von „a“ ist, beträgt bevorzugt 2 oder größer, stärker bevorzugt 10 oder größer, weiter stärker bevorzugt 15 oder größer, weiter stärker bevorzugt 20 oder größer, weiter stärker bevorzugt 35 oder größer, und beträgt bevorzugt 500 oder weniger, stärker bevorzugt 300 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 100 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 70 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 65 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 50 oder weniger. Die mittlere Anzahl der Wiederholungseinheiten des Polyorganosiloxans fällt bevorzugt in die vorstehend erwähnten Bereiche, weil das Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer eine größere Gesamtlichtdurchlässigkeit aufweist und somit als ein hochtransparentes Copolymer dient.

[0033] „b“ und b^1 stellen jeweils die Anzahl der Wiederholungseinheiten einer endständig modifizierten Gruppe des Polyorganosiloxans dar, und jedes stellt unabhängig eine ganze Zahl von bevorzugt 2 oder größer, stärker bevorzugt 5 oder größer, weiter stärker bevorzugt 8 oder größer, weiter stärker bevorzugt 10 oder größer, weiter stärker bevorzugt 12 oder größer, und bevorzugt 200 oder weniger, stärker bevorzugt 100 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 50 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 45 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 40 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 38 oder weniger, dar.

[0034] Die mittlere Anzahl der Wiederholungseinheiten der endständig modifizierten Gruppe des Polyorganosiloxans, die der Mittelwert von jedem von „b“ und b^1 ist, beträgt bevorzugt 2 oder größer, stärker bevorzugt 5 oder größer, weiter stärker bevorzugt 8 oder größer, weiter stärker bevorzugt 10 oder größer, weiter stärker bevorzugt 12 oder größer, und beträgt bevorzugt 200 oder weniger, stärker bevorzugt 100 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 50 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 45 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 40 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 38 oder weniger. Die mittlere Anzahl fällt bevorzugt in die vorstehend erwähnten Bereiche, weil ein Ausgangsmaterial leicht verfügbar ist. Die mittlere Anzahl der Wiederholungseinheiten der endständig modifizierten Gruppe des Polyorganosiloxans beträgt bevorzugt 10 oder größer, weil die Balance zwischen den Zugeigenschaften und der Flammhemmung des zu erhaltenden Formkörpers weiter verbessert werden kann. Die mittlere Anzahl der Wiederholungseinheiten der endständig modifizierten Gruppe des Polyorganosiloxans beträgt stärker bevorzugt 100 oder weniger, weil eine Verringerung der Handhabbarkeit des Polyorganosiloxans aufgrund von Erhöhungen der Viskosität und des Schmelzpunkts hiervon unterdrückt werden kann. Die mittlere Anzahl der Wiederholungseinheiten der endständig modifizierten Gruppe des Polyorganosiloxans beträgt stärker bevorzugt 50 oder weniger, weil der Mengenan teil des Polyorganosiloxan-Blocks in dem Harz bei solch einer Menge gehalten werden kann, dass eine die physikalischen Eigenschaften verbessernde Wirkung sichergestellt werden kann.

[0035] In der Formel (1) oder den Formeln (1-1) bis (1-3) stellen „z“ und z^1 jeweils unabhängig 0 oder 1, bevorzugt 1, dar.

[0036] In der Formel (1) stellt „u“ 0 oder 1, bevorzugt 1, dar.

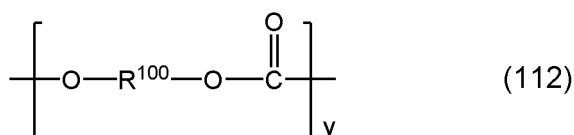
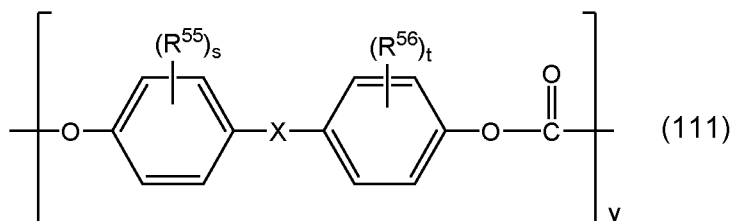
[0037] Beispiele der divalenten aliphatischen Kohlenwasserstoffgruppe mit 2 bis 40 Kohlenstoffatomen, die in der Formel (2) durch R^{10} dargestellt wird, umfassen eine Ethylengruppe, eine n-Propylengruppe, eine Isopropylengruppe, eine n-Butylengruppe, eine Isobutylengruppe, eine n-Pentylengruppe, eine n-Hexylengruppe, eine n-Heptylengruppe, eine n-Octylengruppe, eine 2-Ethylhexylengruppe, eine n-Nonylengruppe, eine n-Decylengruppe, eine n-Undecylengruppe, eine n-Dodecylengruppe, eine n-Tridecylengruppe, eine n-Tetradecylengruppe, eine n-Pentadecylengruppe, eine n-Hexadecylengruppe, eine n-Heptadecylengruppe und eine n-Octadecylengruppe. Diese Gruppen können jedoch jeweils mit einem Substituenten substituiert sein und können jeweils mindestens ein Atom enthalten, das ausgewählt ist aus der Gruppe, bestehend aus: einem Sauerstoffatom; einem Stickstoffatom; einem Schwefelatom und einem Halogenatom.

[0038] Beispiele der divalenten alicyclischen Kohlenwasserstoffgruppe mit 3 bis 40 Kohlenstoffatomen, die in der Formel (2) durch R^{10} dargestellt wird, umfassen eine Cyclopentylengruppe, eine Cyclohexylengruppe, eine Cyclooctylengruppe, eine Cyclodecylengruppe, eine Cyclotetradecylengruppe, eine Adamantylengruppe, eine Bicycloheptylengruppe, eine Bicyclodecylengruppe und eine Tricyclodecylengruppe. Diese Gruppen können jedoch jeweils mit einem Substituenten substituiert sein und können jeweils mindestens ein Atom enthalten, das ausgewählt ist aus der Gruppe, bestehend aus: einem Sauerstoffatom; einem Stickstoffatom; einem Schwefelatom und einem Halogenatom.

[0039] Beispiele der divalenten aromatischen Kohlenwasserstoffgruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, die in der Formel (2) durch R^{10} dargestellt wird, können divalente aromatische Kohlenwasserstoffgruppen umfassen, die abgeleitet sind aus 2,2-Bis(4-hydroxyphenyl)propan (auch als „Bisphenol A“ bezeichnet), 2,2-Bis(4-hydroxy-3-methylphenyl)propan (auch als „Bisphenol C“ bezeichnet), 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)cyclohexan (auch als „Bisphenol Z“ bezeichnet), 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)-3-methylcyclohexan (auch als „Bisphenol 3MZ“ bezeichnet), 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan (auch als „Bisphenol HTG“ bezeichnet), 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)cyclododecen, Hydrochinon, Resorcinol (auch als „Resorcin“ bezeichnet) und Catechol. Solche divalenten aromatischen Kohlenwasserstoffgruppen werden zum Beispiel unter Verwendung der vorstehend erwähnten Verbindungen zum Zeitpunkt der Herstellung des Copolymers erhalten. Diese Gruppen können jedoch jeweils mit einem Substituenten substituiert sein und können jeweils mindestens ein Atom enthalten, das ausgewählt ist aus der Gruppe, bestehend aus: einem Sauerstoffatom; einem Stickstoffatom; einem Schwefelatom und einem Halogenatom.

[0040] Der Polycarbonat-Block (A-2), der die durch die Formel (2) dargestellte Struktureinheit umfasst, umfasst bevorzugt mindestens eine durch die Formel (111) dargestellte Struktureinheit oder eine durch die Formel (112) dargestellte Struktureinheit, und umfasst stärker bevorzugt die durch die Formel (111) dargestellte Struktureinheit.

[0041] In einem bevorzugten Aspekt der vorliegenden Erfindung umfasst der Polycarbonat-Block (A-2) bevorzugt 90 mol-% oder mehr, stärker bevorzugt 95 mol-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 98 mol-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 99 mol-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 100 mol-% oder mehr der durch die Formel (111) dargestellten Struktureinheit in 100 mol-% der durch die Formel (2) dargestellten Struktureinheit.



worin R^{55} und R^{56} jeweils unabhängig ein Halogenatom, eine Alkylgruppe mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder eine Alkoxygruppe mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen darstellen, X eine Einfachbindung, eine Alkylengruppe mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, eine Alkylidengruppe mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, eine Cycloalkylengruppe mit 5 bis 15 Kohlenstoffatomen, eine Arylengruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, eine Cycloalkylidengruppe mit 5 bis 15 Kohlenstoffatomen, eine Fluorendiylgruppe, eine Arylalkylengruppe mit 7 bis 15 Kohlenstoffatomen, eine Arylalkylidengruppe mit 7 bis 15 Kohlenstoffatomen, -S-, -SO-, -SO₂-, -O- oder -CO- darstellt, R^{100} eine divalente aliphatische Kohlenwasserstoffgruppe mit 2 bis 40 Kohlenstoffatomen darstellt, und worin die divalente aliphatische Kohlenwasserstoffgruppe zumindest eines umfassen kann, das ausgewählt ist aus: einer verzweigten Struktur; und einer cyclischen Struktur, und zumindest ein Atom enthalten kann, das ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus: einem Sauerstoffatom; einem Stickstoffatom; einem Schwefelatom; und einem Halogenatom, „y“ eine ganze Zahl von 10 bis 500 darstellt, und „s“ und „t“ jeweils unabhängig eine ganze Zahl von 0 bis 4 darstellen.

[0042] Beispiele des Halogenatoms, das durch R^{55} oder R^{56} dargestellt wird, umfassen ein Fluoratom, ein Chloratom, ein Bromatom und ein Iodat.

[0043] Beispiele der Alkylgruppe mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, die durch R^{55} oder R^{56} dargestellt wird, umfassen eine Methylgruppe, eine Ethylgruppe, eine n-Propylgruppe, eine Isopropylgruppe, verschiedene Butylgruppen, verschiedene Pentylgruppen und verschiedene Hexylgruppen. Die durch R^{55} oder R^{56} dargestellte Alkoxygruppe ist zum Beispiel eine Alkoxygruppe, deren Alkylgruppenrest der gleiche ist wie die Alkylgruppe.

[0044] Beispiele der Alkylengruppe mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, die durch X dargestellt wird, umfassen eine Methylengruppe, eine Ethylengruppe, eine Trimethylengruppe, eine Tetramethylengruppe und eine Hexamethylengruppe. Unter diesen ist eine Alkylengruppe mit 1 bis 5 Kohlenstoffatomen bevorzugt. Beispiele der Alkylidengruppe mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, die durch X dargestellt wird, umfassen eine Ethylidengruppe und eine Isopropylidengruppe. Beispiele der Cycloalkylengruppe mit 5 bis 15 Kohlenstoffatomen, die durch X dargestellt wird, umfassen eine Cyclopentandiylgruppe, eine Cyclohexandiylgruppe und eine Cyclooctandiylgruppe. Unter diesen ist eine Cycloalkylengruppe mit 5 bis 10 Kohlenstoffatomen bevorzugt. Beispiele der Arylengruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, die durch X dargestellt wird, umfassen eine Phenylengruppe, eine Naphthylengruppe und eine Biphenylengruppe. Beispiele der Cycloalkylidengruppe mit 5 bis 15 Kohlenstoffatomen, die durch X dargestellt wird, umfassen eine Cyclohexylidengruppe, eine 3,5,5-Trimethylcyclohexylidengruppe und eine 2-Adamantylidengruppe. Unter diesen ist eine Cycloalkylidengruppe mit 5 bis 10 Kohlenstoffatomen bevorzugt, und eine Cycloalkylidengruppe mit 5 bis 8 Kohlenstoffatomen ist stärker bevorzugt. Die Arylalkylengruppe mit 7 bis 15 Kohlenstoffatomen, die durch X dargestellt ist, ist zum

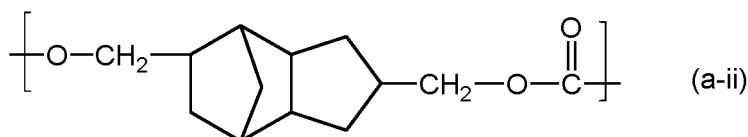
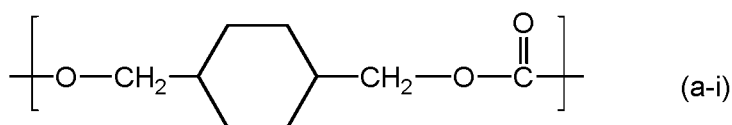
Beispiel eine Arylalkylengruppe, deren Arylrest eine Arylgruppe mit 6 bis 14 ringbildenden Kohlenstoffatomen ist, wie zum Beispiel eine Phenylgruppe, eine Naphthylgruppe, eine Biphenylgruppe oder eine Anthrylgruppe, und deren Alkylrest der gleiche ist wie das Alkylen. Die Arylalkylidengruppe mit 7 bis 15 Kohlenstoffatomen, die durch X dargestellt ist, ist zum Beispiel eine Arylalkylidengruppe, deren Arylrest eine Arylgruppe mit 6 bis 14 ringbildenden Kohlenstoffatomen ist, wie zum Beispiel eine Phenylgruppe, eine Naphthylgruppe, eine Biphenylgruppe oder einen Anthrylgruppe, und deren Alkylidenrest der gleiche ist wie das Alkyliden.

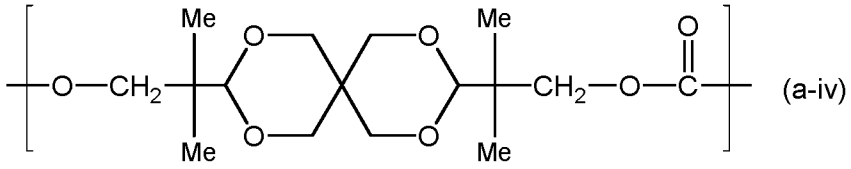
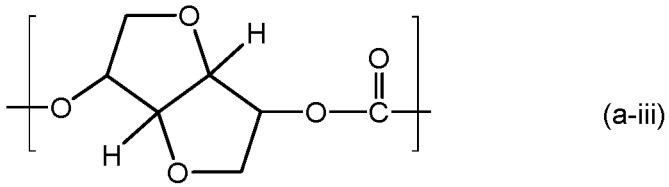
[0045] „s“ und „t“ stellen jeweils unabhängig eine ganze Zahl von 0 bis 4, bevorzugt von 0 bis 2, stärker bevorzugt 0 oder 1, dar. Unter diesen ist es bevorzugt, dass „s“ und „t“ jeweils 0 darstellen und X eine Einfachbindung oder eine Alkylengruppe mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen darstellt, es ist auch bevorzugt, dass „s“ und „t“ jeweils 0 darstellen und X eine Alkylidengruppe darstellt, und es ist besonders geeignet, dass „s“ und „t“ jeweils 0 darstellen und X eine Isopropylidengruppe darstellt.

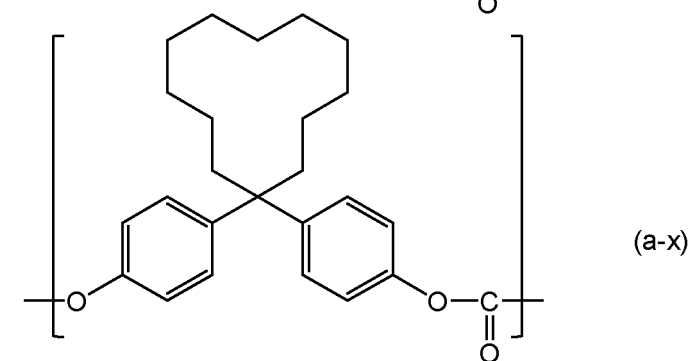
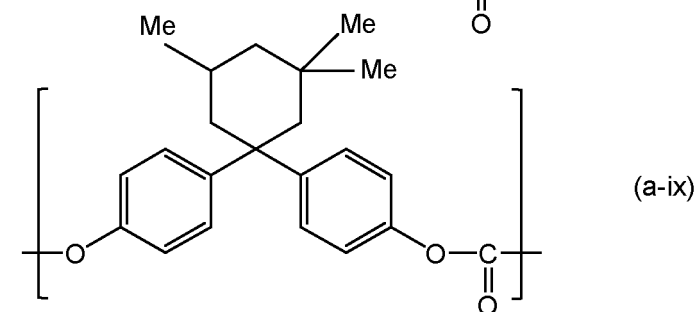
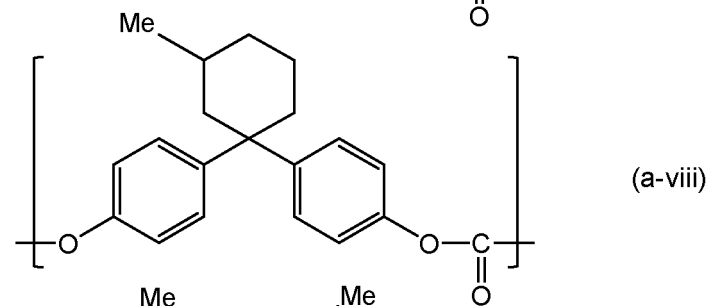
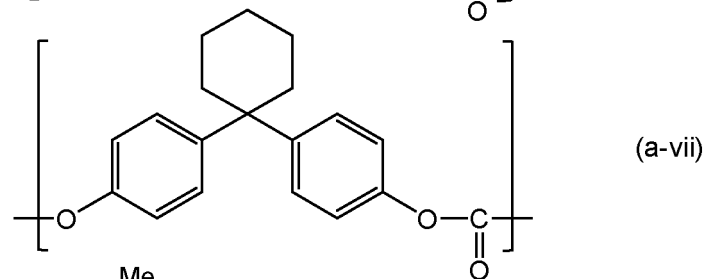
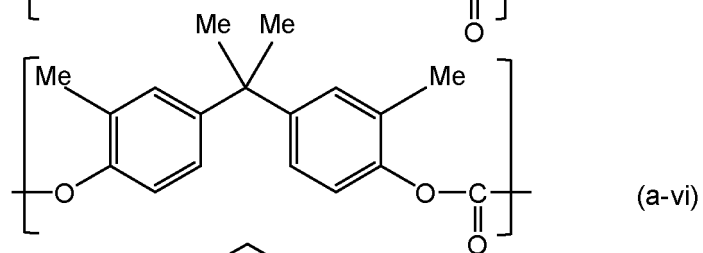
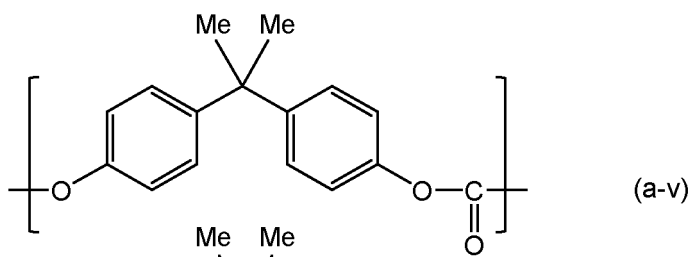
[0046] Beispiele der divalenten aliphatischen Kohlenwasserstoffgruppe mit 2 bis 40 Kohlenstoffatomen, die durch R¹⁰⁰ dargestellt wird, umfassen eine Alkylengruppe mit 2 bis 40 Kohlenstoffatomen, eine Cycloalkylengruppe mit 4 bis 40 Kohlenstoffatome und eine sauerstoff- oder stickstoffhaltige divalente gesättigte heterocyclische Gruppe mit 4 bis 40 Kohlenstoffatomen. Die Anzahl der Kohlenstoffatome der Alkylengruppe beträgt bevorzugt von 2 bis 18, stärker bevorzugt von 2 bis 10, weiter stärker bevorzugt von 3 bis 6. Die Anzahl der Kohlenstoffatome der Cycloalkylengruppe ist bevorzugt von 4 bis 20, stärker bevorzugt von 5 bis 20. Die Anzahl der Kohlenstoffatome der sauerstoff- oder stickstoffhaltigen divalenten gesättigten heterocyclischen Gruppe beträgt bevorzugt von 4 bis 20, stärker bevorzugt von 5 bis 20. Diese Gruppen können jedoch jeweils zumindest eines umfassen, das ausgewählt ist aus der Gruppe, bestehend aus: einer verzweigten Struktur; und einer cyclischen Struktur, und sie können jeweils zumindest ein Atom enthalten, das ausgewählt ist aus der Gruppe, bestehend aus: einem Sauerstoffatom; einem Stickstoffatom; einem Schwefelatom; und einem Halogenatom.

