



SCHWEIZERISCHE EIDGENOSSENSCHAFT  
BUNDESAMT FÜR GEISTIGES EIGENTUM

⑪ CH 671 022 A5

⑤① Int. Cl.4: C 08 L 77/06  
C 08 L 51/00  
C 08 J 5/00  
C 08 J 5/18

**Erfindungspatent für die Schweiz und Liechtenstein**

Schweizerisch-liechtensteinischer Patentschutzvertrag vom 22. Dezember 1978

⑫ **PATENTSCHRIFT** A5

⑰ Gesuchsnummer: 3425/86

⑰③ Inhaber:  
Ems-Inventa AG, Zürich

⑳ Anmeldungsdatum: 26.08.1986

㉔ Patent erteilt: 31.07.1989

④⑤ Patentschrift  
veröffentlicht: 31.07.1989

⑰② Erfinder:  
Dalla Torre, Hans, Dr. phil., Domat/Ems  
Hoppe, Manfred, Dr. rer. nat., Chur

⑤④ **Thermoplastisch verformbare, schlagzähe Polyamidlegierungen.**

⑤⑦ Thermoplastisch verformbare, hervorragend schlagzähe und dimensionsstabile sowie wärmeformbeständige Polyamid-Legierungen aus

- a) 20 - 98 Gew.-% eines amorphen, niedrigviskosen Copolyamides, erhalten aus Benzoldicarbonsäuren, welche gegebenenfalls durch aliphatische Dicarbonsäuren ersetzt sein können, Hexamethyldiamin und einem in Nachbarstellung zu dem die Amino-Gruppe tragenden C-Atom substituierten Bis-(4-amino-cyclohexyl)-methan-Homologen und
- b) 2 - 80 Gew.-% modifiziertes Copolyolefin, das durch Pfropfung von Aethylen/ $\alpha$ -Olefin-Copolymeren mit ethylenisch ungesättigten Dicarbonsäuren oder deren Anhydriden erhalten wird.

Diese Formmassen zeichnen sich durch hohe Steifigkeit bei ausgezeichneter Schlagzähigkeit über einen breiten Temperaturbereich, sehr niedrige Wasseraufnahme, sehr hohe Dimensionsstabilität und niedrige Sauerstoff-Permeabilität sowie hohe Wärmeformbeständigkeit aus und sind aufgrund ihrer relativ niedrigen Schmelzviskosität

hervorragend geeignet für die Verarbeitung in Spritzguss- und Extrusionsverfahren, besonders auch für die Herstellung von z.B. dünnwandigen oder grossflächigen Teilen, wie Ummantelungen oder Folien.

## PATENTANSPRÜCHE

1. Thermoplastisch verformbare, schlagzähe Polyamidlegierungen, dadurch gekennzeichnet, dass diese

a) zu 20–98.0 Gew.-% aus einem amorphen Copolyamid, welches zusammengesetzt ist aus Hexamethyldiamin und/oder gegebenenfalls alkylsubstituierten Hexamethyldiaminen sowie aus in Nachbarstellung zur Aminogruppe, gegebenenfalls auch in weiteren Stellungen des Cyclohexanringes, substituierten Bis-(4-amino-cyclohexyl)-methan-Homologen und Isophthalsäure, welche gegebenenfalls durch Terephthalsäure und/oder andere aromatische oder aliphatische Dicarbonsäuren ersetzt sein kann und

b) zu 2–80 Gew.-% aus modifizierten Copolyolefinen bestehen.

2. Polyamidlegierungen gemäss Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die in Nachbarstellung zur Aminogruppe substituierten Bis-(4-aminocyclohexyl)methan-Homologen Isomerengemische sind, welche in 3- und/oder 5-Stellung, gegebenenfalls auch in weiteren Stellungen des Cyclohexanringes Alkylreste besitzen und dass Alkylreste mit  $R=C_1$  bis  $C_8$ , bevorzugt  $R=C_1$  bis  $C_4$  und besonders Methyl-, Äthyl-, Propyl, Isopropyl-Gruppen gemeint sind, wobei Kombinationen von Methyl- mit Äthyl- bzw. Isopropylgruppen besonders bevorzugt sind.

