

---

Octrooiraad



⑫ A **Terinzagelegging** ⑪ **8800799**

Nederland

⑲ NL

---

- ⑤④ **Polymeermengsel met aromatisch polycarbonaat, polyester en vlamvertragend middel.**
- ⑤① Int.Cl.: C08L 69/00, C08K 5/02, C08L 67/00.
- ⑦① Aanvrager: General Electric Company te Schenectady, New York, Ver. St. v. Am.
- ⑦④ Gem.: Mr.Ir. F. Grever  
Postbus 117  
4600 AC Bergen op Zoom.

- 
- ②① Aanvraag Nr. 8800799.
- ②② Ingediend 30 maart 1988.
- ③② --
- ③③ --
- ③① --
- ⑥② --

- 
- ④③ Ter inzage gelegd 16 oktober 1989.

De aan dit blad gehechte stukken zijn een afdruk van de oorspronkelijk ingediende beschrijving met conclusie(s) en eventuele tekening(en).

---

1 General Electric Company te Schenectady, New York,  
Verenigde Staten van America.

Aanvraagster noemt als uitvinder : W. ROOVERS.

5

Polymeermengsel met aromatisch polycarbonaat, polyester  
en vlamvertragend middel.

De uitvinding heeft betrekking op een poly-  
10 meermengsel, dat een aromatisch polycarbonaat, een  
polyester en een vlamvertragend middel bevat.

Polymeermengsels die een aromatisch polycar-  
bonaat, een polyester en een vlamvertragend middel  
15 bevatten zijn op zich bekend. Hiervoor kan bij voorbeeld  
worden verwezen naar EP-A-0229957.

In EP-A-0229957 zijn polymeermengsels beschre-  
ven die een aromatisch polycarbonaat, een polyalkyleen-  
20 tereftalaat, een middel dat tegelijkertijd de glans  
verlaagt en de slagsterkte verbetert, en een vlam-  
vertragend middel bevatten.

Als middel voor het verlagen van de glans en  
25 het verbeteren van de slagsterkte wordt een olefine-  
dieen copolymeer zoals bij voorbeeld een EPDM of een  
acrylonitril-butadieen-alkenylaromatisch copolymeer  
toegepast. Als vlamvertragend middel wordt een gehaloge-  
neerde verbinding met name een decabroomdifenyloxyde,  
30 een tetrabroombisphenol-A-bisphenol A copolymeer of een  
tetrabroombisphenol-A-oligomer toegepast.

.. /2

. 8800799

1           Het polymeermengsel zoals beschreven in  
EP-A-0229957 bezit een VO (vlamvertragende  
werking)-kwalificatie bij 1.6 mm, een IZOD notched  
slagsterkte van ten minste ongeveer 10 kgf.cm per cm en  
5 een oppervlakteglans die minder is dan van zuiver  
polycarbonaat.

De uitvinding voorziet in polymeermengsels met  
soortgelijke eigenschappen, waarbij echter geen speciale  
10 middelen voor het verlagen van de oppervlakteglans  
nodig zijn. De keuze van het middel voor het verbeteren  
van de slagsterkte is daardoor ruimer.

Het polymeermengsel volgens de uitvinding  
15 bezit het kenmerk, dat het polymeermengsel als vlam-  
vertragend middel een gehalogeneerde polyvinylaroma-  
tische verbinding of een gehalogeneerde, polycyclische  
koolwaterstofverbinding bevat.

20           In de niet-voorgepubliceerde Nederlandse  
octrooiaanvraag 8703130, zijn polymeermengsels beschreven  
die 60-85 gew.% polybutyleen tereftalaat, 5-20 gew.%  
gebromineerd polystyreen, 5-25 gew. % polycarbonaat en  
5-15 gew.% van een middel voor het verbeteren van de  
25 slagsterkte bevatten. Deze polymeermengsels bezitten een  
goede combinatie van vlamvertragende eigenschappen en  
tracking resistance. Deze bekende polymeermengsels wor-  
den van de conclusies van de onderhavige octrooiaanvraag  
uitgesloten.

30

De uitvinding berust op de ontdekking dat de  
hierboven genoemde vlamvertragende middelen in  
polycarbonaat-polyester mengsels niet alleen tot een  
verbetering van de vlamvertragende eigenschappen leiden,

../3

8800799

1 maar tevens tot een verlaging van de oppervlakteglans  
van voorwerpen gespuitgiet uit het polymeermengsel  
volgens de uitvinding.

5 Het polymeermengsel volgens de uitvinding is  
bij voorkeur zo samengesteld dat dit 30-86 gewichtsdelen  
aromatisch polycarbonaat, 10-50 gewichtsdelen polyester  
en 4-20 gewichtsdelen van het vlamvertragend middel  
bevat, per 100 gewichtsdelen aromatisch polycarbonaat  
10 plus polyester plus vlamvertragend middel.

Wanneer het polymeermengsel volgens de uit-  
vinding minder dan 30 gewichtsdelen aromatisch polycar-  
bonaat bevat wordt het mengsel bros; bij meer dan 86  
15 gewichtsdelen zijn de vlamdovende eigenschappen  
onvoldoende. Bij minder dan 10 gewichtsdelen polyester  
wordt de heat deformation temperature (HDT) voor vele  
toepassingen te hoog; bij meer dan 50 gewichtsdelen  
polyester zijn de mechanische eigenschappen onvoldoende.  
20 Minder dan 4 gewichtsdelen van het vlamvertragend middel  
resulteert in polymeermengsel met onvoldoende vlam-  
dovende eigenschappen; polymeermengsels met meer dan 20  
gewichtsdelen van het vlamvertragend middel vertonen een  
corrosief gedrag.

25

Het polymeermengsel volgens de uitvinding  
bevat bij voorkeur eveneens een middel voor het ver-  
betere van de slagsterkte, zoals bij voorkeur een poly-  
meer opgebouwd uit een rubberachtige kern (core) en een  
30 of meer schillen (shell). Het middel voor het verbeteren  
van de slagsterkte wordt, indien aanwezig, bij voorkeur  
toegepast in een hoeveelheid van 1-20 gewichtsdelen per  
100 gewichtsdelen aromatisch polycarbonaat plus polyester  
plus vlamvertragend middel.

../4

. 880 0799

1 Desgewenst is het mogelijk in het polymeer-  
mengsel volgens de uitvinding een middel voor het  
verlagen van de oppervlakteglans op te nemen.

5 De vlamvertragende eigenschappen en de  
antidripeigenschappen kunnen verder worden verbeterd  
door in het polymeermengsel volgens de uitvinding een  
antimoonoxide en/of een gefluoreerd polyolefine op te  
nemen.

10

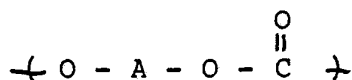
Het is mogelijk in het polymeermengsel volgens  
de uitvinding gebruikelijke hulpstoffen op te nemen.

Het polymeermengsel volgens de uitvinding  
15 bevat in elk geval de volgende bestanddelen :

- A. een aromatisch polycarbonaat en
- B. een polyester en
- C. een gehalogeneerde polyvinylaromatische
- 20 verbinding of een gehalogeneerde, poly-  
cyclische, koolwaterstof verbinding.

A. Aromatisch polycarbonaat.

25 Aromatische polycarbonaten zijn op zich  
bekende polymeren. Ze worden over het algemeen bereid  
door een dihydrische fenolverbinding met een carbonaat  
precursor zoals fosgeen, een halogeenformiaat of een  
carbonaat ester te laten reageren. Aromatische polycar-  
30 bonaten zijn polymeren, die eenheden bevatten met  
formule



waarin A een tweewaardige aromatische radicaal  
35 voorstelt, die is afgeleid van het dihydrische fenol,  
dat bij de bereiding van het polymeer is toegepast.

../5

8800799

1 Als dihydrische fenolen kunnen bij de bereiding van  
de aromatische polycarbonaten mononucleaire of poly-  
nucleaire aromatische verbindingen worden toegepast,  
die twee hydroxy radicalen bevatten, die ieder direkt  
5 aan een koolstofatoom van een aromatische nucleus zijn  
verbonden.

Ook geschikt zijn de op zich bekende vertakte  
(branched) polycarbonaten zoals bijvoorbeeld beschreven  
10 in US-A-4,001,184.

Geschikte aromatische polycarbonaten zijn ook  
de zogenaamde polyestercarbonaten, die worden verkregen  
door de polymerisatiereactie uit te voeren in aanwezig-  
15 heid van een ester precursor zoals een difunctioneel  
carbonzuur zoals bijvoorbeeld tereftaalzuur of een  
ester vormend derivaat daarvan. Deze polyestercar-  
bonaten bezitten in de polymere keten ester- en  
carbonaatverbindingen. Polyestercarbonaten zijn bij-  
20 voorbeeld beschreven in US-A-3,169,121.

