

18 SEP. 1963



P - 24.836

P - 4204-0

289129

MEMORIA DESCRIPTIVA

que se presenta para unir a la solicitud

de

PATENTE DE INVENCION

en

ESPAÑA

por DIEZ años

a nombre de UNION CARBIDE CORPORATION, entidad norteameri
cana, establecida en 270 Park Avenue, Nueva York, N.Y.,
Estados Unidos de América, por:

"MEJORAS INTRODUCIDAS EN LA PREPARACION DE COMPOSICIONES
DE CERA"

Este invento se refiere a nuevas formulaciones de
cera que tienen propiedades físicas mejoradas. En un as-
pecto particular, este invento se refiere a nuevas compo-
siciones que comprenden mezclas de una cera con políme-
ros que contienen etileno y ácido acrílico polimerizados
5 en el polímero.

Las ceras han sido empleadas desde hace mucho tiemp
po como revestimientos para papel, telas, cartón y otros
productos para hacerlos resistentes a la humedad. Tales
10 ceras, sin embargo, se agrietan y se despellejan, amenu-



do, del producto revestido debido a su baja resistencia a la tracción y a su pobre ductilidad, y raramente presentan buenas resistencias de cierre. Con el fin de mejorar la resistencia a la tracción y la ductilidad de una cera, era operación normal, antiguamente, el agregar pequeñas cantidades de polietileno a la cera. Se pueden obtener soluciones claras de una cera, por ejemplo cera de parafina y polietileno, calentando y agitando una mezcla de los dos componentes a una temperatura por encima de 120°C. Se puede obtener una fina dispersión del polietileno en la cera agitando la mezcla hasta que se enfría, practicamente, hasta su punto de solidificación. Sin embargo, con el empleo de una formulación en la cual el polietileno se dispersa muy finamente en la cera, solo se obtiene un mejoramiento limitado, en la resistencia a la tracción y ductilidad de la mezcla. Además, la agitación vigorosa de la mezcla, que es necesaria durante el período de enfriamiento para conseguir la dispersión produce burbujas de aire, las cuales interfieren, o evitan, la formación de revestimientos o impregnaciones de cera continuas sobre el papel. Sin embargo, si se disminuye la velocidad de agitación, no puede conseguirse una fina dispersión y según disminuye la temperatura de la mezcla de cera-polietileno, se alcanza un "punto de turbidez" a una temperatura aproximada de 25-30°C. por encima del punto de fusión de la cera. En este punto, se produce la separación de la mezcla en dos fases, empezando a enturbiarse el líquido. Una fase, se compone de cera más una pequeña cantidad de polietileno disuelto; la otra fase, consta de partículas de polietileno sólidas. Tales mezclas de dos fases presentan poco o ningún mejora



miento en las propiedades físicas en comparación con la cera sin modificar.

Los copolímeros de etileno-acetato de vinilo son más compatibles con las ceras de petróleo que el polietileno. No se observa separación de fase o punto de turbidez hasta que se alcanza el punto de congelación de la cera misma. Si bien tales composiciones proporcionan resultados superiores con respecto al empleo del polietileno, las resistencias de cierre de tales composiciones cera-copolímero no son lo suficientemente elevadas como para hacer las composiciones útiles para un campo de aplicaciones para las cuales podrían, de otro modo, adaptarse satisfactoriamente.

De acuerdo con el presente invento, se ha descubierto que la adición de incluso una pequeña cantidad de un copolímero etileno-ácido acrílico aumenta marcadamente la fuerza de adhesión, la resistencia de cierre y las propiedades protectoras de la cera. El término "copolímero etileno ácido acrílico" tal como aquí se emplea, se define como el producto de una reacción de polimerización de una o más especies monómeras diferentes con etileno, con tal que un monómero, sea siempre ácido acrílico. Así pues, el término incluye copolímeros etileno-ácido acrílico específicos, terpolímeros, cuatripolímeros, y otros materiales polímeros multicomponentes conteniendo una proporción principal de etileno y una proporción secundaria de ácido acrílico polimerizado.

