

A2

**DEMANDE  
DE CERTIFICAT D'ADDITION**

(21)

**N° 79 23888**

Se référant : au brevet d'invention n° 78 18279 du 19 juin 1978.

(54)

Solutions d'anhydride borique et leur utilisation comme durcisseurs de résols.

(51)

Classification internationale (Int. Cl. <sup>3</sup>). C 01 B 35/10 // C 08 L 61/06.

(22)

Date de dépôt..... 26 septembre 1979.

) (32) (31)

Priorité revendiquée :

(41)

Date de la mise à la disposition du  
public de la demande..... B.O.P.I. — « Listes » n° 13 du 27-3-1981.

(71)

Déposant : SOCIETE CHIMIQUE DES CHARBONNAGES, société anonyme, résidant en France.

(72)

Invention de : Nicolas Meyer et Raymond Foulon.

(73)

Titulaire : *Idem* (71)

(74)

Mandataire : A. Fourquet et/ou M. Rieux, CdF Chimie Tour Aurore, Cedex 5,  
92080 Paris La Défense.

Certificat(s) d'addition antérieur(s) :

1 Le brevet principal concerne des solutions anhydres concentrées d'anhydride borique.

Selon ce brevet les solutions d'anhydride borique contiennent 5 % en poids d'anhydride borique, un "solvant organique" et  
5 au moins un acide choisi parmi l'acide sulfurique concentré et les acides sulfoniques à noyau aromatique. Le solvant organique est un composé à fonction alcool, mono ou polyalcool tel que le méthanol, l'éthanol, l'éthylène glycol, le propylèneglycol, les trialkylborates tels que par exemple le borate de triméthyle  
10  $(B(OCH_3)_3)$  ou un dialkylacétal du formaldéhyde tel que le méthylal  $(CH_2(OCH_3)_2)$ .

Des solutions limpides concentrées d'anhydride borique contenant jusqu'à 40 % en poids d'anhydride borique peuvent être obtenues. L'acide est utilisé à raison d'au moins 10 % en poids par  
15 rapport à la solution, mais sa concentration peut atteindre 60 à 70 % en poids. La préparation des solutions concentrées d'anhydride borique s'effectue par tout moyen connu, les divers ingrédients étant ajoutés sous agitation à température ambiante. Cependant la solubilisation de l'anhydride borique est souvent laborieuse.  
20

En effet pour obtenir une solution limpide il est parfois nécessaire d'agiter le mélange plusieurs heures.

On a maintenant trouvé qu'il est possible d'obtenir plus rapidement des solutions anhydres présentant des concentrations  
25 élevées d'anhydride borique en utilisant un mélange de solvants organiques. La présente invention concerne des solutions anhydres concentrées d'anhydride borique selon le brevet principal caractérisées en ce qu'elles contiennent plusieurs solvants organiques.

L'emploi d'un mélange de solvants pour la préparation des solutions selon l'invention permet d'augmenter jusqu'à 5 fois, et  
30 même plus, la vitesse de dissolution de l'anhydride borique. Tous les mélanges de solvants peuvent être utilisés mais selon l'invention, on utilise de préférence le mélange constitué par le borate de triméthyle et le méthanol ou encore le borate de triméthyle et le méthylal.  
35

Ces mélanges de solvants présentent l'avantage d'être des produits commerciaux facilement accessibles. C'est en particulier le cas du mélange de triméthyl borate et de méthanol.

1 Dans le mélange les solvants peuvent être utilisés dans des proportions relatives les plus variables. Pour des raisons de facilité d'approvisionnement on utilise de préférence les mélanges disponibles dans le commerce, tels que le mélange constitué  
5 de 70 % de triméthyl borate et de 30 % de méthanol. Comme dans le brevet principal la solution obtenue avec un mélange de solvants contient au moins 5 % en poids d'anhydride borique et au moins 10% en poids d'acide.

Comme dans le brevet principal les solutions obtenues sont utilisées comme durcisseurs de résolsformo-phénoliques.

Les exemples suivants illustrent la présente invention :

Exemple 1

On prépare des solutions limpides d'anhydride borique à température ambiante en introduisant sous agitation de l'anhydride borique en poudre dans une solution d'un acide paratoluène sulfonique dans un mélange de solvants, on maintient, si nécessaire le mélange à température ambiante.

Le tableau suivant indique les quantités en poids des produits mis en oeuvre et les temps de dissolution de l'anhydride borique.

SOLVANT	ACIDE	ANHYDRIDE BORIQUE	TEMPS DISSOLUTION ANHYDRIDE BORIQUE
Triméthyl borate seul 100 parties	Acide paratoluène	60 parties	24 minutes
Triméthyl borate : 70 parties Méthanol : 30 parties	Sulfonique : 60 parties	60 parties	4 minutes
Méthanol seul : 100 parties	Sulfonique : 60 parties "	30 parties*	25 minutes
<p>Exemple 2</p> <p>L'exemple 1 est répété en remplaçant le méthanol par le méthylal.</p> <p>Le tableau suivant indique les résultats obtenus :</p>			
SOLVANT	ACIDE	ANHYDRIDE BORIQUE	TEMPS DISSOLUTION ANHYDRIDE BORIQUE
Triméthyl borate seul 100 parties	Acide paratoluène	60 parties	24 minutes
Méthylal seul : 100 parties	Sulfonique : 60 parties "	"	50 minutes
Mélange Triméthyl borate 70 parties + Méthylal : 30 parties	Sulfonique : 60 parties "	"	21 minutes

\* Quantité maximale que l'on peut dissoudre

# RE V E N D I C A T I O N S

---

1        1) Solutions anhydres concentrées d'anhydride borique comportant selon le brevet principal au moins 5 % en poids d'anhydride borique, un solvant organique et au moins un acide choisi parmi l'acide sulfurique concentré et des acides sulfoniques à no-  
5        yau aromatique caractérisées en ce qu'elles contiennent plusieurs solvants organiques.

         2) Solutions selon la revendication 1 caractérisées en ce qu'elles comportent le triméthylborate et le méthanol comme solvants organiques.

10       3) Solutions selon la revendication 1 caractérisées en ce qu'elles comportent le triméthylborate et le méthylal comme solvants organiques: