

(19)



Octrooiraad
Nederland

(11) Publikatienummer: **9101685**

(12) **A TERINZAGELEGGING**

(21) Aanvraagnummer: **9101685**

(51) Int.Cl.⁵:
C08L 67/00

(22) Indieningsdatum: **07.10.91**

(43) Ter inzage gelegd:
03.05.93 I.E. 93/09

(71) Aanvrager(s):
**General Electric Company te Schenectady, New
York, Ver. St. v. Am.**

(72) Uitvinder(s):
**Farshid Tabankia te Rainvillers, Frankrijk.
Johannes Joachim de Bont te Wouw**

(74) Gemachtigde:
**Mr.Ir. F. Grever
Postbus 117
4600 AC Bergen op Zoom**

(54) **Polymeermengsel met polyester en copolyetherester blokcopolymeer; daaruit gevormde voorwerpen**

(57) De uitvinding betreft een polymeermengsel dat A) een polyester en B) een copolyetherester blokcopolymeer met een polyetherblok, dat is afgeleid van een met ethyleenoxyde gecapped poly(propyleen oxyde) glycol, met een ethyleen oxyde gehalte van 15-35 gewichtsprocent en een getal gemiddeld molecuulgewicht van 1500-3000, bevat. Voorwerpen gevormd uit het polymeermengsel volgens de uitvinding bezitten een verlaagde oppervlakteweerstand. Toevoegen van een vlamvertragend middel leidt tot een verdere verlaging van de oppervlakteweerstand.

- 1 General Electric Company te Schenectady, New York,
Verenigde Staten van America.

Polymeermengsel met polyester en copolyetherester
5 blokcopolymeer; daaruit gevormde voorwerpen.

De uitvinding heeft betrekking op een polymeer-
mengsel dat

- A) een polyester en
10 B) een copolyetherester blokcopolymeer met een
polyetherblok, dat is afgeleid van een met ethy-
leenoxyde gecapped poly-(propyleen oxyde) glycol, met
een ethyleen oxyde gehalte van 15-35 gewichtsprocent
en een aantal-gemiddeld molecuulgewicht van 1500-3000,
15 bevat.

De uitvinding heeft tevens betrekking op voorwerpen
gevormd uit de polymeermengsels volgens de uitvinding.

- 20 In US-A-4,639,486 zijn polymeermengsels beschreven
op basis van een polyetherimide ester en een halogeen
bevattend vlamvertragend middel. De beschreven polymeer-
mengsels kunnen een polyester zoals polybutyleen teref-
talaat bevatten. In de voorbeelden worden polyetherimide
25 esters toegepast die zijn verkregen uit butaandiol,
dimethyl tereftalaat, poly(propyleen ether) diamine en
trimellitine zuur anhydride. In de voorbeelden zijn
verschillende vlamvertragende middelen toegepast.
Volgens de algemene leer van US-A-4,639,486 kan in
30 plaats van het poly(propyleen ether) diamine bij de
bereiding van de polyetherimide ester een groot aantal
verschillende diamines worden toegepast, waaronder
diamines afgeleid van "ethylene oxyde end capped
poly(propylene ether) glycol". Volgens US-A-4,639,486
35 wordt echter de voorkeur gegeven aan andere diamines

1 zoals die afgeleid van poly(propyleen ether) glycol. Als
vlamvertrager kan volgens US-A-4,639,486 een groot aan-
tal verschillende middelen worden toegepast.

5 Gevonden is dat toepassing van polyetherester blok-
copolymeren met een polyetherblok, dat is afgeleid van
een met ethyleenoxyde gecapped poly(propyleen oxyde)
glycol, leidt tot polymeermengsels met een lagere
oppervlakteweerstand en daardoor een geringere
10 elektrostatische oplading en minder stofaan trekking van
het oppervlak van voorwerpen gevormd uit het polymeer-
mengsel volgens de uitvinding. Bovendien is gebleken dat
bij toepassing van dergelijke polyether ester blok-
copolymeren geen delaminatie optreedt; ook niet wanneer
15 daaraan een speciaal gekozen vlamvertragend middel wordt
toegepast.

Het polymeermengsel volgens de uitvinding bevat bij
voorkeur 10-90 gewichtsprocent nog meer bij voorkeur
20 10-50 gewichtsprocent van het blokcopolymeer B, berekend
ten opzichte van de totale hoeveelheid van de bestand-
delen A en B te zamen.

Het polymeermengsel volgens de uitvinding kan
25 bovendien verdere gebruikelijke toeslagstoffen bevatten,
zoals bij voorbeeld vlamvertragende middelen. Van een
type vlamvertagende middelen namelijk
alkyleen-bis-broomftalimide werd gevonden dat dit de
oppervlakteweerstand verder verlaagt en uiteraard der
30 zaak bovendien vlamvertragende eigenschappen verleent en
niet tot delaminatie leidt.

Het polymeermengsel volgens de uitvinding kan
derhalve bovendien een vlamvertragend middel, bij
35 voorkeur een alkyleen-bis-broomftalimide, bevatten.

1 Het polymeermengsel volgens de uitvinding bevat in
elk geval:

A) een polyester en

5 B) een polyetherester blokcopolymeer zoals hieronder
nader gedefinieerd.

A) Polyester

De uitvinding heeft betrekking op polymeermengsels die
10 een polyester bevatten met eenheden afgeleid van een
alkaandiol en een aromatisch dicarbonzuur. De polyester
kan eenheden afgeleid van een of meer alkaandiol-
verbindingen bevatten. De polyester kan ook eenheden
afgeleid van een of meer aromatische dicarbonzuren be-
15 vatten. Behalve het alkaandiol kan de polyester eenhe-
den afgeleid van een of meer andere diol-of polyolver-
bindingen bevatten.

Over het algemeen bevat de polyester een overmaat
20 van eenheden afgeleid van een alkaandiol met betrekking
tot de eventueel aanwezige, van andere diol-of polyolver-
bindingen afgeleide eenheden.

Geschikte alkaandiolverbindingen zijn bijvoorbeeld
ethaandiol of butaan -1,4- diol. De polyester kan
25 behalve eenheden afgeleid van aromatische dicarbonzuren
ook eenheden afgeleid van andere dicarbonzuren of poly-
carbonzuren bevatten. Het grootste deel van de eenheden
afgeleid van zuren is echter bij voorkeur afgeleid van
een aromatisch dicarbonzuur. Geschikte aromatische
30 dicarbonzuren zijn tereftaalzuur en isoftaalzuur.

Als polyester wordt bij voorkeur een polyester toege-
past met meer dan 70 mol% eenheden afgeleid van teref-
taalzuur en butaan -1,4- diol. Het is ook mogelijk een
35 mengsel van een of meer verschillende polyesters toe
te passen.

1 B) Polyetherester blokcopolymeer

Het polymeermengsel volgens de uitvinding bevat een
copolyetherester blokcopolymeer met een polyetherblok,
5 dat is afgeleid van een met ethyleenoxyde gecapped
poly(propyleen oxyde) glycol, met een ethyleen oxyde
gehalte van 15-35 gewichtsprocent en een aantal-gemiddeld
molecuulgewicht van 1500-3000.

10 Dergelijke blokcopolymeren zijn op zich bekend.
Geschikte blokcopolymeren en hun bereidingswijze zijn
bij voorbeeld beschreven in EP-A- 0203 634 en
US-A-4,205,158. De voorkeur wordt gegeven aan de blok-
copolymeren zoals beschreven in EP-A-0 203 634.

15 Zoals reeds boven aangegeven kan het polymeer-
mengsel volgens de uitvinding een vlamvertragend middel
zoals een alkyleen-bis broomftalimide bevatten. Een
bijzonder geschikt vlamvertragend middel is
20 (ethyleen-bis-tetrabroomftalimide). Het vlamvertragend
middel wordt bij voorkeur in een hoeveelheid van
ongeveer 10-30 gewichtsdelen per 100 gewichtsdelen A
plus B tezamen toegevoegd. Bij toepassing van alkyleen-
bis-broomftalimides treedt geen delaminatie op.

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

Voorbeelden A t/m C ; I en II.

30 Bij de voorbeelden werden de volgende bestanddelen
toegepast:

PBT: een polyester afgeleid van butaandiol en teref-
35 taalzuur, met een intrinsieke viscositeit van 1.2 dl/g
bepaald in een mengsel van 60 delen phenol en 40 delen
tetrachloorethaan, bij 25 graden Celsius.

.../5

1 BC-1: een blokcopolymeer geschikt voor toepassing in het
polymeermengsel volgens de uitvinding. Het blokcopolymeer
bevat een polyetherblok afgeleid van een poly (propyleen
oxyde) glycol dat gecapped is met ethyleen oxyde glycol;
5 het ethyleen oxyde glycol gehalte bedraagt ongeveer 20
gewichtsprocent. Verder bevat het blokcopolymeer eenhe-
den afgeleid van butaandiol en tereftaalzuur. Het
gehalte polyether-blok bedraagt ongeveer 41 gewichts-
procent. De melt flow rate volgens ISO 1133 bepaald bij
10 230°C/2.16 kg bedraagt 6 gram per 10 minuten.

BC-2: een polyetherester blokcopolymeer verkregen uit
butaandiol, dimethyltereftalaat, poly(propyleen oxyde
glycol) diamine (met een aantal-gemiddeld molecuul
15 gewicht van 2,000) en trimellitinezuur anhydride.
De gewichtsverhouding dimethyltereftalaat tot de som van
het diamine plus het zuur anhydride bedraagt 50:50. Dit
is een blok copolymeer zoals toegepast in de voorbeelden
van US-A-4,639,486.

