
Octrooiraad



⑩ A **Terinzagelegging** ⑪ **8100352**

Nederland

⑲ NL

- ⑤4 **Copolymeren van etherimiden en amiden.**
- ⑤1 Int.Cl.³: C08G 73/14.
- ⑦1 Aanvrager: General Electric Company te Schenectady, New York, Ver. St. v. Am.
- ⑦4 Gem.: Ir. G.H. Boelsma c.s.
Octrooibureau Polak & Charlouis
Laan Copes van Cattenburch 80
2585 GD 's-Gravenhage.

-
- ②1 Aanvraag Nr. 8100352.
- ②2 Ingediend 26 januari 1981.
- ③2 Voorrang vanaf 30 januari 1980.
- ③3 Land van voorrang: Ver. St. v. Am. (US).
- ③1 Nummer van de voorrangsaanvraag: 116894 .
- ⑥2 - -

-
- ④3 Ter inzage gelegd 1 september 1981.

De aan dit blad gehechte stukken zijn een afdruk van de oorspronkelijk ingediende beschrijving met conclusie(s) en eventuele tekening(en).

Copolymeren van etherimiden en amiden.

De uitvinding heeft betrekking op copolymeren die zowel zich herhalende amide (A) -eenheden als zich herhalende etherimide (EI) -eenheden bevatten, welke copolymeren geschikt zijn voor bekledings- en vormingsdoel-einden. Meer in het bijzonder heeft de uitvinding betrekking op een copoly-
 5 meer dat bevat: (1) 5-95 mol % chemisch gebonden eenheden volgens formule (1) van het formuleblad, en (2) 95-5 mol % chemisch gebonden eenheden volgens formule (2) van het formuleblad, waarbij de -C(O)-eenheden in formule (1) zich in de meta- of para-positie t.o.v. elkaar bevinden; R gekozen is uit: (a) tweewaardige organische groepen met de formules (3), (4), (5), (6),
 10 (7) en (8) van het formuleblad, en (b) tweewaardige organische groepen volgens de algemene formule (9) van het formuleblad, waarin X een groep $-C \begin{smallmatrix} H \\ Y \end{smallmatrix} \begin{smallmatrix} H \\ 2Y \end{smallmatrix}$ - voorstelt, en welke laatste groep y een geheel getal met een waarde van 1-5 is; en R¹ een tweewaardige organische groep voorstelt, en wel (a) een aromatische koolwaterstofgroep met 6-20 koolstofatomen of een gehalo-
 15 geneerd derivaat hiervan, (b) een alkyleengroep of cycloalkyleengroep met 2-20 koolstofatomen, (c) een polydiorganosiloxan met eindstandige C₂-C₈-alkyleengroepen, (d) een tweewaardige groep volgens formule (10) van het formuleblad, waarin Q voorstelt: -O-, -C(O)-, -SO₂-, -S- of $-C \begin{smallmatrix} H \\ x \end{smallmatrix} \begin{smallmatrix} H \\ 2x \end{smallmatrix}$ -, in welke laatste groep x een geheel getal met een waarde van 1-5 is.

20 Aan de gekombineerde willekeurig verdeelde eenheden of blok-copolymeren kan de algemene formule (11) van het formuleblad worden toegekend, in welke formule R en R¹ de hierboven gegeven betekenissen bezitten, m en n onafhankelijk van elkaar hele getallen met een waarde van ten minste 1 voorstellen (bijv. 5-5000 of meer), en p een geheel getal met een waarde
 25 van meer dan 1 voorstelt, bijv. 5-10.000 of meer en bij voorkeur 10-1000.

Vóór de imidisatie bevinden de copolymeren zich in de amide-vorm die kan worden voorgesteld door de algemene formule (12) van het formuleblad, bijv. copolymeren volgens formule (13) van het formuleblad, in welke formules R, R', m, n en p de hierboven gegeven betekenissen be-
 30 zitten.

Het is bekend dat polyamiden volgens de algemene formule (14) van het formuleblad, waarin R' en p de hierboven gegeven betekenissen bezitten, een goede chemische en thermische bestandheid bezitten. Ofschoon deze aromatische polyamiden voor bekledingstoepassingen kunnen worden opge-
 35 lost in geschikte oplosmiddelen, zijn deze polyamiden vaak moeilijk tot voorwerpen te vormen en vereisen bij de vormbewerking overmatig hoge temperaturen en drukken. Het is bekend dat polyetherimiden goede eigenschappen bij hoge temperaturen bezitten en geschikter zijn voor praktische

8100352

vormbewerkingen; het zou echter van voordeel zijn de chemische bestandheid van deze polyetherimiden te verbeteren en hun kosten voor vormbewerkingen en bekledingstoepassingen te verlagen.

Verrassenderwijs werd gevonden dat men copolymeren, die
5 chemisch gebonden eenheden volgens formules (1) en (2) over een ruim traject van molaire concentraties bevatten, kan bereiden met eigenschappen die gemodificeerd zijn t.o.v. de eigenschappen van homopolymeren van deze eenheden. In sommige gevallen zijn de verbeteringen in de eigenschappen bijzonder verrassend gezien de in het copolymeer aanwezige hoeveelheid A-eenheden of
10 EI-eenheden. Door bereiding van de bovenbeschreven copolymeren kan de geschiktheid van de laatstgenoemde aanzienlijk verruimd worden. Verder kunnen door het combineren van deze twee eenheden in het copolymeer producten worden verkregen die goedkoper zijn dan alleen polyetherimiden, zonder dat de fysische eigenschappen achteruitgaan of in belangrijke mate achteruit-
15 gaan.

