



(19)  
Bundesrepublik Deutschland  
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 10 2006 055 478 A1** 2008.05.29

(12)

## Offenlegungsschrift

(21) Aktenzeichen: **10 2006 055 478.7**

(22) Anmeldetag: **24.11.2006**

(43) Offenlegungstag: **29.05.2008**

(51) Int Cl.<sup>8</sup>: **C08L 69/00** (2006.01)

*C08L 51/00* (2006.01)

*C08L 55/02* (2006.01)

*C08K 7/28* (2006.01)

*C08K 13/02* (2006.01)

*C08K 5/49* (2006.01)

*C08L 25/04* (2006.01)

*C08L 67/02* (2006.01)

(71) Anmelder:

**Bayer MaterialScience AG, 51373 Leverkusen, DE**

(72) Erfinder:

**Eckel, Thomas, Dr., 41540 Dormagen, DE;**

**Feldermann, Achim, Dr., 40477 Düsseldorf, DE;**

**Seidel, Andreas, Dr., 41542 Dormagen, DE;**

**Buchholz, Vera, Dr., 50823 Köln, DE; Keller, Bernd,**

**47608 Geldern, DE**

**Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen**

(54) Bezeichnung: **Schlagzähmodifizierte gefüllte Polycarbonat-Zusammensetzungen**

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft gefüllte, schlagzähmodifizierte Polycarbonat-Zusammensetzungen enthaltend

A) 10-90 Gew.-Teile aromatisches Polycarbonat und/oder aromatisches Polyestercarbonat,

B) 0,5-30 Gew.-Teile kautschukmodifiziertes Pfropfpolymerisat,

C) 0,1-50 Gew.-Teile Hohlglaskugeln,

D) 0-20 Gew.-Teile phosphorhaltiges Flammschutzmittel,

E) 0-40 Gew.-Teile Vinyl(Co)Polymerisat (E.1) und/oder Polyalkylenterephthalat (E.2), und

F) 0-10 Gew.-Teile Zusatzstoffe,

welche sich durch eine verbesserte Fließfähigkeit, eine hohe Steifigkeit und eine geringe Verarbeitungsschwindigkeit bei unverändert hoher Kratzfestigkeit auszeichnen, ein Verfahren zu ihrer Herstellung, ihre Verwendung zur Herstellung von Formkörpern und Formkörper erhältlich aus oben genannten Zusammensetzungen.

**Beschreibung**

**[0001]** Die vorliegende Erfindung betrifft schlagzähmodifizierte gefüllte Polycarbonat-Zusammensetzungen und Formmassen, die erhöhten Anforderungen an mechanischen Eigenschaftsprofil erfüllen und ein verbessertes Fließverhalten bei der Verarbeitung aufweisen, ein Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung zur Herstellung von Formkörpern.

**[0002]** In JP-A 11-199768 werden Polycarbonat/ABS-Elends beschrieben, die mit monomeren und oligomeren Phosphorsäureestern flammwidrig ausgerüstet sind, wobei die Flammwidrigkeit durch Zusatz eines anorganischen Füllstoffs, wie z.B. Talk deutlich verbessert wird. Allerdings wirkt sich der anorganische Füllstoff im Allgemeinen nachteilig auf die mechanischen Eigenschaften, insbesondere auf die Zähigkeit des Polymerblends aus.

**[0003]** JP-A 05-070653 beschreibt Glasshohlkugeln mit hoher Druckfestigkeit als Additiv in Maleinimidmodifizierten ABS-Formmassen. Die Formmassen haben eine reduzierte Dichte, einen hohen Biegemodul und gute Wärmeformbeständigkeit. Über ein günstiges Fließverhalten, ein verringerte Schwindung oder eine erhöhte Kratzfestigkeit wird nicht berichtet.

**[0004]** In EP-A 198 648 werden thermoplastische Formmassen offenbart, die einen kugelförmigen hohlen Füllstoff enthalten mit einer Teilchengröße kleiner 500 µm. Der Füllstoff hat ein Verhältnis von äußeren Durchmesser zu Wanddicke von 2,5–10 und führt zu einer Erhöhung der Steifigkeit und Festigkeit bei niedrigem Gewicht. Die Kratzfestigkeit oder Fließfähigkeit solcher Formmassen wird nicht beschrieben.

**[0005]** EP-A 391 413 beschreibt die Verwendung von Talk als Füllstoff in schlagzähmodifizierten Polycarbonat. Ein Einfluss auf die Kratzfestigkeit oder die Verarbeitungsschwindigkeit wird nicht beschrieben.

**[0006]** Hochkratzfeste Formmassen sind bekannt. Beispielsweise werden in DE-A 2 721 887 Formmassen aus einem Thermoplasten und Vollglaskugeln offenbart. Folien aus diesem Material haben eine gute Lichtdurchlässigkeit und Kratzfestigkeit. Über die Fließfähigkeit, Steifigkeit oder Verarbeitungsschwindigkeit dieser Formmassen wird nichts berichtet. Diese Formmassen haben aber den Nachteil, dass die Vollglaskugeln die Dichte der thermoplastischen Formmassen erhöhen.

**[0007]** Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist die Bereitstellung einer Formmasse, welche sich durch eine verbesserte Fließfähigkeit, eine hohe Steifigkeit und eine geringe Verarbeitungsschwindigkeit bei unverändert hoher Kratzfestigkeit auszeichnet. Die Formmassen können auch flammwidrig ausgestattet sein.

