



(10) **DE 100 83 660 B3** 2014.10.23

(12)

## Patentschrift

(21) Deutsches Aktenzeichen: **100 83 660.7**  
(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/JP00/00043**  
(87) PCT-Veröffentlichungs-Nr.: **WO 2000/042106**  
(86) PCT-Anmeldetag: **07.01.2000**  
(87) PCT-Veröffentlichungstag: **20.07.2000**  
(45) Veröffentlichungstag  
der Patenterteilung: **23.10.2014**

(51) Int Cl.: **C08L 69/00** (2006.01)  
**C08J 5/00** (2006.01)  
**C08K 5/521** (2006.01)  
**C08K 7/00** (2006.01)  
**C08L 51/04** (2006.01)  
**C08L 55/02** (2006.01)  
**C08L 27/12** (2006.01)

Innerhalb von neun Monaten nach Veröffentlichung der Patenterteilung kann nach § 59 Patentgesetz gegen das Patent Einspruch erhoben werden. Der Einspruch ist schriftlich zu erklären und zu begründen. Innerhalb der Einspruchsfrist ist eine Einspruchsgebühr in Höhe von 200 Euro zu entrichten (§ 6 Patentkostengesetz in Verbindung mit der Anlage zu § 2 Abs. 1 Patentkostengesetz).

(30) Unionspriorität:

<b>11/3911</b>	<b>11.01.1999</b>	<b>JP</b>
<b>11/18023</b>	<b>27.01.1999</b>	<b>JP</b>
<b>11/26568</b>	<b>03.02.1999</b>	<b>JP</b>

(73) Patentinhaber:

**Idemitsu Kosan Co., Ltd., Tokyo, JP**

(74) Vertreter:

**Gille Hrabal, 40593 Düsseldorf, DE**

(72) Erfinder:

**Nodera, Akio, Ichihara, Chiba, JP; Kuze, Shigeki, Ichihara, Chiba, JP; Murakami, Tsuyoshi, Ichihara, Chiba, JP; Mitsuta, Naoki, Ichihara, Chiba, JP**

(56) Ermittelter Stand der Technik:

**JP 07316411 A (abstract). CAPLUS [online]. Chemical Abstracts Service. [recherchiert am 11.01.2008]. In: STN. Accession No. 1996:111772 CAPLUS.**

**JP 08239565 A (abstract). World Patents Index [online]. The Thomson Corp. [re-cherchiert am 11.01.2008]. In: STN. Accession No. 1996-472358 [47] WPIX.**

**JP 09100407 A (Patent Abstracts of Japan) sowie englische Maschinenübersetzung)**

**JP09070852 A (Patent Abstracts of Japan) sowie englische Maschinenübersetzung**

(54) Bezeichnung: **Schwerentflammbare Polycarbonatharzzusammensetzung und geformte Produkte daraus**

(57) Hauptanspruch: Schwerentflammbare Polycarbonatharzzusammensetzung, die umfasst:

(A) von 30 bis 95 Gew.-% eines Polycarbonatharzes und

(B) von 5 bis 70 Gew.-% eines Styrolharzes und

(C) von 1 bis 30 Gewichtsteile, bezogen auf 100 Gewichtsteile der Harze, einer Phosphatverbindung, wobei die Menge der Phenole in der erzielten Polycarbonatharzzusammensetzung, die in einer Soxhlet-Extraktion mit dem Lösungsmittel Aceton extrahiert wird, höchstens 300 ppm beträgt, und

worin das Verhältnis der terminalen Hydroxylgruppen zu den endständigen Gruppen des Polycarbonatharzes zwischen 0, 5 und weniger als 20 Mol-% beträgt.

**Beschreibung**

## TECHNISCHES GEBIET

**[0001]** Die vorliegende Erfindung betrifft eine schwerentflammbare Polycarbonatharzzusammensetzung, genauer eine schwerentflammbare Polycarbonatharzzusammensetzung und Formkörper daraus, die Vorteile hinsichtlich der Schlagzähigkeit, der In-Line-Wärmestabilität, der Alterungsbeständigkeit und der Recycelbarkeit aufweisen.

## STAND DER TECHNIK

**[0002]** Aufgrund ihrer Vorzüge hinsichtlich der Schlagzähigkeit, der Wärmebeständigkeit und ihrer guten elektrischen Eigenschaften besitzen Polycarbonatharze viele Anwendungen auf verschiedenen Gebieten, z. B. in OA-Geräten (OA (office automation) appliances), Informations- und Kommunikationsgeräten, anderen elektrischen und elektronischen Geräten für die industrielle Verwendung, die Verwendung im Haushalt, in Automobilteilen und Baustoffen. In der Regel sind Polycarbonatharze selbstauslöschend. Auf einigen Gebieten, typischerweise bei den OA-Geräten, Informations- und Kommunikationsgeräten und anderen elektrischen und elektronischen Geräten für die industrielle Verwendung und die Verwendung in Haushalten ist jedoch eine höhere Flammbeständigkeit erforderlich.

**[0003]** Um die Flammbeständigkeit von Polycarbonatharzen zu verbessern, werden Halogen enthaltende Flammenschutzmittel wie Bisphenol A-Halogenide und halogenierte Polycarbonatoligomere zusammen mit flammhemmenden Promotoren wie Antimonoxid verwendet, da deren flammhemmende Fähigkeit gut ist. Mit der jüngsten Entwicklung im Hinblick auf ein sicheres Leben und den Schutz der Umwelt vor weggeworfenen und verbrannten Abfällen erfordert der Markt jedoch eine Flammhemmung mit nichthalogen-haltigen Flammenschutzmitteln. Als nichthalogenhaltige Flammenschutzmittel können Phosphor enthaltende organische Flammenschutzmittel, insbesondere organische Phosphatverbindungen den Polycarbonatharz-Zusammensetzungen zugesetzt werden, wofür verschiedene Verfahren vorgeschlagen wurden. Solche organischen Phosphatverbindungs-Flammenschutzmittel dienen auch als Weichmacher, und Polycarbonatharz-Zusammensetzungen, die sie enthalten, zeigen eine ausgezeichnete Flammbeständigkeit.

**[0004]** Es gibt einige Probleme mit Polycarbonatharzen, die dadurch bedingt sind, dass sie hohe Form- und Arbeitstemperaturen erfordern und ihre Schmelzfluidität niedrig ist. Daher ist die Formtemperatur für Polycarbonatharze relativ hoch, und wenn verschiedene Additive den Harzen zugesetzt werden, tritt das weitere Problem auf, dass die thermische Stabilität der Formharze verringert wird, und die Harze nicht ausreichend ihre Eigenschaften ausbilden können. Gegenwärtig fordert der Markt für Formkörper für Teile und Gehäuse von elektrischen und elektronischen Geräten, wie Vervielfältiger, Facsimile-Geräte und Telefone komplizierte Formen mit lokalen Vorsprüngen oder Vertiefungen, z. B. Rippen oder Vorsprünge, und Öffnungen. Außerdem müssen sie ein geringes Gewicht aufweisen und dünnwandig sein unter dem Gesichtspunkt der Ersparnis von Ressourcen. Aus diesem Grund werden Polycarbonatharzzusammensetzungen gewünscht, die eine verbesserte Schmelzfluidität besitzen, oder d. h. die eine verbesserte Spritzgießfähigkeit besitzen. Verschiedene Polycarbonatharzzusammensetzungen mit verbesserter Formbarkeit wurden bislang vorgeschlagen, bei denen (Kautschuk-modifizierte) Styrolharze im Hinblick auf physikalische Eigenschaften wie Schlagzähigkeit der Formkörper aus den Zusammensetzungen zugesetzt wurden.

**[0005]** Zusammensetzungen von Polycarbonatharzen, denen nicht-halogenhaltige Phosphatverbindungen zugesetzt wurden, dienen als flammhemmende Mittel, und solche, denen (Kautschuk-modifizierte) Styrolharze, wie Acrylnitril-Butadien-Styrol-Harze (ABS-Harze), Kautschuk-modifizierte Polystyrolharze (HIPS-Harze) oder Acrylnitril-Styrol-Harze (AS-Harze) zur Erhöhung der Schmelzfluidität der Zusammensetzungen zugesetzt wurden, sind als Polymerlegierungen bekannt und besitzen viele Anwendungen auf den Gebieten verschiedener Formkörper, da sie eine gute Wärmebeständigkeit und Schlagzähigkeit besitzen.

**[0006]** Die ABS-Harz-enthaltenden Zusammensetzungen besitzen eine verbesserte Schmelzfluidität und Schlagzähigkeit, jedoch ist ihre Zähigkeit oft gering. Die Kautschuk-modifizierte Polystyrolharze(HIPS)-enthaltenden Zusammensetzungen besitzen ebenfalls eine verbesserte Schmelzfluidität und Schlagzähigkeit. Verglichen mit den ABS-Harz-enthaltenden Zusammensetzungen besitzen die HIPS-enthaltenden Zusammensetzungen eine höhere Zähigkeit, wenn der Kautschukgehalt des darin enthaltenden HIPS verringert wird. HIPS mit verringerten Kautschukgehalten verringern nicht die Zähigkeit und Wärmebeständigkeit der sie enthaltenden Harzzusammensetzungen, sondern verringern ihre Schlagzähigkeit. Dies ist ein weiteres Problem, das mit HIPS verbunden ist.

