

283120

-5 DIC



283120

1<sup>er</sup> CERTIFICADO DE ADICION

Br. 43434/61

## Memoria Descriptiva

sobre:

Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal nº 259.997, concedida en 15 de septiem bre de 1.960 por "PROCEDIMIENTO DE OBTENCION DE SOLUCIONES DE POLIACRILONITRILO, FORMADORAS DE FIBRAS".

==.==.==.==.==.==.==

*Solicitante:* COURTAULD LIMITED, entidad inglesa, residente en: 16, St. Martin's-le-Grand, Londres, Inglaterra.

==.==.==.==.==.==.==

Este invento se refiere a la extrusión o expulsión de soluciones de poliacrilonitrilo al interior de un líquido coagulante, para formar filamentos.

En la Memoria de la Patente española, de los mismos solicitantes, número 259.997, se reivindica un

5.



- 2 -

283120

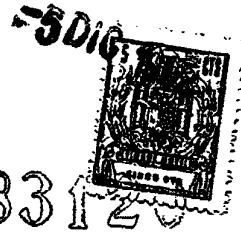
5. procedimiento para la producción de soluciones de poliacrilonitrilo, formadoras de fibras, que comprende el polimerizar acrilonitrilo con o sin otros compuestos copolimerizables, etilénicamente insaturados, en una mezcla de dimetilformamida y un líquido orgánico no disolvente para el poliacrilonitrilo y, a la vez, constituye un agente de transferencia de cadenas menos eficiente que la dimetilformamida, siendo la mezcla un disolvente para el poliacrilonitrilo. Como líquidos orgánicos adecuados, se mencionan específicamente los hidrocarburos líquidos aromáticos, tales como benceno, tolueno y xileno.

10. En la misma Memoria se describe la expulsión de la solución de poliacrilonitrilo en el interior de coagulantes tales como los hidrocarburos aromáticos benceno, tolueno y xileno.

15. Este invento se refiere a mejoras en el procedimiento de filatura que emplea un hidrocarburo aromático líquido, para diluir la dimetilformamida al formar la mezcla disolvente para el polímero y, a la vez, como coagulante para precipitar el polímero por coagulación de la solución expulsada.

20. En este procedimiento es posible regenerar la mezcla disolvente partiendo del líquido constitutivo del baño de filatura (o sea, la mezcla no disolvente formada por el disolvente y el coagulante), con solo ajustarse las proporciones relativas del hidrocarburo y de la dimetilformamida. El primero se halla presente en considerable exceso en el disolvente agotado y, dado que su punto de ebullición es inferior al de la dimetilformamida, la regeneración del disolvente ha precisado destilar grandes
- 25.
- 30.

283120



cantidades de hidrocarburo.

Se ha encontrado un método para recuperar los componentes del disolvente agotado, que no implica la destilación de esas grandes cantidades de líquido y que, por tanto, es más económico.

5.

De acuerdo con este invento, una mezcla de dimetilformamida y un hidrocarburo aromático, se pone en contacto con agua suficiente para hacer que la mezcla se divida en una fase acuosa que contenga la dimetilformamida y no más del 1% del hidrocarburo aromático, y una fase no-acuosa que contenga el hidrocarburo aromático.

10.

El disolvente agotado del proceso de filatura, puede hacerse pasar desde el fondo a la parte superior de una columna, o de una serie de ellas, llenas, en contracorriente con agua que se introduce desde la parte superior de la columna a la base de ésta. La fase acuosa de salida contiene dimetilformamida a causa de la división favorable de este producto entre el agua y el hidrocarburo aromático, mientras que la fase saliente, no-acuosa, se halla por tanto exenta de dimetilformamida.

15.

20.

La mezcla disolvente puede regenerarse luego en dos etapas. La primera implica el destilar el agua de la fase acuosa efluente, hasta que se obtenga dimetilformamida de una pureza suficiente. En la segunda etapa, la dimetilformamida y el hidrocarburo aromático se mezclan en proporciones predeterminadas para formar de nuevo la mezcla disolvente.

25.

Otra aplicación de este invento es el tratamiento del baño de filatura "in situ", o sea, el hacer pasar agua a través del mismo, simultáneamente con los

30.



filamentos. Así, mientras la solución de polímero se expulsa al interior de un baño de hidrocarburo (de tal modo que aumenta continuamente el contenido de dimetilformamida del baño) puede introducirse agua, con preferencia pulverizada, en el mismo, para disolver la dimetilformamida. La fase acuosa se acumula entonces en el fondo del baño, desde donde puede llevarse a un aparato de destilación para recuperar la dimetilformamida.

