

(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
8. Dezember 2005 (08.12.2005)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 2005/116559 A1

- (51) Internationale Patentklassifikation⁷: **F28D 20/02**
- (21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2005/005522
- (22) Internationales Anmeldedatum:
21. Mai 2005 (21.05.2005)
- (25) Einreichungssprache: Deutsch
- (26) Veröffentlichungssprache: Deutsch
- (30) Angaben zur Priorität:
60/573,420 24. Mai 2004 (24.05.2004) US
- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): **BASF AKTIENGESELLSCHAFT** [DE/DE]; 67056 Ludwigshafen (DE).
- (72) Erfinder; und
- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **SCHMIDT, Marco** [DE/DE]; Steinmetzergasse 6, 67346 Speyer (DE). **JÄCKH, Christof** [DE/DE]; Ludolf-Krehl-Str.39a, 69120 Heidelberg (DE). **FUNHOFF, Dirk** [DE/DE]; Mühlendorfer Str. 4, 68165 Mannheim (DE). **SIEGLER, Manfred** [DE/DE]; Udastr. 4, 67227 Frankenthal (DE). **ARMSTRONG, Jack, R.** [US/US]; 101 East Shearwater Court #48, Jersey City, NJ 07305 (US). **ZIMMERMAN, Eugene, K.** [US/US]; 4 Merion Lane, Washington, NJ 07882 (US). **LYON, James, T.** [US/US]; 47601 Wellesley Ct., Novi, MI 48374 (US). **LU, Limei** [US/US]; 1458 Kensington Drive, Canton, MI 48188 (US).
- (74) Gemeinsamer Vertreter: **BASF AKTIENGESELLSCHAFT**; 67056 Ludwigshafen (DE).
- (81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

— mit internationalem Recherchenbericht

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.



WO 2005/116559 A1

(54) Title: MOLDED ELEMENTS MADE OF - MATERIALS CONTAINING LIGNOCELLULOSE

(54) Bezeichnung: FORMKÖRPER AUS LIGNOCELLULOSEHALTIGEN MATERIALIEN

(57) Abstract: The invention relates to molded elements made of lignocellulose-containing materials comprising, relative to the weight of the molded element, 5 to 20 percent by weight of glue resin and 2 to 30 percent by weight of microcapsules that are composed of a polymeric wall and a core which is made primarily of materials storing latent heat.

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft Formkörper aus lignocellulosehaltigen Materialien enthaltend bezogen auf das Gewicht des Formkörpers 5 - 20 Gew.-% Leimharz und 2 - 30 Gew.-% Mikrokapseln mit einem Polymer als Kapselwand und einem Kapselkern bestehend überwiegend aus Latentwärmespeichermaterialien.

Formkörper aus lignocellulosehaltigen Materialien

Beschreibung

Die vorliegende Anmeldung betrifft Formkörper aus lignocellulosehaltigen Materialien und einem Leimharz, ein Verfahren zur ihrer Herstellung sowie eine Bindemittelzusammensetzung enthaltend Leimharz und Mikrokapseln.

In Gebäuden mit moderner Architektur sind oft große Glasflächen in Kombination mit einer leichten Innenarchitektur anzutreffen. Ein Problem solcher Gebäude ist der Wärmeeintrag durch die großen Glasflächen, die die Wärme im Gebäudeinneren gefangen halten. In der Regel haben solche Gebäude eine geringe Gebäudemasse und damit keinerlei Masse, um Wärmeenergie zu speichern und somit Temperaturspitzen abzupuffern.

Die Masse der Baustoffe eines Bauwerkes speichert im Sommer die einströmende Wärme bei Tag und hält dadurch im Idealfall die Innentemperatur konstant. In der kühleren Nacht wird die gespeicherte Wärme wieder an die Außenluft abgegeben. Um ein angenehmes Raumklima auch im Sommer ohne aktive Klimatisierung zu erreichen, ist also thermische Masse des Gebäudes unerlässlich. Eine solche große thermische Masse fehlt jedoch modernen Gebäuden aufgrund ihrer Bauweise.

Ein Teil der Innenauskleidung wie Zimmerdecken wird heutzutage mit Spanplatten gemacht. Spanplatten sind jedoch überhaupt nicht in der Lage Wärme zu speichern, sondern wirken vielmehr isolierend.

In den letzten Jahren sind als neue Materialkombination in Baustoffen Latentwärmespeicher untersucht worden. Ihre Funktionsweise beruht auf der beim fest/flüssig-Phasenübergang auftretenden Umwandlungsenthalpie, die eine Energieaufnahme oder Energieabgabe an die Umgebung bedeutet. Sie können damit zur Temperaturkonstanthaltung in einem festgelegten Temperaturbereich verwendet werden. Da die Latentwärmespeichermaterialien je nach Temperatur auch flüssig vorliegen, können sie nicht direkt mit Baustoffen verarbeitet werden, denn Emissionen an die Raumluft sowie die Trennung vom Baustoff wären zu befürchten.

