

(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  
22. Dezember 2016 (22.12.2016)



(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 2016/202399 A1**

(51) Internationale Patentklassifikation:  
*C08L 69/00* (2006.01)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2015/063769

(22) Internationales Anmeldedatum:  
18. Juni 2015 (18.06.2015)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(71) Anmelder: **COVESTRO DEUTSCHLAND AG**  
[DE/DE]; Kaiser-Wilhelm-Allee 60, 51373 Leverkusen  
(DE).

(72) Erfinder: **JUNG, Mathieu**; 252 Wuxing Road, Shanghai  
200031 (CN). **HUFEN, Ralf**; Zum Röltgenhof 25, 47239  
Duisburg (DE). **ECKEL, Thomas**; Pfauenstrasse 51,  
41540 Dormagen (DE).

(74) Anwalt: **LEVPAT**; c/o Covestro AG, Alfred-Nobel-Str.  
10, 40789 Monheim am Rhein (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für  
jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL,

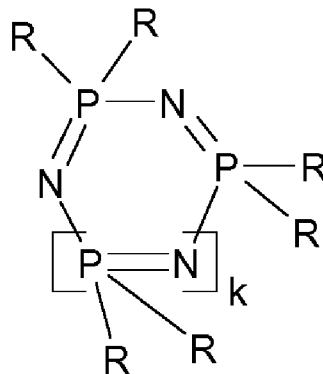
AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW,  
BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK,  
DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM,  
GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP,  
KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME,  
MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ,  
OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA,  
SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM,  
TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM,  
ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für  
jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW,  
GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST,  
SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG,  
KZ, RU, TJ, TM), europäisches (AL, AT, BE, BG, CH,  
CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE,  
IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO,  
RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM,  
GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: FLAME-RETARDANT POLYCARBONATE-POLYESTER COMPOSITIONS

(54) Bezeichnung : FLAMMGESCHÜTZTE POLYCARBONAT-POLYESTER-ZUSAMMENSETZUNGEN



(IV)

(57) Abstract: The invention relates to compositions containing A) at least one polymer selected from the group consisting of aromatic polycarbonate and aromatic polyester carbonate, B) at least one polyester, wherein the polyester is derived from succinic acid and optionally further dicarboxylic acids and aliphatic, cycloaliphatic, araliphatic or aromatic diols, C) at least one cyclic phosphazene of structure (IV), where R is the same or different in each case and represents - an amine group, - possibly halogenated C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-alkyl, - C<sub>1</sub>- to C<sub>8</sub>-alkoxy, - C<sub>5</sub>-C<sub>6</sub>-cycloalkyl possibly substituted by alkyl and/or halogen, - C<sub>6</sub>-C<sub>20</sub>-aryloxy possibly substituted by alkyl and/or halogen and/or hydroxy, - C<sub>7</sub>- to C<sub>12</sub>-aralkyl possibly substituted by alkyl and/or halogen and/or bromine, - a halogen group or - an OH group, and k represents an integer from 1 to 10, D) optionally graft polymer, E) optionally vinyl (co)polymer and/or polyalkylene terephthalate, and F) optional additives, and the use of said flame retardant polycarbonate/polyester composition for producing moulded articles and the moulded articles themselves, wherein the polyester of the composition can be produced or obtained preferably from renewable raw materials.

(57) Zusammenfassung:

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]



WO 2016/202399 A1

**Erklärungen gemäß Regel 4.17:**

— *hinsichtlich der Berechtigung des Anmelders, ein Patent zu beantragen und zu erhalten (Regel 4.17 Ziffer ii)*

**Veröffentlicht:**

— *mit internationalem Recherchenbericht (Artikel 21 Absatz 3)*

---

Zusammensetzungen enthaltend A) mindestens ein Polymer ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus aromatisches Polycarbonat und aromatisches Polyestercarbonat, B) mindestens ein Polyester, wobei der Polyester aus Bernsteinsäure und optional weiteren Dicarbonsäuren sowie aliphatischen, cycloaliphatischen, araliphatischen oder aromatischen Diolen abgeleitet ist, C) mindestens ein cyclisches Phosphazen der Struktur (IV) wobei R jeweils gleich oder verschieden ist und für - einen Aminrest, - jeweils gegebenenfalls halogeniertes C<sub>1</sub>- bis C<sub>8</sub>-Alkyl, - C<sub>1</sub> - bis C<sub>8</sub>- Alkoxy - jeweils gegebenenfalls durch Alkyl und/oder Halogen substituiertes C<sub>5</sub>- bis C<sub>6</sub>- Cycloalkyl, - jeweils gegebenenfalls durch Alkyl und/oder Halogen und/oder Hydroxy- substituiertes, C<sub>6</sub>- bis C<sub>20</sub>-Aryloxy - jeweils gegebenenfalls durch Alkyl und/oder Halogen und/oder Brom, substituiertes C<sub>7</sub>- bis C<sub>12</sub>-Aralkyl - einen Halogen-Rest oder - einen OH-Rest steht, k für ganze Zahl von 1 bis 10 steht, D) optional Pffropfpolymerisat, E) optional Vinyl(Co)Polymerisat und/oder Polyalkylenterephthalat, F) optional Zusatzstoffe sowie die Verwendung dieser flammgeschützten Polycarbonat/Polyester-Zusammensetzungen zur Herstellung von Formkörpern und die Formkörper selbst, wobei der Polyester der Zusammensetzung vorzugsweise aus nachwachsenden Rohstoffen hergestellt oder gewonnen werden kann.

### Flammgeschützte Polycarbonat-Polyester-Zusammensetzungen

Die vorliegende Erfindung betrifft flammgeschützte Polycarbonat/Polyester -Zusammensetzungen mit hoher Reißdehnung und guter Chemikalienbeständigkeit, wobei als Flammschutzmittel Phosphazene eingesetzt werden und wobei der Polyester aus Bernsteinsäure und optional weiteren Dicarbonsäuren sowie aliphatischen, cycloaliphatischen, araliphatischen oder aromatischen Diolen abgeleitet ist sowie die Verwendung dieser flammgeschützten Polycarbonat/Polyester-Zusammensetzungen zur Herstellung von Formkörpern und die Formkörper selbst.

10 JP 7324159 A2 beschreibt eine Polycarbonat-Zusammensetzung mit einem aliphatischen Polyester, die eine verbesserte Fließfähigkeit bei erhaltenen mechanischen Eigenschaften aufweisen. Es werden aber keine Angaben zur Chemikalienbeständigkeit offenbart. Als aliphatische Polyester werden Polyethylensuccinat und Polybutylensuccinat genannt, nicht aber mit Phosphazenen als Flammschutzmittel ausgerüstete Polycarbonat-Zusammensetzungen enthaltend Polyester der  
15 Bernsteinsäure.

JP 2011-016960 A beschreibt eine Zusammensetzung aus Polycarbonat, aliphatischen Polyester und einem Ethylen-Glycidylmethacrylat Copolymer und Styrol polymer. Als bevorzugter aromatischer Polyester wird Polybutylensuccinat genannt. Durch das Copolymer wird die Zähigkeit verbessert. Es  
20 werden aber keine Hinweise auf verbesserte Chemikalienbeständigkeit und Reißdehnung gegeben. Flammgeschützte Zusammensetzungen werden ebenfalls nicht offenbart.

JP 2005-008671 A beschreibt Zusammensetzungen aus Polycarbonat und aliphatischen Polyester-carbonate, die sich durch gute Reißfestigkeit und Verarbeitbarkeit sowie Bioabbaubarkeit auszeichnen. Das Polyester-carbonat wird durch eine Reaktion von oligomeren Butylensuccinat mit Diphenylcarbonat hergestellt. Es werden aber keine Hinweise auf verbesserte Chemikalienbeständigkeit gegeben. Flammgeschützte Zusammensetzungen werden ebenfalls nicht  
25 offenbart.

30 US 2011/009531 A1 beschreibt die Herstellung von aliphatischen Polyestern basierend auf nachwachsenden Rohstoffen und deren möglichen Zusammensetzung mit technischen Kunststoffen. Es werden aber keine Hinweise auf Verbesserungen der Chemikalienbeständigkeit gegeben. Polycarbonat-Zusammensetzungen enthaltend Polyester der Bernsteinsäure und ausgerüstet mit Phosphazenen als Flammschutzmittel werden ebenfalls nicht offenbart.

35 US 2009/209695 A1 beschreibt Mischungen aus Polycarbonat, aliphatischen Polyestern und optional Polymilchsäure. Als Polyester wird besonders Polybutylensuccinat offenbart. Es werden gute

mechanische Eigenschaften, Fließfähigkeit und Wärmeformbeständigkeit beschrieben. Verbesserte Chemikalienbeständigkeit wird aber nicht genannt. Polycarbonat Polycarbonat-Zusammensetzungen enthaltend Polyester der Bernsteinsäure und ausgerüstet mit Phosphazenen als Flammschutzmittel werden ebenfalls nicht offenbart.

5

EP 0707047 A2 beschreibt Formkörper hergestellt aus verzweigten und unverzweigten Bernsteinsäurepolyestern. Es werden jedoch keine Zusammensetzungen enthaltend Polycarbonate als weiteren Thermoplasten und auch keine Informationen zu Reißdehnung und Chemikalienbeständigkeit offenbart.

10

Während Kunststoffe zunehmend Metalle und Holz in vielen Bereichen der Technik und des täglichen Lebens ersetzen und intensiv an der Verbesserung ihrer Eigenschaften sowie an der Erschließung neuer Anwendungsgebiete gearbeitet wird, basiert ein großer Teil dieser Kunststoffe aber auf nicht nachwachsenden Rohstoffen, wie Erdöl, deren Vorräte begrenzt sind.

15 In den vergangenen Jahren wurden daher einerseits Verfahren zum Recycling von Kunststoffen, andererseits Kunststoffe auf Basis nachwachsender Rohstoffe, z.B. Polymilchsäure (PLA) oder Polybutylensuccinat (PBS) entwickelt.

Aus den oben genannten Dokumenten sind auch Zusammensetzungen enthaltend Kunststoffe aus nachwachsenden Rohstoffen und Polycarbonat bekannt.

20

Diese Polycarbonat-Zusammensetzungen müssen für bestimmte Anwendungen flammgeschützt ausgerüstet werden und eine erhöhte Beständigkeit gegen Chemikalien aufweisen. Das Problem dabei ist jedoch, dass sich die mechanischen Eigenschaften durch Zugabe von Flammschutzmitteln, die üblicherweise für Polycarbonat-Zusammensetzungen verwendet werden, verschlechtern.

