

MINISTERIO DE INDUSTRIA Y ENERGIA
Registro de la Propiedad Industrial



ESPAÑA

10 ES	11	NUM. 485356	10 AI
	21		
	23	FECHA DE PRESENTACION 25-10-79	

PATENTE DE INVENCION

Concedido el Registro de esta invención en la forma que se figura en el presente documento y en el anexo adjunto, teniendo de la memoria a J. J. J.

60 PRIORIDADES:		
61 NUMERO	62 FECHA	63 PAIS
P 28 46 646.8	26-10-78	Rep. Federal Alemana
64 FECHA DE PUBLICIDAD	61 CLASIFICACION INTERNACIONAL C08J 9/10 ; C08K 5/14 C08L 23/30	62 PATENTE DE LA QUE ES DIVISIONARIA
64 TITULO DE LA INVENCION 30 "PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION DE MATERIALES ESPUMADOS A BASE DE POLIOLEFINAS".		
71 SOLICITANTE (ES) DYNAMIT NOBEL AKTIENGESELLSCHAFT (OZ 78083)		
DOMICILIO DEL SOLICITANTE Postfach 1209, 5210 Troisdorf, Bez Köln, República Federal Alemana.		
72 INVENTOR (ES) Werner Kühnel y Dr. Paul Spielau		
73 TITULAR (ES)		
74 REPRESENTANTE DON FERNANDO DE ELZABURU MARQUEZ (P.- 72.474)		

1 Objeto de la invención es un procedimiento para
la preparación de materiales espumados a base de poliole-
finas, por reticulación peroxídica y espumación por medio
de un agente espumante químico, con adición de un agente
5 auxiliar de espumación.

Es conocido mezclar poliolefinas con peróxidos
orgánicos y agentes espumantes. El mezclado de las poli-
olefinas con los agentes de reticulación y de espumación,
así como eventualmente otros aditivos habituales, puede
10 realizarse en un mezclador de rodillos o en una extrusora,
con fabricación subsiguiente de los cuerpos moldeados, ta-
les como placas o bandas continuas, por debajo de la tem-
peratura de descomposición del peróxido. A continuación
se realiza la reticulación de la poliolefina por debajo
15 del punto de descomposición del agente espumante, por des-
composición del agente reticulante. A continuación se ele-
va la temperatura hasta el margen de descomposición del
agente espumante, de modo que la poliolefina es espumada
por los gases formados con ello. El agente espumante em-
20 pleado preferentemente para la espumación es la azodicar-
bonamida. En tal caso resulta una espuma de poliolerina
con densidad relativamente elevada y superficie irregular.
(Memoria de patente de Estados Unidos 3 098 831, DE-AS
1 694 130).

25 En principio la densidad del material espumado
puede regularse por variación de la cantidad de agente es-
pumante. Sin embargo, en tal caso no se logra preparar al
mismo tiempo un material espumado con superficie lisa.

30 Para el aumento del rendimiento de gas es cono-
cido por la memoria de patente alemana 1 936 098 añadir al

1 - agente espumante azodicarbonamida, en calidad de agente
auxiliar de espumación, 0,05 a 10 % en peso de un compues-
to de cromo.

5 Para lograr un rendimiento de gas apreciablemen-
te elevado y por consiguiente una reducción de la densidad
aparente (densidad, llamada también densidad bruta) del
material espumado son necesarias, sin embargo, cantidades
relativamente grandes de compuesto de cromo, lo que se ha
manifestado como inconveniente desde múltiples puntos de
10 vista. Los materiales espumados son modificados en su co-
lor, la estructura de la espuma es irregular y la super-
ficie desigual.

15 La presente invención se basa en la misión de
proporcionar un material espumado uniforme, con buena ca-
lidad superficial y baja densidad bruta.

20 La misión se resuelve según la invención añadien-
do a la poliolefina, además del peróxido y del agente es-
pumante así como eventualmente de otros agentes auxilia-
res, un fenol estéricamente impedido y/o un compuesto or-
gánico de fósforo, como agente auxiliar de espumación.

