

AÑO .....

Expediente núm. ....



243404

# REGISTRO DE LA PROPIEDAD INDUSTRIAL

PATENTE DE ..... INVENCIÓN.

243404

## MEMORIA DESCRIPTIVA

que se acompaña a la solicitud de

una PATENTE DE INVENCIÓN por 20 años, en España

a favor de

IMPERIAL CHEMICAL INDUSTRIES LIMITED, entidad, de nacionalidad  
inglesa domiciliado en Imperial Chemical House,  
Millbank, Londres, Inglaterra. .... núm.

por:

«Perfeccionamientos en composiciones de polímeros».

Nº 9238

Agente Sr. Gómez-Acebo y Mofet.

PATENTE DE INVENCIÓN  
=====

I.C.I. Case No. P.13038.

243404



## *Memoria Descriptiva*

*sobre:*

"Perfeccionamientos en composiciones de polímeros".

=====

*Solicitante:* IMPERIAL CHEMICAL INDUSTRIES LIMITED,  
entidad inglesa, residente en  
Imperial Chemical House, Millbank,  
Londres, Inglaterra.

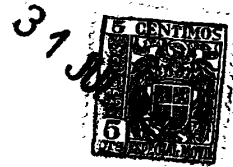
=====

Este invento se refiere a composiciones o mezclas de polímeros perfeccionadas.

El polipropileno isotáctico, denominación que indica un polipropileno cuyo 75% por lo menos es insoluble en heptano, tiene propiedades útiles tales como un punto

5.

243404



- de reblandecimiento relativamente elevado, buenas propiedades tensiles y eléctricas, y es resistente al ataque por una gran variedad de reactivos químicos. Sin embargo, las aplicaciones para las cuales está
5. indicado, se limitan porque el polímero carece de tenacidad y tiene una temperatura de fragilidad relativamente elevada. El polímero isotáctico, contiene normalmente algo de polímero atáctico. Se ha observado que el contenido de este material atáctico no elimina
10. el último defecto citado. Se ha observado además que las propiedades de resistencia al choque, de los artículos moldeados con polipropileno isotáctico, disminuye desde el momento en que se obtienen dichos productos por moldeo o extrusión.
15. De acuerdo con este invento, se ha evidenciado que las composiciones de polipropileno isotáctico, según la definición anterior, y de una proporción ponderal reducida de un polímero elastómero de isobutileno, proporciona composiciones de polímero perfeccionadas
20. y valiosas.
- Se ha observado que las composiciones de esta naturaleza, con un contenido comprendido entre 15 y 30% en peso del mencionado polímero elastómero, poseen una valiosa combinación de propiedades adecuadas para la
25. producción de artículos moldeados y extrusionados, dotados de un grado interesante de flexibilidad. Se observa también que las composiciones de este tipo con un contenido mínimo del 5% en peso del mencionado polímero elastómero, tienen propiedades de resistencia al
30. choque que disminuyen solo en cantidad insignificante



243404

después del moldeo o la extrusión, y se ha observado que las composiciones que contienen de 5 a 15% en peso de polímero elastómero, con preferencia de 8 a 12% en peso, tienen una combinación especialmente interesante de resistencia al choque y a las bajas temperaturas así como una dureza y gran adaptabilidad para una gran variedad de aplicaciones.

5. Por polímero elastómero se indica un material con un módulo de elasticidad de Young no superior a 101 70 kg/cm<sup>2</sup> durante 1 segundo a -25°C. Los polímeros de isobutileno susceptibles de usarse para este invento, comprenden por tanto no solo los verdaderos poliisobutilenos, sino también los copolímeros de isobutileno, tales como los copolímeros isobutileno/isopreno, normalmente conocidos como caucho butilo. Otros copolímeros 15. elastómeros de isobutileno, por ejemplo los copolímeros elastómeros de estireno, pueden utilizarse también en este invento. Los polímeros de pesos moleculares comprendidos entre 30.000 y 100.000 se ha comprobado que dan por 20. resultado composiciones de propiedades especialmente valiosas.