Tales copolímeros se pueden preparar con copolimerización de etileno y ácido acrílico, juntos o en combinación con un monómero o monómeros copolimerizables con ellos y perfectamente descritos más adelante, empleando cualquiera de los diversos procedimientos bien conocidos en la técnica.



Puede emplearse un copolímero conteniendo etileno combinado como constituyente principal y ácido acrílico combinado como constituyente secundario, en peso, como un aditivo de cera mejorador de la adhesión en este invento. Los copolímeros deben de tener de 50 a 97,5 por ciento en peso de etileno combinado, siendo el resto ácido acrílico combinado, o ácido acrílico y éster orgánico combinado, con el fin de asegurar los resultados mejorados, expuestos más adelante. Preferiblemente deben contener al menos 60 por ciento en peso de etileno combinado y de 2,5 a 40 por ciento en peso de ácido acrílico combinado. Se obtienen resultados óptimos como aditivos de cera cuando estos copolímeros contienen de 2,5 a 10 por ciento, en peso, de ácido acrílico combinado.

En este invento, el copolímero que se emplea como un aditivo de cera mejorador de la adhesión puede comprender también etileno, ácido acrílico y al menos un éster orgánico monómero monocolefínicamente insaturado adicional copolimerizable con ellos combinados particularmente los ésteres vinílico o acrílico, siempre y cuando el etileno polimerizado constituye el componente principal del copolímero. Los copolímeros deben contener de 2,5 a 40 por ciento en peso, y preferiblemente de 3 a 10 por ciento en peso, de ácido acrílico combinado. El éster orgánico insaturado puede constituir de 0 a 30 por ciento en peso del copolímero, siendo preferiblemente un éster acrílico o vinílico tal como los ésteres alcohólicos bajos del ácido acrílico o metacrílico. Ejemplos de tales monómeros vinílicos que pueden emplearse en dichos copolímeros son: formiato de vinilo, acetato de vinilo, cloroacetato de vinilo, glicolato de vinilo, cianoacetato de

289129



vinilo, propionato de vinilo, butirato de vinilo, isobutirato de vinilo, 3-metoxi-propionato de vinilo, benzoato de vinilo, ciclohexanoacetato de vinilo, 2-hexanoato de vinilo, nonanoato de vinilo, 10,11-epoxiundecanoato de vinilo, estearato de vinilo, y dímero de ceteno. Los ejemplos de ésteres acrílicos que pueden emplearse en dichos copolímeros incluyen: acrilato de metilo, acrilato de etilo, acrilato de 2-cloroetilo, acrilato de 2-cianoetilo, acrilato de 2,3-epoxibutilo, acrilato de n-butilo, acrilato de t-butilo, acrilato de 2-etoxietilo, acrilato de 2-dimetilaminoetilo, acrilato de hexilo, acrilato de 2-fenoxietilo, acrilato de 5-etil-2-piridiletilo, y acrilato de dodecilo. Los ejemplos de ésteres metacrílicos que pueden emplearse en tales copolímeros son: metacrilato de metilo, metacrilato de 2,3-epoxipropilo, metacrilato de n-butilo, metacrilato de t-butilo, metacrilato de 2-(O-nitrofenoxi)etilo, metacrilato de 2-etilhexilo, y ester metacrilato con polietilenoglicol.

Así pues, aunque se prefieren los ésteres metacrílico, acrílico y vinílico, no debe de interpretarse que estos ésteres son los únicos ésteres que son copolimerizables con ellos y que poseen utilidad como mejoradores de la adhesión. Otros ejemplos de ésteres copolimerizables con mezclas de etileno y ácido acrílico incluyen ésteres isopropenílicos, tal como acetato de isopropenilo, ésteres alílicos, tales como carbamato de alilo, acetato de alilo, 2-etilhexanoato de alilo, y acetato de cinamilo, ésteres butenoicos tales como los ésteres metílico y etílico del ácido 2-hidroxi-3-butenico y los ésteres etílico y alílico del ácido 2-hidroxi-3-metil-3-butenico, derivados del ácido maleico, tales como los maleatos de dimetilo, dietilo, dipropilo y dibutilo



y el maleato de bis(2-etilhexilo); ésteres del ácido maleico, ésteres del ácido fumárico, ésteres del ácido itacónico y del ácido aconítico, el éster acetato del 1-propen-1-ol, el 1-diol diacetato del 2-buteno-1, y ésteres del ácido 5 crotónico tales como crotonato de 2-cloroetilo, el monoéster etilenoglicólico del ácido crotónico. Los crotonatos de alcoholo bajos, crotonato de 2,3-epoxipropilo, crotonato de 2-fenoxietilo, crotonato de 4-hidroxietilo e isocrotonato de 3-cianoetilo.

