



(51) Internationale Patentklassifikation <sup>7</sup> :  C08L 67/02, C08K 7/02		A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: <b>WO 00/44831</b>
			(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 3. August 2000 (03.08.00)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/00267		(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).	
(22) Internationales Anmeldedatum: 14. Januar 2000 (14.01.00)			
(30) Prioritätsdaten: 199 03 073.1 27. Januar 1999 (27.01.99) DE			
(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BASF AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-67056 Ludwigshafen (DE).			
(72) Erfinder; und		Veröffentlicht	
(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): FISCHER, Michael [DE/DE]; Pater-Baroffio-Weg 29, D-67071 Ludwigshafen (DE). KNOLL, Manfred [DE/DE]; Pfrimmstrasse 1, D-67591 Wachenheim (DE). GINSS, Christophe [FR/FR]; 13, rue Principale, F-67120 Wolxheim (FR). BERZ, Stephan [DE/DE]; Schwarzbachstrasse 7b, D-60529 Frankfurt (DE).		Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.	
(74) Anwalt: ISENBRUCK, Günter; Bardehle-Pagenberg-Dost-Altenburg, Geissler-Isenbruck, Theodor-Heuss-Anlage 12, D-68165 Mannheim (DE).			

(54) Title: MOULDING MATERIALS FOR USE IN MOTOR VEHICLE INTERIORS

(54) Bezeichnung: FORMMASSEN FÜR KRAFTFAHRZEUG-INNENANWENDUNGEN

## (57) Abstract

The invention relates to fibre-reinforced moulding materials containing, in relation to the sum of components A to F and possibly G to I which adds up to a total of 100 % by weight, of a) between 1 and 96.86 % by weight of at least one polycondensate, as component A; b) between 1 and 12 % by weight of at least one particulate graft copolymer having a glass transition temperature in the soft phase of below 0 °C and a mean particle size of between 50 and 1000 nm, as component B; c) as component C between 1 and 12 % by weight of at least one copolymer which consists of the following monomers: c1) between 50 and 90 % by weight, in relation to component C, of at least one aromatic vinyl monomer, as component C1; and c2) between 10 and 50 % by weight, in relation to component C, acrylic nitrile and/or methacrylic nitrile, as component C2; d) between 1 and 20 % by weight fibres, as component D; e) between 0.01 and 15 % by weight of a polycarbonate, as component E; f) between 0.01 and 2 % by weight of a black, as component F; g) between 0 and 12 % by weight of a polymer which is different from component B, as component G; h) between 0 and 20 % by weight of a polyester which is different from component A, as component H; and i) between 0.1 and 10 % by weight of standard additives such as UV stabilizers, antioxidants, lubricants and mould-release agents as component I. The invention further relates to moulded parts and composites made from the above moulded materials and to the use of said moulded materials, moulded parts and composites.

## (57) Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft faserverstärkte Formmassen enthaltend, bezogen auf die Summe der Komponenten A bis F und gegebenenfalls G bis I, die insgesamt 100 Gew.-% ergibt, a) 1 bis 96,86 Gew.-% der Formmasse mindestens eines Polykondensats als Komponente A, b) 1 bis 12 Gew.-% mindestens eines teilchenförmigen Ppropfcopolymerisats mit einer Glasübergangstemperatur der Weichphase unterhalb von 0 °C und einer mittleren Teilchengrösse von 50 bis 1000 nm als Komponente B, c) 1 bis 12 Gew.-% mindestens eines Copolymerisats als Komponente C aus den Monomeren, c1) 50 bis 90 Gew.-% mindestens eines vinylaromatischen Monomeren als Komponente C1 und c2) 10 bis 50 Gew.-% Acrylnitril und/oder Methacrylnitril als Komponente C2, jeweils bezogen auf die Komponente C, d) 1 bis 20 Gew.-% Fasern als Komponente D, e) 0,01 bis 15 Gew.-% eines Polycarbonats als Komponente E, f) 0,01 bis 2 Gew.-% eines Russes als Komponente F, g) 0 bis 12 Gew.-% eines zu Komponente B unterschiedlichen Polymer als Komponente G, h) 0 bis 20 Gew.-% eines zu Komponente A unterschiedlichen Polyester als Komponente H, i) 0,1 bis 10 Gew.-% übliche Zusatzstoffe wie UV-Stabilisatoren, Oxidationsverzögerer, Gleit- und Entformungsmittel als Komponente I, Formteile und Verbunde daraus sowie die Verwendung dieser Formmassen, Formteile und Verbunde.

#### ***LEDIGLICH ZUR INFORMATION***

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

---

## Formmassen für Kraftfahrzeug-Innenanwendungen

---

10

Die Erfindung betrifft faserverstärkte Formmassen, Formteile und Verbunde daraus sowie die Verwendung der Formmassen, Formteile und Verbunde.

15 Formteile aus polymeren Werkstoffen, die insbesondere im Innenraum von Kraftfahrzeugen zur Anwendung kommen, müssen hohen Anforderungen vor allem bezüglich ihrer mechanischen Eigenschaften, ihrer Oberflächeneigenschaften, ihres Alterungs- sowie ihres Geruchsverhaltens genügen. Für die Herstellung von Formteilen für Kraftfahrzeug-Innenanwendungen wurden bisher verschiedene

20 polymere Werkstoffe verwendet.

Ein verwendeter Werkstoff ist glasfaserverstärktes ABS/PC (Polymer-Blend aus Acrylnitril/Butadien/Styrol-Copolymer und Polycarbonat). Dieser Werkstoff weist jedoch eine nur unzureichende UV-Beständigkeit, schlechte Fließfähigkeit, ein  
25 schlechtes Wärmealterungsverhalten (Zähigkeit und Bruchdehnung nach Wärmelagerung), ungünstige Oberflächeneigenschaften, insbesondere Schaumhaftung, schlechte Schaumhaftung und ein Auswandern der Glasfasern sowie insbesondere ein schlechtes Geruchsverhalten auf. Unter Geruchsverhalten wird die Neigung von Werkstoffen verstanden, nach einer Temperatur- und

Klimalagerung von festgelegter Dauer flüchtige Bestandteile abzugeben, die einen wahrnehmbaren Geruch aufweisen.

Als weiterer Werkstoff kommt glasfaserverstärktes, zähmodifiziertes SMA (Styrol/Maleinsäureanhydrid-Copolymer) zum Einsatz. Auch SMA weist nur unzureichende Oberflächeneigenschaften, eine schlechte Wärmealterungsbeständigkeit, sowie insbesondere eine widrige Wärmeformbeständigkeit ein schlechtes Geruchsverhalten auf.

Ein anderer Werkstoff, der für die Herstellung von Formteilen für Kraftfahrzeuginnenräume in Betracht kommt ist PPE/HIPS GF (ein Polymer-Blend aus Polyphenylenether und High-Impact-Polystyrol sowie Glasfasern). Dieser Werkstoff weist gleichfalls eine schlechte Fließfähigkeit, schlechte Oberflächeneigenschaften, insbesondere das Auswandern der Glasfasern, was zu einer rauen Oberfläche führt, schlechte UV-Beständigkeit, schlechte Wärmealterung und schließlich ein schlechtes Geruchsverhalten auf.

Ein anderer Werkstoff, der für die Kraftfahrzeug-Innenanwendung geeignet ist, ist PP/Mineral/EPDM. Hierbei handelt es sich um ein Polymer-Blend, das aus Polypropylen, einem mineralischen Füllstoff und einem Ethylen-Propylen-Dienterpolymer besteht. Auch dieser Werkstoff weist eine geringe Steifigkeit, schlechte Schaumhaftung und schlechte Lackierbarkeit auf.

Bis auf mineralverstärktes PP weisen die vorstehend genannten Werkstoffe zudem eine nur schlechte Wärmeformbeständigkeit auf, die in einer nur geringen Vicat B-Erweichungstemperatur (Vicat B < 130 °C) zum Ausdruck kommt. Eine gute Wärmeformbeständigkeit und Wärmealterungsbeständigkeit der eingesetzten Werkstoffe ist jedoch essentiell, da sich der Kraftfahrzeug-Innenraum, insbesondere unter Einwirkung von Sonnenstrahlung, erheblich aufheizen kann.

DE 41 23 041 A1 betrifft eine thermoplastische Formmasse, die als Hauptkomponente neben weiteren Komponenten 40 bis 90 Gewichtsteile eines thermoplastischen aromatischen Polycarbonats enthält.

5

DE 44 36 776 A1 betrifft eine thermoplastische Polycarbonat-Formmasse mit 50 bis 95 Gew.-% eines thermoplastischen aromatischen Polycarbonats als Hauptbestandteil.

10 CA-JP 03-263453 A betrifft eine lösungsmittelresistente thermoplastische Formmasse im wesentlichen aus Polycarbonat und Polybutylenterephthalat, die durch Stahlfasern verstärkt ist.

15 Aufgabe der Erfindung ist es, für die Herstellung von Formteilen, die im Innenraum von Kraftfahrzeugen eingesetzt werden, geeignete Formmassen zur Verfügung zu stellen, die ein günstiges Eigenschaftsprofil hinsichtlich ihrer mechanischen, optischen und sensorischen Eigenschaften sowie insbesondere eine gute Wärmeformbeständigkeit, Wärmealterungsbeständigkeit und ein gutes Emissionsverhalten und/oder Geruchsverhalten aufweisen. Weiterhin sollen die 20 Formmassen eine möglichst geringe Dichte aufweisen. Die geringe Dichte ist besonders im Hinblick auf Kraftstoffeinsparung bei Kraftfahrzeugen vorteilhaft. Zudem ist eine Laserbemusterung, vorzugsweise -Beschriftung der Formmassenoberfläche erwünscht. Diese erlaubt eine technisch einfache und sehr genaue Oberflächengestaltung. Darüber hinaus sollen die Formmassen eine 25 möglichst geringe Emission von flüchtigen Bestandteilen aufweisen, so daß sich thermisch belastbare, vorzugsweise metallisierte Oberflächen aufweisende Formkörper aus den erfindungsgemäßen Formmassen herstellen lassen, die insbesondere in Scheinwerfern eingesetzt werden. Zudem sollen die Oberflächen der Formteile aus den erfindungsgemäßen Formmassen eine gute Haftung für Schäume 30 bieten.

