

⑫ **EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG**

⑲ Anmeldenummer: **78100628.3**

⑥ Int. Cl.²: **C 08 L 23/12// (C 08 L 23/08
C 08 K 3/34)**

⑳ Anmeldetag: **09.06.78**

③① Priorität: **16.06.77 DE 2738782**

④③ Veröffentlichungstag der Anmeldung:
21.02.79 Patentblatt 79/4

④④ Benannte Vertragsstaaten:
BE DE FR GB

⑦① Anmelder: **BASF Aktiengesellschaft
Carl-Bosch-Strasse 38
D-6700 Ludwigshafen(DE)**

⑦② Erfinder: **Theysohn, Rainer, Dr.
Bruessler Ring 38
D-6700 Ludwigshafen(DE)**

⑦② Erfinder: **Zeitler, Gerhard, Dr.
Lessingstrasse 11
D-6711 Hessheim(DE)**

⑦② Erfinder: **Mueller-Tamm, Heinz, Dr.
Ottweiler Strasse 9
D-6700 Ludwigshafen(DE)**

⑦② Erfinder: **Merkel, Helmut, Dr.
Im Schlosskeller 11
D-6713 Freinsheim(DE)**

⑦② Erfinder: **Wurmb, Rolf, Dr.
Kastellweg 10
D-6900 Heidelberg(DE)**

④⑤ **Polypropylen-Formmasse.**

⑤⑦ Die Erfindung liegt auf dem Gebiet von Polypropylen-Formmassen, die so modifiziert sind, daß sie sowohl kältezäh als auch steif sind. Die erfindungsgemäßen Massen bestehen aus oder im wesentlichen aus (1) 40 bis 98 Volumenteilen eines bestimmten relativ hochkristallinen Polypropylens; (2) 1 bis 50 Volumenteilen eines bestimmten Mischpolymerisats, das (2.1) 100 Gewichtsteile Äthylens, (2.2) 5 bis 40 Gewichtsteile eines Esters der Acryl- bzw. Methacrylsäure mit einem Alkanol, insbesondere des Esters der Acrylsäure mit n-Butanol, und/oder eines Vinylesters einer Alkancarbonsäure sowie (2.3) - gegebenenfalls - bis zu 10 Gewichtsteile Acryl bzw. Methacrylsäure einpolymerisiert enthält; sowie (3) 1 bis 10 Volumenteilen eines anorganischen, plättchenförmigen Füllstoffs, insbesondere Talkum, der ein bestimmtes Seitenverhältnis (Plättchendicke : Plättchendurchmesser) hat; mit der Maßgabe, daß die Summe der Volumenteile unter (1), (2) und (3) 100 Volumenteile beträgt.

EP 0 000 783 A2

BASF Aktiengesellschaft

O.Z. 32 747

Polypropylen-Formmasse

Polypropylen, insbesondere hochkristallines Polypropylen, ist ein als Formmasse geschätzter Werkstoff, da e sich z.B.
5 durch leichte Verarbeitbarkeit auszeichnet und zu Formteilen führt, die eine gute Wärmeformbeständigkeit und eine hohe Steifigkeit haben.

Ein bekannter Nachteil des Polypropylens ist indessen, daß
10 seine Zähigkeit (etwa die Bruchzähigkeit nach DIN 53 443) sehr stark abnimmt mit Temperaturen, die unterhalb seines Glaspunkts - also ca. $+4^{\circ}\text{C}$ - liegen. Dies bedeutet für die Praxis, daß bei Temperaturen unterhalb von $+4^{\circ}\text{C}$ der Gebrauchswert von Formteilen aus Polypropylen erheblich eingeschränkt
15 ist.

Es hat daher nicht an Versuchen gefehlt, die Kältezähigkeit von Polypropylen-Formmassen zu verbessern.

