

(11) EP 3 499 119 A1

(12)

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(43) Veröffentlichungstag:

19.06.2019 Patentblatt 2019/25

(21) Anmeldenummer: 17207887.5

(22) Anmeldetag: 18.12.2017

(51) Int Cl.:

F21V 29/51 (2015.01) F21V 29/85 (2015.01) F21S 45/47 (2018.01)

F21Y 115/10 (2016.01)

F28D 15/00 (2006.01) F21V 29/87 (2015.01)

F21V 29/74 (2015.01)

(84) Benannte Vertragsstaaten:

AL AT BE BG CH CY CZ DE DK EE ES FI FR GB GR HR HU IE IS IT LI LT LU LV MC MK MT NL NO PL PT RO RS SE SI SK SM TR

Benannte Erstreckungsstaaten:

BA ME

Benannte Validierungsstaaten:

MA MD TN

(71) Anmelder: Covestro Deutschland AG 51373 Leverkusen (DE)

(72) Erfinder: Die Erfindernennung liegt noch nicht vor

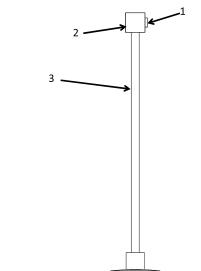
(74) Vertreter: Levpat c/o Covestro AG Gebäude 4825

51365 Leverkusen (DE)

(54) VORRICHTUNG ZUM ABLEITEN VON WÄRME VON EINER WÄRMEQUELLE UND VERWENDUNG DIESER VORRICHTUNG

Fig. 1

(57) Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist eine Vorrichtung zum Ableiten von Wärme von einer Wärmequelle. Diese Vorrichtung umfasst eine Heatpipe, ein Wärmeeinkoppelelement und ein Wärmeauskoppelelement, auch Kühlkörper genannt, wobei der Kühlkörper im Wesentlichen aus einer wärmeleitfähigen thermoplastische Zusammensetzung mit einer Wärmeleitfähigkeit in plane von 1 bis 50 W/(m*K), bevorzugt 2 bis 30 W/(m*K) bevorzugt 4 bis 20 W/(m*K) besteht, und der Quotient von Außendurchmesser zu Wandstärke der Heatpipe von 10:1 bis 4:1 beträgt. Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist auch eine Leuchte, die die erfindungsgemäße Vorrichtung umfasst.



P 3 499 119 A1

Beschreibung

10

20

30

35

40

45

50

55

[0001] Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist eine Vorrichtung zum Ableiten von Wärme von einer Wärmequelle. Diese Vorrichtung umfasst eine Heatpipe, ein Wärmeeinkoppelelement, und ein Wärmeauskoppelelement, auch Kühlkörper genannt, wobei der Kühlkörper im Wesentlichen aus einer wärmeleitfähigen thermoplastische Zusammensetzung mit einer Wärmeleitfähigkeit in plane von 1 bis 50 W/(m*K), bevorzugt 2 bis 30 W/(m*K) bevorzugt 4 bis 20 W/(m*K) besteht, und der Quotient von Außendurchmesser zu Wandstärke der Heatpipe von 10:1 bis 4:1 beträgt. Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist auch eine Leuchte, die die erfindungsgemäße Vorrichtung umfasst.

[0002] Bei allen Umwandlungen von einer Energieform zu einer anderen kommt es zu Energieverlusten. Dieser Energieverlust macht sich in aller Regel durch die Abstrahlung von Wärme bemerkbar. Das führt dazu, dass sich mechanische, elektrische und elektronische und sonstige Apparate, Geräte und Instrumente, nachfolgend zusammenfassend Apparate genannt, im Betrieb erwärmen. Diese Erwärmung wiederum kann dazu führen, dass die Apparate oder Teile dieser Apparate oder Teile der Umgebung dieser Apparate beschädigt werden, was selbstredend unerwünscht ist.

[0003] Um eine solche Schädigung zu vermeiden oder doch zumindest zu verringern, wurden bereits früh in der Geschichte der Technik Einrichtungen bereit gestellt, mit der überschüssige Wärme von einer Wärmequelle abgeleitet werden kann. Im einfachsten Fall kann dies durch eine Kühlung durch fließendes Wasser oder einen Luftstrom geschehen, Wasser oder Luft also als Wärmeleitmedium dienen. Insbesondere im letztgenannten Fall wird die Kühlung häufig durch eine sogenannten Kühlkörper unterstützt, der eine gute Wärmeleitfähigkeit besitzt und meist so ausgestaltet ist, dass er eine große Oberfläche aufweist, über die die Wärme abgeleitet werden kann.

[0004] Einleuchtenderweise ist das Ableiten von Wärme aus einem Apparat oder von der Wärmequelle eines Apparates umso schwieriger, je beengter die räumlichen Verhältnisse in dem Apparat sind. Dies gilt insbesondere, wenn die räumlichen Verhältnisse in der unmittelbaren Umgebung der Wärmequelle sehr beengt sind und/oder sich in der Nähe der Wärmequelle ein wärmeempfindliches Material befindet. Diese Schwierigkeit tritt mit der zunehmenden Verkleinerung von Apparaten einerseits und mit dem zunehmenden Einsatz von Kunststoffen, insbesondere mit dem zunehmenden Einsatz von Thermoplasten, andererseits immer stärker in den Vordergrund.

[0005] Ein Lösungsansatz zum Überwinden dieser Schwierigkeit ist der Einsatz einer Heatpipe, auch Wärmerohr genannt. Diese sind dem Fachmann grundsätzlich bekannt.

[0006] Bei einer Heatpipe handelt es sich um einen Wärmeübertrager, der unter Nutzung von Verdampfungswärme eines Arbeitsmediums eine hohe Wärmestromdichte erlaubt, d. h. auf kleiner Querschnittsfläche können große Wärmemengen transportiert werden. Zwar können Heatpipes nur in einem begrenzten Temperaturbereich, beispielsweise im Bereich von 0 bis 250 °C für Heatpipes aus Kupfer mit Wasser als Arbeitsmedium, eingesetzt werden, in diesem besitzen sie aber einen Wärmewiderstand, der deutlich kleiner ist als der von Metallen. Das Verhalten der Wärmerohre kommt daher der isothermen Zustandsänderung sehr nah. Es herrscht eine beinah konstante Temperatur über die Länge des Wärmerohrs. Bei gleicher Übertragungsleistung sind deswegen wesentlich leichtere Bauweisen als bei herkömmlichen Wärmeübertragern unter gleichen Einsatzbedingungen möglich. Heatpipes enthalten ein hermetisch gekapseltes Volumen in Form eines Rohres mit je einem der Wärmequelle zugewandten Ende und einem dem Kühlkörper zugewandten Ende. Das Rohr ist mit einem Arbeitsmedium, beispielsweise Wasser oder Ammoniak, gefüllt, welches das Volumen zu einem kleinen Teil in flüssigem, zum größeren Teil in dampfförmigem Zustand ausfüllt. Bei Wärmeeintrag beginnt das Arbeitsmedium zu verdampfen und zwar am der Wärmequelle zugewandten Ende. Dadurch wird über dem Flüssigkeitsspiegel der Druck im Dampfraum lokal erhöht, was zu einem geringen Druckgefälle innerhalb des Wärmerohrs führt. Der entstandene Dampf strömt deswegen zu einer Stelle mit niedrigerer Temperatur, also dem der Wärmesenke zugewandten Ende, wo er kondensiert. An dieser Stelle erhöht sich die Temperatur durch die frei werdende Kondensationswärme. Die zuvor aufgenommene latente Wärme wird an die Umgebung abgegeben. Das nun flüssige Arbeitsmedium kehrt durch Kapillarkräfte wieder zurück zu der Stelle, an der die Wärme eingeleitet wird. (Quelle: Wikipedia).

[0007] Da Heatpipes sehr dünn ausgelegt werden können, sind sie mit diesen Eigenschaften gut geeignet, in räumlich beengten Verhältnissen die Wärme einer Wärmequelle von dieser abzuleiten. So offenbart US20040252502A1 einen LED-Reflektor, bei dem die Abwärme der LEDs durch eine Heatpipe abgeleitet wird. Der Reflektor enthält einen thermisch leitfähigen Kunststoff und dient dabei gleichzeitig als Wärmeeinkoppelelement, wobei die Heatpipe mit dem thermisch leitfähigen Kunststoff umspritzt ist, um so einen verbesserten Wärmeübergang von dem Reflektor auf die Heatpipe zu gewährleisten. Verwendung findet die in der US20040252502A1 offenbarte Einrichtung beispielsweise in Fahrzeugfrontscheinwerfern, Fahrzeugrücklichtern, Blinklichtern oder anderen Beleuchtungsapparaten, die LEDs aufweisen.

[0008] Es wurde jedoch gefunden, dass das Umspritzen von Heatpipes mit Kunststoff schwierig ist, da die Heatpipes bei den beim Umspritzen auftretenden Drücken häufig kollabieren, aufplatzen oder auf andere Weise zumindest soweit beschädigt werden, das eine wirkungsvolle Wärmeableitung behindert wird, beispielsweise durch stellenweises Eindellen der Heatpipe, wodurch an dieser Stelle die innere Struktur der Heatpipe beschädigt wird. Da solche Beschädigungen in der Regel innerhalb des umspritzten Bereichs der Heatpipe liegen, sind sie wegen der Umspritzung nicht einfach sichtbar. Dies kann dazu führen, dass eine so beschädigte umspritzte Heatpipe weiterverarbeitet wird und der Schaden

erst bei einer späteren Qualitätskontrolle oder gar erst bei Versagen einer die Heatpipe aufweisenden Gesamtvorrichtung auffällt. Zu diesem Zeitpunkt ist aber die Behebung des Schadens aufwändig und teuer. Dieses Problem wurde sowohl bei den sehr häufig verwendeten Heatpipes mit Kupfermantel als auch beispielsweise bei Heatpipes mit Edelstahlmantel festgestellt.

[0009] Auch wurde gefunden, dass die Verwendung von thermisch leitfähigem Kunststoff als Bestandteil eines Wärmeeinkoppelelements wenig wirkungsvoll ist, da auf Grund der gegenüber der Wärmeleitfähigkeit von Metallen wie Kupfer (240 bis 401 W/(m*K), je nach Reinheit) oder auch Aluminium (75 bis 236 W/(m*K), je nach Reinheit) wesentlich geringeren Wärmeleitfähigkeit in plane von thermisch leitfähigen Kunststoffen (1 bis 50 W/(m*K)) eine wirkungsvolle Übertragung der von der Wärmequelle abgegebenen Wärme an die Heatpipe nicht gewährleistet werden kann. In diesem Fall ist es auch wenig hilfreich, die Fläche des einen thermisch leitfähigen Kunststoff enthaltenden Wärmeeinkoppelelements zu vergrößern. Dadurch wird zwar die von der Wärmequelle abgegebene Wärme besser aufgenommen, was aber nicht zwangsläufig dazu führt, dass diese Wärme auch der Heatpipe quantitativ zugeführt wird. Im Gegenteil führt eine vergrößerte Fläche des Wärmeeinkoppelelements dazu, dass mehr Wärme an die Umgebung der Wärmequelle abgegeben wird, somit diese Wärme nicht die Wärmeübertragungsfläche des der Wärmeguelle zugewandten Endes der Heatpipe erreicht und daher auch nicht eine wirkungsvolle Ableitung der Wärme über die Heatpipe erfolgen kann. Dies wiederum kann beispielsweise in einem Fahrzeugfrontscheinwerfer, in dem beispielsweise durch LEDs als Leuchtmittel eine Wärmequelle besteht, die lokal eine Abwärme mit hoher Temperatur abgibt, die abgeführt werden muss, zu Problemen führen. So können beispielsweise elektrische Bauteile oder wärmeempfindliche Materialien des Scheinwerfers in der Nähe einer LED oder die LED selbst beschädigt werden. Solche Probleme stellen sich natürlich auch bei anderen Leuchtmitteln, beispielsweise Halogenlampen.