Gelöst wird die Aufgabe durch eine faserverstärkte Formmasse, enthaltend, bezogen auf die Summe der Komponenten A bis F und gegebenenfalls G bis I, die insgesamt 100 Gew.-% ergibt,

5

- a) 1 bis 96,86 Gew.-% der Formmasse mindestens eines Polykondensats als Komponente A,
- b) 1 bis 12 Gew.-% mindestens eines teilchenförmigen Ppropfcopolymerisats mit einer Glasübergangstemperatur der Weichphase unterhalb von 0° C und einer mittleren Teilchengröße von 50 bis 1000 nm als Komponente B,
- c) 1 bis 12 Gew.-% mindestens eines Copolymerisats als Komponente C aus den Monomeren,
  - c1) 50 bis 90 Gew.-% mindestens eines vinylaromatischen Monomeren als Komponente C1 und
  - c2) 10 bis 50 Gew.-% Acrylnitril und/oder Methacrylnitril als Komponente C2, jeweils bezogen auf die Komponente C,
- d) 1 bis 20 Gew.-% Fasern als Komponente D,
- e) 0,01 bis 15 Gew.-% eines Polycarbonats als Komponente E,
- f) 0,01 bis 2 Gew.-% eines Rußes als Komponente F,

g) 0 bis 12 Gew.-% eines zur Komponenten B unterschiedlichen Polymers als Komponente G,

h) 0 bis 20 Gew.-% einer zu Komponente A unterschiedlichen Polyesters als Komponente H,

i) 0,1 bis 10 Gew.-% übliche Zusatzstoffe wie UV-Stabilisatoren, Pigmente, Oxidationsverzögerer, Gleit- und Entformungsmittel als Komponente I.

10 Als Komponente A enthält die erfindungsgemäße Formmasse als restlicher Bestandteil bis zu 100 Gew.-% der Formmasse, also gemäß der jetzigen Zusammensetzung der Formmasse bis 96,86 Gew.-%, bevorzugt 20 bis 75 Gew.-%, besonders bevorzugt 30 bis 60 Gew.-% eines vorzugsweise schmelzbaren Polykondensats, das vorzugsweise kein Polycarbonat ist, bevorzugt eines Polyesters

15 und besonders bevorzugt eines aromatischen Polyesters. Die in den erfindungsgemäßen Formmassen enthaltenen Polykondensate sind an sich bekannt.

Die Komponente A weist vorzugsweise eine Viskositätszahl im Bereich von 90 bis 160 und besonders bevorzugt von 100 bis 140 auf.

20

Die Herstellung der Polyester kann vorzugsweise durch Reaktion von Terephthalsäure, deren Estern oder anderer esterbildender Derivate mit 1,4-Butandiol, 1,3-Propandiol bzw. 1,2-Ethandiol in an sich bekannter Weise erfolgen.

25 Bis zu 20 mol-% der Terephthalsäure können durch andere Dicarbonsäuren ersetzt werden. Nur beispielsweise seien hier Naphthalindicarbonsäuren, Isophthalsäure, Adipinsäure, Azelainsäure, Sebacinsäure, Dodecandisäure und Cyclohexan-

dicarbonsäuren, Mischungen dieser Carbonsäuren und esterbildende Derivate derselben genannt.

Auch bis zu 20 mol- % der Dihydroxyverbindungen 1,4-Butandiol, 1,3 Propandiol 5 bzw. 1,2-Ethandiol können durch andere Dihydroxyverbindungen, z. B. 1,6-Hexandiol, 1,4-Hexandiol, 1,4-Cyclohexandiol, 1,4-Di(hydroxymethyl)cyclohexan, Bisphenol A, Neopentylglykol, Mischungen dieser Diole sowie esterbildende Derivate derselben ersetzt werden.

10 Weiterhin bevorzugte aromatische Polyester sind Polytrimethylenterephthalat (PTT) und insbesondere Polybutylenterephthalat (PBT), die ausschließlich aus Terephthalsäure und den entsprechenden Diolen 1,2-Ethandiol, 1,3-Propandiol und 1,4-Butandiol gebildet sind. Die aromatischen Polyester können auch ganz oder teilweise in Form von Polyester-Recyclaten, wie PET-Mahlgut aus Flaschenmaterial 15 oder aus Abfällen der Flaschenherstellung eingesetzt werden.

In einer besonders bevorzugten Ausführungsform besteht die Komponente A aus

a1) 60 bis 100, bevorzugt 80 bis 100 Gew.-%, besonders bevorzugt 90 bis 100 20 Gew.-% Polybutylenterephthalat

und

a2) 0 bis 40 Gew.-%, 0 bis 20 Gew.-%, besonders bevorzugt 0 bis 10 Gew.-% eines weiteren Polykondensats.

25

In einer weiteren erfindungsgemäßen Ausführungsform enthält die Formmasse kein PET. Darüber hinaus sind Formmassen bevorzugt, bei denen die Komponente A

PET-frei ist.

Als Komponente B enthält die erfindungsgemäße Formmasse 1 bis 50 Gew.-%, bevorzugt 1,5 bis 15 Gew.-%, besonders bevorzugt 3 bis 10 Gew.-%, insbesondere 3 5 bis 8 Gew.-% mindestens eines teilchenförmigen Ppropfcopolymerisats mit einer Glasübergangstemperatur der Weichphase unterhalb von 0°C und einer mittleren Teilchengröße von 50 bis 1000 nm.

Vorzugsweise handelt es sich bei Komponente B um ein Ppropfcopolymerisat aus

10

b1) 50 bis 90 Gew.-% einer teilchenförmigen Ppropfgrundlage B1 mit einer Glasübergangstemperatur unterhalb 0°C und

b2) 10 bis 50 Gew.-% einer Ppropfauflage B2 aus den Monomeren

15

b21) 50 bis 90 Gew.-% eines vinylaromatischen Monomeren als Komponente B21 und

20

b22) 10 bis 50 Gew.-% Acrylnitril und/oder Methacrylnitril als Komponente B22.

Die teilchenförmige Ppropfgrundlage B1 kann aus 70 bis 100 Gew.-% eines C<sub>1</sub>- C<sub>10</sub>- konjugierten Diens oder beide, vorzugsweise eines C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkylesters der Acrylsäure, 0 bis 30 Gew.-% eines difunktionellen Monomeren mit zwei 25 olefinischen, nicht konjugierten Doppelbindungen bestehen. Solche Ppropfgrund-

lagen werden beispielsweise bei ABS-Polymeren oder MBS-Polymeren als Komponente B eingesetzt.

Gemäß einer bevorzugten Ausführungsform der Erfindung besteht die Ppropf-

5 grundlage B1 aus den Monomeren

b11) 75 bis 99,9 Gew.-% eines C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkylesters der Acrylsäure als Komponente B11,

10 b12) 0,1 bis 10 Gew.-% mindestens eines polyfunktionellen Monomeren mit mindestens zwei olefinischen, nicht konjugierten Doppelbindungen als Komponente B12 und

15 b13) 0 bis 24,9 Gew.-% eines oder mehrerer weiterer copolymerisierbarer Monomere als Komponente B13.

Bei der Ppropfgrundlage B1 handelt es sich um ein Elastomeres, welches eine Glasübergangstemperatur von bevorzugt unterhalb -20 °C, besonders bevorzugt unterhalb -30 °C aufweist.

20

Für die Herstellung des Elastomeren werden als Hauptmonomere B11 Ester der Acrylsäure mit 1 bis 10 C-Atomen, insbesondere 4 bis 8 C-Atomen in der Alkoholkomponente, eingesetzt. Besonders bevorzugte Monomere B11 sind iso- und n-Butylacrylat sowie 2-Ethylhexylacrylat, von denen Butylacrylat besonders bevorzugt ist.

Neben den Estern der Acrylsäure werden als vernetzendes Monomer B12 0,1 bis 10, bevorzugt 0,1 bis 5, besonders bevorzugt 1 bis 4 Gew.-% eines polyfunktionellen Monomeren mit mindestens zwei olefinischen, nicht konjugierten Doppelbindungen eingesetzt. Beispiele sind Divinylbenzol, Diallylfumarat, Diallylphthalat, 5 Triallylcyanurat, Triallylisocyanurat, Tricylodeceny lacrylat und Dihydrodicyclopentadienylacrylat, von denen die beiden zuletzt genannten besonders bevorzugt sind.

Neben den Monomeren B11 und B12 können am Aufbau der Ppropfgrundlage B1 10 noch bis zu 24,9, vorzugsweise bis zu 20 Gew.-% weiterer copolymerisierbarer Monomere, vorzugsweise Butadien-1,3, Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, Acrylnitril, Methacrylnitril und C<sub>1</sub>- bis C<sub>8</sub>-Alkylester der Methacrylsäure oder Mischungen dieser Monomeren beteiligt sein. In einer besonders bevorzugten Ausführungsform enthält die Ppropfgrundlage B1 kein Butadien-1,3, insbesondere besteht die 15 Ppropfgrundlage B1 ausschließlich aus den Komponenten B11 und B12.

Auf die Ppropfgrundlage B1 ist eine Ppropfaulage B2 aus den Monomeren

b21) 50 bis 90 Gew.-%, vorzugsweise 60 bis 90 Gew.-%, besonders 20 bevorzugt 65 bis 80 Gew.-% eines vinylaromatischen Monomeren als Komponente B21 und

b22) 10 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 10 bis 40 Gew.-%, besonders 25 bevorzugt 20 bis 35 Gew.-% Acrylnitril oder Methacrylnitril oder deren Mischungen als Komponente B22

aufgeppropft.

Beispiele für vinylaromatische Monomere sind unsubstituiertes Styrol und substituierte Styrole wie  $\alpha$ -Methylstyrol, p-Chlorstyrol und p-Chlor- $\alpha$ -Methylstyrol. Bevorzugt sind unsubstituiertes Styrol und  $\alpha$ -Methylstyrol, besonders bevorzugt ist

5 unsubstituiertes Styrol.

Gemäß einer Ausführungsform der Erfindung beträgt die mittlere Teilchengröße der Komponente B 50 bis 200 nm, bevorzugt 55 bis 150 nm.

