

(19)



Octrooi Centrum
Nederland

(11)

2009320

(12) **C OCTROOI**

(21)

Aanvraagnummer: **2009320**

(51)

Int.Cl.:
C08J 9/00 (2006.01)

(22)

Aanvraag ingediend: **14.08.2012**

(43)

Aanvraag gepubliceerd:
-

(47)

Octrooi verleend:
18.02.2014

(45)

Octrooischrift uitgegeven:
26.02.2014

(73)

Octrooihouder(s):
Synbra Technology B.V. te Etten-Leur.

(72)

Uitvinder(s):
**Jan Noordegraaf te Wijchen.
Franciscus Petrus Antonius Kuijstermans te
Sprundel.
Matthijs Gebraad te OUD GASTEL.**

(74)

Gemachtigde:
Ir. J.M.G. Dohmen c.s. te Eindhoven.

(54)

Deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer, werkwijze ter vervaardiging hiervan, alsmede de toepassing.

(57)

De onderhavige uitvinding heeft betrekking op deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer dat tot een schuim met fijne celstructuur en geringe dichtheid verwerkbaar is en ter verbetering van de warmte-isolatie waarde hiervan een warmte-isolatie waarde verhogend materiaal op basis van koolstof bevat. Verder heeft de onderhavige uitvinding betrekking op een werkwijze voor het vervaardigen van deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer, alsmede op een schuimmateriaal hiermee verkregen.

NL C 2009320

Dit octrooi is verleend ongeacht het bijgevoegde resultaat van het onderzoek naar de stand van de techniek en schriftelijke opinie. Het octrooischrift komt overeen met de oorspronkelijk ingediende stukken.

Korte aanduiding: Deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer, werkwijze ter vervaardiging hiervan, alsmede de toepassing.

De onderhavige uitvinding heeft betrekking op deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer dat tot een vlam vertragende schuim met fijne celstructuur en geringe dichtheid verwerkbaar is en ter verbetering van de warmte-isolatiewaarde hiervan een warmte-isolatiewaarde verhogend materiaal op basis van koolstof bevat. Verder heeft de onderhavige uitvinding betrekking op een werkwijze voor het vervaardigen van deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer, alsmede op een schuimmateriaal hiermee verkregen.

Uit het Europees octrooi EP 1 486 530 (overeenkomend met NL 1023638) ten name van de onderhavige aanvrager is expandeerbaar polystyreen (EPS) bekend waarbij zich in de polystyreendeeltjes als warmte-isolatiewaarde verhogend materiaal actieve kool bevindt. De daarbij van toepassing zijnde actieve kool bezit een deeltjesgrootte ≤ 12 micrometer. Een met een dergelijk warmte-isolatiewaarde verhogend materiaal verkregen schuim voldoet aan de eisen van de brandwerendheid volgens de B2-test, te weten DIN 4102, deel 2.

Uit WO 2010/041936 ten name van de onderhavige aanvrager is expandeerbaar polystyreen (EPS) bekend waarbij actieve kool met een bepaalde deeltjesverdeling als middel voor het verhogen van de thermische isolatiewaarde wordt toegepast.

Uit het Amerikaans octrooi 6.130.265 is een methode voor het bereiden van grafiet bevattende EPS bekend, waarbij een hoeveelheid van 0,05-25 gew.% grafiet, op basis van styreenpolymeer, wordt toegevoegd.

Uit het Amerikaans octrooi 6.340,713 is een deeltjesvormig, expandeerbaar polystyreen bekend, welk styreenpolymeer 0,05 tot 8 gew.% homogeen verdeelde grafietdeeltjes met een gemiddelde deeltjesafmeting van 1 tot 50 μm bevat.

Een methode voor het verhogen van de warmte-isolatie van EPS is verder op zich bekend uit de internationale octrooiaanvraag WO 00/43442, waarbij in een extruder styreenpolymeer wordt gesmolten en ten minste met een blaasmiddel en aluminiumdeeltjes, die hoofdzakelijk in de plaatjesvorm zijn, wordt gemengd en gemeenschappelijk geëxtrudeerd, waarbij het toegepaste gehalte

aluminiumdeeltjes ten hoogste 6 gew.% bedraagt, waarna het extrudaat wordt afgekoeld en tot deeltjes wordt verkleind. Dergelijke polymeren bevatten ten minste aluminium in de vorm van deeltjes om de warmte-isolerende eigenschappen hiervan te verbeteren, waarbij de aluminiumdeeltjes homogeen zijn verdeeld en als
5 infraroodstraling reflecterend materiaal zijn ingebouwd. De aluminiumdeeltjes hebben de beschikking over een plaatachtige vorm waarvan de afmeting varieert van 1 tot 15 μm .

De grondstof die gebruikt wordt ter vervaardiging van expandeerbaar polystyreen (EPS) kan niet alleen via het extrusieproces, zoals
10 bekend is uit de hiervoor genoemde internationale octrooiaanvraag, maar ook via suspensiepolymerisatie worden verkregen. Het aldus verkregen EPS-granulaat wordt in het algemeen toegepast als grondstof in de verpakkingsindustrie en in de bouw. De methode voor de verdere verwerking omvat een voorschuimhandeling, waarbij een hoeveelheid stoom in een expansievat door een laag van EPS-korrels
15 wordt geleid, waardoor het in de EPS-korrels aanwezige blaasmiddel, gebruikelijk pentaan, wordt verdampt waarbij het opschuimen van de korrels plaatsvindt. Na een bewaarperiode van ongeveer 4-48 uur, ook wel aangeduid als besterven, wordt de aldus voorgeschuimde korrel in een matrijs gebracht waarbij onder invloed van stoom de korrels verder worden geëxpandeerd. De hierbij toegepaste matrijs is van
20 kleine openingen voorzien zodat tijdens het expanderen het nog aanwezige blaasmiddel kan ontsnappen terwijl de korrels in de gewenste vorm fuseren. De afmeting van deze vorm is in principe niet beperkt, waarbij zowel blokken voor de bouwindustrie als verpakkingsmateriaal voor de food- en non-food-industrie kunnen worden verkregen.

25 Voor het vervaardigen van een schuim wordt veelal een vlam vertragend middel toegevoegd. Dergelijke schuimmaterialen worden tot producten en voorwerpen verder verwerkt waarbij de brandvertraging of vlamvertraging aan een door de nationale overheden bepaalde eis moet voldoen. Van dergelijke vlam vertragende middelen wordt verondersteld dat de chemische belasting voor mens
30 en milieu onaanvaardbaar is. Derhalve is het zogenaamd uitfaseren van bepaalde vlam vertragende middelen aan de orde.

Een doel van de onderhavige uitvinding is het verschaffen van een deeltjesvormige, expandeerbare polymeerkorrel, waarbij na verdere verwerking een

vlam vertragende schuim wordt verkregen dat een in de praktijk gewenste, voldoende lage warmtegeleidingscoëfficiënt bezit om aldus voor de beoogde warmte-isolatie-eigenschappen te kunnen worden toegepast.

Een ander aspect van de onderhavige uitvinding is het verschaffen
5 van een werkwijze ter vervaardiging van expandeerbare polymeerkorrels, waarbij styreenpolymeren in aanwezigheid van een of meer aanvullende bestanddelen kunnen worden omgezet in een materiaal dat na opschuimen en vormen een verhoogde warmte-isolatiewaarde bezit.

