

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
11. August 2011 (11.08.2011)

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 2011/095409 A1**

- (51) Internationale Patentklassifikation:  
C08J 9/00 (2006.01)
- (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2011/050945
- (22) Internationales Anmeldedatum:  
25. Januar 2011 (25.01.2011)
- (25) Einreichungssprache: Deutsch
- (26) Veröffentlichungssprache: Deutsch
- (30) Angaben zur Priorität:  
10152499.9 3. Februar 2010 (03.02.2010) EP
- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): **BASF SE** [DE/DE]; 67056 Ludwigshafen (DE).
- (72) Erfinder; und
- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **STEINKE, Tobias, Heinz** [DE/DE]; Viehtriftstraße 35b, 67346 Speyer (DE). **JUNG, Marc, Rudolf** [DE/DE]; In den Neunmorgen 4, 67551 Worms (DE). **DAIB, Andreas** [DE/DE]; Im Oberen Grain 5, 67146 Deidesheim (DE). **QUADBECK-SEEGER, Hans-Jürgen** [DE/DE]; Heinrich-Bärmann-Str. 5, 67098 Bad Dürkheim (DE). **HAHN, Klaus** [DE/DE]; Im Bügen 9, 67281 Kirchheim (DE). **BAUMGARTL, Horst** [DE/DE]; Luitpoldstraße 217, 67063 Ludwigshafen (DE). **SCHIERHOLZ, Jens-Uwe** [DE/DE]; Blücherstr. 27, 64625 Bensheim (DE). **WESTER, Bettina** [DE/DE]; Hardenburgstraße 16, 67133 Maxdorf (DE). **MÖCK, Christof** [DE/DE]; Jürgen-Fehling-Weg 7, 68259 Mannheim (DE).
- (74) Gemeinsamer Vertreter: **BASF SE**; 67056 Ludwigshafen (DE).
- (81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- Veröffentlicht:  
— mit internationalem Recherchenbericht (Artikel 21 Absatz 3)



WO 2011/095409 A1

(54) Title: MELAMINE/FORMALDEHYDE FOAM HAVING MICROCAPSULES INCORPORATED INTO THE STRUCTURE

(54) Bezeichnung : MELAMIN-/FORMALDEHYD-SCHAUMSTOFF MIT IN DIE STRUKTUR EINGEBAUTEN MIKROKAPSELN

(57) Abstract: Novel melamine/formaldehyde foams having microcapsules incorporated into the structure of the condensation products, and also a method for the production thereof and uses thereof.

(57) Zusammenfassung: Neue Melamin-/Formaldehyd-Schaumstoffe mit in die Struktur der Kondensationsprodukte eingebauten Mikrokapseln, sowie Verfahren zu deren Herstellung und deren Verwendungen.

Melamin-/Formaldehyd-Schaumstoff mit in die Struktur eingebauten Mikrokapseln

Beschreibung

5 Die vorliegende Erfindung betrifft Melamin-/Formaldehyd- Schaumstoffe mit in die Struktur des Schaumstoffs eingebauten Mikrokapseln.

10 Aus der EP-A-17 672 und EP-37 470 sind bereits elastische Schaumstoffe auf Basis von Melamin/Formaldehyd-Kondensationsprodukten sowie ein Verfahren zu ihrer Herstellung bekannt.

15 Aus der WO-A-2008/37600 ist bekannt, dass man die an sich hydrophilen Melaminharzschaumstoffe durch Imprägnierung mit wasserabweisenden Chemikalien, wie zum Beispiel Fluorcarbonharze, in hydrophobe Melaminharzschaumstoffe überführen kann.

20 Aus der WO-A-2006/8054 sind modifizierte offenzellige Schaumstoffe mit einer Dichte im Bereich von 5 bis 1.000 kg/m<sup>3</sup> und einem mittleren Porendurchmesser im Bereich von 1 µm bis 1 mm, enthaltend im Bereich von 1 bis 2.500 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht des unmodifizierten offenzelligen Schaumstoffs, mindestens ein bei Zimmertemperatur festes Carboxylgruppen-haltiges und/oder Carbonsäureestergruppen-haltiges Polymerisat mit einem Molekulargewicht  $M_n$  im Bereich von 1.000 bis 1.000.000 g/mol bekannt.

25 Diese nachträgliche Behandlung lässt jedoch zu wünschen übrig, da sie mit zusätzlichen Arbeitsschritten wie Imprägnierung, Pressen und Trocknung verbunden ist.

Der vorliegenden Erfindung lag daher die Aufgabe zugrunde, den zuvor genannten Nachteilen abzuweichen.

30 Demgemäß wurden neue Melamin-/Formaldehyd-Schaumstoffe mit in die Struktur der Schaumstoffe eingebaute Mikrokapseln gefunden, sowie Verfahren zu deren Herstellung und deren Verwendungen.

35 Bei den erfindungsgemäßen Melamin-/Formaldehyd-Schaumstoffen mit in die Struktur der Schaumstoffs eingebauten Mikrokapseln handelt es sich um ein offenzelliges Schaumstoffgerüst, welches eine Vielzahl miteinander verbundener, dreidimensional verzweigter Stege enthält und bei denen die Mikrokapseln in die Schaumstruktur, bevorzugt in den Knotenpunkten (Schaumbereiche an denen mehrere Stege zusammentreffen), eingebettet sind. Die Mikrokapseln sind somit fest mit dem Melaminharz verbunden aus dem der Schaumstoff besteht.

40

In Abhängigkeit von der Kapselgröße können die Mikro kapseln über die gesamte Schaumstruktur verteilt oder gezielt in die Knotenpunkte eingebracht werden. Wenn der Kapselradius kleiner als der Stegdurchmesser der Schaumstruktur ist, dann können die Kapseln sich in der gesamten Stegstruktur verteilen. Wenn der Kapselradius  
5 so gewählt wird, dass er größer als der Stegdurchmesser ist, dann werden die Kapseln bevorzugt in den Knotenpunkten der Schaumstruktur eingelagert.

Der Anteil der Mikro kapseln im Melaminharz-Schaumstoff beträgt 0,01 bis 50 Gew.-%, bevorzugt 1-15 Gew.-%.