**[0008]** Es wurde überraschend gefunden, dass Zusammensetzungen enthaltend

- A) 10–90 Gew.-Teile, bevorzugt 50–85 Gew.-Teile aromatisches Polycarbonat und/oder aromatisches Polyestercarbonat,
- B) 0,5–30 Gew.-Teile, bevorzugt 1–25 Gew.-Teile, besonders bevorzugt 2–20 Gew.-Teile kautschukmodifiziertes Pfropfpolymerisat,
- C) 0,1–50 Gew.-Teile, bevorzugt 0,5–20 Gew.-Teile, besonders bevorzugt 4–8 Gew.-Teile hohle Glaskugeln (im Folgenden auch als Hohlglaskugeln bezeichnet),
- D) 0–20 Gew.-Teile, bevorzugt 1–18 Gew.-Teile, besonders bevorzugt 2–16 Gew.-Teile phosphorhaltiges Flammschutzmittel,
- E) 0–40 Gew.-Teile, bevorzugt 1–E.1)30 Gew.-Teile Vinyl(Co)Polymerisat (und/oder Polyalkylenterephthalat (E.2), und
- F) 0–10 Gew.-Teile, bevorzugt 0,5–5 Gew.-Teile Zusatzstoffe,

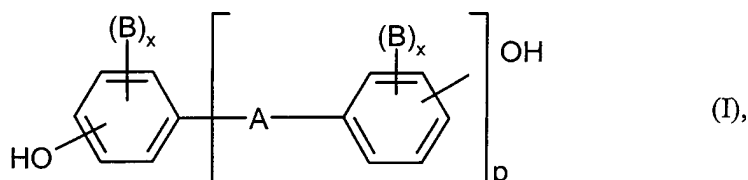
wobei alle Gewichtsteilangaben in der vorliegenden Anmeldung so normiert sind, dass die Summe der Gewichtsteile aller Komponenten in der Zusammensetzung 100 ergeben, das gewünschte Eigenschaftsprofil aufweisen.

**Komponente A**

**[0009]** Erfindungsgemäß geeignete aromatische Polycarbonate und/oder aromatische Polyestercarbonate 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 Polyestercarbonate, z. B. DE-A 3 077 934).

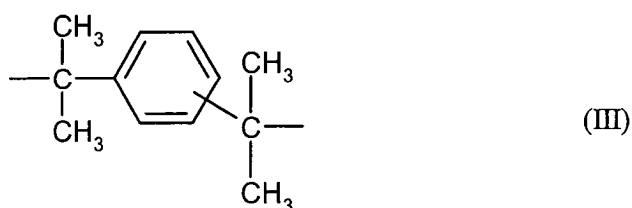
**[0010]** Die Herstellung aromatischer Polycarbonate erfolgt z. B. durch Umsetzung von Diphenolen mit Kohlen säurehalogeniden, vorzugsweise Phosgen und/oder mit aromatischen Dicarbonsäuredihalogeniden, vorzugsweise Benzoldicarbonsäuredihalogeniden, nach dem Phasengrenzflächenverfahren, gegebenenfalls unter Verwendung von Kettenabbruchern, beispielsweise Monophenolen und gegebenenfalls unter Verwendung von trifunktionellen oder mehr als trifunktionellen Verzweigern, beispielsweise Triphenolen oder Tetraphenolen. Ebenso ist eine Herstellung über ein Schmelzpolymerisationsverfahren durch Umsetzung von Diphenolen mit beispielsweise Diphenylcarbonat möglich.

**[0011]** Diphenole zur Herstellung der aromatischen Polycarbonate und/oder aromatischen Polyestercarbonate sind vorzugsweise solche der Formel (I)



wobei

A eine Einfachbindung, C<sub>1</sub> bis C<sub>5</sub>-Alkylen, C<sub>2</sub> bis C<sub>5</sub>-Alkyliden, C<sub>5</sub> bis C<sub>6</sub>-Cycloalkyliden, -O-, -SO-, -CO-, -S-, -SO<sub>2</sub>-, C<sub>6</sub> bis C<sub>12</sub>-Arylen, an das weitere aromatische gegebenenfalls Heteroatome enthaltende Ringe kondensiert sein können, oder ein Rest der Formel (II) oder (III)



B jeweils C<sub>1</sub> bis C<sub>12</sub>-Alkyl, vorzugsweise Methyl, Halogen, vorzugsweise Chlor und/oder Brom

x jeweils unabhängig voneinander 0, 1 oder 2,

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

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.

**[0012]** 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 α,α-Bis-(hydroxyphenyl)-diisopropylbenzole sowie deren kernbromierte und/oder kernchlorierte Derivate.

**[0013]** 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). Es können die Diphenole einzeln oder als beliebige Mischungen eingesetzt werden. Die Diphenole sind literaturbekannt oder nach literaturbekannten Verfahren erhältlich.

**[0014]** 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 Monoalkylphenol 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 Kettenabbrechern beträgt im allgemeinen zwischen 0,5 Mol%, und 10 Mol%, bezogen auf die Molsumme der jeweils eingesetzten Diphenole.

**[0015]** Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate haben mittlere Gewichtsmittelmolekulargewichte ( $M_w$ , gemessen z. B. durch GPC, Ultrazentrifuge oder Streulichtmessung) von 10.000 bis 200.000 g/mol, vorzugsweise 15.000 bis 80.000 g/mol, besonders bevorzugt 24.000 bis 32.000 g/mol.

**[0016]** 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.

**[0017]** 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.

**[0018]** 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.

**[0019]** Aromatische Dicarbonsäuredihalogenide zur Herstellung von aromatischen Polyestercarbonaten sind vorzugsweise die Disäuredichloride der Isophthalsäure, Terephthalsäure, Diphenylether-4,4'-dicarbonsäure und der Naphthalin-2,6-dicarbonsäure.

**[0020]** Besonders bevorzugt sind Gemische der Disäuredichloride der Isophthalsäure und der Terephthalsäure im Verhältnis zwischen 1:20 und 20:1.

**[0021]** Bei der Herstellung von Polyestercarbonaten wird zusätzlich ein Kohlensäurehalogenid, vorzugsweise Phosgen, als bifunktionelles Säurederivat mit verwendet.

**[0022]** Als Kettenabbrecher für die Herstellung der aromatischen Polyestercarbonate kommen außer den bereits genannten Monophenolen noch deren Chlorkohlensäureester sowie die Säurechloride von aromatischen Monocarbonsäuren, die gegebenenfalls durch  $C_1$  bis  $C_{22}$ -Alkylgruppen oder durch Halogenatome substituiert sein können, sowie aliphatische  $C_2$  bis  $C_{22}$ -Monocarbonsäurechloride in Betracht.