10 Gemäß einer weiteren Ausführungsform der Erfindung beträgt die mittlere Teilchengröße der Komponente B 200 bis 1000 nm, bevorzugt 400 bis 550 nm.

Gemäß einer besonders bevorzugten Ausführungsform der Erfindung ist die Teilchengrößenverteilung der Komponente B bimodal, wobei die Komponente B zu

15 10 bis 90 Gew.-%, bevorzugt zu 30 bis 90 Gew.-%, besonders bevorzugt zu 50 bis 75 Gew.-% aus einem kleinteiligen Ppropfcopolymerisat mit einer mittleren Teilchengröße von 50 bis 200 nm, bevorzugt 55 bis 150 nm und zu 10 bis 90 Gew.-%, bevorzugt zu 10 bis 70 Gew.-%, besonders bevorzugt zu 25 bis 50 Gew.-% aus einem großteiligen Ppropfcopolymerisat mit einer mittleren Teilchengröße von 250

20 bis 1000 nm, bevorzugt ca. 400 bis 550 nm, besteht.

Als mittlere Teilchengröße bzw. Teilchengrößenverteilung werden die aus der integralen Massenverteilung bestimmten Größen angegeben. Bei den erfindungsgemäßen mittleren Teilchengrößen handelt es sich in allen Fällen um die

25 Gewichtsmittel der Teilchengrößen, wie sie mittels einer analytischen Ultrazentrifuge entsprechend der Methode von W. Scholtan und H. Lange, Kolloid-Z. und Z.-Polymere 250 (1972), Seiten 782 - 796, bestimmt wurden. Die Ultrazentrifugenmessung liefert die integrale Massenverteilung des

Teilchendurchmessers einer Probe. Hieraus läßt sich entnehmen, wieviel Gewichtsprozent der Teilchen einen Durchmesser gleich oder kleiner einer bestimmten Größe haben. Der mittlere Teilchendurchmesser, der auch als  $d_{50}$ -Wert der integralen Massenverteilung bezeichnet wird, ist dabei als der 5 Teilchendurchmesser definiert, bei dem 50 Gew.-% der Teilchen einen kleineren Durchmesser haben als der Durchmesser, der dem  $d_{50}$ -Wert entspricht. Ebenso haben dann 50 Gew.-% der Teilchen einen größeren Durchmesser als der  $d_{50}$ -Wert. Zur Charakterisierung der Breite der Teilchengrößenverteilung der 10 Kautschukteilchen werden neben dem  $d_{50}$ -Wert (mittlerer Teilchendurchmesser) die sich aus der integralen Massenverteilung ergebenden  $d_{10}$ - und  $d_{90}$ -Werte herangezogen. Der  $d_{10}$ - bzw.  $d_{90}$ -Wert der integralen Massenverteilung ist dabei entsprechend dem  $d_{50}$ -Wert definiert mit dem Unterschied, daß sie auf 10 bzw. 90 15 Gew.-% der Teilchen bezogen sind. Der Quotient

$$15 \quad \frac{d_{90} - d_{10}}{d_{50}} = Q$$

stellt ein Maß für die Verteilungsbreite der Teilchengröße dar. Als Komponente A erfindungsgemäß verwendbare Emulsionspolymerisate A weisen vorzugsweise Q-Werte kleiner als 0,5, insbesondere kleiner als 0,35 auf.

20

Das Ppropfcopolymerisat B ist im allgemeinen ein- oder mehrstufig, d.h. ein aus einem Kern und einer oder mehreren Hüllen aufgebautes Polymerisat. Das Polymerisat besteht aus einer Grundstufe (Ppropfkern) B1 und einer oder - bevorzugt - mehreren darauf gepropften Stufen B2 (Ppropfaulage), den sogenannten 25 Ppropfstufen oder Ppropfhüllen.

Durch einfache Ppropfung oder mehrfache Ppropfung können eine oder mehrere Ppropfhüllen auf die Kautschukteilchen aufgebracht werden, wobei jede Ppropfhülle

eine andere Zusammensetzung haben kann. Zusätzlich zu den ppropfenden Monomeren können polyfunktionelle vernetzende oder reaktive Gruppen enthaltende Monomere mit aufgeppropft werden (s. z. B. EP-A 0 230 282, DE-A 36 01 419, EP-A O 269 861).

5

Gemäß einer Ausführungsform der Erfindung dienen als Ppropfgrundlage B1 vernetzte Acrylsäureester-Polymerisate mit einer Glasübergangstemperatur unter 0° C. Die vernetzten Acrylsäureester-Polymerisate sollen vorzugsweise eine Glasübergangstemperatur unter -20 °C, insbesondere unter -30° C, besitzen.

10

Prinzipiell ist auch ein mehrschaliger Aufbau des Ppropfcopolymerisats möglich, wobei mindestens eine innere Schale eine Glasübergangstemperatur von unter 0 °C und die äußerste Schale eine Glasübergangstemperatur von mehr als 23 °C aufweisen sollte.

15

In einer bevorzugten Ausführungsform besteht die Ppropfauflage B2 aus mindestens einer Ppropfhülle und die äußerste Ppropfhülle davon hat eine Glasübergangstemperatur von mehr als 30°C, wobei ein aus den Monomeren der Ppropfauflage B2 gebildetes Polymer eine Glasübergangstemperatur von mehr als 20 80°C aufweisen würde.

Geeignete Herstellverfahren für Ppropfcopolymerisate B sind die Emulsions-, Lösungs-, Masse- oder Suspensionspolymersiation. Bevorzugt werden die Ppropfcopolymerisate B durch radikalische Emulsionspolymerisation hergestellt, bei 25 Temperaturen von 20 °C – 90 °C unter Verwendung wasserlöslicher und oder öllöslicher Initiatoren wie Peroxodisulfat oder Benzylperoxid, oder mit Hilfe von Redoxinitiatoren. Redoxinitiatoren eignen sich auch zur Polymerisation unterhalb von 20 °C.

Geeignete Emulsionspolymerisationsverfahren sind beschrieben in DE-A-28 26 925, DE-A 31 49 358 und in DE-C-12 60 135.

5 Der Aufbau der Ppropfhüllen erfolgt vorzugsweise im Emulsionspolymerisationsverfahren wie es beschrieben ist in den DE-A-32 27 555, 31 49 357, 31 49 358, 34 14 118. Das definierte Einstellen der erfindungsgemäßen Teilchengrößen von 50 - 1000 nm erfolgt bevorzugt nach den Verfahren, die beschrieben sind in der DE-C-12 60 135 und DE-A-28 26 925, bzw. Applied Polymer Science, Band 9 (1965), Seite 10 2929. Das Verwenden von Polymerisaten mit unterschiedlichen Teilchengrößen ist beispielsweise bekannt aus DE-A-28 26 925 und US 5,196,480.

Als Komponente C enthalten die erfindungsgemäßen Formmassen 1 bis 50 Gew.-%, bevorzugt 7,5 bis 20 Gew.-%, besonders bevorzugt 10 bis 18 Gew.-% eines 15 Copolymerisats aus den Monomeren

c1) 75 bis 90 Gew.-%, bevorzugt 77 bis 90 Gew.-%, besonders bevorzugt 81 bis 80 Gew.-%, mindestens eines vinylaromatischen Monomeren als Komponente C1 und  
20  
c2) 10 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 10 bis 23 Gew. %, besonders bevorzugt 10 bis 19 Gew.-%, insbesondere 15 bis 19 Gew.-%, Acrylnitril und/oder Methacrylnitril als Komponente C2.

25 Als vinylaromatische Monomere sind die oben stehend genannten Monomere C1 und die oben stehend als Komponente B21 genannten vinylaromatischen Monomere geeignet. Vorzugsweise ist Komponente C ein amorphes Polymerisat, wie es

vorstehend als Ppropfaulage B2 beschrieben ist. Gemäß einer Ausführungsform der Erfindung wird als Komponente C ein Copolymerisat von Styrol und/oder  $\alpha$ -Methylstyrol mit Acrylnitril verwendet. Der Acrylnitrilgehalt in diesen Copolymerisaten der Komponente C liegt dabei nicht oberhalb 25 Gew.-% und 5 beträgt im allgemeinen 10 bis 25 Gew.-%, bevorzugt 10 bis 22 Gew.-%, besonders bevorzugt 10 bis 19 Gew.-%, insbesondere 15 bis 19 Gew.-%. Zur Komponente C zählen auch die bei der Ppropfcopolymerisation zur Herstellung der Komponente B entstehenden freien, nicht gepropften Styrol-Acrylnitril-Copolymerisate. Je nach den bei Ppropfcopolymerisation für die Herstellung der Ppropfcopolymerisats A 10 gewählten Bedingungen kann es möglich sein, daß bei der Ppropfcopolymerisation schon ein hinreichender Anteil an Komponente C gebildet worden ist. Im allgemeinen wird es jedoch erforderlich sein, die bei der Ppropfcopolymerisation erhaltenen Produkte mit zusätzlicher, separat herstellter Komponente C abzumischen.

15

Bei dieser zusätzlichen, separat herstellten Komponente C kann es sich vorzugsweise um ein Styrol/Acrylnitril-Copolymerisat, ein  $\alpha$ -Methylstyrol-/Acrylnitril-Copolymerisat oder ein  $\alpha$ -Methylstyrol/Styrol/Acrylnitril-Terpolymerisat handeln. Wesentlich ist, daß der Gehalt an Acrylnitril in den Copolymerisaten C 25 20 Gew.-%, insbesondere 19 Gew.-% nicht übersteigt. Die Copolymerisate können einzeln oder auch als Gemisch für die Komponente C eingesetzt werden, so daß es sich bei der zusätzlichen, separat herstellten Komponente C der erfindungsgemäßen Formmassen beispielsweise um ein Gemisch aus einem Styrol-/Acrylnitril-Copolymerisat (PSAN) und einem  $\alpha$ -Methylstyrol/Acrylnitril-Copolymerisat handeln kann. Auch der Acrylnitrilgehalt der verschiedenen 25 Copolymerisate der Komponente C kann unterschiedlich sein. Vorzugsweise besteht die Komponente C jedoch nur aus einem oder mehreren Styrol/Acrylnitril-Copolymerisaten, wobei die Copolymerisate einen unterschiedlichen Gehalt an Acrylnitril aufweisen können. In einer insbesonderen bevorzugten Ausführungsform 30 besteht die Komponente C aus nur einem Styrol/Acrylnitril-Copolymerisat.