10 Cuando tales ésteres forman parte de los copolímeros de este invento, están preferiblemente en las proporciones de 1 a 25 por ciento en peso. Se prefiere también emplear ésteres baratos y fácilmente disponibles tales como acetato 15 de vinilo, acrilato de metilo, acrilato de etilo y metacrilato de metilo, aunque no es crítico el empleo de cualquier éster en particular. Realmente, se aseguran resultados excelentes con un copolímero que contiene únicamente etileno y ácido acrílico combinados, e incluso se aseguran resultados superiores por la presencia del éster orgánico en el copolímero. 20

Los copolímeros preferidos en este invento contienen de 65 a 96,5 por ciento en peso de etileno combinado 2,5 a 10 por ciento en peso de ácido acrílico combinado y de 1 a 25 por ciento en peso de ésteres de vinilo, acrílicos o metacrílicos, preferiblemente acetato de vinilo. 25

Son especialmente preferidos los copolímeros de etileno-acetato de vinilo-ácido acrílico, debido a que reúnen una adhesividad excelente con temperaturas de punto de turbidez bajas. La temperatura del punto de turbidez de estos terpolímeros disminuye al aumentar el contenido en acetato 30



de vinilo; se obtiene una combinación única de propiedades con adhesividad aumentada debido a los grupos carboxilados polares del ácido acrílico combinado. Una temperatura de punto de turbidez baja, lo que indica una solubilidad aumentada del aditivo en la cera, permite la aplicación de una formulación aditiva de cera a los sustratos a temperaturas mucho menores (de hasta 27°C menor en el caso de estos copolímeros en comparación con las formulaciones de polietileno-cera).

El peso molecular, los puntos de fusión y reblandecimiento y las propiedades físicas relacionadas, de los copolímeros de etileno ácido acrílico de este invento, no son particularmente críticas. Por ejemplo, pueden oscilar estos copolímeros entre ceras y grasas de peso molecular bajo con índices de fusión (determinados en un ICI Grader a 190°C y 3,09 Kgr/cm², de acuerdo con el Método ASTM D-1238-57T) tan altos como 10.000 o pueden ser compuestos con peso molecular muy altos con índices de fusión tan bajos como 0,1 ó 0,0. Preferido es un copolímero de etileno-acrilato de etilo con un índice de fusión de 0 a 500.

La adición de copolímero etileno-ácido acrílico, copolímeros etileno-acrilato de etilo-ácido acrílico, o copolímeros de etileno-ácido acrílico-acetato de vinilo a cera mejora grandemente aproximadamente doble, triple o incluso más, la capacidad adhesiva de la cera, o de cera a la cual se ha agregado polietileno o copolímero etileno-acetato de vinilo.

Tal como aquí se emplea, por el término "cera" se entiende cualquier clase de sustancia sólida que, en general, esté caracterizada por un tacto ceroso, un punto de