Los ingredientes de las composiciones a que este invento se refiere, pueden mezclarse entre sí por métodos normales, por ejemplo métodos corrientes de 25. masticación, tal como la mezcla en rodillos calientes o en mezcladores internos. Este procedimiento además de ser de mezcla, puede ser tal que de lugar a la degradación térmica del polipropileno, con objeto de mejorar la facilidad con la que puede moldearse o someterse a 30. la extrusión. Además, de los dos ingredientes principales,

243404



Las composiciones pueden contener ingredientes auxiliares, por ejemplo antioxidantes, estabilizadores para la luz, agentes de fijación, agentes anti-bloqueo, agentes anti-estáticos, cargas, tintes y pigmentos.

5. Las Tablas siguientes indican las propiedades útiles de composiciones a las que este invento se refiere. Se comprenderá que este invento no está limitado por estas Tablas en modo alguno. En las tablas:

10. (a) Las composiciones de la Tabla 1, incluso el patrón o testigo, se obtuvieron moliendo durante 5 minutos en molinos de rodillos abiertos; los dos rodillos se calentaban a 165°C. Las composiciones, incluso el patrón o testigo, se obtuvieron preparando el material en un mezclador Banbury, tamaño B, durante 10 minutos; 15. la temperatura llegó a una máxima de 160°C. La solubilidad en heptano de los propilenos isotácticos usados en las mezclas, era en todos los casos baja, y en ninguno de los casos fué superior al 2%. Las viscosidades en fusión de estos polipropilenos antes de la preparación, medidas con un plastómero de placas paralelas, a 190°C., figuran 20. en las tablas. Cada una de las composiciones contenía además de los ingredientes polímeros, una parte en peso del anti-oxidante bis-(2 hidroxil-3-alfa-metilciclohexil-5-metil fenil)metano, por 100 partes en peso de los 25. ingredientes polímeros de la composición. Resultan también satisfactorios para estabilizar las composiciones de este invento, otros antioxidantes, por ejemplo 4,4'-tio-bis-(6 butil-metacresol, terciario).

30. (b) La energía de choque en muestras ranuradas, se midió empleando la máquina Dynstat, en 10 muestras,

243404



5. cada una de 1 cm<sup>2</sup> por 1/16 de pulgadas de grueso; cada una de las muestras estaba ranurada a través de la parte media de una de sus caras hasta una profundidad de 0,008 de pulgada; la muestra o ranura se tallaba con una navaja y el borde cortante se comprimía hacia el interior de la mezcla, sin moverlo paralelamente a su borde. El ensayo de choque se realizó dejando caer un peso A desde 60". La energía media absorbida en los golpes por las muestras, se admitió como energía de choque en kg. cms., siendo ésta la energía <sup>media</sup>/perdida para el percutor al pasar la muestra.
- 10.

- (c) Se ha observado que en el ensayo de energía de choque, con ranura, la grieta no puede propagarse directamente a través de la muestra. Así pues, se ha ensayado la resistencia de las muestras a la fractura, someténdolas a un golpe repetido después de un corto período de relajación (alrededor de 10 minutos) a la temperatura ambiente. Se ha designado la "resistencia a la fractura" (R) como la relación de la energía absorbida en el segundo impacto o choque (I<sub>2</sub>) a la energía absorbida en el primer impacto (I) expresada en forma de porcentaje, o sea  $R = \frac{(100 I_2)}{I}$ . Si la muestra queda casi fracturada en el primer golpe, la energía de choque para el segundo golpe será casi nula, lo mismo que la resistencia a la fractura, mientras que si la grieta se propaga muy poco la energía del segundo impacto será poco diferente de la primera, y la resistencia a la fractura de la mezcla será un porcentaje elevado.
- 15.
- 20.
- 25.

- (d) La energía de choque y la resistencia a la fractura de las muestras no ranuradas de las tablas 2 a 5,
- 30.



243404

se determinaron como se ha descrito en (b) y (c), excepto que en la muestra no se talló muesca o ramura alguna.

(e) Los ensayos de choque de las Tablas 1 a 5, se llevaron a cabo 24 horas después de moldearse las muestras de ensayo.

5.

(f) La fragilidad a baja temperatura se mide por el aparato para ensayo de fragilidad a baja temperatura construido por la I.C.I., cuyos detalles figuran en el Boletín correspondiente a julio de 1958, de la Sociedad Americana de Ensayos de Materiales.

10.