25

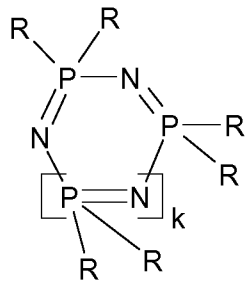
Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist daher die Bereitstellung von flammgeschützten Polycarbonat-Zusammensetzungen mit Polyestern, welche Bernsteinsäure als Monomerbaustein (Dicarbonsäure) enthalten mit einer Kombination aus erhöhter Reißdehnung und exzellenter Chemikalienbeständigkeit.

30 Es wurde nun überraschend gefunden, dass die Zusammensetzungen bzw. Formmassen enthaltend Polycarbonat, Polyester welche Bernsteinsäure als Monomerbaustein (Dicarbonsäure) enthalten und Phosphazene als Flammschutzmittel zu Blends mit den gewünschten Eigenschaften führen.

35

Die Zusammensetzungen der vorliegenden Erfindung enthalten

- A) mindestens ein Polymer ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus aromatisches Polycarbonat und aromatisches Polyestercarbonat,
- B) mindestens ein Polyester, wobei der Polyester aus Bernsteinsäure und optional weiteren Dicarbonsäuren sowie aliphatischen, cycloaliphatischen, araliphatischen oder aromatischen Diolen abgeleitet ist,
- C) mindestens ein cyclisches Phosphazen der Struktur (IV)



(IV),

10

wobei

- R jeweils gleich oder verschieden ist und für
  - einen Aminrest,
  - jeweils gegebenenfalls halogeniertes C<sub>1</sub>- bis C<sub>8</sub>-Alkyl,
  - C<sub>1</sub>- bis C<sub>8</sub>- Alkoxy
  - jeweils gegebenenfalls durch Alkyl und/oder Halogen substituiertes C<sub>5</sub>- bis C<sub>6</sub>- Cycloalkyl,
  - jeweils gegebenenfalls durch Alkyl und/oder Halogen und/oder Hydroxy-substituiertes, C<sub>6</sub>- bis C<sub>20</sub>-Aryloxy
  - jeweils gegebenenfalls durch Alkyl und/oder Halogen und/oder Brom, substituiertes C<sub>7</sub>- bis C<sub>12</sub>-Aralkyl
  - einen Halogen-Rest oder
  - einen OH-Rest steht,

25

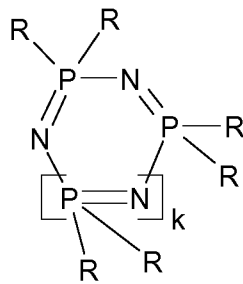
k für 1 oder eine ganze Zahl von 1 bis 10 steht,

- D) optional Ppropfpolymerisat,
- E) optional Vinyl(Co)Polymerisat und/oder Polyalkylenterephthalat,
- F) optional Zusatzstoffe.

30

In einer weiteren Ausführungsform enthaltend die Zusammensetzungen

- A) 40 bis 98 Gew.-Teile, vorzugsweise 45 bis 90 Gew.-Teile, besonders bevorzugt 50 bis 85 Gew.-Teile mindestens eines Polymers ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus aromatisches Polycarbonat und aromatisches Polyestercarbonat,
- 5 B) 1 bis 60 Gew.-Teile, vorzugsweise 3 bis 50 Gew.-Teile, weiter bevorzugt 5 bis 45 Gew.-Teile, Polyester, wobei der Polyester aus Bernsteinsäure und optional weiteren Dicarbonsäuren sowie aliphatischen, cycloaliphatischen, araliphatischen oder aromatischen Diolen abgeleitet ist,
- 10 C) 1 bis 20 Gew.-Teile, vorzugsweise 2 bis 15 Gew.-Teile, weiter bevorzugt 3 bis 12 Gew.-Teile, mindestens eines cyclischen Phosphazens der Struktur (IV),



(IV),

15

wobei

- 18 k für 1 oder eine ganze Zahl von 1 bis 10, vorzugsweise für eine Zahl von 1 bis 8, besonders bevorzugt 1 bis 5, steht,
- 20

mit einem Trimerenanteil (k=1) von 50 bis 98 mol.-%, weiter bevorzugt von 60 bis 95 mol.-%, besonders bevorzugt von 65 bis 90 mol.-%, und ganz besonders bevorzugt von 65 – 85 mol.-%, insbesondere 70 – 85 mol.-%, bezogen auf die Komponente C,

25

und wobei

- R jeweils gleich oder verschieden ist und für einen Aminrest, jeweils, gegebenenfalls halogeniertes, vorzugsweise mit Fluor halogeniertes, C<sub>1</sub>- bis C<sub>8</sub>-Alkyl, vorzugsweise Methyl, Ethyl, Propyl oder Butyl, C<sub>1</sub>- bis C<sub>8</sub>- Alkoxy, vorzugsweise Methoxy, Ethoxy, Propoxy oder Butoxy, jeweils gegebenenfalls durch Alkyl, vorzugsweise C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, und/oder Halogen, vorzugsweise Chlor und/oder Brom, substituiertes C<sub>5</sub>-
- 30

- bis C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, jeweils gegebenenfalls durch Alkyl, vorzugsweise C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, und/oder Halogen, vorzugsweise Chlor, Brom und/oder Hydroxy-substituiertes, C<sub>6</sub>-bis C<sub>20</sub>-Aryloxy, vorzugsweise Phenoxy, Naphthyloxy, jeweils gegebenenfalls durch Alkyl, vorzugsweise C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, und/oder Halogen, vorzugsweise Chlor und/oder Brom, substituiertes C<sub>7</sub>- bis C<sub>12</sub>-Aralkyl, vorzugsweise Phenyl-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, oder einen Halogen-Rest, vorzugsweise Chlor, oder einen OH-Rest steht.
- 5
- D) 0 bis 20 Gew.-Teile, bevorzugt 0 bis 15 Gew.-Teile, besonders bevorzugt 0 bis 10 Gew.-Teile Pffropfpolymerisat,
- 10 E) 0 bis 20 Gew.-Teile, bevorzugt 0 bis 15 Gew.-Teile, besonders bevorzugt 0 bis 10 Gew.-Teile Vinyl(Co)Polymerisat und/oder Polyalkylenterephthalat,
- F) 0 bis 30 Gew.-Teile, bevorzugt 0,1 bis 15,0 Gew.-Teile , besonders bevorzugt 0,2 bis 10, Gew.-Teile Zusatzstoffe,
- 15 und wobei die Summe der Gewichtsteile der Zusammensetzung auf 100 normiert ist.

In einer weiteren bevorzugten Ausführungsform bestehen die Zusammensetzungen nur aus den Komponenten A-F.

Die einzelnen oben genannten Vorzugsbereiche unterschiedlicher Komponenten sind frei miteinander kombinierbar, wobei besonders bevorzugt gleiche Rückzugsebenen miteinander kombiniert werden. In einer weiteren Ausführungsform ist die Zusammensetzung frei von kautschukmodifizierten Pffropfpolymerisaten.

20

In einer weiteren Ausführungsform ist die Zusammensetzung frei von Vinyl(Co)-polymerisaten, insbesondere SAN (Styrol-Acrylnitril) und Polyalkylenterephthalaten.

25 In einer weiteren Ausführungsform ist die Zusammensetzung frei von Vinyl(Co)-polymerisaten und kautschukmodifizierten Pffropfpolymerisaten.

Die bevorzugten Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung können einzeln oder auch miteinander verknüpft ausgeführt werden.

30 Nachfolgend werden bevorzugte Ausführungsformen 1 bis 28 der vorliegenden Erfindung beschrieben:

1. Zusammensetzungen dadurch gekennzeichnet, dass die Anteile der Komponenten
- A) 40 bis 98 Gew.-Teile
  - B) 1 bis 60 Gew.-Teile
  - C) 1 bis 20 Gew.-Teile
- 5 D) 0 bis 20 Gew.-Teile
- E) 0 bis 20 Gew.-Teile
  - F) 0 bis 30 Gew.-Teile
- betragen und wobei die Summe der Gewichtsteile der Zusammensetzung auf 100 normiert ist.
- 10
2. Zusammensetzungen gemäß Ausführungsform 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Anteile der Komponenten
- A) 45 bis 90 Gew.-Teile,
  - B) 3 bis 50 Gew.-Teile
- 15 C) 2 bis 15 Gew.-Teile
- D) 0 bis 15 Gew.-Teile
  - E) 0 bis 15 Gew.-Teile
  - F) 0,1 bis 15,0 Gew.-Teile
- 20 betragen und wobei die Summe der Gewichtsteile der Zusammensetzung auf 100 normiert ist.
3. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass die Anteile der Komponenten
- A) 50 bis 85 Gew.-Teile,
- 25 B) 5 bis 45 Gew.-Teile
- C) 3 bis 12 Gew.-Teile
  - D) 0 bis 10 Gew.-Teile
  - E) 0 bis 10 Gew.-Teile
  - F) 0,2 bis 10 Gew.-Teile
- 30 betragen und wobei die Summe der Gewichtsteile der Zusammensetzung auf 100 normiert ist.
4. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass der Polyester aus aliphatischen oder aromatischen Diolen und als
- 35 Dicarbonsäure nur aus Bernsteinsäure abgeleitet ist.



5. Zusammensetzungen gemäß Ausführungsform 4, dadurch gekennzeichnet, dass die Diol aliphatisch sind.
- 5 6. Zusammensetzungen gemäß Ausführungsform 5, dadurch gekennzeichnet, dass das Diol Butandiol ist.
7. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass k für eine ganze Zahl von 1 bis 8 steht.
- 10 8. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass k für eine ganze Zahl von 1 bis 5 steht.
9. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass der Anteil der Trimeren (k=1) 50 bis 98 mol.-% der Komponente C ist.
- 15 10. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass der Anteil der Trimeren (k=1) 60 bis 95 mol.-% der Komponente C ist.
11. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass der Anteil der Trimeren (k=1) 65 bis 90 mol.-% der Komponente C ist.
- 20 12. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass der Anteil der Trimeren (k=1) 65 bis 85 mol.-% der Komponente C ist.
- 25 13. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass der Anteil der Trimeren (k=1) 75 bis 85 mol.-% der Komponente C ist.
14. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass die Komponente C ausgewählt ist aus der Gruppe, die Propoxyphosphazene, Phenoxyphosphazene, Methylphenoxyphosphazene, Aminophosphazene und Fluoralkylphosphazene umfasst.
- 30 15. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass das gewichtsgemittelte Molekulargewicht  $M_w$  der aromatischen Polycarbonate und Polyestercarbonate Bereich von 15.000 bis 35.000 g/mol liegt, bestimmt
- 35

durch GPC (Gelpermeationschromatographie in Methylenchlorid mit Polycarbonat als Standard).

