



PATENTE DE INVENCION
=====

Ref: Le A 14 646-Spa.

419295

Memoria Descriptiva

sobre:

Procedimiento para la obtención de copoliámidas
aromáticas de alto peso molecular.

===== E. O. C. O. B. F.

Solicitante:

BAYER AKTIENGESELLSCHAFT, entidad alemana, residente
en Leverkusen-Bayerwerk, República Federal Alemana.

=====

- El objeto de la presente invención son copoliámi
das aromáticas, que contienen anillos de quinazolindio
na, así como los hilos y fibras fabricados de ellas,
poseyendo unas resistencias a la rotura muy altas y un
5. elevado módulo de elasticidad.



5. Ya se conocen hilos y fibras con elevado módulo de elasticidad. Se trata aquí, en primer lugar, de policondensados de hidrocloruro de cloruro p-aminobenzoílico (publicación de solicitud de patente alemana 1 924 736) y de p-aminobenzohidrazida y dicloruro de ácido tereftálico (publicación de solicitud de patente alemana 1 938 282). Las fibras de estos policondensados muestran un módulo de elasticidad muy alto que en algunos casos hasta supera el módulo de elasticidad de las fibras de vidrio. En comparación con las fibras de vidrio tales fibras tienen la ventaja de un menor peso específico; el módulo de elasticidad específico de estas fibras es, por lo tanto, considerablemente superior al de las fibras de vidrio. Lo desventajoso en estos policondensados es sin embargo la difícil solubilidad de los productos. Para la obtención de soluciones en disolventes orgánicos polares se le han de agregar a estos disolventes cantidades considerables de sales inorgánicas (LiCl) que de los hilos terminados se han de retirar mediante laboriosos tratamientos ulteriores, ya que las sales reducen la estabilidad térmica de los policondensados a temperaturas más elevadas.

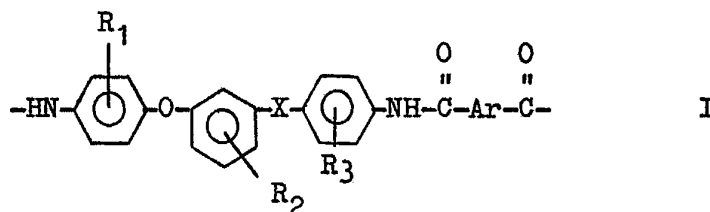
10.

15.

20.

También se conocen hilos y fibras con elevado módulo de elasticidad que se componen de poliamidas aromáticas, solubles en disolventes orgánicos polares, con unidades estructurales repetidas de fórmula general I

25.



30.

en la que X significa la agrupación $\overset{\text{O}}{\parallel} \text{C---NH-}$ ó $\text{---NH---C} \overset{\text{O}}{\parallel}$, R_1 y R_2 ,

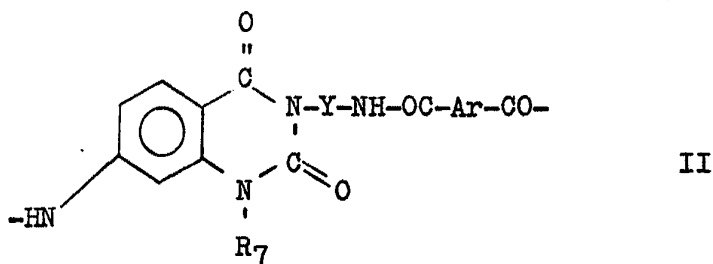


5. independientes entre si, significan C_{1-4} -alcoxi ó grupos alquilo o átomos de halógeno, R_3 significa hidrógeno, halógeno, un grupo C_{1-4} -alquilo o alcoxi, un grupo nitrilo ó un grupo $COOR_4$ ó $-CONR_5R_6$ y Ar significa un resto aromático bivalente, donde R_4 significa hidrógeno o un grupo C_{1-4} -alquilo y R_5 y R_6 , independientes entre si, significan hidrógeno, grupos C_{1-4} -alquilo o grupos arilo.

10. En los hilos de policondensados de fórmula I se midieron resistencias de 5-10 g/dtex y módulos de elasticidad entre 4000 - 10000 kp/mm².

También se conocen poliamidas con unidades de quinazolidiona (vease la publicación de la solicitud de patente alemana 1 720 686). Estas poseen la unidad estructural repetida de fórmula general II

15.

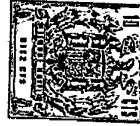


20.

25. donde R_7 significa hidrógeno o un resto de C_{1-4} -alquilo, Y significa un resto aromático bivalente, compuesto de uno o varios anillos aromáticos condensados o anillos aromáticos que están enlazados entre si a través de un enlace sencillo o a través de una agrupación $-CO-$, $-CR_7R_7-$, $-O-$, $-S-$ ó $-SO_2-$, así como sus productos de sustitución por alquilo o halógeno y Ar significa un resto aromático bivalente.

30. Los hilos y fibras obtenidos de estas poliamidas muestran resistencias entre 3,5 y 6 g/dtex y módulos de elasticidad

419200

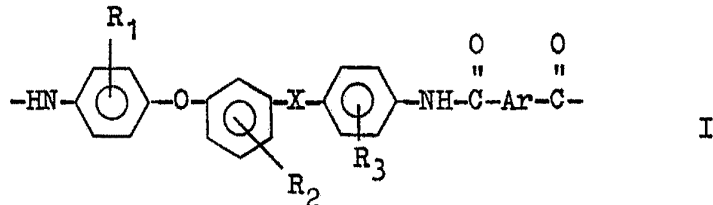


dad entre 1000 y 1300 kp/mm². La capacidad de recepción de agua de tales fibras es extraordinariamente elevada. Ascien- de a un 9 - 13 % (medido a 20°C y una humedad relativa del aire de un 65 %).