(g) El módulo de Young, para 1 segundo, con esfuerzo del 2%, se midió aplicando el esfuerzo bruscamente (en unos 10 milisegundos) y tomando nota de la resistencia 1 segundo después de someter a esfuerzo.

15.

(h) Los ensayos de tracción se realizaron en muestras "dumbell" (Norma Británica 703, tipo C) a 20°C., y con una aplicación de una tracción de 18 pulgadas/minuto.

20.

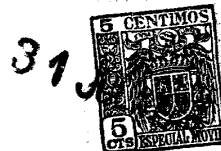
(i) Los puntos de reblandecimiento de Vicat, se midieron por el método de la British Standards Institution, Norma Británica 2782, parte 1, método 102-D.

Tabla 1.

Los resultados siguientes se obtuvieron con muestras de polipropileno isotáctico, de viscosidad en fusión  $1,1 \times 10^6$  poises, en las que se habían unido por molturación distintas proporciones de un copolímero de isobutileno e isopreno, vendido con el nombre de "Butyl" 200, por la Polymer Corporation of Canada Limited.

25.

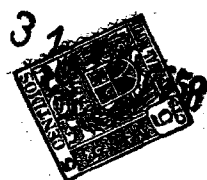
243404



% en peso de copolí- mero de isobutileno en la mezcla copolímero/ polipropileno	<u>Ensayo de choque</u>		Fragilidad a baja temperatura, °C.	Módulo de Young, con esfuerzo del 2%, libras/pulgada cuadrada
	Energía de choque cm/kg	Resisten- cia a la fractura %		
0	0.2	0	- 1.5	101,000
9.1	0.3	0	-17	91,500
16.7	2.1	17	-43.5	82,500
28.6	2.6	42	-55	59,500
44.5	2.0	65	-55 a -60	29,000

Tabla 2.

Los resultados siguientes se obtuvieron de muestras de polipropileno isotáctico de viscosidad en fusión  $3,3 \times 10^6$  poises, con las que se habían nolido proporciones distintas de un homopolímero de isobutileno de peso molecular comprendido entre 80,000 y 100,000.



248404

% en peso de poliisobutileno	Ensayo de choque (muestras ramuradas)		Ensayo de choque (muestras sin ramurar)		Punto de reblandecimiento de Vicat, °C.	Propiedades Tensiles		Punto de fragilidad a baja temperatura °C	Módulo de Young con esfuerzo del 2% libras/pulgada cuadrada
	Energía de choque cm/kg.	Resistencia a la fractura %	Energía de choque cm/kg.	Resistencia a la fractura, %		Tensión de relación, libras/pulgada cuadrada	Elongación %		
0	0.4	0	1.9	0	146	5,000	38	-1.0	135,000
10	0.3	0	4.4	70	140	4,300	116	inferior a -25	-

Tabla 4

Los resultados siguientes se obtuvieron de muestras de polipropileno isotáctico de viscosidad en fusión  $2,4 \times 10^6$  poises, con las que se habían molido proporciones distintas de un homopolímero de isobutileno de peso molecular comprendido entre 120,000 y 140,000.

243404



% en peso de poliisobutileno	Ensayo de choque (muestras ranuradas)		Ensayo de choque (muestras sin ranura)		Punto de reblandecimiento de Vicat, °C.	Propiedades Tensiles		Punto de fragilidad a baja temperatura °C.	Módulo de Young con esfuerzo del 2% libras/pulgada cuadrada
	Energía de choque cm/kg.	Resistencia a la fractura %	Energía de choque cm/kg.	Resistencia a la fractura, %		Tensión de relajamiento, libras pulgada cuadrada	Elongación %		
0	0.5	0	2.5	0	145	5,100	36	0.5	150,000
5	1.1	0	6.4	55	144	4,100	82	-22	140,000
10	2.2	9.1	5.9	60	140	4,000	104	-34	120,000
20	4.4	50	5.3	68	132	3,000	530	-45	97,000
30	4.3	60	4.3	72	123	2,500	710	inferior a -50	70,00

Tabla 3.

Los resultados siguientes se obtuvieron de muestras de polipropileno isotáctico de viscosidad en fusión  $2,4 \times 10^6$  poises, con las que se habían molido proporciones distintas de un homopolímero de isobutileno de peso molecular comprendido entre 80,000 y 100,000.



