
Octrooiraad



⑫ A **Terinzagelegging** ⑪ **9002213**

Nederland

⑲ NL

- ⑤4 **Polymeermengsel met polybutyleentereftalaat, thermoplastisch elastomeer en een gebromineerd polystyreen; daaruit gevormde voorwerpen.**
- ⑤1 Int.Cl.⁵: C08L 67/02, C08K 7/14, C08L 25/18, C08L 87/00.
- ⑦1 Aanvrager: General Electric Company te Schenectady, New York, Ver. St. v. Am.
- ⑦4 Gem.: Mr.ir. F. Grever
Postbus 117
4600 AC Bergen op Zoom.

-
- ②1 Aanvraag Nr. 9002213.
- ②2 Ingediend 11 oktober 1990.
- ③2 --
- ③3 --
- ③1 --
- ⑥2 --

-
- ④3 Ter inzage gelegd 6 mei 1992.

De aan dit blad gehechte stukken zijn een afdruk van de oorspronkelijk ingediende beschrijving met conclusie(s) en eventuele tekening(en).

1

Aanvraagster noemt als uitvinder: L.J. Goff

5

Polymeermengsel met polybutyleentereftalaat, thermoplastisch elastomeer en een gebromineerd polystyreen; daaruit gevormde voorwerpen.

10

De uitvinding heeft betrekking op een polymeermengsel dat de volgende bestanddelen bevat :

- A. een polybutyleentereftalaat;
- B. een thermoplastisch elastomeer;
- C. een gebromineerd polystyreen.

15

De uitvinding heeft tevens betrekking op voorwerpen gevormd uit het polymeermengsel volgens de uitvinding. Polymeermengsels die een polybutyleentereftalaat en een thermoplastisch elastomeer, zoals een polyether-ester blokcopolymeer bevatten, zijn bij voorbeeld bekend uit DE-C-2338615 en DE-B-2460257. Het toevoegen van vlamvertragende middelen is in deze publicaties niet genoemd.

25

Het toevoegen van vlamvertragende, halogeen bevattende verbindingen aan polybutyleentereftalaten is beschreven in EP-A-0065777. Als geschikte vlamvertragende middelen wordt een groot aantal verbindingen genoemd waaronder bij voorbeeld polycarbonaat oligomeren bereid uitgaande van gebromineerd bisphenol A en gebromineerd polystyreen.

30

In EP-A-0322934 zijn polymeermengsels beschreven die een polybutyleen tereftalaat, een gebromineerd polystyreen, een aromatisch

35

.../2

9002213

1 polycarbonaat en een middel voor het verbeteren van de
slagsterkte bevatten. De zojuist genoemde polymeer-
mengsels bezitten een goede tracking index en goede
vlamwerende eigenschappen.

5

In de niet-voorgepubliceerde EP-A-0392190
zijn polymeermengsels beschreven die een polybutyleen-
terephthalaat, een thermoplastisch elastomeer en een
gebromineerd polystyreen als vlamvertrager bevatten.

10 Deze bekende polymeermengsels bezitten een goede com-
binatie van eigenschappen: een goede flexibiliteit, een
goede vloeï van hun smelt, goede vlamwerende eigenschap-
pen en een hoge tracking index. Volgens de algemene leer
van deze octrooiaanvraag kan men aan de polymeermengsels
15 gebruikelijke additieven zoals versterkende vezels
toevoegen. Zo zal men, wanneer men een polymeermengsel
met een grotere stijfheid wil verkrijgen, gebruikelijke
glasvezels toevoegen. Uit experimenten van aanvraagster
is echter gebleken dat het toevoegen van gebruikelijke
20 glasvezels weliswaar leidt tot een verhoging van de
stijfheid maar ook tot een sterke vermindering van de
vloei eigenschappen en een verlaging van de tracking
index.

25 De uitvinding berust op de ontdekking dat door
toepassing van een bepaald type glasvezels de stijfheid
verhoogd kan worden zonder dat een al te sterke vermin-
dering van de vloei en/of van de tracking index
optreedt.