Die EP-A-1 029 018 lehrt die Verwendung von Mikrokapseln mit einer Kapselwand aus einem hochvernetzten Methacrylsäureesterpolymer und einem Latentwärmespeicherkern in Bindebaustoffen wie Beton oder Gips. Da die Kapselwände nur eine Dicke im Bereich von 5 bis 500 nm haben, sind sie jedoch sehr druckempfindlich, ein Effekt der bei ihrer Verwendung in Durchschreibepapieren genutzt wird. Das schränkt jedoch ihre Verwendung ein.

2

Die DE-A-101 39 171 beschreibt die Verwendung von mikroverkapselten Latentwärmespeichermaterialien in Gipskartonplatten.

5 Aufgabe der vorliegenden Erfindung war es, weitere Möglichkeiten zur wirkungsvollen Wärmespeicherung und damit Klimatisierung von Gebäuden zu finden.

Diese Aufgabe wird gelöst durch Formkörper aus lignocellulosehaltigen Materialien enthaltend bezogen auf das Gewicht des Formkörpers

- 10 5 - 20 Gew.-% Leimharz, gerechnet als Feststoff, und
 1 - 30 Gew.-% Mikrokapseln mit einem Polymer als Kapselwand und einem Kapselkern bestehend überwiegend aus Latentwärmespeichermaterialien.
- 15 Die in den erfindungsgemäßen Formkörpern enthaltenen Mikrokapseln sind Teilchen mit einem Kapselkern bestehend überwiegend, zu mehr als 95 Gew.-%, aus Latentwärmespeichermaterialien und einem Polymer als Kapselwand. Der Kapselkern ist dabei abhängig von der Temperatur fest oder flüssig. Die mittlere Teilchengröße der Kapseln (Z-Mittel mittels Lichtstreuung) beträgt 0,5 bis 100 µm, bevorzugt 1 bis 80 µm
- 20 insbesondere 1 bis 50 µm. Das Gewichtsverhältnis von Kapselkern zu Kapselwand beträgt im allgemeinen von 50:50 bis 95:5. Bevorzugt wird ein Kern/Wand-Verhältnis von 70:30 bis 90:10.
- 25 Latentwärmespeichermaterialien sind definitionsgemäß Substanzen, die in dem Temperaturbereich, in welchem eine Wärmeübertragung vorgenommen werden soll, einen Phasenübergang aufweisen. Vorzugsweise weisen die Latentwärmespeichermaterialien einen fest/flüssig Phasenübergang im Temperaturbereich von -20 bis 120°C auf. In der Regel handelt es sich bei den Latentwärmespeichern um organische, bevorzugt lipophile Substanzen.
- 30 Als geeignete Substanzen sind beispielhaft zu nennen:
- 35 - aliphatische Kohlenwasserstoffverbindungen wie gesättigte oder ungesättigte C₁₀-C₄₀-Kohlenwasserstoffe, die verzweigt oder bevorzugt linear sind, z.B. wie n-Tetradecan, n-Pentadecan, n-Hexadecan, n-Heptadecan, n-Octadecan, n-Nonadecan, n-Eicosan, n-Heneicosan, n-Docosan, n-Tricosan, n-Tetracosan, n-Pentacosan, n-Hexacosan, n-Heptacosan, n-Octacosan sowie cyclische Kohlenwasserstoffe, z.B. Cyclohexan, Cyclooctan, Cyclodecan;
 - 40 - aromatische Kohlenwasserstoffverbindungen wie Benzol, Naphthalin, Biphenyl, o- oder n-Terphenyl, C₁-C₄₀-alkylsubstituierte aromatische Kohlenwasserstoffe

3

wie Dodecylbenzol, Tetradecylbenzol, Hexadecylbenzol, Hexylnaphthalin oder Decylnaphthalin;

- 5 – gesättigte oder ungesättigte C₆–C₃₀–Fettsäuren wie Laurin–, Stearin–, Öl– oder Behensäure, bevorzugt eutektische Gemische aus Decansäure mit z.B. Myristin–, Palmitin– oder Laurinsäure;
- 10 – Fettalkohole wie Lauryl–, Stearyl–, Oleyl–, Myristyl–, Cetylalkohol, Gemische wie Kokosfettalkohol sowie die sogenannten Oxoalkohole, die man durch Hydroformylierung von α –Olefinen und weiteren Umsetzungen erhält;
- C₆–C₃₀–Fettamine, wie Decylamin, Dodecylamin, Tetradecylamin oder Hexadecylamin;
- 15 – Ester wie C₁–C₁₀–Alkylester von Fettsäuren wie Propylpalmitat, Methylstearat oder Methylpalmitat sowie bevorzugt ihre eutektischen Gemische oder Methylcinnamat;
- 20 – natürliche und synthetische Wachse wie Montansäurewachse, Montanesterwachse, Carnaubawachs, Polyethylenwachs, oxidierte Wachse, Polyvinyletherwachs, Ethylenvinylacetatwachs oder Hartwachse nach Fischer–Tropsch–Verfahren;
- 25 – halogenierte Kohlenwasserstoffe wie Chlorparaffin, Bromoctadecan, Brompentadecan, Bromnonadecan, Bromeicosan, Bromdocosan.

Weiterhin sind Mischungen dieser Substanzen geeignet, solange es nicht zu einer Schmelzpunkterniedrigung außerhalb des gewünschten Bereichs kommt, oder die Schmelzwärme der Mischung für eine sinnvolle Anwendung zu gering wird.