- 5 16. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass das gewichtsgemittelte Molekulargewicht  $M_w$  der aromatischen Polycarbonate und Polyestercarbonate Bereich von 20.000 bis 33.000 g/mol liegt, bestimmt durch GPC (Gelpermeationschromatographie in Methylenchlorid mit Polycarbonat als Standard).
- 10 17. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass das gewichtsgemittelte Molekulargewicht  $M_w$  der aromatischen Polycarbonate und Polyestercarbonate Bereich von 23.000 bis 30.000 g/mol liegt, bestimmt durch GPC (Gelpermeationschromatographie in Methylenchlorid mit Polycarbonat als Standard).
- 15 18. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass der Polyester gemäß Komponente B Polybutylensuccinat ist.
- 20 19. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass die gewichtsgemittelten Molekulargewichte  $M_w$  der Komponente B zwischen 15 und 750 kg/mol liegen, bestimmt durch Gel-Permeations-Chromatographie gegen Polystyrol als Referenz.
- 25 20. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass die gewichtsgemittelten Molekulargewichte  $M_w$  der Komponente B zwischen 40 und 500 kg/mol liegen, bestimmt durch Gel-Permeations-Chromatographie gegen Polystyrol als Referenz.
- 30 21. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass die gewichtsgemittelten Molekulargewichte  $M_w$  der Komponente B zwischen 80 und 400 kg/mol liegen, bestimmt durch Gel-Permeations-Chromatographie gegen Polystyrol als Referenz.
- 35 22. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass die Komponente B eine Glasübergangstemperatur von  $-45^{\circ}\text{C}$  bis  $0^{\circ}\text{C}$  hat.

23. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass die Komponente B einen Schmelzpunkt von 90°C bis 125°C hat.
- 5 24. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass die Komponente C ein Phenoxyphosphazen ist mit einem Trimerenanteil ( $k=1$ ) von 65 bis 85 mol.-%, einem Tetramerenanteil ( $k=2$ ) von 10 bis 20 mol.-%, einem Anteil an höheren oligomeren Phosphazene ( $k=3, 4, 5, 6$  und  $7$ ) von 5 bis 20 mol.-% und Phosphazene-Oligomere mit  $k \geq 8$  von 0 bis 2 mol.-%, bezogen auf die Komponente C.
- 10 25. Zusammensetzungen nach einer der vorherigen Ausführungsformen, enthaltend als Komponente F mindestens einen Zusatzstoff ausgewählt aus der Gruppe, die Flammschutzsynergisten, Antidrippingmittel, Gleit- und Entformungsmittel, Nukleiermittel, Stabilisatoren, Antistatika, Farbstoffe, Pigmente und Füll- und Verstärkungsmittel umfasst.
- 15 26. Zusammensetzungen gemäß einer der vorherigen Ausführungsformen, dadurch gekennzeichnet, dass die Säurekomponente des Polyesters aus nachwachsenden Rohstoffen stammt.
- 20 27. Verwendung von Zusammensetzungen gemäß einer der Ausführungsformen 1 bis 26 zur Herstellung von spritzgegossenen oder thermogeformten Formkörper.
28. Formkörper erhältlich aus Zusammensetzungen gemäß einer der Ausführungsformen 1 bis 26.

25

### **Komponente A**

Erfindungsgemäß geeignete aromatische Polycarbonate und 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).

Bevorzugte Herstellungsweisen der erfindungsgemäß zu verwendenden Polycarbonate, einschließlich der Polyester-carbonate sind das bekannte Grenzflächenverfahren und das bekannte Schmelzumesterungsverfahren (vgl. z. B. WO 2004/063249 A1, WO 2001/05866 A1, WO 2000/105867, US-A 5,340,905, US 5,097,002, US-A 5,717,057).

35



p 1 oder 0 sind, und

R<sup>5</sup> und R<sup>6</sup> für jedes X<sup>1</sup> individuell wählbar, unabhängig voneinander Wasserstoff oder C<sub>1</sub> bis C<sub>6</sub>-Alkyl, vorzugsweise Wasserstoff, Methyl oder Ethyl,

X<sup>1</sup> Kohlenstoff und

5 m eine ganze Zahl von 4 bis 7, bevorzugt 4 oder 5 bedeuten, mit der Maßgabe, dass an mindestens einem Atom X<sup>1</sup>, R<sup>5</sup> und R<sup>6</sup> gleichzeitig Alkyl sind.

Bevorzugte Diphenole sind Hydrochinon, Resorcin, Dihydroxydiphenole, Bis-(hydroxyphenyl)-C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>-alkane, Bis-(hydroxyphenyl)-C<sub>5</sub>-C<sub>6</sub>-cycloalkane, Bis-(hydroxyphenyl)-ether, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfoxide, Bis-(hydroxyphenyl)-ketone, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfone und  $\alpha,\alpha$ -Bis-(hydroxyphenyl)-diisopropyl-benzole sowie deren kernbromierte und/oder kernchlorierte Derivate.

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

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

Für die Herstellung der thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate geeignete Kettenabbrucher sind beispielsweise Phenol, p-Chlorphenol, p-tert.-Butylphenol oder 2,4,6-Tribromphenol, aber auch langkettige Alkylphenole, wie 4-[2-(2,4,4-Trimethylpentyl)]-phenol, 4-(1,3-Tetramethylbutyl)-phenol gemäß DE-A 2 842 005 oder Monoalkylphenole oder Dialkylphenole mit insgesamt 8 bis 20 Kohlenstoffatomen in den Alkylsubstituenten, wie 3,5-di-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 Kettenabbruchern beträgt im allgemeinen zwischen 0,5 Mol%, und 10 Mol%, bezogen auf die Molsumme der jeweils eingesetzten Diphenole.

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 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 25 Gew.%, vorzugsweise 2,5 bis 25 Gew.%, bezogen auf die Gesamtmenge an einzusetzenden Diphenolen, Polydiorganosiloxane mit Hydroxyaryloxy-Endgruppen eingesetzt werden. Diese sind bekannt (US 3 419 634) und nach literaturbekannten Verfahren herstellbar. Die Herstellung Polydiorganosiloxanhaltiger Copolycarbonate ist in der DE-A 3 334 782 beschrieben.

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.

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.

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 Kohlendioxid, vorzugsweise Phosgen, als bifunktionelles Säurederivat mit verwendet.

Als Kettenabbrucher 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 C<sub>1</sub> bis C<sub>22</sub>-Alkylgruppen oder durch Halogenatome substituiert sein können, sowie aliphatische C<sub>2</sub> bis C<sub>22</sub>-Monocarbonsäurechloride in Betracht.

Die Menge an Kettenabbruchern beträgt jeweils 0,1 bis 10 Mol%, bezogen im Falle der phenolischen Kettenabbrucher auf Mol Diphenol und im Falle von Monocarbonsäurechlorid-Kettenabbrucher auf Mol Dicarbonsäuredichlorid.

Die aromatischen Polyester carbonate können auch aromatische Hydroxycarbonsäuren eingebaut enthalten.

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

Als Verzweigungsmittel können beispielsweise drei- oder mehrfunktionelle Carbonsäurechloride, wie  
5 Trimesinsäuretrichlorid, Cyanursäuretrichlorid, 3,3',4,4'-Benzophenon-tetracarbonsäuretrichlorid, 1,4,5,8-Naphthalintetracarbonsäuretrichlorid 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)-hept-2-en, 4,6-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-heptan, 1,3,5-Tri-(4-hydroxyphenyl)-benzol, 1,1,1-Tri-(4-hydroxyphenyl)-  
10 ethan, Tri-(4-hydroxyphenyl)-phenylmethan, 2,2-Bis[4,4-bis(4-hydroxyphenyl)-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-hydroxyphenyl-isopropyl]-phenoxy)-methan, 1,4-Bis[4,4'-dihydroxytri-phenyl]-methyl]-benzol, in Mengen von 0,01 bis 1,0 Mol% bezogen auf eingesetzte Diphenole verwendet werden. Phenolische  
15 Verzweigungsmittel können mit den Diphenolen vorgelegt, Säurechlorid-Verzweigungsmittel können zusammen mit den Säuredichloriden eingetragen werden.

In den thermoplastischen, aromatischen Polyestercarbonaten kann der Anteil an Carbonatstruktureinheiten beliebig variieren. Vorzugsweise beträgt der Anteil an Carbonatgruppen bis  
20 zu 100 Mol%, insbesondere bis zu 80 Mol%, besonders bevorzugt 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.

25 Die relative Lösungsviskosität ( $\eta_{rel}$ ) der aromatischen Polycarbonate und Polyestercarbonate liegt bevorzugt im Bereich 1,18 bis 1,4, besonders bevorzugt im Bereich 1,20 bis 1,32 (gemessen an Lösungen von 0,5 g Polycarbonat oder Polyestercarbonat in 100 ml Methylenchlorid-Lösung bei 25°C). Das gewichtsgemittelte Molekulargewicht  $M_w$  der aromatischen Polycarbonate und Polyestercarbonate liegt bevorzugt im Bereich von 15.000 bis 35.000 g/mol, weiter bevorzugt im  
30 Bereich von 20.000 bis 33.000 g/mol, besonders bevorzugt 23.000 bis 30.000 g/mol, bestimmt durch GPC (Gelpermeationschromatographie in Methylenchlorid mit Polycarbonat als Standard).

### **Komponente B**

Als Komponente B) enthalten die Zusammensetzungen erfindungsgemäß einen Polyester oder eine  
35 Mischung aus zwei oder mehr unterschiedlichen Polyestern.

Polyester im Sinne der Erfindung sind Reaktionsprodukte aus Bernsteinsäure oder ihren reaktionsfähigen Derivaten und aliphatischen, cycloaliphatischen oder araliphatischen Diolen und Mischungen dieser Reaktionsprodukte.