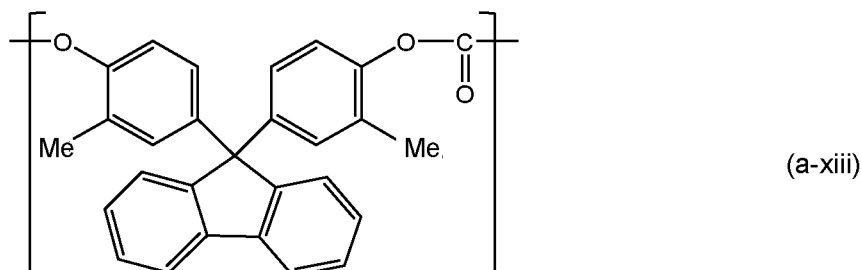
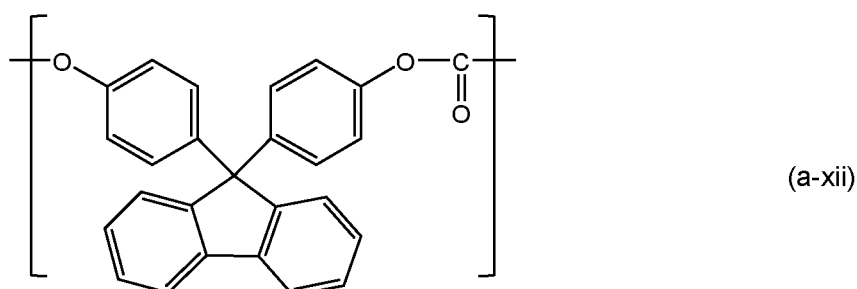
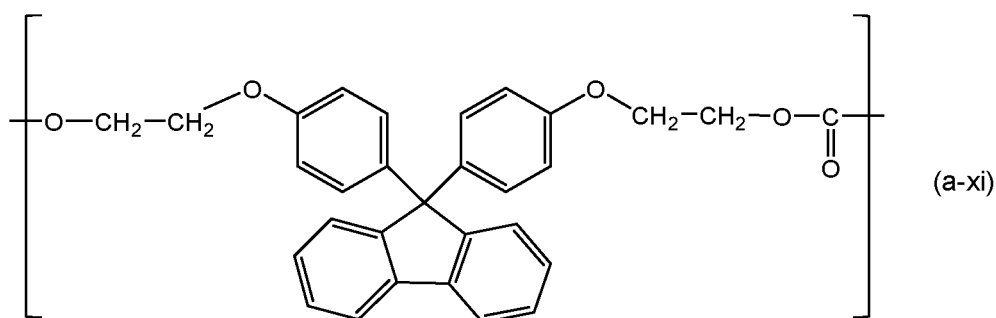
[0047] Beispiele der Alkylengruppe mit 2 bis 40 Kohlenstoffatomen umfassen eine Ethylengruppe, eine Ethylengruppe, eine n-Propylengruppe, eine Isopropylengruppe, eine n-Butylengruppe, eine Isobutylengruppe, eine n-Pentylengruppe, eine n-Hexylengruppe, eine n-Heptylengruppe, eine n-Octylengruppe, eine 2-Ethylhexylengruppe, eine n-Nonylengruppe, eine n-Decylengruppe, eine n-Undecylengruppe, eine n-Dodecylengruppe, eine n-Tridecylengruppe, eine n-Tetradecylengruppe, eine n-Pentadecylengruppe, eine n-Hexadecylengruppe, eine n-Heptadecylengruppe und eine n-Octadecylengruppe. Beispiel der Cycloalkylengruppen mit 4 bis 40 Kohlenstoffatomen umfassen eine Cyclopentylengruppe, eine Cyclohexylengruppe, eine Cyclooctylengruppe, eine Cyclodecylengruppe, eine Cyclotetradecylengruppe, eine Adamantylengruppe, eine Bicycloheptylengruppe, eine Bicyclodecylengruppe und eine Tricyclodecylengruppe. Die sauerstoff- oder stickstoffhaltige divalente heterocyclische Gruppe mit 4 bis 40 Kohlenstoffatomen kann zum Beispiel eine Gruppe sein, die ein Sauerstoff- oder Stickstoffatom im Gerüst der Cycloalkylengruppe enthält.

[0048] Spezifisch umfasst der Polycarbonat-Block (A-2), der aus der durch die Formel (2) dargestellten Wiederholungseinheit gebildet ist, bevorzugt zumindest eine, die ausgewählt aus den durch die folgenden Formeln (a-i) bis (a-xiii) dargestellten Struktureinheiten, umfasst stärker bevorzugt zumindest eine, die ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus den durch die folgenden Formeln (a-i) bis (a-v) dargestellten Struktureinheiten, umfasst weiter stärker bevorzugt zumindest eine, die ausgewählt ist aus der Gruppe, bestehend aus durch die folgenden Formeln (a-i), (a-ii) und (a-v) dargestellten Struktureinheiten, und umfasst weiter stärker bevorzugt die durch die folgende Formel (a-v) dargestellte Struktureinheit. Die Einarbeitung von solch bevorzugter Struktureinheit führt zu höherer Transparenz.









[0049] Der durch die Formel (2) dargestellte Polycarbonat-Block (A-2) umfasst bevorzugt eine Struktureinheit, die abgeleitet ist aus zumindest einer Verbindung, die ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus 2,2-Bis(4-hydroxyphenyl)propan; 2,2-Bis(4-hydroxy-3-methylphenyl)propan; 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)cyclohexan; 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)-3-methylcyclohexan; 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-Trimethylcyclohexan; 1,1-bis(4-hydroxyphenyl)cyclododecen; Isosorbid; Cyclohexan-1,4-dimethanol; Tricyclodecandimethanol; 3,9-Bis(1,1-dimethyl-2-hydroxyethyl)-2,4,8,10-tetraoxaspiro[5.5]undecan; 1,3-Propandiol und 1,4-Butandiol. Solch eine Struktureinheit kann zum Beispiel unter Verwendung der Verbindung zum Zeitpunkt der Herstellung des Copolymers erhalten werden.

[0050] „y“ stellt stärker bevorzugt 20 oder mehr, weiter stärker bevorzugt 40 oder mehr, und stärker bevorzugt 200 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 100 oder weniger dar. „y“ stellt bevorzugt 20 oder mehr dar, weil eine Erhöhung der Menge einer Komponente mit niedrigem Molekulargewicht in dem Copolymer unterdrückt werden kann. „y“ stellt stärker bevorzugt 40 oder mehr dar, weil die Widerstandskraft des Copolymers verbessert wird. „y“ stellt bevorzugt 200 oder weniger dar, weil zum Zeitpunkt des Formens des Copolymers eine moderate Fluidität erhalten wird. „y“ stellt stärker bevorzugt 100 oder weniger dar, weil eine Reaktionsmischung zum Zeitpunkt der Herstellung des Copolymers eine moderate Fluidität aufweist und somit die Produktivität verbessert wird.

[0051] Der Polyorganosiloxan-Block (A-1) umfasst bevorzugt die durch die Formel (1) dargestellte Struktureinheit als eine Hauptkomponente. Der hier verwendete Ausdruck „Hauptkomponente“ bezeichnet, dass deren Anteil in Bezug auf alle Strukturen 50 Masse-% oder mehr beträgt. Der Anteil der durch die Formel (1) dargestellten Struktureinheit an dem Polyorganosiloxan-Block (A-1) beträgt bevorzugt 50 Masse-% oder mehr, stärker bevorzugt 80 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 90 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 98 Masse-% oder mehr, bezogen auf alle Strukturen des Polyorganosiloxan-Blocks (A-1).

[0052] Der Polycarbonat-Block (A-2) umfasst bevorzugt die durch die Formel (2) dargestellte Struktureinheit als eine Hauptkomponente. Der Anteil der durch die Formel (2) dargestellten Struktureinheit an dem Polycar-

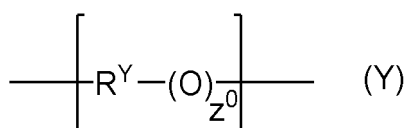
bonat-Block (A-2) beträgt bevorzugt 50 Masse-% oder mehr, stärker bevorzugt 80 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 90 Masse-% oder mehr, weiterhin stärker bevorzugt 98 Masse-% oder mehr, bezogen auf alle Strukturen des Polyorganosiloxan -Blocks (A-1).

[0053] Der Anteil des Polyorganosiloxan-Blocks (A-1) an dem Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) beträgt bevorzugt 0,1 Masse-% oder mehr, stärker bevorzugt 0,5 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 1,0 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 3,0 Masse-% oder mehr und beträgt bevorzugt 60 Masse-% oder weniger, stärker bevorzugt 40 Masse-% oder weniger, weiter stärker bevorzugt 20 Masse-% oder weniger, weiter stärker bevorzugt 10 Masse-% oder weniger.

[0054] Wenn der Anteil des Polyorganosiloxan-Blocks an dem Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) innerhalb der vorstehend erwähnten Bereiche fällt, können eine bessere Schlagfestigkeit und bessere Transparenz erhalten werden.

[0055] Die Anteile des Polycarbonat-Blocks (A-2) an dem Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) beträgt bevorzugt 40 Masse-% oder mehr, stärker bevorzugt 60 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 80 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 90 Masse-% oder mehr und beträgt bevorzugt 99,9 Masse-% oder weniger, stärker bevorzugt 99,5 Masse-% oder weniger, weiter stärker bevorzugt 99,0 Masse-% oder weniger, weiter stärker bevorzugt 97 Masse-% oder weniger.

[0056] Der hier verwendete Ausdruck „Anteil des Polyorganosiloxan-Blocks (A-1) an dem Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A)“ bezeichnet den Prozentanteil der Gesamtmasse der durch die Formel (X) dargestellten Struktureinheit bezogen auf die Gesamtmasse des Polycarbonat-Blocks (A-2), der durch die Formel (X) dargestellten Struktureinheit, einer durch die folgende Formel (Y) dargestellten Struktureinheit und einer endständigen Struktur, die aus einem Endgruppenstopper, der später beschrieben wird, abgeleitet ist, welche das Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) erforderlichenfalls enthält. Das gleiche gilt für den „Anteil des Polyorganosiloxan-Blocks (A-1) an dem Harz auf Polycarbonatbasis (S)“ und dem „Anteil des Polyorganosiloxan-Blocks (A-1) an der Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis“, was später beschrieben wird.



worin R^Y R^7 oder R^8 darstellt, wenn R^Y R^8 darstellt, stellt z^0 „z“ dar, und wenn R^Y R^7 darstellt, stellt z^0 z^1 dar, und R^7 , R^8 , z und z^1 stellen jeweils die gleiche Bedeutung wie vorstehend beschrieben dar.

[0057] In dieser Beschreibung können die Ausdrücke „Anteil“ und „Mengenverhältnis“ in austauschbarer Weise verwendet werden.

[0058] Das viskositätsgemittelte Molekulargewicht des Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymers (A) beträgt bevorzugt 5.000 oder größer, stärker bevorzugt 12.000 oder größer, weiter stärker bevorzugt 14.000 oder größer, weiter stärker bevorzugt 16.000 oder größer, und beträgt bevorzugt 50.000 oder kleiner, stärker bevorzugt 30.000 oder kleiner, weiter stärker bevorzugt 23.000 oder kleiner, weiter stärker bevorzugt 21.000 oder kleiner.

[0059] Hier ist das viskositätsgemittelte Molekulargewicht (M_v) ein Wert, der aus der folgenden Schnell-Gleichung durch Messen der Grenzviskosität $[\eta]$ einer Methylenchloridlösung (Konzentration: g/l) bei 20°C berechnet wird.

$$[\eta] = 1,23 \times 10^{-5} M_v^{0,83}$$

[0060] Das Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) kann unter Verwendung von zum Beispiel einem Diol-Monomer (a1) und einem Polyorganosiloxan (a2) als Ausgangsmaterial-Monomere hergestellt werden.

<<Diol-Monomer (a1)>>

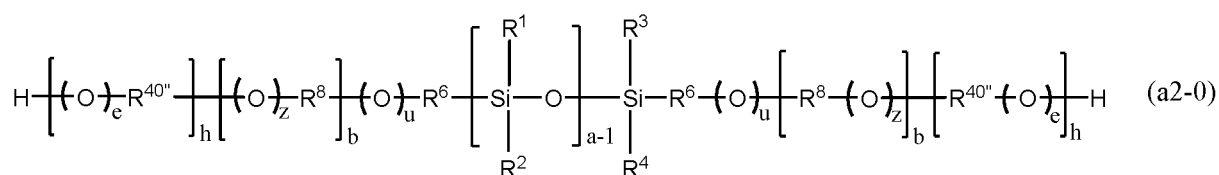
[0061] Das Diol-Monomer (a1) ist nicht besonders beschränkt, solange das Monomer eine durch die folgende Formel (a1) dargestellte Struktur aufweist. Als Diol-Monomer (a1) kann eine aromatische Dihydroxyverbindung oder eine aliphatische Dihydroxyverbindung verwendet werden.



[0062] In der Formel (a1) ist R¹⁰ wie vorstehend beschrieben und bevorzugte Beispiele hiervon sind auch die gleichen wie vorstehend beschrieben.

<<Polyorganosiloxan (a2)>>

[0063] Das Polyorganosiloxan (a2) weist bevorzugt eine durch die folgende Formel (a2-0) dargestellte Struktur auf:



worin R¹ bis R⁴, R⁶, R⁸, „z“, „a“, „b“ und „u“ jeweils die gleiche Bedeutung wie die vorstehend Beschriebenen darstellen, vorausgesetzt, dass mehrere R¹, mehrere R², mehrere R⁶ oder mehrere R⁸ identisch oder zueinander verschieden sein können, R^{40''} eine Kohlenwasserstoffgruppe mit 1 bis 40 Kohlenstoffatomen darstellt, die in zumindest einem von einer Hauptkette oder einer Seitenkette hiervon eine Struktur aufweisen kann, die ein oder mehr Heteroatome enthält, und „e“ und „h“ jeweils 0 oder 1 darstellen.

[0064] Die durch R^{40''} dargestellte Kohlenwasserstoffgruppe umfasst bevorzugt eine sich wiederholende Kettenstruktur, worin zumindest zwei von zumindest einer Kohlenwasserstoffgruppe, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus: einer divalenten aliphatischen Kohlenwasserstoffgruppe mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen; einer divalenten alicyclischen Kohlenwasserstoffgruppe mit 3 bis 20 Kohlenstoffatomen; und einer divalenten aromatischen Kohlenwasserstoffgruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, und einer divalenten Struktur, die zumindest ein Heteroatom enthält, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus: einem Sauerstoffatom; einem Stickstoffatom; und einem Schwefelatom, miteinander verbunden sind.

[0065] Beispiele der divalenten aliphatischen Kohlenwasserstoffgruppe mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen umfassen eine Methylengruppe und die gleichen Gruppen wie diejenigen, die als Beispiele der divalenten aliphatischen Kohlenwasserstoffgruppe mit 2 bis 40 Kohlenstoffatomen angegeben sind, die durch R¹⁰ dargestellt wird.