Een voorkeursgroep van copolymeren volgens formule (11) zijn copolymeren die circa 2-5000 of meer en bij voorkeur 5-100 eenheden volgens formule (15) van het formuleblad bevatten, in welke formule R^1 de hierboven gegeven betekenissen bezit en R^2 een groep met de formule (16) van het
20 formuleblad voorstelt.

Voorbeelden van etherimide-eenheden volgens formule (15) als deel van de copolymeermoleculen, zijn de eenheden volgens formule (17), (18) en (19) van het formuleblad en combinaties hiervan, in welke formules R^1 en R^2 de hierboven gegeven betekenissen bezitten.

25 De copolymeren volgens formule (11) kunnen bereid worden door een aromatisch bis(etheranhydride) volgens de algemene formule (20) van het formuleblad om te zetten met een isoftaloyl- of tereftaloylchloride (hier verder ook wel algemeen aangeduid als "ftaloylchloride") volgens de algemene formule (21) van het formuleblad, waarin de $-C(O)-Cl$ groepen zich in
30 de meta- of para-positie t.o.v. elkaar bevinden, en een organisch diamine volgens de algemene formule (22) van het formuleblad; in formules (20) en (22) bezitten R en R^1 de hierboven gegeven betekenissen.

Men kan in totaal 0,95-1,05 mol van de verbindingen volgens formules (20) en (21) [d.w.z. de combinatie van deze verbindingen] per mol
35 organisch diamine volgens formule (22) gebruiken. Het verdient de voorkeur praktisch gelijke molaire hoeveelheden van (a) de verbindingen volgens formules (20) en (21) en (b) het organische diamine te gebruiken. De copolymeren volgens de uitvinding kunnen 10-5000 of meer eenheden volgens formules (1) en (2) bevatten en p in formule (11) bezit een waarde van 5 of meer,

bijv. 10-1000.

Het acylhalogenidederivaat volgens formule (21), dat is afgeleid van tereftaalzuur of isoftaalzuur, kan ook worden omgezet in het bromidederivaat of een ander reaktief halogenidederivaat dan de chloride-
5 derivaten.

Voor het bereiden van de copolymeren kan men ketenstoppers gebruiken, zoals aniline of organische monozuurderivaten of monoanhydriden.

In het algemeen kunnen de copolymeren van de uitvinding verkregen worden door het gekozen organische diamine en het gekozen dianhydride
10 en het ftaloylchloride respectievelijk volgens formules (20) en (21) met elkaar om te zetten in aanwezigheid van een dipolair aprotisch organisch oplosmiddel onder de omstandigheden van de omgeving, onder verkrijging van een copolymeer amidezuur. Bij verdere verhitting wordt het amidezuur geimidiseerd en het verkregen copolymeer bevat willekeurig verdeelde eenheden
15 volgens formules (1) en (2). Afhankelijk van het gehalte aan vaste stof van de oplossing van het polyamidezuur, kan de omzetting worden voltooid in 0,5-2 uren of een langere periode. Na voltooiing van de omzetting kan de oplossing op een substraat worden gegoten zodat verdamping van het organische oplosmiddel plaatsvindt. Door verhitting op temperaturen van 150°-
20 200° C of hogere temperaturen wordt het copolymere polyamidezuur omgezet in een polyimide, zodat het uiteindelijk verkregen polymeer een goede thermische bestandheid, een goede bestandheid tegen chemicaliën (bijv. een goede bestandheid tegen oplosmiddelen) en een goede vormbaarheid bezit. Deze materialen zijn in het bijzonder geschikt als draadbekledingslakken
25 en verlenen bestandheid tegen oplosmiddelen en thermische bestandheid aan verscheidene substraten.

Het aromatische bis(etheranhydride) volgens formule (20) kan bereid worden door hydrolyse van door nitro gesubstitueerd fenyldinitrile gevolgd door de hydratering en vervolgens omzetting met een dialkalimetaal-
30 zout van een arylverbinding met twee hydroxygroepen in aanwezigheid van een dipolair aprotisch oplosmiddel; het alkalimetaalzout bezit de algemene formule (23) van het formuleblad, waarin R^1 de hierboven gegeven betekenissen bezit en bij voorkeur dezelfde betekenis heeft als R^2 , en Alk een alkali-metaalion voorstelt. Men kan verschillende bekende methoden toepassen om
35 de verkregen tetranitrilen om te zetten in de overeenkomstige tetrazuren en dianhydriden.

Voorbeelden van de alkalimetaalzouten van de bovengenoemde tweewaardige fenolen zijn de natrium- en kaliumzouten van de onderstaande tweewaardige fenolen:

8100352

- 2,2-bis(hydroxyfenyl)propaan;
2,4'-dihydroxydifenylmethaan
bis-(2-hydroxyfenyl)-methaan;
2,2-bis-(4-hydroxyfenyl)propaan (hier verder ook wel "bisfenol-A" of
5 "BFA" genoemd)
1,1-bis-(4-hydroxyfenyl)ethaan;
1,1-bis-(4-hydroxyfenyl)propaan
3,3-bis-(4-hydroxyfenyl)pentaan;
4,4'-dihydroxybifenyl;
10 4,4'-dihydroxy-3,3',5,5'-tetramethylbifenyl;
2,4-dihydroxybenzofenon;
4,4'-dihydroxydifenylsulfon;
2,4'-dihydroxydifenylsulfon;
4,4'-dihydroxydifenylsulfoxide;
15 4,4'-dihydroxydifenylsulfide; enz.