3. Polyamidlegierungen gemäss Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Anteil des alkylsubstituierten Diamins im gesamten Diaminanteil des Copolyamids mindestens 2 Gew.-% beträgt und aus einem vornehmlich trans/trans- und cis/trans-Isomerengemisch besteht.

4. Polyamidlegierungen gemäss Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Anteil an Terephthalsäure im amorphen Copolyamid 0–10 Mol% beträgt.

5. Polyamidlegierungen gemäss Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass als modifizierte Copolyolefine mit ethylenisch ungesättigten Dicarbonsäuren oder ihren Anhydriden gepfropfte Copolymere aus Äthylen und  $\alpha$ -Olefinen mit 3–16 Kohlenstoff-Atomen enthalten sind.

6. Verwendung der Polyamidlegierungen nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass diese durch Extrusions- bzw. Spritzgussmaschinen zu Formteilen verarbeitet werden.

7. Verwendung nach Anspruch 6 dadurch gekennzeichnet, dass besonders grossflächige und/oder besonders dünnwandige Formteile hergestellt werden.

8. Verwendung nach Anspruch 6 dadurch gekennzeichnet, dass als Formteile Folien oder Ummantelungen von Lichtwellenleitern hergestellt werden.

## BESCHREIBUNG

Die Erfindung betrifft thermoplastisch verformbare, schlagzähe Polyamidlegierungen aus amorphem Copolyamid gemäss Anspruch 1. Sie betrifft im besonderen niedrigviskose, auf Spritzguss- oder Extrusionsanlagen leicht verarbeitbare Polyamidlegierungen, welche im wesentlichen aus einem speziellen, niedrigviskosen, amorphen Copolyamid und einem speziellen Polyolefin bestehen und sich durch hohe Schlagzähigkeit, besonders auch bei Temperaturen unter  $-20^\circ\text{C}$ , hohe Steifheit, hohe Wärmeformbeständigkeit sowie geringe Sauerstoff-Permeabilität und Wasseraufnahme auszeichnen und deren Verwendung.

In der US Patentschrift 2 696 482 wird ein amorphes Polyamid aus Bis-(4-amino-cyclohexyl)-methan und Isophthalsäure beschrieben, welches für die Verarbeitung z.B. im Spritzguss wegen der zu hohen Viskositäten nicht geeignet war.

In DAS 1 795 464 ist ein Verfahren bekannt gemacht worden, amorphe Copolyamide aus Kombinationen von mit Alkylgrup-

pen substituierten Hexamethyldiaminen, Isophthalsäure und Terephthalsäure herzustellen; aber auch bei diesen liegen die Viskositäten so hoch, dass sich dabei Verarbeitungsschwierigkeiten einstellen.

Die US Patentschrift 3 597 400 (= DOS 1 933 395) handelt von einem amorphen Copolyamid, welches aus Bis-(4-amino-cyclohexyl)-methan, Hexamethyldiamin, Isophthalsäure und Terephthalsäure aufgebaut ist und gemäss welcher gerade die Kombinationen mit hohen Anteilen Bis-(4-amino-cyclohexyl)-methan besonders hohe Schmelzviskositäten aufweisen und sich darum schlecht (z.B. im Spritzguss) verarbeiten lassen; aber auch bei kleinen Konzentrationen an Diamin entstehen noch hohe, zur Herstellung grosser Formteile schwer beherrschbare Viskositäten.

Gemäss US Patent 4 396 305 erhält man Viskositäten unter 30'000 Poise bei  $280^\circ\text{C}$  mit einer Scherbeanspruchung von  $10^5$  dyn/cm<sup>2</sup>, wenn das Copolyamid ganz bestimmte Anteile Iso- und Terephthalsäure, sehr niedrige Anteile von Bis-(4-amino-cyclohexyl)-methan und diese in einem speziellen Isomerengemisch, nämlich mindestens 59 Gew.-% trans/trans oder cis/trans-Isomere enthält.