10 Die erfindungsgemäßen Melamin-/Formaldehyd-Schaumstoffe mit in die Struktur der Kondensationsprodukte eingebauten Mikro kapseln können wie folgt hergestellt werden:

15 Die Mikro kapseln können dem Melamin, dem Formaldehyd, deren Mischungen oder einem Melamin-/Formaldehyd-Vorkondensat beim Schäumprozess, bevorzugt vor dem Schäumprozess einer oder mehrerer der Komponenten Melamin, Formaldehyd, deren Mischungen oder einem Melamin-/Formaldehyd-Vorkondensat zugefügt werden.

20 In der Regel kann man ein Melamin-/Formaldehyd-Vorkondensat, gegebenenfalls auch sprühgetrocknet, oder die einzelnen Komponenten oder eine Mischung aus Melamin und Formaldehyd und das Treibmittel und gegebenenfalls in einem Lösungsmittel und gegebenenfalls ein oder mehrere Dispergiermittel bzw. Emulgatoren und/oder Zusatzkomponenten mit den Mikro kapseln, gegebenenfalls sprühgetrocknet oder in Form von  
25 Dispersionen, bei Temperaturen von 0 bis 200°C, und einem Druck von 0,01 bis 50 bar, einbringen und vermischen. Die dabei entstehende Mischung kann bis zu einer homogenen Mischung bzw. Suspension bzw. Emulsion verrührt werden. Das Vermischen der Komponenten kann mit allen dem Fachmann bekannten Verfahren, zum Beispiel in einem statischen Mischer, vorgenommen werden.

30 Im nachfolgenden Schritt des erfindungsgemäßen Verfahrens erfolgt das Aufschäumen des Vorkondensates in der Regel durch Erhitzen der Lösung oder Dispersion des Melamin-/Formaldehyd-Vorkondensates, um einen Schaumstoff zu erhalten, der Mikro kapseln enthält. Dazu wird die Lösung oder Dispersion in der Regel auf eine Temperatur oberhalb des Siedepunktes des verwendeten Treibmittels erwärmt und in einer geschlossenen Form verschäumt.

35 Bevorzugt kann der Energieeintrag durch elektromagnetische Strahlung erfolgen, beispielsweise durch Hochfrequenzbestrahlung mit 5 bis 400 kW, bevorzugt 5 bis 200 kW, besonders bevorzugt 9 bis 120 kW pro Kilogramm der eingesetzten Mischung in einem Frequenzbereich von 0,2 bis 100 GHz, bevorzugt 0,5 bis 10 GHz. Als Strahlungsquelle

für dielektrische Strahlung sind Magnetronen geeignet, wobei mit einem oder mehreren Magnetronen gleichzeitig bestrahlt werden kann.

5 Die hergestellten Schaumstoffe werden abschließend getrocknet, wobei im Schaumstoff verbliebenes Wasser und Treibmittel entfernt wird.

Bei den erfindungsgemäßen Verfahren bleiben die Mikrokapseln im Wesentlichen, also zu 70 bis 100%, bevorzugt zu 85 bis 100%, besonders bevorzugt zu 95 bis 100%, insbesondere zu 98 bis 100% mit ihrem Inhalt erhalten.

10

Als Melamin-/Formaldehyd-Vorkondensate eignen sich eigens hergestellte (siehe Übersichtsschriften: a) W. Woebcken, Kunststoffhandbuch 10. Duroplaste, München, Wien 1988, b) Encyclopedia of Polymer Science and Technology, 3. Aufl., Vol.1, Kap. Amino Resins, S. 340-370, 2003 c) Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry, 6. Aufl., Vol. 2, Kap. Amino Resins, S. 537-565. Weinheim 2003) oder handelsübliche Vorkondensate der beiden Komponenten, Melamin und Formaldehyd. Die Melamin-Formaldehyd-Vorkondensate weisen in der Regel ein Molverhältnis von Formaldehyd zu Melamin 5 : 1 bis 1,3 : 1, bevorzugt 3,5 : 1 bis 1,5 : 1 auf.

15

20

Diese Melamin/Formaldehyd-Kondensationsprodukte können neben Melamin 0 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 0 bis 20 Gew.-%, anderer Duroplastbildner und neben Formaldehyd 0 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 0 bis 20 Gew.-% anderer Aldehyde ein kondensiert enthalten. Bevorzugt ist jedoch ein unmodifiziertes Melamin/Formaldehyd-Kondensationsprodukt.

25

Als Duroplastbildner können beispielsweise Alkyl- und Arylsubstituiertes Melamin, Harnstoff, Urethane, Carbonsäureamide, Dicyandiamid, Guanidin, Sulfonylamid, Sulfonsäureamide, aliphatische Amine, Glykole, Phenol und dessen Derivate eingesetzt werden.

30

Als Aldehyde können zum Beispiel Acetaldehyd, Trimethylolacetaldehyd, Acrolein, Benzaldehyd, Furfural, Glyoxal, Glutaraldehyd, Phthalaldehyd und Terephthalaldehyd eingesetzt werden. Weitere Einzelheiten über Melamin/Formaldehyd-Kondensationsprodukte finden sich in Houben-Weyl, Methoden der organischen Chemie, Band 14/2, 1963, Seiten 319 bis 402.

35

Es können bei der Herstellung des Melamin-/Formaldehyd-Vorkondensates Alkohole, beispielsweise Methanol, Ethanol oder Butanol zugesetzt werden, um teilweise oder vollständig veretherete Kondensate zu erhalten. Durch die Bildung der Ethergruppen können die Löslichkeit des Melamin-/Formaldehyd-Vorkondensates und die mechanischen Eigenschaften des vollständig ausgehärteten Materials beeinflusst werden.

40

Mikrokapseln mit Wandmaterial auf Basis eines hochvernetzten Methacrylsäureesterpolymers sind aus der EP-A-1 029 018, DE-A-101 39 171, WO-A-2005/116559 sowie der älteren europäischen Anmeldung EP-Anm.-Nr. 06117092.4 bekannt. Sie alle betreffen mikroverkapselte Latentwärmespeichermaterialien in unterschiedlichen Anwendungsbereichen. So lehrt die EP-A-1 029 018 die Verwendung in Bindebaustoffen wie Beton oder Gips, die DE-A-101 39 171 die Verwendung von mikroverkapselten Latentwärmespeichermaterialien in Gipskartonplatten und die WO-A-2005/116559 ihren Einsatz in Spanplatten. Alle in diesen Schriften beschriebenen Mikrokapseln haben gemein, dass sie eine hohe Dichtigkeit, sowohl bei thermischer wie auch chemischer Behandlung oder unter Druck aufweisen sollen.

