

25 AGO



383013

P.- 45.536

Memoria descriptiva

Docket Nº
N-4737 Spain
U.S. Appn. Nº

854-259
SECCION TECNICA
ASOCIACION I.P.C.
CLASE <u>C08</u>
SUBCLASE <u>G</u>

383013

para solicitar PATENTE DE INVENCION en ESPAÑA por 20 años

a nombre de CELANESE CORPORATION

entidad / de nacionalidad norteamericana

con domicilio en 522 Fifth Avenue, Nueva York, N.Y. Estados Unidos de América

por: "PROCEDIMIENTO PARA PRODUCIR UNA RESINA MEJORADA"
(Clase Internacional C08g)



La presente invención se refiere a una resina moldeadora mejorada y al método para producirla. El invento está dirigido a una resina moldeadora mejorada que consta de una mezcla íntima de un relleno reforzador y un tereftalato de polibutileno o un tereftalato de polipropileno. La resina moldeadora de este invento tiene significantes ventajas en cuanto a tratamiento y propiedades, en comparación con una resina moldeadora de tereftalato de polietileno, rellena en forma equivalente.

Polímeros de tereftalato de polietileno con un relleno de un agente reforzador, se han usado satisfactoriamente como resinas moldeadoras para diferentes usos finales. El empleo de polímero de tereftalato de polietileno relleno, para los fines de moldeo, tiene inconvenientes de tratamiento ya que requiere altas temperaturas de tratamiento, altas temperaturas de molde, largos tiempos de ciclo dentro del molde y por lo general necesita un agente nucleante u otro aditivo para proporcionar el flujo adecuado del polímero en el molde. La preparación de polímeros de tereftalato de polietileno al igual de polímeros de tereftalato de polipropileno, y tereftalato de polibutileno se describen en la patente norteamericana 2.465.319, intitulada Esteres Tereftálicos Lineales Poliméricos. Los polímeros tereftálicos de polietileno se han usado en amplia escala para fabricar productos fibrosos, productos peliculares y productos de moldeo. Esto se ha reconocido claramente, especialmente dentro del área de la producción de fibras y películas, debido a sus sobresalientes propiedades típicas, con exclusión de los demás ésteres tereftálicos lineales

383013



poliméricos, especialmente los polímeros de tereftalato de polipropileno y de tereftalato de polibutileno.

Ahora se ha descubierto que se suministran mejoradas resinas de moldeo mediante la mezcla íntima de rellenos reforzadores con el tereftalato de polipropileno o tereftalato de polibutileno. Las resinas moldeadoras mejoradas de este invento, según se ha encontrado, necesitan temperaturas de tratamiento más bajas, temperaturas de molde más bajas, un tiempo de ciclo más corto y ningún agente nucleante, en comparación con el tereftalato de polietileno relleno, equivalente. Cosa sorprendente, la excelente procesabilidad de las resinas moldeadoras de este invento se logra mediante un equilibrio en las propiedades que lo hace hasta más atractivo que el tereftalato de polietileno. Por ejemplo, la resina de tereftalato de polibutileno, rellena con vidrio, tiene una fuerza casi idéntica en comparación con el tereftalato de polietileno, relleno con vidrio, equivalente, pero tiene una tenacidad substancialmente mayor, una menor absorción de agua, mejores propiedades de escurrimiento o flexurales y un color conveniente. Las resinas moldeadoras de este invento resuelven los problemas de tratamiento asociados con la resina de moldeo de tereftalato de polietileno rellena, equivalente, y además suministra un equilibrio en las propiedades, las cuales son mejoradas significativamente sobre aquéllas del tereftalato de polietileno.

