



⑩ A **Terinzagelegging** ⑪ **8020350**

Nederland

⑲ NL

⑤4 **Blokcopolymeer van polyetheramide en ongeordend copolymeer van polyamide en polyetheramide.**

⑤1 Int.Cl.<sup>3</sup>: C08G 81/00, C08G 69/40.

⑦1 Aanvrager: Suntech, Inc. te Philadelphia, Pennsylvanië, Ver. St. v. Am.

⑦2 Uitvinder(s): - -

⑦4 Gem.: Ir. C.M.R. Davidson c.s.  
Octroobureau Vriesendorp & Gaade  
Dr. Kuiperstraat 6  
2514 BB 's-Gravenhage.

②1 Aanvraag Nr. 8020350.

⑧6 Aanvraagnummer oorspronkelijke internationale aanvraag: PCT/US80/01098.

②2 Ingediend 25 augustus 1980.

③2 Voorrang vanaf 6 september 1979.

③3 Land van voorrang: Ver. St. v. Am. (US).

③1 Nummer van de voorrangsaanvraag: 73331 .

⑥2 - -

④3 Ter inzage gelegd 1 juli 1981.

⑧7 Publicatiedatum oorspronkelijke internationale aanvraag: 19 maart 1981.

⑧7 Publicatienummer oorspronkelijke internationale aanvraag: WO81/00719.

Deze octrooiaanvraag werd ingediend als internationale octrooiaanvraag onder de bepalingen van het Verdrag tot samenwerking inzake octrooien (PCT). De aan dit blad gehechte stukken zijn een afdruk van een Nederlandse vertaling van de oorspronkelijk in een andere taal ingediende beschrijving met conclusie(s) en tekening(en). De Nederlandse octrooiaanvraag wordt geacht te zijn ingediend op de indieningsdatum van de internationale octrooiaanvraag.

W

Blokcopolymeer van polyetheramide en ongeordend copolymeer van polyamide en polyetheramide.

Achtergrond van de uitvinding

De uitvinding heeft betrekking op een stofsa-  
menstelling. In het algemeen is de samenstelling een polyamide-  
copolymeer. Een van de twee componenten van het copolymeer is een  
5 polyetheramide, bijvoorbeeld een poly(dioxa-alkylamide), een  
poly(dioxa-arylamide), of een poly(oxa-amide). De andere component  
is een ongeordend copolymeer, dat kan worden verkregen door, maar  
niet beperkt is tot, de polycondensatie van een voorloper van het  
hiervoorgenoemde polyetheramide, en een voorloper van een ethervrij  
10 polyamide. In het bijzonder heeft de uitvinding betrekking op een  
blokcopolymeer, dat bestaat uit de twee hiervoorgenoemde componen-  
ten. Het blokcopolymeer kan bijvoorbeeld worden toegepast als ve-  
zel. Een geprefereerde samenstelling is de samenstelling, waarin  
het ongeordend copolymeer ten dele gevormd is uit een voorloper  
15 van een polyamide, die beschouwd wordt <sup>als</sup> /moeilijk een blokcopolymeer  
te vormen, omdat zijn transamidatiesnelheid bij een temperatuur  
boven het smeltpunt betrekkelijk hoog is; een voorbeeld is nylon  
6,6. Een hoge transamidatiesnelheid kan een nadeel zijn in twee  
procestrappen, één wanneer het blokcopolymeer wordt gevormd en  
20 twee wanneer het blokcopolymeer smeltgesponnen wordt tot een vezel.

Het Amerikaans octrooischrift 4.130.602 be-  
schrijft een blokcopolymeer van een poly(dioxa-alkylamide) en  
een polyamide. De Amerikaanse octrooiaanvraag 773.740, ingediend  
2 maart 1977, beschrijft een blokcopolymeer van een poly(dioxa-  
25 arylamide) en een polyamide. Het Amerikaans octrooischrift  
4.136.133 beschrijft een blokcopolymeer van poly(oxa-amide) en  
een polyamide. Het Amerikaans octrooischrift 4.113.794 beschrijft  
een copolymeer van blokken van een ongeordend poly(dioxa-amide)  
en een polyamide. Het Amerikaans octrooischrift 4.045.511 be-  
30 schrijft een werkwijze voor smeltmengen van deeltjes van een smelt-  
spinbaar polyamide en een zout van een etherdiamine en een carbon-

zuur. Het Amerikaans octrooischrift 4.044.071 beschrijft een werkwijze voor smelt-mengen van een gesmolten smelt-spinbaar polyamide en een zout van een etherdiamine en een dicarbonzuur.

