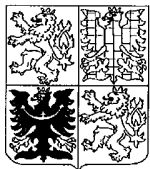


PŘIHLÁŠKA VYNÁLEZU

zveřejněná podle § 31 zákona č. 527/1990 Sb.

(19)
ČESKÁ
REPUBLIKA



ÚŘAD
PRŮMYSLOVÉHO
VLASTNICTVÍ

(22) Přihlášeno: **20.11.1997**
(32) Datum podání prioritní přihlášky: **26.11.1996**
(31) Číslo prioritní přihlášky: **1996/756470**
(33) Země priority: **US**
(40) Datum zveřejnění přihlášky vynálezu: **17.05.2000**
(Věstník č. 5/2000)
(86) PCT číslo: **PCT/US97/21130**
(87) PCT číslo zveřejnění: **WO98/23679**

(21) Číslo dokumentu:

1999 - 1767

(13) Druh dokumentu: **A3**

(51) Int. Cl.⁷:
C 08 L 25/12
C 08 K 3/16
C 08 K 5/098

//(C 08 L 25/12, C 08 L 23:28)

(71) Přihlašovatel:
EXXON CHEMICAL PATENTS INC.,
Baytown, TX, US;

(72) Původce:
Wang Hsien-Chang, Bellaire, TX, US;
Yeh Richard Cheng-Ming, Bellaire, TX, US;

(74) Zástupce:
Kalenský Petr JUDr., Hálkova 2, Praha 2,
120 00;

(54) Název přihlášky vynálezu:
**Thermoplastická polymerní vysoce
rázuvzdorná směs**

(57) Anotace:
Směsi na bázi kopolymeru styrenu s akrylonitrilem (SAN) se zvýšenou rázuvzdorností při teplotě místnosti a dobrou odolností proti vlivu počasí obsahují kopolymer styrenu s akrylonitrilem, elastomerní halogenovaný kopolymer C₂-C₁₂monoolefinu, například isobutylenu, s alkylstyrenem, kde alkylový substituent je vázán na benzenovém kruhu, například sp-methylstyrenem, a kompatibilizující činidlo, jako je stearát zinečnatý.

18.05.99

- 1 -

Thermoplastická polymerní vysoce rázuvedorná směs

Oblast techniky

Vynález se týká thermoplastických vysoce rázuvedorných směsí kopolymeru styrenu s akrylonitrilem, obsahujících halogenovaný kopolymer monoolefinu s alkylstyrenem.

Dosavadní stav techniky

Kopolyмеры styrenu s akrylonitrilem (SAN) jsou známými plasty, které se vyznačují velmi dobrou odolností vůči vlivu počasí (vůči ultrafialovému záření), což je činí velmi vhodnými pro výrobu výlisků k použití jako konstrukčních dílů automobilů nebo lodí, jako obalů a stavebních dílců. Tyto plasty však mají poměrně nízkou odolnost vůči nárazu při teplotě místnosti, což omezuje jejich použití k výrobě mnoha předmětů vyžadujících dobrou odolnost při nárazu.

Rázová pevnost kopolymerů SAN byla zvýšena včleněním až asi 20 % hmotn. polymerovaného butadienu volnou radikálovou kopolymerací styrenu a akrylonitrilu v přítomnosti dispergovaného nebo rozpuštěného polybutadienu za vzniku směsí roubovaných ABS (akrylonitril/butadien/styren) kopolymerů. ABS plasty vykazují výrazně zlepšenou rázovou pevnost, avšak na úkor odolnosti proti vlivu počasí, protože zbytková nenasyčenost, přítomná v polybutadienové molekulové stavbě, způsobuje menší odolnost vůči ultrafialovým paprskům a ozonu.

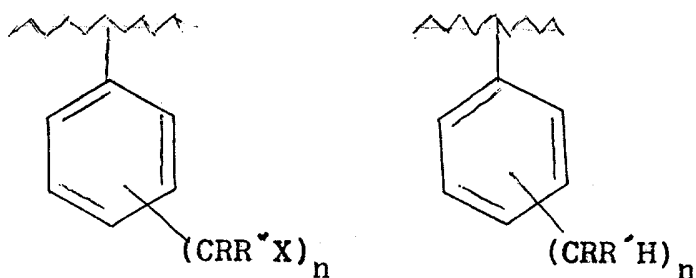
Dalším přístupem, jak zlepšit rázovou pevnost kopolymerů SAN, je vytvořit směsi nebo roubované směsi SAN kopolymerů s chlorovaným polyethylenem, jak jsou popsány například v patentových spisech US 3,658.950, 4,341.884 a 4, 794.143. Avšak tyto metody zahrnují zapracování nadměrného množství halogenu do směsi, což je pro mnohé použití nežádoucí.