fusión por encima de 37°C y por debajo de aproximadamente 100°C, por ser insoluble en agua, ser parcialmente soluble al menos en disolventes tales como alcohol, y éter y tener solubilidad completa normalmente en aceites, grasas y especialmente, en disolventes hidrocarbonados comunes tales como benceno, tolueno y xileno. Las ceras minerales, por ejemplo de petróleo, parafina y ceras microcristalinas, están constituidas principalmente por hidrocarburos elevados. Las ceras naturales son, principalmente, ésteres de monoles altos con ácidos grasos elevados y tienen de fórmula general RCO_2R' , en la cual R y R' son normalmente grupos alcoholes normales de más de diez átomos de carbono. Ejemplos representativos de cera son: espermaceti, cera de abejas y Cera de China, todas las cuales se obtienen de productos animales, ozokerita, cera de montana, ceresina, y parafina, obtenidas de productos minerales y cera de Carnauba, cera del Japón, cera miricica, cera de candelilla y cera de jojoba (aceite de jojoba hidrogenado), obtenidas de productos vegetales. Además, existe un cierto número de ceras artificiales obtenidas de la destilación de petróleos parafínicos y ozokerita y de la destilación destructiva del lignito y pizarras parafínicas, así como de ceras puramente sintéticas tales como ceras microcristalinas Fischer-Tropsch y similares. Todas estas ceras son útiles en este invento. Para la mayoría de las aplicaciones, la cera preferida es una cera parafínica, compuesta principalmente de una mezcla de hidrocarburos que contienen alcanos normales de 26 a 30 átomos de carbono y que funden en el intervalo de temperaturas de 52-57°C.

El copolímero empleado como un aditivo puede compren-



der del 0,5 al 60 por ciento en peso de la formulación de cera. Se prefiere de 1 a 5 por ciento en peso de aditivo para empleos adhesivos generales, y 15 a 40 por ciento en peso para aplicaciones adhesivas por fusión en caliente. Se emplea del 5 al 20 por ciento en peso de aditivo, para hacer la cera más consistente y resistente a adquirir caracter áspero. Para empleos como un revestimiento para cartones para leche, una aplicación particularmente importante, se prefiere del 20 al 60 por ciento en peso de copolímero aditivo.

La formulación cera-copolímero puede contener estabilizadores, antioxidantes, colorantes, coadyuvantes de elaboración y pigmentos. Un gran número de cargas normales, tales como negros de humo, polietileno, arcillas silicatos magnésicos y sílice, son también fácilmente aceptados por la formulación, pudiéndose agregarlos cuando el punto de enturbiamiento no es crítico.

La aplicación del revestimiento cera-copolímero a los sustratos puede afectarse de cualquier forma conveniente. Las técnicas de revestimiento con cuchillos, revestimiento con rodillo de compresión y revestimiento de cortinas se ha encontrado que son métodos satisfactorios de aplicación.

Las formulaciones cera-copolímero de este invento se adhieren bien a sustratos a los cuales la cera sola se adhiere. Además, estas formulaciones se adhieren tenazmente a muchos sustratos, por ejemplo, a otras superficies cereas, superficies de polietileno y superficies de cera polietileno, a las cuales la cera sola se adhiere poco, o nada.

Las descripciones y ejemplos siguientes servirán para ilustrar el invento. Amenos que se indique de otra forma

289129



todas las partes y porcentajes son en peso, indicando los copolímeros como tantos por ciento en peso de monómero polimerizado en ellos.

EJEMPLO I

5 Se calentó una muestra de 95 a 98 gr. de cera parafínica, una mezcla de hidrocarburos solubles en benceno sólidos de peso específicos, 0,890 y punto de fusión 54°C a 115°C en un vaso de precipitados de 600 ml. Se agitó después la cera empleando un agitador mecánico y se mezcló el aditivo copolímero indicado en el fundido. Se continuó la agitación hasta que se disolvió el aditivo; en algunos casos se necesitó un aumento en la temperatura para alcanzar la disolución completa del aditivo. Se aplicó después la solución fundida o una parte de la misma al sustrato deseado, extendiéndose con una barra Meyer Número 12 calentada (100°C.).

15 El ensayo de adhesión se realizó colocando juntas las caras revestidas del sustrato y la muestra de comparación y sellandolas con calor, empleando una barra de 2,54 x 30,48 cm calentada a 82°C. Se empleó un ciclo de dos segundos a una presión de 0,70 kgr./cm². Se deslaminaron después las muestras frías sobre un Scott Tensile Tester, que posee un campo de 0 a 1.000 gramos y una extensión de 15,24 cm. por minuto.

25 Se han realizado con fines comparativos, experimentos de control sobre composiciones de cera sin contener aditivos conteniendo polietileno y conteniendo copolímeros etilenoacetato de vinilo.