#### B. Polyester

Als polyester worden in het polymeermengsel  
25 volgnies de uitvinding bij voorkeur polyalkyleenftalaat  
esters toegepast. Met poly-alkyleenftalaat esters worden  
de condensatieprodukten bedoeld van een of meer diolver-  
bindingen en een of meer ftaalzuren. Geschikte diolver-  
bindingen zijn bijvoorbeeld ethaandiol, butaandiol,  
30 hexaandiol, cyclohexaandimethanol, diethyleenglycol,  
triethyleenglycol en etherdiolverbindingen met de alge-  
mene formule  $H-O-(CH_2)_n-O$ . Geschikte ftaalzuren  
zijn tereftaalzuur en isoftaalzuur.

../6

8800799

1 In de polyalkyleenftalaat esters, die in de  
polymeermengsels volgens de uitvinding kunnen worden  
toegepast, kan tot 20 mol% van de diolverbinding worden  
vervangen door bijvoorbeeld aromatische diolverbin-  
5 dingen en/of onverzadigde diolverbindingen en/of tri-ol  
of tetra-ol verbindingen. Tot 20 mol% van het ftaalzuur  
kan worden vervangen door andere dicarbonsuren zoals  
alifatische dicarbonsuren bijvoorbeeld adipinezuur,  
1,4-cyclohexaandicarbonsuur.

10

Bijzonder geschikt voor de polymeermengsels  
volgens de uitvinding zijn de polyalkyleenftalaat  
esters, waarvan de alkyleen eenheden voor meer dan 80  
mol% zijn afgeleid van 1,4-butaandiol en waarvan de  
15 ftalaat eenheden voor meer dan 80 mol% zijn afgeleid  
van tereftaalzuur. Geschikt zijn polybutyleenteref-  
talaat esters met een intrinsieke viscositeit van 0.7  
tot 2.0, bij voorkeur van 0.7-1.5 dl/g (gemeten in een  
60/40 mengsel van fenol/tetrachloorethaan bij 25°C).

20

Ook geschikt zijn copolyesters afgeleid van  
een diol bestaande uit 1,4-cyclohexaandimethanol en/of  
ethyleenglycol en van een ftaalzuur bestaande uit  
tereftaalzuur of een mengsel van isoftaalzuur en  
25 tereftaalzuur.

Het is verder mogelijk een mengsel van twee of  
meer polyalkyleenftalaat esters toe te passen.

30

C. Gehalogeneerde polyvinylaromatische verbinding of  
gehalogeneerde, polycyclische koolwaterstofverbinding.

Het polymeermengsel volgens de uitvinding bevat  
35 als vlamvertragend middel ten minste een van de hier-  
boven genoemde halogeen bevattende verbindingen.

../7

€ 8800799

- 1 Dit zijn op zich bekende vlamvertragende middelen voor kunststoffen. Het was echter niet bekend dat deze middelen de glans van voorwerpen vervaardigd uit polycarbonaat-polyester mengsels kan verlagen.
- 5 Geschikte gehalogeneerde polyvinylaromatische verbindingen zijn bij voorbeeld gebromineerde polystyrenen. Deze produkten zijn in de handel verkrijgbaar. Als gehalogeneerde, polycyclische produkten kunnen bijvoorbeeld genoemd worden dodecachloro-dodecahydro-dimethano-
- 10 dibenzo-cyclo octaan, hexachlorocyclopentadien, 5,5-dimethoxy-tetrachlorocyclopentadien en hexabromocyclopentadien.

Het polymeermengsel volgens de uitvinding bevat

15 behalve de hierboven genoemde bestanddelen bij voorkeur tevens een middel voor het verbeteren van de slagsterkte.

Alle bekende middelen voor het verbeteren van de slagsterkte van polymeermengsels die een aromatisch

20 polycarbonaat en een polyalkyleentereftalaat bevatten kunnen in het polymeermengsel volgens de uitvinding worden toegepast.

Als middel voor het verbeteren van de

25 slagsterkte wordt in het polymeermengsel volgens de uitvinding bij voorkeur een in meerdere stappen bereid kern-schil polymeer toegepast bestaande uit een rubberachtige kern waarop een of meer schillen zijn geënt (grafted). De rubberachtige kern kan zijn opgebouwd uit

30 rubberachtige polyacrylaten, of uit rubberachtige polydienen zoals polybutadien. De rubberachtige kern kan comonomeren bevatten zoals styrenen, acrylonitril. Op de kern zijn monomeren geënt, bij voorbeeld acrylaten en/of styreen verbindingen en/of acrylonitril.