Vlastnosti kopolymerů SAN byly též modifikovány polymerováním styrenu a akrylonitrilu v přítomnosti C_4-C_7 isonomoolefinového kopolymeru obsahujícího nenasycený konjugovaný dien (připravený dehydrohalogenací halogenovaného butylkaučuku, jak je to popsáno v patentovém spise US 4,143.098, nebo v přítomnosti předem zesítěného brombutylkaučuku, jak je to uvedeno v patentovém spise US 4,026.968. Avšak takto získané směsi, obsahující ethylenicky nenasycené složky, mohou být rovněž náchylné vůči vlivu ultrafialových paprsků nebo vůči působení ozónu.

Předmět vynálezu

Předložený vynález skýtá plastové směsi SAN, které mají jak dobrou rázovou houževnatost při teplotě místnosti, tak i zvýšenou odolnost vůči vlivu počasí. Tyto směsi jsou tvořeny směsí

a) halogenovaného elastomerního nepravidelného kopolymeru, majícího nasycený nebo málo nenasycený řetězec, tvořící jejich páteř, a obsahujícího aromatické monomerní jednotky níže uvedené struktury, vázané na zmíněný řetězec, vzorce



kde každý ze symbolů R a R' znamená nezávisle na druhém vodík nebo C_1-C_4 alkylovou skupinu,

X znamená brom nebo chlor a

n je celé číslo 1 až 3,

přičemž obsah halogenu v kopolymeru činí nanejvýš 7 molárních % a obsah halogenu v polymeru tvořícím zmíněný řetězec činí nanejvýš 2 molární %,

b) kopolymeru styrenu s akrylonitrilem, a

c) přibližně 0,5 až přibližně 10 hmotnostních dílů sloučeniny ze skupiny sestávající z jedné nebo ze směsi sloučenin hliníku, železa, cínu a zinku s halovou nebo karboxylovou kyselinou, zvolenou ze skupiny sestávající z benzoové, naftenové, alicyklické a C_{10} - C_{28} mastné kyseliny, na 100 hmotnostních dílů polymeru v této směsi,

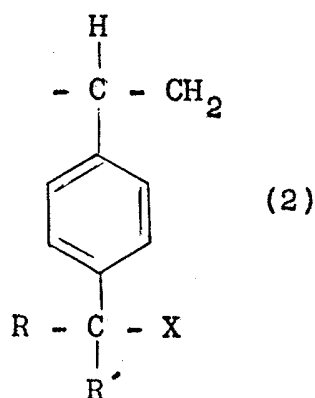
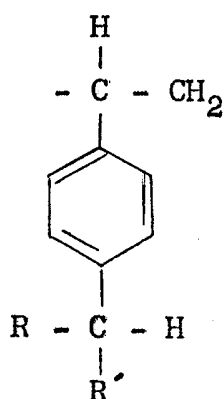
přičemž zmíněný elastomerní nepravidelný kopolymer je v této směsi přítomen v hmotnostním množství od přibližně 5 do přibližně 80 hmotnostních dílů na 100 hmotnostních dílů přítomného kopolymeru styrenu s akrylonitrilem.

Složkou a) je výhodně nasycený halogenovaný elastomerní kopolymer, mající průměrnou číselnou molekulovou hmotnost alespoň 10.000 a obsahující alespoň asi 80 molekulárních % polymerovaného isomonoolefinu se 4 až 7 atomy uhlíku a asi 0,05 až asi 20 molárních % v para-poloze substituovaných styrenových aromatických monomerních jednotek.

