

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2011-122157

(P2011-122157A)

(43) 公開日 平成23年6月23日(2011.6.23)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
C O 8 L 69/00 (2006.01)	C O 8 L 69/00	4 J 0 0 2
C O 8 L 53/00 (2006.01)	C O 8 L 53/00	4 J 0 2 9
C O 8 G 64/06 (2006.01)	C O 8 G 64/06	

審査請求 未請求 請求項の数 13 O L 外国語出願 (全 52 頁)

(21) 出願番号	特願2010-276984 (P2010-276984)	(71) 出願人	504037346
(22) 出願日	平成22年12月13日 (2010.12.13)		バイエル・マテリアルサイエンス・アクチ エンゲゼルシャフト
(31) 優先権主張番号	10 2009 058 100.6		Bayer Material Science AG
(32) 優先日	平成21年12月12日 (2009.12.12)		ドイツ連邦共和国デー 5 1 3 6 8 レーフ エルクーゼン
(33) 優先権主張国	ドイツ (DE)	(74) 代理人	100081422
			弁理士 田中 光雄
		(74) 代理人	100101454
			弁理士 山田 卓二
		(74) 代理人	100088801
			弁理士 山本 宗雄
		(74) 代理人	100126789
			弁理士 後藤 裕子

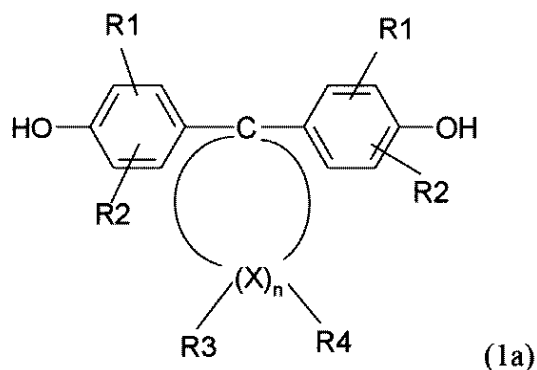
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 改良された機械的特性を有するポリカーボネート組成物

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】高い耐熱変形性、改良された曲げ疲れ強さを有するポリカーボネート組成物を提供する。

【解決手段】(A) 式(1a)で表される1以上の環状脂肪族ビスフェノールに基づく少なくとも1種のポリカーボネート、82～99.5重量%、および(B)少なくとも一つのエチレンアルキルアクリレートブロックコポリマー、0.5～18重量%を含有するポリカーボネート組成物。



10

【選択図】 なし

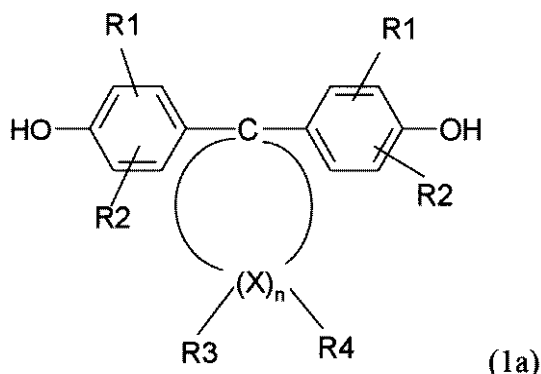
20

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

A) 耐熱変形性を有し、式 (1a) :

【化 1】



10

[式中、R₁およびR₂は互いに独立して、水素、ハロゲン、C₁~C₈アルキル、C₅~C₆シクロアルキル、フェニル、またはC₇~C₁₂アラルキルであり、nは4~7の整数であり、R₃およびR₄は各Xで個々に選択的であり、互いに独立して、水素またはC₁~C₆アルキルであり、Xは炭素であり、ただし、少なくとも1つのXについて、R₃およびR₄は同時にアルキルである。]

20

で表される1以上の環状脂肪族ビスフェノールに基づく少なくとも1種のポリカーボネート、成分AおよびBの総重量部にそれぞれ基づいて82~99.5重量%、および

B) 少なくとも一つのエチレンアルキルアクリレートブロックコポリマー、成分AおよびBの総重量部にそれぞれ基づいて、0.5~18重量%

を含有するポリカーボネート組成物。

【請求項 2】

R₁およびR₂は互いに独立して、塩素、臭素、メチル、フェニル、または水素であり、nは4または5である請求項1記載のポリカーボネート組成物。

【請求項 3】

成分AがビスフェノールAおよびビスフェノールTMCのコポリカーボネートを含有する請求項1記載のポリカーボネート組成物。

30

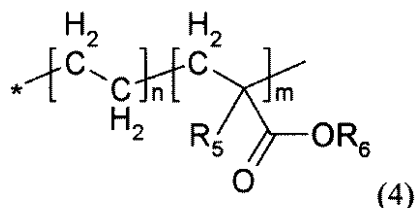
【請求項 4】

組成物が成分AおよびBの総重量部に各々基づいて、成分A 89~99重量部および成分B 1~11重量部を含有する請求項1記載のポリカーボネート組成物。

【請求項 5】

成分Bのエチレンアルキル(メタ)アクリレートコポリマーが式(4) :

【化 2】



40

[式中、R₅はメチルまたは水素であり、R₆は水素またはC₁~C₁₂アルキル基であり、nおよびmは重合度である。]

で表されるエチレンアルキル(メタ)アクリレートブロックコポリマーである請求項1記載のポリカーボネート組成物。

【請求項 6】

R₆がメチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、sec-ブチル、t-ブチ

50

ル、イソブチル、ヘキシル、イソアミル、または *tert*-アミルである請求項 5 記載のポリカーボネート組成物。

【請求項 7】

重合度 n : 重合度 m の比が $1 : 300 \sim 90 : 10$ の範囲である請求項 5 記載のポリカーボネート組成物。

【請求項 8】

さらに、成分 A および B の総重量部に基づいて、成分 C として添加剤 0 ~ 5 重量部含有する請求項 1 記載のポリカーボネート組成物。

【請求項 9】

請求項 1 記載のポリカーボネート組成物から得られた成形品、押出物、フィルムまたはフィルムラミネート。

10

【請求項 10】

少なくとも一つのポリカーボネートがコポリカーボネートである、請求項 1 記載のポリカーボネート組成物から得られた共押出層を含有する成形品、押出物またはフィルム。

【請求項 11】

成形品、押出物、フィルムまたはフィルムラミネートが電子デバイスまたは装置のハウジング部品、工具ハウジング、携帯電話、加熱 / 排気パネル、タコメーターのディスク、装備ダイヤル、パネル、電気または電子デバイスのキーボード、レンズ、スクリーン / ディスプレーカバー、LED 用途、または自動車シート用フィルムである請求項 10 記載の成形品、押出物、フィルムまたはフィルムラミネート。

20

【請求項 12】

電子デバイスまたは装置がスイッチボックスである請求項 11 記載の電子デバイスまたは装置のハウジング部品。

【請求項 13】

界面法による一以上ポリカーボネートを配合する工程を含む請求項 1 記載のポリカーボネート組成物の調製方法。

【発明の詳細な説明】

【関連出願】

【0001】

本願は 2009 年 12 月 12 日に出願されたドイツ特許出願 1020009058100.6 の利益を主張し、その全てをこの出願の中に導入する。

30

【従来技術】

【0002】

本発明は、高温で安定な少なくとも一つのポリカーボネートおよび少なくとも一つのエチレンアルキルアクリレートブロックコポリマーを含有する組成物に関する。本願はまた、これらの組成物から得られる成形物または射出成形物品および押出物、ポリカーボネート組成物を調製する方法および成形物や押出物に関する。これらのポリカーボネート組成物は、高い熱安定性ととも、組成物から得られた材料から製造されるフィルムの曲げ疲れ強さが改良される点で優れている。

【0003】

40

自動車のシートでは、エアバッグの発射を制御できるフィルムを使用している。即ち人の重さやシート位置に応じてエアバッグが選択的に発射されるものである。これらのフィルムは高温に安定ななければならない、導電性ペーストを印刷してもかなり高い乾燥温度を用いることができる。シート表面の曲げ応力により、フィルムは耐曲げ性に関して特定の要求を付加的に満足しなければならない（曲げ疲れ強さ、ISO 5625 によるショッパー（Schopper）に基づく折り曲げ数（double fold number）によって決定）。

【0004】

フィルムの基材として高温に安定なポリカーボネートを使用することは知られている。これらの製品は、バイエルマテリアルサイエンス AG から Bayfol^R 1202 として入手可能であり、例えば拡声器膜に使用されている。

50

【 0 0 0 5 】

これらのフィルムは、その高い熱安定性の為に、上記の用途に好適であるが、耐屈曲性が不十分でもある。

【 0 0 0 6 】

エラストマーの添加によるポリマーの期待的特性を改善することも知られている。

【 0 0 0 7 】

例えば、WO 2 0 0 6 / 0 1 5 7 0 A 1 (特許文献 1) には、ポリカーボネートに 0 . 1 ~ 5 0 重量 % のエチレン - アルキルアクリレートコポリマーを混合したものが記載されている。この公報の材料は他の特性を保持したまま、高い流れ特性と高い衝撃強さを有している。しかしながら、この公報には、所望の用途に必要な高温での安定なポリカーボネートについては記載がない。この公報には折り曲げ数の改善は教示されていない。

10

【 0 0 0 8 】

WO 2 0 0 6 / 0 4 2 6 3 8 A 1 には、エチレン - アルキルアクリレートコポリマーとエチレン / ブチルアクリレート / グリシジルメタクリレートターポリマーとの組合せに変性剤を添加することによるポリカーボネート / A B S ブレンドの改良が開示されている。この公報にも、本発明の組成物における高温で安定なポリカーボネートについての記載はない。

【 0 0 0 9 】

E P 3 6 2 6 4 6 A 2 には、エラストマーと共に高い耐熱変形性を有するポリカーボネート組成物を記載する。しかし折り曲げ数に関する改良特性は記載されていない。この公報は、特に、本発明の用途における特定の変性剤が所望の目的をもたらすとの示唆を記載していない。

20

【 0 0 1 0 】

D E 4 0 0 9 7 5 9 A 1 には、より優れた相溶性を示す混合物を提供する方法として、高い耐熱変形性を有するポリプロピレンとポリカーボネートとの混合を開示する。

【 0 0 1 1 】

E P 7 2 2 9 8 4 A 2 には、高温で安定なポリカーボネートとエチレン、アクリレートおよびエポキシ官能性モノマーのターポリマーとの混合物が開示されている。ここでの効果は、ポリカーボネートの応力亀裂抵抗および衝撃強さの改善であり、耐熱変形性は保持されている。しかしながら、この出願は異なる特性の組成を記載している。

30

【 0 0 1 2 】

この出願では、ポリカーボネート組成物 (またはブレンド) は、添加剤を必要に応じて添加してもよい 2 種以上のポリカーボネートの混合物を意味するものと理解される。

【 先行技術文献 】

【 特許文献 】

【 0 0 1 3 】

【 特許文献 1 】 WO 2 0 0 6 / 0 1 5 7 0 A 1

【 特許文献 2 】 WO 2 0 0 6 / 0 4 2 6 3 8 A 1

【 特許文献 3 】 E P 3 6 2 6 4 6 A 2

【 特許文献 4 】 D E 4 0 0 9 7 5 9 A 1

【 特許文献 5 】 E P 7 2 2 9 8 4 A 2

40

【 発明の概要 】

【 発明が解決しようとする課題 】

【 0 0 1 4 】

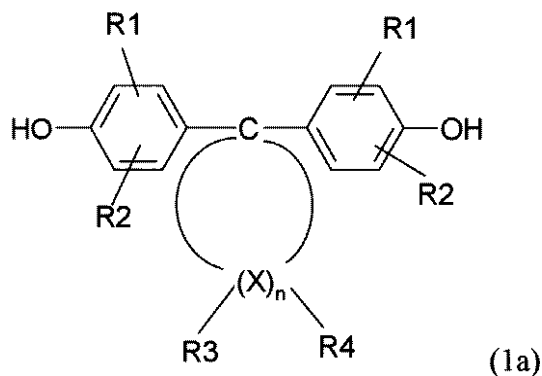
従来技術から出発して、高い耐熱変形性を有するポリカーボネート組成物を提供することが目的であり、その組成物改良された曲げ疲れ強さを有している。

【 課題を解決するための手段 】

【 0 0 1 5 】

本発明は、A) 高い耐熱変形性を有し、式 (1 a) :

【化 1】



10

〔式中、R 1 および R 2 は互いに独立して、水素、ハロゲン、C₁ ~ C₈ アルキル、C₅ ~ C₆ シクロアルキル、フェニル、または C₇ ~ C₁₂ アラルキルであり、n は 4 ~ 7 の整数であり、R 3 および R 4 は各 X で個々に選択的であり、互いに独立して、水素または C₁ ~ C₆ アルキルであり、X は炭素であり、ただし、少なくとも 1 つの X について、R 3 および R 4 は同時にアルキルである。〕

で表される 1 以上の環状脂肪族ビスフェノールに基づく少なくとも 1 種のポリカーボネート、成分 A および B の総重量部にそれぞれ基づいて 82 ~ 99.5 重量%、および

B) 少なくとも一つのエチレン - アルキルアクリレートブロックコポリマー、成分 A および B の総重量部にそれぞれ基づいて、0.5 ~ 18 重量%を含有するポリカーボネート組成物を提供する。

20

【0016】

本発明の別の態様では、上記のポリカーボネート組成物において、R 1 および R 2 が、互いに独立して、塩素、臭素、メチル、フェニルまたは水素であり、n が 4 または 5 であるものである。

【0017】

本発明の別の態様では、成分 A がビスフェノール A およびビスフェノール TMC のコポリカーボネートを含有する上記組成物を提供する。

【0018】

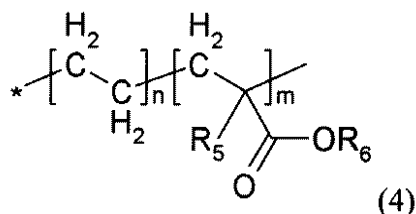
本発明の更に別の態様は、組成物が成分 A 89 ~ 99 重量部および成分 B 1 ~ 11 重量部（重量部は成分 A および成分 B の合計量に基づく）を含有する上記組成物を提供する。

30

【0019】

本発明の別の態様は、成分 B のエチレン - アルキル(メタ)アクリレートコポリマーが式(4)：

【化 2】



40

〔式中、R₅ はメチルまたは水素であり、R₆ は水素または C₁ ~ C₁₂ アルキル基であり、n および m は重合度である。〕

で表されるエチレン - アルキル(メタ)アクリレートブロックコポリマーである上記ポリカーボネート組成物を提供する。

【0020】

本発明の別の態様は、R₆ がメチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、sec - ブチル、t - ブチル、イソブチル、ヘキシル、イソアミル、または t - アミルである