[0066] Beispiele der divalenten alicyclischen Kohlenwasserstoffgruppe mit 3 bis 20 Kohlenstoffatomen umfassen die gleichen wie diejenigen, die als Beispiele der divalenten alicyclischen Kohlenwasserstoffgruppe mit 3 bis 40 Kohlenstoffatomen angegeben sind, die durch R¹⁰ dargestellt wird.

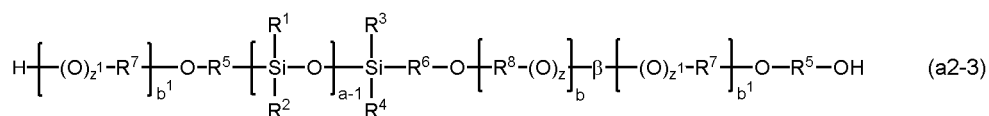
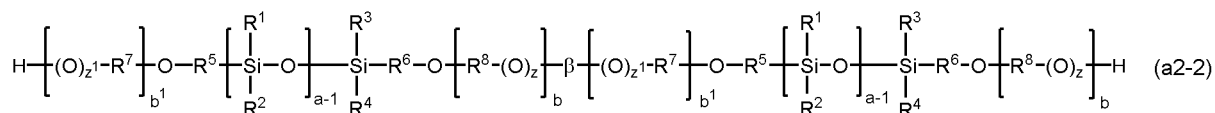
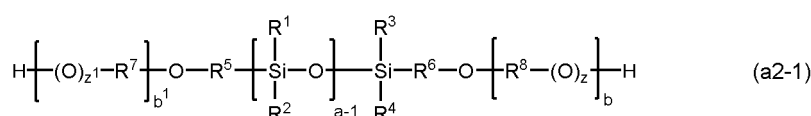
[0067] Beispiele der divalenten aromatischen Kohlenwasserstoffgruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen umfassen die gleichen Gruppen wie diejenigen, die als Beispiele der divalenten aromatischen Kohlenwasserstoffgruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen angegeben sind, die durch R¹⁰ dargestellt wird.

[0068] Beispiele der divalenten Struktur, die zumindest ein Heteroatom enthält, das ausgewählt ist aus der Gruppe, bestehend aus: einem Sauerstoffatom; einem Stickstoffatom; und einem Schwefelatom, umfassen -O-, -(C=O)-, -O(C=O)- (die divalente Struktur kann irgendeine von -O(C=O)- und -(C=O)O- sein), -O(C=O)O-, -NR-, -NR-(C=O)- (die divalente Struktur kann irgendeine von -NR-(C=O)- und -(C=O)-NR- sein), -N=CR- (die divalente Struktur kann irgendeine von -N=CR- und -CR=N- sein), -SH, -S-, -S-S-, und -(S=O)-. Das R stellt ein Wasserstoffatom, eine monovalente aliphatische Kohlenwasserstoffgruppe mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen oder eine monovalente aromatische Kohlenwasserstoffgruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen dar, und diese Gruppen können jeweils mit einem Substituenten substituiert sein.

[0069] Die sich wiederholende Kettenstruktur umfasst bevorzugt zumindest eine Struktur, die ausgewählt ist aus der Gruppe, bestehend aus: einem Polyether; einem Polyacetal; einem Polylacton; einem Polyacrylat; einem Polyester; einem Polycarbonat; einem Polyketon; einem Polysulfid; einem Polysulfon; einem Polyamid; und einem Polyimid. Unter diesen ist bevorzugt zumindest eine Struktur in die sich wiederholende Kettenstruktur eingearbeitet, die ausgewählt ist aus der Gruppe, bestehend aus: einem Polyether; einem Polyacrylat; und einem Polycarbonat, und am bevorzugtesten ist ein Polyether hierin eingearbeitet. Der Polyether ist bevorzugt ein Polyalkylenether. Unter diesen ist ein Polyethylenglykol, ein Polypropylenglykol, ein Polytrimethylenglykol und ein Polytetramethylenglykol bevorzugt. Die vorstehend erwähnten Strukturen sind im Hinblick auf die weitere Verbesserung der Affinität des Polyorganosiloxans (a2) für das Diol-Monomer (a1) bevorzugt, um eine gleichmäßigere Polymerisation durchzuführen.

[0070] Zusätzlich kann die sich wiederholende Kettenstruktur zumindest einen Substituenten aufweisen, der ausgewählt ist aus der Gruppe, bestehend aus: -OH; -NH₂ und -NRH. R besitzt die gleiche Bedeutung wie vorstehend beschrieben.

[0071] Das Polyorganosiloxan (a2) ist bevorzugt ein Monomer, das irgendeine der durch die folgenden Formeln (a2-1) bis (a2-3) dargestellten Strukturen aufweist:



worin R¹ bis R⁴, R⁵, R⁶, R⁷, R⁸, „z“, z¹, β, „a“, „b“ und b¹ jeweils die gleiche Bedeutung wie vorstehend besitzen, und bevorzugte Beispiele hiervon sind auch die gleichen wie diejenigen, die vorstehend beschrieben sind, und eine Kombination von bevorzugten Beispielen ist in ähnlicher Weise bevorzugt.

[0072] Das Verfahren zur Herstellung des Polyorganosiloxans (a2) ist nicht besonders beschränkt. In Übereinstimmung mit zum Beispiel einem Verfahren, das in JP 11-217390 A beschrieben ist, kann das Polyorganosiloxan erhalten werden durch: Umsetzen eines Cyclotrisiloxans und eines Disiloxans in der Gegenwart eines sauren Katalysators, um ein α,ω-Dihydrogen-Organopentasiloxan herzustellen; und dann Unterziehen des α,ω-Dihydrogen-Organopentasiloxans unter eine Additionsreaktion mit einem Oligomer oder einem Polymer (z.B. einem Polyalkylenether, einem Polyester oder einem Polycarbonat), das an einem Ende mit einer Allylgruppe modifiziert ist, in der Gegenwart eines Katalysators für eine Hydrosilylierungsreaktion. Zusätzlich kann in Übereinstimmung mit einem Verfahren, das in JP 2662310 B2 beschrieben ist, das Polyorganosiloxan erhalten werden durch: Umsetzen von Octamethylcyclotetrasiloxan und Tetramethyldisiloxan in der Gegenwart eines sauren Katalysators, wie Schwefelsäure; und Unterziehen des sich ergebenden α,ω-Dihydrogen-Organopolysiloxans unter eine Additionsreaktion mit dem Oligomer oder dem Polymer, bei dem ein Ende mit einer Allylgruppe modifiziert ist, in der Gegenwart des Katalysators für eine Hydrosilylierungsreaktion auf die gleiche Weise wie vorstehend beschrieben. Das α,ω-Dihydrogen-Organopolysiloxan kann eingesetzt werden, nachdem seine mittlere Wiederholungszahl „a“ durch dessen Polymerisationsbedingungen geeignet eingestellt worden ist, oder es kann ein kommerziell verfügbares α,ω-Dihydrogen-Organopolysiloxan verwendet werden. Ferner kann das Oligomer, bei dem ein Ende mit einer Allylgruppe modifiziert ist, verwendet werden, nachdem dessen mittlere Wiederholungszahl „b“ durch dessen Polymerisationsbedingungen geeignet eingestellt worden ist, oder es kann ein käuflich verfügbares, an einem Ende Allylgruppe-modifiziertes Oligomer verwendet werden. Unter den an einem Ende mit einer Allylgruppe modifizierten Oligomeren ist ein an einem Ende mit einer Allylgruppe modifiziertes Polyethylenglykol herstellbar unter Bezugnahme auf zum Beispiel JP 5652691 B2. Ferner ist ein kommerziell verfügbares Allylgruppe-modifiziertes Polyethylenglykol zum Beispiel UNIOX PKA-5001, UNIOX PKA-5002, UNIOX PKA-5003, UNIOX PKA-5004 oder UNIOX PKA-5005, hergestellt von NOF Corporation.

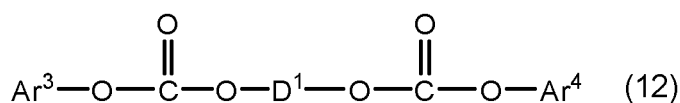
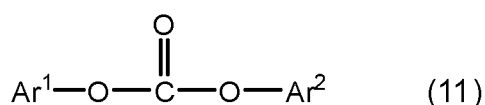
[0073] Das Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) kann durch die Polymerisation der Ausgangsmaterial-Monomere mit einem Grenzflächen-Polymerisationsverfahren oder einem Schmelz-Polymerisationsverfahren (Ester-Austauschverfahren) hergestellt werden. Wenn das Copolymer durch das Grenzflächen-Polymerisationsverfahren hergestellt wird, kann zum Beispiel ein in JP 2014-80462 A beschriebenes Verfahren eingesetzt werden. Das Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) kann durch Umsetzen des Polyorganosiloxans (a2), des Diol-Monomers (a1) und einer Kohlensäureester-Verbindung, welches die Ausgangsmaterial-Monomere sind, miteinander im Schmelz-Polymerisationsverfahren, bevorzugt in der Gegenwart eines basischen Katalysators, hergestellt werden. Zu diesem Zeitpunkt kann die Polymerisationsreaktion unter weiterem Zugabe eines Endgruppenstoppers (terminal stopper) durchgeführt werden.

[0074] Das Schmelz-Polymerisationsverfahren ist ökonomisch und ökologisch vorteilhaft, weil das Verfahren kein Lösungsmittel wie Methylenchlorid, welches im Grenzflächen-Polymerisationsverfahren erforderlich ist, erfordert. Ferner ist das Schmelz-Polymerisationsverfahren bezüglich der Produktion vorteilhaft, weil das Verfahren nicht die Verwendung von Phosgen mit hoher Toxizität involviert, welches als Carbonat-Quelle im Grenzflächen-Polymerisationsverfahren erforderlich ist.

(Kohlensäureester-Verbindung)

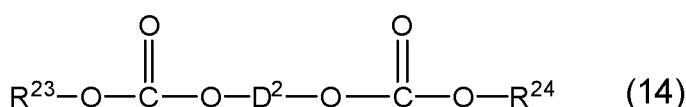
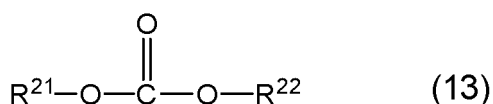
[0075] Beispiele der Kohlensäureester-Verbindung können eine Diarylcarbonat-Verbindung, eine Dialkylcarbonat-Verbindung und eine Alkylarylcarbonat-Verbindung umfassen.

[0076] Beispiele der Diarylcarbonat-Verbindung umfassen eine durch die folgende Formel (11) dargestellte Verbindung und eine durch die folgende Formel (12) dargestellte Verbindung:



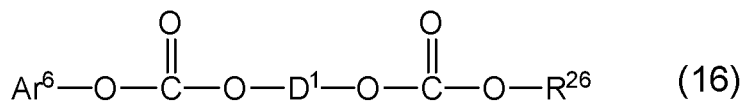
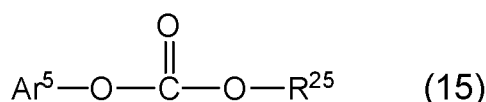
worin in der Formel (11) Ar¹ und Ar² jeweils eine Arylgruppe darstellen und die Gruppen identisch oder unterschiedlich sein können, und in der Formel (12) Ar³ und Ar⁴ jeweils eine Arylgruppe darstellen und die Gruppen identisch oder verschieden sein können und D¹ einen Rest darstellt, der durch Entfernen von zwei Hydroxygruppen von der aromatischen Dihydroxyverbindung oder der aliphatischen Dihydroxyverbindung erhalten wird.

[0077] Beispiele der Dialkylcarbonat-Verbindung umfassen eine durch die folgende Formel (13) dargestellte Verbindung und eine durch die folgende Formel (14) dargestellte Verbindung:



worin in der Formel 813) R²¹ und R²² jeweils eine Alkylgruppe mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen oder eine Cycloalkylgruppe mit 4 bis 20 Kohlenstoffatomen darstellen und die Gruppen identisch oder unterschiedlich sein können, und in der Formel (14) R²³ und R²⁴ jeweils eine Alkylgruppe mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen oder eine Cycloalkylgruppe mit 4 bis 20 Kohlenstoffatomen darstellen und die Gruppen identisch oder verschieden sein können, und D² einen Rest darstellt, der durch Entfernen von zwei Hydroxygruppen von der aromatischen Dihydroxyverbindung oder der aliphatischen Dihydroxyverbindung erhalten wird.

[0078] Beispiele der Alkylarylcarbonatverbindung umfassen eine durch die folgende Formel (15) dargestellte Verbindung und eine durch die folgende Formel (16) dargestellte Verbindung:



worin in der Formel (15) Ar⁵ eine Arylgruppe darstellt und R²⁵ eine Alkylgruppe mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen oder eine Cycloalkylgruppe mit 4 bis 20 Kohlenstoffatomen darstellt, und in der Formel (16) Ar⁶ eine Arylgruppe darstellt, R²⁶ eine Alkylgruppe mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen oder eine Cycloalkylgruppe mit 4 bis 20 Kohlenstoffatomen darstellt, und D¹ einen Rest darstellt, der durch Entfernen von zwei Hydroxygruppen von der aromatischen Dihydroxyverbindung oder der aliphatischen Dihydroxyverbindung erhalten wird.

[0079] Beispiele der Diarylcarbonatverbindung umfassen Dihphenylcarbonat, Ditolylcarbonat, Bis(chlorphenyl)carbonat, Bis(m-cresyl)carbonat, Dinaphthylcarbonat, Bis(diphenyl)carbonat und Bisphenol A-Bisphenylcarbonat.

[0080] Beispiele der Dialkylcarbonatverbindung umfassen Diethylcarbonat, Dimethylcarbonat, Dibutylcarbonat, Dicyclohexylcarbonat und Bisphenol A-Bismethylcarbonat.

[0081] Beispiele der Alkylarylcarbonatverbindung umfassen Methylphenylcarbonat, Ethylphenylcarbonat, Butylphenylcarbonat, Cyclohexylphenylcarbonat und Bisphenol A-Methylphenylcarbonat.

[0082] Eine bevorzugte Kohlensäureesterverbindung ist Diphenylcarbonat.

[0083] Es können ein oder zwei oder mehr Arten von Kohlensäureesterverbindung bei der Herstellung des Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymers (A) verwendet werden.

(Endgruppenstopper)

[0084] Erforderlichenfalls kann bei der Herstellung des Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymers (A) ein Endgruppenstopper (terminal stopper) verwendet werden. Es kann jeglicher bekannter Endgruppenstopper bei der Herstellung eines Polycarbonatharzes als Endgruppenstopper verwendet werden. Spezifische Beispiele hiervon können die folgenden Verbindungen umfassen: Phenol, p-Cresol, p-tert-Butylphenol, p-tert-Octylphenol, p-Cumylphenol, p-Nonylphenol und p-tert-Amylphenol. Diese einwertigen Phenole können allein oder in Kombination hiervon verwendet werden.

(Verzweigungsmittel)

[0085] Bei der Herstellung des Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymers (A) kann ein Verzweigungsmittel verwendet werden. Beispiele des Verzweigungsmittels umfassen Phloroglucin, Trimellitsäure, 1,1,1-Tris(4-hydroxyphenyl)ethan, 1-[α-Methyl-α-(4'-hydroxyphenyl)ethyl]-4-[α',α'-bis(4''hydroxyphenyl)ethyl]benzol, α,α',α''-Tris(4-hydroxyphenyl)-1,3,5-triisopropylbenzol und Isatinbis(o-cresol).

[0086] Spezifisch kann das Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) mit dem Schmelz-Polymerisationsverfahren in Übereinstimmung mit zum Beispiel der folgenden Prozedur hergestellt werden.

[0087] Das Diol-Monomer (a1), das Polyorganosiloxan (a2) und die Kohlensäureesterverbindung werden einer Ester-Austauschreaktion unterworfen. Die molare Menge der Kohlensäureesterverbindung beträgt bevorzugt das 0,9- bis 1,2-fache, stärker bevorzugt das 0,98- bis 1,02-fache des Diol-Monomers.

[0088] Zum Zeitpunkt der Ester-Austauschreaktion liegt der Endgruppenstopper bevorzugt in einer Menge im Bereich von 0,05 mol-% bis 10 mol-% vor, bezogen auf die Gesamtmenge des Diol-Monomers (a1) und des Polyorganosiloxans (a2), damit die Hydroxy-Endgruppe des Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymers, das erhalten wird, ausreichend versiegelt ist, und somit wird ein Polycarbonatharz erhalten, das bezüg-

lich der Hitzebeständigkeit und der Wasserwiderstandskraft herausragend ist. Der Endgruppenstopper liegt stärker bevorzugt in einer Menge von 1 mol-% bis 6 mol-% vor, bezogen auf die Gesamtmenge des Diol-Monomers (a1) und des Polyorganosiloxans (a2). Es kann die Gesamtmenge des Endgruppenstopper zu einem Reaktionssystem vorher zugegeben werden, oder es kann wie folgt vorgegangen werden: ein Teil des Endgruppenstopper wird zu dem Reaktionssystem vorher zugegeben, und der Rest hiervon wird zusammen mit dem Fortschreiten der Reaktion zugegeben.

[0089] Die Ester-Austauschreaktion wird bevorzugt in der Gegenwart eines Antioxidans durch simultanes Beschicken des Antioxidans in einen Reaktor zusammen mit dem Diol-Monomer (a1), dem Polyorganosiloxan (a2) und der Kohlensäureesterverbindung durchgeführt.