5 Bevorzugte Polyester lassen sich aus Bernsteinsäure (oder ihren reaktionsfähigen Derivaten) oder aus Mischungen aus Bernsteinsäure und bis zu 20 Mol.% Reste anderer aromatischer Dicarbonsäuren mit 8 bis 14 C-Atomen oder aliphatischer Dicarbonsäuren mit 4 bis 12 C-Atomen wie Reste von Phthalsäure, Isophthalsäure, Naphthalin-2,6-dicarbonsäure, 4,4'-Diphenyldicarbonsäure, Adipin-, Sebacinsäure, Azelainsäure, Cyclohexandiessigsäure, Cyclohexandicarbonsäure und aliphatischen  
10 Diolen mit 2 bis 10 C-Atomen, beispielsweise Ethandiol, Propylenglycol, Butandiol oder Pentandiol nach bekannten Methoden wie Kondensationspolymerisation von Dicarbonsäureverbindungen oder funktionalen Derivaten wie Anhydriden und Chloriden einerseits und Diolen andererseits herstellen. Die Kondensationspolymerisation kann in Lösung, Schmelze oder fester Phase, oder in einer Kombination von Reaktionsschritten in verschiedenen Phasen durchgeführt werden.

15

In einer weiteren Ausführungsform ist das Polyesterpolymer ein aliphatisches Polyalkylensuccinat. In noch einer weiteren Ausführungsform ist das Polyesterpolymer ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Polyethylensuccinat, Polyethylensuccinat-co-adipat, Polyethylensuccinat-co-terephthalat, Polybutylensuccinat, Polybutylensuccinat-co-adipat und Polybutylensuccinat-co-terephthalat.

20 Besonders bevorzugt sind Bernsteinsäureester, die allein aus Bernsteinsäure oder ihren reaktionsfähigen Derivaten (z.B. Dimethylestern oder Anhydriden) und einem Diol hergestellt werden.

In einer bevorzugten Ausführungsform sind Diole der vorliegenden Erfindung aliphatische Diole. In einer weiter bevorzugten Ausführungsform sind die Diole Alkandiole mit 2 bis 10 C Atomen.

25 Besonders bevorzugt sind Diole ausgewählt aus der Gruppe, die Ethandiol, Propandiol, Butandiol und Pentandiol umfasst, wobei Butandiol am meisten bevorzugt ist. In der am meisten bevorzugten Ausführungsform wird ein Polyester aus Bernsteinsäure und Butandiol verwendet.

In einer bevorzugten Ausführungsform werden zur Erhöhung des Molekulargewichts Kopplungsmittel  
30 eingesetzt. Beispiele für solche Kopplungsmittel sind 2,4-toluylen-diisocyanat, eine Mischung von 2,4-toluylen-diisocyanat und 2,6-toluylen-diisocyanat, diphenylmethan-diisocyanat, 1,5-naphthylen-diisocyanat, xylylen-diisocyanat, hydriertes xylylen-diisocyanat, hexamethylen-diisocyanat und



isophoron-diisocyanat. Bevorzugt werden hexamethylen-diisocyanat und isophoron-diisocyanat benutzt

Die Herstellung der erfindungsgemäßen Polyester ist beispielsweise in EP 0707047 A2 beschrieben.

5

Die Bernsteinsäureester können durch Einbau relativ kleiner Mengen 3- oder 4-wertiger Alkohole oder 3- oder 4-wertiger Carbonsäure, wie sie z.B. in der DE 1900270 A1 und der US 3 692 744 (A) beschrieben sind, verzweigt werden. Beispiele für bevorzugte Verzweigungsmittel sind Trimesinsäure, Trimellitsäure, Trimethylolethan, Trimethylolpropan und Pentaerythrit. Besonders bevorzugt als  
10 Verzweigungsmittel ist Trimethylolpropan, am meisten bevorzugt 1,1,1-Trimethylolpropan. Es ist ratsam, nicht mehr als 1 Gew.-% des Verzweigungsmittels, bezogen auf den Polyester, zu verwenden

Die vorzugsweise verwendeten Bernsteinsäureester besitzen gewichtsgemittelten Molekulargewichte Mw von 10 bis 1500 kg/mol (bestimmt durch Gel-Permeations-Chromatographie gegen Polystyrol als  
15 Referenz, Lösungsmittel Dichlormethan, Konzentration 6 g/l), bevorzugt 15 bis 750 kg/mol, noch weiter bevorzugt 40 bis 500 kg/mol und besonders bevorzugt 80 bis 400 kg/mol.

Als Säurekomponente eingesetzte Bernsteinsäure kann aus biologischen Quellen stammen, d.h. aus nachwachsenden Rohstoffen gewonnen sein, z.B. durch Fermentation von Glucose oder aus Hydrolysaten von Biomasse.

20 In einer besonders bevorzugten Ausführungsform ist der Polyester ein Polybutylensuccinat, das ein gewichtsgemittelten Molekulargewicht von 80 bis 400 kg/mol ((bestimmt durch Gel-Permeations-Chromatographie gegen Polystyrol als Referenz) besitzt.

Bei der Herstellung wird initial üblicherweise der entsprechende Dicarbonsäurediester in einer Veresterungs- oder Umesterungsreaktion bei Temperaturen von ca. 150°C bis 300°C gebildet, der  
25 dann bei steigender Temperatur und verminderten Druck polykondensiert wird, wobei die entsprechenden Hydroxyverbindungen und/oder Wasser abgespalten werden. Die letzten Stufen der Reaktion werden allgemein im Hochvakuum (<10mm Quecksilbersäule) durchgeführt, um ein Polyesterpolymer mit hohem Molekulargewicht darzustellen.

Beide Reaktionsschritte können optional unter Verwendung von Veresterungskatalysatoren und/oder  
30 Umesterungskatalysatoren und/oder Polykondensationskatalysatoren durchgeführt werden. Gebräuchliche Katalysatoren umfassen Ti-, Zr-, Sn-, und Sb-Verbindungen für die Veresterung, Mn-, Co- und Zn-Verbindungen für die Umesterung, und Sb-, Ti-, Pb-, Ge-, Zn- und Sn-Verbindungen für die Polykondensation, wobei die Verbindungen im allgemeinen ausgewählt sind aus der Gruppe, die

Oxide, Alkoholate, Acetate und Carboxylate umfasst. Der Metallgehalt im Katalysator beträgt üblicherweise zwischen 20 und 500 ppm, bezogen auf 100 Gewichtsteile Polyesterpolymer.

Vorzugsweise hat die Komponente B eine Glasübergangstemperatur  $-50^{\circ}\text{C}$  bis  $90^{\circ}\text{C}$ , besonders bevorzugt  $-45^{\circ}\text{C}$  bis  $0^{\circ}\text{C}$ . Die Komponente B besitzt vorzugsweise einen Schmelzpunkt von  $80^{\circ}\text{C}$  bis  $260^{\circ}\text{C}$ , weiter bevorzugt von  $85^{\circ}\text{C}$  bis  $180^{\circ}\text{C}$  und noch weiter bevorzugt von  $90^{\circ}\text{C}$  bis  $125^{\circ}\text{C}$ .

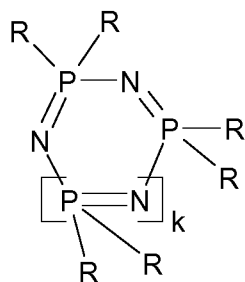
Die Bestimmung der Glasübergangstemperatur erfolgt nach DIN 53765 bei einer Heizrate von 20 K mit Stickstoffschutzgas, wobei die Glasübergangstemperatur als Schnittpunkt der Mittellinie zwischen den extrapolierten Basislinien vor und nach dem Glasübergang der Messkurve bestimmt wird.

10

### Komponente C

Phosphazene gemäß Komponente C, welche gemäß der vorliegenden Erfindung eingesetzt werden, sind cyclische Phosphazene gemäß Formel (IV)

15



(IV),

wobei

20

- R jeweils gleich oder verschieden ist und für
- einen Aminrest,
  - jeweils, gegebenenfalls halogeniertes, vorzugsweise mit Fluor halogeniertes, weiter bevorzugt monohalogeniertes,  $\text{C}_1$ - bis  $\text{C}_8$ -Alkyl, vorzugsweise Methyl, Ethyl, Propyl oder Butyl,
  - $\text{C}_1$ - bis  $\text{C}_8$ - Alkoxy, vorzugsweise Methoxy, Ethoxy, Propoxy oder Butoxy,
  - jeweils gegebenenfalls durch Alkyl, vorzugsweise  $\text{C}_1$ - $\text{C}_4$ -Alkyl, und/oder Halogen, vorzugsweise Chlor und/oder Brom, substituiertes  $\text{C}_5$ - bis  $\text{C}_6$ -Cycloalkyl,

25

- jeweils gegebenenfalls durch Alkyl, vorzugsweise C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, und/oder Halogen, vorzugsweise Chlor, Brom und/oder Hydroxy-substituiertes, C<sub>6</sub>- bis C<sub>20</sub>-Aryloxy, vorzugsweise Phenoxy, Naphthyloxy,
- 5 - jeweils gegebenenfalls durch Alkyl, vorzugsweise C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkyl, und/oder Halogen, vorzugsweise Chlor und/oder Brom, substituiertes C<sub>7</sub>- bis C<sub>12</sub>-Aralkyl, vorzugsweise Phenyl-C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-alkyl, oder
- einen Halogen-Rest, vorzugsweise Chlor oder Fluor, oder
- einen OH-Rest steht,
- 10 k für eine ganze Zahl von 1 bis 10, vorzugsweise für eine Zahl von 1 bis 8, besonders bevorzugt 1 bis 5, steht.

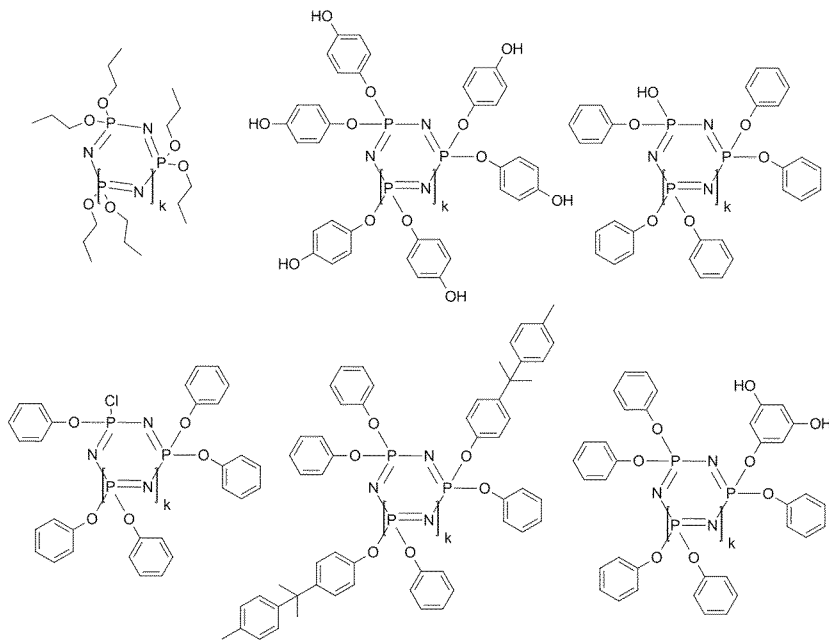
Bevorzugt sind neben dem Trimeren (k=1) weitere höhere Oligomere mit k=2 bis 10 enthalten.