La base de las resinas moldeadoras de este invento es un polímero de tereftalato de polialquileno seleccionado del grupo compuesto por el tereftalato de



5 polipropileno y tereftalato de polibutileno. Estos polí-
meros pueden ser producidos desde el producto de reac-
ción del ácido tereftálico o un éter dialquílico del
ácido tereftálico (especialmente el tereftalato de di-
metilo) y glicoles que poseen tres y cuatro átomos de
carbono. Glicoles apropiados incluyen el glicol de tri-
metileno, el glicol de tetrametileno, el glicol de 1,3-
butileno, el glicol de 1,2-propileno, el glicol de 1,2-
butileno, el glicol de 2,3-butileno y similares.

10 En la producción de los polímeros de esta
invención, es decir del tereftalato de polipropileno
o de polibutileno, el bis (hidroxialquil)-tereftalato
monomérico apropiado se produce como sustancia interme-
dia. El bis (hidroxialquil)-tereftalato monomérico puede
15 ser preparado cuando menos por dos métodos distintos. En
un primer método, el éter dialquílico del ácido tereftá-
lico en donde los radicales alquilo pueden contener 1 a
7 átomos de carbono, generalmente se pueden reaccionar
con aproximadamente 2 proporciones moleculares de los
20 glicoles descritos arriba. Es preferible usar proporcio-
nes mayores de glicol, es decir superior a 2 proporcio-
nes moleculares del glicol por cada proporción molecular
del derivado de tereftalato, ya que mediante el uso de
tales proporciones, se causa que la transesterificación
25 inicial tenga lugar en forma más rápida y completa.

La reacción para la transesterificación se
conduce bajo condiciones de temperaturas elevadas y una
presión atmosférica subatmosférica o sobreatmosférica.
Normalmente, las temperaturas deseadas de la reacción
30 pueden variar desde la temperatura de ebullición, aproxi-

383013²⁵



madamente, de la mezcla de reacción hasta un nivel tan alto como de 250°C, según sea necesario.

Después de preparar la base del polímero, se pueden mezclar íntimamente los rellenos reforzadores, ya sea en seco o en fusión, dentro de extrusores, con rodillos calentados u otros tipos de mezcladores. En caso se pueden mezclar los rellenos reforzadores con los monómeros en la reacción polimerizadora siempre y cuando no se lleve a cabo la reacción de polimerización. Los tipos de relleno que se pueden usar incluyen entre otras: fibras de vidrio (desmenuzadas o tramos continuos), fibras de amianto, fibras celulósicas, papel de tela de algodón, fibras sintéticas, polvos metálicos y similares. La cantidad de relleno reforzador puede variar desde aproximadamente 2 a 80% en peso, aproximadamente, y preferiblemente de 5 a 60% en peso, aproximadamente, con base en el total de la composición de moldeo. Otros aditivos para mejorar el aspecto y las propiedades pueden ser incorporadas en las resinas de moldeo de este invento, tal como colorantes, plastificantes, estabilizantes, endurecedores, y similares.

Los siguientes ejemplos servirán para ilustrar el invento, pero sin limitarlo.

EJEMPLO I

Una cantidad de 6,75 kg. de tereftalato de polibutileno con una viscosidad intrínseca de 0,82 recibió una adición de 3,47 kgs. de fibras de vidrio, y se mezcló en un aparato volcador durante un minuto, y luego se mezcló por extrusión por alimentación forzada a través



5 de un extrusor, con un solo tornillo de 2,54 cm, con un troquel para hilos. Las temperaturas del extrusor y del troquel se fijaron en 260, 265, 265, 260°C (del cilindro al troquel). Se trituraron las cuerdas en un mezclador de tipo molienda, para que pasaran a través de un tamiz grande (de una malla de cuadro o menos). Se mezcló el tereftalato de polipropileno con fibras de vidrio y se extruyó de una manera similar.

