



NORGE

(12) **UTLEGNINGSSKRIFT**

(19) NO

(11) **171973**

(13) B

(51) Int Cl⁵ C 07 C 15/16, H 01 B 3/22

Styret for det industrielle rettsvern

(21) Søknadsnr	900751	(86) Int. inng. dag og søknadsnummer	
(22) Inng. dag	16.02.90	(85) Videreføringsdag	
(24) Løpedag	16.02.90	(30) Prioritet	20.02.89, FR, 8902166
(41) Alm. tilgj.	21.08.90		
(44) Utlegningsdato	15.02.93		

(71) Patentsøker	Atochem, 4 & 8 Cours Michelet, la Défense 10, F-92800 Puteaux, FR
(72) Oppfinner	Nöelle Berger, Ecully, FR Raymond Commandeur, Vizille, FR Pierre Jay, Saint-Didier au Mont d'Or, FR
(74) Fullmektig	Jan Helgerud, Bryns Patentkontor AS, Oslo

(54) **Benevnelse** Blanding på basis av polyfenylmetaner og deres anvendelse som dielektrikum

(56) **Anførte publikasjoner** NO 883001, 883002, US 4523044.

(57) **Sammendrag**

Blandinger av benzyltoluen, benzylbenzen og høyere homologer derav idet blandningene kan inneholde trifenylmetan, ditolylfenylmetan, tolyldifenylmetan og disses høyere homologer.

Blandingene fremstilles ved klorering av en blanding av toluen og benzen som derefter underkastes påvirkning av et mineralhalogenid.

Foreliggende oppfinnelse angår blandinger på basis av polyfenylmetaner og deres anvendelse som dielektrikum. Oppfinnelsen angår mere spesielt blandinger av mono- og dibenzyltoluen, mono- og dibenzylbenzen og kan inneholde trifenylmetan, ditolylfenylmetan, tolyldifenylmetan eller deres høyere homologer.

EP-PS 259.798 beskriver blandinger av monobenzyltoluen av etylbifenyl og/eller 1-1 difenyletan med andre bifenyl eller andre difenylmetaner med over 17 karbonatomer.

EP-PS 262.456 beskriver blandinger av monobenzyltoluen og et difenylmetan som er substituert med alkyler, idet den totale struktur har mellom 15 og 17 karbonatomer.

EP-PS 172.537 beskriver isomerblandinger av benzylbenzen.

EP-PS 282.083 beskriver blandinger av monobenzyltoluen og ditolylmetan.

Alle disse beskrevne blandinger oppnås ved addisjons- eller koblingsreaksjoner av rene reaktanter som derefter nødvendig- gjør vanskelige separeringer.

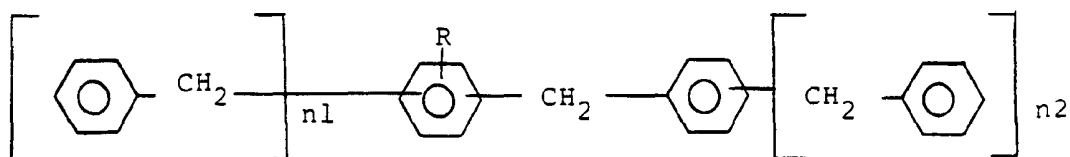
EP-PS 136.230 beskriver blandinger av monobenzyltoluen, dibenzyltoluen og ditolylfenylmetan som kan benyttes som dielektrikumfluider. Patentet beskriver også en fremgangsmåte for på meget enkel måte å oppnå disse blandinger.

Man har nu funnet nye blandinger på basis av polyfenylmetaner som har bedre dielektriske egenskaper enn den kjente teknikk. Et annet mål for oppfinnelsen er å tilveiebringe blandinger som kan benyttes ved lav temperatur.

Nok et formål med oppfinnelsen er å tilveiebringe blandinger som er lette å fremstille.

Oppfinnelsen angår således en blanding på basis av to oligomerene A_1 og A_2 slik at:

- A_1 er en isomer eller en blanding av isomerer med formelen:



der n_1 og $n_2 = 0, 1$ eller 2 forutsatt at $n_1 + n_2$ er under eller lik 3 og R betyr hydrogen;

- A_2 er en isomer eller en blanding av isomerer med samme generelle formel som A_1 bortsett fra at R betyr metyl og n_1 og n_2 erstattes med q_1 og q_2 og har samme betydning, og blandingen karakteriseres ved at minst en av oligomerene A_1 og A_2 omfatter en isomer med tre benzenkjerner.

Oligomeren A_2 kan for eksempel være metabenzyltoluen eller en blanding av to isomerer av benzyltoluen eller en blanding av tre isomerer av benzyltoluen. Den kan også være en mere spesiell isomer med $q_1 = 1$ og $q_2 = 0$, for eksempel 3,5-dibenzyltoluen eller en blanding av slike isomerer slik at $q_1 = 1$ og $q_2 = 0$ eller en blanding av isomerer slik at $q_1 = 0$ og $q_2 = 1$.