50

上記のポリカーボネート組成物を提供する。

【0021】

本発明の別の態様は、重合度 n : 重合度 m の比が $1 : 300 \sim 90 : 10$ の範囲である上記のポリカーボネート組成物を提供する。

【0022】

本発明の別の態様は、さらに、成分 A および B の総重量部に基づいて、成分 C として添加剤 $0 \sim 5$ 重量部含有する上記のポリカーボネート組成物を提供する。

【0023】

本発明の別の態様は、上記のポリカーボネート組成物から得られた成形品、押出物、フィルムまたはフィルムラミネートを提供する。

10

【0024】

本発明の別の態様は、少なくとも一つのポリカーボネートがコポリカーボネートである、上記のポリカーボネート組成物から得られた共押出層を含有する成形品、押出物またはフィルムを提供する。

【0025】

本発明の別の態様は、成形品、押出物、フィルムまたはフィルムラミネートが電子デバイスまたは装置のハウジング部品、工具ハウジング、携帯電話、加熱 / 排気パネル、タコメーターのディスク、装備ダイヤル、パネル、電気または電子デバイスのキーボード、レンズ、スクリーン / ディスプレーカバー、LED 用途、または自動車シート用フィルムである上記の成形品、押出物、フィルムまたはフィルムラミネートを提供する。

20

【0026】

本発明の別の態様は、電子デバイスまたは装置がスイッチボックスである上記の電子デバイスまたは装置のハウジング部品を提供する。

【0027】

本発明の別の態様は、界面法による一以上ポリカーボネートを配合する工程を含む上記のポリカーボネート組成物の調製方法を提供する。

【発明の効果】

【0028】

驚くべきことに、エラストマー状変性剤（モノマーの一つとしてエチレンを有するエラストマー状ブロックコポリマー）を高温で安定なポリカーボネートに添加することが耐熱変形性（ビカー軟化温度 > 165 ）を大きく低下することなく、折り曲げ数（double fold number）を改善することが解った。

30

【0029】

単にエチレン - アルキルアクリレートブロックコポリマーを添加することで、熱安定性に対する高い要求を満足し、得られた材料から製造されるフィルムの曲げ疲れ強さを改善することが可能となった。

【0030】

異なるフィルムの厚さにおいてショッパ（Schopper）による折り曲げ数を決定する曲げ抵抗の測定に置いて、切り欠き衝撃強さ（notched impact strength）に改良は曲げ抵抗の改善と対応していないことが解った。

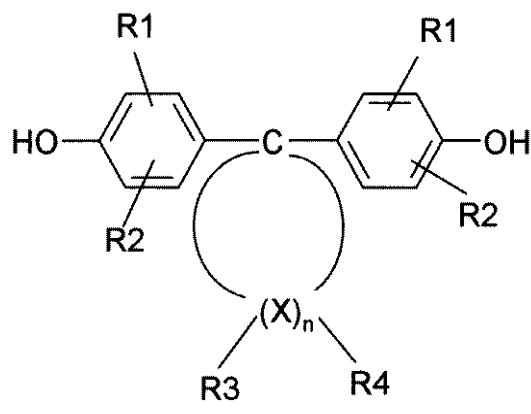
40

【発明を実施するための最良の形態】

【0031】

本発明は、A) 高い耐熱変形性を有し、式（1a）：

【化 3】



10

〔式中、R 1 および R 2 は互いに独立して、水素、ハロゲン（好ましくは塩素または臭素）、C₁～C₈アルキル、C₅～C₆シクロアルキル、フェニル、またはC₇～C₁₂アラルキル、好ましくはメチル、フェニルまたはHで、特にHであり、nは4～7、好ましくは4または5の整数であり、R 3 および R 4 は各 X で個々に選択的であり、互いに独立して、水素またはC₁～C₆アルキルであり、Xは炭素であり、ただし、少なくとも1つのXについて、R 3 および R 4 は同時にアルキル、好ましくはメチルである。〕

で表される1以上の環状脂肪族ビスフェノールに基づく少なくとも1種のポリカーボネート（特に好ましくはビスフェノールAおよびビスフェノールTM Cのコポリカーボネート）、成分AおよびBの総重量部にそれぞれ基づいて82～99.5重量%、好ましくは85～99重量%、および

20

B）少なくとも一つのエチレン-アルキルアクリレートブロックコポリマー、成分A+Bの重量部にそれぞれ基づいて、0.5～18重量%、好ましくは1～15重量%、特に好ましくは1～11重量%、最も好ましくは1～10重量%、

C）要すれば、添加剤、成分A+Bの重量部にそれぞれ基づいて、0～5重量部、好ましくは0～2重量部、特に好ましくは0～1重量部、を含有するポリカーボネート組成物を提供する。

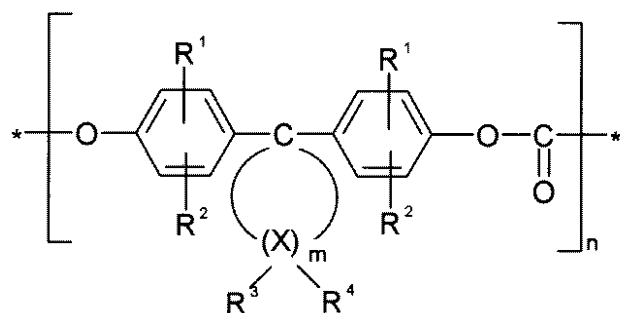
30

【0032】

成分A

適当なポリカーボネートは、好ましくは高分子量、熱可塑性、Mw（重量平均分子量）少なくとも10,000g/molを有する芳香族ポリカーボネートであり、式（1）

【化 4】



40

〔式中、R¹ および R² は互いに独立して、水素、ハロゲン（好ましくは塩素または臭素）、C₁～C₈アルキル、C₅～C₆シクロアルキル、C₆～C₁₀アリール（好ましくはフェニル）、またはC₇～C₁₂アラルキル（好ましくはフェニル-C₁～C₄アルキル、特にベンジル）であり、nは4～7、好ましくは4または5の整数であり、R 3 および R 4 は各 X で個々に選択的であり、互いに独立して、水素またはC₁～C₆アルキルであり、Xは炭素であり、ただし、少なくとも1つのXについて、R³ および R⁴ は同時

50

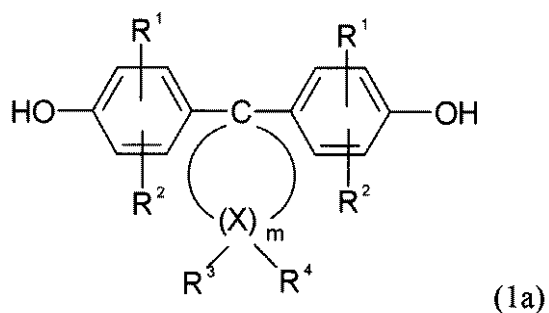
にアルキルである。]

の 2 官能性カーボネート構造ユニットを含む。

【 0 0 3 3 】

ポリカーボネートの出発材料は式 (1 a)

【化 5 】



10

[式中、X、R¹、R²、R³、R⁴ および m は式 (1) に記載のものと同意義である。]

のジヒドロキシジフェニルシクロアルカンである。

【 0 0 3 4 】

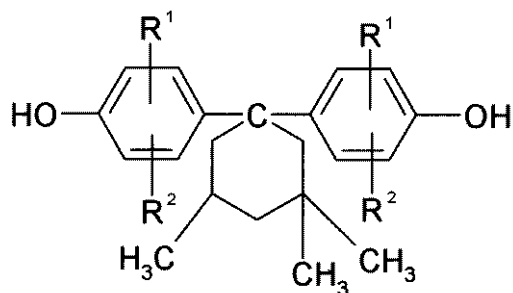
好ましいアルキル基は、メチルであり、ジフェニル置換 C 原子 (C - 1) に対して 位にある X は好ましくはジアルキル置換でないが、一方 C - 1 に対して 位のアルキルジ置換が好ましい。

20

【 0 0 3 5 】

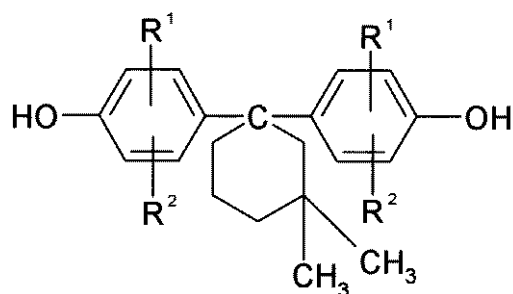
シクロ脂肪族基 (式 (1 a) において m = 4 または 5) における 5 および 6 環炭素原子を有するジヒドロキシジフェニルシクロアルカン、例えば下記式 (1 b) ~ (1 d)

【化 6】



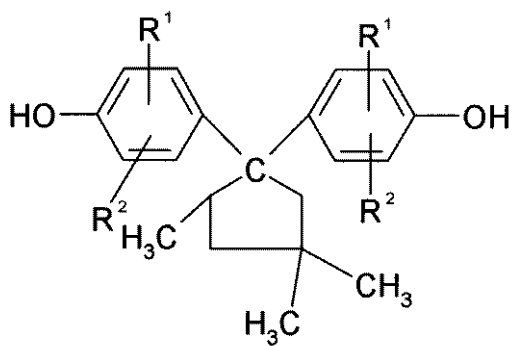
(1b)

10



(1c)

20



(1d)

30

のジフェノールが好ましく、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 (式 (1 b) において R¹ および R² が H のもの) が特に好ましい。ポリカーボネートは、式 (1 a) のジフェノールからドイツ特許出願 D E 3 , 8 3 2 , 3 9 6 A 1 に従って調製されうる。

【 0 0 3 6 】

ホモポリカーボネートの形成には、式 (1 a) の一つのジフェノールを用い、コポリカーボネートの形成には式 (1 a) の複数のジフェノールを使用することが可能である。

【 0 0 3 7 】

また、式 (1 a) のジフェノールは、高分子量、熱可塑性、芳香族ポリカーボネートの調製には、他のジフェノール、例えば式 (2) のもの：



40

との混合物として用いてもよい。

【 0 0 3 8 】

好適な式 (2) の他のジフェノールは、Z が炭素数 6 ~ 3 0 の芳香族基であるものであり、それは一以上の芳香環を有してもよく、置換されてもよく、かつ架橋部として式 (1 a) またはヘテロ原子のもの以外の脂肪族基または環状脂肪族基を有してもよい。

【 0 0 3 9 】

式 (2) のジフェノールの例としては、ヒドロキノン、レゾルシノール、ジヒドロキシビフェニル、ビ (ヒドロキシフェニル) アルカン、ビス (ヒドロキシフェニル) シクロアルカン、ビス (ヒドロキシフェニル) スルフィド、ビス (ヒドロキシフェニル) エーテル

50

、ビス(ヒドロキシフェニル)ケトン、ビス(ヒドロキシフェニル)スルホン、ビス(ヒドロキシフェニル)スルフォキシド、
、
'-ビス(ヒドロキシフェニル)ジイソプロピルベンゼンおよびそれらの核にアルキル化およびハロゲン化された化合物が挙げられる。

【0040】

これらのおよび更に好適なジフェノールは、例えばUS - A 3, 028, 365、2, 999, 835、3, 148, 172、3, 275, 601、2, 991, 273、3, 271, 367、3, 062, 781、2, 970, 131および2, 999, 846；およびDE - A 1, 570, 703、2, 063, 050、2, 063, 052、2, 211, 956；Fr - A 1, 561, 518；モノグラフ、「H. Schnell, Chemistry and Physics of Polycarbonates」Interscience Publishers、ニューヨーク、1964に記載されている。

10

【0041】

好ましい他のジフェノールの例としては、4, 4'-ジヒドロキビフェニル、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 4-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-2-メチルブタン、1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、
、
-ビス(4-ヒドロキシフェニル)-p-ジイソプロピルベンゼン、2, 2-ビス(3-メチル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 2-ビス(3-クロロ-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、ビス(3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)メタン、2, 2-ビス(3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、ビス(3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)スルホン、2, 4-ビス(3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)-2-メチルブタン、1, 1-ビス(3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、
、
-ビス(3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)-p-ジイソプロピルベンゼン、2, 2-ビス(3, 5-ジクロロ-4-ヒドロキシフェニル)プロパンおよび2, 2-ビス(3, 5-ジブromo-4-ヒドロキシフェニル)プロパンが挙げられる。

20

【0042】

式(2)の特に好ましいビスフェノールの例としては、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 2-ビス(3, 5-ジメチル-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 2-ビス(3, 5-ジクロロ-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、2, 2-ビス(3, 5-ジブromo-4-ヒドロキシフェニル)プロパン、および1, 1-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキサンが挙げられる。

30

【0043】

特に、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパンが好ましい。他のフェノール類も個別にまたは混合物として使用してもよい。

【0044】

式(1a)のジフェノールと要すれば同時に使用してもよい式(2)の他のジフェノールとのモル比(式(1a)/式(2))は(1a)100モル%/ (2)0モル%~ (1a)2モル%/ (2)98モル%；好ましくは(1a)100モル%/ (2)0モル%~ (1a)10モル%/ (2)90モル%；および特に(1a)100モル%/ (2)0モル%~ (1a)30モル%/ (2)70モル%であるべきである。

40

【0045】

式(1a)のジフェノール、要すれば他のジフェノールとの組み合わせから得られる高分子量ポリカーボネートは公知のポリカーボネートの調製方法によって得られうる。種々のジフェノールは、互いにランダムにまたはブロック的に結合していてもよい。

【0046】

本発明によるポリカーボネートは、それ自体公知の方法で分岐してもよい。分岐が望ましいのならば、少量、好ましくは0.02~2.0モル%(使用されるフェノールの量に基づく)の三官能若しくは三官能以上の化合物、特に3以上のフェノール性水酸基を有す

50

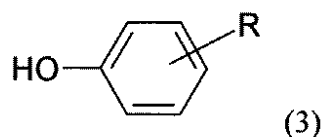
るものを導入して縮合により分岐を公知の方法で達成してもよい。3以上のフェノール性水酸基を有する分岐剤は、フロログルシノール、4,6-ジメチル-2,4,6-トリ(4-ヒドロキシフェニル)ヘプタン-2-エン、4,6-ジメチル-2,4,6-トリ(4-ヒドロキシフェニル)ヘプタン、1,3,5-トリ(4-ヒドロキシフェニル)ベンゼン、1,1,1-トリ(4-ヒドロキシフェニル)エタン、トリ(4-ヒドロキシフェニル)フェニルメタン、2,2-ビス[4,4-ビス(4-ヒドロキシフェニル)シクロヘキシル]プロパン、2,4-ビス(4-ヒドロキシフェニルイソプロピル)フェノール、2,6-ビス(2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル)-4-メチルフェノール、2-(4-ヒドロキシフェニル)-2-(2,4-ジヒドロキシフェニル)プロパン、ヘキサ[4-(4-ヒドロキシフェニルイソプロピル)フェニル]オルトテレフタル酸エステル、テトラ(4-ヒドロキシフェニル)メタン、テトラ[4-(4-ヒドロキシフェニルイソプロピル)フェノキシ]メタンおよび1,4-ビス[4',4"-ジヒドロキシトリフェニル]メチル]ベンゼンが例示される。他の三官能化合物は、2,4-ジヒドロキシ安息香酸、トリメシン酸、塩化シアヌル酸および3,3-ビス(3-メチル-4-ヒドロキシフェニル)-2-オキソ-2,3-ジヒドロインドールが挙げられる。