30 Para determinar el punto de turbidez, se calentó la solución de cera parafínica y el aditivo que se considera, hasta que se volvió claro. Se enfrió después la solución en



un tubo de ensayo de 20 ml. conteniendo un termómetro in-
 troducido por debajo de la superficie del líquido. Se con-
 sideró como punto de turbidez la primera aparición de una
 suspensión. Se empleó una luz de microscopio iluminado co-
 5 mo una ayuda para poner de manifiesto la suspensión ini-
 cial.

La Tabla I reune los datos recogidos de los experi-
 mentos de adhesión en los cuales se empleó el procedimien-
 to de deslaminación anteriormente descrito. Se demostró
 10 la superioridad de los copolímeros etileno ácido acrílico
 como mejorador de la adhesión de cera parafínica a(A) pa-
 pel glassine, de 9,07 Kgr. por resma, revestido con cera
 parafínica (B) papel de envolver pardo, de 22,67 Kgr. por
 resma, revestido con una mezcla de polietileno-cera conte-
 15 niendo 20 por ciento en peso de cera parafínica, (C) y
 cartón para leche, de 36,28 Kgr. por resma, revestido con
 polietileno.

Tabla I

20	Composición de aditivo polímero, al 2% (dos partes de polímero por 100 partes combinadas en peso de cera más políme- ro en cera parafínica).	Adhesión (gramos/ 2,54 cm.a papel glassine)
	<u>Controles</u>	
	Sin aditivo	2,3
	Poliétileno (índice de fusión: 255; densidad:0,910).	8
25	Copolímero etileno-acetato de vinilo (26,2% en peso de ace- tato de vinilo índice de fu- sión:6)	9
	<u>Copolímeros de este invento</u>	
30	Etileno-ácido acrílico (9% en peso de ácido acrílico; índi- ce de fusión:0;densidad:0,948)	14 289129



TABLA I (continuación)

	Composición de aditivo polimero, al 2% (dos partes de polimero por 100 partes combinadas en peso de cera más polime- ro en cera parafinica).	Adhesión (gramos/ 2,54 cm. a papel glassine
5	Etileno-acrilato de etilo-ácido acrílico (1,2 por ciento en peso de acrilato de etilo, 3,6 por ciento en peso de ácido acrílico; índice de fusión: 0,7).	16
	Etileno-ácido acrílico-acetato de vinilo (3,5 por ciento en peso de acetato de vinilo 5,2 por ciento en peso de ácido acrílico índice de fusión: 0,2)	27
10	Etileno-ácido acrílico-acrilato de t-butilo (3 por ciento en peso de ácido acrílico, 6 por ciento en peso de acrilato de t-butilo; índice de fusión: 3,4).	17
15		Adhesión(gramos/2,54 cm) a papel de envol ver revestido con po lietileno cera para finica (80:20 6
	<u>Copolímeros de este invento</u>	
20	Etileno-acrilato de etilo-ácido acrílico(1,2 por ciento en peso de acrilato de etilo, 3,6 por ciento en peso de ácido acrílico; índice de fusión: 0,7).	19
		Adhesión(gramos/2,54 cm.) a cartón para leche recubierto con polietileno).
25	Etileno-acrilato de etilo-ácido acrílico (1,2 por ciento en peso de acrilato de etilo, 3,6, por ciento en peso de ácido acrílico; índice de fusión: 0,7).	23

EJEMPLO II

La tabla II reúne los datos de adhesividad para los
copolímeros de (1) etileno y ácido acrílico, (2) etileno,
30 ácido acrílico y acrilato de etilo y (3) etileno, ácido acrí-



lico y acetato de vinilo, empleando la misma cera de parafina, el mismo procedimiento de preparación y de ensayo que se detalla en el ejemplo I.

TABLA II.