A_2 kan videre være en blanding av isomerer der q_1 og q_2 har flere betydninger, for eksempel en blanding bestående av 64 vekt-% dibenzyltoluen, 22 vekt-% av en blanding av isomerer slik at q_1 og $q_2 = 1$, 10 vekt-% av en isomerblanding slik at $q_1 + q_2 = 2$ og 4 vekt-% av en isomerblanding slik at $q_1 + q_2 = 3$. Den kan videre være en hvilken som helst annen kombinasjon av disse isomerer eller isomerblandinger som er beskrevet ovenfor.

Det samme gjelder for oligomeren A_1 som således er en isomer eller en isomerblanding av benzylbenzen eller dennes høyere homologer. Blandingens ifølge oppfinnelsen er slik at minst en

av oligomerene A_1 eller A_2 er en isomer som har minst 3 benzenkjerner i sin struktur eller en blanding av isomerer med 3 benzenkjerner, eller en blanding omfattende minst en isomer eller isomerer med tre benzenkjerner.

5

Produktet ifølge oppfinnelsen kan være en blanding av en hvilken som helst oligomer A_1 og oligomeren A_2 enten i form av dibenzyltoluen, det vil si en eller isomerer der $q_1 = 1$ og $q_2 = 0$ eller tolylbenzylfenylmetan, det vil si en isomer eller isomerer der $q_1 = 0$ og $q_2 = 1$.

10

Fortrinnsvis er produktet ifølge oppfinnelsen en blanding omfattende en av de følgende kombinasjoner av oligomerene A_1 og A_2 :

15

a) A_1 slik at $n_1 = n_2 = 0$
 A_2 slik at $q_1 + q_2 = 1$

b) A_1 slik at $n_1 + n_2 = 1$
 A_2 slik at $q_1 = q_2 = 0$

20

c) A_1 slik at $n_1 + n_2 = 1$
 A_2 slik at $q_1 + q_2 = 1$

25

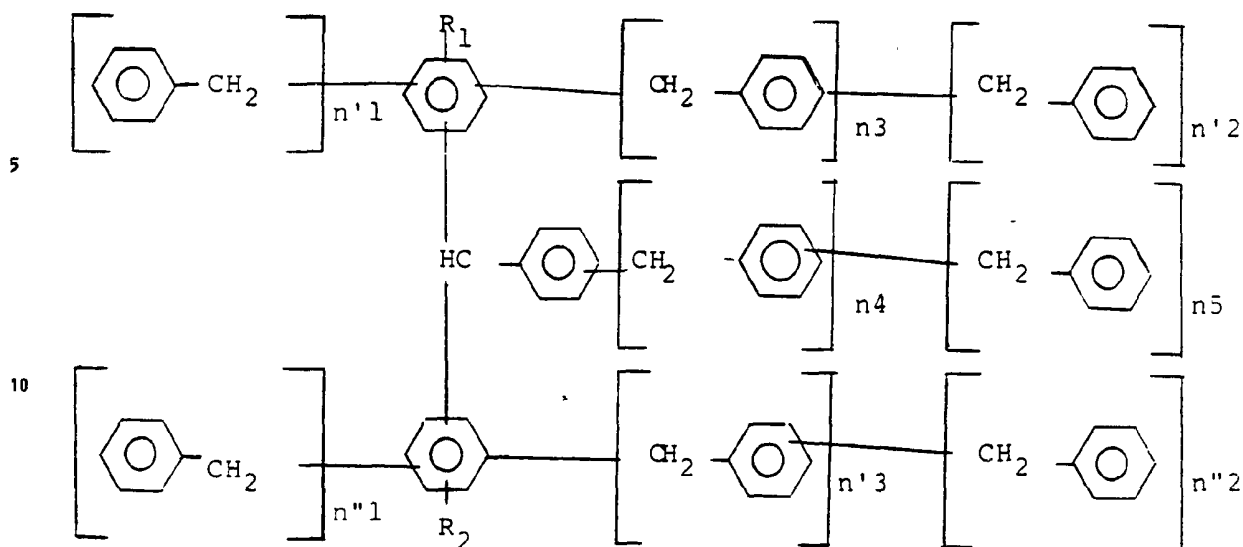
Selv om andelene av A_1 og A_2 kan være hvilke som helst er mengden av A_2 fortrinnsvis større enn mengden A_1 og ligger helst mellom 60 og 80 vekt-% av den totale mengde av den totale mengde av A_1 og A_2 .