**[0023]** Die Menge an Kettenabbrechern beträgt jeweils 0,1 bis 10 Mol%, bezogen im Falle der phenolischen Kettenabbrecher auf Mol Diphenol und im Falle von Monocarbonsäurechlorid-Kettenabbrecher auf Mol Dicarbonsäuredichlorid. Die aromatischen Polyestercarbonate können auch aromatische Hydroxycarbonsäuren eingebaut enthalten.

**[0024]** 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).

**[0025]** Als Verzweigungsmittel können beispielsweise drei- oder mehrfunktionelle Carbonsäurechloride, wie 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)-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'-di-

hydroxytri-phenyl)-methyl]-benzol, in Mengen von 0,01 bis 1,0 Mol% bezogen auf eingesetzte Diphenole verwendet werden. Phenolische Verzweigungsmittel können mit den Diphenolen vorgelegt, Säurechlorid-Verzweigungsmittel können zusammen mit den Säuredichloriden eingetragen werden.

**[0026]** In den thermoplastischen, aromatischen Polyestercarbonaten kann der Anteil an Carbonatstruktureinheiten beliebig variieren. Vorzugsweise beträgt der Anteil an Carbonatgruppen bis 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.

**[0027]** Die relative Lösungsviskosität ( $\eta_{rel}$ ) der aromatischen Polycarbonate und Polyestercarbonate liegt im Bereich 1,18 bis 1,4, vorzugsweise 1,20 bis 1,32 (gemessen an Lösungen von 0,5 g Polycarbonat oder Polyestercarbonat in 100 ml Methylenchlorid-Lösung bei 25°C).

**[0028]** Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate und Polyestercarbonate können allein oder im beliebigen Gemisch eingesetzt werden.

#### Komponente B

**[0029]** Die Komponente B umfasst ein oder mehrere Pfropfpolymerisate von  
 B.1 5 bis 95, vorzugsweise 30 bis 90 Gew.-%, wenigstens eines Vinylmonomeren auf  
 B.2 95 bis 5, vorzugsweise 70 bis 10 Gew.-% einer oder mehrerer Pfropfgrundlagen mit Glastibergangstemperaturen < 10°C, vorzugsweise < 0°C, besonders bevorzugt < -20°C.

**[0030]** Die Pfropfgrundlage B.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  $\mu\text{m}$ .

**[0031]** Monomere B.1 sind vorzugsweise Gemische aus  
 B.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 Methylmethacrylat, Ethylmethacrylat), und  
 B.1.2 1 bis 50 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 Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren, beispielsweise Maleinsäureanhydrid und N-Phenyl-Maleinimid.

**[0032]** Bevorzugte Monomere B.1.1 sind ausgewählt aus mindestens einem der Monomere Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol und Methylmethacrylat, bevorzugte Monomere B.1.2 sind ausgewählt aus mindestens einem der Monomere Acrylnitril, Maleinsäureanhydrid und Methylmethacrylat. Besonders bevorzugte Monomere sind B.1.1 Styrol und B.1.2 Acrylnitril.

**[0033]** Für die Pfropfpolymerisate B geeignete Pfropfgrundlagen B.2 sind beispielsweise Dienkautschuke, EP(D)M-Kautschuke, also solche auf Basis Ethylen/Propylen und gegebenenfalls Dien, Acrylat-, Polyurethan-, Silikon-, Chloropren und Ethylen/Vinylacetat-Kautschuke.

**[0034]** Bevorzugte Pfropfgrundlagen B.2 sind Dienkautschuke, beispielsweise auf Basis Butadien und Isopren, oder Gemische von Dienkautschuken oder Copolymerisate von Dienkautschuken oder deren Gemischen mit weiteren copolymerisierbaren Monomeren (z.B. gemäß B.1.1 und B.1.2), mit der Maßgabe, dass die Glasübergangstemperatur der Komponente B.2 unterhalb < 10°C, vorzugsweise < 0°C, besonders bevorzugt < -10°C liegt. Besonders bevorzugt ist reiner Polybutadienkautschuk.

**[0035]** Besonders bevorzugte Polymerisate B 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. Der Gelanteil der Pfropfgrundlage B.2 beträgt mindestens 30 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 40 Gew.-% (in Toluol gemessen).

**[0036]** Die Pfropfcopolymerisate B werden durch radikalische Polymerisation, z.B. durch Emulsions-, Suspensions-, Lösungs- oder Massepolymerisation, vorzugsweise durch Emulsions- oder Massepolymerisation hergestellt.

**[0037]** 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.

**[0038]** Da bei der Pflropfreaktion die Pflropfmonomeren bekanntlich nicht unbedingt vollständig auf die Pflropfgrundlage aufgepfropft werden, werden erfindungsgemäß unter Pflropfpolymerisaten B auch solche Produkte verstanden, die durch (Co)Polymerisation der Pflropfmonomere in Gegenwart der Pflropfgrundlage gewonnen werden und bei der Aufarbeitung mit anfallen.

**[0039]** Geeignete Acrylatkautschuke gemäß B.2 der Polymerisate B sind vorzugsweise Polymerisate aus Acrylsäurealkylestern, gegebenenfalls mit bis zu 40 Gew.-%, bezogen auf B.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.

**[0040]** 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, 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, Triacryloylhexahydro-s-triazin, Triallylbenzole. Die Menge der vernetzten Monomere beträgt vorzugsweise 0,02 bis 5, insbesondere 0,05 bis 2 Gew.-%, bezogen auf die Pflropfgrundlage B.2. Bei cyclischen vernetzenden Monomeren mit mindestens drei ethylenisch ungesättigten Gruppen ist es vorteilhaft, die Menge auf unter 1 Gew.-% der Pflropfgrundlage B.2 zu beschränken.

**[0041]** Bevorzugte "andere" polymerisierbare, ethylenisch ungesättigte Monomere, die neben den Acrylsäureestern gegebenenfalls zur Herstellung der Pflropfgrundlage B.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 Pflropfgrundlage B.2 sind Emulsionspolymerisate, die einen Gelgehalt von mindestens 60 Gew.-% aufweisen.

**[0042]** Weitere geeignete Pflropfgrundlagen gemäß B.2 sind Silikonkautschuke mit pflropfaktiven 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.