5. Si se preparan ahora copoliámidas de diaminas que se basan en los homocondensados I y II hubiesen sido de esperar por el mayor ahuecamiento de la estructura, una capacidad re- ceptora de agua relativamente grande y unos valores de resis- tencia y módulos de elasticidad relativamente bajos. Sin em- bargo, sorprendentemente se ha descubierto que sucede justa- mente lo contrario. Las copoliámidas así obtenidas muestran una capacidad receptora de humedad extraordinariamente baja de un 1 - 3,5 %, pero en cambio una resistencia a la rotura destacadamente alta entre 7 y 22 g/dtex y módulos de elasti- cidad entre 6000 y 14000 kp/mm².
- 10.
- 15.

Objeto de la invención son por lo tanto copoliámidas aromáticas de alto peso molecular que se componen de 50 a 95 moles-%, preferentemente 70 - 90 moles-% de unidades es- tructurales de fórmula general I

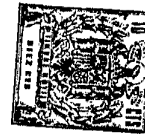
20.



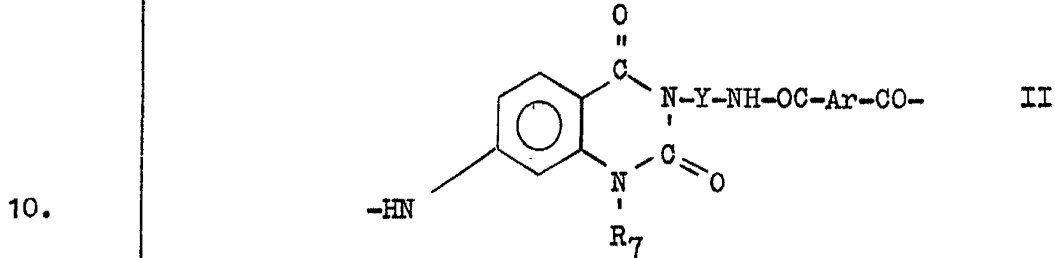
25.

en la que X significa la agrupación $\begin{matrix} \text{O} \\ \parallel \\ \text{-C-NH-} \end{matrix}$ ó $\begin{matrix} \text{O} \\ \parallel \\ \text{-NH-C-} \end{matrix}$, R₁ y R₂, independientes entre si significan hidrógeno, grupos C₁₋₄-alcoxi ó alquilo o átomos de halógeno, R₃ significa hi- drógeno, halógeno, un grupo C₁₋₄-alquilo o alcoxi, un grupo nitrilo ó un grupo COOR₄ ó CONR₅R₆ y Ar significa un resto aromático bivalente, donde R₄ significa hidrógeno o un gru-

30.



5. po C₁₋₄ alquilo y R₅ y R₆, independientes entre si significan hidrógeno, grupos C₁₋₄-alquilo o arilo, y hasta 5 - 20 moles-%, preferentemente 10 - 30 moles-% de unidades estructurales conteniendo sistemas de anillos de 2,4-(1H,3H)-quinazolinona de fórmula general



15. donde R₇ significa hidrógeno o un resto de C₁₋₄-alquilo, Y significa un resto aromático bivalente, compuesto de uno o varios anillos aromáticos condensados o anillos aromáticos que están enlazados entre si a través de un enlace sencillo o a través de una agrupación -CO-, -CR₇R₇-, -O-, -S- ó -SO₂-, así como sus productos de sustitución por alquilo o halógeno y Ar significa un resto aromático bivalente, mostrando las copoliamidas una viscosidad relativa en solución (medido en una solución al 0,5 % del copolímero en ácido sulfúrico concentrado a 25°C) de 1,5 a 4.

20. En el caso de que R₁, R₂ ó R₃ signifiquen halógeno se da preferencia al cloro, R₅ y R₆ significan, en el caso de que estos grupos representen grupos arilo, preferentemente fenilo o grupos fenilo sustituidos por cloro o grupos C₁₋₄-alquilo.

25. Las copoliamidas de la presente invención estan por lo tanto constituidas de 3 componentes:

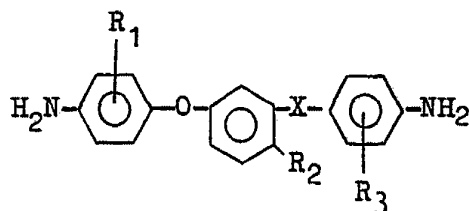
30. El primer componente se compone de una o varias diamini-

419290



nas totalmente aromáticas que corresponden a la fórmula general

5.

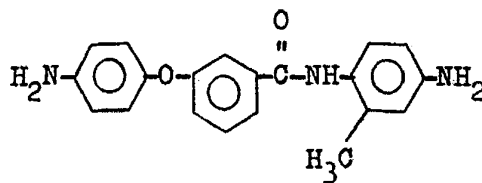


III

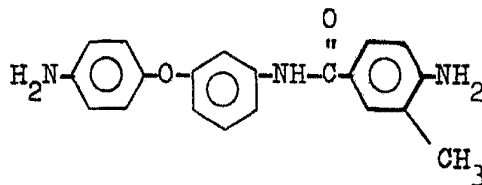
donde R_1 , R_2 , R_3 y X tienen el significado arriba definido.