30

Oppfinnelsen angår også en blanding på basis av de to oligomerer A_1 og A_2 og denne karakteriseres ved at den omfatter i tillegg minst en oligomer valgt blant oligomerene B_1 , B_2 og B_3 som følger:

- B_1 er en isomer eller en blanding av isomerer med formelen:

35



der:

n'_1, n''_1 og $n_4 = 0, 1$ og 2 ;

n'_2, n''_2, n_3, n'_3 og $n_5 = 0$ og 1 ,

forutsatt at $n'_1 + n''_1 + n'_2 + n''_2 + n_3 + n'_3 + n_4 + n_5$ er under eller lik 2 ;

R_1 og R_2 betyr hydrogen;

B_2 er en isomer eller en blanding av isomerer med den samme generelle formel som B_1 bortsett fra at R_1 og R_2 betyr metyl og koeffisientene n er erstattet med q og har den samme betydning; og

B_3 er en isomer eller en blanding av isomerer med den samme generelle formel som B_1 bortsett fra at R_1 og R_2 er forskjellige og betyr hydrogen eller metyl og koeffisientene n er erstattet med r og har den samme betydning.

Oligomeren B_1 kan i sin mest enkle form være trifenylmetan. Den kan også være en isomer og helt nøyaktig benzylfenyl-difenylmetan, det vil si $n'_1 = 1$ og med alle andre koeffisienter lik 0 eller en blanding av tallrike isomerer av dette produkt. B_1 kan også være en blanding av isomerer der koeffisientene n har flere betydninger slik som for eksempel at 72 vekt-% av B_1 består av isomerer der summen

$$n'_1 + n''_1 + n'_3 + n_3 + n'_2 + n''_2 + n_4 + n_5 = 0;$$

21 vekt-% består av isomerer der den ovenfor nevnte sum er 1 og resten består av isomerer der summen er 2. B_1 kan også være en isomer eller en blanding av isomerer representert ved et helst nøyaktig spektrum for koeffisientene n . Den kan også
5 være en blanding som er en kombinasjon av to eller flere blandinger som nevnt ovenfor. Oligomerene B_2 og B_3 defineres på samme måte.

Spesielt fordelaktige blandinger består av A_1 , A_2 og B_2 .
10 Blant disse blandinger foretrekker man blandinger som følger:

a) A_1 slik at $n_1 = n_2 = 0$

A_2 slik at 60-90 vekt-% av A_2 består av isomerer med $n_1 + n_2 = 0$

15 B_2 lik en hvilken som helst.

b) A_1 slik at mer enn 50 vekt-% av A_1 består av isomerer med $n_1 + n_2 = 0$

A_2 og B_2 som under a).

20 Blant blandningene på basis av A_1 , A_2 og en av minst oligomerene B_1 , B_2 og B_3 er de som omfatter 5 oligomerer A_1 , A_2 , B_1 , B_2 og B_3 spesielt fordelaktige og er meget uventet lette å fabrikkere.

25 Oppfinnelsen angår også en blanding bestående av blandingen A_1 , A_2 , B_1 , B_2 .

Alle blandningene som er beskrevet kan benyttes som dielektrikumfluid, spesielt i kondensatorer. Alle blandningene kan
30 renses, for eksempel ved å bringe dem i kontakt med avfarvingsjord, en bentonitt eller et ekvivalent produkt inntil man har oppnådd en tilstrekkelig høy resistivitet og generelt renses de i henhold til vanlig teknikker for rensing av
35 væsker for dielektrisk bruk. Man kan også til blandningene ifølge oppfinnelsen sette vanlige additiver for væsker for dielektrisk bruk som epoksyder, antioksydanter av typen

ditertbutylparakresol eller derivater av antrakinon. Oppfinnelsen angår også synteseprosesser for alle disse blandinger.

5 Oligomerene A_1 , A_2 kan fremstilles ved omsetning av benzylklorid $C_6H_5CH_2Cl$ med toluen for A_2 og med benzen for A_1 . Hva angår oligomerene B_1 , B_2 og B_3 kan disse fremstilles ved omsetning av benzylidenklorid $C_6H_5CHCl_2$ med benzen, toluen, benzylklorid og oligomerene A_1 og A_2 .

10 Benzylklorid og benzylidenklorid er kjente produkter. For eksempel kan man gjennomføre en radikalklorering av toluen fulgt av en destillasjon for å separere $C_6H_5CH_2Cl$ og $C_6H_5CHCl_2$.

15 Derefter, når man har oppnådd de forskjellige oligomerer A og B, er det tilstrekkelig å blande dem for å oppnå oppfinnelsens blandinger.

20 En spesielt hensiktsmessig fremgangsmåte for å oppnå blandingen av oligomerene A_2 og B_2 er beskrevet i EP-PS 136.230 og består i et første trinn i å omsette klor med toluen ved radikalreaksjon i nærvær av friradikaldannere og i et andre trinn å underkaste reaksjonsproduktet fra det første en
25 påvirkning av et mineralhalogenid eller en mineralsyre.

Hva gjelder fremgangsmåten for fremstilling av $A_1 + B_1$ gjennomføres denne ved at:

- 30 a) man omsetter klor med en blanding av benzen og toluen ved radikalreaksjon i nærvær av en friradikaldanner;
b) man fjerner toluen som ikke er omsatt; og
c) man underkaster det oppnådde produkt påvirkning av et mineralhalogenid eller en mineralsyre.