10

30

35

40

45

50

[0010] Darüber hinaus offenbart US20040252502A1 nicht, wie die von der Wärmequelle abgeführte Wärme genutzt werden kann.

[0011] Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es deshalb, eine Vorrichtung zur Verfügung zu stellen, die die Nachteile des Stands der Technik überwindet.

[0012] Insbesondere Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es deshalb, eine Vorrichtung umfassend eine Heatpipe zur Ableitung von Wärme von einer Wärmequelle zur Verfügung zu stellen, die Abwärme von dieser Wärmequelle zuverlässig und wirkungsvoll ableitet.

[0013] Dabei soll die Heatpipe dazu geeignet sein, mit einem Kunststoff umspritzt zu werden, ohne zu kollabieren, aufzuplatzen, oder auch nur soweit beschädigt zu werden, das eine wirkungsvolle Wärmeableitung behindert wird. So soll die Fähigkeit der Heatpipe zur Wärmeableitung nach dem Umspritzen mindestens 80 %, bevorzugt mindestens 90 %, besonders bevorzugt mindestens 95 %, insbesondere mindestens 98 % der Fähigkeit zur Wärmeableitung der nicht umspritzten Heatpipe, also der Heatpipe vor dem Umspritzen, betragen.

[0014] Auch soll die Vorrichtung ein Wärmeeinkoppelelement aufweisen, dass eine wirkungsvolle Übertragung der von der Wärmequelle abgegebenen Wärme an die Heatpipe gewährleistet.

[0015] Auch soll die Vorrichtung ein Wärmeeinkoppelelement aufweisen, das einen thermisch leitfähigen Kunststoff enthält.

[0016] Vorzugsweise soll die Vorrichtung auch dazu geeignet sein, die von der Wärmequelle abgeleitete Wärme an einer anderen Stelle nutzbringend einzusetzen.

[0017] Gelöst wird diese Aufgabe durch eine Vorrichtung, die eine Heatpipe, ein Wärmeeinkoppelelement, und ein Wärmeauskoppelelement aufweist, wobei das Wärmeauskoppelement zu mindestens 50 Gew.-% aus einer wärmeleitfähigen thermoplastischen Zusammensetzung besteht, und wobei die Heatpipe, insbesondere die dem Wärmeauskoppelelement zugewandte Ende der Heatpipe, mit der wärmeleitfähigen thermoplastischen Zusammensetzung des Wärmeauskoppelements umspritzt ist, und wobei der Quotient von Außendurchmesser zu Wandstärke der Heatpipe von 10:1 bis 4:1 beträgt.

[0018] Vorzugsweise besteht das Wärmeauskoppelelement zu mindestens 65 Gew.-%, bevorzugt zu mindestens 80 Gew.-%, besonders bevorzugt zu mindestens 95 Gew.-% aus einer wärmeleitfähigen thermoplastischen Zusammensetzung.

[0019] An den Kühlkörper kann zusätzlich ein Funktionselement angebracht sein, beispielsweise ein Befestigungselement oder ein Gehäuse. Dieses Funktionselement kann ebenfalls ein thermoplastische Zusammensetzung sein und angespritzt sein. Die thermoplastische Zusammensetzung des Funktionselement braucht keine wärmeleitfähigen thermoplastischen Zusammensetzung im Sinne der vorliegenden Erfindung zu sein, kann es aber sein. Auch wird dieses Funktionselement im Sinne der vorliegenden Erfindung nicht als Bestandteil des Kühlkörpers betrachtet.

[0020] Diese wärmeleitfähige thermoplastischen Zusammensetzung weist bevorzugt eine Wärmeleitfähigkeit in plane von 1 bis 50 W/(m*K), bevorzugt 2 bis 30 W/(m*K) bevorzugt 4 bis 20 W/(m*K) auf. Wenn in Zusammenhang mit der vorliegenden Erfindung von Wärmeleitfähigkeit in plane die Rede ist, ist damit die nach ASTM E 1461-01 bei 23°C bestimmte Wärmeleitfähigkeit gemeint. Vorzugsweise beträgt der Quotient von Außendurchmesser zu Wandstärke der Heatpipe von 10:1 bis 4:1, besonders bevorzugt 8:1 bis 4:1, besonders bevorzugt 7:1 bis 5:1.

[0021] Bevorzugtes Arbeitsmedium der Heatpipe ist Wasser, ggf. Wasser mit Zusatzstoffen.

[0022] Im Bereich der angegebenen Quotienten wird zum einen verhindert, dass die Heatpipe beim Umspritzen mit der wärmeleitfähigen thermoplastischen Zusammensetzung des Wärmeauskoppelelements kollabiert, aufplatzt oder in sonstiger Weise beschädigt wird, zum anderen wird die Fähigkeit zur wirkungsvollen Ableitung von Wärme nicht vermindert. So beträgt die Fähigkeit der Heatpipe zur Wärmeableitung nach dem Umspritzen mindestens 80 %, bevorzugt mindestens 90 %, besonders bevorzugt mindestens 95 %, insbesondere mindestens 98 % der Fähigkeit zur Wärmeableitung der Heatpipe vor dem Umspritzen.

[0023] In einer bevorzugten Ausführungsform der Erfindung ist das Wärmeableitungssystem als Bestandteil einer Leuchte ausgebildet, bevorzugt eines Scheinwerfers, besonders bevorzugt eines Fahrzeugfrontscheinwerfers oder Fahrzeugheckscheinwerfers, nachfolgend als zusammenfassend Fahrzeugscheinwerfer genannt.

[0024] Bevorzugt ist dabei das Wärmeauskoppelelement als Teil des Gehäuses eines Fahrzeugscheinwerfers, insbesondere eines Fahrzeugfrontscheinwerfers oder Fahrzeugheckscheinwerfers ausgebildet. Bei Einsatz von LEDs in diesen Scheinwerfern besteht nämlich das Problem, dass die Scheiben dieser Scheinwerfer kaum noch durch die Abwärme der LEDs erwärmt werden. LEDs erzeugen in Betrieb zwar lokal eine Abwärme mit hoher Temperatur, die wirkungsvoll abgeleitet werden muss, wie bereits weiter oben beschrieben, jedoch ist die Gesamtmenge der von einer LED abgegebenen Wärmeenergie im Vergleich zu beispielsweise Halogenleuchtmitteln bei gleicher Lichtausbeute zum einen wesentlich geringer, zum anderen wird die entstehende Wärme fast ausschließlich rückseitig und nicht in Form von Wärmestrahlung in Richtung der Streuscheibe abgegeben. Geschieht es nun, dass bei kalter Witterung Scheiben der Scheinwerfer beschlagen oder zufrieren, so ist bei herkömmlichen Fahrzeugscheinwerfern die Abwärme der LEDs nicht ausreichend, um die Scheinwerferscheiben von Beschlag oder Frost zu befreien. Dies kann dazu führen, dass die von solchen Scheinwerfern abgestrahlte Lichtmenge nicht mehr für eine sichere Teilnahme am Straßenverkehr ausreicht. [0025] Erfindungsgemäß kann dabei das Wärmeauskoppelelement als Kühlkörper ausgebildet sein, der sich innen oder außen, bevorzugt innen, besonders bevorzugt innen unten, an der Fahrzeugscheinwerferscheibe befindet und diese erwärmt, insbesondere durch Konvektion, aber auch durch Wärmeleitung und Wärmestrahlung.

[0026] Der Kühlkörper ist vorzugsweise als Körper mit strukturierter Oberfläche zur Vergrößerung derselben ausgebildet. So kann er beispielsweise als im Wesentlichen flacher Körper, beispielsweise als Scheibe, oder als Körper mit flächigen Vorsprüngen, wie beispielsweise Kühlrippen, ausgebildet sein; andere Formen, die eine vergrößerte Oberfläche aufweisen sind aber erfindungsgemäß auch möglich.

[0027] Erfindungsgemäß alternativ kann der Kühlkörper auch als Quader, Zylinder, Kugel, Kegel oder jeder anderen Form ausgebildet sein, die dem Zweck des Kühlkörpers dient.

[0028] Auf diese Weise kann sichergestellt werden, dass auch bei einem mit LEDs ausgerüsteten Fahrzeugscheinwerfer, insbesondere nur mit LEDs ausgerüstetem Fahrzeugscheinwerfer, bei kalter Witterung die Fahrzeugscheinwerferscheibe nach kurzer Zeit von Beschlag oder Frost befreit ist, wenn das Licht eingeschaltet wird.

[0029] Wenn hier von LED (Light Emitting Diode; in der Mehrzahl LEDs) die Rede ist, ist damit ist ein lichtemittierendes Halbleiter-Bauelement gemeint, dessen elektrische Eigenschaften einer Diode entsprechen, sowie auch Laserdioden, also Halbleiterbauteile, die Laserstrahlung erzeugen.

[0030] Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit:

10

30

35

40

50

55

Ein Wärmeableitungssystem für eine Wärmequelle, wobei das Wärmeableitungssystem eine Heatpipe, ein Wärmeeinkoppelelement, ein Wärmeauskoppelelement (Kühlkörper) aufweist, wobei das Wärmeauskoppelelement zu mindestens 65 Gew.-%, besonders bevorzugt zu mindestens 80 Gew.-%, ganz besonders bevorzugt zu mindestens 95 Gew.-% aus einer wärmeleitfähigen thermoplastischen Zusammensetzung mit einer Wärmeleitfähigkeit in plane von 1 bis 50 W/(m*K), bevorzugt 2 bis 30 W/(m*K) bevorzugt 4 bis 20 W/(m*K) besteht, und der Quotient vonAußendurchmesser zu Wandstärke der Heatpipe von 10:1 bis 4:1 beträgt.

[0031] Bevorzugt beträgt der Quotient von Außendurchmesser zu Wandstärke der Heatpipe von 8:1 bis 4:1, besonders bevorzugt 7:1 bis 5:1.

[0032] Bevorzugt ist dabei die Heatpipe des Wärmeableitungssystem mit der wärmeleitfähigen thermoplastischen Zusammensetzung des Wärmeauskoppelements umspritzt.

[0033] Dabei ist bevorzugt die Fähigkeit der Heatpipe zur Wärmeableitung nach dem Umspritzen mindestens 80 %, bevorzugt mindestens 90 %, besonders bevorzugt mindestens 95 %, insbesondere mindestens 98 % der Fähigkeit zur Wärmeableitung der nicht umspritzten Heatpipe.

[0034] Bei der wärmeleitfähigen thermoplastischen Zusammensetzung handelt es sich bevorzugt um eine Zusammensetzung enthaltend ein Polycarbonat.

[0035] Bei der Wärmequelle handelt es sich bevorzugt um ein Leuchtmittel, bevorzugt um eine LED.

[0036] Bevorzugt handelt es sich bei dem Wärmeableitungssystem um einen Bestandteil einer Leuchte, besonders bevorzugt eines Scheinwerfers, ganz besonders bevorzugt eines Fahrzeugscheinwerfers, insbesondere besonders bevorzugt eines Fahrzeugfrontscheinwerfers oder Fahrzeugheckscheinwerfers.

[0037] Bevorzugt handelt es sich um ein Bestandteil des Gehäuses eines Fahrzeugscheinwerfers.

[0038] Alternativ bevorzugt ist das Wärmeauskoppelelement als Kühlkörper ausgebildet, der sich innen an der Fahrzeugscheinwerferscheibe befindet und diese erwärmt.

[0039] Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist auch:

Eine Leuchte, umfassend das erfindungsgemäße Wärmeableitungssystem.

[0040] Bevorzugt handelt es sich bei dieser Leuchte um einen Scheinwerfer, besonders bevorzugt um einen Fahrzeugscheinwerfer.