30

Vorteilhaft ist beispielsweise die Verwendung von reinen n-Alkanen, n-Alkanen mit einer Reinheit von größer als 80% oder von Alkangemischen, wie sie als technisches Destillat anfallen und als solches handelsüblich sind.

35

Weiterhin kann es vorteilhaft sein, den kapselkern–bildenden Substanzen in ihnen lösliche Verbindungen zuzugeben, um so die zum Teil bei den unpolaren Substanzen auftretende Gefrierpunkterniedrigung zu verhindern. Vorteilhaft verwendet man, wie in der US–A 5 456 852 beschrieben, Verbindungen mit einem 20 bis 120 K höheren Schmelzpunkt als die eigentliche Kernsubstanz. Geeignete Verbindungen sind die oben als lipophile Substanzen erwähnten Fettsäuren, Fettalkohole, Fettamide sowie

40 aliphatischen Kohlenwasserstoffverbindungen. Sie werden in Mengen von 0,1 bis 10 Gew.-% bezogen auf den Kapselkern zugesetzt.

Je nach Temperaturbereich, in dem die Wärmespeicher gewünscht sind, werden die Latentwärmespeichermaterialien gewählt. Beispielsweise verwendet man für Wärmespeicher in Baustoffen in gemäßigttem Klima bevorzugt Latentwärmespeichermaterialien, deren fest/flüssig-Phasenübergang im Temperaturbereich von 0 bis 60°C liegt. So wählt man in der Regel für Innenraumanwendungen Einzelstoffe oder Mischungen mit Umwandlungstemperaturen von 15 bis 30°C.

Bevorzugte Latentwärmespeichermaterialien sind aliphatische Kohlenwasserstoffe, besonders bevorzugt die oben beispielhaft aufgezählten. Insbesondere werden aliphatische Kohlenwasserstoffe mit 16, 17 oder 18 Kohlenstoffatomen sowie deren Gemische bevorzugt.

Als Polymer für die Kapselwand können prinzipiell die für die Mikrokapseln für Durchschreibepapiere bekannten Materialien verwendet werden. So ist es beispielsweise möglich, die Latentwärmespeichermaterialien nach den in der GB-A 870476, US 2,800,457, US 3,041,289 beschriebenen Verfahren in Gelatine mit anderen Polymeren zu verkapseln.

Bevorzugte Wandmaterialien, da sehr alterungsstabil, sind duroplastische Polymere. Unter duroplastisch sind dabei Wandmaterialien zu verstehen, die aufgrund des hohen Vernetzungsgrades nicht erweichen, sondern sich bei hohen Temperaturen zersetzen. Geeignete duroplastische Wandmaterialien sind beispielsweise hochvernetzte Formaldehydharze, hochvernetzte Polyharnstoffe und hochvernetzte Polyurethane sowie hochvernetzte Methacrylsäureesterpolymere.

Unter Formaldehydharzen versteht man Reaktionsprodukte aus Formaldehyd mit

- Triazinen wie Melamin
- Carbamiden wie Harnstoff
- Phenolen wie Phenol, m-Kresol und Resorcin
- Amino- und Amidverbindungen wie Anilin, p-Toluolsulfonamid, Ethylenharnstoff und Guanidin,

oder ihren Mischungen.

Als Kapselwandmaterial bevorzugte Formaldehydharze sind Harnstoff-Formaldehydharze, Harnstoff-Resorcin-Formaldehydharze, Harnstoff-Melamin-Harze und Melamin-Formaldehydharze. Ebenso bevorzugt sind die C₁-C₄-Alkyl- insbesondere Methylether dieser Formaldehydharze sowie die Mischungen mit diesen Formaldehydharzen. Insbesondere werden Melamin-Formaldehyd-Harze und/oder deren Methylether bevorzugt.

In den von den Durchschreibepapieren her bekannten Verfahren werden die Harze als Prepolymere eingesetzt. Das Prepolymer ist noch in der wässrigen Phase löslich und wandert im Verlauf der Polykondensation an die Grenzfläche und umschließt die Öltröpfchen. Verfahren zu Mikroverkapselung mit Formaldehydharzen sind allgemein
5 bekannt und beispielsweise in der EP-A-562 344 und EP-A-974 394 beschrieben.

Kapselwände aus Polyharnstoffen und Polyurethanen sind ebenfalls von den Durchschreibepapieren her bekannt. Die Kapselwände entstehen durch Umsetzung von
10 NH_2 -Gruppen bzw. OH -Gruppen tragenden Reaktanden mit Di- und/oder Polyisocyanaten. Geeignete Isocyanate sind beispielsweise Ethylendiisocyanat, 1,4-Tetramethylendiisocyanat, 1,6-Hexamethylendiisocyanat und 2,4- und 2,6-Toluylendiisocyanat. Ferner seien Polyisocyanate wie Derivate mit Biuretstruktur, Polyuretonimine und Isocyanurate erwähnt. Als Reaktanden kommen in Frage: Hydrazin,
15 Guanidin und dessen Salze, Hydroxylamin, Di- und Polyamine und Aminoalkohole. Solche Grenzflächenpolyadditionsverfahren sind beispielsweise aus der US 4,021,595, EP-A 0 392 876 und EP-A 0 535 384 bekannt.