**[0007]** Um Polycarbonatharzen oder deren Zusammensetzungen, die ein (Kautschuk-modifiziertes) Styrolharz enthalten und die eine gute Schmelzfluidität besitzen, eine gute Flammbeständigkeit durch Zugabe einer Phosphatverbindung dazu zu verleihen, muss eine relativ große Menge der Verbindung hinzu gegeben werden. Obwohl die flammhemmende Fähigkeit gut ist, verursacht die Phosphatverbindung häufig einige Probleme, wenn sie den Polycarbonatharzen oder ihren Zusammensetzungen zugesetzt wird. Zum Beispiel wird berichtet, dass die Phosphatverbindungen an den Formen, die für das Formen der Harze oder der Harzzusammensetzungen, die sie enthalten, verwendet werden, haften, und zusätzlich verringern die Phosphatverbindungen die Schlagzähigkeit der Harzformkörper oder vergilben sie, wenn die Harzformkörper in erwärmtem Zustand gehalten oder unter Hochtemperatur-Hochfeucht-Atmosphären gehalten oder recycelt werden. Eine Zusammensetzung, die ein Polycarbonatharz, ein Kautschuk-modifiziertes Polystyrolharz und eine Phosphatverbindung umfasst, besitzt eine gute Flammbeständigkeit und Schlagzähigkeit, die jedoch abhängt vom Kautschukgehalt des Kautschukmodifizierten Polystyrolharzes in der Zusammensetzung. Wenn die Wärmebeständigkeit und die Zähigkeit der Harzzusammensetzung auf einem gewünschten Niveau gehalten werden, ist die Schlagzähigkeit davon oft unzureichend. Die oben erwähnte, schwerentflammbare Polycarbonatharzzusammensetzung wird durch das Verfahren des Spritzgießens geformt, und ihre Formkörper werden häufig für Gehäuse von OA-Geräten etc. verwendet. Im Allgemeinen sind die Formkörper mit dunklen Farben wie grau oder schwarz gefärbt, wofür Farbstoffe verwendet werden, die als wesentlichen Bestandteil Ruß enthalten.

**[0008]** Viele der Formkörper sind dünnwandig und besitzen komplizierte Formen und sie werden geschweißt, abhängig von der Form der verwendeten Formkörper. Wenn sie geschweißt werden, wird die Erscheinung des geschweißten Teils oft schlecht, und die Schweißfestigkeit ist häufig niedrig. Das Problem ist besonders gravierend bei Harzzusammensetzungen, die Polycarbonatharze und Kautschukmodifizierte Polystyrolharze umfassen, und die eine Phosphatverbindung enthalten.

**[0009]** Wenn eine Phosphatverbindung zu den Polycarbonatharzen gegeben wird, um sie flammbeständig zu machen, ist sie im Allgemeinen bei Raumtemperatur flüssig oder besitzt einen niedrigen Schmelzpunkt. Eine relativ große Menge einer solchen Phosphatverbindung muss Polycarbonatharzen zugesetzt werden, um ihnen Flammbeständigkeit zu verleihen, was häufig problematisch ist, weil die zugegebene Phosphatverbindung zu Ausblühungen auf den Harzformkörpern führt, und die Wärmebeständigkeit und die Schlagzähigkeit der Harzformkörper verringert wird. Um die Probleme mit einer solchen Phosphatverbindung, die zu Ausblühungen auf den Harzformkörpern führt und die Wärmebeständigkeit der Harzformkörper verringert, zu lösen, offenbart z. B. die japanische Patentanmeldung mit der Offenlegungsnummer 228426/1994 ein Verfahren, bei dem (A) ein Polyphenylen-Ether-Harz oder ein Polycarbonatharz, (B) eine hochviskose Alkyl-substituierte aromatische Phosphatverbindung mit einer spezifischen Struktur und (C) ein Triphenylphosphat kombiniert werden.

**[0010]** Die japanische Patentanmeldung mit der Offenlegungsnummer 1 7971 5/1 995 offenbart eine schwer entflammable Harzzusammensetzung, die umfasst (A) von 1 bis 99 Gewichtsteile eines Polycarbonatharzes, (B) von 1 bis 99 Gewichtsteile eines Kautschuk-verstärkten Harzes und (C) von 0,1 bis 30 Gewichtsteile, bezogen auf 100 Gewichtsteile von (A) und (B), einer organischen Phosphorverbindung mit einem Schmelzpunkt von nicht weniger als 120°C. Das japanische Patent mit der Offenlegungsnummer 1 2867/1 996 offenbart eine thermoplastische Harzzusammensetzung, die eine Harzmischung von 50 bis 98 Gew.-% (A) eines aromatischen Polycarbonates und von 2 bis 50 Gew.-% (B) eines ABS-Harzes und/oder (C) eines AS-Harzes umfasst, und die von 0,01 bis 5 Gewichtsteile, bezogen auf 100 Gewichtsteile der Harzmischung, (D) eines Fluorharzes und/oder eines Silikons und von 1 bis 40 Gewichtsteile, bezogen auf das gleiche, (E) einer hochschmelzenden Phosphatverbindung enthält. Um die oben beschriebenen Probleme zu lösen dienen diese hochviskosen oder hochschmelzenden Phosphatverbindungen als flammhemmende Mittel, und man nimmt an, dass die Verbindung darin in einem gewissen Ausmaß wirksam ist.

**[0011]** Das japanische Patent mit der Offenlegungsnummer 100405/1997 schlug eine schwerentflammable Harzzusammensetzung vor, die umfasst (A) ein Polycarbonatharz, (B) ein Kautschuk-verstärktes Harz wie ABS, (C) ein Phosphat, das als flammhemmendes Mittel dient, und (D) ein Monomer oder Oligomer einer phenolischen OH-enthaltenden Polymersubstanz. Dies ist jedoch problematisch, weil das Bisphenol A als Komponente (D) darin die physikalischen Eigenschaften der Harzzusammensetzung unter Hochtemperatur-Hochfeucht-Atmosphären verschlechtert.

**[0012]** Einige Beispiele von Zusammensetzungen, die ein Polycarbonatharz, ein Kautschuk-modifiziertes Polystyrolharz und eine Phosphatverbindung umfassen, sind bekannt. Zum Beispiel wird in dem japanischen Patent mit der Offenlegungsnummer 11 0092/1 998 eine Zusammensetzung vorgeschlagen, die ein Kautschuk-modifiziertes Polystyrolharz mit einem Kautschukpolymergehalt von 15 bis 95 Gew.%, einer volumendurchschnittlichen Partikelgröße von 0,3 bis 5,0 µm und einem Gelgehalt von 15 bis 70 Gew.-% und ein Blockco-

polymer, das aromatische Vinylblöcke und konjugierte Dien-Verbindungsblöcke enthält, umfasst. In dem japanischen Patent mit der Offenlegungsnummer 151 239/1997 wird eine Zusammensetzung mit einer guten Platierbarkeit vorgeschlagen, die ein Kautschuk-verstärktes Vinylharz (ABS-Harz) enthält, das von 1 bis 5 Gew.-% Kautschukpartikel mit geringer Größe mit einer massendurchschnittlichen Partikelgröße von 0,1  $\mu$  bis weniger als 0,3  $\mu$  und von 3 bis 10 Gew.-% Kautschukpartikel mit großer Größe mit einer massenmittleren Partikelgröße von 0,3  $\mu$  bis weniger als 2  $\mu$  enthält. Diese offengelegten Beschreibungen enthalten jedoch keine Beschreibung hinsichtlich der Färbbarkeit der Zusammensetzungen mit Pigmenten, der Erscheinung von geschweißten Teilen der Formkörper und der Schweißfestigkeit der Formkörper.

**[0013]** Weiterhin beschreibt z. B. das japanische Patent mit der Offenlegungsnummer 55145/1986 eine thermoplastische Harzzusammensetzung, die die Komponenten umfasst: (A) ein aromatisches Polycarbonatharz, (B) ein ABS-Harz, (C) ein AS-Harz, (D) eine Halogenverbindung, (E) ein Phosphat und (F) ein Polytetrafluorethylen. Das japanische Patent mit der Offenlegungsnummer 321 54/1990 beschreibt schwerentflammbare, hochschlagzähe Polycarbonatformzusammensetzungen, die die Komponenten umfassen: (A) aromatisches Polycarbonatharz, (B) ein ABS-Harz, (C) ein AS-Harz, (D) ein Phosphat und (E) ein Polytetrafluorethylen.

**[0014]** Bei diesen Vorschlägen ist jedoch in jedem Fall die Anwendungsbreite der Verwendung der Phosphatverbindung eingeschränkt. Wenn eine solche spezifische Phosphatverbindung selektiv in den vorgeschlagenen Harzzusammensetzungen verwendet wird, könnte sie das Problem der Verbesserung der Formgebung, in der die Harzzusammensetzung geformt wird, und das Problem der Verbesserung der Erscheinung der Harzformkörper lösen, aber gegenwärtig kann sie das Problem der Verbesserung der Dispergierbarkeit und der Schmelzverknüpfbarkeit der Harzzusammensetzungen und das Problem der Verbesserung der Schlagzähigkeit, der Alterungsbeständigkeit, insbesondere der Feucht/Heiß-Beständigkeit und der Recyclbarkeit der Harzformkörper nicht vollständig lösen.

**[0015]** Bei der gegenwärtigen Tendenz in Richtung auf den Schutz der Umwelt und die Einsparung von Energie und Ressourcen ist das Recycling von Harzformkörpern erwünscht. Insbesondere beim wiederholten Schmelzen und Mischen gebrauchter Harzformkörper für das Recyceln ist es erwünscht, dass sich die physikalischen Eigenschaften der recycelten Formkörper wenig abbauen und die recycelten Formkörper nur wenig vergilben.

**[0016]** Es sind daher auch schwerentflammbare Polycarbonatharzzusammensetzungen erwünscht, die selbst in Hochtemperatur-Hochfeucht-Atmosphären stabil sind, oder die gegenüber der Hydrolyse hochresistent sind. Auf der anderen Seite ist eine Technik bekannt, bei der ein anorganischer Füllstoff wie Talk zu schwerentflammbaren Polycarbonatharzen gegeben wird, z. B. aus den japanischen Patenten mit den Offenlegungsnummern 1 2651 0/1 995 und 48912/1997. In diesen werden anorganische Füllstoffe schwerentflammbaren Polycarbonatharzen zugesetzt, um die Wärmebeständigkeit und die Zähigkeit der Harzformkörper zu verbessern, und ihre Menge beträgt im Allgemeinen mindestens 5 Gew.-%, insbesondere mindestens 10 Gew.-%, um das gewünschte Ziel zu erreichen. Selbst wenn jedoch ungefähr 5 Gew.-% Talk zu 100 Gewichtsteilen der Harzkomponente gegeben wird, verursacht dies schwerwiegende Probleme, indem die Schlagzähigkeit der Harzformkörper stark verringert wird.