Nog een ander aspect van de onderhavige uitvinding is het
10 verschaffen van een werkwijze ter vervaardiging van expandeerbare polymeerkorrels waarbij een vlam vertragend middel wordt toegepast dat een geringe biotoxiciteit vertoont, veilig voor mens en dier is en voldoet aan de veiligheidseisen zoals die worden toegepast in de bouw- en constructie-industrie.

De uitvinding, zoals vermeld in de aanhef, wordt gekenmerkt,
15 doordat zich in de polymeerdeeltjes als warmte-isolatiewaarde verhogend materiaal koolstof met een deeltjesgrootte $< 1 \mu\text{m}$ bevindt, en een gebromeerd SBS(styreen-butadieen-styreen) als vlam vertragend middel omvat.

Onder toepassing van een dergelijk type koolstof als warmte-isolatiewaarde verhogend materiaal wordt aan een of meer aspecten van de
20 onderhavige uitvinding voldaan. Bovendien is het hiervoor genoemde vlam vertragend middel te beschouwen als een middel dat voorziet in het behalen van de in de bouw- en constructie-industrie toegepaste veiligheidseisen, alsmede een geringe belasting voor mens en milieu vormt.

Als een ondergrens van de deeltjesgrootte wordt een
25 voorkeurswaarde van $0,1 \mu\text{m}$ genoemd. De onderhavige uitvinding sluit met name de toepassing van roet als koolstofbron uit.

Het is met name wenselijk dat de deeltjesgrootte D_{50} ten hoogste $1 \mu\text{m}$ bedraagt, in het bijzonder dat de deeltjesgrootte D_{50} ten hoogste $0,8 \mu\text{m}$ bedraagt.

30 Met D_{90} -waarde respectievelijk D_{50} -waarde wordt het 90^{ste} respectievelijk 50^{ste} percentiel bedoeld, zijnde de deeltjesgrootte waarbeneden zich 90%, respectievelijk 50% van de populatie bevindt. Uit een cumulatieve verdelingscurve, verkregen door Malvern Instruments met de producten Mastersizer en Lasersizer, kan op eenvoudige wijze de D_{10} (de grootte waarbeneden zich 10%

van de populatie bevindt), D50 (de grootte waarbeneden zich de helft van de populatie bevindt) en D90 (de grootte waarbeneden zich 90% van de populatie bevindt) worden genomen en deze drie waarden (D10, D50 en D90) worden toegepast om de deeltjesgrootteverdeling in poeder te karakteriseren. Met name
 5 geeft de verhouding (D90-D10)/D50 (ook wel deeltjesgrootteverdeling genoemd) een goede indicatie betreffende de spreiding van grootten die aanwezig zijn in het poeder.

Anders gezegd is het 10^{de} percentiel de deeltjesgrootte waarvoor geldt dat 10% van de deeltjes kleiner is of gelijk aan deze waarde is en dus 90%
 10 van de deeltjes groter.

Anders gezegd is het 50^{de} percentiel de deeltjesgrootte waarvoor geldt dat 50% van de deeltjes kleiner is of gelijk aan deze waarde is en dus 50% van de deeltjes groter. De D50 bedraagt bij voorkeur ten hoogste 1,0 μm , met name ten hoogste 0,8 μm .

Anders gezegd is het 90^{de} percentiel de deeltjesgrootte waarvoor geldt dat 90% van de deeltjes kleiner is of gelijk aan deze waarde is en dus 10%
 15 van de deeltjes groter.

In het onderhavig deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer is het wenselijk dat als gebromeerd SBS(styreen-butadien-styreen) een blokcopolymeer
 20 van polystyreen en gebromeerd polybutadien wordt toegepast.

Het gewichtspercentage broom bevindt zich bij voorkeur in een gebied van 60 – 70 gew.%, op basis van het gebromeerd SBS(styreen-butadien-styreen). Voor het gewichtspercentage styreen wordt een voorkeursgebied van 30 – 50 gew.%, op basis van het gebromeerd SBS(styreen-butadien-styreen),
 25 genoemd.

In een bijzondere uitvoeringsvorm is het wenselijk dat het molecuulgewicht van het gebromeerd SBS(styreen-butadien-styreen) zich bevindt in een gebied van 60.000 – 150.000.

De hoeveelheid gebromeerd SBS(styreen-butadien-styreen) ligt bij
 30 voorkeur in een gebied van 0,7 – 2,2 gew.%, op basis van het totale gewicht van het deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer.

De hoeveelheid hexabroomcyclododecaan (HBCD) bedraagt in een bijzondere uitvoeringsvorm minder dan 1,0 gew.%, in het bijzonder minder dan 0,6 gew.%, met name minder dan 0,2 gew.%, bij voorkeur minder dan 0,05 gew.%,

berekend op basis van het totale gewicht van het deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer.

5 Voornoemde waarden zijn met name gunstig gebleken vanuit het oogpunt van compatibiliteit met het polymeer, de vereiste vlam vertragende eigenschappen, biotoxiciteit, thermische stabiliteit en duurzaamheid.

Het in de onderhavige uitvinding van toepassing zijnde polymeer is gekozen uit de groep van polystyreen, expanded polypropyleen (EPP), expanded cellular polyethylene (EPE), polyfenyleenoxide (PPO), polypropeenoxide en polymelkzuur, of een combinatie hiervan.

10 Polymelkzuur (PLA: poly lactic acid) is een verzamelnaam van polymeren op basis van melkzuurmonomeren, waarbij de structuur van polymelkzuur afhankelijk van de samenstelling kan variëren van volledig amorf tot half-kristallijn of kristallijn. Polymelkzuur kan bijvoorbeeld worden geproduceerd uit melkproducten, zetmeel, meel en maïs. Melkzuur is het monomeer waaruit
15 polymelkzuur is opgebouwd en dit monomeer komt in twee stereo-isomeren voor, te weten L-melkzuur en D-melkzuur. Polymelkzuur bevat aldus een bepaald gedeelte L-melkzuurmonomeren en een bepaald gedeelte D-melkzuurmonomeren. De verhouding tussen de L- en D- melkzuurmonomeren in polymelkzuur bepaalt de eigenschappen daarvan. Er wordt ook wel gesproken over een D-waarde of D-
20 gehalte (percentage D-melkzuur-monomeren). Op dit moment in de handel verkrijgbaar polymelkzuur heeft een verhouding L:D van 100:0 tot 75:25; anders gezegd een D-gehalte van 0 tot 25%, ofwel tussen 0 en 0,25.

Een voorbeeld van de verdere verwerking van PLA granulaat is als volgt. PLA granulaat wordt na impregnatie met bijvoorbeeld 6-8 % CO₂ onder een
25 druk van bijvoorbeeld 20 bar geschuimd. Daarna wordt het PLA opnieuw als schuim geïmpregneerd met bijvoorbeeld 6 % CO₂ en in een matrijs gevormd met een stoomdruk van 0,2 tot 0,5 bar. Hierdoor wordt het vormdeel verkregen op overeenkomstige wijze als besproken voor EPS korrels hiervoor.

30 PLA-korrels worden gemaakt via een zogenaamde kopafslag vanuit een extrusie-inrichting. Hiervoor wordt vast PLA in een extrusie-inrichting gebracht en gesmolten. Vervolgens wordt het gesmolten PLA door een matrijs, bijvoorbeeld een zogenaamde onderwater granulator, geperst en via kopafslag worden de PLA-korrels gevormd. Het is tevens mogelijk dat uit een in-line polymerisatieproces vloeibaar PLA direct in de extrusie-inrichting wordt afgeleverd dat aldus niet eerst

hoeft te worden gesmolten. Bij voorkeur wordt als extrusie-inrichting een dubbelschroef extruder toegepast. In een extrusie-inrichting kan het polymelkzuur of het mengsel van polymelkzuur en eventueel een of meer andere biologisch afbreekbare polymeren met eventueel een of meer van keten extender middel, kiemvormend middel en smeermiddel worden verwerkt tot deeltjes. Dergelijk deeltjesvormig polymelkzuur is ook beschreven in PCT/NL2008/000109 van de onderhavige uitvinders.