[0090] Wenn die Ester-Austauschreaktion durchgeführt wird, ist die Reaktionstemperatur nicht besonders beschränkt, und die Temperatur kann zum Beispiel in dem Bereich von 100°C bis 330°C fallen, und sie fällt bevorzugt innerhalb des Bereichs von 180°C bis 300°C, stärker bevorzugt in dem Bereich von 200°C bis 240°C. Ferner ist ein Verfahren bevorzugt, in dem die Temperatur in Übereinstimmung mit dem Fortschreiten der Reaktion allmählich von 180°C auf 300°C erhöht wird. Wenn die Temperatur der Ester-Austauschreaktion 100°C oder mehr beträgt, wird die Reaktionsgeschwindigkeit ausreichend erhöht. Wenn hingegen die Temperatur 330°C oder weniger beträgt ist das Auftreten von einer Nebenreaktion verringert, und ein Problem, wie zum Beispiel eine Verfärbung des Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymers, das hergestellt werden soll, tritt kaum auf.

[0091] Der Reaktionsdruck wird in Abhängigkeit vom Dampfdruck des zu verwendenden Monomers und/oder der Reaktionstemperatur eingestellt. Der Druck ist nicht besonders beschränkt, solange der Druck so eingestellt wird, dass die Reaktion effizient durchgeführt werden kann. Zum Beispiel kann wie folgt vorgegangen werden: im Anfangsstadium der Reaktion ist es bevorzugt, dass der Druck auf Atmosphärendruck (Normaldruck) oder auf einen Druckzustand im Bereich von 1 atm bis 50 atm (760 Torr bis 38.000 Torr) eingestellt wird, und in einem späteren Stadium der Reaktion wird der Druck auf einen dekomprimierten Zustand eingestellt und wird letztlich auf 1,33 Pa bis $1,33 \times 10^4$ Pa (0,01 Torr bis 100 Torr) eingestellt.

[0092] Die Reaktion muss nur durchgeführt werden, bis das gewünschte Molekulargewicht erhalten wird, und die Reaktionszeit beträgt zum Beispiel von 0,2 Stunden bis 10 Stunden.

[0093] Die Ester-Austauschreaktion, die zum Beispiel in der Abwesenheit eines inerten Lösungsmittels durchgeführt wird, kann erforderlichenfalls in der Gegenwart von 1 Masseteil bis 150 Masseteilen des inerten Lösungsmittels, bezogen auf 100 Masseteile des zu erhaltenden Polycarbonatharzes, durchgeführt werden. Beispiele des inerten Lösungsmittels umfassen: aromatische Verbindungen, wie zum Beispiel Diphenylether, halogenierte Diphenylether, Benzophenon, Polyphenylether, Dichlorbenzol und Methyl-naphthalin; als auch Cycloalkane, wie zum Beispiel Tricyclo[5.2.1.0^{2,6}]decan, Cyclooctan und Cyclodecan.

[0094] Die Reaktion kann erforderlichenfalls unter Inertgasatmosphäre durchgeführt werden, und Beispiele des Inertgases umfassen verschiedene Gase, einschließlich: Gase wie Argon, Kohlendioxid, Distickstoffmonoxid und Stickstoff; Alkane, wie Chlorflorkohlenwasserstoffe, Ethan und Propan; und Alkene, wie Ethylen und Propylen.

[0095] Im Schmelz-Polymerisationsverfahren wird bevorzugt ein basischer Katalysator als ein Katalysator verwendet. Der basische Katalysator kann zum Beispiel zumindest eine Art sein, die ausgewählt ist aus der Gruppe, bestehend aus: einem Metallkatalysator, wie zum Beispiel einer Alkalimetallverbindung oder einer Erdalkalimetallverbindung; einer stickstoffhaltigen Verbindung; einem organischen Katalysator, wie zum Beispiel einem quaternären Phosphoniumsalz, das eine Arylgruppe enthält; und einer Metallverbindung. Diese Verbindungen können allein oder in Kombination hiervon verwendet werden.

[0096] Als basischer Katalysator wird zum Beispiel irgendeiner der folgenden Katalysatoren bevorzugt verwendet: ein Salz einer organische Säure, ein anorganisches Salz, ein Oxid, ein Hydroxid, ein Hydrid und ein Alkoxid eines Alkalimetalls oder eines Erdalkalimetalls; ein quaternäres Ammoniumhydroxid; und ein quaternäres Phosphoniumsalz, das eine Arylgruppe enthält. Die basischen Katalysatoren können allein oder in Kombination hiervon verwendet werden.

[0097] Beispiele der Alkalimetallverbindung umfassen Natriumhydroxid, Kaliumhydroxid, Cäsiumhydroxid, Lithiumhydroxid, Natriumhydrogencarbonat, Natriumcarbonat, Kaliumcarbonat, Cäsiumcarbonat, Lithiumcarbonat, Natriumacetat, Kaliumacetat, Cäsiumacetat, Lithiumacetat, Natriumstearat, Kaliumstearat, Cäsium-

tearat, Lithiumstearat, Natriumborhydrid, Natriumbenzoat, Kaliumbenzoat, Cäsiumbenzoat, Lithiumbenzoat, Dinatriumhydrogenphosphat, Dikaliumhydrogenphosphat, Dilithiumhydrogenphosphat, Dinatriumphosphat, Dinatriumsalz, Dikaliumsalz, Dicäsiumsalz oder Dilithiumsalz von Bisphenol A, und Natriumsalz, Kaliumsalz, Cäsiumsalz oder Lithiumsalz von Phenol.

[0098] Beispiele der Erdalkalimetallverbindung umfassen Magnesiumhydroxid, Calciumhydroxid, Strontiumhydroxid, Bariumhydroxid, Magnesiumcarbonat, Calciumcarbonat, Strontiumcarbonat, Bariumcarbonat, Magnesiumdiacetat, Calciumdiacetat, Strontiumdiacetat und Bariumdiacetat.

[0099] Beispiele der stickstoffhaltigen Verbindung umfassen: quaternäre Ammoniumhydroxide mit Alkyl- und Arylgruppen, wie Tetramethylammoniumhydroxid, Tetraethylammoniumhydroxid, Tetrapropylammoniumhydroxid, Tetrabutylammoniumhydroxid und Trimethylbenzylammoniumhydroxid; tertiäre Amine, wie Triethylamin, Dimethylbenzylamin und Triphenylamin; Imidazole, wie 2-Methylimidazol, 2-Phenylimidazol und Benzimidazol; und Basen oder basische Salze, wie Ammoniak, Tetramethylammoniumborhydrid, Tetrabutylammoniumborhydrid, Tetrabutylammoniumtetraphenylborat und Tetraphenylammoniumtetraphenylborat.

[0100] Beispiel der Metallverbindung umfassen eine Zink-Aluminiumverbindung, eine Germaniumverbindung, eine Organozinnverbindung, eine Antimonverbindung, eine Manganverbindung, eine Titanverbindung und eine Zirkoniumverbindung.

[0101] Spezifische Beispiel des quaternären Phosphoniumsalzes, das eine Arylgruppe enthält, umfassen: Tetra(Aryl oder Alkyl)-Phosphoniumhydroxide, wie Tetraphenylphosphoniumhydroxid, Tetranaphthylphosphoniumhydroxid, Tetra(chlorphenyl)phosphoniumhydroxid, Tetra(biphenyl)phosphoniumhydroxid, Tetratolylphosphoniumhydroxid, Tetramethylphosphoniumhydroxid, Tetraethylphosphoniumhydroxid und Tetrabutylphosphoniumhydroxid; und Tetramethylphosphoniumtetraphenylborat, Tetraphenylphosphoniumbromid, Tetraphenylphosphoniumphenolat, Tetraphenylphosphoniumtetraphenylborat, Methyltriphenylphosphoniumtetraphenylborat, Benzyltriphenylphosphoniumtetraphenylborat, Biphenyltriphenylphosphoniumtetraphenylborat, Tetratolylphosphoniumtetraphenylborat, Tetraphenylphosphoniumphenolat, Tetra(p-t-butylphenyl)phosphoniumdiphenylphosphat, Triphenylbutylphosphoniumphenolat und Triphenylbutylphosphoniumtetraphenylborat

[0102] Das quaternäre Phosphoniumsalz, das eine Arylgruppe enthält, wird bevorzugt mit einer stickstoffhaltigen organischen basischen Verbindung kombiniert, und zum Beispiel ist eine Kombination von Tetramethylammoniumhydroxid und Tetraphenylphosphoniumtetraphenylborat bevorzugt.

[0103] Die Verwendungsmenge des basischen Katalysators kann aus dem Bereich von bevorzugt 1×10^{-9} mol bis 1×10^{-2} mol, stärker bevorzugt 1×10^{-8} mol bis 1×10^{-2} mol, weiter stärker bevorzugt 1×10^{-7} mol bis 1×10^{-3} mol, ausgewählt werden, bezogen auf 1 mol des Diol-Monomers (a1).

[0104] Zu einem späteren Stadium der Reaktion kann ein Katalysator-Deaktivator zugegeben werden. Als zu verwendender Katalysator-Deaktivator wird effektiv ein bekannter Katalysator-Deaktivator eingesetzt. Beispiele des Katalysator-Deaktivators umfassen ein Sulfonsäure-Ammoniumsalz und ein Sulfonsäure-Phosphoniumsalz.

[0105] Wenn zumindest eine Art von Polymerisationskatalysator, ausgewählt aus Alkalimetallverbindungen und Erdalkalimetallverbindungen, verwendet wird, ist die Verwendungsmenge des Katalysator-Deaktivators bevorzugt von 0,5 mol bis 50 mol, stärker bevorzugt von 0,5 mol bis 10 mol, weiter stärker bevorzugt von 0,8 mol bis 5 mol je 1 mol Katalysator.

[0106] Das Antioxidans wird bevorzugt eingemischt, nachdem der Katalysator-Deaktivator zugegeben worden ist, um die Polymerisationsreaktion zu beenden.

[0107] Die Reaktion im Schmelz-Polymerisationsverfahren kann durch irgendeines von einem kontinuierlichen System und einem Batch-System durchgeführt werden. Ein bei der Schmelz-Polymerisation zu verwendender Reaktor kann irgendeiner sein von: einem vertikalen Reaktor, der zum Beispiel mit einem Rührblatt vom Ankertyp, einem Rührblatt vom maximalen Mischungstyp oder einem Rührblatt vom SpiralTyp ausgerüstet ist; und einem horizontalen Reaktor, der zum Beispiel mit einem Schaufelrad, einer Gitterschaukel oder einem Spectable-Blade ausgerüstet ist. Ferner kann der Reaktor vom Extruder-Typ sein, der mit

einer Schnecke ausgerüstet ist. Im Fall des kontinuierlichen Systems wird bevorzugt eine geeignete Kombination von solchen Rektoren verwendet.

<Harz auf Polycarbonatbasis (S)>

[0108] Das Harz auf Polycarbonatbasis (S) kann ein Harz auf Polycarbonatbasis (P) außer dem Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) umfassen (nachstehend manchmal auch als „Harz auf Polycarbonatbasis (P)“ bezeichnet).

[0109] Der Anteil des Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymers (A) an dem Harz auf Polycarbonatbasis (S) beträgt bevorzugt 50 Masse-% oder mehr, stärker bevorzugt 60 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 70 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 80 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 90 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 95 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 98 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 99 Masse-% oder mehr, im Hinblick auf die Verbesserung der Balance zwischen der Schlagfestigkeit, den Zugeigenschaften und der chemischen Beständigkeit der Harzzusammensetzung. Obwohl die Obergrenze des Anteils des Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymers (A) an dem Harz auf Polycarbonatbasis (S) nicht besonders beschränkt ist, beträgt der Anteil zum Beispiel 100 Masse-% oder weniger im Hinblick auf den Erhalt einer Harzzusammensetzung mit den gewünschten Eigenschaften.

[0110] Der Anteil des Polyorganosiloxan-Blocks (A-1) an dem Harz auf Polycarbonatbasis (S) beträgt bevorzugt 0,1 Masse-% oder mehr, stärker bevorzugt 0,5 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 1,0 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 3,0 Masse-% oder mehr, und beträgt bevorzugt 40 Masse-% oder weniger, stärker bevorzugt 20 Masse-% oder weniger, weiter stärker bevorzugt 10 Masse-% oder weniger, weiter stärker bevorzugt 7,0 Masse-% oder weniger.

[0111] Der Anteil des Polyorganosiloxan-Blocks (A-1) an der Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis beträgt bevorzugt 0,1 Masse-% oder mehr, stärker bevorzugt 0,5 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 1,0 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 3,0 Masse-% oder mehr, und beträgt bevorzugt 40 Masse-% oder weniger, stärker bevorzugt 20 Masse-% oder weniger, weiter stärker bevorzugt 10 Masse-% oder weniger, weiter stärker bevorzugt 7,0 Masse-% oder weniger.

[0112] Das viskositätsgemittelte Molekulargewicht des Harzes auf Polycarbonatbasis (S) beträgt bevorzugt 5.000 oder mehr, stärker bevorzugt 12.000 oder mehr, weiter stärker bevorzugt 14.000 oder mehr, weiter stärker bevorzugt 16.000 oder mehr, und beträgt bevorzugt 50.000 oder weniger, stärker bevorzugt 30.000 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 23.000 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 21.000 oder weniger.

<Harz auf Polycarbonatbasis (P)>

[0113] Als Harz auf Polycarbonatbasis (P) können verschiedene bekannte Harze auf Polycarbonatbasis ohne besondere Beschränkung verwendet werden.

[0114] Das Harz auf Polycarbonatbasis (P) ist bevorzugt ein Harz auf Polycarbonatbasis, das keinen Polyorganosiloxan-Block (A-1), der die durch die Formel (1) dargestellte Struktureinheit umfasst, aufweist und das den Polycarbonat-Block (A-2), der durch die Formel (2) dargestellte Struktureinheit umfasst, aufweist.

[0115] Beispiele der durch die Formel (2) dargestellten Struktureinheit in dem Harz auf Polycarbonatbasis (P) umfassen die gleichen Beispiele wie diejenigen der durch die Formel (2) in dem Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) dargestellten Struktureinheit. Eine bevorzugte Form hiervon ist auch die gleiche wie vorstehend beschrieben.

[0116] Das Harz auf Polycarbonatbasis (P) umfasst bevorzugt die durch die Formel (2) dargestellte Struktureinheit als eine Hauptkomponente. Der Anteil der durch die Formel (2) dargestellten Struktureinheit an dem Harz auf Polycarbonatbasis (P) beträgt bevorzugt 50 Masse-% oder mehr, stärker bevorzugt 80 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 90 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 98 Masse-% oder mehr, bezogen auf alle Strukturen des Harzes auf Polycarbonatbasis (P).

[0117] Das viskositätsgemittelte Molekulargewicht des Harzes auf Polycarbonatbasis (P) beträgt bevorzugt 5.000 oder mehr, stärker bevorzugt 12.000 oder mehr, weiter stärker bevorzugt 14.000 oder mehr, weiter

stärker bevorzugt 16.000 oder mehr, und beträgt bevorzugt 50.000 oder weniger, stärker bevorzugt 30.000 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 23.000 oder weniger, weiter stärker bevorzugt 21.000 oder weniger.

<Flammhemmer (B)>

[0118] Die erfindungsgemäße Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis umfasst das Harz auf Polycarbonatbasis (S) und den Flammhemmer (B). Die Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis umfasst bevorzugt 0,01 Masseteile oder mehr und 40 Masseteile oder weniger des Flammhemmers (B), bezogen auf 100 Masseteile des Harzes auf Polycarbonatbasis (S). Wenn der Anteil des Flammhemmers (B) 0,01 Masseteile oder mehr beträgt, kann die Flammhemmung der Zusammensetzung weiter verbessert werden. Wenn der Anteil des Flammhemmers (B) 40 Masseteile oder weniger beträgt, kann die Anhaftung der Harzzusammensetzung an eine Form zum Zeitpunkt von deren Formung und eine Verringerung der Wärmebeständigkeit des resultierenden Formkörpers weiter unterdrückt werden.

[0119] Zur weiteren Verbesserung der Flammhemmung beträgt der Anteil des Flammhemmers (B) an der Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis stärker bevorzugt 0,02 Masseteile oder mehr, weiter stärker bevorzugt 0,04 Masseteile oder mehr, weiter stärker bevorzugt 0,06 Masseteile oder mehr, weiter stärker bevorzugt 0,08 Masseteile oder mehr, bezogen auf 100 Masseteile des Harzes auf Polycarbonatbasis (S). Zur weiteren Unterdrückung der Anhaftung der Harzzusammensetzung an die Form zum Zeitpunkt der Formung und zur Verringerung der Wärmebeständigkeit des Formkörpers beträgt der Anteil stärker bevorzugt 30 Masseteile oder weniger, weiter stärker bevorzugt 20 Masseteile oder weniger, weiter stärker bevorzugt 15 Masseteile oder weniger, weiter stärker bevorzugt 12 Masseteile oder weniger.

[0120] Die erfindungsgemäße Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis kann eine oder zwei oder mehr Arten an Flammhemmer als Flammhemmer (B) umfassen.

[0121] Der Flammhemmer (B) ist zum Beispiel mindestens eine Substanz, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus: einem Flammhemmer auf Phosphorbasis; einem Flammhemmer auf Halogenbasis; und einem Flammhemmer auf Metallsalzbasis. Unter diesen ist zur weiteren Verbesserung der Flammhemmung zumindest eine Art, die ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus: einem Flammhemmer auf Phosphorbasis; und einem Flammhemmer auf Metallsalzbasis bevorzugt.

[0122] Beispiele des Flammhemmers auf Phosphorbasis umfassen roten Phosphor und einen Flammhemmer auf Phosphorsäureesterbasis.