- 15 Weiter Bevorzugt werden als Komponente C Phosphazene mit einem Trimerenanteil (k=1) von 50 bis 98 mol.-%, weiter bevorzugt von 60 bis 95 mol.-%, besonders bevorzugt von 65 bis 90 mol.-%, und ganz besonders bevorzugt von 65 – 85 mol.-%, insbesondere 70 – 85 mol.-%, bezogen auf die Komponente C eingesetzt

20

Bevorzugt sind:

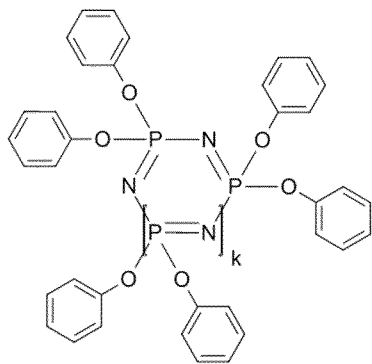
Propoxyphosphazen, Phenoxyphosphazen, Methylphenoxyphosphazen, Aminophosphazen und Fluoralkylphosphazene, sowie Phosphazene der folgenden Strukturen:



In den oben gezeigten Verbindungen ist  $k = 1, 2$  oder  $3$ .

Bevorzugt ist Phenoxyphosphazenen (alle  $R = \text{Phenoxy}$ ) mit einem Anteil an Oligomeren mit  $k = 1$  (C1)

5 von 50 bis 98 mol.-%, weiter bevorzugt 60 bis 98 mol.-%.



(V)

Für den Fall, dass das Phosphazenen gemäß Formel (IV) am Phosphor Halogen-substituiert ist, z. B. aus  
 10 unvollständig reagierten Ausgangsmaterial, ist der Anteil dieses am Phosphor Halogen-substituierten  
 Phosphazens bevorzugt kleiner als 1000 ppm, weiter bevorzugt kleiner 500ppm.

Die Phosphazene können allein oder als Mischung eingesetzt werden, d.h. der Rest  $R$  kann gleich sein  
 oder 2 oder mehr Reste in der Formel (IV) können verschieden sein. Bevorzugt sind die Reste  $R$  eines  
 15 Phosphazens identisch.

In einer weiter bevorzugten Ausführungsform werden nur Phosphazene mit gleichem  $R$  eingesetzt.

In einer bevorzugten Ausführungsform beträgt der Anteil der Tetrameren (k=2) (C2) von 2 bis 50 mol.-% bezogen auf die Komponente C, weiter bevorzugt von 5 bis 40 mol.%, noch weiter bevorzugt von 10 bis 30 mol.-%, besonders bevorzugt von 10 bis 20 mol.-%.

- 5 In einer bevorzugten Ausführungsform beträgt der Anteil der höheren oligomeren Phosphazene (k=3, 4, 5, 6 und 7) (C3) von 0 bis 30 mol.-% bezogen auf die Komponente C, weiter bevorzugt von 2,5 bis 25 mol.%, noch weiter bevorzugt von 5 bis 20 mol.-%, und besonders bevorzugt von 6 – 15 mol.-%.

- 10 In einer bevorzugten Ausführungsform beträgt der Anteil der Oligomere mit  $k \geq 8$  (C4) von 0 bis 2,0 mol.-% bezogen auf die Komponente C, und bevorzugt von 0,10 bis 1,00 mol.-%.

In einer weiter bevorzugten Ausführungsform erfüllen die Phosphazene der Komponente C alle drei zuvor genannten Bedingungen hinsichtlich der Anteile (C2 – C4).

- 15 Bevorzugt ist die Komponente C ein Phenoxyphosphazenen mit einem Trimerenanteil (k=1) von 65 bis 85 mol.-%, einem Tetramerenanteil (k=2) von 10 bis 20 mol.-%, einem Anteil an höheren oligomeren Phosphazenen (k=3, 4, 5, 6 und 7) von 5 bis 20 mol.-% und Phosphazenen-Oligomere mit  $k \geq 8$  von 0 bis 2 mol.-%, bezogen auf die Komponente C.

- 20 Mit n wird der gewichtete arithmetische Mittelwert von k gemäß folgender Formel definiert:

$$n = \frac{\sum_{i=1}^{\max} k_i \cdot x_i}{\sum_{i=1}^{\max} x_i}$$

Dabei ist  $x_i$  der Anteil des Oligomers  $k_i$  und es gilt also, dass die Summe aller  $x_i$  gleich 1 ist.

- 25 In einer alternativen Ausführungsform ist n im Bereich von 1,10 bis 1,75, bevorzugt von 1,15 bis 1,50, weiter bevorzugt von 1,20 bis 1,45, und besonders bevorzugt von 1,20 bis 1,40 (Bereichsgrenzen eingeschlossen).

Die Phosphazene und deren Herstellung sind beispielsweise in EP-A 728 811, DE-A 1 961668 und WO 97/40092 beschrieben.

- 30 Die Oligomer-Zusammensetzungen der Phosphazene in den jeweiligen Blendproben lassen sich auch nach Compoundieren mittels  $^{31}\text{P}$  NMR nachweisen und quantifizieren (chemische Verschiebung;  $\delta$  trimer: 6,5 bis 10,0 ppm;  $\delta$  tetramer: -10 bis -13,5 ppm;  $\delta$  höhere Oligomere: -16,5 bis -25,0 ppm).

**Komponente D**

Die Komponente D umfasst ein oder mehrere Pffropfpolymerisate von

- 5 D.1 5 bis 95, vorzugsweise 30 bis 90 Gew.-%, wenigstens eines Vinylmonomeren auf  
D.2 95 bis 5, vorzugsweise 70 bis 10 Gew.-% wenigstens einer Pffropfgrundlage ausgewählt aus  
der Gruppe bestehend aus Dienkautschuke, EP(D)M-Kautschuke (d.h. solche auf Basis  
Ethylen/Propylen und gegebenenfalls Dien), Acrylat-, Polyurethan-, Silikon-,  
Silikonacrylat-, Chloropren und Ethylen/Vinylacetat-Kautschuke, sowie Polybutadien-  
10 Styrol-Kautschuk.

Die Pffropfgrundlage D.2 hat im Allgemeinen eine mittlere Teilchengröße ( $d_{50}$ -Wert) von 0,05 bis  
10  $\mu\text{m}$ , vorzugsweise 0,1 bis 5  $\mu\text{m}$ , besonders bevorzugt 0,2 bis 1  $\mu\text{m}$ .

15 Monomere D.1 sind vorzugsweise Gemische aus

- D.1.1 50 bis 99 Gew.-Teilen Vinylaromaten und/oder kernsubstituierten Vinylaromaten (wie  
Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, p-Methylstyrol, p-Chlorstyrol) und/oder (Meth)Acrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-  
Alkylester, wie Methyl(meth)acrylat, Ethyl(meth)acrylat, und  
D.1.2 1 bis 50 Gew.-Teilen Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile wie Acrylnitril und  
20 Methacrylnitril) und/oder (Meth)Acrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-Alkylester, wie Methylmethacrylat, n-  
Butylacrylat, t-Butylacrylat, und/oder Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter  
Carbonsäuren, beispielsweise Maleinsäureanhydrid und N-Phenyl-Maleinimid.

Bevorzugte Monomere D.1.1 sind ausgewählt aus mindestens einem der Monomere Styrol,  $\alpha$ -  
25 Methylstyrol und Methylmethacrylat, bevorzugte Monomere D.1.2 sind ausgewählt aus mindestens  
einem der Monomere Acrylnitril, Maleinsäureanhydrid und Methylmethacrylat.

Die Kennzeichnung des Bestandteils "(Meth)" in Klammern bei Acrylaten bedeutet das optionale  
Vorhandensein dieses Bestandteils.

30

Bevorzugte Pffropfgrundlagen D.2 sind Silikonacrylatkautschuke, Dienkautschuke (beispielsweise auf  
Basis Butadien und Isopren) oder Gemische von Dienkautschuken. Unter Dienkautschuk im  
erfindungsgemäßen Sinne sind auch Copolymerisate von Dienkautschuken oder deren Gemischen mit  
weiteren copolymerisierbaren Monomeren (z.B. gemäß D.1.1 und D.1.2) zu verstehen.

35

Die Pflropfgrundlagen D.2 weisen im Allgemeinen eine Glasübergangstemperatur von  $< 10^{\circ}\text{C}$ , vorzugsweise  $< 0^{\circ}\text{C}$ , besonders bevorzugt  $< -10^{\circ}\text{C}$  auf.

5 In einer Ausführungsform ist das Monomer D.1 Polymethylmethacrylat (PMMA), wobei weiter bevorzugt die Pflropfgrundlage D.2 ein Silikonacrylatkautschuk ist.

10 Besonders bevorzugte Polymerisate D sind beispielsweise ABS-Polymerisate (Emulsions-, Masse- und Suspensions-ABS), wie sie z.B. in der DE-OS 2 035 390 (=US-PS 3 644 574) oder in der DE-OS 2 248 242 (=GB-PS 1 409 275) bzw. in Ullmanns, Enzyklopädie der Technischen Chemie, Bd. 19 (1980), S. 280 ff. beschrieben sind.

15 Der Gelanteil der Pflropfgrundlage D.2 beträgt bevorzugt mindestens 20 Gew.-%, im Falle von im Emulsionspolymerisation hergestellten Pflropfgrundlagen D.2 vorzugsweise mindestens 40 Gew.-% (in Toluol gemessen).

20 Vorzugsweise weist das Pflropfpolymerisat aus den Komponenten D.1 und D.2 eine Kern-Schale-Struktur auf, wobei die Komponente D.1 die Schale bildet (auch als Hülle bezeichnet) und die Komponente D.2 den Kern ausbildet (siehe bspw. Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, VCH-Verlag, Vol. A21, 1992, Seite 635 und Seite 656).