30

Het polymeermengsel volgens de uitvinding
heeft het kenmerk, dat het polymeermengsel bovendien (D)
glasvezels bevat met een lengte van minder dan 200
micrometer en een diameter van minder dan 25 micrometer.

.../3

9 0 0 2 2 1 3

1 Als bestanddeel B bevat het polymeermengsel volgens de uitvinding bij voorkeur een polyether ester blokcopolymeer, of een polyester-ester urethaan of een polyetherimide ester.

5 De samenstelling van het polymeermengsel volgens de uitvinding is bij voorkeur dusdanig dat het polymeermengsel per 100 gewichtsdelen van de som van de bestanddelen A, B, C en D

45 - 70 gewichtsdelen van bestanddeel A,
10 5 - 25 gewichtsdelen van bestanddeel B,
10 - 30 gewichtsdelen van bestanddeel C en
5 - 15 gewichtsdelen van bestanddeel D bevat.

15 Als bestanddeel A. bevat het polymeermengsel volgens de uitvinding een polymeer of een copolymeer dat voor meer dan 70 mol% is opgebouwd uit eenheden afgeleid van tereftaalzuur en butaan-1,4-diol.

20 In de polymeermengsels volgens de uitvinding is het mogelijk een metaalverbinding toe te passen (bijvoorbeeld antimoonoxide) die synergistisch samenwerkt met het gebromineerde polystyreen.

25 Het polymeermengsel volgens de uitvinding kan per 100 gewichtsdelen A. plus B. plus C. plus D. 1-100 gewichtsdelen gebruikelijke additieven bevatten.

30 Het polymeermengsel volgens de uitvinding bevat in elk geval de volgende bestanddelen :

A. een polybutyleentereftalaat,
B. een thermoplastisch elastomeer,
C. een gebromineerd polystyreen en
D. een speciaal soort glasvezels.

1 A. Polybutyleentereftalaat

Polybutyleentereftalaat is op zich een bekend polymeer. Het is afgeleid van butaan-1,4-diol en tereftaalzuur.

5 Het is mogelijk in de polymeermengsels copolyesters toe te passen waarin een gedeelte van de diol verbinding en/of een gedeelte van het tereftaalzuur door een ander diol en/of carbonzuur is vervangen. Het verdient voor de polymeermengsels volgens de uitvinding de voorkeur een
10 polybutyleentereftalaat toe te passen dat voor meer dan 70 mol% is opgebouwd uit eenheden afgeleid van butaan-1,4-diol en tereftaalzuur.

Het is mogelijk polybutyleentereftalaat toe te
15 passen waarin een vertakkingsmiddel, bijvoorbeeld een glycol met drie of meer hydroxyl groepen of een drie- of meervoudig carbonzuur, is opgenomen.

20 B. Thermoplastisch elastomeer

In het polymeermengsel volgens de uitvinding kunnen verschillende typen thermoplastische elastomeren worden toegepast. Voorbeelden zijn de op zich bekende polyether-ester blokcopolymeren, polyester-ester urethanen en polyetherimide esters.
25

Polyether-ester blokcopolymeren worden over het algemeen verkregen door condensatiepolymerisatie van een of meer dicarbonzuren, een of meer glycolen met lange
30 keten en een of meer glycolen met korte keten. Voorbeelden van geschikte polyether-ester blokcopolymeren vindt men beschreven in DE-C-2338615 en DE-B-2460258 alsmede in de daarin genoemde literatuurplaatsen.

1 Als polyester-ester urethaan wordt bij
voorkeur een blokcopolymeer toegepast dat is opgebouwd
uit polyester-ester eenheden die door middel van groepen
met de formule $R_1 [NHC(O)]_p$ verbonden zijn, waarbij R_1
5 een polyfunctionele groep met maximaal 30 koolstofatomen
voorstelt en p een waarde van 2 of 3 bezit, en waarbij
de polyester-ester eenheden zijn opgebouwd uit blokken
met een aantal ester eenheden met de formule -
OGOC(O) R_2 C(O) - en blokken met een aantal ester eenhe-
10 den die een bi-functionele polyester of polyester amide
met een smeltpunt van minder dan 100°C kunnen vormen,
welke blokken door ester bindingen met elkaar zijn ver-
bonden, waarbij ten minste 80 mol.% van de R_2 -groepen
1,4-phenyleen radicalen voorstellen en waarbij ten minste
15 80 mol.% van de G-groepen een tetramethyleen groep
voorstellen.

Dergelijke polymeren en hun bereidingswijze
zijn bij voorbeeld beschreven in EP-A-0102115,
20 US-A-4,186,257 en US-A-4,228,249.

Als polyetherimide ester wordt bij voorkeur
een blokcopolymeer toegepast dat is verkregen door reac-
tie van een diol met laag moleculair gewicht, een dicar-
25 bonzuur, een poly(oxyalkyleen) diamine en een
tricarbonzuur of een derivaat daarvan.

Dergelijke polymeren zijn bij voorbeeld beschreven in
US-A-4,544,734, US-A-4,556,705 en US-A-4,556,688.

30 C. Gebromineerd polystyreen

Gebromineerde polystyrenen zijn op zich bekende vlam-
vertragende middelen voor kunststoffen. Zij zijn in de
handel verkrijgbaar. Zij kunnen bijvoorbeeld ongew.
35 40-70 gew% broom bevatten.

1 D Glasvezels

Het polymeermengsel volgens de uitvinding moet glasvezels met een lengte van minder dan 200 micrometer en met een diameter van minder dan 25 micrometer

5 bevatten. Dergelijke typen glasvezels zijn algemeen verkrijgbaar.

Het polymeermengsel volgens de uitvinding kan behalve de hierboven genoemde bestanddelen bovendien

10 gebruikelijke toeslagstoffen bevatten. Geschikte toeslagstoffen zijn pigmenten en kleurstoffen, stabilisatoren, transesterificatie inhibitoren, vlamvertragende middelen, vormlosmiddelen enz.

15 Het polymeermengsel volgens de uitvinding kan volgens de gebruikelijke werkwijzen voor het bereiden van polymeermengsels worden verkregen bijvoorbeeld door smeltextrusie.

20 Voorbeeld I, vergelijkende voorbeelden A en B

Bij de voorbeelden werden de volgende bestanddelen toegepast :

- 25 PBT : een polyester afgeleid van butaandiol en tereftaalzuur met een intrinsieke viscositeit van 1.18 dl/g, gemeten in een 60/40 fenol/tetrachloorethaanmengsel bij 25°C.
- 30 TPE : een in de handel onder de aanduiding LOMOD® J10 verkrijgbare polyetherimide ester.
- FR : een gebromineerd polystyreen met een broomgehalte van ongeveer 65 gew.%.

- 1 glas-
vezels-1 : glasvezels met een gemiddelde lengte van
ongeveer 70 micrometer en een gemiddelde
diameter van ongeveer 12 micrometer.
- 5
glas-
vezels-2 : glasvezels met een gemiddelde lengte van
ongeveer 4,5 milimeter en een gemiddelde
diameter van 10 micrometer.
- 10
AOC : een mengsel van 85 gew.% $Sb_2 O_3$ en
15% of a carrier polymer.
- T : een polytetrafluorethyleen verbinding.
- 15
O : een mengsel van overige gebruikelijke addi-
tieven (stabilisator + vormlosmiddel)

De hierboven genoemde bestanddelen werden in de
20 hoeveelheden zoals aangegeven in de hieronder volgende
tabel in een extrusiemachine gecompoundeerd en
gepelletiseerd. Uit de verkregen pellets werden genor-
meerde proefstukjes gespuitgiet voor het bepalen van de
brandbaarheidsklasse volgens UL-94, voor het bepalen van
25 de "comparative tracking index" volgens IEC, 1979 (3de
editie), en voor het bepalen van enkele mechanische
eigenschappen. Bovendien werd de smelt viscositeits
index (MVI).

