

(19)日本国特許庁(JP)

## (12)特許公報(B2)

(11)特許番号  
特許第7659503号  
(P7659503)

(45)発行日 令和7年4月9日(2025.4.9)

(24)登録日 令和7年4月1日(2025.4.1)

(51)国際特許分類

C 08 G	64/18 (2006.01)	C 08 G	64/18
C 08 G	77/46 (2006.01)	C 08 G	77/46
C 08 L	69/00 (2006.01)	C 08 L	69/00
C 08 L	83/12 (2006.01)	C 08 L	83/12
C 08 K	3/013(2018.01)	C 08 K	3/013

F I

請求項の数 18 (全53頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2021-562767(P2021-562767)  
 (86)(22)出願日 令和2年12月7日(2020.12.7)  
 (86)国際出願番号 PCT/JP2020/045440  
 (87)国際公開番号 WO2021/112259  
 (87)国際公開日 令和3年6月10日(2021.6.10)  
 審査請求日 令和5年8月8日(2023.8.8)  
 (31)優先権主張番号 特願2019-221749(P2019-221749)  
 (32)優先日 令和1年12月6日(2019.12.6)  
 (33)優先権主張国・地域又は機関  
日本国(JP)

(73)特許権者 000183646  
 出光興産株式会社  
 東京都千代田区大手町一丁目2番1号  
 (74)代理人 110002620  
 弁理士法人大谷特許事務所  
 藤上 稔  
 東京都千代田区大手町一丁目2番1号  
 (72)発明者 110002620  
 出光興産株式会社内  
 山尾 忍  
 東京都千代田区大手町一丁目2番1号  
 (72)発明者 110002620  
 出光興産株式会社内  
 秋元 隆史  
 東京都千代田区大手町一丁目2番1号  
 (72)発明者 110002620  
 出光興産株式会社内  
 澤井 雅美

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 ポリカーボネット - ポリオルガノシロキサン共重合体及び該共重合体を含む樹脂組成物

## (57)【特許請求の範囲】

## 【請求項1】

下記一般式(1')で表される構造単位を含むポリオルガノシロキサンブロック(A-1)と、下記一般式(2)で表される繰り返し単位からなるポリカーボネットブロック(A-2)とを含み、以下の条件(A)又は(B)を満たす、ポリカーボネット - ポリオルガノシロキサン共重合体：

条件(A)：前記ポリカーボネット - ポリオルガノシロキサン共重合体のヘキサン抽出量が150質量ppm以下、

条件(B)：前記ポリカーボネット - ポリオルガノシロキサン共重合体をゲル浸透クロマトグラフにより分離して得られるポリカーボネット - ポリオルガノシロキサン共重合体に含まれるポリオルガノシロキサンブロックの平均重量が下式(B1)を満たす。

## 【数1】

$$0.3 \leq [\text{POS} - \text{Mh}] / [\text{POS} - \text{M1}] \leq 3 \quad (\text{B1})$$

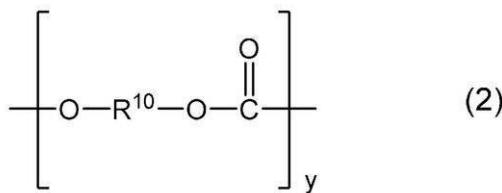
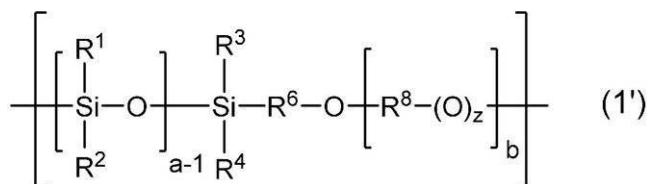
[式(B1)中、[POS - Mh]は、ゲル浸透クロマトグラフを用いて、保持時間範囲T1～T2に相当する成分を分取して得られたポリカーボネット - ポリオルガノシロキサン共重合体に含まれるポリオルガノシロキサンブロックの平均重量を示す。[POS - M1]は、ゲル浸透クロマトグラフを用いて、保持時間T2～T3の間を分取して得られたポリカーボネット - ポリオルガノシロキサン共重合体に含まれるポリオルガノシロキサンブロックの平均重量を表す。]

T 1 :  $M_w / M_n = 1.01$ 、 $M_w = 98,900$  の標準ポリスチレンのゲル浸透クロマトグラムにおけるピークトップが位置する保持時間

T 2 :  $M_w / M_n = 1.01$ 、 $M_w = 13,700$  の標準ポリスチレンのゲル浸透クロマトグラムにおけるピークトップが位置する保持時間

T 3 :  $M_w / M_n = 1.03$ 、 $M_w = 3,120$  の標準ポリスチレンのゲル浸透クロマトグラムにおけるピークトップが位置する保持時間 ]

【化 1】



[ 式中、 $R^1 \sim R^4$  は同一か又は異なっていてもよく、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、炭素数 1 ~ 10 のアルキル基、炭素数 1 ~ 10 のアルコキシ基、炭素数 6 ~ 12 のアリール基又はアルキル基部位の炭素数が 1 ~ 10 であるアルキルアリール基を示す。  $R^6$  は炭素数 6 ~ 20 のアリーレン基、炭素数 1 ~ 10 のアルキレン基又はアルキル基部位の炭素数が 1 ~ 10 であるアルキルアリーレン基を示し、官能基として、-O-、-C=O-、-CO-、-S-、-NH-、-NR<sup>111</sup>- を含んでよい。複数の  $R^8$  は同一か又は異なっていてもよく、それぞれ互いに独立して、炭素数 6 ~ 20 のアリーレン基、炭素数 2 ~ 10 のアルキレン基、炭素数 3 ~ 10 の分岐アルキレン基又はアルキル基部位の炭素数が 1 ~ 10 であるアルキルアリーレン基を示し、官能基として、-O-、-CO-、-S-、-NH-、-NR<sup>111</sup>- を含んでよい。  $R^{111}$  は炭素数 1 ~ 10 のアルキル基又は炭素数 6 ~ 10 のアリール基を示す。  $z$  は 1 を示す。  $b$  は 5 ~ 200 の整数を示す。  $a$  は 2 ~ 500 の整数を示す。  $R^{10}$  は炭素数 2 ~ 40 の二価の脂肪族炭化水素基若しくは炭素数 3 ~ 40 の二価の脂環式炭化水素基、又は炭素数 6 ~ 20 の二価の芳香族炭化水素基を示し、置換基によって置換されていてもよい。前記二価の脂肪族炭化水素基、前記二価の脂環式炭化水素基又は前記二価の芳香族炭化水素基は、酸素原子、窒素原子及び硫黄原子から選ばれる少なくとも 1 つのヘテロ原子、フッ素原子、塩素原子、臭素原子及びヨウ素原子から選ばれる少なくとも 1 つのハロゲン原子を含んでもよい。  $y$  は 10 ~ 500 の整数を示す。 ]

【請求項 2】

前記ポリカーボネートブロック (A-2) が、下記一般式 (111) で表される構造及び下記一般式 (112) で表される構造を有する、請求項 1 に記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体。

10

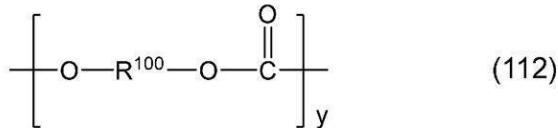
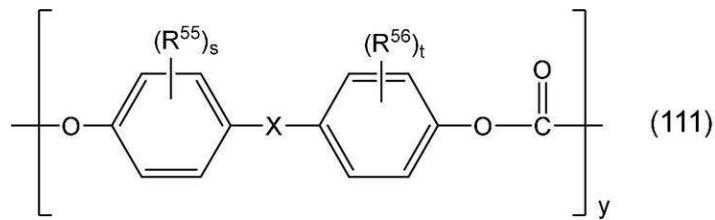
20

30

40

50

## 【化 2】



10

[式中、 $\text{R}^{55}$ 及び $\text{R}^{56}$ はそれぞれ独立に、ハロゲン原子、炭素数1～6のアルキル基又は炭素数1～6のアルコキシ基を示す。 $\text{X}$ は、単結合、炭素数1～8のアルキレン基、炭素数2～8のアルキリデン基、炭素数5～15のシクロアルキレン基、炭素数5～15のシクロアルキリデン基、フルオレンジイル基、炭素数7～15のアリールアルキレン基、炭素数7～15のアリールアルキリデン基、-S-、-SO-、-SO<sub>2</sub>-、-O-又は-CO-を示す。 $\text{R}^{100}$ は炭素数2～40の二価の脂肪族炭化水素基を示し、分岐構造や環状構造を含んでもよい。 $\text{R}^{100}$ は酸素原子、窒素原子及び硫黄原子から選ばれる少なくとも1つのヘテロ原子、フッ素原子、塩素原子、臭素原子及びヨウ素原子から選ばれる少なくとも1つのハロゲン原子を含んでもよい。 $y$ は10～500の整数を示す。 $s$ 及び $t$ はそれぞれ独立して、0～4の整数を示す。]

20

## 【請求項3】

前記一般式(2)で表されるポリカーボネートブロック(A-2)が、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2,2-ビス(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)プロパン、1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサン及び1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロドデセンからなる群から選択される芳香族ビスフェノールから誘導される構造単位、又はイソソルビド、シクロヘキサン-1,4-ジメタノール、トリシクロデカンジメタノール、3,9-ビス(1,1-ジメチル-2-ヒドロキシエチル)-2,4,8,10-テトラオキサスピロ[5.5]ウンデカン、1,3-プロパンジオール及び1,4-ブタンジオールからなる群から選択される脂肪族ジオールから誘導される構造単位を含む、請求項1又は2に記載のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体。

30

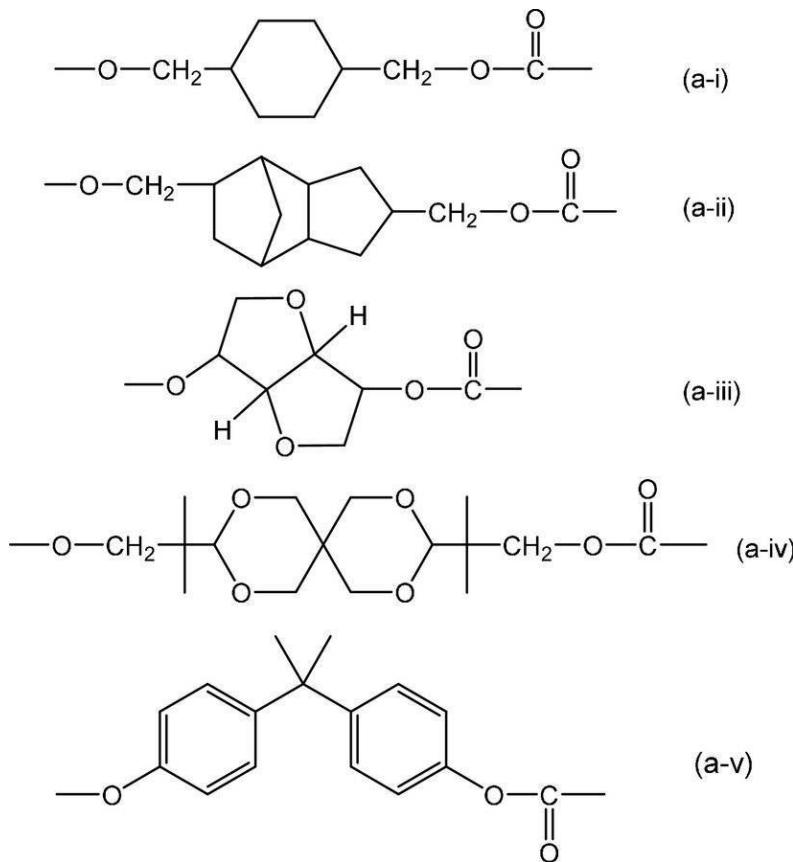
## 【請求項4】

前記ポリカーボネートブロック(A-2)が、下記一般式(a-i)～(a-v)で表される繰り返し単位からなる群より選ばれる一つ以上を有する、請求項1～3のいずれか一項に記載のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体。

40

50

## 【化 3】



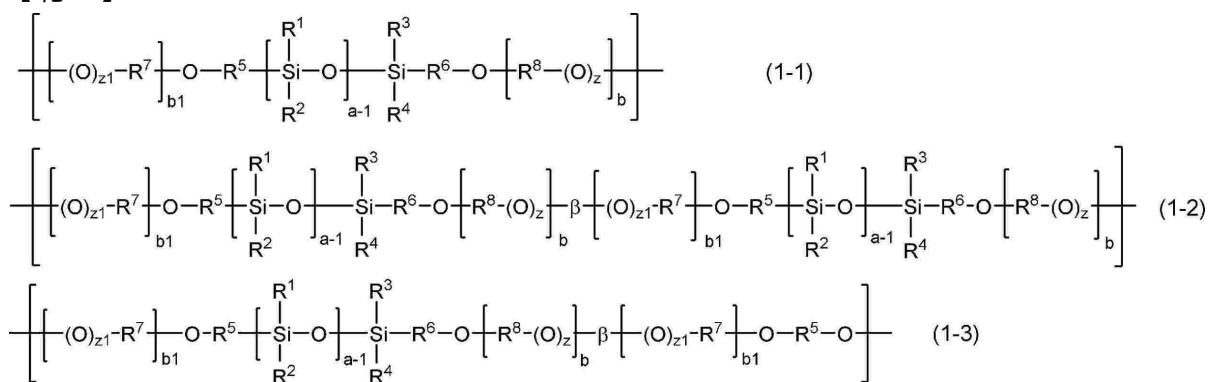
## 【請求項 5】

前記一般式(1')において、aが2以上300以下の整数である、請求項1～4のいずれか一項に記載のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体。

## 【請求項 6】

前記ポリオルガノシロキサンブロック(A-1)が、下記一般式(1-1)～(1-3)で表される構造単位からなる群から選択される少なくとも1つを含む、請求項1～5のいずれか一項に記載のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体。

## 【化 4】



[式中、R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>、R<sup>6</sup>、R<sup>8</sup>、z、a、bは上記した通りである。R<sup>5</sup>は炭素数6～20のアリーレン基、炭素数1～10のアルキレン基又はアルキル基部位の炭素数が1～10であるアルキルアリーレン基を示し、官能基として、-O-、-COO-、-CO-、-S-、-NH-、-NR<sup>111</sup>-を含んでよい。R<sup>7</sup>は炭素数6～20のアリーレン基、炭素数2～10のアルキレン基、炭素数3～10の分岐アルキレン基又はアルキル基部位の炭素数が1～10であるアルキルアリーレン基を示し、官能基として、-O-、-COO-、-CO-、-S-、-NH-、-NR<sup>111</sup>-を含んでよい。R<sup>111</sup>は炭素数1～10のア

ルキル基又は炭素数 6 ~ 10 のアリール基を示す。z 1 は 0 又は 1 を示す。b 1 は 2 ~ 20 の整数を示す。 は、ジイソシアネート化合物由来の 2 価の基、又はジカルボン酸若しくはジカルボン酸のハロゲン化物由来の 2 価の基を示す。】

【請求項 7】

前記一般式 (1')において、R<sup>1</sup> ~ R<sup>4</sup> がすべてメチル基を示す、請求項 1 ~ 6 のいずれか一項に記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体。

【請求項 8】

前記一般式 (1')において、R<sup>6</sup> がトリメチレン基 (- (CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub> - ) である、請求項 1 ~ 7 のいずれか一項に記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体。

【請求項 9】

前記一般式 (1')において、R<sup>6</sup> がジメチレン基 (- (CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub> - )、メチル置換ジメチレン基 (- CH<sub>2</sub>CHMe - )、トリメチレン基 (- (CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub> - )、及びテトラメチレン基 (- (CH<sub>2</sub>)<sub>4</sub> - ) からなる群の中から選択されるいずれかの構造である、請求項 1 ~ 8 のいずれか一項に記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体。

【請求項 10】

前記ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体における、一般式 (1') で示されるポリオルガノシロキサンブロックの含有率が 0.1 質量 % 以上 60 質量 % 以下である、請求項 1 ~ 9 のいずれか一項に記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体。

【請求項 11】

粘度平均分子量 (M<sub>v</sub>) が 5,000 以上 50,000 以下である、請求項 1 ~ 10 のいずれか一項に記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体。

【請求項 12】

前記ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を成形して得られる 1 mm 厚プレートの ISO 14782 : 1999 に準拠して測定されるヘイズ値が 40 以下である、請求項 1 ~ 11 のいずれか一項に記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体。

【請求項 13】

ジオールモノマー (a 1) を用いて得られる、請求項 1 ~ 12 のいずれか一項に記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体。

【請求項 14】

請求項 1 ~ 13 のいずれか一項に記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を含む、ポリカーボネート系樹脂組成物。

【請求項 15】

無機フィラーを更に含む、請求項 14 に記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

【請求項 16】

前記ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体 100 質量部に対して、前記無機フィラーを 1 ~ 150 質量部含む、請求項 15 に記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

【請求項 17】

前記無機フィラーが、ガラス纖維又は炭素纖維である、請求項 15 又は 16 に記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

【請求項 18】

請求項 14 ~ 17 のいずれか一項に記載のポリカーボネート系樹脂組成物からなる、成形体。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体及び該共重合体を含む樹脂組成物に関する。

10

20

30

40

50

## 【背景技術】

## 【0002】

ポリカーボネート樹脂は、透明性及び力学物性に優れ、かつ非常に高い耐衝撃性を有するエンジニアリングプラスチックである。ポリカーボネートに、ポリシロキサンを共重合したポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体は、高い透明性を維持したまま、低温耐衝撃性に優れ、耐薬品性にも優れることが知られている。

一般に、ポリカーボネート樹脂の製造方法としては、芳香族ジヒドロキシ化合物とホスゲンとを直接反応させる方法（界面重縮合法）、あるいは芳香族ジヒドロキシ化合物と炭酸ジエステルとを溶融状態でエステル交換反応させる方法（溶融重合法）が知られている。

## 【0003】

ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を製造するには、界面重合法が採用されることが多い。例えば、ビスフェノール等のジアリールジオール化合物とホスゲンとを有機溶媒の存在下で反応させて、反応性のクロロホーメート基を有するポリカーボネートオリゴマーを生成させ、該ポリカーボネートオリゴマーの生成と同時に又は逐次的に、さらにポリカーボネートオリゴマーと、ビスフェノール類と、水酸基含有アリール基を両末端に持つポリシロキサンとを、塩化メチレン / 水媒体中で接触させて製造することができることが知られる（特許文献1）。一般的に、重合反応において同一原料成分同士が結合したホモカップリング体や、一部原料が重合反応に関与せず未反応原料成分が生じることがある。これらの成分はポリマー主鎖に均一に取り込まれないまま重合体中で存在するため、重合体の透明性や力学物性は著しく低下してしまう。上記界面重合法ではこのような問題が生じる事は少なく、透明性や力学物性に優れるポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体が得られる。

## 【0004】

一方で、界面重合法はカーボネート源として毒性の高いホスゲンを用いる必要がある。加えて、重合反応系には環境負荷の大きな塩化メチレンを溶媒として用いる必要があり、その除去には大型の脱気装置や大きなエネルギーを要し経済的に不利である。この問題を回避するために、界面重合法以外の製造方法、例えば溶融重合法によりポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を製造することが検討されている。

## 【0005】

特許文献2には、ビスフェノール化合物、炭酸芳香族ジエステル、シラノール末端停止ポリシロキサン及び触媒から溶融重合法によるポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体の製造について開示されている。特許文献3には、カーボネート末端停止ポリオルガノシロキサン、ジヒドロキシ芳香族化合物、ジアリールカーボネート及びカーボネートエステル交換触媒の存在下でプロックコポリシロキサンカーボネートを製造する方法を開示する。特許文献4には、ヒドロキシアリールオキシ停止ジメチルシロキサンと、特定重量平均分子量及び特定末端比率（OH末端基とアリール末端基）を有するオリゴカーボネートとを、触媒の存在下にて溶融状態で反応させることを含む、ポリシロキサン / ポリカーボネートプロック共縮合生成物の製造方法を開示する。

## 【0006】

特許文献5には、特定の触媒存在下、特定の末端構造を有するポリジオルガノシロキサン成分を含むポリジオルガノシロキサン、Siを含まないジフェノール、炭酸ジアリールエステルを溶融重合する、ポリ（ジオルガノシロキサン） / ポリカーボネートプロックコポリマーを製造する方法が開示されている。特許文献6には、固相重合により改質ポリカーボネート樹脂を製造する方法が開示され、出発原料物質としてポリシロキサン化合物を用いることが記載されている。特許文献7～9には、エステル交換法により、ポリシロキサン - ポリカーボネートプロック共縮合物を得る方法を開示している。

## 【先行技術文献】

## 【特許文献】

## 【0007】

## 【文献】特開2015-189953号公報

10

20

30

40

50

【文献】米国特許第5,227,449号明細書

【文献】特開平8-311206号公報

【文献】特開平10-251408号公報

【文献】特開2008-248262号公報

【文献】特表2008-513594号公報

【文献】特表2017-505841号公報

【文献】特表2016-532734号公報

【文献】特表2016-532733号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

特許文献2～7は、ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体の溶融重合法による製造方法を開示しているが、良好な力学物性を有するポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体を得るという点では未だ不十分である。特許文献2にはシラノール末端停止シロキサンが用いられているが、シラノール末端停止ジメチルシロキサンはその分子量が低くなるほど分子内縮合を起こす傾向がある事が知られている。分子内縮合の結果生成する環状シロキサンは得られるポリカーボネート-ポリシロキサン共重合体に残留し、その力学物性に悪影響を及ぼすだけでなく、電機・電子分野用途においてリレー接点不良等の悪影響を与える事が懸念される。

【0009】

特許文献3は、ポリマー主鎖に組み込まれるポリジメチルシロキサンの量が増加する事が示されているものの、カーボネート末端停止ポリシロキサンと他の原料との溶融状態での外観が「乳白色」と記載があることから、カーボネート末端停止ポリシロキサンは他の原料と分離しており、依然としてホモカップリングで生成する成分や未反応のカーボネート末端停止ポリシロキサンが重合体中に残留している事が推察される。これらの成分はポリカーボネート-ポリシロキサン共重合体の力学物性を著しく低下させる。特許文献3ではシロキサンのポリマー主鎖への組み込み量が多い製造例でさえアルカリ金属系の触媒(水酸化ナトリウム)をビスフェノールAのモル数に対して $10 \times 10^{-6}$ 倍量も使用しており、過剰量の触媒を使用した場合、残留触媒成分量の増加がポリカーボネート連鎖の加水分解を誘発するため、得られた重合体には実用条件に耐えうる耐熱性や耐候性は備わっていないと推察される。本発明者等は、特許文献3に開示されるアリルフェノール末端ポリオルガノシロキサン共重合体は、力学物性も低下することを確認した。

【0010】

特許文献4に開示された方法は、ポリカーボネート-ポリシロキサン共重合体を得るために特定重量平均分子量及び特定末端比率(OH末端基とアリール末端基)を有するオリゴカーボネートを別途事前に調製する必要があるため、経済的観点から実用性のある製造法とは言えない。