Halogenované elastomerní kopolymery, které jsou vhodné jako složka a) směsi, jsou nepravidelné kopolymery zahrnující alespoň jednu C_2 - C_{12} monoolefinovou složku a halogenovaný alkylstyren obsahující 1 až 3 alkylové substituentní skupiny, které mohou být vázány v polohách ortho, meta, para, ortho/meta, ortho/para, meta/para nebo ortho/meta/para na benzenovém kruhu. Výhodné monoolefinové složky zahrnují polymery ethylenu, buď samotného nebo kopolymerovaného s různým C_3 - C_{12} monoolefinem, například propylenem, butenem, hexenem, oktenem a pod., polymery propylenu, polymery obsahující C_4 - C_7 isomonoolefinu, jakož i terpolymery ethylenu, propylenu a nekonjugovaného idenu, jako je ethylidenbornen. Mnoho polymerů tohoto typu je možno připravit konvenčním postupem s volnými radikály nebo postupem s katalytickými soustavami na bázi přechodových kovů, jako jsou metalocenní katalyzátory typu popsaného v patentovém spise US 5,384.299 a v PCT přihlášce WO 96/04319. Kopolymery, obsahující alespoň jeden C_2 - C_{12} α -olefin a p-alkylstyrenový komonomer, připravené metalocenní katalytickou reakcí, jsou popsány v patentovém spise US 5,543.484, na něž se zde odkazuje.

Výhodnými kopolymermi jsou ty, které obsahují od asi 0,5 až 20 molárních % alespoň jednoho aromatického monomeru a méně než 5 % hmotn., výhodně méně než 2 % hmotn. halogenu, výhodně bromu, a dále ty, u nichž $\underline{n}$ v uvedených vzorcích znamená 1. Alkylový substituent je výhodně vázán na benzenovém kruhu v p-poloze.

Nejvýhodnějšími elastomerními kopolymermi, používanými jako složka směsi podle vynálezu, jsou halogenovaný produkt nepravidelných kopolymerů C_4-C_7 isomonoolefinu, jako je například isobutylen, a p-alkylstyrenového komonomeru, výhodně p-methylstyrenu obsahujícího alespoň asi 80 %, výhodněji alespoň asi 90 % hmotn. p-isomeru, a kde alespoň některé z alkylem substituovaných skupin přítomných ve styrenových monomerních jednotkách obsahují halogen. Výhodné materiály mohou být charakterizovány jako kopolymer isobutylenu, obsahující tyto monomerní jednotky nepravidelně vázané podél řetězce polymeru:



kde každý ze symbolů R a R' znamená nezávisle na druhém vodík, nižší alkylovou skupinu, výhodně C_1-C_4 alkyl, a

X znamená brom nebo chlor,

a kde tento kopolymer je jinak prakticky prost halogenu vázaného na benzenové jádro nebo halogenu vázaného v řetězci tvořícím páteř polymeru.

Výhodně znamená jak R, tak i R' vodík. Přibližně 5 až asi 60 molárních % p-alkylstyrenu přítomného ve struktuře kopolymeru může mít výše uvedenou halogenovanou strukturu (2).

Nejvýhodnějšími z těchto výhodných materiálů jsou elastomerní kopolymer isobutylenu a p-methylstyrenu, obsahující od při-

18.05.99

bližně 0,5 do asi 20 molárních % p-methylstyrenu, kde až asi 60 molárních % methylových substituujících jednotek, význaných na benzenovém jádru, obsahuje atom bromu nebo chloru, výhodně atom bromu. Tyto kopolymery mají v podstatě homogenní skladební rozložení, takové, že alespoň 95 % hmotn. polymeru má obsah p-alkylstyrenu do 10 % průměrného obsahu p-alkylstyrenu v polymeru. Vyznačují se rovněž úzkou distribucí molekulové hmotnosti (M_w/M_n), která je nižší než asi 2,5, výhodnou viskozitní průměrnou molekulovou hmotností v rozmezí od asi 100.000 do asi 2.000.000 a výhodnou číselnou hodnotou průměrné molekulové hmotnosti v rozmezí od asi 10.000 do asi 750.000, jak se stanoví gelovou permeační chromatografií.

Kopolymery podle vynálezu je možno připravit suspenzní polymerací směsi monomerů za použití Lewisovy kyseliny jako katalyzátoru s následnou halogenací, výhodně bromací, v roztoku v přítomnosti halogenu a radikálového iniciátoru, jako je například teplo a/nebo světlo a/nebo chemický iniciátor.