DE-A-10 2007 055 813 beschreibt die Herstellung und Verwendung von thermisch zerstörbaren Mikrokapseln. Die Kapselwand ist aus Acrylaten aufgebaut. Der Kapselkern enthält lipophile Substanzen, wie aliphatische und aromatische Kohlenwasserstoffverbindungen, gesättigte oder ungesättigte C<sub>6</sub>-C<sub>30</sub>-Fettsäuren, Fettalkohole, C<sub>5</sub>-C<sub>30</sub>-Fettamine, Fettsäureester, natürliche und synthetische Wachse, halogenierte Kohlenwasserstoffe, Siliconöle, Klebstoffe, Aromastoffe, Duftstoffe, Wirkstoffe, Farbstoffe, Farbbildner, Pigmente und Vernetzer.

Die Kapselwand wird gemäß DE-A-10 2007 055 813 aus Polymeren aufgebaut. Die Kapseln haben eine Größe von 0,5 bis 100 µm, bevorzugt 1 bis 80 µm, besonders bevorzugt 5 bis 60 µm.

Als Mikrokapseln eignen sich solche Gebilde, die eine Größe von 0,5 bis 100 µm, bevorzugt 1 bis 80 µm, besonders bevorzugt 5 bis 60 µm und die einen Kapselkern und eine Kapselwand (siehe beispielsweise DE-A-10 2007 055 813) haben, wobei die Kapselwand in der Regel aufgebaut ist aus wenigstens zwei voneinander verschiedener Monomere, 30 bis 100 Gew.-% einem Monomer A aus der Gruppe umfassend C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>-Alkylester der Acryl- und/oder Methacrylsäure, Acrylsäure, Methacrylsäure und Maleinsäure, 0 bis 30 Gew.-% eines oder mehrerer bi- oder polyfunktioneller Monomere B, welche in Wasser nicht löslich oder schwer löslich sind und 0 bis 40 Gew.-% eines oder mehrerer sonstiger Monomere C, jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht der Monomere.

Die erfindungsgemäßen Mikrokapseln umfassen in der Regel einen Kapselkern und eine Kapselwand aus Polymer. Der Kapselkern besteht in der Regel überwiegend, zu 70 bis 100 Gew.-%, bevorzugt 95 bis 100 Gew.-%, besonders bevorzugt 98 Gew.-% aus lipophiler Substanz. Der Kapselkern kann dabei abhängig von der Temperatur sowohl fest als auch flüssig sein.

Abhängig vom Herstellungsverfahren und dem dabei gewählten Schutzkolloid kann dieses ebenfalls Bestandteil der Mikrokapseln sein. So können 0 bis 10 Gew.-%, be-

vorzugt 1 bis 8 Gew.-%, besonders bevorzugt 1 bis 6 Gew.-% bezogen auf das Gesamtgewicht der Mikrokapseln Schutzkolloid sein. Gemäß dieser Ausführungsform weisen die Mikrokapseln in der Regel das Schutzkolloid auf der Oberfläche des Polymers auf.

5

Die mittlere Teilchengröße der Kapseln (Z-Mittel mittels Lichtstreuung, Malvern, Fraunhoferbeugung) beträgt 0,5 bis 100 µm, bevorzugt 1 bis 80 µm. Das Gewichtsverhältnis von Kapselkern zu Kapselwand, das Kern/Wand-Verhältnis, beträgt in der Regel 50:50 bis 95:5, bevorzugt 70:30 bis 95:5, besonders bevorzugt 75:25 bis 93:7.

10

Die Polymere der Kapselwand enthalten in der Regel 30 bis 100 Gew.-%, bevorzugt 40 bis 100 Gew.-%, besonders bevorzugt 50 bis 100 Gew.-%, insbesondere 60 bis 100 Gew.-%, ganz besonders bevorzugt 70 bis 100 Gew.-% mindestens eines Monomeren A aus der Gruppe umfassend C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>-Alkylester der Acryl- und/oder Methacrylsäure, Acrylsäure, Methacrylsäure und/oder Maleinsäure einpolymerisiert, bezogen auf das Gesamtgewicht der Monomere.

15

Außerdem können die Polymere der Kapselwand in der Regel 0 bis 30 Gew.-%, bevorzugt 0 bis 25 Gew.-%, besonders bevorzugt 1 bis 15 Gew.-% eines bi- oder polyfunktionalen Monomers B, welches in Wasser nicht löslich oder schwer löslich ist, einpolymerisiert enthalten.

20

Daneben können die Polymere der Kapselwand 0 bis 40 Gew.-% sonstige Monomere C einpolymerisiert enthalten.

25

Vorzugsweise ist die Kapselwand aus den Monomeren A und C, insbesondere im Wesentlichen, also zu 95 bis 100 Gew.-%, bevorzugt 98 bis 100 Gew.-%, besonders bevorzugt 99 bis 100 Gew.-%, insbesondere zu 100 Gew.-% Monomeren A aufgebaut.

30

Als Monomere A eignen sich die C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>-Alkylester der Acryl- und/oder Methacrylsäure. Weiterhin eignen sich die ungesättigten C<sub>3</sub>- und C<sub>4</sub>-Carbonsäuren wie Acrylsäure, Methacrylsäure sowie Maleinsäure. Beispielhaft seien Methyl-, Ethyl-, n-Propyl-, iso-Propyl-, n-Butyl-, iso-Butyl-, sec.-Butyl- und tert.-Butylacrylat sowie Methyl-, Ethyl-, n-Propyl-, iso-Propyl-, n-Butyl-, iso-Butyl-, sec.-Butyl- und tert.-Butylmethacrylat genannt.