Na de extrusie van het polymelkzuur wordt een blaasmiddel toegevoegd door middel van impregnatie van de PLA-korrels ter verkrijging van expandeerbaar PLA (EPLA). Voorbeelden van blaasmiddelen die kunnen worden gebruikt zijn CO₂, MTBE, stikstof, lucht, (iso-)pentaan, propaan, butaan en dergelijke of een of meer combinaties hiervan. De eerste manier is dat het polymelkzuur wordt gevormd tot deeltjes, bijvoorbeeld door middel van extrusie, welke deeltjes vervolgens expandeerbaar worden gemaakt door impregnatie met een blaasmiddel. De tweede manier is dat het polymelkzuur wordt gemengd met een blaasmiddel, dat vervolgens direct tot expandeerbare deeltjes wordt gemaakt, bijvoorbeeld door middel van extrusie.

De onderhavige uitvinders veronderstellen dat de toepassing van in het bijzonder grafeen of exfoliated grafiet, welk eerst genoemd materiaal als één atoom dikke vlakke laag van sp²-gebonden koolstofatomen is op te vatten, waarvan de koolstofatomen zijn gerangschikt in een honingraatachtig vlak uitgevoerd kristalrooster, voor het verkrijgen van een bepaalde warmte-isolatiewaarde in een geringere hoeveelheid kan worden toegepast dan de gebruikelijke, volgens de stand van de techniek toegepaste warmte-isolatiewaarde verhogende materialen, in het bijzonder in vergelijking met andere koolstofbronnen, bijvoorbeeld grafiet of actieve kool. Uit aanvullende experimenten is gebleken dat het in de onderhavige als grafeen aangeduide materiaal ook als exfoliated grafiet met een 0,1 – 0,8 µm afmeting is te beschouwen. Derhalve dient onder grafeen in de beschrijving exfoliated grafiet met een 0,1 – 0,8 µm afmeting te worden verstaan. Een dergelijke verlaging van de hoeveelheid toegevoegd warmte-isolatiewaarde verhogend materiaal heeft een gunstig effect op de uiteindelijke kleur van EPS, welk materiaal van origine een witte kleur heeft. Voornoemde toeslagstoffen dragen bij aan een enigszins grijze “verkleuring” van het oorspronkelijk wit gekleurde EPS.

In een bijzondere uitvoeringsvorm is het met name gewenst dat exfoliated grafiet met een aspectverhouding $\geq 10:1$, met name $\geq 100:1$ wordt toegepast. Een dergelijke, laagvormige structuur heeft een bijzonder goede invloed op de verhoging van de warmte-isolatiewaarde.

- 5 Het is met name gewenst dat de hoeveelheid koolstof 1-15 gew.% bedraagt, op basis van polymeer, bij voorkeur dat de hoeveelheid koolstof 2-8 gew.% bedraagt, op basis van polymeer.

- Het moet duidelijk zijn dat het in bepaalde uitvoeringsvormen gewenst is dat aanvullend nog een of meer andere warmte-isolatiewaarde
10 verhogende middelen in het deeltjesvormig expandeerbaar polymeer aanwezig zijn, gekozen uit de groep van grafiet, carbon black, aluminiumpoeder, $\text{Al}(\text{OH})_3$, $\text{Mg}(\text{OH})_2$ en Al_2O_3 , ijzer, zink, koper en legeringen hiervan.

- Ter verkrijging van een goede brandvertragende werking werd voorheen als een brandvertragend middel hexabroomcyclododecaan (HBCD)
15 toegepast. De onderhavige vinding ziet met name toe op het toepassen van een vervanger voor HBCD waarbij een eindproduct wordt verkregen dat, in het bijzonder qua brandeisen, vergelijkbaar is met een HBCD bevattend polymeerproduct. De onderhavige uitvinding heeft met name tot doel de hoeveelheid HBCD te minimaliseren, in het bijzonder de hoeveelheid HBCD te reduceren tot nul.

- 20 Indien het verkregen product aan strenge brandveiligheidseisen moet voldoen, is het gewenst dat aanvullend een of meer brandvertragende middelen, gekozen uit de groep van dicumylperoxide, gebromeerde polymeerverbindingen, in het bijzonder polystyreenverbindingen, en 2,3-dimethyl-2,3-difenylobutaan, worden toegevoerd, waarbij de hoeveelheid hiervan tussen 1,0
25 en 8 gew.% ligt, op basis van de hoeveelheid polymeer. Ook is het mogelijk dat als hulpstof een fosforverbinding, gekozen uit de groep van polyfosfonaten, difenylfosfaat, bisfenol A-bis(difenylfosfaat) en resorcinol aromatisch polyfosfaatverbindingen, of een combinatie, wordt toegevoegd

- Het in de onderhavige aanvraag vermelde exfoliated grafiet kan
30 worden verkregen door een koolstofbron aan mechanische afschuifkrachten te onderwerpen, in het bijzonder door grafiet aan een dergelijke behandeling te onderwerpen. Een voorbeeld van een dergelijke behandeling is bijvoorbeeld het extrusieproces waarbij grafiet in de extruder aan grote afschuifkrachten wordt onderworpen waardoor het grafiet zal worden omgezet in vlakke koolstofplaten, in

het bijzonder exfoliated grafiet. De koolstofbron kan in bepaalde uitvoeringsvormen als masterbatch worden gedoseerd, of direct als een poedervormig materiaal, welk poedervormig materiaal zodanig is voorbehandeld dat de gewenste deeltjesgrootte, zoals vermeld in de conclusies, is verkregen.

5 De onderhavige uitvinding heeft verder betrekking op een werkwijze voor het vervaardigen van deeltjesvormig expandeerbaar polymeer, waarbij aan een extruder polymeer wordt toegevoerd en met ten minste een blaasmiddel, gebromeerd SBS(styreen-butadien-styreen), koolstofbron en een of meer andere hulpstoffen, zoals vermeld in de bijgevoegde onderconclusies, wordt gemengd en
10 aansluitend geëxtrudeerd, afgekoeld en verder tot deeltjes verkleind.

In een bijzondere uitvoeringsvorm heeft de onderhavige uitvinding verder betrekking op een werkwijze ter vervaardiging van deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer, waarbij monomeer, gebromeerd SBS(styreen-butadien-styreen), blaasmiddel, warmte-isolatiewaarde verhogend middel en een of meer
15 andere hulpstoffen, zoals vermeld in de bijgevoegde onderconclusies, aan een polymerisatiereactie in een reactor worden onderworpen. Het is met name gewenst dat de dichtheid van EPS, als een voorkeur verdienend polymeer zich bevindt in het gebied van 850-1050 kg/m³.

De onderhavige uitvinding heeft verder betrekking op een
20 polymeerschuimmateriaal op basis van deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer zoals hiervoor beschreven, waarbij het polymeerschuimmateriaal bij voorkeur voor warmte-isolatie doeleinden wordt toegepast, bijvoorbeeld in de bouwindustrie maar ook als verpakkingsmateriaal in de food- en non-foodindustrie.

