

# PŘIHLÁŠKA VYNÁLEZU

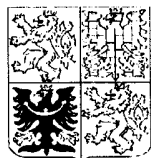
zveřejněná podle § 31 zákona č. 527/1990 Sb.

(21) Číslo dokumentu:

## 3368-97

(19)

ČESKÁ  
REPUBLIKA



ÚŘAD  
PRŮMYSLOVÉHO  
VLASTNICTVÍ

(22) Přihlášeno: **03. 05. 96**

(32) Datum podání prioritní přihlášky: **03.05.95**

(31) Číslo prioritní přihlášky: **95/434637**

(33) Země priority: **US**

(40) Datum zveřejnění přihlášky vynálezu: **15. 04. 98**  
(Věstník č. 4/98)

(86) PCT číslo: **PCT/US96/06307**

(87) PCT číslo zveřejnění: **WO 96/34915**

(13) Druh dokumentu: **A3**

(51) Int. Cl.<sup>6</sup>:

**C 08 L 71/12**  
**C 08 L 25/16**

(71) Přihlášovatel:

EXXON CHEMICAL PATENTS INC.,  
Baytown, TX, US;

(72) Původce:

Li Dongming, Webster, NY, US;  
Wang Hsien Chang, Bellaire, TX, US;  
Yee Albert Fan, Ann Arbor, MI, US;  
Yeh Richard Cheng Ming, Bellaire, TX, US;

(74) Zástupce:

Kalenský Petr JUDr., Hálkova 2, Praha 2,  
12000;

(54) Název přihlášky vynálezu:

**Kompatibilizované směsi polypropylen a  
poly(fenyleneether)-polymerů**

(57) Anotace:

Termoplastické kompozice, mající zlepšenou kompaktnost a zlepšené mechanické vlastnosti, se připraví smísením kompozice, obsahující poly/fenyleneether/, propylenový polymer jako krystalický polypropylen a elastomerní interpolymery C<sub>1</sub> až C<sub>7</sub> isomonoolefinu, např. isobutylenu, a para-alkylstyrenový komonomer, např. paramethylstyren, v tavenině. Interpolymer výhodně obsahuje benzylickou funkční skupinu jako je halogen /brom/. Kompozice může také obsahovat styrenový polymer.

CZ 3368-97 A3

Kompatibilizované směsi polypropylen a poly(fenyleneether)-  
polymerů

### Oblast techniky

Předložený vynález se týká kompatibilizovaných směsí, obsahujících polypropylen a poly(fenyleneether)polymery, majících zlepšené mechanické vlastnosti.

### Dosavadní stav techniky

Poly(fenyleneetherové) (PPE) pryskyřice jsou dobře známé zpracovatelné termoplasty, vykazující relativně vysokou tuhost, body měknutí, např. nad asi 179 °C (Ency. Poly. Sci. and Eng.). Tyto polymery jsou vhodné pro mnoho aplikací, kde jsou požadovány dobré mechanické vlastnosti a tepelná odolnost. Nevýhodné je, že PPE obecně vykazují špatnou rázovou pevnost a špatnou zpracovatelnost. Například při teplotě místnosti je vrubová Izod rázová pevnost PPE obecně pod 1 ft.-lb./in. Vnitřní viskozita typické PPE je asi 0,50, což není vhodné pro zpracování obvyklými technikami injekčního vstřikování.

Binární směsi, obsahující PPE a krystalický polypropylen (PP), demonstrují dramatické zlepšení v modulu ohybu a teplotě tepelné odolnosti ve srovnání se samotným PP a jsou snadněji zpracovatelné než PPE samotné. Avšak tyto směsi jsou vysoce nekompatibilní, protože jiné mechanické vlastnosti jako je pevnost v tahu, přetvoření tahem a rázová pevnost mají sklon se zhoršovat díky špatné disperzi PPE v PP matrici a špatné adhezi PPE k PP matrici. Výsledné směsi jsou úplně křehké bez ohledu na molekulové hmotnosti a tažnost jednotlivých složek.