10

【0047】

通常の濃度における単官能化合物はポリカーボネートの分子量の制限(制限自体は公知である。)用の連鎖停止剤として機能する。好適な化合物の例としては、フェノール、t-ブチルフェノールまたは他のアルキル置換フェノールである。特に、少量の式(3)

20



(式中、Rは分岐C₈-および/またはC₉-アルキル基を表す。)のフェノールが分子量の制限に好適である。

【0048】

アルキル基Rにおいて、CH₃のプロトンの割合は、好ましくは47~89%であり、CHおよびCH₂のプロトンの割合は53~11%である。また、好ましくは、RはOH基に対してo-および/またはp-位に存在し、特に好ましくはオルト部分の上限は20%である。連鎖停止剤は一般に使用されるジフェノールに基づいて、0.5~10モル%、好ましくは1.5~8モル%である。

30

【0049】

ポリカーボネートは公知の方法における相境界法(H. Schnell、「ポリカーボネートの化学および物理」、ポリマー・レビュー、第IX冊、第33頁以降、Interscience Publ. 1964年参照)により調製されてもよい。

【0050】

ここで、式(1a)のジフェノールは、水性アルカリ相に溶解されている。コポリカーボネートの他のジフェノールでの調製において、式(1a)のジフェノールおよび他のジフェノール、例えば式(2)のものの混合物が使用される。分子量の調整には、連鎖停止剤、例えば式(3)のものを加えることもできる。次いで、ホスゲンとの反応を不活性有機相、好ましくはポリカーボネート溶解有機相の存在下に相境界凝縮法によって行われる。反応温度は0~40℃である。

40

【0051】

要すれば付随的に使用された分岐剤(好ましくは0.05~2.0モル%)は最初にアルカリ水相にジフェノールと導入するか、ホスゲン化の前に有機溶媒中に溶液において添加してもよい。式(1a)のジフェノールおよび他のジフェノール(1a)の添加において、そのモノ-および/またはビスクロロカルボン酸エステルもまた、付随的に使用してもよく、これらは有機相に溶液で添加する。連鎖停止剤および分岐剤の量は、式(1a)

50

および要すれば式(2)に対応するジフェノレート基のモル量に依存する。クロロカルボン酸エステルの付随的な使用については、ホスゲンの量は公知の方法で減少されうる。

【0052】

連鎖停止剤、分岐剤およびクロロカルボン酸エステルの為の好適な有機溶媒は、例えば、塩化メチレン、クロロベンゼン、特に塩化メチレンとクロロベンゼンの混合物である。要すれば、使用される連鎖停止剤および分岐剤は上記溶媒中に溶解されうる。

【0053】

例えば、塩化メチレン、クロロベンゼンおよび塩化メチレンとクロロベンゼンの混合物は相境界ポリ縮合用の有機相として使用される。

【0054】

例えば、NaOH溶液は水性アルカリ相として使用する。ポリカーボネートの相境界法による調製は一般的に触媒、例えば第3級アミン、特に第3級脂肪族アミン、例えばトリブチルアミンまたはトリエチルアミンを用いて行われる。触媒は使用するジフェノールのモルに基づいて、0.05～10モル%の量で使用される。触媒はホスゲン化の始まる前、ホスゲン化の間若しくはその後も添加される。

【0055】

ポリカーボネートは均一相における公知の方法、いわゆる「ピリジン法」および、ホスゲンの代わりにジフェニルカーボネートを使用する公知の溶融トランスエステル法によって調製してもよい。

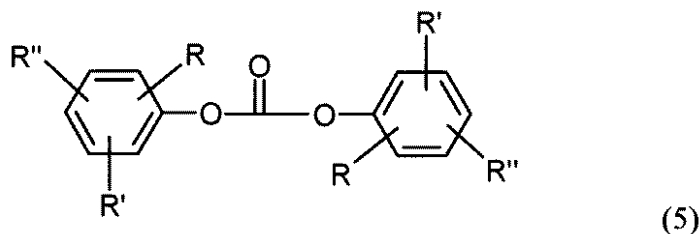
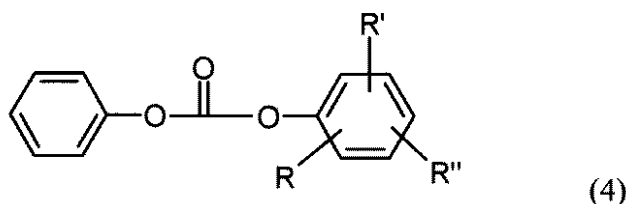
【0056】

別の溶融トランスエステル法において、相境界法のために既に記載した芳香族ジヒドロキシ化合物が適当な触媒および要すれば溶融物中の添加剤によってカルボン酸ジエステルでトランスエステル化される。

【0057】

本発明において、カルボン酸ジエステルは、式(4)および(5)

【化8】



(式中、R、R'およびR''はそれぞれ独立して、H、要すれば分岐C₁～C_{3,4}-アルキル/シクロアルキル、C₇～C_{3,4}アルカリールまたはC₆～C_{3,4}アリールを示してもよい。)

を有するもの、例えばジフェニルカーボネート、ブチルフェニルフェニルカーボネート、ジブチルフェニルカーボネート、イソブチルフェニルフェニルカーボネート、ジイソブチルフェニルカーボネート、t-ブチルフェニルフェニルカーボネート、ジ-t-ブチルフェニルカーボネート、n-ペンチルフェニルフェニルカーボネート、ジ(n-ペンチルフェニル)カーボネート、n-ヘキシルフェニルフェニルカーボネート、ジ(n-ヘキシルフェニル)カーボネート、シクロヘキシルフェニルフェニルカーボネート、ジシクロヘキ

シルフェニルカーボネート、フェニルフェノールフェニルカーボネート、ジフェニルフェノールカーボネート、イソオクチルフェニルフェニルカーボネート、ジイソオクチルフェニルカーボネート、*n*-ノニルフェニルフェニルカーボネート、ジ(*n*-ノニルフェニル)カーボネート、クミルフェニルフェニルカーボネート、ジクミルフェニルカーボネート、ナフチルフェニルフェニルカーボネート、ジナフチルフェニルカーボネート、ジ-*t*-ブチルフェニルフェニルカーボネート、ジ(ジ-*t*-ブチルフェニル)カーボネート、ジクミルフェニルフェニルカーボネート、ジ(クミルフェニル)カーボネート、4-フェノキシフェニルフェニルカーボネート、ジ(4-フェノキシフェニル)カーボネート、3-ペンタデシルフェニルフェニルカーボネート、ジ(3-ペンタデシルフェニル)カーボネート、トリチルフェニルフェニルカーボネート、ジトリチルフェニルカーボネート、好ましくはジフェニルカーボネート、*t*-ブチルフェニルフェニルカーボネート、ジ-*t*-ブチルフェニルカーボネート、フェニルフェノールフェニルカーボネート、ジフェニルフェノールカーボネート、クミルフェニルフェニルカーボネート、ジクミルフェニルフェニルカーボネート、特に好ましくはジフェニルカーボネートである。

10

【0058】

上記カルボン酸ジエステルの混合物も使用可能である。

【0059】

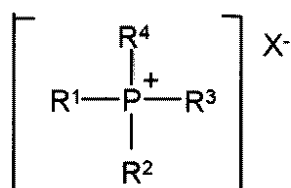
カルボン酸ジエステルの量はジヒドロキシ化合物に基づいて、100～130モル%、好ましくは103～120モル%、特に好ましくは103～109モル%である。

20

【0060】

塩基性触媒、例えばアルカリ金属およびアルカリ土類金属ヒドロキシドおよびオキシド、またはアンモニウム塩またはホスホニウム塩(以下、オニウム塩と呼ぶ。)を本発明における上記文献に記載の溶融トランスエステル法に触媒として用いる。オニウム塩が好ましくは用いられ、特に好ましくはホスホニウム塩である。本発明においてホスホニウム塩は以下の一般式(6)

【化9】



30

(6)

(式中、 $R^1 - R^4$ は、同一または異なって、 $C_1 \sim C_{10}$ アルキル、 $C_6 \sim C_{10}$ アリール、 $C_7 \sim C_{10}$ アラルキルまたは $C_5 \sim C_6$ シクロアルキル、好ましくはメチルまたは $C_6 \sim C_{10}$ アリール、特に好ましくはメチルまたはフェニルであってよく、 X^- は、アニオン、例えばヒドロキシド、サルフェート、ハイドロジェンサルフェート、ピカーボネート、カーボネート、ハライド、好ましくはクロライド、または式OR(式中Rは $C_6 \sim C_{14}$ アリールまたは $C_7 \sim C_{12}$ アラルキル、好ましくはフェニルである。)のアルコレートであってよい。)

40

のものである。好ましい触媒は、テトラフェニルホスホニウムクロライド、テトラフェニルホスホニウムヒドロキシド、テトラフェニルホスホニウムフェノレート、特に好ましくはテトラフェニルホスホニウムフェノレートである。

【0061】

触媒はジフェノール1モルにもとづいて、 $10^{-8} \sim 10^{-3}$ モル、特に好ましくは $10^{-7} \sim 10^{-4}$ モルの量で用いられる。

【0062】

更に、触媒は単独、若しくは重合率を上げるためにオニウム塩を必要に応じて添加してもよい。これらには、アルカリ金属およびアルカリ土類金属の塩、例えばリチウム、ナト

50

リウムおよびカリウムのヒドロキシド、アルコキシドおよびアリアルオキシド、好ましくはナトリウムのヒドロキシド、アルコキシドまたはアリアルオキシドを包含する。最も好ましくはナトリウムヒドロキシドおよびナトリウムフェノレートである。共触媒の量はナトリウムとして計算して、1 ~ 200 p p b、好ましくは5 ~ 150 p p b、最も好ましくは10 ~ 125 p p bであってよい。

【0063】

芳香族ジヒドロキシ化合物およびカルボン酸ジエステルの溶融中でのトランスエステル反応は好ましくは2段階でおこなわれる。最初の段階では、芳香族ジヒドロキシ化合物およびカルボン酸ジエステルを80 ~ 250、好ましくは100 ~ 230、特に好ましくは120 ~ 190で、大気圧下0 ~ 5時間、好ましくは0.25 ~ 3時間で溶融化が行われる。触媒を添加した後、オリゴカーボネートが芳香族ジヒドロキシ化合物とカルボン酸ジエステルから真空(2 mmHgまで)中昇温(260まで)下モノフェノールの蒸留によって調製される。このプロセスから主な蒸気がここでおこる。このように調製されたオリゴカーボネートは重量平均分子量(ジクロロメタン中での相対溶液粘度またはフェノール/o-ジクロロベンゼンの等重量の混合物中での相対溶液粘度を測定して、光散乱によって補正して決定される。)2000 g / モル ~ 18000 g / モル、好ましくは4000 g / モル ~ 15000 g / モルの範囲を有する。

10

【0064】

第2段階では、ポリカーボネートは、温度250 ~ 320、好ましくは270 ~ 295で、圧力< 2 mmHgで、ポリ縮合間で調製される。プロセスからの蒸気の手残りはここで取り除く。

20

【0065】

触媒は互いに2以上を組み合わせて使用してもよい。

【0066】

アルカリ金属およびアルカリ土類金属触媒の使用では、アルカリ金属およびアルカリ土類金属触媒を後に(例えば、第2段階でのポリ縮合におけるオリゴカーボネート合成の後)添加するのが有利である。

【0067】

芳香族ジヒドロキシ化合物およびカルボン酸ジエステルのポリカルボン酸を与える反応は、本発明の方法ではバッチであるいは好ましくは連続的に、例えば攪拌タンク、薄層エバポレーター、落下フィルムエバポレーター、攪拌タンクカスケード、押出機、ニーダー、単純ディスク反応器および高粘度ディスク反応器で行ってもよい。

30

【0068】

分岐ポリ-またはコポリカーボネートは多官能性化合物を用いて相境界法で同様に調製される。

【0069】

ポリカーボネートは、好ましくは分子量Mw(ゲルクロマトグラフィーによって決定後補正する、重量平均)少なくとも10,000 g / モル、特に好ましくは20,000 ~ 300,000 g / モル、就中20,000 ~ 80,000 g / モルを有する。それらは直鎖状または分岐鎖状であってよく、式(1a)のジフェノールに基づくホモポリカーボネートまたはコポリカーボネートである。

40

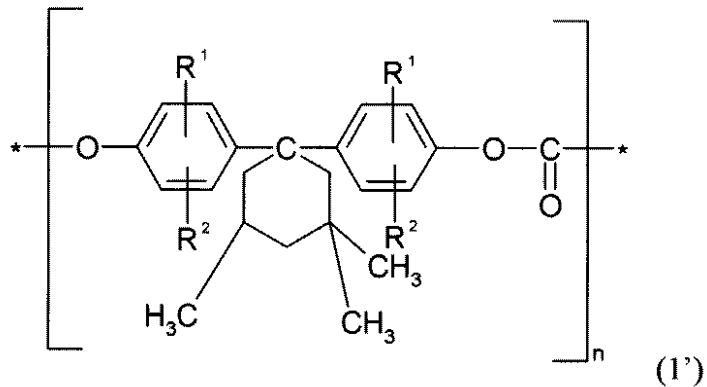
【0070】

式(1a)のジフェノールを導入することによって、高い耐熱変形性を有する新規なポリカーボネートが形成され、それらはまた優れた他の特性をも有している。このことは、特に式(1a)のジフェノールにおいて、mが4または5のもの、および同じ式(1a)のジフェノールにおいて、R¹およびR²が互いに独立して式(1a)に記載された意味を有し、特にこのましくは水素であるものに基づくポリカーボネートに特に当てはまる。

【0071】

従って、特に好ましいポリカーボネートは式(1'):