**[0017]** JP 09070852 A offenbart eine Polycarbonatharzzusammensetzung, deren Gehalt an (Erd)alkalimetall 1–800 ppb, an aromatischen Monohydroxy-Verbindungen 1–2000 ppm, an Oligomerkomponenten mit einem Molekulargewicht von 1000 oder weniger und Restmonomer  $T_1 - T_2$  Gew.-% [ $T_1 = 1.130.000 \times (\text{Gew.}-\text{mittleres Molekulargewicht des Polycarbonats})^{-1.60}$  und  $T_2 = 1.520.000 \times \text{Gew.}-\text{mittleres Molekulargewicht des Polycarbonats})^{-1.44}$ ] und an terminalen Hydroxygruppen 1–30 Mol-% beträgt und die keine Chlorionen enthält. Der Anteil an Phenolen ist nicht näher spezifiziert.

**[0018]** JP 07316411 A beschreibt flammhemmende Harzzusammensetzungen, die Polycarbonate, Ppropfopolymere auf Vinylbasis, aromatische Monophosphate und Talk enthalten. Der Phenolgehalt ist nicht definiert.

**[0019]** Auch JP 08239565 A offenbart flammhemmende Polycarbonatzusammensetzungen, Diese umfassen aromatisches Polycarbonatharzen, hochschlagfestes Polystyrolharz, das Kautschukelastomer umfasst, halogenfreie Phosphorsäureester und PTFE. Der Phenolgehalt ist nicht definiert.

**[0020]** JP 09100407 A offenbart eine flammhemmende Polycarbonatharzzusammensetzung aus 100 Gew.-Teilen (A) 5–98 Gew.-Teilen Polycarbonatharz und (B) 2–95 Gew.-Teilen Kautschuk-verstärktem thermoplastischem Harz sowie 0,1–30 Gew.-Teilen Flammhemmer (C). Unreagiertes Phenol wird abdestilliert. Das Verhältnis der terminalen Hydroxylgruppen zu den endständigen Gruppen beträgt 20–80 Mol-%.

**[0021]** Die vorliegende Erfindung wurde angesichts der oben erwähnten Gesichtspunkte gemacht. Die Erfindung besteht in der Zugabe einer Phosphatverbindung zu einem Polycarbonatharz, um das Harz flammbeständig zu machen, und die Aufgabe besteht darin, eine schwerentflammbare Polycarbonatharzzusammensetzung mit guter Flammbeständigkeit bereitzustellen, die fähig ist, in Formkörper mit guter Schlagzähigkeit, guter Alterungsbeständigkeit, einschließlich Wärmeständigkeit und Feucht/Heißbeständigkeit und guter Recyclbarkeit geformt zu werden, und Formkörper aus der Zusammensetzung bereitzustellen.

#### OFFENBARUNG DER ERFINDUNG

**[0022]** Die vorliegenden Erfinder unternahmen fleißig Studien, und als Ergebnis vervollständigten sie vorliegende Erfindung. Es wurde fleißig untersucht, wie die Formbarkeit und die Wärmeständigkeit einer schwerentflammbaren Polycarbonatharzzusammensetzung, die als flammhemmendes Mittel eine Phosphatverbindung enthält, verbessert werden kann, damit die Formkörper aus der Harzzusammensetzung unter beliebigen strengen Bedingungen verwendet werden können. Als Ergebnis wurde gefunden, dass wenn in einer Polycarbonatharzzusammensetzung, die als flammhemmendes Mittel eine Phosphatverbindung enthält, der Gehalt der spezifischen Komponente genau definiert wird, die Formbarkeit und die Wärmebeständigkeit der Harzzusammensetzung dann verbessert werden und zusätzlich die Formkörper aus der Zusammensetzung wenig beeinträchtigt werden und wenig vergilben, wenn sie unter Wärme oder Hochtemperatur-Hochfeucht-Atmosphären verwendet werden und selbst wenn sie in wiederholten Wärmezyklen von erneutem Schmelzen und erneutem Formen recycelt werden. Genauer schließt die Erfindung die Ausführungsformen gemäß Anspruch 1 bis Anspruch 15 ein.

(1) Eine schwerentflammbare Polycarbonatharzzusammensetzung, die umfasst: (A) von 30 bis 95 Gew.-% eines Polycarbonatharzes und (B) von 5 bis 70 Gew.-% eines Styrolharzes und (C) von 1 bis 30 Gewichtsteile, bezogen auf 100 Gewichtsteile der Harze, einer Phosphatverbindung, worin die Menge der Phenole in der erzielten Polycarbonatharzzusammensetzung, die in einer Soxhlet-Extraktion mit dem Lösungsmittel Aceton extrahiert wird, höchstens 300 ppm beträgt, und worin das Verhältnis der terminalen Hydroxylgruppen zu den endständigen Gruppen des Polycarbonatharzes zwischen 0,5 und weniger als 20 Mol-% beträgt.

**[0023]** Bevorzugte Ausführungsformen sind in den Ansprüchen 2 bis 15 angegeben.

#### BESTE AUSFÜHRUNGSFORMEN DER ERFINDUNG

**[0024]** Die Ausführungsformen der Erfindung werden unten beschrieben.

**[0025]** Die Aufbaukomponenten (A) bis (C) der schwerentflammbaren Polycarbonatharzzusammensetzung gemäß der Erfindung (diese wird im Folgenden in diesem Abschnitt als „die Erfindung“ bezeichnet) werden beschrieben.

(A) Polycarbonatharz (PC):

**[0026]** Das Polycarbonatharz (PC), das als Komponente (A) in der schwerentflammbaren Polycarbonatharzzusammensetzung der Erfindung dient, unterliegt keiner besonderen Definition, und es kann irgendein im Stand der Technik Bekanntes sein. Im Allgemeinen werden hier aromatische Polycarbonate, die aus Diphenolen und Carbonatvorläufern hergestellt werden, verwendet. Zum Beispiel können hier Polycarbonate verwendet werden, die hergestellt werden durch Umsetzung eines Diphenols und eines Carbonatvorläufers in einem Lösungsverfahren oder einem Schmelzverfahren, wie diejenigen, die durch Umsetzung von Diphenol und Phosgen oder durch Umesterung eines Diphenols und eines Diphenylcarbonats hergestellt werden.

**[0027]** Verschiedene Diphenole sind anwendbar, typischerweise schließen sie ein: 2,2-Bis(4-hydroxyphenyl)propan [Bisphenol A], Bis(4-hydroxyphenyl)methan, 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)ethan, 2,2-Bis(4-hydroxy-3,5-dimethylphenyl)propan, 4,4'-dihydroxydiphenyl, Bis(4-hydroxyphenyl)cycloalkan, Bis(4-hydroxyphenyloxid), Bis(4-hydroxyphenyl)sulfid, Bis(4-hydroxyphenyl)sulfon, Bis(4-Hydroxyphenyl)sulfoxid, Bis(4-hydroxyphenyl)ether und Bis(4-hydroxyphenyl)keton.

**[0028]** Als Diphenole zur Verwendung hierin sind Bis(hydroxyphenyl)alkane, insbesondere diejenigen, die im Wesentlichen aus Bisphenol A bestehen, bevorzugt. Die Carbonatvorläufer zur Verwendung in der Erfindung schließen z. B. ein: Carbonylhalogenide, Carbonylester und Halogenformiate, genauer Phosgen, Dihalogenamidsäurediphenolester, Diphenylcarbonat, Dimethylcarbonat und Diethylcarbonat, Weitere Diphenole wie Hydrochinon, Resorcinol und Catechin sind ebenfalls in der Erfindung anwendbar, Die hierin erwähnten Diphenole können entweder allein oder in Kombination verwendet werden.

**[0029]** Die Polycarbonatharze können eine verzweigte Struktur aufweisen, für die ein Verzweigungsmittel einschließt: z. B. 1,1,1-Tris(4-hydroxyphenyl)ethan,  $\alpha$ ,  $\alpha'$ ,  $\alpha''$ -Tris(4-hydroxyphenyl)-1,3,5-triisopropylbenzol, Phloroglucin, Trimellithsäure und Isatin-bis(ocresol). Um das Molekulargewicht des Polycarbonatharzes zu steuern, können z. B. Phenol, p-t-Butylphenol, p-t-Octylphenol und p-Cumylphenol verwendet werden.

**[0030]** Die Polycarbonatharze zur Verwendung in der Erfindung können einschließen ein Copolymer mit Polycarbonatsegmenten und Polyorganosiloxansegmenten oder ein Polycarbonatharz, das ein Copolymer dieses Typs enthält. Es kann sich auch um ein Polyester-Polycarbonatharz handeln, das hergestellt wird durch Polymerisation eines Polycarbonates in Gegenwart eines Estervorläufers, wie einer difunktionellen Carbonsäure (z. B. Terephthalsäure) oder deren Ester-bildende Derivate. Verschiedene Typen verschiedener Polycarbonatharze können vermischt werden, um gemischte Carbonatharze zur Verwendung in der Erfindung zu ergeben. Bevorzugt enthält das Polycarbonatharz für die Komponente (A) der Erfindung im Wesentlichen kein Halogen in seiner Struktur. Im Hinblick auf seine mechanische Festigkeit und Formbarkeit besitzt das Polycarbonatharz bevorzugt eine viskositätsmittlere Molekülmasse von 10.000 bis 100.000, bevorzugter von 11.000 bis 40.000 und noch bevorzugter von 12.000 bis 25.000.

**[0031]** Außerdem ist das Verhältnis der terminalen Hydroxylgruppen zu den terminalen Gruppen des Polycarbonatharzes zur Verwendung in der Erfindung 0,5 zwischen 0,5 und weniger als 20 Mol-%. Die Hydroxylgruppe in dem Polycarbonatharz trägt dazu bei, die Mischbarkeit des Polycarbonatharzes der Phosphatverbindung in der Harzzusammensetzung zu verbessern, insbesondere die Mischbarkeit des Polycarbonatharzes und des Styrolharzes mit der Phosphatverbindung darin zu verbessern, wodurch Defektformkörper mit Schichtablösung verringert werden und die physikalischen Eigenschaften wie die Schlagzähigkeit und die Elongation und die Schweißfestigkeit der Harzformkörper verbessert werden. Auf der anderen Seite besitzt die Hydroxylgruppe häufig einen negativen Einfluss auf die Wärmebeständigkeit der Harzzusammensetzung. Daher liegt das Verhältnis der terminalen Hydroxylgruppen zu den gesamten endständigen Gruppen des Polycarbonatharzes zwischen 0,5 und weniger als 20 Mol-% unter dem gesamten Gesichtspunkt.