../8

. 8800799

1                   Het is mogelijk aan het polymoermengsel  
volgens de uitvinding een middel voor het verlagen van  
de oppervlakteglans toe te voegen. Over het algemeen is  
dat meestal niet nodig. Dergelijke middelen kunnen  
5 echter bijdragen tot een verdere verlaging van de glans  
wanneer dat nodig mocht zijn. Alle bekende middelen voor  
het verlagen van de glans van kunststoffen zoals anorga-  
nische verbindingen en polymeer additieven kunnen wor-  
den toegepast. Geschikte polymeeradditieven zijn bij  
10 voorbeeld beschreven in DE-A-2439542.

Behalve de hierboven genoemde bestanddelen kan  
het polymoermengsel volgens de uitvinding een of meer  
van de voor polycarbonaat-polyester bekende bestanddelen  
15 bevatten zoals een polyolefine, een of meer stabilisa-  
toren, kleurstoffen, pigmenten, versterkende vezels  
zoals glasvezels en losmiddelen (release agents).

Het polymoermengsel volgens de uitvinding kan  
20 volgens bekende technieken worden verkregen bij voor-  
beeld door de bestanddelen in de smelt met elkaar te  
mengen. Bij voorkeur worden de bestanddelen in een  
extrusiemachine gecompoundeerd.

25 Voorbeelden

Bij de voorbeelden werden de volgende bestanddelen  
toegepast.

30 PC : een aromatisch polycarbonaat afgeleid van bis-  
fenol A en fosgeen, met een intrinsieke viscosi-  
teit van 49 ml/g, gemeten in methyleenchloride  
bij 25°C.

PBT : een polybutyleen tereftalaat polyester met en  
35 intrinsieke viscositeit van 86 ml/g, gemeten in  
een 60/40 fenol/tetrachloorethaanmengsel bij  
25°C.

../9

8800799

- 1 PET : een polyethyleen tereftalaat polyester met een  
intrinsieke viscositeit van 73 ml/g, gemeten  
in een 60/40 fenol/tetrachloorethaanmengsel  
bij 30°C.
- 5 JM : een middel voor het verbeteren van de  
slagsterkte, opgebouwd uit een rubberachtige kern  
hoofdzakelijk bestaande uit een butadiëenrubber  
en een schil hoofdzakelijk bestaande uit  
10 methacrylaat en styreen.
- PE : polyethyleen.
- ST : een mengsel van verschillende stabilisatoren.
- 15 KSl : roet.
- KS2 : een 100:1 mengsel van titaandioxide en roet.
- 20 FR1 : een in de handel verkrijgbaar gehalogeneerde  
polyvinylaromatische verbinding namelijk een  
gebromineerde polystyreen met een broomgehalte  
van 68,5 gewichtsprocent en verwekingspunt van  
ongeveer 220°C.
- 25 FR2 : een in de handel verkrijgbaar gehalogeneerde  
polycyclische koolwaterstof-verbinding namelijk  
dodecachloro-dodecahydro-dimethano-dibenzo-cyclo-  
octaan.
- 30 FR3 : een copolymeer van gebromineerde bisphenol A -  
bisphenol en fosgeen, gemengd met  $Sb_2O_3$  en EVA  
(verhouding 67/20/13).
- 35 AD : een mengsel van  $Sb_2O_3$  en EVA (85/15).

- 1 T : een gefluoreerde polyolefine, in de handel  
verkrijgbaar onder de merknaam Teflon®.
- 5 MA : een in de handel verkrijgbaar copolymeer additief  
voor het verlagen van de glans, grotendeels opge-  
bouwd uit eenheden afgeleid van methylmethacry-  
laat en styreen, volgens DE-A-2439542.

10 De bestanddelen werden in de hoeveelheden  
zoals aangegeven in de hieronder volgende tabel in een  
extrusie machine ingesteld op een gemiddelde insteltem-  
peratuur van 235°C gecompoundeerd. Het verkregen  
extrudaat werd tot pellets gehakt. Uit de pellets wer-  
15 den proefstukjes vervaardigd (door spuitgieten) voor  
het bepalen van de kerfslagwaarde, volgens Izod, de  
glans, de vlamvertragende eigenschappen volgens UL 94.  
De glans werd bepaald volgens ASTM D 523-85, onder een  
hoek van 60°.

20

De verkregen resultaten zijn eveneens in de  
hieronder volgende tabel opgenomen.

TABEL.