[0123] Der Flammhemmer auf Phosphorsäureesterbasis ist bevorzugt ein halogenfreier Flammhemmer, und ist zum Beispiel ein Flammhemmer, der aus einem Monomer, Oligomer oder Polymer eines Phosphorsäureesters oder einer Mischung hiervon gebildet ist. Beispiele hiervon umfassen Trimethylphosphat, Triethylphosphat, Tributylphosphat, Trioctylphosphat, Tributoxyethylphosphat, Triphenylphosphat, Tricresylphosphat, Cresyldiphenylphosphat, Octyldiphenylphosphat, Tri(2-ethylhexyl)phosphat, Diisopropylphenylphosphat, Trixylenylphosphat, Tris(isopropylphenyl)phosphat, Trinaphthylphosphat, Bisphenol A-bisphosphat, Hydrochinonbisphosphat, Resorcinbisphosphat, Resorcinol-diphenylphosphat, Trioxybenzotriphosphat und substituierte Produkte und Kondensate hiervon. Unter diesen sind kondensierte Phosphorsäureester jeweils als Flammhemmer auf Phosphorsäureesterbasis bevorzugt.

[0124] Beispiele einer kommerziell verfügbaren Phosphorsäureesterverbindung, die als Flammhemmer auf Phosphorsäureesterbasis eingesetzt werden kann, umfassen TPP [Triphenylphosphat], TXP [Trixylenylphosphat], CR733S [Resorcinol-bis(diphenylphosphat)], CR741 [Bisphenol A-bis(diphenylphosphat)], PX200 [1,3-Phenylentetrakis(2,6-dimethylphenyl)phosphat], PX201L [1,4-Phenylentetrakis(2,6-dimethylphenyl)phosphat] und PX202 [4,4'-Biphenylentetrakis(2,6-dimethylphenyl)phosphat], jeweils hergestellt von Daihachi Chemical Industry Co., Ltd.

[0125] Der vorstehend erwähnte Flammhemmer auf Phosphorsäureesterbasis wird durch die Reaktion zwischen einem mehrwertigen Phenol, einem einwertigen Phenol, dargestellt durch Ar-OH, und Phosphoroychlorid hergestellt.

[0126] Solche Flammhemmer auf Phosphorsäureesterbasis können einzeln oder in Kombination eingesetzt werden. Als Flammhemmer auf Phosphorsäureesterbasis ist Bisphenol A-bis(diphenylphosphat) bevorzugt.

[0127] Wenn die erfindungsgemäße Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis den Flammhemmer auf Phosphorbasis als Flammhemmer (B) umfasst, ist zur weiteren Verbesserung der Flammhemmung der Anteil des Flammhemmers (B) bevorzugt 1,0 Masseteile oder mehr, stärker bevorzugt 2,0 Masseteile oder mehr, weiter stärker bevorzugt 3,0 Masseteile oder mehr, weiter stärker bevorzugt 5,0 Masseteile oder mehr, weiter stärker bevorzugt 7,0 Masseteile oder mehr, bezogen auf 100 Masseteile des Harzes auf Polycarbonatbasis (S). Zur weiteren Unterdrückung der Anhaftung der Harzzusammensetzung an die Form zum Zeitpunkt des Formens und der Verringerung der Wärmebeständigkeit des Formkörpers, und zur Verbesserung der Schlagfestigkeit und Fluidität der Zusammensetzung beträgt der Anteil bevorzugt 40 Masseteile oder weniger, stärker bevorzugt 30 Masseteile oder weniger, weiter stärker bevorzugt 20 Masseteile oder weniger, weiter stärker bevorzugt 15 Masseteile oder weniger, weiter stärker bevorzugt 12 Masseteile oder weniger.

[0128] Beispiele des Flammhemmers auf Halogenbasis umfassend Tetrabrombisphenol A (TBA), halogeniertes Polycarbonat und ein Copolymer von halogeniertem Polycarbonat, ein Oligomer hiervon (TBA-Carbonat-Oligomer), Decabromdiphenylether, ein TBA-Epoxy-Oligomer, halogeniertes Polystyrol und halogenierte Polyolefine. Diese Flammhemmer auf Halogenbasis können allein oder in Kombination hiervon eingesetzt werden.

[0129] Beispiele des Flammhemmers auf Metallsalzbasis umfassen ein organisches Alkalimetallsalz und ein organisches Erdalkalimetallsalz. Der Flammhemmer auf Metallsalzbasis umfasst bevorzugt zumindest eine Art, ausgewählt aus einem organischen Alkalimetallsalz und einem organischen Erdalkalimetallsalz, und ist stärker bevorzugt zumindest eine Art, die ausgewählt ist aus einem organischen Alkalimetallsalz und einem organischen Erdalkalimetallsalz.

[0130] Beispiele eines organischen Sulfonsäuresalzes des Alkalimetalls oder des Erdalkalimetalls (nachstehend auch manchmal zusammen als „Alkali (Erdalkalimetall)metall“ bezeichnet) umfassen: ein Metallsalz einer Fluorsubstituierten Alkylsulfonsäure, wie zum Beispiel ein Metallsalz einer Perfluoralkansulfonsäure und eines Alkalimetalls oder eines Erdalkalimetalls; und ein Metallsalz einer aromatischen Sulfonsäure und eines Alkalimetalls oder eines Erdalkalimetalls.

[0131] Beispiele des Alkalimetalls umfassen Lithium, Natrium, Kalium, Rubidium und Cäsium. Beispiele des Erdalkalimetalls umfassen Beryllium, Magnesium, Calcium, Strontium und Barium. Unter diesen sind die Alkalimetalle stärker bevorzugt.

[0132] Unter diesen Alkalimetallen sind im Hinblick auf die Flammhemmung und die thermische Stabilität Kalium und Natrium bevorzugt, und Kalium ist stärker bevorzugt.

[0133] Es können ein Kaliumsalz und ein Sulfonsäure-Alkalimetallsalz, das aus einem anderen Alkalimetall gebildet ist, in Kombination verwendet werden.

[0134] Beispiele des Perfluoralkansulfonsäure-Alkalimetallsalzes umfassen Kaliumperfluorbutansulfonat, Kaliumtrifluormethansulfonat, Kaliumperfluorhexansulfonat, Kaliumperfluoroctansulfonat, Natriumpentafluorethansulfonat, Natriumperfluorbutansulfonat, Natriumperfluoroctansulfonat, Lithiumtrifluormethansulfonat, Lithiumperfluorbutansulfonat, Lithiumperfluorheptansulfonat, Cäsiumtrifluormethansulfonat, Cäsiumperfluorbutansulfonat, Cäsiumperfluoroctansulfonat, Cäsiumperfluorhexansulfonat, Rubidiumperfluorbutansulfonat und Rubidiumperfluorhexansulfonat. Diese Perfluoralkansulfonsäure-Alkalimetallsalze können allein oder in Kombination hiervon verwendet werden.

[0135] Hierin ist die Anzahl der Kohlenstoffatome einer Perfluoralkylgruppe bevorzugt von 1 bis 18, stärker bevorzugt von 1 bis 10, weiter stärker bevorzugt von 1 bis 8.

[0136] Unter diesen ist Kaliumperfluorbutansulfonat bevorzugt.

[0137] Beispiele des aromatischen Sulfonsäurealkali (Erdalkali-)metallsalzes umfassen Beispiele für aromatische Sulfonsäure-Alkali- (Erdalkali-) Metallsalze umfassen Dinatriumdiphenylsulfid-4,4'-disulfonat, Dikaliumdiphenylsulfid-4,4'-disulfonat, Kalium-5-sulfoisophthalat, Natrium-5-sulfoisophthalat, Polynatrium-Polyethylenterephthalat-Polysulfonat, Calcium-1-methoxynaphthalin-4-sulfonat, Dinatrium-4-dodecylphenyletherdisulfonat, Polynatriumpoly(2,6-dimethylphenylenoxid)polysulfonat, Polynatriumpoly(1,3-phenylenoxid)polysulfonat, Polynatriumpoly(1, 4-Phenylenoxid)-Polysulfonat, Polynatriumpoly(2,6-diphenylphenylenoxid)-Polysulfonat, Lithiumpoly(2-fluor-6-butylphenylenoxid)-Polysulfonat, Kaliumbenzolsulfonat, Natriumbenzolsulfonat, Natrium-p-toluolsulfonat, Strontiumbenzolsulfonat, Magnesiumbenzolsulfonat, Dika-

liump-benzoldisulfonat, Dikaliumnaphthalin-2, 6-Disulfonat, Calciumbiphenyl-3,3'-disulfonat, Natriumdiphenylsulfon-3-sulfonat, Kaliumdiphenylsulfon-3-sulfonat, Dipotassiumdiphenylsulfon-3,3'-disulfonat, Dikaliumdiphenylsulfon-3,4'-disulfonat, Natrium- α,α,α -trifluoracetophenon-4-sulfonat, Dikaliumbenzophenon-3,3'-disulfonat, Dinatriumthiophen-2, 5-Disulfonat, Dikalium-Thiophen-2,5-disulfonat, Calcium-Thiophen-2,5-disulfonat, Natrium-Benzothiophenesulfonat, Kalium-Diphenylsulfoxid-4-sulfonat, ein Formalinkondensat von Natriumnaphthalinsulfonat und ein Formalinkondensat von Natriumanthracensulfonat. Unter ihnen ist Kaliumdiphenylsulfon-3-sulfonat bevorzugt.

[0138] Unter diesen aromatischen Sulfonsäurealkali Alkali(Erdalkali)-metallsalzen sind die Natriumsalze und Kaliumsalze geeignet.

[0139] Solche Flammhemmer auf Metallsalzbasis können allein oder in Kombination hiervon verwendet werden.

[0140] Wenn die erfindungsgemäße Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis den Flammhemmer auf Metallsalzbasis als Flammhemmer (B) umfasst, beträgt im Hinblick auf die weitere Verbesserung der Flammhemmung der Anteil des Flammhemmer (B) bevorzugt 0,01 Masseteile oder mehr, stärker bevorzugt 0,02 Masseteile oder mehr, weiter stärker bevorzugt 0,04 Masseteile oder mehr, weiter stärker bevorzugt 0,06 Masseteile oder mehr, weiter stärker bevorzugt 0,08 Masseteile oder mehr, bezogen auf 100 Masseteile des Harzes auf Polycarbonatbasis (S). Zur weiteren Unterdrückung der Anhaftung der Harzzusammensetzung an die Form zum Zeitpunkt des Formens und der Verringerung der Wärmebeständigkeit des Formkörpers beträgt der Anteil bevorzugt 1,0 Masseteile oder weniger, stärker bevorzugt 0,8 Masseteile oder weniger, weiter stärker bevorzugt 0,6 Masseteile oder weniger, weiter stärker bevorzugt 0,4 Masseteile oder weniger.

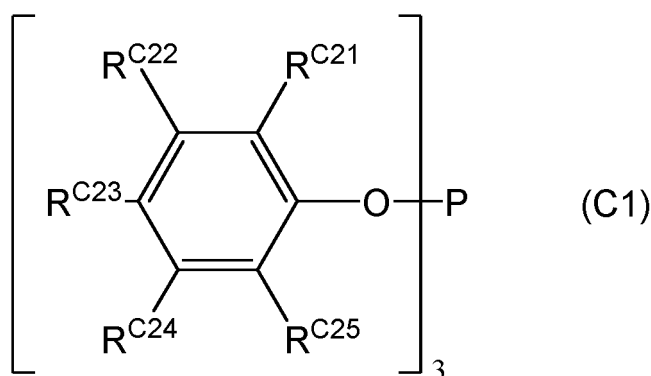
[0141] Zur weiteren Verbesserung der Balance zwischen den Zugeigenschaften und der Flammhemmung des Formkörpers beträgt der Gesamtanteil des Harzes auf Polycarbonatbasis (S) und des Flammhemmers (B) an der erfindungsgemäßen Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis bevorzugt 50 Masse-% oder mehr, stärker bevorzugt 60 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 70 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 80 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 90 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 95 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 98 Masse-% oder mehr, weiter stärker bevorzugt 99 Masse-% oder mehr, wenn die Gesamtheit der Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis als 100 Masse-% definiert ist. Obwohl die Obergrenze des Gesamtanteils des Harzes auf Polycarbonatbasis (S) und des Flammhemmers (B) nicht besonders beschränkt ist, beträgt der Gesamtanteil zum Beispiel 100 Masse-% oder weniger, um eine Harzzusammensetzung mit gewünschten Eigenschaften zu erhalten.

<Antioxidans (C)>

[0142] Soweit der Gegenstand der vorliegenden Erfindung nicht beeinträchtigt wird kann die erfindungsgemäße Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis geeigneterweise ein Antioxidans (C) umfassen.

[0143] Das Antioxidans (C) kann die Zersetzung des Harzes zum Zeitpunkt der Herstellung der Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis und zum Zeitpunkt von dessen Formung unterdrücken. Als Antioxidans (C) kann ein bekanntes Antioxidans eingesetzt werden, und bevorzugt kann zumindest eine Art verwendet werden, die ausgewählt ist aus einem Antioxidans auf Phosphorbasis und einem Antioxidans auf Phenolbasis.

[0144] Zur Unterdrückung des oxidativen Abbaus eines Formkörpers, der die Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis umfasst, zum Zeitpunkt von dessen Hochtemperatur-Formung ist das Antioxidans auf Phosphorbasis stärker bevorzugt ein Antioxidans auf Phosphorbasis, das eine Arylgruppe aufweist, weiter stärker bevorzugt eine durch die folgende Formel (C1) dargestellte Verbindung:



worin in Formel (C1) R^{C21} bis R^{C25} jeweils ein Wasserstoffatom, eine Alkylgruppe mit 1 oder mehr und 12 oder weniger Kohlenstoffatomen oder eine Arylgruppe mit 6 oder mehr und 14 oder weniger Kohlenstoffatomen darstellen, und welche zueinander identisch oder voneinander verschieden sein können, vorausgesetzt, dass im Hinblick auf die Wirkung als Antioxidans ein Fall ausgenommen ist, in dem alle von R^{C21} bis R^{C25} Wasserstoffatome darstellen, und worin zumindest zwei von R^{C21} bis R^{C25} jeweils eine Alkylgruppe mit 1 oder mehr und 12 oder weniger Kohlenstoffatomen oder eine Arylgruppe mit 6 oder mehr und 14 oder weniger Kohlenstoffatomen darstellen. Bevorzugt ist eine Verbindung, worin irgendwelche zwei von R^{C21} bis R^{C25} jeweils eine Alkylgruppe mit 1 oder mehr und 12 oder weniger Kohlenstoffatomen oder eine Arylgruppe mit 6 oder mehr und 14 oder weniger Kohlenstoffatomen darstellen und die anderen Wasserstoffatome darstellen. Unter den Verbindungen, bei denen irgendwelche zwei von R^{C21} bis R^{C25} jeweils eine Alkylgruppe mit 1 oder mehr und 12 oder weniger Kohlenstoffatomen oder einer Arylgruppe mit 6 oder mehr und 14 oder weniger Kohlenstoffatomen darstellen und die anderen Wasserstoffatome darstellen, ist eine Verbindung stärker bevorzugt, worin zumindest eines von R^{C21} oder R^{C25} eine Alkylgruppe mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen oder einer Arylgruppe mit 6 oder mehr und 14 oder weniger Kohlenstoffatomen darstellt.

[0145] Beispiele der Alkylgruppe mit 1 oder mehr und 12 oder weniger Kohlenstoffatomen umfassen eine Methylgruppe; eine Ethylgruppe; eine n-Propylgruppe; eine Isopropylgruppe; verschiedene Butylgruppen; verschiedene Pentylgruppen, verschiedene Hexylgruppen; verschiedene Octylgruppen; verschiedene Decylgruppen und verschiedene Dodecylgruppen. Unter diesen sind eine oder mehr Arten bevorzugt, die ausgewählt sind aus der Gruppe, bestehend aus: einer Methylgruppe; einer Ethylgruppe; einer n-Propylgruppe; einer Isopropylgruppe; verschiedenen Butylgruppen; verschiedenen Pentylgruppen; verschiedenen Hexylgruppen; und verschiedenen Octylgruppen; eine oder mehr Arten, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus einer Methylgruppe; einer Ethylgruppe; einer Isopropylgruppe; und einer tert-Butylgruppe sind stärker bevorzugt, und im Hinblick auf die Verleihung von Langzeit-Feuchtigkeits-Wärmebeständigkeit und Langzeit-Wärmebeständigkeit ist eine tert-Butylgruppe weiter stärker bevorzugt.

[0146] Beispiel der Arylgruppe mit 6 oder mehr und 14 oder weniger Kohlenstoffatomen umfassen eine Phenylgruppe, eine Tolygruppe und eine Xylylgruppe. Im Hinblick darauf, dass die thermische Zersetzung der Harzzusammensetzung kaum auftritt und dass hierdurch die verbessernden Wirkungen auf die Langzeit-Feuchtigkeits-Wärmebeständigkeit und die Langzeit-Wärmebeständigkeit herausragend sind, stellen unter den vorstehend erwähnten Gruppen R^{C21} bis R^{C25} jeweils stärker bevorzugt ein Wasserstoffatom oder eine Alkylgruppe mit 1 oder mehr und 12 oder weniger Kohlenstoffatomen dar, weiter stärker bevorzugt ein Wasserstoffatom, eine Methylgruppe, eine Ethylgruppe, eine Isopropylgruppe oder eine tert-Butylgruppe, weitere stärker bevorzugt ein Wasserstoffatom oder eine tert-Butylgruppe.

[0147] Besonders bevorzugt ist solch eine Verbindung, worin R^{C21} und R^{C23} jeweils eine tert-Butylgruppe darstellen und R^{C22} , R^{C24} und R^{C25} jeweils ein Wasserstoffatom darstellen, das heißt, Tris(2,4-di-tert-butylphenyl)phosphit.