25 En la realización del procedimiento según la in-
vención se puede proceder realizando el mezclado de las
poliolefinas con los agentes reticulantes, agentes espu-
mantes, eventualmente aditivos habituales así como los
agentes auxiliares de espumación empleados según la inven-
ción, en un mezclador de rodillos o en una extrusora, con
fabricación subsiguiente de cuerpos moldeados, tales como
placas o bandas continuas, a temperaturas por debajo del
punto de descomposición del peróxido. El tiempo medio de
30 permanencia en el dispositivo mezclador se ajusta de modo

1 -tal que no se produzca en lo esencial en esta fase una re-
ticulación de la mezcla a espumar. A continuación se rea-
liza la reticulación de la poliolefina por debajo del pun-
to de descomposición del agente espumante, por descomposi-
5 ción del agente reticulante, con elevación de la viscosi-
dad en fusión de la poliolefina. Al aumentar adicional-
mente la temperatura a o por encima de la temperatura de
descomposición del agente espumante, se espuma el cuerpo
moldeado. Según la cantidad del agente espumante, del
10 agente auxiliar de espumación, del agente reticulante y
según las condiciones del procedimiento, resulta una espu-
ma con una densidad bruta de 15 kg/m^3 hasta 300 kg/m^3 ,
de preferencia de 20 a 200 kg/m^3 .

15 El procedimiento según la invención se emplea
preferentemente para la fabricación de bandas continuas
de material espumado, por ejemplo según el procedimiento
descrito en la DE-AS 1 694 130.

20 Como agente espumante se emplea convenientemente
un agente que desprende gas en caliente, cuya temperatura
de descomposición es superior a la del peróxido orgánico
empleado. Agentes espumantes adecuados son por ejemplo
azodicarbonamida y/o para, para prima-oxi-bis-benzosulfo-
nilhidrazida y/o dinitrosopentametilentetramina y simila-
res.

25 Un agente espumante preferido, en conexión con
el agente auxiliar de espumación según la invención, es
una azodicarbonamida con un punto de descomposición o un
margen de descomposición a partir de 190°C . Se prefiere
en especial la azodicarbonamida. La cantidad a emplear de
30 agente espumante se ajusta a la densidad bruta pretendida

1 -del material espumado a preparar, y por lo general está entre 0,5 y 25 % en peso, de preferencia de 1 a 20 % en peso, referido a la mezcla total a conformar para formar un cuerpo moldeado.

5 Las sustancias empleadas según la invención como agente auxiliar de espumación se utilizan por lo general en una cantidad de 0,05 % en peso hasta 3 % en peso, referido a la poliolefina empleada. Sorprendentemente actúan como agentes que reducen la densidad de la espuma, puesto que - partiendo de una densidad bruta establecida de antemano en lo esencial por la cantidad de agente espumante - al añadir el agente auxiliar de espumación según la invención a la mezcla a espumar se logra una reducción de la densidad bruta de por ejemplo hasta 20 %, eventualmente incluso mayor de 20 %. Sorprendentemente al mismo tiempo se obtiene también una espuma con superficie lisa.

15 Mediante el agente auxiliar de espumación empleado según la invención, evidentemente se eleva el rendimiento de gas del agente espumante, de modo que en principio es posible ajustar la densidad bruta de la espuma deseada en cada caso, con empleo de cantidades menores de agente espumante.

25 Como peróxido orgánico pueden ser utilizados, según la composición de la poliolefina, 2,5-dimetil-2,5-di-(ter-butilperoxi)-hexano, hidroperóxido de butilo terciario, peróxido de cumilo-butilo terciario, peróxido de di-butilo terciario, de preferencia peróxido de dicumilo. Los peróxidos se emplean en cantidades de 0,3 hasta 1,5 % en peso, referido a la poliolefina.