[0041] Die wärmeleitfähige thermoplastische Zusammensetzung kann beispielsweise aus denen in der WO 2015/135958 A1 beschriebenen ausgewählt werden. Diese Zusammensetzungen enthalten:

A) 20,0 bis 80,49 Gew.-% Polycarbonat,

B) 15,0 bis 60,0 Gew.-% expandierten Graphit, wobei der D(0,5) des Graphits, bestimmt durch Siebanalyse gemäß DIN 51938, < 1,2 mm ist,

C) 4,5 bis 10 Gew.-% mindestens einer Phosphorverbindung der allgemeinen Formel (V)

worin

5

15

20

25

30

35

40

45

50

55

 R^1 , R^2 , R^3 und R^4 unabhängig voneinander C_1 - bis C_8 -Alkyl, jeweils gegebenenfalls halogeniert und jeweils verzweigt oder unverzweigt, und/oder C_5 - bis C_6 -Cycloalkyl, C_6 - bis C_{20} -Aryl oder C_7 - bis C_{12} -Aralkyl, jeweils gegebenenfalls durch verzweigtes oder unverzweigtes Alkyl, vorzugsweise C_1 - bis C_4 -Alkyl, und/oder Halogen, vorzugsweise Chlor und/oder Brom, substituiert,

n unabhängig voneinander 0 oder 1,

q einen ganzzahligen Wert von 0 bis 30,

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 jeweils substituiert oder unsubstituiert, verbrückt oder unverbrückt sein kann, bedeuten;

D) 0,01 bis 5,0 Gew.-% mindestens eines Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymers, welches bevorzugt einen Schmelzflussindex von mindestens 2,5 g/10 min, ermittelt nach ASTM D1238 (bei 190°C und 2,16 kg), aufweist,

E) gegebenenfalls mindestens ein weiteres Polymeradditiv, ausgewählt aus der Gruppe der Thermostabilisatoren, von Komponente C verschiedene Flammschutzmittel, Antistatika, Farbmittel, Pigmente, Entformungsmittel, UV-Absorber, IR-Absorber und/oder der Füllstoffe, ausgewählt aus der Gruppe Kreide, Quarzpulver, Titandioxid, Silikate, Alumosilikate, Aluminiumoxid, Silica, Magnesiumhydroxid und/oder Aluminiumhydroxid, wobei die Komponenten A bis E sich zu 100 Gew.-% ergänzen.

[0042] Die erfindungsgemäßen thermoplastischen Zusammensetzungen weisen eine Mindestwärmeleitfähigkeit (in plane) von bevorzugt ≥ 9 W/(m*K) auf, eine Wärmeformbeständigkeit von ≥ 100 °C sowie eine Schmelzevolumenflussrate bei 330 °C und 2,16 kg Belastung von ≥ 10 cm³ / 10 min. Besonders bevorzugte erfindungsgemäße thermoplastische Zusammensetzungen weisen eine Wärmeformbeständigkeit $\geq 110^\circ$ auf.

[0043] Erfindungsmäße thermoplastische Zusammensetzungen zeichnen sich außerdem durch eine Längenschwindung von $\leq 0,14$ % sowie ein E-Modul von ≤ 6500 N/mm² aus, wodurch die thermoplastischen Zusammensetzungen einen ausreichenden Widerstand gegen eine von außen zugeführte elastische Verformung aufweisen, ohne ein zu

starres Verhalten zu zeigen.

Komponente A

10

15

20

25

30

35

40

45

50

[0044] Als Komponente A werden Polycarbonate eingesetzt.

[0045] Unter "Polycarbonat" werden erfindungsgemäß sowohl Homopolycarbonate als auch Copolycarbonate sowie Polyestercarbonate verstanden.

[0046] Die thermoplastischen Polycarbonate einschließlich der thermoplastischen, aromatischen Polyestercarbonate haben mittlere Molekulargewichte M_w (ermittelt durch Messung der relativen Viskosität bei 25° C in CH_2Cl_2 und einer Konzentration von 0,5 g pro 100 ml CH_2Cl_2) von 20.000 g/mol bis 32.000 g/mol, vorzugsweise von 23.000 g/mol bis 31.000 g/mol, insbesondere von 24.000 g/mol bis 31.000 g/mol.

[0047] Ein Teil, bis zu 80 Mol-%, vorzugsweise von 20 Mol-% bis zu 50 Mol-%, der CarbonatGruppen in den erfindungsgemäß eingesetzten Polycarbonaten können durch aromatische Dicarbonsäureester-Gruppen ersetzt sein. Derartige Polycarbonate, die sowohl Säurereste der Kohlensäure als auch Säurereste von aromatischen Dicarbonsäuren in die Molekülkette eingebaut enthalten, werden als aromatische Polyestercarbonate bezeichnet. Sie werden im Rahmen der vorliegenden Erfindung unter dem Oberbegriff der thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate subsumiert.

[0048] Die Herstellung der Polycarbonate erfolgt in bekannter Weise aus Diphenolen, Kohlensäurederivaten, gegebenenfalls Kettenabbrechern und gegebenenfalls Verzweigern, wobei zur Herstellung der Polyestercarbonate ein Teil der Kohlensäurederivate durch aromatische Dicarbonsäuren oder Derivate der Dicarbonsäuren ersetzt wird, und zwar je nach Maßgabe der in den aromatischen Polycarbonaten zu ersetzenden Carbonatstruktureinheiten durch aromatische Dicarbonsäureesterstruktureinheiten.

[0049] Für die Herstellung von Polycarbonaten geeignete Dihydroxyarylverbindungen sind solche der Formel (2)

in welcher

Z ein aromatischer Rest mit 6 bis 30 C-Atomen ist, der einen oder mehrere aromatische Kerne enthalten kann, substituiert sein kann und aliphatische oder cycloaliphatische Reste bzw. Alkylaryle oder Heteroatome als Brückenglieder enthalten kann.

[0050] Bevorzugt steht Z in Formel (2) für einen Rest der Formel (3)

in der

R⁶ und R⁷ unabhängig voneinander für H, C₁- bis C₁₈-Alkyl-, C₁- bis C₁₈-Alkoxy, Halogen wie CI oder Br oder für jeweils gegebenenfalls substituiertes Aryl- oder Aralkyl, bevorzugt für H oder C₁- bis C₁₂-Alkyl, besonders bevorzugt für H oder C₁- bis C₈-Alkyl und ganz besonders bevorzugt für H oder Methyl stehen, und

X für eine Einfachbindung, -SO $_2$ -, -CO-, -O-, -S-, C $_1$ - bis C $_6$ -Alkylen, C $_2$ - bis C $_5$ -Alkyliden oder C $_5$ - bis C $_6$ -Cy-cloalkyliden, welches mit C $_1$ - bis C $_6$ -Alkyl, vorzugsweise Methyl oder Ethyl, substituiert sein kann, ferner für C $_6$ - bis C $_{12}$ -Arylen, welches gegebenenfalls mit weiteren Heteroatome enthaltenden aromatischen Ringen kondensiert sein kann, steht.

[0051] Bevorzugt steht X für eine Einfachbindung, C_1 - bis C_5 -Alkylen, C_2 - bis C_5 -Alkyliden, C_5 - bis C_6 -Cycloalkyliden, C_5 - oder für einen Rest der Formel (3a) oder (3b)

$$\begin{array}{c}
C^{1} \\
X^{1})_{n} \\
R^{9}
\end{array} (3a)$$

$$-CH_3 CH_3 CH_3 CH_3 CH_3$$

wobei

5

10

15

20

25

30

35

40

45

50

55

R⁸ und R⁹ für jedes X¹ individuell wählbar, unabhängig voneinander Wasserstoff oder C₁-bis C₆-Alkyl, vorzugsweise Wasserstoff, Methyl oder Ethyl, bedeuten und

X¹ Kohlenstoff und

n eine ganze Zahl von 4 bis 7, bevorzugt 4 oder 5 bedeuten,

mit der Maßgabe, dass an mindestens einem Atom X¹, R⁸ und R⁹ gleichzeitig Alkyl sind.

[0052] Beispiele für Dihydroxyarylverbindungen (Diphenole) sind: Dihydroxybenzole, Dihydroxydiphenyle, Bis-(hydroxyphenyl)-alkane, Bis-(hydroxyphenyl)-cycloalkane, Bis-(hydroxyphenyl)-aryle, Bis-(hydroxyphenyl)-ether, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfone, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfone, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfone, Dis-(hydroxyphenyl)-sulfone, Dis-(hydroxyphenyl)-sulfone, Dis-(hydroxyphenyl)-sulfone, Dis-(hydroxyphenyl)-sulfone, Dis-(hydroxyphenyl)-sulfone, Dis-(hydroxyphenyl)-sulfone, Dis-(hydroxyphenyl)-sulfone, Dis-(hydroxyphenyl)-ether, Dis-(hydroxyphenyl)-sulfone, D

[0053] Für die Herstellung der erfindungsgemäß zu verwendenden Polycarbonate geeignete Diphenole sind beispielsweise Hydrochinon, Resorcin, Dihydroxydiphenyl, Bis-(hydroxyphenyl)-alkane, Bis(hydroxyphenyl)-cycloalkane, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfide, Bis-(hydroxyphenyl)-ether, Bis-(hydroxyphenyl)-ketone, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfone, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfoxide, α -Bis-(hydroxyphenyl)-diisopropylbenzole sowie deren alkylierte, kernalkylierte und kernhalogenierte Verbindungen.

[0054] Bevorzugte Diphenole sind 4,4'-Dihydroxydiphenyl, 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-1-phenyl-propan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-phenylethan, 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)propan, 2,4-Bis-(4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan, 1,3-Bis-[2-(4-hydroxyphenyl)-2-propyl]benzol (Bisphenol M), 2,2-Bis-(3-methyl-4-hydroxyphenyl)-propan, Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-sulfon, 2,4-Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan, 1,3-Bis-[2-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-2-propyl]-benzol und 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan (Bisphenol TMC).

[0055] Besonders bevorzugte Diphenole sind 4,4'-Dihydroxydiphenyl, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-phenyl-ethan, 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan, 2,2-Bis(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-propan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexan und 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan (Bisphenol TMC).

[0056] Diese und weitere geeignete Diphenole sind z.B. in US 2 999 835 A, 3 148 172 A, 2 991 273 A, 3 271 367 A, 4 982 014 A und 2 999 846 A, in den deutschen Offenlegungsschriften 1 570 703 A, 2 063 050 A, 2 036 052 A, 2 211 956 A und 3 832 396 A, der französischen Patentschrift 1 561 518 A1, in der Monographie "H. Schnell, Chemistry and Physics of Polycarbonates, Interscience Publishers, New York 1964, S. 28ff.; S.102ff.", und in "D.G. Legrand, J.T. Bendler, Handbook of Polycarbonate Science and Technology, Marcel Dekker New York 2000, S. 72ff." beschrieben. [0057] Im Falle der Homopolycarbonate wird nur ein Diphenol eingesetzt, im Falle von Copolycarbonaten werden zwei oder mehr Diphenole eingesetzt. Die verwendeten Diphenole, wie auch alle anderen der Synthese zugesetzten Chemikalien und Hilfsstoffe, können mit den aus ihrer eigenen Synthese, Handhabung und Lagerung stammenden

[0058] Die zur Regelung des Molekulargewichtes benötigten monofunktionellen Kettenabbrecher, wie Phenole oder Alkylphenole, insbesondere Phenol, p-tert. Butylphenol, iso-Octylphenol, Cumylphenol, deren Chlorkohlensäureester oder Säurechloride von Monocarbonsäuren bzw. Gemische aus diesen Kettenabbrechern, werden entweder mit dem Bisphenolat bzw. den Bisphenolaten der Reaktion zugeführt oder aber zu jedem beliebigen Zeitpunkt der Synthese zugesetzt, solange im Reaktionsgemisch noch Phosgen oder Chlorkohlensäureendgruppen vorhanden sind, bzw. im Falle der Säurechloride und Chlorkohlensäureester als Kettenabbrecher, solange genügend phenolische Endgruppen

Verunreinigungen kontaminiert sein. Es ist jedoch wünschenswert, mit möglichst reinen Rohstoffen zu arbeiten.

des sich bildenden Polymers zur Verfügung stehen. Vorzugsweise werden der oder die Kettenabbrecher jedoch nach der Phosgenierung an einem Ort oder zu einem Zeitpunkt zugegeben, wenn kein Phosgen mehr vorliegt, aber der Katalysator noch nicht dosiert wurde, bzw. sie werden vor dem Katalysator, mit dem Katalysator zusammen oder parallel zudosiert.