Als Komponente D enthalten die erfindungsgemäßen Formmassen 1 bis 20 Gew.-%, bevorzugt 5 bis 18 Gew.-%, besonders bevorzugt 10 bis 18 Gew.-%, insbesondere 10 bis 15 Gew.-% an Fasern. Dabei handelt es sich um kommerziell erhältliche 5 Produkte.

Diese haben in der Formmasse im allgemeinen eine mittlere Länge von 0,1 bis 0,5 mm, vorzugsweise 0,1 bis 0,4 mm und einen Durchmesser im Bereich von 6 bis 20  $\mu\text{m}$ . Bevorzugt sind Glasfasern und Mineralfasern, insbesondere Glasfasern, 10 vorzugsweise aus E-Glas. Zur Erzielung einer besseren Haftung können die Fasern mit Organosilanen, Epoxisilanen oder anderen Polymerüberzügen beschichtet sein.

Als Komponente E enthalten die erfindungsgemäßen Formmassen 0,01 bis 15, bevorzugt 0,1 bis 12 und besonders bevorzugt 4 bis 10 Gew.-% eines Polycarbonats, 15 bezogen auf die Formmasse. Als Polycarbonate sind alle dem Fachmann bekannten geeignet, wobei die schmelzbaren besonders geeignet sind. In diesem Zusammenhang wird auf „Polymer Chemistry, A Introduction“, 2<sup>nd</sup> Edition, Malcolm P. Stevens Oxford University Press, 1990, Seiten 400 bis 403 und „Principles of Polymerisation“, 2<sup>nd</sup> Edition, George Odian, Whiley Interscience 20 Publication John Whiley & Sons, 1981, Seiten 146 bis 149 verwiesen. Besonders geeignete Polycarbonate weisen eine hohe Fließfähigkeit, vorzugsweise eine MVR bei 300 °C und 1,2 kg von > 9, bevorzugt >15 und besonders bevorzugt >20 auf, wobei bevorzugte Komponenten E eine MVR von maximal 100, bevorzugt 90 und besonders bevorzugt 50 zeigen. Insbesondere als Komponente E bevorzugt ist Lexan 25 121R der Firma General Electric Plastics. Weiterhin hat sich der Einsatz von PC-Recyclat sowohl als „Post Industrial-“ und „Post Consumer-Recyclat“ als besonders geeignet herausgestellt, da es sich besonders gut verarbeiten lässt.

Zudem enthalten die erfindungsgemäßen Formmassen 0,01 bis 2, bevorzugt 0,1 bis 0,5 und besonders bevorzugt 0,1 bis 0,3 Gew.-%, bezogen auf die Formmasse, einen Ruß als Komponente F. Erfindungsgemäß eignen sich alle dem Fachmann bekannten Ruße für die Komponente F. Besonders bevorzugt sind Acetylen Ruß oder der durch Verbrennung von Teer, Teerölen, Naphtalin oder Kohlenwasserstoff reichen Erdgasen oder Erdölrückständen bei unzureichender Luftzufuhr beziehungsweise bei rascher Abkühlung der Verbrennungsgase entstehender Ruß. Durch den Rußgehalt der erfindungsgemäßen Formmassen wird deren Laserbemusterbarkeit und insbesondere –beschriftbarkeit mit hoher Kontraststärke ermöglicht.

10

Als Komponente G können die erfindungsgemäßen Formmassen 0 bis 12 Gew.-%, bevorzugt 0 bis 10 und besonders bevorzugt 4 bis 8 Gew.-%, zu B unterschiedlichen, vorzugsweise mit den Komponenten A und/oder C homogen mischbare oder in diesen dispergierbare Polymere enthalten. Es können vorzugsweise übliche (gepfropfte) Kautschuke Verwendung finden, wie Ethylen-Vinylacetat-Kautschuke, Siliconkautschuke, Polyetherkautschuke, hydrierte Dienkautschuke, Polyalkenamerkautschuke, Acrylatkautschuke, Ethylen-Propylen-Kautschuke, Ethylen-Propylen-Dien-Kautschuke und Butylkautschuke, Methylmethacrylat-Butadien-Styrol (MBS)-Kautschucke, Methylmethacrylat-Butylacrylat-Styrol-Kautschuke, vorzugsweise sofern diese mit der aus den Komponenten A, B und C gebildeten Mischphase mischbar bzw. in dieser dispergierbar sind. Bevorzugt werden Acrylatkautschuke, Ethylen-Propylen(EP)-Kautschuke, Ethylen-Propylen-Dien(EPDM)-Kautschuke, insbesondere als Pfropfcopolymere, Verwendung finden. In Frage kommen ferner mit der aus den Komponenten B und C gebildeten Mischphase verträgliche bzw. mischbare Polymere oder Copolymere wie Polyacrylate, Polymethacrylate, insbesondere PMMA, Polyphenylenether oder syndiotaktisches Polystyrol. In Frage kommen ferner Reaktivkautschuke, die an den Polyester (Komponente A) über eine kovalente Bindung anbinden, wie mit Säureanhydriden, wie Maleinsäureanhydrid, oder Epoxy-Verbindungen, wie Glycidyl-Methacrylat, gepfropfte Polyolefinkautschuke und/oder partikuläre

Acrylatkautschuke. Schließlich ist auch die Verwendung eines oder mehrerer Polymere bzw. Copolymere möglich, die in der Grenzfläche zwischen der aus den Komponenten B und/oder C gebildeten amorphen Phase und der aus der Komponente A gebildeten kristallinen oder teilkristallinen Phase vorliegen und so 5 für eine bessere Anbindung der beiden Phasen sorgen. Beispiele solcher Polymere sind Ppropfcopolymere aus PBT und PSAN oder segmentierte Copolymere wie Block-Copolymere oder Multiblock-Copolymere aus mindestens einem Segment aus PBT mit  $M_w > 1000$  und mindestens einem Segment aus PSAN oder einem mit PSAN verträglichen/mischbaren Segment mit  $M_w > 1000$ .

10

Ferner enthält die erfindungsgemäße Formmasse 0 bis 20, bevorzugt 0 bis 15 und besonders bevorzugt 0 bis 10 Gew.-%, bezogen auf die gesamte Formmasse, eines zu Komponente A unterschiedlichen Polyesters als Komponente H. Der Polyester der Komponente H weist mindestens 50, bevorzugt mindestens 70 und besonders 15 bevorzugt 100 Gew.-% Polyethylenterephthalat (PET) bezogen auf die Komponente H, auf. Als weitere Polyester der Komponente H sind die bereits voranstehend definierten aromatischen Polyester bevorzugt. Das PET kann sowohl direkt aus der Synthese stammend als auch als Recyclat, vorzugsweise aus Mahlgut aus PET-Flaschen, eingesetzt werden. PET-Recyclat einzusetzen bietet sich zum einen aus 20 Kostengründen und zum anderen wegen der die Zähigkeit der Formmasse verbessernden Wirkung des PET-Recyclats an. Damit besteht das erfindungsgemäß in Komponente H eingesetzte PET vorzugsweise aus mindestens 50, bevorzugt mindestens 80 und besonders bevorzugt zu 100 % aus PET-Recyclat.

25 Als Komponente I enthalten die erfindungsgemäßen Formmassen 0,1 bis 10 Gew.-% übliche Zusatzstoffe. Als solche Zusatzstoffe seien beispielsweise genannt: UV-Stabilisatoren, Umesterungsstabilisatoren, Oxidationsverzögerer, Gleit- und Entformungsmittel, Farbstoffe, Pigmente, Färbemittel, Keimbildungsmittel, Antistatika, Antioxidantien, Stabilisatoren zur Verbesserung der Thermostabilität, 30 zur Erhöhung der Lichtstabilität, zum Anheben der Hydrolysebeständigkeit und der

Chemikalienbeständigkeit, Mittel gegen die Wärmezersetzung und insbesondere die Schmier/Gleitmittel, die für die Herstellung von Formkörpern bzw. Formteilen zweckmäßig sind. Das Eindosieren dieser weiteren Zusatzstoffe kann in jedem Stadium des Herstellungsprozesses erfolgen, vorzugsweise jedoch zu einem frühen

5 Zeitpunkt, um frühzeitig die Stabilisierungseffekte (oder anderen speziellen Effekte) des Zusatzstoffes auszunutzen. Wärmestabilisatoren bzw. Oxidationsverzögerer sind üblicherweise Metallhalogenide (Chloride, Bromide, Iodide), die sich von Metallen der Gruppe I des Periodensystems der Elemente ableiten (wie Li, Na, K, Cu).

10 Geeignete Stabilisatoren sind die üblichen sterisch gehinderten Phenole, aber auch Vitamin E bzw. analog aufgebaute Verbindungen. Auch HALS-Stabilisatoren (Hindered Amine Light Stabilizers), Benzophenone, Resorcine, Salicylate, Benzotriazole und andere Verbindungen sind geeignet (beispielsweise Irganox®, Tinuvin®, wie Tinuvin® 770 (HALS-Absorber, Bis (2,2,6,6-tetramethyl-4-piperidyl)sebacat) oder Tinuvin®P (UV-Absorber - (2H-Benzotriazol-2-yl)-4-methylphenol), Topanol®). Diese werden üblicherweise in Mengen bis zu 2 Gew.-% (bezogen auf das Gesamtgemisch) verwendet.

15 Als Umesterungsstabilisatoren sind beispielsweise organische Phosphonite wie Tetrakis-(2,4-di-tert.-butylphenyl)-bisphenylen-diphosphonit (Irgaphos® PEPQ der Firma Ciba Geigy AG) sowie Monozinkphosphat (Mono- oder Di-hydrat) geeignet. Die Umesterungsstabilisatoren können beispielsweise in Pulverform oder als PBT-Batches vorliegen.