Como ejemplos sean mencionados los compuestos siguientes:

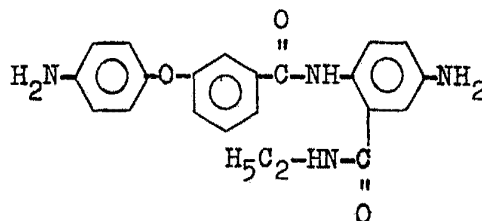
10.



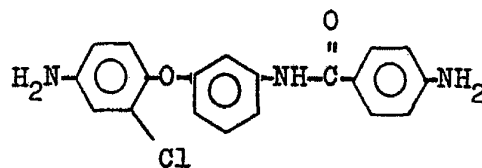
15.



20.



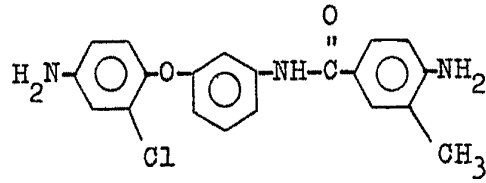
25.



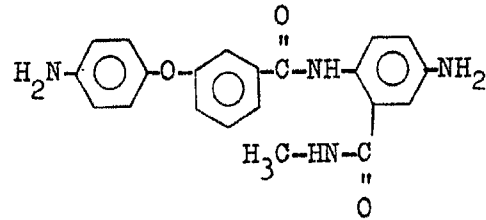
30.



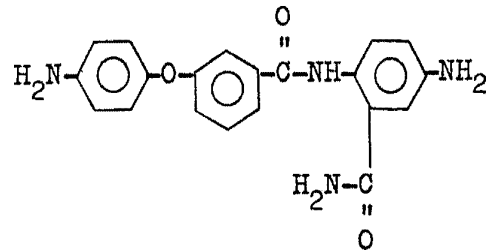
5.



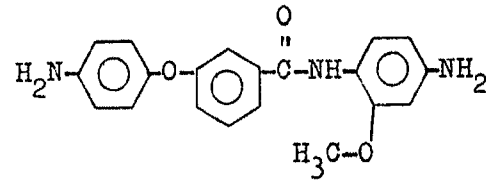
10.



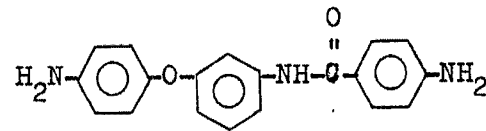
15.



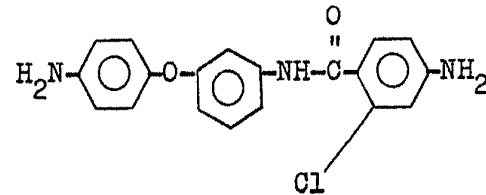
20.



25.

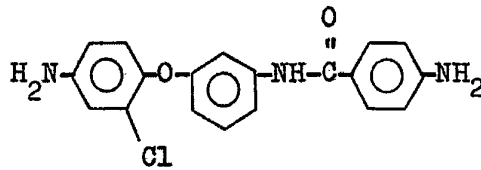


30.

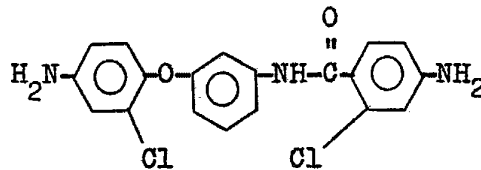


419295

- 8 -



5.



10.

15.

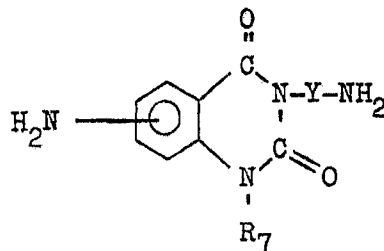
20.

25.

30.

Estas diaminas se pueden obtener según procedimientos conocidos, por ejemplo, por reacción de cloruro de ácido 3-(4'-nitrofenoxi)-benzoico con la correspondiente 4-nitroanilina, en caso dado sustituida, y reducción de los compuestos dinitro obtenidos, o del 3-amino-4'-nitrodifeniléter, en caso dado sustituido, por reacción con cloruro 4-nitrobenzoílico o bien cloruro 4-nitrobenzoílico sustituido y ulterior reducción de los compuestos dinitro. Estos compuestos dinitro se pueden obtener del ácido 4-nitrofenoxibenzoico, en caso dado sustituido, y de la 4-nitroanilina en caso dado sustituida, o bien de los aminonitrodifeniléteres y el ácido 4-nitrobenzoico, en caso dado sustituido, en N-metilpirrolidona en presencia de P_2O_5 .

El segundo componente se compone de una o varias diaminas de fórmula general



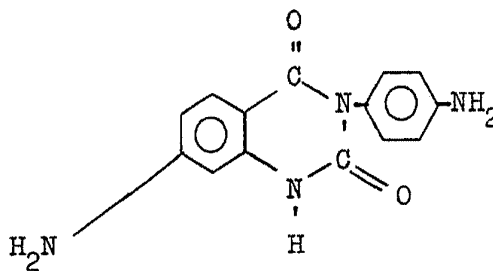
IV



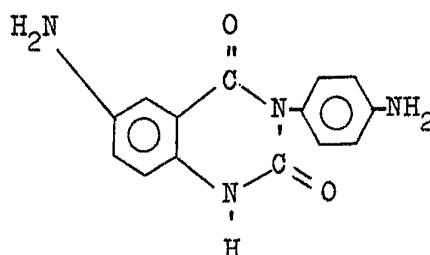
donde R₇ y Y tienen el significado arriba definido.