[0059] In der gleichen Weise werden eventuell zu verwendende Verzweiger oder Verzweigermischungen der Synthese zugesetzt, üblicherweise jedoch vor den Kettenabbrechern. Üblicherweise werden Trisphenole, Quarterphenole oder Säurechloride von Tri- oder Tetracarbonsäuren verwendet, oder auch Gemische der Polyphenole oder der Säurechloride. [0060] Einige der als Verzweiger verwendbaren Verbindungen mit drei oder mehr als drei phenolischen Hydroxylgruppen sind beispielsweise Phloroglucin, 4,6-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-hepten-2, 4,6-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-heptan, 1,3,5-Tris-(4-hydroxyphenyl)-benzol, 1,1,1-Tri-(4-hydroxyphenyl)-ethan, Tris-(4-hydroxyphenyl)-phenylmethan, 2,2-Bis-[4,4-bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexyl]-propan, 2,4-Bis-(4-hydroxyphenyl)-phenol, Tetra-(4-hydroxyphenyl)-methan.

[0061] Einige der sonstigen trifunktionellen Verbindungen sind 2,4-Dihydroxybenzoesäure, Trimesinsäure, Cyanurchlorid und 3,3-Bis-(3-methyl-4-hydroxyphenyl)-2-oxo-2,3-dihydroindol.

[0062] Bevorzugte Verzweiger sind 3,3-Bis-(3-methyl-4-hydroxyphenyl)-2-oxo-2,3-dihydroindol und 1,1,1 -Tri-(4-hydroxyphenyl)-ethan.

[0063] Die Menge der gegebenenfalls einzusetzenden Verzweiger beträgt 0,05 Mol-% bis 2 Mol-%, bezogen wiederum auf Mole an jeweils eingesetzten Diphenolen.

[0064] Die Verzweiger können entweder mit den Diphenolen und den Kettenabbrechern in der wässrigen alkalischen Phase vorgelegt werden oder in einem organischen Lösungsmittel gelöst vor der Phosgenierung zugegeben werden.

[0065] Alle diese Maßnahmen zur Herstellung der Polycarbonate sind dem Fachmann geläufig.

[0066] Für die Herstellung der Polyestercarbonate geeignete aromatische Dicarbonsäuren sind beispielsweise Orthophthalsäure, Terephthalsäure, Isophthalsäure, tert-Butylisophthalsäure, 3,3'-Diphenyldicarbonsäure, 4,4'-Diphenyldicarbonsäure, 4,4'-Diphenyldicarbonsäure, 4,4'-Diphenylsulfondicarbonsäure, 2,2-Bis-(4-carboxyphenyl)-propan, Trimethyl-3-phenylindan-4,5'-dicarbonsäure.

[0067] Von den aromatischen Dicarbonsäuren werden besonders bevorzugt die Terephthalsäure und/oder Isophthalsäure eingesetzt.

[0068] Derivate der Dicarbonsäuren sind die Dicarbonsäuredihalogenide und die Dicarbonsäuredialkylester, insbesondere die Dicarbonsäuredichloride und die Dicarbonsäuredimethylester.

[0069] Der Ersatz der Carbonatgruppen durch die aromatischen Dicarbonsäureestergruppen erfolgt im Wesentlichen stöchiometrisch und auch quantitativ, so dass das molare Verhältnis der Reaktionspartner sich auch im fertigen Polyestercarbonat wiederfindet. Der Einbau der aromatischen Dicarbonsäureestergruppen kann sowohl statistisch als auch blockweise erfolgen.

[0070] Bevorzugte Herstellungsweisen der erfindungsgemäß zu verwendenden Polycarbonate, einschließlich der Polyestercarbonate, sind das bekannte Grenzflächenverfahren und das bekannte Schmelzeumesterungsverfahren (vgl. z. B. WO 2004/063249 A1, WO 2001/05866 A1, WO 2000/105867, US 5,340,905 A, US 5,097,002 A, US-A 5,717,057 A). [0071] Im ersten Fall dienen als Säurederivate vorzugsweise Phosgen und gegebenenfalls Dicarbonsäuredichloride, im letzteren Fall vorzugsweise Diphenylcarbonat und gegebenenfalls Dicarbonsäurediester. Katalysatoren, Lösungsmittel, Aufarbeitung, Reaktionsbedingungen etc. für die Polycarbonatherstellung bzw. Polyestercarbonatherstellung sind in beiden Fällen hinreichend beschrieben und bekannt.

[0072] Die Polycarbonate, Polyestercarbonate und Polyester können in bekannter Weise aufgearbeitet und zu beliebigen Formkörpern verarbeitet werden, beispielsweise durch Extrusion oder Spritzguss.

Komponente B

10

30

35

40

45

50

[0073] Als Komponente B wird expandierter Graphit verwendet.

[0074] Bei den expandierten Graphiten sind die einzelnen Basalebenen des Graphits durch eine spezielle Behandlung auseinandergetrieben, wodurch eine Volumenvergrößerung des Graphits, bevorzugt um den Faktor 200 bis 400, resultiert. Die Herstellung von expandierten Graphiten ist unter anderem in den Schriften US 1,137,373 A, US 1,191,383 A sowie US 3,404,061 A beschrieben.

[0075] Graphite werden in Form von Fasern, Stäbchen, Kugeln, Hohlkugeln, Plättchen, in Pulverform, jeweils sowohl in aggregierter als auch in agglomerierter Form, bevorzugt in Plättchenform, in den Zusammensetzungen verwendet.

[0076] Unter der plättchenförmigen Struktur wird in der vorliegenden Erfindung ein Partikel verstanden, der eine flache

Geometrie aufweist. So ist die Höhe der Partikel üblicherweise deutlich geringer im Vergleich zu der Breite oder Länge der Partikel. Derartige flache Partikel können wiederum zu Gebilden agglomeriert oder aggregiert sein.

[0077] Die Höhe der plättchenförmigen Primärpartikel beträgt weniger als 500 nm, bevorzugt weniger als 200 nm und besonders bevorzugt weniger als 100 nm. Durch die kleinen Größen dieser Primärpartikel kann die Form der Partikel gebogen, gekrümmt, gewellt oder andersartig deformiert sein.

[0078] Die Längendimensionen der Partikel können durch Standardmethoden, zum Beispiel die Elektronenmikroskopie, ermittelt werden.

[0079] Graphit wird in den erfindungsmäßen thermoplastischen Zusammensetzungen in Mengen von 15,0 bis 60,0 Gew.-%, bevorzugt 20,0 bis 45,0 Gew.-%, besonders bevorzugt 20,0 bis 35,0 Gew.-%, ganz besonders bevorzugt 30,0 bis 35 Gew.-% eingesetzt, um eine gute thermische Leitfähigkeit der thermoplastischen Zusammensetzungen zu erhalten und gleichzeitig eine hohe Verarbeitungsbreite zu gewährleisten.

[0080] Erfindungsgemäß bevorzugt wird ein Graphit mit einer relativ hohen spezifischen Oberfläche, ermittelt als BET-Oberfläche mittels Stickstoffadsorption nach ASTM D3037, verwendet. Bevorzugt werden Graphite mit einer BET-Oberfläche von ≥ 5 m²/g, besonders bevorzugt ≥ 10 m²/g und ganz besonders bevorzugt ≥ 18 m²/g in den thermoplastischen Zusammensetzungen eingesetzt.

[0081] Der D(0,5) des Graphits, bestimmt durch Siebanalyse gemäß DIN 51938, ist < 1,2 mm.

[0082] Bevorzugt haben die Graphite eine Partikelgrößenverteilung, welche durch den D(0,9) charakterisiert wird, von mindestens 1 mm, bevorzugt von mindestens 1,2 mm, weiter bevorzugt von mindestens 1,4 mm und noch weiter bevorzugt von mindestens 1,5 mm.

[0083] Ebenfalls bevorzugt haben die Graphite eine Partikelgrößenverteilung, welche durch den D(0,5) charakterisiert wird, von mindestens 400 μ m, bevorzugt von mindestens 600 μ m, weiter bevorzugt von mindestens 750 μ m und noch weiter bevorzugt von mindestens 850 μ m.

[0084] Bevorzugt weisen die Graphite eine Partikelgrößenverteilung, welche durch den D(0,1) charakterisiert wird, von mindestens 100 μ m, bevorzugt von mindestens 150 μ m, weiter bevorzugt von mindestens 200 μ m und noch weiter bevorzugt von mindestens 250 μ m auf.

[0085] Die Kennzahlen D(0,1), D(0,5) und D(0,9) werden durch Siebanalyse in Anlehnung an DIN 51938 ermittelt.

[0086] Die verwendeten Graphite haben eine Dichte, ermittelt mit Xylol, im Bereich von 2,0 g/cm³ bis 2,4 g/cm³, bevorzugt von 2,1 g/cm³ bis 2,3 g/cm³ sowie weiter bevorzugt von 2,2 g/cm³ bis 2,27 g/cm³.

[0087] Der Kohlenstoffgehalt der erfindungsgemäß verwendeten Graphite, ermittelt nach DIN 51903 bei 800 °C für 20 Stunden, beträgt vorzugsweise ≥ 90 %, weiter bevorzugt ≥ 95 % und noch weiter bevorzugt ≥ 98%.

[0088] Der Restfeuchtigkeitsgehalt der erfindungsgemäß verwendeten Graphite, ermittelt nach DIN 38414 bei 110 °C für 8 Stunden, beträgt vorzugsweise \leq 5 %, weiter bevorzugt \leq 3 % und noch weiter bevorzugt \leq 2 %.

[0089] Die thermische Leitfähigkeit der erfindungsgemäß verwendeten Graphite beträgt vor der Verarbeitung parallel zu den Basalebenen zwischen 250 und 400 W/(m*K) sowie senkrecht zu den Basalebenen zwischen 6 bis 8 W(m*K).

[0090] Der elektrische Wiederstand der erfindungsgemäß verwendeten Graphite beträgt vor der Verarbeitung parallel zu den Basalebenen ca. 0,001 Ω^* cm und ist senkrecht zu den Basalebenen kleiner 0,1 Ω^* cm.

[0091] Die Schüttdichte der Graphite, ermittelt nach DIN 51705, beträgt üblicherweise zwischen 50 g/l und 250 g/l, bevorzugt zwischen 65 g/l und 220 g/l und weiter bevorzugt zwischen 100 g/l und 200 g/l.

[0092] Bevorzugt werden Graphite in den thermoplastischen Zusammensetzungen eingesetzt, welche einen Schwefelgehalt kleiner 200 ppm aufweisen.

[0093] Bevorzugt werden außerdem Graphite in den thermoplastischen Zusammensetzungen eingesetzt, welche einen auslaugfähigen Chlorionengehalt kleiner 100 ppm aufweisen.

[0094] Ebenfalls bevorzugt werden Graphite in den thermoplastischen Zusammensetzungen eingesetzt, welche einen Gehalt an Nitraten und Nitriten kleiner 50 ppm aufweisen.

[0095] Besonders bevorzugt werden Graphite eingesetzt, welche alle diese Grenzwerte, d.h. für den Schwefel-, den Chlorionen-, den Nitrat- und den Nitritgehalt aufweisen.