35 Radikalkloreringen av blandingen av benzen og toluen gjennomføres generelt ved en temperatur mellom 50 og 110°C og helst mellom 70 og 100°C. Den gjennomføres fortrinnsvis slik

at man ikke omdanner mer enn 10 til 40 %, uttrykt på molar basis, av benyttet toluen til det tilsvarende klorerte derivat. Hva angår friradikaldanneren kan man benytte enten en fotokjemisk initiering eller en kjemisk initiativ; blant
5 kjemiske initiativ skal nevnes azoforbindelser som azodiisobutyronitril eller også azodivaleronitril og videre lauroylperoksyd. Mengden kjemisk initiativ som benyttes ligger generelt mellom 0,05 og 3 vekt-% beregnet på anvendt toluen, fortrinnsvis mellom 0,1 og 1,5 %.

10 Det er med overraskelse fastslått at hvis blandingen av benzen og toluen inneholder minst 15 mol-% toluen og fortrinnsvis 20-30 % skjer det ingen klorering av benzen.

15 Derefter fjernes toluen, for eksempel ved destillasjon ved hjelp av en eller flere kolonner og å resirkulere benzen som kan tre ut sammen med ikke-klorert toluen i reaksjonsmediet som inneholder klorert toluen.

20 Reaksjonsmediet som oppnås under det foregående trinn, det vil si en blanding av C_6H_6 , $C_6H_5CH_2Cl$ og $C_6H_5CHCl_2$ underkastes derefter påvirkning av et mineral halogenid eller også en mineralsyre. Denne reaksjon skjer i praksis ved en temperatur mellom 30 og 110°C, fortrinnsvis mellom 50 og
25 100°C. Blant mineralhalogenidene kan man benytte jern (III) klorid, antimontriklorid, titantetraklorid eller også aluminiumklorid i vektmengder i forhold til reaksjonsmidler som vanligvis ligger mellom 50 ppm og 1 %, fortrinnsvis mellom 100 ppm og 0,5 %. Mineralsyrer kan likeledes benyttes,
30 for eksempel svovelsyre med en vektkonsentrasjon på mellom 70 og 95 %. Det er også mulig å benytte zeolitter eller også visse mineraloksyder.

En variant av fremgangsmåten på høyde med dette andre trinn
35 består i å helle reaksjonsblanding fra den første fase opp i en sump av benzen og en blanding av oligomerer ifølge oppfinnelsen, inneholdende mineralhalogenid eller

mineralsyre i form av en oppløsning eller dispersjon; denne variant er spesielt interessant for kontinuerlig gjennomføring av en slik prosess da det er klart at prosessen kan gjennomføres både kontinuerlig og diskontinuerlig.

5

Det anbefales, etter destillasjon av overskytende benzen, og gå frem til eliminering av mineralhalogenid eller mineralsyre på en hvilken som helst kjent teknisk måte som vasking med vann, nøytralisering, tørking.

10

Man kan også fremstille $A_1 + B_1$ i henhold til en variant av den ovenfor beskrevne fremgangsmåte der man innfører benzen etter klorering av toluen.

15

Denne fremgangsmåte gjennomføres ved at:

- a) man omsetter klor med toluen ved radikal reaksjon i nærvær av en friradikaldanner,
- b) man fjerner ikke-omsatt toluen; og
- c) man tilsetter benzen og underkaster det oppnådde produkt en påvirkning av et mineralhalogenid eller en mineralsyre.

20

Gjennomføringen av fremgangsmåten er den samme som i det ovenfor nevnte tilfelle der man klorerer en blanding av toluen og benzen, imidlertid er elimineringen av toluen meget lettere fordi det er det flyktigste produkt.

25

Man går ikke utenfor oppfinnelsens ramme når man erstatter trinnene a) og b) med en syntese av blandingen $C_6H_5CH_2Cl$ og $C_6H_5CHCl_2$.

30

En fremgangsmåte for fremstilling av blandingen av oligomerene A_1 og A_2 gjennomføres ved at man bringer benzylklorid i kontakt med benzen og toluen i nærvær av et mineralhalogenid eller en mineralsyre.

35

Denne reaksjon skjer under de samme betingelser som be-

skrevet ovenfor under trinn c) i fremgangsmåten for fremstilling av $A_1 + B_1$.

Man kan også fremstille $A_1 + A_2$ i henhold til en variant av den ovenfor angitte fremgangsmåte ved at:

- a) man omsetter klor med toluen og benzen i nærvær av en friradikaldanner;
- b) man fjerner benzyllindenklorid; og
- c) man underkaster det oppnådde produkt påvirkning av halogenid eller en mineralsyre.

Gjennomføringen tilsvarer de ovenfor angitte fremstillinger. For trinn b) er det fordelaktig å arbeide ved destillasjon, for eksempel ved å gjenvinne den lette fraksjon i den oppnådde blanding under a). Denne lette fraksjon utgjør benzen, toluen og benzyklorid, det er tilstrekkelig til denne å tilsette

I et mineralhalogenid eller en mineralsyre eller

II et produkt som inneholder dette halogenid eller denne syre.