**[0032]** Außerdem trägt die Komponente mit niedrigem Molekulargewicht des Polycarbonatharzes, die in einer Soxhlet-Extraktion mit dem Lösungsmittel Aceton extrahiert wird, bevorzugt höchstens 10 Gew.-%. Zusätzlich ist es erwünscht, dass der Halogengehalt, im Allgemeinen der Chlorgehalt, des Polycarbonatharzes gering ist, im Allgemeinen höchstens 200 ppm, am meisten bevorzugt 100 ppm. Die niedermolekulargewichtige Komponente und der Chlorgehalt des Harzes können umfassend gesteuert werden auf den gewünschten Bereich durch Auswahl des Produktionsverfahrens (Lösungsverfahren, Schmelzverfahren) und durch Steuerung der Produktionsbedingungen einschließlich der Kondensationsbedingungen und auch der Waschbedingungen, der Pelletisierungsbedingungen, der Trocknungsbedingungen, der Schmelzknetbedingungen und der Formulierung der Additive.

#### (B) Styrolharz:

**[0033]** Das Styrolharz als Komponente (B) der schwerentflammbaren Polycarbonatharzzusammensetzung der Erfindung kann ein Polymer sein, das durch Polymerisation eines Monomers oder einer Monomermischung mit von 20 bis 100 Gew.-% eines monovinylischen aromatischen Monomers, wie Styrol oder  $\alpha$ -Methylstyrol, von 0 bis 60 Gew.-% eines Vinylcyanid-Typ-Monomers, wie Acrylnitril oder Methacrylnitril und von 0 bis 50 Gew.-% irgendeines anderen vinylischen Comonomers, das mit diesen Monomeren copolymerisierbar ist, wie Maleinimid oder Methyl(meth)acrylat, hergestellt wird. Das Polymer schließt z. B. Polystyrol (GPPS) und Acrylnitril-Styrol-Copolymere (AS-Harze) ein.

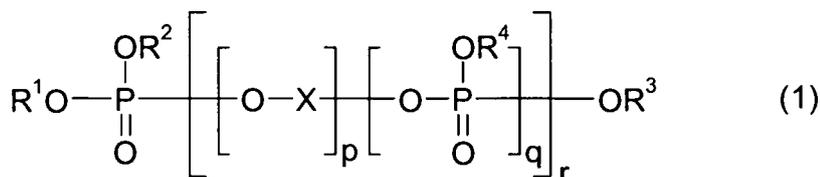
**[0034]** Als Styrolharz sind Kautschuk-modifizierte Styrolharze bevorzugt. Die Kautschuk-modifizierten Styrolharze sind bevorzugt hochschlagzähe Styrolharze, die durch Pfropfpolymerisation auf Kautschuke mit mindestens einem Styrolmonomer hergestellt werden. Die Kautschuk-modifizierten Styrolharze schließen z. B. hochschlagzähe Polystyrole (HIPS) ein, hergestellt durch Polymerisation eines Kautschuks wie Polybutadien mit Styrol; ABS-Harze, hergestellt durch Polymerisation von Polybutadien mit Acrylnitril und Styrol; MBS-Harze, hergestellt durch Polymerisation von Polybutadien mit Methylmethacrylat und Styrol. Diese Kautschuk-modifizierten Styrolharze können kombiniert werden oder vermischt werden mit anderen Styrolharzen, die nicht mit Kautschuken modifiziert sind, wie die oben erwähnten, und Harzmischungen können in der Erfindung verwendet werden.

**[0035]** In den Kautschuk-modifizierten Styrolharzen beträgt die Menge des Kautschukes, um sie zu modifizieren, z. B. zwischen 2 und 50 Gew.-%, bevorzugt zwischen 5 und 30 Gew.-%, noch bevorzugter zwischen 5 und 15 Gew.-%. Wenn der Kautschukgehalt weniger als 2 Gew.-% beträgt, verfügt die Harz-Zusammen-

setzung über eine geringe Schlagzähigkeit. Wenn auf der anderen Seite die Menge mehr als 50 Gew.-% beträgt, wird die thermische Stabilität der Harz-Zusammensetzung verringert, und die Schmelzfluidität davon wird ebenfalls verringert. Wenn dies so ist, unterliegt die Harz-Zusammensetzung unvorteilhaft der Gelbildung oder der Gelbfärbung. Spezifische Beispiele der Kautschuke zur Verwendung hierin schließen ein: Polybutadien, Acrylat- und/oder Methacrylat-aufweisende Kautschuk-artige Polymere, Styrol-Butadien-Styrol(SBS)-Kautschuk, Styrol-Butadien-Kautschuk (SBR), Butadien-Acryl-Kautschuk, Isopren-Kautschuk, Isopren-Styrol-Kautschuk, Isopren-Acryl-Kautschuk und Ethylen-Propylen-Kautschuk. Darunter ist Polybutadien besonders bevorzugt. Das Polybutadien, das hier anwendbar ist, kann irgendeines aus Niedrigcis-Polybutadien (z. B. mit von 1 bis 30 Mol-% 1,2-Vinylbindungen und 30 bis 42 Mol-% 1,4-cis-Bindungen) oder Hoch-cis-Polybutadien (z. B. mit höchstens 20 Mol-% 1,2-Vinylbindungen und mindestens 78 Mol-% 1,4-cis-Bindungen) sein, und sogar deren Mischungen.

(C) Phosphat-Verbindung:

**[0036]** Die Phosphat-Verbindung ist bevorzugt eine nicht halogenhaltige Phosphat-Verbindung, z. B. diejenige, die durch die folgende Formel (1) dargestellt wird:



worin  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$  jeweils unabhängig voneinander ein Wasserstoffatom oder eine organische Gruppe darstellen; X eine divalente oder höhere polyvalente organische Gruppe darstellt; p 0 oder 1 ist; q eine ganze Zahl von 1 oder mehr ist; und r eine ganze Zahl von 0 oder mehr ist.

**[0037]** In der Formel (I) schließt die organische Gruppe z. B. substituierte oder unsubstituierte Alkyl-, Cycloalkyl- und Aryl-Gruppen ein.

**[0038]** Die Substituenten der substituierten Gruppen schließen z. B. ein: Alkylgruppen, Alkoxygruppen, Arylgruppen, Aryloxygruppen und Arylthiogruppen. Diese Substituenten können kombiniert werden, um Arylalkoxyalkylgruppen zu ergeben oder sie können z. B. via Sauerstoff, Stickstoff oder Schwefelatome verbunden werden, um Arylsulfonylarylguppen zu ergeben.

**[0039]** In der Formel (I) bedeutet die divalente oder höher polyvalente organische Gruppe X, dass sie divalente oder höher polyvalente Gruppen einschließt, die sich ableiten von organischen Gruppen wie oben, durch Entfernung eines oder mehrerer Wasserstoffatome, die an Kohlenstoffatome gebunden sind. Z. B. schließt sie Alkylengruppen, (substituierte) Phenylengruppen, und Gruppen ein, die sich von Bisphenol oder polycyclischen Phenolen ableiten. Bevorzugt sind Gruppen, die sich ableiten von Bisphenol A, Hydrochinon, Resorcinol, Diphenylmethan, Dihydrodiphenyl und Dihydroxynaphthalin.

**[0040]** Die Phosphat-Verbindungen können Monomere, Oligomere, Polymere oder deren Mischungen sein. Genauer schließen sie z. B. ein: Trimethylphosphat, Triethylphosphat, Tributylphosphat, Trioctylphosphat, Tributoxyethylphosphat, Triphenylphosphat, Tricresylphosphat, Cresyldiphenylphosphat, Octyldiphenylphosphat, Tri(2-ethylhexyl)phosphat, Diisopropylphenylphosphat, Trixylenylphosphat, Tris(isopropylphenyl)phosphat, Tributylphosphat, Bisphenol A-bisphosphat, Hydrochinonbisphosphat, Resorcinolbisphosphat, Resorcinol-diphenylphosphat, Trihydroxybenzol-triphosphat, und Cresyldiphenylphosphat, und deren substituierte Derivate und deren Oligomere und Polymere und kondensierte Derivate davon.

**[0041]** Kommerziell erhältliche, nicht halogenhaltige Phosphate, die bevorzugt als Komponente (C) der schwerentflammaren Polycarbonatharz-Zusammensetzung der Erfindung verwendet werden, sind z. B. TPP [Triphenylphosphat], TXP [Trixylenylphosphat], CR-733S [Resorcinol-bis(diphenylphosphat)], PX200 [1,3-Phenylentetrakis(2,6-dimethylphenylphosphat)], PX201 [1,4-Phenylentetrakis(2,6-dimethylphenylphosphat)] und PX202 [4,4'-Biphenylentetrakis(2,6-dimethylphenylphosphat)] alle von Daihachi Chemical industry.

**[0042]** Die Formulierungen der Komponenten (A) bis (C) in der Erfindung werden beschrieben. In der Erfindung weist das Styrolharz der Komponente (B) keine direkte Beziehung zur Flammbeständigkeit der Harz-Zusammensetzung auf, und es kann in der Harz-Zusammensetzung vorhanden sein, wenn die Schmelzfluidität

des Polycarbonatharzes darin verbessert werden muß. Das Mischungsverhältnis des Polycarbonatharzes (A) zum Styrolharz (B) ist so, dass das Polycarbonatharz (A) von 30 bis 95 Gew.-%, bevorzugt von 60 bis 95 Gew.-% beträgt, und die Menge des Styrolharzes (B) von 5 bis 70 Gew.-%, bevorzugt 5 bis 40 Gew.-% beträgt.

**[0043]** Wenn der Polycarbonatharzgehalt der Komponente (A) kleiner als 30 Gew.-% ist, ist die Wärmebeständigkeit und die mechanische Festigkeit der Formkörper aus der Zusammensetzung niedrig; und wenn der Styrolharzgehalt für die Komponente (B) kleiner als 5 Gew.-% beträgt, ist die Formbarkeit der Zusammensetzung schlecht. Besonders bevorzugt ist der Styrolharzgehalt weniger als 40 Gew.-%, da das Flammbeständigkeits-Niveau der Harz-Zusammensetzung von der Klasse HB zur Klasse V-2 in dem Test UL-94 ansteigt. In diesem Fall ist das Styrolharz (B) bevorzugt das oben erwähnte Acrylnitril-Styrol-Copolymer oder ein Kautschuk-modifiziertes Styrolharz, noch bevorzugter das Kautschuk-modifizierte Styrolharz. Die Kautschuk-Komponente der Polycarbonatharz-Zusammensetzung, die das Kautschukmodifizierte Styrolharz enthält, beträgt bevorzugt höchstens 15 Gew.-%, noch bevorzugter höchstens 10 Gew.-%. Das Mischungsverhältnis der Harze kann zweckmäßig bestimmt werden, abhängig vom Molekulargewicht des Polycarbonatharzes, des Typs, des Molekulargewichtes, des Schmelzindex und des Kautschukgehalts des Styrolharzes und der Verwendung, der Größe und der Dicke der Harzformkörper.