[0096] Kommerziell verfügbare Graphite sind unter anderem Ecophit® GFG 5, Ecophit® GFG 50, Ecophit® GFG 200, Ecophit® GFG 350, Ecophit® GFG 500, Ecophit® GFG 900, Ecophit® GFG 1200 von der Firma SGL Carbon GmbH, TIMREX® BNB90, TIMREX® KS5-44, TIMREX® KS6, TIMREX® KS150, TIMREX® SFG44, TIMREX® SFG150,

TIMREX® C-THERM™ 001 und TIMREX® C-THERM™ 011 von der Firma TIMCAL Ltd., SC 20 O, SC 4000 O/SM und SC 8000 O/SM von der Graphit Kropfmühl AG, Mechano-Cond 1, Mechano-Lube 2 und Mechano-Lube 4G von der Firma H.C. Carbon GmbH, Nord-Min 251 und Nord-Min 560T von der Firma Nordmann Rassmann GmbH und ASBURY A99, Asbury 230U und Asbury 3806 von der Firma Asbury Carbons.

50 Komponente C

10

20

30

35

[0097] Komponenten C im erfindungsgemäßen Sinne sind ausgewählt aus der Gruppe der Monound oligomeren Phosphor- und Phosphonsäureester, wobei auch Mischungen von mehreren Komponenten, ausgewählt aus einer oder verschiedenen dieser Gruppen, als Komponente C zum Einsatz kommen können.

[0098] Erfindungsgemäß eingesetzte Mono- und oligomere Phosphor- bzw. Phosphonsäureester sind Phosphorverbindungen der allgemeinen Formel (V)

10 worin

5

15

25

30

35

40

50

 R^1 , R^2 , R^3 und R^4 unabhängig voneinander C_1 - bis C_8 -Alkyl, jeweils gegebenenfalls halogeniert und jeweils verzweigt oder unverzweigt, und/oder C_5 - bis C_6 -Cycloalkyl, C_6 - bis C_{20} -Aryl oder C_7 - bis C_{12} -Aralkyl, jeweils gegebenenfalls durch verzweigtes oder unverzweigtes Alkyl, und/oder Halogen, vorzugsweise Chlor und/oder Brom, substituiert,

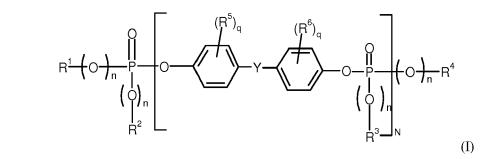
n unabhängig voneinander 0 oder 1,

q einen ganzzahligen Wert von 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 jeweils substituiert oder unsubstituiert, verbrückt oder unverbrückt sein kann, bedeuten.

[0099] Bevorzugt stehen R¹, R², R³ und R⁴ unabhängig voneinander für verzweigtes oder unverzweigtes C₁- bis C₄-Alkyl, Phenyl, Naphthyl oder mit C₁- bis C₄-Alkyl substituiertes Phenyl. Im Falle aromatischer Gruppen R¹, R², R³ und/oder R⁴ können diese ihrerseits mit Halogen-und/oder Alkylgruppen, vorzugsweise Chlor, Brom und/oder C₁- bis C₄-Alkyl, verzweigt oder unverzweigt, substituiert sein. Besonders bevorzugte Aryl-Reste sind Kresyl, Phenyl, Xylenyl, Propylphenyl oder Butylphenyl sowie die entsprechenden bromierten und chlorierten Derivate davon.

[0100] X in der Formel (V) leitet sich bevorzugt von Diphenolen ab. n in der Formel (V) ist vorzugsweise gleich 1.
[0101] q steht bevorzugt für 0 bis 20, besonders bevorzugt 0 bis 10, im Falle von Mischungen für Durchschnittswerte von 0,8 bis 5,0, bevorzugt 1,0 bis 3,0, weiter bevorzugt 1,05 bis 2,00 und besonders bevorzugt von 1,08 bis 1,60.
Als Phosphorverbindung der allgemeinen Formel V ist eine Verbindung der Formel I bevorzugt:



45 worin

 R^1 , R^2 , R^3 und R^4 jeweils unabhängig voneinander lineares oder verzweigtes C_1 - bis C_8 -Alkyl und/oder gegebenenfalls durch lineares oder verzweigtes Alkylsubstituiertes C_5 - bis C_6 -Cycloalkyl, C_6 - bis C_{10} -Aryl oder C_7 - bis C_{12} -Aralkyl,

n unabhängig voneinander 0 oder 1,

q unabhängig voneinander 0, 1, 2, 3 oder 4,

N eine Zahl zwischen 1 und 30,

 R_5 und R_6 unabhängig voneinander lineares oder verzweigtes C_1 - bis C_4 -Alkyl, vorzugsweise Methyl, und

Y lineares oder verzweigtes C_1 - bis C_7 -Alkyliden, lineares oder verzweigtes C_1 - bis C_7 -Alkylen, C_5 - bis C_{12} -Cycloalkyliden, C_5 - bis C_7 -Alkyliden, C_7 -Alkyliden, C_7 - bis C_7 -Alkyliden, C_7 -

enthalten ist.

5

10

15

20

40

45

50

55

[0102] X in Formel V steht besonders bevorzugt für

oder deren chlorierte und/oder bromierte Derivate. Bevorzugt leitet sich X (mit den angrenzenden Sauerstoffatomen) von Hydrochinon, Bisphenol A oder Diphenylphenol ab. Ebenfalls bevorzugt leitet sich X von Resorcin ab. Besonders bevorzugt leitet sich X von Bisphenol A ab.

[0103] Phosphorverbindungen der Formel (V) sind insbesondere Tributylphosphat, Triphenylphosphat, Trikresylphosphat, Diphenylctylphosphat, Diphenyl-2-ethyl-kresylphosphat, Tri-(isopropylphenyl)-phosphat, Resorcin verbrücktes Oligophosphat und Bisphenol A verbrücktes Oligophosphat. Der Einsatz von oligomeren Phosphorsäureestern der Formel (V), die sich vom Bisphenol A ableiten, ist insbesondere bevorzugt.

[0104] Höchst bevorzugt als Komponente C ist Bisphenol-A basierendes Oligophosphat gemäß Formel (Va).

(Va)

[0105] Besonders bevorzugt sind außerdem Oligophosphate analog der Formel (Va), bei denen q zwischen 1,0 und 1,2 liegt.

[0106] Die Phosphorverbindungen gemäß Komponente C sind bekannt (vgl. z.B. EP 0 363 608 A1, EP 0 640 655 A2) 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).

[0107] Vorzugsweise werden Mischungen mit gleicher Struktur und unterschiedlicher Kettenlänge verwendet, wobei es sich bei dem angegebenen q-Wert um den mittleren q-Wert handelt. Der mittlere q-Wert wird bestimmt, indem mittels High Pressure Liquid Chromatography (HPLC) bei 40°C in einem Gemisch aus Acetonitril und Wasser (50:50) die Zusammensetzung des Phosphorverbindungsgemisches (Molekulargewichtsverteilung) bestimmt wird und daraus die Mittelwerte für q berechnet werden.

[0108] Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen enthalten 4,5 bis 10 Gew.-%, bevorzugt 6,0 bis 10,0 Gew.-%, besonders bevorzugt 6,0 bis 9,0 Gew.-% an Komponente C.

[0109] Alternativ besonders bevorzugte erfindungsgemäße Zusammensetzungen enthalten 5,0 bis 7,0 Gew.-% an Komponente C.

Komponente D

[0110] Die Komponente D im Sinne der vorliegenden Erfindung ist ein Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymer der Formel (VI),

 $\begin{array}{c|c}
 & H_2 \\
 & C \\
 & C \\
 & H_2
\end{array}$ $\begin{array}{c|c}
 & H_2 \\
 & X \\
 & O
\end{array}$

(VI),

wobei

5

10

15

20

30

35

40

45

50

55

R₁ Methyl oder Wasserstoff,

 R_2 Wasserstoff oder ein C_1 - bis C_{12} -Alkylrest, bevorzugt Methyl, Ethyl, Propyl, Isopropyl, Butyl, sec-Butyl, tert-Butyl, Isobutyl, Hexyl, Isoamyl oder tert-Amyl,

x und y je ein eigenständiger Polymerisationsgrad (ganze Zahl) und

n eine ganze Zahl \geq 1 ist.

[0111] Die Verhältnisse der Polymerisationsgrade x und y liegen bevorzugt im Bereich von x:y = 1:300 bis 90:10.

[0112] Das Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymer kann ein Random-, Block- oder Multiblock-Copolymer sein oder Mischungen aus diesen Strukturen. In einer bevorzugten Ausführungsform finden verzweigte und unverzweigte Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymere, besonders bevorzugt lineare Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymere, Verwendung. [0113] Der Schmelzflussindex (MFR) des Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymers (gemessen bei 190°C bei 2,16 kg Belastung, ASTM D1238) liegt bevorzugt im Bereich von 2.5 - 40.0 g/(10 min), besonders bevorzugt im Bereich von 3.0 - 10.0 g/(10 min), ganz besonders bevorzugt im Bereich von 3.0 - 8.0 g/(10 min).

[0114] Bevorzugt wird in erfindungsgemäßen Zusammensetzungen Elvaloy® 1820 AC (DuPont) eingesetzt. Es handelt sich hierbei um ein Ethylen/Methylacrylat-Copolymer mit einem Methylacrylat-Gehalt von 20 % und einem Schmelzflussindex von 8 g/(10 min), ermittelt bei 190 °C und 2,16 kg nach ASTM D1238.

[0115] Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen enthalten 0,01 bis 5 Gew.-%, bevorzugt 2 bis 4,5 Gew.-%, ganz besonders bevorzugt 3 bis 4 Gew.-% an Komponente D.

Komponente E

[0116] Den Polycarbonatzusammensetzungen können noch die für die genannten Thermoplasten üblichen Additive wie von Komponente C verschiedene Flammschutzmittel, Füllstoffe, Thermostabilisatoren, Antistatika, Farbmittel und Pigmente, Entformungsmittel, UV-Absorber und IR-Absorber in den üblichen Mengen zugesetzt werden.

[0117] Bevorzugt enthalten die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen keine weiteren Flammschutzmittel neben Komponente C. Vorzugsweise sind die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen auch frei von Fluor enthaltenden Antitropfmitteln, etwa von PTFE (Polytetrafluorethylen).

[0118] Die Menge an weiteren Additiven beträgt bevorzugt bis zu 5 Gew.-%, besonders bevorzugt 0,01 bis 3 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtzusammensetzung.

[0119] Geeignete Additive sind beispielsweise beschrieben in "Additives for Plastics Handbook, John Murphy, Elsevier, Oxford 1999", im "Plastics Additives Handbook, Hans Zweifel, Hanser, München 2001".

[0120] Geeignete Antioxidantien bzw. Thermostabilisatoren sind beispielsweise alkylierte Monophenole, Alkylthiomethylphenole, Hydrochinone und alkylierte Hydrochinone, Tocopherole, hydroxylierte Thiodiphenylether, Alkylidenbisphenole, O-, N- und S-Benzylverbindungen, hydroxybenzylierte Malonate, aromatische Hydroxybenzylverbindungen, Triazinverbindungen, Acylaminophenole, Ester von β -(3,5-Di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl)propionsäure, Ester von β -(5-tert-Butyl-4-hydroxy-3-methylphenyl)propionsäure, Ester von β -(3,5-Di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl)propionsäure, Ester von 3,5-Di-tert-butyl-4-hydroxyphenyl)propionsäure, geeignete Thiosynergisten, sekundäre Antioxidantien, Phosphite und Phosphonite, Benzofuranone und Indolinone.

[0121] Bevorzugt sind organische Phosphite wie Triphenylphosphin, Tritoluylphosphin oder (2,4,6-Tri-t-butylphenyl)-(2-butyl-2-ethyl-propan-1,3-diyl)-phosphit, Phosphonate und Phosphane, meist solche, bei denen die organischen Reste völlig oder teilweise aus gegebenenfalls substituierten aromatischen Resten bestehen.