Bevorzugt werden Mikrokapseln, deren Kapselwand ein hochvernetztes Methacrylsäureesterpolymer ist. Der Vernetzungsgrad wird dabei mit einem Vernetzeranteil \geq
20 10 Gew.-% bezogen auf das Gesamtpolymer erzielt.

Von bevorzugten Mikrokapseln sind die Wand-bildenden Polymere aus 30 bis 100 Gew.-%, vorzugsweise 30 bis 95 Gew.-% eines oder mehrerer C_1 - C_{24} -Alkylester
25 der Acryl- und/oder Methacrylsäure als Monomere I aufgebaut. Außerdem können die Polymere bis zu 80 Gew.-%, vorzugsweise 5 bis 60 Gew.-%, insbesondere 10 bis 50 Gew.-%, eines bi- oder polyfunktionellen Monomers als Monomere II, welches in Wasser nicht löslich oder schwer löslich ist, einpolymerisiert enthalten. Daneben können die Polymere bis zu 40 Gew.-%, vorzugsweise bis zu 30 Gew.-% sonstige Monomere III einpolymerisiert enthalten.
30

Als Monomere I eignen sich C_1 - C_{24} -Alkylester der Acryl- und/oder Methacrylsäure. Besonders bevorzugte Monomere I sind Methyl-, Ethyl-, n-Propyl- und n-Butylacrylat und/oder die entsprechenden Methacrylate. Bevorzugt sind iso-Propyl-, iso-Butyl-,
35 sec.-Butyl- und tert.-Butylacrylat und die entsprechenden Methacrylate. Ferner ist Methacrylnitril zu nennen. Generell werden die Methacrylate bevorzugt.

Geeignete Monomere II sind bi- oder polyfunktionelle Monomere, welche in Wasser nicht löslich oder schwer löslich sind, aber eine gute bis begrenzte Löslichkeit in der
40 lipophilen Substanz haben. Unter Schwerlöslichkeit ist eine Löslichkeit kleiner 60 g/l bei 20°C zu verstehen. Unter bi- oder polyfunktionellen Monomeren versteht man Verbindungen, die wenigstens 2 nichtkonjugierte ethylenische Doppelbindungen haben. Vor-

6

nehmlich kommen Divinyl- und Polyvinylmonomere in Betracht, die eine Vernetzung der Kapselwand während der Polymerisation bewirken.

5 Bevorzugte bifunktionelle Monomere sind die Diester von Diolen mit Acrylsäure oder Methacrylsäure, ferner die Diallyl- und Divinylether dieser Diole.

10 Bevorzugte Divinylmonomere sind Ethandioldiacrylat, Divinylbenzol, Ethylenglykoldimethacrylat, 1,3-Butylenglykoldimethacrylat, Methallylmethacrylamid und Allylmethacrylat. Besonders bevorzugt sind Propandiol-, Butandiol-, Pentandiol- und Hexandiol-

Bevorzugte Polyvinylmonomere sind Trimethylolpropantriacylat und -methacrylat, Pentaerythrittriallylether und Pentaerythrittetraacylat.

15 Als Monomere III kommen sonstige Monomere in Betracht, bevorzugt sind Monomere IIIa wie Styrol, α -Methylstyrol, β -Methylstyrol, Butadien, Isopren, Vinylacetat, Vinylpropionat und Vinylpyridin.

20 Besonders bevorzugt sind die wasserlöslichen Monomere IIIb, z.B. Acrylnitril, Methacrylamid, Acrylsäure, Methacrylsäure, Itaconsäure, Maleinsäure, Maleinsäureanhydrid, N-Vinylpyrrolidon, 2-Hydroxyethylacrylat und -methacrylat und Acrylamido-2-methylpropan sulfonsäure. Daneben sind insbesondere N-Methylolacrylamid, N-Methylolmethacrylamid, Dimethylaminoethylmethacrylat und Diethylaminoethylmethacrylat zu nennen.

25

Die zur erfindungsgemäßen Verwendung geeigneten Mikrokapseln lassen sich durch eine sogenannte in-situ-Polymerisation herstellen.

30 Die bevorzugten Mikrokapseln sowie ihre Herstellung sind aus der EP-A-457 154, DE-A-10 139 171, DE-A-102 30 581, EP-A-1 321 182 bekannt, auf die ausdrücklich verwiesen wird. So stellt man die Mikrokapseln in der Weise her, dass man aus den Monomeren, einem Radikalstarter, einem Schutzkolloid und der einzukapselnden lipophilen Substanz eine stabile Öl-in-Wasser-Emulsion herstellt, in der sie als disperse Phase vorliegen. Anschließend löst man die Polymerisation der Monomeren durch Er-

35 wärmung aus und steuert sie durch weitere Temperaturerhöhung, wobei die entstehenden Polymere die Kapselwand bilden, welche die lipophile Substanz umschließt.

40 In der Regel führt man die Polymerisation bei 20 bis 100°C, vorzugsweise bei 40 bis 80°C durch. Natürlich sollte die Dispersions- und Polymerisationstemperatur oberhalb der Schmelztemperatur der lipophilen Substanzen liegen.