**[0044]** Der Phosphatgehalt der Komponente (C) liegt zwischen 1 und 30 Gewichtsteilen, bevorzugt zwischen 2 und 25 Gewichtsteilen, noch bevorzugter zwischen 3 und 20 Gewichtsteilen, bezogen auf 100 Gewichtsteile der Harze (A) und (B). Wenn der Phosphatgehalt weniger als 1 Gewichtsteil beträgt, ist es schwierig die gewünschte Flammbeständigkeit zu erzielen, aber wenn er mehr als 30 Gewichtsteile beträgt, verringern sich die Wärmebeständigkeit und die Schlagzähigkeit der Harzformkörper. Daher wird der Phosphatgehalt unter Berücksichtigung der gewünschten Flammbeständigkeit der Harzformkörper bestimmt, weitgehend abhängig von dem Typ der Phosphat-Verbindung und von dem Gehalt der anderen Additive aus Kautschuk-artigem Elastomer und anorganischem Füllstoff.

**[0045]** Die schwerentflammbare Polycarbonatharz-Zusammensetzung der Erfindung umfaßt grundsätzlich die Komponenten (A) bis (C). Bei Bedarf kann jedoch als eine zusätzliche Komponente (D) ein Fluorolefinharz zur schwerentflammbaren Polycarbonatharz-Zusammensetzung gegeben werden, um die Harzschmelzen am Tropfen zu hindern, wenn die Zusammensetzung entzündet wird. Das Fluor-Olefin-Harz (D) ist im allgemeinen ein Polymer oder Copolymer mit einer Fluorethylenischen Struktur, z. B. einschließlich Difluorethylenpolymere, Tetrafluorethylenpolymere, Tetrafluorethylen-Hexafluorpropylen-Copolymere und Copolymere von Tetrafluorethylen mit Fluor-freien Ethylenmonomeren. Bevorzugt ist Polytetrafluorethylen (PTFE), vorteilhaft mit einem durchschnittlichen Molekulargewicht von mindestens 500000, noch vorteilhafter von 500000 bis 1000000. Irgendein und jeder Typ der im Stand der Technik bekannten Polytetrafluorethylene ist in der Erfindung anwendbar.

**[0046]** Bevorzugter für die Verwendung hierin ist Polytetrafluorethylen mit der Fähigkeit, Fibrillen zu bilden, da diese Eigenschaft die Harzschmelzen noch besser am Tropfen hindert. Das Fibrillen-bildende Polytetrafluorethylen (PTFE) unterliegt keiner besonderen Beschränkung, aber bevorzugt ist PTFE des Typs 3 definiert durch einen ASTM-Standard. Spezifische Beispiele von PTFE des Typs 3 schließen Teflon® 6-J (von Mitsui-DuPont Fluorochemical), Polyflon® D-1, Polyflon® F-103, Polyflon® F201 (alle von Daikin Industry) und CD-076 (von Asahi ICI Fluoropolymers) ein.

**[0047]** Andere, ausgenommen PTFE des Typs 3, sind ebenfalls hier anwendbar, z. B. Argoflon® F5 (von Monteflous), Polyflon® MPA und Polyflon® FA-100 (beide von Daikin Industry). Diese Polytetrafluorethylene (PTFEs) können allein oder in Kombination verwendet werden. Die oben erwähnte Fibrillen-bildenden Polytetrafluorethylene (PTFEs) können z. B. erhalten werden durch Polymerisation von Tetrafluorethylen in einem wäßrigen Lösungsmittel in Gegenwart von Natrium, Kalium oder Ammonium-Peroxydisulfid unter einem Druck von 0 bis 100 psi (1 psi = 6,894 kPa), bei einer Temperatur die im Bereich zwischen 0 und 200, bevorzugt zwischen 20 und 100°C liegt.

**[0048]** Der Fluorolefinharzgehalt der Harz-Zusammensetzung liegt zwischen 0,02 und 5 Gewichtsteilen, bevorzugt zwischen 0,05 und 2 Gewichtsteilen bezogen auf 100 Gewichtsteile des Harzes aus (A) und (B) in der Zusammensetzung. Wenn der Fluorolefinharzgehalt weniger als 0,02 Gewichtsteile beträgt, ist die Harzschmelzentropfverhindernde Fähigkeit der Zusammensetzung nicht ausreichend für die beabsichtigte Flammbeständigkeit der Zusammensetzung. Wenn jedoch der Gehalt mehr als 5 Gewichtsteile beträgt, kann die Wirkung des zugegebenen Fluorolefinharzes nicht mehr weiter gesteigert werden, und eine solche große Menge des Fluorolefinharzes, wenn sie zur Zusammensetzung gegeben wird, wird einige negative Einflüsse hinsichtlich der Schlagzähigkeit und der äußeren Erscheinung der Formkörper der Zusammensetzung haben. Daher

wird die Menge des zu der Zusammensetzung gegebenen Fluorolefinharzes zweckmäßig bestimmt, abhängig von der erforderlichen Flammbeständigkeit der Formkörper aus der Zusammensetzung, z. B. basierend auf V-0, V-1 oder V-2 in dem Test UL-94 und abhängig von der Menge der anderen Aufbau-Komponenten.

**[0049]** Die schwerentflammbare Polycarbonatharz-Zusammensetzung der Erfindung kann weiterhin ein gepfropftes Kautschuk-artiges Elastomer vom Kern/Hülle-Typ (E) enthalten, das weiter die Schlagzähigkeit der Formkörper aus der Zusammensetzung verbessert. Der Gehalt des gepfropften Kautschuk-artigen Elastomers in der Zusammensetzung liegt zwischen 0,2 und 30 Gewichtsteilen, bevorzugt zwischen 0,5 und 10 Gewichtsteilen, bezogen auf 100 Gewichtsteile des Harzes von (A) und (B) in der Zusammensetzung. Der Gehalt des gepfropften kautschukartigen Elastomers kann zweckmäßig und weitgehend bestimmt werden unter Betrachtung der erforderlichen Eigenschaften, einschließlich der Schlagzähigkeit, der Wärmebeständigkeit und der Zähigkeit der beabsichtigten Formkörper der Zusammensetzung.

**[0050]** Das gepfropfte Kautschuk-artige Elastomer vom Kern/Hülle-Typ besitzt eine Zweischicht-Struktur, die sich aus einem Kern und einer Hülle zusammensetzt, worin der Kern ein flexibles Kautschuk-Material und die Hülle, die den Kern bedeckt, ein hartes Harz-Material ist. Insgesamt ist das Elastomer selbst pulverförmig oder granulär. Nachdem es mit einem Polycarbonatharz in der Schmelze vermischt wurde behält das gepfropfte Kautschuk-artige Elastomer dieses Typs meist seinen ursprünglichen pulverförmigen oder granulären Zustand bei. Da das gepfropfte Kautschuk-artige Elastomer seine ursprünglichen pulverförmigen oder granulären Zustand, nachdem es mit der Harzschmelze vermischt worden ist, beibehält, ist es wirksam darin, Probleme durch Oberflächenschichtabschälung der Formkörper aus der Harz-Zusammensetzung zu vermeiden.

**[0051]** Bekannte verschiedene gepfropfte Kautschuk-artige Elastomere vom Kern/Hülle-Typ sind hier anwendbar. Kommerziell erhältliche Produkte solcher Elastomere schließen z. B. ein Hiblen® B621 (von Nippon Zeon), KM-330 (von Rohm & Haas), Metablen® W529, Metablen® S2001, Metablen® C223, Metablen® B621 (alle von Mitsubishi Rayon).

**[0052]** Unter allen sind diejenigen bevorzugt, die hergestellt werden durch Polymerisation von einem oder mehreren vinylischen Monomeren in Gegenwart eines kautschuk-artigen Polymers, das erhalten wurde aus Monomeren aus im wesentlichen Alkylacrylaten oder Alkylmethacrylaten und Dimethylsiloxan. In den Alkylacrylaten und Alkylmethacrylaten weist die Alkylgruppe bevorzugt 2 bis 10 Kohlenstoffatome auf, und genauer schließen die Acrylate und Methacrylate z. B. ein: Ethylacrylat, Butylacrylat, 2-Ethylhexylacrylat und n-Octylmethacrylat. Ein Beispiel der Kautschuk-artigen Elastomere, die aus den Monomeren von im wesentlichen Alkyl(meth)acrylaten erhalten werden, ist ein Polymer, das hergestellt wird durch Umsetzung von mindestens 70 Gew.-% der Alkyl(meth)acrylate mit höchstens 30 Gew.-% der anderen copolymerisierbaren vinylischen Monomere wie Methylmethacrylat, Acrylnitril, Vinylacetat und Styrol. Um das Polymer herzustellen, kann ein polyfunktionelles Monomer, das als Vernetzungsmittel dient, wie Divinylbenzol, Ethylendimethacrylat, Triallylcyanurat, oder Triallylisocyanurat, dem Polymerisationssystem zugesetzt werden.

**[0053]** Die vinylischen Monomere, die in der Gegenwart des Kautschuk-artigen Polymers polymerisiert werden, schließen z. B. ein: aromatische Vinyl-Verbindungen wie Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol; Acrylate wie Methylacrylat, Ethylacrylat; und Methacrylate wie Methylmethacrylat, Ethylmethacrylat. Eines oder mehrerer dieser Monomere kann (co)polymerisiert sein, wie kombiniert, oder es kann copolymerisiert sein mit irgendeinem anderen vinylischen Monomer wie Vinylcyanid-Verbindungen (z. B. Acrylnitril, Methacrylnitril), und Vinylester (z. B. Vinylacetat, Vinylpropionat). Die (Co)polymerisation kann auf irgendeine bekannte Art z. B. Polymerisation in Masse, Suspensionspolymerisation oder Emulsionspolymerisation bewirkt werden. Bevorzugt ist die Emulsionspolymerisation.