Výhodné bromované kopolymery zpravidla obsahují od asi 0,1 do asi 5 molárních % bromomethylových skupin, z nichž většina jsou monobromomethylové, s méně než 0,05 molárního % dibromomethylových substituentů přítomných v kopolymeru. Výhodnější kopolymery obsahují alespoň asi 0,75 molárního % bromomethylových skupin. Tyto polymery a způsob jejich přípravy jsou podrobněji popsány v patentovém spise US 5,162.445, na nějž se zde odkazuje.

Styrenakrylonitrilovou složku směsí podle vynálezu tvoří známé materiály, připravované známými kopolymeračními postupy. Výhodné kopolymery mají průměrnou číselnou molekulovou hmotnost v rozmezí od asi 50.000 do asi 200.000 a obsahují alespoň asi 50 % hmotn. kopolymerovaného styrenu, přičemž zbytek do 100 % tvoří akrylonitril. Výraz "styren" zahrnuje rovněž jiné vinylaromatické monomery, jako je α -methylstyren nebo p-methylstyren, použité buď samostatně nebo v kombinaci s čistým styrenem. Výhodné styrenakrylonitrilové pryskyřice obsahují přibližně 20 až 35 % hmotn. zpolymerovaného akrylonitrilu.

Výhodné směsi podle vynálezu obsahují halogenovaný elastomerní kopolymer v množství od asi 5 do 80 hmotnostních dílů, výhod-

něji od asi 10 do 50 hmotnostních dílů, na 100 hmotnostních dílů styrenakrylonitrilové pryskyřice přítomné ve směsi podle vynálezu.

Sloučeninami, používanými pro zvýšení kompatibility halogenovaného polymeru a styrenakrylonitrilové složky směsi podle vynálezu, jsou karboxyláty ze skupiny, zahrnující jednu nebo směs sloučenin (solí) hliníku, železa, cínu a zinku s halovou nebo karboxylovou kyselinou ze skupiny, zahrnující alicyklické, naftenové, benzoovou a C_{10} - C_{28} mastné kyseliny, jako je kyselina stearová nebo olejová. Typickými těmito kyselinami jsou monokarboxylové nasycené nebo nenasyčené kyseliny, jako je kyselina kaprinová, laurová, palmitová, stearová a behenová, jakož i jejich nenasyčené analogy, jako je kyselina olejová a ricinolejová. Uvedenou karboxylovou kyselinou mohou být též aromatické kyseliny, jako je kyselina benzoová nebo naftenové kyseliny a jejich deriváty. Z těchto sloučenin je nejvýhodnější stearat zinečnatý, a vynález je ilustrován za použití této výhodné sloučeniny. Tato sloučenina může být vnesena do směsi podle vynálezu jako taková nebo může vzniknout v této směsi in situ, například vnesením kyseliny stearové a oxidu zinečnatého do směsi, za následné reakce in situ těchto složek za podmínek míchání a teploty za vzniku stearátu zinečnatého. Ve směsi podle vynálezu mohou nadto, kromě karboxylátových sloučenin, být obsaženy oxidy kovů, jako je oxid zinečnatý nebo oxid hořečnatý.

Množství karboxylátové sloučeniny, přítomné ve směsi podle vynálezu, by mělo dostačovat k tomu, aby se získala směs mající zlepšenou rázovou pevnost a kompatibilitu, a měla by zpravidla být v rozmezí od asi 0,5 do asi 10 hmotnostních dílů, zejména od asi 1 do asi 5 hmotnostních dílů na 100 hmotnostních dílů celkového obsahu polymeru ve směsi podle vynálezu.

Tato směs může rovněž obsahovat až asi 30 hmotnostních dílů jedné nebo několika jiných elastomerních složek, jako jsou například hydrogenovaný polybutadien a/nebo AB či ABA blokové kopolymery styrenu (A) a polybutadienu (B) nebo polyisobutylenu (B), a/nebo elastomerní terpolymery ethylen/propylen a nekonjugovaného dienu, jako je ethylidennorbornen.

Směsi podle vynálezu mohou rovněž obsahovat jiné obvyklé přísady, běžně přítomné v lisovaných plastech, jako jsou plniva, barviva, změkčovadla, antioxidanty, retardační činidla zpomalující účinek ultrafialového záření či šíření ohně, a jiné přísady.

