



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 602 14 898 T2** 2007.09.13

(12) **Übersetzung der europäischen Patentschrift**

(97) **EP 1 483 331 B1**
(21) Deutsches Aktenzeichen: **602 14 898.7**
(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/US02/24000**
(96) Europäisches Aktenzeichen: **02 750 344.0**
(87) PCT-Veröffentlichungs-Nr.: **WO 2003/078526**
(86) PCT-Anmeldetag: **08.07.2002**
(87) Veröffentlichungstag
der PCT-Anmeldung: **25.09.2003**
(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **08.12.2004**
(97) Veröffentlichungstag
der Patenterteilung beim EPA: **20.09.2006**
(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **13.09.2007**

(51) Int Cl.⁸: **C08L 77/00** (2006.01)
C08F 283/00 (2006.01)
C08G 65/48 (2006.01)
C08F 283/08 (2006.01)
C08G 59/02 (2006.01)
C08L 23/00 (2006.01)
C08K 5/11 (2006.01)

(30) Unionspriorität:
683955 **06.03.2002** **US**
(73) Patentinhaber:
General Electric Co., Schenectady, N.Y., US
(74) Vertreter:
**Luderschmidt, Schüler & Partner, 65189
Wiesbaden**

(84) Benannte Vertragsstaaten:
**AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB,
GR, IE, IT, LI, LU, MC, NL, PT, SE, SK, TR**
(72) Erfinder:
ADEDEJI, Adeyinka, Albany, NY 12209, US

(54) Bezeichnung: **ZUSAMMENSETZUNGEN AUF DER BASIS KOMPATIBILISIERTER POLY-ARYLENETHER/POLY-
MID-BLENDS MIT VERBESSERTEN FLIESSEIGENSCHAFTEN**

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

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

Beschreibung**Hintergrund der Erfindung**

[0001] Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Erhöhung der Schmelzflusscharakteristiken von Zusammensetzungen, aufweisend einen kompatibilisierten Polyarylenether/Polyamidharzblend.

[0002] Polyarylenetherharze sind aufgrund ihrer einzigartigen Kombination von physikalischen, chemischen und elektrischen Eigenschaften kommerziell attraktive Materialien. Darüber hinaus resultiert die Kombination von diesen Harzen mit Polyamidharzen zu kompatibilisierten Blends in zusätzlichen Gesamteigenschaften, wie z.B. chemischer Beständigkeit und hoher Festigkeit. Beispiele für solche kompatibilisierten Blends können in US-Patenten 4 315 086 von Ueno et al., 4 659 760 von van der Meer und 4 732 938 von Grant et al. gefunden werden. Die Eigenschaften dieser Blends können durch die Zugabe von verschiedenen Additiven, wie z.B. Schlagmodifizierern, Flammenschutzmitteln, Lichtstabilisatoren, Verarbeitungsstabilisatoren, Wärmestabilisatoren, Antioxidantien und Füllern, weiter erhöht werden.

[0003] EP-A-0776940 offenbart, dass Polyphenylenether-Polyamid-Zusammensetzungen, enthaltend ein schlagmodifizierendes Polymer mit verbesserten physikalischen und rheologischen Eigenschaften, durch Einbringen von zumindest einem Nichtpolymer hergestellt werden können.

[0004] EP-A-0564243 offenbart ein Verfahren zur Bildung von Polyphenylenether-pfropf-Orthoester-Copolymerblends, welches das Vermischen von funktionalisierten Polyphenylenethern, hergestellt mit pfropfbaren Orthoestereinheiten, mit nukleophilen Polymeren aufweist. Vorzugsweise ist der Orthoester 4-Acryloyloxymethyl-2-methoxy-2-methyl-1,3-dioxolanmonomer und die nukleophilen Polymere werden ausgewählt aus Polyestern, Polyamiden oder funktionalisierten Polyolefinen. Das bevorzugte Verfahren zum Vermischen ist mittels eines Einschnittprozesses, bei dem alle Reaktionen in einem Durchgang auftreten.

[0005] EP-A-0462410 offenbart substituierte Alkoxy- oder Alkylthiochlortriazine, wobei die Substituenten an den Alkoxygruppen Chlor, Brom oder Dialkylphosphat sind und geeignet sind als Endverkappungsmittel für Polyphenylenether. Die verkappten Polyphenylenether bilden Copolymere mit anderen Polymeren, enthaltend nukleophile Gruppen, einschließlich Polyestern, Polyamiden und funktionalisierten Olefinpolymeren. Solche Copolymere dienen als Kompatibilisatoren bei der Formulierung von Blends mit hoher Schlagfestigkeit.

[0006] EP-A-0440939 offenbart Polyphenylenether, die durch Reaktion in der Schmelze unter Anwendung von Vakuum mit zumindest einem Trimellithsäureanhydrid-salicylatester, vorzugsweise dem 4-Phenylsalicylatester, verkappt sind. Das bevorzugte Schmelzverarbeitungsverfahren ist Extrusion mit Vakuumbelüftung. Durch dieses Verfahren wird der Polyphenylenether mit reaktiven Dicarboxylatgruppen verkappt und auch mit Salicylatgruppen, was seine thermische Stabilität verbessert. Der verkappte Polyphenylenether ist in der Lage, mit Polyamiden Copolymere zu bilden, und die genannten Copolymere sind geeignet als Kompatibilisatoren für Polyphenylenether-Polyamidblends.

[0007] EP-A-0267382 offenbart funktionalisierte Polyphenylenether, die hergestellt werden durch Reaktion eines Polyphenylenethers mit einer polymerisierbaren olefinischen Verbindung, enthaltend ein Phosphor- oder Siliziumatom oder eine Epoxy- oder Lactamgruppe, vorzugsweise in der Gegenwart eines freien Radikalinitiators. Sie können für die Herstellung von kompatiblen Polyphenylenetherblends mit solchen Polymeren wie Polyestern und Polyamiden verwendet werden.

[0008] EP-A-0253334 offenbart epoxidfunktionalisierte Polyphenylenether, die durch die Reaktion von verschiedenen säurefunktionalisierten Polyphenylenethern mit funktionalisierten Epoxiden hergestellt werden können, und die bei der Herstellung von Polyphenylenethercopolymeren nützlich sind. Diese Copolymere sind wiederum geeignet für die Copolymerisation von Blends aus Polyphenylenethern mit solchen anderen Polymeren wie Polyestern und Polyamiden.

[0009] EP-A-0234063 offenbart Polymermischungen, die einen Polyphenylenether, ein Polyamid und ein Mittel zur Verbesserung der Schlagbeständigkeit aufweisen. Durch Verwendung von Kern-Schale-Polymeren, die einen kautschukähnlichen Kern und eine oder mehrere Schalen haben, wird eine gute Schlagbeständigkeit erhalten.

[0010] EP-A-0234060 offenbart, dass die Stabilität von Polymermischungen, die einen Polyphenylenether, ein Polyamid und ein Mittel zur Verbesserung der Schlagfestigkeit aufweisen, durch die Zugabe eines Esters

eines mehrwertigen Alkohols und einer gesättigten aliphatischen Carbonsäure mit 5 bis 34 Kohlenstoffatomen verbessert werden kann.