**[0043]** Der Gelgehalt der Pflropfgrundlage B.2 wird bei 25°C in einem geeigneten Lösungsmittel bestimmt (M. Hoffmann, H. Krämer, R. Kuhn, Polymeranalytik I und II, Georg Thieme-Verlag, Stuttgart 1977).

**[0044]** Die mittlere Teilchengröße  $d_{50}$  ist der Durchmesser, oberhalb und unterhalb dessen jeweils 50 Gew.-% der Teilchen liegen. Er kann mittels Ultrazentrifugenmessung (W. Scholtan, H. Lange, Kolloid, Z. und Z. Polymere 250 (1972), 782–1796) bestimmt werden.

#### Komponente C

**[0045]** Erfindungsgemäße hohle Glaskugeln (Hohlglaskugeln) bestehen bevorzugt aus Borosilikatglas, welches vorzugsweise alkaliarm ist. Besonders bevorzugte Hohlglaskugeln sind dadurch gekennzeichnet, dass der Gehalt an Alkalimetalloxiden (vorzugsweise Natriumoxid) 1–10 Gew.-%, bevorzugt 3–8 Gew.-%, der Gehalt an Erdalkalimetalloxiden (vorzugsweise Calciumoxid) 5–20 Gew.-%, bevorzugt 8–15 Gew.-%, und der Gehalt an Boroxiden 1–10 Gew.-%, bevorzugt 2–6 Gew.-% beträgt.

**[0046]** Vorzugsweise haben die Hohlglaskugeln eine Dichte von 0,2–0,8 g/cm<sup>3</sup>, bevorzugt 0,4–0,7 g/cm<sup>3</sup>, besonders bevorzugt 0,55–0,65 g/cm<sup>3</sup> auf und haben einen mittleren Teilchendurchmesser ( $d_{50}$ ) von 1–200  $\mu$ m, bevorzugt 5–100  $\mu$ m, besonders bevorzugt 15–50  $\mu$ m.

**[0047]** Insbesondere sind diejenigen Glashohlkugeln bevorzugt, die sich durch eine hohe Druckfestigkeit von 10–200 MPa, bevorzugt 40–150 MPa auszeichnen. Bei der angegebenen Druckfestigkeit handelt es sich um die Festigkeit gegenüber einem isostatischen Druck, bei dem mindestens 80% der Kugeln unbeschädigt blei-

ben, wenn sie dem genannten Druck in einer Flüssigkeitssäule ausgesetzt werden.

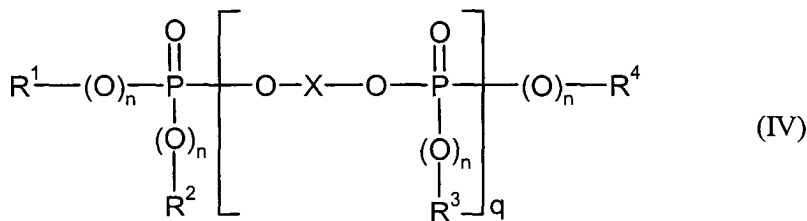
**[0048]** Die erfindungsgemäßen Hohlglaskugeln können oberflächenbehandelt, z.B. silanisiert sein, um eine bessere Verträglichkeit mit dem Polymer zu gewährleisten.

**[0049]** Die mittlere Teilchengröße  $d_{50}$  ist der Durchmesser, oberhalb und unterhalb dessen jeweils 50 Gew.-% der Teilchen liegen. Er kann mittels Ultrazentrifugenmessung (W. Scholtan, H. Lange, Kolloid, Z. und Z. Polymere 250 (1972), 782–1796) bestimmt werden.

#### Komponente D

**[0050]** Phosphorhaltige Flammschutzmittel (D) im erfindungsgemäßen Sure sind bevorzugt ausgewählt aus den Gruppen der Mono- und oligomeren Phosphor- und Phosphonsäureester, Phosphonatamine und Phosphazene, wobei auch Mischungen von mehreren Komponenten ausgewählt aus einer oder verschiedenen dieser Gruppen als Flammschutzmittel zum Einsatz kommen können. Auch andere hier nicht speziell erwähnte halogenfreie Phosphorverbindungen können alleine oder in beliebiger Kombination mit anderen halogenfreien Phosphorverbindungen eingesetzt werden.

**[0051]** Bevorzugte Mono- und oligomere Phosphor- bzw. Phosphonsäureester sind Phosphorverbindungen der allgemeinen Formel (IV)



worin

$\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$ , unabhängig voneinander jeweils gegebenenfalls halogeniertes  $\text{C}_1$  bis  $\text{C}_6$ -Alkyl, jeweils gegebenenfalls durch Alkyl, vorzugsweise  $\text{C}_1$  bis  $\text{C}_4$ -Alkyl, und/oder Halogen, vorzugsweise Chlor, Brom, substituiertes  $\text{C}_5$  bis  $\text{C}_6$ -Cycloalkyl,  $\text{C}_6$  bis  $\text{C}_2\text{O}$ -Aryl oder  $\text{C}_7$  bis  $\text{C}_{12}$ -Aralkyl,

$n$  unabhängig voneinander, 0 oder 1,

$q$  0 bis 30 und

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

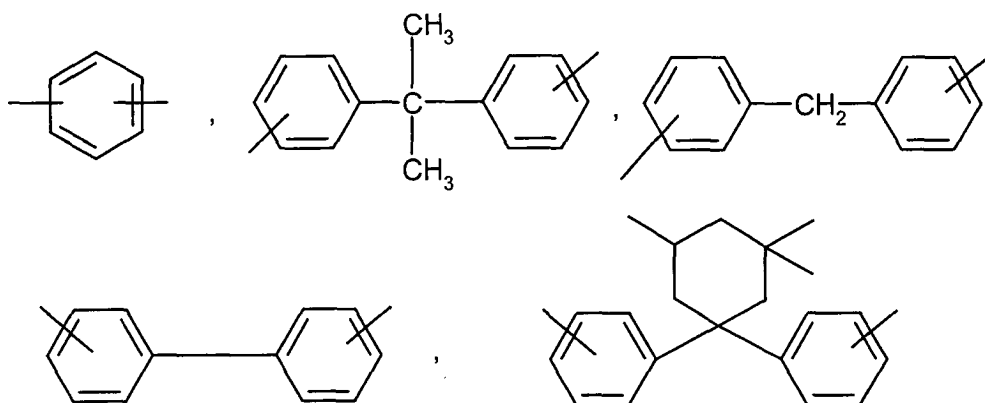
**[0052]** Bevorzugt stehen  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$  unabhängig voneinander für  $\text{C}_1$  bis  $\text{C}_4$ -Alkyl, Phenyl, Naphthyl oder Phenyl- $\text{C}_1$ - $\text{C}_4$ -alkyl. Die aromatischen Gruppen  $\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$  können ihrerseits mit Halogen- und/oder Alkylgruppen, vorzugsweise Chlor, Brom und/oder  $\text{C}_1$  bis  $\text{C}_4$ -Alkyl substituiert sein. Besonders bevorzugte Aryl-Reste sind Kresyl, Phenyl, Xylenyl, Propylphenyl oder Butylphenyl sowie die entsprechenden bromierten und chlorierten Derivate davon.