**[0054]** Es ist bevorzugt, dass die in der oben erwähnten Weise hergestellten gepfropften Kautschuk-artigen Elastomere vom Kern/Hülle-Typ mindestens 20 Gew.-% eines Kautschuk-artigen Polymeranteils aufweisen. Typische Beispiele der gepfropften Kautschuk-artigen Elastomere vom Kern/Hülle-Typ sind MAS-Harz-Elastomere wie Pfcopolymere des Styrols und des Methylmethacrylates mit von 60 bis 80 Gew.-% n-Butylacrylat. Weitere Beispiele sind zusammengesetzte Kautschuk-gepfropfte Copolymere, die hergestellt werden durch Pfcopolymerisation eines zusammengesetzten Kautschuks mit mindestens einem Vinylmonomer, worin der zusammengesetzte Kautschuk von 5 bis 95 Gew.-% einer Polysiloxan-Kautschuk-Komponente und von 5 bis 95 Gew.-% einer Polyacryl(meth)acrylat-Kautschuk-Komponente so miteinander verwoben enthält, dass sie sich nicht voneinander trennen können, und die eine durchschnittliche Partikelgröße von 0,01 bis 1  $\mu\text{m}$  oder ähnliches aufweisen. Die zusammengesetzten Kautschuk-gepfropften Copolymere sind besser als einfache Kautschuk-gepfropfte Copolymere, da die Wirkung auf die Verbesserung der Schlagzähigkeit der Harzformkörper höher ist die der letzteren, der einfach-Kautschuk-gepfropften Copolymere. Kommerzielle Produkte sol-

cher zusammengesetzter Kautschuk-gepfropfter Copolymere sind erhältlich, z. B. Metablen® S-2001 von Mitsubishi Rayon.

**[0055]** Die schwerentflammbare Polycarbonatharz-Zusammensetzung der Erfindung ist dadurch gekennzeichnet, dass, wenn die Zusammensetzung, im allgemeinen gemahlene Pellets der Zusammensetzung, der Soxhlet-Extraktion mit einem Lösungsmittel aus Aceton unterworfen werden, der Phenolgehalt des Extraktes höchstens 300 ppm beträgt, bevorzugt höchstens 200 ppm der Gesamtmenge der Zusammensetzung. Wenn der Phenolgehalt des Extraktes mehr als 300 ppm beträgt, ist dies unvorteilhaft, da die In-Line-Wärmestabilität, die thermische Alterungsbeständigkeit, die Feucht-Heiß-Beständigkeit und die Recyclierbarkeit der Harzformkörper gering ist, oder weil die physikalischen Eigenschaften der Harzformkörper, insbesondere deren thermische Stabilität verschlechtert ist, und sich die Harzformkörper häufig gelb verfärben.

**[0056]** Die Phenole schließen alle ein, die sich ableiten von dem Polycarbonatharz, der Phosphat-Verbindung und anderen Additiven, die die Harz-Zusammensetzung bilden. Genauer werden sie sich ableiten von dem Ausgangspolycarbonatharz, der Phosphat-Verbindung und dem Styrolharz, sogar von Verunreinigungen in diesen Ausgangsmaterialien und auch von Additiven der Zusammensetzung und von Zersetzungsprodukten, die, während die Harz-Zusammensetzung verschmolzen und unter Wärme verknetet wird, gebildet werden, und die in der fertigen Zusammensetzung, im allgemeinen den Pellets der Zusammensetzung, vorhanden sind, und all diese Phenole sind hier gemeint.

**[0057]** Wie hierin zuvor erwähnt, weist die schwerentflammbare Polycarbonatharz-Zusammensetzung der Erfindung ein Verhältnis der terminalen Hydroxylgruppen zu den terminalen Gruppen des Polycarbonatharzes von im Bereich zwischen 0,5 und 20 Mol-% auf. Es ist außerdem erwünscht, dass der Halogengehalt, insbesondere der Chlorgehalt der schwerentflammbaren Polycarbonatharz-Zusammensetzung der Erfindung höchstens 50 ppm, noch bevorzugter höchstens 30 ppm beträgt.

**[0058]** Die Verfahren zur Analyse der schwerentflammbaren Polycarbonatharz-Zusammensetzung für die Komponenten werden unten erwähnt.

(1) Bestimmung des Phenolgehaltes:

Pellets der Probe der schwerentflammbaren Polycarbonatharz-Zusammensetzung, die zu analysieren ist, werden gemahlen und über ein 100-Mesh-Metallsieb gegeben. 15 g des Pulvers, die durch das Sieb gegangen sind, werden dosiert und in einen zylindrischen Papierfilter Nr. 84 (28 × 100 mm) gegeben. Dieser wird mit 300 ml Aceton für 8 Stunden unter Rückfluß mit einer Geschwindigkeit von einmal (20 ml) für 3 bis 4 Minuten extrahiert. Das Aceton wird von dem resultierenden Extrakt entfernt, und der niedermolekulare Rückstand wird gewogen. Dieser wird in DMF (Dimethylfuran) gelöst, wozu dann N,O-Bis(trimethylsilyl)acetamid gegeben wird. Dann wird dies der Temperaturprogrammierten GC-Analyse unterworfen, durch die die Phenole darin quantitativ identifiziert werden. Basierend auf den Daten der so mengenmäßig bestimmten niedermolekularen Komponente wird der Phenolgehalt der Zusammensetzung berechnet.

(2) Bestimmung des Verhältnisses der terminalen Hydroxylgruppen zu den gesamten terminalen Gruppen des Polycarbonatharzes:

Eine Probe des Polycarbonatharzes wird durch NMR analysiert.

(3) Bestimmung des Halogengehaltes der Harz-Zusammensetzung:

10 g der trockenen Pellets der Probe der schwerentflammbaren Polycarbonatharz-Zusammensetzung, die analysiert wird, werden in 90 g Methylenchlorid gelöst, wozu 50 ml Aceton gegeben werden. Dies wird dann der potentiometrischen Titration in einem automatischen Titrimeter mit dem Titrierreagens 0,005 M Silbernitrat/Acetonlösung unterworfen.

**[0059]** Die schwerentflammbare Polycarbonatharz-Zusammensetzung der Erfindung kann zusätzlich zu den unerlässlichen Komponenten (A), (B) und (C) mindestens eine wahlweise vorhandene Komponente ausgewählt aus (D) und (E) enthalten, und beliebige weitere Additive, die im allgemeinen in gewöhnlichen thermoplastischen Harzen verwendet werden, können bei Bedarf zugesetzt werden. Die wahlweise vorhandenen Komponenten und Additive dienen zur weiteren Verbesserung der Formbarkeit der Zusammensetzung und zur weiteren Verbesserung der Schlagzähigkeit, der Zähigkeit, der äußeren Erscheinung, der Witterungsbeständigkeit und der Steifigkeit der Formkörper der Zusammensetzung. Sie schließen z. B. anorganische Füllstoffe ein wie Talk, Calciumcarbonat, Glasfasern, Kohlefasern; andere thermoplastische Harze wie Polyesterharze; und auch phenolische Phosphor-enthaltende oder Schwefel-enthaltende Antioxidationsmittel, antistatische Mittel, Polyamid-Polyether-Blockcopolymere (zur permanenten statischen Elektrifizierungsbeständigkeit), Benzotriazol-Typ- oder Benzophenon-Typ-UV-Absorptionsmittel, sterisch gehinderte Amin-Typ-Licht-Stabilisatoren (Witterungsbeständigkeitsmittel), Mikrobizide, Kompatibilisierungsmittel und Farbstoffe (Farben, Pigmente). Hinsichtlich der Menge der wahlweise vorhandenen Komponenten und Additive, die in der schwerentflamm-

baren Polycarbonatharz-Zusammensetzung der Erfindung vorhanden sind, unterliegt diese keine besonderen Definition, vorausgesetzt, dass sie mit den Eigenschaften der Zusammensetzung nicht Wechselwirken.

**[0060]** Ein Verfahren für die Herstellung der schwerentflammbaren Polycarbonatharz-Zusammensetzung der Erfindung wird beschrieben. Die schwerentflammbare Polycarbonatharz-Zusammensetzung der Erfindung kann hergestellt werden durch Mischen und Verkneten der Komponenten (A), (B) und (C) in dem oben angegebenen vorgegebenen Verhältnis, wahlweise zusammen mit irgendeiner der wahlweise vorhandenen Komponenten (D) und (E) und den obigen Additiven in irgendeinem gewünschten Verhältnis. Die Formulierung und das Mischen der Aufbau-Komponenten in die gewünschte Harz-Zusammensetzung kann auf bekannte Weise bewirkt werden, z. B. durch Vormischen derselben in gewöhnlichen Vorrichtungen, wie einem Bandmischer, einem Trommelmischer, gefolgt von der weiteren Verknetung des resultierenden Pre-Mixes in einem Henschel-Mischer, einem Banbury-Mischer, einem Einschneckenextruder, einem Doppelschneckenextruder, einem Mehrschneckenextruder oder einem Co-Knetter. Die Temperatur, bei der die Komponenten vermischt und verknetet werden, liegt im Allgemeinen zwischen 240 und 300°C.

**[0061]** Andere Komponenten als das Polycarbonatharz und das Styrolharz können zuvor mit dem Polycarbonatharz und dem Styrolharz oder mit irgendeinem anderen thermoplastischen Harz vermischt werden, um einen Master-Batch herzustellen, und sie können den anderen Aufbau-Komponenten zugesetzt werden. Es ist notwendig, dass der Gehalt der Verunreinigungen und des Rückstandslösungsmittels in dem Ausgangsmaterial für die schwerentflammbare Polycarbonatharz-Zusammensetzung der Erfindung so gering wie möglich ist. Hinsichtlich der Mischungsart des Ausgangsmaterials, um die Harz-Zusammensetzung herzustellen, ist es wünschenswert, dass die Ausgangsmaterialien in einem Extruder mit einem großen LID geschmolzen und verknetet werden, und die resultierende Schmelze aus dem Bett durch Vakuumsaugen entnommen wird, um dadurch zurückgebliebene Lösungsmittel aus der Schmelze zu entfernen; oder sie in einem Zweistufenextruder zu schmelzen und zu verkneten, so dass die flüchtigen Komponenten, die sich aus der resultierenden Schmelzmischung freisetzen, vollständig abgesaugt und aus der Schmelzmischung entfernt werden. Bei Bedarf kann eine kleine Menge eines Alkohols oder Wasser dem Mischungssystem hinzugegeben werden, und die Verunreinigungen werden aus der resultierenden Schmelzmischung zusammen mit dem Dampf des Additivs, des Alkohols oder des Wassers, begleitet davon entfernt.