[0011] Die physikalischen Eigenschaften von Polyarylenether/Polyamidblends machen sie für eine Vielzahl von Endanwendungsgegenständen im Automobilmarkt attraktiv, insbesondere für unter der Haube und verschiedene Außenkomponenten. Viele von diesen Komponenten werden einer Vielzahl von Missbrauch unterzogen, so wie Schlägen, und als solche erfordern sie herausragende Schlagbeständigkeit und Duktilität. Darüber hinaus werden viele dieser gleichen Gegenstände vorzugsweise unter Verwendung von Umformungsverfahren, wie z.B. Spritzgießen hergestellt. Einige der wünschenswerten Anwendungen, z.B. Anschlussstücke, haben sehr dünnwandige Bereiche und erfordern daher Harze, die sehr niedrige Viskositäten haben, um die Formwerkzeuge vollständig zu füllen. Herkömmliche Polyarylenether/Polyamidblends haben ungeeignete Fließeigenschaften bei den Verarbeitungstemperaturen, die benötigt werden, um den thermischen Abbau der Harze zu minimieren. Anheben der Verarbeitungstemperatur auf höher als diese Temperaturen, um die Viskosität der Blends zu reduzieren, resultiert in brüchigen Teilen und vielen Oberflächenfehlstellen im fertigen Teil, was beides inakzeptabel ist.

[0012] Es ist daher offensichtlich, dass weiterhin eine Notwendigkeit für kompatibilisierte Polyarylenether/Polyamidzusammensetzungen besteht, die verbesserten Schmelzfluss haben und die anderen attraktiven physikalischen Eigenschaften beibehalten.

Kurze Zusammenfassung der Erfindung

[0013] Die oben diskutierten Notwendigkeiten werden allgemein befriedigt durch die Entdeckung einer thermoplastischen Zusammensetzung, aufweisend einen kompatibilisierten Polyarylenether/Polyamidharzblend und ein dendritisches Polyesterharz.

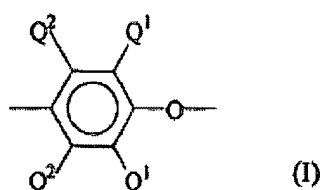
[0014] In einer anderen Ausführungsform umfasst ein Verfahren zur Erhöhung des Schmelzflusses von kompatibilisierten Polyarylenether/Polyamidharzblends das innige Vermischen eines Polyarylenetherharzes, eines Polyamidharzes und eines Kompatibilisierungsmittels mit einem dendritischen Polyesterharz.

[0015] Alternativ umfasst ein Verfahren zur Erhöhung des Schmelzflusses eines kompatibilisierten Polyarylenether/Polyamidharzblends das innige Vermischen eines kompatibilisierten Polyarylenether/Polyamidharzblends mit einem dendritischen Polyesterharz.

Eingehende Beschreibung der bevorzugten Ausführungsform

[0016] Eine thermoplastische Zusammensetzung weist einen kompatibilisierten Polyarylenether/Polyamidharzblend und ein dendritisches Polyesterharz auf. Der Einschluss von so wenig wie 0,5 Gewichtsprozent an dendritischem Polyesterharz kann die Schmelzflussgeschwindigkeit des kompatibilisierten Polyarylenether/Polyamidharzblends um so viel wie 100% erhöhen. Schmelzflussgeschwindigkeit ist definiert als die Masse an Kunststoffschnitzwerkzeug, die bei einer definierten Temperatur und Belastung der Kunststoffschnitzwerkzeug durch eine Öffnung fließt. Die Schmelzflussgeschwindigkeitswerte, die hier enthalten sind, werden gemäß dem ASTM-Verfahren D1238 (das Gleiche wie ISO 1130) bestimmt. Aufgrund des Anstiegs des Schmelzflusses kann die thermoplastische Zusammensetzung durch Spritzgießen ohne Abbau von physikalischen Eigenschaften, wie z.B. der Wärmeverformungstemperatur aufgrund von thermischem Abbau, zu Gegenständen mit breiten Bereichen von Dicke geformt werden.

[0017] Kompatibilisierte Polyarylenether/Polyamidharzblends werden hergestellt durch Kombinieren von Polyarylenether, Polyamid und Kompatibilisierungsmittel. Die Bezeichnung Polyarylenether beinhaltet Polypolyarylenether (PPE) und Polyarylenethercopolymere, Pfropfcopolymere, Polyarylenetheretherionomere und Blockcopolymere aus alkenylaromatischen Verbindungen, vinylaromatischen Verbindungen und Polyarylenether und Ähnlichem, sowie Kombinationen, aufweisend zumindest eines der vorher Genannten und Ähnliches. Polyarylenether per se sind bekannte Polymere, aufweisend eine Vielzahl von Struktureinheiten der Formel (I):



wobei für jede Struktureinheit jedes Q^1 unabhängig voneinander Halogen, primäres oder sekundäres niederes

Alkyl (z.B. Alkyl, enthaltend bis zu 7 Kohlenstoffatome), Phenyl, Halogenalkyl, Aminoalkyl, Hydrocarbonoxy, Halogenhydrocarbonoxy, wobei zumindest zwei Kohlenstoffatome die Halogen- und Sauerstoffatome voneinander trennen, oder Ähnliches, und jedes Q^2 ist unabhängig voneinander Wasserstoff, Halogen, primäres oder sekundäres niederes Alkyl, Phenyl, Halogenalkyl, Hydrocarbonoxy, Halogenhydrocarbonoxy, wobei zumindest zwei Kohlenstoffatome die Halogen- und Sauerstoffatome voneinander trennen, oder Ähnliches. Vorzugsweise ist Q^1 Alkyl oder Phenyl, insbesondere C_{1-4} Alkyl, und jedes Q^2 ist Wasserstoff.

[0018] Sowohl Homopolymer- als auch Copolymer-Polyarylenether sind enthalten. Die bevorzugten Homopolymere sind solche, welche 2,6-Dimethylphenylenethereinheiten enthalten. Geeignete Copolymere beinhalten statistische Copolymere, enthaltend z.B. solche Einheiten in Kombination mit 2,3,6-Trimethyl-1,4-phenylenethereinheiten oder Copolymere, erhalten aus Copolymerisation von 2,6-Dimethylphenol mit 2,3,6-Trimethylphenol. Ebenfalls eingeschlossen sind Polyarylenether, enthaltend Einheiten, die hergestellt werden durch Pfropfen von Vinylmonomeren oder -polymeren, wie z.B. Polystyrolen, sowie gekoppelte Polyarylenether, wobei Kopplungsmittel, wie z.B. niedrigmolekulargewichtige Polycarbonate, Chinone, Heterocyclen und Formaline einer Reaktion in bekannter Art und Weise mit den Hydroxygruppen aus zwei Polyarylenetherketten unterliegen, um ein hochmolekulargewichtiges Polymer herzustellen. Polyarylenether beinhalten weiterhin Kombinationen, aufweisend zumindest eines der oben Genannten.

[0019] Der Polyarylenether hat allgemein ein zahlenmittleres Molekulargewicht von etwa 3.000 bis 40.000 Atommasseeinheiten (amu) und ein gewichtsmittleres Molekulargewicht von etwa 20.000 bis 80.000 amu, bestimmt durch Gelpermeationschromatographie. Der Polyarylenether kann eine intrinsische Viskosität von etwa 0,10 bis etwa 0,60 Deziliter pro Gramm (dl/g), vorzugsweise etwa 0,29 bis etwa 0,48 dl/g, gemessen in Chloroform bei 25°C, haben. Es ist ebenfalls möglich, einen hoch intrinsisch viskosen Polyarylenether und einen niedrig intrinsisch viskosen Polyarylenether in Kombination zu verwenden. Bestimmung eines exakten Verhältnisses, wenn zwei intrinsische Viskositäten verwendet werden, wird etwas von den exakten intrinsischen Viskositäten des verwendeten Polyarylenethers abhängen und den letztendlichen physikalischen Eigenschaften, die erwünscht sind.