30

1 .. Como poliolefinas se pueden emplear polietileno
o polipropileno, eventualmente también sus mezclas, de
preferencia polietileno, a saber polietileno de baja pre-
sión con densidades de 0,94 hasta 0,97 g/cm³ y/o polietile-
5 no de alta presión con densidades de 0,91 hasta aproxima-
damente 0,94 g/cm³, de preferencia polietileno de alta
presión. Sin embargo bajo la designación "poliolefinas"
se entienden también: copolímeros, de preferencia aqué-
llos para cuya preparación se emplean mezclas de monóme-
10 ros con una proporción predominante de etileno, así como
sus mezclas con homopolímeros. Tales copolímeros son,
por ejemplo, copolímeros de etileno-propileno, copolíme-
ros de etileno-butileno, copolímeros de etileno y acetato
de vinilo y sus derivados, copolímeros de etileno y éste-
15 res de ácido acrílico o sus derivados, copolímeros de eti-
leno y ácido metacrílico o sus derivados, o similares.
También mezclas de las poliolefinas antes citadas con cau-
chos y/o materiales sintéticos pueden ser transformadas
según la invención en materiales espumados. Por tales se
20 entienden, por ejemplo, mezclas que constan de hasta 50 %
en peso y más de poliolefinas. Cauchos mezclables con po-
liolefinas son, por ejemplo, caucho natural, caucho de
etileno-propileno, caucho butílico, poliisobutileno, cau-
cho ABS (acrilonitrilo-butadieno-estireno), polibutadieno,
25 polibuteno y poliisopreno. Materiales sintéticos mezcla-
bles con poliolefinas son, por ejemplo, poliestireno, po-
lietileno clorado, polietileno sulfoclorado, y similares.

Como aditivos usuales, que habitualmente son em-
pleados con materiales sintéticos a base de poliolefinas,
30 se pueden mencionar por ejemplo agentes protectores contra

1 - la luz, pigmentos, materiales de carga, agentes ignífugos, agentes antiestáticos, lubricantes, o similares, que pueden ser añadidos a la mezcla a reticular y a espumar antes de la transformación en un cuerpo moldeado.

5 En el caso de empleo preferido del agente auxiliar de espumación según la invención en combinación con azodicarbonamida, la reticulación se realiza a partir de aproximadamente 160°C y la espumación a temperaturas a partir de aproximadamente 190°C hasta aproximadamente 10 250°C, de preferencia hasta aproximadamente 220°C.

Como fenoles estéricamente impedidos y/o compuestos de fósforo entran en consideración en primer lugar aquellos cuyos puntos de fusión son superiores a la temperatura ambiente, pero inferiores a la temperatura de 15 espumación. Por lo general los puntos de fusión están en el margen desde aproximadamente 40 hasta alrededor de -- 170°C.

Se han manifestado como adecuados en el sentido de la invención fenoles estéricamente impedidos con 1 a 4 20 grupos OH fenólicos combinados, siendo en cada caso monovalentes las unidades estructurales fenólicas.

En particular se mencionarán: tetrakis- \sphericalangle 3-(3,5-
-di-ter-butil-4-hidroxifenil)-propionato \sphericalangle de pentaeritriti
lo (I),
25 3-(3,5-di-ter-butil-4-hidroxifenil)-propionato de octadeci
lo (II),
2,2'-metilen-bis-(4-metil-6-ter-butilfenol) (III)
2,2'-metilen-bis-(4-etil-6-ter-butilfenol) (IV)
2,6-di-(2'-hidroxi-3-ter-butil-5'-metilbencil)-4-metilfe
30 nol (V)

1 -2,6-di-ter-butyl-4-metilfenol (VI)

2-metil-6-ter-butylfenol (VII)

2,6-diisopropilfenol (VIII)

2,2-bis-(4-hidroxifenil)-propano (IX).

5 Como fenoles estéricamente impedidos se pueden mencionar también los que se derivan de ácido fosfónico o de ésteres dialcohólicos de ácido fosfónico. A ellos pertenece por ejemplo el éster dietílico de ácido 3,5-di-ter-butyl-6-hidroxibencilfosfónico, así como el correspondiente éster dimetilico.

10

También son adecuados fenoles estéricamente impedidos que contienen grupos S como miembros de unión, por ejemplo 4,4'-tio-bis-(3-metil-6-ter-butyl-fenol) y 2,2'-tiodietilbis- $\sqrt{3}$ -(3,5-di-ter-butyl-4-hidroxifenil)-propionato⁷.

15

Especialmente adecuados son los compuestos fenólicos I a V y IX. De los compuestos orgánicos de fósforo son adecuados, además de los derivados de ácido fosfónico antes mencionados, los que se derivan de difosfonitos, en especial de difosfonitos de bifenileno, por ejemplo difosfonito de tetrakis-(2,4-di-ter-butylfenil)-4,4'-bifenileno.

20

Los agentes auxiliares de espumación pueden ser añadidos a la mezcla a espumar como tales, eventualmente en mezcla con el agente espumante, pero eventualmente también en forma de un concentrado en una poliolefina.