Pro zlepšení kompatibility PPE/PP směsí bylo prováděno mnoho pokusů. Běžnou technikou je inkorporovat do takových směsí malé množství jednoho nebo více kompatibilizujících elastomerních polymerů. Například byly použity hydrogenované styren-dienové blokové kopolymery pro kompatibilizaci a ztužení PP/PPE směsí, jak je popsáno v práci Akkapeddiho a Van Buskirka (Adv. in Poly Sci., 1992, 11 str. 263). Takové směsi však vykazují málo nebo vůbec nezvýšenou tuhost ve srovnání se samotným PP. JP 04068043-A podobně popisuje vstříkovací kompozici, o které se uvádí, že má zlepšenou rázovou pevnost, založenou na směsi PP, PPE a elastomeru, která může obsahovat ethylen/propylenový kaučuk, ethylen/propylen/dienový kaučuk a/nebo blokové kopolymery butadienu a styrenu.

Dále JP 0429391-A popisuje směsi, o kterých se uvádí, že mají zlepšenou rázovou pevnost a odolnost k rozpouštědlu, na bázi směsi PP, PPE a 0,5 dílů hmotnostních (na 100 pp + PPE) bromovaného butylkaučuku. JP 04293942-A popisuje podobné kompozice, obsahující také hydrogenovaný blokový kopolymer polystyren-polybutadien-polystyren (SEBS). JP 04293943-A popisuje kompozici, obsahující směs PP, PPE, hydrogenovaného SBS blokového kopolymeru a halogenovaného (bromovaného) SBS blokového kopolymeru.

I když tato i jiná řešení mohou vést ke směsným kompozicím na bázi PPE, vykazujícím určitá zlepšení v mechanických vlastnostech a zpracovatelnosti, vykazují takové směsi obvykle špatnou tuhost a/nebo modulové vlastnosti. Navíc, přítomnost dienového nenasycení ve mnoha těchto kompatibilizujících polymerech, např. SBS blokových kopolymerech a/nebo butylkaučuku, může vést ke snížení tepelné stability a stability vůči ultrafialovému záření ve výsledných směsích.

### Podstata vynálezu

Předložený vynález poskytuje termoplastické polymerové kompozice, mající vysokou rázovou pevnost, vysokou tepelnou odolnost a dobrou zpracovatelnost, obsahující směs:

- a) polypropylenu;
- b) poly(fenyleneetheru); a
- c) interpolymery C<sub>4</sub> až C<sub>7</sub> isomonoolefinu, obsahujícího od asi 0,5 do 20 mol.% kopolymerovaného para-alkylstyrenu, para-halogenalkyl nebo směsí para-alkylstyrenu a para-halogenalkylstyrenu (dále zde isooolefinový interpolymery).

Preferované směsi obsahují od asi 25 do 65 % hmotn. propylenového polymeru, asi 30 až 70 % hmotn. poly(fenyleneetheru) a od asi 1 do 20 % hmotn. isomonoolefinového interpolymery, vztaženo na obsah polymeru ve směsi.

Vynález také poskytuje způsob zlepšení fyzikálních vlastností a kompatibility kompozic, obsahujících krystalické propylenové polymery a poly(fenyleneether)polymery, zahrnující smísení taveniny těchto složek s od asi 1 do asi 20 % hmotn. vztaženo na obsah polymeru, isomonoolefinového interpolymery. Isoolefinový kopolymer může obsahovat od asi 0,5 do 20 mol. % kopolymerovaného para-substituovaného styrenu při teplotě v rozsahu od asi 260 °C do 310 °C až do získání jednotné směsi.

Isomonoolefinový interpolymery výhodně obsahuje funkcionalizované interpolymery připravené nahrazením části benzylického vodíku funkčními skupinami jako je halogen nebo jiné funkční skupiny uvedené zde dále. Kompozice může také obsahovat jeden nebo více dalších modifikovaných polymerů jako

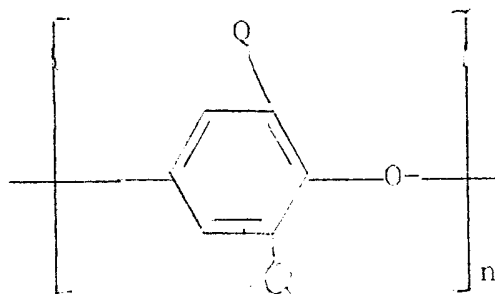
je polystyren, houževnatý polystyren, hydrogenované styren/dien/styren blokové kopolymery a podobné polymery. Kompatibilizované směsi podle předloženého vynálezu spojují dobré mechanické vlastnosti a vysokou tepelnou odolnost PPE polymerů s vynikající zpracovatelností a ekonomičností krystalických propylenových polymerů a tím poskytují tvarované výrobky, např. vlákna, folie a vstřikované výrobky o vysoké rázové pevnosti, vysoké tepelné odolnosti a se zlepšenými mechanickými vlastnostmi.