Como ejemplo se indican las siguientes diaminas:

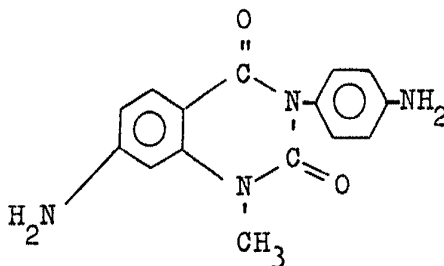
5.



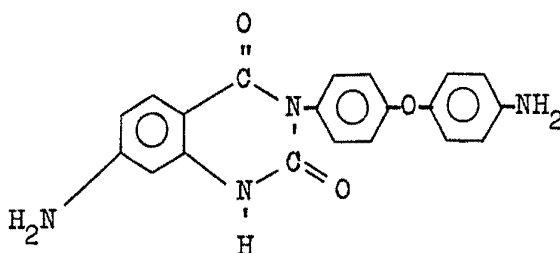
10.



15.

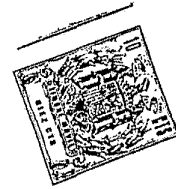


20.

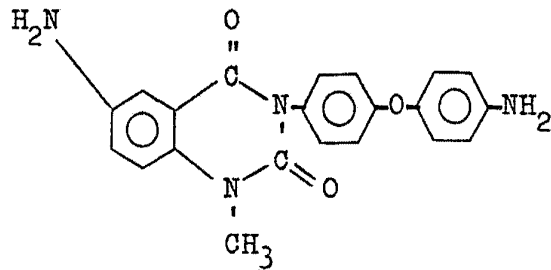


25.

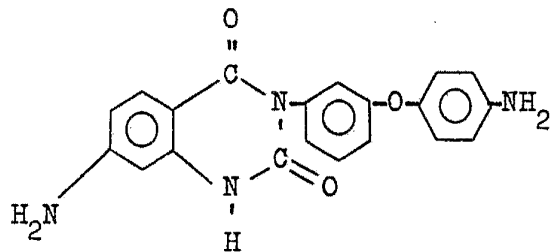
30.



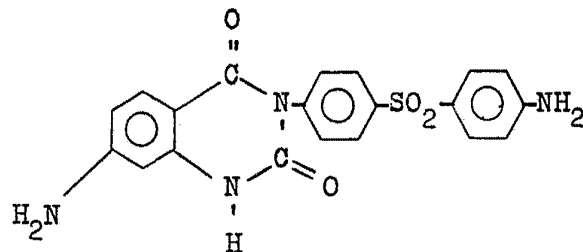
5.



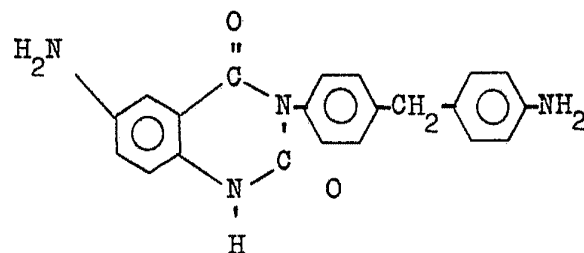
10.



15.



20.



25.

30.

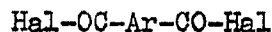
Estas diaminas se emplean en proporciones de 5-50 moles-%, preferentemente en proporciones de 10 - 30 moles-%, referido a la cantidad total de las diaminas empleadas, para obtener hilos y fibras con resistencias a la rotura y módulos



de elasticidad elevados.

- Estas diaminas que contienen sistemas de anillo sw 2,4-quinazolindiona se pueden obtener según una proporción mas antigua, por ejemplo, por reacción de ésteres de ácido 4- ó 5-nitroantranílico con isocianatos aromáticos, que contienen un grupo nitro, cierre de anillo de los derivados de úrea obtenidos en o-diclorobenceno/piridina (20:1), y ulterior reducción de los grupos nitro (vease la publicación de solicitud de patente alemana nº 1 720 686). Las mismas diaminas conteniendo sistemas de anillo de 2,4-quinazolindiona se pueden obtener por ejemplo, también según un procedimiento modificado, por reacción de ácido 4- ó 5-nitroantranílico con isocianatos aromáticos que contienen un grupo nitro, cierre de anillo de los ácidos o-ureidobenzóicos que se forman intermediariamente en N-metilpirrolidona en presencia de P_2O_5 ó, por ejemplo, en dimetilformamida con ayuda de fosgeno y ulterior reducción catalítica a continuación de los grupos nitro (vease la publicación de solicitud de patente alemanas nº 1 802 079 y 2 103877).

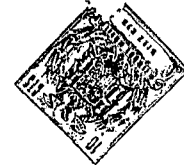
- El tercer componente se compone de dihaluros de ácido dicarboxílico aromáticos de fórmula general



V

- donde Hal significa Cl ó Br y Ar tiene el significado arriba indicado, siendo mencionados como ejemplo los siguientes:
- dicloruro de ácido isoftálico, dicloruro de ácido tereftálico, dicloruro-4,4' de ácido difenilcarboxílico, dicloruro-1,5 de ácido naftalindicarboxílico, dicloruro-2,6 de ácido naftalindicarboxílico, dicloruro-4,4' de ácido difeniléterdicarboxílico, dicloruro-4,4' de ácido difenilsulfondicarboxílico, dicloruro-4,4' de ácido benzofenondicarboxílico y los corres-

419295



pondientes dibromuros, así como los productos de sustitución de alquilo y halógeno de los dihaluros de ácido mencionados.