20

FR : (ethyleen-bis-tetrabroomftalimide)

Sb203: een mengsel van ongeveer 85 gewichtsprocent
Sb203 en 15 gewichtsprocent van een polymere drager.

25

Stab.: een mengsel van gebruikelijke stabilisatoren.

PTFE: polytetrafluor ethyleen (40 gewichtsprocent)
gemengd met een polymere drager (60 gewichtsprocent).

30

De hierbovengenoemde bestanddelen werden in de
hoeveelheden zoals aangegeven in de hieronder volgende
tabel in een extruder gecompoundeerd. De gemiddelde com-

35

1 poundingstemperatuur bedroeg 260 graden Celsius. Het
verkrege extrudaat werd gepelletiseerd. Uit de pellets
werde proefplaatjes met een diameter van 10 cm vervaar-
digd door spuitgieten in een geschikte matrijs. Van de
5 proefplaatjes werd de oppervlakteweerstand volgens de
Duitse norm DIN 50,014 bepaald. De oppervlakteweerstand
werd twee maal bepaald: direct na het spuitgieten en na
bewaren van het testplaatje onder vaste omstandigheden
(relative vochtigheid 50 % bij kamertemperatuur
10 gedurende 18 uren). In de hieronder volgende tabel is
het gemiddelde van beide waarden aangegeven.

Van de samenstelling volgens voorbeeld II werden
bovendien de standaard mechanische eigenschappen bepaald
15 en de vlamvertragende eigenschappen volgens UL-94. De
mechanische eigenschappen waren allemaal uitstekend; de
UL-94 rating van een 1.6 millimeter dik proefstaafje
was: V-0. De tracking resistance van het polymeermengsel
volgens voorbeeld II werd eveneens bepaald (volgens
20 IEC-112): deze bedroeg meer dan 600 Volts. De polymeer-
mengsels volgens de uitvinding vertoonden geen delamina-
tie. Polymeermengsels met BC-2 en een ander
vlamvertragend middel (nl. gebromineerd polystyreën)
daarentegen wel.

25

De verkregen waarden voor de oppervlakteweerstand
zijn te zamen met de samenstelling van de polymeer-
mengsels in de hieronder volgende tabel weergegeven.

30

35

1

TABEL

<u>Voorbeeld</u>		<u>A</u>	<u>B</u>	<u>C</u>	<u>I</u>	<u>II</u>
5	Samenstelling (gewichtsdelen)					
	o PBT	100	74.7	51.7	74.7	51.7
	o BC-1	--	--	--	25	25
10	o BC-2	--	25	25	--	--
	o FR	--	--	15	--	15
	o Sb ₂ O ₃	--	--	7	--	7
	o Stab	--	0.35	0.35	0.35	0.35
	o PTFE	--	--	1	--	1
15	Eigenschappen					
	o Oppervlakte					
	weerstand*	above 14	13	13	11	9
	(Ohms per square)					

20

Uit de resultaten in de tabel kan men zien dat voorwerpen gevormd uit de polymeermengsels volgens de uitvinding i.e. de voorbeelden I en II een lagere oppervlakteweerstand bezitten dan voorwerpen gevormd uit de vergelijkende polymeermengsels volgens de voorbeelden A, B en C.

30

* weergegeven is de exponent bij getalsbasis 10.

35

1 Het toevoegen van een vlamvertragend middel (FR)
geeft op zich geen verlaging van de oppervlakteweerstand
(vergelijkend voorbeeld C in vergelijking met vergelij-
kend voorbeeld B). In combinatie met een copolyether-
5 ester blokcopolymeer zoals toegepast in het
polymeermengsel volgens de uitvinding levert toevoeging
van het vlamvertragend middel een verdere verlaging van
de oppervlakteweerstand op (voorbeeld II versus voor-
beeld I).

10

Alle hierboven genoemde octrooipublicaties worden
geacht in deze beschrijving te zijn opgenomen.

15

1 Conclusies:

1. Polymeermengsel dat
 - A) een polyester en
 - B) een copolyetherester blokcoplymeer met een
- 5 polyetherblok, dat is afgeleid van een met ethyleenoxyde gecapped poly-(propyleen oxyde) glycol, met een ethyleen oxyde gehalte van 15-35 gewichtsprocent en een aantal-gemiddeld molecuulgewicht van 1500-3000, bevat.
2. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met het
- 10 kenmerk, dat het 10-90 gewichtsprocent van het blok-copolymeer B bevat, berekend ten opzichte van de totale hoeveelheid van de bestanddelen A en B te zamen.
3. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat de polyester eenheden bevat afgeleid van een
- 15 alkaandiol en een aromatisch dicarbonzuur.
4. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat het bovendien een vlamvertragend middel bevat.
5. Polymeermengsel volgens conclusie 4, met het kenmerk, dat het als vlamvertragend middel een alkyleen-
- 20 bis-broomftalimide bevat.
6. Voorwerpen gevormd uit het polymeermengsel volgens conclusie 1.