[0148] Beispiel des Antioxidans auf Phosphorbasis umfassen Triphenylphosphit, Diphenylnonylphosphit, Diphenyl (2-Ethylhexyl)phosphit, Tris(2,4-di-tert-butylphenyl)phosphit, Tris(nonylphenyl)phosphit, Diphenylisooctylphosphit, 2,2'-Methylenbis(4,6-di-tert-butylphenyl)octylphosphit, Diphenylisododecylphosphit, Diphenylmono(tridecyl)phosphit, Phenylidiisododecylphosphit, Phenyl(di-tridecyl)phosphit, Tris(2-ethylhexyl)phosphit, Tris(isododecyl)phosphit, Tris(tridecyl)phosphit, Dibutylhydrogenphosphit, Trilauryltrithiophosphit, Tetrakis(2,4-di-tert-butylphenyl)-4,4'-biphenylendiphosphonit, 4,4'-Isopropylidendiphenoldodecylphosphit, 4,4'-Isopropylidendiphenoltridecylphosphit, 4,4'-Isopropylidendiphenoltetradecylphosphit, 4,4'-Isopropylidendiphenolpentade-

cylphosphit, 4,4'-Butylidenbis(3-methyl-6-tert-butylphenyl)ditridecylphosphit, Bis(2,6-di-tert-butyl-4-methylphenyl)pentaerythritoldiphosphit, Bis(nonylphenyl)pentaerythritoldiphosphit, Distearylpentaerythritoldiphosphit, Phenyl-Bisphenol A-pentaerythritoldiphosphit, Tetraphenyldipropylenglykoldiphosphit, 1,1,3-Tris(2-methyl-4-di-tridecylphosphit-5-tert-butylphenyl)butan, 3,4,5,6-Dibenzo-1,2-oxaphosphan, Triphenylphosphin, Diphenylbutylphosphin, Diphenyloctadecylphosphin, Tris(p-tolyl)phosphin, Tris(p-nonylphenyl)phosphin, Tris(naphthyl)phosphin, Diphenyl(hydroxymethyl)phosphin, Diphenyl(acetoxymethyl)phosphin, Diphenyl(β -ethylcarboxyethyl)phosphin, Tris(p-chlorphenyl)phosphin, Tris(p-fluorphenyl)phosphin, Benzylidiphenylphosphin, Diphenyl(β -cyanoethyl)phosphin, Diphenyl(p-hydroxyphenyl)phosphin, Diphenyl(1,4-dihydroxyphenyl)-2-phosphin, Phenyl-naphthylbenzylphosphin und Bis(2,4-dicumylphenyl)pentaerythritoldiphosphit.

[0149] Spezifische Beispiele des Antioxidans auf Phosphorbasis können kommerzielle Produkte umfassen, wie zum Beispiel „Irgafos 168“ (hergestellt von BASF Japan Ltd., Handelsmarke), „Irgafos 12“ (hergestellt von BASF Japan Ltd., Handelsmarke), „Irgafos 38“ (hergestellt von BASF Japan Ltd., Handelsmarke), „ADK STAB 329K“ (hergestellt von ADEKA Corporation, Handelsmarke), „ADK STAB PEP-36“ (hergestellt von ADEKA Corporation, Handelsmarke), „ADK STAB PEP-8“ (hergestellt von ADEKA Corporation, Handelsmarke), „Sandstab P-EPQ“ (hergestellt von Clariant AG, Handelsmarke), „Weston 618“ (hergestellt von General Electric Company, Handelsmarke), „Weston 619G“ (hergestellt von General Electric Company, Handelsmarke) und „Weston 624“ (hergestellt von General Electric Company, Handelsmarke) und „Doverphos S-9228PC“ (hergestellt von Dover Chemical Corporation).

[0150] Das Antioxidans auf Phenolbasis ist bevorzugt in gehindertem Phenol. Spezifische Beispiele des Antioxidans auf Phenolbasis umfassen Triethylenglykol-bis[3-(3-tert-butyl-5-methyl-4-hydroxyphenyl)propionat], 1,6-Hexanediolbis[3-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl)propionat], Pentaerythritol-tetrakis[3-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl)propionat], Octadecyl-3-(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl)propionat, 1,3,5-Trimethyl-2,4,6-tris(3,5-ditert-butyl-4-hydroxybenzyl)benzol, N,N-Hexamethylenbis(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyhydrozimmtamid), 3,5-Di-tert-butyl-4-hydroxybenzylphosphonatediethylester, Tris(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxybenzyl)isocyanurat und 3,9-Bis[1,1-dimethyl-2-[β -(3-tert-butyl-4-hydroxy-5-methylphenyl)propionyloxy]ethyl]-2,4,8,10-tetraoxaspiro(5,5)undecan.

[0151] Spezifische Beispiele des Antioxidans auf Phenolbasis können kommerzielle Produkte umfassen, wie zum Beispiel „Irganox 1010“ (hergestellt von BASF Japan Ltd., Handelsmarke), „Irganox 1076“ (hergestellt von BASF Japan Ltd., Handelsmarke), „Irganox 1330“ (hergestellt von BASF Japan Ltd., Handelsmarke), „Irganox 3114“ (hergestellt von BASF Japan Ltd., Handelsmarke), „Irganox 3125“ (hergestellt von BASF Japan Ltd., Handelsmarke), „BHT“ (hergestellt von Takeda Pharmaceutical Company Limited, Handelsmarke), „Cyanox 1790“ (hergestellt von Cyanamid Company, Handelsmarke) und „Sumilizer GA-80“ (hergestellt von Sumitomo Chemical Company, Limited, Handelsmarke).

[0152] Das Antioxidans (C) kann allein oder in Kombination hiervon verwendet werden. Der Anteil des Antioxidans (C) an der erfindungsgemäßen Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis beträgt bevorzugt 0,001 Masseteile oder mehr, stärker bevorzugt 0,01 Masseteile oder mehr, weiter stärker bevorzugt 0,04 Masseteile oder mehr, weiter stärker bevorzugt 0,08 Masseteile oder mehr, und beträgt bevorzugt 1,0 Masseteile oder weniger, stärker bevorzugt 0,50 Masseteile oder weniger, weitere stärker bevorzugt 0,25 Masseteile oder weniger, weiter stärker bevorzugt 0,15 Masseteile oder weniger, bezogen auf 100 Masseteile des Harzes auf Polycarbonatbasis (S). wenn mehrere Arten von Antioxidans (C) verwendet werden, fällt die Gesamtmenge hiervon innerhalb der vorstehend erwähnten Bereiche.

<Additiv>

[0153] Die erfindungsgemäße Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis kann in geeigneter Weise ein Additiv außer dem Flammhemmer (B) und dem Antioxidans (C) in einem Ausmaß enthalten, dass der Zweck der vorliegenden Erfindung nicht beeinträchtigt wird.

[0154] Beispiele des Additivs umfassen verschiedene Füllstoffe, einen Wärmestabilisator, ein Plastifiziermittel, einen Lichtstabilisator, einen Polymerisations-Metall-Deaktivator, ein Gleitmittel, ein Antistatikmittel, ein Tensid, ein antimikrobielles Mittel, einen UV-Absorber und ein Ablösemittel.

[0155] Ein Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis ist nicht besonders beschränkt, solange das Verfahren einen Schritt zum Mischen des Harzes auf Polycarbonatbasis (S), des Flammhemmers (B) und eines optionalen Additivs umfasst. Die Zusammensetzung kann zum Beispiel hergestellt werden durch Mischen des Harzes auf Polycarbonatbasis (S), des Flammhemmers

(B) und des optionalen Additivs mit einem Mischer oder dergleichen, und Schmelzen und Kneten der Mischung. Das Schmelzen und Kneten kann mit einem Verfahren durchgeführt werden, das typischerweise eingesetzt worden ist, zum Beispiel ein Verfahren, in dem ein Band-Mischer, ein Henschel-Mischer, ein Banbury-Mischer, ein Trommelmischer, ein Einschneckenextruder, ein Doppelschneckenextruder, ein Co-Knetter, ein Multischneckenextruder oder dergleichen eingesetzt wird. Eine Erwärmungstemperatur zum Zeitpunkt des Schmelzens und Knetens wird geeigneterweise aus dem Bereich von zum Beispiel etwa 150°C bis etwa 300°C, bevorzugt von etwa 220°C bis etwa 300°C, ausgewählt.

[0156] Zur weiteren Verbesserung der Zugeigenschaften des zu erhaltenden Formkörpers beträgt das Zug-Elastizitätsmodul eines Formstücks mit einer Gesamtlänge von 75 mm, einer Länge des parallelen Bereichs von 30 mm, einer Endbereichsbreite von 10 mm, einer Breite des parallelen Zentralbereichs von 5 mm und einer Dicke von 2 mm eines hantelförmigen Zug-Teststücks vom Typ A22 aus JIS K 7139-2009, welches erhalten wird durch Formen der Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis der vorliegenden Erfindung, bevorzugt 2.400 MPa oder mehr, stärker bevorzugt 2.450 MPa oder mehr. Das Zug-Elastizitätsmodul ist zur weiteren Verbesserung der Zugeigenschaften des zu erhaltenden Formkörpers bevorzugt so hoch wie möglich, und somit ist der obere Grenzwert nicht besonders beschränkt. Im Hinblick auf die Verbesserung der Schlagfestigkeit hiervon beträgt jedoch das Zug-Elastizitätsmodul bevorzugt 10.000 MPa oder weniger, stärker bevorzugt 5.000 MPa oder weniger, weiter stärker bevorzugt 4.000 MPa oder weniger, weiter stärker bevorzugt 3.500 MPa oder weniger, weiter stärker bevorzugt 3.000 MPa oder weniger.

[0157] Das Zug-Elastizitätsmodul kann unter den Bedingungen einer Zuggeschwindigkeit von 25 mm/min, einer Messtemperatur von 23°C und einem Futterabstand von 57 mm gemessen werden, und kann spezifisch durch ein in den später beschriebenen Beispielen beschriebenes Verfahren gemessen werden.

[0158] Die Bedingungen zum Formen des vorstehend erwähnten Formstücks sind eine Zylindertemperatur von 280°C, eine Formtemperatur von 100°C und eine Zykluszeit von 60 Sekunden. Spezifisch wird das Formstück durch ein Verfahren erhalten, das in den später beschriebenen Beispielen beschrieben ist.

[0159] Zur weiteren Verbesserung der Zugeigenschaften des zu erhaltenden Formkörpers beträgt die Streckspannung eines Formstücks mit einer Gesamtlänge von 75 mm, einer Länge eines parallelen Bereichs von 30 mm und einer Endbereichsbreite von 10 mm, einer Breite des zentralen Parallelbereichs von 5 mm und einer Dicke von 2 mm eines hantelförmigen Zug-Teststücks vom Typ A22 aus JIS K 7139:2009, welches durch Formen der erfindungsgemäßen Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis erhalten ist, bevorzugt 55 MPa oder mehr, stärker bevorzugt 58 MPa oder mehr, weiter stärker bevorzugt 60 MPa oder mehr. Die Streckspannung ist bevorzugt so groß wie möglich, um die Zugeigenschaften des zu erhaltenden Formkörpers weiter zu verbessern, und somit ist der obere Grenzwert nicht besonders beschränkt. Zur Verbesserung der Schlagfestigkeit hiervon ist jedoch die Streckspannung bevorzugt 200 MPa oder kleiner, stärker bevorzugt 150 MPa oder kleiner, weiter stärker bevorzugt 100 MPa oder weniger, weiter stärker bevorzugt 80 MPa oder kleiner.

[0160] Die Streckspannung kann unter den Bedingungen einer Zuggeschwindigkeit von 25 mm/min, einer Messtemperatur von 23°C und einem Futterabstand von 57 mm gemessen werden, und kann spezifisch mit einem Verfahren bestimmt werden, das in den später beschriebenen Beispielen beschrieben ist.

[0161] Die Bedingungen zum Formen des vorstehend erwähnten Formstücks sind eine Zylindertemperatur von 280°C, eine Formtemperatur von 100°C und eine Zykluszeit von 60 Sekunden. Spezifisch wird der Formkörper durch ein Verfahren erhalten, das in den später beschriebenen Beispielen beschrieben ist.

2. Formkörper

[0162] Ein erfindungsgemäßer Formkörper umfasst die erfindungsgemäße Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis. Der Formkörper kann durch die Verwendung eines schmelzgekneteten Produkts der Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis oder eines Pellets hiervon, erhalten durch Schmelzen und Kneten, als einem Ausgangsmaterial hergestellt werden durch z.B. irgendeines von einem Spritzgussverfahren, einem Spritzprägeverfahren, einem Extrusionsformverfahren, einem Blasformverfahren, einem Formpressverfahren, einem Vakuumformverfahren und einem Expansionsformverfahren. Insbesondere wird der Formkörper bevorzugt unter Verwendung des resultierenden Pellets durch ein Spritzgussverfahren oder durch ein Spritzprägeverfahren hergestellt.

[0163] Die Dicke des Formkörpers kann willkürlich in Übereinstimmung mit dessen Anwendungen eingestellt werden. Insbesondere wenn die Transparenz des Formkörpers erforderlich ist, beträgt die Dicke bevorzugt von 0,2 mm bis 4,0 mm, stärker bevorzugt von 0,3 mm bis 3,0 mm, weiter stärker bevorzugt von 0,3 mm bis 2,0 mm. Wenn die Dicke des Formkörpers 0,2 mm oder mehr beträgt, tritt kein Verziehen („warping“) auf, und es wird eine gute mechanische Festigkeit erhalten. Wenn die Dicke des Formkörpers 4,0 mm oder weniger beträgt, wird zusätzlich eine hohe Transparenz erhalten.

[0164] Auf dem Formkörper kann erforderlichenfalls ein Beschichtungsfilm, der aus einem Hartbeschichtungsfilm, einem Antibeschlagfilm, einem Antistatikfilm oder einem Antirefleksionsfilm gebildet wird, gebildet werden, und es kann ein Composite-Beschichtungsfilm gebildet werden, der aus zwei oder mehr Arten hiervon gebildet ist.

[0165] Unter diesen wird bevorzugt ein Beschichtungsfilm gebildet, der aus einem Hartbeschichtungsfilm gebildet ist, weil der Film gute Wetterbeständigkeit aufweist und dem Verschleiß der Oberfläche des Formkörpers über die Zeit vorbeugen kann. Das Material für den Hartbeschichtungsfilm ist nicht besonders beschränkt, und es kann ein bekanntes Material verwendet werden, wie zum Beispiel ein Hartbeschichtungsmittel auf Acrylatbasis, ein Hartbeschichtungsmittel auf Silikonbasis oder ein anorganisches Hartbeschichtungsmittel.

[0166] Der erfindungsgemäße Formkörper kann geeigneterweise verwendet werden für zum Beispiel: 1) Automobilteile, wie zum Beispiel ein Sonnendach, ein Türvisier, ein Rückfenster und ein Seitenfenster; 2) Gebäudeteile, wie zum Beispiel ein Gebäudeglas, eine schalldichte Wand, ein Carport, ein Wintergarten und Gitterabdeckungen; 3) Fenster für Züge und Schiffe; 4) Teile für elektrische Instrumente, wie zum Beispiel verschiedene Teile für einen Fernseher, einen Radio-Kassetten-Rekorder, eine Videokamera, einen Videorekorder, eine Stereoanlage, einen DVD-Player, ein Telefon, ein Display, einen Computer, einen Auszug, eine Kopiermaschine, einen Drucker, ein Faxgerät und dergleichen, und die entsprechenden Teile für äußere Platten oder Gehäuse hiervon; 5) Teile für Präzisionsinstrumente, wie zum Beispiel Gehäuse oder Abdeckungen für Präzisionsmaschinen, wie zum Beispiel ein Mobiltelefon, ein PDA, eine Kamera, ein Tageslichtprojektor, eine Armbanduhr, eine elektronische Rechenvorrichtung, ein Messinstrument und eine Anzeige; 6) landwirtschaftliche Gegenstände, wie zum Beispiel ein Vinylhaus und ein Gewächshaus; und 7) Möbelteile, wie zum Beispiel Lampenschirme, Abdeckungen und Innenwerkzeuge.

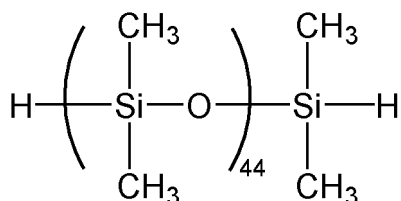
Beispiele

[0167] Die vorliegende Erfindung wird nachstehend genauer durch Beispiele beschrieben, jedoch ist die vorliegende Erfindung nicht auf diese Beispiele beschränkt. In dieser Beschreibung wird ein Polydimethylsiloxan manchmal als „PDMS“ abgekürzt.

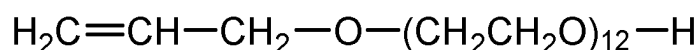
1. Herstellung eines endständig modifizierten Polyorganosiloxans

Herstellungsbeispiel 1: Herstellung von PDMS 1

[0168] Unter einer Stickstoffatmosphäre wurde zu einem Polyorganosiloxan (100 g) mit einer mittleren Anzahl der Wiederholungseinheiten von 45, welches durch die folgende Formel:



dargestellt ist, ein Polyethylenglykol mit einer mittleren Oxyethylen-Kettenlänge von 12, welches durch die folgende Formel dargestellt ist:



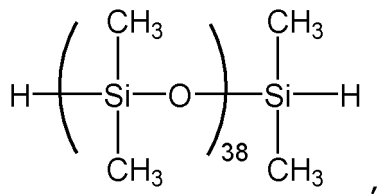
[0169] in einer molaren Menge (35,3 g) zugegeben, die zweimal so groß war wie die des Polyorganosiloxans. Zu der Mischung wurde als Lösungsmittel 338 g Toluol zugegeben und es wurde alles ausreichend gemischt, während die Temperatur bei 80°C gehalten wurde. Als nächstes wurde eine Lösung eines Vinylsiloxan-Komplexes von Platin zu dem Ergebnis in solch einer Menge zugegeben, dass das Verhältnis der Masse eines Platinatoms zu derjenigen von Siloxan $(-\text{SiMe}_2\text{O})_n-$ 5 ppm (massebezogen) wurde, gefolgt von Rühren bei einer Reaktionstemperatur von 110°C für 10 Stunden. Das Toluol und der Platinkatalysator wurden von der resultierenden Mischung entfernt. Somit wurde ein Polyether-modifiziertes Polyorganosiloxan PDMS-1 erhalten.