Como ventajosamente utilizables en el sentido de la presente invención ha resultado ser el dicloruro del ácido tereftálico.

5.

La policondensación de los tres componentes descritos se efectúa según procedimientos en sí conocidos, tales como la policondensación de interfases, preferentemente sin embargo según la policondensación en solución en disolventes orgánicos polares, tales como amidas de ácido N,N-dialquilcarboxílico, preferentemente N,N-dimetilacetamida, ó lactamas N-alquilsustituidas, preferentemente N-metilpirrolidona, o en tetrametilúrea o triamida de ácido hexametilfosfórico, etc. o

10.

en mezclas de tales disolventes apróticos polares bajo ausencia de aceptores de ácido adicionales, pero, en caso dado, en presencia de facilitadores de la disolución, tales como haluros alcalinos o alcalino-térreos, en caso de que estos lleguen a ser necesarios para mantener en solución las copoliamidas que se forman. La condensación se efectúa a temperaturas entre

15.

-30 y +150°C, preferentemente entre -10 y +30°C. Los tiempos de reacción pueden encontrarse entre 1 y 30 horas. El contenido en materia sólida de las soluciones asciende a un

20.

5 a 40 %, preferentemente a un 10 - 25 %. Para lograr unos productos de reacción del peso molecular lo mas alto posible es conveniente emplear la suma de las diaminas y el componente de dicloruro de ácido dicarboxílico en cantidades equimolares, pero la realización de la policondensación se puede efectuar en principio también con un exceso o defecto de dicloruro de ácido dicarboxílico. El dicloruro de ácido dicarboxílico se puede agregar a la solución o bien suspensión de

25.

30.



- las diaminas en el disolvente en varias porciones pequeñas durante un mayor periodo de tiempo. Algunas veces se recomienda, sin embargo, agregar toda la cantidad del dicloruro de ácido dicarboxílico en una sola vez y, preferentemente bajo enfriamiento.
- 5.
- Las poliamidas se pueden hilar a hilos y fibras directamente de la solución de policondensación, en caso dado después de una previa neutralización del ácido clorhídrico, por ejemplo, con óxido etilénico, óxido propilénico ó aminas, o después de precipitar de la solución de policondensación con agentes de precipitación, tales como agua, alcoholes, cetonas, secado y disolución en los disolventes polares mencionados o en sulfóxidos dialquílicos, por ejemplo, sulfóxido dimetílico.
- 10.
- El hilado se puede realizar según los métodos usuales para el procedimiento de hilado en seco o en húmedo. Preferentemente se hilan soluciones de poliamida en dimetilacetamida ó N-metilpirrolidona cuyo contenido en materia sólida de poliamida se encuentre entre 12 - 25 %. La concentración de los facilitadores de la solución, preferentemente cloruro de calcio o cloruro de litio, se encuentra entre 3 - 12 % en caso de que lleguen a ser necesarios. Se da preferencia a viscosidades de las soluciones de hilado entre 500 y 1100 Poise (medido a 20°C en un viscosímetro de rotación), si bien también las soluciones con viscosidades hasta 2500 Poise se pueden hilar sin dificultad alguna. La viscosidad relativa de las poliamidas se encuentra entre $\eta_{rel} = 1,5$ y 4, preferentemente entre $\eta_{rel} = 1,8$ y 3 (medido en una solución al 0,5 % en ácido sulfúrico concentrado a 25°C).
- 15.
- 20.
- 25.
- 30.
- En el procedimiento de hilado en húmedo se coagulan

470295

- 14 -



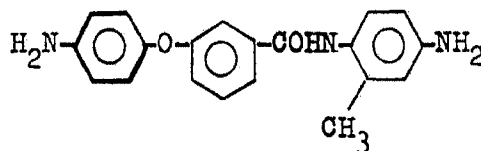
5. los hilos en un baño de precipitación acuoso de 50 - 60°C y se extruyen a una velocidad de 10 - 20 m/min de una tobera de 10 agujeros (diámetro de los agujeros 0,1 mm). En el procedimiento de hilado en seco se extruyen a través de la tobera (diámetro de agujeros 0,1 mm) a una cuba de hilado alimentada con aire caliente de unos 200°C y los hilos que se forman se extraen a una velocidad de 100 m/min.

10. Lo esencial para la obtención de hilos con buenas propiedades tecnológicas textiles es el tratamiento ulterior. Tanto los hilos hilados en húmedo como en seco se estiran ventajosamente previamente en agua hirviendo en una proporción de 1:1,2 a 1:1,7 y después se lavan en agua de 60°C y se secan. El estirado definitivo se efectúa en un margen de temperaturas entre 440 y 520°C con una proporción de estirado de 1:6 a 1:12.

15. La resistencia a la rotura de los hilos estirados se encuentran entre 7 y 22 g/dtex con un alargamiento de 1-3%. Se hallaron módulos de elasticidad de 6000 - 14000 kp/mm².

Ejemplo 1

20. 153,2 partes en peso de 3-(p-amino-fenoxi)-2'-metil-4'-amino-benzanilida de fórmula



25. se disolvieron junto con 10,7 partes en peso de 3-(p-amino-fenil)-7-amino-2,4-(1H,3H)-quinazolindiona (8 moles-%, referido a la cantidad total de diamina) en 820 partes en peso de dimetilacetamida anhidro. A temperatura ambiente se agregaron en 3 porciones en el plazo de unas 2 horas 101,5 partes

30.