Voorbeelden van organische diaminen volgens formule (22)

- zijn:
m-fenyleendiamine;
p-fenyleendiamine;
20 4,4'-diaminodifenylpropaan;
4,4'-diaminodifenylmethaan;
benzidine;
4,4'-diaminodifenylsulfide;
4,4'-diaminodifenylsulfon;
25 4,4'-diaminodifenylether (4,4'-oxydianiline);
1,5-diaminoftaleen;
3,3'-dimethylbenzidine;
3,3'-dimethoxybenzidine;
2,4-diaminotolueen; 2,6-diaminotolueen;
30 2,4-bis (β -amino-t-butyl)tolueen;
bis(p- β -methyl-o-aminopentyl)benzeen;
1,3-diamino-4-isopropylbenzeen;
1,2-bis(3-aminopropoxy)ethaan;
m-xylyleendiamine;
35 p-xylyleendiamine;
bis(4-aminocyclohexyl)methaan;
3-methylheptamethyleendiamine;
4,4-dimethylheptamethyleendiamine;
2,11-dodecaandiamine;

8100352

- 2,2-dimethylpropyleëndiamine;
octamethyleëndiamine;
3-methoxyhexamethyleëndiamine;
2,5-dimethylhexamethyleëndiamine;
5 3-methylheptamethyleëndiamine;
5-methylnonamethyleëndiamine;
1,4-cyclohexaandiamine;
1,12-octadecaandiamine;
bis(3-aminopropyl)sulfide;
10 N-methyl-bis(3-aminopropyl)amine;
hexamethyleëndiamine;
nonamethyleëndiamine; 2,6-diaminotolueen;
bis-(3-aminopropyl)tetramethyldisiloxan, enz.

Het copolymere materiaal kan gewapend worden met verschillen-
15 de deeltjesvormige vulstoffen zoals glasvezels, siliciumoxide en koolstof-
"whiskers" in een hoeveelheid tot 50 gew.% of meer van het copolymeer.

De uitvinding wordt nader toegelicht in de onderstaande, niet-
beperkende voorbeelden.

Voorbeeld I

20 Dit Voorbeeld beschrijft de bereiding van een homopolyamide
uit isoftaloylchloride en 4,4'-oxydianiline. Dit homopolymeer wordt ver-
geleken met een copolymeermateriaal dat dezelfde organische diaminover-
binding bevat. 2,03 gram (0,01 mol) isoftaloylchloride en 2,0 gram (0,01
mol) 4,4'-oxydianiline werden opgelost in 15 cm³ N-methylpyrrolidon. Het
25 mengsel werd geroerd, waarbij de temperatuur door de exotherme reactie
tot 64° C steeg, onder verkrijging van een oplossing van homopolymeer amide.
Uit deze oplossing werd bij 280°-300° C een film gegoten; Men verkreeg een
homogene polyamidefilm.

Voorbeeld II

30 Men bereidde een copolymeer dat A-eenheden en EI-eenheden be-
vatte, door 2,0 gram (0,01 mol) 4,4'-oxydianiline, 4,16 gram (0,008 mol)
2,2-bis[4-(3,4-dicarboxyfenoxyl)fenyl]propaan-dianhydride (bisfenol-A) en
0,41 gram (0,002 mol) isoftaloylchloride (IC) met elkaar om te zetten in
15 cm³ N-methylpyrrolidon. Het mengsel werd bij kamertemperatuur geroerd
35 totdat het helder werd, waarbij de temperatuur van het mengsel door de
exotherme reactie tot 52° C steeg. Na afkoelen werd het copolymere materiaal
als een film uitgegoten op glas met een temperatuur van circa 280°-300° C
teneinde de amidezuurgroepen te imidiseren. Dit polymeer, dat 80 mol % EI-

eenheden en mol % A-eenheden bevatte, bezat de formule (24) van het formuleblad, waarin de eenheden willekeurig verdeeld zijn, m en n onafhankelijk van elkaar gehele getallen met een waarde van meer dan 1 voorstellen en p een geheel getal met een waarde van meer dan 1 voorstelt.

5 Voorbeeld III

Onder toepassing van de in Voorbeeld II genoemde omstandigheden, werden isoftaloylchloride, bisfenol-A-dianhydride en 4,4'-oxydianiline in verschillende verhoudingen met elkaar omgezet onder toepassing van 15 cm³ N-methylpyrrolidon als oplosmiddel. De onderstaande tabel A geeft de gewichtshoeveelheden en de molaire hoeveelheden van de bestanddelen, de door de exotherme reactie bereikte temperatuur van elk reaktiemengsel en de overgangstemperatuur naar de glastoestand (T_g, een maat voor de graad van verweking van de polymeren) van het homopolymeer van Voorbeeld I en de copolymeren van Voorbeelden II en III. De copolymeren van Voorbeeld III kunnen worden voorgesteld door dezelfde algemene formule als het copolymeer van Voorbeeld II, in welke formule m en n de hierboven gegeven betekenissen bezitten en in hoofdzaak overeenkomen met de toegepaste molaire hoeveelheden van de reaktiecomponenten.

<u>Tabel A</u>									
20	IC		BFA- dianhydride		4,4'-Oxydi- aniline		Exo- therme Temp.	Tg	
Proef No.	<u>Gewicht</u> <u>(gram)</u>	<u>Mol</u>	<u>Gewicht</u> <u>(gram)</u>	<u>Mol</u>	<u>Gewicht</u> <u>(gram)</u>	<u>Mol</u>			
I									200 °C
II									221 °C
25 IIIA	1,02	0,005	2,6	0,005	2,0	0,01	55 °C		213 °C
IIIB	1,62	0,008	1,04	0,002	2,0	0,01	59 °C		234 °C

Voorbeeld IV

Onder toepassing van dezelfde reactie-omstandigheden als in Voorbeeld I, werden 2,03 gram (0,01 mol) isoftaloylchloride en 1,98 gram (0,01 mol) 4,4'-methyleendianiline met de formule (25) van het formuleblad grondig gemengd in 15 cm³ N-methylpyrrolidon, waardoor de temperatuur van het mengsel door de exotherme reactie tot 55° C steeg, onder verkrijging van een heldere oplossing van polymeer amide. Men goot bij 280°-300° C een film; men verkreeg een homogene film.