【0011】

特許文献5に開示される共重合体はドメイン構造が大きく、シロキサンが均一にポリマー主鎖に取り込まれているとは言えない。特許文献6には、固相反応によるポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体の製造方法が示されているが、反応の均一性や重合体の物性に関する言及がない。特許文献7～9は同一構造を有するポリシロキサンブロックを有する共重合体をエステル交換法(溶融重合法)により製造しているが、これらの方法においては原料としてカルボニル基がベンゼン環に直接結合した構造を含む、特定構造のポリカーボネートを用いる必要がある。所望のポリカーボネート-ポリシロキサン共重合体を得るために前記特定構造のポリカーボネートを事前に製造する必要があるため経済的に不利である。

【0012】

詳述した通り、界面重合法以外の手法によるポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体を得る試みはなされているものの、ポリマー主鎖へのシロキサンブロック導入

10

20

30

40

50

が不十分であるのが現状である。本発明は、界面重合法以外の手法によりポリマー主鎖にシロキサンプロックを十分な量導入することができ、その結果高い力学物性が発現する、ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体を得ることを課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0013】

本発明者らは鋭意研究を重ねた結果、特定構造を有するポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体であって、特定条件を満たす共重合体を製造することにより、ポリマー主鎖にシロキサンプロックが十分な量導入され、高い力学物性を有するポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体が得られることを見出した。

すなわち本発明は、以下に関する。

10

【0014】

[1] 下記一般式(1)で表される構造単位を含むポリオルガノシロキサンプロック(A-1)と、下記一般式(2)で表される繰り返し単位からなるポリカーボネートプロック(A-2)とを含み、以下の条件(A)又は(B)を満たす、ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体：

条件(A)：前記ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体のヘキサン抽出量が150質量ppm以下、

条件(B)：前記ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体をゲル浸透クロマトグラフにより分離して得られるポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体に含まれるポリオルガノシロキサンプロックの平均重量が下式(B1)を満たす。

20

【数1】

$$0.3 \leq [\text{POS} - M_h] / [\text{POS} - M_1] \leq 3 \quad (\text{B1})$$

[式(B1)中、[POS - M<sub>h</sub>]は、ゲル浸透クロマトグラフを用いて、保持時間範囲T<sub>1</sub>～T<sub>2</sub>に相当する成分を分取して得られたポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体に含まれるポリオルガノシロキサンプロックの平均重量を示す。[POS - M<sub>1</sub>]は、ゲル浸透クロマトグラフを用いて、保持時間T<sub>2</sub>～T<sub>3</sub>の間を分取して得られたポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体に含まれるポリオルガノシロキサンプロックの平均重量を表す。

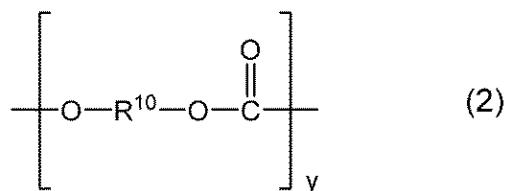
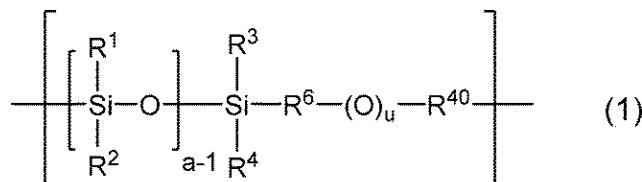
T<sub>1</sub> : M<sub>w</sub> / M<sub>n</sub> = 1.01、M<sub>w</sub> = 98, 900 の標準ポリスチレンのゲル浸透クロマトグラムにおけるピークトップが位置する保持時間

30

T<sub>2</sub> : M<sub>w</sub> / M<sub>n</sub> = 1.01、M<sub>w</sub> = 13, 700 の標準ポリスチレンのゲル浸透クロマトグラムにおけるピークトップが位置する保持時間

T<sub>3</sub> : M<sub>w</sub> / M<sub>n</sub> = 1.03、M<sub>w</sub> = 3, 120 の標準ポリスチレンのゲル浸透クロマトグラムにおけるピークトップが位置する保持時間]

【化1】



[式中、R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>は同一か又は異なっていてもよく、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数6～12のアリール基又はアルキル基部位の炭素数が1～10であるアルキルアリール基を示す

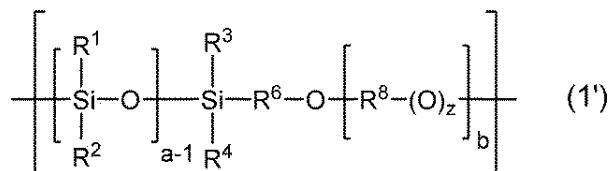
40

50

。  $R^6$  は炭素数 6 ~ 20 のアリーレン基、炭素数 1 ~ 10 のアルキレン基又はアルキル基部位の炭素数が 1 ~ 10 であるアルキルアリーレン基を示し、官能基として、 -O- 、 -C-O-O- 、 -CO- 、 -S- 、 -NH- 、 -NR<sup>111</sup>- を含んでよい。  $R^{111}$  は炭素数 1 ~ 10 のアルキル基又は炭素数 6 ~ 10 のアリール基を示す。  $R^{40}$  は炭素数 3 ~ 400 の二価の脂肪族炭化水素基若しくは炭素数 3 ~ 400 の二価の脂環式炭化水素基、又は炭素数 8 ~ 400 の二価の芳香族炭化水素基を示し、置換基によって置換されていてもよい。前記二価の脂肪族炭化水素基、前記二価の脂環式炭化水素基又は前記二価の芳香族炭化水素基は、酸素原子、窒素原子及び硫黄原子から選ばれる少なくとも 1 つのヘテロ原子、フッ素原子、塩素原子、臭素原子及びヨウ素原子から選ばれる少なくとも 1 つのハロゲン原子を含んでもよい。  $a$  は 2 ~ 500 の整数を示し、  $u$  は 0 又は 1 を示す。  $R^{10}$  は炭素数 2 ~ 40 の二価の脂肪族炭化水素基若しくは炭素数 3 ~ 40 の二価の脂環式炭化水素基、又は炭素数 6 ~ 20 の二価の芳香族炭化水素基を示し、置換基によって置換されていてもよい。前記二価の脂肪族炭化水素基、前記二価の脂環式炭化水素基又は前記二価の芳香族炭化水素基は、酸素原子、窒素原子及び硫黄原子から選ばれる少なくとも 1 つのヘテロ原子、フッ素原子、塩素原子、臭素原子及びヨウ素原子から選ばれる少なくとも 1 つのハロゲン原子を含んでもよい。  $y$  は 10 ~ 500 の整数を示す。 ]

[ 2 ] 前記ポリオルガノシロキサンブロック (A - 1) が、下記一般式 (1') の構造を有する、上記 [ 1 ] に記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体。

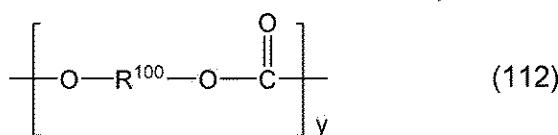
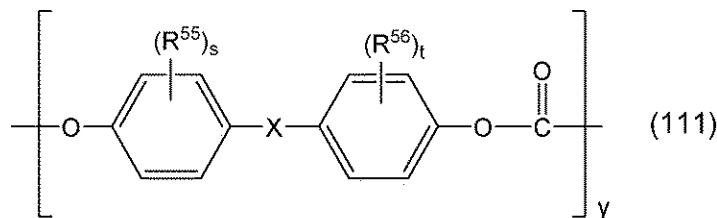
【化 2】



[ 式中、  $R^1$  ~  $R^4$  、  $R^6$  及び  $a$  は上記した通りである。複数の  $R^8$  は同一か又は異なっていてもよく、それぞれ互いに独立して、炭素数 6 ~ 20 のアリーレン基、炭素数 2 ~ 10 のアルキレン基、炭素数 3 ~ 10 の分岐アルキレン基又はアルキル基部位の炭素数が 1 ~ 10 であるアルキルアリーレン基を示し、官能基として、 -O- 、 -COO- 、 -CO- 、 -S- 、 -NH- 、 -NR<sup>111</sup>- を含んでよい。  $R^{111}$  は炭素数 1 ~ 10 のアルキル基又は炭素数 6 ~ 10 のアリール基を示す。  $z$  は 0 又は 1 を示す。  $b$  は 2 ~ 200 の整数を示す。 ]

[ 3 ] 前記ポリカーボネートブロック (A - 2) が、下記一般式 (111) で表される構造及び下記一般式 (112) で表される構造を有する、上記 [ 1 ] 又は [ 2 ] に記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体。

【化 3】



[ 式中、  $R^{55}$  及び  $R^{56}$  はそれぞれ独立に、ハロゲン原子、炭素数 1 ~ 6 のアルキル基又は炭素数 1 ~ 6 のアルコキシ基を示す。  $X$  は、単結合、炭素数 1 ~ 8 のアルキレン基、炭素数 2 ~ 8 のアルキリデン基、炭素数 5 ~ 15 のシクロアルキレン基、炭素数 5 ~ 15 のシクロアルキリデン基、フルオレンジイル基、炭素数 7 ~ 15 のアリールアルキレン基、炭素数 7 ~ 15 のアリールアルキリデン基、 -S- 、 -SO- 、 -SO<sub>2</sub>- 、 -O- 又は -C-

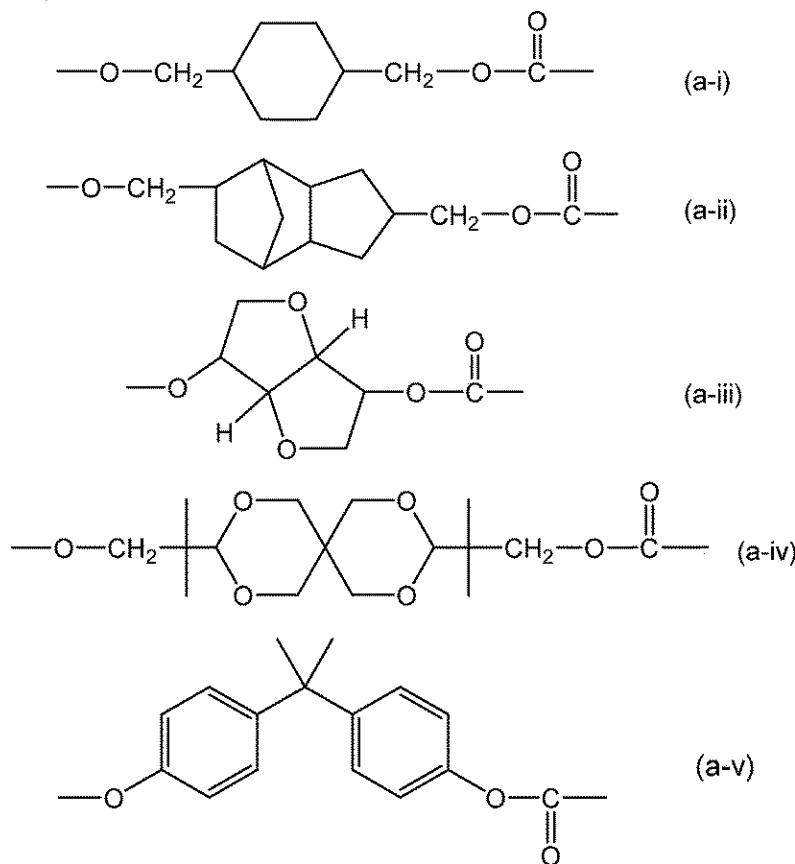
$O^-$  を示す。 $R^{100}$  は炭素数 2 ~ 40 の二価の脂肪族炭化水素基を示し、分岐構造や環状構造を含んでもよい。 $R^{100}$  は酸素原子、窒素原子及び硫黄原子から選ばれる少なくとも 1 つのヘテロ原子、フッ素原子、塩素原子、臭素原子及びヨウ素原子から選ばれる少なくとも 1 つのハロゲン原子を含んでもよい。 $y$  は 10 ~ 500 の整数を示す。s 及び t はそれぞれ独立して、0 ~ 4 の整数を示す。】

【0015】

[4] 前記ポリカーボネートブロック (A-2) が、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2,2-ビス(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)プロパン、1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-3-メチルシクロヘキサン、1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサン及び1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロドデセンからなる群から選択される芳香族ビスフェノールから誘導される構造単位、又はイソソルビド、シクロヘキサン-1,4-ジメタノール、トリシクロデカンジメタノール、3,9-ビス(1,1-ジメチル-2-ヒドロキシエチル)-2,4,8,10-テトラオキサスピロ[5.5]ウンデカン、1,3-プロパンジオール及び1,4-ブタンジオールからなる群から選択される脂肪族ジオールから誘導される構造単位を含む、上記 [1] ~ [3] のいずれか 1 つに記載のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体。

[5] 前記ポリカーボネートブロック (A-2) が、下記一般式 (a-i) ~ (a-v) で表される繰り返し単位からなる群より選ばれる一つ以上を有する、上記 [1] ~ [4] のいずれか 1 つに記載のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体。

【化4】



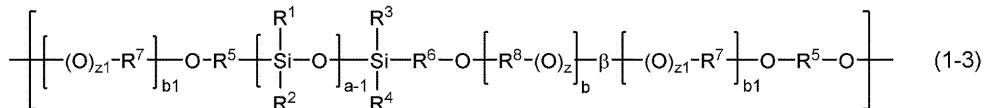
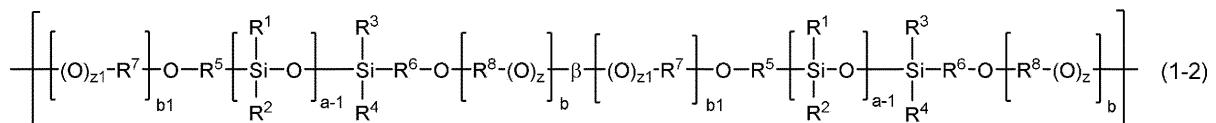
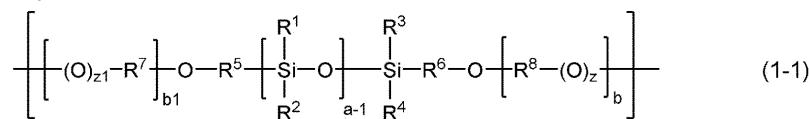
[6] 前記一般式 (1)において、a が 2 以上 300 以下の整数である、上記 [1] ~ [5] のいずれか 1 つに記載のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体。

【0016】

[7] 前記ポリオルガノシロキサンブロック (A-1) が、下記一般式 (1-1) ~ (1-3) で表される構造単位からなる群から選択される少なくとも 1 つを含む、上記 [1]

～ [ 6 ] のいずれか 1 つに記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体。

【化 5】



[ 式中、  $R^1 \sim R^4$  、  $R^6$  、  $R^8$  、  $z$  、  $a$  、  $b$  は上記した通りである。  $R^5$  は炭素数 6 ～ 20 のアリーレン基、炭素数 1 ～ 10 のアルキレン基又はアルキル基部位の炭素数が 1 ～ 10 であるアルキルアリーレン基を示し、官能基として、 -O- 、 -COO- 、 -CO- 、 -S- 、 -NH- 、 -NR<sup>111</sup>- を含んでよい。  $R^7$  は炭素数 6 ～ 20 のアリーレン基、炭素数 2 ～ 10 のアルキレン基、炭素数 3 ～ 10 の分岐アルキレン基又はアルキル基部位の炭素数が 1 ～ 10 であるアルキルアリーレン基を示し、官能基として、 -O- 、 -COO- 、 -CO- 、 -S- 、 -NH- 、 -NR<sup>111</sup>- を含んでよい。  $R^{111}$  は炭素数 1 ～ 10 のアルキル基又は炭素数 6 ～ 10 のアリール基を示す。  $z_1$  は 0 又は 1 を示す。  $b_1$  は 2 ～ 200 の整数を示す。 は、ジイソシアネート化合物由来の 2 価の基、又はジカルボン酸若しくはジカルボン酸のハロゲン化物由来の 2 価の基を示す。 ]

[ 8 ] 前記一般式 (1) において、  $R^1 \sim R^4$  がすべてメチル基を示す、上記 [ 1 ] ～ [ 7 ] のいずれか 1 つに記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体。

[ 9 ] 前記一般式 (1) において、  $R^6$  がトリメチレン基 ( - (CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub> - ) である、上記 [ 1 ] ～ [ 8 ] のいずれか 1 つに記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体。

[ 10 ] 前記一般式 (1') において、  $R^6$  がジメチレン基 ( - (CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub> - ) 、メチル置換ジメチレン基 ( - CH<sub>2</sub>CHMe - ) 、トリメチレン基 ( - (CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub> - ) 、及びテトラメチレン基 ( - (CH<sub>2</sub>)<sub>4</sub> - ) からなる群の中から選択されるいずれかの構造である、上記 [ 2 ] ～ [ 9 ] のいずれか 1 つに記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体。

[ 11 ] 前記ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体における、一般式 (1) で示されるポリオルガノシロキサンブロックの含有率が 0.1 質量 % 以上 60 質量 % 以下である、上記 [ 1 ] ～ [ 10 ] のいずれか 1 つに記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体。

[ 12 ] 粘度平均分子量 (M<sub>v</sub>) が 5,000 以上 50,000 以下である、上記 [ 1 ] ～ [ 11 ] のいずれか 1 つに記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体。

[ 13 ] 前記ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を成形して得られる 1 mm 厚プレートの ISO 14782 : 1999 に準拠して測定されるヘイズ値が 40 以下である、上記 [ 1 ] ～ [ 12 ] のいずれか 1 つに記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体。

[ 14 ] 溶融重合法により得られる、上記 [ 1 ] ～ [ 13 ] のいずれか 1 つに記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体。

[ 15 ] ジオールモノマー (a1) を用いて得られる、上記 [ 1 ] ～ [ 14 ] のいずれか 1 つに記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体。

[ 16 ] 上記 [ 1 ] ～ [ 15 ] のいずれか 1 つに記載のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を含む、ポリカーボネート系樹脂組成物。

[ 17 ] 無機フィラーを更に含む、上記 [ 16 ] に記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[ 1 8 ] 前記ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体 1 0 0 質量部に対して、前記無機フィラーを 1 ~ 1 5 0 質量部含む、上記 [ 1 7 ] に記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[ 1 9 ] 前記無機フィラーが、ガラス纖維又は炭素纖維である、上記 [ 1 7 ] 又は [ 1 8 ] に記載のポリカーボネート系樹脂組成物。

[ 2 0 ] 上記 [ 1 6 ] ~ [ 1 9 ] のいずれか 1 つに記載のポリカーボネート系樹脂組成物からなる、成形体。

【発明の効果】

【 0 0 1 7 】

本発明によれば、ポリマー主鎖にシロキサンブロックを十分な量導入することができるため、優れた力学物性を有するポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得ることができる。

10

【発明を実施するための形態】

【 0 0 1 8 】

以下、本発明のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体及び該共重合体を含むポリカーボネート系樹脂組成物について詳細に説明する。本明細書において、好ましいとされている規定は任意に採用することができ、好ましいもの同士の組み合わせはより好ましいといえる。本明細書において、「XX ~ YY」の記載は、「XX 以上 YY 以下」を意味する。

【 0 0 1 9 】

20

<ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体>

本発明のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体は、下記一般式 ( 1 ) で表される構造単位を含むポリオルガノシロキサンブロック ( A - 1 ) と、下記一般式 ( 2 ) で表される繰り返し単位からなるポリカーボネートブロック ( A - 2 ) とを含み、以下の条件 ( A ) 又は ( B ) を満たすことを特徴とする：

条件 ( A ) : 前記ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体のヘキサン抽出成分量が 1 5 0 質量 ppm 以下、

条件 ( B ) : 前記ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体をゲル浸透クロマトグラフにより分離して得られるポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体に含まれるポリオルガノシロキサンブロックの平均重量が下式 ( B 1 ) を満たす。

30

【数 2 】

$$0.3 \leq [\text{POS} - \text{Mh}] / [\text{POS} - \text{M1}] \leq 3 \quad (\text{B1})$$

[ 式 ( B 1 ) 中、 [ POS - Mh ] は、ゲル浸透クロマトグラフを用いて、保持時間範囲 T 1 ~ T 2 に相当する成分を分取して得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体に含まれるポリオルガノシロキサンブロックの平均重量を示す。 [ POS - M1 ] は、ゲル浸透クロマトグラフを用いて、保持時間 T 2 ~ T 3 の間を分取して得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体に含まれるポリオルガノシロキサンブロックの平均重量を表す。 ]

T 1 :  $M_w / M_n = 1.01$  、  $M_w = 98$  , 900 の標準ポリスチレンのゲル浸透クロマトグラムにおけるピークトップが位置する保持時間

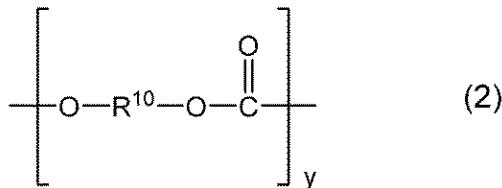
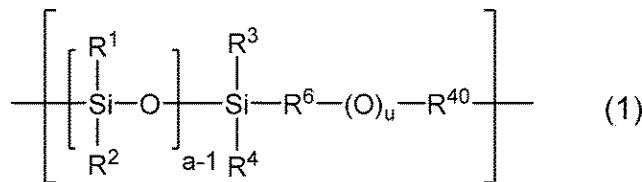
40

T 2 :  $M_w / M_n = 1.01$  、  $M_w = 13$  , 700 の標準ポリスチレンのゲル浸透クロマトグラムにおけるピークトップが位置する保持時間

T 3 :  $M_w / M_n = 1.03$  、  $M_w = 3$  , 120 の標準ポリスチレンのゲル浸透クロマトグラムにおけるピークトップが位置する保持時間 ]

50

## 【化6】



10

[式中、R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>は同一か又は異なっていてもよく、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数6～12のアリール基又はアルキル基部位の炭素数が1～10であるアルキルアリール基を示す。R<sup>6</sup>は炭素数6～20のアリーレン基、炭素数1～10のアルキレン基又はアルキル基部位の炭素数が1～10であるアルキルアリーレン基を示し、官能基として、-O-、-C=O-、-CO-、-S-、-NH-、-NR<sup>111</sup>-を含んでよい。R<sup>111</sup>は炭素数1～10のアルキル基又は炭素数6～10のアリール基を示す。R<sup>40</sup>は炭素数3～400の二価の脂肪族炭化水素基若しくは炭素数3～400の二価の脂環式炭化水素基、又は炭素数8～400の二価の芳香族炭化水素基を示し、置換基によって置換されていてもよい。前記二価の脂肪族炭化水素基、前記二価の脂環式炭化水素基又は前記二価の芳香族炭化水素基は、酸素原子、窒素原子及び硫黄原子から選ばれる少なくとも1つのヘテロ原子、フッ素原子、塩素原子、臭素原子及びヨウ素原子から選ばれる少なくとも1つのハロゲン原子を含んでもよい。aは2～500の整数を示し、uは0又は1を示す。R<sup>10</sup>は炭素数2～40の二価の脂肪族炭化水素基若しくは炭素数3～40の二価の脂環式炭化水素基、又は炭素数6～20の二価の芳香族炭化水素基を示し、置換基によって置換されていてもよい。前記二価の脂肪族炭化水素基、前記二価の脂環式炭化水素基又は前記二価の芳香族炭化水素基は、酸素原子、窒素原子及び硫黄原子から選ばれる少なくとも1つのヘテロ原子、フッ素原子、塩素原子、臭素原子及びヨウ素原子から選ばれる少なくとも1つのハロゲン原子を含んでもよい。yは10～500の整数を示す。]

