

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
17. Juni 2004 (17.06.2004)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2004/050765 A1

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: **C08L 101/00**,
51/04, 55/02

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2003/012808

(22) Internationales Anmeldedatum:
17. November 2003 (17.11.2003)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
102 55 824.8 29. November 2002 (29.11.2002) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme
von US): **BAYER AKTIENGESELLSCHAFT** [DE/DE];
51368 Leverkusen (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **EICHENAUER, Herbert** [DE/DE]; Gustav-Heinemann-Strasse 3, 41539 Dormagen (DE). **URBANNECK, Bernd** [DE/DE]; Ritterstr. 132, 41238 Mönchengladbach (DE). **ECKEL, Thomas** [DE/DE]; Pfauenstrasse 51, 41540 Dormagen (DE). **WENZ, Eckhard** [DE/DE]; Suevenstrasse 5, 50679 Köln (DE).

(74) Gemeinsamer Vertreter: **BAYER AKTIENGESELLSCHAFT**; 51368 Leverkusen (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (*national*): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, 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, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (*regional*): ARIPO-Patent (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

- mit internationalem Recherchenbericht
- vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: IMPACT-RESISTANT MODIFIED BLENDS

(54) Bezeichnung: SCHLAGZÄHMODIFIZIERTE BLENDS

(57) Abstract: The invention relates to thermoplastic blends that are impact-resistant modified by means of coprecipitated graft polymer, a method for the production thereof, and molded parts made therefrom.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft mit cogefälltem Pfropfpolymerisat schlagzähmodifizierte thermoplastische Blends, ein Verfahren zu deren Herstellung sowie daraus hergestellte Formteile.



WO 2004/050765 A1

Schlagzähmodifizierte Blends

Die Erfindung betrifft mit cogefälltem Pfropfpolymerisat schlagzähmodifizierte thermoplastische Blends, ein Verfahren zu deren Herstellung sowie daraus hergestellte Formteile.

Thermoplastische Formmassen aus Polycarbonaten und ABS-Polymerisaten sind seit langem bekannt. So beschreibt DE-A 1 170 141 gut verarbeitbare Formmassen aus Polycarbonaten und Pfropfpolymerisaten von Monomermischungen aus Acrylnitril und einem aromatischen Vinylkohlenwasserstoff auf Polybutadien.

In der DE-A 1 810 993 wird die verbesserte Wärmestandfestigkeit von Polycarbonat in Abmischung mit ABS-Pfropfpolymerisaten bzw. Copolymerisaten auf Basis von α -Methylstyrol hervorgehoben.

Gegenstand der DE-A 22 59 565 und DE-A 23 29 548 ist die verbesserte Fließnahtfestigkeit von PC/ABS-Formmassen, wobei in beiden Schriften als Bestandteil der ABS-Komponente jeweils Pfropfpolymerisate bestimmter Teilchengröße verwendet werden. Aus der EP-A 0 704 488 sind thermoplastische Formmassen mit einem Teilchendurchmesser von 0,20 bis 0,35 μm bekannt.

Die DE-A 28 18 679 lehrt, dass PC/ABS-Mischungen dann besonders hohe Tieftemperaturzähigkeiten aufweisen, wenn das ABS-Polymerisat zwei Pfropfmischpolymerisate mit unterschiedlichem Pfropfgrad enthält.

Es ist weiterhin bekannt, Polymerlatices zur Entfernung von Verunreinigungen oder Grobanteilen zu filtrieren. So wie beispielsweise in Houben Weyl XIV/1, Makromolekulare Stoffe 1, Seiten 348 bis 356 (Georg Thieme Verlag, Stuttgart, 1961) sowie in DE-A 4 126 483 und US-A 4 747 959 die Filtration von Kautschuklatices

- 2 -

beschrieben. Zusammenhänge mit den mechanischen Eigenschaften sind aus diesem Stand der Technik nicht bekannt.

Die Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist die Bereitstellung von schlagzähmodifizierten Zusammensetzungen mit optimierter Eigenschaftskombination aus guter Oberflächenqualität (insbesondere eine sehr niedrige Zahl an Fehlstellen, sogenannter "Stippen"), gutem Fließverhalten und guter Spannungsrissbeständigkeit (ESC-Verhalten). Die Zusammensetzungen können weiterhin mit Flammenschutzmittel flammwidrig ausgerüstet sein. Flammwidrig ausgerüstete, schlagzähmodifizierte Zusammensetzungen eignen sich insbesondere für Dünnwandapplikationen wie Notebooks.

Es wurde gefunden, dass schlagzähmodifizierte Polycarbonat-Zusammensetzungen, die eine durch Cofällung erhaltene Mischung aus mindestens zwei Ppropfpolymerisaten enthalten, die gewünschten Eigenschaften aufweisen.

Gegenstand der Erfindung sind daher Zusammensetzungen enthaltend

- A) einen Thermoplasten oder eine Mischung von Thermoplasten ausgewählt aus mindestens einem aus der Gruppe der Polycarbonate, Polyestercarbonate, Polyamide, Polyalkylenterephthalate und Polyoxymethylen und
- B) eine durch Cofällung erhaltene Mischung aus mindestens zwei Ppropfpolymerisaten B.1 und B.2.

Bevorzugt sind Zusammensetzungen enthaltend

- A) 10 bis 99, vorzugsweise 20 bis 98,5, insbesondere 30 bis 98 Gew.-Teile Thermoplast oder eine Mischung von Thermoplasten ausgewählt aus mindestens einem aus der Gruppe der Polycarbonate, Polyestercarbonate, Polyamide, Polyalkylenterephthalate und Polyoxymethylen,

- 3 -

B) 0,5 bis 90, vorzugsweise 1,5 bis 80, insbesondere 2 bis 70 Gew.-Teile einer durch Cofällung erhaltenen Mischung aus mindestens zwei Pfropfpolymerisaten B.1 und B.2,

5

C) 0 bis 20, bevorzugt 0 bis 18, besonders bevorzugt 0 bis 16 Gew.-Teilen Flammenschutzmittel,

D) 0 bis 5 Gew.-Teile fluoriertes Polyolefin.

10

Diese Bestandteile und weitere in den erfindungsgemäßen Zusammensetzungen einsetzbare Komponenten werden anschließend beispielhaft erläutert.

In Zusammensetzungen, die kein Flammenschutzmittel enthalten, beträgt die Menge an Komponente A) vorzugsweise 40 bis 95 Gew.-Teile, insbesondere 40 bis 90 Gew.-Teile, ganz besonders bevorzugt 50 bis 85 Gew.-Teile und die Menge an Komponente B) vorzugsweise 5 bis 60, insbesondere 10 bis 60 Gew.-Teile, ganz besonders bevorzugt 15 bis 50 Gew.-Teile.

15

20 Komponente A

Erfindungsgemäß geeignete aromatische Polycarbonate und aromatische Polyester-carbonate gemäß Komponente A sind literaturbekannt oder nach literaturbekannten Verfahren herstellbar (zur Herstellung aromatischer Polycarbonate siehe beispielsweise Schnell, "Chemistry and Physics of Polycarbonates", Interscience Publishers, 1964 sowie die DE-AS 1 495 626, DE-A 2 232 877, DE-A 2 703 376, DE-A 2 714 544, DE-A 3 000 610, DE-A 3 832 396; zur Herstellung aromatischer Polyester-carbonate, z.B. DE-A 3 077 934).

25

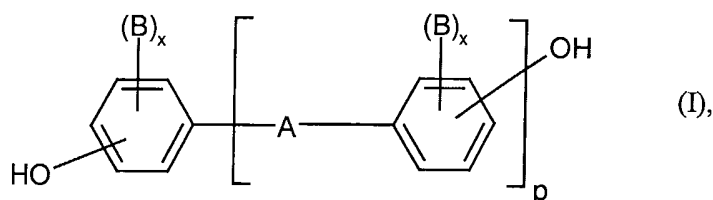
Die Herstellung aromatischer Polycarbonate erfolgt z.B. durch Schmelzeverfahren oder durch Umsetzung von Diphenolen mit Kohlensäurehalogeniden, vorzugsweise

30

- 4 -

Phosgen und/oder mit aromatischen Dicarbonsäuredihalogeniden, vorzugsweise Benzoldicarbonsäuredihalogeniden, nach dem Phasengrenzflächenverfahren, gegebenenfalls unter Verwendung von Kettenabbrechern, beispielsweise Monophenolen und gegebenenfalls unter Verwendung von trifunktionellen oder mehr als trifunktionellen Verzweigern, beispielsweise Triphenolen oder Tetraphenolen.

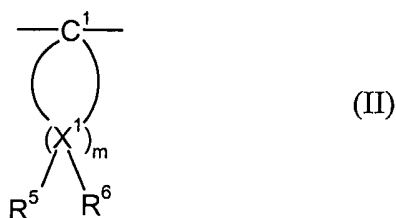
Diphenole zur Herstellung der aromatischen Polycarbonate und/oder aromatischen Polyestercarbonate sind vorzugsweise solche der Formel (I)



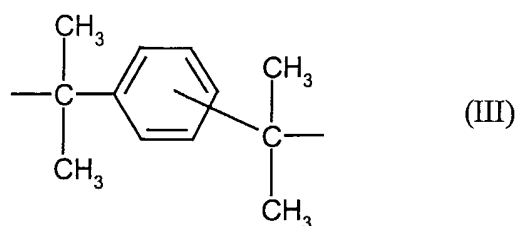
wobei

A eine Einfachbindung, C₁ bis C₅-Alkylen, C₂ bis C₅-Alkyliden, C₅ bis C₆-Cycloalkyliden, -O-, -SO-, -CO-, -S-, -SO₂-, C₆ bis C₁₂-Arylen, an das weitere aromatische gegebenenfalls Heteroatome enthaltende Ringe kondensiert sein können,

oder ein Rest der Formel (II) oder (III)



- 5 -



- B jeweils C₁ bis C₁₂-Alkyl, vorzugsweise Methyl, Halogen, vorzugsweise Chlor und/oder Brom
- 5 x jeweils unabhängig voneinander 0, 1 oder 2,
- p 1 oder 0 sind, und
- 10 R⁵ und R⁶ für jedes X¹ individuell wählbar, unabhängig voneinander Wasserstoff oder C₁ bis C₆-Alkyl, vorzugsweise Wasserstoff, Methyl oder Ethyl,
- X¹ Kohlenstoff und
- 15 m eine ganze Zahl von 4 bis 7, bevorzugt 4 oder 5 bedeuten, mit der Maßgabe, dass an mindestens einem Atom X¹, R⁵ und R⁶ gleichzeitig Alkyl sind.

Bevorzugte Diphenole sind Hydrochinon, Resorcin, Dihydroxydiphenole, Bis-(hydroxyphenyl)-C₁-C₅-alkane, Bis-(hydroxyphenyl)-C₅-C₆-cycloalkane, Bis-(hydroxyphenyl)-ether, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfoxide, Bis-(hydroxyphenyl)-ketone,

20 Bis-(hydroxyphenyl)-sulfone und α,α-Bis-(hydroxyphenyl)-diisopropyl-benzole sowie deren kernbromierte und/oder kernchlorierte Derivate.