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

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

$q$  steht für Werte von 0 bis 30, bevorzugt 0,3 bis 20, besonders bevorzugt 0,5 bis 10, insbesondere 0,5 bis 6, ganz besonders bevorzugt 1,1 bis 1,6.

$X$  steht besonders bevorzugt für



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

**[0053]** Als erfindungsgemäße Komponente D können auch Mischungen verschiedener Phosphate eingesetzt werden.

**[0054]** Phosphorverbindungen der Formel (IV) sind insbesondere Tributylphosphat, Triphenylphosphat, Trikresylphosphat, Diphenylkresylphosphat, Diphenyloctylphosphat, Diphenyl-2-ethylkresyl-phosphat, Tri-(isopropylphenyl)-phosphat, Resorcin verbrücktes Diphosphat und Bisphenol A verbrücktes Diphosphat. Der Einsatz von oligomeren Phosphorsäureestern der Formel (IV), die sich vom Bisphenol A ableiten, ist insbesondere bevorzugt.

**[0055]** Die Phosphorverbindungen gemäß Komponente D sind bekannt (vgl. z.B. EP-A 0 363 608, EP-A 0 640 655) oder lassen sich nach bekannten Methoden in analoger Weise herstellen (z.B. Ullmanns Enzyklopädie der technischen Chemie, Bd. 18, S. 301 ff. 1979; Houben-Weyl, Methoden der organischen Chemie, Bd. 12/1, S. 43; Beilstein Bd. 6, S. 177).

**[0056]** Die mittleren q-Werte können bestimmt werden, indem mittels geeigneter Methode (Gaschromatographie (GC), High Pressure Liquid Chromatography (HPLC), Gelpermeationschromatographie (GPC)) die Zusammensetzung der Phosphat-Mischung (Molekulargewichtsverteilung) bestimmt wird und daraus die Mittelwerte für q berechnet werden. Weiterhin können Phosphonatamine und Phosphazene, wie sie in WO 00/00541 und WO 01/18105 beschrieben sind, als Flammschutzmittel eingesetzt werden.

**[0057]** Die Flammschutzmittel können allein oder in beliebiger Mischung untereinander oder in Mischung mit anderen Flammschutzmitteln eingesetzt werden.

#### Komponente E

**[0058]** Die Komponente E umfasst ein oder mehrere thermoplastische Vinyl(Co)Polymerisate E.1 und/oder Polyalkylenterephthalate E.2.

**[0059]** Geeignet sind als Vinyl(Co)Polymerisate E.1 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.1.1 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.1.2 1 bis 50, vorzugsweise 20 bis 40 Gew.-Teilen Vinylcyanide (ungesättigte Nitrile) wie Acryl-nitril 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).

**[0060]** Die Vinyl(co)polymerisate E.1 sind harzartig, thermoplastisch und kautschukfrei. Besonders bevorzugt ist das Copolymerisat aus E.1.1 Styrol und F.1.2 Acrylnitril.

**[0061]** Die (Co)Polymerisate gemäß E.1 sind bekannt und lassen sich durch radikalische Polymerisation, ins-



besondere durch Emulsions-, Suspensions-, Lösungs- oder Massepolymerisation herstellen. Die (Co)Polymersate besitzen vorzugsweise mittlere Molekulargewichte  $M_w$  (Gewichtsmittel, ermittelt durch Lichtstreuung oder Sedimentation) zwischen 15.000 und 200.000.

**[0062]** Die Polyalkylenterephthalate der Komponente E.2 sind Reaktionsprodukte aus aromatischen Dicarbonsäuren oder ihren reaktionsfähigen Derivaten, wie Dimethylestern oder Anhydriden, und aliphatischen, cycloaliphatischen oder araliphatischen Diolen sowie Mischungen dieser Reaktionsprodukte.

**[0063]** Bevorzugte Polyalkylenterephthalate enthalten mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 Gew.-%, bezogen auf die Dicarbonsäurekomponente Terephthalsäurereste und mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 Mol.-%, bezogen auf die Diolkomponente Ethylenglykol- und/oder Butandiol-1,4-Reste.

**[0064]** Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate können neben Terephthalsäureresten bis zu 20 Mol.-%, vorzugsweise bis zu 10 Mol.-%, Reste anderer aromatischer oder cycloaliphatischer Dicarbonsäuren mit 8 bis 14 C-Atomen oder aliphatischer Dicarbonsäuren mit 4 bis 12 C-Atomen enthalten, wie z.B. Reste von Phthalsäure, Isophthalsäure, Naphthalin-2,6-dicarbonsäure, 4,4'-Diphenyldicarbonsäure, Bernsteinsäure, Adipinsäure, Sebacinsäure, Azelainsäure, Cyclohexandiessigsäure.

