



⑫ A **Terinzagelegging** ⑪ **8701585**

Nederland

⑲ NL

- ⑤4 **Polymeermengsel met gefunctionaliseerde polyfenyleenether en polyetherimide.**
- ⑤1 Int.Cl⁴: C08L 71/04, C08L 79/08.
- ⑦1 Aanvrager: General Electric Company te Schenectady, New York, Ver. St. v. Am.
- ⑦4 Gem.: Mr.Ir. F. Grever
Postbus 117
4600 AC Bergen op Zoom.

-
- ②1 Aanvraag Nr. 8701585.
- ②2 Ingediend 6 juli 1987.
- ③2 - -
- ③3 - -
- ③1 - -
- ⑥2 - -

-
- ④3 Ter inzage gelegd 1 februari 1989.

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

- 1 General Electric Company te Schenectady, New York,
Verenigde Staten van Amerika.
Aanvraagster noemt als uitvinder: Roelof van der Meer.
- 5 Polymeermengsel met gefunctionaliseerde polyfeny-
leenether en polyetherimide.

De uitvinding heeft betrekking op een poly-
meermengsel dat A) een polyfenyleenether en B) een
10 polyetherimide bevat.

Polymeermengsels die een polyfenyleenether en
een polyetherimide bevatten zijn bekend uit
US-A-4,431,779.

15

De uitvinding berust op de ontdekking dat door
toepassing van een bijzonder type polyfenyleenether een
polymeermengsel met goede mechanische eigenschappen, in
het bijzonder een goede slagsterkte en een goede
20 treksterkte, kan worden verkregen.

Het polymeermengsel volgens de uitvinding
heeft het kenmerk, dat de polyfenyleenether geheel of
gedeeltelijk is vervangen door een gefunctionaliseerde
25 polyfenyleenether.

Met gefunctionaliseerde polyfenyleenether wor-
den polyfenyleenethers bedoeld die een of meer reac-
tieve groepen bevatten die met aminegroepen (of daarvan
30 afgeleide groepen) of carbonzuurgroepen (of daarvan
afgeleide groepen) van het polyetherimide kunnen
reageren. Voorbeelden van reactieve groepen in de
gefunctionaliseerde polyfenyleenethers zijn anhydride
groepen, carbonzuurgroepen en epoxy groepen.

1 Als functionele polyfenyleenether bevat het
polymeermengsel volgens de uitvinding bij voorkeur het
reactieproduct van (a) een polyfenyleenether en (b) een
verbinding met de algemene formule (i)-Z-(ii), waar-
5 bij (i) ten minste een groep met formule $[X-C(O)]$
voorstelt met $X = F, Cl, Br, I, OH, -OR$, of $-O-C(O)-R$
met $R = H$, alkyl of aryl, waarbij (ii) ten minste een
carbonzuur, zuur anhydride, zuur amide, imido, carbon-
zuur ester, amino of hydroxylgroep voor stelt en waar-
10 bij de groepen (i) en (ii) covalent via een brug Z met
elkaar zijn verbonden en waarbij Z een tweewaardige
koolwaterstofradicaal voorstelt.

Het polymeermengsel volgens de uitvinding kan
15 behalve de hierboven genoemde bestanddelen nog vele
andere bestanddelen bevatten. In de polymeermengsels
volgens de uitvinding kan het wenselijk zijn een deel
van de gefunctionaliseerde polyfenyleenether te ver-
vangen door een "gewone" dat wil zeggen niet gefunc-
20 tionaliseerde polyfenyleenether.

Het polymeermengsel volgens de uitvinding kan
als gefunctionaliseerde polyfenyleenether bij voorbeeld
ook het produkt bevatten dat is verkregen door
25 smeltextrusie van een polyfenyleenether en maleïnezuur
anhydride of een derivaat daarvan. In plaats van
maleïne zuur anhydride kan men ook fumaarzuur of deri-
vaten daarvan toepassen.