Besonders bevorzugte Diphenole sind 4,4'-Dihydroxydiphenyl, Bisphenol-A, 2,4-

25 Bis(4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3.3.5-trimethylcyclohexan, 4,4'-Dihydroxydiphenylsulfid, 4,4'-Dihydroxydiphenylsulfon sowie deren di- und tetrabromierten oder chlorierten

- 6 -

Derivate wie beispielsweise 2,2-Bis(3-Chlor-4-hydroxyphenyl)-propan, 2,2-Bis-(3,5-dichlor-4-hydroxyphenyl)-propan oder 2,2-Bis-(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan. Insbesondere bevorzugt ist 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan (Bisphenol-A).

- 5 Es können die Diphenole einzeln oder als beliebige Mischungen eingesetzt werden. Die Diphenole sind literaturbekannt oder nach literaturbekannten Verfahren erhältlich.

10 Für die Herstellung der thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate geeignete Kettenabbrecher sind beispielsweise Phenol, p-Chlorphenol, p-tert.-Butylphenol oder 2,4,6-Tribromphenol, aber auch langkettige Alkylphenole, wie 4-(1,3-Tetramethylbutyl)-phenol gemäß DE-A 2 842 005 oder Monoalkylphenol oder Dialkylphenole mit insgesamt 8 bis 20 Kohlenstoffatomen in den Alkylsubstituenten, wie 3,5-di-
15 tert.-Butylphenol, p-iso-Octylphenol, p-tert.-Octylphenol, p-Dodecylphenol und 2-(3,5-Dimethylheptyl)-phenol und 4-(3,5-Dimethylheptyl)-phenol. Die Menge an einzusetzenden Kettenabbrechern beträgt im allgemeinen zwischen 0,5 Mol-%, und 10 Mol-%, bezogen auf die Molsumme der jeweils eingesetzten Diphenole.

20 Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate und Polyestercarbonate haben mittlere Gewichtsmittelmolekulargewichte (M_w , gemessen z.B. durch Ultrazentrifuge oder Streulichtmessung) von 10 000 bis 200 000, vorzugsweise 15 000 bis 80 000.

Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate können in bekannter Weise verzweigt sein, und zwar vorzugsweise durch den Einbau von 0,05 bis 2,0 Mol-%, bezogen auf die Summe der eingesetzten Diphenole, an dreifunktionellen oder mehr als
25 dreifunktionellen Verbindungen, beispielsweise solchen mit drei und mehr phenolischen Gruppen.

Geeignet sind sowohl Homopolycarbonate als auch Copolycarbonate. Zur Herstellung erfindungsgemäßer Copolycarbonate gemäß Komponente A können auch 1 bis
30 25 Gew.-%, vorzugsweise 2,5 bis 25 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmenge an ein-

- 7 -

zusetzenden Diphenolen, Polydiorganosiloxane mit Hydroxyaryloxy-Endgruppen eingesetzt werden. Diese sind bekannt (US-A 3 419 634) und nach literaturbekannten Verfahren herstellbar. Die Herstellung Polydiorganosiloxan-haltiger Copolycarbonate ist in der DE-A 3 334 782 beschrieben.

5

Bevorzugte Polycarbonate sind neben den Bisphenol-A-Homopolycarbonaten die Copolycarbonate von Bisphenol-A mit bis zu 15 Mol-%, bezogen auf die Molsummen an Diphenolen, anderen als bevorzugt oder besonders bevorzugt genannten Diphenolen, insbesondere 2,2-Bis(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan.

10

Aromatische Dicarbonsäuredihalogenide zur Herstellung von aromatischen Polyester carbonaten sind vorzugsweise die Disäuredichloride der Isophthalsäure, Terephthalsäure, Diphenylether-4,4'-dicarbonsäure und der Naphthalin-2,6-dicarbonsäure.

15

Besonders bevorzugt sind Gemische der Disäuredichloride der Isophthalsäure und der Terephthalsäure im Verhältnis zwischen 1:20 und 20:1.

Bei der Herstellung von Polyester carbonaten wird zusätzlich ein Kohlensäurehalogenid, vorzugsweise Phosgen, als bifunktionelles Säurederivat mit verwendet.

20

Als Kettenabbrecher für die Herstellung der aromatischen Polyester carbonate kommen außer den bereits genannten Monophenolen noch deren Chlorkohlensäureester sowie die Säurechloride von aromatischen Monocarbonsäuren, die gegebenenfalls durch C₁ bis C₂₂-Alkylgruppen oder durch Halogenatome substituiert sein können, sowie aliphatische C₂ bis C₂₂-Monocarbonsäurechloride in Betracht.

25

Die Menge an Kettenabbrechern beträgt jeweils 0,1 bis 10 Mol-%, bezogen im Falle der phenolischen Kettenabbrecher auf mol Diphenol und im Falle von Monocarbonsäurechlorid-Kettenabbrecher auf mol Dicarbonsäuredichloride.

30

Die aromatischen Polyestercarbonate können auch aromatische Hydroxycarbonsäuren eingebaut enthalten.

Die aromatischen Polyestercarbonate können sowohl linear als auch in bekannter
5 Weise verzweigt sein (siehe dazu DE-A 2 940 024 und DE-A 3 007 934).

Als Verzweigungsmittel können beispielsweise drei- oder mehrfunktionelle Carbon-
säurechloride, wie Trimesinsäuretrichlorid, Cyanursäuretrichlorid, 3,3',4,4'-Benzo-
phenon-tetracarbonsäuretrichlorid, 1,4,5,8-Napthalintetracarbonsäuretrichlorid
10 oder Pyromellithsäuretrichlorid, in Mengen von 0,01 bis 1,0 mol-% (bezogen auf
eingesetzte Dicarbonsäuredichloride) oder drei- oder mehrfunktionelle Phenole, wie
Phloroglucin, 4,6-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-hepten-2,4,4-Dimethyl-2,4-
6-tri-(4-hydroxyphenyl)-heptan, 1,3,5-Tri-(4-hydroxyphenyl)-benzol, 1,1,1-Tri-(4-
hydroxyphenyl)-ethan, Tri-(4-hydroxyphenyl)-phenylmethan, 2,2-Bis[4,4-bis(4-
15 hydroxy-phenyl)-cyclohexyl]-propan, 2,4-Bis(4-hydroxyphenyl-isopropyl)-phenol,
Tetra-(4-hydroxyphenyl)-methan, 2,6-Bis(2-hydroxy-5-methyl-benzyl)-4-methyl-
phenol, 2-(4-Hydroxyphenyl)-2-(2,4-dihydroxyphenyl)-propan, Tetra-(4-[4-hydroxy-
phenyl-isopropyl]-phenoxy)-methan, 1,4-Bis[4,4'-dihydroxytri-phenyl]-methyl]-ben-
zol, in Mengen von 0,01 bis 1,0 mol-% bezogen auf eingesetzte Diphenole verwendet
20 werden. Phenolische Verzweigungsmittel können mit den Diphenolen vorgelegt,
Säurechlorid-Verzweigungsmittel können zusammen mit den Säuredichloriden ein-
getragen werden.

In den thermoplastischen, aromatischen Polyestercarbonaten kann der Anteil an Car-
bonatstruktureinheiten beliebig variieren. Vorzugsweise beträgt der Anteil an Carbo-
natgruppen bis zu 100 mol-%, insbesondere bis zu 80 mol-%, besonders bevorzugt
25 bis zu 50 mol-%, bezogen auf die Summe an Estergruppen und Carbonatgruppen.
Sowohl der Ester- als auch der Carbonatanteil der aromatischen Polyestercarbonate
kann in Form von Blöcken oder statistisch verteilt im Polykondensat vorliegen.

Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate und Polyestercarbonate können allein oder im beliebigen Gemisch eingesetzt werden.

5 Erfindungsgemäß geeignete Polyamide (gemäß Komponente A) sind bekannt oder nach literaturbekannten Verfahren herstellbar.

Erfindungsgemäß geeignete Polyamide sind bekannte Homopolyamide, Copolyamide und Mischungen dieser Polyamide. Es können dies teilkristalline und/oder amorphe Polyamide sein. Als teilkristalline Polyamide sind Polyamid-6, Polyamid-10 6,6, Mischungen und entsprechende Copolymerisate aus diesen Komponenten geeignet. Weiterhin kommen teilkristalline Polyamide in Betracht, deren Säurekomponente ganz oder teilweise aus Terephthalsäure und/oder Isophthalsäure und/oder Korksäure und/oder Sebacinsäure und/oder Azelainsäure und/oder Adipinsäure und/oder Cyclohexandicarbonsäure, deren Diaminkomponente ganz oder teilweise 15 aus m- und/oder p-Xylylendiamin und/oder Hexamethyldiamin und/oder 2,2,4-Trimethylhexa-methyldiamin und/oder 2,4,4-Trimethylhexamethyldiamin und/oder Isophorondiamin besteht und deren Zusammensetzung prinzipiell bekannt ist.

20 Außerdem sind Polyamide zu nennen, die ganz oder teilweise aus Lactamen mit 7 bis 12 Kohlenstoffatomen im Ring, gegebenenfalls unter Mitverwendung einer oder mehrerer der oben genannten Ausgangskomponenten, hergestellt werden.

Besonders bevorzugte teilkristalline Polyamide sind Polyamid-6 und Polyamid-6,6 25 und ihre Mischungen. Als amorphe Polyamide können bekannte Produkte eingesetzt werden. Sie werden erhalten durch Polykondensation von Diaminen wie Ethyldiamin, Hexamethyldiamin, Decamethyldiamin, 2,2,4- und/oder 2,4,4-Trimethylhexamethyldiamin, m- und/oder p-Xylylendiamin, Bis-(4-aminocyclohexyl)-methan, Bis-(4-aminocyclohexyl)-propan, 3,3'-Dimethyl-4,4'-diamino-dicyclohexyl- 30 methan, 3-Aminomethyl-3,5,5-trimethylcyclohexylamin, 2,5- und/oder 2,6-Bis-(aminomethyl)-norbornan und/oder 1,4-Diaminomethylcyclohexan mit Dicarbonsäuren

- 10 -

wie Oxalsäure, Adipinsäure, Azelainsäure, Decandicarbonsäure, Heptadecandicarbonsäure, 2,2,4- und/oder 2,4,4-Trimethyladipinsäure, Isophthalsäure und Terephthalsäure.

- 5 Auch Copolymere, die durch Polykondensation mehrerer Monomere erhalten werden, sind geeignet, ferner Copolymere, die unter Zusatz von Aminocarbonsäuren wie ϵ -Aminocapronsäure, ω -Aminoundecansäure oder ω -Aminolaurinsäure oder ihren Lactamen, hergestellt werden.