- en peso de dicloruro de ácido tereftálico. Terminada la adición se diluyó con 610 partes en peso de dimetilacetamida y se siguió agitando durante 6 horas a temperatura ambiente. Para neutralizar el ácido clorhídrico formado se gotearon entonces 58 partes en peso de óxido propilénico. La solución neutra tenía a 20°C una viscosidad de 950 Poise. La viscosidad relativa del polímero, medido en una solución al 0,5 % de una muestra precipitada con agua y secada a 120°C de poliamida en ácido sulfúrico concentrado, ascendió a 2,56. La solución de poliamida, que tenía un contenido en poliamida de aproximadamente un 14 % se hiló con una velocidad de extrusión de 10 m/min en un baño de agua de 20°C. Los hilos se estiraron previamente en agua hirviendo en una proporción de 1:1,3 y después de secar se estiraron definitivamente en un cilindro a temperaturas entre 460-470°C en proporción de 1:9.

Se midieron las siguientes propiedades en los hilos:

Resistencia a la rotura 9 - 12 g/dtex.

Alargamiento a la rotura: 1,5 - 2 %

20. Módulo de elasticidad: 9550 ± 1000 kp/mm².

Los valores para el módulo de elasticidad son los valores medios de cinco mediciones.

Recepción de humedad: 1,3 %.

25. Para determinar la capacidad de recepción de humedad se lavan las fibras a 300°C, se secan y después se exponen durante 24 horas para la recepción de humedad a un clima de 20°C y una humedad relativa del 65 %. A continuación se secan las fibras en vacío a 80° y la recepción de humedad se indica como absorción de equilibrio en % en peso de las fibras absolutamente secas.
- 30.

419295

- 16 -

Ejemplo 2

250 partes en peso de 3-(p-amino-fenoxi,-2'-metil-4'-aminobenzanilida y 67 partes en peso de 3-(p-aminofenil)-7-amino-2,4-(1H,3H)-quinazolidiona (25 moles-% referido a la cantidad total de diamina) se disolvieron en 1560 partes en peso de N-metilpirrolidona anhidro y a temperatura ambiente se mezcló en porciones con 203 partes en peso de dicloruro de ácido tereftálico. Se formó así una solución altamente viscosa que poco a poco se diluyó con otras 1450 partes en peso de N-metilpirrolidona. Después de seguir agitando durante 6 horas a temperatura ambiente se agregaron, para neutralizar el ácido clorhídrico que se forma, 37 partes en peso de hidróxido cálcico y 58 partes en peso de óxido propilénico. La solución neutra tenía una viscosidad de 1940 Poise. El contenido en materia sólida ascendió a un 13 %. Esta solución se hiló en húmedo y los hilos obtenidos se alargaron primeramente en agua hirviendo en proporción 1:1,3 y después de secar en un cilindro se terminaron de estirar a temperaturas entre 440-460°C en proporción 1:7,5.

20. $\lambda_{rel} = 1,79$ (medido en una solución al 0,05 % en ácido sulfúrico concentrado).

Se midieron las siguientes propiedades del hilo:

Resistencia a la rotura: 13 - 16 g/dtex.

Alargamiento a la rotura: 2 - 3 %

25. Módulo de elasticidad: 9300 ± 940 kp/mm²

Recepción de humedad: 2,3 %.

Ejemplo 3

283 partes en peso de 3-(amino-fenoxi)-2'-metil-4'-aminobenzanilida, 42 partes en peso de 3-(p-aminofenil)-7-amino-2,4-(1H,3H)-quinazolidiona (15 moles-%, referido a la can



5. tidad total de diamina) y 203 partes en peso de dicloruro de ácido tereftálico se policondensaron, como indicado en el ejemplo 1, en 1600 partes en peso de N-metilpirrolidona. Para la obtención de una solución hilable se diluyó con 2850 partes en peso de N-metilpirrolidona. El ácido clorhídrico formado se neutralizó con 110 partes en peso de óxido propilénico. Esta solución ($\eta = 1100$ Poise, $\eta_{rel} = 2,79$) se hiló en húmedo (velocidad de extracción 18 m/min) y los hilos obtenidos se estiraron a 440-470^o en una proporción de 1 : 10,5.

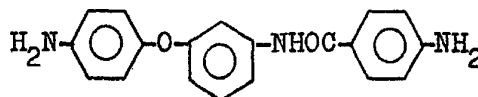
Propiedades del hilo:

- Resistencia a la rotura: 14 - 18 g/dtex,
 Alargamiento: 2 %,
 Módulo de elasticidad: 9200 \pm 850 kp/mm²,
 15. Recepción de humedad: 1,7 %.

Ejemplo 4

143,5 partes en peso de 4-amino-3'-(p-aminofenoxi)-benzanilida de formula

20.



25. se disolvieron junto con 13,4 partes en peso de 3-(p-aminofenil)-7-amino-2,4-(1H,3H)-quinazolindiona (10 moles-%, referido a la cantidad total de diamina) en 780 partes en peso de dimetilacetamida y, análogo al ejemplo 1, se hizo reaccionar con 101,5 partes en peso de dicloruro de ácido tereftálico. La solución de poliamida diluida a un contenido en materia sólida de 16,5 y neutralizada con óxido propilénico, cuya viscosidad a 20^oC era de 1975 Poise se hiló a hilos como descrito en el ejemplo 1. Estos hilos se estiraron en un
- 30.

419293

- 18 -



cilindro a 440 - 460°C en proporción 1 : 7 - 8:5. Se midieron las siguientes propiedades en el hilo:

Resistencia a la rotura: 7,9 - 9,1 g/dtex,

Alargamiento a la rotura: 1,5 %,

5. Módulo de elasticidad: 9940 ± 1880 kp/mm²,

Recepción de humedad: 3,2 %.