Videre kan man gjennomføre trinn a) uten benzen og ved å tilsette denne i trinn c). Man kan likeledes under trinn c) tilsette toluen.

Videre beskrives en fremgangsmåte for fremstilling av en blanding av oligomerer A_1 , A_2 , B_1 , B_2 og B_3 ved at:

- a) man omsetter klor med en blanding av benzen og toluen ved radikal reaksjon i nærvær av en fri-radikaldanner;
- b) derefter underkaster det foregående reaksjonsprodukt påvirkning av et mineralhalogenid eller en mineralsyre. Som tidligere og forutsatt at blandingen benze-toluen inneholder minst 15 mol-% toluen, skjer det ingen klorering av benzen. Gjennomføringen tilsvarer den til de tidligere prosesser.

De følgende eksempler skal illustrere oppfinnelsen.

Eksempel 1

Prøvene består i å underkaste kondensatormodeller aksellererte aldringsprøver ved forhøyet spenning og temperatur.

Det vesentlige ved prøvene er antallet sammenbrutte kondensatorer. I visse tilfeller er aldringsvarigheten kort og målet av ikke-sammenbrutte kondensatorers fasthet under prøven gir en supplementærinformasjon med henblikk på isolasjonens forringelse.

1. Prøve på blandede kondensatorer.

For denne prøve har man lavet to serier på 10 kondensatorer omfattende 2 sjikt av polypropylenfilm med en tykkelse på 12 μm og et papirsjikt med en densitet på 1,0 og tykkelse 12 μm .

Disse to serier av kondensatorer impregneres, den ene med en oligomer A_2 slik at 75 vekt-% er benzyltoluen ($q_1 = q_2 = 0$) og 25 vekt-% av isomerene slik at $q_1 + q_2 = 1$ og inneholdende diglycidyleter av bisfenol A i andeler på en del pr. 100 deler A_2 , den andre med en blanding av A_1 og A_2 slik at:

a) A_2 representerer 70 vekt-% av $A_1 + A_2$; og

b) A_1 er dannet av 70 vekt-% isomerer slik at $n_1 = n_2 = 0$ og 30 vekt-% isomerer slik at $n_1 + n_2 = 1$.

1.1. Levetid

Efter impregnering og termisk dannelselse ble kondensatorene underkastet en aldring ved 85°C under 2700 volt (75 V/ μm) i 553 timer. Efter denne første aldring uten at sammenbrudd ble observert ble prøven fortsatt under 3000 volt (83,8 V/ μm) for å skjerpe betingelsene.

På dette tidspunkt, efter 4400 timers aldring, oppnådde man følgende resultater:

Varighet under spenning	Antall kondensatorer i livet	
	A ₂	A ₁ + A ₂
0	10	10
695	9	10
1056	8	10
1458	7	10
3290	5	10
3450	5	9
3915	5	8
3990	5	7
4400	5	7

Disse resultater er i favør av blandingen A₁ + A₂.

1.2. Utviklinger av tanδ.

Tenδ til kondensatorene måles efter 535, 1460 og 4400 timers aldring. Man oppnår de følgende resultater:

Aldringens varighet	Målespenning (volt)	Tanδx10 ⁻⁴	
		A ₂	(85°C) A ₁ + A ₂
535	5000	5,9	5,7
	1000	6,1	5,6
	2000	6,4	5,9
	3000	7,9	7,0
1460	500	9,0	6,4
	1000	9,4	6,5
	2000	10,3	6,8
	3000	12,5	8,1
4400	500	4,6	4,1
	1000	4,6	4,2
	2000	4,9	4,4
	3000	5,9	4,9

Tanδ for kondensatorer impregnert med blandingen A₁ + A₂ er signifikant mindre enn den til kondensatorene som er impregnert med A₂, noe som viser at forringelsen er mindre vesentlig.

II. Prøver på totale film-kondensatorer.

For denne prøve fremstilles tre serier på 10 kondensatorer omfattende to rue polypropylenfilmsjikt med tykkelse 13,5 μm .

To serier impregneres med oligomeren A_2 som ovenfor, en serie impregneres med blandingen $A_1 + A_2$ som ovenfor.

2.1. Levetid.

Efter impregnering og termisk dannelse underkastes kondensatorene en aldring ved 90°C under 2400 volt (88,9 V/ μm) i 500 timer.

Man oppnår følgende resultater:

Varighet under spenning	Antall kondensatorer i livet	
	A_2	$A_1 + A_2$
0	20	10
160	19	10
188	18	10
259	17	10
418	17	9
479	16	9
500	16	9

Disse resultater viser en lett differanse i favør av blandingen $A_1 + A_2$.

2.2. Utvikling av sammenbrudds-spenningen.

For å bekrefte disse resultater måles sammenbrudds-spenningen for kondensatorene som fremdeles er i live ved slutten av aldringsprøven. Den samme måling gjennomført på nye kondensatorer gir en verdi på 11,5 kV. Enhver forringelse av isolasjonen under aldringen gir seg utslag i en reduksjon av fastheten.