In Vergleichen zeigte sich aber, dass die Homologenzusammensetzung des Bis-(4-amino-cyclohexyl)-methans für die hohen Viskositäten und das darüber hinaus zu beobachtende stark strukturviskose Verhalten verantwortlich ist.

Aus dem gesamten zugänglichen Stand der Technik ergab sich jedoch kein Hinweis, ob und in welchem Masse durch geeignete Substituenten an geeigneter Stelle am Cyclohexanring die viskositätsbeeinflussende Reaktivität der  $\text{NH}_2$ -Gruppe steuerbar wird.

In einem weiteren US Patent 4 536 541 wird ein amorphes Copolyamid beschrieben, welches ebenfalls niedere Anteile von Bis-(4-amino-cyclohexyl)-methan-Isomeren enthält und mit einem speziellen auf Basis von Bernsteinsäureanhydrid aktivierten Ethylen/Propylen/Dien-Terpolymeren (EPDM) schlagzäh modifiziert ist.

Von derartigen Schlagzähmodifikatoren ist aber bekannt, dass sie, in Polyamide eingearbeitet, die Schmelzviskosität beträchtlich erhöhen (US 4 174 358, DAS 1 241 606), so dass die Verarbeitung solcher Polyamide noch weiter erschwert wird.

Andererseits bewirkt eine Erniedrigung der Menge an Bis-(4-amino-cyclohexyl)-methan in den amorphen Copolyamiden eine Verminderung der Wärmeformbeständigkeit und eine Verschlechterung bestimmter mechanischer Eigenschaften, z.B. der Zähigkeit und Festigkeit.

Der Einbau von modifizierten Polyolefinen und Polyacrylaten zur Schlagzähmodifizierung von linearen teilkristallinen Polyamiden ist in GB 998 439 beschrieben; die Schlagzähmodifizierung mit speziellen reaktiven Copolyolefinen wird auch in DOS 2 722 270 für die Polyamide PA 6 und PA 66 eingehend beschrieben. Nachdem aber teilkristalline PA-Typen von sich aus eine sehr niedrige Schmelzviskosität besitzen, verursacht die Viskositätserhöhung durch die Modifizierung keine Probleme bei der Verarbeitung derartiger thermoplastischer Massen.

In US Patent 4 339 555 wird die Modifizierung von üblichen Homo-Polyamiden mit bestimmten Copolyolefinen beschrieben, welche zusätzlich noch Harnstoffderivate zur Verbesserung des Schmelze- und Entformungsverhaltens beinhalten.

Es bestand also die Aufgabe, die aufgezeigten Nachteile für Polyamid- und Copolyamidlegierungen zu überwinden und speziell leichtverarbeitbare, niedrigviskose Legierungen mit hohen Gebrauchseigenschaften zu finden.

Die Lösung dieser Aufgabe wurde erreicht durch die erfindungsgemässen thermoplastisch verformbaren, schlagzähen Polyamidlegierungen gemäss Anspruch 1.

Unerwartet zeigte sich

1. dass man aus Hexamethyldiamin, Isophthalsäure und gegebenenfalls Terephthalsäure oder anderen aliphatischen Di-

carbonsäuren gut verarbeitbare amorphe Copolyamide erhält, wenn als zusätzliche Aminkomponenten nicht Bis(4-amino-cyclohexyl)-methan, sondern Homologe davon verwendet werden, welche in unmittelbarer Nachbarschaft zu den Aminogruppen, also in 3- und/oder 5-Stellung alkylsubstituiert sind. Dabei war die Beeinflussung der erreichbaren Viskosität durch die Einführung definierter Substituenten und Ionemengemische nicht voraussehbar.