De onderhavige uitvinding zal hierna aan de hand van een aantal
25 voorbeelden worden toegelicht waarbij echter dient te worden opgemerkt dat de onderhavige uitvinding in geen geval tot dergelijke voorbeelden is beperkt.

Figuur 1 vertoont de meetresultaten van diverse koolstofbronnen.

Figuur 2 vertoont grafisch de dichtheid vs de lambda-waarde van diverse EPS materialen.

30 Van verschillende producten werd de deeltjesgrootteverdeling bepaald, zoals weergegeven in onderstaande tabel.

5	Product, type koolstof	D10	D50	D90
	In de handel verkrijgbaar EPS vormdeel, grafiet	2	4	12
	Door aanvrager in de handel gebracht EPS vormdeel, actief kool	2	5	31
	Onderhavige uitvinding, grafeen micronised grafiet	0,4	0,8	1

Het is met name wenselijk dat de D50 waarde ten hoogste 1 μm , in
 10 het bijzonder ten hoogste 0,8 μm bedraagt.

Van een aantal in de handel verkrijgbare producten werd een
 aantal mechanische eigenschappen bepaald, alsmede een brandtest uitgevoerd. Uit
 de meetresultaten is duidelijk waarneembaar dat de toevoeging van grafeen of
 exfoliated grafiet een gunstige invloed vertoont op de warmtegeleidbaarheid van het
 15 uiteindelijke, op EPS gebaseerde schuimvormdeel.

In de hierna ingevoegde tabel betekent:

1= HBCD als vlam vertragend middel

2= geen vlam vertragend middel

3= resorcinol als vlam vertragend middel

20 4= Emerald 3000 (in de handel gebracht door Chemtura) als vlam
 vertragend middel

5= FR122P (in de handel gebracht door ICI) als vlam vertragend
 middel

25 6=XP-7720 FR122P (in de handel gebracht door Albemarle) als
 vlam vertragend middel

De tabel geeft achtereenvolgens de kolommen weer van type
 uitgangsmateriaal, gew.% vlam vertragend middel, gew.% dicumylperoxide,
 dichtheid (g/l), Lambda (W/mK), dichtheid (g/l), drukstekte (kPa), dichtheid (g/l),
 breeksterkte (kPa) en tenslotte de brandtest DIN 4102-1 B2 waarbij nt= niet
 30 gemeten en pass=voldaan.

5

10

15

20

25

30

materiaal	% flame retarde nt	% dicumyl peroxide	Dichthe id (g/l)	Lambda (W/mK)	Dichthe id (g/l)	Druksterk te (kPa)	Dichthe id (g/l)	Breeksterk te (kPa)	Brandtest DN4102-1 B2
white Eps Styrex 1016 F	0,7%	0,35%	19,6	0,0335	19,7	110,8	20,5	231,0	nt
Ace (4% Actief kool 4 mu) ¹	1,0%	0,35%	19,7	0,0315	19,7	110,8	20,5	231,0	nt
Ace (6% Actief kool 4mu) ¹	1,0%	0,35%	18,3	0,0307	17,9	99,2	18,0	176,4	nt
(3% Carbon black) ¹	1,0%	0,35%	16,8	0,0316	16,1	89,1	17,1	126,0	Pass
(9% Carbon black) ¹	1,0%	0,35%	17,9	0,0306	17,6	87,3	17,6	171,2	Pass
Neopor 2300 4% graphite (BASF) ¹	1,1%	nd	17,0	0,0308	nt	nt	nt	nt	Pass
Neopor 2300 4% graphite (BASF) ¹	1,1%	nd	11,0	0,0333	nt	nt	nt	nt	Pass
MG100315-1 (2% grafeen) ¹	1,0%	0,35%	19,1	0,0308	18,7	105,1	19,0	139,8	Pass
MG100315-1 (2% grafeen) ¹	0,8%	0,35%	12,3	0,0328	12,1	48,8	nt	nt	Pass
MG100315-2 (3% grafeen) ¹	1,0%	0,35%	18,1	0,0298	17,6	99,0	18,1	150,7	Pass
MG100315-2 (3% grafeen) ¹	1,0%	0,35%	11,5	0,0315	11,3	44,3	nt	nt	Pass
MG100315-3 (4% grafeen) ¹	1,0%	0,35%	17,2	0,0297	17,7	94,8	17,9	129,9	Pass
MG100315-3 (4% grafeen) ¹	1,0%	0,35%	11,0	0,0310	11,0	40,9	nt	nt	Pass
MG100315-4 (5% grafeen) ¹	1,0%	0,35%	17,8	0,0296	17,2	82,9	17,5	131,7	Pass
PLA 3% grafeen	6%		30,0	0,0300	nt	nt	nt	nt	nt
PLA 3% grafeen 6% phosphate			30,0	0,0302	nt	nt	nt	nt	Pass
PLA 3% activated carbon PAC-BC ²			31,0	0,0306	nt	nt	nt	nt	Pass
PLA 5% activated carbon , 6% phosphate ³			33,0	0,0310	nt	nt	nt	nt	Pass
(2% grafeen) ⁴	1%	0,35%	20,0	0,0318	nt	nt	nt	nt	Pass
(3% grafeen) ⁵	1%	0,35%	19,2	0,0305	nt	nt	nt	nt	Pass
(3% grafeen) ⁴	1,6%		13,4	0,0325	nt	nt	nt	nt	Pass
(4% grafeen) ⁵	1%	0,35%	12,0	0,0350	nt	nt	nt	nt	Pass
(5% grafeen) ⁶	1%	0,35%	18,5	0,0306	nt	nt	nt	nt	Pass

Het materiaal EPS 710F 0,7 – 1,0 mm deeltjesgrootte Synbra Technology met 5,5 % pentaan, werd in dubbelschroefextruder met een capaciteit van 125kg/uur gesmolten, onder toevoeging van P1000 Polyethyleen (Baker Huigjes) 0,1% en Grafeen Masterbatch respectievelijk een grafeen concentraat waardoor effectief 4% Grafeen in het polystyreen werd ingebracht. De temperatuur van de extruder ligt bij voorkeur tussen 150°C -230°C, in deze uitvoeringsvorm werd ook extra pentaan als blaasmiddel toegevoegd 0,8%. Het mengsel wordt geleid naar een koelextruder met temperaturen tussen 60°C en 150°C, waarmee een grijs gekleurde XPS plaat werd gemaakt.

10 Het verkregen schuim had een dichtheid van 35kg/m³. De isolatiewaarde van het schuim is bepaald op 31,1 mW/mK voor de masterbatch en 30,9 mW/mK voor het concentraat en beide producten haalden de brandtest DIN4102 B2.

In de bijgevoegde figuur 2 is grafisch een aantal metingen weergegeven waarbij op de horizontale as de dichtheid en op de verticale as de lambda (W/mK) is weergegeven. Uit deze weergave volgt duidelijk dat voor het in de handel verkrijgbare Neopor, voorzien van 4 gew.% grafiet (hoofdzakelijk met een afmeting > 1 µm, in het bijzonder 1 – 50 µm), een hogere lambda-waarde wordt verkregen bij eenzelfde dichtheid voor EPS waaraan exfoliated grafiet (deeltjesafmeting tussen 0,1 – 0,8 µm) in een bepaald gewichtspercentage is toegevoegd.