- 10 Besonders geeignete amorphe Polyamide sind die Polyamide hergestellt aus Isophthalsäure, Hexamethylendiamin und weiteren Diaminen wie 4,4-Diaminodicyclohexylmethan, Isophorondiamin, 2,2,4- und/oder 2,4,4-Trimethylhexa-methylendiamin, 2,5- und/oder 2,6-Bis-(aminomethyl)-norbornen; oder aus Isophthalsäure, 4,4'-Diamino-dicyclohexylmethan und ϵ -Caprolactam; oder aus Isophthalsäure, 3,3'-Dimethyl-4,4'-diamino-dicyclohexylmethan und Laurinlactam; oder aus Terephthal-
- 15 säure und dem Isomerengemisch aus 2,2,4- und/oder 2,4,4-Trimethylhexamethylen-diamin.

- Anstelle des reinen 4,4'-Diaminodicyclohexylmethans können auch Gemische der
- 20 Stellungsisomeren Diamindicyclohexalmethane eingesetzt werden, die sich zusammensetzen aus

- | | |
|-----------------|-------------------------------|
| 70 bis 99 mol% | des 4,4'-Diamino-Isomeren, |
| 1 bis 30 mol% | des 2,4'-Diamino-Isomeren und |
| 25 0 bis 2 mol% | des 2,2'-Diamino-Isomeren, |

gegebenenfalls entsprechend höher kondensierten Diaminen, die durch Hydrierung von Diaminodiphenylmethan technischer Qualität erhalten werden. Die Isophthalsäure kann bis zu 30 % durch Terephthalsäure ersetzt sein.

- 11 -

Die Polyamide weisen vorzugsweise eine relative Viskosität (gemessen an einer 1 gew.%igen Lösung in m-Kresol bei 25°C) von 2,0 bis 5,0, besonders bevorzugt von 2,5 bis 4,0 auf.

- 5 Die Polyamide können allein oder in beliebiger Mischung untereinander in Komponente A enthalten sein.

Geeignete Polyalkylenterephthalate sind Reaktionsprodukte aus aromatischen Dicarbonsäuren oder ihren reaktionsfähigen Derivaten, wie Dimethylestern oder Anhydriden, und aliphatischen, cycloaliphatischen oder araliphatischen Diolen sowie Mischungen dieser Reaktionsprodukte.

Bevorzugte Polyalkylenterephthalate enthalten mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 Gew.-%, bezogen auf die Dicarbonsäurekomponente Terephthalsäurereste und mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 mol.-%, bezogen auf die Diolkomponente Ethylenglykol- und/oder Butandiol-1,4-Reste.

Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate können neben Terephthalsäureresten bis zu 20 mol.-%, vorzugsweise bis zu 10 mol.-%, Reste anderer aromatischer oder cycloaliphatischer Dicarbonsäuren mit 8 bis 14 C-Atomen oder aliphatischer Dicarbonsäuren mit 4 bis 12 C-Atomen enthalten, wie Reste von Phthalsäure, Isophthalsäure, Naphthalin-2,6-dicarbonsäure, 4,4'-Diphenyldicarbonsäure, Bernsteinsäure, Adipinsäure, Sebacinsäure, Azelainsäure, Cyclohexandiessigsäure.

25 Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate können neben Ethylenglykol- oder Butandiol-1,4-Resten bis zu 20 mol.-%, vorzugsweise bis zu 10 mol.-%, andere aliphatische Diole mit 3 bis 12 C-Atomen oder cycloaliphatische Diole mit 6 bis 21 C-Atomen enthalten, z.B. Reste von Propandiol-1,3, 2-Ethylpropandiol-1,3, Neopentylglykol, Pentandiol-1,5, Hexandiol-1,6, Cyclohexan-dimethanol-1,4, 3-Ethylpentandiol-2,4, 2-Methylpentandiol-2,4, 2,2,4-Trimethylpentandiol-1,3, 2-Ethylhexandiol-1,3, 2,2-Diethylpropandiol-1,3, Hexandiol-2,5, 1,4-Di-(β -hydroxyethoxy)-benzol, 2,2-Bis-(4-

- 12 -

hydroxycyclohexyl)-propan, 2,4-Dihydroxy-1,1,3,3-tetramethyl-cyclobutan, 2,2-Bis-(4- β -hydroxyethoxy-phenyl)-propan und 2,2-Bis-(4-hydroxypropoxyphenyl)-propan (DE-A 2 407 674, 2 407 776, 2 715 932).

5 Die Polyalkylenterephthalate können durch Einbau relativ kleiner Mengen drei- oder vierwertiger Alkohole oder 3- oder 4-basischer Carbonsäuren, z.B. gemäß DE-A 1 900 270 und US-PS 3 692 744, verzweigt werden. Beispiele bevorzugter Verzweigungsmittel sind Trimesinsäure, Trimellithsäure, Trimethylolethan und -propan und Pentaerythrit.

10

Besonders bevorzugt sind Polyalkylenterephthalate, die allein aus Terephthalsäure und deren reaktionsfähigen Derivaten (z.B. deren Dialkylestern) und Ethylenglykol und/oder Butandiol-1,4 hergestellt worden sind, und Mischungen dieser Polyalkylenterephthalate.

15

Mischungen von Polyalkylenterephthalaten enthalten 1 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 30 Gew.-%, Polyethylenterephthalat und 50 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 70 bis 99 Gew.-%, Polybutylenterephthalat.

20

Die vorzugsweise verwendeten Polyalkylenterephthalate besitzen im allgemeinen eine Grenzviskosität von 0,4 bis 1,5 dl/g, vorzugsweise 0,5 bis 1,2 dl/g, gemessen in Phenol/o-Dichlorbenzol (1:1 Gewichtsteile) bei 25°C im Ubbelohde-Viskosimeter.

Die Polyalkylenterephthalate lassen sich nach bekannten Methoden herstellen (z.B. 25 Kunststoff-Handbuch, Band VIII, S. 695 ff., Carl-Hanser-Verlag, München 1973).

Darüber hinaus sind Polyoxymethylene als Komponente A) ebenfalls geeignet.

Komponente B

Die Komponente B umfasst eine durch Cofällung erhaltene Mischung aus mindestens zwei Pfropfpolymerisaten B.1 und B.2 von jeweils

5

i) 5 bis 95, vorzugsweise 20 bis 80, besonders bevorzugt 25 bis 60, insbesondere 30 bis 50 Gew.-%, wenigstens eines Vinylmonomeren auf

10

ii) 95 bis 5, vorzugsweise 80 bis 20, besonders bevorzugt 75 bis 40, insbesondere 30 bis 50 Gew.-% einer oder mehrerer Pfropfgrundlagen mit Glasübergangstemperaturen $< 10^{\circ}\text{C}$, vorzugsweise $< 0^{\circ}\text{C}$, besonders bevorzugt $< -20^{\circ}\text{C}$.

15

Die Pfropfgrundlage ii) hat im allgemeinen eine mittlere Teilchengröße (d_{50} -Wert) von 0,05 bis 5 μm , vorzugsweise 0,10 bis 0,5 μm , besonders bevorzugt 0,20 bis 0,40 μm .

Monomere i) sind vorzugsweise Gemische aus

20

i1) 50 bis 99 Gew.-Teilen Vinylaromaten und/oder kernsubstituierten Vinylaromaten (wie beispielsweise Styrol, α -Methylstyrol, p-Methylstyrol, p-Chlorstyrol) und/oder (Meth)Acrylsäure-(C_1 - C_8)-Alkylester (wie z.B. Methylmethacrylat, Ethylmethacrylat) und

25

i2) 1 bis 50 Gew.-Teilen Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile wie Acrylnitril und Methacrylnitril) und/oder (Meth)Acrylsäure-(C_1 - C_8)-Alkylester (wie z.B. Methylmethacrylat, n-Butylacrylat, t-Butylacrylat) und/oder Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren (beispielsweise Maleinsäureanhydrid und N-Phenyl-Maleinimid).

30

- 14 -

Bevorzugte Monomere i1) sind ausgewählt aus mindestens einem der Monomere Styrol, α -Methylstyrol und Methylmethacrylat, bevorzugte Monomere i2) sind ausgewählt aus mindestens einem der Monomere Acrylnitril, Maleinsäureanhydrid und Methylmethacrylat.

5

Besonders bevorzugte Monomere sind i1) Styrol und i2) Acrylnitril.

Für die Pfropfpolymerisate B.1 und B.2 geeignete Pfropfgrundlagen ii) sind beispielsweise Dienkautschuke, EP(D)M-Kautschuke, also solche auf Basis Ethylen/Propylen und gegebenenfalls Dien-Monomeren, weiterhin Acrylat-, Polyurethan-, Silikon-, Chloropren- und Ethylen/Vinylacetat-Kautschuke.

10

15

Bevorzugte Pfropfgrundlagen ii) sind Dienkautschuke. Unter Dienkautschuken im Sinne der vorliegenden Erfindung werden Dienkautschuke (z. B. auf Basis Butadien, Isopren etc.) oder Gemische von Dienkautschuken oder Copolymerisate von Dienkautschuken oder deren Gemische mit weiteren copolymerisierbaren Monomeren (z.B. gemäß i1) und i2)), bevorzugt Butadien-Styrol-Copolymere mit vorzugsweise bis zu 30 Gew.-% Styrol, verstanden, mit der Maßgabe, dass die Glasübergangstemperatur der Komponente ii) $<10^{\circ}\text{C}$, vorzugsweise $<0^{\circ}\text{C}$, besonders bevorzugt $<-20^{\circ}\text{C}$ liegt.

20

Besonders bevorzugt ist reiner Polybutadienkautschuk.

Geeignete Acrylatkautschuke gemäß ii) der Polymerisate B.1 und B.2 sind vorzugsweise Polymerisate aus Acrylsäurealkylestern, gegebenenfalls mit bis zu 40 Gew.-%, bezogen auf ii) anderen polymerisierbaren, ethylenisch ungesättigten Monomeren. Zu den bevorzugten polymerisierbaren Acrylsäureestern gehören C_1 - C_8 -Alkylester, beispielsweise Methyl-, Ethyl-, Butyl-, n-Octyl- und 2-Ethylhexylester; Halogenalkylester, vorzugsweise Halogen- C_1 - C_8 -alkyl-ester, wie Chlorethylacrylat sowie Mischungen dieser Monomeren.