	Composición de aditivo polimero al 2% en cera parafinica	Peso por ciento de éster orgánico en copolímero	Peso por ciento de ácido acrílico	Adhesión gramos 2,54 cm
5	Etileno-ácido acrílico	-	3	9
	Etileno-ácido acrílico	-	9	14
10	Etileno-ácido acrílico	-	18	19
	Etileno-ácido acrílico	-	35	31
	Etileno-acrilato de etilo-ácido acrílico	11	2,4	12
15	Etileno-acrilato de etilo-ácido acrílico	25	2,5	31
	Etileno-acrilato de etilo-ácido acrílico	2,8	3,6	16
	Etileno-acrilato de etilo-ácido acrílico	4,2	4,9	23
20	Etileno-acrilato de etilo-ácido acrílico	0,4	4,9	13
	Etileno-acetato de vinilo ácido acrílico	10,0	15	61

La Tabla II demuestra que los copolímeros anteriormente mencionados son útiles dentro de amplios límites de concentraciones de éster.

EJEMPLO III

La Tabla III siguiente reúne los datos de adhesividad recogidos de los ensayos realizados de la misma forma que se describe en el Ejemplo I.



TABLA III

	Composición de adi- tivo polímero en cera parafínica.	Por ciento en peso de aditivo	Por ciento en peso de acrilato de etilo	Por ciento en peso de ácido acrí- lico	Adhesión (gramos 2,54 cm.)
5	Etileno-ácido acrí- lico	0,5	0	18	8
	Etileno-ácido acrí- lico	2	0	18	19
	Etileno-ácido acrí- lico	30	0	18	61
	Etileno-ácido acrí- lico	60	0	18	70
10	Etileno-acrilato de etilo-ácido acrílico	0,5	1,2	3,6	8
	Etileno-acrilato de etilo-ácido acrílico	2	1,2	3,6	16
	Etileno-acrilato de etilo-ácido acrílico	30	1,2	3,6	74
15	Etileno-acrilato de etilo-ácido acrílico	60	1,2	3,6	80

Es de señalar que solo se requiere 0,5 por ciento en peso de copolímero etileno-ácido acrílico para aumentar la adhesión de la cera parafínica a 8 gramos/2,54 cm. Por el contrario, se requieren 2,0 por ciento en peso de copolímero etileno-acetato de vinilo para obtener un incremento en la adhesividad hasta aproximadamente el mismo nivel.

EJEMPLO IV

Con el fin de demostrar el gran mejoramiento en la adhesividad que resulta de la adición de pequeñas cantidades de los copolímeros de este invento a cualquier tipo de cera, se han realizado los experimentos siguientes, reuniéndose los resultados en la Tabla IV. El procedimiento empleado para la preparación de la muestra para ensayo y el ensayo de adhesividad es el descrito en el Ejemplo I, excepto



que la parafina se sustituyó por las ceras siguientes;
 (1) cera microcristalina, una fracción petrolatum refina
 da con un punto de fusión del orden de 63-99°C; (2) es-
 permaceti, una cera animal de peso específico 0,950; (3)
 5 cera de Carnauba (refinada), una cera vegetal con un pe-
 so específico de 0,992; un índice de ácido de 3,6, un ín-
 dice de saponificación de 81 y un punto de solidificación
 de 87°C, (4) un polieter sintético (cera de polioxietileno
 con un peso molecular medio de aproximadamente 1.500, un
 10 peso específico de 1,15, un punto de inflamación de 221°C.
 y un punto de fusión del orden de 30-40°C).

La composición del copolímero etileno-acetato de
 vinilo-ácido acrílico, que se agregó en todos los casos al
 2 por ciento (dos partes de polímero por 100 partes en pe-
 15 so combinadas de cera más polímero), fué de 91,3 por cien-
 to en peso de etileno combinado, 3,5 por ciento en peso de
 acetato de vinilo combinado y 5,2 por ciento en peso de
 ácido-acrílico combinado. El copolímero tenía un índice de
 fusión de 0,2.