25

Los materiales espumados preparados según la invención pueden ser empleados como material aislante en el sector de la construcción, con aislamiento térmico mejorado a causa de la superficie lisa y de la baja densidad bruta, en la industria del embalaje, y de muchas maneras co-

30

1 -mo revestimiento tanto de suelos como de techos y paredes, siendo asimismo ventajosa la baja densidad bruta en unión con la superficie lisa.

5 Los siguientes ejemplos sirven para la ilustración adicional de la invención.

El índice de fluidez se midió según DIN 53 735 (190°C/2,15 kg). El polietileno de alta presión empleado tenía un índice de fluidez de 4 g/10 min y una densidad de 0,92 g/cm³.

10 El copolímero de etileno-acetato de vinilo empleado (proporción en peso 92 : 8) tenía un índice de fluidez de 5 g/10 min, medido según DIN 53 735 (190°C/2,15 kg).

15 El polietileno de baja presión empleado tenía un índice de fluidez de 18 g/10 min, medido como anteriormente. La densidad era 0,95.

Ejemplo de comparación 1

84 partes en peso de polietileno de alta presión

1 parte en peso de peróxido de dicumilo

15 partes en peso de azodicarbonamida

20 se formulan en un mezclador de rodillos a una temperatura de la superficie de los rodillos de 110°C, y un tiempo de mezclado de 20 minutos, después el material se extrae en forma de lámina calandrada y se moldea por compresión en una prensa, bajo presión a 130°C y en 8 minutos de permanencia, para formar una placa de 4 mm de espesor con superficie lisa. A partir de la placa se cortan muestras de 8 cm de diámetro, que se espuman en una estufa de desecación a 210°C, para formar cuerpos espumados con un espesor de 13,5 mm y una densidad bruta de 30 kg/m³. La densidad bruta de la espuma es establecida de antemano por la

25

30

1 receta.

Ejemplo 1

84 partes en peso de polietileno de alta presión (como en el ejemplo de comparación 1)

5 1 parte en peso de peróxido de dicumilo

15 partes en peso de azodicarbonamida

0,3 partes en peso del agente auxiliar de espumación según la invención 2,2'-metilen-bis-(4-metil-6-ter-butil-fenol) (peso molecular 341).

10 La transformación y las condiciones de tratamiento son las mismas que en el ejemplo de comparación 1. Se obtiene una espuma con un espesor de 15,5 mm y una densidad bruta de 28 kg/m³.

Ejemplo 2

15 84 partes en peso de polietileno de alta presión (como en el ejemplo de comparación 1)

1 parte en peso de peróxido de dicumilo

15 partes en peso de azodicarbonamida

20 0,3 partes en peso del agente auxiliar de espumación tetra-kis- $\left[3-(3,5\text{-di-ter-butil-4-hidroxi-fenil})\text{-propionato}\right]$ de pentaeritritilo (peso molecular 1178).

25 La transformación y las condiciones de tratamiento son las mismas que en el ejemplo de comparación 1. Se obtiene una espuma con un espesor de 15 mm y una densidad bruta de 27 kg/m³.

Ejemplo de comparación 2

84,2 partes en peso del copolímero de etileno y acetato de vinilo, antes citado

0,8 partes en peso de peróxido de dicumilo

30 15 partes en peso de azodicarbonamida.

1 - La transformación y las condiciones de tratamiento son las mismas que en el ejemplo 1. Se obtiene una espuma con un espesor de 14 mm y una densidad bruta de 30 kg/m^3 .

Ejemplo 3

5 84,2 partes en peso del copolímero como en el ejemplo de comparación 2

0,8 partes en peso de peróxido de dicumilo

15 partes en peso de azodicarbonamida

10 0,3 partes en peso de agente auxiliar de espumación como en el ejemplo 1 (peso molecular 341).

La transformación y las condiciones de tratamiento son las mismas que en el ejemplo de comparación 1. Se obtiene una espuma con un espesor de 14,5 cm y una densidad bruta de 28 kg/m^3 .

15 Ejemplo 4

84,2 partes en peso del copolímero como en el ejemplo de comparación 2

0,8 partes en peso de peróxido de dicumilo

15 partes en peso de azodicarbonamida

20 0,3 partes de agente auxiliar de espumación como en el ejemplo 2 (peso molecular 1178).

La transformación y las condiciones de tratamiento son las mismas que en el ejemplo de comparación 1. Se obtiene una espuma con un espesor de 15 mm y una densidad bruta de 28 kg/m^3 .

25

Ejemplo de comparación 3

79 partes en peso del copolímero como en el ejemplo de comparación 2

0,6 partes en peso de peróxido de dicumilo

30

20,4 partes en peso de azodicarbonamida.

1 - La transformación y las condiciones de tratamiento son las mismas que en el ejemplo de comparación 1. Se obtiene una espuma con un espesor de 14,5 mm y una densidad bruta de 25 kg/m^3 .

5 Ejemplo 5

79 partes en peso del copolímero como en el ejemplo de comparación 2

0,6 partes en peso de peróxido de dicumilo

20,4 partes en peso de azodicarbonamida

10 0,3 partes en peso del agente auxiliar de espumación 3-(3,5-di-ter-butil-4-hidroxifenil)-propionato de octadecilo (peso molecular 531).

15 La transformación y las condiciones de tratamiento son las mismas que en el ejemplo de comparación 1. Se obtiene una espuma con un espesor de 16,5 mm y una densidad bruta de 19 kg/m^3 .

Ejemplo de comparación 4

89 partes en peso de polietileno de alta presión como en el ejemplo de comparación 1

20 1 parte en peso de peróxido de dicumilo

10 partes en peso de azodicarbonamida.

25 La transformación y las condiciones de tratamiento son las mismas que en el ejemplo de comparación 1. Se obtiene una espuma con un espesor de 13 mm y una densidad bruta de 50 kg/m^3 .

Ejemplo 6

89 partes en peso de polietileno de alta presión como en el ejemplo de comparación 1

1 parte en peso de peróxido de dicumilo

30 10 partes en peso de azodicarbonamida

1 - 0,8 partes en peso del agente auxiliar de espumación como en el ejemplo 2 (peso molecular 1178).

5 La transformación y las condiciones de tratamiento son las mismas que en el ejemplo de comparación 1. Se obtiene una espuma con un espesor de 14 mm y una densidad bruta de 43 kg/m³.

Ejemplo de comparación 5

67 partes en peso de polietileno de alta presión como en el ejemplo de comparación 1

10 17 partes en peso de polietileno de baja presión

1 parte en peso de peróxido de dicumilo

15 partes en peso de azodicarbonamida.

15 La transformación y las condiciones de tratamiento son las mismas que en el ejemplo de comparación 1. Se obtiene una espuma con un espesor de 13,6 mm y una densidad bruta de 32 kg/m³

Ejemplo 7

67 partes en peso de polietileno de alta presión como en el ejemplo de comparación 5

20 17 partes en peso de polietileno de baja presión como en el ejemplo de comparación 5

1 parte en peso de peróxido de dicumilo

15 partes en peso de azodicarbonamida

25 0,3 partes en peso del agente auxiliar de espumación como en el ejemplo 1 (peso molecular 341).

La transformación y las condiciones de tratamiento son las mismas que en el ejemplo de comparación 1. Se obtiene una espuma con un espesor de 15,5 mm y una densidad bruta de 27 kg/m³.

30 Ejemplo de comparación 6

- 1 84 partes en peso de polietileno de alta presión como en el ejemplo de comparación 1
- 1 parte en peso de peróxido de dicumilo
- 15 partes en peso de azodicarbonamida
- 5 3 partes en peso de un concentrado de colorante azul (obtenible en el mercado bajo la designación Sicoversal^(R) blau 23075).

10 La transformación y las condiciones de tratamiento son las mismas que en el ejemplo de comparación 1. Se obtiene una espuma con un espesor de 12 mm y una densidad bruta de 36 kg/m³.

Ejemplo 8

- 15 84 partes en peso de polietileno de alta presión como en el ejemplo de comparación 1
- 1 parte en peso de peróxido de dicumilo
- 15 partes en peso de azodicarbonamida
- 3 partes en peso de concentrado de colorante como en el ejemplo de comparación 6
- 1 parte en peso del agente auxiliar de espumación como
- 20 en el ejemplo 1 (peso molecular 341).