【化 1 0】



10

(式中、 R^1 および R^2 は式 (1 a) に記載された意味を有し、特に水素である。) を有するユニットを含むものである。

【0072】

式 (1 b) のジフェノールで、 R^1 および R^2 が水素のものに基づくポリカーボネートは高い耐熱変形性に加えて、特に期待はしていなかった溶融時に優れた流れ挙動を示し、ハロゲンを含さない下記の溶媒中で大変優れた溶解性を示す。

【0073】

他のジフェノール、特に式 (2) のものと任意の組成によれば、ポリカーボネートの特性を有利な方法で変化することが可能である。そのようなコポリカーボネートでは、式 (1 a) のジフェノールは、ポリカーボネート中のジフェノールユニット 100 モル%の総量に対して、100 ~ 2 モル%、好ましくは 100 ~ 10 モル%、特に 100 ~ 30 モル%の量で存在する。

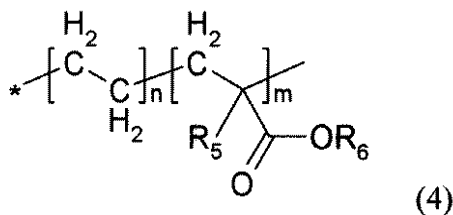
20

【0074】

成分 B

本発明のエチレンーアルキル (メタ) アクリレートブロックコポリマーは一般式 (4) :

【化 1 1】



30

(式中、 R_5 はメチルまたは水素を示してもよく、 R_6 は水素、または $C_1 \sim C_{12}$ アルキル基を示してもよく、 n および m は重合度であり、 R_6 は、好ましくはメチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、*sec*-ブチル、*t*-ブチル、イソブチル、ヘキシル、イソアミルまたは *t*-アミルである。) で記載される。

40

【0075】

エチレンーアルキル (メタ) アクリレートコポリマーはランダム、ブロックまたはマルチブロックコポリマーまたはこれらの構造の混合であってよい。

【0076】

エチレンーアルキル (メタ) アクリレートコポリマーの溶融流れ指数 (2.16 Kg 荷重で 190 で測定) は、好ましくは 0.01 ~ 40 g / (10 分)、特に好ましくは 0.1 ~ 10 g / (10 分) である。

【0077】

50

成分 C

本発明の組成物には、これらの熱可塑性材料に好適な添加剤、例えば、充填剤、UV安定剤、IR安定剤、熱安定剤、荷電制御剤および顔料、着色剤を通常の量で添加しても良い。要すれば、外添離型剤、流れ改良剤および/または防炎剤（例えば、アルキルおよびアリールフォスファイト、フォスフェート、フォスファン、低分子量カルボン酸エステル、ハロゲン化合物、塩、チョーク、石英粉、ガラスファイバーおよびカーボンファイバー、顔料およびその組合せ、そのような化合物は例えば、WO 99 / 55772、第15～25頁および「プラスチック添加剤」、R. GraechterおよびH. Mueller、Hanser Publishers、1983年に記載されている。）を添加することによって、離型性、流れ性能および/または防炎性を改良しても良い。

10

【0078】

適当な添加剤は、「プラスチック用添加剤ハンドブック」、John Murphy、Elsevier、Oxford、1999および「プラスチック添加剤ハンドブック」、Hans Zweifel、Hanser、Munich、2001年に記載されている。

【0079】

適当な抗酸化剤および熱安定剤の例は、アルキル化モノフェノール、アルキルチオメチルフェノール、ヒドロキノンおよびアルキル化ヒドロキノン、トコフェロール、ヒドロキシ化チオジフェニルエーテル、アルキリデンビスフェノール、O-、N-およびS-ベンジル化合物、ヒドロキシベンジル化マロネート、芳香族ヒドロキシベンジル化合物、トリアジン化合物、アクリルアミノフェノール、- (3, 5-ビ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオン酸のエステル、- (5-t-ブチル-4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル) プロピオン酸のエステル、- (3, 5-ジシクロヘキシル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオン酸のエステル、3, 5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル酢酸のエステル、- (3, 5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオン酸のアミド、適当なチオ協力剤、第2抗酸化剤、フォスファイトおよびフォスフォナイト、ベンゾフラノンおよびインドリノンが挙げられる。

20

【0080】

有機フォスファイト、フォスフォネートおよびフォスファンが好ましく、特に有機機が完全にまたは部分的に要すれば置換芳香族基を有するものがこのましい。

30

【0081】

o/mリン酸、完全または部分エステル化フォスフェートまたはフォスファイトが重金属やアルカリ痕跡の中和用の錯化剤として好適である。

【0082】

好適な光安定剤（UV吸収剤）は、2- (2'-ヒドロキシフェニル) ベンゾトリアゾール、2-ヒドロキシベンゾフェノン、置換および非置換安息香酸のエステル、あるキレート、立体的にヒンダードアミン、オキサミドおよび2- (ヒドロキシフェニル) 1, 3, 5-トリアジンまたは置換ヒドロキシアルコキシフェニル、1, 3, 5-トリアゾール、置換ベンゾトリアゾール、例えば2- (2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル) ベンゾトリアゾール、2- (2'-ヒドロキシ-3'5'-ジ-t-ブチルフェニル) ベンゾトリアゾール、2- (2'-ヒドロキシ-3'-t-ブチル-5'-メチルフェニル) -5-クロロベンゾトリアゾール、2- (2'-ヒドロキシ-3'-、5'-t-ブチルフェニル) -5-クロロベンゾトリアゾール、2- (2'-ヒドロキシ-5'-t-オクチルフェニル) ベンゾトリアゾール、2- (2'-ヒドロキシ-3'5'-ジ-t-アミルフェニル) ベンゾトリアゾール、2- [2'-ヒドロキシ-3'- (3'', 4'', 5'', 6''-テトラヒドロフタリミドエチル) -5'-メチルフェニル] ベンゾトリアゾールおよび2, 2'-メチレンビス [4- (1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル) -6- (2H-イル) フェノール] が挙げられる。

40

【0083】

安定剤として、ポリプロピレングリコールは、単独またはスルホンまたはスルホン

50

アミドと組み合わせて、ガンマー線の損害を防止するために用いても良い。

【0084】

これらの安定剤および他の安定剤を個別にまたは組み合わせて用いても良く、ポリマーに前述の形態で添加しても良い。

【0085】

また、加工助剤、例えば離型剤、一般的に長鎖脂肪酸の誘導体を添加しても良い。例えば、ペンタエリスリチルトラステアレートおよびグリセリルモノステアレートが好ましい。これらは単独または混合物として、組成物の質量に基づいて、0.01～1重量%の量で使用される。

【0086】

好適な防炎添加剤はフォスフェートエステル（即ち、トリフェニルフォスフェート）、レゾルシノールジリン酸エステル、ヨウ素含有化合物（例えば、ヨウ素化リン酸エステル、ヨウ素化オリゴカーボネートおよびポリカーボネート）および好ましくはフッ素化有機スルホン酸の塩である。

【0087】

更に、着色剤、例えば有機染料または顔料または無機顔料、IR吸収剤を個別にまたは混合物として、また安定剤、ガラスファイバー、（中空）ガラス球、無機フィラーと組み合わせて添加しても良い。

【0088】

成形材料および成形体の製造

本発明による熱可塑性成形材料は、各成分を公知の方法で混合し、好ましくは溶融物を配合し、一般的なユニット、例えばインターナルニーダー、押出機および2軸スクリー装置中で240～300の温度で溶融物を押し出すことによって製造される。

【0089】

この成分の混合は、公知の方法、例えば連続若しくは同時に約20（室温）またはより高い温度で行っても良い。

【0090】

本発明は、また成形材料の製造方法、成形物の製造における成形材料の使用、および成形物品自体に関する。

【0091】

本発明の成形材料は、種々の成形品の製造に用いられ得る。これらは射出成形、押出成形およびブロー成形によって行われる。成形の更なる形態は、予め製造されたシートやフィルムから熱成形することによって成形品を製造することである。

【0092】

フィルムおよびシートは、例えば成形材料を適当なユニット（例えば、2軸押出機）で溶融し、適当なダイで溶融物を成型することによって製造しても良い。

【0093】

本発明によるポリカーボネートおよびコポリカーボネートは、要すれば他の熱可塑性材料および/または一般の添加剤との混合物として、それを成型して梳毛の成形物および押出物にしたのち、公知のポリカーボネートおよびコポリカーボネートを使用する場合に使用しても良い。それらの特性的特徴の為に、それらはシート、マルチスキンシート、防眩、拡散スクリーン、ランプカバーまたは光学データ保持材、例えばCD、CD-R(W)、DVD、DVD-R(W)等の基材材料として好適であり、また電子部品のフィルム、自動車用構造体の成形物および安全セクターのカバーのシートとして使用しても良い。さらに本発明のポリカーボネートの可能な用途は、電子デバイスや装置のハウジング部品、例えばスイッチボックス、ツールハウジング、携帯電話、加熱/ベンチレーションパネル、タコグラフディスク、装置ダイヤル、電子および電気デバイスのパネルやキーボード、レンズ、スクリーン/ディスプレイカバーおよびLED用途および自動車シート用フィルムである。

【0094】

10

20

30

40

50

上記に記載した文献のすべては、そのすべての部分をこの明細書中に導入する。

【0095】

本発明を実施する特定の構造を示し、記載するが、当業者は、その部分の種々の変形や再配置を本発明の概念の精神と範囲から逸脱することなく、することが可能であり、それはまた以下に示しかつ記載された特定の形態に限定されるものではない。

【実施例】

【0096】

配合

配合用装置は以下のものからなる：

配合 A：成分秤量装置

スクリー直径 25 mm (ZE 25 / 5) を有するバーストルフ (Berstorff) からの共回転ツインスクリーニードー

溶融押出物の成形用ダイ

押出物を冷却および固化する水浴

ペレット化機

配合 B：成分秤量装置

スクリー直径 32 mm (ZE 23) を有するクレックストラル (Clextral) からの共回転ツインスクリーニードー

溶融押出物の成形用ダイ (おのおの 3.2 mm の 6 つのホール)

押出物を冷却および固化する水浴

ペレット化機

組成に関する限り、以下に記載する混合物は上記配合装置を用いて調製した。

【0097】

射出成形

機械的特性を調査するのに、対応標準に要求されるテスト標本を射出成形により製造した。各ペレットは乾燥し、真空乾燥オーブン中で 120 で 5 時間処理した。射出成形時の溶融温度は 330 で、金型温度は 120 であった。

【0098】

フィルム押出

フィルム押出 A

厚さ 100 μm を有するフィルムを材料から押し出した。このために、クーネ (Kuhne) からのフィルム押出機を使用し、材料を溶融温度 290 (クーネ 37、「チルロール (chill roll)」) で処理した。

【0099】

フィルム押出 B

厚さ 250 μm を有するフィルムを材料から押し出した。この目的のために、ブレイヤー (Breyer) からのフィルム押出装置を用い、材料を溶融温度 300 で処理した。

【0100】

使用したユニットは以下のとおりである：

- 直径 (D) 105 mm のスクリーおよび 41 × D の長さを有する押出機。スクリーは脱揮発ゾーンを有する。

- 25 D 長さおよび直径 35 mm のスクリーを有するカバー層を適用するための共押出機

- 幅 1500 mm を有する特定共押出スロットダイ

- 水平ロール配置を有するスリーロールカレンダーで、第 3 ロールは水平に対して ± 45° にピボットされる。

- ロールコンベヤー

- 保護層を両側に適用する装置

- テークオフ装置

- 巻きつけ位置

【 0 1 0 1 】

ベース材料のペレットを押出機のフィードホッパーに供給した。各シリンダー / スクリュープラスチックケーティングシステムにおいて、各材料の溶融および移動を行う。ダイから、溶融物をカレンダーに移動し、そのロールは表 1 に示した温度を有する。カレンダー上で、最終の成形と材料の冷却を行う。その後、フィルムをテークオフから移動し、保護フィルムを両側に適用し、フィルムを巻き上げる。

【 0 1 0 2 】

(表 1)

【 表 1 】

処理パラメーター	フィルム押出 2
	メイン押出機
溶融温度	3 0 0 °C
反射ヘッド温度	2 8 5 °C
ダイ / Z 1 温度	3 0 5 °C
押出スピード	4 5 m i n ⁻¹
ロール 1 温度 (ゴムロール)	2 4 °C
ロール 2 温度	7 2 °C
カレンダースピード	2 1 . 5 m / m i n

10

20

30

【 0 1 0 3 】

機械的テスト

ポリマーおよびポリマー組成物の溶融フロー速度 (M R F) は I S O 1 1 3 3 、 A S T M D 1 2 3 8 で決定し、溶融点は I S O 3 1 4 6 、 A S T M D 3 4 1 8 で決定する。

【 0 1 0 4 】

製造された材料の熱安定性は、 I S O 3 0 6 のビカー軟化温度によってテストされる。

【 0 1 0 5 】

ビカー軟化温度の決定において、プラスチックテスト標本 (8 0 × 1 0 × 4 m m) をホルダー中に挟む。1 m m² の断面および所定の衝撃力を有する平面進入チップを適用する。サンプルに対する最適温度移動および均一増加加熱速度を確保することによって、進入チップがプラスチックテスト標本の表面に深さ 1 m m 侵入した温度を測定する。これが I S O 3 0 6 のビカー軟化温度に対応する。

40

【 0 1 0 6 】

機械特性は切り欠き衝撃力による例でテストされ、テスト I S O 1 7 9 / 1 e A により 2 3 および - 3 0 で行われる。

【 0 1 0 7 】

この目的のために、テスト標本 (8 0 × 1 0 × 4) を標準切り欠き (V 型のノッチ半径 0 . 2 5 m m) を供給し、二つの側サポートする (サポート間隔 6 2 m m) 。衝撃振り子がノッチの高さでテスト標本の中心に当たる。テストユニットは所定の作動能力および所

50

定の衝撃スピードを有する衝撃振り子装置からなる。

【0108】

曲げ疲れ力をショッパー (Shopper) による折り曲げ数で評価した。この目的のために、折り曲げ数は標準環境条件 (23、50% 相対湿度) で ISO 5625 により決定した。

【0109】

折り曲げは、折り曲げ線に沿ってテスト片を完全に両側に移動する。折り曲げ数はテスト片が標準荷重で標準環境条件下に破断をするのに必要な折り曲げ数である。

【0110】

材料

耐熱変形性を有するポリカーボネート：ここでは、耐熱変形性 HDT A159C よび HDT B174C (ISO 75-1、-2 で測定) および ISO 1133 で測定した溶融体積流れ速度 10 ml / (10 分) を有するビスフェノール A およびトリメチルシクロヘキシルビスフェノール (バイエルマテリアル・サイエンス AG、レーフェルクーゼンからの Ape^R 1800) からなるコポリカーボネートを使用した。