5 In deze stand van de techniek is het polyamidegedeelte van het copolymeer in wezen een polyamide, doordat het bijvoorbeeld geen etherbindingen bevat, d.w.z. diox- of oxa-bindingen. Daarentegen bevat het polyamidegedeelte van de onderhavige samenstelling etherbindingen.

10 Het Amerikaans octrooischrift 3.509.106 beschrijft de bereiding van een ongeordend copolymeerpolycondensaat van een adipinezuurzout van ethyleen-bis-(3-aminopropyl)ether en hexamethyleendiammoniumadipaat (6,6 zout), waarbij de molverhouding van de eerste en de laatste bijvoorbeeld in het traject van 9:1 tot 1:9 is. Een functie van de ethertypetoevoeging is de  
15 vochtabsorptie te vergroten van het verkregen polycondensaat, vergeleken bij nylon 6,6 zelf. Uit deze stand van de techniek is niet bekend of voor de hand komen te liggen het ongeordend polycondensaat te gebruiken voor vormen van een blokcopolymeer met een polyetheramide.

20 Samenvatting van de uitvinding

De uitvinding is gelegen in een nieuwe samenstelling, welke een blokcopolymeer is. Het copolymeer bevat blokken van een polyetheramide, bijvoorbeeld een poly(dioxa-alkylamide), of poly(dioxa-arylamide) of poly(oxa-amide). De andere component  
25 is een willekeurig copolymeer, dat kan resulteren uit, maar niet beperkt is tot, een polycondensatie van een voorloper van het hiervoor genoemde polyetheramide en een voorloper van een ethervrij polyamide.

Het toevoegen van een betrekkelijk kleine  
30 hoeveelheid van een voorloper van een polyetheramide en een voorloper van een polyamide resulteert, na polymeriseren van de twee, bijvoorbeeld in verlagen van het smeltpunt van de laatste zonder in belangrijke mate de andere eigenschappen te veranderen. Het vergemakkelijkt ook het verwerken, zodat daaropvolgend verwerken,  
35 bijvoorbeeld smelt-mengen, niet in belangrijke mate de eigenschap-

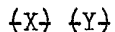
8020350

pen voor de gewenste eindtoepassing nadelig beïnvloedt.

Beschrijving

De blokcopolymeren volgens de uitvinding bevatten blokken van polyetheramide en blokken van ongeordend copolymeer van (1) polyetheretheramidevoorlopers en (2) voorlopers van ethervrije polyamiden. Typisch worden de blokcopolymeren bereid door polymeriseren van polyetheramidevoorlopers voor vormen van polyetheramiden; vormen van een mengsel van polyetheramidevoorlopers met voorlopers van ethervrij polyamide en polymeriseren van het mengsel voor vormen van een ongeordend copolymeer; en smeltmengen van het polyetheramide en een ongeordend copolymeer voor vormen van een blokcopolymeer, dat polyetheramideamideblokken en ongeordende copolymeerblokken bevat. Het ongeordende copolymeer heeft een lager smeltpunt dan een overeenkomstig homopolymeer van het ethervrije polyamide.

De geprefereerde samenstelling volgens de uitvinding is een blokcopolymeer met de volgende structurele recurrenente formule:



Een van de componenten van de onderhavige uitvinding, het -X-deel, is een polyetheramide met een recurrenente monomere eenheid, die bij voorkeur wordt gekozen uit de groep met de structuurformules A en B van het formuleblad, waarin  $R_1$ ,  $R_2$  en  $R_3$  elk worden gekozen uit de groep, die bestaat uit H,  $C_1$ - $C_{10}$  alkylen en  $C_3$ - $C_{10}$  isoalkylen en  $R_4$  wordt gekozen uit de groep, die bestaat uit  $C_1$ - $C_{10}$  alkylenen en  $C_3$ - $C_{10}$  isoalkylenen en  $R_5$  wordt gekozen uit de groep, die bestaat uit  $C_0$ - $C_{10}$  alkylenen,  $C_3$ - $C_{10}$  isoalkylenen en  $C_6$ - $C_{20}$  arylenen. De bereiding daarvan wordt beschreven in de volgende Amerikaanse octrooischriften: 4.130.602 en 4.136.133 en de Amerikaanse octrooiaanvraag 773.740, ingediend 2 maart 1977; en de daarinverschafte informatie dient als hieropgenomen te worden beschouwd. Ook wordt in deze octrooischriften beschreven de bereiding van voorlopers, bijvoorbeeld zouten, die worden gebruikt voor de bereiding van de voorgaande polymeren.