Nach Erreichen der Endtemperatur setzt man die Polymerisation zweckmäßigerweise noch etwa für eine Zeit von bis zu 2 Stunden fort, um Restmonomergehalte abzusenk-
en. Im Anschluß an die eigentliche Polymerisationsreaktion bei einem Umsatz von 90
bis 99 Gew.-% ist es in der Regel vorteilhaft, die wässrigen Mikrokapseldispersionen
5 weitgehend frei von Geruchsträgern, wie Restmonomeren und anderen organischen
flüchtigen Bestandteilen zu gestalten. Dies kann in an sich bekannter Weise physika-
lisch durch destillative Entfernung (insbesondere über Wasserdampfdestillation) oder
durch Abstreifen mit einem inerten Gas erreicht werden. Ferner kann es chemisch ge-
schehen, wie in der WO 9924525 beschrieben, vorteilhaft durch redoxinitiierte Polyme-
10 risation, wie in der DE-A-4 435 423, DE-A-4419518 und DE-A-4435422 beschrie-
ben.

Man kann auf diese Weise Mikrokapseln mit einer mittleren Teilchengröße im Bereich
von 0,5 bis 100 µm herstellen, wobei die Teilchengröße in an sich bekannter Weise
15 über die Scherkraft, die Rührgeschwindigkeit, das Schutzkolloid und seine Konzentra-
tion eingestellt werden kann.

Bevorzugte Schutzkolloide sind wasserlösliche Polymere, da diese die Oberflächen-
spannung des Wassers von 73 mN/m maximal auf 45 bis 70 mN/m senken und somit
20 die Ausbildung geschlossener Kapselwände gewährleisten sowie Mikrokapseln mit
bevorzugten Teilchengrößen zwischen 1 und 30 µm, vorzugsweise 3 und 12 µm, aus-
bilden.

In der Regel werden die Mikrokapseln in Gegenwart wenigstens eines organischen
25 Schutzkolloids hergestellt, das sowohl anionisch als auch neutral sein kann. Auch kön-
nen anionische und nichtionische Schutzkolloide zusammen eingesetzt werden. Be-
vorzugt verwendet man anorganische Schutzkolloide gegebenenfalls in Mischung mit
organischen Schutzkolloiden.

30 Organische neutrale Schutzkolloide sind Cellulosederivate wie Hydroxyethylcellulose,
Carboxymethylcellulose und Methylcellulose, Polyvinylpyrrolidon, Copolymere des Vi-
nylpyrrolidons, Gelatine, Gummiarabicum, Xanthan, Natriumalginat, Kasein, Polyethy-
lenglykole, bevorzugt Polyvinylalkohol und partiell hydrolysierte Polyvinylacetate.

35 Als anionische Schutzkolloide eignen sich Polymethacrylsäure, die Copolymerisate des
Sulfoethylacrylats und -methacrylats, Sulfopropylacrylats und -methacrylats, des N-
(Sulfoethyl)-maleinimids, der 2-Acrylamido-2-alkylsulfonsäuren, Styrolsulfonsäure
sowie der Vinylsulfonsäure.

40 Bevorzugte anionische Schutzkolloide sind Naphthalinsulfonsäure und Naphthalinsul-
fonsäure-Formaldehyd-Kondensate sowie vor allem Polyacrylsäuren und Phenolsul-
fonsäure-Formaldehyd-Kondensate.

Die anionischen Schutzkolloide werden in der Regel in Mengen von 0,1 bis 10 Gew.-% eingesetzt, bezogen auf die Wasserphase der Emulsion.

- 5 Bevorzugt werden anorganische Schutzkolloide, sogenannte Pickering-Systeme, die eine Stabilisierung durch sehr feine feste Partikel ermöglichen und in Wasser unlöslich, aber dispergierbar sind oder unlöslich und nicht dispergierbar in Wasser, aber benetzbar von der lipophilen Substanz sind.
- 10 Die Wirkweise und ihr Einsatz sind in der EP-A-1 029 018 sowie der EP-A-1 321 182 beschrieben, auf deren Inhalte ausdrücklich Bezug genommen wird.

- 15 Ein Pickering-System kann dabei aus den festen Teilchen allein oder zusätzlich aus Hilfsstoffen bestehen, die die Dispergierbarkeit der Partikel in Wasser oder die Benetzbarkeit der Partikel durch die lipophile Phase verbessern.

- 20 Die anorganischen festen Partikel können Metallsalze sein, wie Salze, Oxide und Hydroxide von Calcium, Magnesium, Eisen, Zink, Nickel, Titan, Aluminium, Silicium, Barium und Mangan. Zu nennen sind Magnesiumhydroxid, Magnesiumcarbonat, Magnesiumoxid, Calciumoxalat, Calciumcarbonat, Bariumcarbonat, Bariumsulfat, Titandioxid, Aluminiumoxid, Aluminiumhydroxid und Zinksulfid. Silikate, Bentonit, Hydroxyapatit und Hydrocalcite seien ebenfalls genannt. Besonders bevorzugt sind hochdisperse Kieselsäuren, Magnesiumpyrophosphat und Tricalciumphosphat.

- 25 Die Pickering-Systeme können sowohl zuerst in die Wasserphase gegeben werden, als auch zu der gerührten Emulsion von Öl-in-Wasser zugegeben werden. Manche feinen, festen Partikel werden durch eine Fällung hergestellt, wie in der EP-A-1 029 018, sowie der EP-A-1 321 182 beschrieben.