Man oppnår følgende resultater:

- kondensatorer impregnert med A_2 : 6,6kV
- kondensatorer impregnert med $A_1 + A_2$: 9,4 kV

5 Disse resultater viser på signifikant måte at forringelsen av kondensatorer impregnert med $A_1 + A_2$ er meget mindre.

Eksempel 2 - Syntese av en oligomer A_1 .

10 I en reaktor på 6 liter utstyrt med rotasjonsrør, en tilbakeløpekjøler, en nitrogeninjektor og en dryppetrakt, chargerer 4212 g tilsvarende 54 mol benzen og 1 g $FeCl_3$. Massen i reaktoren bringes til 65°C under nitrogen. Ved hjelp av dryppetrakten tilsettes 759 g tilsvarende 6 mol benzyl-

15 klorid i løpet av 4 timer. Reaksjonsmediet holdes derefter i en time under omrøring og man tilsetter 0,25 g $FeCl_3$. Reaksjonsmediet holdes derefter i to timer ved 70°C under nitrogenspyling. Mengden frisatt saltsyre er 5,95 mol. Ikke omsatt benzen fjernes derefter ved enkel destillasjon. 873

20 uren polyfenylmetan behandles derefter med 1 % vannfri Na_2CH_3 i 3 timer ved 275°C under omrøring. Produktet blir efter behandling underkastet en destillasjon i en kolonne med høyde 30 cm fylt av glassfjærer under et undertrykk på 1 mm HG.

25 Fraksjonen av forbindelser med 2 aromatiske ringer passerer ved 85 til 95°C. Fraksjonen bestående av tre aromatiske ringer destillerer over ved 170-200°C.

30 Fraksjonen bestående av 4 aromatiske ringer destillerer over ved 260-280°C (efter at man har fjernet destillasjonskolonnen).

Resten representerer 5,8 % tilsatt produkt. Destillasjonsfraksjonene er blandinger og utgjør 94 vekt-% av tilsatt produkt. Man oppnår en oligomer A_1 hvis vektsammensetning er

35 som følger:

14

n_1 og $n_2 = 0$	66,5 %
$n_1 = 1$ $n_2 = 0$	27 %
n_1 og $n_2 = 1$	6,5 %

5 Egenskapene er som følger:

Krystalliseringspunkt	= + 3°C
Viskositet ved 40°C	= 3,4 cP
Viskositet ved 20°C	= 5,8 cP
10 Densitet ved 40°C	= 1,001
Densitet ved 20°C	= 1,012

Eksempel 3: syntese av blandingen $A_1 + B_1$.

15 I en apparatur tilsvarende den i eksempel 2 anbringer man i dryppetrakten 1266 g tilsvarende 9,61 mol benzyklorid og 1266 g tilsvarende 0,306 mol benzytidenklorid som oppnås ved fotoklorering av toluen (molforhold toluen:klor = 4) og separering av ikke omsatt toluen ved destillasjon.

20 Dette produkt bringes til reaksjon under de samme betingelser som i eksempel 2 med 3900 g tilsvarende 50 mol benzen og 1 g $FeCl_3$. Gjenvunnet saltsyre er 9,99 mol. Produktet som oppnås etter destillering av ikke-omsatt benzen utgjør 1304 g. Dette
25 behandles som i eksempel 1 med natriumkarbonat og underkastes derefter den samme destillasjon. Destillasjonsresten utgjør 14,2 % av det tilsatte produkt. Fraksjonene er blandinger og utgjør 85 % av tilsatt produkt. Det således oppnådde produkt er av typen oligomerblanding av A_1 og B_1 .

30 Dette består på vektbasis av:

- 53 %:

* oligomerene A_1 der n_1 og $n_2 = 0$

- 31 %:

* oligomerene A_1 der $n_1 = 1$ og $n_2 = 0$

* oligomerene B_1 der $n'_1 = n_2 = n''_1 = n''_2 = n_3 = n'_3 = n_4 = n_5 = 0$

5

- 16 %:

* oligomerene A_1 der $n_1 = n_2 = 1$

* oligomerene B_1 der $n'_1 + n'_2 + n''_1 + n''_2 + n_3 + n'_3 + n_4 + n_5 = 1$

10

Egenskapene er som følger:

Krystalliseringspunkt : -15°C

Viskositet ved 20°C : 8,1 cP

Densitet ved 20°C : 1,019

15

Eksempel 4: Fremstilling av $A_1 + A_2 + B_1 + B_2 + B_3$.

I en 1 liters reaktor utstyrt med rørverk, kondensator, materør for klor og en Philips TLADK lampe på 30 watt anbragt utvendig, settes 390 g tilsvarende 5 mol benzen og 460 g tilsvarende 5 mol toluen; man tilfører derefter 78,1 g tilsvarende 1,25 mol klor og holder det hele ved 85°C i 1 time. Mengden saltsyre som frisettes er 1,15 mol. Kromatografisk analyse viser at benzen er fullstendig inert under klore-

20 ringen. Blandingen inneholder 16 % benzyklorid og 0,52 % benzyldenklorid på vektbasis.