20 Ein relativ gelungener - und inzwischen auch praktisch ausgeübt - Versuch besteht darin, in die Formmassen zusätzlich zum Polypropylen untergeordnete Mengen bestimmter anderer linearer, thermoplastischer Polymerisate einzubringen. Zu diesen zusätzlichen thermoplastischen Polymerisaten zählen
25 insbesondere auch Mischpolymerisate aus übergeordneten Men-

gen Äthylen und untergeordneten Mengen eines Alkylesters der Acryl- bzw. Methacrylsäure (vgl. OE-PS 237 286).

Die guten Eigenschaften, die ein Zusatz der genannten thermoplastischen Mischpolymerisate in Polypropylen-Formmassen mit sich bringt, müssen indes wiederum mit einem gewissen Nachteil erkaufte werden, nämlich einem deutlich spürbaren Abfall in den Steifigkeitswerten (etwa im Zug-E-Modul nach DIN 53 457).

10

Eine Aufgabenstellung zur vorliegenden Erfindung war es dementsprechend, Polypropylen-Formmassen der vorstehend geschilderten Gattung aufzuzeigen, die nicht nur eine gute Kältezähigkeit, sondern auch gute Steifigkeitswerte mit sich bringen.

15

Es wurde gefunden, daß diese Aufgabe gelöst werden kann mit Polypropylen-Formmassen, die aufgebaut sind aus (1) einem bestimmten Polypropylen, (2) einem bestimmten thermoplastischen Mischpolymerisat aus (2.1) Äthylen, (2.2) einem Alkylester der Acryl- bzw. Methacrylsäure und/oder einem Vinyl- ester einer Alkancarbonsäure sowie (2.3) - gegebenenfalls - der Acryl- bzw. Methacrylsäure sowie (3) einem bestimmten anorganischen, plättchenförmigen Füllstoff.

25

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist dementsprechend eine Polypropylen-Formmasse, bestehend aus oder im wesentlichen bestehend aus

30

(1) 40 bis 98, vorzugsweise 60 bis 85, Volumenteilen eines einen kristallinen Anteil von über 90, vorzugsweise über 95, % sowie einen Schmelzindex (2,16 kg, 230°C) von 0,1 bis 20, vorzugsweise 0,5 bis 5, aufweisenden Polypropylens,

35

(2) 1 bis 50, vorzugsweise 15 bis 35, Volumenteilen eines

einen Schmelzindex (2,16 kg, 230°C) von 0,1 bis 20, vorzugsweise 0,5 bis 5, einen Zug-E-Modul (nach DIN 53 457) von weniger als 1 000 Nmm⁻² sowie eine Glasstemperatur von weniger als -20°C aufweisenden Mischpolymerisats,
5 das

(2.1) 100 Gewichtsteile Äthylen,

(2.2) 5 bis 40 Gewichtsteile eines Esters der Acryl-
10 bzw. Methacrylsäure mit einem C₁- bis C₈-Alkanol und/oder eines Vinylesters einer C₂- bis C₄-Alkancarbonsäure sowie

(2.3) - gegebenenfalls - bis zu 10 Gewichtsteile Acryl-
15 bzw. Methacrylsäure

einpolymerisiert enthält, sowie

(3) 1 bis 10, vorzugsweise 2 bis 8, Volumenteile eines anor-
20 ganischen, plättchenförmigen Füllstoffs, der ein Seitenverhältnis (Plättchendicke : Plättchendurchmesser) von 1 : 5 bis 1 : 600, vorzugsweise 1 : 10 bis 1 : 300, sowie eine Plättchendicke von 0,005 bis 20, vorzugsweise 0,01 bis 2,um hat,

25

wobei die Summe der Volumenteile unter (1), (2) und (3) 100 Volumenteile beträgt.

Zur stofflichen Seite der neuen Formmassen ist im einzelnen
30 das folgende zu sagen:

(1) Polypropylene mit den geforderten Kenndaten sind aus der Polymerchemie als solche bekannt und im Handel erhältlich, so daß sich nähere Ausführungen erübrigen.