- 30 Die hochdispersen Kieselsäuren können als feine, feste Teilchen in Wasser dispergiert werden. Es ist aber auch möglich, sogenannte kolloidale Dispersionen von Kieselsäure in Wasser zu verwenden. Die kolloidalen Dispersionen sind alkalische, wässrige Mischungen von Kieselsäure. Im alkalischen pH-Bereich sind die Partikel gequollen und in Wasser stabil. Für eine Verwendung dieser Dispersionen als Pickering-System ist
- 35 es vorteilhaft, wenn der pH-Wert während der Öl-in-Wasser Emulsion mit einer Säure auf pH 2 bis 7 eingestellt wird.

Die anorganischen Schutzkolloide werden in der Regel in Mengen von 0,5 bis 15 Gew.-%, bezogen auf die Wasserphase, eingesetzt.

Im allgemeinen werden die organischen neutralen Schutzkolloide in Mengen von 0,1 bis 15 Gew.-%, vorzugsweise von 0,5 bis 10 Gew.-% eingesetzt, bezogen auf die Wasserphase.

- 5 Vorzugsweise wählt man die Dispergierbedingungen zur Herstellung der stabilen Öl-in-Wasser Emulsion in an sich bekannter Weise so, dass die Öltröpfchen die Größe der gewünschten Mikrokapseln haben.

- 10 Die Mikrokapseln lassen sich in für lignocellulosehaltige Materialien üblicherweise eingesetzte Leimharze einarbeiten.

- 15 Lignocellulosehaltige Materialien sind, entsprechend dem Stand der Technik, beispielsweise Holzspäne von zerspannten Rund- und Knüppelhölzern, Sägewerks- und Funierabfälle, Hobel- und Schälspäne sowie andere lignocellulosehaltige Rohmaterialien z.B. Bagasse, Flachsscheiben, Baumwollstengel, Jute, Sisal, Stroh, Flachs, Kokosfasern, Bananenfasern, Hanf und Kork. Besonders bevorzugt sind Holzfasern oder Holzspäne. Die Rohstoffe können dabei in Form von Granulaten, Mehl, oder bevorzugt Spänen, Fasern und/oder Schnitzeln vorliegen.

- 20 Als Leimharze sind Aminoplastharze, Phenolharze, Isocyanatharze und Polycarbonsäureharze bevorzugt zu nennen.

- 25 Als Aminoplastharze kommen Bindemittel auf der Grundlage von Formaldehydkondensaten des Harnstoffs oder Melamins in Betracht. Sie sind als wässrige Lösungen oder Pulver unter den Bezeichnungen Kaurit[®] sowie Kauramin[®] (Herst. BASF) im Handel und enthalten Harnstoff- und/oder Melamin-Formaldehyd-Vorkondensate. Mischkondensate und Kondensate, die weitere Bestandteile wie Phenol oder auch andere Aldehyde enthalten können, sind üblich. Geeignete Aminoplastharze und Phenolharze sind Harnstoff-Melamin-Formaldehydkondensate, Melamin-Harnstoff-Formaldehyd-
30 Phenolkondensate, Phenol-Formaldehydkondensate, Phenol-Resorcin-Formaldehydkondensate, Harnstoff-Formaldehydkondensate und Melaminformaldehydkondensate sowie ihre Mischungen. Ihre Herstellung und Verwendung ist allgemein bekannt. In der Regel wird die Vorkondensation der Ausgangsstoffe bis zu einer Viskosität von 200 bis 500 mPas geführt (bezogen auf eine 66 gew.-%ige Harzlösung).

- 35 Bevorzugt werden Harnstoff-Formaldehydharze insbesondere solche mit einem Molverhältnis von 1 Mol Harnstoff zu 1,1 bis 1,4 Mol Formaldehyd.

- 40 Bei der Verarbeitung von Aminoplastharzen erfolgt ein Übergang der löslichen und schmelzbaren Aminoplastvorkondensate in unschmelzbare und unlösliche Produkte. Bei diesem als Aushärtung bezeichneten Vorgang tritt bekanntermaßen eine durchge-

10

hende Vernetzung der Vorkondensate ein, die in der Regel durch Härter beschleunigt wird.

5 Als Härter können die dem Fachmann bekannten Härter für Harnstoff-, Phenol- und/oder Melamin-Formaldehyd-Harze eingesetzt werden, wie sauer reagierende und/oder säureabspaltende Verbindungen z.B. Ammonium- oder Aminsalze. In der Regel beträgt der Härteranteil in einer Leimharzflotte 1 bis 5 Gew.-% bezogen auf den Flüssigharzanteil.

10 Als Isocyanatharze sind alle gängigen auf Methylendiphenylenisocyanaten (MDI) basierende Harze geeignet. Sie bestehen in der Regel aus einer Mischung aus Monomeren, Polymeren und oligomeren Diisocyanaten, den sogenannten Vorkondensaten, die in der Lage sind mit der Cellulose, dem Lignin und der Feuchtigkeit des Holzes zu reagieren. Der Harzgehalt damit hergestellter Formkörper beträgt in der Regel 3-5 Gew.-%
15 bezogen auf den Formkörper.

Geeignete Isocyanatharze sind beispielsweise als Lupranat[®] Marken (Firma Elastogran) im Handel erhältlich.

20 Ferner sind als Leimharze auch Polycarbonsäureharze geeignet, die

A) ein durch radikalische Polymerisation erhaltenes Polymerisat, welches zu 5 bis 100 bevorzugt 5 bis 50 Gew.-% aus einem ethylenisch ungesättigten Säureanhydrid oder bevorzugt einer ethylenisch ungesättigten Dicarbonsäure, deren Carbonsäuregruppen eine Anhydridgruppe bilden können, (Monomere a)), und 0 –
25 95 bevorzugt 50 bis 95 Gew.-% Monomere b), die von den Monomeren a) verschieden sind, besteht und

B) ein Alkanolamin mit mindestens zwei Hydroxylgruppen, umfassen.
30

Derartige Harze werden in der EP-A-882 093 beschrieben, auf die ausdrücklich Bezug genommen wird.

Besonders bevorzugt sind Polymerisate, die als Monomere a) Maleinsäure und/oder
35 Maleinsäureanhydrid enthalten.

Bevorzugte Monomere b) sind Acrylsäure, Methacrylsäure, Ethen, Propen, Buten, Isobuten, Cyclopenten, Methylvinylether, Ethylvinylether, Acrylamid, 2-Acrylamido-2-methylpropansulfonsäure, Vinylacetat, Styrol, Butadien, Acrylnitril bzw. Mischungen
40 davon. Besonders bevorzugt sind Acrylsäure, Methacrylsäure, Ethen, Acrylamid, Styrol und Acrylnitril bzw. Mischungen davon.

Insbesondere sind solche bevorzugt, worin das Monomer b) wenigstens eine C₃-C₆-Monocarbonsäure bevorzugt Acrylsäure als Comonomer b) umfasst.

Die Polymerisate können nach üblichen Polymerisationsverfahren hergestellt werden, z.B. durch Substanz-, Emulsions-, Suspensions-, Dispersions-, Fällungs- und Lösungspolymerisation. Für alle Polymerisationsmethoden werden die üblichen Apparaturen verwendet, z.B. Rührkessel, Rührkesselkaskaden, Autoklaven, Rohrreaktoren und Knetter. Dabei wird, wie dem Fachmann geläufig, unter Ausschluss von Sauerstoff gearbeitet. Bevorzugt wird nach der Methode der Lösungs- und Emulsionspolymerisation gearbeitet. Die Polymerisation wird in Wasser, gegebenenfalls mit Anteilen bis zu 60 Gew.-% an Alkoholen oder Glykolen, als Lösungs- oder Verdünnungsmittel durchgeführt.

Wird in wässriger Lösung oder Verdünnung polymerisiert, so können die ethylenisch ungesättigten Carbonsäuren vor oder während der Polymerisation ganz oder teilweise durch Basen neutralisiert werden. Als Basen kommen beispielsweise Alkali- oder Erdalkaliverbindungen, Ammoniak, primäre, sekundäre und tertiäre Amine wie Diethanolamin und Triethanolamin, sowie mehrbasige Amine in Frage.

Besonders bevorzugt werden die ethylenisch ungesättigten Carbonsäuren weder vor noch während der Polymerisation neutralisiert. Bevorzugt wird auch nach der Polymerisation kein Neutralisierungsmittel, abgesehen vom Alkanolamin B), zugesetzt.

Die Durchführung der Polymerisation kann nach einer Vielzahl von Varianten kontinuierlich oder diskontinuierlich durchgeführt werden. Üblicherweise legt man einen Teil der Monomere gegebenenfalls in einem geeigneten Verdünnungsmittel oder Lösungsmittel und gegebenenfalls in Anwesenheit eines Emulgators, eines Schutzkolloids oder weiterer Hilfsstoffe vor, inertisiert, und erhöht die Temperatur bis zum Erreichen der gewünschten Polymerisationstemperatur. Innerhalb eines definierten Zeitraumes werden der Radikalinitiator, weitere Monomere und sonstige Hilfsstoffe, wie Regler oder Vernetzer jeweils gegebenenfalls in einem Verdünnungsmittel zudosiert.

Bevorzugt liegen die Polymerisate A) in Form einer wässrigen Dispersion oder Lösung mit Feststoffgehalten von vorzugsweise 10 bis 80 Gew.-%, insbesondere 40 bis 65 Gew.-% vor.

Als Komponente B) werden Alkanolamine mit mindestens zwei OH-Gruppen eingesetzt, wie Diethanolamin, Triethanolamin, Diisopropanolamin, Triisopropanolamin, Methyl-diethanolamin, Butyl-diethanolamin und Methyl-diisopropanolamin genannt. Bevorzugt ist Triethanolamin.

12

Zur Herstellung der Polycarbonsäureharze werden das Polymerisat A) und das Alkanolamin B) bevorzugt in einem solchen Verhältnis zueinander eingesetzt, dass das Molverhältnis von Carboxylgruppen der Komponente A) und der Hydroxylgruppen der Komponente B) 20:1 bis 1:1, bevorzugt 8:1 bis 1,5:1 und besonders bevorzugt 5:1 bis 1,7:1 beträgt (die Anhydridgruppen werden hierbei als 2 Carboxylgruppen berechnet).