- [0122] Ganz besonders geeignete Additive sind IRGANOX® 1076 (Octadecyl-3,5-di(tert)-butyl-4-hydroxyhydrozimt-säureester, CAS No. 2082-79-3) sowie Triphenylphosphin (TPP).
- **[0123]** Geeignete Entformungsmittel sind beispielsweise die Ester oder Teilester von ein- bis sechswertigen Alkoholen, insbesondere des Glycerins, des Pentaerythrits oder von Guerbet-Alkoholen.
- **[0124]** Einwertige Alkohole sind beispielsweise Stearylalkohol, Palmitylalkohol und Guerbet-Alkohole. Ein zweiwertiger Alkohol ist beispielsweise Glycerin; vierwertige Alkohole sind beispielsweise Pentaerythrit und Mesoerythrit; fünfwertige Alkohole sind beispielsweise Arabit, Ribit und Xylit; sechswertige Alkohole sind beispielsweise Mannit, Glucit (Sorbit) und Dulcit.
- **[0125]** Die Ester sind bevorzugt die Monoester, Diester, Triester, Tetraester, Pentaester und Hexaester oder deren Mischungen, insbesondere statistische Mischungen, aus gesättigten, aliphatischen C₁₀- bis C₃₆-Monocarbonsäuren und gegebenenfalls Hydroxymonocarbonsäuren, vorzugsweise mit gesättigten, aliphatischen C₁₄- bis C₃₂-Monocarbonsäuren und gegebenenfalls Hydroxymonocarbonsäuren.
 - **[0126]** Die kommerziell erhältlichen Fettsäureester, insbesondere des Pentaerythrits und des Glycerins, können herstellungsbedingt < 60% unterschiedlicher Teilester enthalten.
- [0127] Gesättigte, aliphatische Monocarbonsäuren mit 10 bis 36 C-Atomen sind beispielsweise Caprinsäure, Laurinsäure, Myristinsäure, Palmitinsäure, Stearinsäure, Hydroxystearinsäure, Arachinsäure, Behensäure, Lignocerinsäure, Cerotinsäure und Montansäuren.
 - [0128] Geeignete IR-Absorber sind beispielsweise in EP 1 559 743 A1, EP 1 865 027 A1, DE 10022037 A1, DE 10006208 A1 sowie in den italienischen Patentanmeldungen RM2010A000225, RM2010A000227 sowie RM2010A000228 offenbart. Von den in der zitierten Literatur genannten IR-Absorbern sind solche auf Borid- und Wolframatbasis, insbesondere Cäsiumwolframat oder Zink-dotiertes Cäsiumwolframat, sowie auf ITO und ATO basierende Absorber sowie Kombinationen daraus bevorzugt.
 - [0129] Geeignete UV-Absorber aus der Klasse der Benzotriazole sind z.B. Tinuvin® 171 (2-[2-Hydroxy-3-dodecyl-5-methylbenzyl)phenyl]-2H-benztriazol (CAS-Nr. 125304-04-3)), Tinuvin® 234 (2-[2-Hydroxy-3,5-di(1,1-dimethylbenzyl)phenyl]-2H-benztriazol (CAS-Nr. 70321-86-7)), Tinuvin® 328 (2-2[Hydroxy-3,5-di-tert.amyl-phenyl]-2H-benztriazol (CAS-Nr. 25973-55-1)).
 - [0130] Geeignete UV-Absorber aus der Klasse der Oxalanilide sind z.B. Sanduvor® 3206 (N-(2-Ethoxyphenyl)-ethandiamid (CAS-Nr. 82493-14-9)) von Clariant oder N-(2-Ethoxyphenyl)-N'-(4-dodecylphenyl)oxamid (CAS-Nr. 79102-63-9).
- [0131] Geeignete UV-Absorber aus der Klasse der Hydroxybenzophenone sind z.B. Chimasorb® 81 (2-Benzoyl-5-octyloxyphenol (CAS-Nr. 1843-05-6)) der Firma BASF SE, 2,4-Dihydroxybenzophenon (CAS-Nr. 131-56-6), 2-Hydroxy-4-dodecyloxybenzophenon (CAS-Nr. 2985-59-3).

- **[0132]** Geeignete UV-Absorber aus der Klasse der Triazine sind beispielsweise 2-[2-Hydroxy-4-[3-(2-ethylhexyl-1-oxy)-2-hydroxypropyloxy]phenyl] -4,6-bis(2,4-dimethylphenyl)-1,3,5-triazin (CAS-Nr. 137658-79-8) auch bekannt als Tinuvin® 405 (BASF SE) und 2,4-Diphenyl-6-[2-hydroxy-4-(hexyloxy)phenyl]-1,3,5-triazin (CAS-Nr. 147315-50-2), erhältlich als Tinuvin® 1577 (BASF SE).
- **[0133]** Die Verbindung 2- [2-Hydroxy-4- [(octyloxycarbonyl)ethylidenoxy]phenyl] -4,6-di(4-phenyl)phenyl-1,3,5-triazin hat die CAS-Nr. 204848-45-3 und ist erhältlich von BASF SE unter dem Namen Tinuvin® 479.
- [0134] Die Verbindung 2-[2-Hydroxy-4-[(2-ethylhexyl)oxylphenyl]-4,6-di(4-phenyl)phenyl-1,3,5-triazin hat die CAS-Nr. 204583-39-1 und ist erhältlich von BASF SE unter dem Namen CGX-UVA006 bzw. Tinuvin® 1600.
- **[0135]** UV Absorber werden im Allgemeinen in einer Menge von 0,01 bis 5 Gew.-%, bevorzugt 0,01 bis 2 Gew.-%, besonders bevorzugt 0,01 bis 0,05 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtzusammensetzung, eingesetzt.
- **[0136]** Der Polycarbonat-Zusammensetzung können organische und anorganische Füllstoffe in üblichen Mengen zugesetzt werden. In Frage kommen hierfür prinzipiell alle feinvermahlenen organischen und anorganischen Materialien.
- Diese können z.B. partikel-, schuppenförmigen oder faserförmigen Charakter haben. Beispielhaft seien an dieser Stelle Kreide, Quarzpulver, Titandioxid, Silikate/Aluminosilikate wie z.B. Talk, Wollastonit, Glimmer/Tonschichtmineralien, Montmorillonit, insbesondere auch in einer durch Ionenaustausch modifizierten, organophilen Form, Kaolin, Zeolithe, Vermiculit sowie Aluminiumoxid, Silica, Magnesiumhydroxid und Aluminiumhydroxid genannt. Es können auch Mischungen verschiedener anorganischer Materialien zum Einsatz kommen.
- [0137] Bevorzugte anorganische Füllstoffe sind feinstteilige (nanoskalige) anorganische Verbindungen aus einem oder mehreren Metallen der 1. bis 5. Hauptgruppe und 1. bis 8. Nebengruppe des Periodensystems, bevorzugt aus der 2. bis 5. Hauptgruppe, besonders bevorzugt auf der 3. bis 5. Hauptgruppe, bzw. auf der 4. bis 8. Nebengruppe, mit den Elementen Sauerstoff, Schwefel, Bor, Phosphor, Kohlenstoff, Stickstoff, Wasserstoff und/oder Silizium.
 - **[0138]** Bevorzugte Verbindungen sind beispielsweise Oxide, Hydroxide, wasserhaltige/basische Oxide, Sulfate, Sulfite, Sulfide, Carbonate, Carbide, Nitrate, Nitrite, Nitride, Borate, Silikate, Phosphate und Hydride.
 - [0139] Als Farbmittel oder Pigmente können beispielsweise organische oder anorganische Pigmente oder organische Farbstoffe oder dergleichen eingesetzt werden.
 - [0140] Farbmittel oder Pigmente im Sinne der vorliegenden Erfindung sind Schwefel-haltige Pigmente wie Cadmiumrot

oder Cadmiumgelb, Eisencyanid-basierte Pigmente wie Berliner Blau, Oxid-Pigmente wie Titandioxid, Zinkoxid, rotes Eisenoxid, schwarzes Eisenoxid, Chromoxid, Titangelb, Zink-Eisen-basiertes Braun, Titan-Cobalt-basiertes Grün, Cobaltblau, Kupfer-Chrom-basiertes Schwarz und Kupfer-Eisen-basiertes Schwarz oder Chrom-basierte Pigmente wie Chromgelb, Phthalocyanin-abgeleitete Farbstoffe wie Kupfer-Phthalocyanin-Blau oder Kupfer-Phthalocyanin-Grün, kondensierte polycyclische Farbstoffe und Pigmente wie Azo-basierende (z. B. Nickel-Azogelb), Schwefel-Indigo-Farbstoffe, Perinon-basierte, Perylen-basierte, Chinacridon-abgeleitete, Dioxazin-basierte, Isoindolinon-basierte und Chinophthalon-abgeleitete Derivate, Anthrachinon-basierte, heterocyclische Systeme.

[0141] Konkrete Beispiele für Handelsprodukte sind z. B. MACROLEX® Blau RR, MACROLEX® Violett 3R, MACROLEX® Violett 3R, MACROLEX® Violett B (Lanxess AG, Deutschland), Sumiplast® Violett RR, Sumiplast® Violett B, Sumiplast® Blau OR, (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), Diaresin® Violett D, Diaresin® Blau G, Diaresin® Blau N (Mitsubishi Chemical Corporation), Heliogen® Blau oder Heliogen® Grün (BASF AG, Deutschland).

 $\textbf{[0142]} \quad \text{Von diesen sind Cyaninderivate, Chinolinderivate, Anthrachinonderivate, Phthalocyaninderivate bevorzugt.}$

[0143] Eine bevorzugte erfindungsgemäße Zusammensetzung enthält

A) 20,0 bis 77,0 Gew.-% Polycarbonat,

B) 15,0 bis 60,0 Gew.-% expandierten Graphit, wobei der D(0,5) des Graphits, bestimmt durch Siebanalyse gemäß DIN 51938, < 1,2 mm ist,

C) 5,0 bis 7,0 Gew.-% mindestens einer Phosphorverbindung der Formel

wobei q zwischen 1,0 und 1,2, bevorzugt bei 1,1, liegt,

D) 3,0 bis 4,0 Gew.-% mindestens eines Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymers,

E) gegebenenfalls mindestens ein weiteres Polymeradditiv, ausgewählt aus der Gruppe der Thermostabilisatoren, von Komponente C verschiedene Flammschutzmittel, Antistatika, Farbmittel, Pigmente, Entformungsmittel, UV-Absorber, IR-Absorber und/oder der Füllstoffe, ausgewählt aus der Gruppe Kreide, Quarzpulver, Titandioxid, Silikate, Alumosilikate, Aluminiumoxid, Silica, Magnesiumhydroxid und/oder Aluminiumhydroxid,

wobei die Komponenten A) bis E) sich zu 100 Gew.-% ergänzen.

[0144] Gemäß einer besonders bevorzugten Ausführungsform enthält die erfindungsgemäße Zusammensetzung

A) 52,0 bis 72,0 Gew.-%, bevorzugt 52,0 bis 71,0 Gew.-% Polycarbonat,

B) 20,0 bis 35,0 Gew.-% expandierten Graphit, wobei der D(0,5) des Graphits, bestimmt durch Siebanalyse gemäß DIN 51938, < 1,2 mm ist,

C) 5,0 bis 10,0, bevorzugt 5,0 bis 7,0 Gew.-% mindestens einer Phosphorverbindung der Formel

55

10

15

20

25

30

35

40

45

D) 2,0 bis 4,0 Gew.-%, bevorzugt 3,0 bis 4,0 Gew.-% mindestens eines Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymers,

E) gegebenenfalls mindestens ein weiteres Polymeradditiv, ausgewählt aus der Gruppe der Thermostabilisatoren, von Komponente (C) verschiedene Flammschutzmittel, Antistatika, Farbmittel, Pigmente, Entformungsmittel, UV-Absorber, IR-Absorber und/oder der Füllstoffe, ausgewählt aus der Gruppe Kreide, Quarzpulver, Titandioxid, Silikate, Alumosilikate, Aluminiumoxid, Silica, Magnesiumhydroxid und/oder Aluminiumhydroxid,

wobei die Komponenten A) bis E) sich zu 100 Gew.-% ergänzen.