35 Voorbeeld V

Onder toepassing van de in Voorbeelden II en IV genoemde omstandigheden werden isoftaloylchloride, BFA-dianhydride en 4,4'-methyleendianiline met elkaar omgezet in 15 cm³ N-methylpyrrolidon, onder verkrijging

van een heldere oplossing van polymeer amidezuur-amide. Uit deze oplossing werd bij 280°-300° C een film gegoten, onder verkrijging van een geïmidiseerde polymere film. De onderstaande tabel B geeft de voor het bereiden van het polymeer toegepaste gewichtshoeveelheden en molaire hoeveelheden, de door de exotherme reactie bereikte temperatuur van elk reactiemengsel en de overgangstemperatuur naar de glastoestand (Tg) voor het homopolymeer en de copolymeren die met het methyleendianiline waren bereid.

TABEL B									
Proef No.	IC		BFA-dianhydride		4,4'-Methyleendianiline		Exo-therme Temp.	Tg	
	Gewicht (gram)	Mol	Gewicht (gram)	Mol	Gewicht (gram)	Mol			
IV									234°C
VA	0,41	0,002	4,16	0,008	1,98	0,01	52°C		211°C
VB	1,02	0,005	2,6	0,005	1,98	0,01	48°C		229°C
VC	1,62	0,008	1,04	0,002	1,08	0,01	47°C		239°C

De met het 4,4'-methyleendianiline bereide copolymeren kunnen worden voorgesteld door formule (26) van het formuleblad, waarin m en n de hierboven gegeven betekenissen bezitten en overeenkomen met de molaire hoeveelheden van de reactiecomponenten en p een geheel getal met een waarde van meer dan 1 is.

VOORBEELD VI

Onder toepassing van de in Voorbeeld I vermelde omstandigheden werden 2,03 g (0,01 mol) isoftaloylchloride en 2,48 g (0,01 mol) 4,4'-diaminodifenylsulfon met de formule (27) opgelost in 15 cm³ N-methylpyrrolidon en grondig met elkaar gemengd tot de temperatuur van het mengsel door de exotherme reactie tot 59°C was gestegen. Uit deze oplossing van polymere amidehars werd bij 280° - 300°C een film gegoten; men verkreeg een homogene, buigzame film.

VOORBEELD VII

Onder toepassing van de in Voorbeelden II en IV genoemde omstandigheden werden isoftaloylchloride, BFA-dianhydride en 4,4'-diaminodifenylsulfon met elkaar omgezet in 15 cm³ methylpyrrolidon onder verkrijging van een heldere oplossing van polymeer amidezuur. Uit deze oplossing werd bij 280° - 300°C een film gegoten; men verkreeg een geïmidiseerde polymere film. De onderstaande Tabel C toont de voor het bereiden van de copolymeren toegepaste gewichtshoeveelheden en molaire hoeveelheden, de door de exotherme reactie bereikte temperatuur van elk reactiemengsel en de overgangstemperatuur naar de glastoestand (Tg) voor het homopolymeer en de copoly-

meren die met het diaminodifenylsulfon waren bereid.

TABEL C								
5 ProefNo.	IC		BFA- dianhydride		1) Sulfon		Exo- therme Temp.	Tg
	Gewicht (gram)	Mol	Gewicht (gram)	Mol	Gewicht (gram)	Mol		
VI								186°C
VIIA	0,41	0,002	4,16	0,001	2,48	0,01	41°C	156°C
VIIB	1,02	0,005	2,6	0,005	2,48	0,01	48°C	168°C

10 1) 4,4'-diaminodifenylsulfon

De copolymeren van Voorbeeld VII kunnen worden voorgesteld door formule (28) van het formuleblad, waarin m, n en p de hierboven gegeven betekenissen bezitten.

VOORBEELD VIII

15 Onder toepassing van de in Voorbeeld I beschreven omstandigheden werden 2,03 g (0,01 mol) isoftaloylchloride en 1,08 g (0,01 mol) m.fenyleendiamine opgelost in 15 cm³ methyldpyrrolidon en krachtig geroerd tot de temperatuur van het mengsel door de exotherme reactie een waarde van 63°C had bereikt. De verkregen heldere oplossing van homopolymeer amide werd
20 bij 280° - 300°C op een oppervlak gegoten onder verkrijging van een homogene film.

VOORBEELD IX

Onder toepassing van de omstandigheden van Voorbeelden II, IV en VII werden isoftaloylchloride, BFA-dianhydride en m.fenyleendiamine met elkaar
25 omgezet in 15 cm³ N-methyldpyrrolidon onder verkrijging van een oplossing van een copolymeer amidezuur-amide. Deze oplossing werd op een verhit oppervlak met een temperatuur van 280° - 300°C gegoten onder verkrijgen van een geïmideerde polymere film met een goede bestandheid tegen afslijten. De onderstaande Tabel D geeft de voor het bereiden van de copolymeren toe-
30 gepaste hoeveelheden van de reactiecomponenten, de exotherme temperatuur voor elk van de copolymeren, alsmede de overgangstemperatuur naar de glas-toestand (Tg) voor het homopolymeer van Voorbeeld VIII en de copolymeren van Voorbeelden IXA, IXB en IXC.