35

Geeignete Monomere Ia, deren Homopolymerisats eine Glasübergangstemperatur (T<sub>g</sub>) von ≤ 60°C aufweist, sind beispielsweise die C<sub>1</sub>-C<sub>24</sub>-Alkylester der Acrylsäure und Butylmethacrylat. Beispielhaft seien Methylacrylat, Ethylacrylat, Propylacrylat, n-Butylacrylat, t-Butylacrylat, n-Pentylacrylat, 2-Methylbutylacrylat, 3-Methylbutylacrylat, Hexylacrylat, Ethylhexylacrylat und Propylheptylacrylat genannt. Bevorzugt wird n-

40

Butylacrylat.

## 6

Geeignete Monomere B sind bi- oder polyfunktionelle Monomere, welche in Wasser nicht löslich oder schwer löslich sind, aber eine gute bis begrenzte Löslichkeit in der lipophilen Substanz haben. Unter Schwerlöslichkeit ist eine Löslichkeit kleiner 60 g/l, also 0 bis 60 g/l, bevorzugt 0 bis 50 g/l, besonders bevorzugt 0 bis 30 g/l bei 20°C zu verstehen. Unter bi- oder polyfunktionellen Monomeren versteht man Verbindungen, die wenigstens zwei nichtkonjugierte ethylenische Doppelbindungen haben. Vornehmlich kommen Divinyl- und Polyvinylmonomere in Betracht.

Geeignete Divinylmonomere sind Divinylbenzol, Trivinylbenzol und Divinylcyclohexan und Trivinylcyclohexan. Bevorzugte Divinylmonomere sind die Diester von Diolen mit Acrylsäure oder Methacrylsäure, ferner die Diallyl- und Divinylether dieser Diole. Beispielfhaft seien Ethandioldiacrylat, Ethylenglykoldimethacrylat, 1,3-Butylenglykoldimethacrylat, Methallyl-methacrylamid, Allylacrylat und Allylmethacrylat genannt. Besonders bevorzugt sind Propandiol-, Butandiol-, Pentandiol- und Hexandioldiacrylat und die entsprechenden Methacrylate.

Bevorzugte Polyvinylmonomere sind die Polyester von Polyolen mit Acrylsäure und/oder Methacrylsäure, ferner die Polyallyl- und Polyvinylether dieser Polyole. Bevorzugt werden Trimethylolpropantriacrylat und -methacrylat, Pentaerythrittriallylether, Pentaerythrittetra-allylether, Pentaerythrittriacrylat und Pentaerythrittetraacrylat sowie ihre technischen Mischungen.

Als sonstige Monomere C kommen von den Monomeren A verschiedene monoethylenisch ungesättigte Monomere in Betracht, bevorzugt sind Monomere C wie Vinylacetat, Vinylpropionat und Vinylpyridin.

Besonders bevorzugt sind die wasserlöslichen Monomere C, z. B. Acrylnitril, Methacrylamid, Acrylsäure, Methacrylsäure, Itaconsäure, Maleinsäure, Maleinsäureanhydrid, N-Vinylpyrrolidon, 2-Hydroxyethylacrylat und -methacrylat und Acrylamido-2-methylpropansulfonsäure. Daneben sind insbesondere N-Methylolacrylamid, N-Methylolmethacrylamid, Dimethylamino-ethyl-methacrylat und Diethylaminoethylmethacrylat zu nennen.

Die Glasübergangstemperatur der Kapselwand kann (-60) bis 180°C, bevorzugt (-40) bis 150°C, bei der vorstehenden Glasübergangstemperatur handelt es sich um die nach Fox (siehe auch Handbook of Polymer Science and Technology, 1989 oder T.G. Fox, Bull. Am. Phys. Soc. (ser 11) 1, 123, 1956) aus dem Gewichtsanteil der Monomeren und der Glasübergangstemperatur der Homopolymerisate berechnete Glasübergangstemperatur, bei der Berechnung werden Monomere mit zwei oder mehr als zwei copolymerisierbaren, ethylenisch ungesättigten Gruppen nicht berücksichtigt, d. h. die Summe aller anderen Monomeren entspricht 100 Gew.-%.

Als Kernmaterial kommen für die Mikro kapseln flüssige oder feste in Wasser unlösliche bis im wesentlichen unlösliche Stoffe in Betracht, im Folgenden als lipophile Substanzen bezeichnet. Die lipophile Substanz kann sowohl ein Einzelstoff wie auch eine Mischung, in Form einer Lösung, Suspension oder Emulsion sein.

5

Lipophile Substanzen werden beispielsweise ausgewählt aus der Gruppe umfassend aliphatische und aromatische Kohlenwasserstoffverbindungen, gesättigte oder ungesättigte C<sub>6</sub>-C<sub>30</sub>-Fettsäuren, Fettalkohole, C<sub>6</sub>-C<sub>30</sub>-Fettamine, Fettsäureester, natürliche und synthetische Wachse, halogenierte Kohlenwasserstoffe, Siliconöle und -harze, reaktive und vernetzungsfähige Siliconöle, wie z.B. aminofunktionalisierte Siliconöle, schwer entflammbare hydrophobe Substanzen wie perfluorierte Kohlenwasserstoffe und C<sub>6</sub>-C<sub>30</sub>-Alkohole, Fluorcarbonharze, Aromastoffe, Duftstoffe, Wirkstoffe, Tenside, Biozide, Farbstoffe, Farbbildner, Pigmente und Vernetzer.