Ejemplo 5

10. 239 partes en peso de 4-amino-3'-(p-aminofenoxi)-benzanilida y 67,67 partes en peso de 3-(p-aminofenil)-7-amino-2,4-(1H,3H)-quinazolindiona (25 moles-%, referido a la cantidad total de diamina) y 203 partes en peso de dicloruro de ácido tereftálico se policondensaron como descrito. La solución neutralizada se hiló en húmedo como descrito y se estiró (temperatura de alargamiento: 470-510°C, proporción de alargamiento: 1:12) $\eta_{rel} = 2,19$.

15.

Propiedades del hilo:

Resistencia a la rotura: 11 - 13 g/dtex,

Alargamiento a la rotura: 2 %,

Módulo de elasticidad: 9200 ± 250 kp/mm²,

20. Recepción de humedad: 2,9 %.

Ejemplo 6

25. 271 partes en peso de 4-amino-3'-(p-aminofenoxi)-benzanilida y 42 partes en peso de 3-(p-aminofenil)-7-amino-2,4-(1H,3H)-quinazolindiona (15 moles-% referido a la cantidad total de diamina) se policondensaron en N-metilpirrolidona con 203 partes en peso de dicloruro de tereftalato. La solución de poliamida diluida y neutralizada con óxido propilénico, cuya viscosidad ascendió a 1330 Poise ($\eta_{rel} = 2,85$) se hiló en húmedo. Los hilos se estiraron a 480-490°C en proporción 1 : 11,8 - 12,1. En estos hilos se midieron las

30.



siguientes propiedades:

Resistencia a la rotura: 15 - 17 g/dtex,

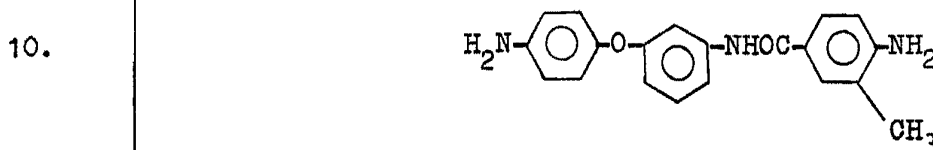
Alargamiento a la rotura: 1,6 - 2 %,

Módulo de elasticidad: 8700 ± 1300 kp/mm²,

5. Recepción de humedad: 1,8 %.

Ejemplo 7

266 partes en peso de 4-amino-3-metil-3'-(p-aminofenoxi)-benzanilida de fórmula



15. y 53,6 partes en peso de 3-(p-aminofenil)-7-amino-2,4-(1H, 3H)-quinazolidiona (20 moles-%, referido a la cantidad total de diamina) se disolvieron en 3620 partes en peso de N-metilpirrolidona y se policondensaron con 2203 partes en peso de dicloruro de tereftalato. Se diluyó como descrito, se neutralizó y se hiló en húmedo. Los hilos se estiraron en una proporción de 1 : 8 - 10.

20. Propiedades del hilo:

Resistencia a la rotura: 10 - 12 g/dtex,

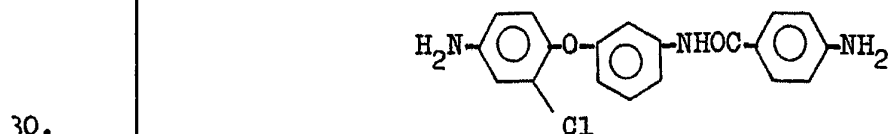
Alargamiento a la rotura: 1,5 %,

Módulo de elasticidad: 10700 ± 450 kp/mm²,

Capacidad de recepción de agua: 2,1 %.

25. Ejemplo 8

282 partes en peso de 4-amino-3'-(2"-cloro-4"-aminofenoxi)-benzanilida de fórmula



419295

- 20 -



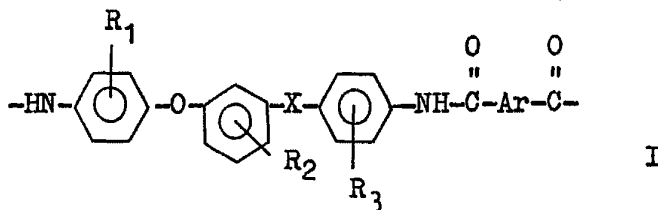
5. y 53,6 partes en peso de 3-(p-aminofenil)-7-amino-2,4-(1H,3H)-quinazolindiona se policondensaron, como detalladamente descrito en el ejemplo 1, con 203 partes en peso de dicloruro de ácido tereftálico. La solución diluida y neutralizada con óxido propilénico se hiló en húmedo. Los hilos resultantes se estiraron a unos 490°C en proporción 1 : 9 - 10. Se apreciaron las siguientes propiedades en los hilos:
- Resistencia a la rotura: 9 - 11 g/dtex,
Alargamiento a la rotura: 1,5 - 2 %,
10. Módulo de elasticidad: 8900 ± 800 kp/mm²,
Recepción de humedad: 2,0 %.