20 TABLA IV
Adhesividad de formulaciones de cera-copolímero
Adhesión (gramos/2,54.)

Cera	Control (sin aditivos)	Cera más copolímero etileno-acetato de vi- nilo-ácido acrílico al 2%
Cera microcristalina	1,5	22
25 Espemaceti	2,7	28
Cera de Carnauba	3,1	31,7
Cera de polioxietileno	3,9	37

Esta solicitud que corresponde a la presentada en
 30 E.U.A. el 19 de junio de 1962, bajo el núm. 203.470, se



acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

NOTA

Los puntos de invención propia y nueva que se presenten para que sean objeto de esta solicitud de Patente de Invención en España, por DIEZ años, son los siguientes:

1.- Mejoras introducidas en la preparación de composiciones de cera que comprenden una cera mezclada con 0,5 a 60 % en peso, basado en el peso de dicha cera, de un copolímero de etileno y ácido acrílico, comprendiendo dicho copolímero, basado en el peso de dicho copolímero, de 50 a 97,5 % en peso de etileno polimerizado, de 2,5 a 40 % en peso de ácido acrílico polimerizado y de 0 a 30 % en peso de un ester orgánico monocolefinicamente no saturado polimerizado en él, que sea copolimerizable con ellos.

2.- Mejoras de acuerdo con el punto 1 en las que el copolímero de etileno y ácido acrílico comprende de 90 a 97,5 % en peso de etileno polimerizado y de 2,5 a 10 % en peso de ácido acrílico polimerizado, basado en el peso de dicho copolímero.

3.- Mejoras de acuerdo con el punto 1 en las que el copolímero de etileno y ácido acrílico comprende, basados en el peso de dicho copolímero, por lo menos 60 % en peso de etileno polimerizado, de 2,5 a 40 % en peso de ácido acrílico polimerizado y un total de 1 a 25 % en peso de ester (es) orgánico(s) monocolefinicamente no saturado(s) polimerizado(s) en él, que sea copolimerizable con lo anterior.



4.- Mejoras de acuerdo con el punto 1 ó 3 en las que el copolímero comprende de 65 a 96,5 % en peso de etileno polimerizado y de 2,5 a 10 % en peso de ácido acrílico polimerizado, basados en el peso de dicho copolímero.

5 5.- Mejoras de acuerdo con uno de los puntos 1, 3 y 4 en que dicho copolímero contiene, como único ester orgánico no saturado, acetato de vinilo o acrilato de etilo.

6.- Mejoras de acuerdo con uno cualquiera de los puntos precedentes en que el índice de fusión de dicho copolímero es de 0 a 10.000.

7.- Mejoras de acuerdo con uno cualquiera de los puntos precedentes en que el índice de fusión de dicho copolímero es de 0 a 500.

8.- Mejoras de acuerdo con uno cualquiera de los puntos precedentes caracterizadas por que la composición comprende de 1 a 5 % en peso de dicho copolímero de etileno y ácido acrílico mezclados con una cera, basado en el peso de dicha cera.

9.- Mejoras introducidas de acuerdo con uno cualquiera de los puntos 1 a 7 caracterizadas por que la composición comprende de 15 a 40 % en peso de dicho copolímero de etileno y ácido acrílico mezclados con una cera, basados en el peso de dicha cera.

10.- Mejoras de acuerdo con uno de los puntos 1 a 7 caracterizadas por que la composición comprende de 5 a 20 % en peso de dicho copolímero de etileno y ácido acrílico mezclados con una cera, basados en el peso de dicha cera.

11.- Mejoras introducidas de acuerdo con uno cualquiera de los puntos 1 a 7 caracterizadas por que la composición comprende 5 a 20 % en peso de dicho copolímero de etileno y



ácido acrílico mezclados con una cera, basados en el peso de dicha cera.

5 12.- Mejoras introducidas de acuerdo con uno cualquiera de los puntos precedentes caracterizadas por que la cera es una cera parafínica u ozoquedita, cera de montana o cera de ceresina.

10 13.- Mejoras introducidas de acuerdo con uno de los puntos 1 a 11 en que la cera es espermaceti, cera de abejas, cera china, cera carnauba, cera japonesa, cera marfática, cera de candelilla o cera de jojoba.

14.- Mejoras introducidas en la preparación de composiciones de cera.

Tal y como se ha descrito en la Memoria que antecede, y con los fines que se han especificado.

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

Madrid,

18 SEP 1900
P. A.

Alberto de Elizabete
Por Poder

289129