[0020] Polyarylenether wird typischerweise hergestellt durch oxidative Kupplung von zumindest einer monohydroxyaromatischen Verbindung, wie z.B. 2,6-Xylenol oder 2,3,6-Trimethylphenol. Katalysatorsysteme werden allgemein für eine solche Kupplung eingesetzt. Sie enthalten typischerweise zumindest eine Schwermetallverbindung, wie z.B. Kupfer-, Mangan- oder Kobaltverbindung, üblicherweise in Kombination mit verschiedenen anderen Materialien.

[0021] Geeignete Polyarylenether beinhalten auch solche, die Moleküle aufweisen, die zumindest eine aminoalkylenthaltende Endgruppe haben. Der Aminoalkylrest befindet sich typischerweise in einer ortho-Position zu der Hydroxygruppe. Produkte, welche solche Endgruppen enthalten, können erhalten werden durch Einbringen eines geeigneten primären oder sekundären Monoamins, wie z.B. Di-n-butylamin oder Dimethylamin als eines der Bestandteile der oxidativen Kupplungsreaktionsmischung. Ebenfalls häufig vorhanden sind 4-Hydroxybiphenylendgruppen, typischerweise erhalten aus Reaktionsmischungen, in denen ein Diphenochinon-Nebenprodukt vorhanden ist, insbesondere in einem sekundären oder tertiären Kupfer-Halogenid-Aminsystem. Ein wesentlicher Anteil der Polymermoleküle, der typischerweise so viel wie etwa 90 Gew.-% des Polymeren bildet, kann zumindest eine der genannten aminoalkylenthaltenden und 4-Hydroxybiphenyl-Endgruppen enthalten.

[0022] Für den Fachmann ist aus dem Vorhergehenden offensichtlich, dass die beabsichtigten Polyarylenether all jene beinhalten, die derzeit bekannt sind, unabhängig von Variationen in Struktureinheiten oder anhängenden chemischen Merkmalen. Polyarylenether wird typischerweise in Mengen von etwa 30 bis etwa 90 Gew.-%, vorzugsweise etwa 35 bis etwa 65 Gew.-% und bevorzugt etwa 40 bis etwa 60 Gew.-%, basierend auf dem Gesamtgewicht der Zusammensetzung, eingesetzt.

[0023] Polyamidharze sind eine generische Familie von Harzen, die als Nylon bekannt sind, charakterisiert durch die Gegenwart einer Amidgruppe ($-C(O)NH-$). Nylon-6 und Nylon-6,6 sind die allgemein bevorzugten Polyamide und sind aus einer Vielzahl von kommerziellen Quellen erhältlich. Andere Polyamide jedoch, wie z.B. Nylon-4,6, Nylon-12, Nylon-6,10, Nylon-6,9, Nylon 6/6T und Nylon 6,6/6T mit Triamingehalt unterhalb von etwa 0,5 Gew.-%, sowie andere, wie z.B. amorphe Nylons, können für besondere PPE-Polyamid Anwendungen geeignet sein. Mischungen aus verschiedenen Polyamiden, sowie verschiedenen Polyamidcopolymeren, sind ebenfalls geeignet. Das besonders bevorzugte Polyamid ist Polyamid-6.

[0024] Polyamide können erhalten werden durch eine Vielzahl von wohlbekannten Verfahren, wie z.B. solche,

die in US-Patent Nrn. 2 071 250, 2 071 251, 2 130 523, 2 130 948, 2 241 322, 2 312 966 und 2 512 606 beschrieben sind. Nylon-6 ist z.B. ein Polymerisationsprodukt aus Caprolactam. Nylon-6,6 ist ein Kondensationsprodukt aus Adipinsäure und 1,6-Diaminohexan. Ebenso ist Nylon-4,6 ein Kondensationsprodukt zwischen Adipinsäure und 1,4-Diaminobutan. Neben Adipinsäure beinhalten andere geeignete Disäuren für die Herstellung von Nylon Azelainsäure, Sebazinsäure, Dodecandisäure, sowie Terephthal- und Isophthalsäuren und Ähnliche. Andere geeignete Diamine beinhalten m-Xyloldiamin, Di-(4-aminophenyl)methan, Di-(4-aminocyclohexyl)methan, 2,2-Di-(4-aminophenyl)propan, 2,2-Di-(4-aminocyclohexyl)propan, unter anderen. Copolymere aus Caprolactam mit Disäuren und Diaminen sind ebenfalls geeignet.

[0025] Polyamide mit einer Viskosität von bis zu etwa 400 ml/g können verwendet werden, mit einer bevorzugten Viskosität von etwa 90 bis etwa 350 ml/g und besonders bevorzugt etwa 110 bis etwa 240 ml/g, gemessen in einer 0,5 Gew.-%igen Lösung in 96%iger Schwefelsäure in Übereinstimmung mit ISO 307. Polyamid wird typischerweise eingesetzt in Mengen von etwa 10 bis etwa 70 Gew.-%, vorzugsweise etwa 20 bis etwa 65 Gew.-% und bevorzugt etwa 25 bis etwa 60 Gew.-%, basierend auf dem Gesamtgewicht der Zusammensetzung.

[0026] Kompatibilisierungsmittel verbessern die physikalischen Eigenschaften des Polyarylenether/Polyamidharzblends und ermöglichen die Verwendung von einem größeren Anteil der Polyamidkomponente. Wenn hier verwendet betrifft der Ausdruck „Kompatibilisierungsmittel“ solche polyfunktionellen Verbindungen, die mit dem Polyarylenether, dem Polyamid oder bevorzugt beiden wechselwirken. Diese Wechselwirkung kann chemisch (z.B. Pfropfen) oder physikalisch (z.B. die Oberflächencharakteristiken der dispergierten Phasen beeinflussend) sein. In jedem Fall scheint die resultierende Polyarylenether/Polyamidzusammensetzung verbesserte Kompatibilität zu zeigen, insbesondere bewiesen durch verbesserte Schlagfestigkeit, Stricknahtfestigkeit (knot line strength) und/oder Dehnung. So wie hier verwendet betrifft der Ausdruck „kompatibilisierter Polyarylenether/Polyamidharzblend“ solche Zusammensetzungen, die physikalisch oder chemisch mit einem wie oben diskutierten Mittel kompatibelisiert wurden, so wie solche Zusammensetzungen, die physikalisch ohne solche Mittel kompatibel sind, wie z.B. in US-Patent Nr. 3 379 792 gelehrt.

[0027] Geeignete Kompatibilisierungsmittel beinhalten z.B. flüssige Dienpolymere, Epoxyverbindungen, oxidiertes Polyolefinwachs, Chinone, Organosilanverbindungen, polyfunktionelle Verbindungen, sowie funktionalisierte Polyarylenether, die durch Reaktion von einem oder mehreren der zuvor erwähnten Kompatibilisierungsmittel mit Polyarylenether erhalten werden.

[0028] Flüssige Dienpolymere, die zur Verwendung als Kompatibilisierungsmittel geeignet sind, beinhalten Homopolymere eines konjugierten Diens und Copolymere eines konjugierten Diens mit zumindest einem Monomer, ausgewählt aus anderen konjugierten Dienen, Vinylmonomeren, wie z.B. Styrol und alpha-Methylstyrol, Olefinen, wie z.B. Ethylen, Propylen, Buten-1, Isobutylen, Hexen-1, Octen-1 und Dodecen-1, sowie Mischungen daraus. Die flüssigen Dienpolymere können ein zahlenmittleres Molekulargewicht von etwa 150 Atommasseeinheiten (AMU) bis etwa 10.000 AMU, vorzugsweise etwa 150 AMU bis etwa 5.000 AMU haben. Diese Homopolymere und Copolymere können durch die Verfahren hergestellt werden, die z.B. in US-Patent Nrn. 3 428 699, 3 876 721 und 4 054 612 beschrieben sind. Spezielle Beispiele für flüssige Dienpolymere beinhalten Polybutadien, Polyisopren, Poly-1,3-pentadien, Poly(butadien-isopren), Poly(styrolbutadien), Polychloropren, Poly(butadien-alpha-methylstyrol), Poly(butadien-styrolisopren), Poly(butylen-butadien) und Ähnliches, sowie Kombinationen, aufweisend zumindest eines der vorhergehenden flüssigen Dienpolymeren.