Směsi podle vynálezu je možno připravit a mísit za použití jakéhokoliv vhodného mísicího zařízení, jako je například vnitřní mísič (Brabender Plasticorder) a Banbury Mixer, mlecí mísič, hnětač a podobná mísicí zařízení. Výhodná teplota a doba mísení jsou v rozmezí od přibližně 150 °C do 250 °C a od asi 1 do 15 minut. Všechny složky t.j. polymerní složky a stearát zinečnatý, se mohou vnést do mísicího zařízení současně nebo se mohou vnášet postupně. Polymerní směs podle vynálezu se rovněž může připravit kopolymerováním styrenu a akrylonitrilu v přítomnosti disperze obsahující halogenovaný elastomer v organickém rozpouštědle, s následným získáním výsledného polymerního produktu. Tento produkt se pak mísí s karboxylovou sloučeninou, jak bylo výše popsáno.

Směsi podle vynálezu se mohou tvarovat lisováním či vytlačováním anebo zvláknňovat k vytvoření tvarovaných předmětů, například vláken, folií, desek nebo výrobků jiných tvarů vhodných pro použití v automobilovém či stavebním průmyslu nebo pro výrobu různých spotřebních zařízení.

Vynález je blíže objasněn dále uvedeným příkladem. Materiál v něm použitý, označený jako BR-IPMS, je bromovaným kopolymerem isobutylenu s p-methylstyrenem, majícím Mooneyho viskozitu 45 (ML 1 + 8, 125 °C) a obsahujícím 7,5 % hmotn. kopolymerovaného p-methylstyrenu a 1,2 molárního % bromovaného p-methylstyrenu. Materiál označený jako SAN je kopolymerem obsahujícím přibližně 72 % styrenu a 28 % akrylonitrilu s tavným indexem 3.

Příklady provedení vynálezu

Příklad 1

Mísením složek po dobu 5 minut při teplotě 230 °C v Banburyho mísiči se připraví řada směsí pryskyřice, majících složení

uvedené v Tabulce 1, načež se vzniklá směs přenesse do válcového mlýnu se dvěma válci, kde se směs ochladí. Ochlazená směs se roze-mele na kousky v Pullmanově drtiči, které se pak zpracují lisostříkem za získání tvarovaných vzorků pro vyhodnocení mechanickými zkouškami. Výsledky jsou uvedeny v Tabulce 1.

T a b u l k a 1

<u>Vzorek</u>	<u>1</u>	<u>2</u>	<u>3</u>	<u>4</u>
SAN (kopolymer styrenu s akrylonitrilem (% hmotn.))	100	70	70	70
BR-IPMS (bromovaný kopolymer isobutylenu s p-methylstyrenem (% hmotn.))	-	30	30	30
Zn(St) ₂ (PHP) ⁺)	-	2	4	4
ZnO (PHP)	-	1	-	-
IRGANOX TM 1076 (PHP) ⁺⁺)	-	-	-	0,2
<u>Zkouška vrubové houževnatosti dle Izoda (zkušební tyčinky)</u>				
stopy/libry/palec	0,2	5,41	6,15	6,87

⁺) hmotnostní díly na 100 hmotnostních dílů polymeru obsaženého ve směsi

⁺⁺) blokovaný fenol od firmy Ciba Geigy, přidáný během tvarování vzorku lisostříkem

Zlepšení rázuvzdornosti vzorků č. 2 až 4 při teplotě místnosti je zřejmé z porovnání s nemodifikovaným vzorkem č. 1 (styrenakrylonitrilový kopolymer). Rázuvzdornost při teplotě místnosti je rovněž vyšší než u komerčně dostupného ABS materiálu- PA-757 - (zkouška vrubové houževnatosti Izod, 2,5), výrobku firmy CHI-MEI

Příklady 2 až 7

Jako v Příkladu 1 se připraví šest dalších směsí, majících složení uvedené v Tabulce 2, mísením polymerních složek v Banburyho mísiči při teplotě 195 °C, s následným přidáním v tabulce uvedených složek a dalším mísením po dobu asi 2 až 4 minut. Směsi se pak ochladí v dvouválcovém mlýnu a lisostříkem se z nich pak vyrobí zkušební tyčkové vzorky pro zkoušky dle Izoda.