10

15

Die lipophilen Substanzen können zusätzlich mit chemischen oder physikalischen Flammschutzmittel versehen sein. Unter WO 2008/037600 sind Imprägnierungen von Fluorcarbonharze mit brandhemmende Substanzen wie zum Beispiel Flammschutzmittel auf Basis von Silikaten, Boraten, Hydroxiden und Phosphaten der Metalle der I. bis III. Hauptgruppe, des Zinks und des Ammoniums beschrieben

20

Beispielhaft seien genannt:

aliphatische Kohlenwasserstoffverbindungen wie gesättigte oder ungesättigte C<sub>10</sub>-C<sub>40</sub>-Kohlenwasserstoffe, die verzweigt oder bevorzugt linear sind, z. B. wie n-Tetradecan, n-Pentadecan, n-Hexadecan, n-Heptadecan, n-Octadecan, n-Nonadecan, n-Eicosan,

25

n-Heneicosan, n-Docosan, n-Tricosan, n-Tetracosan, n-Pentacosan, n-Hexacosan, n-Heptacosan, n-Octacosan sowie cyclische Kohlenwasserstoffe, z. B. Cyclohexan, Cyclooctan, Cyclodecan; aromatische Kohlenwasserstoffverbindungen wie Benzol, Naphthalin, Biphenyl, o- oder m-Terphenyl, C<sub>1</sub>-C<sub>40</sub>-alkylsubstituierte aromatische Kohlenwasserstoffe wie Dodecylbenzol, Tetradecylbenzol, Hexadecylbenzol, Hexylnaphthalin

30

oder Decylnaphthalin; gesättigte oder ungesättigte C<sub>6</sub>-C<sub>30</sub>-Fettsäuren wie Laurin-, Stearin-, oder Behensäure, bevorzugt eutektische Gemische aus Decansäure mit z. B. Myristin-, Palmitin- oder Laurinsäure; Fettalkohole wie Lauryl-, Stearyl-, Oleyl-, Myristyl-, Cetylalkohol, Gemische wie Kokosfettalkohol sowie die sogenannten Oxoalkohole, die man durch Hydroformylierung von  $\alpha$ -Olefinen und weiteren Umsetzungen erhält; C<sub>6</sub>-

35

C<sub>30</sub>-Fettamine, wie Decylamin, Dodecylamin, Tetradecylamin oder Hexadecylamin; Ester wie C<sub>1</sub>-C<sub>10</sub>-Alkylester von Fettsäuren wie Propylpalmitat, Methylstearat oder Methylpalmitat sowie bevorzugt ihre eutektischen Gemische oder Methylcinnamat; natürliche und synthetische Wachse wie Montansäurewachse, Montanesterwachse, Carnaubawachs, Polyethylenwachs, oxidierte Wachse, Polyvinyletherwachs, Ethylvinylacetatwachs oder Hartwachse nach Fischer-Tropsch-Verfahren; halogenierte Kohlenwasserstoffe wie Chlorparaffin, Bromoctadecan, Brompentadecan, Bromnonadecan, Bromicosan, Bromdocosan; natürliche Öle wie Erdnussöl, Sojaöl, Siliconöle beispielsweise

40

- se mit Molekulargewichten (Mw) von 100 bis 150000, Dichten von 0,94 bis 0,97 und Viskositäten zwischen 10 und 1 000000 mPa·s; Klebstoffe, Aromastoffe, Duftstoffe und Wirkstoffe wie Pflanzenschutzmittel, gegebenenfalls als Lösung oder Suspension in den obengenannten lipophilen Substanzen der Gruppen a) bis i); Lösungen oder Suspensionen von Farbstoffen, Farbbildnern und anorganische und organische Pigmenten in den obengenannten lipophilen Substanzen der Gruppen a) bis i); Vernetzer, wie Carbodiimide oder andere reaktive, multifunktionelle Verbindungen wie Epoxide, Amine etc.
- 10 Die erfindungsgemäßen Mikrokapseln lassen sich durch eine sogenannte in-situ-Polymerisation herstellen. Das Prinzip der Mikrokapselbildung basiert darauf, dass man aus den Monomeren, einem Radikalstarter, einem Schutzkolloid und der einzukapselnden lipophilen Substanz eine stabile Öl-in-Wasser-Emulsion herstellt. Anschließend löst man die Polymerisation der Monomeren durch Erwärmung aus und steuert sie gegebenenfalls durch weitere Temperaturerhöhung, wobei die entstehenden Polymere die Kapselwand bilden, welche die lipophile Substanz umschließt. Dieses allgemeine Prinzip wird beispielsweise in der DE-A-10 2007 055 813, WO-A-2008/071649 und DE-A- 101 39 171 beschrieben auf deren Inhalt ausdrücklich Bezug genommen wird.
- 20 Die Menge der eingesetzten Mikrokapsel-Komponenten kann je nach Material und Einsatzzweck variiert werden. Eine Menge an Mikrokapsel-Komponente(n) von 1 bis 30 Gew.-%, bevorzugt 5 bis 20 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht des Melamin-/Formaldehyd-Vorkondensats, hat sich bewährt.
- 25 Als Dispergiermittel bzw. Emulgator können anionische, kationische und nicht ionische Tenside sowie Mischungen davon eingesetzt werden.
- 30 Geeignete anionische Tenside sind beispielsweise Diphenylenoxidsulfonate, Alkan- und Alkylbenzolsulfonate, Alkyl-naphthalinsulfonate, Olefinsulfonate, Alkylethersulfonate, Fettalkohol-sulfate, Ethersulfate,  $\alpha$ -Sulfofettsäureester, Acylaminoalkansulfonate, Acylisothionate, Alkylethercarboxylate, N-Acylsarcosinate, Alkyl- und Alkyletherphosphate. Als nicht ionische Tenside können Alkylphenolpolyglykolether, Fettalkoholpolyglykolether, Fettsäurepolyglykol-ether, Fettsäurealkanolamide, Ethylenoxid/Propylenoxid-Blockcopolymeren, Aminoxide, Glycerin-fettsäureester, Sorbitanester und Alkylpolyglykoside verwendet werden. Als kationische Emulgatoren können z.B. Alkyltriallammoniumsalze, Alkylbenzyltrimethylammoniumsalze und Alkylpyridiniumsalze eingesetzt werden.
- 40 Die Dispergiermittel bzw. Emulgatoren können in Mengen von 0,2 bis 5 Gew.-%, bezogen auf das Melamin-/Formaldehyd-Vorkondensat eingesetzt werden.

Die Dispergiermittel bzw. Emulgatoren und/oder Schutzkolloide können im Prinzip zu einem beliebigen Zeitpunkt zur Rohdispersion gegeben werden, sie können jedoch auch bereits in dem Lösungsmittel bei Einbringung der Mikrokapsel-Dispersion vorhanden sein.