[0029] Epoxyverbindungen, die geeignet sind für die Verwendung als Kompatibilisierungsmittel, beinhalten Epoxyharze, hergestellt durch Kondensation von mehrwertigen Phenolen (z.B. Bisphenol A, Tetrabrombisphe-nol A, Resorcin und Hydrochinon) und Epichlorhydrin, Epoxyharze, hergestellt durch Kondensation von mehrwertigen Alkoholen (z.B. Ethylenglykol, Propylenglykol, Butylenglykol, Polyethylenglykol, Polypropylenglykol, Pentaerythrit und Trimethylolathan und Ähnliche) und Epichlorhydrin, glycidylveretherte Produkte von einwertigen Alkoholen und einwertigen Phenolen, wie z.B. Phenylglycidylether, Butylglycidylether und Kresylglycidylether, Glycidyl-derivate von Aminoverbindungen, wie z.B. die Diglycidyl-derivate von Anilin, epoxidierte Produkte von höheren olefinischen oder Cycloalkenen oder natürlichen ungesättigten Ölen (z.B. Sojabohnenöl), so wie aus den vorhergehenden flüssigen Dienpolymeren, Kombinationen, aufweisend zumindest eine der vorhergehenden Epoxyverbindungen und Ähnliches.

[0030] Oxidierte Polyolefinwachse, die geeignet sind für die Verwendung als Kompatibilisierungsmittel, sind wohlbekannt und z.B. in US-Patent Nrn. 3 756 999 und 3 822 227 beschrieben. Allgemein werden diese durch eine Oxidation oder Suspensionsoxidation von Polyolefin hergestellt. Ein besonders bevorzugtes oxidiertes Polyolefinwachs ist „Hoechst Wachs“.

[0031] Chinonverbindungen, die geeignet sind für die Verwendung als Kompatibilisierungsmittel, sind dadurch charakterisiert, dass sie zumindest einen sechsgliedrigen Kohlenstoffring haben, zumindest zwei Carbonylgruppen, die in dem gleichen oder verschiedenen sechsgliedrigen Kohlenstoffring sein können, vorausgesetzt, dass sie Positionen einnehmen, die zu der 1,2- oder 1,4-Orientierung des monocyclischen Chinons korrespondieren, und zumindest zwei Kohlenstoff-Kohlenstoff-Doppelbindungen in der Ringstruktur haben, wobei die Kohlenstoff-Kohlenstoff Doppelbindungen und Carbonylkohlenstoff-Sauerstoff Doppelbindungen miteinander konjugiert sind. Wenn mehr als ein Ring in dem unsubstituierten Chinon vorhanden ist, können die Ringe fusioniert, nicht fusioniert oder beides sein: nicht fusionierte Ringe können über eine direkte Kohlenstoff-Kohlenstoff-Doppelbindung oder über einen Kohlenwasserstoffrest mit konjugierter Ungesättigtheit, wie z.B. $-C=C-C=C$ gebunden sein.

[0032] Die Chinone können substituiert oder unsubstituiert sein. In substituierten Chinonen kann der Grad der Substitution von eins bis zur maximalen Zahl der ersetzbaren Wasserstoffatome sein. Beispielhafte Substituenten beinhalten Halogen (z.B. Chlor, Brom, Fluor, etc.), Kohlenwasserstoffreste, einschließlich verzweigtem und unverzweigtem Alkyl, Cycloalkyl, olefinisch ungesättigten Kohlenwasserstoffresten, Aryl, Alkylaryl und halogenierten Derivaten davon, sowie ähnlichen Kohlenwasserstoffen mit Heteroatomen darin, insbesondere Sauerstoff, Schwefel oder Phosphor, und wobei die Heteroatome den Rest mit dem Chinonring verknüpfen (z.B. Alkoxy). Beispiele von speziellen Chinonen beinhalten 1,2-Benzochinon, 1,4-Benzochinon, 2,2'-Diphenochinon, 4,4'-Diphenochinon, 2,2',6,6'-Tetramethyl-4,4'-diphenochinon, 1,2-Naphthochinon, 1,4-Naphthochinon, 2,6-Naphthochinon, Chloranile, 2-Chlor-1,4-benzochinon, 2,6-Dimethyl-1,4-benzochinon, Kombinationen, aufweisend zumindest eines der vorhergehenden Chinone und Ähnliches.

[0033] Organosilanverbindungen, die geeignet sind als Kompatibilisierungsmittel, sind dadurch charakterisiert, dass sie zumindest ein Siliziumatom über eine Sauerstoffbindung an einen Kohlenstoff gebunden haben und zumindest eine Kohlenstoff-Kohlenstoff-Doppelbindung oder Kohlenstoff-Kohlenstoff-Dreifachbindung und/oder eine funktionelle Gruppe, ausgewählt aus einer Aminogruppe oder einer Mercaptogruppe, vorausgesetzt, dass die funktionelle Gruppe nicht direkt an das Siliziumatom gebunden ist. In solchen Verbindungen ist die C-O-Si-Komponente allgemein als eine Alkoxy- oder Acetoxygruppe vorhanden, die direkt an das Siliziumatom gebunden ist, wobei die Alkoxy- oder Acetoxygruppe allgemein weniger als 15 Kohlenstoffatome hat und auch Heteroatome (z.B. Sauerstoff) enthalten kann. Zusätzlich kann auch mehr als ein Siliziumatom in der Verbindung vorhanden sein, wie z.B. mehrere Siliziumatome, falls vorhanden, die über eine Sauerstoffbindung (z.B. Siloxane) verknüpft sind, eine Silizium-Silizium-Bindung oder einen zweiwertigen Kohlenwasserstoffrest (z.B. Methylen- oder Phenylengruppen) oder Ähnliches. Beispiele für geeignete Organosilanverbindungen beinhalten gamma-Aminopropyltriethoxysilan, 2-(3-Cyclohexanyl)ethyltrimethoxysilan, 1,3-Divinyltetraethoxysilan, Vinyl-tris-(2-methoxyethoxy)silan, 5-Bicycloheptenyltriethoxysilan und gamma-Mercaptopropyltrimethoxysilan.