[0145] Besonders bevorzugt beträgt bei dieser Ausführungsform der Schmelzflussindex von Komponente D mindestens 2,5 g/10 min, ermittelt nach ASTM D1238 (bei 190°C und 2,16 kg).

[0146] Eine weitere besonders bevorzugte erfindungsgemäße Zusammensetzung enthält

A) 52,0 bis 60,0 Gew.-% Polycarbonat,

25

30

35

40

45

50

55

B) 30,0 bis 35,0 Gew.-% expandierten Graphit, wobei der D(0,5) des Graphits, bestimmt durch Siebanalyse gemäß DIN 51938, < 1,2 mm ist,

C) 5,0 bis 10,0 Gew.-%, bevorzugt 5,0 bis 7,0 Gew.-% mindestens einer Phosphorverbindung der Formel

wobei q zwischen 1,0 und 1,2, bevorzugt bei 1,1, liegt,

D) 3,0 bis 4,0 Gew.-% mindestens eines Ethylen/Alkyl(meth)acrylat-Copolymers,

E) gegebenenfalls mindestens ein weiteres Polymeradditiv, ausgewählt aus der Gruppe der Thermostabilisatoren, von Komponente (C) verschiedene Flammschutzmittel, Antistatika, Farbmittel, Pigmente, Entformungsmittel, UV-Absorber, IR-Absorber und/oder der Füllstoffe, ausgewählt aus der Gruppe Kreide, Quarzpulver, Titandioxid, Silikate, Alumosilikate, Aluminiumoxid, Silica, Magnesiumhydroxid und/oder Aluminiumhydroxid,

wobei die Komponenten A) bis E) sich zu 100 Gew.-% ergänzen und wobei die Zusammensetzung frei von Fluor-haltigem Antitropfmittel ist.

[0147] Die Herstellung der erfindungsgemäßen Polymer-Zusammensetzungen, enthaltend die oben genannten Komponenten, erfolgt mit gängigen Einarbeitungsverfahren durch Zusammenführung, Vermischen und Homogenisieren der einzelnen Bestandteile, wobei insbesondere die Homogenisierung bevorzugt in der Schmelze unter Einwirkung von Scherkräften stattfindet. Gegebenenfalls erfolgt das Zusammenführen und Vermischen vor der Schmelzehomogenisie-

rung unter Verwendung von Pulvervormischungen.

10

15

20

30

35

40

45

50

55

[0148] Es können auch Vormischungen aus Granulaten oder Granulaten und Pulvern mit den erfindungsgemäßen Zusätzen verwendet werden.

[0149] Es können auch Vormischungen verwendet werden, die aus Lösungen der Mischungskomponenten in geeigneten Lösungsmitteln hergestellt worden sind, wobei gegebenenfalls in Lösung homogenisiert wird und das Lösungsmittel anschließend entfernt wird.

[0150] Insbesondere können hierbei die Komponenten und vorgenannten Additive der erfindungsgemäßen Zusammensetzungen durch bekannte Verfahren oder als Masterbatch eingebracht werden.

[0151] Die Verwendung von Masterbatchen ist insbesondere zum Einbringen der Additive bevorzugt, wobei insbesondere Masterbatche auf Basis der jeweiligen Polymermatrix verwendet werden.

[0152] In diesem Zusammenhang kann die Zusammensetzung in üblichen Vorrichtungen wie Schneckenextrudern (zum Beispiel Zweischneckenextruder, ZSK), Knetern, Brabender- oder Banbury-Mühlen zusammengeführt, vermischt, homogenisiert und anschließend extrudiert werden. Nach der Extrusion kann das Extrudat abgekühlt und zerkleinert werden. Es können auch einzelne Komponenten vorgemischt werden und dann die restlichen Ausgangsstoffe einzeln und/oder ebenfalls gemischt hinzugegeben werden.

[0153] Andere, ebenfalls für die vorliegende Erfindung brauchbare wärmeleitfähige thermoplastische Zusammensetzungen sind beispielsweise offenbart in der WO2012/174574A2, der WO2017/005735A1, der WO2017/005738A1 und der WO2017005736A1, wobei die in der WO2017/005735A1 offenbarten erfindungsgemäßen wärmeleitfähigen thermoplastischen Zusammensetzungen besonders geeignet sind. Insbesondere sind die in der WO2017/005735A1 offenbarten Diglycerolester als Fließverbesserer im Zusammenhang mit den erfindungsgemäßen wärmeleitfähige thermoplastische Zusammensetzungen besonders geeignet.

[0154] Die als Fließverbesserer eingesetzten Diglycerolester sind Ester von Carbonsäuren mit Diglycerol. Dabei sind Ester auf Basis verschiedener Carbonsäuren geeignet. Auch können unterschiedliche Isomere von Diglycerol Basis für die Ester bilden. Neben Monoestern können auch Mehrfachester von Diglycerol eingesetzt werden. Anstelle von Reinverbindungen können auch Gemische verwendet werden.

[0155] Isomere von Diglycerol, welche die Basis für die erfindungsgemäß eingesetzten Diglycerolester bilden, sind die folgenden:

α, α-Diglycerol α, β-Diglycerol β, β-Diglycerol

[0156] Für die erfindungsgemäß verwendeten Diglycerolester können solche Isomere dieser Formeln eingesetzt werden, die einfach oder mehrfach verestert sind. Als Fließhilfsmittel einsetzbare Gemische bestehen aus den Diglyceroledukten sowie daraus abgeleiteten Esterendprodukten, beispielweise mit den Molekulargewichten 348 g/mol (Monolaurylester) oder 530 g/mol (Dilaurylester).

[0157] Die erfindungsgemäß in der Zusammensetzung enthaltenen Diglycerolester leiten sich vorzugsweise von gesättigten oder ungesättigten Monocarbonsäuren mit einer Kettenlänge von 6 bis 30 C-Atomen ab. Geeignete Monocarbonsäuren sind beispielsweise Caprylsäure ($C_7H_{15}COOH$, Octansäure), Caprinsäure ($C_9H_{19}COOH$, Decansäure), Lau- $(C_{11}H_{23}COOH, Dodecansäure)$, Myristinsäure $(C_{13}H_{27}COOH, Tetradecansäure)$, Palmitinsäure (C₁₅H₃₁COOH, Hexadecansäure), Margarinsäure (C₁₆H₃₃COOH, Heptadecansäure), Stearinsäure (C₁₇H₃₅COOH, Octadecansäure), Arachinsäure (C₁₉H₃₉COOH, Eicosansäure), Behensäure (C₂₁H₄₃COOH, Docosansäure), Lignocerinsäure (C₂₃H₄₇COOH, Tetracosansäure), Palmitoleinsäure (C₁₅H₂₉COOH, (9Z)-Hexadeca-9-ensäure), Petroselinsäure (C₁₇H₃₃COOH, (6Z)-Octadeca-6-ensäure), Elaidinsäure (C₁₇H₃₃COOH, (9E)-Octadeca-9-ensäure), Linolsäure (9Z,12Z)-Octadeca-9,12-diensäure), $(C_{17}H_{29}COOH,$ (C₁₇H₃₁COOH, gamma-Linolensäure alphaoder (9Z,12Z,15Z)-Octadeca-9,12,15-triensäure und (6Z,9Z,12Z)-Octadeca-6,9,12-triensäure), Arachidonsäure (5Z,8Z,11Z,14Z)-Eicosa-5,8,11,14-tetraensäure), Timnodonsäure $(C_{19}H_{29}COOH,$ (5Z,8Z,11Z,14Z,17Z)-Eicosa-5,8,11,14,17-pentaensäure) und Cervonsäure (C21H31COOH, (4Z,7Z,10Z,13Z,16Z,19Z)-Docosa-4,7,10,13,16,19-hexaensäure). Besonders bevorzugt sind Laurinsäure, Palmitinsäure und/oder Stearinsäure.

[0158] Als Diglycerolester ist besonders bevorzugt mindestens ein Ester der Formel (I)

mit R = COC_nH2_{n+1} und/oder R = COR',

5

10

30

35

55

wobei n eine ganze Zahl ist und R' ein verzweigter Alkylrest oder ein verzweigter oder unverzweigter Alkenylrest ist und C_nH_{2n+1} ein aliphatischer, gesättigter linearer Alkylrest ist, enthalten.

[0159] Dabei ist n bevorzugt eine ganze Zahl von 6-24, so dass C_nH_{2n+1} beispielsweise n-Hexyl, n-Heptyl, n-Octyl, n-Nonyl, n-Decyl, n-Dodecyl, n-Tridecyl, n-Tetradecyl, n-Hexadecyl oder n-Octadecyl ist. Weiter bevorzugt ist n = 8 bis 18, besonders bevorzugt 10 bis 16, ganz besonders bevorzugt 12 (Diglycerolmonolaurat-Isomer mit dem Molekulargewicht 348 g/mol, welches als Hauptprodukt in einem Gemisch besonders bevorzugt ist). Die vorgenannten Estergruppierungen liegen erfindungsgemäß bevorzugt auch bei den anderen Isomeren des Diglycerols vor.

[0160] Es kann sich demzufolge auch um ein Gemisch verschiedener Diglycerolester handeln.

[0161] Bevorzugt eingesetzte Diglycerolester weisen einen HLB-Wert von mindestens 6, besonders bevorzugt 6 bis 12 auf, wobei unter dem HLB-Wert die sog. "hydrophilic-lipophilic balance" verstanden wird, die gemäß der Methode nach Griffin wie folgt berechnet wird:

$$HLB = 20 \text{ x } (1 - M_{\text{lipophil}}/M),$$

wobei M_{lipophil} die Molmasse des lipophilen Anteils des Diglycerolesters ist und M die Molmasse des Diglycerolesters. **[0162]** Tabelle 1 zeigt beispielhaft anhand verschiedener Wärmerohre aus unterschiedlichen Materialien und mit unterschiedlichen Außendurchmessern und Wandstärken, dass der Quotient aus Außendurchmesser zu Wandstärke der Heatpipe entscheidend ist, damit die Heatpipe den beim Umspritzen auftretenden Belastungen standhält, ohne dass die Erfindung auf diese Beispiele eingeschränkt werden soll. Es wurde jeweils ein Spritzdruck von etwa 1000 bar beim Spritzgießen aufgebracht mit einem Nachdruck von 600 bar.

| Т | abe | lle | 1 |
|---|-----|-----|---|
|---|-----|-----|---|

| | | rabelle i | | | | | | |
|----|-----------|------------------|------------|---|--|--|--|--|
| 40 | Werkstoff | Außendurchmesser | Wandstärke | Spritzgießprozess schadlos überstanden? | | | | |
| | Kupfer | 4 mm | 0,2 mm | nein | | | | |
| | Kupfer | 6 mm | 1 mm | ja | | | | |
| | Kupfer | 8 mm | 1 mm | ja | | | | |
| 45 | Edelstahl | 1,5 mm | 0,25 mm | ja | | | | |
| | Edelstahl | 3 mm | 0,25 mm | nein | | | | |
| | Edelstahl | 3 mm | 0,5 mm | ja | | | | |
| | Kupfer | 4 mm | 0,5 mm | ja | | | | |
| | Kupfer | 4 mm | 0,75 mm | ja | | | | |
| 50 | Kupfer | 4 mm | 1 mm | ja | | | | |
| | Kupfer | 5 mm | 0,5 mm | ja | | | | |

[0163] Eine bevorzugte Ausgestaltungen der Erfindung wird durch die nachfolgenden Figur dargestellt, ohne dass die Erfindung dadurch auf diese Ausgestaltung beschränkt wird.

[0164] Fig. 1 zeigt dabei das erfindungsgemäße Wärmeableitungssystem für eine Wärmequelle; dabei sind:

1 Wärmequelle,

- 2 Wärmeeinkoppelelement,
- 3 Heatpipe,
- 4 Kühlkörper.