30 De verkregen resultaten zijn eveneens opge-
noemen in de hieronder volgende tabel.

.../8

9002213

1 TABEL

Voorbeeld no.	A	B	I	
5	Samenstelling <u>(Gew. delen)</u>			
	o PBT	50	53	53
	o TPE	25	15	15
10	o glas vezels-1	-	7	-
	o glas vezels-2	-	-	7
	o FR	17.5	17.5	17.5
	o AOC	7	7	7
	o T	0.25	0.25	0.25
15	o O	0.45	0.45	0.45

Eigenschappen

20	o Trekmodulus (tensile module)	1500	2100	2190
	o Buigmodulus (MPa)	1450	2045	2110
	o Comparative Tracking Index (V)	325	275	325
	o UL-94 (1.6 mm staaf) V-0	V-0	V-0	V-0
25	o MVI (250°C; 2,16kg)	22.4	14.5	17.5

Uit de resultaten weergegeven in de bovenstaande tabel kan men zien dat het toevoegen van gebruikelijke glasvezels (vergelijkend voorbeeld B) leidt tot een verhoging van de stijfheid en tot een flinke verslechtering van de vloeieigenschappen. Bovendien gaat tracking index omlaag.

Door toepassing van speciale vezels (voorbeeld I) kan zelfs nog een verdere verbetering van de stijfheid worden verkregen terwijl bovendien de vloeieigenschappen veel minder verslechterd worden. Ook blijft de tracking index op peil.

1 Conclusies

1. Polymeermengsel dat de volgende bestanddelen bevat :

A. een polybutyleentereftalaat;

5 B. een thermoplastisch elastomeer;

C. een gebromineerd polystyreen als vlamvertragend middel waarbij het polymeermengsel bovendien

D. glasvezels met een lengte van minder dan 200 micrometer en een diameter van minder dan 25 micrometer

10 bevat.

2. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat het polymeermengsel als bestanddeel B een polyether ester blokcopolymeer bevat.

15

3. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat het polymeermengsel als bestanddeel B een polyester-ester urethaan bevat.

20 4. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat het polymeermengsel als bestanddeel C een polyetherimide ester bevat.

5. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat het polymeermengsel per 100 gewichtsdelen van de som van de bestanddelen A, B, C en D

45 - 70 gewichtsdelen van bestanddeel A,

5 - 25 gewichtsdelen van bestanddeel B,

10 - 30 gewichtsdelen van bestanddeel C en

30 5 - 15 gewichtsdelen van bestanddeel D bevat.

6. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat het polymeermengsel als bestanddeel A. een polymeer of een copolymeer bevat dat voor meer dan 70 mol% is opgebouwd uit eenheden afgeleid van tereftaalzuur en butaan-1,4-diol.

35

.../10

9002213

1 Conclusies (vervolg)

7. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat het polymeermengsel een metaalverbinding, die synergistisch samenwerkt met het gebromineerde polystyreen, bevat.

8. Polymeermengsel volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat het polymeermengsel behalve de hierboven onder A, B en C genoemde bestanddelen per 100 gewichtsdelen A plus B plus C 1-100 gewichtsdelen gebruikelijke additieven bevat.

9. Voorwerpen, gevormd uit het polymeermengsel volgens conclusies 1-8.

.../11

9002213

1 Samenvatting

De uitvinding heeft betrekking op polymeer-
5 mengsels die een polybutyleentereftalaat, een thermo-
plastisch elastomeer, een gebromineerd polystyreen en
glasvezels met een lengte van minder dan 200 micrometer
en een diameter van minder dan 25 micrometer bevatten.
De polymeermengsels volgens de uitvinding bezitten een
combinatie van de volgende gunstige eigenschappen : een
voldoende stijfheid, een redelijke vloeï van de smelt,
goede vlamvertragende eigenschappen en een hoge tracking
index.

9002213