[0034] Polyfunktionelle Verbindungen, die als Kompatibilisierungsmittel geeignet sind, beinhalten drei Typen. Der erste Typ an polyfunktionellen Verbindungen sind solche, die in dem Molekül sowohl eine Kohlenstoff-Kohlenstoff-Doppelbindung oder eine Kohlenstoff-Kohlenstoff-Dreifachbindung als auch zumindest eine Carbonsäure-, Anhydrid-, Amid-, Ester-, Imid-, Amino-, Epoxy-, Orthoester- oder Hydroxygruppe haben. Beispiele für solche polyfunktionellen Verbindungen beinhalten Maleinsäure, Maleinsäureanhydrid, Fumarsäure, Glycidylacrylat, Itaconsäure, Aconitsäure, Maleimid, Maleinhydrazid, Reaktionsprodukte, resultierend aus einem Diamin und Maleinsäureanhydrid, Dichlormaleinsäureanhydrid, Maleinsäureamid, ungesättigte Dicarbonsäuren (z.B. Acrylsäure, butenoische Säure, Methacrylsäure, Ethylacrylsäure, pentenoische Säure), decenoische Säuren, undecenoische Säuren, dodecenoische Säuren, Linolsäure, Ester der vorhergehenden ungesättigten Carbonsäuren, Säureamide der vorhergehenden ungesättigten Carbonsäuren, Anhydride der vorhergehenden ungesättigten Carbonsäuren, ungesättigte Alkohole (z.B. Alkylalkohol, Crotylalkohol, Methylvinylcarbinol, 4-Penten-1-ol, 1,4-Hexadien-3-ol, 3-Buten-1,4-diol, 2,5-Dimethyl-3-hexen-2,5-diol und Alkohole der Formeln $C_nH_{2n-5}OH$, $C_nH_{2n-7}OH$ und $C_nH_{2n-9}OH$, wobei n eine positive ganze Zahl von bis zu 30 ist), ungesättigte Amine, resultierend aus Ersetzen der -OH-Gruppe(n) der oben genannten ungesättigten Alkohole mit NH_2 -Gruppen funktionalisierten Dienpolymeren, sowie Copolymere und Ähnliches. Von diesen sind zwei der bevorzugten Kompatibilisierungsmittel für erfindungsgemäße Zusammensetzungen Maleinsäureanhydrid und Fumarsäure.

[0035] Die zweite Gruppe aus polyfunktionellen Verbindungen hat sowohl (a) eine Gruppe, dargestellt durch die Formel (OR), wobei R Wasserstoff oder eine Alkyl-, Aryl-, Acyl- oder Carbonyldioxygruppe ist, als auch (b) zumindest zwei Gruppen, von denen jede die gleiche oder verschieden sein kann, ausgewählt aus Carbonsäure, Säurehalogenid, Anhydrid, Säurehalogenidanhydrid, Ester, Orthoester, Amid, Imido, Amino und verschiedenen Salzen davon. Typisch für diese Gruppe von Kompatibilisierern sind die aliphatischen Polycarbonsäuren, -säureester und -säureamide, dargestellt durch die Formel: $(R'O)_mR(COOR'')_n(CONR''R''')_s$, wobei R eine lineare

re oder verzweigte Kette, gesättigter aliphatischer Kohlenwasserstoff von 2 bis 20, vorzugsweise 2 bis 10 Kohlenstoffatomen ist, R^I Wasserstoff oder eine Alkyl-, Aryl-, Acyl- oder Carbonyldioxygruppe von 1 bis 10, vorzugsweise 1 bis 6, bevorzugt 1 bis 4 Kohlenstoffatomen ist, insbesondere bevorzugt Wasserstoff ist, jedes R^{II} unabhängig voneinander Wasserstoff oder eine Alkyl- oder Aryl-Gruppe von 1 bis 20 Kohlenstoffatomen, vorzugsweise von 1 bis 10 Kohlenstoffatomen ist, jedes R^{III} und R^{IV} unabhängig voneinander Wasserstoff oder eine Alkyl- oder Aryl-Gruppe von 1 bis 10 vorzugsweise von 1 bis 6, bevorzugt 1 bis 4 Kohlenstoffatomen ist, m gleich 1 ist und $(n + s)$ größer als oder gleich 2 ist, vorzugsweise gleich 2 oder 3, und n und s jeweils größer als oder gleich 0 sind, und wobei (OR^I) alpha oder beta zu einer Carbonylgruppe ist und zumindest zwei Carbonylgruppen durch 2 bis 6 Kohlenstoffatome getrennt sind. Offensichtlich können R^I , R^{II} , R^{III} und R^{IV} kein Aryl sein, wenn die jeweiligen Substituenten weniger als 6 Kohlenstoffatome haben.

[0036] Geeignete Polycarbonsäuren beinhalten z.B. Zitronensäure, Hydroxybernsteinsäure, Agaricinsäure und Ähnliches, einschließlich den verschiedenen kommerziellen Formen davon, so wie z.B. die wasserfreien und hydratisierten Säuren. Von diesen ist Zitronensäure ein weiteres der bevorzugten Kompatibilisierungsmittel. Anschauliche Ester, die hier geeignet sind, beinhalten z.B. Acetylcitrat und Mono- und/oder Distearylcitrate und Ähnliches. Geeignete Amide, die hier verwendbar sind, beinhalten z.B. N,N'-Diethylzitronensäureamid, N-Phenylzitronensäureamid, N-Dodecylzitronensäureamid, N,N'-Didodecylzitronensäureamid und N-Dodecylhydroxybernsteinsäure. Insbesondere bevorzugte Derivate sind die Salze davon, einschließlich die Salze mit Aminen und/vorzugsweise die Alkali- und Erdalkalimetallsalze. Beispielhafte geeignete Salze beinhalten Kalziummaleat, Kalziumcitrat, Kaliummaleat und Kaliumcitrat.

[0037] Die dritte Gruppe von polyfunktionellen Verbindungen hat sowohl (a) eine Säurehalogenidgruppe, bevorzugt eine Säurechloridgruppe, als auch (b) zumindest eine Carbonsäure-, Anhydrid-, Ester-, Epoxy-, Orthoester- oder Amidgruppe, vorzugsweise eine Carbonsäure- oder Anhydridgruppe. Beispiele für Kompatibilisatoren mit dieser Gruppe beinhalten Trimellithanhydridsäurechlorid, Chloroformylsuccinsäureanhydrid, Chloroformylsuccinsäure, Chloroformylglutaranhydrid, Chloroformylglutarsäure, Chloracetylsuccinsäureanhydrid, Chloracetylsuccinsäure, Trimellithsäurechlorid und Chloracetylglutarsäure. Unter diesen ist Trimellithanhydridsäurechlorid bevorzugt. Weiterhin ist insbesondere bevorzugt, dass Kompatibilisatoren dieser Gruppe mit zumindest einem Teil des Polyarylenethers vorreagiert werden, wobei das Kompatibilisierungsmittel eine polyarylenether-funktionalisierte Verbindung ist.

[0038] Bevorzugte Kompatibilisierungsmittel beinhalten Zitronensäure, Maleinsäure, Maleinsäureanhydrid, Hydroxybernsteinsäure, Fumarsäure und Ähnliches, sowie Kombinationen, aufweisend zumindest eines der vorhergehenden Kompatibilisierungsmittel.

[0039] Die oben genannten und andere Kompatibilisierungsmittel werden vollständiger beschrieben in den US-Patenten Nrn. 4 315 086, 4 600 741, 4 642 358, 4 826 933, 4 866 114, 4 927 894, 4 980 424, 5 041 504 und 5 115 042.

[0040] Die vorhergehenden Kompatibilisierungsmittel können alleine oder in einer Vielzahl von Kombinationen von einem mit dem anderen verwendet werden. Weiterhin können sie direkt zu dem Schmelzblend zugegeben werden, oder entweder mit dem Polyarylenether oder Polyamid oder mit beidem vorreagiert werden, sowie mit anderen Harzmaterialien, die bei der Herstellung der erfindungsgemäßen Zusammensetzungen eingesetzt werden. Mit vielen der vorhergehenden Kompatibilisierungsmittel, insbesondere den polyfunktionellen Verbindungen, wird sogar eine größere Verbesserung bei der Kompatibilität gefunden, wenn zumindest ein Teil des Kompatibilisierungsmittel vorreagiert wird, entweder in der Schmelze oder in einer Lösung eines geeigneten Lösungsmittels, mit allem oder einem Teil des Polyarylenethers. Es wird angenommen, dass eine solche Vorreaktion das Kompatibilisierungsmittel dazu bringen kann, mit dem Polymer zu reagieren und demzufolge den Polyarylenether wie oben bemerkt funktionalisiert. Z.B. kann der Polyarylenether mit Maleinsäureanhydrid vorreagiert werden, um einen anhydridfunktionalisierten Polyarylenether zu bilden, der verbesserte Kompatibilität mit dem Polyamid im Vergleich zu einem nicht funktionalisierten Polyarylenether hat.