5

10

Patentansprüche

- 1. Ein Wärmeableitungssystem für eine Wärmequelle, wobei das Wärmeableitungssystem eine Heatpipe, ein Wärmeeinkoppelelement, ein Wärmeauskoppelelement (Kühlkörper) aufweist, wobei das Wärmeauskoppelelement zu mindestens 50 Gew.-%, bevorzugt zu 65 Gew.-%, besonders bevorzugt zu mindestens 80 Gew.-%, ganz besonders bevorzugt zu mindestens 95 Gew.-% aus einer wärmeleitfähigen thermoplastischen Zusammensetzung mit einer Wärmeleitfähigkeit in plane von 1 bis 50 W/(m*K), bevorzugt 2 bis 30 W/(m*K) bevorzugt 4 bis 20 W/(m*K) besteht, und der Quotient von Außendurchmesser zu Wandstärke der Heatpipe von 10:1 bis 4:1 beträgt.
- Wärmeableitungssystem nach Anspruch 1, wobei der Quotient von Außendurchmesser zu Wandstärke der Heatpipe von 8:1 bis 4:1, besonders bevorzugt 7:1 bis 5:1 beträgt.
 - 3. Wärmeableitungssystem nach Anspruch 1 oder 2, wobei die Heatpipe mit der wärmeleitfähigen thermoplastischen Zusammensetzung des Wärmeauskoppelements umspritzt ist.

20

- **4.** Wärmeableitungssystem nach einem der Ansprüche 1 bis 3, wobei die Fähigkeit der Heatpipe zur Wärmeableitung nach dem Umspritzen mindestens 80 %, bevorzugt mindestens 90 %, besonders bevorzugt mindestens 95 %, insbesondere mindestens 98 % der Fähigkeit zur Wärmeableitung der nicht umspritzten Heatpipe beträgt.
- 5. Wärmeableitungssystem nach einem der Ansprüche 1 bis 4, wobei es sich bei der wärmeleitfähigen thermoplastischen Zusammensetzung um eine Zusammensetzung enthaltend ein Polycarbonat handelt.
 - **6.** Wärmeableitungssystem nach einem der Ansprüche 1 bis 5, wobei es sich bei der Wärmequelle um ein Leuchtmittel handelt, bevorzugt um eine LED.

30

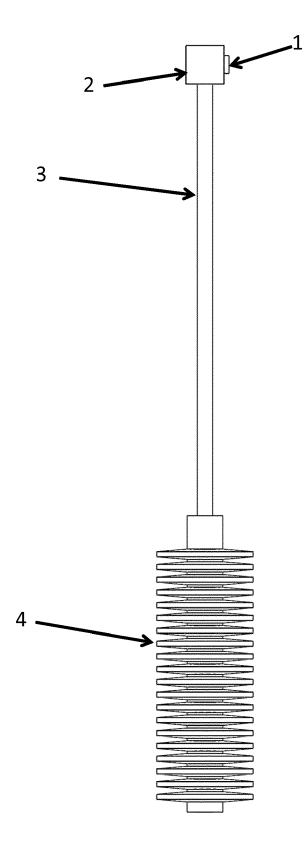
- 7. Wärmeableitungssystem nach einem der Ansprüche 1 bis 6, wobei es sich bei dem Wärmeableitungssystem um einen Bestandteil einer Leuchte, bevorzugt eines Scheinwerfers, besonders bevorzugt eines Fahrzeugfrontscheinwerfers oder Fahrzeugheckscheinwerfers handelt.
- 8. Wärmeableitungssystem nach einem der Ansprüche 1 bis 7, wobei es sich bei dem Wärmeableitungssystem um ein Bestandteil des Gehäuses eines Fahrzeugscheinwerfers handelt.
 - **9.** Wärmeableitungssystem nach einem der Ansprüche 1 bis 7, wobei das Wärmeauskoppelelement als Kühlkörper ausgebildet, der sich innen oder außen, bevorzugt innen, besonders bevorzugt innen unten, an der Fahrzeugscheinwerferscheibe befindet.
 - 10. Leuchte, umfassend das Wärmeableitungssystem nach einem der Ansprüche 1 bis 9.
 - 11. Leuchte nach Anspruch 10, wobei diese als Scheinwerfer, bevorzugt als Fahrzeugscheinwerfer, ausgebildet ist.

45

40

50

Fig. 1





EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung EP 17 20 7887

| | é |
|--|----------|
| | ζ |
| | ٥ |
| | ຣີ |
| | ε |
| | S |
| | Š |
| | 2 |
| | C |
| | <u>ا</u> |
| | ۵ |
| | ٠ |
| | |

| - 1 | EINSCHLÄGIGE | | | <u></u> | |
|----------------------------|---|--|--|---|---|
| Kategorie | Kennzeichnung des Dokun der maßgebliche | | erforderlich, | Betrifft Anspruch | KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (IPC) |
| X A | US 2014/340913 A1 (20. November 2014 (* Absätze [0071], [0076], [0080], [0080], [* Abbildungen 3-6,4 | [2014-11-20) [0072], [0075] [0078], [0079] [0084], [0086] |], | 1,2,5-11 3,4 | INV. F21V29/51 F28D15/00 F21V29/85 F21V29/87 F21S45/47 |
| 4 | FR 3 043 448 A1 (VA 12. Mai 2017 (2017- * das ganze Dokumer | 05-12) | | 1,6,7, 10,11 | ADD. F21V29/74 F21Y115/10 |
| A | US 2004/213016 A1 (28. Oktober 2004 (2 * das ganze Dokumer | 004-10-28) | M [US]) | 1,8,11 | |
| | | | | | RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (IPC) F21V F21K |
| | | | | | F28D F21Y F21S |
| | | | | | |
| | | | | | |
| | | | | | |
| Dervo | rliegende Recherchenbericht wu | rde für alle Patentanenrü | che erstellt | | |
| Del 40 | Recherchenort | Abschlußdatum d | | | Prüfer |
| | Den Haag | 27. Mär: | | Cos | nard, Denis |
| | | | | | |
| X : von Y : von ande | ATEGORIE DER GENANNTEN DOKI besonderer Bedeutung allein betrach besonderer Bedeutung in Verbindung eren Veröffentlichung derselben Kateg | tet :: mit einer | älteres Patentdokui nach dem Anmelde in der Anmeldung a aus anderen Gründ | ment, das jedoc datum veröffent Ingeführtes Dok en angeführtes | licht worden ist ument Dokument |
| O : nich | nologischer Hintergrund tschriftliche Offenbarung schenliteratur | | | | übereinstimmendes |

ANHANG ZUM EUROPÄISCHEN RECHERCHENBERICHT ÜBER DIE EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG NR.

5

10

15

20

25

30

35

40

45

50

55

EP 17 20 7887

In diesem Anhang sind die Mitglieder der Patentfamilien der im obengenannten europäischen Recherchenbericht angeführten Patentdokumente angegeben.

Patentdokumente angegeben.
Die Angaben über die Familienmitglieder entsprechen dem Stand der Datei des Europäischen Patentamts am Diese Angaben dienen nur zur Unterrichtung und erfolgen ohne Gewähr.

27-03-2018

| | lm F angefül | Recherchenbericht nrtes Patentdokument | | Datum der Veröffentlichung | | Mitglied(er) der Patentfamilie | Datum der Veröffentlichung |
|----------------|-----------------|---|----|-------------------------------|-------|-----------------------------------|-------------------------------|
| | US | 2014340913 | A1 | 20-11-2014 | KEINE | | |
| | FR | 3043448 | A1 | 12-05-2017 | KEINE | | |
| | US | 2004213016 | A1 | 28-10-2004 | KEINE | | |
| | | | | | | | |
| | | | | | | | |
| | | | | | | | |
| | | | | | | | |
| | | | | | | | |
| | | | | | | | |
| | | | | | | | |
| | | | | | | | |
| | | | | | | | |
| | | | | | | | |
| | | | | | | | |
| | | | | | | | |
| | | | | | | | |
| | | | | | | | |
| | | | | | | | |
| | | | | | | | |
| | | | | | | | |
| 93 | | | | | | | |
| EPO FORM P0461 | | | | | | | |
| EPO FC | | | | | | | |
| | | | | | | | |

Für nähere Einzelheiten zu diesem Anhang : siehe Amtsblatt des Europäischen Patentamts, Nr.12/82

IN DER BESCHREIBUNG AUFGEFÜHRTE DOKUMENTE

Diese Liste der vom Anmelder aufgeführten Dokumente wurde ausschließlich zur Information des Lesers aufgenommen und ist nicht Bestandteil des europäischen Patentdokumentes. Sie wurde mit größter Sorgfalt zusammengestellt; das EPA übernimmt jedoch keinerlei Haftung für etwaige Fehler oder Auslassungen.

In der Beschreibung aufgeführte Patentdokumente

- US 20040252502 A1 [0007] [0010]
- WO 2015135958 A1 [0041]
- US 2999835 A [0056]
- US 3148172 A [0056]
- US 2991273 A [0056]
- US 3271367 A [0056]
- US 4982014 A [0056]
- US 2999846 A [0056]
- DE 1570703 A [0056]
- DE 2063050 A [0056] DE 2036052 A [0056]
- DE 2211956 A [0056]
- DE 3832396 A [0056]
- DE 1561518 A1 [0056]
- WO 2004063249 A1 [0070]
- WO 200105866 A1 [0070]
- WO 2000105867 A [0070]
- US 5340905 A [0070]

- US 5097002 A [0070]
- US A5717057 A [0070]
- US 1137373 A [0074]
- US 1191383 A [0074]
- US 3404061 A [0074]
- EP 0363608 A1 [0106]
- EP 0640655 A2 [0106]
- EP 1559743 A1 [0128]
- EP 1865027 A1 [0128]
- DE 10022037 A1 [0128]
- DE 10006208 A1 [0128]
- IT RM20100225 A [0128]
- IT RM20100227 A [0128]
- IT RM2010A000228 [0128]
- WO 2012174574 A2 [0153]
- WO 2017005735 A1 [0153]
- WO 2017005738 A1 [0153]
- WO 2017005736 A1 [0153]

In der Beschreibung aufgeführte Nicht-Patentliteratur

- MONOGRAPHIE; H. SCHNELL. Chemistry and Physics of Polycarbonates. Interscience Publishers, 1964, 28ff [0056]
- CHEMISTRY AND PHYSICS OF POLYCAR-BONATES. 102ff [0056]
- D.G. LEGRAND; J.T. BENDLER. Handbook of Polycarbonate Science and Technology. Marcel Dekker, 2000, 72ff [0056]
- Ullmanns Enzyklopädie der technischen Chemie. 1979, vol. 18, 301 ff [0106]
- HOUBEN-WEYL. Methoden der organischen Chemie, vol. 12/1, 43 [0106]
- METHODEN DER ORGANISCHEN CHEMIE, vol. 6, 177 **[0106]**
- JOHN MURPHY. Additives for Plastics Handbook. Elsevier, 1999 [0119]

- Plastics Additives Handbook. Hans Zweifel, Hanser, 2001 [0119]
- CHEMICAL ABSTRACTS, 2082-79-3 [0122]
- CHEMICAL ABSTRACTS, 125304-04-3 [0129]
- CHEMICAL ABSTRACTS, 70321-86-7 [0129] CHEMICAL ABSTRACTS, 25973-55-1 [0129]
- CHEMICAL ABSTRACTS, 82493-14-9 [0130]
- CHEMICAL ABSTRACTS, 79102-63-9 [0130]
- CHEMICAL ABSTRACTS, 1843-05-6 [0131]
- CHEMICAL ABSTRACTS, 131-56-6 [0131]
- CHEMICAL ABSTRACTS, 2985-59-3 [0131]
- CHEMICAL ABSTRACTS, 137658-79-8 [0132] CHEMICAL ABSTRACTS, 147315-50-2 [0132]
- CHEMICAL ABSTRACTS, 204848-45-3 [0133]
- CHEMICAL ABSTRACTS, 204583-39-1 [0134]