Herstellungsbeispiel 2: Herstellung von PDMS-2

[0170] Ein Polyether-modifiziertes Polyorganosiloxan PDMS-2 wurde auf die gleich Weise wie im Herstellungsbeispiel 1 hergestellt, außer, dass die mittlere Oxyethylen-Kettenlänge des zu verwendenden Polyethylenglykols auf 38 eingestellt wurde.

Herstellungsbeispiel 3: Herstellung von PDMS-3

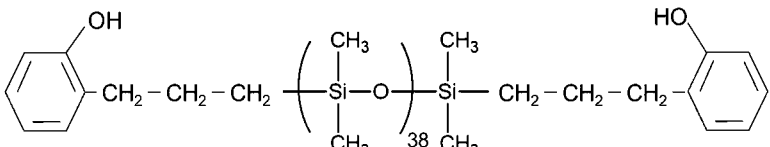
[0171] Unter einer Stickstoffatmosphäre wurde zu einem Polyorganosiloxan mit einer mittleren Anzahl von Wiederholungseinheiten von 39, welches durch die folgende Formel dargestellt ist:



2-Allylphenol in einer molaren Menge zugegeben, die zweimal so groß war wie die des Polyorganosiloxans. Danach wurde die Mischung ausreichend gerührt, während ihre Temperatur bei 100°C gehalten wurde. Als nächstes wurde eine Lösung eines Vinylsiloxan-Komplexes von Platin in Toluol zu der Mischung in solch einer Menge zugegeben, dass das Verhältnis der Masse eines Platinatoms zu derjenigen des Siloxans $(-\text{SiMe}_2\text{O})_n-$ 5 ppm (massebezogen) betrug, gefolgt von Rühren bei einer Reaktionstemperatur von 100°C für 10 Stunden. Der Platinkatalysator wurde von der resultierenden Mischung entfernt. Somit wurde ein Allylphenolmodifiziertes Polyorganosiloxan PDMS-4 erhalten.

[0172] In Tabelle 1 sind die Strukturformeln von PDMS-1 bis PDMS-3, die in den Herstellungsbeispielen 1 bis 3 erhalten wurden, gezeigt.

Tabelle 1

Herstellungsbeispiel 1	$\text{H} - (\text{OCH}_2\text{CH}_2)_{12} - \text{O} - \text{CH}_2 - \text{CH}_2 - \text{CH}_2 - \left(\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \\ \text{Si} - \text{O} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} \right)_{44} - \begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \\ \text{Si} - \text{H} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} - \text{CH}_2 - \text{CH}_2 - \text{CH}_2 - \text{O} - (\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_{12} - \text{H}$
Herstellungsbeispiel 2	$\text{H} - (\text{OCH}_2\text{CH}_2)_{38} - \text{O} - \text{CH}_2 - \text{CH}_2 - \text{CH}_2 - \left(\begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \\ \text{Si} - \text{O} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} \right)_{44} - \begin{array}{c} \text{CH}_3 \\ \\ \text{Si} - \text{H} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array} - \text{CH}_2 - \text{CH}_2 - \text{CH}_2 - \text{O} - (\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_{38} - \text{H}$
Herstellungsbeispiel 3	

<Verfahren zur Messung der mittleren Anzahl der Wiederholungseinheiten des Polyorganosiloxans und der mittleren Anzahl der Wiederholungseinheiten der endständig modifizierte Gruppe des Polyorganosiloxans>

[0173] Die mittlere Anzahl der Wiederholungseinheiten eines Polyorganosiloxans wurde aus dem integrierten Wertanteil einer Methylgruppe eines Polydimethylsiloxans durch NMR-Messung berechnet. Die mittlere Anzahl der Wiederholungseinheiten einer endständig modifizierte Gruppe des Polyorganosiloxans wurde aus dem integrierten Wertanteil einer Dimethylengruppe eines Polyethylenglykols durch NMR-Messung berechnet.

¹H-NMR-Messbedingungen

NMR-Vorrichtung:	ECA 500, hergestellt von JEOL RESONANCE Inc.
Probe:	50TH5AT/FG2
Observationsbereich:	von -5 ppm bis 15 ppm
Observationszentrum:	5 ppm
Puls-Wiederholungszeit:	9 Sekunden
Pulsbreite:	45°
NMR-Probenröhre:	5 φ
Probenmenge:	von 30 mg bis 40 mg
Lösungsmittel:	deutერიertes Chloroform
Messtemperatur:	23°C
Anzahl an Scans:	256

2. Herstellung eines Polycarbonat-Polyorganosiloxans (PC-POS)-Copolymers

Herstellungsbeispiel 4: Herstellung des PC-POS-Copolymers 1

[0174] Es wurde ein Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer unter Verwendung der folgenden Ausgangsmaterialien unter den folgenden Bedingungen hergestellt.

[0175] BisP-A (2.489,9 g), das als Diol-Monomer dient, und DPC (2.500 g), das als Kohlensäure-Diesterverbindung dient, (molares Verhältnis zwischen den entsprechenden Ausgangsmaterialien: BisP-A/DPC = 100/107) und 179,7 g des Polyether-modifizierten Polyorganosiloxans PDMS-1 wurden in einen 10 Liter-Edelstahlreaktor eingebracht, der eine Rührvorrichtung, eine Falle zum Abfangen von destilliertem Phenol und eine Dekompressionsvorrichtung umfasst, und diese Ausgangsmaterial-Monomere wurden vollständig bei 150°C geschmolzen, gefolgt von Austreiben der Luft in dem Reaktor mit Stickstoff. Es wurden 1,64 ml (eine Menge, die $1,5 \times 10^{-6}$ -mal so groß ist wie die Anzahl der Mole des gesamten Diol-Monomers) von 0,01 mol/l Natriumhydroxid als Katalysator in den Reaktor eingebracht, um die Polymerisation zu starten. Über etwa 60 Minuten wurde die Temperatur im Reaktor auf 180°C erhöht und der Druck im Reaktor auf 200 mmHg (26,6 kPa) reduziert, und die Reaktionsbedingungen wurden beibehalten, bis die abdestillierte Phenolmenge 0,2 l betrug. Danach wurde über etwa 60 Minuten die Temperatur im Reaktor auf 200°C erhöht und der Druck im Reaktor auf 10 mmHg (1,3 kPa) abgesenkt, und die Bedingungen wurden gehalten, bis 1,0 l Phenol abdestilliert waren.

[0176] Als nächstes wurde die Temperatur im Reaktor über etwa 120 Minuten auf 240°C erhöht, und die Bedingungen wurden gehalten, bis 1,5 l Phenol abdestilliert waren. Anschließend wurden über etwa 120 Minuten die Temperatur im Reaktor und der Druck im Reaktor auf 280°C bzw. 1 mmHg (0,1 kPa) oder kleiner eingestellt, und es wurden 2 l oder mehr Phenol abdestilliert, gefolgt von Fortsetzen der Reaktion bis ein vorbestimmtes Rühr-Drehmoment erhalten wurde. Danach wurde Stickstoff in den Reaktor eingeführt, um den Druck auf Normaldruck zu bringen, und es wurden 0,037 g (eine Menge, die 10-mal so groß ist wie die Anzahl an Molen von NaOH) von Butyl-p-toluolsulfonat als ein Deaktivator hierin eingebracht. In den Reaktor wurde die folgenden Antioxidans 1 und Antioxidans 2 jeweils so geladen, dass deren Menge 0,05 Masseteile bezogen auf ein zu erhaltendes Polymer betrug, gefolgt von ausreichendem Rühren. Danach wurde ein Harzstrang aus dem Bodenbereich des Reaktors durch Stickstoffdruck extrahiert, und der Strang wurde mit einem Pelletierer geschnitten, um ein Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer herzustellen.

[0177] Die Analyseergebnisse des resultierenden PC-POS-Copolymers 1 sind in Tabelle 2 gezeigt.

[0178] Die bei der Herstellung eingesetzten Ausgangsmaterialien sind wie nachstehend beschrieben.

- BisP-A: Bisphenol A [hergestellt von Idemitsu Kosan Co., Ltd.]
- DPC: Diphenylcarbonat [hergestellt von Mitsui Fine Chemicals, Inc.]
- 0,01 mol/l wässrige Natriumhydroxyidlösung [hergestellt von Fujifilm Wako Pure Chemical Corporation]
- Antioxidans (C)

Antioxidans 1: Tris(2,4-di-tert-butylphenyl)phosphit [hergestellt von BASF Japan Ltd., Irgafos 168]

Antioxidans 2: Pentaerythritol-tetrakis[3-(3,5-ditert-butyl-4-hydroxyphenyl)propionat] [hergestellt von BASF Japan Ltd., Irganox 1010]

Herstellungsbeispiel 5: Herstellung des PC-POS-Copolymers 2

[0179] Es wurde ein PC-POS-Copolymer 2 durch Polymerisation unter den gleichen Bedingungen wie im Herstellungsbeispiel 5 erhalten, außer, dass 179,7 g PDMS-2 als Polyorganosiloxan anstelle von PDMS-1 eingesetzt wurde.

[0180] Die Analysewerte des resultierenden PC-POS-Copolymers 2 sind in Tabelle 2 gezeigt.

Herstellungsbeispiel 6: Herstellung des PC-POS-Copolymers 3

[0181] Es wurde ein PC-POS-Copolymer 3 durch Polymerisation unter den gleichen Bedingungen wie im Herstellungsbeispiel 5 erhalten, außer, dass 179,7 g PDMS-3 als Polyorganosiloxan anstelle von PDMS-1 eingesetzt wurde.

[0182] Die Analysewerte des resultierenden PC-POS-Copolymers 3 sind in Tabelle 2 gezeigt.

2. Messung der physikalischen Eigenschaften des Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymers

(1) Verfahren zur Bestimmung des Anteils von Polydimethylsiloxan an dem resultierenden Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer

¹H-NMR-Messbedingungen

NMR-Vorrichtung:	ECA 500, hergestellt von JEOL RESONANCE Inc.
Probe:	TH5 entsprechend einer 5 φ-NMR-Probe
Observationsbereich:	von -5 ppm bis 15 ppm
Observationszentrum:	5 ppm
Puls-Wiederholungszeit:	9 Sekunden
Pulsbreite:	45°
NMR-Probenröhre:	5 φ
Probenmenge:	von 30 mg bis 40 mg
Lösungsmittel:	deutertes Chloroform
Messtemperatur:	23°C
Anzahl an Scans:	256
A:	der integrierte Wert der meta-Position eines Phenylrests, beobachtet bei einem δ von etwa 7,3 bis etwa 7,5
B:	der integrierte Wert der Methylengruppe eines PEG-Rests, beobachtet bei einem δ von etwa 3,3 bis etwa 4,5
C:	der integrierte Wert einer Methylgruppe eines Bisphenol A-Rests, beobachtet bei einem δ von etwa 1,50 bis etwa 2,00

¹H-NMR-Messbedingungen

D: der integrierte Wert einer Methylgruppe eines Dimethylsiloxanrests, beobachtet bei einem δ von etwa -0,02 bis etwa 0,4

E: der integrierte Wert einer Methylengruppe eines endständigen Dimethylsiloxanrests, beobachtet bei einem δ von etwa 0,52

a = A/2

b = B/4

c = (C-e×2)/6

d = D/6

e = E/2

T = a+b+c+d

f = a/T×100

g = b/T×100

h = c/T×100

i = d/T×100

TW = f×93+g×44+h×254+i×74,1

PDMS (Gew.-%) = (i×74,1)/TW×100

(2) Verfahren zur Messung des viskositätsgemittelten Molekulargewichts des Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymers

[0183] Das viskositätsgemittelte Molekulargewicht (M_v) des Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymers wurde aus der folgenden Gleichung (Schnell-Gleichung) unter Verwendung einer Grenzviskosität [η] berechnet, welche durch die Messung der Viskosität einer Lösung (Konzentration: g/l) hiervon in Methylenchlorid bei 20°C mit einem Viskometer vom Ubbelohde-Typ gemessen wurde.

$$[\eta] = 1,23 \times 10^{-5} M_v^{0,83}$$

Tabelle 2

			Einheit	PC-POS-Copolymer		
				1	2	3
Beschickung	Diol-Monomer (a1)	BisP-A	Molares Verhältnis	100	100	100
	Kohlensäure-Diester	DPC		107	107	107
	Polyorganosiloxan (a2)		PDMS-1	Masse-%	6	
PDMS-2					6	
PDMS-3						6
PC-POS-Copolymer		Polydimethylsiloxan-Gehalt	Masse-%	4,6	3,1	5,3
		viskositätsgemitteltes Molekulargewicht	M _v	20.100	20.050	20.150

* Die Einheit stellt den prozentualen Massenanteil des beschickten Polyorganosiloxans (a2) bezogen auf die Masse (theoretischer Wert) des zu erhaltenden PC-POS-Copolymers dar.

[0184] Die Masse (theoretischer Wert) des zu erhaltenden PC-POS-Copolymers wurde aus dem Ausdruck „[Beschickungsmasse des Diol-Monomers (a1) + Beschickungsmasse des Kohlensäure-Diesters + Beschi-

ckungsmasse der Polyorganosiloxanmasse (a2) - Masse des produzierten Phenols (theoretischer Wert, Phenol dessen molare Menge das Zweifache des Kohlensäure-Diesters betrug)]“ berechnet.

3. Verwendete Ausgangsmaterialien (Harze und Additive)

[0185] Die folgenden Ausgangsmaterialien wurden in den Beispielen und Vergleichsbeispielen eingesetzt.

(1) Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) (umfassend jedoch das Antioxidans (C))

- PC-POS-Copolymer 1: vorstehend beschriebenes Herstellungsbeispiel 4

- PC-POS-Copolymer 2: vorstehend beschriebenes Herstellungsbeispiel 5

(2) Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (umfassend jedoch das Antioxidans (C)), ausgenommen das Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A)

- PC-POS-Copolymer 3: vorstehend beschriebenes Herstellungsbeispiel 6

(3) Flammhemmer (B)

- Flammhemmer 1: Bisphenol A-bis(diphenylphosphat) (hergestellt von Daihachi Chemical Industry Co., Ltd., CR-741)

- Flammhemmer 2: Kaliumperfluorbutansulfonat (hergestellt von Mitsubishi Materials Electronic Chemicals Co., Ltd., KFBS)

- Flammhemmer 3: Kaliumdiphenylsulfon-3-sulfonat (hergestellt von Metropolitan Eximchem Pvt. Ltd., KSS)

4. Beispiele 1 bis 6 und Vergleichsbeispiele 1 bis 4

(1) Herstellung einer Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis

[0186] Die jeweiligen Komponenten wurden in den in Tabelle 3 gezeigten Verhältnissen gemischt und zu einer Doppelschneckenextrusionsformmaschine [hergestellt von DSM Xplore: Micro 15cc Doppelschnecken-Compounder] zugeführt, gefolgt von Schmelzen und Kneten bei einer Zylindertemperatur von 280°C und einer Schnecken-Umdrehungsgeschwindigkeit von 50 U/min. Somit wurden die jeweiligen Harzzusammensetzungen auf Polycarbonatbasis erhalten.

[0187] Hierin sind die Vermischungsmengen der jeweiligen Komponenten in Tabelle 3 jeweils in der Einheit Masseteile angegeben.

(2) Herstellung von Untersuchungs-Formstücken

[0188] Die in Abschnitt (1) erhaltenen Harzzusammensetzungen auf Polycarbonatbasis wurden jeweils einem Spritzguss mit einer Spritzgussmaschine [hergestellt von DSM Xplore: 10cc Spritzgussmaschine] unter Bedingungen einer Zylindertemperatur von 280°C, einer Formtemperatur von 100°C und einer Zykluszeit von 60 Sekunden unterzogen, um ein Formstück (Formkörper) zur Untersuchung der Zugeigenschaften und der Flammhemmung zu erhalten.

(3) Untersuchung

[0189] Unter Verwendung der in Abschnitt (2) erhaltenen Untersuchungs-Formstücke wurden die folgenden Untersuchungen jeweils durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3 gezeigt.

- Zugeigenschaften (Streckspannung und Zug-Elastizitätsmodul)

[0190] Die Streckspannung und das Zug-Elastizitätsmodul der resultierenden Formstücke mit einer Gesamtlänge von 75 mm, einer Länge eines Parallelbereichs von 30 mm, einer Endbereichsbreite von 10 mm, einer Breite eines zentralen Parallelbereichs von 5 mm und einer Dicke von 2 mm eines hantelförmigen Zug-Teststücks vom Typ A22 aus JIS K 7139:2009 wurde mit einem Zugtester [hergestellt von Instron: 5567] unter Bedingungen einer Zuggeschwindigkeit von 25 mm/min, einer Messtemperatur von 23°C und einem Futterabstand von 57 mm gemessen. Ein größerer numerischer Wert zeigt an, dass die Zugeigenschaften des Formstückes besser waren.

- Flammhemmung

[0191] Die Flammhemmung von jeder der Harzzusammensetzungen auf Polycarbonatbasis wurde mit dem folgenden Verfahren untersucht.