Las economías realizadas substituyendo la gran cantidad de hidrocarburo que contamina la dimetilformamida, por una proporción menor de agua, no son las únicas que este procedimiento permite. El estiraje de los filamentos de poliacrilonitrilo en vapor, es una característica común a muchos procedimientos de filatura, y el vapor producido por el aparato de separación de la dimetilformamida y el agua, destilando ésta, puede utilizarse para dicho objeto, reduciendo así la instalación de producción de vapor. Además, el agua condensada del vapor usado en la etapa de estiraje, puede muy bien haber arrastrado dimetilformamida ocluida por los filamentos en estiraje, y esta fase acuosa puede hacerse pasar a la pulverización sobre el baño de filatura, completando así el ciclo y recuperando quizás más dimetilformamida en el procedimiento.

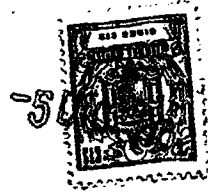
Un baño de filatura en equilibrio ha de contener, por lo menos, 8 partes en peso de hidrocarburo, por una parte de dimetilformamida, para conservar propiedades de coagulación adecuadas para una filatura libre de inconvenientes. El procedimiento de este invento es muy apropiado para separar esas mezclas. Por ejemplo, una mezcla de 89,2 partes de tolueno y 10,8 partes de dimetilformamida,



- se diluyó con agua de tal modo que la composición total era 85,3 partes de tolueno, 10,3 partes de dimetilformamida y 4,4 partes de agua. Después de agitar 5 minutos, la mezcla se dejó en reposo y al cabo de otros 3 minutos se había separado en dos capas. La inferior, acuosa, contenía 52% de dimetilformamida. La capa no-acuosa solo tenía 5,63% de este cuerpo. Así pues, en un procedimiento cíclico, es innecesario eliminar totalmente la dimetilformamida del tolueno; basta que el contenido de dimetilformamida del baño de filatura se reduzca a un grado tal que la fase no-acuosa constituya un coagulante eficiente que pueda tolerar un aumento de un reducido porcentaje en su proporción de dimetilformamida, y que una gran proporción de este cuerpo se recupere relativamente libre de hidrocarburo.
- 5.
- 10.
- 15.

NOTA

- 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 se refiere a una solicitud de patente británica con fecha 5 de diciembre de 1.961, nº 43434/61, 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 1<sup>er</sup> CERTIFICADO DE ADICION en España por: Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal nº 259.997, concedida en 15 de septiem
- 20.
- 25.
- 30.
- bre de 1.960 por "PROCEDIMIENTO DE OBTENCION DE SOLUCIONES



283120

DE POLIACRILONITRILLO, FORMADORAS DE FIBRAS"; caracterizándose por lo siguiente:

5. 1ª.- Mejoras introducidas en el objeto de la patente principal nº 259.997, concedida en 15 de septiembre de 1.960, por "Procedimiento de obtención de soluciones de poliacrilonitrilo, formadores de fibras", caracterizadas por comprender el expulsar la solución de poliacrilonitrilo en una mezcla disolvente de dimetilformamida y un hidrocarburo aromático, al interior de un
10. líquido coagulante que contenga un hidrocarburo aromático para formar filamentos, y un coagulante que contenga una mezcla no-disolvente de dimetilformamida y un hidrocarburo aromático; el poner la mezcla no-disolvente en contacto con agua suficiente para hacer que la mezcla se
15. divida en una fase acuosa que contenga dimetilformamida y no más de 1% del hidrocarburo aromático, y una fase no-acuosa que contenga hidrocarburo aromático, y al obtener la dimetilformamida de la fase acuosa.
20. 2ª.- Mejoras, según reivindicación 1ª, caracterizadas por comprender el hacer pasar la mezcla no-disolvente de la base a la parte superior de una columna, llena en contracorriente, con agua que se infiltra a través de dicha columna.
25. 3ª.- Mejoras, según reivindicación 1ª, caracterizadas porque el agua se hace pasar a través de la mezcla no-disolvente, simultáneamente con los filamentos.
30. 4ª.- Mejoras, según reivindicación 3ª, caracterizadas porque el agua se pulveriza sobre la mezcla no-disolvente.
- 5ª.- Mejoras introducidas en el objeto de la



- 7 -

**283120**

patente principal nº 259.997, concedida en 15 de septiembre de 1.960, por "Procedimiento de obtención de soluciones de poliacrilonitrilo, formadoras de fibras" tal y como queda sustancialmente descrito en la presente Memoria.

Esta Memoria consta de siete hojas escritas a máquina por una sola cara.

Madrid, **5 DIC 1962**

**COURTAULDS LIMITED.-**

**J. GOMEZ ACEBO Y MODEY**