Een van de voorloperzouten, dat kan worden

8020350

gebruikt voor de bereiding van een bepaald polymeer, behorend tot de algemene klasse van polymeren met de formule A, heeft de formule C van het formule blad.

Dit kan ook worden aangeduid als  $(30203)^{++}(6)^{-}$ .

- 5 De getallen tussen haakjes, bijvoorbeeld 3, verwijst naar het aantal koolstofatomen, terwijl "0" verwijst naar het zuurstofatoom en de relatieve plaats daarvan aangeeft. Wanneer dit zout wordt gepolymeriseerd, vormt het een polymeer, ook bekend als N-30203-6.

- Voorbeelden van andere polyetheramiden, waarvan de voorlopers kunnen worden gebruikt, omvatten poly(4,7-dioxadecamethyleen sebacamide), poly(4,9-dioxadodecamethyleen adipamide), poly(4,8-dioxa-6,6-dimethylindecamethyleen adipamide), poly(4,7-idoxa-2,9-dimethyldodecamethyleen adipamide), poly(4,7-dioxadecamethyleen-2-methyl adipamide), poly(4-oxaheptamethyleen adipamide)  
15 en poly(4-oxa-2,6-dimethylmonomethyleen adipamide).

- Het {Y}-deel is een divalent radikaal van een ongeordend copolymeer, dat twee verschillende monomere eenheden bevat, waarin een willekeurig door de recurrente structuur is verdeeld. Een van de twee verschillende monomere eenheden is een  
20 voorloper van een ethervrij polyamide, terwijl de andere een voorloper is van een polyetheramide, dat vooraf gedefiniëerd was. De relatieve hoeveelheid van de twee is zodanig, dat de hoeveelheid van de polyetheramidevoorloper voldoende is voor verlagen van het smeltpunt van de andere polymere eenheid, het polyamide, maar niet  
25 zoveel, dat de gewenste eigenschappen van het polyamide nadelig worden beïnvloed. In het algemeen is de hoeveelheid van de polyether amidevoorloper aanwezig in de kleinere hoeveelheid, terwijl de andere voorloper aanwezig is in de grotere hoeveelheid. Geprefereerde hoeveelheden van het etheramide in het {Y}-deel zijn in  
30 het traject tussen ongeveer 3 gew.% tot ongeveer 17 gew.% en een meer geprefereerde hoeveelheid is in het traject tussen ongeveer 7 gew.% tot ongeveer 13 gew.%.

- De {Y}-component volgens de uitvinding omvat een voorloper van een polyamide. Een voorbeeld van dergelijke  
35 voorlopers is caprolactam (nylon 6), het hexamethyleendiaminezout

8020350

van adipinezuur (nylon 6,6), en het hexamethyleendiaminezout van tereftaalzuur (nylon 6,T). Ook kunnen gebruikt worden de voorlopers voor ethervrije polyamiden, zoals nylon 6, 10  $\text{[poly(hexamethyleen sebacamide)]}$ , nylon 11  $\text{[poly(decamethyleen carbonamide)]}$ , MXD-6  $\text{[poly(meta-xyleen adipamide)]}$ ; PACM-9  $\text{[bis(para-amino-cyclohexyl)-methaan azelamide]}$ , PACM-10  $\text{[bis(para-aminocyclo-hexyl)methaan sebacamide]}$  en PACM-12  $\text{[bis(paraaminocyclohexyl)methaan dodecanoamide]}$ . Anderen zijn bekend aan deskundigen, zie bijvoorbeeld Kirk-Othmer, Encyclopedia of Chemical Technology, 2e uitgave, Volume 16, Polyamiden. De structuur van een van de voorlopers, een zout van het polyamide (nylon 6,6) voor de uitvinding, is onder D weergegeven op het formule blad.

Dit kan ook worden aangeduid als  $(6)^{++}(6)^{--}$ .

Vorbereiden van component  $\{Y\}$  wordt in het algemeen een zout, zoals C, gemengd met een zout, zoals D, of een andere polyamidevoorloper. Het verkregen mengsel wordt in het algemeen verhit tot een temperatuur boven het smeltpunt van de zouten, maar niet hoger dan een ontledingstemperatuur. Het mengsel wordt op die temperatuur en op atmosferische druk of hoger gehouden, totdat enige of alle polycondensatie plaats heeft. Vaak wordt het mengsel tijdens de polycondensatie, eerst onderworpen aan druk en vervolgens aan een vacuüm. Het laatste vergemakkelijkt de waterverwijdering. Druk wordt vaak toegepast voor vermijden van ontsnappen van vluchtige componenten, bijvoorbeeld alle gevormd diamine, dat het verkregen materiaal nadelig zou beïnvloeden. De feitelijke temperatuur en druk en tijd van mengen hangen af van de gebruikte materialen. Het polyetheramine, aanwezig in de  $\{X\}$  en  $\{Y\}$ -delen van het blokcopolymeer kunnen dezelfde of verschillende materialen zijn.

Na de voorgaande bereiding kan het verkregen ongeordende copolymeer, waarbij C en D als voorbeeld worden gebruikt, de volgende structuur hebben:

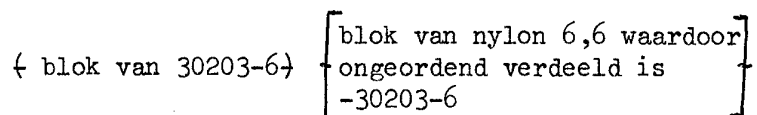


Uit deze weergave blijkt, dat D ongeordend verdeeld is door het copolymeer, dat een grotere hoeveelheid C bevat. De relatieve hoe-

8020350

veelheid van D ten opzichte van C is zodanig, dat het smeltpunt van D lager is dan dat van het homopolymeer, verkregen door polycondenseren van het C-zout met zichzelf. De hoeveelheid van D met betrekking tot C is echter niet zo groot, dat de andere eigenschappen nadelig worden beïnvloed, die het homopolymeer van D zelf zou hebben bij opnemen in het uiteindelijke blokcopolymeer. Vanuit een een commercieel standpunt is de hoeveelheid van D in het copolymeer C-D bij voorkeur tussen ongeveer 3 gew.% en ongeveer 17 gew.%, liefst tussen ongeveer 7 gew.% en ongeveer 13 gew.%.

10 Het ongeordende copolymeer, bijvoorbeeld E, wordt smelt-gemengd met een polyetheramide, bereid uit bijvoorbeeld zout C. Aldus worden twee polymeren, het polyetheramide en het ongeordende copolymeer, op een geschikte wijze samen gemengd. Voor smelt-mengen van het mengsel wordt de temperatuur van het mengsel 15 verhoogd tot ten minste boven het smeltpunt van het laagst smeltend polymeer, maar niet boven de ontledingstemperatuur van een der polymeren en/of het produkt. Het smelt-mengen gaat voort, totdat voldoende transamidering plaats heeft en het gewenste blokcopolymeer is gevormd. In verband met het illustratieve voorbeeld, 20 bestaat het blokcopolymeer uit de volgende structuur:

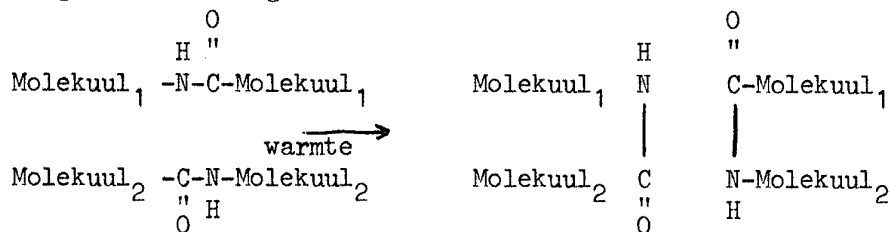


Transamidering verwijst naar een bekend verschijnsel, waardoor twee molekulen van dezelfde of verschillende polyamiden, die beiden



bevatten, elk tussen de N en C-binding breken en opnieuw worden gevormd door binden met atomen in een ander molekuul. Dit kan

30 als volgt worden voorgesteld:



8020350

Wanneer echter het smelt-mengen te lang voortgaat, treedt teveel van deze transamidering op en het blokcopoly-meer (bijvoorbeeld molekulen 1 en 2) gaan over in een ongeordend copolymeer.