TABEL D

Proef No.	IC		BFA-dianhydride		m.Fenyleen-diamine		Exo-therme Temp.	Tg
	Gewicht (gram)	Mol	Gewicht (gram)	Mol	Gewicht (gram)	Mol		
VIII								245°C
IXA	0,41	(0,002)	4,16	0,008	1,08	0,01	54°C	191°C
IXB	1,02	(0,005)	2,6	0,005	1,08	0,01	48°C	242°C
IXC	1,62	(0,008)	1,04	0,002	1,08	0,01	46°C	244°C

De copolymeren van Voorbeeld IX kunnen worden voorgesteld door formule (29) van het formuleblad, waarin m en n gehele getallen zijn en de molaire hoeveelheden van de reactiecomponenten weergeven, en p een geheel getal met een waarde van meer dan 1 is.

VOORBEELD X

Bij vervanging in de bovenstaande voorbeelden van isoftaloylchloride door tereftaloylchloride bij de bereiding van copolymeren onder toepassing van de verschillende voor dit doel gebruikte diaminoverbindingen, worden copolymeren volgens formule (11) verkregen die geschikt zijn voor bekleding-, isolatie- en vormtoepassingen.

Uiteraard kunnen behalve de bij de bereiding van de bovenbeschreven copolymeren gebruikte diamineverbindingen ook andere diamineverbindingen toegepast worden, waarvan hierboven vele voorbeelden zijn genoemd. Evenzo kan men behalve het in de voorbeelden toegepaste bisfenol-A-dianhydride andere dianhydriden voor het bereiden van andere typen copolymeren gebruiken, van welke andere dianhydriden hierboven vele voorbeelden zijn gegeven. Ten slotte kunnen de molaire hoeveelheden van de reactiecomponenten binnen ruime grenzen gevarieerd worden onder verkrijging van polymeren met verschillende molaire hoeveelheden van de eenheden.

Aan de onderhavige copolymeren kan men andere polymeren en harsen toevoegen in hoeveelheden van 1 - 50 gew.% of meer, betrokken op het copolymeer. Voorbeelden van toe te voegen polymeren zijn poly-alkenen, polystyreen, polyfenyleenoxiden, zoals die welke vermeld zijn in het Amerikaanse octrooischrift 3.306.875, epoxyharsen, polycarbonaatharsen, zoals die welke vermeld zijn in het Amerikaanse octrooischrift 3.028.365, siloxanharsen, polyaryleen-polyethers, zoals die welke vermeld zijn in het Amerikaanse octrooischrift 3.329.909, enz.

De materialen van de uitvinding kunnen in een grote verscheidenheid van fysische vormen worden toegepast, bijvoorbeeld als films, foelies, vormmaterialen, enz. Bij toepassing als films of foelies of wanneer ze tot voorwerpen worden gevormd, bezitten deze copolymeren, met inbegrip van de

8100352

hieruit verkregen gelamineerde produkten, niet alleen goede fysische eigenschappen bij kamertemperatuur maar behouden ze tevens langdurig hun sterkte en voortreffelijke respons op belasting bij verhoogde temperaturen.

Uit de copolymeren van de uitvinding gevormde films of foelies kunnen
5 worden gebruikt bij toepassingen waarbij films of foelies tot nu toe zijn gebruikt. Deze films zijn doelmatig bij een grote verscheidenheid van verpakkingstoepassingen. Zo kunnen de materialen van de uitvinding voor decoratieve en beschermende doeleinden worden toegepast in automobielen en vliegtuigen, en als tegen hoge temperaturen bestendige elektrische isola-
10 tie voor voeringen voor sleuven in motoren, in transformatoren en condensatoren.

Ook kunnen oplossingen van de onderhavige hardbare materialen als bekleding worden aangebracht op elektrische geleiders zoals koper, aluminium, enz., waarna de beklede geleider op een verhoogde temperatuur kan worden
15 verhit ter verwijdering van het oplosmiddel en ter harding (imidisatie) van het zich hierop bevindende harsachtige materiaal. Desgewenst kan een verdere bovenlaag op deze geïsoleerde geleiders worden aangebracht, bijvoorbeeld een polymere bekledingslaag zoals van polyamide, polyester, siloxan, polyvinylformalharz, epoxyharz, polyimide, polytetrafluoretheen,
20 enz.

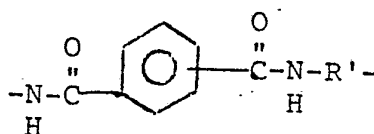
Aanbevolen toepassingen voor deze harsen zijn die als bindmiddelen voor kaliumtitanaat-vezels, glasvezels, koolstofvezels en andere vezelmaterialen. Verder kunnen uit deze harsen slijpschijven en andere schurende voorwerpen worden vervaardigd door het opnemen van slijpkorrels, zoals
25 alundum, siliciumcarbide, siliciumnitride, carborundum, diamantstof, kubisch boriumnitride, enz., en het mengsel onder warmte en druk te vormen tot de gewenste configuratie en vorm voor slijp- en schuurdoeleinden.