243404

% en peso de poliisobutileno	Ensayo de choque (muestras ranuradas)		Ensayo de choque (muestras sin ranurar)		Punto de reblandecimiento de Vicat, °C.	Propiedades Tensiles		Punto de fragilidad a baja temperatura °C.	Módulo de Young con esfuerzo del 2% libras/pulgada cuadrada
	Energía de choque cm/kg.	Resistencia a la fractura %	Energía de choque cm/kg.	Resistencia a la fractura %		Tensión de relajamiento, libras/pulgada cuadrada	Elongación %		
0	0.4	0	1.9	0	146	5,000	38	-1.0	135,000
20	2.0	2.0	4.7	64	134	2,900	118	-15	88,000
30	3.6	58	4.3	70	124	2,300	688	-45	72,000

Tabla 5.

Los resultados anteriores se obtuvieron de muestras de polipropileno isotáctico, de viscosidad en fusión  $3,3 \times 10^6$  poises, con las que se habían molido proporciones distintas de un homopolímero de isobutileno de peso molecular comprendido entre 120,000 y 140,000.

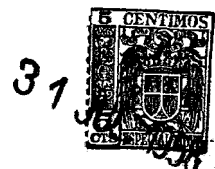
248404



% en peso de poliisobutileno	Ensayo de choque (muestras ramuradas)		Ensayo de choque (muestras sin ramurar)		Punto de reblandamiento de Vicat, 20.	Propiedades Tensiles		Punto de fragilidad a baja temperatura 20.	Módulo de Young con esfuerzo del 2% libras/pulgada cuadrada
	Energía de choque cm/kg.	Resistencia a la fractura %	Energía de choque cm/kg.	Resistencia a la fractura %		Tensión de relajamiento libras pulgada cuadrada	Elongación %		
0	0.5	0	2.5	0	145	5,100	36	0.5	150,000
10	0.4	12	1.7	6	140	3,800	62	-20	-

Tabla 6

Los resultados siguientes se obtuvieron de muestras de polipropileno isotáctico de viscosidad en fusión  $1,5 \times 10^7$  poises, con las que se habían molido proporciones distintas de un copolímero de isobutileno e isopreno vendido con el nombre de "Butyl" 301 por la Polymer Corporation of Canada Limited. Estos resultados indican la disminución de la energía de choque del polipropileno isotáctico, desde el momento de moldeado de los objetos del mismo moldeados, y como se evita esta disminución de la energía de choque por la inclusión de un polímero de isobutileno elastómero, en el polipropileno isotáctico.



243404

% de cau- cho butilo	Energía de choque (cm/kg), después de un tiempo t (en horas)			
	t = 1	t = 168	t = 360	t = 530
0	3.6	3.2	2.2	1.85
5	3.1	3.2	3.3	3.2
10	3.1	3.3	3.4	3.4
15	2.9	2.9	3.0	3.0

Tabla 7

Utilizando las mismas muestras de la Tabla 6, esta Tabla indica cómo disminuye la resistencia a la fractura del polipropileno isotáctico desde el momento de moldeo de los objetos del mismo obtenidos, y cómo la inclusión de un polímero de isobutileno elastómero en aquél, reduce o evita este defecto y proporciona composiciones de mejor resistencia a la fractura.

% de cau- cho butilo	Resistencia a la fractura (%) después de un tiempo t (en horas)			
	t = 1	t = 168	t = 360	t = 530
0	61	40	14	10
5	85	70	60	50
10	76	71	68	72
15	72	76	76	72

243404

31

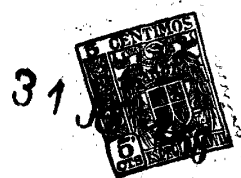


Tabla 8

Las composiciones utilizadas para obtener los resultados que figuran en la Tabla 8 son similares a las empleadas para obtener los resultados de las Tablas 6 y 7, excepto que el polipropileno isotáctico tenía una viscosidad en fusión de  $9 \times 10^6$  poises. Las resistencias al choque que figuran en esta Tabla se midieron en discos moldeados por inyección, de 4,5 pulgadas de diámetro y 1/16 pulgada de espesor. Se midieron observando el peso en gramos de un cuerpo en forma de torpedo, de 0,5 pulgada de diámetro, que caía desde 3 pies por encima de los discos, necesario para romper los discos.