- N O T A -

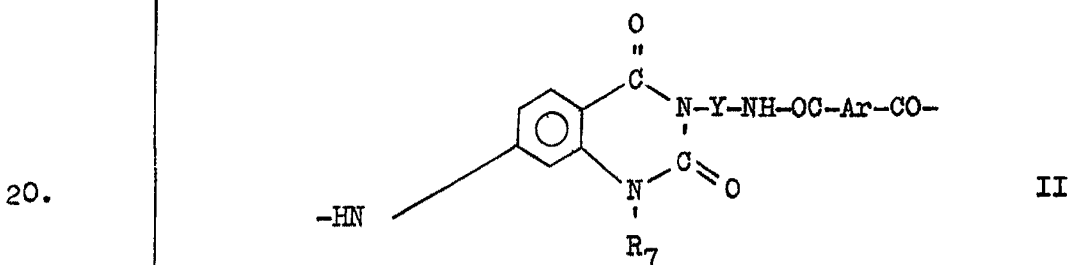
15. Descrita suficientemente la naturaleza del invento, así como la manera de realizarlo en la práctica, debe hacerse constar que las disposiciones anteriormente indicadas, son susceptibles de modificaciones de detalle en cuanto no alteren su principio fundamental. También se hace constar que el invento corresponde a una Solicitud de Patente, presentada en Alemania, con fecha 4 de octubre de 1972, bajo el número P 22 48 663.1, acogiéndose por lo tanto a los beneficios que conceden los Convenios Internacionales en vigor, siendo lo que constituye la esencia del referido invento y por lo que se solicita Patente de Invención por 20 años en España, sobre: PROCEDIMIENTO PARA LA OBTENCION DE COPOLIAMIDAS AROMATICAS DE ALTO PESO MOLECULAR; caracterizándose por lo siguiente:
20. 25.

1ª.- Procedimiento para la obtención de copoliamidas aromáticas de alto peso molecular, que se componen de 50-95 moles-% de unidades estructurales, de fórmula general I:

Pa



5. en la que X significa la agrupación $\overset{\text{O}}{\parallel} \text{C---NH---}$ ó $\text{---NH---} \overset{\text{O}}{\parallel} \text{C---}$, R₁ y R₂, independientes entre si significan hidrógeno, grupos C₁₋₄-alcoxi ó alquilo o átomos de halógeno, R₃ significa hidrógeno, halógeno, un grupo C₁₋₄-alquilo o alcoxi, un grupo nitrilo, ó
10. un grupo COOR₄ ó CONR₅R₆ y Ar significa un resto aromático bivalente, donde R₄ significa hidrógeno o un grupo C₁₋₄-alquilo y R₅ y R₆, independientes entre sí significan hidrógeno, grupos C₁₋₄-alquilo o arilo, y hasta 5 - 50 moles-%, preferentemente 10 - 30 moles-% de unidades estructurales conteniendo
15. sistemas de anillos de 2,4-(1H,3H)-quinazolidiona de fórmula general

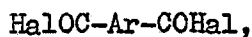


25. donde R₇ significa hidrógeno ó un resto de C₁₋₄-alquilo, Y significa un resto aromático bivalente, compuesto de uno o varios anillos aromáticos condensados o anillos aromáticos que están enlazados entre si a través de un enlace sencillo o a través de una agrupación -CO-, -CR₇R₇-, -O-, -S- ó -SO₂-, así como sus productos de sustitución por alquilo o halógeno y Ar significa un resto aromático bivalente, mostrando las copoliamidas
30. una viscosidad relativa en solución (medido en una solu-

Reg



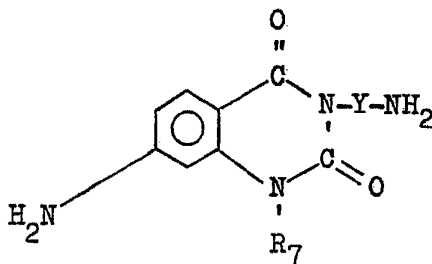
ción al 0,5 % del copolímero en ácido sulfúrico concentrado a 25°C) de 1,5 a 4, caracterizado porque se policondensan dihaluros de ácido dicarboxílico aromáticos, de fórmula general:



5.

en la que Hal significa Cl ó Br y Ar tiene el significado arriba detallado con 50 a 50 moles-% de diaminas de 2,4-(1H, 3H)-quinazolindiona de fórmula general:

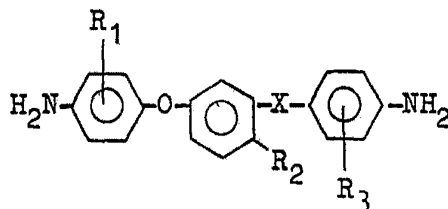
10.



15.

en la que R₇ e Y tienen el significado arriba detallado y 50-95 moles-%, en cada caso referido a la cantidad total de diamina, de diaminas aromáticas de fórmula general:

20.



25.

en la que X, R₁, R₂ y R₃ tienen el significado arriba detallado, en disolventes orgánicos polares a temperaturas entre -30 y + 150°C.

2^a.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque como disolventes orgánicos polares se emplean amidas de ácido N,N-dialquilcarboxílico.

30.

3^a.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque como disolvente orgánico polar se emplea N,N-di

pa



metilacetamida.

4ª.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque como disolventes orgánicos polares se emplean lactamas N,N-alquilsustituidas.

5. 5ª.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque como disolvente orgánico polar se emplea N-metilpirrolidona.

10. 6ª.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque como disolvente orgánico polar se emplea triamida de ácido hexametilfosfórico.

7ª.- Procedimiento según la reivindicación 1, caracterizado porque como disolvente orgánico polar se emplea tetrametilúrea.

15. 8ª.- Procedimiento para la obtención de copoliamidas aromáticas de alto peso molecular, tal y como queda sustancialmente descrito en la presente Memoria.

Esta Memoria consta de 23 hojas, escritas a máquina por una sola cara.

Madrid 19 FEB. 1974

20.

BAYER AKTIENGESELLSCHAFT

J. GOMEZ ACEBO Y MODEF
P. p. Firmado: L. Gaeta Fernández