Bepaling deeltjesafmeting exfoliated grafiet

Van geschuimde EPS werd een hoeveelheid van 10 g grijs EPS opgelost in 28 ml tolueen. De slurry werd voor analyse toegepast. Het residu werd gedispergeerd door ultrasoon en verdere toevoeging van tolueen en geanalyseerd met een ALV instrument. Deeltjesafmetingbepaling werd bepaald door een Malvern Zetasizer. Een verdere verdunning met tolueen werd uitgevoerd, indien nodig. Zetasizer GMA is een zogenaamd Dynamic Light Scattering instrument met de volgende specificatie: Correlator: ALV5000/60X0 External Goniometer Correlator: ALV-125 Detector: ALV / SO SIPD Single Photon Detector with Static and Dynamic

Enhancer ALV Laser Fiber optics: Cobolt Samba 300 DPSS Laser, Wavelength: 532 nm, 300 mW Power Temperature Control: Static Thermal Bath: Haake F8-C35. Er werden geen speciale standaarden toegepast, het instrument meet de Brownian motion van de deeltjes en onder toepassing van Einsein -Stokes vergelijking
 5 worden de gemeten waarden omgezet in deeltjesafmeting. Hierbij veronderstelt men dat het oplosmiddel water is en dat de deeltjes, bij benadering, bolvormig zijn. De straal werd gemeten.

10		r50	r80	d50=2*r50	d80=2*r80
	all in % (m/m)	Straaldeeltje (nm)		Diameter, micron	
	Natural graphite G11/95	352	169540	0,7	339
	Natural graphite G12/95	350	45818	0,7	92
	Graphite Kropfmühl UF2 96/97	351	75141	0,7	150
15					
	Deeltje geëxtraheerd uit EPS met Grafeen dispersion, 4 % Grafeen toevoeging	127	423	0,25	0,85
	Deeltje geëxtraheerd uit EPS grafeen masterbatch , 3% Grafeen toevoeging	95	200	0,19	0,4
20					

Het is duidelijk dat het referentiemateriaal grafiet een grotere deeltjesafmeting bezit en agglomereert, hetgeen ook visueel waarneembaar was. Het in EPS aanwezig exfoliated grafiet vertoont veel fijnere deeltjes met een
 25 gemiddelde van 3 tot 5 maal kleiner dan de deeltjesafmeting van grafiet. Hoewel er sprake was van enige agglomeraten van kleine deeltjes, die zijn toch minder overheersend aanwezig dan met grafiet. In de bijgevoegde figuur 1 zijn de resultaten grafisch weergegeven.

CONCLUSIES

1. Deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer dat tot een vlam vertragend schuim met fijne celstructuur en geringe dichtheid verwerkbaar is en ter verbetering van de warmte-isolatiewaarde hiervan een warmte-isolatiewaarde verhogend materiaal op basis van koolstof bevat, met het kenmerk, dat zich in de polymeerdeeltjes als warmte-isolatiewaarde verhogend materiaal koolstof met een deeltjesgrootte $< 1 \mu\text{m}$ bevindt, en een gebromeerd SBS(styreen-butadieen-styreen) als vlam vertragend middel omvat.
2. Deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer volgens conclusie 1, met het kenmerk, dat de deeltjesgrootte D50 ten hoogste $1 \mu\text{m}$ bedraagt.
3. Deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer volgens een of meer van de voorgaande conclusies, met het kenmerk, dat de deeltjesgrootte D50 ten hoogste $0,8 \mu\text{m}$ bedraagt.
4. Deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer volgens een of meer van de voorgaande conclusies, met het kenmerk, dat het polymeer is gekozen uit de groep van polystyreen, expanded polypropyleen (EPP), expanded cellular polyethylene (EPE), polyfenyleenoxide (PPO), polypropeenoxide en polymelkzuur, of een combinatie hiervan.
5. Deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer volgens een of meer van de voorgaande conclusies, met het kenmerk, dat als koolstof exfoliated grafiet, in het bijzonder met een deeltjesafmeting in het gebied $0,1 - 0,8 \mu\text{m}$, is toegepast waarbij de aspectverhouding van exfoliated grafiet $\geq 10:1$ bedraagt.
6. Deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer volgens conclusie 5, met het kenmerk, dat de aspectverhouding van exfoliated grafiet $\geq 100:1$ bedraagt.
7. Deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer volgens een of meer van de voorgaande conclusies, met het kenmerk, dat de hoeveelheid koolstof 1-15 gew.% bedraagt, op basis van de hoeveelheid deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer.

8. Deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer volgens conclusie 7, met het kenmerk, dat de hoeveelheid koolstof 2-8 gew.% bedraagt.
9. Deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer volgens een of meer van de conclusies 5-8, met het kenmerk, dat exfoliated grafiet, in het bijzonder met een
5 deeltjesafmeting in het gebied 0,1 – 0,8 μm , is verkregen door het mechanisch afschuiven van een koolstofbron, in het bijzonder grafiet.
10. Deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer volgens een of meer van de voorgaande conclusies, met het kenmerk, dat de ondergrens van de deeltjesgrootte van de koolstof $> 0,1 \mu\text{m}$ bedraagt.
- 10 11. Deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer volgens een of meer van de voorgaande conclusies, met het kenmerk, dat gebromeerd SBS(styreen-butadieen-styreen) een blokcopolymeer van polystyreen en gebromeerd polybutadieen is.
12. Deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer volgens conclusie 11, met
15 het kenmerk, dat het gewichtspercentage broom zich bevindt in een gebied van 60 – 70 gew.%, op basis van het gebromeerd SBS(styreen-butadieen-styreen).
13. Deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer volgens een of meer van de conclusies 11-12, met het kenmerk, dat het gewichtspercentage styreen zich bevindt in een gebied van 30 – 50 gew.%, op basis van het gebromeerd
20 SBS(styreen-butadieen-styreen).
14. Deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer volgens een of meer van de conclusies 11-13, met het kenmerk, dat molecuulgewicht van het gebromeerd SBS(styreen-butadieen-styreen) zich bevindt in een gebied van 60.000 – 150.000.
15. Deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer volgens een of meer van
25 de voorgaande conclusies, met het kenmerk, dat de hoeveelheid gebromeerd SBS(styreen-butadieen-styreen) ligt in een gebied van 0,7 – 2,2 gew.%, op basis van het totale gewicht van het deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer.
16. Deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer volgens een of meer van de voorgaande conclusies, met het kenmerk, dat de hoeveelheid
30 hexabroomcyclododecaan (HBDD) minder is dan 1,0 gew.%, in het bijzonder minder

dan 0,6 gew.%, met name minder dan 0,2 gew.%, bij voorkeur minder dan 0,05 gew.%, berekend op basis van het totale gewicht van het deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer.