2. dass aus solchen Copolyamiden mit modifizierten Copolyolefinen, z.B. Ethylen/Propylen- und/oder Ethylen/1-Buten-Copolymerisaten oder ihren Gemischen gut verarbeitbare schlagzähe Legierungen hergestellt werden können, die sich

3. infolge ihrer gut beherrschbaren Viskositäten zur Herstellung von großflächigen Formteilen z.B. im Spritzgussverfahren oder aber auch für extrem dünnwandige Artikel nach dem Extrusionsverfahren verwenden lassen,

4. dass durch die substituierten Diamine infolge der sterischen Beeinflussung der Amino- durch die benachbarten Alkylgruppen und die Zusammensetzung der Isomergemische die Copolyamid-Viskosität gezielt reguliert werden kann,

5. dass auch über den Gewichtsanteil der Terephthalsäure die Viskosität der erfindungsgemässen Legierungen deutlich beeinflusst werden kann.

Bei den erfindungsgemässen zusätzlichen cyclo-aliphatischen Aminen handelt es sich um Diamine wie z.B.

- Bis-(4-amino-3-methyl-5-äthyl-cyclohexyl)-methan
- Bis-(4-amino-3,5-diäthyl-cyclohexyl)-methan
- Bis-(4-amino-3-methyl-5-isopropyl-cyclohexyl)-methan
- Bis-(4-amino-3,5-diisopropyl-cyclohexyl)-methan
- Bis-(4-amino-3,5-dimethyl-cyclohexyl)-methan
- Bis-(4-amino-3-methyl-cyclohexyl)-methan
- Bis-(4-amino-3-äthyl-cyclohexyl)-methan
- Bis-(4-amino-3-isopropyl-cyclohexyl)-methan

oder Mischungen derselben oder bestimmter Isomergemische einzelner dieser genannten Diamine oder solcher, welche noch weitere Alkyl-Substituenten in den Cyclohexanringen aufweisen oder bei welchen gegebenenfalls die -CH<sub>2</sub>-Gruppierung zwischen den Cyclohexanringen durch Äthylen, Propylen, Isopropyl, Butylen ersetzt sein kann.

Die Ursache für die wesentlich verminderten Viskositäten der daraus hergestellten amorphen Copolyamide und Copolyamidlegierungen liegt eindeutig in der sterischen Beeinflussung dieser Diamine im Vergleich zu nicht substituierten Diaminen und in einer bestimmten Isomeren-Zusammensetzung der Diamin-Homologen.

Bei der Verwendung solcher Diamine im Copolyamid bzw. in der Copolyamidlegierung stellen sich noch weitere Vorteile ein, nämlich

- eine stark erhöhte Wärmeformbeständigkeit der Formmassen
  - eine erhöhte Steifigkeit derselben auch in konditioniertem Zustand,
  - eine verbesserte Kälteschlagzähigkeit und
  - eine verminderte Wasseraufnahme derselben,
- ebenfalls hervorgerufen durch die zusätzlichen Alkylgruppen in den Bis-(4-amino-cyclohexyl)-methan-Homologen.

Weiterhin zeigen die erfindungsgemässen Polyamidlegierungen eine besonders niedrige Sauerstoff-Permeabilität.

Der Anteil der verwendeten homologen Diamine im Copolyamid wird zum Einstellen einer bestimmten Viskosität gezielt variiert, soll aber mind. 2 Gew. % des gesamten Diaminanteils betragen. In ähnlicher Weise steigt die Viskosität der Polymeren mit steigender Menge Terephthalsäure, deren sinnvolle Obergrenze bei 10 Gew. % liegt.

Bei den die Schlagzähigkeit verbessernden Copolyolefinen der erfindungsgemässen Polyamidlegierungen handelt es sich um ein mit 0,05 bis 1,0 Gew. % Maleinsäureanhydrid oder anderen ethylenisch ungesättigten Dicarbonsäuren oder deren Anhydri-

den gefropfte Copolyolefine aus Ethylen/1-Buten oder Ethylen/Propylen bzw. bevorzugt Gemische davon, welche in Mengen 2-80 Gew. % eingesetzt werden.

Die erfindungsgemässen Polyamidlegierungen können noch weitere Komponenten enthalten wie Füllstoffe, Verstärkungsmittel, Pigmente, Farbstoffe, Wärmestabilisatoren, Antioxydantien, UV-Schutzmittel, Plastifizierungsmittel, Nukleierungsmittel u. a. m.

Sie können aber auch mit weiteren Polyamidtypen oder Fremdpolymeren legiert oder gemischt sein.

Die beanspruchten Polyamidlegierungen stellen Formmassen dar, welche besonders gut geeignet sind, auf Extrusions- und Spritzgussmaschinen verarbeitet zu werden, u. a. zur Herstellung von großflächigen oder grossvolumigen Formteilen, wie sie z. B. im Automobilkarosseriebau oder als Maschinenabdeckungs- oder als Schutzteile Verwendung finden, ferner zur Herstellung von dimensionsstabilen Apparateilen, aber auch zur Herstellung von Draht- und Lichtwellenleiterummantelungen und anderen Formteilen mit sehr geringen Abmessungen in Wandstärke und Durchmesser.

Die erfindungsgemässen Polyamidlegierungen und ihre Herstellung werden nachfolgend beispielhaft beschrieben.

Dabei veranschaulichen die Beispiele 1-5 die Herstellung der amorphen Copolyamidtypen und die Art der erfindungsgemässen Polyamidlegierungen. In den Vergleichsbeispielen 6 und 7 wird verdeutlicht, dass nichtsubstituiertes Bis-(4-amino-cyclohexyl)-methan sehr hohe, schlecht beherrschbare Schmelzviskositäten verursacht, sodass die Legierungen im Spritzgussverfahren kaum verarbeitbar sind.

#### Beispiel 1

376,5 g Isophthalsäure (47,7 Mol%), 395,5 g einer 60%igen Hexamethylendiaminlösung (43,0 Mol%), 118,0 g Bis-(4-amino-3,5-diäthyl-cyclohexyl)-methan (7,8 Mol%) und 8,7 g Benzoesäure (1,5 Mol%) wurden in ein Reaktionsgefäss eingewogen, auf 180 °C, dann noch 1 Std. auf 250 °C unter Rühren und Beschleierung mit Stickstoff erhitzt; das bei der Polykondensation entstehende Reaktionswasser von ca. 82,0 ml wurde gesondert aufgefangen und die Temperatur dann ca. 4½ Std. auf 285 °C gehalten.

Das entstandene Polymer war völlig transparent, besass eine Lösungsviskosität (0,5% in m-Kresol) von 1,529 und eine Schmelzviskosität von 912 Pa·s (bei 270 °C/122,6 N). Der Glasumwandlungspunkt betrug 138 °C.

Das so hergestellte Polymere wurde mit 20 Gew. % eines mit Maleinsäureanhydrid gefropften Ethylen/Propylen-Ethylen/1-Buten-Copolymerisatgemischs (Schmelzpunkt 48 °C bzw. 70 °C) vermischt und in einem Laborextruder Typ Nestal 5730/N 110 bei ca. 260 °C Massetemperatur extrudiert.

Der im Wasser abgeschreckte Polymerstrang wurde zerkleinert und getrocknet. Der Glasumwandlungspunkt betrug ebenfalls 130 °C und die Schmelzviskosität 1342 Pa·s (270 °C/122,6 N).

#### Beispiel 2

357,3 g Isophthalsäure (43,6 Mol%), 15,0 mg Benzoesäure (0,025 Mol%), 40,0 g Terephthalsäure (4,9 Mol%), 102,0 g Bis-(4-amino-3-methyl-5-äthyl-cyclohexyl)-methan (7,07 Mol%), 254,0 g Hexamethylendiamin (44,4 Mol%) wurden in ein Reaktionsgefäss gefüllt und unter Rühren und Stickstoffbeschleierung allmählich auf 180 °C erhitzt.

Nach Abtrennung des Reaktionswassers wurde das Reaktionsgemisch 3 Std. auf 285 °C erhitzt und abgekühlt.