% de caucho butilo	Peso necesario para la fractura (g.) después de un tiempo t en horas			
	t = 1	t = 24	t = 168	t = 400
0	540	300	115	170
5	775	540	430	440
10	1,220	1,150	1,120	900
15	1,300	1,325	1,365	1,500

Las composiciones a que este invento se refiere, pueden usarse para una gran variedad de aplicaciones que comprenden el moldeo por inyección, la extrusión y el calandrado. Así, pueden emplearse



243404

para recubrir materiales en planchas u hojas, tales como el papel y los tejidos; para la producción de películas destinadas al embalaje y al aislamiento eléctrico, así como para otras aplicaciones, y para someterlas a la extrusión como aislamiento eléctrico.

5. Los resultados anteriores, indican en especial que las composiciones tienen propiedades particularmente necesarias para la producción de artículos de resistencia mejorada al choque, empleando el método de moldeo por inyección; de tubos susceptibles de resistir las

10 condiciones de baja temperatura y manejo descuidado, y de planchas para transformarse en artículos, por ejemplo por moldeo en vacío.

N O T A

15. Descrita suficientemente la naturaleza del invento, así como la manera de realizarlo en la práctica, debe hacerse constar que las disposiciones anteriormente indicadas son susceptibles de modificaciones de detalle en cuanto no alteren su principio fundamental. También se hace constar que el invento corresponde a una

20. patente presentada en Inglaterra con fecha 7 de agosto de 1957, nº 24.892 acogiéndose, por lo tanto, a los beneficios que conceden los Convenios Internacionales en vigor, y siendo lo que constituye la esencia del referido invento y por lo que se solicita Patente de

25. Invención por 20 años en España: "Perfeccionamientos en composiciones de polímeros"; caracterizándose por lo siguiente:

1º.- Perfeccionamientos en composiciones de polímeros, caracterizados porque éstos contienen



243404

polipropileno isotáctico, como antes se ha definido, y una pequeña proporción ponderal, de un polímero elastómero de isobutileno.

5. 2<sup>a</sup>.- Perfeccionamientos, según lo especificado en la reivindicación 1<sup>a</sup>, caracterizados por contener por lo menos un 5% en peso de un polímero elastómero de isobutileno.

10. 3<sup>a</sup>.- Perfeccionamientos, según lo especificado en la reivindicación 2<sup>a</sup>, caracterizados por contener entre 15 y 30% en peso de un polímero elastómero de isobutileno.

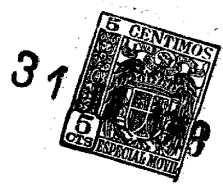
15. 4<sup>a</sup>.- Perfeccionamientos, según lo especificado en la reivindicación 2<sup>a</sup>, caracterizados por contener entre 5 y 15% en peso de un polímero elastómero de isobutileno.

20. 5<sup>a</sup>.- Perfeccionamientos, según lo especificado en la reivindicación 4<sup>a</sup>, caracterizados por contener entre 8 y 12% en peso de un polímero elastómero de isobutileno.

20. 6<sup>a</sup>.- Perfeccionamientos, según lo especificado en cualquiera de las reivindicaciones anteriores, caracterizados porque el polímero elastómero de isobutileno es un copolímero de isobutileno e isopreno.

25. 7<sup>a</sup>.- Perfeccionamientos, según lo especificado en cualquiera de las reivindicaciones anteriores, caracterizados porque el polímero elastómero de isobutileno tiene un peso molecular del orden de 80,000 a 100,000.

30. 8<sup>a</sup>.- Perfeccionamientos, según lo especificado en cualquiera de las reivindicaciones anteriores, caracterizados por contener un antioxidante.



243404

9<sup>a</sup>.- Perfeccionamientos en composiciones de polímeros; tal y como queda sustancialmente descrito en la presente memoria que consta de dieciseis hojas escritas a máquina por una solacara.

Madrid, 1 JUL. 1958

IMPERIAL CHEMICAL INDUSTRIES LIMITED.

J. GOMEZ ACEBO Y MODEI  
P. P.