25

30

- 15 -

- Zur Vernetzung können Monomere mit mehr als einer polymerisierbaren Doppelbindung copolymerisiert werden. Bevorzugte Beispiele für vernetzende Monomere sind Ester ungesättigter Monocarbonsäuren mit 3 bis 8 C-Atomen und ungesättigter einwertiger Alkohole mit 3 bis 12 C-Atomen, oder gesättigter Polyole mit 2 bis 4 OH-
- 5 Gruppen und 2 bis 20 C-Atomen, wie z.B. Ethylenglykoldimethacrylat, Allylmethacrylat; mehrfach ungesättigte heterocyclische Verbindungen, wie z.B. Trivinyl- und Triallylcyanurat; polyfunktionelle Vinylverbindungen, wie Di- und Trivinylbenzole; aber auch Triallylphosphat und Diallylphthalat.
- 10 Bevorzugte vernetzende Monomere sind Allylmethacrylat, Ethylenglykoldimethacrylat, Diallylphthalat und heterocyclische Verbindungen, die mindestens 3 ethylenisch ungesättigte Gruppen aufweisen.
- Besonders bevorzugte vernetzende Monomere sind die cyclischen Monomere Triallylcyanurat, Triallylisocyanurat, Triacryloylhexahydro-s-triazin, Triallylbenzole. Die
- 15 Menge der vernetzten Monomere beträgt vorzugsweise 0,02 bis 5, insbesondere 0,05 bis 2 Gew.-%, bezogen auf die Pfpfgrundlage ii).
- Bei cyclischen vernetzenden Monomeren mit mindestens 3 ethylenisch ungesättigten
- 20 Gruppen ist es vorteilhaft, die Menge auf unter 1 Gew.-% der Pfpfgrundlage ii) zu beschränken.
- Bevorzugte "andere" polymerisierbare, ethylenisch ungesättigte Monomere, die neben den Acrylsäureestern gegebenenfalls zur Herstellung der Pfpfgrundlage ii) dienen können, sind z. B. Acrylnitril, Styrol, α -Methylstyrol, Acrylamide, Vinyl-C₁-C₆-alkylether, Methylmethacrylat, Butadien. Bevorzugte Acrylatkautschuke als
- 25 Pfpfgrundlage ii) sind Emulsionspolymerisate, die einen Gelgehalt von mindestens 60 Gew.-% aufweisen.

- 16 -

Weitere geeignete Pfropfgrundlagen gemäß ii) sind Silikonkautschuke mit pfropfaktiven Stellen, wie sie in den DE-OS 3 704 657, DE-OS 3 704 655, DE-OS 3 631 540 und DE-OS 3 631 539 beschrieben werden.

- 5 Der Gelgehalt der Pfropfgrundlage ii) wird bei 25°C in einem geeigneten Lösungsmittel bestimmt (M. Hoffmann, H. Krömer, R. Kuhn, Polymeranalytik I und II, Georg Thieme-Verlag, Stuttgart 1977).

- 10 Die mittlere Teilchengröße d_{50} ist der Durchmesser, oberhalb und unterhalb dessen jeweils 50 Gew.-% der Teilchen liegen. Er kann mittels Ultrazentrifugennmessung (W. Scholtan, H. Lange, Kolloid-Z. und Z. Polymere 250 (1972), 782-796) bestimmt werden.

- 15 Besonders bevorzugte Polymerisate B.1 und B.2 sind z.B. ABS-Polymerisate (vorzugsweise durch Emulsionspolymerisation erzeugt), wie sie z. B. in der DE-A 2 035 390 (=US-A 3 644 574) oder in der DE-A 2 248 242 (=GB-PS 1 409 275) bzw. in Ullmann, Enzyklopädie der Technischen Chemie, Bd. 19 (1980), S. 280 ff. beschrieben sind. Der Gelanteil der Pfropfgrundlage ii) beträgt im allgemeinen mindestens 30 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 40 Gew.-% (in Toluol gemessen).

20

Die Pfropfcopolymerisate B.1 und B.2 werden durch radikalische Polymerisation in der Regel und vorzugsweise durch Emulsionspolymerisation hergestellt.

- 25 Dabei wird das erfindungsgemäß einzusetzende Pfropfcopolymerisat B.1 durch Redox-Initiierung hergestellt.

- 30 Erfindungsgemäß geeignete Redoxinitiatorsysteme bestehen in der Regel aus einem organischen Oxidationsmittel und einem Reduktionsmittel, wobei im Reaktionsmedium zusätzlich Schwermetallionen vorhanden sein können; vorzugsweise wird ohne Schwermetallionen gearbeitet.

- 17 -

Erfindungsgemäß geeignete organische Oxidationsmittel sind beispielsweise und bevorzugt Di-tert.-butylperoxid, Cumolhydroperoxid, Dicyclohexylpercarbonat, tert.-Butylhydroperoxid, p-Menthanhydroperoxid oder Mischungen hieraus, besonders bevorzugt sind Cumolhydroperoxid und tert.-Butylhydroperoxid. H₂O₂ kann ebenfalls verwendet werden.

Erfindungsgemäß einsetzbare Reduktionsmittel sind vorzugsweise wasserlösliche Verbindungen mit reduzierender Wirkung, vorzugsweise ausgewählt aus der Gruppe der Salze von Sulfinsäure, Salze der schwefligen Säure, Natriumdithionit, Natriumsulfit, Natriumhyposulfit, Natriumhydrogensulfit, Ascorbinsäure sowie deren Salze, Rongalit®C (Natriumformaldehydsulfoxylat), Mono- und Dihydroxyaceton, Zucker (z.B. Glucose oder Dextrose). Prinzipiell möglich ist auch die Verwendung von z.B. Eisen(II)-salzen wie z.B. Eisen(II)-sulfat, Zinn(II)-salzen wie z.B. Zinn(II)-chlorid, Titan(III)-salzen wie Titan(III)-sulfat; vorzugsweise werden jedoch keine derartigen Metallsalze verwendet.

Besonders bevorzugte Reduktionsmittel sind Dextrose, Ascorbinsäure(salze) oder Natriumformaldehydsulfoxylat (Rongalit®C).

Das erfindungsgemäß einzusetzende Ppropfcopolymerisat B.2 wird durch Persulfat-Initiierung hergestellt.

Erfindungsgemäß geeignete Persulfat-Verbindungen sind Ammoniumperoxodisulfat, Kaliumperoxodisulfat, Natriumperoxodisulfat oder Mischungen daraus.

Herstellung der cogefällten Ppropfpolymerisate B.1 und B.2

Die Herstellung der erfindungsgemäß einzusetzenden cogefällten Ppropfpolymerisate erfolgt durch Abmischung mindestens eines unter Verwendung von mindestens einer Persulfatverbindung als Initiator hergestellten Ppropfpolymerisats B.2 in Latex-Form mit mindestens einem unter Verwendung von mindestens einem Redox-System als

Initiator hergestellten Pfropfpolymerisat B.1 in Latex-Form, homogener Vermischung der Latices und Aufarbeitung des resultierenden Pfropfpolymerisatmischproduktes unter Verwendung bekannter Verfahren.

- 5 Beispiele für geeignete Aufbereitungsverfahren sind z.B. die Ausfällung der Pfropfpolymerisat-Mischung durch Einwirkung von wässrigen Elektrolytlösungen wie z.B. Lösungen von Salzen (z.B. Magnesiumsulfat, Calciumchlorid, Natriumchlorid), Lösungen von Säuren (z.B. Schwefelsäure, Essigsäure) oder deren Mischungen, Ausfällung durch Einwirkung von Kälte (Gefrierkoagulation) oder direkte Gewinnung des Cofällproduktes aus dem Latex durch Sprühtrocknung.
- 10

Im Falle der Ausfällung der Pfropfpolymerisat-Mischung schließen sich üblicherweise ein Waschschrift (vorzugsweise mit Wasser) und ein Trockenschritt (z.B. in einem Fließbettrockner oder einem Stromtrockner) an.

15

- Ein bevorzugtes Aufbereitungsverfahren nach der Ausfällung stellt die in EP-A 867 463 beschriebene Abmischung des feuchten Pfropfpolymerisatgemisches mit einer Thermoplastharz-Schmelze in einem Knetreaktor dar. Einzelheiten dieses Aufbereitungsverfahrens sind ebenfalls in der EP-A 867 463 beschrieben. Die nach diesem Aufbereitungsverfahren erhaltenen Mischungen aus Pfropfpolymerisat-Mischung und Thermoplastharz B.3 (insbesondere Styrol/Acrylnitril-Copolymerisat) werden vorzugsweise zur Herstellung der erfindungsgemäßen Formmassen eingesetzt.
- 20

- 25 Geeignete Thermoplastharze gemäß Komponente B.3 sind Vinyl(co)Polymerisate. Sie sind harzartig, thermoplastisch und kautschukfrei. Es handelt sich dabei um Polymerisate von mindestens einem Monomeren aus der Gruppe der Vinylaromaten, Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile), (Meth)Acrylsäure-(C₁-C₈)-Alkylester, ungesättigte Carbonsäuren sowie Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren. Insbesondere geeignet sind (Co)Polymerisate aus
- 30

B.3.1 50 bis 99, vorzugsweise 60 bis 80 Gew.-Teilen Vinylaromaten und/oder kern-substituierten Vinylaromaten wie beispielsweise Styrol, α -Methylstyrol, p-Methylstyrol, p-Chlorstyrol) und/oder (Meth)Acrylsäure-(C₁-C₈)-Alkylester wie z.B. Methylmethacrylat, Ethylmethacrylat), und

5

B.3.2 1 bis 50, vorzugsweise 20 bis 40 Gew.-Teilen Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile) wie Acrylnitril und Methacrylnitril und/oder (Meth)Acrylsäure-(C₁-C₈)-Alkylester (wie z.B. Methylmethacrylat, n-Butylacrylat, t-Butylacrylat) und/oder ungesättigte Carbonsäuren (wie Maleinsäure) und/oder Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren (beispielsweise Maleinsäureanhydrid und N-Phenyl-Maleinimid).

10

Besonders bevorzugt ist das Copolymerisat aus Styrol und Acrylnitril.

15 Die Pffropfpolymerisate B.1 und B.2 können in beliebigen Mischungsverhältnissen cogefällt werden. Vorzugsweise beträgt das Gew.-Verhältnis B.1:B.2 95:5 bis 5:95, besonders bevorzugt 90:10 bis 25:75 und ganz besonders bevorzugt 85:15 bis 50:50.

20 Besonders bevorzugt liegt das cogefällte Pffropfpolymerisat B in dispergierter Form in einer Matrix aus Vinyl(co)polymerisat B.3, vorzugsweise in einer Styrol/Acrylnitril-Copolymerisat-Matrix, vor. Dabei beträgt das Gew.-Verhältnis B:B.3 90:10 bis 10:90, vorzugsweise 80:20 bis 30:70 und besonders bevorzugt 70:30 bis 40:60.

25 Prinzipiell ist es auch möglich, die Thermoplastharzkomponente A), die durch Co-fällung von B.1) und B.2) erhaltene Pffropfpolymerkomponente und die Vinyl(co)polymerisatkomponente B.3) sowie gegebenenfalls Additive in einem Compoundierschritt auf üblichen Compoundieraggregaten miteinander zu vermischen und dann mit den weiteren Komponenten, wie üblich zu mischen und weiter zu ver-
30 arbeiten. Es ist weiterhin auch möglich, die Komponente B und B 3 separat mit den übrigen Komponenten und Additiven zu mischen und weiter zu verarbeiten.