Das glasklare Polykondensationsprodukt besass eine Lösungsviskosität  $\eta_{rel} = 1,628$  und eine Schmelzviskosität von 1212 Pa·s (bei 270 °C/122,6 N). Der TG betrug 142 °C. Nach Vermischen des Polykondensates mit 25 Gew. % des im Beispiel 1 beschriebenen, modifizierten Ethylen/Propylen, Ethylen/1-Buten-Copolyolefingemischs und Extrusion wurde ein Granulat

erhalten von einer Viskosität von 1392 Pa·s bei 270°/122,6 N und einem TG von 142°.

Ein daraus hergestellter Probekörper erfuhr nach 3monatiger Wasserlagerung bei 25° eine Wasseraufnahme von nur 2,1%.

#### Beispiel 3

273,0 g Isophthalsäure (39,9 Mol%), 85,0 g Dodecandicarbonsäure (8,9 Mol%), 125,0 g Hexamethylendiamin (26,1 Mol%) 333,0 g Bis-(4-amino-3,5-diäthyl-cyclohexyl)-methan (25,1 Mol%) wurden bei 285°C polykondensiert; die relative Lösungsviskosität des transparenten Polykondensates betrug 1,504 (0,5% m-Kresol), die Schmelzviskosität 680 Pa·s (270°/122,6 N) und der Glasumwandlungspunkt 165°.

Nach Extrusion mit 20 Gew. % eines mit Maleinsäureanhydrid gefropftem Ethylen/Propylen/1-Buten-Polyolefingemischs betrug die Viskosität der Legierung 836 Pa·s (270°/122,6 N) und der TG 159°.

#### Beispiel 4

21,3 kg isophthalsäure (42,42 Mol%), 3,4 kg Terephthalsäure (6,86 Mol%), 26,15 kg einer 60,4% wässrigen Hexamethylendiaminlösung (45 Mol%), 3,58 kg von Bis-(amino-3-methyl-cyclohexyl)-methan (4,97 Mol%), 400 g Stearinsäure (0,74 Mol%) und 5 l Wasser wurden in einem 150 l Autoklaven unter Rühren auf 260° aufgeheizt. Nach Entspannung des Autoklaven wurde der Inhalt unter Stickstoff bei 290° polykondensiert, das Polykondensat als Strang durch ein Wasserbad ausgefahren und granuliert. Das glasklare Granulat besass eine Lösungsviskosität (0,5 m-Kresol) von 1,589; eine Schmelzviskosität von 1158 Pa·s (270°/122,6 N) und einen TG von 143°C.

Daraus hergestellte Prüfkörper wiesen eine Schlagzähigkeit nach DIN 53453 o.B. und eine Kerbschlagzähigkeit von 1,9 kJ/m<sup>2</sup> auf.

Der Biege E-Modul nach DIN 53452 betrug 2754 N/mm<sup>2</sup> und die Grenzbiegespannung 153 N/mm<sup>2</sup>. Die Wasseraufnahme betrug 2,9% nach 30 Tagen Lagerung in Wasser von 25°C.

Das amorphe Copolyamid wurde mit 20 Gew. % des in Beispiel 3 beschriebenen Copolyolefingemischs vermennt, extrudiert und granuliert. Die Viskosität des Granulates betrug 1410 Pa·s (270°/122,6 N) der TG war 142°.

Aus dem Granulat hergestellte Prüfkörper wiesen nach DIN 53453 eine Schlagzähigkeit o.B. und eine Kerbschlagzähigkeit bei 23°C und 44,0 kJ/m<sup>2</sup> und bei -40°C von 16 kJ/m<sup>2</sup> auf, ferner nach DIN 43457 einen Biege E-Modul trocken von 1911 und konditioniert 1903 N/mm<sup>2</sup> und eine Bruchfestigkeit trocken von 58,7 N/mm<sup>2</sup> und eine Bruchdehnung von 150%. Die Wasseraufnahme nach 30 Tagen Wasserlagerung bei 25°C betrug nur 2,5%.

#### Beispiel 5

2,8 kg Isophthalsäure (41,1%), 0,52 kg Terephthalsäure (7,4 Mol%), 2,07 kg Hexamethylendiamin (43,4 Mol%), 0,83 kg (7,1 Mol%) Bis-(4-amino-3,5-diäthyl-cyclohexyl)-methan und 50 g (1 Mol%) Benzoesäure wurden in einem 20 l Autoklaven bei 285°C polykondensiert.