[0041] Wenn das Kompatibilisierungsmittel bei der Herstellung des kompatibilisierten Polyarylenether/Polyamidharzblends eingesetzt wird, hängt die anfängliche Menge von dem spezifischen ausgewählten Kompatibilisierungsmittel und dem spezifischen Polymersystem, an welches es addiert wird, ab. Typischerweise kann das Kompatibilisierungsmittel in einer Menge von etwa 0,05 Gew.-% bis etwa 5 Gew.-% vorhanden sein. Innerhalb dieses Bereichs kann die Menge des Kompatibilisierungsmittels vorzugsweise zumindest etwa 0,1 Gew.-%, bevorzugt zumindest etwa 0,3 Gew.-% und stärker bevorzugt zumindest etwa 0,5 Gew.-% betragen. Ebenfalls innerhalb dieses Bereichs kann es bevorzugt sein, Mengen an Kompatibilisierungsmittel von bis zu etwa 2 Gew.-%, bevorzugt bis zu etwa 1 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der Zusammensetzung, zu

verwenden.

[0042] Das dendritische Polyesterharz umfasst eine Sternexplosionskonfiguration (starburst configuration) mit Polyester verzweigungseinheiten, die an einen Kern gebunden sind. Wahlweise haben die Polyester verzweigungseinheiten funktionelle Hydroxygruppen an dem terminalen Ende, was Hydroxygruppen an der Peripherie des dendritischen Polymeren zur Verfügung stellt. Ein Anteil der terminalen Hydroxylgruppen des dendritischen Harzes kann reagiert werden, um Kettenterminierung oder funktionelle Gruppen zur Verfügung zu stellen. Das dendritische Polyesterharz hat vorzugsweise ein gewichtsmittleres Molekulargewicht, bestimmt durch Gelpermeationschromatographie, innerhalb des Bereiches von 1.000 bis 5.000. Die Zusammensetzung umfasst vorzugsweise weniger als etwa 15 Gewichtsprozent (Gew.-%), vorzugsweise weniger als etwa 10 Gew.-% und bevorzugt weniger als etwa 6 Gew.-% des dendritischen Polyesterharzes, basierend auf dem Gesamtgewicht der Zusammensetzung.

[0043] Die Bezeichnung dendritisches Polyesterharz, so wie hier verwendet, betrifft sowohl Dendrimere als auch hyperververzweigte Polymere, die in der Technik bekannt sind, aufweisend Polyester verzweigungseinheiten. Dendrimere und hyperververzweigte Polymere, die zur Verwendung in dieser Erfindung geeignet sind, sind wohldefinierte, hochverzweigte Makromoleküle, die von einem zentralen Kern strahlenförmig wegführen, und werden über eine schrittweise sich wiederholende Verzweigungsreaktionssequenz hergestellt. Solche, die hier bevorzugt sind, sind die stern- oder sternexplosions(starburst)dendritischen Polymere, die einen multifunktionalen Kern mit radialen Verzweigungseinheiten haben, die sich aus dem Kern heraus erstrecken. Die sich wiederholende Verzweigungssequenz garantiert typischerweise vollständige Schalen für jede Generation, was zu Polymeren führt, die typischerweise monodispers sind. Die synthetischen Prozeduren für dendritische Polymerherstellung stellen oftmals nahezu vollständige Kontrolle über die Größe, Form, Oberflächen-/innere Chemie, Flexibilität und Topologie zur Verfügung. Diese Erfindung beinhaltet die Verwendung von dendritischen Polymeren mit vollständigen und symmetrischen Verzweigungen, sowie unvollständige und asymmetrische Verzweigungen. Ein Beispiel für ein geeignetes synthetisches Verfahren ist die Verwendung einer multifunktionalen Verbindung, wie z.B. Ethylendiamin als einen kernaufbauenden Block. Dieser multifunktionelle Kern wird zunächst mit Acrylnitril zur Reaktion gebracht, um eine Struktur mit vier Nitrilgruppen zur Verfügung zu stellen. Diese Nitrilgruppen werden zu Amineinheiten reduziert, um den ersten Zyklus zu vervollständigen. Weitere Reaktionszyklen stellen dendritische Polymere mit 8, 16, 32, 64, 128, etc. primären Aminogruppen her. Die terminalen Enden dieser Verzweigungseinheiten können, falls erwünscht, mit herkömmlichen funktionellen Einheiten für dendritische Polymere, wie z.B. Hydroxygruppen, Epoxygruppen und Ethergruppen funktionalisiert werden.

[0044] Das gewichtsmittlere Molekulargewicht von bevorzugten dendritischen Polyesterharzen kann etwa 1.000 bis etwa 21.000 sein und ist vorzugsweise etwa 1.500 bis 12.000, bestimmt durch Gelpermeationschromatographie. Wenn man versucht, den Schmelzfluss zu erhöhen, sind die stärker bevorzugten Werte am unteren Ende des Molekulargewichtsbereiches von etwa 1.500 bis etwa 5.000. Vorzugsweise haben die dendritischen Polyesterharze eine enge Polydispersität von etwa 1,3 bis etwa 1,5 und eine Schmelzviskosität von 1 bis 250 Pa bei einer Temperatur von 110°C und einer Scherrate von 30 sec⁻¹. Die dendritischen Polyesterharze können wahlweise entweder im Kern oder in der Peripherie der Verzweigungseinheiten funktionalisiert werden. Polare Gruppen und nicht polare Gruppen können an die Peripherie des dendritischen Polyesterharzes wie gewünscht gebunden werden, abhängig von der Art der thermoplastischen Zusammensetzungsformulierung. Vorzugsweise werden Hydroxy- und/oder Epoxygruppen an die terminalen Enden der dendritischen Polyesterharze gebunden.

[0045] Die Moleküle, die als ein Kern verwendet werden können, enthalten zumindest eine funktionelle Gruppe, bevorzugt enthalten sie mehrere funktionelle Gruppen. Diese beinhalten Ammoniak, Methanol, Polymethylendiamine, Diethylentriamin, Triethyltetramin, Tetraethylenpentamin, lineares und verzweigtes Polyethylenimin, Methylamin, Hydroxyethylamin, Octadecylamin, Polyaminoalkylarene, heterocyclische Amine, wie z.B. Imidazoline und Piperidine, Morpholin, Piperazin, Pentaerythrit, Sorbit, Mannit, Polyalkylenpolyole, wie z.B. Polyethylenglykol und Polypropylenglykol, Glykole, wie z.B. Ethylenglykol, Polyalkylenpolymercaptane, Phosphin, Glycin, Thiophenole, Phenole, Melamin und Derivate davon, wie z.B. Melamintris(hexamethylendiamin).

[0046] Bevorzugte dendritische Polymere werden verkauft unter dem Warenzeichen BOLTORN® erhältlich von Perstorp Specialty Chemicals, Perstorp, Schweden. Aus dieser Serie sind BOLTORN H20 und BOLTORN H30 dendritische Polymere, die mit Hydroxygruppen in der Peripherie funktionalisiert sind, bevorzugt und haben ein gewichtsmittleres Molekulargewicht in dem Bereich von etwa 1.000 bis etwa 4.000.