25 Die Pflropfcopolymerisate D werden durch radikalische Polymerisation, z.B. durch Emulsions-, Suspensions-, Lösungs- oder Massepolymerisation, vorzugsweise durch Emulsions- oder Massepolymerisation hergestellt.

30 Besonders geeignete Pflropfkautschuke sind auch ABS-Polymerisate, die im Emulsionspolymerisationsverfahren durch Redox-Initiierung mit einem Initiatorsystem aus organischem Hydroperoxid und Ascorbinsäure gemäß US-P 4 937 285 hergestellt werden.

35 Da bei der Pflropfreaktion die Pflropfmonomeren bekanntlich nicht unbedingt vollständig auf die Pflropfgrundlage aufgepfropft werden, werden erfindungsgemäß unter Pflropfpolymerisaten D auch solche Produkte verstanden, die durch (Co)Polymerisation der Pflropfmonomere in Gegenwart der Pflropfgrundlage gewonnen werden und bei der Aufarbeitung mit anfallen.

Geeignete Acrylatkautschuke gemäß D.2 der Polymerisate D sind vorzugsweise Polymerisate aus 35 Acrylsäurealkylestern, gegebenenfalls mit bis zu 40 Gew.-%, bezogen auf D.2 anderen polymerisierbaren, ethylenisch ungesättigten Monomeren. Zu den bevorzugten polymerisierbaren

Acrylsäureestern gehören C<sub>1</sub> bis C<sub>8</sub>-Alkylester, beispielsweise Methyl-, Ethyl-, Butyl-, n-Octyl- und 2-Ethylhexylester; Halogenalkylester, vorzugsweise Halogen-C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-alkylester, wie Chlorethylacrylat sowie Mischungen dieser Monomeren.

5 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-Gruppen und 2 bis 20 C-Atomen, wie Ethylenglykoldimethacrylat, Allylmethacrylat; mehrfach ungesättigte heterocyclische Verbindungen,  
10 wie Trivinyl- und Triallylcyanurat; polyfunktionelle Vinylverbindungen, wie Di- und Trivinylbenzole; aber auch Triallylphosphat und Diallylphthalat. Bevorzugte vernetzende Monomere sind Allylmethacrylat, Ethylenglykoldimethacrylat, Diallylphthalat und heterocyclische Verbindungen, die mindestens drei ethylenisch ungesättigte Gruppen aufweisen. Besonders bevorzugte vernetzende Monomere sind die cyclischen Monomere Triallylcyanurat, Triallylisocyanurat,  
15 Triacryloylhexahydro-s-triazin, Triallylbenzole. Die Menge der vernetzten Monomere beträgt vorzugsweise 0,02 bis 5, insbesondere 0,05 bis 2 Gew.-%, bezogen auf die Pfropfgrundlage D.2. Bei cyclischen vernetzenden Monomeren mit mindestens drei ethylenisch ungesättigten Gruppen ist es vorteilhaft, die Menge auf unter 1 Gew.-% der Pfropfgrundlage D.2 zu beschränken.

20 Bevorzugte "andere" polymerisierbare, ethylenisch ungesättigte Monomere, die neben den Acrylsäureestern gegebenenfalls zur Herstellung der Pfropfgrundlage D.2 dienen können, sind z.B. Acrylnitril, Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, Acrylamide, Vinyl-C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-alkylether, Methylmethacrylat, Butadien. Bevorzugte Acrylatkautschuke als Pfropfgrundlage D.2 sind Emulsionspolymerisate, die einen Gelgehalt von mindestens 60 Gew.-% aufweisen.

25 Geeignete Silikonkautschuke gemäß D.2. können durch Emulsionspolymerisation hergestellt werden, wie beispielsweise in US 2891920 und US 3294725 beschrieben. Weitere geeignete Pfropfgrundlagen gemäß D.2 sind Silikonkautschuke mit pfpfaktiven 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.

30 Als Pfpfgrundlagen D.2 sind erfindungsgemäß auch Silikonacrylat-Kautschuke geeignet. Diese Silikonacrylat-Kautschuke sind Komposit-Kautschuke mit pfpfaktiven Stellen enthaltend 10 - 90 Gew.-% Silikonkautschuk-Anteil und 90 bis 10 Gew.-% Polyalkyl(meth)acrylatkautschuk-Anteil, wobei sich die beiden genannten Kautschuk-Komponenten im Komposit-Kautschuk gegenseitig  
35 durchdringen, so dass sie sich nicht wesentlich voneinander trennen lassen. Wenn im Komposit-Kautschuk der Anteil der Silikonkautschuk-Komponente zu hoch ist, haben die fertigen



Harzzusammensetzungen nachteilige Oberflächeneigenschaften und eine verschlechterte Einfärbbarkeit. Wenn dagegen der Anteil der Polyalkyl(meth)acrylatkautschuk-Komponente im Komposit-Kautschuk zu hoch ist, wird die Schlagzähigkeit der fertigen Harzzusammensetzung nachteilig beeinflusst). Silikonacrylat-Kautschuke sind bekannt und beispielsweise beschrieben in US 5,807,914, EP 430134 und US 4888388. Vorzugsweise eingesetzt wird ein in Emulsionspolymerisation hergestelltes Pfropfpolymer mit D.1 Methylmetacrylat und D.2 Silikonacrylat-Komposit-Kautschuk.

Der Gelgehalt der Pfropfgrundlage D.2 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 Ultrazentrifugemessung (W. Scholtan, H. Lange, Kolloid, Z. und Z. Polymere 250 (1972), 782-1796) bestimmt werden.

### 15 **Komponente E**

Die Komponente E umfasst ein oder mehrere thermoplastische Vinyl(Co)Polymerisate und/oder Polyalkylenterephthalate.

20 Geeignet sind als Vinyl(Co)Polymerisate E Polymerisate von mindestens einem Monomeren aus der Gruppe der Vinylaromaten, Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile), (Meth)Acrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-Alkylester, ungesättigte Carbonsäuren sowie Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren. Insbesondere geeignet sind (Co)Polymerisate aus

E.1 50 bis 99, vorzugsweise 60 bis 80 Gew.-Teilen Vinylaromaten und/oder kernsubstituierten Vinylaromaten wie Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, p-Methylstyrol, p-Chlorstyrol) und/oder (Meth)Acrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-Alkylester, wie Methylmethacrylat, Ethylmethacrylat, und

E.2 1 bis 50, vorzugsweise 20 bis 40 Gew.-Teilen Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile) wie Acrylnitril und Methacrylnitril und/oder (Meth)Acrylsäure-(C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>)-Alkylester, wie Methylmethacrylat, n-Butylacrylat, t-Butylacrylat, und/oder ungesättigte Carbonsäuren, wie Maleinsäure, und/oder Derivate, wie Anhydride und Imide, ungesättigter Carbonsäuren, beispielsweise Maleinsäureanhydrid und N-Phenylmaleinimid).

Die Vinyl(co)polymerisate E sind harzartig, thermoplastisch und kautschukfrei. Besonders bevorzugt ist das Copolymerisat aus E.1 Styrol und E.2 Acrylnitril.

35

Die (Co)Polymerisate gemäß E sind bekannt und lassen sich durch radikalische Polymerisation, insbesondere durch Emulsions-, Suspensions-, Lösungs- oder Massepolymerisation herstellen. Die (Co)Polymerisate besitzen vorzugsweise mittlere Molekulargewichte  $M_w$  (Gewichtsmittel, ermittelt durch Lichtstreuung oder Sedimentation) zwischen 15.000 und 200.000 g/mol.

5

Geeignet als Komponente E enthalten die Zusammensetzungen erfindungsgemäß ein oder eine Mischung aus zwei oder mehr unterschiedlichen Polyalkylterephthalaten.

Polyalkylterephthalate im Sinne der Erfindung sind Polyalkylterephthalate, die sich von Terephthalsäure (oder ihren reaktionsfähigen Derivaten, z.B. Dimethylestern oder Anhydriden) und Alkandiolen, cycloaliphatischen oder araliphatischen Diolen und Mischungen daraus, beispielsweise auf Basis von Propylenglycol, Butandiol, Pentandiol, Hexandiol, 1,2-Cyclohexandiol, 1,4-Cyclohexandiol, 1,3-Cyclohexandiol, und Cyclohexyldimethanol, ableiten, wobei die erfindungsgemäße Diolkomponente mehr als 2 Kohlenstoffatome aufweist. Demgemäß werden als Komponente E bevorzugt Polybutylterephthalat und/oder Polytrimethylterephthalat, am meisten bevorzugt Polybutylterephthalat eingesetzt.

10  
15

Die erfindungsgemäßen Polyalkylterephthalate können als Monomer der Disäure auch bis zu 5 Gew.-% Isophthalsäure enthalten.

20

Bevorzugte Polyalkylterephthalate lassen sich aus Terephthalsäure (oder ihren reaktionsfähigen Derivaten) und aliphatischen oder cycloaliphatischen Diolen mit 3 bis 21 C-Atomen nach bekannten Methoden herstellen (Kunststoff-Handbuch, Bd. VIII, S. 695 FF, Karl-Hanser-Verlag, München 1973).

25

Bevorzugte Polyalkylterephthalate enthalten mindestens 80, vorzugsweise mindestens 90 Mol.-%, bezogen auf die Diolkomponente, Propandiol-1,3- und/oder Butandiol-1,4-reste.

Die bevorzugten Polyalkylterephthalate können neben Terephthalsäureresten bis zu 20 Mol.-% Reste anderer aromatischer 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, Bernstein-, Adipin-, Sebacinsäure, Azelainsäure, Cyclohexandiessigsäure, Cyclohexandicarbonsäure.

30

Die bevorzugten Polyalkylterephthalate können neben Propandiol-1,3- bzw. Butandiol-1,4-resten bis zu 20 Mol.-% anderer aliphatischer Diole mit 3 bis 12 C-Atomen oder cycloaliphatischer Diole mit 6 bis 21 C-Atomen enthalten, z.B. Reste von 1,3-Propandiol, 2-Ethylpropan-1,3-diol,

35

Neopentylglykol, 1,5-Pentan-diol, 1,6-Hexandiol, Cyclohexan-1,4-dimethanol, 3-Methylpentan-2,4-diol, 2-Methylpentan-2,4-diol, 2,2,4-Trimethylpentan-1,3-diol und 2-Ethylhexan-1,6-diol, 2,2-Diethylpropan-1,3-diol, 2,5-Hexandiol, 1,4-Di-( $\beta$ -hydroxyethoxy)-benzol, 2,2-Bis-(4-hydroxycyclohexyl)-propan, 2,4-Dihydroxy-1,1,3,3-tetramethyl-cyclobutan, 2,2-bis-(3- $\beta$ -hydroxyethoxyphenyl)-propan und 2,2-bis-(4-hydroxypropoxyphenyl)-propan (DE-A 24 07 674, 24 07 776, 27 15 932).