T a b u l k a 2

příkl.č.	kopolymer	kopolymer	přísada	vrubová houževnatost dle Izoda stopy/libry/palec
2	SAN (70)	BR-IPMS (30)	ZnSt ₂ (4)	5,5
3	SAN (70)	BR-IPMS (30)	ZnO (4)	0,48
4	SAN (70)	IPMS (30)	ZnSt ₂ (4)	0,36
5	SAN (70)	BR-IPMS (30)	MgO (4)	0,35
6	SAN (70)	Mal. EP (30)	-	0,43
7	SAN (100)	-	-	0,28

SAN = kopolymer styrenu s akrylonitrilem

BR-IPMS = bromovaný kopolymer isobutylenu s p-methylstyrenem

IPMS = kopolymer isobutylenu s p-methylstyrenem

Mal. EP = kopolymer ethylenu s propylenem mající naroubovanou kyselinu maleinovou

ZnSt₂ = stearát zinečnatý

Čísla uvedená v Tabulce 2 v závorkách značí hmotnostní díly jednotlivých složek přítomná ve směsi. Produkt z Příkladu 2 (podle vynálezu) vykazuje hodnotu vrubové houževnatosti dle Izoda 5,5. V ostatních příkladech je použito směsí mimo rámec vynálezu. Kontrolní Příklad 7 vykazuje hodnotu vrubové houževnatosti dle Izoda 0,28. Příklady 3 a 5, kde je jako přísady použito oxidu zinečnatého resp. oxidu hořečnatého, vykazují velmi malé zvýšení

18.05.99

- 10 -

hodnoty vrubové houževnatosti dle Izoda. V Příkladu 4 je použito nehalogenovaného kopolymeru isobutylenu s p-methylstyrenem spolu se stearátem zinečnatým, přičemž zkušební vzorek opat vykazuje velmi nízkou hodnotu vrubové houževnatosti dle Izoda. V Příkladu 6 je použito kopolymeru ethylenu s propylenem s naroubovanou kyselinou maleinovou (0,5 % hmotn.), majícího Mooneyho viskozitu přibližně 30 (1 + 4, 125 °C), bez jakékoliv přísady; opět se dosáhne velmi malého zvýšení hodnoty vrubové houževnatosti v porovnání s kontrolním vzorkem.

J. ZELENÝ KALENSKÝ
advokát



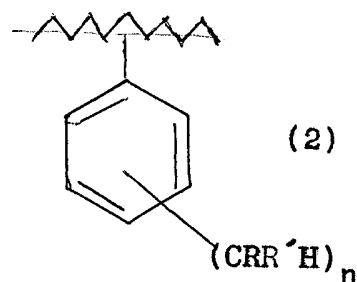
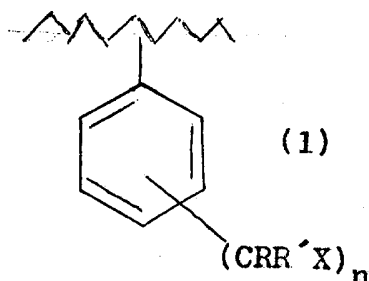
SPOLEČNÁ ADVOKÁTNÍ KANCELÁŘ
VŠETECKA ZELENÝ ŠVORČÍK KALENSKÝ
A PARTNEŘI
120 00 Praha 2, Hájkova 2
Česká republika

18.05.99

P A T E N T O V É N Á R O K Y

1. Thermoplastická polymerní směs sestávající ze směsi

halogenovaného elastomerního nepravidelného kopolymeru, majícího nasycený nebo málo nenasycený řetězec tvořící jeho páteř a obsahujícího aromatické monomerní jednotky níže uvedených vzorců, vázané podél tohoto polymerního řetězce,



kde

každý ze symbolů R a R' znamená nezávisle na druhém vodík, nižší alkylovou skupinu, výhodně C₁-C₄ alkyl, a