20

## 【0020】

R<sup>6</sup>がアルキレン基の場合、炭素数は1～5であることが好ましい。

## 【0021】

ジオールモノマー(a1)との親和性を高め、均一な重合を行う観点から、R<sup>40</sup>として、炭素数2～20の二価の脂肪族炭化水素基、炭素数3～20の二価の脂環式炭化水素基又は炭素数6～20の二価の芳香族炭化水素基から選ばれる少なくとも1つの炭化水素基と、酸素原子、窒素原子及び硫黄原子からなる群から選択される少なくとも1つのヘテロ原子とを含む構造が少なくとも2個連結した繰返し連鎖構造を含むことが好ましい。炭素数2～20の二価の脂肪族炭化水素基、炭素数3～20の二価の脂環式炭化水素基又は炭素数6～20の二価の芳香族炭化水素基から選ばれる少なくとも1つの炭化水素基と、酸素原子、窒素原子及び硫黄原子からなる群から選択される少なくとも1つのヘテロ原子とを含む構造としては、-OH、-O-、-(C=O)-、-O(C=O)-、-O(C=O)O-、-NH<sub>2</sub>、-NRH、-NR-、-NR-(C=O)-、-N=CR-、-SH、-S-、-S-S-及び-(S=O)-からなる群から選択される少なくとも1つの構造を含む構造が好ましい。Rは、水素原子、炭素数1～20の1価の脂肪族炭化水素基、炭素数6～20の1価の芳香族炭化水素基を表し、それらは置換基で置換されていてもよい。繰返し連鎖構造としては、ポリエーテル、ポリアセタール、ポリラクトン、ポリアクリレート、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリケトン、ポリスルフィド、ポリスルホン、ポリアミド又はポリイミド等を好ましい構造として挙げることができる。

30

40

50

中でもポリエーテル、ポリアクリレート、及びポリカーボネートからなる群から選択される少なくとも1つが好ましく、ポリエーテルが最も好ましい。ポリエーテルとしては、ポリアルキレンエーテルが好ましく、中でもポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリトリメチレングリコール、ポリテトラメチレングリコールが好ましい。

【0022】

本発明のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体は、上記した通り、一般式(1)で表される構造単位を含むポリオルガノシロキサンブロック(A-1)と、一般式(2)で表される繰り返し単位からなるポリカーボネートブロック(A-2)とを含む。

【0023】

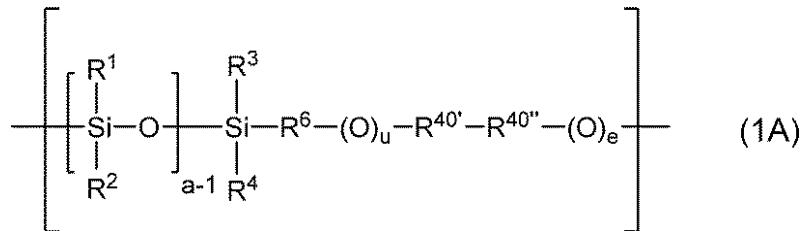
ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体を構成する、ポリオルガノシロキサンブロックが上記一般式(1)で表される構造単位を含み、かつ上記特定条件(A)又は(B)を満たすことにより、得られるポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体は主鎖に十分な量のシロキサンブロックを導入することができる。さらには、一般式(1)のR<sup>6</sup>、R<sup>40</sup>、aの選択、及び/又は一般式(2)で表される繰り返し単位からなるポリカーボネートブロック(A-2)の式中のR<sup>10</sup>の選択によっては、更に高い透明性を得ることができる。

後述するが、本発明のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体は溶融重合法により得ることもできる。溶融重合法は、塩化メチレン等の溶媒を必要としないため、環境面や経済的に有利である。加えてカーボネート源として毒性の高いホスゲンを用いないため、製造面でも有利である。

【0024】

一般式(1)で表される構造単位を含むポリオルガノシロキサンブロック(A-1)は、下記一般式(1A)の構造を有することが好ましい。

【化7】



【0025】

上記一般式(1A)中、R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>、R<sup>6</sup>、a及びuは上記した通りである。

R<sup>40</sup>は炭素数2～380の二価の脂肪族炭化水素基、炭素数3～380の二価の脂環式炭化水素基、又は炭素数6～380の二価の芳香族炭化水素基を示し、置換基によって置換されていてもよい。上記二価の脂肪族炭化水素基、上記二価の脂環式炭化水素基又は上記二価の芳香族炭化水素基は、酸素原子、窒素原子及び硫黄原子から選ばれる少なくとも1つのヘテロ原子、フッ素原子、塩素原子、臭素原子及びヨウ素原子から選ばれる少なくとも1つのハロゲン原子を含んでもよい。R<sup>40'</sup>は炭素数1～20の二価の脂肪族炭化水素基、炭素数3～20の二価の脂環式炭化水素基又は炭素数6～20の二価の芳香族炭化水素基を示し、置換基によって置換されていても良い。eは0又は1を示す。

【0026】

R<sup>40</sup>として、炭素数1～20の二価の脂肪族炭化水素基、炭素数3～20の二価の脂環式炭化水素基又は炭素数6～20の二価の芳香族炭化水素基から選ばれる少なくとも1つの炭化水素基と、酸素原子、窒素原子及び硫黄原子からなる群から選択される少なくとも1つのヘテロ原子とを含む構造が少なくとも2個連結した繰返し連鎖構造を含むことが好ましい。炭素数1～20の二価の脂肪族炭化水素基、炭素数3～20の二価の脂環式炭化水素基又は炭素数6～20の二価の芳香族炭化水素基から選ばれる少なくとも1つの炭化水素基と、酸素原子、窒素原子及び硫黄原子からなる群から選択される少なくとも1つのヘテロ原子とを含む構造としては、O H、-O-、-(C=O)-、-O(C=O)-

40

50

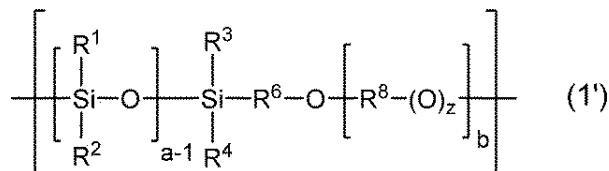
、 - O ( C = O ) O - 、 - NH<sub>2</sub> 、 - NRH 、 - NR - 、 - NR - ( C = O ) - 、 - N = C R - 、 - SH 、 - S - 、 - S - S - 及び - ( S = O ) - からなる群から選択される少なくとも 1 つの構造を含む構造が好ましい。R は、水素原子、炭素数 1 ~ 20 の 1 値の脂肪族炭化水素基、炭素数 6 ~ 20 の 1 値の芳香族炭化水素基を表し、それらは置換基で置換されていてもよい。繰返し連鎖構造としては、ポリエーテル、ポリアセタール、ポリラクトン、ポリアクリレート、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリケトン、ポリスルフィド、ポリスルホン、ポリアミド又はポリイミド等を好ましい構造として挙げができる。

中でもポリエーテル、ポリアクリレート、及びポリカーボネートからなる群から選択される少なくとも 1 つが好ましく、ポリエーテルが最も好ましい。ポリエーテルとしては、ポリアルキレンエーテルが好ましく、中でもポリエチレンジリコール、ポリプロピレンジリコール、ポリトリメチレンジリコール、ポリテトラメチレンジリコールが好ましい。上記の構造は、ジオールモノマー ( a 1 ) との親和性を高め、均一な重合を行う観点から好ましい。

### 【 0 0 2 7 】

一般式 ( 1 ) で表される構造単位を含むポリオルガノシロキサンブロック ( A - 1 ) は、下記一般式 ( 1 ' ) の構造を有することが更に好ましい。

### 【 化 8 】



(1')

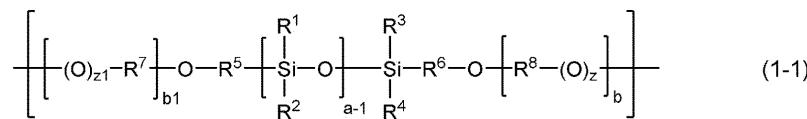
[ 式中、 R<sup>1</sup> ~ R<sup>4</sup> 、 R<sup>6</sup> 及び a は上記した通りである。複数の R<sup>8</sup> は同一か又は異なっていてもよく、それぞれ互いに独立して、炭素数 6 ~ 20 のアリーレン基、炭素数 2 ~ 10 のアルキレン基、炭素数 3 ~ 10 の分岐アルキレン基又はアルキル基部位の炭素数が 1 ~ 10 であるアルキルアリーレン基を示し、官能基として、 - O - 、 - COO - 、 - CO - 、 - S - 、 - NH - 、 - NR<sup>111</sup> - を含んでよい。R<sup>111</sup> は炭素数 1 ~ 10 のアルキル基又は炭素数 6 ~ 10 のアリール基を示す。z は 0 又は 1 を示す。b は 2 ~ 200 の整数を示す。 ]

R<sup>8</sup> の好ましいものは後述する。

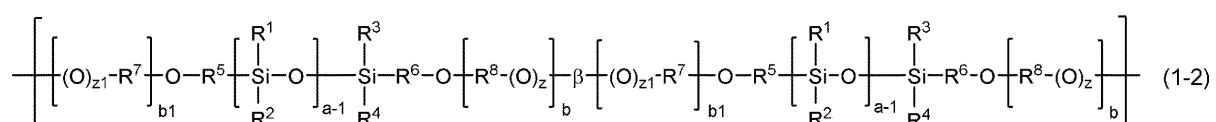
### 【 0 0 2 8 】

一般式 ( 1 ) で表される構造単位を含むポリオルガノシロキサンブロック ( A - 1 ) は、下記一般式 ( 1 - 1 ) ~ ( 1 - 3 ) で表される構造単位からなる群から選択される少なくとも 1 つを含むことが好ましい。

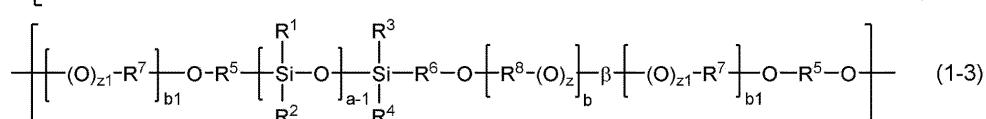
### 【 化 9 】



(1-1)



40



(1-3)

[ 式中、 R<sup>1</sup> ~ R<sup>4</sup> 、 R<sup>6</sup> 、 R<sup>8</sup> 、 z 、 a 及び b は上記した通りである。R<sup>5</sup> は炭素数 6 ~ 20 のアリーレン基、炭素数 1 ~ 10 のアルキレン基又はアルキル基部位の炭素数が 1 ~ 10 であるアルキルアリーレン基を示し、官能基として、 - O - 、 - COO - 、 - CO - 、

50

- S -、- NH -、- NR<sup>111</sup> - を含んでよい。R<sup>7</sup>は炭素数6～20のアリーレン基、炭素数2～10のアルキレン基、炭素数3～10の分岐アルキレン基又はアルキル基部位の炭素数が1～10であるアルキルアリーレン基を示し、官能基として、- O -、- COO -、- CO -、- S -、- NH -、- NR<sup>111</sup> - を含んでよい。R<sup>111</sup>は炭素数1～10のアルキル基又は炭素数6～10のアリール基を示す。z<sub>1</sub>は0又は1を示す。b<sub>1</sub>は2～200の整数を示す。 は、ジイソシアネート化合物由来の2価の基、又はジカルボン酸若しくはジカルボン酸のハロゲン化物由来の2価の基を示す。】

## 【0029】

R<sup>5</sup>がアルキレン基の場合、炭素数は1～5であることが好ましい。

## 【0030】

式中、R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>で示されるハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子及びヨウ素原子が挙げられる。R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>で示される炭素数1～10のアルキル基としては、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、各種ブチル基、各種ペンチル基、及び各種ヘキシリル基が挙げられる。R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>で示されるアルコキシ基としては、アルキル基部位が前記アルキル基である場合が挙げられる。R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>で示されるアリール基としては、フェニル基、ナフチル基等が挙げられる。R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>で示されるアルキルアリール基としては、アルキル基部位が前記アルキル基であり、アリール基部位が前記アリール基である場合が挙げられる。

R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>としては、いずれも、好ましくは、水素原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数6～12のアリール基又は炭素数1～10のアリールアルキル基であり、いずれもメチル基であることがより好ましい。

## 【0031】

一般式(1)、(1A)又は(1')中のR、又は一般式(1-1)～(1-3)中のR<sup>5</sup>及びR<sup>6</sup>で示される炭素数6～20のアリーレン基としては、フェニレン基、ナフチレン基等が挙げられる。上記一般式(1)、(1A)又は(1')中のR、又は一般式(1-1)～(1-3)中のR<sup>5</sup>及びR<sup>6</sup>で示される炭素数1～10のアルキレン基としては、メチレン基、ジメチレン基、トリメチレン基、メチル置換ジメチレン基、テトラメチレン基(テトラメチレン基は分岐構造を有していてもよい)等が挙げられる。上記一般式(1)、(1A)又は(1')中のR、又は一般式(1-1)～(1-3)中のR<sup>5</sup>及びR<sup>6</sup>で示されるアルキルアリーレン基としては、アルキル基部位が前記アルキル基であり、アリーレン基部位が前記アリーレン基である場合が挙げられる。

上記一般式(1)、(1A)又は(1')中のR、又は一般式(1-1)～(1-3)中のR<sup>5</sup>及びR<sup>6</sup>はいずれも好ましくは、炭素数1～10のアルキレン基であり、ジメチレン基、メチル置換ジメチレン基又はトリメチレン基であることがより好ましい。式中のR<sup>6</sup>がトリメチレン基(-CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>-であることが特に好ましい。

## 【0032】

上記一般式(1')中のR、又は一般式(1-1)～(1-3)中のR<sup>7</sup>及びR<sup>8</sup>で示される炭素数6～20のアリーレン基としては、フェニレン基、ナフチレン基等が挙げられる。上記一般式(1')中のR、又は一般式(1-1)～(1-3)中のR<sup>7</sup>及びR<sup>8</sup>で示される炭素数2～10のアルキレン基としては、メチレン基、ジメチレン基、トリメチレン基、メチル置換ジメチレン基、テトラメチレン基(テトラメチレン基は分岐構造を有していてもよい)等が挙げられる。上記一般式(1')中のR、又は一般式(1-1)～(1-3)中のR<sup>7</sup>及びR<sup>8</sup>で示されるアルキルアリーレン基としては、アルキル基部位が前記アルキル基であり、アリーレン基部位が前記アリーレン基である場合が挙げられる。

上記一般式(1')中のR、又は一般式(1-1)～(1-3)中のR<sup>7</sup>及びR<sup>8</sup>はいずれも好ましくは、炭素数1～10のアルキレン基であり、ジメチレン基(-CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-、メチル置換ジメチレン基(-CH<sub>2</sub>CHMe-)、トリメチレン基(-CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>-、及びテトラメチレン基(-CH<sub>2</sub>)<sub>4</sub>-からなる群から選択されるいずれかの構造であることがより好ましい。上記の構造は、ジオールモノマー(a1)との親和性を高め、均一な重合を行う観点から好ましい。

10

20

30

40

50

## 【0033】

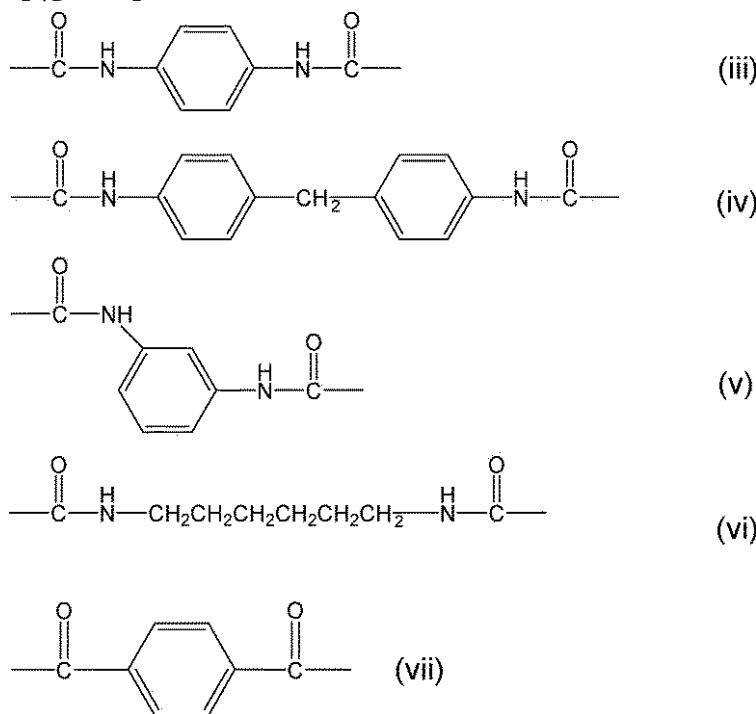
上記一般式(1)、(1A)又は(1')又は一般式(1-1)～(1-3)において、R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>がいずれもメチル基、上記一般式(1)、(1A)又は(1')中のRが、又は一般式(1-1)～(1-3)中のR<sup>5</sup>及びR<sup>6</sup>がいずれもトリメチレン基、上記一般式(1')中のRが、又は一般式(1-1)～(1-3)中のR<sup>7</sup>及びR<sup>8</sup>がいずれもジメチレン基であるポリオルガノシロキサンが特に好ましい。

## 【0034】

一般式(1-1)及び(1-2)中のRは、ジイソシアネート化合物由来の2価の基又はジカルボン酸又はジカルボン酸のハロゲン化物由来の2価の基を示し、例えば、以下の一般式(iii)～(vii)で表される2価の基が挙げられる。

10

## 【化10】



20

## 【0035】

上記一般式(1)、(1A)又は(1')、又は一般式(1-1)～(1-3)において、aはポリオルガノシロキサンの鎖長を示し、2以上500以下、好ましくは2以上300以下、より好ましくは10以上120以下、更に好ましくは15以上100以下、更に好ましくは20以上90以下の整数を示す。aが上記範囲にあると、優れた力学物性を有するポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体を得ることができるとため好ましい。aが例えば、20以上65以下の整数を示す場合には、上記優れた力学物性とともに、透明性にも優れるため、より好ましい。

30

## 【0036】

上記一般式(1')又は一般式(1-1)～(1-3)において、b及びb<sub>1</sub>はそれぞれ独立に好ましくは0以上200以下、より好ましくは2以上100以下、更に好ましくは5以上50以下、更に好ましくは8以上25以下の整数を示す。上記範囲であれば原料の入手容易性のため好ましい。b及びb<sub>1</sub>が100以下であると、ポリオルガノシロキサンの粘度や融点の上昇による取り扱い性の低下を抑えることができるためより好ましく、b及びb<sub>1</sub>が50以下であると、樹脂中のポリオルガノシロキサンブロック含有量を、物性改良効果を維持できる量に保つことができるためより好ましい。

40

上記一般式(1')又は一般式(1-1)～(1-3)において、z及びz<sub>1</sub>はそれぞれ独立に0又は1を示し、好ましくは0である。

## 【0037】

本発明のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体は、上記一般式(2)で

50

表される繰り返し単位からなるポリカーボネートブロック (A-2) を含む。

上記一般式 (2) 中の  $R^{10}$  が示す炭素数 2 ~ 40 の二価の脂肪族炭化水素基としては、例えば、エチレン基、n-プロピレン基、イソプロピレン基、n-ブチレン基、イソブチレン基、n-ペンチレン基、n-ヘキシレン基、n-ヘプチレン基、n-オクチレン基、2-エチルヘキシレン基、n-ノニレン基、n-デシレン基、n-ウンデシレン基、n-ドデシレン基、n-トリデシレン基、n-テトラデシレン基、n-ペントデシレン基、n-ヘキサデシレン基、n-ヘプタデシレン基、n-オクタデシレン基等が挙げられる。炭素数 3 ~ 40 の脂環式炭化水素基としては、例えば、シクロヘキシレン基、シクロヘキシレン基、シクロオクチレン基、シクロデシレン基、シクロテトラデシレン基、アダマンチレン基、ビシクロヘプチレン基、ビシクロデシレン基、トリシクロデシレン基等が挙げられる。  
10

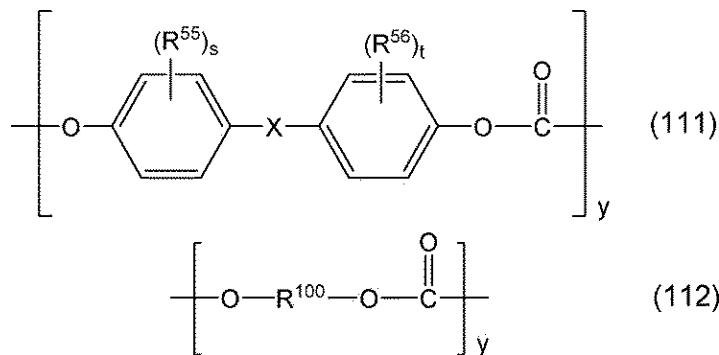
### 【0038】

上記一般式 (2) 中の  $R^{10}$  が示す、炭素数 6 ~ 20 の二価の芳香族炭化水素基としては、様々なものを挙げることができる。特に 2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン(ビスフェノール A)、2,2-ビス(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)プロパン(ビスフェノール C)、1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン(ビスフェノール Z)、1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-3-メチルシクロヘキサン(ビスフェノール 3MZ)、1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサン(ビスフェノール HTG)及び 1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロドデセン等から誘導される二価の芳香族炭化水素基を挙げることができる。この他、ハイドロキノン、レゾルシン及びカテコールからなる群から選択される少なくとも 1 種から誘導される二価の芳香族炭化水素基を挙げることもできる。  
20

### 【0039】

上記一般式 (2) で表される構造を有するポリカーボネートブロック (A-2) は、下記一般式 (111) で表される構造及び下記一般式 (112) で表される構造を有することが、好ましい。