30 Het polymeermengsel volgens de uitvinding
bevat bij voorkeur een polyetherimide dat reactieve
eindgroepen bevat, die met de gefunctionaliseerde poly-
fenyleenether kunnen reageren. Geschikte reactieve
eindgroepen zijn aminegroepen, die bij voorbeeld kunnen
35 reageren met anhydride groepen van een gefunc-
tionaliseerde polyfenyleenether.

1 Het polymeermengsel volgens de uitvinding kan
zoals boven aangegeven een gefunctionaliseerde polyfe-
nyleenether of een mengsel van een "gewone" polyfeny-
leenether (C) en een gefunctionaliseerde
5 polyfenyleenether (A) bevatten.

Het polymeermengsel volgens de uitvinding is
bij voorkeur zo samengesteld dat het 5-95 gew.% gefunc-
tionaliseerde polyfenyleenether (A) of gefunc-
10 tionaliseerde polyfenyleenether (A) plus
polyfenyleenether (C) en 95-5 gew.% polyetherimide (B)
bevat, waarbij het gehalte gefunctionaliseerde polyfe-
nyleenether (A) ten minste 1 gew.% bedraagt en waarbij
de gewichtspercentages van de bestanddelen A, B en C
15 zijn berekend ten opzichte van de som van de gewichts-
delen van A plus B plus C.

Het polymeermengsel volgens de uitvinding kan
behalve de hierboven genoemde bestanddelen nog verdere
20 bestanddelen bevatten. Dit wordt hieronder nader
toegelicht.

De uitvinding heeft tevens betrekking op
voorwerpen gevormd uit het polymeermengsel volgens de
25 uitvinding. De polymeermengsels volgens de uitvinding
zijn in het bijzonder geschikt om daaruit door
spuitgieten voorwerpen te vervaardigen. Het is ook
mogelijk uit de polymeermengsels volgens de uitvinding
films te gieten.

30

Het polymeermengsel volgens de uitvinding
bevat in elk geval de volgende bestanddelen :
A. een gefunctionaliseerde polyfenyleenether en
B. een polyetherimide.

8701585

1 A. gefunctionaliseerde polyfenyleenethers.

Gefunctionaliseerde polyfenyleenethers zijn
produkten afgeleid van de algemeen bekende
5 polyfenyleenethers. Zij worden over het algemeen
verkregen door een "nabehandeling" van de algemeen
bekende polyfenyleenethers. Deze "nabehandeling" kan
bestaan uit een reactie van een polyfenyleenether met
een reagens in oplossing of in een smeltextrusie van
10 een polyfenyleenether tezamen met een reagens.

Het reagens moet dusdanig gekozen worden dat
dit resulteert in een reactieproduct met de polyfeny-
leenether dat een groep bevat die reactief is met de
15 aminegroepen (of derivaten daarvan) die in het
polyetherimide molecuul aanwezig zijn.

Het zojuist bedoelde type functionele polyfe-
nyleenethers is op zich bekend. Deze bekende polyfeny-
20 leenethers worden tot nu toe vooral toegepast in
polymeermengsels die een polyfenyleenether en een
polyamide bevatten.

Geschikte functionele polyfenyleenethers zijn
25 bij voorbeeld beschreven in WO-A-86/02086,
WO-A-87/00540 en JP-A-59(1984)-66452.

WO-A-86/02086 beschrijft het reactieproduct
van a) een polyfenyleenether en (b) een verbinding met
30 de algemene formule (i)-Z-(ii), waarbij (i) ten minste
een groep met formule $[X-C(O)]$ voorstelt met $X = F, Cl, Br, I, OH, -OR$, of $-O-C(O)-R$ met $R = H$, alkyl of aryl,
waarbij (ii) ten minste een carbonzuur, zuur anhydride,
zuur amide, imido, carbonzuur ester, amino of hydroxyl-
35 groep voor stelt en waarbij de groepen (i) en (ii)
covalent via een brug Z met elkaar zijn verbonden en
waarbij Z een tweewaardige koolwaterstofradicaal
voorstelt.