Bylo demonstrováno, že interpolymery isobutylen/para-methylstyren, zejména na benzylickém uhlíkovém atomu halogenované interpolymery, jsou schopné interagovat s poly(fenylene ether)polymery, když se taví při vysoké teplotě, zejména za přítomnosti reakčního promotoru jako je oxid zinečnatý, jak je popsáno v související US přihlášce číslo 08/306047, podané 14.září 1994.

Předložený vynález je založen na těchto objevech a poskytuje kompatibilizované směsi, obsahující krystalický propylenový polymer a poly(fenylene ether)polymer, mající zlepšenou zpracovatelnost a zlepšené mechanické vlastnosti.

Poly(fenylene ether) (PPE) termoplastické zpracovatelné pryskyřice, které se používají podle tohoto vynálezu jsou dobře známé, komerčně dostupné materiály vyráběné oxidační kondenzační polymerací alkyl substituovaných fenolů. Obecně jsou to lineární, amorfní polymery, mající teplotu skelného přechodu v rozmezí asi 190 °C až 235 °C.

Preferované PPE materiály obsahují strukturu vzorce



kde Q je jednovazná substituentová skupina vybraná z halogenu, uhlovodíku, majícího méně než 8 atomů uhlíku, hydrokarbonoxy a halogenhydrokarbonoxy. Výhodněji jsou Q stejné nebo rozdílné alkylové skupiny, mající 1 až 4 atomy uhlíku a n je celé číslo alespoň 100, výhodně od 150 do asi 1200. Příklady preferovaných polymerů jsou

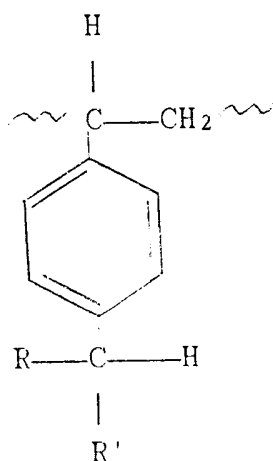
poly(2,6-dialkyl-1,4-fenyleneether) jako je  
 poly(2,6-dimethyl-1,4-fenyleneether),  
 poly(2-methyl-6-ethyl-1,4-fenyleneether),  
 poly((2-methyl-6-propyl-1,4-fenyleneether),  
 poly-(2,6-dipropyl-1,4-fenyleneether) a  
 poly(2-ethyl-6-propyl-1,4-fenyleneether). Tyto polymery a způsob jejich přípravy jsou blíže popsány v US patentu 3383435, jehož plný popis je zde zahrnut jako odkaz.

Krystalické propylenové polymery, které jsou přítomny jako směsná složka v kompozici podle vynálezu zahrnují polypropylen a krystalické kopolymery propylenu s až asi 20 % hmotn. kopolymerovatelného C<sub>2</sub> nebo C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub> monoolefinu, nejvýhodněji ethylenu. Tyto polymery jsou v oboru dobře známé a obecně se připraví polymerací propylenu nebo směsi propylen/monoolefin za přítomnosti tak zvaných tranzitních katalyzátorů typu Ziegler/Natta, např. halogenidů přechodových kovů kombinovaných s trialkylaluminiovou sloučeninou. Polypropylen může být také připraven za přítomnosti metalocenů a aktivátorů.

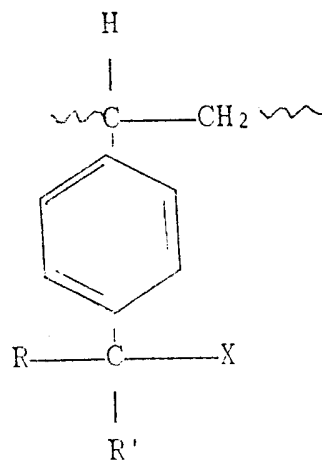
Preferované propylenové polymery pro použití podle předloženého vynálezu vykazují index toku taveniny při 250 °C v rozmezí od asi 0,1 do 100, výhodněji od asi 0,1 do 10.