### 【化11】



[式中、 $R^{55}$  及び  $R^{56}$  はそれぞれ独立に、ハロゲン原子、炭素数 1 ~ 6 のアルキル基又は炭素数 1 ~ 6 のアルコキシ基を示す。X は、単結合、炭素数 1 ~ 8 のアルキレン基、炭素数 2 ~ 8 のアルキリデン基、炭素数 5 ~ 15 のシクロアルキレン基、炭素数 5 ~ 15 のシクロアルキリデン基、フルオレンジイル基、炭素数 7 ~ 15 のアリールアルキレン基、炭素数 7 ~ 15 のアリールアルキリデン基、-S-、-SO-、-SO<sub>2</sub>-、-O- 又は -CO- を示す。 $R^{100}$  は炭素数 2 ~ 40 の二価の脂肪族炭化水素基を示し、分岐構造や環状構造を含んでもよい。 $R^{100}$  は酸素原子、窒素原子及び硫黄原子から選ばれる少なくとも 1 つのヘテロ原子、フッ素原子、塩素原子、臭素原子及びヨウ素原子から選ばれる少なくとも 1 つのハロゲン原子を含んでもよい。 $y$  は 10 ~ 500 の整数を示す。 $s$  及び  $t$  はそれぞれ独立して、0 ~ 4 の整数を示す。]  
40

### 【0040】

上記一般式 (111) 中、 $R^{55}$  及び  $R^{56}$  がそれぞれ独立して示すハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、及びヨウ素原子が挙げられる。  
50

$R^{55}$  及び  $R^{56}$  がそれぞれ独立して示すアルキル基としては、メチル基、エチル基、 $n$ -プロピル基、イソプロピル基、各種ブチル基（「各種」とは、直鎖状及びあらゆる分岐鎖状のものを含むことを示し、以下同様である。）、各種ペンチル基、及び各種ヘキシル基が挙げられる。 $R^{55}$  及び  $R^{56}$  がそれぞれ独立して示すアルコキシ基としては、アルキル基部位が前記アルキル基である場合が挙げられる。

#### 【0041】

$X$  が表すアルキレン基としては、例えば、メチレン基、エチレン基、トリメチレン基、テトラメチレン基、ヘキサメチレン基等が挙げられ、炭素数 1 ~ 5 のアルキレン基が好ましい。 $X$  が表すアルキリデン基としては、エチリデン基、イソプロピリデン基等が挙げられる。 $X$  が表すシクロアルキレン基としては、シクロペンタンジイル基やシクロヘキサンジイル基、シクロオクタンジイル基等が挙げられ、炭素数 5 ~ 10 のシクロアルキレン基が好ましい。 $X$  が表すアリーレン基としては、フェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基等が挙げられる。 $X$  が表すシクロアルキリデン基としては、例えば、シクロヘキシリデン基、3,5,5-トリメチルシクロヘキシリデン基、2-アダマンチリデン基等が挙げられ、炭素数 5 ~ 10 のシクロアルキリデン基が好ましく、炭素数 5 ~ 8 のシクロアルキリデン基がより好ましい。 $X$  が表すアリールアルキレン基のアリール部位としては、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントリル基等の環形成炭素数 6 ~ 14 のアリール基が挙げられる。 $X$  が表すアリールアルキリデン基のアリール部位としては、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、アントリル基等の環形成炭素数 6 ~ 14 のアリール基が挙げられる。

10

#### 【0042】

$s$  及び  $t$  は、それぞれ独立に 0 ~ 4 の整数を示し、好ましくは 0 ~ 2、より好ましくは 0 又は 1 である。中でも、 $s$  及び  $t$  が 0 であり、 $X$  が単結合又は炭素数 1 ~ 8 のアルキレン基であるもの、又は  $s$  及び  $t$  が 0 であり、 $X$  がアルキリデン基、特にイソプロピリデン基であるものが好適である。

20

#### 【0043】

$R^{100}$  が示す炭素数 2 ~ 40 の二価の脂肪族炭化水素基は、具体的には、好ましくは炭素数 2 ~ 18、より好ましくは 2 ~ 10、更に好ましくは 3 ~ 6 のアルキレン基、好ましくは炭素数 4 ~ 20、より好ましくは 5 ~ 20 のシクロアルキレン基又は好ましくは炭素数 4 ~ 20、より好ましくは 5 ~ 20 の 2 価の酸素若しくは窒素含有飽和複素環式基である。

30

#### 【0044】

炭素数 2 ~ 18 のアルキレン基としては、例えば、エチレン基、 $n$ -プロピレン基、イソプロピレン基、 $n$ -ブチレン基、イソブチレン基、 $n$ -ペンチレン基、 $n$ -ヘキシレン基、 $n$ -ヘプチレン基、 $n$ -オクチレン基、2-エチルヘキシレン基、 $n$ -ノニレン基、 $n$ -デシレン基、 $n$ -ウンデシレン基、 $n$ -ドデシレン基、 $n$ -トリデシレン基、 $n$ -テトラデシレン基、 $n$ -ペントデシレン基、 $n$ -ヘキサデシレン基、 $n$ -ヘプタデシレン基、 $n$ -オクタデシレン基等が挙げられる。炭素数 4 ~ 20 のシクロアルキレン基としては、例えば、シクロペンチレン基、シクロヘキシレン基、シクロオクチレン基、シクロデシレン基、シクロテトラデシレン基、アダマンチレン基、ビシクロヘプチレン基、ビシクロデシレン基、トリシクロデシレン基等が挙げられる。二価の酸素若しくは窒素含有複素環式基は、上記シクロアルキレン基骨格中に酸素若しくは窒素原子を含有するものを挙げることができる。

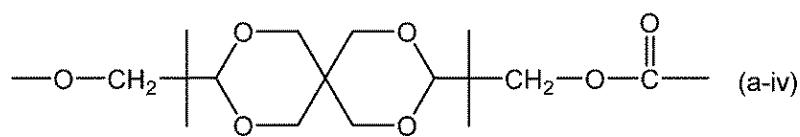
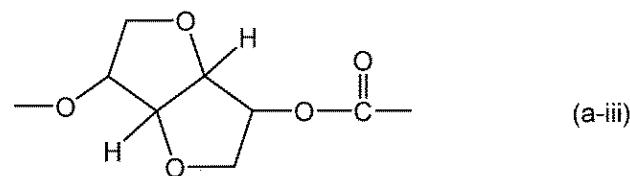
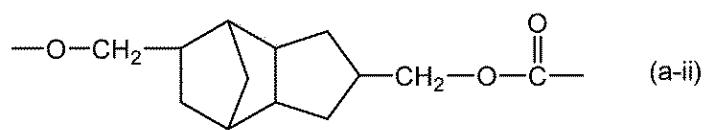
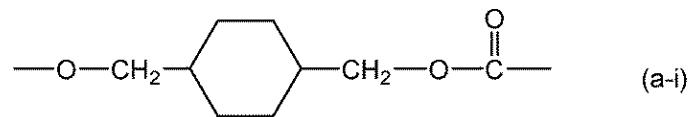
40

#### 【0045】

上記一般式 (2) で表される繰り返し単位からなるポリカーボネートブロック ( $A-2$ ) は、具体的には、下記一般式 ( $a-i$ ) ~ ( $a-x_i i i$ ) で表される繰り返し単位からなる群から選択される少なくとも 1 つを有することが好ましく、下記一般式 ( $a-i$ ) ~ ( $a-v$ ) からなる群から選択される少なくとも 1 つを有することがより好ましく、( $a-i$ )、( $a-i i$ ) 及び ( $a-v$ ) で表される繰り返し単位からなる群より選択される 1 つ以上を有することが、高い透明性の点から更に好ましい。

50

【化 1 2】



10

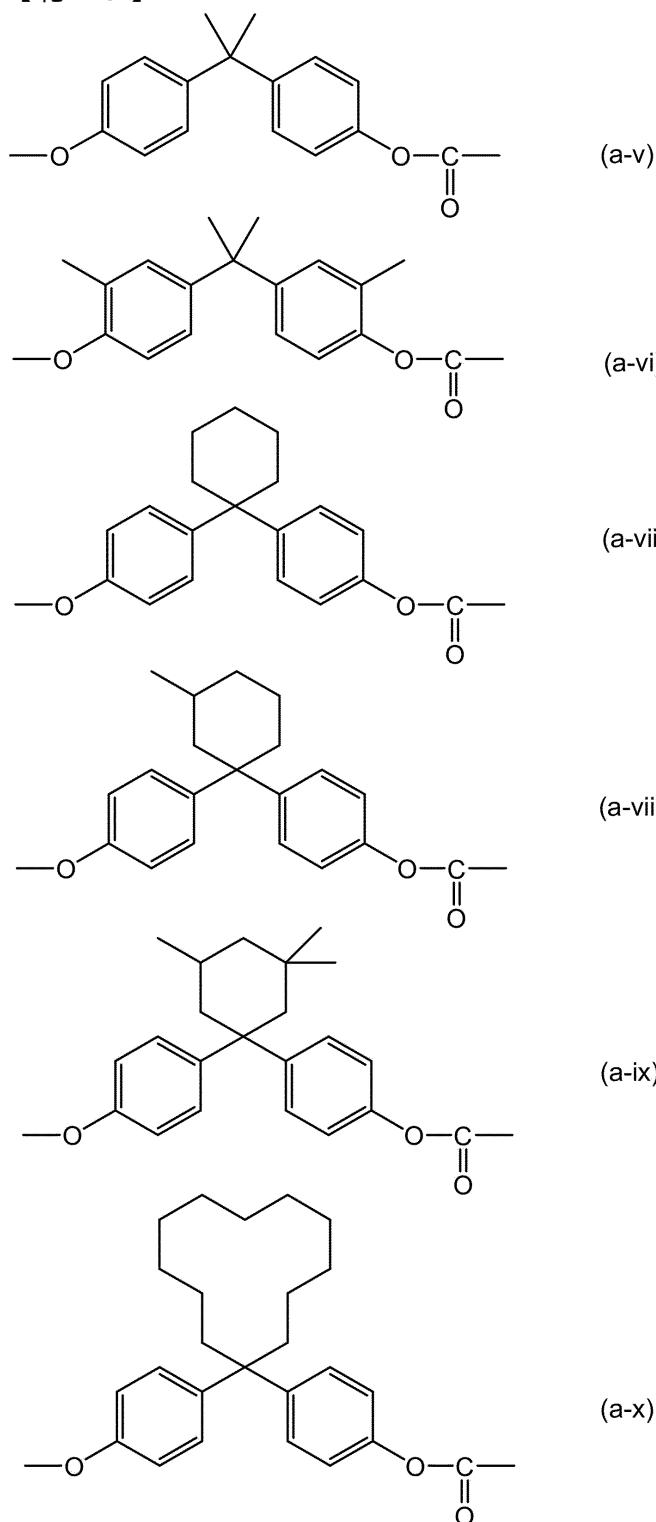
20

30

40

50

【化 1 3】



10

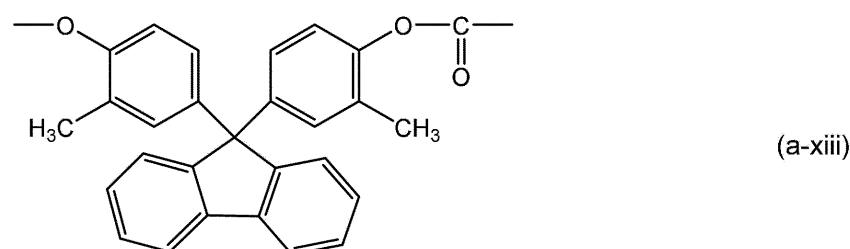
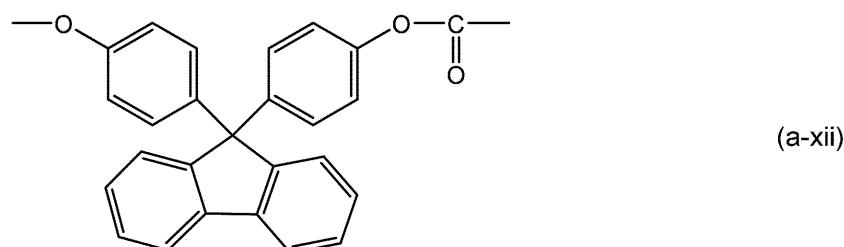
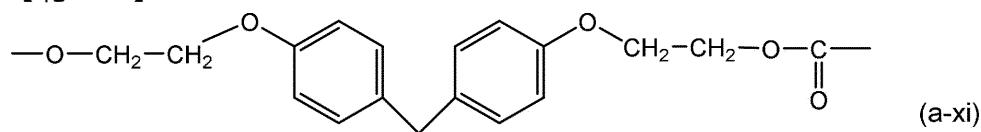
20

30

40

50

## 【化14】



## 【0046】

一般式(2)で表されるポリカーボネートブロック(A-2)は、2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2,2-ビス(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)プロパン、1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-3-メチルシクロヘキサン、1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサン及び1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロドデセンからなる群から選択される芳香族ビスフェノール、又はイソソルビド、シクロヘキサン-1,4-ジメタノール、トリシクロデカンジメタノール、3,9-ビス(1,1-ジメチル-2-ヒドロキシエチル)-2,4,8,10-テトラオキサスピロ[5.5]ウンデカン、1,3-プロパンジオール及び1,4-ブタンジオールからなる群から選択される脂肪族ジオールから誘導される構造単位を含むことが好ましい。

## 【0047】

中でも、一般式(2)で表される繰り返し単位からなるポリカーボネートブロック(A-2)が、下記一般式(a-i)~(a-v)で表される繰り返し単位からなる群より選ばれる一つ以上を有することがより好ましい。

10

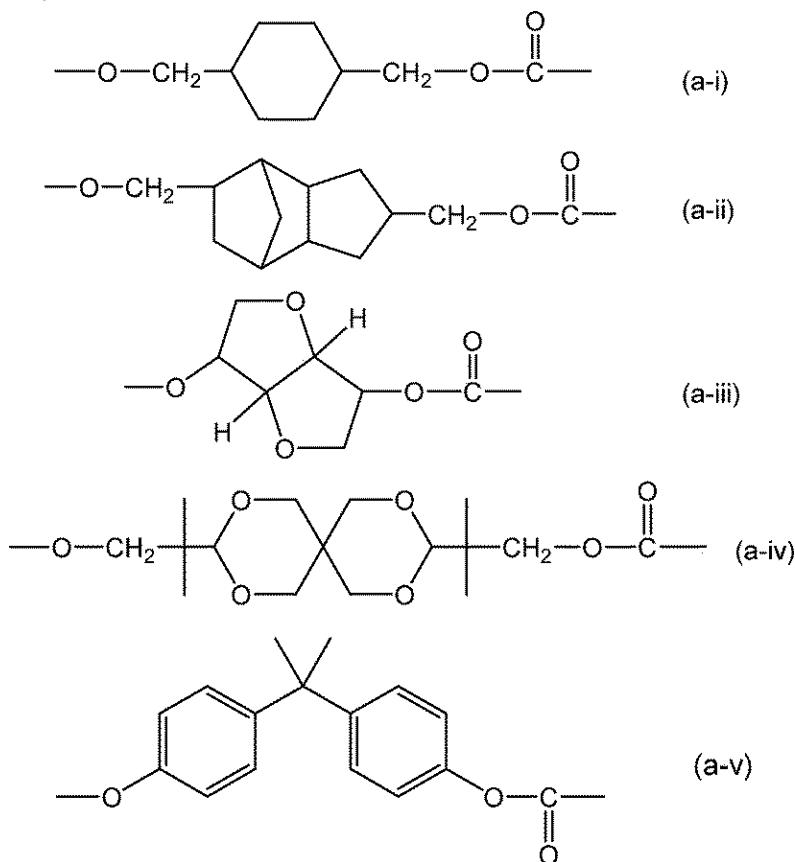
20

30

40

50

## 【化15】



## 【0048】

一般式(2)で表されるポリカーボネートブロック(A-2)の単位数を示す $y$ は、より好ましくは20~200、更に好ましくは40~100である。 $y$ は20以上とすることで共重合体中の低分子量成分の増加を抑制できるため好ましい。 $y$ を40以上とすることで共重合体の韌性が高まるため好ましい。 $y$ を200以下とすることで成形時に適度な流動性が得られるため好ましく、100以下であれば製造時の反応混合物が適度な流動性を有するため、生産性が向上するため好ましい。

## 【0049】

上記ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体における、一般式(1)で示されるポリオルガノシロキサンブロックの含有率は、好ましくは0.1~60質量%、より好ましくは0.5~50質量%、更に好ましくは1~30質量%、更に好ましくは3~20質量%である。

上記ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体中にポリオルガノシロキサンブロックの含有率が上記範囲であれば、より優れた耐衝撃性及び透明性を得ることができる。

## 【0050】

本発明のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体は、上記特定構造を有すると共に、条件(A)又は条件(B)を満たすことを要する。ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体が条件(A)及び条件(B)の双方を満たすことも可能である。

条件(A)又は条件(B)を満たすポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体は、例えば、ジオールモノマーの水酸基に対する親和性が高い置換基である、極性官能基を含む繰り返し連鎖構造を有する置換基をポリオルガノシロキサンの末端に導入することで得られる。

上記繰り返し連鎖構造を有する置換基は、繰り返し連鎖構造を持たない置換基よりも多くのジオールモノマーと接触できるため、強くジオールモノマーと相溶できると推定される。したがって、上記繰り返し連鎖を有する置換基をポリオルガノシロキサンの末端に導

入すると、末端に繰り返し連鎖構造を有する置換基を導入していない場合よりも、ポリオルガノシロキサンとジオールモノマーとの親和性を高める事が出来ると推定される。

【 0 0 5 1 】

< 条件 ( A ) >

本条件は、ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体のヘキサン抽出量が 150 質量 ppm 以下であることを要する。「ヘキサン抽出量が 150 質量 ppm 以下である」とは、ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体製造時の、同一原料同士が結合したホモカップリング成分、未反応原料やオリゴマーがその分子内で反応して生成した環状成分や、未反応のジオールモノマー、未反応の末端変性ポリオルガノシロキサンの存在量が低く、ポリオルガノシロキサンブロックが十分に導入されていることを意味する。

10

【 0 0 5 2 】

条件 ( A ) におけるポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体のヘキサン抽出量は、好ましくは 100 質量 ppm 以下、より好ましくは 80 質量 ppm 以下、更に好ましくは 70 質量 ppm 以下、更に好ましくは 60 質量 ppm 以下である。条件 ( A ) を満たす場合には、上記ヘキサン抽出量の下限は特に限定されないが、合成上の理由から、例えば 10 質量 ppm 以上、一態様においては 20 質量 ppm 以上である。ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を界面重合法により製造した場合には、溶融重合法と比べて比較的ヘキサン抽出量を抑えることができる。理由は、塩化メチレンと水とを溶媒として用いる界面重合法は、無溶媒で行う溶融重合法に比べて、原料やポリマー成長末端をより高効率に接触させることができるのであるため、原料のポリマーへの転化率が高く、ヘキサンで抽出されるような未反応原料や低分子量副生成物が生じにくいからである。しかしながら、溶融重合法を選択した場合には、ヘキサン抽出量を条件 ( A ) とすることは通常困難である。本発明においては、特定構造を有するポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体とすることにより、溶融重合法により共重合体を製造した場合にも、当該条件を満たすことができる態様を有する。

20

上記ヘキサン抽出条件は、実施例にて詳述する。

【 0 0 5 3 】

< 条件 ( B ) >

条件 ( B ) は、ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体をゲル浸透クロマトグラフにより分離して得られるポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体に含まれるポリオルガノシロキサンブロックの平均重量が下式 ( B 1 ) を満たすこととする。

30

【 数 3 】

$$0.3 \leq [\text{POS} - \text{Mh}] / [\text{POS} - \text{M1}] \leq 3 \quad (\text{B1})$$

【 0 0 5 4 】

式 ( B 1 ) 中、 [ P O S - M h ] は、ゲル浸透クロマトグラフを用いて、保持時間範囲 T 1 ~ T 2 に相当する成分を分取して得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体に含まれるポリオルガノシロキサンブロックの平均重量を示す。 [ P O S - M 1 ] は、ゲル浸透クロマトグラフを用いて、保持時間 T 2 ~ T 3 の間を分取して得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体に含まれるポリオルガノシロキサンブロックの平均重量を表す。

40

T 1 : M<sub>w</sub> / M<sub>n</sub> = 1.01, M<sub>w</sub> = 98, 900 の標準ポリスチレンのゲル浸透クロマトグラムにおけるピークトップが位置する保持時間

T 2 : M<sub>w</sub> / M<sub>n</sub> = 1.01, M<sub>w</sub> = 13, 700 の標準ポリスチレンのゲル浸透クロマトグラムにおけるピークトップが位置する保持時間

T 3 : M<sub>w</sub> / M<sub>n</sub> = 1.03, M<sub>w</sub> = 3, 120 の標準ポリスチレンのゲル浸透クロマトグラムにおけるピークトップが位置する保持時間

【 0 0 5 5 】

50

ゲル浸透クロマトグラフ ( G P C ) による測定は、具体的には、実施例に記載の条件で行うことができる。 [ P O S - M h ] / [ P O S - M l ] 値が上記式 ( B 1 ) の範囲外である場合は、シロキサンが均一にポリマー主鎖に取り込まれていないことを示す。上記 [ P O S - M h ] / [ P O S - M l ] の下限値は、好ましくは 0 . 3 5 以上、より好ましくは 0 . 5 以上、更に好ましくは 0 . 8 以上であり、上限値は好ましくは 2 . 8 以下、より好ましくは 2 以下、更に好ましくは 1 . 4 以下、更に好ましくは 1 . 2 5 以下、特に好ましくは 1 . 2 以下である。

#### 【 0 0 5 6 】

本発明のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体の粘度平均分子量は、 5 , 0 0 0 以上 5 0 , 0 0 0 以下であることが好ましく、より好ましくは 1 2 , 0 0 0 以上 10 、更に好ましくは 1 4 , 0 0 0 以上、特に好ましくは 1 6 , 0 0 0 以上であり、より好ましくは 3 0 , 0 0 0 以下、更に好ましくは 2 3 , 0 0 0 以下、特に好ましくは 2 1 , 0 0 0 以下である。

粘度平均分子量 ( M v ) は、 2 0 における塩化メチレン溶液 ( 濃度 : g / L ) の極限粘度 [ ] を測定し、下記 Schnell の式から算出した値である。

$$[ ] = 1 . 2 3 \times 1 0 ^ { - 5 } M v ^ { 0 . 8 3 }$$

#### 【 0 0 5 7 】

本発明のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体の屈折率は特に限定されないが、例えば波長 5 8 9 . 3 nm の光に対して 1 . 4 3 0 以上 1 . 5 9 0 以下であることが好ましく、 1 . 4 5 0 以上 1 . 5 7 0 以下であることがより好ましく、 1 . 4 7 0 以上 20 1 . 5 5 0 以下であることが更に好ましい。

ポリカーボネート樹脂の波長 4 8 6 . 1 nm の光に対する屈折率 ( n F ) と波長 6 5 6 . 3 nm の光に対する屈折率 ( n C ) との差 ( n F - n C ) は、好ましくは 0 . 0 1 5 以下、より好ましくは 0 . 0 1 3 以下、更に好ましくは 0 . 0 1 1 以下である。

#### 【 0 0 5 8 】

< ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体の製造方法 >

本発明のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体は、ジオールモノマー ( a 1 ) 及びポリオルガノシロキサン ( a 2 ) を原料モノマーとして用いることにより、製造することができる。