La transformación y las condiciones de tratamiento son las mismas que en el ejemplo de comparación 1. Se obtiene una espuma con un espesor de 14 mm y una densidad bruta de 30 kg/m³.

Ejemplo 9

- 25 84 partes en peso de polietileno de alta presión
- 1 parte en peso de peróxido de dicumilo
- 15 partes en peso de azodicarbonamida
- 0,8 partes en peso de difosfonito de tetrakis-(2,4-di-ter-
30 -butilfenil)-4,4'-bifenileno (peso molecular 1034).

1 La transformación y las condiciones de tratamiento son las mismas que en el ejemplo de comparación 1. Se obtiene una espuma con un espesor de 15 mm y una densidad bruta de 27 kg/m³.

5 Ejemplo 10

84 partes en peso de polietileno de alta presión como en el ejemplo de comparación 1

1 parte en peso de peróxido de dicumilo

15 partes en peso de azodicarbonamida

10 0,5 partes en peso del agente auxiliar de espumación como en el ejemplo 2.

La transformación y las condiciones de tratamiento son las mismas que en el ejemplo de comparación 1. Se obtiene una espuma con un espesor de 15,5 mm y una densidad bruta de 25 kg/m³.

15

Ejemplo de comparación 7

94,9 partes en peso de polietileno de alta presión como en el ejemplo de comparación 1

1,1 partes en peso de peróxido de dicumilo

20 4 partes en peso de azodicarbonamida.

La transformación y las condiciones de tratamiento son las mismas que en el ejemplo de comparación 1. Se obtiene una espuma con un espesor de 9,5 mm y una densidad bruta de 115 kg/m³.

25 Ejemplo 11

94,9 partes en peso de polietileno de alta presión como en el ejemplo de comparación 1

1,1 partes en peso de peróxido de dicumilo

4 partes en peso de azodicarbonamida

30 2 partes en peso de agente auxiliar de espumación como

1 en el ejemplo 2.

La transformación y las condiciones de tratamiento son las mismas que en el ejemplo de comparación 1. Se obtiene una espuma con un espesor de 11 mm y una densidad bruta de 90 kg/m³.

5 Las muestras de material espumado de los ejemplos de comparación 1 a 7 tienen una superficie muy rugosa, áspera e irregular, frente a lo cual las muestras de los ejemplos 1 a 11 preparadas según la invención, tienen una superficie lisa y regular.

10 Los ejemplos muestran claramente que en el caso de empleo del agente auxiliar de espumación según la invención, las densidades brutas o aparentes son disminuidas, se reducen considerablemente.

1

REIVINDICACIONES

5

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:

10

1ª.- Procedimiento para la preparación de materiales espumados a base de poliolefinas, por reticulación peroxídica y espumación por medio de un agente espumante químico, con adición de un agente auxiliar de espumación, caracterizado porque a la poliolefinas, además del peróxido y del agente espumante así como eventualmente de otras sustancias auxiliares, se le añade como agente auxiliar de espumación un fenol estéricamente impedido y/o un compuesto orgánico de fósforo.

15

20

2ª.- Procedimiento según la reivindicación 1ª, caracterizado porque los fenoles estéricamente impedidos contienen 1 a 4 grupos OH fenólicos combinados, con la condición de que las unidades estructurales fenólicas son en cada caso monovalentes.

25

3ª.- Procedimiento según la reivindicación 1ª, caracterizado porque los compuestos orgánicos de fósforo se derivan de difosfonitos, preferentemente de difosfonito de 4,4'-bifenileno.

30

4ª.- Procedimiento según una de las reivindicaciones 1ª a 3ª, caracterizado porque el fenol estéricamente impedido y/o el compuesto orgánico de fósforo se añaden a la poliolefina en una cantidad de 0,05 % en peso hasta 3 % en peso, referido a la poliolefina empleada.

1. 5a.- Procedimiento según una de las reivindicaciones 1ª a 4ª, caracterizado porque como agente espumante se emplean aquéllos con un punto de descomposición o un margen de descomposición a partir de aproximadamente 190°C.

5 6a.- "PROCEDIMIENTO PARA LA PREPARACION DE MATERIALES ESPUMADOS A BASE DE POLIOLEFINAS".

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

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

Madrid, 25.OCT.1979

P.A.

Fernando de Elizaburu
Por Feder. 

JAC

01099