【0111】

エチレン - アクリレートコポリマー：ここでは、バッド・ホンブルグのデュボン・ド・ネモース (ドイツ) GmbH からブロックコポリマーを使用した。使用したより詳細は以下の表に記載する。

【0112】

使用されたエチレン - アルキルアクリレートコポリマーの概要

(表 2)

【表 2】

	Elvaloy タイプ	アクリレート	アクリレートの割合 [%]	MFR [g/ (10 分)]	融点 [°C]
実施例 1	1820AC	メチルアクリレート	20	8.0	92
実施例 2	3135EAC	ブチルアクリレート	35	1.5	90
実施例 3	34035EAC	ブチルアクリレート	35	40.0	90
実施例 4	3427AC	ブチルアクリレート	27	4	94

*デュボン・ド・ネモースデータシートによる

【0113】

さらに、比較のため (比較例 1)、テキサス州ヒューストンの Kraton・Polymer・LLC から「Kraton 1651」として入手可能な結合スチレン比 30 ~ 33% (製造者データ、BMS 0407)、溶液粘度 1.5 Pa・s (製造者データ、BMS 0380) および比重 0.91 (ISO 2781 による) を有する直鎖 3 成分ブロックコポリマー (スチレン、エチレン、ブタジエン) を使用した。

【0114】

比較例 2 は、エラストマー添加剤を含まない、ビスフェノール A およびトリメチルシクロヘキシルビスフェノール (バイエルマテリアル・サイエンス AG、レーフェルクーゼン

からの A p e^R 1 8 0 0) からなるコポリカーボネートに対応する。

【 0 1 1 5 】

上記ユニット中に配合することによって、エラストマーコポリマーで高温で安定なポリカーボネートの混合物を表 3 中の組成によって調製した。

【 0 1 1 6 】

(表 3)

実施例と比較例の配合と性能

【 表 3 】

	エラストマー含量 [%]	エラストマー	ビカー [°C]	23℃での切り欠き衝撃度 (破断挙動) [kJ/m ²]	-30℃での切り欠き衝撃度 (破断挙動) [kJ/m ²]
実施例 1	10	Elvaloy 1820 AC	170	54 (強い)	18 (もろい)
実施例 2	10	Elvaloy 3135 EAC	169	51 (強い)	19 (もろい)
実施例 3	10	Elvaloy 34035 EAC	167	41 (強い)	14 (もろい)
実施例 4	10	Elvaloy 3427 AC	173	39 (強い)	17 (もろい)
比較例 1	10	Kraton 1651G	178	35 (強い)	15 (もろい)
比較例 2	10		185 *	11 (もろい) *	11 (もろい) *

10

20

【 0 1 1 7 】

エラストマーの添加 (実施例 4、比較例 1) により、高い耐熱変形性がすべての場合 (ビカー軟化温度 > 165) で得られ、機械的特性 (切り欠き衝撃強さ) が出発材料 (比較例 2) (表 3) と比べてかなりのレベルおよび改善されたレベルが得られた。

【 0 1 1 8 】

厚さ 100 μm (配合 A で調製されたベース材料、フィルム押出 A) および 250 μm (配合 B で調製されたベース材料、フィルム押出 B) を有するフィルムを上記方法によって実施例材料から得た。Schopper による折り曲げ数は、これらのフィルムで測定した (表 4 および表 5 参照) 。

30

【 0 1 1 9 】

(表 4)

100 μm フィルムで測定した折り曲げ数

【 表 4 】

100 μm フィルムでのテスト	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 3	比較例 1
Schopper による折り曲げ数 (押出方向に平行)	4677	4531	3797	3810	582

40

【 0 1 2 0 】

(表 5)

250 μm フィルムで測定した折り曲げ数

【表 5】

250 μ m フィルムでのテスト	実施例 1	実施例 2	比較例 1
Schopper による折り曲げ数 (押出方向に平行)	64.0	74.5	21.9
Shopper による折り曲げ数 (押出方向に直角)	83.6	160	17.0

【0121】

実施例中に示されたように、エチレン - アルキルアクリレートエラストマーの導入だけが、曲げ疲れ強さの改良、ここでは Schopper による折り曲げ数の大きな増加をもたらし、その場合耐室温と - 30 での熱変形性や切り欠き衝撃強さは保持した。この効果は別のエラストマーエチレンコポリマー（比較例 1）では起こらず、非変性のポリカーボネートの場合では、高温で安定であった（比較例 2）。

フロントページの続き

- (72)発明者 ゲーザ・デルン
ドイツ 4 0 2 2 3 デュッセルドルフ、カロリンガーシュトラッセ 5 0 番
- (72)発明者 ハイイツ・ブートライナー
ドイツ 4 7 8 0 0 クレーフェルト、ベテルシュトラッセ 3 9 番
- (72)発明者 ターニャ・カッセル
ドイツ 4 6 1 4 9 オーバーハウゼン、バッハシュトラッセ 5 4 番
- (72)発明者 カルステン・ヴィツケ
ドイツ 4 7 9 1 8 テニスフォルスト、ゲルハルト - ハウプトマン - シュトラッセ 2 5 番
- F ターム(参考) 4J002 BP032 CG001 CG011 DL009 EE037 EE056 EH036 EH098 EH106 EH127
EJ016 EJ027 EJ036 EJ067 EL076 EL096 EN106 EP016 EP027 EU026
EU077 EU167 EU177 EU186 EU187 EV076 EV216 EV259 EV286 EW049
EW066 EW116 EW126 FA049 FA089 FD019 FD057 FD066 FD076 FD139
FD168 GN00 GP00 GQ00
4J029 AA09 AB01 AB07 AC01 AC02 AE01 AE03 AE04 AE05 BD09B
BD09C HC05A HC05B JC631

【 外国語明細書 】

- 1 -

TITLE OF THE INVENTION

Polycarbonate Compositions Having Improved Mechanical Properties

RELATED APPLICATIONS

This application claims benefit to German Patent Application No. 10 2009 058
5 100.6, filed December 12, 2009, which is incorporated herein by reference in its entirety
for all useful purposes.

BACKGROUND OF THE INVENTION

The invention relates to compositions containing at least one (co)polycarbonate
stable at high temperature and at least one ethylene-alkyl acrylate block copolymer. This
10 application furthermore relates to mouldings or injection moulded parts and extrudates
obtainable from these compositions, and to processes for the preparation of the
polycarbonate compositions, and to the mouldings and extrudates. These polycarbonate
compositions are distinguished in that, together with high thermal stability, the flexural
fatigue strength of the films produced from the resulting material is improved.

15 In automobile seats, films via which the triggering of the airbag is controlled are
used: depending on the weight of the person and the seat position, the airbag is selectively
triggered. These films must be stable to high temperatures so that, in printing with
electrically conductive paste, it is possible to use drying temperatures which are as high as
possible. Owing to the bending stress in the seat surface, the film must additionally meet
20 particular requirements regarding the flexing resistance (flexural fatigue strength,
determinable via the double fold number according to Schopper according to ISO 5625).

The uses of polycarbonate stable at high temperature as a base material of films is
known. These products, inter alia obtainable as Bayfol®1202 from Bayer MaterialScience
AG, are used, for example, in loudspeaker membranes.

25 These films are very suitable for the application described above, owing to their
high thermal stability, but the flexing resistance of the products is insufficient.

An improvement in the mechanical properties of polymers by addition of elastomers
is known per se.

- 2 -

For example, WO 2006/01570 A1 describes the mixtures of polycarbonates and 0.1-50% by weight of the ethylene-alkyl acrylate copolymers. The material thus obtained has a high impact strength in combination with high flowability while retaining the other properties. However, this document does not disclose polycarbonates stable at high temperature, which are important for the desired applications. There is no indication of improvement of the double fold numbers in this laid-open application.

WO 2005/042638 A1 describes the improvement of polycarbonate/ABS blends by the addition of modifiers in the compulsory combination of ethylene-alkyl acrylate copolymer with ethylene/butyl acrylate/glycidyl methacrylate terpolymer. Here too, this document does not disclose polycarbonates stable at high temperature in the composition according to the invention.

EP 362 646 A2 describes compositions of polycarbonates having high heat distortion resistance with elastomers. Improved properties with regard to double fold numbers on the other hand are not described. However, this laid-open application gives no indication that the special modifier in the application according to the invention leads to the desired aim.

DE 4009759 A1 describes the mixture of polypropylene with polycarbonates having high heat distortion resistance as a method for producing mixtures having better compatibility.

EP 722 984 A2 describes mixtures of polycarbonate stable at high temperature and terpolymers of ethylene, acrylates and epoxy-functionalized monomers. The effect here is an increase in the stress cracking resistance and impact strength of the polycarbonate while the heat distortion resistance is retained. However, the present application relates to compositions of different nature.

In the context of this application, polycarbonate compositions (or blends) are understood as meaning mixtures of two or more polycarbonates which may optionally be provided with additives.

Starting from the prior art, it was thus the object to develop compositions of polycarbonates which have high heat distortion resistance, said compositions having an improved flexural fatigue strength.

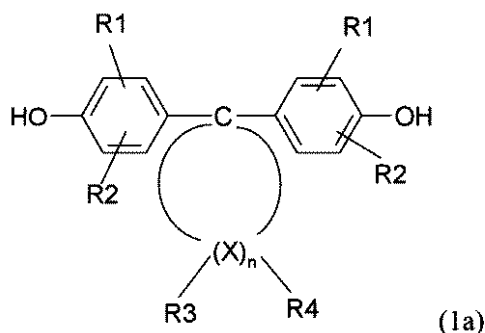
30

EMBODIMENTS OF THE INVENTION

- 3 -

An embodiment of the present invention is a polycarbonate composition comprising:

A) from 82 to 99.5 % by weight, based in each case on the sum of the parts by weight of the components A and B, of at least one polycarbonate having high heat distortion resistance and based on one or more cycloaliphatic bisphenols of Formula (1a)



wherein

R1 and R2 are, independently of one another, hydrogen, halogen, C₁-C₈-alkyl, C₅-C₆-cycloalkyl, phenyl, or C₇-C₁₂-aralkyl,

n is an integer from 4 to 7,

R3 and R4 are selectable for each X individually and are, independently of one another, hydrogen or C₁-C₆-alkyl, and

X is carbon,

with the proviso that, on at least one X, R3 and R4 simultaneously are alkyl;

and

B) from 0.5 to 18 % by weight, based in each case on the sum of the parts by weight of the components A and B, of at least one ethylene-alkyl acrylate block copolymer.

Another embodiment of the present invention is the above polycarbonate composition, wherein R1 and R2 are, independently of one another, chlorine, bromine, methyl, phenyl, or H, and n is 4 or 5.

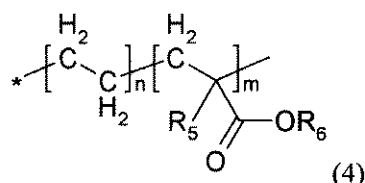
Another embodiment of the present invention is the above polycarbonate composition, wherein component A comprises a copolycarbonate of bisphenol A and bisphenol TMC.

Another embodiment of the present invention is the above polycarbonate composition, wherein said composition contains from 89 to 99 parts by weight of component A and

- 4 -

from 1 to 11 parts by weight of component B, based in each case on the sum of the parts by weight of the components A and B.

Another embodiment of the present invention is the above polycarbonate composition, wherein said ethylene-alkyl (meth)acrylate block copolymer of component B is an
 5 ethylene-alkyl (meth)acrylate block copolymer of formula (4):



wherein

R₅ is methyl or hydrogen,

R₆ is hydrogen or a C₁ to C₁₂ alkyl radical, and

10 n and m are degrees of polymerization.

Another embodiment of the present invention is the above polycarbonate composition, wherein R₆ is methyl, ethyl, propyl, isopropyl, butyl, sec-butyl, tert-butyl, isobutyl, hexyl, isoamyl, or tert-amyl.

Another embodiment of the present invention is the above polycarbonate composition,
 15 wherein the ratio of the degree of polymerization n to degree of polymerization m is in the range of from 1:300 to 90:10.

Another embodiment of the present invention is the above polycarbonate composition, further comprising from 0 to 5 parts by weight, based on the sum of the parts by weight of the components A and B, of additives as component C.

20 Yet another embodiment of the present invention is a shaped article, extrudate, film, or film laminate obtained from the above polycarbonate composition.

Another embodiment of the present invention is the above shaped article, extrudate, or film comprising coextrusion layers obtained from the above polycarbonate composition, wherein said at least one polycarbonate is a copolycarbonate.

25 Another embodiment of the present invention is the above shaped article, extrudate, film, or film laminate, wherein said article, extrudate, film, or film laminate is a housing part of

- 5 -

an electrical device or apparatus, a tool housing, a mobile telephone, a heating/ventilation panel, a tachometer disc, an instrument dial, a panel, a keyboard in an electrical or an electronic device, a lense, a screen/display cover, an LED application, or a film for an automobile seat.

- 5 Another embodiment of the present invention is the above housing part of an electrical device or apparatus, wherein said electrical device or apparatus is a switch box.

Yet another embodiment of the present invention is a process for preparing the above polycarbonate composition comprising the step of compounding one or more polycarbonates according to the phase boundary process.

10 DESCRIPTION OF THE INVENTION

It has now surprisingly been found that the addition of elastomeric modifiers (elastomeric block copolymers with ethylene as one of the monomers) to the polycarbonate stable at high temperature improves the double fold number without significantly reducing the heat distortion resistance (Vicat softening temperatures $>165^{\circ}\text{C}$).

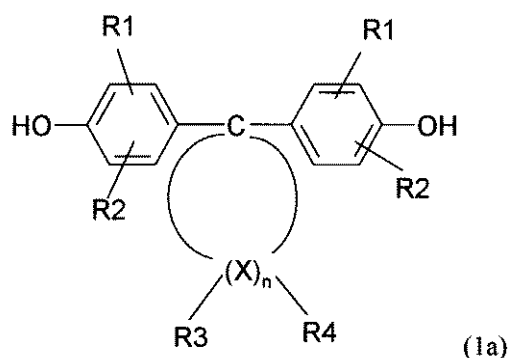
- 15 Only by addition of ethylene-alkyl acrylate block copolymers was it possible to meet the high requirements with regard to the thermal stability and to improve the flexural fatigue strength of the films produced from the resulting material.

- In the determination of the flexing resistance for determining the double fold number according to Schopper on films of different thickness, it was found that the
20 improvement in the notched impact strength does not correlate with an improvement in the flexing resistance.