#### 【 0 0 5 9 】

< < ディオールモノマー ( a 1 ) > >

上記ジオールモノマー ( a 1 ) は、下記一般式 ( a 1 ) で示される構造を有するものであれば特に限定されない。ジオールモノマー ( a 1 ) として、芳香族ジヒドロキシ化合物又は脂肪族ジヒドロキシ化合物を用いることができる。

#### 【 化 1 6 】



上記一般式 ( a 1 ) における R <sup>10</sup> は上記した通りであり、好ましいものも同様である。

#### 【 0 0 6 0 】

脂肪族ジヒドロキシ化合物としては、例えば、エチレングリコール、 1 , 3 - プロパンジオール、 1 , 2 - プロパンジオール、 1 , 4 - ブタンジオール、 1 , 5 - ペンタンジオール、 1 , 6 - ヘキサンジオール、 1 , 7 - ヘプタンジオール、 1 , 8 - オクタンジオール、 1 , 1 0 - デカンジオール、 2 , 2 - ジメチルプロパン - 1 , 3 - ジオール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、オクタエチレングリコール、ジプロピレングリコール、 N - メチルジエタノールアミン、 p - キシリレングリコール等の鎖式脂肪族炭化水素基を有するジヒドロキシ化合物； 1 , 2 - シクロヘキサンジオール、 1 , 3 - シクロヘキサンジオール、 1 , 4 - シクロヘキサンジオール、 1 , 2 - シクロヘキサンジメタノール、 1 , 3 - シクロヘキサンジメタノール、 1 , 4 - シクロヘキサンジメタノール、 2 , 6 - デカリンジオール、 1 , 5 - デカリンジオール、 2 , 3 - デカリンジオール、 2 , 6 - デカリンジメタノール、 1 , 5 - デカリンジメタノー

10

20

30

40

50

ル、2,3-デカルンジメタノール、2,3-ノルボルナンジオール、2,5-ノルボルナンジオール、2,3-ノルボルナンジメタノール、2,5-ノルボルナンジメタノール、2,2-ビス(4-ヒドロキシシクロヘキシル)-プロパン、1,3-アダマンタンジオール、1,3-アダマンタンジメタノール、トリシクロデカンジメタノール等の脂環式炭化水素基を有するジヒドロキシ化合物；イソソルビド等の縮合多環式エーテルジオール、3,9-ビス(2-ヒドロキシエチル)-2,4,8,10-テトラオキサスピロ[5.5]ウンデカン、3,9-ビス(2-ヒドロキシ-1,1-ジメチルエチル)-2,4,8,10-テトラオキサスピロ[5.5]ウンデカン、3,9-ビス(2-ヒドロキシ-1,1-ジプロピルエチル)-2,4,8,10-テトラオキサスピロ[5.5]ウンデカン、1,4-アンヒドロエリスリトール等の環状エーテルジオール等のヘテロ環スピロ化合物；2-(5-エチル-5-ヒドロキシメチル-1,3-ジオキサン-2-イル)-2-メチルプロパン-1-オール等の環状アセタールジオール；3,4-ピロリジンジオール、3,4-ジメチルピペリジンジオール、N-エチル-3,4-ピペリジンジオール、N-エチル-3,5-ピペリジンジオール等のN-ヘテロ環状ジオール；デオキシチオフルクトース等のS-ヘテロ環状ジオール等が挙げられる。  
10

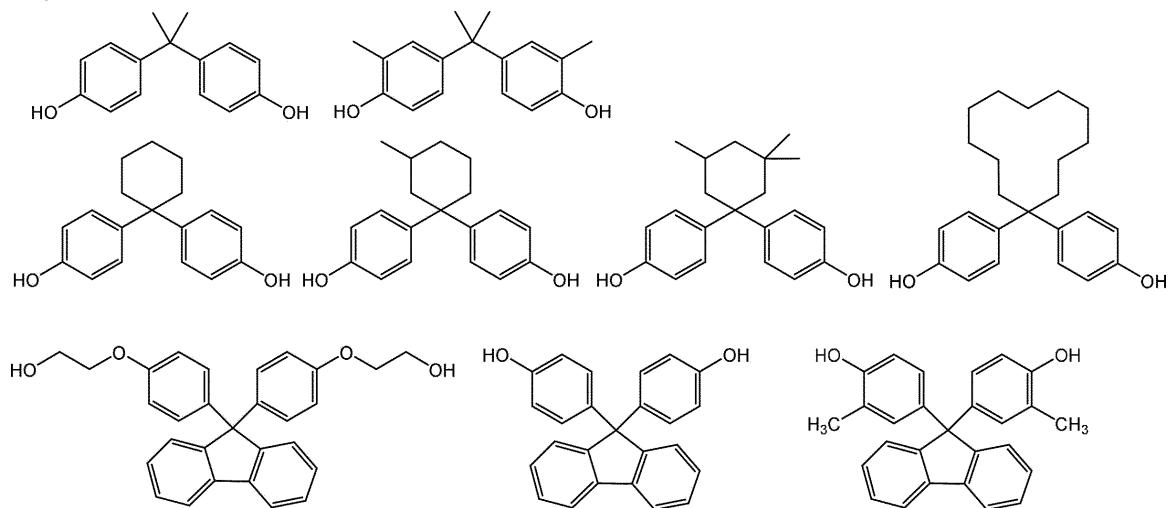
## 【0061】

脂肪族ジヒドロキシ化合物としては、具体的には、イソソルビド、シクロヘキサン-1,4-ジメタノール、トリシクロデカンジメタノール、3,9-ビス(2-ヒドロキシ-1,1-ジメチルエチル)-2,4,8,10-テトラオキサスピロ[5.5]ウンデカン、1,3-プロパンジオール及び1,4-ブタンジオールから選択される脂肪族ジオールを特に好ましくは挙げることができる。  
20

## 【0062】

芳香族ジヒドロキシ化合物としては、芳香族ビスフェノール化合物を挙げることができる。具体的には、ビスフェノールA、ビスフェノールC、ビスフェノールZ、及び下記一般式で示される化合物から選択される芳香族ビスフェノールを特に好ましくは挙げることができる。

## 【化17】



## 【0063】

具体的には、ビスフェノールA(2,2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン)、ビスフェノールC(2,2-ビス(4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル)プロパン)、ビスフェノールZ(1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン)、ビスフェノール3MZ(1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-3-メチルシクロヘキサン)、ビスフェノールHTG(1,1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-3,3,5-トリメチルシクロヘキサン)、ビスフェノール-CDE(1,1-ビス(4-ヒドロキシ  
30

10

20

30

40

50

フェニル)シクロドデセン)を用いることがより好ましい。

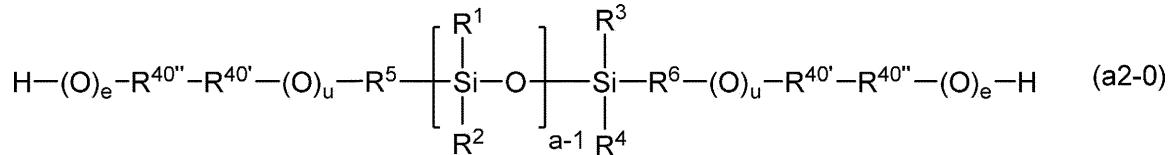
中でも、ジオールモノマー(a1)として脂肪族ジオールを用いると、得られるポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体の高い透明性を得ることができるため好ましい。

【0064】

<<ポリオルガノシロキサン(a2)>>

ポリオルガノシロキサン(a2)は、下記一般式(a2-0)で示される構造を有することが好ましい。

【化18】



[式中、R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>は同一か又は異なっていてもよく、それぞれ独立して、水素原子、ハロゲン原子、炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数6～12のアリール基又はアルキル基部位の炭素数が1～10であるアルキルアリール基を示す。R<sup>5</sup>及びR<sup>6</sup>は同一か又は異なっていてもよく、それぞれ互いに独立して、炭素数6～20のアリーレン基、炭素数1～10のアルキレン基又はアルキル基部位の炭素数が1～10であるアルキルアリーレン基を示し、官能基として、-O-、-COO-、-CO-、-S-、-NH-、-NR<sup>111</sup>-を含んでよい。R<sup>111</sup>は炭素数1～10のアルキル基又は炭素数6～10のアリール基を示す。aは2～500の整数を示す。]

R<sup>40</sup>は炭素数2～380の二価の脂肪族炭化水素基、炭素数3～380の二価の脂環式炭化水素基、又は炭素数6～380の二価の芳香族炭化水素基を示し、置換基によって置換されていてもよい。上記二価の脂肪族炭化水素基、上記二価の脂環式炭化水素基又は上記二価の芳香族炭化水素基は、酸素原子、窒素原子及び硫黄原子から選ばれる少なくとも1つのヘテロ原子、フッ素原子、塩素原子、臭素原子及びヨウ素原子から選ばれる少なくとも1つのハロゲン原子を含んでもよい。R<sup>40'</sup>は炭素数1～20の二価の脂肪族炭化水素基、炭素数3～20の二価の脂環式炭化水素基又は炭素数6～20の二価の芳香族炭化水素基を示し、置換基によって置換されていてもよい。e及びuは0又は1を示す。]

【0065】

R<sup>40</sup>として、炭素数1～20の二価の脂肪族炭化水素基、炭素数3～20の二価の脂環式炭化水素基又は炭素数6～20の二価の芳香族炭化水素基から選ばれる少なくとも1つの炭化水素基と、酸素原子、窒素原子及び硫黄原子からなる群から選択される少なくとも1つのヘテロ原子とを含む構造が少なくとも2個連結した繰返し連鎖構造を含むことが好ましい。繰返し連鎖構造としては、ポリエーテル、ポリアセタール、ポリラクトン、ポリアクリレート、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリケトン、ポリスルフィド、ポリスルホン、ポリアミド又はポリイミド等を好ましい構造として挙げることが出来る。

中でもポリエーテル、ポリアクリレート、及びポリカーボネートからなる群から選択される少なくとも1つが好ましく、ポリエーテルが最も好ましい。ポリエーテルとしては、ポリアルキレンエーテルが好ましく、中でもポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリトリメチレングリコール、ポリテトラメチレングリコールが好ましい。上記の構造は、ジオールモノマー(a1)との親和性を高め、均一な重合を行う観点から好ましい。

【0066】

ポリオルガノシロキサン(a2)としては、下記一般式(a2-1)～(a2-3)で示されるいずれかの構造を有するモノマーを用いることができる。

10

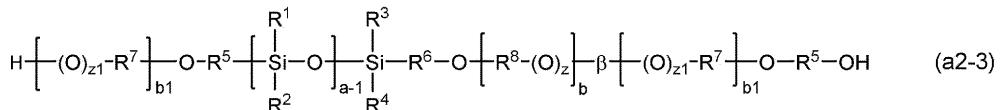
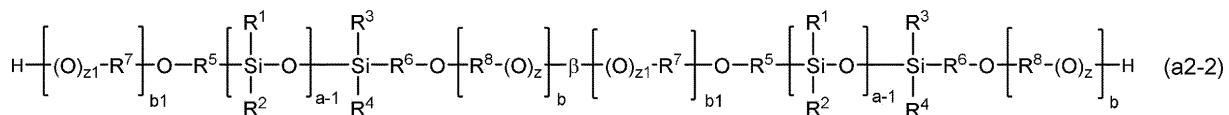
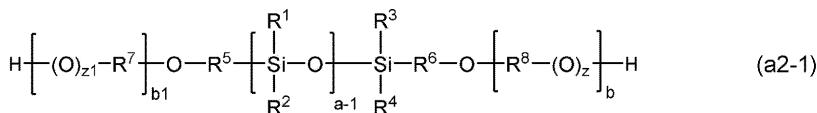
20

30

40

50

## 【化19】



10

## 【0067】

上記式中、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^4$ 、 $\text{R}^5$ 及び $\text{R}^6$ 、 $\text{R}^7$ 及び $\text{R}^8$ 、 $z$ 、 $z_1$ 、 $a$ 、 $b$ 並びに $b_1$ は上記した通りである。好ましいものも同様であり、好ましいものの組み合わせは同様に好ましい。

上記一般式 (a2-0) 及び (a2-1) ~ (a2-3) において、 $a$ はポリオルガノシロキサンの鎖長を示し、ジオールモノマー (a1) との親和性を高め、均一な重合を行う観点から、2以上500以下、好ましくは2以上300以下、より好ましくは10以上100以下、更に好ましくは15以上70以下、更に好ましくは20以上65以下の整数を示す。

20

上記一般式 (a2-1) ~ (a2-3) において、 $b$ は2以上200以下、好ましくは2以上100以下、より好ましくは5以上50以下、更に好ましくは8以上25以下の整数を示す。ジオールモノマー (a1) との親和性を高め、均一な重合を行う観点から、上記範囲であることが好ましい。

## 【0068】

本発明のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体は、界面重合法又は溶融重合法（エステル交換法）により原料モノマーを重合させることにより製造することができる。界面重合法により製造する場合には、例えば、特開2014-80462号公報等に記載の方法を参照することができる。本発明のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体は、好ましくは末端停止剤の存在下に、原料モノマーであるポリオルガノシロキサン (a2) と、ジオールモノマー (a1) と、炭酸エステル化合物とを塩基性触媒下で溶融重合法により反応させることにより、ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を製造することができる。

30

## 【0069】

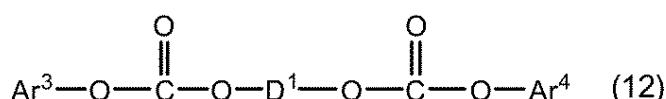
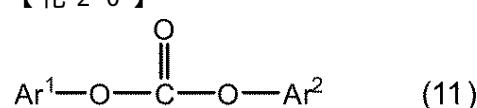
## (炭酸ジエステル)

炭酸ジエステルとしては、炭酸ジアリール化合物、炭酸ジアルキル化合物及び炭酸アルキルアリール化合物から選択される少なくとも1種の化合物である。

炭酸ジアリール化合物は、下記一般式 (11) で表される化合物、又は下記一般式 (12) で表される化合物である。

40

## 【化20】



[式 (11) 中、 $\text{Ar}^1$ 及び $\text{Ar}^2$ はそれぞれアリール基を示し、互いに同一でも異なっていてもよい。式 (12) 中、 $\text{Ar}^3$ 及び $\text{Ar}^4$ はそれぞれアリール基を示し、互いに同一で

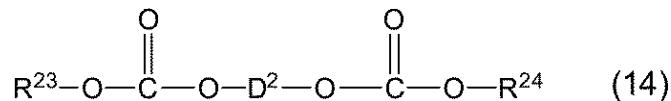
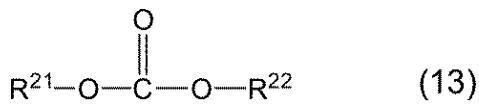
50

も異なっていてもよく、D<sup>1</sup>は前記芳香族ジヒドロキシ化合物又は脂肪族ジヒドロキシ化合物から水酸基2個を除いた残基を示す。】

【0070】

炭酸ジアルキル化合物は、下記一般式(13)で表される化合物又は下記一般式(14)で表される化合物である。

【化21】



10

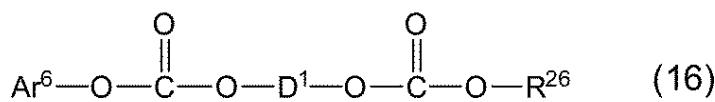
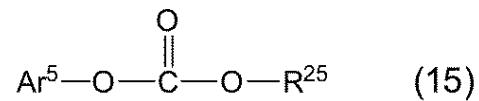
【式(13)中、R<sup>21</sup>及びR<sup>22</sup>はそれぞれ炭素数1～20のアルキル基又は炭素数4～20のシクロアルキル基を示し、互いに同一でも異なっていてもよい。式(14)中、R<sup>23</sup>及びR<sup>24</sup>はそれぞれ炭素数1～20のアルキル基又は炭素数4～20のシクロアルキル基を示し、それらはたがいに同一でも異なっていてもよく、D<sup>2</sup>は前記芳香族ジヒドロキシ化合物又は脂肪族ジヒドロキシ化合物から水酸基2個を除いた残基を示す。】

【0071】

炭酸アルキルアリール化合物は、下記一般式(15)で表される化合物又は下記一般式(16)で表される化合物である。

20

【化22】



30

【式(15)中、Ar<sup>5</sup>はアリール基、R<sup>25</sup>は炭素数1～20のアルキル基又は炭素数4～20のシクロアルキル基を示す。式(16)中、Ar<sup>6</sup>はアリール基、R<sup>26</sup>は炭素数1～20のアルキル基又は炭素数4～20のシクロアルキル基、D<sup>1</sup>は前記芳香族ジヒドロキシ化合物又は脂肪族ジヒドロキシ化合物から水酸基2個を除いた残基を示す。】

【0072】

炭酸ジアリール化合物としては、例えば、ジフェニルカーボネート、ジトリルカーボネート、ビス(クロロフェニル)カーボネート、ビス(m-クレジル)カーボネート、ジナフチルカーボネート、ビス(ジフェニル)カーボネート、ビスフェノールAビスフェニルカーボネート等が挙げられる。

炭酸ジアルキル化合物としては、例えば、ジエチルカーボネート、ジメチルカーボネート、ジブチルカーボネート、ジシクロヘキシルカーボネート、ビスフェノールAビスマチルカーボネート等が挙げられる。

40

炭酸アルキルアリール化合物としては、例えば、メチルフェニルカーボネート、エチルフェニルカーボネート、ブチルフェニルカーボネート、シクロヘキシルフェニルカーボネート、ビスフェノールAメチルフェニルカーボネート等が挙げられる。

本発明のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体の製造に際して、炭酸ジエステルとしては、上記の化合物1種又は2種以上を適宜選択して用いることができるが、これらの中では、ジフェニルカーボネートを用いるのが好ましい。

【0073】

(末端停止剤)

本発明のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体の製造に際しては、必要

50

に応じて末端停止剤を用いることができる。末端停止剤としては、ポリカーボネート樹脂の製造における公知の末端停止剤を用いればよく、例えば、その具体的な化合物としては、フェノール、p-クレゾール、p-tert-ブチルフェノール、p-tert-オクチルフェノール、p-クミルフェノール、p-ノニルフェノール、及びp-tert-アミルフェノール等を挙げることができる。これらの一価フェノールはそれぞれ単独で用いてもよいし、二種以上を組み合わせて用いてもよい。

【0074】

(分岐剤)

本発明のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体の製造に際しては、分岐剤を用いることもできる。分岐剤としては、例えばフロログルシン；トリメリット酸；1,1,1-トリス(4-ヒドロキシフェニル)エタン；1-[1-メチル-1-(4'-ヒドロキシフェニル)エチル]-4-[1',1'-ビス(4"-ヒドロキシフェニル)エチル]ベンゼン；1,1,1-トリス(4-ヒドロキシフェニル)-1,3,5-トリイソプロピルベンゼン；イサチニビス(0-クレゾール)等が挙げられる。

【0075】

具体的には、例えば以下の手順により、溶融重合法にて本発明のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体を製造することができる。

ジオールモノマー(a1)と、ポリオルガノシロキサン(a2)と、炭酸エステル化合物とをエステル交換反応させる。ジオールモノマーに対して炭酸エステル化合物は、好ましくは0.9~1.2倍モルであることが好ましく、より好ましくは0.98~1.02倍モルである。

【0076】

上記のエステル交換反応に当たって、末端停止剤の存在量が、ジオールモノマー(a1)及びポリオルガノシロキサン(a2)に対して、0.05~1.0モル%の範囲にあると、得られるポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体の水酸基末端が封止されるため、耐熱性及び耐水性に充分優れたポリカーボネート樹脂が得られるため好ましい。ジオールモノマー(a1)及びポリオルガノシロキサン(a2)に対する末端停止剤の存在量は、より好ましくは1~6モル%である。末端停止剤は、予め反応系に全量添加してもよい、また予め反応系に一部添加しておき、反応の進行に伴って残部を添加してもよい。

ジオールモノマー(a1)、ポリオルガノシロキサン(a2)、及び炭酸エステル化合物とともに、酸化防止剤を同時に反応器に投入し、酸化防止剤存在下でエステル交換反応を行うことが好ましい。

【0077】

エステル交換反応を行うに当たって反応温度は、特に制限はなく、通常100~330の範囲、好ましくは180~300の範囲、より好ましくは200~240の範囲で選ばれるが、反応の進行に合わせて次第に180~300まで温度を上げていく方法が特に好ましい。このエステル交換反応の温度が100以上であれば、反応速度が速くなり、一方、330以下であれば、副反応が生じることなく、生成するポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体が着色する等の問題が生じにくい。

【0078】

反応圧力は、使用するモノマーの蒸気圧や反応温度に応じて設定される。反応が効率良く行われるように設定されれば、特に限定されない。通常、反応初期においては、1~50atm(760~38,000torr)までの大気圧(常圧)又は加圧状態にし、反応後期においては、減圧状態、好ましくは最終的には1.33~1.33×10<sup>4</sup>Pa(0.01~100torr)とする場合が多い。

反応時間は、目標の分子量となるまで行えばよく、通常、0.2~1.0時間程度である。

【0079】

上記のエステル交換反応は、通常不活性溶剤の不存在下で行われるが、必要に応じて、得られるポリカーボネート樹脂100質量部に対して、1~150質量部の不活性溶剤の

10

20

30

40

50

存在下において行ってもよい。不活性溶剤としては、例えば、ジフェニルエーテル、ハロゲン化ジフェニルエーテル、ベンゾフェノン、ポリフェニルエーテル、ジクロロベンゼン、メチルナフタレン等の芳香族化合物；トリシクロ[5.2.1.0<sup>2,6</sup>]デカン、シクロオクタン、シクロデカン等のシクロアルカン等が挙げられる。

必要に応じて不活性ガス雰囲気下で行ってもよく、不活性ガスとしては、例えばアルゴン、二酸化炭素、一酸化二窒素、窒素等のガス、クロロフルオロ炭化水素、エタンやプロパン等のアルカン、エチレンやプロピレン等のアルケン等、各種のものが挙げられる。

#### 【0080】

溶融重合法においては、触媒として塩基性触媒を用いることが好ましい。塩基性触媒としては、アルカリ金属化合物、アルカリ土類金属化合物等の金属触媒、含窒素化合物、アリール基を含む4級ホスホニウム塩等の有機系触媒及び金属化合物からなる群から選択される少なくとも1種を挙げることができる。これらの化合物は単独もしくは組み合わせて用いることができる。

塩基性触媒としては、アルカリ金属又はアルカリ土類金属の、有機酸塩、無機塩、酸化物、水酸化物、水素化物、及びアルコキシド；4級アンモニウムヒドロキシド；アリール基を含む4級ホスホニウム塩等が好ましく用いられる。塩基性触媒は1種単独で又は2種以上を組み合わせて用いることができる。