[0047] Geeignete zentrale Initiator-moleküle für die polyesterartigen dendritischen Polymere beinhalten cyclo-

aliphatische oder aromatische Diole, Triole, Tetraole, Sorbit, Mannit, Dipentaerythrit, einen monofunktionellen Alkohol und ein Alkoxyatpolymer mit einem Molekulargewicht von weniger als 2.000. Beispiele für geeignete Diole beinhalten 1,3-Propandiol, 1,2-Propandiol, 1,3-Butandiol, 1,2-Ethandiol, 1,4-Butandiol, 1,5-Pentandiol, 1,6-Hexandiol und Polytetrahydrofuran.

[0048] Geeignete Polyesterkettenverlängerer sind monofunktionelle Carbonsäuren mit zumindest zwei Hydroxylgruppen, wie z.B. α,α -Bis(hydroxymethyl)propionsäure, α,α -Bis(hydroxymethyl)buttersäure, α,α,α -Tris(hydroxymethyl)essigsäure, α,α -Bis(hydroxymethyl)bularinsäure (bularic acid), α,α -Bis(hydroxymethyl)propionsäure, α,β -Dihydroxypropionsäure, Heptonsäure, Zitronensäure, d- oder l-Weinsäure oder α -Phenylcarbonsäuren, wie z.B. 3,5-Dihydroxybenzoesäure.

[0049] Die optionalen Ketten terminierenden Mittel, die verwendet werden können, beinhalten gesättigte monofunktionelle Dicarbonsäuren, gesättigte Fettsäuren, ungesättigte monofunktionelle Carbonsäuren, aromatische monofunktionelle Carbonsäuren, wie z.B. Benzoesäure, und difunktionelle oder polyfunktionelle Carbonsäuren oder Anhydride davon. Ein Beispiel ist Behensäure. Terminale Hydroxylgruppen in dem Polyesterkettenverlängerer können mit Kettenstoppem oder mit funktionellen Gruppen zur Reaktion gebracht werden. Geeignete dendritische Polymere auf Polyesterbasis werden beschrieben in US-Patent Nrn. 5 418 301 und 5 663 247.

[0050] Andere geeignete Kettenverlängerer beinhalten aliphatische di-, tri- oder polyhydroxyfunktionelle gesättigte oder ungesättigte Monocarbonsäuren, cycloaliphatische di-, tri- oder polyhydroxyfunktionelle gesättigte oder ungesättigte Monocarbonsäuren, aromatische di-, tri- oder polyhydroxyfunktionelle Monocarbonsäuren, aliphatische monohydroxyfunktionelle gesättigte oder ungesättigte Di-, Tri- oder Polycarbonsäuren, cycloaliphatische monohydroxyfunktionelle gesättigte oder ungesättigte Di-, Tri- oder Polyhydroxycarbonsäuren und aromatische monohydroxyfunktionelle Di-, Tri- oder Polycarbonsäuren. Die Ester der oben genannten Säuren sind ebenfalls geeignet.

[0051] Das dendritische Polyesterharz wird vorzugsweise in der erfindungsgemäßen Zusammensetzung in einer Menge von etwa 0,01 bis etwa 15 Gew.-% der Gesamtzusammensetzung verwendet, um eine geeignete Balance der Eigenschaften zur Verfügung zu stellen. Bevorzugt wird eine Menge an dendritischem Polyesterharz von etwa 0,1 bis etwa 10 Gew.-% der Gesamtzusammensetzung verwendet, um den Fluss zu verbessern, und stärker bevorzugt werden etwa 0,1 bis etwa 6 Gew.-% der Gesamtzusammensetzung und besonders bevorzugt etwa 0,1 bis etwa 4 Gew.-% der Gesamtzusammensetzung verwendet, um den Fluss zu verbessern, während der Verlust an Wärmeverformungstemperatur (HDT)-Werten minimiert wird. Obwohl nicht bevorzugt, kann das dendritische Polyesterharz in Mengen von bis zu 30 Gew.-% verwendet werden.

[0052] Die thermoplastische Zusammensetzung kann weiterhin einen optionalen Schlagmodifizierer aufweisen. Insbesondere geeignete thermoplastische Schlagmodifizierer sind Blockcopolymere, z.B. A-B-Diblock-Copolymere und A-B-A-Triblock-Copolymere mit ein oder zwei alkenylaromatischen Blöcken A, die typischerweise Styrolblöcke sind, und einem Kautschukblock B, der typischerweise ein Isopren- oder Butadienblock ist. Der Butadienblock kann teilweise hydriert sein. Mischungen dieser Diblock- und Triblock-Copolymere sind besonders geeignet.

[0053] Geeignete A-B- und A-B-A-Copolymere beinhalten, sind aber nicht eingeschränkt auf, Polystyrol-Polybutadien, Polystyrol-Polyethylen-propylen, Polystyrol-Polyisopren, Poly- α -methylstyrol-Polybutadien, Polystyrol-Polybutadien-Polystyrol (SBS), Polystyrol-Poly(ethylen-propylen)-Polystyrol, Polystyrol-Polyisopren-Polystyrol und Poly- α -methylstyrol-Polybutadien-Poly- α -methylstyrol, sowie die selektiv hydrierten Versionen davon und Ähnliches. Mischungen aus den zuvor genannten Blockcopolymeren sind ebenfalls verwendbar. Solche A-B- und A-B-A-Block-Copolymere sind kommerziell von einer Anzahl von Quellen erhältlich, einschließlich Phillips Petroleum unter dem Warenzeichen SOLPRENE, Shell Chemical Co., unter dem Warenzeichen KRATON, Dexco unter dem Warenzeichen VECTOR, sowie Kuraray unter dem Warenzeichen SEPTON.

[0054] Eine geeignete Menge an Schlagmodifizierer ist bis zu etwa 20 Gewichtsprozent (Gew.-%), wobei etwa 1 Gew.-% bis etwa 15 Gew.-% bevorzugt sind und etwa 2 Gew.-% bis etwa 12 Gew.-% besonders bevorzugt, wobei die Gewichtsprozent auf dem vollständigen Gewicht der Zusammensetzung basieren. In einer insbesondere bevorzugten Ausführungsform umfasst der Schlagmodifizierer ein Polystyrol-Polybutadien-Polystyrol-Blockcopolymer.

[0055] Zusätzlich kann die thermoplastische Harzzusammensetzung wahlweise auch verschiedene Additive,

wie z.B. Antioxidantien, Füller und Verstärkungsmittel, Entformungsmittel, UV-Absorber, Stabilisatoren, wie z.B. Lichtstabilisatoren und andere, Gleitmittel, Weichmacher, Pigmente, Farbstoffe, Färbemittel, Antistatizmittel und Flammenschutzmittel enthalten.

[0056] Die Zusammensetzungen können durch wohlbekannte Verfahren hergestellt werden. Ein Verfahren zur Herstellung ist, das dendritische Polyesterharz mit dem Polyarylenether, Polyamid und dem Kompatibilisierungsmittel zu vermischen und die Mischung durch bekannte Techniken, wie z.B. in einem Extruder, zu kompondieren, um einen Blend zu bilden. Alternativ kann das dendritische Polyesterharz mit einem kompatibilisierten Polyarylenether/Polyamidblend vermischt und kompondiert werden. Unabhängig vom Herstellungsverfahren hat die Zusammensetzung eine reduzierte Viskosität und erhöhten Fluss im Vergleich zu den kompatibilisierten Polyarylenether-Polyamid-Zusammensetzungen allein, ohne signifikante Reduktion in den HDT Werten. Diese Zusammensetzung kann mit anderen Bestandteilen vermischt oder extrudiert, gequenchet und zu Pellets geschnitten werden. Diese Pellets können dann geschmolzen und zu Gegenständen einer gewünschten Form und Größe geformt werden oder wieder kompondiert werden, um mit anderen Bestandteilen vermischt zu werden, vor zusätzlicher Verarbeitung bei der Herstellung von fertigen Gegenständen.