**[0065]** Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate können neben Ethylenglykol- bzw. Butandiol-1,4-Resten bis zu 20 Mol.-%, vorzugsweise bis zu 10 Mol.-%, andere aliphatische Dirole mit 3 bis 12 C-Atomen oder cycloaliphatische Dirole mit 6 bis 21 C-Atomen enthalten, z.B. Reste von Propandiol-1,3, 2-Ethylpropandiol-1,3, Neopentylglykol, Pentandiol-1,5, Hexandiol-1,6, Cyclohexan-dimethanol-1,4, 3-Ethylpentandiol-2,4, 2-Methylpentandiol-2,4, 2,2,4-Trimethylpentandiol-1,3, 2-Ethylhexandiol-1,3, 2,2-Diethylpropandiol-1,3, Hexandiol-2,5, 1,4-Di-( $\beta$ -hydroxyethoxy)-benzol, 2,2-Bis-(4-hydroxycyclohexyl)-propan, 2,4-Dihydroxy-1,1,3,3-tetramethyl-cyclobutan, 2,2-Bis-(4- $\beta$ -hydroxyethoxy-phenyl)-propan und 2,2-Bis-(4-hydroxypropoxyphenyl)-propan (DE-A 2 407 674, 2 407 776, 2 715 932).

**[0066]** Die Polyalkylenterephthalate können durch Einbau relativ kleiner Mengen 3- oder 4-wertiger Alkohole oder 3- oder 4-basischer Carbonsäuren, z.B. gemäß DE-A 1 900 270 und US-PS 3 692 744, verzweigt werden. Beispiele bevorzugter Verzweigungsmittel sind Trimesinsäure, Trimellithsäure, Trimethylolethan und -propan und Pentaerythrit.

**[0067]** Besonders bevorzugt sind Polyalkylenterephthalate, die allein aus Terephthalsäure und deren reaktionsfähigen Derivaten (z.B. deren Dialkylestern) und Ethylenglykol und/oder Butandiol-1,4 hergestellt worden sind, und Mischungen dieser Polyalkylenterephthalate.

**[0068]** Mischungen von Polyalkylenterephthalaten enthalten 1 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 30 Gew.-%, Polyethylenterephthalat und 50 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 70 bis 99 Gew.-%, Polybutylenterephthalat.

**[0069]** Die vorzugsweise verwendeten Polyalkylenterephthalate besitzen im allgemeinen eine Grenzviskosität von 0,4 bis 1,5 dl/g, vorzugsweise 0,5 bis 1,2 dl/g, gemessen in Phenol/o-Dichlorbenzol (1:1 Gewichtsteile) bei 25°C im Ubbelohde-Viskosimeter.

**[0070]** Die Polyalkylenterephthalate lassen sich nach bekannten Methoden herstellen (s. z.B. Kunststoff-Handbuch, Band VIII, S. 695 ff., Carl-Hanser-Verlag, München 1973).

#### Weitere Zusatzstoffe F

**[0071]** Die Zusammensetzung kann weitere übliche Polymeradditive (Komponente F) wie Flammschutzsynergisten, Antidrippingmittel (beispielsweise Verbindungen der Substanzklassen der fluorierten Polyolefine, der Silikone sowie Aramidfasern), Gleit- und Entformungsmittel (beispielsweise Pentaerythrittrastearat), Nukleiermittel, Stabilisatoren, Antistatika (beispielsweise Leirüße, Carbonfasern, Metallfasern, Carbon Nanotubes sowie organische Antistatika wie Polyalkylenether, Alkyl Sulfonate oder Polyamid-haltige Polymere) sowie Farbstoffe und Pigmente enthalten.

#### Herstellung der Formmassen und Formkörper

**[0072]** Die erfindungsgemäßen thermoplastischen Formmassen werden hergestellt, indem man die jeweiligen Bestandteile in bekannter Weise vermischt und bei Temperaturen von 200°C bis 300°C in üblichen Aggre-

gaten wie Innenknetern, Extrudern und Doppelwellenschnecken schmelzcompoundiert und schmelzextrudiert.

**[0073]** Die Vermischung der einzelnen Bestandteile kann in bekannter Weise sowohl sukzessive als auch simultan erfolgen, und zwar sowohl bei etwa 20°C (Raumtemperatur) als auch bei höherer Temperatur.

**[0074]** Gegenstand der Erfindung sind ebenfalls Verfahren zur Herstellung der Formmassen und die Verwendung der Formmassen zur Herstellung von Formkörpern.

**[0075]** 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 hergestellten Platten oder Folien.

**[0076]** Beispiele für solche Formkörper sind Folien, Profile, Gehäuseteile jeder Art, z.B. für Haushaltsgeräte wie 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 Elektronikteile wie Schalter, Stecker und Steckdosen sowie Karosserie- bzw. Innenbauteile für Nutzfahrzeuge, insbesondere für den Automobilbereich.

**[0077]** Insbesondere können die erfindungsgemäßen Formmassen beispielsweise auch zur Herstellung von folgenden Formkörpern oder Formteilen verwendet werden: Innenausbauanteile für Schienenfahrzeuge, 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, wärmeisolierte Transportbehältnisse, Formteile für Sanitär- und Badausrüstungen, Abdeckgitter für Lüfteröffnungen und Gehäuse für Gartengeräte.

**[0078]** Die folgenden Beispiele dienen der weiteren Erläuterung der Erfindung.

#### Beispiele

##### Komponente A1

**[0079]** Lineares Polycarbonat auf Basis Bisphenol-A mit einem gewichtsgemittelten Molekulargewicht  $\bar{M}_w$  von 27500 g/mol (bestimmt durch GPC).

##### Komponente A2

**[0080]** Lineares Polycarbonat auf Basis Bisphenol-A mit einem gewichtsgemittelten Molekulargewicht  $\bar{M}_w$  von 25000 g/mol (bestimmt durch GPC).

##### Komponente B1

**[0081]** ABS-Polymerisat, hergestellt durch Emulsions-Polymerisation von 43 Gew.-% (bezogen auf das ABS-Polymerisat) einer Mischung aus 27 Gew.-% Acrylnitril und 73 Gew.-% Styrol in Gegenwart von 57 Gew.-% (bezogen auf das ABS-Polymerisat) eines teilchenförmig vernetzten Polybutadienkautschuks (mittlerer Teilchendurchmesser  $d_{50} = 0,35 \mu\text{m}$ ).