Die Polyalkylenterephthalate können durch Einbau relativ kleiner Mengen 3- oder 4-wertiger Alkohole oder 3- oder 4-basischer Carbonsäure, wie sie z.B. in der DE-A 19 00 270 und der US-A 3 692 744 beschrieben sind, verzweigt werden. Beispiele für bevorzugte Verzweigungsmittel sind Trimesinsäure, Trimellitsäure, Trimethylolethan und -propan und Pentaerythrit.

Es ist ratsam, nicht mehr als 1 Mol.-% des Verzweigungsmittels, bezogen auf die Säurekomponente, zu verwenden.

Besonders bevorzugt sind Polyalkylenterephthalate, die allein aus Terephthalsäure oder deren reaktionsfähigen Derivaten (z.B. deren Dialkylestern wie Dimethylterephthalat) und Propandiol-1,3 und/oder Butandiol-1,4 hergestellt worden sind (Polypropylen- und Polybutylenterephthalat), und Mischungen dieser Polyalkylenterephthalate.

Bevorzugte Polyalkylenterephthalate sind auch Copolyester, die aus mindestens zwei der obengenannten Säurekomponenten und/oder aus mindestens zwei der obengenannten Alkoholkomponenten hergestellt sind, besonders bevorzugte Copolyester sind Poly-(propylenglykol-1,3/butandiol-1,4)-terephthalate.

Die Polyalkylenterephthalate besitzen im Allgemeinen eine intrinsische Viskosität von ca. 0,4 bis 1,5 dl/g, vorzugsweise 0,5 bis 1,3 dl/g, jeweils gemessen in Phenol/o-Dichlorbenzol (1:1 Gew.-Teile) bei 25°C.

In einer alternativen Ausführungsform können die erfindungsgemäß hergestellten Polyester auch im Gemisch mit anderen Polyestern und/oder weiteren Polymeren eingesetzt werden, wobei hier bevorzugt Gemische von Polyalkylenterephthalaten mit anderen Polyestern eingesetzt werden.

### **Komponente F**

Die Zusammensetzung kann weitere handelsübliche Zusatzstoffe gemäß Komponente F wie Flammenschutzsynergisten, Antidrippingmittel (beispielsweise Verbindungen der Substanzklassen der 5 fluorierten Polyolefine, der Silikone sowie Aramidfasern), Gleit- und Entformungsmittel (beispielsweise Pentaerythrittrastearat), Nukleiermittel, Stabilisatoren, Antistatika (beispielsweise Leitruße, Carbonfasern, Carbon Nanotubes sowie organische Antistatika wie Polyalkylenether, Alkyl-Sulfonate oder Polyamid-haltige Polymere), Füll- und Verstärkungstoffe (beispielsweise Glas- oder 10 Karbonfasern, Glimmer, Kaolin, Talk, CaCO<sub>3</sub> und Glasschuppen) sowie Farbstoffe und Pigmente enthalten.

Besonders bevorzugt werden als Zusatzstoffe Entformungsmittel, Stabilisatoren, sowie Farbstoffe und Pigmente eingesetzt, wobei Kohlenstofffasern und Carbonanotubes keine Farbstoffe und Pigmente im 15 Sinne der vorliegenden Erfindung darstellen und vorzugsweise nicht in den Zusammensetzungen enthalten sind.

### **Herstellung und Prüfung der Formmassen**

Die erfindungsgemäßen thermoplastischen Formmassen werden hergestellt, indem man die jeweiligen 20 Bestandteile in bekannter Weise vermischt und bei Temperaturen von im Allgemeinen 240°C bis 300°C in üblichen Aggregaten wie Innenknetern, Extrudern und Doppelwellenschnecken schmelzcompoundiert und schmelzextrudiert.

Die Vermischung der einzelnen Bestandteile kann in bekannter Weise sowohl sukzessive als auch 25 simultan erfolgen, und zwar sowohl bei etwa 20°C (Raumtemperatur) als auch bei höherer Temperatur.

Gegenstand der Erfindung sind ebenfalls Verfahren zur Herstellung der Formmassen und die 30 Verwendung der Formmassen zur Herstellung von Formkörpern sowie die Formteile selbst.

Die erfindungsgemäßen Formmassen können zur Herstellung von Formkörpern jeder Art verwendet werden. Diese können durch Spritzguss, Extrusion und Blasformverfahren hergestellt werden. Eine weitere Form der Verarbeitung ist die Herstellung von Formkörpern durch Tiefziehen aus zuvor 35 hergestellten Platten oder Folien.

Beispiele für solche Formkörper sind Folien, Profile, Gehäuseteile jeder Art, z.B. für Haushaltsgeräte wie Fernsehgeräte, Saftpressen, Kaffeemaschinen, Mixer; für Büromaschinen wie Monitore, Flatscreens, Notebooks, Drucker, Kopierer; Platten, Rohre, Elektroinstallationskanäle, Fenster, Türen und weitere Profile für den Bausektor (Innenausbau und Außenanwendungen) sowie Elektro- und  
5 Elektronikteile wie Schalter, Stecker und Steckdosen sowie Karosserie- bzw. Innenbauteile für Nutzfahrzeuge, insbesondere für den Automobilbereich.

Außerdem können die erfindungsgemäßen Formmassen beispielsweise auch zur Herstellung von folgenden Formkörpern oder Formteilen verwendet werden: Innenaussteile für Schienenfahrzeuge,  
10 Schiffe, Flugzeuge, Busse und andere Kraftfahrzeuge, 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 und für Fernsehgeräte, wärmeisolierte Transportbehältnisse, Formteile für Sanitär- und Badausrüstungen,  
15 Abdeckgitter für Lüfteröffnungen und Gehäuse für Gartengeräte.

Die folgenden Beispiele dienen der weiteren Erläuterung der Erfindung.

### **Herstellung und Prüfung der Formmassen**

20 Auf einem Zweischneckenextruder (ZSK-25) (Fa. Werner und Pfleiderer) werden die in Tabelle 1 aufgeführten Einsatzstoffe bei einer Drehzahl von 225 Upm und einem Durchsatz von 20 kg/h bei einer Maschinentemperatur von 260°C compoundiert und granuliert.

Die fertigen Granulate werden auf einer Spritzgussmaschine zu den entsprechenden Probekörpern  
25 verarbeitet (Massetemperatur 240°C, Werkzeugtemperatur 80°C, Fließfrontgeschwindigkeit 240 mm/s).

Die Reißdehnung wurde nach DIN EN ISO 527 an Stäben der Abmessung 170,0 x 10,0 x 4,0 mm gemessen. Das Spannungsrissverhalten (ESC-Verhalten) wurde an Stäben der Abmessung 80 x 10 x 4 mm, Verarbeitungstemperatur 260°C, untersucht. Als Testmedium wurde Rapsöl verwendet. Die  
30 Probekörper wurden mittels einer Kreisbogenschablone vorgedehnt (Vordrehung in Prozent) und bei Raumtemperatur im Testmedium gelagert. Das Spannungsrissverhalten wurde als Zeit bis zur Rissbildung bzw. den Bruch im Testmedium ausgewertet.

**Komponente A-1**

Lineares Polycarbonat auf Basis Bisphenol A mit einer relativen Lösungsviskosität von  $\eta_{\text{rel}} = 1,28$ , gemessen in  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$  als Lösungsmittel bei  $25^\circ\text{C}$  und einer Konzentration von  $0,5 \text{ g}/100 \text{ ml}$ .

**Komponente A-2**

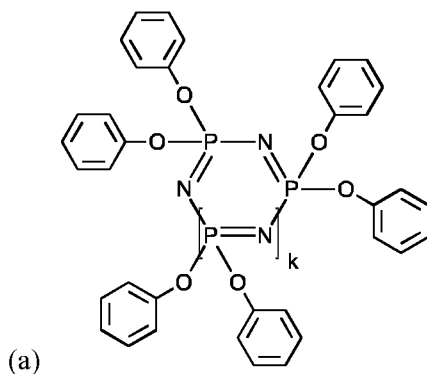
- 5 Lineares Polycarbonat auf Basis Bisphenol A mit einer relativen Lösungsviskosität von  $\eta_{\text{rel}} = 1,19$ , gemessen in  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$  als Lösungsmittel bei  $25^\circ\text{C}$  und einer Konzentration von  $0,5 \text{ g}/100 \text{ ml}$ .

**Komponente B**

- 10 Linearer Polyester aus 48 Gew.-% Bernsteinsäure, 51 Gew.-% 1,4-Butandiol und 1,0 Gew.-% Hexamethylenediisocyanat mit einem gewichtsgemittelten Molekulargewicht  $M_w$  von 255 kg/mol (bestimmt durch GPC gegen Polystyrol Referenz, Lösungsmittel Dichlormethan, Konzentration  $6 \text{ g}/\text{l}$ ).

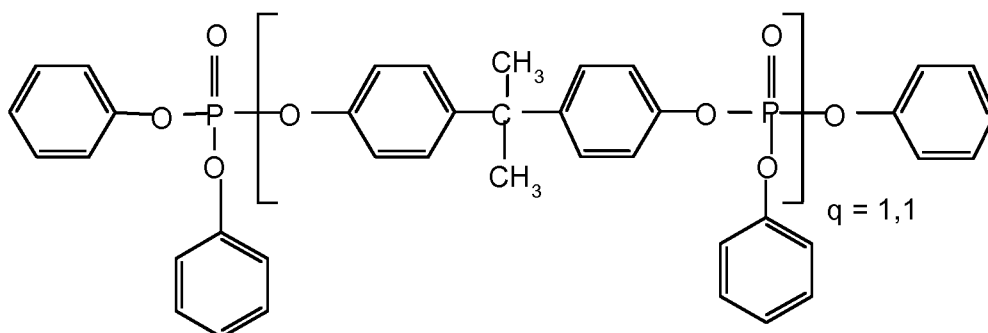
**Komponente C-1**

Phenoxyphosphazen der Formel (a) mit 70 Gew.-%  $k = 1$  und 30 Gew.-%  $k = 2 - 10$ .



- 15 **Komponente C-2 (Vergleich)**

Bisphenol-A basierendes Oligophosphat mit 8,9% Phosphorgehalt.