C<sub>4</sub>-C<sub>7</sub> isoolefinové interpolymery použité ve vynálezu jsou náhodné elastomerní kopolymery C<sub>4</sub> až C<sub>7</sub> isomonoolefinu jako je isobutylem a para-alkylstyrenový nebo para-halogenalkylový komonomer, výhodně para-methylstyren, obsahující alespoň asi 80 %, výhodněji alespoň asi 90 % hmotnostních para-isomeru a také zahrnují funkcionalizované interpolymery, kde jsou alespoň nějaké alkylsubstituentové skupiny přítomny ve styrenových monomerových jednotkách, obsahujících benzylický halogen nebo některou jinou funkční skupinu. Výhodné materiály mohou být charakterizovány jako isobutylenové interpolymery, obsahující následující monomerové jednotky náhodně zavěšené podél polymerového řetězce:

1.



a popřípadě 2.



kde R a R' jsou nezávisle vodík, nižší alkyl, výhodně C<sub>1</sub> až C<sub>7</sub> alkyl a primární nebo sekundární alkylhalogenidy a X je funkční skupina jako je halogen. Výhodně jsou R a R' každý

vodík. Až 60 mol.% para-substituovaného styrenu přítomného v interpolymerové struktuře může být funkcionalizovaná struktura (2) uvedená výše.

Jestliže monomerové jednotky 2 ve výše uvedeném vzorci nejsou přítomny, potom není isomonoolefinový interpolymer funkcionalizován, tj. je to náhodný kopolymer isomonoolefinu a para-alkylstyrenu. Nejpreferovanější z interpolymerů jsou kopolymery isobutylenu a para-methylstyrenu, obsahující od asi 0,5 do asi 20 mol.% para-methylstyrenu náhodně kopolymerovaného podél polymerového řetězce.

Jestliže jsou monomerové jednotky 2 ve výše uvedeném vzorci přítomny, je isomonoolefinový interpolymer alespoň terpolymer, obsahující od asi 0,5 do 60 mol.% funkcionalizovaných monomerových jednotek 2 vztaženo k obsahu aromatických monomerových jednotek 1 a 2. Funkční skupina X může být halogen nebo některá jiná funkční skupina inkorporovaná nukleofilní substitucí benzylického halogenu jinými skupinami jako je alkoxid, fenoxid, karboxylát, thiolát, thioether, thiokarbamát, dithiokarbamát, thiomčovina, xantát, kyanid, malonát, amin, amid, karbazol, ftalamid, maleimid, kyanát a jejich směsi. Tyto funkcionalizované isomonoolefinové interpolymery a jejich způsob přípravy jsou podrobněji popsány v US patentu 5162445, jehož plný popis je zde zahrnut jako odkaz.

Nejvhodnější z takových funkcionalizovaných materiálů jsou elastomerní náhodné interpolymery isobutylenu a para-methylstyrenu, obsahující od asi 0,5 do asi 20 mol.% para-methylstyrenu, kde až asi 60 mol.% methyl substituovaných skupí přítomných na benzylovém bruhu obsahuje atom bromu nebo chloru, výhodně atom bromu. Tyto polymery mají v podstatě

homogenní distribuci kompozice, takže alespoň 95 % hmotn. polymeru má obsah para-alkylstyrenu a para-benzylického halogenalkylstyrenu 10 % průměrného obsahu para-alkylstyrenu v polymeru. Preferovanější polymery jsou také charakterizovány úzkou distribucí molekulové hmotnosti ( $M_w/M_n$ ) menší než asi 5, výhodněji méně než asi 2,5, preferovanou viskozitou průměrné molekulové hmotnosti v rozmezí od asi 200000 do asi 200000 a preferovanou číselnou molekulovou hmotností v rozmezí od asi 25000 do asi 750000 stanovenou gelovou permeační chromatografií.

Interpolymery mohou být připraveny suspenzní polymerací monomerové směsi za použití Lewisovy kyseliny jako katalyzátoru, s následující halogenací, výhodně bromací, v roztoku za přítomnosti halogenu a radikálového iniciátoru jako je teplo a/nebo světlo a/nebo chemický iniciátor.

Preferované interpolymery jsou bromované interpolymery, které obecně obsahují od asi 0,1 do asi 5 mol.% brommethylových skupin. Preferovanější interpolymery obsahují od asi 0,05 do asi 2,5 hmotn.% bromu vztaženo na hmotnost interpolymery, nejvýhodněji od asi 0,05 do 0,75 % hmotn. bromu a jsou v podstatě prosté kruhového halogenu nebo halogenu v polymerovém základním řetězci.

Tyto interpolymery, způsob jejich přípravy, způsob jejich tvrzení a roubování nebo funkcionalizované polymery z nich odvozené jsou podrobněji popsány ve výše zmíněném US patentu č. 5162445, který je zde zahrnut jako odkaz.