17. Werkwijze voor het vervaardigen van deeltjesvormig,
5 expandeerbaar polymeer volgens een of meer van de voorgaande conclusies 1-16, met het kenmerk, dat aan een extruder polymeer wordt toegevoerd en met ten minste een blaasmiddel, gebromeerd SBS(styreen-butadieen-styreen), koolstof met een deeltjesgrootte $< 1 \mu\text{m}$, en een of meer andere gewenste hulpstoffen wordt gemengd en aansluitend geëxtrudeerd, afgekoeld en verder tot deeltjes verkleind.
- 10 18. Werkwijze voor het vervaardigen van deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer volgens een of meer van de voorgaande conclusies 1-16, met het kenmerk, dat monomeer, blaasmiddel, gebromeerd SBS(styreen-butadieen-styreen) en koolstof met een deeltjesgrootte $< 1 \mu\text{m}$, en een of meer andere gewenste hulpstoffen aan een polymerisatie in een reactor worden onderworpen en
15 eventueel in een vervolgstap worden afgekoeld en verder tot deeltjes verkleind.
19. Werkwijze volgens conclusies 17-18, met het kenmerk, dat als hulpstof nog een of meer warmte-isolatiewaarde verhogende middelen worden toegevoegd, gekozen uit de groep van grafiet, carbon black, aluminiumpoeder, $\text{Al}(\text{OH})_3$, $\text{Mg}(\text{OH})_2$, Al_2O_3 , ijzer, zink, koper en legeringen hiervan.
- 20 20. Werkwijze volgens conclusies 17-19, met het kenmerk, dat als hulpstof een fosforverbinding, gekozen uit de groep van polyfosfonaten, difenylfosfonaat, bisfenol A-bis(difenylfosfaat) en resorcinol aromatisch polyfosfaatverbindingen, of een combinatie, wordt toegevoegd.
21. Polymeerschuimmateriaal op basis van deeltjesvormig,
25 expandeerbaar polymeer volgens een of meer van de conclusies 1-16.
22. Toepassing van koolstof met een deeltjesgrootte $< 1 \mu\text{m}$ in een vlam vertragend schuimmateriaal, dat een gebromeerd SBS(styreen-butadieen-styreen) als vlam vertragend middel omvat, op basis van deeltjesvormig, expandeerbaar polymeer voor het verhogen van de warmte-isolatiewaarde hiervan.
- 30 23. Toepassing volgens conclusie 22 in de bouwindustrie.

24. Toepassing volgens conclusie 22 in de verpakkingsindustrie.

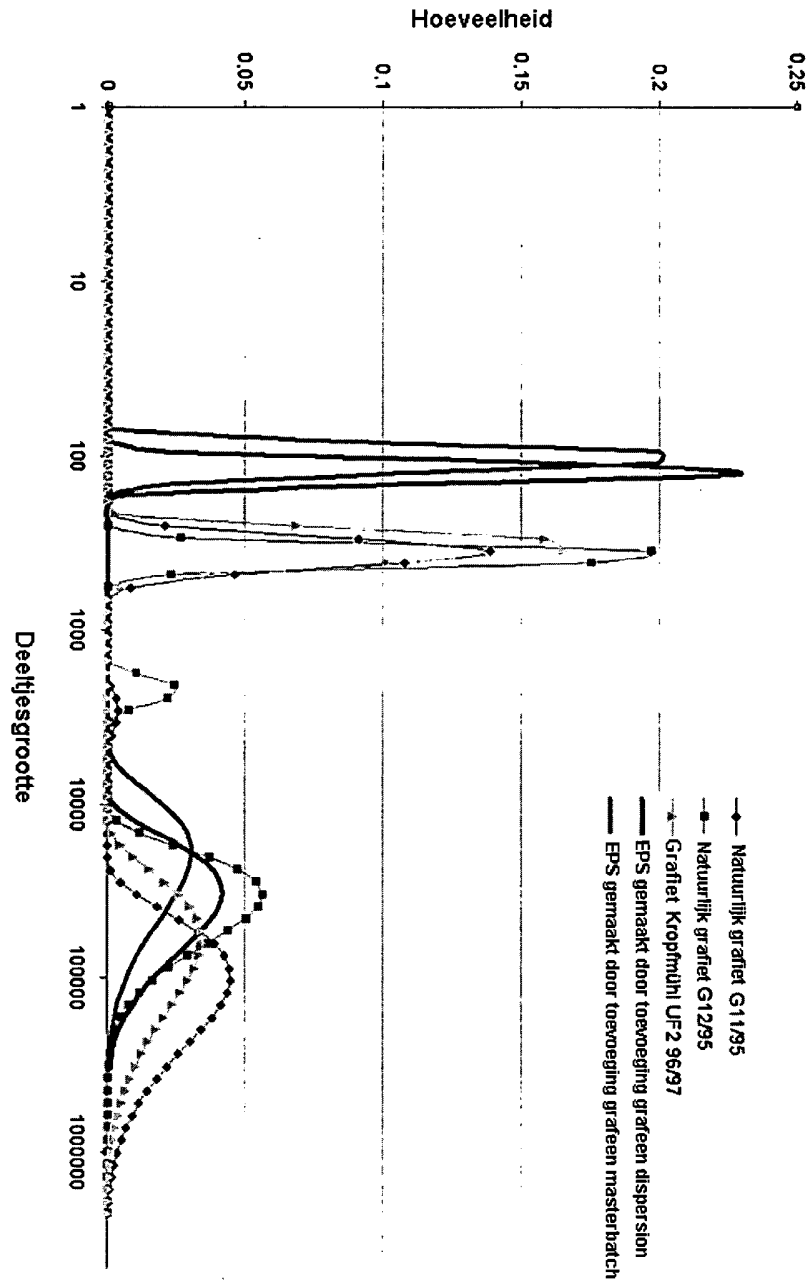


Fig. 1

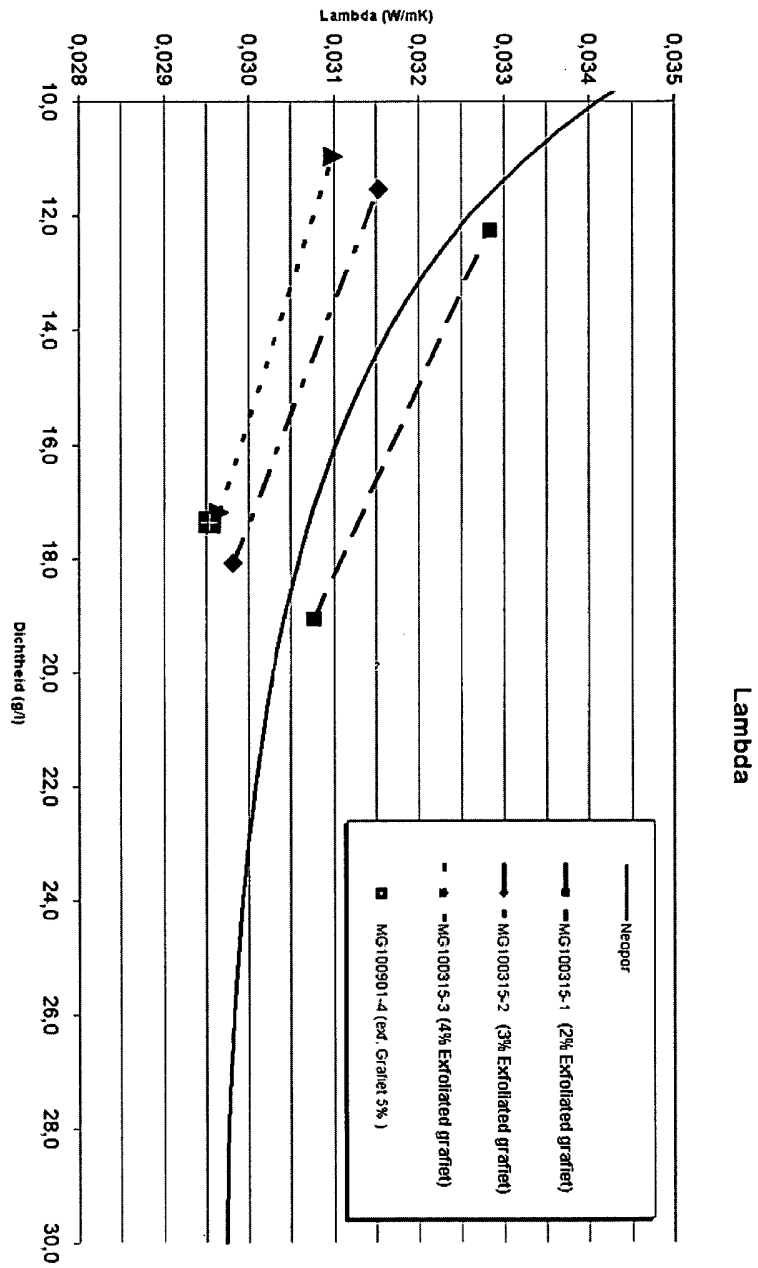


Fig. 2

SAMENWERKINGSVERDRAG (PCT)