8701585

1 Bij voorkeur wordt het reactieprodukt van een
polyfenyleenether en trimellitic anhydride acid
chloride toegepast. Dit reactieprodukt is bijzonder
geschikt als gefunctionaliseerde polyfenyleenether in
5 de polymeermengsels volgens de uitvinding.

Eveneens geschikt zijn de reactieprodukten
van een onverzadigd dicarbonzuur zoals fumaarzuur of
maleïnezuur anhydride of derivaten daarvan met een
10 polyfenyleenether zoals beschreven in WO-A-87/00540.

JP-A-59(1984)-66452 beschrijft geschikte
gefunctionaliseerde polyfenyleenethers die zijn verkre-
gen door een verbinding met een carbonzuur radicaal of
15 met een zuuranhydride (bij voorbeeld maleïnezuur
anhydride) in aanwezigheid van een radicaal initiator
met een polyfenyleenether te laten reageren. Deze reac-
tie kan in de smelt of in oplossing worden uitgevoerd.
Als radicaal initiator kan bij voorbeeld dicumyl
20 peroxide worden toegepast.

De hierboven genoemde typen gefunc-
tionaliseerde polyfenyleenether bevatten als func-
tionele groep een carbonzure groep of een daarvan
25 afgeleide groep, zoals een anhydride groep.

B. Polyetherimides.

Polyetherimides zijn op zich bekende
30 verbindingen. Hiervoor kan bij voorbeeld worden ver-
wezen naar het hierbovengenoemde US-A-4431779 en de
daarin genoemde publicaties. Polyetherimides worden
over het algemeen bereid uitgaande van een aromatisch
bis (etheranhydride) en een organisch diamine.
35 Voorbeelden van geschikte bis (etheranhydrides) en
geschikte diamines zijn aangegeven in de zojuist
bedoelde publikaties.

8701585

1 Wanneer men exakt equimolaire hoeveelheden bis
(etheranhydride) en diamine met elkaar laat reageren
verkrijgt men een polymeer met één eindstandige
reactieve aminegroep en één eindstandige reactieve
5 anhydride groep. Wanneer men, zoals in praktijk wel
wordt toegepast, een geringe overmaat diamine toepast
verkrijgt men polyetherimides met gemiddeld meer dan
een eindstandige amine groep.

10 Bij de polymerisatie van polyetherimides kan
men als ketenstopmiddel een geringe hoeveelheid mono-
amine en/of mono (etheranhydride) toepassen. Zo worden
polyetherimides met een lagere concentratie reactieve
eindgroepen verkregen.

15 In het polymeermengsel volgens de uitvinding
wordt bij voorkeur een polyetherimide toegepast dat
reactieve amine eindgroepen bevat. Door hydrolyse (bij
voorbeeld met water bij verhoogde temperatuur) kunnen
20 uit polyetherimides met een lage concentratie amine
eindgroepen, polyetherimides met een hogere con-
centratie amine eindgroepen worden verkregen.

 Het polymeermengsel volgens de uitvinding kan
25 behalve de hierboven genoemde bestanddelen nog vele
andere bestanddelen bevatten.

 Het polymeermengsel volgens de uitvinding kan
ook een of meer middelen voor het verbeteren van de
30 slagsterkte bevatten. Alle bekende middelen voor het
verbeteren van de slagsterkte van polyetherimides en/of
voor het verbeteren van de slagsterkte van polyfeny-
leenethers komen in aanmerking. Het is ook goed moge-
lijk een middel in het bijzonder geschikt voor het
35 verbeteren van de slagsterkte van polyfenyleenethers in
combinatie met een middel in het bijzonder geschikt
voor het verbeteren van de slagsterkte van polyetheri-
mides toe te passen.