5 In het algemeen moet het molekuulgewicht, het aantal-gemiddelde of gewichtgemiddelde, van het blokcopoly-meer zodanig zijn, dat het voldoende is, zodat het polymeer fysische ei-  
10 genschappen heeft, geschikt voor de gewenste eindtoepassing, bijv. vezels, persvormen en film. Het molekuulgewicht kan variëren over een groot traject om te voldoen aan de verschillende eisen van de  
15 verschillende en gevariëerde eindtoepassingen. Een typisch mole-  
kuulgewichtstraject voor het blokcopoly-meer is van ongeveer 5000 tot ongeveer 100.000, ofwel aantalgemiddeld ofwel gewichtgemiddeld. Gebruikelijke commerciële polyamiden, bijvoorbeeld zowel nylon 6  
als nylon 6,6, hebben een aantalgemiddeldmolekuulgewichtstraject van ongeveer 12.000-30.000.

De geprefereerde samenstelling van de uitvin-  
ding heeft de volgende recurrente structuurformule  $\{X\}_w\{Y\}_z$ , waarin  
de onderschriften w en z elk een waarde hebben in het traject van  
20 ongeveer 4 tot ongeveer 200. De hiervoor genoemde waarde verwijst naar het aantal recurrente eenheden in  $\{X\}$ , voordat een blok  $\{Y\}$  wordt gebonden. De waarde 4 bijvoorbeeld is een waarde, waarbij  
enkele van de molekulen minder dan 4 recurrente eenheden kunnen hebben. Niettemin bestaan een voldoende aantal molekulen met w en  
25 z met een waarde van meer dan 4, waardoor totaal het mengsel de eigenschappen heeft alsof elk molekuul een w- en z-waarde had van 4. Vanwege de markteisen zou een geprefereerde laagste waarde van w en z ongeveer 6-8 zijn, terwijl een geprefereerde hoogste waarde ongeveer 125-175 zou zijn.

30 Hoewel de voorgaande bespreking is toegespitst op de bereiding van het ongeordende copolymeer via polycondensatie van zouten, kunnen andere methoden voor het bereiden van het onge-  
ordende copolymeer worden toegepast. Bijvoorbeeld kunnen een poly-  
etheramide en een polyamide (ethervrij) smelt-gemengd worden ge-  
35 durende een voldoende tijd en bij een geschikte temperatuur, totdat

8020350

een ongeordend copolymeer resulteert. En een ongeordend copolymeer, bereid volgens een willekeurige methode, kan worden gebruikt voor het bereiden van het onderhavige blokcopolymeer.

De uitvinding wordt toegelicht in de volgende

5 voorbeelden.

Voorbeelden

Het 1,2-bis( $\beta$ -cyaanethoxyethaan), d.w.z.  
NC-(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-O-(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-; 4,7-dioxadecamethyleendiamine, d.w.z.  
NH<sub>2</sub>(CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>-O-(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-O-(CH<sub>2</sub>)<sub>3</sub>-NH<sub>2</sub>; poly(4,7-dioxadecamethyleen  
10 adipamide) kunnen worden bereid volgens de werkwijze, beschreven  
in het Amerikaans octrooischrift 4.130.602.

Het N-30203-6-zout wordt op de volgende wijze  
bereid. 204,4 g adipinezuur (1,4 molen) worden opgelost in 906 ml  
methanol, terwijl 246,4 g 30203 diamine (1,4 molen) worden opge-  
15 lost in 906 ml methanol. De adipinezuuroplossing wordt aan de  
diamineoplossing toegevoegd en onder stikstof geroerd. Het verkre-  
gen mengsel wordt gefiltreerd en het gewonnen zout wordt gedurende  
de nacht in de afzuigkast aan de lucht gedroogd. Aan het gedroogde  
gewonnen zout wordt water toegevoegd in een hoeveelheid voor ver-  
20 krijgen van een 60-% zoutoplossing. De oplossing wordt gevoerd  
door een bed van houtskool voor het verwijderen van kleurlichamen.  
Aan de ontkleurde oplossing wordt voldoende diamine toegevoegd voor  
instellen van de pH van de oplossing op 7,45. Het water wordt door  
vacuüm verwijderd en het zout wordt 2 uren bij 60° C in een  
25 vacuüm gedroogd.

De andere voorloper, het N-6,6-zout, wordt  
bereid door toepassen van de hiervoor beschreven methode, met dien  
verstande, dat het 30203-diamine wordt vervangen door 162,4 g  
hexamethyleendiamine.