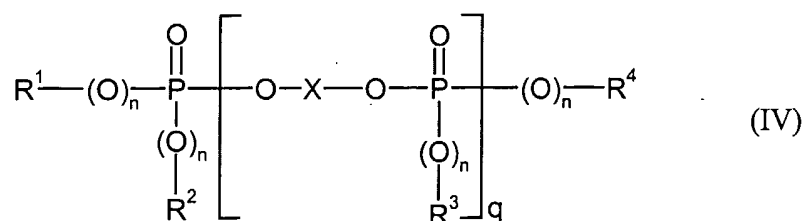
Komponente C

Die Zusammensetzungen können durch Zusatz geeigneter Additive flammwidrig
 5 ausgerüstet sein. Beispielhaft seien als Flammenschutzmittel Halogenverbindungen, beispielsweise auf Basis von Chlor und Brom, Phosphor enthaltende Verbindungen sowie Silizium-Verbindungen, insbesondere Silikonverbindungen genannt.

Flammenschutzmittel werden bevorzugt in einer Menge von 1 bis 18, besonders bevor-
 10 zugt 2 bis 16 Gew.-Teilen eingesetzt.

Bevorzugt enthalten die Zusammensetzungen phosphorhaltige Flammenschutzmittel aus den Gruppen der monomeren und oligomeren Phosphor- und Phosphonsäure-
 ester, Phosphonatamine und Phosphazene, wobei auch Mischungen von mehreren
 15 Komponenten ausgewählt aus einer oder verschiedenen dieser Gruppen als Flamm-
 schutzmittel zum Einsatz kommen können. Auch andere hier nicht speziell erwähnte Phosphorverbindungen können alleine oder in beliebiger Kombination mit anderen Flamm-
 schutzmitteln eingesetzt werden.

20 Bevorzugte Mono- und oligomere Phosphor- bzw. Phosphonsäureester sind Phos-
 phorverbindungen der allgemeinen Formel (IV)



worin

25

R^1 , R^2 , R^3 und R^4 , unabhängig voneinander jeweils gegebenenfalls halogeniertes C_1 bis C_8 -Alkyl, jeweils gegebenenfalls durch Alkyl, vorzugsweise C_1 bis C_4 -Al-

- 21 -

kyl, und/oder Halogen, vorzugsweise Chlor, Brom, substituiertes C₅ bis C₆-Cycloalkyl, C₆ bis C₂₀-Aryl oder C₇ bis C₁₂-Aralkyl,

n unabhängig voneinander, 0 oder 1,

5

q 0 bis 30 und

X einen ein- oder mehrkernigen aromatischen Rest mit 6 bis 30 C-Atomen, oder einen linearen oder verzweigten aliphatischen Rest mit 2 bis 30 C-Atomen, der OH-substituiert sein und bis zu 8 Etherbindungen enthalten kann, bedeuten.

10

Bevorzugt stehen R¹, R², R³ und R⁴ unabhängig voneinander für C₁ bis C₄-Alkyl, Phenyl, Naphthyl oder Phenyl-C₁-C₄-alkyl. Die aromatischen Gruppen R¹, R², R³ und R⁴ können ihrerseits mit Halogen- und/oder Alkylgruppen, vorzugsweise Chlor, Brom und/oder C₁ bis C₄-Alkyl substituiert sein. Besonders bevorzugte Aryl-Reste sind Kresyl, Phenyl, Xylenyl, Propylphenyl oder Butylphenyl sowie die entsprechenden bromierten und chlorierten Derivate davon.

15

X in der Formel (IV) bedeutet bevorzugt einen ein- oder mehrkernigen aromatischen Rest mit 6 bis 30 C-Atomen. Dieser leitet sich bevorzugt von Diphenolen der Formel (I) ab.

20

n in der Formel (IV) kann, unabhängig voneinander, 0 oder 1 sein, vorzugsweise ist n gleich 1.

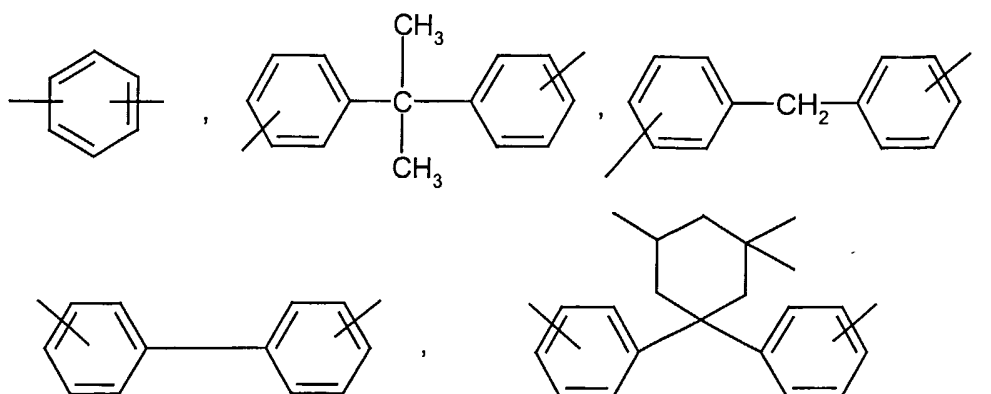
25

q steht für Werte von 0 bis 30, bevorzugt 0,3 bis 20, besonders bevorzugt 0,5 bis 10, insbesondere 0,5 bis 6, ganz besonders bevorzugt 0,6 bis 2.

X steht besonders bevorzugt für

30

- 22 -



oder deren chlorierte oder bromierte Derivate, insbesondere leitet sich X von Resorcin, Hydrochinon, Bisphenol A oder Diphenylphenol ab. Besonders bevorzugt leitet sich X von Bisphenol A ab.

Als erfindungsgemäße Komponente C können auch Mischungen verschiedener Phosphate eingesetzt werden.

10 Phosphorverbindungen der Formel (IV) sind insbesondere Tributylphosphat, Triphenylphosphat, Trikresylphosphat, Diphenylkresylphosphat, Diphenyloctylphosphat, Diphenyl-2-ethylkresylphosphat, Tri-(isopropylphenyl)-phosphat, Resorcin verbrücktes-Diphosphat und Bisphenol A verbrücktes-Diphosphat.

15 Die Phosphorverbindungen gemäß Komponente C sind bekannt (vgl. z.B. EP-A 0 363 608, EP-A 0 640 655) oder lassen sich nach bekannten Methoden in analoger Weise herstellen (z.B. Ullmanns Enzyklopädie der technischen Chemie, Bd. 18, S. 301 ff. 1979; Houben-Weyl, Methoden der organischen Chemie, Bd. 12/1, S. 43; Beilstein Bd. 6, S. 177).

20

Die mittleren q-Werte können bestimmt werden, indem mittels geeigneter Methode (Gaschromatographie (GC), High Pressure Liquid Chromatography (HPLC), Gelpermeationschromatographie (GPC)) die Zusammensetzung der Phosphat-Mischung

- 23 -

(Molekulargewichtsverteilung) bestimmt wird und daraus die Mittelwerte für q berechnet werden.

5 Weiterhin können Phosphonatamine und Phosphazene, wie sie in WO 00/00541 und WO 01/18105 beschrieben sind, als Flammschutzmittel eingesetzt werden.

Die Flammschutzmittel können allein oder in beliebiger Mischung untereinander oder in Mischung mit anderen Flammschutzmitteln eingesetzt werden.

10 Zusammensetzungen, die Flammschutzmittel enthalten, weisen bevorzugt folgende Zusammensetzung auf:

Komponente A): 40 bis 99, besonders bevorzugt 45 bis 95, insbesondere 55 bis 85 Gew.-Teile

15 Komponente B): 0,5 bis 60, besonders bevorzugt 1 bis 40, insbesondere 3 bis 35 Gew.-Teile

Komponente C): 0,5 bis 20, besonders bevorzugt 1 bis 18, insbesondere 2 bis 16 Gew.-Teile.

20 **Komponente D**

Die Flammschutzmittel entsprechend Komponente C werden oft in Kombination mit sogenannten Antidrippingmitteln verwendet, welche die Neigung des Materials zum brennenden Abtropfen im Brandfall verringern. Beispielhaft seien hier Verbindungen der Substanzklassen der fluorierten Polyolefine, der Silikone sowie Aramidfasern genannt. Diese können auch in den erfindungsgemäßen Zusammensetzungen zum Einsatz kommen. Bevorzugt werden fluorierte Polyolefine als Antidrippingmittel eingesetzt.

25

- 24 -

Fluorierte Polyolefine sind bekannt und beispielsweise in der EP-A 0 640 655 beschrieben. Sie werden zum Beispiel unter der Marke Teflon® 30N von DuPont vertrieben.

- 5 Die fluorierten Polyolefine können sowohl in reiner Form als auch in Form einer koagulierten Mischung von Emulsionen der fluorierten Polyolefine mit Emulsionen von Pfropfpolymerisaten (Komponente B.1 und B.2) oder mit einer Emulsion eines Copolymerisats, vorzugsweise auf Styrol/Acrylnitril-Basis eingesetzt werden, wobei das fluorierte Polyolefin als Emulsion mit einer Emulsion des Pfropfpolymerisats oder
10 des Copolymerisats gemischt und anschließend koaguliert wird.

- Weiterhin können die fluorierten Polyolefine als Präcompound mit dem Pfropfpolymerisat (Komponente B.1 oder B.2) oder einem Copolymerisat gemäß B.3, vorzugsweise auf Styrol/Acrylnitril-Basis, eingesetzt werden. Die fluorierten Polyolefine
15 werden als Pulver mit einem Pulver oder Granulat des Pfropfpolymerisats oder Copolymerisats vermischt und in der Schmelze im allgemeinen bei Temperaturen von 200 bis 330°C in üblichen Aggregaten wie Innenknetern, Extrudern oder Doppelwellenschnecken compoundiert.

- 20 Die fluorierten Polyolefine können auch in Form eines Masterbatches eingesetzt werden, der durch Emulsionspolymerisation mindestens eines monoethylenisch ungesättigten Monomers in Gegenwart einer wässrigen Dispersion des fluorierten Polyolefins hergestellt wird. Bevorzugte Monomerkomponenten sind Styrol, Acrylnitril und deren Gemische. Das Polymerisat wird nach saurer Fällung und nachfolgender
25 Trocknung als rieselfähiges Pulver eingesetzt.

Die Koagulate, Präcompounds oder Masterbatches besitzen üblicherweise Feststoffgehalte an fluoriertem Polyolefin von 5 bis 95 Gew.-%, vorzugsweise 7 bis 60 Gew.-%.

- 25 -

Die Antidripping-Mittel können in der erfindungsgemäßen Zusammensetzung in einer Menge von vorzugsweise 0,01 bis 3 Gew.-Teilen, besonders bevorzugt 0,05 bis 2 Gew.-Teilen und in am meisten bevorzugter Weise 0,1 bis 0,8 Gew.-Teilen enthalten sein.

5

Komponente E (Weitere Zusätze)

Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen können weiterhin wenigstens eines der üblichen Additive, wie Gleit- und Entformungsmittel, beispielsweise Pentaerythrit-tetrastearat, Nukleiermittel, Antistatika, Stabilisatoren, Füll- und Verstärkungsstoffe sowie Farbstoffe und Pigmente enthalten.

10

15

Alle Gewichtsteil-Angaben in dieser Anmeldung sind so normiert, dass die Summe der Gewichtsteile der Komponenten A) bis E) in der Zusammensetzung gleich 100 gesetzt wird.

20

Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen werden hergestellt, indem man die jeweiligen Bestandteile in bekannter Weise vermischt und bei Temperaturen von 200°C bis 300°C in üblichen Aggregaten wie Innenknetern, Extrudern und Doppelwellenschnecken schmelzcompoundiert und schmelzextrudiert.

25

Die Vermischung der einzelnen Bestandteile kann in bekannter Weise sowohl sukzessive als auch simultan erfolgen, und zwar sowohl bei etwa 20°C (Raumtemperatur) als auch bei höherer Temperatur.

30

Die erfindungsgemäßen Formmassen können zur Herstellung von Formteilen jeder Art verwendet werden. Diese können durch Spritzguss, Extrusion und Blasformverfahren hergestellt werden. Eine weitere Form der Verarbeitung ist die Herstellung von Formteilen durch Tiefziehen aus zuvor hergestellten Platten oder Folien und das Verfahren der Folienhinterspritzung (IMD).

- 26 -

Beispiele für solche Formteile sind Folien, Profile, Gehäuseteile jeder Art, z.B. für Haushaltsgeräte wie Saftpressen, Kaffeemaschinen, Mixer; für Büromaschinen wie Monitore, Drucker, Kopierer; Automobilaußen- und -innenteilen; Platten, Rohre, Elektroinstallationskanäle, Fenster, Türen und weitere Profile für den Bausektor (Innenausbau und Außenanwendungen) sowie Elektro- und Elektronikteile wie Schalter, Stecker und Steckdosen.

Insbesondere können die erfindungsgemäßen Formmassen beispielsweise auch zur Herstellung von folgenden Formteilen verwendet werden:

Innenausbauteile für Schienenfahrzeuge, Schiffe, Flugzeuge, Busse und andere Kraftfahrzeuge, Karosserieaußenteile im Kfz-Bereich, Gehäuse von Kleintransformatoren enthaltenden Elektrogeräten, Gehäuse für Geräte zur Informationsverarbeitung und -Übermittlung, Gehäuse und Verkleidung von medizinischen Geräten, Massagegeräte und Gehäuse dafür, Spielfahrzeuge für Kinder, flächige Wandelemente, Gehäuse für Sicherheitseinrichtungen, wärmeisolierte Transportbehältnisse, Vorrichtung zur Haltung oder Versorgung von Kleintieren, Formteile für Sanitär- und Badausrüstungen, Abdeckgitter für Lüfteröffnungen, Formteile für Garten- und Gerätehäuser, Gehäuse für Gartengeräte.

Die folgenden Beispiele dienen der weiteren Erläuterung der Erfindung.

Gegenstand der Erfindung sind daher auch ein Verfahren zu Herstellung der Zusammensetzungen sowie deren Verwendung zur Herstellung von Formteilen und die Formteile selbst.

Beispiele

In den folgenden Beispielen sind die angegebenen Teile immer Gewichtsteile und die angegebenen % immer Gew.-%, wenn nicht anders angegeben.

5

Eingesetzte Komponenten:

Komponente A1

10 Lineares Polycarbonat auf Basis Bisphenol A mit einer relativen Lösungsviskosität von 1,28, gemessen in Methylenchlorid bei 25°C und in einer Konzentration von 0,5 g/100 ml.

Komponente A2

15

Lineares Polycarbonat auf Basis Bisphenol A mit einer relativen Lösungsviskosität von 1,24 gemessen in Methylenchlorid bei 25°C und einer Konzentration von 0,5 g/100 ml.

20

Komponente B1.1 (Vergleichsmaterial)

25

Pfropfpolymerisat hergestellt durch radikalische Emulsionspolymerisation (Verwendung eines Redox-Initiatorsystems aus tert.-Butylhydroperoxid und Natriumascorbat) von 40 Gew.-Teilen Styrol und Acrylnitril im Gew.-Verhältnis 73:27 in Gegenwart von 60 Gew.-Teilen eines teilchenförmigen vernetzten Polybutadienkautschuklatex (mittlerer Teilchendurchmesser $d_{50} = 345$ nm), Aufarbeitung durch Ausfällung unter Einwirkung einer Magnesiumsulfat/Essigsäure = 1:1-Mischung, Waschen mit Wasser und Trocknen bei 70°C.

30

Komponente B2.1 (Vergleichsmaterial)

Pfropfpolymerisat hergestellt durch radikalische Emulsionspolymerisation (Verwendung eines Persulfat-Initiatorsystems bestehend aus Kaliumperoxodisulfat) von 40 Gew.-Teilen Styrol und Acrylnitril im Gew.-Verhältnis 73:27 in Gegenwart von 60 Gew.-Teilen eines teilchenförmigen vernetzten Polybutadienkautschuklatex (mittlerer Teilchendurchmesser $d_{50} = 345$ nm), Aufarbeitung durch Ausfällung unter Einwirkung einer Magnesiumsulfat/Essigsäure = 1:1-Mischung, Waschen mit Wasser und Trocknen bei 70°C.

Komponente B2.2 (Vergleichsmaterial)

Pfropfpolymerisat hergestellt durch radikalische Emulsionspolymerisation (Verwendung eines Persulfat-Initiatorsystems bestehend aus Kaliumperoxodisulfat) von 25 Gew.-Teilen Styrol und Acrylnitril im Gew.-Verhältnis 73:27 in Gegenwart von 75 Gew.-Teilen eines teilchenförmigen vernetzten Polybutadienkautschuklatex (mittlerer Teilchendurchmesser $d_{50} = 345$ nm), Aufarbeitung durch Ausfällung unter Einwirkung einer Magnesiumsulfat/Essigsäure = 1:1-Mischung, Waschen mit Wasser und Trocknen bei 70°C.

Cofäll-Komponente B1.1/ B2.1 = 75:25 (erfindungsgemäß)

75 Gew.-Teile (bezogen auf Feststoff) des in Latexform vorliegenden Pfropfpolymerisats B1.1 und 25 Gew.-Teile (bezogen auf Feststoff) des in Latexform vorliegenden Pfropfpolymerisats B2.1 werden homogen vermischt, anschließend wird die Pfropfpolymerlatexmischung unter Einwirkung einer Magnesiumsulfat/Essigsäure = 1:1-Mischung ausgefällt. Nach dem Waschen mit Wasser wird bei 70°C getrocknet.

Cofäll-Komponente B1.1/B2.1 = 50:50 (erfindungsgemäß)

50 Gew.-Teile (bezogen auf Feststoff) des in Latexform vorliegenden Ppropfpolymerisats B1.1 und 50 Gew.-Teile (bezogen auf Feststoff) des in Latexform vorliegenden Ppropfpolymerisats B2.1 werden homogen vermischt, anschließend wird die
5 Ppropfpolymerlatexmischung unter Einwirkung einer Magnesiumsulfat/Essigsäure = 1:1-Mischung ausgefällt. Nach dem Waschen mit Wasser wird bei 70°C getrocknet.

Cofäll-Komponente B1.1/B2.2 = 75:25 (erfindungsgemäß)

10

75 Gew.-Teile (bezogen auf Feststoff) des in Latexform vorliegenden Ppropfpolymerisats B1.1 und 25 Gew.-Teile (bezogen auf Feststoff) des in Latexform vorliegenden Ppropfpolymerisats B2.2 werden homogen vermischt, anschließend wird die Ppropfpolymerlatexmischung unter Einwirkung einer Magnesiumsulfat/Essigsäure =
15 1:1-Mischung ausgefällt. Nach dem Waschen mit Wasser wird bei 70°C getrocknet.

Komponente B3

Durch radikalische Lösungspolymerisation hergestelltes Styrol/Acrylnitril-Copolymerisat mit einem Styrol/Acrylnitril-Gew.-Verhältnis von 72:28 und einer
20 Grenzviskosität von 0,55 dl/g (Messung in Dimethylformamid bei 20°C).

Gemisch aus Komponente B1.1 und Komponente B3

(B1.1-B3, Vergleichsmaterial)

25

50 Gew.-Teile (bezogen auf Ppropfpolymergehalt) nach Ausfällung und Waschen vorliegende wasserfeuchte Komponente B1.1 und 50 Gew.-Teile (bezogen auf Polymergehalt B3) in Schmelzform vorliegende Komponente B3 werden gemäß EP-A 867 463, Beispiel 1, in einem Knetreaktor vermischt.

30

- 30 -

Gemisch aus Cofäll-Komponente B1.1/B2.1 und Komponente B3

(B1.1/B2.1-B3, erfindungsgemäß)

5 50 Gew.-Teile (bezogen auf Pfropfpolymergehalt) nach Ausfällung und Waschen
vorliegende wasserfeuchte Cofäll-Komponente B1.1/B2.1 = 75:25 und
50 Gew.-Teile (bezogen auf Polymergehalt B3) in Schmelzform vorliegende
Komponente B3 werden gemäß EP-A 867 463, Beispiel 1, in einem Knetreaktor
vermischt.

10 **Komponente C1**

Triphenylphosphat: Disflamoll[®] TP, Bayer AG, Leverkusen, Deutschland.

15 **Komponente C2**

Bisphenol A-diphosphat: DVP 506, Great Lakes, UK.

Komponente D

20 Koagulierte Mischung aus 50 Gew.-Teilen SAN-Copolymerisat und 50 Gew.-Teilen
PTFE (Blendex[®] 449, General Electric Plastics).

Komponente E1

25 Pentaerythrittetrastearat

Komponente E2

Phosphitstabilisator

30

Herstellung und Ausprüfung der Formmassen

Das Vermischen der eingesetzten Komponenten mit den üblichen Verarbeitungshilfsmitteln erfolgt auf einem Doppelwellenextruder ZSK 25. Die Formkörper werden auf einer Spritzgießmaschine Typ Arburg 270E bei 260°C hergestellt.

Die Bestimmung der Kerbschlagzähigkeit erfolgt bei Raumtemperatur (a_k^{RT}) oder bei -20°C ($a_k^{-20^\circ C}$) nach ISO 180/1A (Einheit: kJ/m²).

Die thermoplastische Fließfähigkeit MVR (Schmelzvolumenfließrate) wird nach ISO 1133 bestimmt (Einheit: cm³/10 min).

Das Brandverhalten wird nach UL-Subj. 94V an Stäben der Abmessung 127 x 12,7 x 1,6 mm gemessen.

15

Das Spannungsrisssverhalten (ESC-Verhalten) wird an Stäben der Abmessung 80 x 10 x 4 mm untersucht. Als Testmedium wird eine Mischung aus 60 Vol.-% Toluol und 40 Vol.-% Isopropanol verwendet. Die Probekörper werden mittels einer Kreisbogenschablone vorgedehnt (Vordehnung ϵ_x in Prozent) und bei Raumtemperatur im Testmedium gelagert. Das Spannungsrisssverhalten wird über die Rissbildung bzw. den Bruch in Abhängigkeit von der Vordehnung im Testmedium beurteilt.