20 Geeignete Gleit- und Entformungsmittel sind Stearinsäuren, Stearylalkohol, Stearinsäureester bzw. allgemein höhere Fettsäuren, deren Derivate und entsprechende Fettsäuregemische mit 12 bis 30 Kohlenstoffatomen. Die Mengen dieser Zusätze liegen im Bereich von 0,05 bis 1 Gew.-%.

Auch Siliconöle, oligomeres Isobutylen oder ähnliche Stoffe kommen als Zusatzstoffe in Frage; die üblichen Mengen betragen 0,05 bis 5 Gew.-%. Pigmente, Farbstoffe, Farbaufheller, wie Ultramarinblau, Phthalocyanine, Titandioxid, Cadmiumsulfide, Derivate der Perylentetracarbonsäure sind ebenfalls verwendbar.

5

Verarbeitungshilfsmittel und Stabilisatoren wie UV-Stabilisatoren, Schmiermittel und Antistatika werden üblicherweise in Mengen von 0,01 bis 5 Gew.-% verwendet, bezogen auf die gesamte Formmasse.

10 Auch Keimbildungsmittel, wie Talkum, Calciumfluorid, Natriumphenylphosphinat, Aluminiumoxid oder feinteiliges Polytetrafluorethylen können in Mengen z. B. bis zu 5 Gew.-%, bezogen auf die gesamte Formmasse, angewandt werden. Weichmacher, wie Phthalsäurediocylester, Phthalsäuredibenzylester, Phthalsäurebutylbenzylester, Kohlenwasserstofföle, N-(n-Butyl)benzolsulfonamid, o- und p-  
15 Toluolethylsulfonamid werden vorteilhaft in Mengen bis etwa 5 Gew.-%, bezogen auf die Formmasse, zugesetzt. Färbemittel, wie Farbstoffe und Pigmente können in Mengen bis zu etwa 5 Gew.-%, bezogen auf die Formmasse, zugesetzt werden.

20 Zudem ist es bevorzugt, daß die erfindungsgemäße Formmasse eine Komponente G mit einem Copolymer aufweist, das kein Butadien- oder Isoprenderivat oder keines von beiden enthält.

25 In einer anderen Ausführungsform der erfindungsgemäßen Formmasse ist es bevorzugt, daß keines der in der Formmasse eingesetzten Ppropfcopolymere ein Butadien- oder Isoprenderivat oder keines von beiden aufweisen.

Eine andere erfindungsgemäß bevorzugte Formmasse weist kein Butadien- oder Isoprenderivat oder keines von beiden auf.

Butadien und Isopren sind als Derivate bevorzugt.

Das Mischen der Komponenten A bis I kann nach jeder beliebigen Weise nach allen 5 bekannten Methoden erfolgen. Beim Mischen können die Komponenten als solche oder auch in Form von Mischungen der einen Komponente mit einer oder mehreren der anderen Komponenten eingesetzt werden. Beispielsweise kann die Komponente B mit einem Teil oder der gesamten Komponente C vorgemischt und anschließend mit den übrigen Komponenten gemischt werden. Wenn die Komponenten B und C 10 beispielsweise durch Emulsionspolymerisation hergestellt worden sind, ist es möglich, die erhaltenen Polymerdispersionen miteinander zu vermischen, darauf die Polymerisate gemeinsam auszufällen und das Polymerisatgemisch aufzuarbeiten. Vorzugsweise erfolgt jedoch das Abmischen der Komponenten B und C durch gemeinsames Extrudieren, Kneten oder Verwalzen der Komponenten, wobei die 15 Komponenten B und C, sofern erforderlich, zuvor aus der bei der Polymerisation erhaltenen Lösung oder wässrigen Dispersion isoliert worden sind. Die erfindungsgemäßen thermoplastischen Formmassen können beispielsweise hergestellt werden, indem man die Komponente A mit jeweils den Komponenten B und C oder mit einer Mischung aus diesen, und gegebenenfalls mit den weiteren 20 Komponenten mischt, in einem Extruder aufschmilzt und die Fasern über ein Einlaß am Extruder zuführt.

Die Komponente E kann mit den anderen Komponenten der Formmasse sowohl im „Cold-Feed-Verfahren“ d.h. bei Temperaturen unterhalb der Schmelztemperatur der 25 Komponenten, vor der Verarbeitung in einer Mischvorrichtung, vermischt werden. Bevorzugt ist es jedoch, wenn die Komponente E im „Hot-Feed-Verfahren“, d.h. in der Schmelze den anderen Komponenten der Formmasse zur Einarbeitung in die Formmasse zugeführt wird. Erfindungsgemäß ist es für das „Hot-Feed-Verfahren“

ein Temperaturbereich von 250 bis 280 °C bevorzugt und von 260 bis 270 °C besonders bevorzugt.

5 In einer weiteren Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens ist es vorteilhaft, die Komponente D gleichfalls im „Hot-Feed-Verfahren“ durch Zugabe zu den anderen Komponenten der Formmassen in diese einzuarbeiten.

10 Besonders hat es sich erfindungsgemäß bewährt, die Komponenten D und E jeweils unabhängig voneinander, d.h. ohne sie miteinander vorzuvermischen, im „Hot-Feed-Verfahren“ durch Zugabe zu den anderen Komponenten in die Formmasse einzuarbeiten.

15 Die erfindungsgemäßen Formmassen können nach den bekannten Verfahren der Thermoplastverarbeitung zu Formteilen verarbeitet werden. Insbesondere kann deren Herstellung durch Thermoformen, Extrudieren, Spritzgießen, Kalandrieren, Hohlkörperblasen, Pressen, Preßsintern, Tiefziehen oder Sintern, vorzugsweise durch Spritzgießen erfolgen. Die aus den erfindungsgemäßen Formmassen herstellbaren Formteile sind ebenfalls Gegenstand der vorliegenden Erfindung.

20 25 Die aus den erfindungsgemäßen Formmassen hergestellten Formteile weisen nur geringe Emissionen an flüchtigen Bestandteilen mit einem wahrnehmbaren Geruch auf. Das Geruchsverhalten von Polymerwerkstoffen wird nach DIN 50011 / PV 3900 beurteilt und gilt für Bauteile des Fahrzeuginnenraums. Das Ergebnis der Geruchsprüfung nach dieser Norm ist im Falle der erfindungsgemäßen Formteile im allgemeinen besser als Note 5, bevorzugt besser als Note 4,5 besonders bevorzugt besser als Note 4. Die Kohlenstoff-Emission der Formteile nach PV 3341 ist im allgemeinen < 50 µg/g, bevorzugt < 40 µg/g, besonders bevorzugt < 35 µg/g. Die Untergrenze liegt vorzugsweise bei 20 µg/g.

Die erfindungsgemäßen Formteile weisen weiterhin eine gute Wärmeformbeständigkeit auf. Die Vicat B-Erweichungstemperatur ist im allgemeinen  $> 130$  °C, bevorzugt  $> 135$  °C, besonders bevorzugt  $> 138$  °C. Vorzugsweise liegt die 5 Obergrenze der Vicat B-Erweichungstemperatur bei 160 °C.

Die erfindungsgemäßen Formteile weisen ferner ein gutes Wärmealterungsverhalten auf. So ist die Schlagzähigkeit der erfindungsgemäßen Formteile nach ISO 179/1eU nach 1000 Stunden dauernder Wärmelagerung bei 130 °C im allgemeinen  $> 25$  kJ 10 pro m<sup>2</sup>, bevorzugt  $> 30$  kJ pro m<sup>2</sup>. Die Bruchdehnung der erfindungsgemäßen Formteile ist nach 1000 Stunden dauernder Wärmelagerung bei 130 °C im allgemeinen  $> 1,5$  %, bevorzugt  $> 2$  % und besonders bevorzugt  $> 2,5$  %. Die Schlagzähigkeitabnahme nach ISO 179/1eU nach einer 1000 h dauernder 15 Wärmelagerung bei 120 °C von  $< 30$  %, vorzugsweise  $< 10$  % gegenüber vor der Wärmelagerung ist bevorzugt. Die Bruchdehnung nach DIN 53457 nach 1000 h dauernder Wärmelagerung bei 130 °C  $> 2,5$  %, jedoch maximal 5 %, hat sich bewährt.

Die erfindungsgemäßen Formteile weisen ferner gute mechanische Eigenschaften 20 auf. So ist ihr Elastizitätsmodul im allgemeinen  $> 3000$ , bevorzugt  $> 4500$  MPa, jedoch vorzugsweise maximal bei 10000 MPa, ihre Streckspannung im allgemeinen  $> 80$ , bevorzugt  $> 85$  MPa, jedoch vorzugsweise maximal bei 120 MPa, ihre Schlagzähigkeit nach ISO 179/1eU im allgemeinen  $> 45$ , bevorzugt  $> 48$  kJ/m<sup>2</sup>, ihre Schlagzähigkeit ohne vorherige Wärmelagerung nach ISO 179/1eA, im allgemeinen 25  $> 6$  kJ/m<sup>2</sup>, jedoch jeweils unter 75 kJ/m<sup>2</sup>, und ihre HDT B (gemessen nach ISO 75, Ausführungsform B) im allgemeinen  $> 190$  °C, bevorzugt  $> 200$  °C, jedoch maximal bei 230 °C, und ihre Fließfähigkeit als MVR (Melt-Volume-Ratio 275 °C/2,16 kp Auflagekraft gemäß ISO 1133)  $> 10$ , bevorzugt  $> 14$  cm<sup>3</sup>/10 min, jedoch maximal

bei 30 cm<sup>3</sup> / 10 min. Eine Stauchhärte nach DIN 53577 von 20 bis 100 kPa bei 20 bis 60 % Stauchung ist zudem für die erfindungsgemäßen Formmassen bevorzugt.

Die erfindungsgemäßen Formteile weisen, auch nach 1000 h dauerender 5 Wärmelagerung bei 130 °C, bei -30 °C kein Splitterverhalten im Durchstoßversuch (2 und 3 mm Plattendurchmesser, gemäß ISO 6603/2) auf.

Darüber hinaus ist erfindungsgemäß eine Dichte der Formmasse im Bereich von 1,2 bis 1,4, bevorzugt 1,25 bis 1,35 und besonders bevorzugt 1,28 bis 1,33 gegeben.