5

Als Härter können saure (acide) Verbindungen eingesetzt werden, die die Weiterkondensation des Melaminharzes katalysieren. Die Menge dieser Härter beträgt in der Regel 0,01 bis 20 Gew.-%, bevorzugt 0,05 und 5 Gew.-%, jeweils bezogen auf das Vorkondensat. Geeignete saure Verbindungen sind anorganische und organische Säuren, zum Beispiel ausgewählt aus der Gruppe bestehend aus Salzsäure, Schwefelsäure, Phosphorsäure, Salpetersäure, Ameisensäure, Essigsäure, Oxalsäure, Toluolsulfonsäuren, Amidosulfonsäuren, Säureanhydride und Mischungen davon.

10

Abhängig von der Wahl des Melamin-/Formaldehyd-Vorkondensates enthält die Mischung ein Treibmittel. Dabei richtet sich die Menge des Treibmittels in der Mischung in der Regel nach der erwünschten Dichte des Schaumstoffs.

15

Prinzipiell können bei dem erfindungsgemäßen Verfahren sowohl physikalische als auch chemische Treibmittel verwendet werden.

20

Als Treibmittel eignen sich „physikalische“ oder „chemische“ Treibmittel (Encyclopedia of Polymer Science and Technology, Vol. I, 3. Aufl., Kapitel Additives, Seite 203 bis 218, 2003).

25

Als „physikalische“ Treibmittel eignen sich, beispielsweise Kohlenwasserstoffe, wie Pentan, Hexan, halogenierte, insbesondere chlorierte und/oder fluorierte Kohlenwasserstoffe, beispielsweise Methylenechlorid, Chloroform, Trichlorethan, Fluorchlorkohlenwasserstoffe, teilhalogenierte Fluorchlorkohlenwasserstoffe (H-FCKW), Alkohole, beispielsweise Methanol, Ethanol, n- oder iso-Propanol, Ether, Ketone und Ester, beispielsweise Ameisensäuremethylester, Ameisensäureethylester, Essigsäuremethylester oder Essigsäureethylester, in flüssiger Form oder Luft, Stickstoff und Kohlendioxid als Gase.

30

Als „chemische“ Treibmittel eignen sich, beispielsweise Isocyanate im Gemisch mit Wasser, wobei als wirksames Treibmittel Kohlendioxid freigesetzt wird. Ferner sind Carbonate und Bicarbonate im Gemisch mit Säuren geeignet, welche ebenfalls Kohlendioxid erzeugen. Auch geeignet sind Azoverbindungen, wie z.B. Azodicarbonamid.

35

In einer bevorzugten Ausführungsform der Erfindung enthält die Mischung zusätzlich wenigstens ein Treibmittel. Dieses Treibmittel liegt in der Mischung in einer Menge von 0,5 bis 60 Gew.-%., bevorzugt 1 bis 40 Gew.-%, besonders bevorzugt 1,5 bis 30 Gew.-%.

40

% bezogen auf das Melamin-/Formaldehyd-Vorkondensat, vor. Es wird bevorzugt ein physikalisches Treibmittel mit einem Siedepunkt zwischen 0 und 80°C zugesetzt.

5 In einer weiteren Ausführungsform enthält die Mischung neben dem Melamin-/Formaldehyd-Vorkondensat des herzustellenden Schaumstoffes und den Mikrokapseln, auch einen Emulgator sowie gegebenenfalls einen Härter und gegebenenfalls ein Treibmittel.

10 In einer weiteren Ausführungsform ist die Mischung frei von weiteren Zusatzstoffen. Für manche Zwecke kann es jedoch günstig sein, 0,1 bis 20 Gew.-%, bevorzugt 0,1 bis 10 Gew.%, bezogen auf das Melamin-/Formaldehyd-Vorkondensat, an üblichen Zusatzstoffen, wie Farbstoffe, Flammschutzmittel, UV-Stabilisatoren, Mittel zur Herabsetzung der Brandgastoxizität oder zur Förderung der Verkohlung zuzusetzen.

15 Es ist auch möglich, dem Melamin-/Formaldehyd-Vorkondensat Zusatzstoffe zuzusetzen. Die abrasiven Schaumstoffe enthalten in einer Ausführungsform mindestens einen Zusatzstoff aus der Gruppe der Farbstoffe, Duftstoffe, optischen Aufheller, UV-Absorbern und Pigmente. Dieser Zusatzstoff ist bevorzugt homogen in dem Schaumstoff verteilt.

20

Als Pigmente können die gängigen anorganischen natürlichen (z.B. Kreide) oder synthetischen Pigmente (z.B. Titanoxide), aber auch organische Pigmente eingesetzt werden.

25 Die Freisetzung des Kapselkerns in der offenzelligen Schaumstruktur kann durch thermische (z.B. Heißluft, verschiedene Strahlungsarten, z.B. Infrarot- oder Mikrowellenstrahlung) oder mechanische Zerstörung (Pressen, Walzen, Ultraschall etc.) der Kapselwand der Mikrokapseln erfolgen.

30 Dadurch kann der Inhalt der Kapseln gleichmäßig oder nahezu gleichmäßig freigesetzt werden und die Oberflächenstruktur (Stege und Knoten) auch im Innern der offenzelligen Melaminharzschaumstoffstruktur benetzt und z.B. hydrophob ausgestattet werden.

35 Bei der mechanischen Behandlung können durch Pressen des erfindungsgemäßen Melaminharzschaumstoffs in der Regel die Membranreste und ggf. harte aber brüchige Stege zerstört und der Schaumstoff elastischer werden, wobei auch die mechanische Freisetzung erfolgen kann.

Der Pressvorgang kann wie folgt durchgeführt werden:

40

Das Pressen jeweils vorzugsweise wie in EP-A 0451535 beschrieben, indem der Schaumstoff durch einen definierten Spalt zwischen zwei gegensinnig rotierenden, parallel ausgerichteten Walzen hindurchgeführt wird.

- 5 Neben dem Durchführen des Schaumstoffes durch einen Spalt zwischen zwei gleichsinnig rotierenden Walzen ist es auch möglich, dass der Schaumstoff auf einem Förderband transportiert wird und eine Walze, die sich mit der gleichen Umfangsgeschwindigkeit dreht, mit der der Schaumstoff bewegt wird, auf den Schaumstoff presst. Weiterhin kann der Druck auf den Schaumstoff dadurch ausgeübt werden, dass der
- 10 Schaumstoff zum Beispiel in eine Presse eingelegt wird, in welcher ein Stempel auf den Schaumstoff presst. In diesem Fall ist jedoch ein kontinuierliches Pressen nicht möglich.