The present invention therefore relates to compositions containing

- A) 82–99.5% by weight, preferably 85–99% by weight, particularly preferably 89–
99% by weight (based in each case on the sum of the parts by weight of the
25 components A+B), of at least one polycarbonate having high heat distortion resistance and based on one or more cycloaliphatic bisphenols of the formula 1

- 6 -



in which

R1 and R2, independently of one another, denote hydrogen, halogen, preferably chlorine or bromine, C₁-C₈-alkyl, C₅-C₆-cycloalkyl, phenyl, C₇-C₁₂-aralkyl, in particular methyl, phenyl or H and especially H,

n is an integer from 4 to 7, preferably 4 or 5,

R3 and R4 are selectable for each X individually and, independently of one another, denote hydrogen or C₁-C₆-alkyl and

X denotes carbon,

with the proviso that, on at least one atom X, R3 and R4 simultaneously denote alkyl, preferably methyl;

copolycarbonates of bisphenol A and bisphenol TMC are particularly preferred,

and

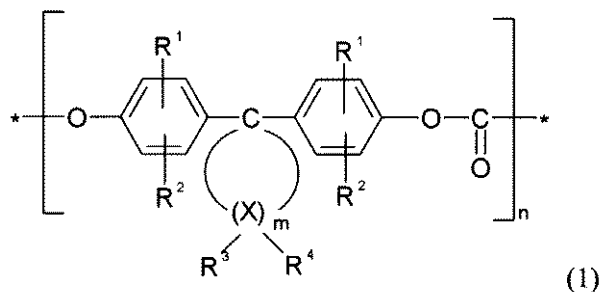
B) 0.5-18% by weight, preferably 1-15% by weight, particularly preferably 1-11% by weight, most preferably 1 – 10 % by weight (based in each case on the sum of the parts by weight of the components A+B), of at least one ethylene-alkyl acrylate block copolymer,

C) optionally 0 to 5 parts by weight, preferably 0 to 2 parts by weight, particularly preferably 0 to 1 part by weight (based in each case on the sum of the parts by weight of the components A+B), of additives.

Component A

- 7 -

Suitable polycarbonates are preferably high molecular weight, thermoplastic, aromatic polycarbonates having M_w (weight average molecular weight) of at least 10 000 g/mol, preferably of 20 000 g/mol to 300 000 g/mol, which contain bifunctional carbonate structural units of the formula (1)



in which

R^1 and R^2 , independently of one another, denote hydrogen, halogen, preferably chlorine or bromine, C_1 - C_8 -alkyl, C_5 - C_6 -cycloalkyl, C_6 - C_{10} -aryl, preferably phenyl, and C_7 - C_{12} -aralkyl, preferably phenyl- C_1 - C_4 -alkyl, in particular benzyl,

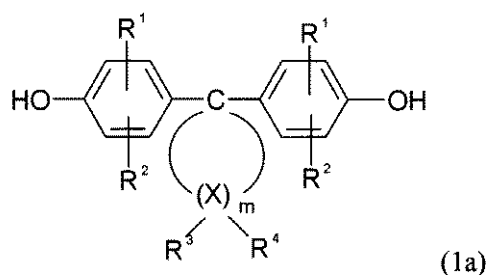
m denotes an integer from 4 to 7, preferably 4 or 5,

R^3 and R^4 , individually selectable for each X, independently of one another, denote hydrogen or C_1 - C_6 -alkyl and

X denotes carbon,

with the proviso that R^3 and R^4 simultaneously denote alkyl on at least one atom X.

Starting materials for polycarbonates are dihydroxydiphenylcycloalkanes of the formula (1a)



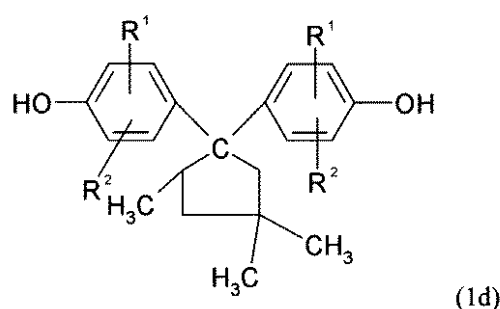
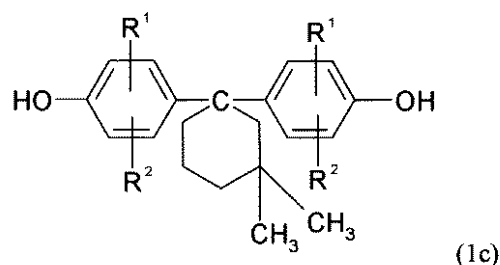
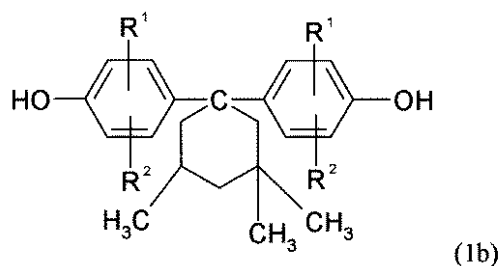
in which

X, R¹, R², R³, R⁴ and m have the meaning stated for the formula (I).

Preferably, R³ and R⁴ are simultaneously alkyl on 1-2 atoms X, in particular only on one atom X.

A preferred alkyl radical is methyl; the X atoms in the alpha-position to the
5 diphenyl-substituted C atom (C-1) are preferably not dialkyl-substituted; on the other hand, the alkyl disubstitution in the beta-position to C-1 is preferred.

Dihydroxydiphenylcycloalkanes having 5 and 6 ring C atoms in the cycloaliphatic radical (m = 4 or 5 in formula (1a)), for example diphenols of the formulae (1b) to (1d),



are preferred, the 1,1-bis(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexane (formula (1b) where R¹ and R² are H) being particularly preferred. The polycarbonates can be prepared according to German patent application DE 3 832 396 A1 from diphenols of the formula (1a).

- 9 -

It is possible to use both one diphenol of the formula (1a) with formation of homopolycarbonates and a plurality of diphenols of the formula (1a) with formation of copolycarbonates.

In addition, the diphenols of the formula (1a) can also be used as a mixture with
5 other diphenols, for example with those of the formula (2)



for the preparation of high molecular weight, thermoplastic, aromatic polycarbonates.

Suitable other diphenols of the formula (2) are those in which Z is an aromatic radical having 6 to 30 C atoms, which may contain one or more aromatic nuclei, may be
10 substituted and may contain aliphatic radicals or cycloaliphatic radicals other than those of the formula (1a) or heteroatoms as bridge members.

Examples of the diphenols of the formula (2) are:

hydroquinone, resorcinol, dihydroxybiphenyls, bi(hydroxyphenyl)alkanes, bis(hydroxyphenyl)cycloalkanes, bis(hydroxyphenyl) sulphides, bis(hydroxyphenyl) ethers,
15 bis(hydroxyphenyl) ketones, bis(hydroxyphenyl) sulphones, bis(hydroxyphenyl) sulphoxides, alpha,alpha'-bis(hydroxyphenyl)diisopropylbenzenes and their compounds which are alkylated on the nucleus and halogenated on the nucleus.

These and further suitable diphenols are described, for example, in US-A 3 028 365, 2 999 835, 3 148 172, 3 275 601, 2 991 273, 3 271 367, 3 062 781, 2 970 131 and 2 999 846, in
20 DE-A 1 570 703, 2 063 050, 2 063 052, 2 211 956, in Fr-A 1 561 518 and in the monograph "H. Schnell, Chemistry and Physics of Polycarbonates, Interscience Publishers, New York 1964".

Examples of preferred other diphenols are:

4,4'-dihydroxybiphenyl, 2,2-bis(4-hydroxyphenyl)propane, 2,4-bis(4-hydroxyphenyl)-2-methylbutane, 1,1-bis(4-hydroxyphenyl)cyclohexane, alpha,alpha-bis(4-hydroxyphenyl)-p-diisopropylbenzene, 2,2-bis(3-methyl-4-hydroxyphenyl)propane, 2,2-bis(3-chloro-4-hydroxyphenyl)propane, bis(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)methane, 2,2-bis(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)propane, bis(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl) sulphone, 2,4-bis(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-2-methylbutane, 1,1-bis(3,5-dimethyl-4-

- 10 -

hydroxyphenyl)cyclohexane, alpha,alpha-bis(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-p-diisopropylbenzene, 2,2-bis(3,5-dichloro-4-hydroxyphenyl)propane and 2,2-bis(3,5-dibromo-4-hydroxyphenyl)propane.

Examples of particularly preferred diphenols of the formula (2) are:

- 5 2,2-bis(4-hydroxyphenyl)propane, 2,2-bis(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)propane, 2,2-bis(3,5-dichloro-4-hydroxyphenyl)propane, 2,2-bis(3,5-dibromo-4-hydroxyphenyl)propane and 1,1-bis(4-hydroxyphenyl)cyclohexane.

In particular, 2,2-bis(4-hydroxyphenyl)propane is preferred. The other diphenols may be used both individually and as a mixture.

- 10 The molar ratio of diphenols of the formula (1a) to the other diphenols of the formula (2) which are optionally to be used concomitantly should be between 100 mol% (1a):0 mol% (2) and 2 mol% (1a):98 mol% (2), preferably between 100 mol% (1a):0 mol% (2) and 10 mol% (1a):90 mol% (2) and in particular between 100 mol% (1a):0 mol% (2) and 30 mol% (1a):70 mol% (2).

- 15 The high molecular weight polycarbonates obtained from the diphenols of the formula (1a), optionally in combination with other diphenols, can be prepared by the known polycarbonate preparation processes. The various diphenols may be linked to one another either randomly or blockwise.

- 20 The polycarbonates according to the invention may be branched in a manner known per se. If branching is desired, it can be achieved in a known manner by incorporation of small amounts, preferably in amounts between 0.05 and 2.0 mol% (based on diphenols used), of trifunctional or more than trifunctional compounds, in particular those having three or more than three phenolic hydroxyl groups, by condensation. Some branching agents having three or more than three phenolic hydroxyl groups are:

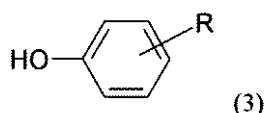
- 25 phloroglucinol, 4,6-dimethyl-2,4,6-tri(4-hydroxyphenyl)hepten-2-ene, 4,6-dimethyl-2,4,6-tri(4-hydroxyphenyl)heptane, 1,3,5-tri(4-hydroxyphenyl)benzene, 1,1,1-tri(4-hydroxyphenyl)ethane, tri(4-hydroxyphenyl)phenylmethane, 2,2-bis[4,4-bis(4-hydroxyphenyl)cyclohexyl]propane, 2,4-bis(4-hydroxyphenylisopropyl)phenol, 2,6-is(2-hydroxy-5-methylbenzyl)-4-methylphenol, 2-(4-hydroxyphenyl)-2-(2,4-dihydroxyphenyl)propane, hexa[4-(4-hydroxyphenylisopropyl)phenyl]orthoterephthalic
- 30

- 11 -

acid ester, tetra(4-hydroxyphenyl)methane, tetra[4-(4-hydroxyphenylisopropyl)-phenoxy]methane and 1,4-bis[4',4''-dihydroxytriphenyl)methyl]benzene.

Some of the other trifunctional compounds are 2,4-dihydroxybenzoic acid, trimesic acid, cyanuric chloride and 3,3-bis(3-methyl-4-hydroxyphenyl)-2-oxo-2,3-dihydroindole.

- 5 Monofunctional compounds in customary concentrations serve as chain terminators for the regulation of the molecular weight of the polycarbonates, which regulation is known per se. Suitable compounds are, for example, phenol, tert-butylphenols or other alkyl-substituted phenols. In particular, small amounts of phenols of the formula (3)



- 10 in which

R represents a branched C₈- and/or C₉-alkyl radical,

are suitable for regulating the molecular weight.

- In the alkyl radical R, the proportion of CH₃ protons is preferably between 47 and 89% and the proportion of the CH and CH₂ protons between 53 and 11%; also preferably,
 15 R is in the o- and/or p-position to the OH group, and particularly preferably the upper limit of the ortho fraction is 20%. The chain terminators are generally used in amounts of 0.5 to 10, preferably 1.5 to 8, mol%, based on diphenols used.

- The polycarbonates can preferably be prepared by the phase boundary process (cf. H. Schnell "Chemistry and Physics of Polycarbonates", Polymer Reviews, Vol. IX, page
 20 33 et seq., Interscience Publ. 1964) in a manner known per se.

- Here, the diphenols of the formula (1a) are dissolved in the aqueous alkaline phase. For the preparation of copolycarbonates with other diphenols, mixtures of diphenols of the formula (1a) and the other diphenols, for example those of the formula (2), are used. For regulating the molecular weight, chain terminators, for example of the formula (3), can be
 25 added. Reaction with phosgene is then carried out in the presence of an inert, preferably polycarbonate-dissolving, organic phase by the phase boundary condensation method. The reaction temperature is between 0°C and 40°C.

The optionally concomitantly used branching agents (preferably 0.05 to 2.0 mol%) can either be initially introduced with the diphenols in the aqueous alkaline phase or added in solution in the organic solvent before phosgenation. In addition to the diphenols of the formula (1a) and optionally other diphenols (1a), the mono- and/or bischlorocarbonic acid esters thereof can also be concomitantly used, these being added in solution in organic solvents. The amount of chain terminators and of branching agents depends on the molar amount of diphenolate radicals corresponding to formula (1a) and optionally formula (2); with the concomitant use of chlorocarbonic acid esters, the amount of phosgene can be accordingly reduced in a known manner.

Suitable organic solvents for the chain terminators and optionally for the branching agents and the chlorocarbonic acid esters are, for example, methylene chloride, chlorobenzene, in particular mixtures of methylene chloride and chlorobenzene. Optionally, the chain terminators and branching agents used can be dissolved in the same solvent.

For example, methylene chloride, chlorobenzene and mixtures of methylene chloride and chlorobenzene serves as the organic phase for the phase boundary polycondensation.

For example, NaOH solution serves as the aqueous alkaline phase. The preparation of the polycarbonates by the phase boundary process can be catalysed in a customary manner by catalysts such as tertiary amines, in particular tertiary aliphatic amines, such as tributylamine or triethylamine; the catalysts can be used in amounts of 0.05 to 10 mol%, based on moles of diphenols used. The catalysts can be added before the beginning of the phosgenation or during or even after the phosgenation.

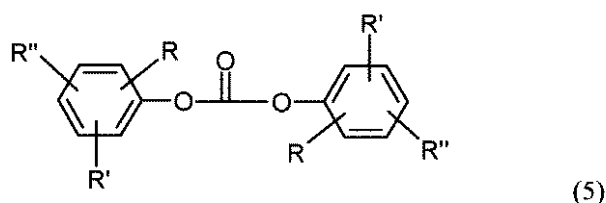
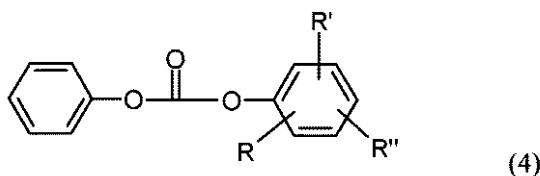
The polycarbonates can be prepared by the known process in the homogeneous phase, the so-called "pyridine process", and by the known melt transesterification process with the use of, for example, diphenyl carbonate instead of phosgene.