20

Die Beurteilung der Oberfläche erfolgt visuell an spritzgegossenen Platten der Maße 75 x 50 x 2 mm, wobei die Oberfläche mit Hilfe eines Mikroskops begutachtet wird. Die Oberflächenqualität lässt sich anschaulich anhand der Fig. 1 und 2 erkennen. Fig. 1 zeigt eine Oberfläche, die die Beurteilung + repräsentiert, Fig. 2 die Beurteilung --

25

- 32 -

Folgende Klassifizierung wird benutzt:

- 5 ++ Sehr gute Oberflächenqualität, minimale Anzahl von kleinen Fehlstellen, keinerlei große Fehlstellen
- + Gute Oberflächenqualität, geringe Anzahl von kleinen Fehlstellen, minimale Anzahl von großen Fehlstellen
- 10 o Mittlere, d.h. noch akzeptable Oberflächenqualität, geringe Anzahl von kleinen Fehlstellen und geringe Anzahl von großen Fehlstellen
- Schlechte Oberflächenqualität, hohe Anzahl von kleinen Fehlstellen, deutlicher Anteil von großen Fehlstellen.
- 15 -- Sehr schlechte Oberflächenqualität, sehr hohe Anzahl von kleinen und großen Fehlstellen.

20 Fehlstellen im Sinne der vorliegenden Erfindungen sind jegliche Abweichungen von einer ebenen und glatten Oberfläche, beispielsweise Vertiefungen (Löcher) oder Erhebungen, rauhe Oberfläche.

Tabelle 1

Zusammensetzungen und Eigenschaften der Formmassen

Komponenten (Gew.-Teile)	1	2	3	4 (Vgl.)	5 (Vgl.)	6 (Vgl.)
A1	43	43	43	43	43	43
B1.1	-	-	-	24	-	-
B2.1	-	-	-	-	24,8	-
B2.2	-	-	-	-	-	19,2
Cofällung B1.1/B2.1 = 75:25	24,2	-	-	-	-	-
Cofällung B1.1/B2.1 = 50:50	-	24,4	-	-	-	-
Cofällung B1.1/B2.2 = 75:25	-	-	22,6	-	-	-
B3	32,8	32,6	34,4	33	32,2	37,8
E1	0,75	0,75	0,75	0,75	0,75	0,75
E2	0,12	0,12	0,12	0,12	0,12	0,12
$a_k^{-20^\circ\text{C}}$ (kJ/m ²)	68	77	69	73	65	16
MVR (cm ³ /10 min)	9,9	12,6	10,8	7,8	17,6	17,2
ESC-Verhalten Bruch bei ϵ_x (%)	2,4	2,4	2,4	2,4	0,4	1,8
Oberfläche	++	+	+	--	0	-

Tabelle 2

Zusammensetzungen und Eigenschaften der Formmassen

Komponenten (Gew.-Teile)	7	8	9	10 (Vgl.)	11 (Vgl.)	12 (Vgl.)
A1	58	58	58	58	58	58
B1.1	-	-	-	18	-	-
B2.1	-	-	-	-	18,6	-
B2.2	-	-	-	-	-	14,4
Cofällung B1.1/B2.1 = 75:25	18,2	-	-	-	-	-
Cofällung B1.1/B2.1 = 50:50	-	18,3	-	-	-	-
Cofällung B1.1/B2.2 = 75:25	-	-	16,9	-	-	-
B3	23,8	23,7	25,1	24	23,4	27,6
E1	0,75	0,75	0,75	0,75	0,75	0,75
E2	0,12	0,12	0,12	0,12	0,12	0,12
$a_k^{-20^\circ\text{C}}$ (kJ/m ²)	93	96	87	87	93	53
MVR (cm ³ /10 min)	11,9	13,4	11,8	9,8	16,6	17,1
ESC-Verhalten Bruch bei ϵ_x (%)	2,4	2,4	2,2	2,4	0,4	0,6
Oberfläche	++	++	+	--	0	-

Tabelle 3

Zusammensetzungen und Eigenschaften der Formmassen enthaltend Flammenschutzmittel

Komponenten (Gew.-Teile)	13	14	15 (Vgl.)	16 (Vgl.)	17 (Vgl.)
A1	52,3	52,3	52,3	52,3	52,3
A2	16,0	16,0	16,0	16,0	16,0
B1.1	-	-	9,3	-	-
B2.1	-	-	-	9,6	-
B2.2	-	-	-	-	7,4
Cofällung B1.1/B2.1 = 75:25	9,4	-	-	-	-
Cofällung B1.1/B2.2 = 75:25	-	8,8	-	-	-
B3	7,5	8,1	7,6	7,3	9,5
C1	3,4	3,4	3,4	3,4	3,4
C2	10,1	10,1	10,1	10,1	10,1
D	0,8	0,8	0,8	0,8	0,8
E1	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4
E2	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1
a_k^{RT} (kJ/m ²)	44	41	47	12	11
MVR (cm ³ /10 min)	22	22	21	25	25
ESC-Verhalten : ε_x (%)	2,0	2,0	2,0	2,0	1,8
UL 94V, 1,5 min	V-0	n.b.	V-0	V-0	n.b.
Nachbrennzeit (s)	4	n.b.	5	3	n.b.
Oberfläche	++	++	o	o	o

n.b. = nicht bestimmt

Tabelle 4

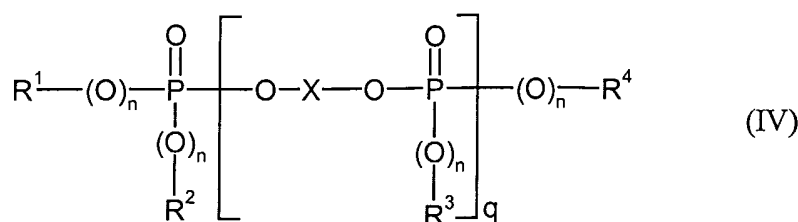
Zusammensetzungen und Eigenschaften der Formmassen

Komponenten (Gew.-Teile)	18	19 (Vgl.)
A1	54	54
A2	4	4
B1.1/B2.1 - B3	36	-
B1.1 - B3	-	36
B3	6	6
E1	0,75	0,75
E2	0,12	0,12
Oberfläche	+ siehe Abb.1	-- siehe Abb.2

Patentansprüche

1. Zusammensetzung enthaltend
 - 5 A) einen Thermoplasten oder eine Mischung von Thermoplasten ausgewählt aus mindestens einem aus der Gruppe der Polycarbonate, Polyestercarbonate, Polyamide, Polyalkylenterephthalate und Polyoxymethylen und
 - 10 B) eine durch Cofällung erhaltene Mischung aus mindestens zwei Pfropfpolymerisaten B.1 und B2.
2. Zusammensetzung gemäß Anspruch 1 enthaltend 10 bis 99,5 Gew.-Teile Komponente A) und 0,5 bis 90 Gew.-Teile Komponente B).
- 15 3. Zusammensetzung gemäß Anspruch 1 enthaltend Flammschutzmittel.
4. Zusammensetzung gemäß Anspruch 1 enthaltend fluorierte Polyolefine.
- 20 5. Zusammensetzung gemäß Anspruch 1 enthaltend Vinyl(co)-polymerisate.
6. Zusammensetzung gemäß Anspruch 3 enthaltend Flammschutzmittel ausgewählt aus mindestens einem aus der Gruppe der mono- und oligomeren Phosphorverbindungen.
- 25 7. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 6 enthaltend Phosphorverbindungen der Formel

- 38 -



worin

5 R^1 , R^2 , R^3 und R^4 , unabhängig voneinander jeweils gegebenenfalls halogeniertes C_1 bis C_8 -Alkyl, jeweils gegebenenfalls durch Alkyl und/oder Halogen, substituiertes C_5 bis C_6 -Cycloalkyl, C_6 bis C_{20} -Aryl oder C_7 bis C_{12} -Aralkyl,

10 n unabhängig voneinander, 0 oder 1,

q 0 bis 30 und

15 X einen ein- oder mehrkernigen aromatischen Rest mit 6 bis 30 C-Atomen, oder einen linearen oder verzweigten aliphatischen Rest mit 2 bis 30 C-Atomen, der OH-substituiert sein und bis zu 8 Etherbindungen enthalten kann, bedeuten.

8. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 5 enthaltend Vinyl(co)polymerisate auf Basis von mindestens einem Monomeren aus der Gruppe der Vinylaromaten, Vinylcyanide, (Meth)Acrylsäure-(C_1 - C_8)-Alkylester, ungesättigte Carbonsäuren sowie Derivate ungesättigter Carbonsäuren.

20

9. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 8 enthaltend Vinyl(co)polymerisate erhältlich aus 50 bis 99 Gew.-Teilen ausgewählt aus mindestens einem Monomer ausgewählt aus Vinylaromaten und (Meth)Acrylsäure-(C_1 - C_8)-Alkylestern und 1 bis 50 Gew.-Teilen mindestens einem Monomer ausgewählt aus Vinylcyaniden und (Meth)Acrylsäure-(C_1 - C_8)-Alkylester.

25

- 39 -

10. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 enthaltend mindestens einen Thermoplasten ausgewählt aus Polyamid und Polycarbonat.
- 5 11. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 enthaltend eine durch Cofällung erhaltene Mischung aus mindestens zwei Pfropfpolymerisaten B.1 und B.2 von jeweils
- 10 i) 5 bis 95, vorzugsweise 30 bis 80 Gew.-%, wenigstens eines Vinylmonomeren auf
- ii) 95 bis 5, vorzugsweise 70 bis 20 Gew.-% einer oder mehrerer Pfropfgrundlagen mit Glasübergangstemperaturen $<10^{\circ}\text{C}$.
- 15 12. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 11, wobei Monomere i) Gemische sind aus
- 20 i1) 50 bis 99 Gew.-Teilen mindestens eines Monomeren ausgewählt aus Vinylaromaten, kernsubstituierten Vinylaromaten und (Meth)Acrylsäure-($\text{C}_1\text{-C}_8$)-Alkylester und
- i2) 1 bis 50 Gew.-Teilen mindestens einem Monomer ausgewählt aus Vinylcyaniden, (Meth)Acrylsäure-($\text{C}_1\text{-C}_8$)-Alkylester und Derivate ungesättigter Carbonsäuren.
- 25 13. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 12, wobei Monomere i1) ausgewählt sind aus mindestens einem der Monomere Styrol, α -Methylstyrol und Methylmethacrylat, Monomere i2) ausgewählt sind aus mindestens einem der Monomere Acrylnitril, Maleinsäureanhydrid und Methylmethacrylat.