#### 【0081】

アルカリ金属化合物としては、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化セシウム、水酸化リチウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸セシウム、炭酸リチウム、酢酸ナトリウム、酢酸カリウム、酢酸セシウム、酢酸リチウム、ステアリン酸ナトリウム、ステアリン酸カリウム、ステアリン酸セシウム、ステアリン酸リチウム、水素化ホウ素ナトリウム、安息香酸ナトリウム、安息香酸カリウム、安息香酸セシウム、安息香酸リチウム、リン酸水素二ナトリウム、リン酸水素二カリウム、リン酸水素二リチウム、フェニルリン酸二ナトリウム、ビスフェノールAの二ナトリウム塩、二カリウム塩、二セシウム塩、二リチウム塩、フェノールのナトリウム塩、カリウム塩、セシウム塩、リチウム塩等が挙げられる。

アルカリ土類金属化合物としては、水酸化マグネシウム、水酸化カルシウム、水酸化ストロンチウム、水酸化バリウム、炭酸マグネシウム、炭酸カルシウム、炭酸ストロンチウム、炭酸バリウム、二酢酸マグネシウム、二酢酸カルシウム、二酢酸ストロンチウム、二酢酸バリウム等が挙げられる。

#### 【0082】

含窒素化合物としては、テトラメチルアンモニウムヒドロキシド、テトラエチルアンモニウムヒドロキシド、テトラプロピルアンモニウムヒドロキシド、テトラブチルアンモニウムヒドロキシド、トリメチルベンジルアンモニウムヒドロキシド等のアルキル、アリール基等を有する4級アンモニウムヒドロキシド類が挙げられる。また、トリエチルアミン、ジメチルベンジルアミン、トリフェニルアミン等の3級アミン類、2-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、ベンゾイミダゾール等のイミダゾール類が挙げられる。さらに、アンモニア、テトラメチルアンモニウムボロハイドライド、テトラブチルアンモニウムボロハイドライド、テトラブチルアンモニウムテトラフェニルボレート、テトラフェニルアンモニウムテトラフェニルボレート等の塩基あるいは塩基性塩等が挙げられる。

#### 【0083】

金属化合物としては亜鉛アルミニウム化合物、ゲルマニウム化合物、有機スズ化合物、アンチモン化合物、マンガン化合物、チタン化合物、ジルコニウム化合物等が挙げられる。

#### 【0084】

アリール基を含む4級ホスホニウム塩の具体例としては、例えばテトラフェニルホスホニウムヒドロキシド、テトラナフチルホスホニウムヒドロキシド、テトラ(クロロフェニル)ホスホニウムヒドロキシド、テトラ(ビフェニル)ホスホニウムヒドロキシド、テトラトリルホスホニウムヒドロキシド、テトラメチルホスホニウムヒドロキシド、テトラエチルホスホニウムヒドロキシド、テトラブチルホスホニウムヒドロキシド等のテトラ(ア

10

20

30

40

50

リール又はアルキル)ホスホニウムヒドロキシド類、テトラメチルホスホニウムテトラフェニルボレート、テトラフェニルホスホニウムプロミド、テトラフェニルホスホニウムフェノラート、テトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート、メチルトリフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート、ベンジルトリフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート、ビフェニルトリフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート、テトラトリルホスホニウムテトラフェニルボレート、テトラフェニルホスホニウムフェノラート、テトラ( p - t - ブチルフェニル)ホスホニウムジフェニルホスフェート、トリフェニルブチルホスホニウムフェノラート、トリフェニルブチルホスホニウムテトラフェニルボレート等が挙げられる。

アリール基を含む4級ホスホニウム塩は、含窒素有機塩基性化合物と組合せることが好ましく、例えばテトラメチルアンモニウムヒドロキシドとテトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボレートとの組合せが好ましい。

#### 【0085】

塩基性触媒の使用量は、ジオールモノマー1モルに対し、好ましくは $1 \times 10^{-9} \sim 1 \times 10^{-2}$ モル、好ましくは $1 \times 10^{-8} \sim 1 \times 10^{-2}$ モル、より好ましくは $1 \times 10^{-7} \sim 1 \times 10^{-3}$ モルの範囲で選ぶことができる。

#### 【0086】

反応後期に触媒失活剤を添加することもできる。使用する触媒失活剤としては、公知の触媒失活剤が有効に使用されるが、この中でもスルホン酸のアンモニウム塩、ホスホニウム塩が好ましい。更にドデシルベンゼンスルホン酸テトラブチルホスホニウム塩等のドデシルベンゼンスルホン酸の塩類、p - トルエンスルホン酸テトラブチルアンモニウム塩等のp - トルエンスルホン酸の塩類が好ましい。

#### 【0087】

スルホン酸のエステルとして、ベンゼンスルホン酸メチル、ベンゼンスルホン酸エチル、ベンゼンスルホン酸ブチル、ベンゼンスルホン酸オクチル、ベンゼンスルホン酸フェニル、p - トルエンスルホン酸メチル、p - トルエンスルホン酸エチル、p - トルエンスルホン酸ブチル、p - トルエンスルホン酸オクチル、p - トルエンスルホン酸フェニル等も好ましく用いられる。中でも、ドデシルベンゼンスルホン酸テトラブチルホスホニウム塩又はp - トルエンスルホン酸ブチルが最も好ましく使用される。

#### 【0088】

触媒失活剤の使用量はアルカリ金属化合物及びアルカリ土類金属化合物から選ばれた少なくとも1種の重合触媒を用いた場合、その触媒1モル当たり好ましくは0.5~5.0モルの割合で、より好ましくは0.5~1.0モルの割合で、更に好ましくは0.8~5モルの割合で使用することができる。

触媒失活剤を添加し、重合反応を終了させた後に酸化防止剤を混合することが好ましい。

#### 【0089】

溶融重合法における反応は、連続式、及びバッチ式のいずれで行ってもよい。溶融重合に用いられる反応装置は、アンカー型攪拌翼、マックスブレンド攪拌翼、もしくはヘリカルリボン型攪拌翼等を装備した縦型反応装置、又はパドル翼、格子翼、もしくはメガネ翼等を装備した横型反応装置のいずれでもよい。更にスクリューを装備した押出機型であってもよい。連続式の場合は、かかる反応装置を適宜組み合わせて使用することが好ましい。

#### 【0090】

本発明のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体は、以下の条件を満たす原料を用いて製造されることが好ましい。

条件(i)：原料ジオールモノマー(a1)、原料ポリオルガノシロキサン(a2)、炭酸ジエステル及び塩基性触媒を、100~250にて、0.5~5時間接触させて得られる混合物の、23及び光路長10mmの条件下、ISO 14782:1999に準拠して測定されるヘイズ値が30以下である。

#### 【0091】

上記ヘイズ値は、上記混合物を充填した光路長10mmのガラスセルをISO 147

10

20

30

40

50

82:1999に準拠し、23においてヘイズ測定装置で測定された値である。なお、上記原料混合物のヘイズ値測定条件は、重合条件とは異なり、単に原料選択の際に用いる条件である。

【0092】

上記加熱処理後の原料混合物のヘイズ値が上記範囲内であれば、得られるポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体が高い透明性を有するため好ましい。

上記加熱処理後の原料混合物のヘイズ値は、より好ましくは20以下、更に好ましくは10以下、更に好ましくは5以下、更に好ましくは1以下である。

ヘイズ値を測定するための混合物を得るための条件は、上記(i)に記載した通りである。さらに条件(i)のうちの温度条件は、好ましくは150~250、より好ましくは180~250であり、接触時間は好ましくは0.7~4時間、より好ましくは0.7~2時間である。条件(i)において、温度条件と、接触時間が上記好適範囲内であり、得られる混合物が条件(i)に規定するヘイズ値を有する場合に、より高い透明性を有するポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体を得ることができる。

【0093】

<ポリカーボネート系樹脂組成物>

本発明のポリカーボネート系樹脂組成物は、上述したポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体(ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体(A))を含む。

本発明のポリカーボネート系樹脂組成物には、上記ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体(A)が有する特性を損なわない範囲で、周知の添加剤を用いることができる。

【0094】

(添加剤)

本発明のポリカーボネート系樹脂組成物には、用途や必要に応じて公知の添加剤を配合することができる。添加剤としては、例えば、各種フィラー、酸化防止剤、熱安定剤、可塑剤、光安定剤、重合金属不活性化剤、難燃剤、滑剤、帯電防止剤、界面活性剤、抗菌剤、紫外線吸収剤、離型剤等が挙げられる。

酸化防止剤は、熱可塑性樹脂組成物の製造時や成形時の樹脂の分解を抑制することができる。

【0095】

[フィラー]

本発明のポリカーボネート樹脂組成物に配合することができるフィラーとしては、無機フィラー、例えば球状フィラー、板状フィラー、纖維状フィラー等が挙げられる。

球状フィラーとしては、例えば、炭酸カルシウム、カオリン(ケイ酸アルミニウム)、シリカ、パーライト、シラスバルーン、セリサイト、ケイソウ土、亜硫酸カルシウム、焼成アルミナ、ケイ酸カルシウム、結晶ゼオライト、非晶質ゼオライト等が挙げられる。

板状フィラーとしては、例えば、タルク、マイカ、ワラストナイト等が挙げられる。

纖維状フィラーとしては、例えば、ガラス纖維、カーボン纖維、ワラストナイトのような針状のもの、マグネシウムオキシカルファイト、チタン酸カリウム纖維、纖維状炭酸カルシウムのような纖維状のもの等が挙げられる。上記無機フィラーが、ガラス纖維又は炭素纖維であることが好ましい。

【0096】

ガラス纖維としては、含アルカリガラス、低アルカリガラス、及び無アルカリガラス等を原料としたいずれをも好適に用いることができる。

これらのガラス纖維の形態は、特に制限はなく、例えば、ロービング、ミルドファイバー、及びショッピードストランド等いずれの形態のものも使用することができる。

ガラス纖維の市販品としては、CSH-3PA(日東紡績社製)、T511(日本電気硝子社製)、MA409C(旭ファイバーガラス社製)等が挙げられる。

本発明のポリカーボネート系樹脂組成物は、樹脂組成物を強化する観点から、ガラスフ

10

20

30

40

50

イラーを含むことが好ましい。

【0097】

[組成比]

本発明のポリカーボネート系樹脂組成物は、ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体(A)100質量部に対して、無機フィラーを、好ましくは1~150質量部、より好ましくは11~100質量部、更に好ましくは15~60質量部、更に好ましくは15~40質量部含むことができる。上記範囲とすることで、ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体(A)の特性を損ねることなく、無機フィラーに起因する種々の機械物性効果、例えば、弾性率等の強度向上を図ることができる。

【0098】

本発明のポリカーボネート系樹脂組成物の製造方法は、ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体と、任意の添加剤とを混合する工程を有するものであれば特に限定されない。例えば、ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体と任意の添加物とを混合機等を用いて混合し、溶融混練を行うことで製造できる。溶融混練は、通常用いられている方法、例えば、リボンブレンダー、ヘンシェルミキサー、バンパリーミキサー、ドラムタンブラー、単軸スクリュー押出機、二軸スクリュー押出機、コニーダ、多軸スクリュー押出機等を用いる方法により行うことができる。溶融混練時の加熱温度は、通常150~300、好ましくは220~300程度の範囲で適宜選定される。

【0099】

[成形品]

本発明の成形品は、本発明のポリカーボネート系樹脂組成物を含むものである。当該成形品は、ポリカーボネート系樹脂組成物の溶融混練物、又は、溶融混練を経て得られたペレットを原料として、射出成形法、射出圧縮成形法、押出成形法、ブロー成形法、プレス成形法、真空成形法及び発泡成形法等により製造することができる。特に、得られたペレットを用いて、射出成形法又は射出圧縮成形法により成形品を製造することができる。

【0100】

成形品の厚さは用途に応じて任意に設定することができ、特に成形品の透明性が要求される場合には、0.2~4.0mmが好ましく、0.3~3.0mmがより好ましく、0.3~2.0mmが更に好ましい。成形品の厚みが0.2mm以上4.0mm以下であれば、良好な機械強度を得ることができる。

【0101】

成形品には、必要に応じてハードコート膜、防曇膜、帯電防止膜、反射防止膜の被膜を形成しても良く、2種類以上の複合被膜としてもよい。

中でも、耐候性が良好で、経時的な成形品表面の摩耗を防ぐことができることから、ハードコート膜の被膜が形成されていることが特に好ましい。ハードコート膜の材質は特に限定されず、アクリレート系ハードコート剤、シリコーン系ハードコート剤、無機系ハードコート剤等の公知の材料を用いることができる。

【0102】

ガラスフィラーを含む成形品の場合には、成形品の最表面に、ガラスフィラーの少なくとも一部分が存在することで、成形品の表面粗さが大きくなり、成形品表面での乱反射が多くなり、結果として成形品の透明性を悪化する場合がある。このため、成形品の表面粗さを小さくする方法として、成形品の最表面に樹脂の存在比率が高い層(スキン層)を形成させることにより、成形品の表面粗さを小さくする方法等がある。このスキン層を形成させる方法として、射出成形の場合には金型の温度を一般的な条件よりも高い温度にすることで、金型に接する樹脂が流動し易くし、成形品の最表面の表面粗さを小さくすることができる。また、圧縮成形の場合には、成形時の圧力を一般的な条件よりも高い圧力にすることにより、成形品の最表面の表面粗さを小さくすることができる。これらの方法を用いて、成形品の表面粗さを小さくすることにより、成形品表面での乱反射が少くなり、ヘイズが小さくなり、結果として成形品の透明性を改善することができる。

【0103】

10

20

30

40

50

このようにして得られた成形品は、平板に成形した際、ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体における、式(1)で示されるポリオルガノシロキサンブロックの含有量が5質量%未満且つポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体におけるポリオルガノシロキサンブロック(A-2)の平均鎖長aが70未満の場合、可視光に対する全光線透過率は60%以上であることが好ましい。全光線透過率は、より好ましくは70%以上、更に好ましくは80%以上、更に好ましくは85%以上、更に好ましくは90%以上である。ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体における、式(1)で示されるポリオルガノシロキサンブロックの含有量が5質量%以上の場合には、可視光に対する全光線透過率は25%以上であることが好ましい。上記平板成形時のヘイズは、ポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体における、式(1)で示されるポリオルガノシロキサンブロックの含有量が5質量%未満且つポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体におけるポリオルガノシロキサンブロック(A-2)の平均鎖長aが70未満の場合、好ましくは40以下、より好ましくは30以下、更に好ましくは15以下、更に好ましくは5以下である。

前記光学物性を備えた成形品は透明性に優れたものであるので、高い透明性を要求される用途において使用することができる。なお、可視光に対する全光線透過率はISO 13468-1:1996に準じて測定し、ヘイズはISO 14782:1999に準じて測定することができる。

#### 【0104】

本発明に係るポリカーボネート樹脂を含む成形品は、透明性及び剛性、更には耐傷付性及び耐候性が必要とされる部材、例えば、1)サンルーフ、ドアバイザー、リアウインド、サイドウインド等の自動車用部品、2)建築用ガラス、防音壁、カーポート、サンルーム及びグレーティング類等の建築用部品、3)鉄道車両、船舶用の窓、4)テレビ、ラジオカセット、ビデオカメラ、ビデオテープレコーダ、オーディオプレーヤー、DVDプレーヤー、電話器、ディスプレイ、コンピュータ、レジスター、複写機、プリンター、ファクシミリ等の各種部品、外板及びハウジングの各部品等の電気機器用部品、5)携帯電話、PDA、カメラ、スライドプロジェクター、時計、電卓、計測器、表示器機等の精密機械等のケース及びカバー類等の精密機器用部品、6)ビニールハウス、温室等の農業用部品、7)照明カバーやブラインド、インテリア器具類等の家具用部品等に好適に用いることができる。

#### 【実施例】

#### 【0105】

以下、実施例により本発明を更に詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

#### 【0106】

各例における特性値は、以下に示す要領に従って求めた。

##### <ヘキサン抽出量の測定方法>

ヘキサン抽出量の測定は以下の方法により行った。

下記実施例及び比較例で得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体のペレットをクラッシャーで粉碎して得られるサンプルを、20メッシュ(目開き0.84mm)に通過させて粉碎不足の大きな塊を除き、続いて300メッシュ(目開き0.055mm)上で篩い、メッシュ上に残ったサンプルをヘキサン抽出用サンプルとして採取することで、過度に粉碎された微粉を除去した。

次に前記の方法で得たヘキサン抽出用サンプル約15gを精秤し、円筒ろ紙(No.84、内径28mm×全長100mm)に投入してソックスレー抽出器にセットした。続いて300mLのn-ヘキサンを用いて3~4分に1回(70mL/回)の還流量で8時間還流させて抽出した。その後、得られたn-ヘキサン抽出液を、エバポレーターを用いて40℃の湯浴に接触させながらn-ヘキサンを除去した。その後、室温下にて2.5h真空乾燥させ、ナスフラスコに残留した成分の質量(g)から下式によりヘキサン抽出量(質量ppm)を算出した。

10

20

30

40

50

ヘキサン抽出量 (質量 ppm) = 1,000,000 × H / 抽出に使用したサンプル量  
(H : ナスフラスコに残留したヘキサン抽出成分の質量、単位 : g)

【0107】

<ポリジメチルシロキサン含有率の定量方法>

例) 実施例3で得られたポリカーボネット-ポリオルガノシロキサン共重合体に含まれるポリジメチルシロキサンの定量方法

NMR装置 : (株) JEOL RESONANCE製 ECA-500

プローブ : TH55 NMR試料管対応

観測範囲 : -5 ~ 15 ppm

観測中心 : 5 ppm

パルス繰り返し時間 : 9秒

パルス幅 : 45°

積算回数 : 256回

NMR試料管 : 5

サンプル量 : 30 ~ 40mg

溶媒 : 重クロロホルム

測定温度 : 室温

A : 7.3 ~ 7.5付近に観測されるフェニル部のメタ位の積分値

B : -0.02 ~ 0.3付近に観測されるジメチルシロキサン部のメチル基の積分値

C : 4.8 ~ 5.3付近に観測されるISB(イソソルビド)部のメチン基の積分値

D : 3.3 ~ 3.8付近に観測されるPEG部のメチレン基の積分値

E : 0.8 ~ 2.0付近に観測されるCHDM部のメチン基、及びメチレン基の積分値

F : 0.4 ~ 0.6付近に観測されるジメチルシロキサン末端部のメチレン基の積分値

a = A / 2

b = B / 6

c = C / 3

d = D / 4

e = (E - F) / 10

T = a + b + c + d + e

f = a / T × 100

g = b / T × 100

h = c / T × 100

i = d / T × 100

j = e / T × 100

TW = f × 93 + g × 74.1 + h × 172 + i × 44 + j × 170

PDMS(wt%) = g × 74.1 / TW × 100

【0108】

<[POS-Mh]及び[POS-M1]の測定方法>

下記の実施例及び比較例に示す各種のポリカーボネット-ポリオルガノシロキサン共重合体について、ゲル浸透クロマトグラフ(GPC)により保持時間範囲T1 ~ T2に相当する成分を分取して得られたポリカーボネット-ポリオルガノシロキサン共重合体に含まれるポリオルガノシロキサンブロックの平均重量(wt%)を前記の測定方法により求めその値を[POS-Mh]とした。同様に、保持時間範囲T2 ~ T3に相当する成分を分取して得られたポリカーボネット-ポリオルガノシロキサン共重合体に含まれるポリオルガノシロキサンブロックの平均重量(wt%)を[POS-M1]とした。以下、GPC測定方法、T1、T2、T3の決定方法を説明する。

・ポリカーボネット-ポリオルガノシロキサン共重合体のGPCによる分取条件

試験機器 : (株)島津製作所製、分取GPC[SPD-M20A]

溶媒 : クロロホルム

カラム : JAIGEL-4H、JAIGEL-2H

10

20

30

40

50

カラム温度：室温

流速：3.8 mL / 分

検出器：RI

注入濃度：

ポリスチレン標準の場合：3 mg / mL

ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体の場合：30 mg / mL

注入量：3 mL

・T1～T3は上記GPCでポリスチレン標準を測定し、得られるクロマトグラムのピクトップから決定した。

ポリスチレン標準：下記の東ソー株式会社製の標準ポリスチレンを用いた。

10

F-10:  $M_w / M_n = 1.01$ 、 $M_w = 98,900$

F-2:  $M_w / M_n = 1.01$ 、 $M_w = 13,700$

A-2500:  $M_w / M_n = 1.03$ 、 $M_w = 3,120$

#### 【0109】

<ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体の粘度平均分子量>

ウベローデ型粘度計を用いて、20における塩化メチレン溶液(濃度: g / L)の粘度を測定し、これより極限粘度[ ]を求め、次式(Schnell式)にて粘度平均分子量(Mv)を算出した。

$$[ ] = 1.23 \times 10^{-5} M_v^{0.83}$$

#### 【0110】

20

#### [評価試験]

<樹脂成形品の全光線透過率: Tt(%)、ヘイズ値>

各実施例及び比較例で得られた評価用ペレットを、射出成形機(株式会社ニイガタマシンテクノ社製、「MD50XB」、スクリュー径30mm)を用いて、シリンダー温度240、金型温度80にて、透明性評価用3段プレート(90mm×50mm、3mm厚部分45mm×50mm、2mm厚部分22.5mm×50mm、1mm厚部分22.5mm×50mm)を作成した。全光線透過率は、上記3段プレートの厚み1mm部分について、ISO 13468-1:1996に準拠して測定した。ヘイズ値は同サンプルの厚み1mm部分について、ISO 14782:1999に準拠して測定した。両値とも、測定装置としては日本電色工業株式会社製のNDH5000を用いた。

30

ヘイズ値は小さいほどサンプルの透明性が高い事を表す。

$$\text{ヘイズ} = T_d / T_t \times 100$$

(式中、Td: 拡散透過率、Tt: 全光線透過率)

#### 【0111】

<原料混合物の全光線透過率(%)、ヘイズ値>

以下の測定装置、ガラスセル、測定方法により原料混合物の全光線透過率、ヘイズ値を求めた。

測定装置：日本電色工業株式会社製 NDH5000

ガラスセル：光路長：10mm

寸法：外寸14mm(奥行)×40mm(幅)×55mm(高さ)

40

各面のガラス厚さ：2mm

原料混合物のヘイズ測定前に、ガラスセルに純水を充填させゼロ点補正を行った。具体的には、純水をセルに充填した状態での測定値が、全光線透過率が100%となる状態及びヘイズ値が0.00となる状態に補正した。次にガラスセルから純水を除去し、ここに後述の方法で得られる液状混合物を充填して測定を実施し、ISO 14782:1999に準拠して23におけるヘイズ値を求めた。

$$\text{ヘイズ} = T_d / T_t \times 100$$

(式中、Td: 拡散透過率、Tt: 全光線透過率)