In the alternative melt transesterification process, the aromatic dihydroxy compounds already described for the phase boundary process are transesterified with carbonic acid diesters with the aid of suitable catalysts and optionally further additives in the melt.

In the context of the invention, carbonic acid diesters are those with the formulae

- 13 -

(4) and (5)



in which

- 5 R, R' and R'', independently of one another, may represent H, optionally branched C₁-C₃₄-alkyl/cycloalkyl, C₇-C₃₄-alkaryl or C₆-C₃₄-aryl,

for example

- diphenyl carbonate, butylphenyl phenyl carbonate, dibutylphenyl carbonate,
isobutylphenyl phenyl carbonate, diisobutylphenyl carbonate, tert-butylphenyl phenyl
10 carbonate, di-tert-butylphenyl carbonate, n-pentylphenyl phenyl carbonate, di(n-
pentylphenyl) carbonate, n-hexylphenyl phenyl carbonate, di(n-hexylphenyl) carbonate,
cyclohexylphenyl phenyl carbonate, dicyclohexylphenyl carbonate, phenylphenol phenyl
carbonate, diphenylphenol carbonate, isooctylphenyl phenyl carbonate, diisooctylphenyl
carbonate, n-nonylphenyl phenyl carbonate, di(n-nonylphenyl) carbonate, cumylphenyl
15 phenyl carbonate, dicumylphenyl carbonate, naphthylphenyl phenyl carbonate,
dinaphthylphenyl carbonate, di-tert-butylphenyl phenyl carbonate, di(di-tert-butylphenyl)
carbonate, dicumylphenyl phenyl carbonate, di(dicumylphenyl) carbonate, 4-phenoxy-
phenyl phenyl carbonate, di(4-phenoxyphenyl) carbonate, 3-pentadecylphenyl phenyl
carbonate, di(3-pentadecylphenyl) carbonate, tritylphenyl phenyl carbonate, ditritylphenyl
20 carbonate,

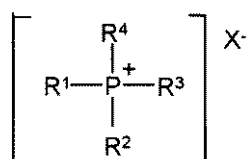
preferably diphenyl carbonate, tert-butylphenyl phenyl carbonate, di-tert-butylphenyl
carbonate, phenylphenol phenyl carbonate, diphenylphenol carbonate, cumylphenyl phenyl
carbonate, dicumylphenyl carbonate, particularly preferably diphenyl carbonate.

- 14 -

It is also possible to use mixtures of said carbonic acid diesters.

The proportion of carbonic acid esters is 100 to 130 mol%, preferably 103 to 120 mol%, particularly preferably 103 to 109 mol%, based on the dihydroxy compound.

Basic catalysts, such as, for example, alkali metal and alkaline earth metal hydroxides and oxides, but also ammonium or phosphonium salts, referred to below as onium salts, are used as catalysts in the context of the invention in the melt transesterification process as described in the literature mentioned. Onium salts are preferably used, particularly preferably phosphonium salts. Phosphonium salts in the context of the invention are those of the following general formula (6)



10

(6)

in which

R^{1-4} may be the same or different C_1 - C_{10} -alkyls, C_6 - C_{10} -aryls, C_7 - C_{10} -aralkyls or C_5 - C_6 -cycloalkyls, preferably methyl or C_6 - C_{14} -aryls, particularly preferably methyl or phenyl, and

X^- may be an anion, such as hydroxide, sulphate, hydrogen sulphate, bicarbonate, carbonate, a halide, preferably chloride, or an alcoholate of the formula OR , it being possible for R to be C_6 - C_{14} -aryl or C_7 - C_{12} -aralkyl, preferably phenyl.

Preferred catalysts are

tetraphenylphosphonium chloride, tetraphenylphosphonium hydroxide, tetraphenylphosphonium phenolate, particularly preferably tetraphenylphosphonium phenolate.

20

The catalysts are preferably used in amounts of 10^{-8} to 10^{-3} mol, based on one mole of diphenol, particularly preferably in amounts of 10^{-7} to 10^{-4} mol.

Further catalysts may be used alone or optionally in addition to the onium salt in order to increase the rate of the polymerization. These include salts of alkali metals and alkaline earth metals, such as hydroxides, alkoxides and aryl oxides of lithium, sodium and

25

- 15 -

potassium, preferably hydroxide, alkoxide or aryl oxide salts of sodium. Most preferred are sodium hydroxide and sodium phenolate. The amounts of the cocatalyst may be in the range from 1 to 200 ppb, preferably 5 to 150 ppb and most preferably 10 to 125 ppb, calculated in each case as sodium.

5 The transesterification reaction of the aromatic dihydroxy compound and of the carbonic acid diester in the melt is preferably carried out in two stages. In the first stage, the melting of the aromatic dihydroxy compound and of the carbonic acid diester at temperatures of 80-250°C, preferably 100-230°C, particularly preferably 120-190°C, under atmospheric pressure in 0-5 hours, preferably 0.25-3 hours, takes place. After addition of
10 the catalyst, the oligocarbonate is prepared from the aromatic dihydroxy compound and the carbonic acid diester by applying a vacuum (up to 2 mmHg) and increasing the temperature (up to 260°C) by distilling off the monophenol. The main amount of vapours from the process occurs here. The oligocarbonate thus prepared has a weight average molar mass M_w (determined by measuring the relative solution viscosity in dichloromethane or in
15 mixtures of equal amounts by weight of phenol/o-dichlorobenzene, calibrated by light scattering) in the range from 2000 g/mol to 18 000 g/mol, preferably from 4000 g/mol to 15 000 g/mol.

 In the second stage, the polycarbonate is prepared during the polycondensation by a further increase in the temperature to 250-320°C, preferably 270-295°C, and a pressure of
20 <2 mmHg. The remainder of vapours from the process is removed here.

 The catalysts can also be used in combination (two or more) with one another.

 With the use of alkali metal/alkaline earth metal catalysts, it may be advantageous to add the alkali metal/alkaline earth metal catalysts at a later time (for example after the oligocarbonate synthesis in the polycondensation in the second stage).

25 The reaction of the aromatic dihydroxy compound and of the carbonic acid diester to give the polycarbonate can be carried out batchwise or preferably continuously in the context of the process according to the invention, for example in stirred tanks, thin-film evaporators, falling-film evaporators, stirred tank cascades, extruders, kneaders, simple disc reactors and high-viscosity disc reactors.

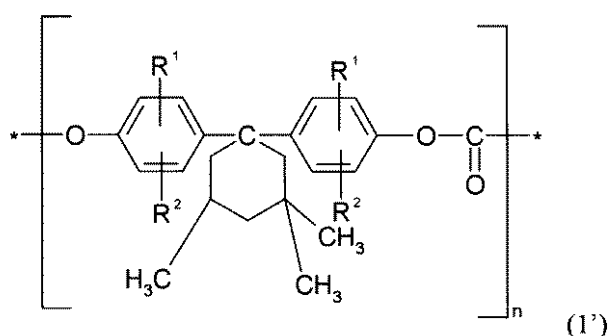
- 16 -

Branched poly- or copolycarbonates can be prepared analogously to the phase boundary process by using polyfunctional compounds.

The polycarbonates preferably have a molecular weight M_w (weight average, determined by gel chromatography after prior calibration) of at least 10 000 g/mol, particularly preferably of 20 000 g/mol to 300 000 g/mol and in particular of 20 000 g/mol to 80 000 g/mol. They may be linear or branched; they are homopolycarbonates or copolycarbonates based on diphenols of the formula (1a).

By incorporating the diphenols of the formula (1a), novel polycarbonates having a high heat distortion resistance are formed, which also otherwise have a good property profile. This is true in particular for the polycarbonates based on diphenols of the formula (1a) in which m is 4 or 5 and very particularly for the polycarbonates based on diphenols (1b) in which R^1 and R^2 , independently of one another, have the meaning mentioned for the formula (1a) and are particularly preferably hydrogen.

The particularly preferred polycarbonates are therefore those comprising units of the formula (1')



in which R^1 and R^2 have the meaning mentioned for formula (1a), but are particularly preferably hydrogen.

These polycarbonates based on diphenols of the formula (1b), in which in particular R^1 and R^2 are hydrogen, have, in addition to the high heat distortion resistance, good flow behaviour in the melt, which was not to be expected, and show very good solubility in the halogen-free solvents mentioned below.

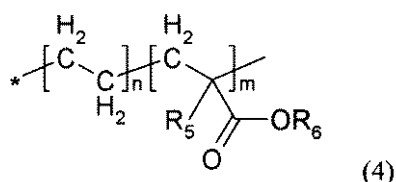
Owing to the arbitrary composition with other diphenols, in particular with those of

- 17 -

the formula (2), it is also possible to vary the polycarbonate properties in an advantageous manner. In such copolycarbonates, the diphenols of the formula (1a) are present in amounts of 100 mol% to 2 mol%, preferably in amounts of 100 mol% to 10 mol% and in particular in amounts of 100 mol% to 30 mol%, based on the total amount of 100 mol% of
 5 diphenol units, in polycarbonates.

Component B

The ethylene-alkyl (meth)acrylate block copolymers according to the invention can be described by the general formula (4):



- 10 R_5 may be methyl or hydrogen, ,
 R_6 may be hydrogen or C_1 to C_{12} alkyl radical,
 n and m are degrees of polymerization.
 R_6 is preferably methyl, ethyl, propyl, isopropyl, butyl, sec-butyl, tert-butyl, isobutyl, hexyl, isoamyl or tert-amyl.
- 15 The ratios of the degrees of polymerization n and m are preferably in the range of $n:m=1:300-90:10$.

The ethylene-alkyl (meth)acrylate copolymer may be a random, block or multiblock copolymer or mixtures of these structures.

- 20 The melt flow index of the ethylene-alkyl (meth)acrylate copolymer (measured at 190°C under 2.16 kg load) is preferably in the range of 0.01-40 g/(10 min), particularly preferably in the range of 0.1 - 10 g/(10 min).

Component C

- 25 To the compositions according to the invention can also be added the additives customary for these thermoplastics, such as fillers, UV stabilizers, IR stabilizers, heat stabilizers, antistatic agents and pigments, colorants in the customary amounts; optionally,

- 18 -

the demoulding behaviour, the flow behaviour and/or the flame retardance can also be improved by addition of external demoulding agents, flow improvers and/or flameproofing agents (e.g. alkyl and aryl phosphites, phosphates, phosphanes, low molecular weight carboxylic acid esters, halogen compounds, salts, chalk, quartz powder, glass fibres and carbon fibres, pigments and combinations thereof. Such compounds are described, for example, in WO 99/55772, pages 15 – 25, and in “Plastics Additives”, R. Gächter and H. Müller, Hanser Publishers 1983).

Suitable additives are described, for example, in “Additives for Plastics Handbook, John Murphy, Elsevier, Oxford 1999”, in “Plastics Additives Handbook, Hans Zweifel, Hanser, Munich, 2001”.

Examples of suitable antioxidants or heat stabilizers are:

alkylated monophenols, alkylthiomethylphenols, hydroquinones and alkylated hydroquinones, tocopherols, hydroxylated thiodiphenyl ethers, alkylidenbisphenols, O-, N- and S-benzyl compounds, hydroxybenzylated malonates, aromatic hydroxybenzyl compounds, triazine compounds, acylaminophenols, esters of β -(3,5-bi-tert-butyl-4-hydroxyphenyl)propionic acid, esters of β -(5-tert-butyl-4-hydroxy-3-methylphenyl)propionic acid, esters of β -(3,5-dicyclohexyl-4-hydroxyphenyl)propionic acid, esters of 3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenylacetic acid, amides of β -(3,5-di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl)propionic acid, suitable thiosynergists, secondary antioxidants, phosphites and phosphonites, benzofuranones and indolinones.

Organic phosphites, phosphonates and phosphanes are preferred, in general those in which the organic radicals completely or partly comprise optionally substituted aromatic radicals.

o/m-Phosphoric acids, completely or partially esterified phosphates or phosphites are suitable as complexing agents for heavy metals and for neutralization of traces of alkali.

Suitable light stabilizers (UV absorbers) are 2-(2'-hydroxyphenyl)benzotriazole, 2-hydroxybenzophenone, esters of substituted and unsubstituted benzoic acids, acrylates, sterically hindered amines, oxamides and 2-(hydroxyphenyl)-1,3,5-triazines or substituted hydroxyalkoxyphenyl, 1,3,5-triazoles; substituted benzotriazoles, such as, for example, 2-(2'-hydroxy-5'-methylphenyl)benzotriazole, 2-(2'-hydroxy-3',5'-di-tert-

- 19 -

butylphenyl)benzotriazole, 2-(2'-hydroxy-3'-tert-butyl-5'-methylphenyl)-5-chlorobenzotriazole, 2-(2'-hydroxy-3',5'-tert-butylphenyl)-5-chlorobenzotriazole, 2-(2'-hydroxy-5'-tert-octylphenyl)benzotriazole, 2-(2'-hydroxy-3',5'-di-tert-amylphenyl)benzotriazole, 2-[2'-hydroxy-3'-(3'',4'',5'',6''-tetrahydrophthalimidoethyl)-5'-methylphenyl]-benzotriazole and 2,2'-methylenebis[4-(1,1,3,3-tetramethylbutyl)-6-(2H-benzotriazol-2-yl)phenol] are preferred.

Polypropylene glycols, alone or in combination with, for example, sulphones or sulphonamides as stabilizers, can be used to prevent damage by gamma rays.

These and other stabilizers can be used individually or in combinations and are added in the stated forms to the polymer.

In addition, processing auxiliaries, such as demoulding agents, generally derivatives of long-chain fatty acids, may be added. For example, pentaerythrityl tetrastearate and glyceryl monostearate are preferred. They are used alone or as mixture, preferably in an amount of 0.01 to 1% by weight, based on the mass of the composition.

Suitable flame-retardant additives are phosphate esters, i.e. triphenyl phosphate, resorcinol diphosphoric acid esters, bromine-containing compounds, such as brominated phosphoric acid esters, brominated oligocarbonates and polycarbonates, and preferably salts of fluorinated organic sulphonic acids.

Furthermore, colorants, such as organic dyes or pigments or inorganic pigments, IR absorbers, can be added individually, as a mixture or even in combination with stabilizers, glass fibres, (hollow) glass spheres, inorganic fillers.