- 40 -

14. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 11, wobei die Pfropfgrundlage ausgewählt ist aus mindestens einer aus der Gruppe der Dienkautschuke, EP(D)M-Kautschuke und Acrylatkautschuke.
- 5 15. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 14, wobei die Pfropfgrundlage ausgewählt ist aus mindestens einer aus Polybutadien und Butadien/Styrol-Copolymerisaten.
- 10 16. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1, wobei Komponente B) eine durch Cofällung erhaltene Mischung aus mindestens einem unter Verwendung von mindestens einer Persulfatverbindung als Initiator hergestellten Pfropfpolymerisat mit mindestens einem unter Verwendung von mindestens einem Redox-System als Initiator hergestellten Pfropfpolymerisat ist.
- 15 17. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1, wobei das Gewichtsverhältnis von Pfropfpolymerisat B.1:B.2 95:5 bis 5:95 beträgt.
18. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 17, wobei das Gewichtsverhältnis von Pfropfpolymerisat B.1:B.2 90:10 bis 25:75 beträgt.
- 20 19. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 18, wobei das Gewichtsverhältnis von Pfropfpolymerisat B.1:B.2 85:15 bis 50:50 beträgt.
- 25 20. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 5 enthaltend Vinyl(co)polymerisat B.3 in einem Gewichtsverhältnis von Pfropfpolymerisat B zu Vinyl(co)polymerisat B.3 von 90:10 bis 10:90.
- 30 21. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 20, wobei das Gewichtsverhältnis von B:B.3 80:20 bis 30:70 beträgt.

- 41 -

22. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 enthaltend 0 bis 20 Gew.-Teile Flammenschutzmittel.
23. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 enthaltend 20 bis 98,5 Gew.-Teile A) und 1,5 bis 80 Gew.-Teile B).
24. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 23 enthaltend 30 bis 98 Gew.-Teile A) und 2 bis 70 Gew.-Teile B).
25. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 enthaltend Polymeradditive.
26. Verwendung der Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 zur Herstellung von Formteilen.
27. Formteile erhältlich aus Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 bis 25.

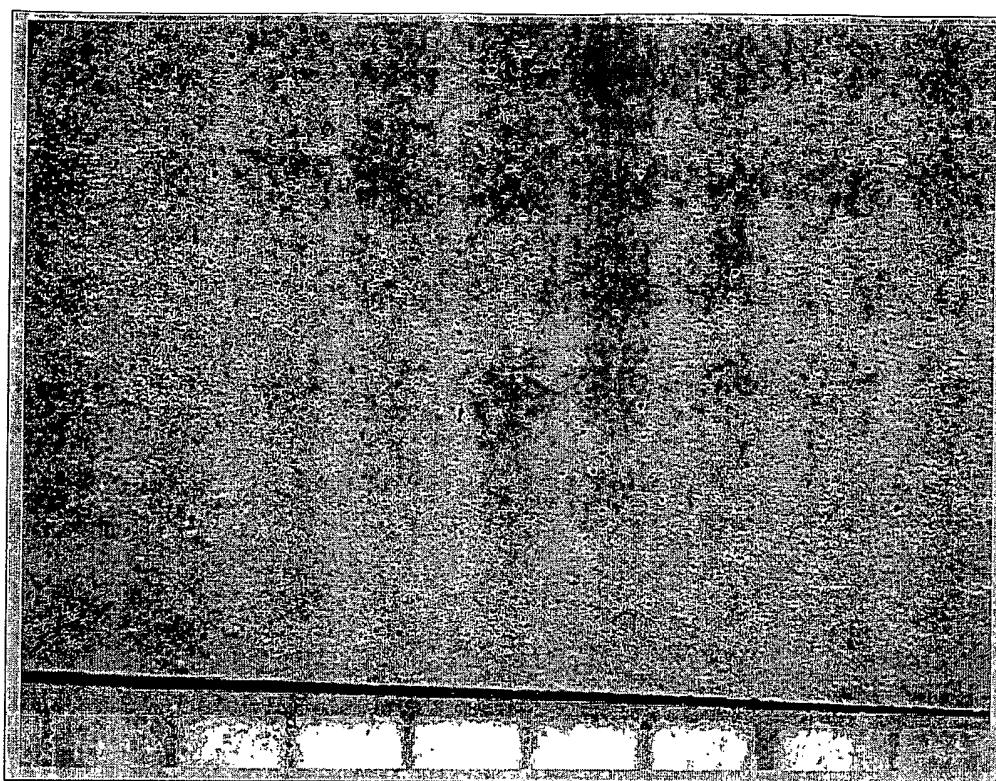


Fig. 1

1 mm

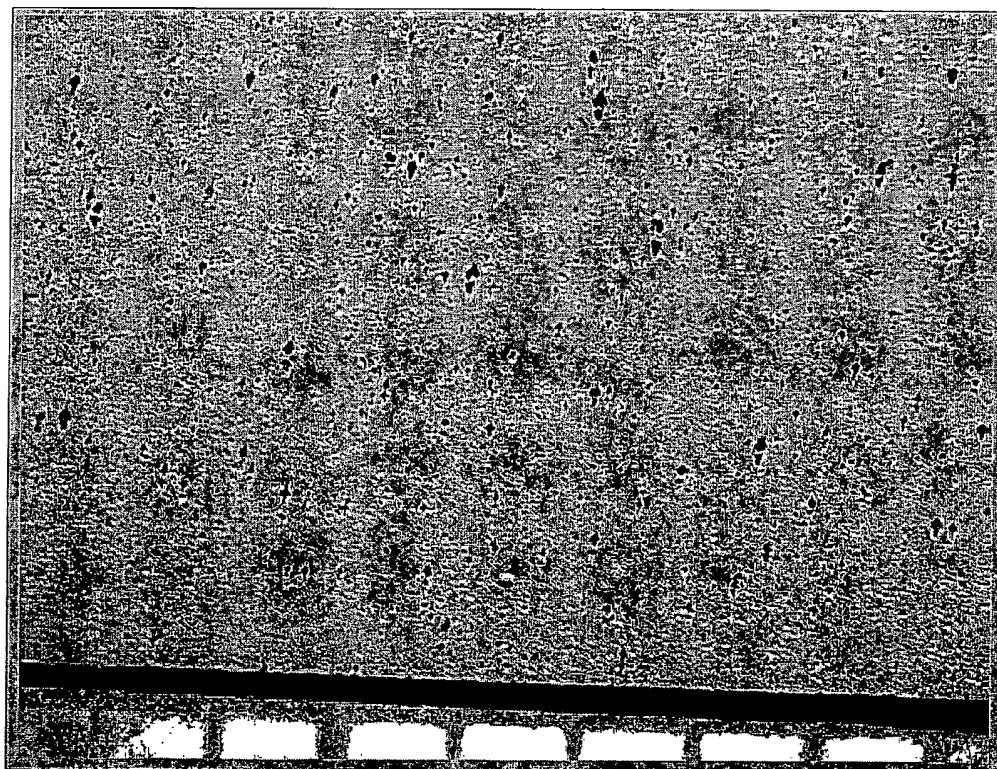


Fig. 2

1 mm

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 03/12808

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C08L101/00 C08L51/04 C08L55/02

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

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)

EPO-Internal

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	EP 1 273 601 A (KANEKAFUCHI CHEMICAL IND) 8 January 2003 (2003-01-08) claims 1-7; table 3 & WO 02/46257 A (MIYATAKE NOBUO ; TAKAKI AKIRA (JP); KANEKAFUCHI CHEMICAL IND (JP)) 13 June 2002 (2002-06-13) -----	1-4, 10-13
X	EP 0 704 488 A (BAYER AG) 3 April 1996 (1996-04-03) page 6, line 1 - line 53; claims 1-10 -----	1-6, 8-15, 17-27
A	WO 00/06648 A (GEN ELECTRIC) 10 February 2000 (2000-02-10) claims 1,8 -----	7



Further documents are listed in the continuation of box C.



Patent family members are listed in annex.

* 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.

G document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

26 April 2004

Date of mailing of the international search report

06/05/2004

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

Decocker, L

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 03/12808

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
EP 1273601	A	08-01-2003	JP	2002173501 A	21-06-2002
			AU	1850702 A	18-06-2002
			CA	2407798 A1	30-09-2002
			EP	1273601 A1	08-01-2003
			CN	1395586 T	05-02-2003
			WO	0246257 A1	13-06-2002
			US	2003092819 A1	15-05-2003

WO 0246257	A	13-06-2002	JP	2002173501 A	21-06-2002
			AU	1850702 A	18-06-2002
			CA	2407798 A1	30-09-2002
			CN	1395586 T	05-02-2003
			EP	1273601 A1	08-01-2003
			WO	0246257 A1	13-06-2002
			US	2003092819 A1	15-05-2003

EP 0704488	A	03-04-1996	DE	4434965 A1	04-04-1996
			EP	0704488 A2	03-04-1996
			US	5679759 A	21-10-1997

WO 0006648	A	10-02-2000	CN	1310747 T	29-08-2001
			EP	1117742 A1	25-07-2001
			JP	2002521547 T	16-07-2002
			WO	0006648 A1	10-02-2000

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 03/12808

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 C08L101/00 C08L51/04 C08L55/02

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

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C08L

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)

EPO-Internal

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
P, X	EP 1 273 601 A (KANEGAFUCHI CHEMICAL IND) 8. Januar 2003 (2003-01-08) Ansprüche 1-7; Tabelle 3 & WO 02/46257 A (MIYATAKE NOBUO ; TAKAKI AKIRA (JP); KANEGAFUCHI CHEMICAL IND (JP)) 13. Juni 2002 (2002-06-13) -----	1-4, 10-13
X	EP 0 704 488 A (BAYER AG) 3. April 1996 (1996-04-03) Seite 6, Zeile 1 - Zeile 53; Ansprüche 1-10 -----	1-6, 8-15, 17-27
A	WO 00/06648 A (GEN ELECTRIC) 10. Februar 2000 (2000-02-10) Ansprüche 1,8 -----	7

☐ 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 erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer 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

G Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

26. April 2004

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

06/05/2004

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

Decocker, L

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 03/12808

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 1273601	A	08-01-2003	JP 2002173501 A	21-06-2002
			AU 1850702 A	18-06-2002
			CA 2407798 A1	30-09-2002
			EP 1273601 A1	08-01-2003
			CN 1395586 T	05-02-2003
			WO 0246257 A1	13-06-2002
			US 2003092819 A1	15-05-2003
WO 0246257	A	13-06-2002	JP 2002173501 A	21-06-2002
			AU 1850702 A	18-06-2002
			CA 2407798 A1	30-09-2002
			CN 1395586 T	05-02-2003
			EP 1273601 A1	08-01-2003
			WO 0246257 A1	13-06-2002
			US 2003092819 A1	15-05-2003
EP 0704488	A	03-04-1996	DE 4434965 A1	04-04-1996
			EP 0704488 A2	03-04-1996
			US 5679759 A	21-10-1997
WO 0006648	A	10-02-2000	CN 1310747 T	29-08-2001
			EP 1117742 A1	25-07-2001
			JP 2002521547 T	16-07-2002
			WO 0006648 A1	10-02-2000