[0192] Ein streifenförmiges Formstück mit einer Länge von 80 mm, einer Breite von 10 mm und einer Dicke von 4 mm, das im Abschnitt (2) erhalten worden war, wurde einem Verbrennungstest in Übereinstimmung mit dem UL94-Vertikalflammhemmungstest (Underwriters Laboratories Subject 94) unterzogen und wie folgt bewertet:

A: Das Formstück brennt nicht für mehr als 20 Sekunden und das Brennen erreicht eine Klammer zum Halten des Formstücks nicht. Baumwolle kann sich durch ein fallengelassenes Produkt entzünden.

B: Das Formstück brennt nicht für mehr als 30 Sekunden und das Brennen erreicht die Klammer nicht. Baumwolle kann sich durch ein fallengelassenes Produkt entzünden.

C: Das Formstück brennt für mehr als 30 Sekunden, oder das Brennen erreicht die Klammer. Baumwolle kann sich durch ein fallengelassenes Produkt entzünden.

Tabelle 3

		Bsp. 1	Bsp. 2	Vgl. - Bsp. 1	Bsp. 3	Bsp. 4	Vgl. - Bsp. 2	Bsp. 5	Bsp. 6	Vgl. - Bsp. 3	Vgl. - Bsp. 4
PC-POS-Copolymer (A)	PC-POS-Copolymer 1	100			100			100			100
	PC-POS-Copolymer 2		100			100			100		
PC-POS-Copolymer, ausgenommen PC-POS-Copolymer (A)	PC-POS-Copolymer 3			100			100			100	
	Flammhemmer 1	8	8	8							
	Flammhemmer 2				0,1	0,1	0,1				
Flammhemmer (B)	Flammhemmer 3										
	Antioxidans 1	0,05	0,05	0,05	0,05	0,05	0,05	0,05	0,05	0,05	0,05
	Antioxidans 2	0,05	0,05	0,05	0,05	0,05	0,05	0,05	0,05	0,05	0,05
Antioxidans (C)	Streckspannung	66	72	54	63	66	30	63	66	38	60
	Zug-Elastizitätsmodul	2.800	2.900	2.500	2.500	2.600	2.200	2.500	2.600	2.300	2.500
	Flammhemmung	A	A	A	A	A	A	A	A	A	C

ZITATE ENTHALTEN IN DER BESCHREIBUNG

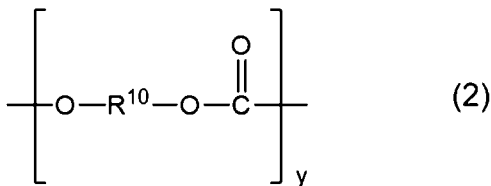
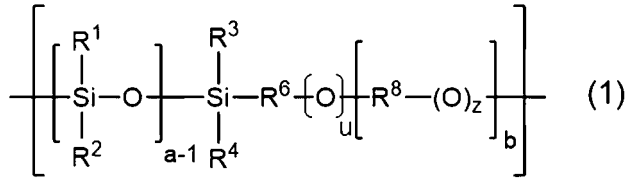
Diese Liste der vom Anmelder aufgeführten Dokumente wurde automatisiert erzeugt und ist ausschließlich zur besseren Information des Lesers aufgenommen. Die Liste ist nicht Bestandteil der deutschen Patent- bzw. Gebrauchsmusteranmeldung. Das DPMA übernimmt keinerlei Haftung für etwaige Fehler oder Auslassungen.

Zitierte Patentliteratur

- JP 10251408 A [0005]
- JP 2016532733 T [0005]
- JP 11217390 A [0072]
- JP 2662310 B2 [0072]
- JP 5652691 B2 [0072]
- JP 201480462 A [0073]

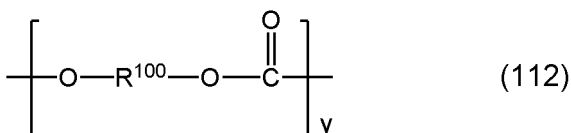
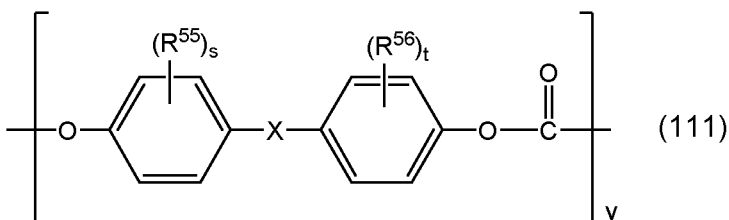
Patentansprüche

1. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis, umfassend:
ein Harz auf Polycarbonatbasis (S), das ein Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) enthält,
das einen Polyorganosiloxan-Block (A-1), der eine durch die Formel (1) dargestellte Struktureinheit umfasst,
und einen Polycarbonat-Block (A-2), der eine durch die Formel (2) dargestellte Struktureinheit umfasst, aufweist; und einen Flammhemmer (B):



worin R¹ bis R⁴ jeweils unabhängig ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom, eine Alkylgruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen, eine Alkoxygruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen, eine Arylgruppe mit 6 bis 12 Kohlenstoffatomen oder eine Alkylarylgruppe mit 7 bis 22 Kohlenstoffatomen darstellen, R⁶ eine Arylengruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, eine Alkylengruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine Alkylarylengruppe mit 7 bis 22 Kohlenstoffatomen darstellt, und diese Gruppen jeweils in zumindest einem von einer Hauptkette oder einer Seitenkette hiervon zumindest eine Gruppe aufweisen können, ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus: -O-; -COO-; -CO-; -S-; -NH- und -NR¹¹¹-, mehrere R⁸ gleich oder verschieden sein können und jeweils eine Arylengruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, eine Alkylengruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine Alkylarylengruppe mit 7 bis 22 Kohlenstoffatomen darstellen, und diese Gruppen jeweils in zumindest einem von einer Hauptkette oder einer Seitenkette hiervon zumindest eine Gruppe enthalten können, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus: -O-; -COO-; -CO-; -S-; -NH- und -NR¹¹¹-, R¹¹¹ eine Alkylgruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine Arylgruppe mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen darstellt, „z“ und „u“ jeweils 0 oder 1 darstellen, „a“ eine ganze Zahl von 2 bis 500 darstellt, „b“ eine ganze Zahl von 2 bis 200 darstellt, R¹⁰ eine divalente aliphatische Kohlenwasserstoffgruppe mit 2 bis 40 Kohlenstoffatomen, eine divalente alicyclische Kohlenwasserstoffgruppe mit 3 bis 40 Kohlenstoffatomen oder eine divalente aromatische Kohlenwasserstoffgruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen darstellt, und diese Gruppen jeweils mit einem Substituenten substituiert sein können und jeweils zumindest ein Atom enthalten können, das ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus: einem Sauerstoffatom; einem Stickstoffatom; einem Schwefelatom; und einem Halogenatom, und „y“ eine ganze Zahl von 10 bis 500 darstellt.

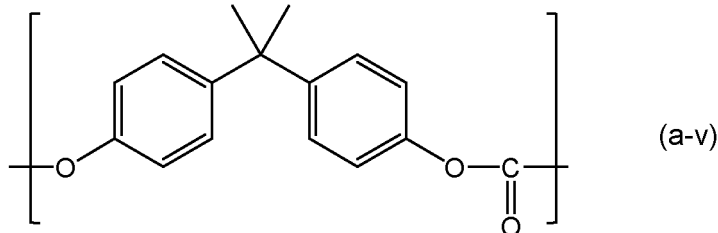
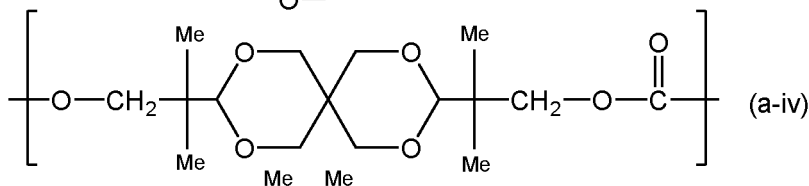
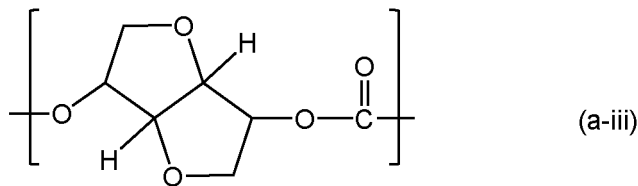
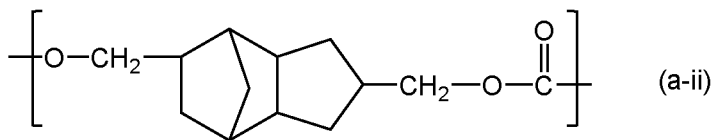
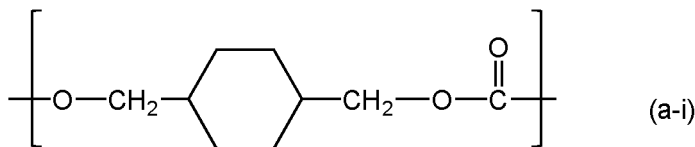
2. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß vorstehendem Anspruch 1, worin der Polycarbonat-Block (A-2) zumindest eines von einer durch die Formel (111) dargestellten Struktureinheit oder einer durch die Formel (112) dargestellten Struktureinheit umfasst:



worin R^{55} und R^{56} jeweils unabhängig ein Halogenatom, eine Alkylgruppe mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder eine Alkoxygruppe mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen darstellen, X eine Einfachbindung, eine Alkylengruppe mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, eine Alkylidengruppe mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, eine Cycloalkylengruppe mit 5 bis 15 Kohlenstoffatomen, eine Arylengruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, eine Cycloalkylidengruppe mit 5 bis 15 Kohlenstoffatomen, eine Fluorendiylgruppe, eine Arylalkylengruppe mit 7 bis 15 Kohlenstoffatomen, eine Arylalkylidengruppe mit 7 bis 15 Kohlenstoffatomen, -S-, -SO-, -SO₂-, -O- oder -CO- darstellt, R^{100} eine divalente aliphatische Kohlenwasserstoffgruppe mit 2 bis 40 Kohlenstoffatomen darstellt, und die divalente aliphatische Kohlenwasserstoffgruppe zumindest eines umfassen kann, das ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus: einer verzweigten Struktur; und einer cyclischen Struktur, und zumindest ein Atom enthalten kann, das ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus: einem Sauerstoffatom; einem Stickstoffatom; einem Schwefelatom; und einem Halogenatom, „y“ eine ganze Zahl von 10 bis 500 darstellt und „s“ und „t“ jeweils unabhängig eine ganze Zahl von 0 bis 4 darstellen.

3. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß vorstehendem Anspruch 1 oder 2, worin der Polycarbonat-Block (A-2) eine Struktureinheit umfasst, die aus zumindest einer Verbindung abgeleitet ist, die ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus: 2,2-Bis(4-hydroxyphenyl)propan; 2,2-Bis(4-hydroxy-3-methylphenyl)propan; 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)cyclohexan; 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)-3-methylcyclohexan; 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan; 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)cyclododecen; Isosorbid; Cyclohexan-1,4-dimethanol; Tricyclodecandimethanol; 3,9-Bis(1,1-dimethyl-2-hydroxyethyl)-2,4,8,10-tetraoxaspiro5.5undecan; 1,3-Propandiol; und 1,4-Butandiol.

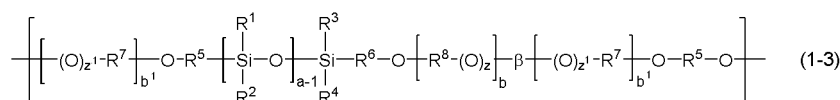
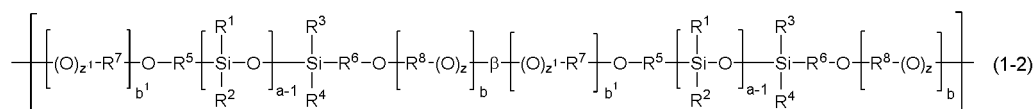
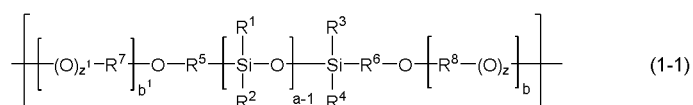
4. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Ansprüche 1 bis 3, worin der Polycarbonat-Block (A-2) zumindest eines umfasst, das ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus durch die Formeln (a-i) bis (a-v) dargestellten Struktureinheiten



5. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Ansprüche 1 bis 4, worin das „a“ eine ganze Zahl von 2 oder größer und 300 oder kleiner darstellt.

6. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Ansprüche 1 bis 5, worin „b“ 10 oder größer darstellt.

7. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Ansprüche 1 bis 6, worin der Polyorganosiloxan-Block (A-1) zumindest eines umfasst, das ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus den durch die Formeln (1-1) bis (1-3) dargestellten Struktureinheiten:



worin R¹ bis R⁴, R⁶, R⁸, „z“, „a“ und „b“ jeweils die gleiche Bedeutung wie vorstehend beschrieben darstellen, R⁵ eine Arylengruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, eine Alkylengruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine Alkylarylengruppe mit 7 bis 22 Kohlenstoffatomen darstellt und diese Gruppen jeweils in zumindest einem von einer Hauptkette oder einer Seitenkette hiervon zumindest eine Gruppe enthalten können, die ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus: -O-; -COO-; -CO-; -S-; -NH- und -NR¹¹¹-, R⁷ eine Arylengruppe mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, eine Alkylengruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine Alkylarylengruppe mit 7 bis 22 Kohlenstoffatomen darstellt und diese Gruppen jeweils in zumindest einem von einer Hauptkette oder einer Seitenkette hiervon zumindest eine Gruppe enthalten können, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus: -O-; -COO-; -CO-; -S-; -NH- und -NR¹¹¹, R¹¹¹ eine Alkylgruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen oder eine Arylgruppe mit 6 bis 10 Kohlenstoffatomen darstellt, z¹ 0 oder 1 darstellt, b¹ eine ganze Zahl von 2 bis 200 darstellt und β eine aus einer Diisocyanatverbindung abgeleitete divalente Gruppe oder eine aus einer Dicarbonsäure oder einem Dicarbonsäurehalogenid abgeleitete divalente Gruppe darstellt.

8. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Ansprüche 1 bis 7, worin alle von R¹ bis R⁴ Methylgruppen darstellen.

9. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Ansprüche 1 bis 8, worin R⁶ eine Trimethylengruppe darstellt.

10. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Ansprüche 1 bis 9, worin R⁸ eine Dimethylengruppe, eine Methyl-substituierte Dimethylengruppe (-CH₂CHMe-) oder eine Trimethylengruppe darstellt und „z“ 1 darstellt.

11. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Ansprüche 1 bis 10, worin der Anteil des Polyorganosiloxan-Blocks (A-1) an dem Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) 0,1 Masse-% oder mehr und 60 Masse-% oder weniger beträgt.

12. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Ansprüche 1 bis 11, worin das Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) ein viskositätsgemitteltes Molekulargewicht (Mv) von 5.000 oder größer und 50.000 oder kleiner aufweist.

13. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Ansprüche 1 bis 12, worin ein Formstück mit einer Gesamtlänge von 75 mm, einer Länge eines parallelen Bereichs von 30 mm, einer Endbereichsbreite von 10 mm, einer Breite des zentralen Parallelbereichs von 5 mm und einer Dicke von 2 mm eines hantelförmigen Zug-Teststück vom Typ A22 gemäß JIS K 7139:2009, welches durch Formen der Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis erhalten ist, ein Zug-Elastizitätsmodul von 2.400 MPa oder mehr, gemessen unter Bedingungen einer Zuggeschwindigkeit von 25 mm/min, einer Messtemperatur von 23°C und einem Futterabstand (chuck-to-chuck distance) von 57 mm.

14. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Ansprüche 1 bis 12, worin ein Formstück mit einer Gesamtlänge von 75 mm, einer Länge eines parallelen Bereichs von 30 mm, einer Endbereichsbreite von 10 mm, einer Breite des zentralen Parallelbereichs von 5 mm und einer Dicke von 2 mm eines hantelförmigen Zug-Teststück vom Typ A22 gemäß JIS K 7139:2009, welches durch Formen der Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis erhalten ist, eine Streckspannung von 55 MPa oder größer aufweist, gemessen unter Bedingungen einer Zuggeschwindigkeit von 25 mm/min, einer Messtemperatur von 23°C und einem Futterabstand (chuck-to-chuck distance) von 57 mm.

15. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Ansprüche 1 bis 14, worin der Anteil des Flammhemmers (B) 0,01 Masseteile oder mehr und 40 Masseteile oder weniger beträgt, bezogen auf 100 Masseteile des Harzes auf Polycarbonatbasis (S) .

16. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Ansprüche 1 bis 15, worin der Flammhemmer (B) einen Flammhemmer auf Phosphorbasis umfasst und worin der Anteil des Flammhemmers (B) 1,0 Masseteile oder mehr und 40 Masseteile oder weniger beträgt, bezogen auf 100 Masseteile des Harzes auf Polycarbonatbasis (S).

17. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Ansprüche 1 bis 16, worin der Flammhemmer (B) einen Flammhemmer auf Metallsalzbasis umfasst und worin der Anteil des Flammhemmers (B) 0,01 Masseteile oder mehr und 1,0 Masseteile oder weniger beträgt, bezogen auf 100 Masseteile des Harzes auf Polycarbonatbasis (S).

18. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Ansprüche 1 bis 17, worin das Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) ein Copolymer ist, das durch ein Schmelz-Polymerisationsverfahren erhalten ist.

19. Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Ansprüche 1 bis 18, worin das Polycarbonat-Polyorganosiloxan-Copolymer (A) ein Copolymer ist, das unter Verwendung eines Diol-Monomers (a1) erhalten ist.

20. Formkörper, umfassend die Harzzusammensetzung auf Polycarbonatbasis gemäß irgendeinem der vorstehenden Ansprüche 1 bis 19.

Es folgen keine Zeichnungen