30 De {Y}-domponent wordt op de volgende wijze  
bereid. 104,3 g van het N-6,6-zout worden gemengd met 11,3 g van  
het N-30203-6-zout. Vervolgens worden 50 g van het mengsel ge-  
bracht in een buis, die wordt gesloten en vervolgens 2 uren verhit  
op 190° C. Daarna wordt de buis geopend en 0,5 uur onder stikstof,  
35 (1 atmosfeer) verhit op 222° C. Dit wordt dan gevolgd door verhit-

8020350

ten gedurende 2 uren onder vacuüm op 275° C. De {Y}-component heeft een samenstelling van 90 gew.% N-6,6 en 10 gew.% N-30203-6 en heeft het karakter van een ongeordend copolymeer.

Ter toelichting van een andere methode, worden monsters van de {Y}-component bereid door smelt-mengen van een mengsel van het N-30203-6-polymeer en nylon 6,6. Het smelt-mengen bestond uit roeren bij een temperatuur boven het smeltpunt van beide polymeren, totdat aanvullend roeren weinig verandering veroorzaakte in de copolymeersmeltemperaturen, verkregen met een differentiaalaftastcalorimeter (DSC). Dit blijkt uit de tabel. Uit de gegevens blijkt, dat smelt-mengen van een mengsel van het polyetheramide N-30203-6 en nylon 6,6 gedurende 360 minuten bij 283° C een ongeordend copolymeer vormde. Deze conclusie werd getest door het bereiden van het copolymeer door verhitten van een mengsel van de voorloperzouten van het 30203-6-polyetheramide en nylon-6,6 voor het vormen van een copolymeer, dat werd onderzocht op zijn oplosbaarheid in een mierzuur. De oplosbaarheid kwam sterk overeen, maar was niet equivalent aan de oplosbaarheid van het copolymeer, bereid door smelt-mengen gedurende de vermelde 360 minuten en de 283° C. Aanvullend mengen zou echter de polymeren equivalent hebben gemaakt volgens de oplosbaarheidsproef. De mierzuuroplosbaarheidsproef is een proef, die bekend is voor het bepalen van de mate van ongeordendheid.

Tabel

| Polymeer                                      | Smeltpunten van verschillende polymeren |                  |       |
|-----------------------------------------------|-----------------------------------------|------------------|-------|
|                                               | Smelt-mengtijd<br>minuten, 283°C        | DSC-temperaturen |       |
|                                               |                                         | aanvang          | piek  |
| N 30203-6                                     | n.a.                                    | 168°C            | 182°C |
| Nylon 6,6                                     | n.a.                                    | 247              | 263   |
| 30 Blok 70/30 <sup>(a)</sup>                  | 15                                      | 244              | 258   |
|                                               | 30                                      | 241              | 256   |
|                                               | 60                                      | 236              | 252   |
|                                               | 180                                     | 231              | 247   |
| Ongeordend 70/30                              | 360                                     | 230              | 244   |
| 35 (a) 70 gew.% nylon 6,6, 30 gew.% N-30203-6 |                                         |                  |       |

8020350

De {X}-component wordt op de volgende wijze  
bereid. 50 g N-30203-6 worden gebracht in een buis, die vervolgens  
wordt gesloten en 2 uren op  $190^{\circ}$  C wordt verhit. De buis wordt ge-  
opend en vervolgens 0,5 uur onder stikstof verhit op  $222^{\circ}$  C, wat  
5 wordt gevolgd door 2 uren verhitten onder vacuüm op  $222^{\circ}$  C.

Het blokcopolymeer volgens de uitvinding  
wordt dan op de volgende wijze bereid. 100 g van de {Y}-component,  
het ongeordende copolymeer, bereid door polycondensatie van de zou-  
ten, en 28.6 g van de gedroogde {X}-component worden droog-gemengd  
10 en ongeveer 15 minuten tot 2 uren verhit op  $255-285^{\circ}$  C voor het  
verkrijgen van de gewenste mate van transamidering. Het verkregen  
blokcopolymeer heeft een gemiddelde samenstelling van 70 gew.%/  
30 gew.% N-6,6/N-30203-6. Het smeltpunt van het verkregen blok-  
copolymeer is ongeveer  $225^{\circ}$  C en het kan smelt-gesponnen worden  
15 bij ongeveer  $250^{\circ}$  C, waarbij geen verdere hergroepering plaats  
heeft.