**[0062]** Nachdem die Herstellung in oben beschriebener Weise erfolgt ist, kann die flammgehemmte Polycarbonatharz-Zusammensetzung der Erfindung zu verschiedenen Formkörpern in den obigen Schmelzformvorrichtungen geformt werden, oder nachdem sie pelletisiert wurde, können die resultierenden Pellets zu verschiedenen Formen durch Spritzgießen, Prägespritzen, Extrusionsformen, Blasformen, Pressen, Vakuumformen oder Schäumen geformt werden, Besonders bevorzugt wird die Zusammensetzung durch Schmelzkneten pelletisiert, wie oben, und die resultierenden Pellets werden in Formkörper durch Spritzgießen oder Prägespritzen geformt. Für das Spritzgießen der Zusammensetzung sind gasunterstützte Spritzgießverfahren anwendbar, um Schrumpfungshöhlen um die Formkörper zu verhindern, und um das Gewicht der Formkörper zu reduzieren.

**[0063]** Spritzgießformkörper (einschließlich derjenigen, die in der Art des Spritzgieß-Kompressionsformen geformt wurden) der schwerentflammbaren Polycarbonatharz-Zusammensetzung der Erfindung sind anwendbar für verschiedene Gehäuse und Teile von elektrischen oder elektronischen Geräten, z. B. diejenigen für OA-Geräte und Informations-Geräte wie Vervielfältiger, Fax-Geräte, Fernseher, Radios, Bandrekorder, Videorekorder, Personalcomputer, Drucker, Telefone und Informationssichtgeräte; und diejenigen für andere elektrische und elektronische Geräte für die Verwendung in Haushalten wie Mikrowellenöfen und Kühlgeräte. Die Formkörper besitzen weitere Anwendungen und sind z. B. als Automobilteile anwendbar.

**[0064]** Die Erfindung wird nun genauer mit Blick auf die folgenden Beispiele und Vergleichsbeispiele beschrieben, die jedoch nicht dazu dienen, den Umfang der Erfindung einzuschränken.

[Beispiele I-1 bis I-9 und Vergleichsbeispiele I-1 bis I-3]

**[0065]** Die Komponenten, die in Tabelle I-1 und Tabelle I-2 gezeigt sind, wurden in den darin angegebenen Verhältnissen vermischt (die Komponenten (A) und (B) sind bezogen auf Gew.-% angegeben, und die anderen Komponenten sind bezogen auf Gewichtsteile bezogen auf 100 Gewichtsteile der Gesamtmenge von (A) und (B) angegeben), in einen Doppelschneckenextruder mit einer Lüftungsöffnung (TEM35 von Toshiba Kikai), gefördert, geschmolzen und darin bei 280°C (für PC allein) oder 260°C (für PC kombiniert mit PS) verknetet, mit einem Grad der Druckreduzierung durch die Lüftungsöffnung von höchstens 600 mmHg und anschließend pelletisiert. Zu allen Zusammensetzungen der Beispiele und Vergleichsbeispiele wurden 0,2 Gewichtsteile

Irganox® 1076 (Ciba Specialty Chemicals) und 0,1 Gewichtsteile Adekastab® C (von Asahi Denka Industry) gegeben, die beide als Antioxidationsmittel dienen. Lediglich in Vergleichsbeispiel 3 war die Lüftungsöffnung offen, um die Pellets zu bilden. Die resultierenden Pellets wurden bei 80°C für 12 Stunden getrocknet und anschließend in Teststücke und Artikel durch Spritzgießen bei 280°C (für PC ausschließlich) und 260°C (für die Kombination von PC mit PS) geformt. Die Teststücke wurden hinsichtlich ihrer Eigenschaften in verschiedenen Testverfahren getestet und ihre Daten, die erhalten wurden, sind in den Tabellen I-1 und I-2 angegeben. In diesen Tabellen wird Beispiel I-1 als Beispiel 1 bezeichnet, und das gleiche gilt für die anderen Beispiele und Vergleichsbeispiele.

**[0066]** Die Formmaterialien, die darin verwendet werden, und die Methoden für die Untersuchung der hier erzeugten Proben sind unten erwähnt.

(A) Polycarbonatharz:

**[0067]** PC-1: Bisphenol A-Polycarbonatharz mit einem MI von 20 g/10 min. (bei 300°C unter einer Belastung von 1,2 kg), eine viskositätsmittleren Molekülmasse von 19000, einem acetoneextrahierten Phenolgehalt von 80 ppm, einem Verhältnis der terminalen Hydroxylgruppen von 5 Mol-% und einem Chlorgehalt von 80 ppm.

**[0068]** PC-2 (nicht erfindungsgemäß): Bisphenol A-Polycarbonatharz mit einem MI von 20 g/10 min. (bei 300°C unter einer Belastung von 1,2 kg), einer viskositätsmittleren Molekülmasse von 19000, einem acetoneextrahierten Phenolgehalt von 60 ppm, einem Verhältnis der terminalen Hydroxylgruppen von 0,3 Mol-% und einem Chlorgehalt von 80 ppm.

**[0069]** PC-3 (nicht erfindungsgemäß); Bisphenol A-Polycarbonatharz mit einem MI von 20 g/10 min. (bei 300°C unter einer Belastung von 1,2 kg), einer viskositätsmittleren Molekülmasse von 19000, einem acetoneextrahierten Phenolgehalt von 340 ppm, einem Verhältnis der terminalen Hydroxylgruppen von 5 Mol-% und einem Chlorgehalt von 60 ppm.

(B) Styrolharz:

**[0070]** HIPS: Hochschlagzähes Polystyrolharz. dies ist Polystyrol-gepfropftes Polybutadien mit einem Kautschukgehalt von 10 Gew.-% und einem MI von 8 g/10 min. (bei 200°C unter einer Belastung von 5 kg).

**[0071]** ABS: Acrylnitril-Butadien-Styrol-Copolymer (ABS). Dies ist DP-611 (von Technopolymer) mit einem MI von 2 g/10 min. (bei 200°C unter einer Belastung von 5 kg).

(C) Organisches Phosphor-enthaltendes flammhemmendes Mittel:

**[0072]** P-1: Triphenylphosphat. Dies ist TPP (von Daihachi Chemical). P-2: Resorcinol-bis(diphenylphosphat). Dies ist ein Phosphat, PFR (von Asahi Denka Kogyo).

**[0073]** P-3: 1,3-Phenylen-tetrakis(2,6-dimethylphenylphosphat). Dies ist PX-200 (von Daihachi Chemical).

(D) Fluor-Olefinharz:

**[0074]** PTFE: Polytetrafluorethylen. Dies ist F201L (von Daikin Chemical) mit einem Molekulargewicht von 4000000 bis 5000000.

(E) Gepfropftes Kautschuk-artiges Elastomer vom Kern/Hülle-Typ:

**[0075]** Zusammengesetztes Kautschuk-Typ-gepfropftes Copolymer Metablen® S2001 (von Mitsubishi Rayon), mit einem Polydimethylsiloxangehalt von mindestens 50 Gew.-%.

Testverfahren:

(1) Izod (Schlagzähigkeit nach Izod):

**[0076]** Gemessen nach ASTM D256. Die Temperatur ist 23°C, und die Dicke der Proben beträgt 1/8 Zoll, Die Daten sind angegeben als kJ/m<sup>2</sup>.

(2) Flammbeständigkeit:

**[0077]** Untersucht gemäß dem UL94-Verbrennungstest. Die Proben die untersucht wurden, hatten eine Dicke von 1,5 mm.

(3) Schweißfestigkeit:

1. Unter Verwendung einer Form, in die ein Formmaterial durch zwei Öffnungen eingeführt wird, wurden Zugfestigkeits-Teststücke geformt und ihre Zugfestigkeit gemessen.
2. Schweißfestigkeit-Retention (%) = (Zugfestigkeit des geschweißten Teils/Zugfestigkeit des nicht geschweißten Teils) × 100.

(4) In-Line-Wärmestabilität:

**[0078]** Eine Probe der Harz-Zusammensetzung, die untersucht wurde, wurde in einer Spritzgießformmaschine bei 260°C für 16 Minuten gehalten und anschließend in Teststücke geformt, und der Farbunterschied ( $\Delta E$ ) wurde gemessen. Gemäß JIS H7103 (Testverfahren für die Vergilbung) wurde die Farbe (L, a, b) der Teststücke vor und nach der Wärmebehandlung mit einem Kolorimeter gemessen. Die Farbänderung bezeichnete die Farbdifferenz ( $\Delta E$ ).

(5) Thermische Alterungsbeständigkeit:

**[0079]** Die Formkörper wurden bei 80°C für 500 Stunden entfernt und die Schlagzähigkeit nach IZOD und  $\Delta E$  der Formkörper nach der Wärmebehandlung wurde gemessen.

(6) Feucht-Heiß-Beständigkeit:

**[0080]** Formkörper wurden einem Expositionstest bei einer Temperatur von 70°C und einer Feuchtigkeit von 90% für 500 Stunden ausgesetzt. Nach dem Test wurde die Schlagzähigkeit nach IZOD und die Farbdifferenz ( $\Delta E$ ) der Formkörper gemessen.

(7) Recyclbarkeit:

**[0081]** Gehäuse für tragbare Personalcomputer (DIN A4 Größe) wurden geschmolzen. Diese wurden vermahlen und 100% in Teststücke recycelt, die in der gleichen Weise wie zuvor geformt wurden. Die Schlagzähigkeit nach IZOD und die Farbdifferenz ( $\Delta E$ ) der recycelten Teststücke wurden gemessen.