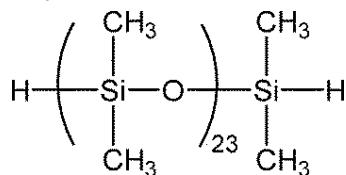
#### 【0112】

製造例1：PDMs-1の製造

50

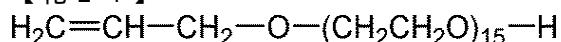
窒素雰囲気下、下式：

【化23】



で示されるシロキサン平均鎖長が24であるポリオルガノシロキサン(100g)に、下式：

【化24】



10

にて示される、平均オキシエチレン鎖長が15のポリエチレンジコールをポリオルガノシロキサンに対して2倍モル量(82.3g)加えた。ここに、イソプロピルアルコール455g(ポリオルガノシロキサンとポリエチレンジコールの合計質量に対し2.5部)を加えた後、混合物温度を80に制御して十分攪拌した。次いで、白金のビニルシロキサン錯体のトルエン溶液を、白金原子の質量がシロキサンに対して5質量ppmとなる量で加え、10時間攪拌した。得られた混合物からイソプロピルアルコール及び白金触媒を除去することにより、ポリエーテル変性ポリオルガノシロキサンP D M S - 1を得た。

【0113】

20

製造例2：P D M S - 2の製造

平均シロキサン鎖長が61である、-ジハイドロジエンオルガノポリシロキサンを用いた以外は、製造例1と同様に製造した。

【0114】

20

製造例3：P D M S - 3の製造

平均シロキサン鎖長が88である、-ジハイドロジエンオルガノポリシロキサンを用いた以外は、製造例1と同様に製造した。

【0115】

30

製造例4：P D M S - 4の製造

用いるポリエチレンジコールの平均オキシエチレン鎖長を12としたこと以外は、製造例1と同様に製造した。

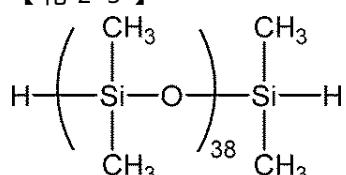
【0116】

30

製造例5：P D M S - 5の製造

窒素雰囲気下、下式：

【化25】



で示される、平均シロキサン鎖長が39である、ポリオルガノシロキサンに、2-アリルフェノールを、ポリオルガノシロキサンに対し2倍mol量加えた。混合物温度を100に制御しながら十分攪拌した。次いで、白金のビニルシロキサン錯体のトルエン溶液を白金原子の質量がシロキサンに対して5質量ppmとなる量で加え、10時間攪拌した。得られた混合物からイソプロピルアルコール及び白金触媒を除去し、アリルフェノール変性ポリオルガノシロキサンP D M S - 5を得た。

40

【0117】

製造例6：P D M S - 6の製造

2-アリルフェノールの代わりに、オイゲノールを用いたこと以外は、製造例5と同様に製造した。

50

## 【0118】

## 製造例7：P D M S - 7の製造

ポリエチレングリコールの代わりに、エチレングリコールモノアリルエーテル（ $\text{C}_2\text{H}_2 = \text{C}_2\text{H}_2\text{O} - \text{CH}_2\text{CH}_2 - \text{OH}$ ）を用いた以外は、製造例1と同様に製造した。

## 【0119】

## 製造例8：P D M S - 8の製造

用いるポリオルガノシロキサンのシロキサン平均鎖長を45としたこと、用いるポリエチレングリコールの平均オキシエチレン鎖長を8としたこと、溶媒をトルエンとしたこと、反応温度を110としたこと以外は、製造例1と同様に製造した。

## 【0120】

## 製造例9：P D M S - 9の製造

用いるポリエチレングリコールの平均オキシエチレン鎖長を38としたこと、溶媒をトルエンとしたこと、反応温度を110としたこと以外は、製造例8と同様に製造した。

## 【0121】

## 製造例10：P D M S - 10の製造

用いるポリオルガノシロキサンのシロキサン平均鎖長を5としたこと、溶媒をトルエンとしたこと、反応温度を110としたこと以外は、製造例1と同様に製造した。

## 【0122】

## 製造例11：P D M S - 11の製造

窒素雰囲気下、フラスコに塩化メチレン350mLを投入し、ここへ、2,6-ジ-*t*-ブチルピリジン21.5g及びトリフルオロメタンスルホン酸無水物21gを仕込み、この混合物を15以下まで冷却した。ここへ、アリルアルコール4.3gを滴下し反応開始剤を形成した。15分程度攪拌した後、脱水テトラヒドロフラン1Lを投入し20~23で5分間攪拌後、イオン交換水30mLを投入し反応を停止した。ヘブタンで抽出し、10%塩酸で洗浄を行い、水槽を分離後、引き続き、イオン交換水で2回洗浄し水槽を分離した。その後、溶媒を減圧条件下で留去し、下式：

## 【化26】



にて示される、片末端アリル変性ポリテトラメチレングリコール（テトラメチレングリコール部の鎖長=20）を120g得た。

ポリエチレングリコールの代わりに、上記反応で得られた、片末端アリル変性ポリテトラメチレングリコールを用いたこと、溶媒をトルエンとイソプロパノールの1:1（質量比）混合液に変更し、溶媒使用量をポリオルガノシロキサン及び片末端アリル変性ポリテトラメチレングリコールの総体積の3倍体積量としたこと、反応温度を80~90で制御したこと以外は製造例8と同様に製造した。

## 【0123】

## 製造例12：P D M S - 12の製造

窒素雰囲気のフラスコに、両末端に- $\text{C}_3\text{H}_6\text{OCH}_2\text{H}_4\text{OH}$ 基を有するポリジメチルシロキサン（SiMe<sub>2</sub>Oユニットの平均連鎖数：40）及び、前述のポリオルガノシロキサンの水酸基に対し25倍モル量のトリメチレンカーボネートを仕込み、これらの原料が10wt%濃度となる様、脱水されたジクロロメタンを投入した。得られた透明な反応溶液に、ポリジメチルシロキサン末端OH基に対し3当量の1,8-ジアザビシクロウンデセンを触媒として投入し、そのまま室温下で48時間反応させた。その後、安息香酸を添加し反応を停止した反応混合物を、メタノール、2-プロパノール、ヘキサン混合液（体積比はそれぞれ10:1:10）からなる混合溶媒に再沈殿させ、得られた沈殿物を真空乾燥することでP D M S - 12を得た（各末端のポリトリメチレンカーボネートの連鎖数：18）。

## 【0124】

## 製造例13：P D M S - 13の製造

10

20

30

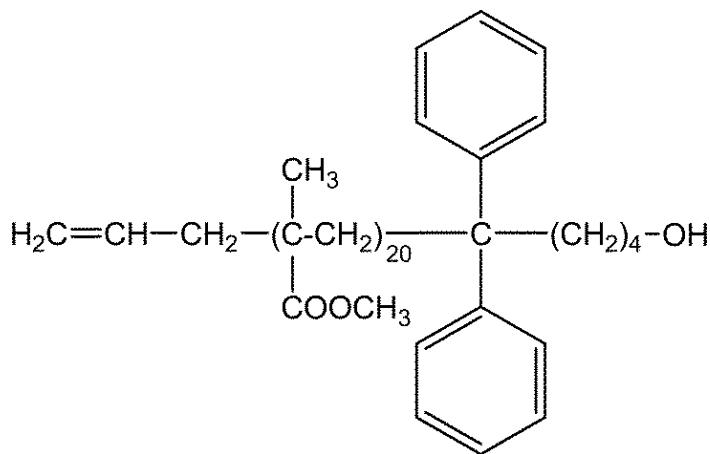
40

50

窒素雰囲気下、フラスコに塩化メチレン 450 mL を投入し、ここへ 3 - ヨード - 1 - プロパノール 45.0 g を加え、混合物を氷浴で冷却した。ここへ、*tert* - ブチルジメチルクロロシラン 40.1 g を添加し、室温下で 20 時間攪拌した。得られた混合物を 5% 炭酸水素ナトリウム水溶液でクエンチし、酢酸エチル / イオン交換水により生成物を抽出した。得られた生成物をシリカゲルカラムにより生成し、3 - ヨード - 1 - プロパノールの TBS 保護体を得た (収量 67.7 g)。

窒素雰囲気下、上記 3 - ヨード - 1 - プロパノールの TBS 保護体 2.9 g、テトラヒドロフラン 270 mL をフラスコ内で混合し、-65 以下まで冷却した。ここへ 1.6 mol / L の *tert* - ブチルリチウム (ペンタン溶液) を 12.5 mL 滴下し、そのまま 15 分間攪拌した。そこへジフェニルエチレン 2.5 mL を滴下し、そのまま 30 分間攪拌した。その後、0.52 mol / L 塩化リチウム THF 溶液 55 mL を投入し、10 分間攪拌した。次にメチルメタクリレート 10.1 mL を投入し 10 分間攪拌させた。次にアリルブロマイド 3.36 mL を投入して反応をクエンチし、その後は室温で 12 時間混合した。得られた反応混合物を減圧濃縮後、THF / ヘブタン系で再沈殿し、その後シリカゲルカラム精製に付し溶媒を除去することで片末端アリル変性 PMMA の TBS 保護体を得た。この生成物を THF に溶解させ、2 mol / L 塩酸水溶液で脱保護し、得られた反応混合物をヘブタンに投入することで目的物 (脱保護体) を分離した。この脱保護体をシリカゲルカラムに付し精製し、溶媒を除去することで下式 :

【化 27】



10

20

30

にて示される、片末端アリル変性 PMMA (PMMA 部の連鎖数 = 20) を得た。

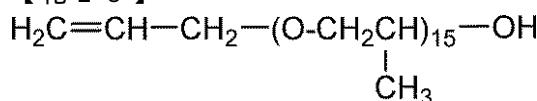
ポリエチレングリコールの代わりに、上記の片末端アリル変性 PMMA を用いたこと、以外は製造例 8 と同様に製造した。

【0125】

製造例 14 : P D M S - 14 の製造

ポリエチレングリコールの代わりに、下式 :

【化 28】



40

にて示される、平均オキシプロピレン鎖長が 15 のポリプロピレングリコールを用いたこと以外は製造例 1 と同様に製造した。

【0126】

製造例 1 ~ 14 で得られた P D M S - 1 ~ P D M S - 14 を表 1 に示す。

【0127】

50

【表1】

表1	
製造例 1	$H - (OCH_2CH_2)_{15} - O - CH_2 - CH_2 - CH_2 - \left( \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ Si - O \\   \\ CH_3 \end{array} \right)_{23} CH_3 - Si - CH_2 - CH_2 - CH_2 - O - (CH_2CH_2O)_{15} - H$
製造例 2	$H - (OCH_2CH_2)_{15} - O - CH_2 - CH_2 - CH_2 - \left( \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ Si - O \\   \\ CH_3 \end{array} \right)_{60} CH_3 - Si - CH_2 - CH_2 - CH_2 - O - (CH_2CH_2O)_{15} - H$
製造例 3	$H - (OCH_2CH_2)_{15} - O - CH_2 - CH_2 - CH_2 - \left( \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ Si - O \\   \\ CH_3 \end{array} \right)_{87} CH_3 - Si - CH_2 - CH_2 - CH_2 - O - (CH_2CH_2O)_{15} - H$
製造例 4	$H - (OCH_2CH_2)_{12} - O - CH_2 - CH_2 - CH_2 - \left( \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ Si - O \\   \\ CH_3 \end{array} \right)_{23} CH_3 - Si - CH_2 - CH_2 - CH_2 - O - (CH_2CH_2O)_{12} - H$
製造例 5	$H - (OCH_2CH_2)_{15} - O - CH_2 - CH_2 - CH_2 - \left( \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ Si - O \\   \\ CH_3 \end{array} \right)_{38} CH_3 - Si - CH_2 - CH_2 - CH_2 - O - (CH_2CH_2O)_{15} - H$
製造例 6	$H - (OCH_2CH_2)_{15} - O - CH_2 - CH_2 - CH_2 - \left( \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ Si - O \\   \\ CH_3 \end{array} \right)_{38} CH_3 - Si - CH_2 - CH_2 - CH_2 - O - (CH_2CH_2O)_{15} - H$
製造例 7	$H - O - CH_2 - CH_2 - O - CH_2 - CH_2 - CH_2 - \left( \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ Si - O \\   \\ CH_3 \end{array} \right)_{23} CH_3 - Si - CH_2 - CH_2 - CH_2 - O - CH_2 - CH_2 - O - H$
製造例 8	$H - (OCH_2CH_2)_{8} - O - CH_2 - CH_2 - CH_2 - \left( \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ Si - O \\   \\ CH_3 \end{array} \right)_{44} CH_3 - Si - CH_2 - CH_2 - CH_2 - O - (CH_2CH_2O)_{8} - H$
製造例 9	$H - (OCH_2CH_2)_{38} - O - CH_2 - CH_2 - CH_2 - \left( \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ Si - O \\   \\ CH_3 \end{array} \right)_{44} CH_3 - Si - CH_2 - CH_2 - CH_2 - O - (CH_2CH_2O)_{38} - H$
製造例 10	$H - (OCH_2CH_2)_{15} - O - CH_2 - CH_2 - CH_2 - \left( \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ Si - O \\   \\ CH_3 \end{array} \right)_{4} CH_3 - Si - CH_2 - CH_2 - CH_2 - O - (CH_2CH_2O)_{15} - H$
製造例 11	$H - (OCH_2CH_2CH_2CH_2)_{20} - O - CH_2 - CH_2 - CH_2 - \left( \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ Si - O \\   \\ CH_3 \end{array} \right)_{44} CH_3 - Si - CH_2 - CH_2 - CH_2 - O - (CH_2CH_2CH_2CH_2O)_{20} - H$
製造例 12	$H - (OCH_2CH_2CH_2OC)_{18} - O - CH_2CH_2 - O - CH_2CH_2CH_2 - \left( \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ Si - O \\   \\ CH_3 \end{array} \right)_{39} CH_3 - Si - CH_2CH_2CH_2 - O - CH_2CH_2 - O - (COCH_2CH_2CH_2O)_{18} - H$
製造例 13	$H - (OCH_2CH_2CH_2OC)_{18} - O - CH_2CH_2 - O - CH_2CH_2CH_2 - \left( \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ Si - O \\   \\ CH_3 \end{array} \right)_{44} CH_3 - Si - CH_2CH_2CH_2 - (C - CH_2)_{20} - C - (CH_2)_{4} - OH$
製造例 14	$H - (OCH_2CH_2)_{15} - O - CH_2 - CH_2 - CH_2 - \left( \begin{array}{c} CH_3 \\   \\ Si - O \\   \\ CH_3 \end{array} \right)_{23} CH_3 - Si - CH_2 - CH_2 - CH_2 - O - (CH_2CHO)_{15} - H$

## 【0128】

## [その他]

BisP-A : ビスフェノールA [出光興産(株)製]

1,4-CHDM : 1,4-シクロヘキサンジメタノール [東京化成工業(株)製]

TCDMM : トリシクロデカンジメタノール [OXEA GmbH製]

1,3-PG : 1,3-プロパンジオール [東京化成工業(株)製]

PEG400 : ポリエチレングリコール400 [平均分子量380~420g/mol]

1,東京化成工業(株)製

DPC : 炭酸ジフェニル [三井化学ファイン(株)製]

10

20

30

40

50

## 0.01Nの水酸化ナトリウム水溶液 [富士フィルム和光純薬(株)製]

## 【0129】

## 実施例1

## &lt;加熱処理後の原料混合物の透明性評価&gt;

攪拌装置としてダブルヘリカル翼を具備した10Lのステンレス製反応器に、BisP-A(2,489.9g)及びDPC(2,500g)(各原料のmol比率:BisP-A/DPC=100/107)、ポリエーテル変性ポリオルガノシロキサンPDMS-1を28.2g投入した。150にてこれらの原料モノマーを完全に溶融させた後、70rpmで攪拌を開始し、反応器内部を窒素で置換した。次に、触媒として0.01Nの水酸化ナトリウム1.64mL(全ジオールモノマーmol数に対し $1.5 \times 10^{-6}$ 倍量)を投入し、大気圧と同じ101kPaの窒素圧を保持したまま、混合物の温度を200にまで昇温させ、60分間当該温度を保持した。続いて、反応器底部のバルブより内容物を抜き出し、液状で透明な原料混合物が得られた。加熱処理後の液状原料混合物の全光線透過率は98.4、ヘイズ値は0.5であり、高い透明性を示した。

## 【0130】

## &lt;ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン(PC-POS)共重合体の製造&gt;

以下の原料と条件にて、ポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体を製造した。原料は、上記透明性評価をした原料と同一のものを用いるが、重合条件は以下の通りである。

攪拌装置、留出フェノールを捕捉するトラップ、減圧装置を具備した10Lのステンレス製反応器に、ジオールモノマーとして、BisP-A(2,489.9g)及びDPC(2,500g)(各原料のmol比率:BisP-A/DPC=100/107)、ポリエーテル変性ポリオルガノシロキサンPDMS-1を28.2g投入し150にてこれらの原料モノマーを完全に溶融させ反応器内部を窒素で置換した。触媒として0.01Nの水酸化ナトリウム1.64mL(全ジオールモノマーmol数に対し $1.5 \times 10^{-6}$ 倍量)を投入し重合を開始し、60分程度かけて反応器温度180、減圧度200mmHg(26.6kPa)まで昇温・減圧しフェノール留出量が0.2Lとなるまで反応条件を保持した。その後60分程度かけて反応器の内温200、減圧度10mmHg(1.3kPa)まで昇温・減圧し1.0Lのフェノールが留出するまで当該条件を保持した。

次に、120分程度かけて反応器の内温を240まで昇温しフェノールが1.5L留出するまで当該条件を保持した。続いて120分程度かけて反応器の内温を280、減圧度1mmHg(0.1kPa)以下まで調整し、フェノールを2L以上留出させ、所定の攪拌トルクとなるまで反応を継続させた。その後、窒素で復圧し、失活剤としてp-トルエンスルホン酸ブチル0.037g(NaOHのmol数に対し10倍量)を投入した。Irganox 1010及びIrgafos 168をそれぞれ、得られるポリマー中の含量が1,500ppmとなるよう投入し、十分攪拌した。その後、窒素圧力により反応器底部から樹脂ストランドを抜出しそれらをペレタイザでカットすることで透明性の高いペレット状のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体の評価結果を表2に示す。

## 【0131】

## 実施例2

ジオールモノマーとしてBisP-A(1293.3g)及び1,4-CHDM(817.0g)及びDPC(2,500g)(各原料のmol比率:BisP-A/1,4-CHDM/DPC=50/50/103)、ポリエーテル変性ポリオルガノシロキサンPDMS-1を24.4g用いたこと以外は実施例1と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は98.5%、ヘイズ値は0.5であった。

ジオールモノマーとしてBisP-A(1293.3g)及び1,4-CHDM(817.0g)及びDPC(2,500g)(各原料のmol比率:BisP-A/1,4-CHDM/DPC=50/50/103)、ポリエーテル変性ポリオルガノシロキサンPDMS-1を24.4g用いたこと以外は実施例1と同様に、加熱処理後の原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は98.5%、ヘイズ値は0.5であった。

10

20

30

40

50

D M S - 1 を 2 4 . 4 g 用いたこと以外は、実施例 1 と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体の評価結果を表 2 に示す。

#### 【 0 1 3 2 】

##### 実施例 3

###### < 加熱処理後の原料混合物の透明性評価 >

イソソルビド ( I S B ) ( 1 1 9 3 . 8 g ) 、 1 , 4 - C H D M ( 5 0 4 . 9 g ) 、 D P C ( 2 , 5 0 0 g ) ( 各原料の m o l 比率 : I S B / 1 , 4 - C H D M / D P C = 7 0 : 3 0 : 1 0 0 ) 、 ポリエーテル変性ポリオルガノシロキサン P D M S - 1 を 2 0 . 2 g 使用した以外は、実施例 1 と同様に原料の加熱処理を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は 9 9 . 5 % 、ヘイズ値は 0 . 4 であった。

10

#### 【 0 1 3 3 】

###### < P C - P O S 共重合体の製造 >

攪拌装置、留出フェノールを捕捉するトラップ、減圧装置を具備した 1 0 L のステンレス製反応器に、ジオールモノマーとして、 I S B ( 1 1 9 3 . 8 g ) 、 1 , 4 - C H D M ( 5 0 4 . 9 g ) 、 D P C ( 2 , 5 0 0 g ) ( 各原料の m o l 比率 : I S B / 1 , 4 - C H D M / D P C = 7 0 : 3 0 : 1 0 0 ) 、 ポリエーテル変性ポリオルガノシロキサン P D M S - 1 を 2 0 . 2 g 投入し 1 0 0 にてこれらの原料モノマーを完全に溶融させ反応器内部を窒素で置換した。触媒として 0 . 0 1 N の水酸化ナトリウム 1 . 6 4 m L ( 全ジオールモノマー m o l 数に対し 1 . 5 × 1 0 -6 倍量 ) を投入し重合を開始し、 5 0 ~ 1 0 0 分程度かけて反応器温度 1 8 0 、減圧度 2 0 0 m m H g ( 2 6 . 6 k P a ) まで昇温・減圧し、フェノール留出量が 0 . 2 L となるまで当該条件を保持した。その後 1 5 0 分程度かけて反応器の内温 2 0 0 、減圧度 1 0 m m H g ( 1 . 3 k P a ) まで昇温・減圧し、 1 . 8 L のフェノールが留出するまで当該条件を保持した。

20

次に 6 0 分程度かけて反応器の内温を 2 2 0 、減圧度を 1 m m H g ( 0 . 1 k P a ) 以下まで調整し、フェノールを 2 L 以上留出させ、所定の攪拌トルクとなるまで反応を継続させた。その後、窒素で復圧し、失活剤として p - トルエンスルホン酸ブチル 0 . 0 3 7 g ( N a O H の m o l 数に対し 1 0 倍量 ) を投入した。 I r g a n o x 1 0 1 0 及び I r g a f o s 1 6 8 をそれぞれ、得られるポリマー中の含量が 1 , 5 0 0 p p m となるよう投入し、十分攪拌した。その後、窒素圧力により反応器底部から樹脂ストランドを抜出しそれらをペレタイザでカットすることにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体の評価結果を表 2 に示す。

30

#### 【 0 1 3 4 】

##### 実施例 4

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 2 を 2 0 . 2 g 使用した以外は実施例 3 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は 9 8 . 4 % 、ヘイズ値は 0 . 8 であった。

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 2 を 2 0 . 2 g 使用した以外は、実施例 3 と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体の評価結果を表 2 に示す。

40

#### 【 0 1 3 5 】

##### 実施例 5

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 3 を 2 0 . 2 g 使用した以外は実施例 3 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は 9 8 . 1 % 、ヘイズ値は 1 . 3 であった。

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 3 を 2 0 . 2 g 使用した以外は、実施例 3 と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン

50

共重合体の評価結果を表2に示す。

【0136】

実施例6

ポリオルガノシロキサンとしてP D M S - 4を20.2g使用した以外は実施例3と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は97.9%、ヘイズ値は0.7であった。

ポリオルガノシロキサンとしてP D M S - 4を20.2g使用した以外は、実施例3と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート・ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート・ポリオルガノシロキサン共重合体の評価結果を表2に示す。

10

【0137】

実施例7

ポリオルガノシロキサンとしてP D M S - 1を105.4g使用した以外は実施例3と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は97.5%、ヘイズ値は0.9であった。

ポリオルガノシロキサンとしてP D M S - 1を105.4g使用した以外は、実施例3と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート・ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート・ポリオルガノシロキサン共重合体の評価結果を表2に示す。