Za účelem dosažení dobré rovnováhy mezi zvýšenými mechanickými vlastnostmi a zpracovacími vlastnostmi, mohou být polymerové složky smíseny v rozmezí od asi 25 do 65 hmotn. %

propylenového polymeru (PP), asi 30 až 70 hmotn. % poly(fenylether)polymeru (PPE) a od asi 1 do 20 % hmotn. isomonoolefinového interpolymery, vztaženo na obsah polymeru ve směsi. Preferovanější směsi obsahují od asi 35 do 55 % hmotn. PP, 35 až 55 % hmotn. PPE a asi 5 až 10 % hmotn. isomonoolefinového interpolymery, vždy vztaženo na obsah polymeru ve směsi.

Kompatibilita tříložkové směsi může dále být zvýšena, jestliže isomonoolefinový interpolymery obsahuje benzylickou funkční skupinu jako je halogen, např. brom, která je schopna reakce s PPE za podmínek míchání. Tato reakce může být dále promována zahrnutím katalyzátoru do formulace, kde tento bude promovat elektrofilní substituční reakci, jako je oxid zinečnatý, oxid hořečnatý, bromid zinečnatý, chlorid železitý a podobně. Tyto promotory mohou být přidávány v koncentraci v rozmezí od asi 0,01 do asi 1,5 % hmotn., výhodněji od asi 0,05 do asi 0,5 % hmotn. vztaženo na obsah halogenovaného interpolymery přítomného v kompozici.

Zpracovatelnost kompozice v tavenině může být dále zvýšena nebo řízeny zahrnutím popřípadě vinylaromatického polymeru nebo kopolymeru do kompozice navíc k isoolefinovému interpolymery. Příklady takových polymerů jsou polystyren, kopolymery styrenu s méně než 50 % hmotn. akrylonitrilu, blokové kopolymery styrenu s konjugovaným dienem jako je butadien nebo isopren jakož i jejich hydrogenované nebo částečně hydrogenované verze, vysoce houževnatý polystyren a jejich směsi. Zvláště preferovaným styrenovým polymerem pro tento účel je hydrogenovaný styren-dien-styrenový blokový kopolymer, správněji označovaný jako styren-ethylen/butylen-styren (SEBS) blokový kopolymer. Tyto styrenové polymery obecně mají číselnou průměrnou molekulovou

hmotnost v rozmezí asi 25000 až 1000000 a mohou být zahrnuty v kompozici v koncentraci asi 1 až 10 % hmotn. vztaženo na celkový obsah polymeru ve směsi.

Protože isoolefinový interpolymery je zcela lepkavý i při teplotě místnosti, může být žádoucí vytvořit nejprve masterbatch kompozici interpolymery smíšeného s dalším polymerem jako je olefinový polymer, směs tavit a extrudovat směs za vzniku nelepkavých pelet. Tyto pelety mohou být taveny s PPE za vzniku jedné složky směsi podle vynálezu. Vhodné olefinové polymery zahrnují jeden nebo směs krystalizovatelných polymerů jako je polypropylen, vysokohustotní polyethylen a kopolymery ethylen/propylen jakož i amorfní polymery jako je nízkohustotní polyethylen a kopolymery ethylen/propylen a až 10 % hmotn. nekonjugovaného dienu jako je norbornadien, 1,4-hexadien, dicyklopentadien a podobně. Obecně řečeno tyto masterbatch předsměsi mohou obsahovat od asi 50 do 95 % hmotn. interpolymery a zbytek tvoří jeden nebo směs olefinových polymerů, nejvýhodněji krystalický propylenový polymer. Lepivost může také být snížena předchozím poprášením interpolymery oxidem zinečnatým nebo jiným z práškovanych reakčních promotorů popsanych výše.

Alternativně mohou být směsi připraveny kombinací všech polymerových složek za podmínek stříhového mísení za použití jakéhokoliv vhodného zařízení pro mísení taveniny jako je Banbury Mixer, nebo výhodněji mixér/extruder. Preferované teploty mísení jsou v rozmezí od asi 260 °C do asi 310 °C, výhodněji od asi 270 °C do asi 300 °C, po dobu dostačující k dosažení homogenní disperze polymerových složek v matrici polymeru, obvykle asi 0,5 až 4 minuty.