Tabelle I-1

	Bsp. 1*	Vgl.-Bsp. 1	Bsp. 2	Bsp. 3*	Vgl.-Bsp. 2	Bsp. 4
(A)	100		50			70
				50		
		100			50	
(B)			50	50	50	30
						10
(C)	3	3	10	10	10	
(D)						
(E)						
	90	350	120	110	320	80
	30	30	20	15	15	20
	70	70	15	12	12	50
(1) Schlagzähigkeit nach Izod (kJ/m <sup>2</sup> )	V-2	V-2	HB	HB	HB	V-2
(2) UL-94 (Teststückdicke: 1,5 mm)	65	60	35	25	30	40
(3) Schweißzugfestigkeit (MPa)	98	95	60	40	55	70
Schweißfestigkeit-Retention (%)	1	13	2	2	17	2
(4) In-Line-Wärmestabilität: Farbänderung (ΔE)	70	60	12	10	8	45
(5) Thermische Alterungsbeständigkeit: Schlagzähigkeit nach Izod (kJ/m <sup>2</sup> )	2	15	2	2	22	1
Farbänderung (ΔE)	60	50	10	10	8	40
(6) Feucht-Heiß-Beständigkeit: Schlagzähigkeit nach Izod (kJ/m <sup>2</sup> )	3	27	5	4	30	2
Farbänderung (ΔE)	70	65	12	8	10	50
(7) Recyclbarkeit: Schlagzähigkeit nach Izod (kJ/m <sup>2</sup> )	1	8	2	2	10	2
Farbänderung (ΔE)						

• Vergleichsbeispiel

Tabelle I-2

	Bsp. 5	Vgl.-Bsp. 3	Bsp. 6	Bsp. 7	Bsp. 8	Bsp. 9*
(A)	85	85	70	70	30	
(B)	15	15	30			30
(C)	10	10		5	10	10
(D)	3	3	10			
(E)	0,5	0,5		0,5		
	130	330	70	80	80	70
	25	50	20	20	10	10
(1) Schlagzähigkeit nach Izod (kJ/m <sup>2</sup> )	70	65	50	60	40	15
(2) UL-94 (Teststückdicke: 1,5 mm)	V-0	V-0	V-2	V-0	HB	HB
(3) Schweißzugfestigkeit (MPa)	45	45	35	40	30	20
Schweißfestigkeit-Retention (%)	80	80	65	80	60	50
(4) In-Line-Wärmostabilität: Farbänderung (ΔE)	3	14	2	3	3	3
(5) Thermische Alterungsbeständigkeit: Schlagzähigkeit nach Izod (kJ/m <sup>2</sup> )	65	50	45	60	40	15
Farbänderung (ΔE)	3	17	2	3	3	3
(6) Feucht-Heiß-Beständigkeit: Schlagzähigkeit nach Izod (kJ/m <sup>2</sup> )	60	45	40	50	40	10
Farbänderung (ΔE)	5	26	1	2	2	2
(7) Recyclebarkeit: Schlagzähigkeit nach Izod (kJ/m <sup>2</sup> )	70	55	50	60	35	15
Farbänderung (ΔE)	2	9	3	3	2	2

\* Vergleichsbeispiel

**[0082]** Aus den in den Tabellen I-1 und I-2 gezeigten Ergebnissen, worin die Daten der Schlagzähigkeit und der Farbe der Formkörper der Beispiele verglichen werden mit denjenigen der Vergleichsbeispiele, ist ersichtlich, dass die Formkörper der schwer entflammaren Polycarbonatharz-Zusammensetzung der Erfindung eine gute In-Line-Wärmestabilität, thermische Alterungsbeständigkeit, Feucht-Heiß-Beständigkeit und Recyclbarkeit besitzen. Die Harz-Zusammensetzungen, die ein Styrolharz enthalten, werden auch in gute Formkörper geformt.

#### INDUSTRIELLE ANWENDBARKEIT

**[0083]** Obwohl die Formkörper der schwerentflammaren Polycarbonatharzzusammensetzung der Erfindung kein Halogen enthalten, besitzen sie eine gute Flammbeständigkeit, eine gute Schlagzähigkeit und eine gute Wärmebeständigkeit, sowie eine gute thermische Alterungsbeständigkeit und Feucht/Heiß-Beständigkeit. Da sie eine gute thermische Stabilität aufweisen, sind die Formkörper recycelbar. Daher tragen die Harzzusammensetzungen der Erfindung dazu bei, Umweltprobleme mit Kunststoffen zu lösen und die natürlichen Ressourcen zu schonen. Wenn ein Styrolharz und ein kautschukartiges Elastomer der Harzzusammensetzung zugesetzt wird, sind diese wirksam für eine weitere Verbesserung der Formbarkeit und der Schlagzähigkeit der Zusammensetzung und ihrer Formkörper ohne dass es zu einer Wechselwirkung mit der Haltbarkeit der Formkörper kommt. Selbst wenn die Formkörper in dunklen Farben gefärbt werden, besitzen sie einen guten Oberflächenglanz und eine gute Oberflächenabschälbeständigkeit, und ihre Schweißerscheinung und ihre Schweißzugfestigkeit sind gut. Selbst wenn die Phosphatverbindung in der Harzzusammensetzung nicht eine spezifische Phosphatverbindung mit guter Hydrolysebeständigkeit ist, sind die Formkörper der Zusammensetzung noch immer gut, in dem sie eine gute thermischer Stabilität und Recyclbarkeit aufweisen. Da die Formkörper der Harzzusammensetzung gut recycelbar sind, tragen sie zur Lösung von Umweltproblemen mit Kunststoffen bei und schonen die natürlichen Ressourcen. Daher sind die Formkörper der Harzzusammensetzungen der Erfindung gut anwendbar bei großformatigen, dünnwandigen elektrischen und elektronischen Geräten und Automobilteilen, insbesondere OA-Geräten und elektrischen und elektronischen Geräten für die Verwendung in Haushalten und ihr Anwendungsbereich wird sich in der Zukunft weiter ausdehnen.

#### Patentansprüche

1. Schwerentflammare Polycarbonatharzzusammensetzung, die umfasst:
  - (A) von 30 bis 95 Gew.-% eines Polycarbonatharzes und
  - (B) von 5 bis 70 Gew.-% eines Styrolharzes und
  - (C) von 1 bis 30 Gewichtsteile, bezogen auf 100 Gewichtsteile der Harze, einer Phosphatverbindung, wobei die Menge der Phenole in der erzielten Polycarbonatharzzusammensetzung, die in einer Soxhlet-Extraktion mit dem Lösungsmittel Aceton extrahiert wird, höchstens 300 ppm beträgt, und worin das Verhältnis der terminalen Hydroxylgruppen zu den endständigen Gruppen des Polycarbonatharzes zwischen 0,5 und weniger als 20 Mol-% beträgt.
2. Schwerentflammare Polycarbonatharzzusammensetzung nach Anspruch 1, worin der Chlorgehalt des Polycarbonatharzes höchstens 200 ppm beträgt.
3. Schwerentflammare Polycarbonatharzzusammensetzung nach Anspruch 1 oder 2, worin der Bestandteil des Polycarbonatharzes mit niedrigem Molekulargewicht, welcher durch Soxhlet-Extraktion mit dem Lösungsmittel Aceton extrahiert wird, höchstens 10 Gew.-% beträgt.
4. Schwerentflammare Polycarbonatharzzusammensetzung nach irgendeinem der Ansprüche 1 bis 3, worin das Polycarbonatharz eine viskositätsgemittelte Molmasse von 10000 bis 100000 aufweist.
5. Schwerentflammare Polycarbonatharzzusammensetzung nach irgendeinem der Ansprüche 1 bis 4, worin das Styrolharz ein Kautschuk-modifiziertes Styrolharz ist.
6. Schwerentflammare Polycarbonatharzzusammensetzung nach Anspruch 5, worin die Menge des Kautschuks, um das Styrolharz zu modifizieren, zwischen 5 und 30 Gew.-% beträgt.
7. Schwerentflammare Polycarbonatharzzusammensetzung nach Anspruch 5 oder 6, worin das Kautschuk-modifizierte Styrolharz ausgewählt wird aus der Gruppe bestehend aus hochschlagzähem Polystyrolen (HIPS) und Acrylnitril-Butadien-Styrol-Copolymeren (ABS).

8. Schwerentflammbare Polycarbonatharzzusammensetzung nach irgendeinem der Ansprüche 5 bis 7, worin die Menge der Kautschukkomponente höchstens 15 Gew.-% beträgt.
9. Schwerentflammbare Polycarbonatharzzusammensetzung nach irgendeinem der Ansprüche 1 bis 7, umfassend 60 bis 95 Gew.-% des Polycarbonatharzes (A) und 5 bis 40 Gew.-% des Styrolharzes (B).
10. Schwerentflammbare Polycarbonatharzzusammensetzung nach irgendeinem der Ansprüche 1 bis 9, worin der Phosphatgehalt zwischen 2 und 25 Gewichtsteilen bezogen auf 100 Gewichtsteile des Harzes (A) und (B) beträgt.
11. Schwerentflammbare Polycarbonatzusammensetzung nach irgendeinem der Ansprüche 1 bis 10, wobei die Phosphatverbindung ausgewählt wird aus der Gruppe bestehend aus Triphenylphosphat und Resorcinol-bis(diphenylphosphat).
12. Schwerentflammbare Polycarbonatharzzusammensetzung nach irgendeinem der Ansprüche 1 bis 11, die weiterhin enthält (D) von 0,02 bis 5 Gewichtsteile, bezogen auf 100 Gewichtsteile der Harze (A) und (B), eines Fluorolefinharzes.
13. Schwerentflammbare Polycarbonatharzzusammensetzung nach irgendeinem der Ansprüche 1 bis 12, die weiterhin enthält (E) von 0,2 bis 30 Gewichtsteile, bezogen auf 100 Gewichtsteile der Harze (A) und (B), eines gepropften kautschukartigen Elastomers vom Kern/Hülle-Typ.
14. Formkörper aus der schwerentflammbaren Polycarbonatharzzusammensetzung nach irgendeinem der Ansprüche 1 bis 13.
15. Spritzgießformkörper aus der schwerentflammbaren Polycarbonatharzzusammensetzung nach irgendeinem der Ansprüche 1 bis 13, für Gehäuse oder Teile von elektrischen und elektronischen Geräten.

Es folgen keine Zeichnungen