10 Para fines comparativos, se mezcló el tereftalato de polietileno con una viscosidad intrínseca de 0,65, con fibras de vidrio en las mismas proporciones y de la misma manera que aquéllas descritas anteriormente para el polímero de tereftalato de polibutileno. A fin de
15 facilitar la cristalización del tereftalato de polietileno en el moldeo, se agregó 0,5% en peso de talco al polímero. El tratamiento de la resina moldeadora de tereftalato de polietileno fue exactamente idéntico a aquél de la resina moldeadora de tereftalato de polibutileno, arriba mencionada, excepto por requisitos algo mayores por lo
20 que se refiere a la temperatura (276 a 282°C) en el paso mezclador por extrusión. Se moldearon las resinas moldeadoras anteriores para obtener muestras de pruebas y se sometieron a unos ensayos para establecer las siguientes propiedades que se describen en las tablas mencionadas en
25 lo que sigue.

383013

25



T A B L A I

PROPIEDADES DE TEREFTALATO DE POLIBUTILENO RELLENADO CON VIDRIO, Vs TEREFTALATO DE POLIETILENO RELLENADO CON VIDRIO.

Material	Tereftalato de polietileno	Tereftalato de polibutieno
Contenido en vidrio	35,4	34,1
Temperatura de tratamiento (°C)	260	240
Tiempo de ciclo (seg)	52	32
Temperatura de moldeo (°C)	140	90
Viscosidad Intrínseca Base (dl/g)	0,65	0,82
Viscosidad Intrínseca Barra Moldeada (dl/g)	0,56	0,69
Resistencia al impacto según el método Izod con entalladura (m-kg/cm)	2,4	4,5
Resistencia al impacto tensil (M-kg/cm)	84	108
Temperatura de deflexión bajo calor a 18,5 kg/cm ² (°C)	222°	212°
Resistencia a la tracción (kg/cm ²)	1,316	1.274
Resistencia a la flexión (kg/cm ²)	1.750	1.757
Módulo de flexión (kg/cm ²)	10,5 x 10 ⁴	9,8 x 10 ⁴
Encogimiento (micras por cm)	1,5	1,0
Absorción de agua, 24 h . (%)	0,11	0,06
Absorción de agua, saturación (%)	0,27	0,20



TABLA I (continuación)

Color	gris oscuro	gris claro
Dureza Rockwell	M90	M84

TABLA II

PROPIEDADES DE TEREFALATO DE POLIPROPILENO RELLENADO
CON VIDRIO vs TEREFALATO DE POLIETILENO RELLENADO CON
VIDRIO.

MATERIAL	TEREFALATO DE POLIETI- LENO	TEREFALATO DE POLIPRO- PILENO
Contenido de Vidrio	35,4	30
Temperatura de tratamiento (°C)	260	240
Tiempo de ciclo (seg)	52	45
Temperatura de moldeo (°C)	140	65
Viscosidad Intrínseca Base (dl/g)	0,65	0,7
Viscosidad Intrínseca Barra Moldeada (dl/g)	0,56	0,65
Resistencia al impacto según el método Izod con entalladura (m-kg/cm)	2,5	6,0
Temperatura de deflección bajo calor a 18,5 kg/cm ²	222°C	219
Resistencia al impacto Tensil (kg/cm ²)	1.316	1.435
Resistencia a la flexión (kg/cm ²)	1.750	2.009
Módulo de flexión (kg/cm ²)	10,5 x 10 ⁴	9,87 x 10 ⁴

Las resinas de tereftalato de polipropileno
y de tereftalato de polibutileno, rellenas con vidrio,



tienen ventajas significantes sobre el tereftalato de polietileno relleno con vidrio, equivalente. En comparación con el tereftalato de polietileno, el tereftalato de polipropileno y de polibutileno pueden ser tratados a temperaturas más bajas, con un tiempo de ciclo significativamente menor y con una temperatura más baja del molde. Tiene una resistencia significativamente mayor Izod con entalladura, y también al impacto tensil, un encogimiento menor y una absorción más baja de agua. Todas esas propiedades mejoradas de las resinas de tereftalato de polipropileno y de polibutileno, rellenas con vidrio, son altamente atractivas y de gran importancia, en comparación con la resina de tereftalato de polietileno rellena con vidrio, de tipo equivalente.