[0057] Die Erfindung wird weiter veranschaulicht durch die folgenden nicht einschränkenden Beispiele. Alle genannten Patente sind hiermit durch Bezugnahme eingeschlossen.

Beispiele

[0058] Die folgenden Beispiele werden hergestellt unter Verwendung der Materialien und Mengen wie in Tabelle 1 aufgeführt. Die Menge an Schlagmodifizierer, Polyarylenether, Polyamid, Kompatibilisierungsmittel und dendritischem Polyesterharz basiert auf dem Gesamtgewicht von Schlagmodifizierer, Polyarylenether, Polyamid und Kompatibilisierungsmittel. Die Materialien werden in einem Extruder kombiniert und pelletisiert. Proben werden zum Testen aus dem Material durch Spritzgießen gemäß den ASTM-Verfahren geformt.

Name	Komponente	verwendete Menge (Gew.-%)
SBS Vector 8508D	Schlagmodifizierer	10,0
PPO	Polyarylenether; intrinsische Viskosität von 0,46	47,0
Capron 1250	Polyamid	41,3
Zitronensäure	Kompatibilisierungsmittel	0,8
Boltorn H20	dendritisches Polyesterharz	variiert gemäß Beispiel

Beispiele 1 bis 14

[0059] Beispiele 1 und 8 sind Vergleichsbeispiele und enthalten kein dendritisches Polyesterharz. In den Beispielen 1 bis 14 wird das Polyamid in zwei Teilen zugegeben, 10,0 Gew.-% werden in die erste Zuführung zugegeben und die restlichen 31,3 Gew.-% werden in eine zweite Zuführung zugegeben. In den Beispielen 2 bis 7 wird dendritisches Polyesterharz in die erste Zuführung zugegeben. In den Beispielen 9 bis 14 wird dendritisches Polyesterharz in die zweite Zuführung zugegeben. Die Schmelzflussrate wird bestimmt durch Messung der mittleren Masse an geschmolzenem Polymer, das aus einer Öffnung über einen Zeitraum von 10 Minuten ausfließt (ASTM D1238). Ergebnisse sind in Tabelle 2 gezeigt.

Tabelle 2		
Beispiel	Menge an dendritischem Polyesterharz	Schmelzflussrate
1*	0	0,78
2	0,5	1,83
3	1,0	2,5
4	1,5	4,7
5	2,0	6,01
6	3,0	11,93
7	4,0	-
8*	0	0,78
9	0,5	1,07
10	1,0	2,48
11	1,5	3,4
12	2,0	5,51
13	3,0	9,48
14	4,0	16,33

* Vergleichsbeispiel

[0060] Wie man aus den Beispielen 1 bis 14 sehen kann, resultiert das Einbringen einer kleinen Menge an dendritischem Polyesterharz in einem großen Anstieg in der Schmelzflussrate.

Beispiele 15 bis 20

[0061] Beispiel 15 ist ein Vergleichsbeispiel und enthält kein dendritisches Polyesterharz. Beispiele 16 bis 20 enthalten variierende Mengen an dendritischem Polyesterharz, wie in Tabelle 3 gezeigt. In den Beispielen 16 bis 18 wird das dendritische Polyesterharz in die erste Zuführung zugegeben. In den Beispielen 19 und 20 wird das dendritische Polyesterharz in die zweite Zuführung zugegeben. Das Material wird geschmolzen und untersucht. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3 gezeigt. Wärmeverformungstemperatur wird gemäß ASTM D648 an 0,125 Inch (3,175 Millimeter) Proben bei 66 Pfund je Quadratinch (psi) (0,4 Megapascal) bestimmt. Kerb-Izod wird bestimmt gemäß ASTM D256. DYNATUP® (fallender Pfeil)-Gesamtenergie, Energie bei maximaler Belastung und Energie beim Versagen werden gemäß ASTM D3763 gemessen. Biegemodul und Biegefestigkeit werden bestimmt gemäß ASTM D790. Zugfestigkeit beim Fließen, Zugfestigkeit beim Bruch und Zugdehnung beim Bruch werden bestimmt gemäß ASTM D638.

Tabelle 3						
Eigenschaft	Beispiel					
	15*	16	17	18	19	20
Menge an dendritischem Polyesterharz	0	0,5	2,0	8,0	2,0	8,0
HDT	301	-	-	318	309	300
Kerb-Izod	11,7	3,92	2,74	8,35	2,78	13,2
Energie beim Versagen	41,3	36,3	23,0	42,6	37,6	48,0
Gesamtenergie	41,5	36,3	23,0	42,6	37,6	48,0
Biegemodul	232600	248	212	274	234	278
Biegefestigkeit beim Fließen	10690	10520	9410	11640	10380	12050
Zugfestigkeit beim Fließen	7730	7080	6760	7380	6970	7700
Zugfestigkeit beim Bruch	7257	6950	6740	7110	6850	7330
Zugdehnung beim Bruch	95	68	62	93	80	91

* Vergleichsbeispiel

[0062] Während bevorzugte Ausführungsformen gezeigt und beschrieben wurden, können verschiedene Modifikationen und Substitutionen daran unternommen werden, ohne vom Geist und Umfang der Erfindung abzuweichen. Demzufolge soll verstanden werden, dass die vorliegende Erfindung im Wege der Veranschaulichung und nicht der Einschränkungen beschrieben wurde.

Patentansprüche

1. Eine thermoplastische Zusammensetzung umfassend einen kompatibilisierten Poly(arylenether)/Polyamidharzblend und ein dendritisches Polyesterharz.
2. Zusammensetzung nach Anspruch 1, wobei der kompatibilisierte Poly(arylenether)/Polyamidharzblend etwa 30 bis etwa 90 Gewichtsprozent Polyarylenether und etwa 10 bis etwa 70 Gewichtsprozent Polyamid umfasst, bezogen auf das Gesamtgewicht der Zusammensetzung.
3. Zusammensetzung nach Anspruch 1, wobei das dendritische Polyesterharz ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts von etwa 1.000 bis etwa 21.000 hat.
4. Zusammensetzung nach Anspruch 1, wobei das dendritische Polyesterharz in einer Menge von etwa 0,1 bis etwa 15 Gewichtsprozent vorhanden ist, bezogen auf das Gesamtgewicht der Zusammensetzung.
5. Zusammensetzung nach Anspruch 1 weiterhin umfassend einen Schlagzähmodifizierer.
6. Zusammensetzung nach Anspruch 5, wobei der Schlagzähmodifizierer ein Blockcopolymer ist.
7. Zusammensetzung nach Anspruch 5, wobei der Schlagzähmodifizierer ein Styrol-Butadien-Styrol-Blockcopolymer ist.
8. Verfahren zur Verbesserung des Schmelzflusses eines kompatibilisierten Poly(arylenether)/Polyamidblends, bei welchem man den kompatibilisierten Poly(arylenether)/Polyamidblend mit einem dendritischen Po-

lyesterharz innig mischt.

9. Verfahren zur Verbesserung des Schmelzflusses eines kompatibilisierten Poly(arylenether)/Polyamidb-lends, bei welchem man ein Poly(arylenether)harz, ein Polyamidharz und ein Kompatibilisierungsmittel mit ei-nem dendritischen Polyesterharz innig mischt.

10. Verfahren nach Anspruch 9 weiterhin aufweisend, dass man einen Schlagzähmodifizierer mit dem Po-ly(arylenether)harz, Polyamidharz, Kompatibilisierungsmittel und dendritischen Polyesterharz innig mischt.

Es folgt kein Blatt Zeichnungen