- Es bleibt anzumerken, dass nicht für alle Anwendungen eine Freisetzung des Kapselkerns erforderlich ist. So werden beispielsweise brandhemmende Substanzen erst im
- 15 Brandfall aktiv und können ihre Wirkung auch in einer verkapselten Form entfalten.

- Bei beiden Ausführungsformen erfolgt das Pressen jeweils vorzugsweise wie in EP-A 0 451 535 beschrieben, indem der Schaumstoff durch einen definierten Spalt zwischen zwei gegensinnig rotierenden, parallel ausgerichteten Walzen hindurchgeführt
- 20 wird.

- Neben dem Durchführen des Schaumstoffes durch einen Spalt zwischen zwei gleichsinnig rotierenden Walzen ist es auch möglich, den zum Imprägnieren notwendigen
- 25 Druck dadurch auszuüben, dass der imprägnierte Schaumstoff auf einem Förderband transportiert wird und eine Walze, die sich mit der gleichen Umfangsgeschwindigkeit dreht, mit der der Schaumstoff bewegt wird, auf den Schaumstoff presst. Weiterhin kann der Druck auf den Schaumstoff dadurch ausgeübt werden, dass der Schaumstoff zum Beispiel in eine Presse eingelegt wird, in welcher ein Stempel auf den Schaum-
- 30 stoff presst. In diesem Fall ist jedoch ein kontinuierliches Pressen nicht möglich.

Die erfindungsgemäß hergestellten Melaminharzschaumstoffe weisen in der Regel eine Dichte von 3 bis 100 g/l, besonders bevorzugt 5 bis 50 g/l auf.

- 35 Die erfindungsgemäßen Melaminharzschaume enthaltend Mikrokapseln sowie die Melaminharzschaume nach der Zerstörung der Mikrokapseln können bei diskontinuierlich, bevorzugt bei kontinuierlicher Arbeitsweise als Platten oder Bahnen in der Regel mit jeder beliebigen Dicke hergestellt werden, zweckmäßigerweise in Schichtdicken von 0,1 bis 500 cm, bevorzugt 0,5 bis 200 cm, besonders bevorzugt 1 bis 100 cm, insbesondere 3 bis 80 cm, ganz besonders bevorzugt 5 bis 50 cm. Formteile aus erfindungsgemäß hergestellten Melaminharzschaumstoffe können bei kontinuierlicher, be-
- 40 vorzugt bei diskontinuierlicher Arbeitsweise erhalten werden.

Die Melaminharzschaumstoffe sowie die hydrophoben Melaminharzschäume in Form von Bahnen, Platten, Formteilen oder einer anderen Gestaltung können nach allgemein üblichen Methoden ein-, zwei-, mehr- oder allseitig mit Deckschichten versehen oder kaschiert werden, z.B. mit Papier, Pappe, Glasvlies, Holz, Gipsplatte, Metallblechen oder Metallfolien, Kunststoff oder Kunststofffolien, die ggf. auch geschäumt sein können. Die Deckschichten können beim Aufschäumen oder anschließend aufgebracht werden. Beim nachträglichen Aufbringen ist es vorteilhaft einen „Haftvermittler“ zu verwenden.

Die erfindungsgemäßen Melaminharzschäume finden Anwendung zur Schalldämpfung und Wärme- bzw. Kälteisolierung in Gebäuden, im Fahrzeug-, Eisenbahn-, Schiffs- und Flugzeugbau sowie in der Raumfahrt. Als Polstermaterial bei der Bepolsterung von Sitzflächen und als spezialisierter Reinigungsschwamm zur Entfernung hartnäckiger Verschmutzungen.

#### Beispiele

##### I. Mikroverkapselung

20 Wasserphase  
 129,54 g Wasser  
 97,14g einer 5 gew.-%igen wässrigen Lösung von Methylhydroxypropylcellulose (Culminal® MHPC 100)  
 24,28 g einer 10 gew.-%igen wässrigen Polyvinylalkohollösung (Mowiol® 15-79)  
 25 1,05 g einer 2,5 gew.-%igen wässrigen Natriumnitritlösung

##### Ölphase

225g eines Silikonöls (Belsil DM5)  
 21.25 g Methylmethacrylat  
 30 3.75 g Butandioldiacrylat  
 0.36 g tert.-Butylperpivalat

##### Zugabe 1

2,75 g einer 10 gew.-%igen wässrigen Lösung von tert-Butylhydroperoxid

35

##### Zulauf 1

20,15 g einer 1,1 gew.-%igen wässrigen Lösung von Ascorbinsäure

Bei 40°C wurde die obige Wasserphase vorgelegt. Nach Zugabe der Ölphase wurde mit einem schnelllaufenden Dissolvrührer bei 2500 Upm für 40 Minuten dispergiert. Es wurde eine stabile Emulsion erhalten. Diese Emulsion wurde unter Rühren mit einem Ankerrührer über einen Zeitraum von 60 Minuten auf 70°C erwärmt, innerhalb von

weiteren 60 Minuten auf eine Temperatur von 85°C erwärmt und bei dieser Temperatur eine Stunde gehalten. Es wurde Zugabe 1 zugegeben und die entstandene Mikrokap-  
seldispersion unter Rühren innerhalb von 30 Minuten auf 20°C gekühlt, während Zu-  
lauf 1 zudosiert wurde. Anschließend wurde die Mikrokap-  
seldispersion mit 1,75 g einer  
5 25 gew.-%igen, wässrigen Natronlaugelösung neutralisiert.

Es wurde eine Mikrokap-  
seldispersion mit einem Feststoffgehalt von 49% und einer  
mittleren Teilchengröße von  $D[4,3] = 6,3 \mu\text{m}$  (Malvern, Fraunhoferbeugung) erhalten.