C O N C L U S I E S:

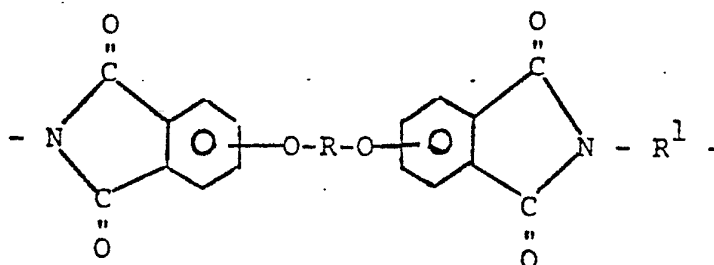
1. Copolymeren volgens formules (11) en (12), waarin de $-C(O)-$ groepen van de amide-eenheid zich in de meta- of para-positie ten opzichte van elkaar bevinden; R voorstelt: (a) een tweewaardige organische groep met de
5 formule (3), (4), (5), (6), (7) of (8); (b) een tweewaardige organische groep volgens formule (9), waarin X een groep $-C \begin{smallmatrix} H \\ y \end{smallmatrix} H_{2y}-$ voorstelt en y een geheel getal met een waarde van 1 - 5 is; en R^1 een tweewaardige organische groep is, en wel: (a) een aromatische koolwaterstofgroep met 6 - 20 koolstofatomen of een gehalogeneerd derivaat hiervan, (b) een alkyleengroep of
10 cycloalkyleengroep met 2 - 20 koolstofatomen, (c) een polydiorganosiloxan met eindstandige C_2-C_8 -alkyleengroepen, (d) een tweewaardige groep volgens formule (10), waarin Q voorstelt: $-O-$, $-C(O)-$, $-SO_2-$, $-S-$ of een groep $-C \begin{smallmatrix} H \\ x \end{smallmatrix} H_{2x}-$, in welke laatste groep x een geheel getal met een waarde van 1 - 5 is.
- 15 2. Copolymeer, bevattende (a) 5 - 92 mol % chemisch gebonden eenheden volgens formule (1), waarin de $-C(O)-$ groepen zich in de meta- of para-positie ten opzichte van elkaar bevinden, en (b) 95 - 5 mol % chemisch gebonden eenheden volgens formule (2), in welke formules R en R' de in conclusie 1 gegeven betekenissen bezitten.
- 20 3. Copolymeer volgens formule (29), waarin elk der symbolen m en n een geheel getal met een waarde van ten minste 1 en p een geheel getal met een waarde van ten minste 1 voorstelt.
4. Copolymeer volgens formule (28), waarin m, n en p de in conclusie 3 gegeven betekenissen bezitten.
- 25 5. Copolymeer volgens formule (24), waarin m, n en p de in conclusie 3 gegeven betekenissen bezitten.
6. Copolymeer volgens formule (26), waarin m, n en p de in conclusie 3 gegeven betekenissen bezitten.

General Electric Company te Schenectady, New York,
Verenigde Staten van Amerika

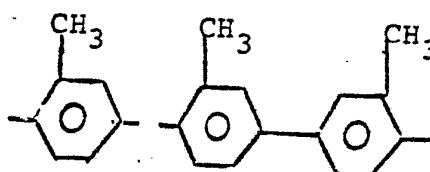
(1)



(2)

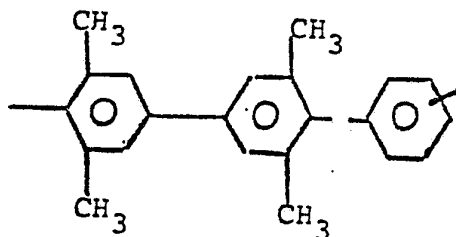


(3)



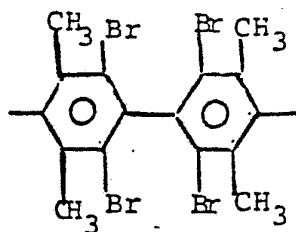
(4)

(5)

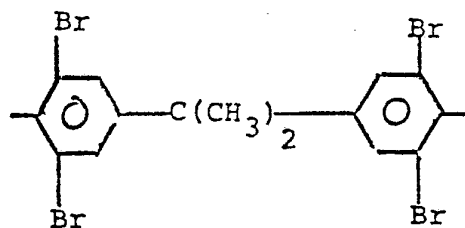


(6)

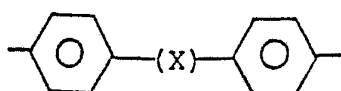
(7)



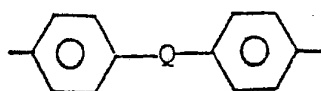
(8)