1 Van de bekende middelen voor het verbeteren
van de slagsterkte van polyfenyleenethers komen in het
bijzonder in aanmerking de, eventueel gehydrogeneerde,
5 blokcopolymeren met één of meer blokken afgeleid van
geconjugeerde dieeneenheden en met één of meer blokken
afgeleid van vinylaromatische verbindingen.

Van de bekende middelen voor het verbeteren
van de slagsterkte van polyetherimides komen in het
10 bijzonder in aanmerking op zich bekende polysiloxanen
met amine eindgroepen.

15

Het polymeermengsel volgens de uitvinding kan
verder gebruikelijke toeslagstoffen bevatten zoals
mineralen, vulstoffen, glasvezels of andere minerale
20 vezels, stabilisatoren, middelen voor het verbeteren
van de vlamvertragende eigenschappen, antistatisch
werkende middelen.

Het polymeermengsel volgens de uitvinding kan
25 verder polystyreen of high impact polystyreen bevatten.

De polymeermengsels volgens de uitvinding kun-
nen volgens algemeen gebruikelijk werkwijze voor het
bereiden van polymeermengsels worden verkregen. De
30 voorkeur wordt gegeven aan componderen in een extrusie
machine.

De uitvinding wordt toegelicht aan de hand van
35 de volgende voorbeelden.

1 Voorbeeld I en vergelijkend voorbeeld A.

Er werden twee verschillende polymeermengsels
bereid uitgaande van een polyetherimide afgeleid van
5 bisfenol-A-diftaalzuuranhydride en m-fenyleendiamine.
Het polyetherimide bezit een intrinsieke viscositeit
van 34 ml/g, gemeten bij 25°C in dichloormethaan.
Er werd een ongedroogd polyetherimide met een vochtge-
halte van ongeveer 1% toegepast om er zeker van te zijn
10 dat het polyetherimide door hydrolyse onder de extru-
sieomstandigheden een verhoogde concentratie reactieve
aminegroepen bevat.

Als gefunctionaliseerde polyfenyleenether werd
15 bij voorbeeld I het reactieproduct van trimellitic
anhydride acid chloride en polyfenyleenether toegepast.
Het reactieproduct bezat een intrinsieke viscositeit
van 57 ml/g gemeten bij 25°C in chloroform en een OH
eindgroep concentratie van ongeveer 100 ppm.

20

Bij vergelijkend voorbeeld A werd gewone, dat
wil zeggen, niet-gefunctionaliseerde polyfenyleenether
met een intrinsieke viscositeit van 46 ml/g gemeten in
chloroform bij 25°C toegepast. Het bezat een
25 OH-eindgroep concentratie van ongeveer 750 ppm.

De genoemde bestanddelen werden gecompoundeerd
in een extrusie machine met een gemiddeld ingestelde
temperatuur van 340°C (toerental : 300 omwentelingen
30 per minuut). Uit het verkegen extrudaat werden pellets
gehakt. Uit de pellets werden door spuitgieten genor-
meerde plaatjes gevormd voor het bepalen van de
eigenschappen.

8701585

- 1 De samenstelling en de gevonden eigenschappen
zijn aangegeven in de hieronder volgende tabel :

5	TABEL		
	Voorbeeld I		Vergelijkend voorbeeld A.
	<u>Samenstelling</u>		
10	(gew. delen)		
	o Polyfenyleenether	--	50
	o Gefunctionaliseerde polyfenyleenether	50	--
15	o Polyetherimide	50	50
	<u>Eigenschappen</u>		
	o Kerfslagwaarde volgens		
	IZOD (J/m)	36	19
20	o Treksterkte (MPa)	81.2	74.2
	o Rek bij breuk (%)	10	8

- 25 Uit de resultaten van de tabel kan men duidelijk zien dat het polymeermengsel volgens de uitvinding (voorbeeld I) betere eigenschappen bezit dan het bekende polymeermengsel (vergelijkend voorbeeld A).

1 Conclusies

1. Polymeermengsel dat

A) een polyfenyleenether en

B) een polyetherimide bevat

5 met het kenmerk, dat de polyfenyleenether A geheel of gedeeltelijk is vervangen door een gefunctionaliseerde polyfenyleenether.

2. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met

10 het kenmerk, dat het polymeermengsel als polyfenyleenether A een gefunctionaliseerde polyfenyleenether bevat bestaande uit het reactieprodukt van (a) een polyfenyleenether en (b) een verbinding met de algemene formule (i)-Z-(ii), waarbij (i) ten minste een groep
15 met formule $[X-C(O)]$ voorstelt met $X = F, Cl, Br, I, OH, -OR,$ of $-O-C(O)-R$ met $R = H,$ alkyl of aryl, waarbij (ii) ten minste een carbonzuur, zuur anhydride, zuur amide, imido, carbonzuur ester, amino of hydroxylgroep voor stelt en waarbij de groepen (i) en (ii) covalent
20 via één brug Z met elkaar zijn verbonden en waarbij Z een tweewaardige koolwaterstofradicaal voorstelt.

3. Polymeermengsel volgens conclusie 2, met

het kenmerk, dat het polymeermengsel als gefunc-
25 tionaliseerde polyfenyleenether het reactieprodukt bevat van een polyfenyleenether en trimellitic anhydride acid chloride.

4. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met

30 het kenmerk, dat het polymeermengsel als gefunctionaliseerde polyfenyleenether het produkt verkrijgt dat is verkregen door reactie van een polyfenyleenether met fumaarzuur of maleïnezuur anhydride of een derivaat
35 daarvan.

8701585

- 1 5. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met
het kenmerk, dat de polyetherimide reactieve
eindgroepen bevat, die met de gefunctionaliseerde poly-
fenyleenether kunnen reageren.
- 5 6. Polymeermengsel volgens conclusie 5, met
het kenmerk, dat de polyetherimide reactieve amine
eindgroepen bevat.
- 10 7. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met
het kenmerk, dat het polymeermengsel de volgende
bestanddelen bevat :
A. een gefunctionaliseerde polyfenyleenether
B. een polyetherimide en
15 C. een polyfenyleenether.
- 20 8. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met
het kenmerk, dat het polymeermengsel 5-95 gew.% van de
bestanddelen A plus C en 95-5 gew.% bestanddeel B,
bevat, waarbij het gehalte van bestanddeel A ten minste
1 gew.% bedraagt en waarbij de gewichtspercentages van
de bestanddelen A, B en C zijn berekend ten opzichte
van de som van de gewichtsdelen van A plus B plus C.
- 25 9. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met
het kenmerk, dat het polymeermengsel een of meer mid-
delen bevat voor het verbeteren van de slagsterkte.
- 30 10. Polymeermengsel volgens conclusie 9, met
het kenmerk, dat het polymeermengsel als middel voor
het verbeteren van de slagsterkte een, eventueel
gehydrogeneerd, blokcopolymeer met één of meer blokken
afgeleid van geconjugeerde dieeneenheden en met één of
meer blokken afgeleid van vinylaromatische eenheden
35 bevat.

8701585

1 11. Polymeermengsel volgens conclusie 9, met
het kenmerk, dat het polymeermengsel als middel voor
het verbeteren van de slagsterkte een polysiloxaan met
amine eindgroepen bevat.

5

 12. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met
het kenmerk, dat het polymeermengsel een of meer van de
volgende bestanddelen bevat : minerale vulstoffen,
glasvezels of andere minerale vezels, stabilisatoren,
10 middelen voor het verbeteren van de vlamvertragende
eigenschappen, anti-statisch werkende middelen.

 13. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met
het kenmerk, dat het polymeermengsel polystyreen of
15 high impact polystyreen bevat.

 14. Voorwerpen gevormd uit het polymeermengsel
volgens een der voorafgenoemde conclusies.

870 1585

1 Samenvatting.

De uitvinding heeft betrekking op polymeer-mengsels die een gefunctionaliseerde polyfenyleenether en een polyetherimide bevatten.

5

8701585