Ve výhodnějším provedení vynálezu je provedení směsi takové, že PP slouží jako matricová polymerová fáze a PPE tvoří dispergovanou fázi v PP matrici. Elastomerní interpolymerní má sklon naopak být dispergován v PPE dispergované fázi jako jemné kulovité částice, čímž slouží ke ztužení PPE dispergované fáze. Také se očekává, že některé interpolymerní dispergované částice mohou migrovat ke styčné ploše mezi PP a PPE fázemi, čímž slouží ke kompatibilizaci PP/PPE směsi bez migrace do PP matrice, což by mohlo vést k podstatné ztrátě tuhosti ve směsné kompozici.

Kompozice podle předloženého vynálezu mohou také obsahovat účinná množství jiných složek normálně zahrnutých v PPE kompozicích, zahrnujících antioxidanty, pigmenty, barviva, plniva, plastifikátory a podobně.

Následující příklady ilustrují vynález. Materiál označovaný v následujícím popise jako "Exxpro"<sup>TM</sup> elastomer je benzylický bromovaný interpolymerní isobutylenu a para-methylstyrenu (PMS), obsahující 5 % hmotn. PMS, 0,3 % mol benzylicky bromovaného PMS (měřeno pomocí NMR), 0,5 hmotn. % bromu vztaženo na hmotnost polymeru (měřeno rentgenovou fluorescencí). Interpolymerní má viskozitní průměrnou molekulovou hmotnost 300000 měřeno jako zředěný roztok diisobutylenu při 20 °C. Další materiály uváděné dále jsou obchodně dostupné takto:

PP - polypropylenový homopolymer dostupný od Exxon Chemical Corp. pod ochranným názvem ExcCorene PP1042, tavný index = 1,9.

PPE - poly(2,6-dimethyl-1,4-fenyleneether) dostupný od GE plastics pod ochranným označením PPO<sup>R</sup>-N640.

SEBS - Kraton-G 1650 dostupný od Shell

EXXPRO™ -výše popsáný bromovaný kopolymer isobutylenu a paramethylstyrenu dostupný od Exxon Chemical Corp.

#### Příklady provedení vynálezu

Binární směsi z příkladů, obsahující PPE a PP byly vyrobeny v W/P ZSK-30-ko-rotacním extrudéru se záběrovým otočným šnekem opatřeným pramenovou hubicí na výstupu extruderu. Kompozice byly smíseny a extrudovány při teplotním profilu 260 °C až 310 °C. Elastomer obsahující směsi byly připraveny nejprve mísením PPE a elastomeru(ů) v extruderu při teplotním profilu 270 °C až 310 °C, peletizací extrudátu ochlazením vodou a pak smísením pelet s PP ve WP extruderu. Všechny produkty obsahují asi 0,5 % hmotn. antioxidantu a vzorky, obsahující EXXPRO™ také obsahují 0,1 % hmotn. oxidu zinečnatého vztaženo na hmotnost EXXPRO™ polymeru. Extrudované pelety byly sušeny pro odstranění jakékoliv povrchové vlhkosti.

Mechanické testy byly získány vstřikováním pelet do mechanických vstřikovacích sloupců za použití 15 ton Boy<sup>R</sup> vstřikovacího zařízení. Testy byly provedeny podle následujících postupů.

Zkouška	zkušební metoda
pevnost v tahu	ASTM D-638
prodloužení	ASTM D-638
vrubová Izod rázová pevnost	ASTM D-256
modul v ohybu	ASTM D-790
teplota tepelného zborcení (HDT)	ASTM D-648

## Příklad 1

Výše popsaným způsobem mísení byly připraveny serie různých formulací (B-I) a kontrolní PP (A). Tyto formulace mají složení uvedené v tabulce 1. Výsledky zkoušek mechanických vlastností jsou také uvedeny v tabulce 1.

Tabulka 1

Složení a vlastnosti	A	B	C	D	E	F	G
PP	100	70	60	50	50	50	50
PPE		30	40	50	40	40	36
SEBS					10		5
EXXPRO™						10	9
vrubová Izod pevnost (J/m)	20	27	27	21	165	64	176
modul v ohybu (MPa)	132,9	1290	1380	1545	1130	1505	1314
pevnost v tahu (MPa)	36,2	33,1	33,8	37,2	33,8	30,8	28,2
přetvoření tahem (%)	234	9	7	6	207	16	93
HDT °C @ 66 psi zatížení	83	148	156	163	nz	146	122

nz = nezkoušeno

Příklad A je PP kontrola. PP má nízkou rázovou pevnost (< 50 J/m) a nízkou HDT.