##### Komponente C1

**[0082]** Die Hohlglaskugeln bestehen aus alkaliarmen Borosilikatglas, d.h. aus 5,5 Gew.-%  $\text{Na}_2\text{O}$ , 11,5 Gew.-%  $\text{CaO}$  und 4 Gew.-%  $\text{B}_2\text{O}_3$ . Die Hohlglaskugeln weisen eine Dichte von  $0,6 \text{ g/cm}^3$  und einen mittleren Durchmesser von  $30 \mu\text{m}$  auf. Die Hohlglaskugeln haben eine isostatische Druckfestigkeit von 124 MPa.

##### Komponente C2

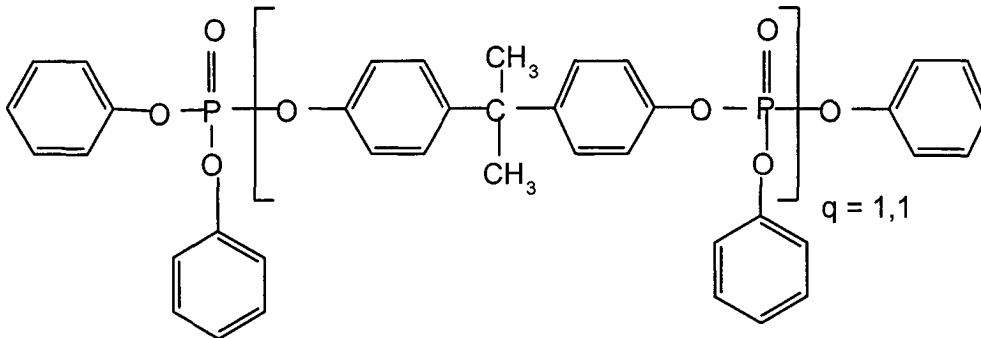
**[0083]** Die Vollglaskugeln (Vitrolite 20 der VitroCo Enterprises, Irvine, CA, USA) bestehen aus amorphen Silikaten und Alumosilikaten von Natrium, Kalium, Calcium, Magnesium und Eisen und haben einen mittleren Durchmesser von  $12 \mu\text{m}$  sowie eine Dichte von  $2,4 \text{ g/cm}^3$ .

## Komponente C3

**[0084]** Talk, Luzenac® A3C der Firma Luzenac Naintsch Mineralwerke GmbH mit einem MgO-Gehalt von 32 Gew.-%, einem SiO<sub>2</sub>-Gehalt von 61 Gew.-% und einem Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Gehalt von 0,3 Gew.-%.

## Komponente D

Bisphenol-A basierendes Oligophosphat (Reofoss BAPP)



## Komponente E1

**[0085]** Copolymerisat aus 77 Gew.-% Styrol und 23 Gew.-% Acrylnitril mit einem gewichtsgemittelten Molekulargewicht  $M_w$  von 130 kg/mol (bestimmt durch GPC), hergestellt nach dem Masseverfahren.

## Komponente E2

**[0086]** Copolymerisat aus 72 Gew.-% Styrol und 28 Gew.-% Acrylnitril mit einem gewichtsgemittelten Molekulargewicht  $M_w$  von 140 kg/mol (bestimmt durch GPC), hergestellt nach dem Masseverfahren.

## Komponente F

- F1: Polytetrafluorethylen-Pulver, CFP 6000 N, Fa. DuPont.
- F2: Pentaerythrittetrastearat als Gleit-/Entformungsmittel
- F3 Phosphitstabilisator, Irganox® B 900, Fa. Ciba Speciality Chemicals

## Herstellung und Prüfung der Formmassen

**[0087]** Auf einem Zweischnellenextruder (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 compounding und granuliert. Die fertigen Granulate werden auf einer Spritzgussmaschine zu den entsprechenden Probekörpern verarbeitet (Massetemperatur 240°C, Beispiele 3–5, bzw. 260°C, Beispiele 1–2, Werkzeugtemperatur 80°C, Fließfrontgeschwindigkeit 240 mm/s).

**[0088]** Zur Charakterisierung der Eigenschaften der Probekörper wurden folgende Methoden angewandt: Die Verarbeitungsschwindigkeit wurde gemessen in Anlehnung an ISO Norm 294-4, allerdings an Schwindungsplatten der Dimension 150 × 105 × 3 mm.

**[0089]** Die Fließfähigkeit wurde nach DIN EN ISO 1133 als Schmelze-Volumen-Fließrate (melt volume-flow rate MVR) sowie ggf. anhand der ISO 11443 (Schmelzeviskosität) bestimmt.

**[0090]** Reißfestigkeit wurde gemessen nach DIN EN ISO 527.

**[0091]** Die Steifigkeit wurde gemessen als Zug-E-Modul nach DIN EN ISO 527.

**[0092]** Die Kratzfestigkeit wurde gemäß ASTM D-3363 als Bleistifhärte bestimmt. Dabei werden Bleistifte der Harte 3H, 2H, H, F, HB, B, 2B und 3B (hier Harte abnehmend) mit festgelegtem Druck über die Oberfläche geführt. Die Bleistifhärte gibt den härtesten Bleistift an, mit dem kein Kratzer auf der Oberfläche erkennbar ist.

Tabelle 1: Zusammensetzung und Eigenschaften der Formmassen

Zusammensetzung [Gew.-%]	1	2 (Vgl.)
A1	56,3	56,3
B1	16,2	16,2
C1	4,8	–
C2	–	4,8
E1	5,7	5,7
E2	16,2	16,2
F2	0,7	0,7
F3	0,1	0,1
Verarbeitungsschwindung Längs [%]	0,740	0,764
MVR (260°C/5 kg) [cm <sup>3</sup> /10 min]	16,7	12,6
Zug-E-Modul [N/mm]	2387	2261
Kratzfestigkeit gem. ASTM D-3363	F	F

**[0093]** Aus Tabelle 1 geht hervor, dass die erfindungsgemäße Zusammensetzung gemäß Beispiel 1 gegenüber der Zusammensetzung des Vergleichsbeispiels 2 eine geringere Verarbeitungsschwindung, eine verbesserte Fließfähigkeit sowie eine höhere Steifigkeit aufweist.