EJEMPLOS 2-5

De una manera similar al Ejemplo 1, se mezcló el tereftalato de polibutileno con fibras de vidrio en distintas cantidades. Las propiedades de las barras moldeadas sostuvieron de la manera descrita en la siguiente Tabla III.

TABLA III

<u>Propiedades</u>			
Porcentaje de vidrio, %	0	20	30
Gravedad específica	1,32	1,45	1,52
Absorción de agua, %	0,09	0,07	0,07
Viscosidad Intrínseca	0,81	0,81	0,82



TABLA III (continuación)

Resistencia a la tracción, kg/cm ² , 23°C	581	1.001	1.029
Alargamiento tensil, %, 23°C	13	1,0	1,0
Resistencia a la flexión, kg/cm ²	917	1.372	1,372
Módulo de flexión, kg/cm ²	27,16x10 ³	64,54x10 ³	7,91x10 ³
Resistencia a la tracción, 73°C, kg/cm ²		546	567
Alargamiento tensil, 73°C, %		13	12
Resistencia al impacto kg/cm ²			
a - con entalladura	0,035	0,063	1,1
b - sin entalladura	0,483	0,315	0,294
Dureza Rockwell, H	79	88	83
Temperatura de dispersión bajo calor °C			
a - 4,62 kg/cm ²	177		
b - 18,48 kg/cm ²	73	209	213
Inflamabilidad, cms/min.			
a - ASTM	1,57	2,36	3,18
b - UL	1,88	2,84	2,79

Se debe comprender que la descripción anterior solamente es ilustrativa, y que se han presentado algunas formas de realización del invento, en las cuales los expertos en la materia pueden hacer muchos cambios que quedan dentro del ámbito de las reivindicaciones anexas, si no salen de su espíritu.

Esta solicitud, que corresponde a la presentada en Estados Unidos de América el 29 de agosto de 1.969,

383013

-2



bajo el N^o 854.259, se acoge a los beneficios del artículo 51 del vigente Estatuto sobre Propiedad Industrial.

5

10

REIVINDICACIONES

15

Los puntos de invención propia y nueva que se presentan para que sean objeto de esta solicitud de Patente de Invención en España, por VEINTE años, son los que se recogen en las reivindicaciones siguientes:

20

1^a.- Procedimiento para producir una resina mejorada, que consiste en mezclar íntimamente 2 a 80% en peso, aproximadamente, con base en la composición total, de un relleno reforzador con 20 a 98% en peso, aproximadamente, con base en la composición en total, de un polímero de tereftalato de polialquileno que tiene una viscosidad intrínseca en el margen de 0,2 a 1,2 aproximadamente, y en el cual el tereftalato de polialquileno se selecciona del grupo que se compone de tereftalato de polipropileno y tereftalato de polibutileno.

25

30

2^a.- Procedimiento de conformidad con lo definido en la reivindicación 1^a, en el cual la viscosidad intrínseca varía de 0,5 a 1,0, aproximadamen-



te.

3ª.- Procedimiento de conformidad con lo
definido en la reivindicación 2ª, en el cual el re-
lleno reforzador está presente en cantidades que va-
5 rían de 5 a 60% en peso, aproximadamente, del total
de resina.

4ª.- Procedimiento según la reivindicación
3ª, en el cual el tereftalato de polialquileno en el
tereftalato de polibutileno.

10 5ª.- Procedimiento de conformidad con lo
definido en la reivindicación 4ª, en el cual el re-
lleno reforzador es fibra de vidrio.

6ª.- PROCEDIMIENTO PARA PRODUCIR UNA RESINA
MEJORADA.

15 Tal y como se ha descrito en la memoria que
antecede y para los fines que se han especificado.

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

Madrid,

2 ENE. 1973

20

P. A.

Alberjo de Elizaburu
Per Forner

28.12.72
ACV.