X znamená brom nebo chlor, a

n je celé číslo 1 až 3 ,

přičemž obsah halogenu v kopolymeru činí nanejvýš 7 molárních % a obsah halogenu v polymeru tvořícím zmíněný řetězec činí nanejvýš 2 molární %,

kopolymeru styrenu s akrylonitrilem, a

0,5 až 10 hmotnostních dílů, vztaženo na 100 hmotnostních dílů polymeru obsaženého v této směsi, sloučeniny ze skupiny sestávající z jedné nebo ze směsi sloučenin hliníku, železa, cínu a zinku s halovou nebo karboxylovou kyselinou, zvolenou ze skupiny sestávající z benzoové, naftenové, alicyklické a C₁₀-C₂₈ mastné kyseliny,

přičemž zmíněný elastomerní nepravidelný kopolymer je v této směsi

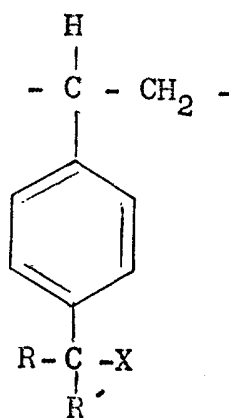
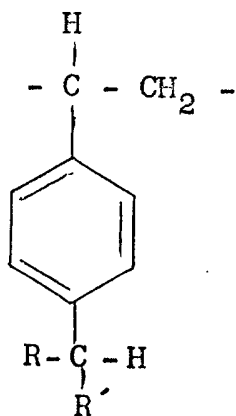
přítomen v hmotnostním množství od 5 do 80 hmotnostních dílů, vztaženo na 100 hmotnostních dílů přítomného kopolymeru styrenu s akrylonitrilem.

2. Směs podle nároku 1, v y z n a č e n á t í m , že řetězcem tvořícím páteř zmíněného kopolymeru je polymer, obsahující jeden nebo směs C_2-C_{12} zpolymerovaných monoolefinů, a zmíněný nepravidelný kopolymer obsahuje 0,5 až 20 molárních % uvedených aromatických monomerních jednotek.

3. Směs podle nároku 1, v y z n a č e n á t í m , že zmíněnou sloučeninou obsaženou ve směsi je stearát zinečnatý.

4. Směs podle nároku 1, v y z n a č e n í t í m , že symbol X v uvedených vzorcích znamená brom.

5. Směs podle nároku 1, v y z n a č e n á t í m , že halogenovaný elastomerní nepravidelný kopolymer má průměrnou číselnou molekulovou hmotnost alespoň 10.000, přičemž obsahuje alespoň 80 molárních % polymerovaného isomonoolefinu se 4 až 7 atomy uhlíku a 0,05 až 20 molárních % aromatických monomerních jednotek tvořených směsí jednotek níže uvedených vzorců, nepravidelně rozložených podél řetězce,



kde

každý ze symbolů R a R' znamená nezávisle na druhém vodík nebo C_1-C_4 alkylovou skupinu, a

X znamená brom nebo chlor.

13.05.99

- 13 -

6. Směs podle nároku 5, v y z n a č e n á t í m , že kompatibilizujícím činidlem je stearát zinečnatý.

7. Směs podle nároku 5, v y z n a č e n á t í m , že symbol X znamená brom.

8. Směs podle nároku 5, v y z n a č e n á t í m , že halogenovaných kopolymerem je kopolymer isobutylenu s p-methylstyrenem.

9. Směs podle nároku 8, v y z n a č e n á t í m , že 5 až 60 % p-methylstyrenových monomerních jednotek obsahuje monobromomethylovou skupinu.

10. Směs podle nároku 9, v y z n a č e n á t í m , že obsah bromu ve zmíněném kopolymeru je v rozmezí od 0,1 do 5 molárních %.

11. Směs podle nároku 5, v y z n a č e n á t í m , že obsahuje 1 až 5 hmotnostních dílů stearátu zinečnatého na 100 hmotnostních dílů polymeru obsaženého ve zmíněné směsi.

12. Směs podle nároku 1, v y z n a č e n á t í m , že obsahuje 10 až 50 hmotnostních dílů uvedeného elastomerního nepravidelného kopolymeru na 100 hmotnostních dílů zmíněného kopolymeru styrenu s akrylonitrilem.

J. ZELENÝ KALENSKÝ
advokát



SPOLEČNÁ ADVOKÁTNÍ KANCELÁŘ
VŠETEČKA ZELENÝ ŠVORČÍK KALENSKÝ
A PARTNEŘI

120 00 Praha 2, Háfkova 2
Česká republika