10

Die erfindungsgemäßen Formmassen eignen sich aufgrund ihrer hohen Wärmeformbeständigkeit, ihrer guten Wärmealterungsbeständigkeit, ihren guten mechanischen Eigenschaften sowie ihrer guten Oberflächeneigenschaften für eine Vielzahl von Formteile, die diese Formmassen beinhalten. Nur beispielhaft seien 15 genannt: Kameragehäuse, Handygehäuse, Stutzen für Ferngläser, Wrasenkanal für Dunstabzugshaben, Teile für Dampfkochtöpfe, Gehäuse für Heißluftgrills und Pumpengehäuse.

Aufgrund der oben genannten Eigenschaften eignen sich die erfindungsgemäßen 20 Formteile insbesondere für Anwendungen in Kraftfahrzeugen.

Erfundungsgemäße Formteile sind daher insbesondere aus den erfindungsgemäßen Formmassen hergestellte Teile wie Lichtschaltergehäuse, Lampengehäuse, Gehäuse für die Zentralelektrik, Steckerleisten, Steckverbinder, Gehäuse für ABS-Regler, 25 Kennzeichenfahrtäger sowie Gepäckträgerdachleisten.

Aufgrund ihres guten Emissionsverhaltens sind die erfindungsgemäßen Formteile insbesondere für Anwendungen im Kraftfahrzeug-Innenraum geeignet. Erfindungsgemäße Formteile sind daher vorzugsweise aus den erfindungsgemäßen Formmassen hergestellte Abdeckungen, Ablagefächer, Instrumententafelträger, 5 Türbrüstungen, Teile für die Mittelkonsole sowie Halterungen für Radio und Klimaanlage, Blenden für die Mittelkonsole, Blenden für Radio, Klimaanlage und Aschenbecher, Verlängerungen der Mittelkonsole, Stautaschen, Ablagen für die Fahrer und Beifahrertür, Ablagen für die Mittelkonsole, Bauteile für den Fahrer- und den Beifahrersitz, wie Sitzverkleidungen, Defrosterkanal, Innenspiegelgehäuse, 10 Schiebedachelemente wie Schiebedachrahmen, Instrumentenhutzen- und Blenden, Instrumentenfassungen, Ober- und Unterschale für den Lenkstock, Luftführungskanäle, Luftausströmer und Zwischenstücke für Personenanstömer und Defrosterkanal, Türseitenverkleidungen, Verkleidungen im Kniebereich, Luftaustrittsdüsen, Entfrosteröffnungen, Schalter und Hebel, sowie Luftfilter- und 15 Lüfterkanäle, insbesondere für deren Verstärkerteile. Diese Anwendungen stehen nur beispielhaft für denkbare Kraftfahrzeug-Innenanwendungen. Besonders bevorzugt ist es, daß die erfindungsgemäßen Formteile laserbemusterbar sind.

Weiterhin sind als Formteile für Karosserieaußenteile, insbesondere Kotflügel, 20 Heckklappen, Seitenverkleidungen, Stoßstangen, Beplankungen, Kennzeichen-tafelträger, Blenden, Schiebedachplatten oder -Rahmen sowie Stoßfänger oder deren Bestandteile bevorzugt.

Zudem seien Bootskörper, Rasenmähergehäuse, Gartenmöbel, Motorradteile, 25 Kameragehäuse, Handygehäuse, Stutzen für Ferngläser, Wrasenkanäle für Dunst-abzugshaben, Teile für Dampfkochtöpfe, Gehäuse für Heißluftgrill und Pumpen-gehäuse nur beispielhaft als weitere, nicht auf den Kraftfahrzeubereich begrenzte Formkörper genannt.

Die Verwendung der Formmasse hat sich insbesondere bewährt bei Formteilen wie Steckverbindern, Gehäuseteilen, insbesondere für die Groß-Kfz-Elektronik, wie insbesondere ABS/ASR-, ESP-Getriebe-, Sitz-, Spiegelmotor-, Fensterhebermotor-, Verdecksteuerungs-, Airbagauslöse-, Innenraumsicherungs-, Beschleunigungssensor-, und Zündelelektronik sowie auch bei der Elektronik zur Erkennung der Sitzbelegung. Ferner ist es bevorzugt, die erfindungsgemäße Formmasse für Schließanlagengehäuse, Autorelays, Deckel für Wischergehäuse sowie für Schloßgehäuse zu verwenden.

10 Eine andere bevorzugte Gruppe von aus den erfindungsgemäßen Formmassen herstellbarer Formteile sind Gaszählergehäuse, Windleitschaufeln, Stellmotorgehäuse, wobei die Stellmotoren vorzugsweise im Kfz-Bau eingesetzt werden, Bohrmaschinenteile, Ofenteile, insbesondere zu Wärmeisolierung, wie Halteköpfe und Ofengriffe, Scheibenwischerteile, insbesondere Wischerblatthalterungen, 15 Spoiler, Spiegelträgerplatten für Kfz-Spiegel, sowie Gehäuse für Waschmaschinensteuerungen.

Ferner sind die erfindungsgemäßen Formmassen für andere im Haushaltsbereich, vorzugsweise im Küchenbereich eingesetzte Formkörper geeignet. Hierzu zählen 20 Brotbackmaschinen, Toaster, Tischgrills, Küchenmaschinen, elektrische Dosenöffner und Saftpressen. Bei diesen Gegenständen werden aus den erfindungsgemäßen Formmassen vorzugsweise Schalter, Gehäuse, Griffe und Deckel hergestellt. Weiterhin lassen sich die erfindungsgemäßen Formmassen für Formteile von Herden verwenden. Bei Herden sind Herdgriffe, Herdknöpfe und 25 Schalter besonders bevorzugt.

Eine andere Verwendung der erfindungsgemäßen Formmassen liegt in Formteilen vor, die den Anforderungen der Federal Drug Administration oder vergleichbarer nationaler Behörden anderer Länder entsprechen. In diesem Bereich sind

insbesondere Arzneimittelverpackungen und Gebinde für Arzneimittelkits bevorzugt.

5 Zudem lassen sich die erfindungsgemäßen Formmassen im Bereich der Lebensmittelverpackung einsetzen. Hier sind Formteile aus den erfindungsgemäßen Formmassen wie Schachteln, Töpfe, Schalen und Behältnisse anderer Art bevorzugt.

10 Im Zusammenhang mit den Verwendungen der erfindungsgemäßen Formmassen ist insbesondere deren Lebensmittelechtheit und Fett- sowie Flüssigkeitsresistenz, die sich insbesondere bei Teilen von Haushaltsgeräten positiv auswirkt, hervorzuheben.

15 Besonders bewährt hat sich der Einsatz der vorstehend definierten Formmassen zur Herstellung von Formteilen, die hohen Temperaturbelastungen ausgesetzt sein können. Derartige Formteile sind insbesondere Scheinwerferteile, die in dem Bereich des Scheinwerfers eingesetzt werden, in dem während des Betriebs des Scheinwerfers Temperaturen über 100 °C, bevorzugt 110 °C und besonders bevorzugt 130 °C und maximal bis 200 °C auftreten können. Derartige Teile können sowohl glasfaserverstärkt als auch glasfaserunverstärkt sein.

20 Der Vorteil des Einsatzes der erfindungsgemäßen Formmassen liegt insbesondere darin, daß bei derartigen Scheinwerferteilen mit reflektierender, metallisierter Oberfläche es zu keiner Ermattung dieser Oberflächen kommt. Weiterhin führt der Einsatz der erfindungsgemäßen Formmassen dazu, daß es auch bei längerem Betrieb des Scheinwerfers nicht zu Ablagerungen auf den transparenten Bereichen des Scheinwerfers, durch die das Licht tritt, kommt und die Reflektionseigenschaften von metallisierten Oberflächen dieser Formkörper erhalten bleiben. Die erfindungsgemäßen Formmassen lassen sich auch zur Herstellung weiterer Scheinwerferbauteile verwenden. Zu diesen Scheinwerferbauteilen zählen

insbesondere Scheinwerfergehäuse, -rahmen, -halterungen und -führungen, wobei Scheinwerferrahmen bevorzugt sind.

Weiterhin bleiben die anderen vorteilhaften Eigenschaften der erfindungsgemäßen Formmassen wie niedrige Zykluszeiten, keine Formbelagsbildung bei der Spritzgußverarbeitung, hervorragende Qualität der metallisierten Oberflächen erhalten.

Insbesondere ist keine Eintrübung der metallisierten Oberfläche beim Erwärmen des Formteils auf Temperaturen im Bereich von 100 bis 200 °C, bevorzugt von 110 bis 180 °C und besonders bevorzugt von 130 bis 170 °C zu beobachten, so daß Formteile mit metallisierten Oberflächen mit dauerhaften Reflektionseigenschaften erhalten werden können.

15 Ferner hat sich der Einsatz der erfindungsgemäßen Formmassen bei der Herstellung von großflächigen Formteilen, die im Verhältnis zu ihrer Fläche vergleichsweise dünn sind, bei denen ein hervorragendes Entformungsverhalten gefordert ist, bewährt. Derartige großflächige Formteile sind insbesondere Schiebedachtraversen, Karosserieteile, Lufteinlaßgitter, Teile von Instrumententafeln, wie 20 Instrumententafelträger, Abdeckungen, Luftkanäle, Anbauteile, insbesondere für die Mittelkonsoloe als Teil des Handschuhfaches, sowie Tachohutzen.