25

Reaksjonsmediet anbriges i en helletrakt og tilføres i løpet av 1 time til en 1 liters reaktor utstyrt med rørverk inneholdende 15,3 g tilsvarende 0,166 mol toluen, 12,95 g tilsvarende 0,166 mol benzen og 0,15 g FeCl_3 ved en temperatur av 80°C . Det hele holdes derefter i 1 time ved 80°C med spyling av nitrogen. Mengden frigitt saltsyre er 1,1 mol.

30

Produktet som oppnås etter destillasjon av benzen og ikke omsatt toluen utgjør 180 g. Dette behandles som i eksempel 1 med natriumkarbonat og underkastes den samme destillasjon.

35

Destillasjonsresten utgjør 2,76 % av det anvendte produkt. Destillasjonsfraksjonene blandes og utgjør 97,1 vekt-% anvendt produkt. Det således oppnådde produkt er av typen blanding av oligomerene A_1 , A_2 , B_1 , B_2 og B_3 .

5

- 71,1 % oligomer $A_1 + A_2$ idet n_1 og $n_2 = 0$
 q_1 og $q_2 = 0$

- 24,3 %:

10

- * oligomer $A_1 + A_2$ idet $n_1 = 1$ og $n_2 = 0$
 $q_1 = 1$ og $q_2 = 0$

* oligomerene $B_1 + B_2 + B_3$ slik at alle koeffisientene n , p og r er null

15

- 4,6 %:

- * oligomerene $A_1 + A_2$ idet $n_1 = n_2 = 1$
 $q_1 = q_2 = 1$

* oligomerene $B_1 + B_2 + B_3$ slik at summen av alle koeffisientene n er lik 1, summen av alle koeffisientene q er lik 1 og summen av alle koeffisientene r er lik 1.

20

I oligomeren $A_1 + A_2$ er vektfordelingen mot A_2 85 : 15 (bestemt ved gassfasekromatografi) for verdien n_1 og n_2 lik 0.

25

Egenskapene er som følger:

Krystallisering < ved -32°C

Viskositet ved $20^\circ\text{C} = 6,7$ cP

Viskositet ved $20^\circ\text{C} = 0,998$

30

Eksempel 5

Det ble tilvirket noen blandinger av produkt A_1 fra eksempel 2 med et produkt $A_2 + B_2$ fremstilt ifølge den teknikk som er beskrevet i EP-PS 136.230 og der vektsammensetningen i forhold til den generelle formel er som følger:

35

- 75 % oligomer A_2 idet q_1 og $q_2 = 0$

- 23 %:

* oligomer A_2 idet $q_1 = 1$ og $n_2 = 0$

5 * oligomerer B_2 idet $q'_1 = q'_2 = q''_1 = q''_2 = q_3 = q'_3 + q_4 + q_5 = 0$

- 2 %:

* oligomerene A_2 idet $q_1 = q_2 = 1$

* oligomerer B_2 idet $q'_1 + q'_2 + q''_1 + q''_2 + q_3 + q'_3 + q_4 + q_5 = 1$

10

Mengden oligomerene B_2 :

$q'_1 = q'_2 = q''_1 = q''_2 = q_3 = q'_3 = q_4 = q_5 = 0$

er 2,5 %, bestemt ved kromatografianalyse.

15

Krystalliseringspunktet er under -40°C . Viskositeten ved 20°C er 6,5 cP og densiteten er 1,006.

Vektsammensetning

Begynnende krystallisering

20

Produkt A_1	100	+ 3°C
---------------	-----	---------------------

Produkt A_1	90	- 5°C
---------------	----	---------------------

Produkt $A_2 + B_2$	10	
---------------------	----	--

25

Produkt A_1	80	- 10°C
---------------	----	----------------------

Produkt $A_2 + B_2$	20	
---------------------	----	--

Produkt A_1	50	- 30°C
---------------	----	----------------------

30

Produkt $A_2 + B_2$	50	
---------------------	----	--

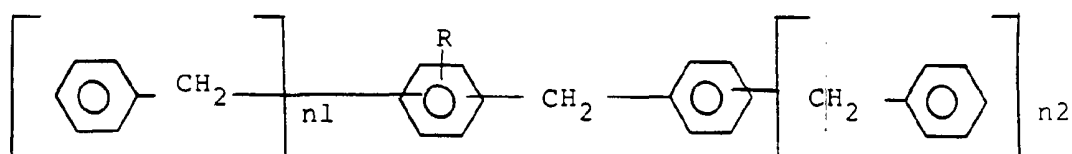
35

P a t e n t k r a v

1.