Tabelle 2: Zusammensetzung und Eigenschaften der flammgeschützten Formmassen

Zusammensetzung [Gew.-%]	3	4 (Vgl.)	5 (Vgl.)
A2	61,2	61,2	61,2
B1	8,6	8,6	8,6
C1	4,8	–	–
C2	–	4,8	–
C3	–	–	4,8
D	14,4	14,4	14,4
E1	10,0	10,0	10,0
F1	0,5	0,5	0,5
F2	0,4	0,4	0,4
F3	0,1	0,1	0,1
Verarbeitungsschwindigkeit Längs [%]	0,525	0,553	n.g.
Schmelzeviskosität [Pas] 1000 s <sup>-1</sup> /240°C 1000 s <sup>-1</sup> /260°C 1000 s <sup>-1</sup> /280°C	201 133 78	217 151 97	209 144 92
MVR (240/5 kg) [cm <sup>3</sup> /10 min]	23,9	20,0	21,3
Zug-E-Modul [N/mm]	2950	2920	3300
Reißfestigkeit [N/mm]	49	44	45
Kratzfestigkeit gem. ASTM D-3363	H	H	F

n.g. = nicht gemessen

**[0094]** Bei den flammgeschützten Zusammensetzungen der Tabelle 2 erfüllt nur die erfindungsgemäße Zusammensetzung gemäß Beispiel 3 die erfindungsgemäße Aufgabe, d.h. bei vergleichbarer Kratzfestigkeit (gegenüber Vergleichsbeispiel 4) wird eine geringere Verarbeitungsschwindigkeit, eine verbesserte Fließfähigkeit sowie eine höhere Steifigkeit erreicht. Vergleichsbeispiel 5 mit Talk als Füllstoff erfüllt nicht das Kriterium der hohen Kratzfestigkeit.

### Patentansprüche

#### 1. Zusammensetzungen enthaltend

- A) 10–90 Gew.-Teile aromatisches Polycarbonat und/oder aromatisches Polyestercarbonat,
- B) 0,5–30 Gew.-Teile, kautschukmodifiziertes Pfropfpolymerisat,
- C) 0,1–50 Gew.-Teile Hohlglaskugeln,
- D) 0–20 Gew.-Teile phosphorhaltiges Flammschutzmittel,
- E) 0–40 Gew.-Teile Vinyl(Co)Polymerisat (E.1) und/oder Polyalkylenterephthalat (E.2) und
- F) 0–10 Gew.-Teile mindestens eines Zusatzstoffs.

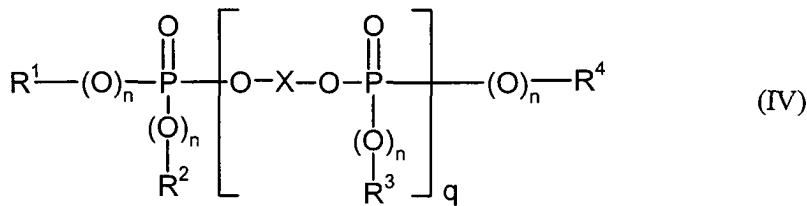
#### 2. Zusammensetzungen nach Anspruch 1, wobei die Hohlglaskugeln aus Borosilikatglas bestehen.

3. Zusammensetzungen nach Anspruch 1 oder 2, wobei die Hohlglaskugeln eine Dichte von 0,2–0,8 g/cm<sup>3</sup> aufweisen.

4. Zusammensetzungen nach einem der Ansprüche 1 bis 3, wobei der Füllstoff gemäß Komponente C eine mittlere Teilchengröße ( $d_{50}$ ) von 1 bis 200 µm aufweist.

5. Zusammensetzungen nach einem der Ansprüche 1 bis 4, wobei als Komponente C Hohlglaskugeln mit einer Druckfestigkeit von 10–200 MPa eingesetzt werden.

6. Zusammensetzungen nach einem der Ansprüche 1 bis 5 enthaltend phosphorhaltiges Flammschutzmittel (D) der allgemeinen Formel (IV)



worin

$\text{R}^1$ ,  $\text{R}^2$ ,  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$ , unabhängig voneinander jeweils gegebenenfalls halogeniertes  $\text{C}_1$  bis  $\text{C}_8$ -Alkyl, jeweils gegebenenfalls durch Alkyl, vorzugsweise  $\text{C}_1$  bis  $\text{C}_4$ -Alkyl, und/oder Halogen, vorzugsweise Chlor, Brom, substituiertes  $\text{C}_5$  bis  $\text{C}_6$ -Cycloalkyl,  $\text{C}_6$  bis  $\text{C}_{20}$ -Aryl oder  $\text{C}_7$  bis  $\text{C}_{12}$ -Aralkyl,

$n$  unabhängig voneinander, 0 oder 1

$q$  0 bis 30 und

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

7. Zusammensetzungen gemäß Anspruch 6, worin X in Formel (IV) für Bisphenol A steht.

8. Zusammensetzungen nach einem der Ansprüche 1 bis 7 enthaltend als Komponente F mindestens einen Zusatzstoff ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Flammschutzsynergisten, Antidrippingmittel, Gleit- und Entformungsmittel, Nukleiermittel, Stabilisatoren, Antistatika, Farbstoffe und Pigmente.

9. Verwendung der Zusammensetzungen nach einem der Ansprüche 1 bis 8 zur Herstellung von Formkörpern.

10. Formkörper, enthaltend eine Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 8.

11. Formkörper nach Anspruch 10 dadurch gekennzeichnet, dass der Formkörper ein Teil eines Kraftfahrzeugs, Schienenfahrzeugs, Luftfahrzeugs oder Wasserfahrzeugs oder ein Gehäuse von Kleintransformatoren enthaltenden Elektrogeräten, Gehäuse für Geräte zur Informationsverarbeitung und -Übermittlung, Gehäuse und Verkleidung von medizinischen Geräten, Massagegeräte und Gehäuse dafür, Spielfahrzeuge für Kinder, flächige Wandelemente, Gehäuse für Sicherheitseinrichtungen, wärmeisolierte Transportbehältnisse, Formteile für Sanitär- und Badausrüstungen, Abdeckgitter für Lüfteröffnungen oder ein Gehäuse für Gartengeräte ist.

Es folgt kein Blatt Zeichnungen