Weiterhin betrifft die Erfindung einen Verbund, der ein erfindungsgemäßes Formteil und einen Polykondensatschaum beinhaltet. Vorteilhafterweise sind Formteil und 25 Polykondensatschaum über ihre Oberflächen miteinander fest verbunden. Die Verbunde zeichnen sich durch eine hervorragende Schaumhaftung des Schaumes an der Formteilloberfläche aus, ohne daß eine Vorbehandlung dieser, beispielsweise durch einen Primer, notwendig ist. Beim Abziehen oder Abschälen des Schaums von

der Formteiloberfläche wird Kohäsionsbruch beobachtet; es verbleiben Schaumreste auf der Oberfläche. Für den Polykondensatschaum können alle dem Fachmann bekannten schäumbaren Polykondensate eingesetzt werden. Es ist in einer weiteren erfindungsgemäßen Ausführungsform bevorzugt, daß die auf die 5 Formteiloberflächen der Schaum ohne die Verwendung eines Primers aufgebracht wird. Unter diesen Polykondensaten sind Polyamide und Polyurethane bevorzugt und Polyurethane besonders bevorzugt. Bei den Polyurethanschäumen sind wiederum Halbhart- und Weichschäume besonders bevorzugt, diese können gegebenenfalls Haftvermittler beinhalten. Insbesondere wird als Polyurethanschaum 10 das Produkt Elastoflex® der Elastogram GmbH, Lemförde eingesetzt. Weitere geeignete Polyurethane sind im Kunststoffhandbuch Band 7 „Polyurethane“, in 3. Auflage, 1993, Karl Hanser Verlag München, Wien zu entnehmen.

15 Gegenstand der Erfindung ist auch die Verwendung der erfindungsgemäßen Formmassen für die Herstellung der genannten Formteile.

Zudem betrifft die Erfindung ein Verfahren zur Einstellung mindestens einer der zuvor definierten Eigenschaften einer Formmasse, vorzugsweise einer Formmasse nach einem der Ansprüche 1 bis 6, durch die Variation der Konzentration von 20 mindestens einer der vorstehend definierten Komponenten in den oben definierten Gew.-%-Bereichen.

Die Erfindung wird durch die nachstehenden Beispiele näher erläutert:

25 **Beispiele:**

Beispiele 1 bis 4 und Vergleichsbeispiel

Entsprechend den Angaben in der nachstehenden Tabelle 1 wurden die angegebenen Mengen Polybutylenterephthalat (PBT), Polyethylenterephthalat (PET), Glasfasern, Pfropfkautschuke P1 und P2, Copolymerisate PSAN 1, PSAN 2 und PSAN 3 und Additive in einem Schneckenextruder bei einer Temperatur von 250°C bis 270°C 5 gemischt. Aus den dadurch gebildeten Formmassen werden die den betreffenden DIN-Normen entsprechenden Probekörper spritzgegossen.

PBT1 ist ein Polybutylenterephthalat mit einer Viskositätszahl (bestimmt nach in einer 0,05 g/ml Polymerlösung aus Phenol und 1,2-Dichlorbenzol (1:1)) von 107.

10

PBT2 ist ein Polybutylenterephthalat mit einer Viskositätszahl von 130.

P1 ist ein kleinteiliger ASA-Pfropfkautschuk mit 25 Gew.-% Acrylnitril in der SAN-Pfropfhülle mit einer mittleren Teilchengröße von ca. 100 nm.

15

PC ist das Polycarbonat Lexan® der Firma General Electric Plastics AG.

P2 ist ein großteiliger ASA-Pfropfkautschuk mit einem mittleren Teilchendurchmesser von ca. 500 nm.

20

PSAN 1 ist ein Styrol/Acrylnitril-Copolymerisat mit 19 Gew.-% Acrylnitril.

PSAN 2 ist ein Styrol-/Acrylnitril-Copolymerisat mit 35 Gew.-% Acrylnitril.

25 Entformungsmittel ist Loxiol VPG 861/3,5 Firma Henkel KGaA.

Ruß ist Black Pearls 880.

Talkum IT Extra.

5 Glasfaser (Schnittglasur Standardglas).

Die Beurteilung des Emissionsverhaltens erfolgte nach PV 3341 sowie nach DIN 50011 / PV 3900 C3.

10 Die Messung der Geruchsemision nach DIN 50011/PV3900 C3 erfolgte wie folgt:

In einem 1 l-Gefäß mit geruchsneutraler Dichtung und Deckel wurde eine Probekörpermenge von 50 cm<sup>3</sup> fest verschlossen und in einer vorgeheizten Wärmekammer mit Luftumwälzung bei 80 °C während 2 Stunden gelagert. Nach 15 Entnahme des Prüfgefäßes aus der Wärmekammer wurde das Prüfgefäß auf 60 °C abgekühlt, bevor die Bewertung durch mindestens 3 Prüfer erfolgte. Die Geruchsbeurteilung erfolgt anhand der Bewertungsskala mit den Noten 1 bis 6, wobei halbe Zwischenschritte möglich sind.

20 Bewertungsskala:

Note 1 nicht wahrnehmbar

Note 2 wahrnehmbar, nicht störend

Note 3 deutlich wahrnehmbar, aber noch nicht störend

25 Note 4 störend

Note 5 stark störend

Note 6 unerträglich

5 Tabelle 2 enthält die Ergebnisse der Geruchsprüfung sowie die Ergebnisse der darüber hinaus durchgeföhrten mechanischen Prüfungen.

Die Laserbeschriftung erfolgte durch eine Na-YAg-Laser bei einem Lampenstrom in von ca. 15 A. Die Kontraststärke wurde durch Betrachtung der Beschriftung über die Lesbarkeit ermittelt und mit „gut“ und „schlecht“ beurteilt.

**Tabelle 1:**

Einsatzstoff [Gew.-%]	Beispiel 1	Beispiel 2	Beispiel 3	Beispiel 4	Beispiel 5
PBT 1			55,1		
PBT 2	47,5	55,1		56,1	47,1
Glasfaser	20	15	15	14	14
PET	10				10
P 1	12	3	3		8
P 2		3	3	6	
PSAN 1		15	15	15	15
PSAN 2	10				
PC		8	8	8	5
Entformungs- mittel	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5
Talkum	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1
Ruß	1	0,3	0,3	0,3	0,3

Tabelle 2:

	Beispiel 1	Beispiel 2	Beispiel 3	Beispiel 4	Beispiel 5
Fließfähigkeit nach MVR 275/2,16 [cm <sup>3</sup> /10 min]	13	15	22	17	18
Dichte [g/cm <sup>3</sup> ]	1,39	1,32	1,32	1,3	1,31
Schlagzähigkeit nach ISO 179/1eU	50	59	55	58	57
Kerbschlagzähigkeit nach ISO 179/1eA [kJ/m <sup>2</sup> ]	6	8	8	7	8
Elastizitätsmodul nach DIN 53457 [MPa]	6900	5300	5300	5000	5000
Bruchspannung nach DIN 53457 [MPa]	105	95	94	90	92
Bruchdehnung nach DIN 53457 [%]	2,4	3,5	3,5	3,7	3,5
Durchstoßarbeit nach ISO 6603/2 [Nm]	2,5	3,5	3,5	4	4
HDT nach ISO 75 B [°C]	143	140	139	139	143
Geruchsprüfung nach PV 3900 C3 [Note]	4,5	3,5	3,5	3,5	4,0
Laserbeschriftung	schlecht	gut	gut	gut	Gut
Kohlenstoff-Emission nach PV 3341 [µg C/g]	68	25	28	32	29

## Patentansprüche

5

1. Faserverstärkte Formmasse, enthaltend, bezogen auf die Summe der Komponenten A bis I, die insgesamt 100 Gew.-% ergibt,

10 a) 1 bis 96,86 Gew.-% der Formmasse mindestens eines Polykondensats als Komponente A,

15 b) 1 bis 12 Gew.-% mindestens eines teilchenförmigen Ppropfcopolymerisats mit einer Glasübergangstemperatur der Weichphase unterhalb von 0°C und einer mittleren Teilchengröße von 50 bis 1000 nm als Komponente B,

c) 1 bis 12 Gew.-% mindestens eines Copolymerisats als Komponente C aus den Monomeren

20 c1) 50 bis 90 Gew.-% mindestens eines vinylaromatischen Monomeren als Komponente C1 und

c2) 10 bis 50 Gew.-% Acrylnitril und/oder Methacrylnitril

als Komponente C2, jeweils bezogen auf die Komponente C,

25

- d) 1 bis 20 Gew.-% Fasern als Komponente D,
- e) 0,01 bis 15 Gew.-% eines Polycarbonats als Komponente E,
- 5 f) 0,01 bis 2 Gew.-% eines Rußes als Komponente F,
- g) 0 bis 12 Gew.-% eines zu Komponente B unterschiedlichen Polymers als Komponente G,
- 10 h) 0 bis 20 Gew.-% eines zu Komponente A unterschiedlichen Polyester als Komponente H,
- i) 0,1 bis 10 Gew.-% übliche Zusatzstoffe wie UV-Stabilisatoren, Oxidationsverzögerer, Gleit- und Entformungsmittel als Komponente I.

15

2. Formmasse nach Anspruch 1, wobei die Komponente A aus
  - a1) 60 bis 100 Gew.-% Polybutylenterephthalat und
  - 20 a2) 0 bis 40 Gew.-% eines weiteren Polyesters
- besteht.

3. Formmasse nach Anspruch 1 oder 2, wobei die Komponente B aus

b1) 50 bis 90 Gew.-% einer teilchenförmigen Pfropfgrundlage B1 aus den Monomeren

5 b11) 75 bis 99,9 Gew.-% eines C<sub>1</sub>-C<sub>10</sub>-Alkylesters der Acrylsäure als Komponente B11,

10 b12) 0,1 bis 10 Gew.-% mindestens eines polyfunktionellen Monomeren mit mindestens zwei olefinischen, nicht konjugierten Doppelbindungen als Komponente B12 und

b13) 0 bis 24,9 Gew.-% eines oder mehrerer weiterer copolymerisierbarer Monomere als Komponente B13,

und

15

b2) 10 bis 50 Gew.-% einer Pfropfauflage B2 aus den Monomeren

b21) 50 bis 90 Gew.-% eines vinylaromatischen Monomeren als Komponente B21 und

20

b22) 10 bis 50 Gew.-% Acrylnitril und/oder Methacrylnitril als Komponente B22

besteht.