35

(2) Für die thermoplastischen - also im unvernetzten Zustand

- vorliegenden - Mischpolymerisate aus Äthylen, einer Ester-Komponente sowie - gegebenenfalls - einer Säure-Komponente, gilt sinngemäß das zum Polypropylen (1) Gesagte. Es ist jedoch ergänzend festzustellen, daß solche Mischpolymerisate am besten geeignet sind, die aus 100 Gewichtsteilen Äthylen und 30 bis 55 Gewichtsteilen der Ester-Komponente aufgebaut sind, d.h. zu etwa 65 bis 77 Gewichtsprozent aus einpolymerisiertem Äthylen und - auf 100 % ergänzend - zu etwa 35 bis 23 % Gewichtsprozent aus einpolymerisiertem Ester bestehen. Wie sich des weiteren gezeigt hat, sind solche Mischpolymerisate für den erfindungsgemäßen Zweck am besten geeignet, deren Ester-Komponente n-Butylacrylat ist.
- 15 (3) Der anorganische plättchenförmige Füllstoff mit den geforderten Kenndaten ist vorzugsweise ein entsprechend dimensioniertes Talkum; es eignen sich aber auch andere Schichtsilikate, wenn auch im allgemeinen weniger gut. Der Füllstoff kann - wie einschlägig üblich - vorbehandelt sein, z.B. zur Verbesserung der Haftfestigkeit und
- 20 Verträglichkeit gegenüber der Polymermatrix. Als Mittel zu einer solchen Vorbehandlung seien - beispielhaft - genannt Stearate und Polymerdispersionen.
- 25 (4) Falls gewünscht, können die erfindungsgemäßen Formmassen zusätzlich zu den Komponenten (1), (2) und (3) einschlägig übliche Hilfs- bzw. Zusatzstoffe in den üblichen Mengen enthalten, z.B. Verarbeitungshilfsmittel, Stabilisatoren, farbgebende Stoffe, flammhemmende Stoffe etc.
- 30 Das Herstellen der neuen Formmassen aus ihren Komponenten kann unmittelbar aus diesen erfolgen oder - wie in vergleichbaren Fällen einschlägig vielfach geübt - über ein Konzentrat des Füllstoffs (3) in einer der Polymerisationskomponenten
- 35 (1) oder (2). Es versteht sich von selbst, daß man für eine möglichst homogene Verteilung der Komponenten untereinander

Sorge trägt; - d.h. daß man zweckmäßigerweise über den schmelzflüssigen Zustand des Polypropylens und unter intensiven Mischbedingungen die anderen Komponenten zuarbeitet, etwa in einem Zweischneckenkneteter.

5

Die erfindungsgemäßen Formmassen können auf den zur Verarbeitung von Polypropylen-Formmassen gängigen Verarbeitungsmaschinen zu den für Polypropylen bekannten und üblichen Formteilen verarbeitet werden, z.B. zu Folien, Profilen,

10 Platten, Hohlkörpern und Karosserieteilen.

Beispiel 1

Es wird ausgegangen von einem Gemisch aus

15

(1) 75 Volumenteilen eines einen kristallinen Anteil von 95 % sowie einen Schmelzindex (2,16 kg, 230°C) von 2,0 aufweisenden grießförmigen Polypropylens,

20 (2) 25 Volumenteilen eines einen Schmelzindex (2,16 kg, (230°C) von 1,5, einen Zug-E-Modul (nach DIN 53 457) von 30 Nmm⁻² sowie eine Glasatemperatur von <-100°C aufweisenden grießförmigen Mischpolymerisats, das

25 (2.1) 100 Gewichtsteile Äthylen sowie

(2.2) 30 Gewichtsteile des Esters der Acrylsäure mit n-Butanol

30 einpolymerisiert enthält, sowie

(3) 5 Volumenteilen eines plättchenförmigen Talkums, das ein Seitenverhältnis (Plättchendicke : Plättchendurchmesser) von 1 : 10 bis 1 : 200, sowie eine Plättchendicke von 0,02 bis 1 µm hat.