20

【0138】

実施例8

ポリオルガノシロキサンとしてP D M S - 1を222.5g使用した以外は実施例3と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は97.1%、ヘイズ値は1.1であった。

ポリオルガノシロキサンとしてP D M S - 1を222.5g使用した以外は、実施例3と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート・ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート・ポリオルガノシロキサン共重合体の評価結果を表2に示す。

【0139】

実施例9

30

ジオールモノマーとして、I S B (1193.8g)、T C D D M (687.2g)、D P C (2,500g)（各原料のm o l比率：I S B / T C D D M / D P C = 70 : 30 : 100）、ポリエーテル変性ポリオルガノシロキサンP D M S - 1を22.1g使用した以外は実施例3と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は98.5%、ヘイズ値は0.4であった。

ジオールモノマーとして、I S B (1193.8g)、T C D D M (687.2g)、D P C (2,500g)（各原料のm o l比率：I S B / T C D D M / D P C = 70 : 30 : 100）、ポリエーテル変性ポリオルガノシロキサンP D M S - 1を22.1g使用した以外は、実施例3と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート・ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート・ポリオルガノシロキサン共重合体の評価結果を表2に示す。

40

【0140】

実施例10

ジオールモノマーとして、I S B (1193.8g)、1,4-C H D M (420.7g)、1,3-P G (44.4g)、D P C (2,500g)（各原料のm o l比率：I S B / 1,4-C H D M / 1,3-P G / D P C = 70 : 25 : 5 : 100）、ポリエーテル変性ポリオルガノシロキサンP D M S - 1を19.8g使用した以外は実施例3と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は98.3%、ヘイズ値は0.4であった。

50

ジオールモノマーとして、ISB(1193.8g)、1,4-CHDM(420.7g)、1,3-PG(44.4g)、DPC(2,500g)（各原料のmol比率：ISB/1,4-CHDM/1,3-PG/DPC=70:25:5:100）、ポリエーテル変性ポリオルガノシロキサンPDMS-1を19.8g使用した以外は、実施例3と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体の評価結果を表2に示す。

#### 【0141】

##### 実施例1 1

ジオールモノマーとして、ISB(1193.8g)、1,4-CHDM(504.9g)、PEG400(93.4g)、DPC(2,500g)【各原料のmol比率：ISB/1,4-CHDM/PEG400/DPC=70:28:2:100(PEG400のmol数は、使用した質量を平均分子量の400で除した値を用いた)】、ポリエーテル変性ポリオルガノシロキサンPDMS-1を21.3g使用した以外は実施例3と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は98.3%、ヘイズ値は0.4であった。

ジオールモノマーとして、ISB(1193.8g)、1,4-CHDM(504.9g)、PEG400(93.4g)、DPC(2,500g)【各原料のmol比率：ISB/1,4-CHDM/PEG400/DPC=70:28:2:100(PEG400のmol数は、使用した質量を平均分子量の400で除した値を用いた)】、ポリエーテル変性ポリオルガノシロキサンPDMS-1を21.3g使用した以外は、実施例3と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体の評価結果を表2に示す。

#### 【0142】

##### 実施例1 2

###### <加熱処理後の原料混合物の透明性評価>

ポリオルガノシロキサンとしてPDMS-8を179.7g使用したこと以外は、実施例1と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は90.8%、ヘイズ値は2.5であった。

###### <PC-POS共重合体の製造>

ポリオルガノシロキサンとしてPDMS-8を179.7g使用したこと以外は、実施例1と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体は、粘度平均分子量20100、ポリジメチルシロキサン含有率5.00質量%、全光線透過率33.7%、ヘイズ値97.0、ヘキサン抽出成分量653ppm、[POS-Mh]/[POS-M1]=1.47、シャルビー衝撃強度（ノッチ有）81.0kJ/m<sup>2</sup>であった。

#### 【0143】

##### 実施例1 3

###### <加熱処理後の原料混合物の透明性評価>

ポリオルガノシロキサンとしてPDMS-8を312.8g使用したこと以外は、実施例1と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は89.1%、ヘイズ値は2.6であった。

###### <PC-POS共重合体の製造>

ポリオルガノシロキサンとしてPDMS-8を312.8g使用したこと以外は、実施例1と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート-ポリオルガノシロキサン共重合体は、粘度平均分子量20100、ポリジメチルシロキサン含有率8.30質量%、全光線透過率28.3%、ヘイズ値98.1、ヘキサン抽出成分量714ppm

10

20

30

40

50

、 [ P O S - M h ] / [ P O S - M l ] = 1 . 2 3 、 シャルピー衝撃強度 (ノッチ有) 8 5 . 0 k J / m<sup>2</sup> であった。

#### 【 0 1 4 4 】

##### 実施例 1 4

< 加熱処理後の原料混合物の透明性評価 >

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 9 を 1 7 9 . 7 g 使用したこと以外は、実施例 1 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は 9 0 . 1 %、ヘイズ値は 2 . 0 であった。

< P C - P O S 共重合体の製造 >

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 9 を 1 7 9 . 7 g 使用したこと以外は、実施例 1 と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体は、粘度平均分子量 2 0 0 0 0 、ポリジメチルシロキサン含有率 3 . 1 0 質量%、全光線透過率 6 2 . 0 %、ヘイズ値 8 9 . 4 、ヘキサン抽出成分量 6 6 3 p p m 、 [ P O S - M h ] / [ P O S - M l ] = 1 . 1 3 、 シャルピー衝撃強度 (ノッチ有) 7 5 . 0 k J / m<sup>2</sup> であった。

#### 【 0 1 4 5 】

##### 実施例 1 5

< 加熱処理後の原料混合物の透明性評価 >

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 1 0 を 1 7 9 . 7 g 使用したこと以外は、実施例 1 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は 9 1 . 0 %、ヘイズ値は 1 . 3 であった。

< P C - P O S 共重合体の製造 >

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 1 0 を 1 7 9 . 7 g 使用したこと以外は、実施例 1 と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体は、粘度平均分子量 2 0 1 5 0 、ポリジメチルシロキサン含有率 0 . 9 0 質量%、全光線透過率 8 6 . 1 %、ヘイズ値 6 . 8 、ヘキサン抽出成分量 5 8 5 p p m 、 [ P O S - M h ] / [ P O S - M l ] = 1 . 0 9 、 シャルピー衝撃強度 (ノッチ有) 7 6 . 0 k J / m<sup>2</sup> であった。

#### 【 0 1 4 6 】

##### 実施例 1 6

< 加熱処理後の原料混合物の透明性評価 >

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 1 1 を 2 8 . 2 g 使用したこと以外は、実施例 1 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は 8 9 . 9 %、ヘイズ値は 7 . 3 であった。

< P C - P O S 共重合体の製造 >

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 1 1 を 2 8 . 2 g 使用したこと以外は、実施例 1 と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体は、粘度平均分子量 2 0 2 0 0 、ポリジメチルシロキサン含有率 0 . 5 3 質量%、全光線透過率 6 5 . 1 %、ヘイズ値 8 3 . 5 、ヘキサン抽出成分量 8 3 p p m 、 [ P O S - M h ] / [ P O S - M l ] = 1 . 2 0 であった。

#### 【 0 1 4 7 】

##### 実施例 1 7

< 加熱処理後の原料混合物の透明性評価 >

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 1 1 を 5 7 . 1 g 使用したこと以外は、実施例 1 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は 7 8 . 6 %、ヘイズ値は 1 2 . 0 であつ

10

20

30

40

50

た。

< P C - P O S 共重合体の製造 >

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 1 1 を 5 7 . 1 g 使用したこと以外は、実施例 1 と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体は、粘度平均分子量 2 0 1 0 0 、ポリジメチルシロキサン含有率 1 . 1 0 質量%、全光線透過率 4 8 . 1 %、ヘイズ値 8 7 . 5 、ヘキサン抽出成分量 1 4 3 p p m 、 [ P O S - M h ] / [ P O S - M l ] = 1 . 2 3 であった。

【 0 1 4 8 】

実施例 1 8

10

< 加熱処理後の原料混合物の透明性評価 >

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 1 2 を 2 8 . 2 g 使用したこと以外は、実施例 1 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は 9 7 . 9 %、ヘイズ値は 0 . 9 であった。

< P C - P O S 共重合体の製造 >

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 1 2 を 2 8 . 2 g 使用したこと以外は、実施例 1 と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体は、粘度平均分子量 1 9 9 0 0 、ポリジメチルシロキサン含有率 0 . 4 5 質量%、全光線透過率 8 1 . 0 %、ヘイズ値 1 1 . 3 、ヘキサン抽出成分量 4 9 p p m 、 [ P O S - M h ] / [ P O S - M l ] = 1 . 2 0 であった。

20

【 0 1 4 9 】

実施例 1 9

< 加熱処理後の原料混合物の透明性評価 >

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 1 2 を 1 7 9 . 7 g 使用したこと以外は、実施例 1 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は 9 1 . 3 %、ヘイズ値は 2 . 1 であった。

< P C - P O S 共重合体の製造 >

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 1 2 を 1 7 9 . 7 g 使用したこと以外は、実施例 1 と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体は、粘度平均分子量 2 0 1 0 0 、ポリジメチルシロキサン含有率 2 . 7 0 質量%、全光線透過率 6 1 . 0 %、ヘイズ値 8 2 . 1 、ヘキサン抽出成分量 5 5 0 p p m 、 [ P O S - M h ] / [ P O S - M l ] = 1 . 4 1 であった。

30

【 0 1 5 0 】

実施例 2 0

< 加熱処理後の原料混合物の透明性評価 >

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 1 3 を 2 8 . 2 g 使用したこと以外は、実施例 1 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は 9 1 . 5 %、ヘイズ値は 8 . 5 であった。

40

< P C - P O S 共重合体の製造 >

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 1 3 を 2 8 . 2 g 使用したこと以外は、実施例 1 と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体は、粘度平均分子量 2 0 0 5 0 、ポリジメチルシロキサン含有率 0 . 4 2 質量%、全光線透過率 6 3 . 5 %、ヘイズ値 8 1 . 2 、ヘキサン抽出成分量 7 5 p p m 、 [ P O S - M h ] / [ P O S - M l ] = 1 . 2 2 であった。

【 0 1 5 1 】

実施例 2 1

50

## &lt; 加熱処理後の原料混合物の透明性評価 &gt;

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 1 4 を 2 0 . 2 g 使用したこと以外は、実施例 3 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は 9 8 . 1 %、ヘイズ値は 1 . 0 であった。

## &lt; P C - P O S 共重合体の製造 &gt;

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 1 4 を 2 0 . 2 g 使用したこと以外は、実施例 2 と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体は、粘度平均分子量 1 5 0 0 0 、ポリジメチルシロキサン含有率 0 . 6 8 質量%、全光線透過率 6 9 . 7 %、ヘイズ値 8 4 . 0 、ヘキサン抽出成分量 5 5 p p m 、 [ P O S - M h ] / [ P O S - M l ] = 1 . 3 1 であった。

10

## 【 0 1 5 2 】

## 実施例 2 2

## &lt; 加熱処理後の原料混合物の透明性評価 &gt;

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 1 を 1 9 . 7 g 使用したこと以外は、実施例 1 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は高い透明性を有しており、全光線透過率は 9 9 . 2 %、ヘイズ値は 0 . 4 であった。

## &lt; P C - P O S 共重合体の製造 &gt;

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 1 を 1 9 . 7 g 使用したこと以外は、実施例 1 と同様の条件で重合することにより、透明性の高いペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体は、粘度平均分子量 1 5 6 0 0 、ポリジメチルシロキサン含有率 0 . 4 3 質量%、全光線透過率 8 6 . 8 %、ヘイズ値 3 . 9 、ヘキサン抽出成分量 5 5 p p m 、 [ P O S - M h ] / [ P O S - M l ] = 1 . 0 9 、シャルピー衝撃強度（ノッチ有） 1 9 . 5 k J / m<sup>2</sup> であった。であった。

20

## 【 0 1 5 3 】

## 比較例 1

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 5 を 2 4 . 4 g 使用したこと以外は実施例 2 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は白濁しており、全光線透過率は 7 8 . 5 %、ヘイズ値は 9 3 . 2 であった。

30

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 5 を 2 4 . 4 g 使用したこと以外は、実施例 2 と同様の条件で重合することにより、強く白濁したペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体の評価結果を表 3 に示す。

## 【 0 1 5 4 】

## 比較例 2

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 5 を 2 0 . 2 g 使用したこと以外は実施例 3 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は白濁しており、全光線透過率は 7 9 . 1 %、ヘイズ値は 9 2 . 1 であった。

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 5 を 2 0 . 2 g 使用したこと以外は、実施例 3 と同様の条件で重合することにより、強く白濁したペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体の評価結果を表 3 に示す。

40

## 【 0 1 5 5 】

## 比較例 3

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 5 を 1 0 5 . 4 g 使用したこと以外は実施例 3 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は白濁しており、全光線透過率は 6 3 . 2 %、ヘイズ値は 9 5 . 5 であった。

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 5 を 1 0 5 . 4 g 使用したこと以外は、実施例 3 と同様の条件で重合することで強く白濁したペレット状のポリカーボネート - ポリオルガ

50

ノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体の評価結果を表 3 に示す。

【 0 1 5 6 】

比較例 4

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 6 を 2 0 . 2 g 使用した以外は実施例 3 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は白濁しており、全光線透過率は 7 9 . 5 %、ヘイズ値は 9 3 . 1 であった。

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 6 を 2 0 . 2 g 使用した以外は、実施例 3 と同様の条件で重合することにより、強く白濁したペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体の評価結果を表 3 に示す。

【 0 1 5 7 】

比較例 5

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 7 を 2 0 . 2 g 使用した以外は実施例 3 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は白濁しており、全光線透過率は 8 1 . 1 %、ヘイズ値は 8 8 . 9 であった。

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 7 を 2 0 . 2 g 使用した以外は、実施例 3 と同様の条件で重合することにより、強く白濁したペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体の評価結果を表 3 に示す。

【 0 1 5 8 】

比較例 6

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 5 を 2 2 . 1 g 使用した以外は実施例 9 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は白濁しており、全光線透過率は 8 0 . 1 %、ヘイズ値は 9 0 . 1 であった。

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 5 を 2 2 . 1 g 使用した以外は、実施例 9 と同様の条件で重合することにより、強く白濁したペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体の評価結果を表 3 に示す。

【 0 1 5 9 】

比較例 7

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 5 を 1 9 . 8 g 使用した以外は実施例 1 0 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は白濁しており、全光線透過率は 7 8 . 5 %、ヘイズ値は 8 9 . 9 であった。

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 5 を 1 9 . 8 g 使用した以外は、実施例 1 0 と同様の条件で重合することにより、強く白濁したペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体の評価結果を表 3 に示す。

【 0 1 6 0 】

比較例 8

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 5 を 2 1 . 3 g 使用したこと以外は実施例 1 1 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は白濁しており、全光線透過率は 7 9 . 9 %、ヘイズ値は 8 8 . 5 であった。

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 5 を 2 1 . 3 g 使用したこと以外は、実施例 1 1 と同様の条件で重合することにより、強く白濁したペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体の評価結果を表 3 に示す。

【 0 1 6 1 】

比較例 9

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 5 を 1 9 . 8 g 使用した以外は実施例 1 と同

10

20

30

40

50

様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は白濁しており、全光線透過率は 78.1%、ヘイズ値は 94.5 であった。

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 5 を 19.8 g 使用した以外は、実施例 1 と同様の条件で重合することにより、強く白濁したペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体は、粘度平均分子量 15100、ポリジメチルシロキサン含有率 0.62 質量%、全光線透過率 53.1%、ヘイズ値 98.5、ヘキサン抽出成分量 175 ppm、[ P O S - M h ] / [ P O S - M l ] = 1.1、シャルピー衝撃強度（ノッチ有）15.8 kJ / m<sup>2</sup> であった。

#### 【 0 1 6 2 】

##### 比較例 1 0

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 5 を 179.7 g 使用した以外は実施例 1 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は白濁しており、全光線透過率は 65.1%、ヘイズ値は 97.5 であった。

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 5 を 179.7 g 使用した以外は、実施例 1 と同様の条件で重合することにより、強く白濁したペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体は、粘度平均分子量 20000、ポリジメチルシロキサン含有率 5.30 質量%、全光線透過率 19.3%、ヘイズ値 99.6、ヘキサン抽出成分量 1351 ppm、[ P O S - M h ] / [ P O S - M l ] = 1.4、シャルピー衝撃強度（ノッチ有）61.0 kJ / m<sup>2</sup> であった。

#### 【 0 1 6 3 】

##### 比較例 1 1

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 7 を 179.7 g 使用した以外は実施例 1 と同様に、加熱処理後の原料混合物の透明性評価を行った。加熱処理後の液状原料混合物は白濁しており、全光線透過率は 66.5%、ヘイズ値は 96.2 であった。

ポリオルガノシロキサンとして P D M S - 7 を 179.7 g 使用した以外は、実施例 1 と同様の条件で重合することにより、強く白濁したペレット状のポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体を得た。得られたポリカーボネート - ポリオルガノシロキサン共重合体は、粘度平均分子量 20100、ポリジメチルシロキサン含有率 5.50 質量%、全光線透過率 17.5%、ヘイズ値 99.5、ヘキサン抽出成分量 1416 ppm、[ P O S - M h ] / [ P O S - M l ] = 1.3、シャルピー衝撃強度（ノッチ有）61.0 kJ / m<sup>2</sup> であった。

#### 【 0 1 6 4 】

10

20

30

40

50

【表2】

		単位	実施例										
			1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
ジオールモノマー (A)	BisP-A		100	50									
	ISB				70	70	70	70	70	70	70	70	70
	1,4-OHDM	モル 比率	50	30	30	30	30	30	30	30	30	25	28
	TCDDM												
	1,3-PG												
	PEG400												
	炭酸ジエステル	DPC	107	103	100	100	100	100	100	100	100	100	100
ポリオルガノ シロキサン(B)	PDMS-1		1	1	1					5	10	1	1
	PDMS-2					1							
	PDMS-3						1						
	PDMS-4	wt%						1					
	PDMS-5												
	PDMS-6												
	PDMS-7												2
原料混合物	加熱処理後	全光線透過率 ヘイズ値	96 —	98.4 0.5	98.5 0.4	99.5 0.8	98.4 1.3	98.1 0.7	97.9 0.9	97.5 1.1	97.1 0.4	98.5 0.4	98.3 0.4
	式(1)ポリオルガノシロキサン	wt%	0.62	0.63	0.62	0.73	0.82	0.67	0.67	0.67	0.67	0.61	0.62
	粘度平均分子量	Mv	15,500	15,100	14,900	15,100	15,100	14,500	15,400	15,300	15,100	14,800	14,900
	全光線透過率(1mm)	%	82.0	84.0	91.1	86.5	80.1	90.2	90.5	88.9	90.8	91.2	90.9
	ヘイズ値	—	5.5	4.1	0.7	3.1	5.8	1.3	1.9	3.6	0.7	0.9	0.9
	ヘキサン抽出成分量	ppm	57	56	53	54	57	51	58	65	52	53	52
	[POS-M]/[POS-M]	—	1.09	1.15	1.16	1.04	1.01	1.15	1.22	1.35	1.17	1.15	1.14
評価結果	シャル比—衝撃強度(イチ有)	kJ/m <sup>2</sup>	20.3	22.4	9.8	10.8	12.1	8.7	12.5	14.5	8.9	10.5	10.8

\*ポリオルガノシロキサン(B)のwt%は、得られるPO-POS共重合体質量(理論値)に含まれる、仕込みポリオルガノシロキサン(B)の量を示す。当該数値は、下式により求めた。  
PC-POS共重合体質量(理論値) = 全ジオールモノマー質量 + 炭酸ジエステル質量(B) - 生成フェノール質量(炭酸ジエステルの2倍モル量のフェノール)

【0 1 6 5】

【表3】

		単位	比較例									
			1	2	3	4	5	6	7	8		
仕込条件	ジオールモノマー(A)	BisP-A	50									
		ISB	70	70	70	70	70	70	70	70		
		1,4-CHDM	50	30	30	30			25	28		
		TCDDM						30				
		1,3-PG							5			
		PEG400								2		
		DPC	103	100	100	100	100	100	100	100		
仕込条件	炭酸ジエステル	PDMS-1										
		PDMS-2										
		PDMS-3										
		PDMS-4	wt%	1	1	5		1	1	1		
		PDMS-5										
		PDMS-6										
		PDMS-7					1					
評価結果	PC-POS共重合体	加熱処理後 原料混合物	全光線透過率 ヘイズ値	% wt%	78.5 —	79.1 93.2	63.2 92.1	79.5 93.1	81.1 88.9	80.1 90.1	78.5 89.9	79.9 88.5
		式(1)ポリオルガノシロキサン 粘度平均分子量	wt%	0.87	0.88	4.01	0.87	0.89	0.86	0.87	0.87	0.88
		M <sub>v</sub>	M <sub>v</sub>	15,100	15,300	15,100	15,300	14,900	14,900	15,100	15,000	
		全光線透過率(1mm) ヘイズ値	% wt%	51.1 —	52.7 99.3	41.0 99.6	51.2 98.2	50.1 98.5	51.6 99.2	49.9 98.2	53.1 97.5	
		ヘキサン抽出分量 [POS-Mh]/[POS-Ml]	ppm kJ/m <sup>2</sup>	178 —	166 0.20	341 0.25	167 0.17	171 0.21	168 0.25	166 0.22	171 0.23	
		シャルビー衝撃強度(ヶチ有)	kJ/m <sup>2</sup>	14.2	6.1	6.8	6.2	6.0	6.3	6.3	6.4	

\*ポリオルガノシロキサン(B)のwt%は、得られるPC-POS共重合体質量(理論値)に含まれる、仕込みポリオルガノシロキサン(B)の量を示す。当該数値は、下式により求めた。  
PC-POS共重合体質量(理論値) = 全ジオールモノマー質量 + 炭酸ジエステル質量 + ポリオルガノシロキサン質量(B) - 生成フェノール質量(炭酸ジエステルの2倍モル量のフェノール)

## フロントページの続き

## (51)国際特許分類

C 08 K	7/06 (2006.01)	F I	C 08 K	7/06
C 08 K	7/14 (2006.01)		C 08 K	7/14

東京都千代田区大手町一丁目2番1号 出光興産株式会社内

審査官 佐藤 のぞみ

## (56)参考文献

特開2008-248262 (JP, A)  
特開2018-135540 (JP, A)  
国際公開第2016/203916 (WO, A1)  
国際公開第91/000885 (WO, A1)  
国際公開第2019/124556 (WO, A1)  
特開2013-049872 (JP, A)  
特開平09-095536 (JP, A)  
国際公開第2021/112260 (WO, A1)  
国際公開第2021/112257 (WO, A1)

(58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)

C 08 G 64/00 - 64/42  
C 08 G 77/00 - 77/62  
C 08 L 69/00  
C 08 L 83/00 - 83/16  
C 08 K 3/00 - 13/08  
C A p l u s / R E G I S T R Y (S T N)