4. Formmasse nach einem der Ansprüche 1 bis 3, wobei das Polycarbonat der Komponente E eine Fließfähigkeit (MVR 300 °C/1,2 kp cm<sup>3</sup>/ 10 min ISO 1133) im Bereich von 9 bis 100 besitzt.
5. Formmasse nach einem der Ansprüche 1 bis 4, wobei das Ppropfcopolymer der Komponente B kein Butadien- oder Isopren oder keines davon enthält.
6. Formmasse nach einem der Ansprüche 1 bis 5, wobei die Komponente B zu 10 bis 90 Gew.-% aus einem kleinteiligen Ppropfcopolymerisat mit einer mittleren Teilchengröße von 50 bis 200 nm und zu 10 bis 90 Gew.-% aus einem großteiligen Ppropfcopolymerisat mit einer mittleren Teilchengröße von 250 bis 1000 nm besteht.
7. Formteile beinhaltend Formmassen gemäß einem der Ansprüche 1 bis 6
8. Formteile nach Anspruch 7 mit einem oder mehreren der Merkmale:
  - Kohlenstoff-Emission nach PV 3341 < 50 µg C/g
  - Ergebnis der Geruchsprüfung nach DIN 50 011/PV 3900 besser als Note 5;
  - Vicat B-Erweichungstemperatur > 138 °C;
  - Stauchhärte nach DIN53577 20 bis 100 kPa bei 20 bis 60 % Stauchung;

- Dichte im Bereich von 1,3 bis 1,4 g/cm<sup>3</sup>;
- Fließfähigkeit als Melt-Volume-Ratio bei 275 °C und 2,16 kp von > 12 g/m<sup>3</sup>;

5

- Schlagzähigkeitsabnahme nach ISO 179/1eU nach einer 1000 h dauernder Wärmelagerung bei 120 °C von < 30 % gegenüber vor der Wärmelagerung;

10

- Bruchdehnung nach DIN 53457 nach 1000 h dauernder Wärmelagerung bei 130 °C > 2,5 %.

9. Verbund, beinhaltend ein Formteil gemäß Anspruch 7 oder 8 und ein Polykondensatschaum.

15

- 10. Verwendung von Formmassen, gemäß einem der Ansprüche 1 bis 6, oder Formteil nach Anspruch 7 oder 8, oder Verbund nach Anspruch 9 oder mindestens zwei davon für den Innenraum von Kraftfahrzeugen.

20

- 11. Verfahren zur Einstellung mindestens einer der in Anspruch 8 definierten Eigenschaften einer Formmasse, vorzugsweise einer Formmasse nach einem der Ansprüche 1 bis 6, durch die Variation der Konzentration von mindestens einer der in Anspruch 1 definierten Komponenten in den in Anspruch 1 definierten Gew.-%-Bereichen.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 00/00267

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
 IPC 7 C08L67/02 C08K7/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C08L C08K

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP 0 392 357 A (BASF AG) 17 October 1990 (1990-10-17) Seite 3, Zeilen 21-33 Seite 4, Zeilen 19-22 claims 1-4; example 1 ---	1-10
Y	DATABASE WPI Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 1989-058222 XP002138032 & JP 01 011152 A (NISSAN MOTOR CO LTD), 13 January 1989 (1989-01-13) abstract ---	1-10
Y	US 4 535 124 A (LINDNER CHRISTIAN ET AL) 13 August 1985 (1985-08-13) claims 1,8,9; example 22 ---	1-10
		-/-

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

<sup>\*</sup> Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

18 May 2000

Date of mailing of the international search report

09.06.00

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Rousseau, F

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Intern. Appl. Application No

PCT/EP 00/00267

## C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	EP 0 643 104 A (BASF AG) 15 March 1995 (1995-03-15) claims 1,5; examples 1-3 ---	6
Y	DE 42 35 302 A (BAYER AG) 21 April 1994 (1994-04-21) claim 1 -----	1-10

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/EP 00/00267

**Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1.  Claims Nos.: because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2.  Claims Nos.: 11 because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:  
  
See supplemental sheet ADDITIONAL MATTER PCT/ISA/210
  
3.  Claims Nos.: because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

1.  As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2.  As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3.  As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
4.  No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

**Remark on Protest**

The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
 No protest accompanied the payment of additional search fees.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/EP 00/00267

**ADDITIONAL MATTER PCT/ISA/210****Field I.2 (continued)**

Claims nos.: 11

The valid patent claim no. 11 relates to a method for the preparation of a moulding material which is characterized by desirable properties. However, the claims do not define exact process steps by means of which these properties can be obtained. Furthermore, the product to be obtained according to said method can contain between 1 and 96.86 % by weight of a polycondensate. As a result, the patent claims include all methods for the preparation of moulding materials which contain between 1 and 96.86 % by weight of a polycondensate and present the above properties. In the case in question, claim no. 11 lacks the required elements to such a degree that a meaningful search with respect to the entire scope of protection sought seems impossible (Art. 6, PCT).

The applicant is reminded that claims, or parts of claims, relating to inventions in respect of which no international search report has been established cannot normally be the subject of an international preliminary examination (Rule 66.1 (e) PCT). As a general rule, the EPO in its capacity as the authority entrusted with the task of carrying out an international preliminary examination will not conduct a preliminary examination for subjects in respect of which no search has been provided. This also applies to cases where the patent claims were amended after receipt of the international search report (Article 19 PCT) or to cases where the applicant provides new patent claims in keeping with the procedure mentioned in Chapter II of the PCT.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

## Information on patent family members

Intern. Application No

PCT/EP 00/00267

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
EP 0392357	A	17-10-1990	DE	3911828 A	18-10-1990
			DE	59009314 D	03-08-1995
			JP	2294356 A	05-12-1990
			JP	2845555 B	13-01-1999
			KR	149496 B	15-10-1998
			US	5219915 A	15-06-1993
JP 01011152	A	13-01-1989		NONE	
US 4535124	A	13-08-1985	DE	3339001 A	17-01-1985
			DE	3462048 D	19-02-1987
			EP	0131202 A	16-01-1985
			JP	1923239 C	25-04-1995
			JP	6051833 B	06-07-1994
			JP	60036558 A	25-02-1985
EP 0643104	A	15-03-1995	DE	4330490 A	16-03-1995
DE 4235302	A	21-04-1994		NONE	

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP 00/00267

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 C08L67/02 C08K7/02

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole )  
IPK 7 C08L C08K

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	EP 0 392 357 A (BASF AG) 17. Oktober 1990 (1990-10-17) Seite 3, Zeilen 21-33 Seite 4, Zeilen 19-22 Ansprüche 1-4; Beispiel 1 ---	1-10
Y	DATABASE WPI Derwent Publications Ltd., London, GB; AN 1989-058222 XP002138032 & JP 01 011152 A (NISSAN MOTOR CO LTD), 13. Januar 1989 (1989-01-13) Zusammenfassung ---	1-10
Y	US 4 535 124 A (LINDNER CHRISTIAN ET AL) 13. August 1985 (1985-08-13) Ansprüche 1,8,9; Beispiel 22 ---	1-10 -/-

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

° Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erforderlicher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

18. Mai 2000

09.06.00

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Rousseau, F

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

In **onales Aktenzeichen**  
**PCT/EP 00/00267**

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie <sup>2</sup>	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	EP 0 643 104 A (BASF AG) 15. März 1995 (1995-03-15) Ansprüche 1,5; Beispiele 1-3 -----	6
Y	DE 42 35 302 A (BAYER AG) 21. April 1994 (1994-04-21) Anspruch 1 -----	1-10

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP 00/00267

### Feld I Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)

Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein Recherchenbericht erstellt:

1.  Ansprüche Nr. 11  
weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich
  
2.  Ansprüche Nr. 11  
weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich  
siehe Zusatzblatt WEITERE ANGABEN PCT/ISA/210
  
3.  Ansprüche Nr.  
weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.

### Feld II Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

1.  Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.
  
2.  Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchengebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.
  
3.  Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr. 11.
  
4.  Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfaßt:

#### Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs

Die zusätzlichen Gebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt.  
 Die Zahlung zusätzlicher Recherchengebühren erfolgte ohne Widerspruch.

WEITERE ANGABEN	PCT/ISA/ 210
Fortsetzung von Feld I.2	
Ansprüche Nr.: 11	
<p>Der geltende Anspuch 11 bezieht sich auf ein Verfahren zur Herstellung einer Formmasse, die durch erstrebenswerte Eigenschaften charakterisiert wird, ohne, dass genaue Verfahrensmassnahmen zur Erzielung dieser Eigenschaften definiert werden. Das zu erhaltene Produkt kann zwischen 1 und 96,86 Gew.-% eines Polykondensats enthalten. Die Patentansprüche umfassen daher alle Verfahren zur Herstellung von Formmassen, die zwischen 1 und 96,86 Gew.-% eines Polykondensats enthalten und diese Eigenschaften aufweisen. Im vorliegenden Fall fehlen dem Anspruch 11 die nötigen Merkmale in einem solchen Maße, daß eine sinnvolle Recherche über den gesamten erstrebten Schutzbereich unmöglich erscheint (Art. 6 PCT).</p> <p>Der Anmelder wird darauf hingewiesen, daß Patentansprüche, oder Teile von Patentansprüchen, auf Erfindungen, für die kein internationaler Recherchenbericht erstellt wurde, normalerweise nicht Gegenstand einer internationalen vorläufigen Prüfung sein können (Regel 66.1(e) PCT). In seiner Eigenschaft als mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde wird das EPA also in der Regel keine vorläufige Prüfung für Gegenstände durchführen, zu denen keine Recherche vorliegt. Dies gilt auch für den Fall, daß die Patentansprüche nach Erhalt des internationalen Recherchenberichtes geändert wurden (Art. 19 PCT), oder für den Fall, daß der Anmelder im Zuge des Verfahrens gemäß Kapitel II PCT neue Patentanprüche vorlegt.</p>	

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/00267

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
EP 0392357 A	17-10-1990	DE 3911828 A DE 59009314 D JP 2294356 A JP 2845555 B KR 149496 B US 5219915 A		18-10-1990 03-08-1995 05-12-1990 13-01-1999 15-10-1998 15-06-1993
JP 01011152 A	13-01-1989	KEINE		
US 4535124 A	13-08-1985	DE 3339001 A DE 3462048 D EP 0131202 A JP 1923239 C JP 6051833 B JP 60036558 A		17-01-1985 19-02-1987 16-01-1985 25-04-1995 06-07-1994 25-02-1985
EP 0643104 A	15-03-1995	DE 4330490 A		16-03-1995
DE 4235302 A	21-04-1994	KEINE		