RAPPORT BETREFFENDE NIEUWHEIDSONDERZOEK VAN INTERNATIONAAL TYPE

IDENTIFICATIE VAN DE NATIONALE AANVRAGE	KENMERK VAN DE AANVRAGER OF VAN DE GEMACHTIGDE
	55188NL
Nederlands aanvraag nr.	Indieningsdatum
2009320	14-08-2012
	Ingeroepen voorrangsdatum
Aanvrager (Naam)	
Synbra Technology B.V.	
Datum van het verzoek voor een onderzoek van internationaal type	Door de Instantie voor Internationaal Onderzoek aan het verzoek voor een onderzoek van internationaal type toegekend nr.
10-11-2012	SN59076
I. CLASSIFICATIE VAN HET ONDERWERP (bij toepassing van verschillende classificaties, alle classificatiesymbolen opgeven)	
Volgens de internationale classificatie (IPC)	
C08J9/00	
II. ONDERZOChte GEBIEDEN VAN DE TECHNIEK	
Onderzochte minimumdocumentatie	
Classificatiesysteem	Classificatiesymbolen
IPC	C08J
Onderzochte andere documentatie dan de minimum documentatie, voor zover dergelijke documenten in de onderzochte gebieden zijn opgenomen	
III. ☐	GEEN ONDERZOEK MOGELIJK VOOR BEPAALDE CONCLUSIES (opmerkingen op aanvullingsblad)
IV. ☐	GEBREK AAN EENHEID VAN UITVINDING (opmerkingen op aanvullingsblad)

**ONDERZOEKSRAPPORT BETREFFENDE HET
RESULTAAT VAN HET ONDERZOEK NAAR DE STAND
VAN DE TECHNIEK VAN HET INTERNATIONALE TYPE**

Nummer van het verzoek om een onderzoek naar
de stand van de techniek
NL 2009320

A. CLASSIFICATIE VAN HET ONDERWERP
INV. C08J9/00
ADD.

Volgens de Internationale Classificatie van octrooien (IPC) of zowel volgens de nationale classificatie als volgens de IPC.

B. ONDERZOCHE GEBIEDEN VAN DE TECHNIEK

Onderzochte minimum documentatie (classificatie gevolgd door classificatiesymbolen)
C08J

Onderzochte andere documentatie dan de minimum documentatie, voor dergelijke documenten, voor zover dergelijke documenten in de onderzochte gebieden zijn opgenomen

Tijdens het onderzoek geraadpleegde elektronische gegevensbestanden (naam van de gegevensbestanden en, waar uitvoerbaar, gebruikte trefwoorden)
EPO-Internal, WPI Data

C. VAN BELANG GEACHTE DOCUMENTEN

Categorie °	Geciteerde documenten, eventueel met aanduiding van speciaal van belang zijnde passages	Van belang voor conclusie nr.
Y	WO 2008/119059 A1 (OWENS CORNING INTELLECTUAL CAP [US]; DELAVIZ YADOLLAH [US]; BREINDEL R) 2 oktober 2008 (2008-10-02) * bladzijde 11, regels 1-8 * * bladzijde 6, regels 8-18 * * bladzijde 9, regels 13-24 * * bladzijde 12, regels 4-10 *	1-24
Y	WO 2007/058736 A1 (DOW GLOBAL TECHNOLOGIES INC [US]; KING BRUCE A [US]; STOBBS WILLIAM G) 24 mei 2007 (2007-05-24) * bladzijden 31-33; voorbeelden 65,66 * * conclusies 1-10, 28, 34 *	1-24
	----- -/-	

☒ Verdere documenten worden vermeld in het vervolg van vak C.

☒ Leden van dezelfde octrooifamilie zijn vermeld in een bijlage

° Speciale categorieën van aangehaalde documenten

"A" niet tot de categorie X of Y behorende literatuur die de stand van de techniek beschrijft

"D" in de octrooiaanvraag vermeld

"E" eerdere octroop(aanvraag), gepubliceerd op of na de indieningsdatum, waarin dezelfde uitvinding wordt beschreven

"L" om andere redenen vermelde literatuur

"O" niet-schriftelijke stand van de techniek

"P" tussen de voorrangsdatum en de indieningsdatum gepubliceerde literatuur

"T" na de indieningsdatum of de voorrangsdatum gepubliceerde literatuur die niet bezwarend is voor de octrooiaanvraag, maar wordt vermeld ter verheldering van de theorie of het principe dat ten grondslag ligt aan de uitvinding

"X" de conclusie wordt als niet nieuw of niet inventief beschouwd ten opzichte van deze literatuur

"Y" de conclusie wordt als niet inventief beschouwd ten opzichte van de combinatie van deze literatuur met andere geciteerde literatuur van dezelfde categorie, waarbij de combinatie voor de vakman voor de hand liggend wordt geacht

"&" lid van dezelfde octrooifamilie of overeenkomstige octrooi-publicatie

Datum waarop het onderzoek naar de stand van de techniek van internationaal type werd voltooid

17 april 2013

Verzenddatum van het rapport van het onderzoek naar de stand van de techniek van internationaal type

Naam en adres van de instantie

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040,
Fax: (+31-70) 340-3016

De bevoegde ambtenaar

Oudot, René

**ONDERZOEKSRAPPORT BETREFFENDE HET
RESULTAAT VAN HET ONDERZOEK NAAR DE STAND
VAN DE TECHNIEK VAN HET INTERNATIONALE TYPE**

Nummer van het verzoek om een onderzoek naar
de stand van de techniek
NL 2009320

C.(Vervolg). VAN BELANG GEACHTE DOCUMENTEN

Categorie °	Geciteerde documenten, eventueel met aanduiding van speciaal van belang zijnde passages	Van belang voor conclusie nr.
Y	US 2002/117769 A1 (ARCH PAUL EDWARD [US] ET AL) 29 augustus 2002 (2002-08-29) * alinea [0055] * * conclusies 1,49,50 *	18
Y	----- US 2012/123007 A1 (HINI SMADAR [IL] ET AL) 17 mei 2012 (2012-05-17) * conclusies * -----	20

**ONDERZOEKSRAPPORT BETREFFENDE HET
RESULTAAT VAN HET ONDERZOEK NAAR DE STAND
VAN DE TECHNIEK VAN HET INTERNATIONALE TYPE**

Informatie over leden van dezelfde octrooifamilie

Nummer van het verzoek om een onderzoek naar
de stand van de techniek

NL 2009320

In het rapport genoemd octrooigeschrift	Datum van publicatie	Overeenkomend(e) geschrift(en)	Datum van publicatie
WO 2008119059	A1	02-10-2008	
		AU 2008230712 A1	02-10-2008
		CA 2681238 A1	02-10-2008
		CN 101720270 A	02-06-2010
		EP 2146835 A1	27-01-2010
		JP 2010522815 A	08-07-2010
		KR 20100014599 A	10-02-2010
		US 2008242752 A1	02-10-2008
		WO 2008119059 A1	02-10-2008