35

Dieses Gemisch wird in einem Zweischneckenknetter bei einer Temperatur von etwa 220°C homogenisiert, in Strängen ausgepreßt, abgekühlt und granuliert.

- 5 Aus dem so erhaltenen Granulat werden bei Massetemperaturen von 220°C Prüfkörper spritzgegossen, und zwar für die Bestimmung des Zug-E-Moduls nach DIN 53 457, als Maß für die Steifigkeit und der Bruchzähigkeit nach DIN 53 443 B (25 mm Kalottenradius) als Maß für die Zähigkeit.

10

Die an den Prüfkörpern ermittelten Werte sind in der unten stehenden Tabelle angegeben.

Vergleichsversuch 1

15

Das Beispiel wird wiederholt mit der einzigen Ausnahme, daß das Talkum in Wegfall kommt.

- 20 Die an den entsprechenden Prüfkörpern ermittelten Werte finden sich ebenfalls in der Tabelle.

Vergleichsversuch 2

- 25 Das Beispiel 1 wird wiederholt mit den beiden einzigen Ausnahmen, daß sowohl das Talkum als auch das Mischpolymerisat in Wegfall kommen.

Die an den dabei erhaltenen Prüfkörpern gefundenen Werte sind wiederum in der Tabelle angegeben.

30

Tabelle

	Zug-E-Modul [Nmm ⁻²]			Bruchzähigkeit [Nm]		
	+23°C	+0°C	-20°C	+23°C	+0°C	-20°C
5						
Beispiel	1500	2850	3500	11,4	12,2	13,1
Vergleichs- versuch 1.	950	1850	2100	12,6	12,7	13,5
10						
Vergleichs- versuch 2	1490	2900	3400	10,7	0,27	0,14

- 15 Wie die Tabelle zeigt, ist die Steifigkeit bei den erfindungs-
gemäßen Formmassen etwa gleichgroß wie beim Polypropylen;
die Kältezähigkeit ist bei den erfindungsgemäßen Formmassen
sehr viel besser als beim Polypropylen. Sehr überraschend ist
der positive Befund, daß die Absolutwerte der Zähigkeit bei
20 den erfindungsgemäßen Formmassen so hoch liegen, daß ein
Zusatz von plättchenförmigem Talkum in vergleichbaren ande-
ren Polypropylen-Formmassen deren Zähigkeitswerte bekannt-
lich in erheblichem Maße drückt.

Patentanspruch

Polypropylen-Formmasse, bestehend aus oder im wesentlichen bestehend aus

- 5
- (1) 40 bis 98 Volumenteile eines einen kristallinen Anteil von über 90 % sowie einen Schmelzindex (2,16 kg, 230°C) von 0,1 bis 20 aufweisenden Polypropylens,
- 10 (2) 1 bis 50 Volumenteilen eines einen Schmelzindex (2,16 kg, 230°C) von 0,1 bis 20, einen Zug-E-Modul (nach DIN 53 457) von weniger als 1 000 Nmm⁻² sowie eine Glastemperatur von weniger als -20°C aufweisenden Mischpolymerisats, das
- 15 (2.1) 100 Gewichtsteile Äthylen,
- (2.2) 5 bis 40 Gewichtsteile eines Esters der Acryl- bzw. Methacrylsäure mit einem C₁- bis C₈-Alkanol und/
- 20 oder eines Vinylesters einer C₂- bis C₄-Alkan-carbonsäure sowie
- (2.3) - gegebenenfalls - bis zu 10 Gewichtsteile Acryl- bzw. Methacrylsäure
- 25 einpolymerisiert enthält, sowie
- (3) 1 bis 10 Volumenteile eines anorganischen, plättchenförmigen Füllstoffs, der ein Seitenverhältnis (Plättchendicke : Plättchendurchmesser) von 1 : 5 bis 1 : 600
- 30 sowie eine Plättchendicke von 0,005 bis 20 µm hat,
- wobei die Summe der Volumenteile unter (1), (2) und (3) 100 Volumenteile beträgt.