**Komponente F-1**

CFP 6000 N, Polytetrafluorethylen-Pulver (Hersteller: Du Pont, Genf, Schweiz)

**Komponente F-2**

Pentaerythrittetrastearat als Gleit-/Entformungsmittel

**5 Komponente F-3**

Phosphitstabilisator, Irganox<sup>®</sup> B 900, Fa. Ciba Speciality Chemicals

Aus Tabelle 1 ist ersichtlich, dass die Zusammensetzungen der Beispiele 1 bis 3 mit Phosphazenen als Flammenschutzmittel die erfindungsgemäße Aufgabe lösen, d.h. eine Kombination aus hoher Reidehnung und guter Chemikalienbeständigkeit aufweisen.

Tabelle 1: Zusammensetzung und Eigenschaften der Formmassen

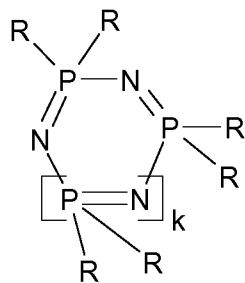
Komponenten (Gew.-Teile)	Bsp. 1	Bsp. 2	Bsp. 3	Bsp. 4	Vgl. 1	Vgl. 2	Vgl. 3	Vgl. 4
A-1	52,1	46,1	40,1	34,1	52,1	46,1	40,0	34,1
A-2	30,0	26,0	22,0	18,0	30,0	26,0	22,0	18,0
B	10,0	20,0	30,0	40,0	10,0	20,0	30,0	40,0
C-1	7,0	7,0	7,0	7,0	7,0	7,0	7,0	7,0
C-2								
F-1	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4
F-2	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4	0,4
F-3	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1
<b>Eigenschaften</b>								
Reißdehnung	121	124	115	112	92	59	76	79
ESC-Test (Rapsöl), 2,4%, Zeit zum Bruch [min]	82	58	90	1200	50	50	30	140



**Patentansprüche**

1. Zusammensetzungen enthaltend
- A) mindestens ein Polymer ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus aromatisches  
5 Polycarbonat und aromatisches Polyestercarbonat,
- B) mindestens ein Polyester, wobei der Polyester aus Bernsteinsäure und optional weiteren  
Dicarbonsäuren sowie aliphatischen, cycloaliphatischen, araliphatischen oder aromatischen  
Diolen abgeleitet ist,
- C) mindestens ein cyclisches Phosphazen der Struktur (IV)

10



(IV),

wobei

- 15 R jeweils gleich oder verschieden ist und für
- einen Aminrest,
  - jeweils gegebenenfalls halogeniertes C<sub>1</sub>- bis C<sub>8</sub>-Alkyl,
  - C<sub>1</sub>- bis C<sub>8</sub>- Alkoxy
  - jeweils gegebenenfalls durch Alkyl und/oder Halogen substituiertes C<sub>5</sub>- bis C<sub>6</sub>-  
20 Cycloalkyl,
  - jeweils gegebenenfalls durch Alkyl und/oder Halogen und/oder Hydroxy-  
substituiertes, C<sub>6</sub>- bis C<sub>20</sub>-Aryloxy
  - jeweils gegebenenfalls durch Alkyl und/oder Halogen und/oder Brom,  
substituiertes C<sub>7</sub>- bis C<sub>12</sub>-Aralkyl
- 25 - einen Halogen-Rest oder
- einen OH-Rest steht,
- k für eine ganze Zahl von 1 bis 10 steht,
- 30 D) optional Pfropfpolymerisat,

- E) optional Vinyl(Co)Polymerisat und/oder Polyalkylenterephthalat,  
F) optional Zusatzstoffe.
2. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 1 dadurch gekennzeichnet, dass die Anteile der  
5 Komponenten
- A) 40 bis 98 Gew.-Teile  
B) 1 bis 60 Gew.-Teile  
C) 1 bis 20 Gew.-Teile  
D) 0 bis 20 Gew.-Teile  
10 E) 0 bis 20 Gew.-Teile  
F) 0 bis 30 Gew.-Teile
- betragen und wobei die Summe der Gewichtsteile der Zusammensetzung auf 100 normiert  
ist.
- 15
3. Zusammensetzungen gemäß einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet,  
dass die Anteile der Komponenten
- A) 50 bis 85 Gew.-Teile,  
B) 5 bis 45 Gew.-Teile  
20 C) 3 bis 12 Gew.-Teile  
D) 0 bis 10 Gew.-Teile  
E) 0 bis 10 Gew.-Teile  
F) 0,2 bis 10 Gew.-Teile
- 25 betragen und wobei die Summe der Gewichtsteile der Zusammensetzung auf 100 normiert  
ist.
4. Zusammensetzungen gemäß einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet,  
dass der Polyester aus aliphatischen oder aromatischen Diolen und als Dicarbonsäure nur  
30 aus Bernsteinsäure abgeleitet ist.
5. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass die Diole  
aliphatisch sind.
- 35 6. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, dass das Diol Butandiol  
ist.

7. Zusammensetzungen gemäß einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass k für eine ganze Zahl von 1 bis 5 steht.
- 5 8. Zusammensetzungen gemäß einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Anteil der Trimeren (k=1) 50 bis 98 mol.-% der Komponente C ist.
9. Zusammensetzungen gemäß einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass der Anteil der Trimeren (k=1) 70 bis 85 mol.-% der Komponente C ist.
- 10
10. Zusammensetzungen gemäß einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Komponente C ausgewählt ist aus der Gruppe, die Propoxyphosphazene, Phenoxyphosphazene, Methylphenoxyphosphazene, Aminophosphazene und Fluoralkylphosphazene umfasst.
- 15
11. Zusammensetzungen gemäß einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die gewichtsgemittelten Molekulargewichte  $M_w$  der Komponente B zwischen 40 und 500 kg/mol liegen, bestimmt durch Gel-Permeations-Chromatographie gegen Polystyrol als Referenz.
- 20
12. Zusammensetzungen nach einem der vorhergehenden Ansprüche, enthaltend als Komponente F mindestens einen Zusatzstoff ausgewählt aus der Gruppe, die Flammenschutzsynergisten, Antidrippingmittel, Gleit- und Entformungsmittel, Nukleiermittel, Stabilisatoren, Antistatika, Farbstoffe, Pigmente und Füll- und
- 25
- Verstärkungstoffe umfasst.
13. Zusammensetzungen gemäß einem der vorherigen Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Säurekomponente des Polyesters aus nachwachsenden Rohstoffen stammt.
- 30
14. Verwendung von Zusammensetzungen gemäß einem der Ansprüche 1 bis 13 zur Herstellung von spritzgegossenen oder thermogeformten Formkörper.
15. Formkörper erhältlich aus Zusammensetzungen gemäß einem der Ansprüche 1 bis 13.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/EP2015/063769

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
INV. C08L69/00  
ADD.  
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)  
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 practicable, search terms used)  
EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	US 2013/317142 A1 (SHARMA KIRTI [NL]) 28 November 2013 (2013-11-28) examples 1, 3-5	1-15
Y	US 2009/209695 A1 (YU REN [CN] ET AL) 20 August 2009 (2009-08-20) cited in the application examples; paragraphs [0030], [0040]	1-15
A	WO 2015/065611 A1 (SABIC GLOBAL TECHNOLOGIES BV [NL]; ATKINSON PAUL MICHAEL [US]) 7 May 2015 (2015-05-07) example 8 paragraphs [0001], [0002]	1-15
	-/--	

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family 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 application or patent 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  22 February 2016	Date of mailing of the international search report  26/02/2016
---	--

Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer  Scheunemann, Sven
--	---

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/EP2015/063769

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 2 706 090 A1 (FUJI XEROX CO LTD [JP]) 12 March 2014 (2014-03-12) example 6 paragraph [0006] -----	1-15

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2015/063769

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 2013317142	A1	28-11-2013	
		CN 104271672 A	07-01-2015
		CN 104321382 A	28-01-2015
		EP 2855589 A1	08-04-2015
		JP 2015517605 A	22-06-2015
		KR 20150023441 A	05-03-2015
		US 2013317142 A1	28-11-2013
		US 2013331492 A1	12-12-2013
		WO 2013175448 A1	28-11-2013
		WO 2013175454 A1	28-11-2013
-----			
US 2009209695	A1	20-08-2009	NONE
-----			
WO 2015065611	A1	07-05-2015	NONE
-----			
EP 2706090	A1	12-03-2014	
		CN 103665808 A	26-03-2014
		EP 2706090 A1	12-03-2014
		JP 2014074148 A	24-04-2014
		US 2014073726 A1	13-03-2014
-----			

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES INV. C08L69/00 ADD.		
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC		
B. RECHERCHIERTE GEBIETE		
Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) 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, WPI Data		
C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	US 2013/317142 A1 (SHARMA KIRTI [NL]) 28. November 2013 (2013-11-28) Beispiele 1, 3-5 -----	1-15
Y	US 2009/209695 A1 (YU REN [CN] ET AL) 20. August 2009 (2009-08-20) in der Anmeldung erwähnt examples; Absätze [0030], [0040] -----	1-15
A	WO 2015/065611 A1 (SABIC GLOBAL TECHNOLOGIES BV [NL]; ATKINSON PAUL MICHAEL [US]) 7. Mai 2015 (2015-05-07) Beispiel 8 Absätze [0001], [0002] ----- -/-	1-15
<input checked="" type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen <input checked="" type="checkbox"/> 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" frühere Anmeldung oder Patent, die bzw. 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 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	
22. Februar 2016	26/02/2016	
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Bevollmächtigter Bediensteter  Scheunemann, Sven	

C. (Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 2 706 090 A1 (FUJI XEROX CO LTD [JP]) 12. März 2014 (2014-03-12) Beispiel 6 Absatz [0006]  -----	1-15



**INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT**

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2015/063769

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 2013317142 A1	28-11-2013	CN 104271672 A	07-01-2015
		CN 104321382 A	28-01-2015
		EP 2855589 A1	08-04-2015
		JP 2015517605 A	22-06-2015
		KR 20150023441 A	05-03-2015
		US 2013317142 A1	28-11-2013
		US 2013331492 A1	12-12-2013
		WO 2013175448 A1	28-11-2013
		WO 2013175454 A1	28-11-2013
-----			
US 2009209695 A1	20-08-2009	KEINE	
-----			
WO 2015065611 A1	07-05-2015	KEINE	
-----			
EP 2706090 A1	12-03-2014	CN 103665808 A	26-03-2014
		EP 2706090 A1	12-03-2014
		JP 2014074148 A	24-04-2014
		US 2014073726 A1	13-03-2014
-----			