Een ongeordend copolymeer van 90 gew.% nylon-6  
en 10 gew.% N-30203-6 werd bereid en het smeltpunt daarvan was  $25^{\circ}$  C  
lager dan dat van nylon-6 (smeltpunt  $220^{\circ}$  C). Het ongeordend  
20 copolymeer werd vervolgens smelt-gemengd met een N-30203-6 polymeer  
en het verkregen blokcopolymeer heeft een smeltpunt dat lager is  
dan een soortgelijk blokcopolymeer, waarin het nylon-6-deel ether-  
vrij is.

Toepassen van andere polyamiden, polyether-  
25 amiden en de voorlopers daarvan in de hiervoorbeschreven methoden  
geven blokcopolymeren met soortgelijke verlaagde smeltpunten.

8020350

### CONCLUSIES

1. Blokcopolymeer, dat blokken polyetheramide en blokken van een ongeordend copolymeer van polyetheramidevoorlopers en voorlopers van ethervrije polyamiden bevat, waarbij  
5 het ongeordende copolymeer een lager smeltpunt heeft dan een overeenkomstig homopolymeer van het polyamide.

2. Blokcopolymeer volgens conclusie 1, met de volgende recurrente structuurformule:  $\{X\} \{Y\}$ ,  
waarin  $\{X\}$  is een polyetheramide uit de groep, die bestaat uit  
10 de structuurformules A en B van het formuleblad, waarin  $R_1$ ,  $R_2$  en  $R_3$  elk gekozen zijn uit de groep, die bestaat uit H,  $C_1-C_{10}$  alkylen en  $C_3-C_{10}$  isoalkylen en  $R_4$  gekozen is uit de groep, die bestaat uit  $C_1-C_{10}$  alkylenen en  $C_3-C_{10}$  isoalkylenen en  $R_5$  is gekozen uit de groep, die bestaat uit  $C_0-C_{10}$  alkylenen,  $C_3-C_{10}$   
15 isoalkylenen en  $C_6-C_{20}$  arylenen en waarin  $\{Y\}$  een bivalent radikaal is van een ongeordend copolymeer, dat een etheramide bevat, dat ongeordend verdeeld is door een polyamidestructuur en waarin de hoeveelheid van het etheramide in de polyamidestructuur voldoende is voor het vormen van een copolymeer met  
20 een lager smeltpunt dan een overeenkomstig homopolymeer van het polyamide.

3. Blokcopolymeer volgens conclusie 2, waarbij het blokcopolymeer  $\{X\} \{Y\}$  kan worden gesponnen bij een lagere temperatuur dan een blokcopolymeer, bestaande uit  $\{X\}$  en een  
25 tweewaardig ether-vrij polyamide radicaal.

4. Blokcopolymeer volgens conclusie 2, waarin de recurrente structuurformule  $\{X\}_W \{Y\}_Z$  is en W en Z ieder een waarde hebben in het traject tussen ongeveer 4 en ongeveer 200.

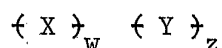
5. Blokcopolymeer volgens conclusie 4, waarin  
30  $\{X\}$  poly (4,7-dioxadecamethyleen) en  $\{Y\}$  een ongeordend copolymeer is van de voorlopers van poly(4,6-dioxadecamenthyleen) en xylon 6,6.

8020350

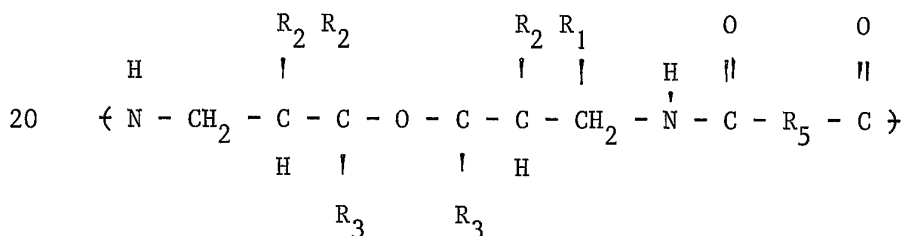
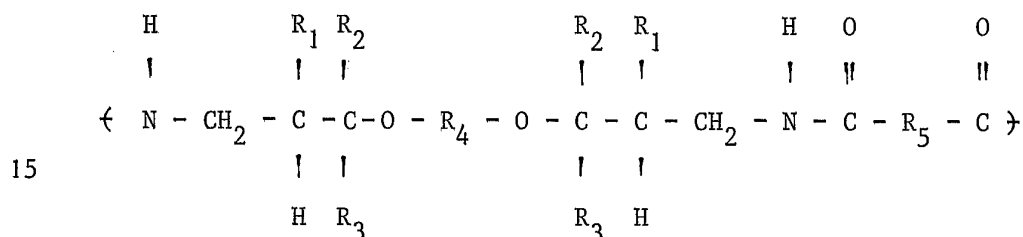
4