## 10 II. Darstellung von erfindungsgemäßen modifizierten Schaumstoffen

### II.1 Darstellung eines unmodifizierten Schaumstoffs

75 Gew.-Teile eines sprühgetrockneten Melamin-/Formaldehyd-Vorkondensates (Mol-  
verhältnis 1:3) wurden in 25 Gew.-Teilen Wasser gelöst. Dieser Harzlösung wurden 3  
15 Gew.-% Ameisensäure, 2 Gew.-% eines Na-C<sub>12</sub>/C<sub>14</sub>-Alkylsulfats, 20 Gew.-% Pentan,  
jeweils bezogen auf das Harz, zugesetzt. Anschließend wurde gerührt und dann in  
einer Form (zum Schäumen) aus Polypropylen durch Einstrahlung von Mikrowellen-  
energie verschäumt. Nach dem Verschäumen wurde 30 Minuten getrocknet.

## 20 II. 2. Darstellung von erfindungsgemäßen modifizierten Schaumstoffen

### Mikrokapseln mit Wacker Belsil® DM5

75 Gew.-Teile eines sprühgetrockneten Melamin-/Formaldehyd-Vorkondensates (Mol-  
verhältnis 1:3) wurden in 25 Gew.-Teilen Wasser gelöst. Dieser Harzlösung wurden 3  
25 Gew.-% Ameisensäure, 2 Gew.-% eines Na-C<sub>12</sub>/C<sub>14</sub>-Alkylsulfats, 20 Gew.-% Pentan  
und 15 Gew.-% einer wässrigen Dispersion von Mikrokapseln, jeweils bezogen auf das  
Harz, zugesetzt. Die Mikrokapseln weisen im Kern ein flüchtiges Silikonöl der Fa. Wa-  
cker auf (Belsil® DM5). Der Feststoffanteil beträgt 42 Gew.-%, der Silikongehalt  
37 Gew.-% und die mittlere Teilchengröße 15  $\mu\text{m}$ . Anschließend wurde gerührt und  
30 dann in einer Form (zum Schäumen) aus Polypropylen durch Einstrahlung von Mikro-  
wellenenergie verschäumt. Nach dem Verschäumen wurde für 30 Minuten getrocknet

### III. Untersuchungen zur Wasseraufnahme

Nicht modifizierter Melaminharzschaum saugt sich bei Kontakt mit Wasser voll und  
35 geht innerhalb von Sekunden unter. Dagegen schwimmen die mit Silikonölen modifi-  
zierten Schaumstoffe für mehrere Stunden auf dem Wasser.

Des Weiteren dringen Wassertropfen, die mit einer Pipette auf die Oberfläche des  
Schaumstoffs gebracht wurden, nicht in den modifizierten Schaumstoff ein, während  
40 ein nicht-modifizierter Melaminharzschaum sofort mit dem Wassertropfen benetzt wird.

## Patentansprüche

1. Melamin-/Formaldehyd-Schaumstoffe mit in die Struktur des Schaumstoffs eingebauten Mikrokapseln.  
5
2. Melaminharz-Schaumstoff nach Anspruch 1, wobei der Schaum 0,01 bis 50Gew.-% Mikrokapseln enthält.
3. Melamin-/Formaldehyd-Schaumstoffe nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Mikrokapseln in der Schaumstruktur, bevorzugt in den Knotenpunkten, eingebettet sind.  
10
4. Verfahren zur Herstellung von Melamin-/Formaldehyd-Schaumstoffen mit in die Struktur der Schaumstoffe eingebauten Mikrokapseln nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass man einer oder mehreren der Komponenten aus der Gruppe der Melamin-/Formaldehyd-Vorkondensate oder den einzelnen Komponenten oder der Mischung aus Melamin und Formaldehyd die Mikrokapseln beifügt, diese Mischung mit einem Treibmittel und gegebenenfalls einem Lösungsmittel und gegebenenfalls einem oder mehreren Dispergiermitteln bzw. Emulgatoren und/oder Zusatzkomponenten vermischt und mittels Heissluft oder Mikrowellenenergie auf eine Temperatur oberhalb der Siedetemperatur des Treibmittels erwärmt.  
15  
20
5. Verwendung der Melamin-/Formaldehyd-Schaumstoffe mit in die Struktur der Schaumstoffe eingebauten Mikrokapseln nach einem der Ansprüche 1 bis 3 als Polsterung, zum Wärme-, Kälte- und Schallschutz und für Reinigungsschwämme.  
25

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No  
PCT/EP2011/050945

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
INV. C08J9/00  
ADD.  
  
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**  
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
C08J  
  
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)  
EPO-Internal, WPI Data

<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2006/058675 A2 (BASF AG [DE]; KARL ULRICH [DE]; FRENZEL STEFAN [DE]; SCHWENDEMANN VOLK) 8 June 2006 (2006-06-08)	1-5
Y	the whole document	1-5
Y	DE 10 2004 049341 A1 (BASF AG [DE]) 13 April 2006 (2006-04-13) the whole document	1-5

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

\* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
  
18 April 2011

Date of mailing of the international search report  
  
28/04/2011

Name and mailing address of the ISA/  
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer  
  
Zeslawski, Wojciech

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2011/050945

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 2006058675 A2	08-06-2006	EP 1819760 A2	22-08-2007
		JP 2008521949 T	26-06-2008
		US 2008194706 A1	14-08-2008
-----			
DE 102004049341 A1	13-04-2006	NONE	
-----			

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
 INV. C08J9/00  
 ADD.

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole )  
 C08J

Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 2006/058675 A2 (BASF AG [DE]; KARL ULRICH [DE]; FRENZEL STEFAN [DE]; SCHWENDEMANN VOLK) 8. Juni 2006 (2006-06-08)	1-5
Y	das ganze Dokument	1-5
Y	DE 10 2004 049341 A1 (BASF AG [DE]) 13. April 2006 (2006-04-13) das ganze Dokument	1-5



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

18. April 2011

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

28/04/2011

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
 Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
 NL - 2280 HV Rijswijk  
 Tel. (+31-70) 340-2040,  
 Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Zeslawski, Wojciech

**INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT**

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2011/050945

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 2006058675 A2	08-06-2006	EP 1819760 A2	22-08-2007
		JP 2008521949 T	26-06-2008
		US 2008194706 A1	14-08-2008
-----			
DE 102004049341 A1	13-04-2006	KEINE	
-----			