Production of the moulding materials and mouldings

The thermoplastic moulding materials according to the invention are produced by mixing the respective constituents in a known manner and preferably compounding the melt and extruding the melt at temperatures of 240°C to 300°C in customary units, such as internal kneaders, extruders and twin-screw apparatuses.

The mixing of the individual constituents can be effected in a known manner, either in succession or simultaneously, in particular either at about 20°C (room temperature) or at higher temperature.

- 20 -

The invention also relates to processes for the production of moulding materials and to the use of the moulding materials for the production of mouldings and to the shaped articles themselves.

5 The moulding materials according to the invention can be used for the production of mouldings of all kinds. These can be produced by injection moulding, extrusion and blow moulding processes. A further form of processing is the production of mouldings by thermoforming from previously produced sheets or films.

10 Films and sheets can be produced, for example, via the melting of the moulding materials in suitable units (e.g. twin-screw extruders) and shaping of the melt by suitable dies.

15 The polycarbonates and copolycarbonates according to the invention, optionally as a mixture with other thermoplastics and/or customary additives, after processing to give any desired mouldings/extrudates, can be used wherever known polycarbonates and copolycarbonates are used. Owing to their property profile, they are suitable as substrate materials for sheets, multiskin sheets, glazing, diffuser screens, lamp coverings or optical data stores, such as audio CD, CD-R(W), DVD, DVD-R(W) etc., but can also be used, for example, as films in the electrical sector, as shaped articles in automotive construction and as sheets for coverings in the safety sector. Further possible applications of the polycarbonates according to the invention are:

20 housing parts for electrical devices or apparatuses, such as switchboxes, tool housings, mobile telephones, heating/ventilation panels, tachograph discs, instrument dials, panels and keyboards in electrical and electronic devices, lenses, screen/display covers and LED applications and films for automobile seats.

25 All the references described above are incorporated by reference in their entireties for all useful purposes.

30 While there is shown and described certain specific structures embodying the invention, it will be manifest to those skilled in the art that various modifications and rearrangements of the parts may be made without departing from the spirit and scope of the underlying inventive concept and that the same is not limited to the particular forms herein shown and described.

EXAMPLES

Compounding:

The device for compounding consists of:

Compounding A:

- 5 — a metering device for the components,
- a corotating twin-screw kneader from Berstorff having a screw diameter of 25 mm (ZE 25/5),
- a die for shaping of melt extrudates,
- a waterbath for cooling and solidifying the extrudates,
- 10 — a pelletizer.

Compounding B:

- a metering device for the components,
- a corotating twin-screw kneader from Clextral having a screw diameter of 32 mm (EV 32),
- 15 — a die for shaping of melt extrudates (6 holes of 3.2mm each),
- a waterbath for cooling and solidifying the extrudates,
- a pelletizer.

As far as compositions are concerned, the mixtures mentioned below were prepared with the aid of the compounding devices described above.

20 **Injection moulding:**

For investigating the mechanical properties, the test specimens required in the corresponding standards were produced by injection moulding. The respective pellets were dried before processing for 5 hours in a vacuum drying oven at 120°C. The melt temperature during injection moulding was 330°C and the mould temperature 120°C.

25 **Film extrusion**

Film extrusion A:

Films having a thickness of 100 µm were extruded from the material. For this purpose, a film extrusion machine from Kuhne was used and the material was processed at a melt temperature of 290°C (Kuhne 37, “chill roll”).

- 22 -

Film extrusion B:

Films having a thickness of 250 μm were extruded from the material. For this purpose, a film extrusion machine from Breyer was used and the material was processed at a melt temperature of 300°C.

5 The unit used consists of

- an extruder having a screw of 105 mm diameter (D) and a length of $41 \times D$.
The screw has a devolatilization zone;
- a coextruder for applying the covering layer with a screw of 25 D length and 35 mm diameter;
- 10 — a deflection head;
- a special coextrusion slot die having a width of 1500 mm;
- a three-roll calender having a horizontal roll arrangement, the third roll being pivotable by $\pm 45^\circ$ relative to the horizontal;
- a roller conveyor;
- 15 — a device for applying protective film to both sides;
- a take-off device;
- a winding station.

The pellets of the base material were fed to the feed hopper of the extruder. In the respective cylinder/screw plasticating system, the melting and transport of the respective material were effected. From the die, the melt travelled to the calender, the rolls of which have the temperature mentioned in Table 1. On the calender, the final shaping and cooling of the material take place. Thereafter, the film is transported through a take-off, the protective film is applied on both sides and the film is then rolled up.

Table 1

Process parameter	Film extrusion 2
	Main extruder
Melt temperature	300°C
Deflection head temperature	285°C
Die/Z1 temperature	305°C
Extruder speed	45 min ⁻¹
Temperature of roll 1 (rubber roll)	24°C
Temperature of roll 2	72°C
Calender speed	21.5 m/min.

Mechanical tests:

The melt flow rate (MRF) of the polymers and polymer compositions was
 5 determined according to ISO 1133, ASTM D1238 and the melting point according to ISO
 3146, ASTM D3418.

The thermal stability of the materials produced is tested by the determination of the
 Vicat softening temperature according to ISO 306.

In the determination of the Vicat softening temperature, the plastic test specimen
 10 (80×10×4mm) is clamped in a holder. A planar penetration tip having a cross section of
 1 mm² and a defined impact force is applied. By ensuring the optimum temperature
 transmission to the sample and uniformly increasing heating rate, the temperature at which
 the penetration tip has penetrated 1 mm deep into the surface of the plastic test specimen is
 determined. This corresponds to the Vicat softening temperature according to ISO 306.

15 The mechanical properties are tested by way of example by means of the notched
 impact strength, and the tests are effected according to ISO 179/1eA at 23°C and at -30°C.

For this purpose, a test specimen (80×10×4) is provided with a standard notch (V-
 shaped, notch radius 0.25 mm) and supported on two sides (support space 62 mm). An
 impact pendulum strikes the middle of the test specimen at the height of the notch. The test
 20 unit consists of an impact pendulum device having a defined work capacity and defined
 impact speed.

- 24 -

The flexural fatigue strength was evaluated via the double fold number according to Schopper. For this purpose, the double fold number is determined according to (ISO 5625) under standard climatic conditions (23°C, 50% relative humidity).

- 5 A double fold is a complete movement of the test strip to both sides along a fold line. The double fold number is the number of double folds which are necessary in order to cause a test strip to tear under standardized load and climatic conditions.

Materials

- 10 – Polycarbonate having high heat distortion resistance: here, a copolycarbonate consisting of bisphenol A and trimethylcyclohexyl bisphenol (Ape®1800 from Bayer MaterialScience AG, Leverkusen) having a heat distortion resistance HDT A of 159°C and HDT B of 174°C (measured according to ISO 75-1, -2) and a melt volume flow rate of 10 ml/(10 min), measured according to ISO 1133, was used.
- 15 – Ethylene-acrylate copolymers: here, block copolymers from DuPont de Nemours (Germany) GmbH, Bad Homburg, were used. More exact descriptions of the types used are shown in the table below.

Table 2: Overview of the ethylene-alkyl acrylate copolymers used

Example	Elvaloy type	Acrylate	Proportion of acrylate* [%]	MFR [g/(10 min)]	Melting point [°C]
1	1820 AC	Methyl acrylate	20	8.0	92
2	3135 EAC	Butyl acrylate	35	1.5	90
3	34035 EAC	Butyl acrylate	35	40.0	90
4	3427 AC	Butyl acrylate	27	4	94

* according to DuPont de Nemours datasheet

- 20 Furthermore, for comparison purposes (comparative example 1), a linear three-block copolymer (styrene, ethylene, butadiene) having a proportion of 30-33% of bound styrene (manufacturer's data, BMS 0407) and a solution viscosity of 1.5 Pa·s (manufacturer's data, BMS 0380) and a specific density of 0.91 (according to ISO 2781),

- 25 -

obtainable, for example, under the trade name "Kraton 1651 G" from Kraton Polymers LLC, Houston Texas, was used.

Comparative Example 2 corresponds to a copolycarbonate consisting of bisphenol A and trimethylcyclohexyl bisphenol (Apec®1800, from Bayer MaterialScience, Leverkusen) without elastomer additive.

By compounding in the units described above, mixtures of the polycarbonates stable at high temperature with elastomeric copolymers were prepared according to compositions in Table 3.

Table 3: Formulations and properties of the examples and comparative examples

	Content of elastomer [%]	Elastomer	Vicat [°C]	Notched impact strength (fracture behaviour) at 23°C [kJ/m ²]	Notched impact strength (fracture behaviour) at -30°C [kJ/m ²]
Example 1	10	Elvaloy 1820 AC	170	54 (tough)	18 (brittle)
Example 2	10	Elvaloy 3135 EAC	169	51 (tough)	19 (brittle)
Example 3	10	Elvaloy 34035 EAC	167	41 (tough)	14 (brittle)
Example 4	10	Elvaloy 3427 AC	173	39 (tough)	17 (brittle)
Comparative example 1	10	Kraton 1651 G	178	35 (tough)	15 (brittle)
Comparative example 2	0	—	185*	11 (brittle)*	11 (brittle)*

* according to Bayer MaterialScience AG datasheet

By addition of the elastomers (Examples 1-4, Comparative Example 1), the high heat distortion resistance could be obtained in all cases (Vicat softening temperature > 165°C) and mechanical properties (notched impact strength) could be obtained at a comparable level and even improved relative to the starting material (Comparative Example 2) (Table 3).

Films having a thickness of 100 µm (base material prepared in compounding A, film extrusion A) and 250 µm (base material prepared in compounding B, film extrusion B) were produced from the example materials by means of processes described above. The double fold numbers according to Schopper were determined for these films (cf. Table 4, Table 5).

Table 4: Double fold numbers, determined on 100 μm films

Tests on 100 μm films	Example 1	Example 2	Example 3	Example 4	Comparative Example 1
Double fold number according to Schopper (parallel to the extrusion direction)	4677	4531	3797	3810	582

Table 5: Double fold numbers, determined on 250 μm films

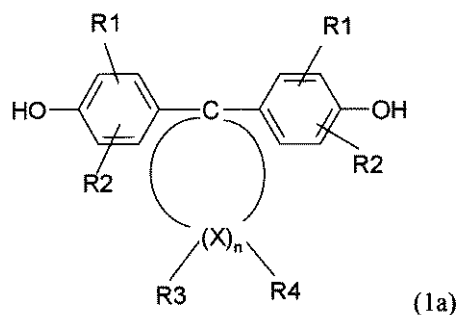
Tests on 250 μm films	Example 1	Example 2	Comparative Example 2
Double fold number according to Schopper (parallel to the extrusion direction)	64.0	74.5	21.9
Double fold number according to Schopper (transversely to the extrusion direction)	83.6	160	17.0

As shown in the examples, only the introduction of the ethylene-alkyl acrylate elastomers leads to an improvement in the flexural fatigue strength, detected here by a significant increase in the double fold number according to Schopper, with simultaneous retention of the heat distortion resistance and of the notched impact strength at room temperature and at -30°C . This effect does not occur with another elastomeric ethylene copolymer (Comparative Example 1) and in the case of only the unmodified polycarbonate stable at high temperature (Comparative Example 2).

CLAIMS

1. A polycarbonate composition comprising:

- A) from 82 to 99.5 % by weight, based in each case on the sum of the parts by weight of the components A and B, of at least one polycarbonate having high heat distortion resistance and based on one or more cycloaliphatic bisphenols of Formula (1a)



wherein

R1 and R2 are, independently of one another, hydrogen, halogen, C₁-C₈-alkyl, C₅-C₆-cycloalkyl, phenyl, or C₇-C₁₂-aralkyl,

n is an integer from 4 to 7,

R3 and R4 are selectable for each X individually and are, independently of one another, hydrogen or C₁-C₆-alkyl, and

X is carbon,

with the proviso that, on at least one X, R3 and R4 simultaneously are alkyl;

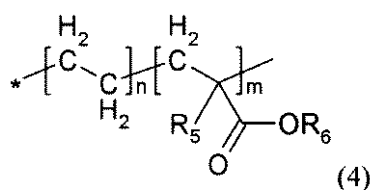
and

- B) from 0.5 to 18 % by weight, based in each case on the sum of the parts by weight of the components A and B, of at least one ethylene-alkyl acrylate block copolymer.

2. The polycarbonate composition of claim 1, wherein R1 and R2 are, independently of one another, chlorine, bromine, methyl, phenyl, or H, and

n is 4 or 5.

3. The polycarbonate composition of claim 1, wherein component A comprises a copolycarbonate of bisphenol A and bisphenol TMC.
4. The polycarbonate composition of claim 1, wherein said composition contains from 89 to 99 parts by weight of component A and from 1 to 11 parts by weight of component B, based in each case on the sum of the parts by weight of the components A and B.
5. The polycarbonate composition of claim 1, wherein said ethylene-alkyl (meth)acrylate block copolymer of component B is an ethylene-alkyl (meth)acrylate block copolymer of formula (4):



wherein

R₅ is methyl or hydrogen,

R₆ is hydrogen or a C₁ to C₁₂ alkyl radical, and

n and m are degrees of polymerization.

6. The polycarbonate composition of claim 5, wherein R₆ is methyl, ethyl, propyl, isopropyl, butyl, sec-butyl, tert-butyl, isobutyl, hexyl, isoamyl, or tert-amyl.
7. The polycarbonate composition of claim 5, wherein the ratio of the degree of polymerization n to degree of polymerization m is in the range of from 1:300 to 90:10.
8. The polycarbonate composition of claim 1, further comprising from 0 to 5 parts by weight, based on the sum of the parts by weight of the components A and B, of additives as component C.
9. A shaped article, extrudate, film, or film laminate obtained from the polycarbonate composition of claim 1.

- 29 -

10. A shaped article, extrudate, or film comprising coextrusion layers obtained from the polycarbonate composition of claim 1, wherein said at least one polycarbonate is a copolycarbonate.
- 5 11. The shaped article, extrudate, film, or film laminate of claim 10, wherein said article, extrudate, film, or film laminate is a housing part of an electrical device or apparatus, a tool housing, a mobile telephone, a heating/ventilation panel, a tachometer disc, an instrument dial, a panel, a keyboard in an electrical or an electronic device, a lense, a screen/display cover, an LED application, or a film for an automobile seat.
- 10 12. The housing part of an electrical device or apparatus of claim 11, wherein said electrical device or apparatus is a switch box.
13. A process for preparing the polycarbonate composition of claim 1 comprising the step of compounding one or more polycarbonates according to the phase boundary process.

- 30 -

ABSTRACT

The invention relates to compositions containing at least one (co)polycarbonate stable at high temperature and at least one ethylene-alkyl acrylate block copolymer, and to mouldings and injection moulded parts and extrudates obtainable from these compositions.