WO 2007058736	A1	24-05-2007	
		AT 455796 T	15-02-2010
		AU 2006315878 A1	24-05-2007
		BR PI0619699 A2	11-10-2011
		CA 2627253 A1	24-05-2007
		CN 101305022 A	12-11-2008
		EP 1957544 A1	20-08-2008
		ES 2336951 T3	19-04-2010
		HR P20080206 A2	31-08-2008
		JP 2009516019 A	16-04-2009
		KR 20080066787 A	16-07-2008
		US 2008287559 A1	20-11-2008
		WO 2007058736 A1	24-05-2007

US 2002117769	A1	29-08-2002	
		AU 3082202 A	18-06-2002
		BR 0115923 A	20-01-2004
		CA 2430615 A1	13-06-2002
		CN 1478120 A	25-02-2004
		EP 1352022 A1	15-10-2003
		HU 0303866 A2	01-03-2004
		JP 2004529215 A	24-09-2004
		MX PA03004908 A	24-05-2004
		NO 20032500 A	03-06-2003
		PL 363223 A1	15-11-2004
		US 2002117769 A1	29-08-2002
		WO 0246284 A1	13-06-2002

US 2012123007	A1	17-05-2012	
		CN 102333816 A	25-01-2012
		EP 2406307 A2	18-01-2012
		US 2012123007 A1	17-05-2012
		WO 2010099020 A2	02-09-2010

WRITTEN OPINION

File No. SN59076	Filing date (day/month/year) 14.08.2012	Priority date (day/month/year)	Application No. NL2009320
International Patent Classification (IPC) INV. C08J9/00			
Applicant Synbra Technology B.V.			

This opinion contains indications relating to the following items:

- ☒ Box No. I Basis of the opinion
- ☐ Box No. II Priority
- ☐ Box No. III Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- ☐ Box No. IV Lack of unity of invention
- ☒ Box No. V Reasoned statement with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- ☐ Box No. VI Certain documents cited
- ☐ Box No. VII Certain defects in the application
- ☐ Box No. VIII Certain observations on the application

	Examiner Oudot, René
--	-------------------------

WRITTEN OPINION

Application number
NL2009320

Box No. I Basis of this opinion

1. This opinion has been established on the basis of the latest set of claims filed before the start of the search.
2. With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the application and necessary to the claimed invention, this opinion has been established on the basis of:
 - a. type of material:
 - ☐ a sequence listing
 - ☐ table(s) related to the sequence listing
 - b. format of material:
 - ☐ on paper
 - ☐ in electronic form
 - c. time of filing/furnishing:
 - ☐ contained in the application as filed.
 - ☐ filed together with the application in electronic form.
 - ☐ furnished subsequently for the purposes of search.
3. ☐ In addition, in the case that more than one version or copy of a sequence listing and/or table relating thereto has been filed or furnished, the required statements that the information in the subsequent or additional copies is identical to that in the application as filed or does not go beyond the application as filed, as appropriate, were furnished.
4. Additional comments:

Box No. V Reasoned statement with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

Novelty	Yes: Claims	1-24
	No: Claims	
Inventive step	Yes: Claims	
	No: Claims	1-24
Industrial applicability	Yes: Claims	1-24
	No: Claims	

2. Citations and explanations

see separate sheet

Reference is made to the following documents (D1 - D4):

- D1 WO 2008/119059 A1 (OWENS CORNING INTELLECTUAL CAP [US]; DELAVIZ YADOLLAH [US]; BREINDEL R) 2 oktober 2008 (2008-10-02)
- D2 WO 2007/058736 A1 (DOW GLOBAL TECHNOLOGIES INC [US]; KING BRUCE A [US]; STOBBY WILLIAM G) 24 mei 2007 (2007-05-24)
- D3 US 2002/117769 A1 (ARCH PAUL EDWARD [US] ET AL) 29 augustus 2002 (2002-08-29)
- D4 US 2012/123007 A1 (HINI SMADAR [IL] ET AL) 17 mei 2012 (2012-05-17)

Point V

I Novelty

1) The document D1 discloses (the references in parentheses applying to this document) a composition for forming a thermoplastic polymer foam, comprising a foamable polymer material, a blowing agent and nanographite (Claim 1). As foamable polymer, polystyrene is cited (Claims 3, 4). The nanographite is a multi-layered nanographite which has at least one dimension with a thickness less than about 100 nanometres (Page 11, lines 1 - 8). The foam can be prepared by impregnating the graphite-containing particles by a blowing agent (Page 6, lines 8 - 18). The subject-matter of claim 1 differs from D1 in that brominated SBS is included as flame retardant.

2) The document D2 discloses a thermally stable brominated (block) copolymer of butadiene and styrene (Claims 1 - 10). This flame retardant copolymer can be added to vinyl aromatic polymers in order to prepare expanded polymer foam beads (Claims 28 & 34; Pages 31 - 33, Examples 65 & 66).

The subject-matter of claim 1 differs from D2 in that carbon material having a particle size below 1 micron is present in the pellets.

The subject-matter of claim 1 is therefore novel.

Hence, the subject-matter of claims 2 - 16 is also novel.

3) The process of claims 17 and 18 is not disclosed in the documents of the prior art. It is novel.

The subject-matter of claims 19 and 20 is therefore also novel.

4) The particles of claim 1 being novel, the foamed material produced therefrom is also novel. The subject-matter of claim 21 is thus novel.

5) The use of carbon as defined in claim 22 is not disclosed in the documents of the prior art. The subject-matter of claims 22 - 24 is thus novel.

II Inventive step

1) Claim 1

The present application does not meet the criteria of patentability as the subject-matter of claim 1 does not involve an inventive step.

The document D1 is regarded as being the prior art closest to the subject-matter of claim 1.

The subject matter of claim 1 differs from D1 in that brominated SBS is included as flame retardant.

The technical effect of the invention is thus that the expandable pellets are flame retardant.

The problem to be solved by the present invention may therefore be regarded as the provision of flame retardant expandable pellets.

The solution proposed in claim 1 of the present application cannot be considered as involving an inventive step for the following reasons:

- The use of brominated SBR in expandable polymeric pellets is known from D2 (Exemplified 65 & 66).
- The skilled person would therefore regard it as a normal option to include this feature in the expandable pellets described in D1 in order to solve the problem posed.

The subject-matter of claim 1 lacks thus an inventive step.

Dependent claims 2 - 16 do not contain any features which, in combination with the features of any claim to which they refer, meet the requirements of inventive step.

The use of an extruder in the production of expandable pellets is described in D1 (Claims). The subject-matter of claim 17 lacks thus an inventive step.

Mutatis mutandis, the subject-matter of claims 21 and 22 - 24 also lacks an inventive step.

2) The use of a polymerization extruder for preparing carbon-containing expandable polystyrene beads is disclosed in D3 (Paragraph [0055]; Claims 1, 49, 55).

The selection of this preparation method is merely one of several straightforward possibilities from which the skilled person would select, in accordance with

circumstances, without the exercise of inventive skill, in order to solve the problem posed.

The subject-matter of claim 18 lacks therefore an inventive step.

3) The use of additional heat insulation additives in expandable beads is disclosed in D1 (page 12, lines 4 - 10). The subject-matter of claim 19 lacks an inventive step.

4) The use of phosphonates and/or resorcinol polyphosphate in expandable styrenic beads is described in D4 (Claims) The subject-matter of claim 20 is not inventive.

III Industrial applicability

The subject-matter of claims 1 - 24 is regarded as industrially applicable