Voorbeeld.	A	B	C	I	II	III	IV	V	VI	VII
Samenstelling (Gewichtsdelen)										
o PC	77.5	48.3	68.5	62.4	57.4	63.1	56.1	66.4	53.4	48.4
o PBT	15	-	-	15	15	15	15	15	-	-
o PET	-	21	21	-	-	-	-	-	21	21
o IM	4	7	7	4	4	4	4	4	7	7
o PE	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2
o ST	0.6	0.5	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6
o KSl	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	-	-	-	0.9	0.9
o KS2	-	-	-	-	-	1.0	1.0	1.0	-	-
o FR1	-	-	-	11	11	11	11	11	11	11
o FR2	-	-	-	-	-	14	-	-	-	-
o FR3	-	20	-	-	-	-	-	-	-	-
o AD	-	-	-	3.5	3.5	-	-	-	3.5	3.5
o T	-	0.3	-	0.6	0.6	0.3	0.3	-	0.6	0.6
o MA	-	-	-	-	5	-	10	-	-	5

Eigenschappen

Kerslagwaarde J/m	657	538	600	393	150	493	243	499	498	146
Glans 60° (%)	100	100	100	85	77	78	52	72	87	71
SE 1.6 mm	-	VO	-	VO	VO	V1	V2	V2	VO	VO
1.0 mm	-	-	-	-	-	V1	V2	VO	-	-

1           Uit de resultaten van de tabel kan men zien  
dat het toevoegen van de vlamvertragende middelen  
volgens de uitvinding (FR1 en FR2) niet alleen tot ver-  
betering van de vlamdovendheid leidt maar tevens tot  
5   verlaging van de glans.

Dit effect wordt niet verkregen met de  
toevoeging van FR3.

10           Een verdere verlaging van de glans kan men  
bereiken door het toevoegen van een copolymeer additief  
(MA).

15

20

25

30

Conclusies.

- 1 1. Polymeermengsel dat een aromatisch polycarbonaat, een polyester en een vlamvertragend middel bevat, met het kenmerk, dat het polymeermengsel als vlamvertragend middel een gehalogeneerde polyvinylaromatische verbinding of een gehalogeneerde polycyclische koolwaterstof verbinding bevat.
- 5
2. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat het polymeermengsel bovendien een middel voor het verbeteren van de slagsterkte bevat.
- 10
3. Polymeermengsel volgens conclusie 2, met het kenmerk, dat het polymeermengsel als middel voor het verbeteren van de slagsterkte een polymeer bevat opgebouwd uit een rubberachtige kern (core) en een of meer schillen (shell).
- 15
4. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat het polymeermengsel bovendien een middel voor het verlagen van de oppervlakteglans bevat.
- 20
5. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat het polymeermengsel bovendien een antimoonoxide en/of een gefluoreerd polyolefine bevat.
- 25

Conclusies. (vervolg)

- 1 6. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat het polymeermengsel bovendien een of meer van de volgende bestanddelen bevat :
- 5 a. een middel voor het verbeteren van de slagsterkte en/of
- b. een polyolefine en/of
- c. een of meer stablisatoren en/of
- d. kleurstoffen en/of pigmenten en/of
- e. versterkende vezels en/of
- 10 f. een losmiddel.
7. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat het polymeermengsel 30-86 gewichtsdelen aromatisch polycarbonaat en 15 10-50 gewichtsdelen polyester en 4-20 gewichtsdelen vlamvertragend middel bevat per 100 gewichtsdelen aromatisch polycarbonaat plus polyester plus vlamvertragend middel.
- 20 8. Polymeermengsel volgens conclusie 7, met het kenmerk dat het polymeermengsel 1-20 gewichtsdelen per 100 gewichtsdelen aromatisch polycarbonaat plus polyester plus vlamvertragend middel van een middel voor het verbeteren van de slagsterkte bevat.

25

30

../15

8800799

Samenvatting.

- 1 De uitvinding heeft betrekking op polymeer-  
mengsels die een aromatisch polycarbonaat, een polyester  
en een vlamvertragend middel bevatten. Door de keuze van  
bepaalde vlamvertragende middelen, namelijk een gehalo-  
5 geneerde polyvinylaromatische verbinding of een gehalo-  
geneerde polycyclische koolwaterstof verbinding, wordt  
een polymeermengsel verkregen dat niet alleen goede  
vlam-eigenschappen bezit, maar bovendien de volgende  
eigenschappen bezit : voorwerpen gespuitgiet uit het  
10 polymeermengsel volgens de uitvinding bezitten een  
oppervlak met verlaagde glans.

. 8800799