Blanding på basis av to oligomerer A₁ og A₂ slik at:

- 5 - A₁ er en isomer eller en blanding av isomerer med formelen:



der n₁ og n₂ er lik 0, 1 og 2 forutsatt at n₁ + n₂ er under eller lik 3 og R betyr hydrogen; og

- 15 - A₂ er en isomer eller en blanding av isomerer med den samme generelle formel A bortsett fra at R betyr metyl og n₁ og n₂ er erstattet med q₁ og q₂ og har den samme betydning,

k a r a k t e r i s e r t v e d a t minst en av oligomerene A₁ og A₂ omfatter en isomer med tre benzen-
20 kjerner.

2.

Blanding ifølge krav 1, k a r a k t e r i s e r t v e d at oligomeren A₁ er slik at n₁ = n₂ = 0 og oligomeren A₂ er
25 slik at q₁ + q₂ = 1.

3.

Blanding ifølge krav 1, k a r a k t e r i s e r t v e d at oligomeren A₁ er slik at n₁ + n₂ = 1 er slik at q₁ = q₂ =
30 0.

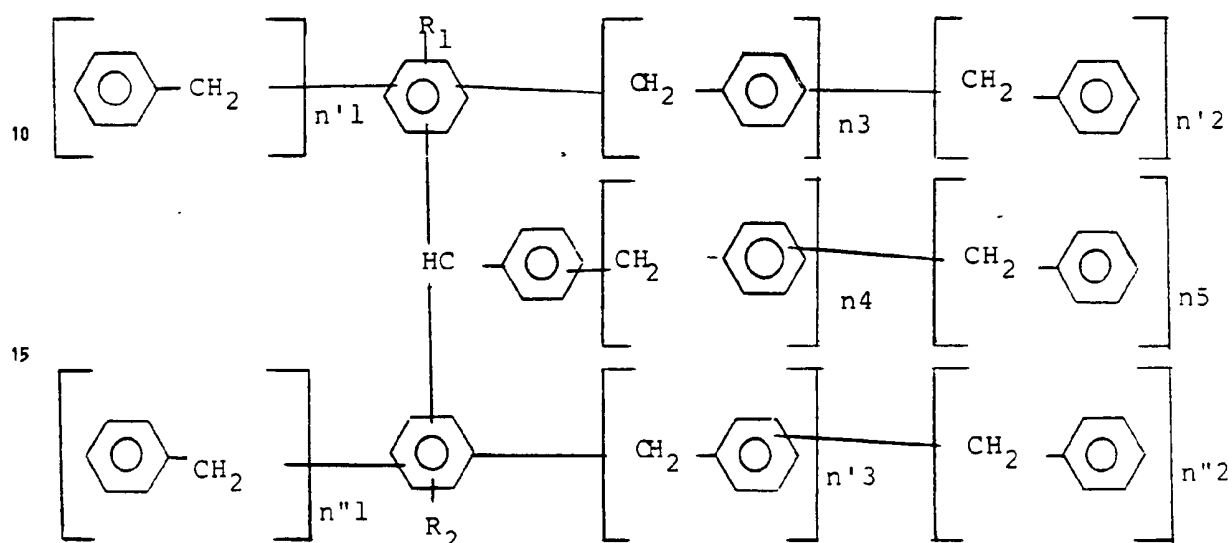
4.

Blanding ifølge krav 1, k a r a k t e r i s e r t v e d at oligomeren A₁ er slik at n₁ + n₂ = 1 og oligomeren A₂ er
35 slik at q₁ + q₂ = 1.

5.

Blanding på basis av to oligomerer A_1 og A_2 , karakterisert ved at den i tillegg omfatter minst en oligomer valgt blant oligomerene B_1 , B_2 og B_3 som følger:

- 5 - B_1 er en isomer eller en blanding av isomerer med formelen:



20 der:

n'_1 , n''_1 og $n_4 = 0, 1$ og 2 ;

n'_2 , n''_2 , n_3 , n'_3 og $n_5 = 0$ og 1 ,

forutsatt at $n'_1 + n''_1 + n'_2 + n''_2 + n_3 + n'_3 + n_4 + n_5$ er
25 under eller lik 2 ;

R_1 og R_2 betyr hydrogen;

B_2 er en isomer eller en blanding av isomerer med den samme generelle formel som B_1 bortsett fra at R_1 og R_2 betyr metyl og koeffisientene n er erstattet med q og har den samme betydning; og
30

B_3 er en isomer eller en blanding av isomerer med den samme generelle formel som B_1 bortsett fra at R_1 og R_2 er forskjellige og betyr hydrogen eller metyl og koeffisientene n er erstattet med r og har den samme betydning.

6.

Blanding ifølge krav 5, k a r a k t e r i s e r t v e d
at den omfatter oligomerene A_1 , A_2 og B_2 .

5

7.

Blanding ifølge krav 5, k a r a k t e r i s e r t v e d
at den omfatter A_1 , A_2 , B_1 , B_2 og B_3 .

8.

10

Anvendelse av blandinger ifølge et hvilket som helst av
kravene 1-7 som dielektriske væsker.

15

20

25

30

35