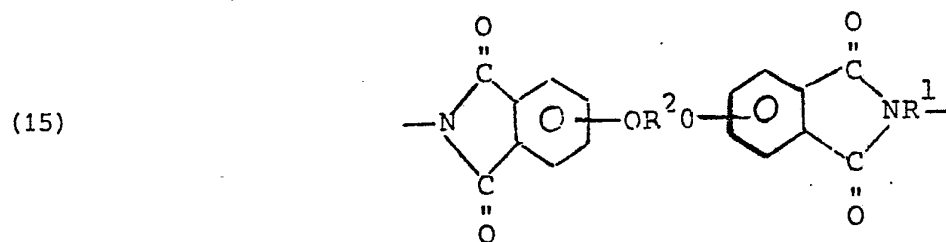
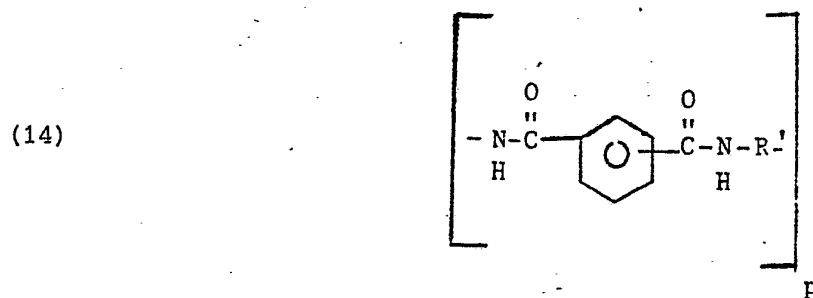
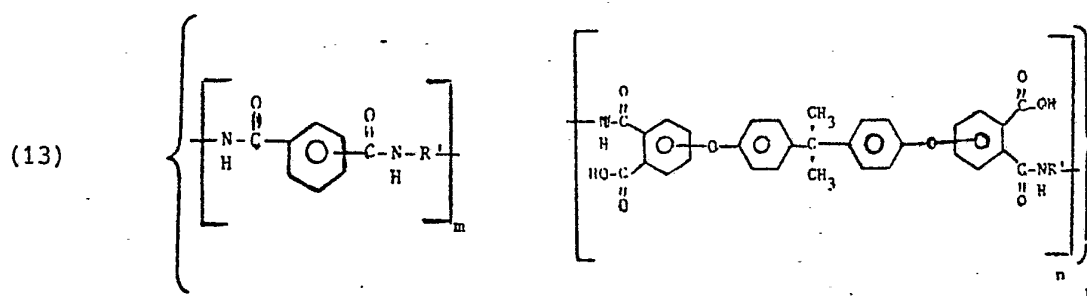
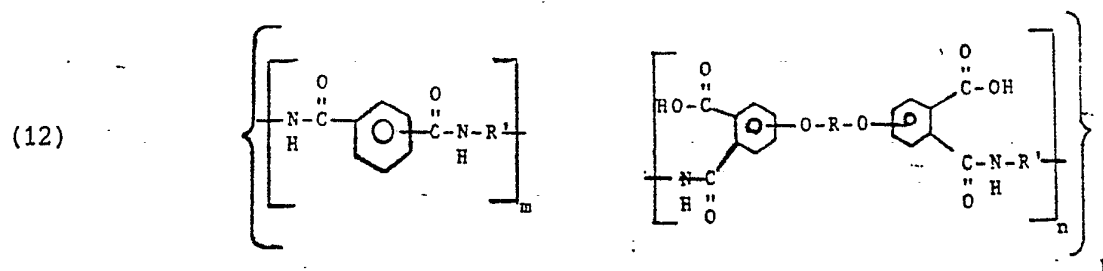
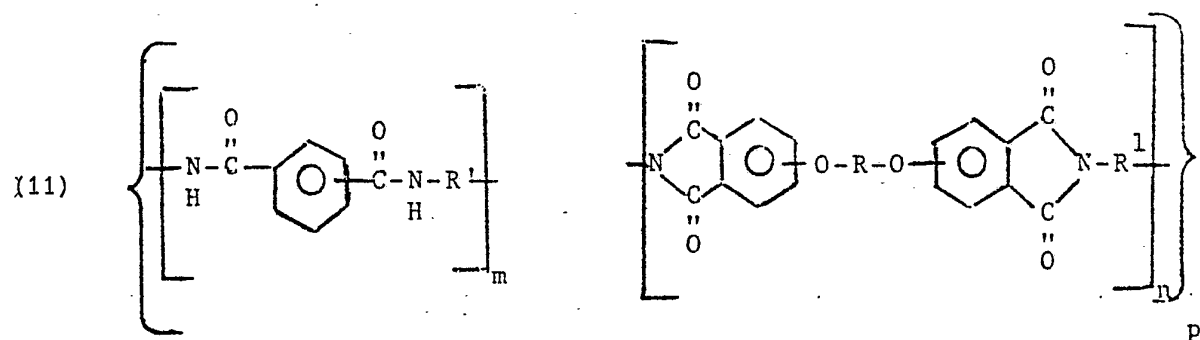
(9)



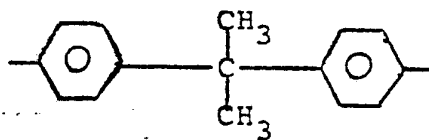
(10)



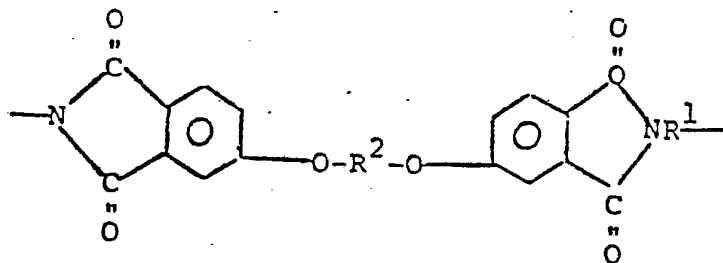
8100352



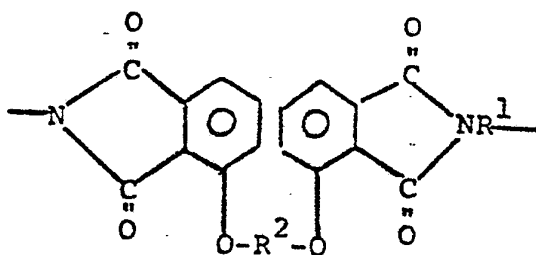
(16)



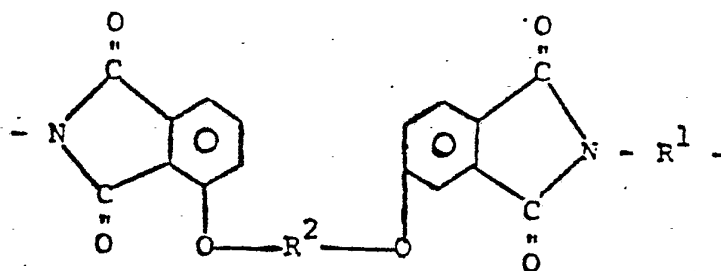
(17)