Příklady B, C a D jsou PP/PPE binární směsi použité jako

kontroly. PPE obsah má silně pozitivní vliv na modul v ohybu a teplotu tepelného zborcení, mírně pozitivní vliv na pevnost v tahu, ale nežádoucí vliv na vrubovou Izod pevnost a přetvoření tahem. Morfologie směsi z příkladu D je charakterizována velmi velkými a nejednotně dispergovanými fázemi PPE v PP matrici, jak bylo stanoveno mikroskopickým hodnocením.

Příklad E je kontrolní směs PP s PPE a SEBS. Ve srovnání s příkladem D obsahujícím stejné množství PPE, vykazuje tento příklad větší zlepšení ve vrubové Izod pevnosti a prodloužení, ale je zde větší ztráta tuhosti. Tuhost je nižší než u příkladu A.

Příklad F je směs PP s PPE/Exxpro™ směsí. Ve srovnání s příkladem C obsahujícím stejné množství PPE tato směs vykazuje mnohem větší modul v ohybu, zlepšené přetvoření tahem a vrubovou Izod pevnost. Mikroskopické hodnocení ukazuje, že morfologie této směsi (příklad F) je charakterizována homogenně dispergovanými fázemi PPE v PP matrici a PPE dispergované fáze jsou mnohem jemnější než u kontrolního příkladu D.

Příklad G zahrnuje jak SEBS tak Exxpro™ v PP/PPE směsích. Ve srovnání s příklady E a F obsahujícími více PPE tato směs vykazuje vrubovou Izod pevnost podobnou pevnosti v příkladu E mnohem vyšší než v příkladu E. Tato směs vykazuje mnohem lepší rovnováhu houževnatost/tuhost a její HDT je stále ještě vyšší než v PP (příklad A). Mikroskopické hodnocení ukazuje morfologii této směsi (příklad G) jako vyznačující se také homogenně dispergovanými fázemi PPE v PP matrici, a PPE dispergované fáze jsou dokonce jemnější než v příkladu F, což demonstruje další kompatibilizační vliv SEBS blokového kopolymeru.

JUDr. Petr KALENSKY  
advokát

SPOLEČNÁ ADVOKÁTNÍ KANCELÁŘ  
VŠETEČKA ZELENÝ ŠVORČÍK KALENSKÝ

A PARTNEŘI

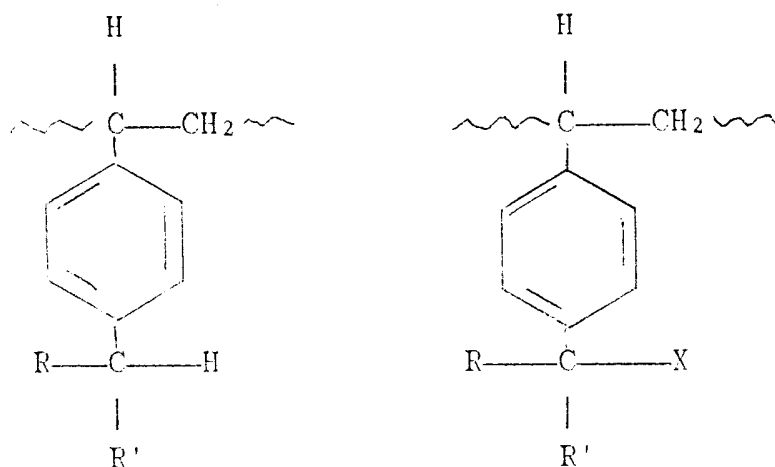
120 00 Praha 2, Hájkova 2

Česká republika

15.12.97

## P A T E N T O V É N Á R O K Y

1. Termoplastická polymerová kompozice, obsahující směs
  - a) polypropylenu,
  - b) poly(fenyleneetheru) a
  - c) interpolymery C<sub>4</sub>-C<sub>7</sub> isomonoolefinu, obsahujícího od asi 0,5 do asi 20 mol. % kopolymerovaného para-alkylstyrenu.
  
2. Kompozice podle nároku 1, obsahující od asi 1 do 20 % hmotn. uvedeného interpolymery, vztaženo na obsah polymeru v uvedené směsi.
  
3. Kompozice podle nároku 2, obsahující od asi 25 do 65 % hmotn. uvedeného polypropylenu a asi 20 až 70 % hmotn. uvedeného poly(fenyleneetheru), vztaženo na obsah polymeru v uvedené směsi.
  