Das resultierende Polykondensat hatte eine Lösungsviskosität von 1,574 (0,5% in m-Kresol), eine Schmelzviskosität von 840 Pa·s und einen TG von 140°.

Daraus hergestellte Prüfkörper ergaben eine Schlagzähigkeit 5 o.B. und eine Kerbschlagzähigkeit von 2,3 kJ/m<sup>2</sup> (DIN 53453), ferner einen Biege E-Modul trocken von 3080 N/mm<sup>2</sup> (DIN 53457) und konditioniert von 2334 N/mm<sup>2</sup>.

Nach Compoundierung mit 12 Gew. % des in den Beispielen 3 und 4 beschriebenen Copolyolefingemischs wurde in den daraus 10 hergestellten Prüfkörpern eine Schlagzähigkeit o.B., eine Kerbschlagzähigkeit bei 23°C von 30,5 kJ/m<sup>2</sup> (trocken) und bei -40°C von 12 kJ/m<sup>2</sup>, ein Biege E-Modul trocken von 2360 N/mm<sup>2</sup> und 2400 N/mm<sup>2</sup> konditioniert und eine Grenzbiegespannung von 100 N/mm<sup>2</sup> gemessen.

#### Vergleichsbeispiel 6

Es wurde Bis-(4-amino-cyclohexyl)-methan mit der Isomerenverteilung 46 Gew. % trans/trans und 45 Gew. % cis/trans und 9 Gew. % cis/cis eingesetzt.

15,0 kg Isophthalsäure (44,14 Mol%), 1,60 kg Terephthalsäure (4,7 Mol%), 10,3 kg Hexamethylendiamin (43,3 Mol%), 3 kg Bis-(4-amino-cyclohexyl)-methan (6,97 Mol%), 0,22 kg Benzoesäure (0,89 Mol%) wurden in einem 20 l Autoklaven bei 25 280°C polykondensiert.

Das als transparenter Strang abgezogene Copolyamid wurde granuliert; es besass eine Lösungsviskosität von 1,539 und eine hohe Schmelzviskosität von 2974 Pa·s bei 270°/122,6 N. Nach Coextrusion mit 20 Gew. % des in Beispiel 3 beschriebenen, 30 modifizierten Copolyolefingemischs stieg die Viskosität auf 5200 Pa·s bei 270°/122,6 N.

Mit dieser Schmelzviskosität konnten Prüfkörper nur mit grosser Mühe und nicht mehr einwandfrei hergestellt werden.

#### Vergleichsbeispiel 7

In diesem Beispiel wurde Bis-(4-amino-cyclohexyl)-methan des folgenden Isomergemischs eingesetzt: 54 Gew. % trans/trans, 40 Gew. % cis/trans, 6 Gew. % cis-cis.

40 2,98 kg Isophthalsäure (43,9 Mol%), 0,34 Gew. % Terephthalsäure (5,0 Mol%), 2,07 kg Hexamethylendiamin (43,5 Mol%), 0,55 kg (6,7 Mol%) Bis(4-amino-cyclohexyl)-methan und 40 g Benzoesäure (0,8 Mol%) wurden in einem 20 l Autoklaven zu einem transparenten Copolyamid polykonden- 45 siert.

Die Viskosität war ausserordentlich rasch angestiegen und der Autoklav nur mit Mühe entleerbar. Die relative Lösungsviskosität betrug 1,68 (0,5% m-Kresol), die Schmelzviskosität 7640 Pa·s (270°/122,6 N).

50 Nach Extrusion mit 20 Gew. % des in Beispiel 3 beschriebenen Copolyolefingemischs wurde eine hochviskose Polymerlegierung erhalten, deren Schmelzviskosität grösser als 10'000 Pa·s (270°/122,6 N) war. Es konnten damit keine brauchbaren Spritzkörper hergestellt werden, da sich die Form nicht füllen liess.