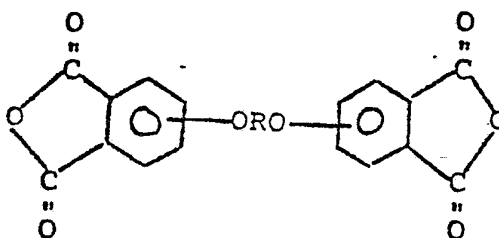
(18)



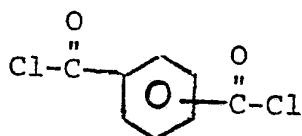
(19)



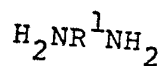
(20)



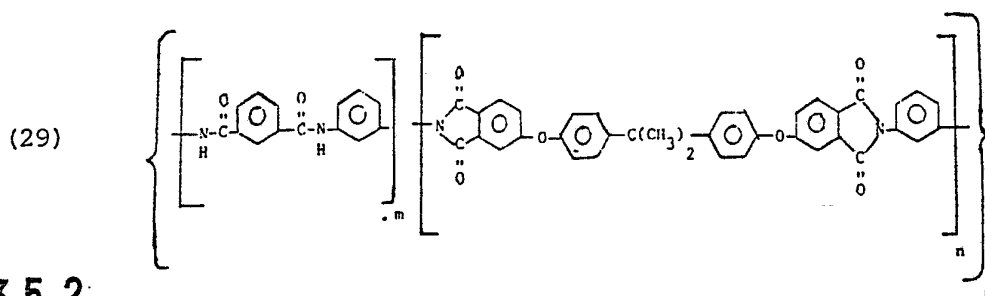
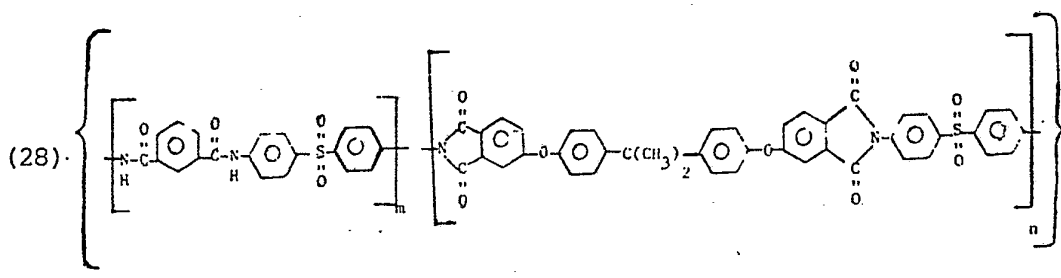
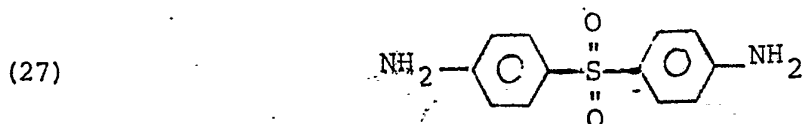
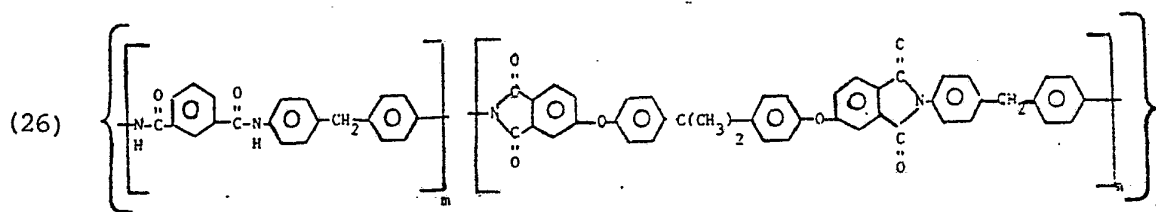
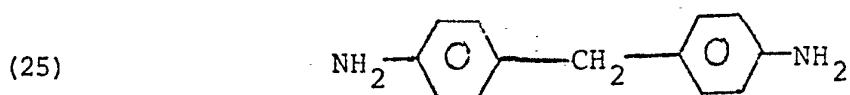
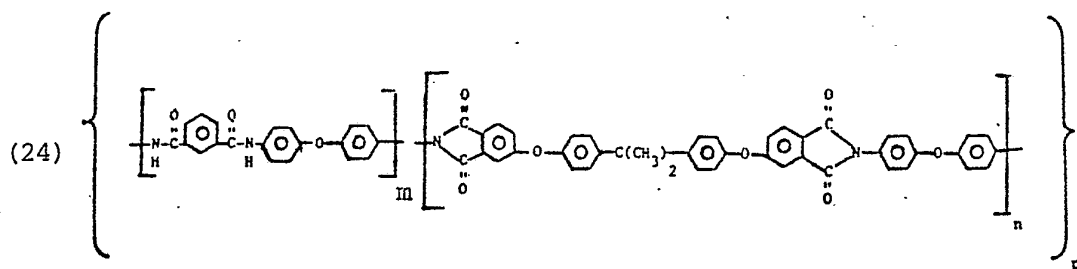
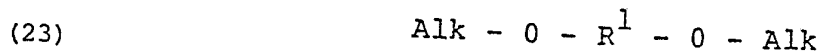
(21)



(22)



8100352



8100352