Gewijzigde conclusies

1. Blokcopolymeer, dat blokken polyetheramide en blokken van een ongeordend copolymeer van polyetheramidevoorlopers en voorlopers van ethervrije polyamide bevat, waarbij het blokcopolymeer vrij is van ethervrije polyamide-bloksegmenten en het  
5 blokcopolymeer de volgende recurrente structuurformule heeft:



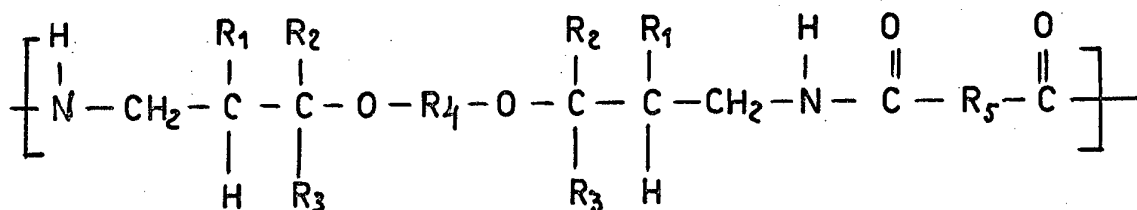
10 waarin  $\langle X \rangle$  een polyetheramide is, gekozen uit de groep, bestaande uit de volgende structuurformules,



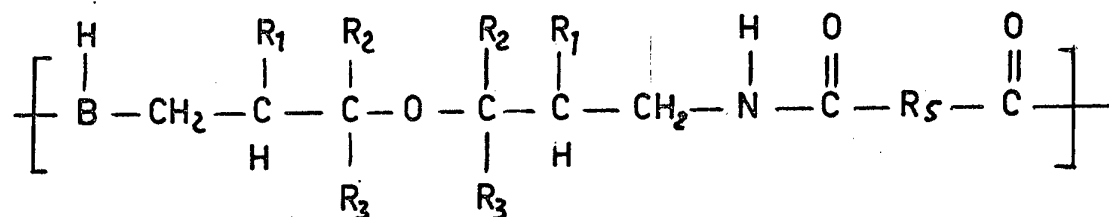
25 waarin  $\text{R}_1$ ,  $\text{R}_2$  en  $\text{R}_3$  ieder worden gekozen uit de groep, bestaande uit  $\text{H}$ ,  $\text{C}_1 - \text{C}_{10}$  alkylen en  $\text{C}_3 - \text{C}_{10}$  isoalkylen en  $\text{R}_4$  wordt gekozen uit de groep, bestaande uit  $\text{C}_1 - \text{C}_{10}$  alkylenen en  $\text{C}_3 - \text{C}_{10}$  isoalkylenen en  $\text{R}_5$  wordt gekozen uit de groep, bestaande uit  $\text{C}_0 - \text{C}_{10}$  alkylenen,  $\text{C}_3 - \text{C}_{10}$  isoalkylenen en  $\text{C}_6 - \text{C}_{20}$  arylenen en waarin  
30  $\langle Y \rangle$  een tweewaardig radicaal is van een ongeordend copolymeer, dat een etheramide bevat dat ongeordend is verdeeld door een polyamide-structuur en waarin de hoeveelheid etheramide in de polyamide-structuur voldoende is om een copolymeer te vormen met een lager

8 0 2 0 3 5 0

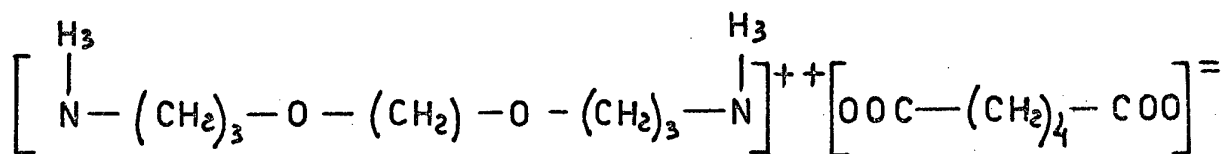
-A-



-B-



-C-



-D-