4. Kompozice podle nároku 1, kde uvedený isomonoolefin je isobutylen a uvedený para-alkylstyren je para-methylstyren.
  
5. Kompozice podle nároku 1, kde interpolymery je polymer isobutylenu, obsahující následující aromatické monomerové jednotky náhodně zavěšené podél polymerového řetězce:



kde R a R' jsou nezávisle vodík, C<sub>1</sub> až C<sub>4</sub> alkyl a primární nebo sekundární alkyhalogenidy a X je funkční skupina.

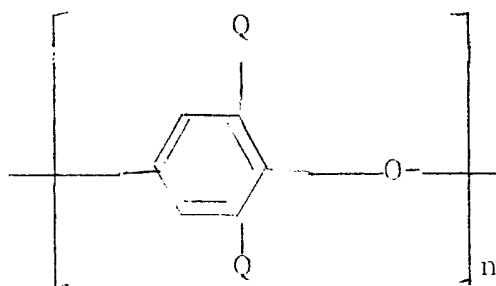
6. Kompozice podle nároku 4, kde X-obsahující monomerové jednotky tvoří od asi 0,5 do 60 mol.% celkového obsahu uvedených aromatických monomerových jednotek přítomných v uvedeném interpolymere.

7. Kompozice podle nároku 5, kde X je halogen.

8. Kompozice podle nároku 7, kde R a R' jsou každý vodík a X je brom přítomný v uvedeném interpolymere ve hladině nižší než asi 2,5 % hmotn.

9. Kompozice podle nároku 8, kde brom je přítomen v uvedeném interpolymere v koncentraci od asi 0,05 do asi 0,75 % hmotn.

10. Kompozice podle nároku 1, kde uvedený poly(fenyleneether) obsahuje strukturu



kde Q je stejná nebo odlišná alkylová skupina, mající 1 až 14 atomů uhlíku a n je celé číslo alespoň 100.

11. Kompozice podle nároku 10, kde uvedený poly(fenyleneether) je poly(2,6-dimethyl-1,4-fenyleneether).

12. Kompozice podle nároku 1 dále obsahující od asi 1 do asi 10 hmotn. % vinylaromatického polymeru vztaženo na celkový obsah polymeru ve směsi.

13. Kompozice podle nároku 12, kde uvedený vinylaromatický polymer je styren-ethylen/butylen-styrenový blokový kopolymer.

14. Kompozice podle nároku 1, kde uvedený propylenový polymer je propylen, mající index toku taveniny při 230 °C v rozmezí asi 0,1 až 100.

15. Kompozice podle nároku 7 dále obsahující od asi 0,01 do asi 1,5 hmotn. % elektrofilního reakčního promotoru, vtaženo na hmotnost uvedeného interpolymery přítomného v kompozici.

16. Kompozice podle nároku 15, kde uvedeným reakčním promotorem je oxid zinečntý.

17. Způsob přípravy kompatibilní termoplastické polymerové směsi, zahrnující

- a) vytvoření směsi, obsahující od asi 25 do 65 % hmotn. krystalického propylenového polymeru, od asi 30 do 70 % hmotn. poly(fenyleneether)polymeru a od asi 1 do 20 % hmotn. interpolymery C<sub>4</sub> až C<sub>7</sub> isomonoolefinu, obsahujícího asi 0,5 až 20 mol.% kopolymerovaného para-alkylstyrenu a
- b) tavení uvedené směsi při teplotě v rozmezí asi 260 °C až 310 °C až do získání homogenní směsi.

18. Způsob podle nároku 17, kde uvedený interpolymery je bromovaný polymer isobutylenu a para-methylstyrenu, obsahující brom v koncentraci od 0,05 do asi 0,75 % hmotn.

19. Způsob podle nároku 18, kde se uvedený poly(fenyleneether)polymer a uvedený interpolymery nejprve smísí v tavenině při teplotě v rozmezí asi 270 °C až 320 °C za vzniku homogenní směsi a uvedená homogenní směs se následně v tavenině smísí s uvedeným polypropylenem.

20. Výrobek připravený tepelným tvarováním kompozice podle nároku 1.

JUDr. Petr KALENSKY  
advokát



SPOLEČNÁ ADVOKÁTNÍ KANCELÁŘ  
VŠETEČKA ZELENÝ ŠVORČÍK KALENSKÝ  
A PARTNEŘI  
120 00 Praha 2, Hájkova 2  
Česká republika