Die Herstellung der Polycarbonsäureharze erfolgt z.B. einfach durch Zugabe des Alkanolamins zur wässrigen Dispersion oder Lösung der Polymerisate A).

10 Die Mikrokapselformen können dem als Basis für die Formkörper dienendem Gemisch aus Holzfasern bzw. -spänen und Bindemittel auf verschiedene Weise und an verschiedenen Stellen des Fabrikationsprozesses zugesetzt werden.

15 Die Mikrokapselformen können als Pulver oder bevorzugt als Dispersion in die Bindemittelzusammensetzung eingearbeitet werden. Dabei werden 2 bis 30 Gew.-%, bevorzugt 5 bis 15 Gew.-% Mikrokapselformen bezogen auf den Formkörper eingearbeitet. Es ist jedoch ebenfalls möglich, die Mikrokapselformen in einem ersten Verfahrensschritt zusammen mit den lignocellulosehaltigen Materialien zu trocknen und anschließend mit dem Leimharz thermisch zu härten.

20 Weiterhin betrifft die vorliegende Erfindung Bindemittelzusammensetzungen enthaltend 40 - 95 Gew.-%, bevorzugt 40 - 65 Gew.-% insbesondere 50 - 60 Gew.-% Leimharz, gerechnet als Feststoff, 5-40 Gew.-%, bevorzugt 10 - 35 Gew.-%, insbesondere 20 - 30 Gew.-% Mikrokapselformen und gegebenenfalls Wasser bezogen auf 100 Gew.-% Bindemittelzusammensetzung.

30 Darüber hinaus können zusammen mit dem Leimharz für Formkörper aus lignocellulosehaltigen Materialien übliche Hilfs- und Zuschlagstoffe eingesetzt werden wie die bereits oben erwähnten Härter, Puffer, Insektizide, Fungizide, Füllstoffe, Hydrophobierungsmittel wie Silikonöle, Paraffine, Wachse, Fettseifen, Wasserretentionsmittel, Netzmittel und Flammenschutzmittel wie Borate und Aluminiumhydroxid. Dementsprechend können diese Hilfs- und Zuschlagstoffe auch in den erfindungsgemäßen Bindemittelzusammensetzungen enthalten sein.

35 Die erfindungsgemäßen Formkörper sind insbesondere Platten. Je nach Größe der eingesetzten lignocellulosehaltigen Partikel unterscheidet man zwischen OSB (oriented structural board) Platten, Spanplatten und mitteldichten (MDF) und hochdichten (HDF) Faserplatten. Bevorzugt wird die erfindungsgemäße Bindemittelzusammensetzung für Spanholzwerkstoffe insbesondere Platten eingesetzt.

40 Die lignocellulosehaltigen Materialien können direkt mit den Mikrokapselformen oder der erfindungsgemäßen Bindemittelzusammensetzung beschichtet werden. Nach einer

13

Verfahrensvariante vermischt man die lignocellulosehaltigen Materialien mit der Bindemittelzusammensetzung und härtet diese Mischung thermisch, wobei die Bindemittelzusammensetzung 40 – 95 Gew.-% Leimharz und 5 – 40 Gew.-% Mikrokapseln mit einem Polymer als Kapselwand und einem Kapselkern bestehend überwiegend aus
5 Latentwärmespeichermaterialien und 0 – 20 Gew.-% Wasser enthält.

Nach einer Verfahrensvariante werden den lignocellulosehaltigen Materialien 9 bis 30 Gew.-%, bevorzugt 12 bis 20 Gew.-% der wässrigen Bindemittelzusammensetzung zugesetzt, bezogen auf die Gesamtmenge aus lignocellulosehaltigen Material und Bindemittelzusammensetzung.
10

Die Viskosität der wässrigen Bindemittelzusammensetzung wird vorzugsweise (insbesondere bei der Herstellung von Formkörpern aus Holzfasern oder Holzspänen) auf 10 bis 10 000, besonders bevorzugt auf 50 bis 1 500 und ganz besonders bevorzugt auf
15 100 bis 1 000 mPa·s (DIN 53019, Rotationsviskosimeter bei 41 sec⁻¹) eingestellt.

Die Mischung aus lignocellulosehaltigen Materialien und der Bindemittelzusammensetzung kann beispielsweise bei Temperaturen von 10 bis 150°C vorgetrocknet werden und anschließend zu den Formkörpern, z.B. bei Temperaturen von 50 bis 300°C, vorzugsweise 100 bis 250°C und besonders bevorzugt 140 bis 225°C und Drücken von im
20 allgemeinen 2 bis 200 bar, vorzugsweise 5 bis 100 bar, besonders bevorzugt 20 bis 50 bar zu den Formkörpern verpresst werden. Überraschenderweise kommt es trotz der hohen Formtemperaturen in Kombination mit den Drücken nicht zur Zerstörung der Mikrokapseln, obwohl die Formtemperaturen meist oberhalb der Erweichungstemperaturen der Kapselwandmaterialien liegen.
25

Die erfindungsgemäßen Bindemittelzusammensetzungen eignen sich insbesondere zur Herstellung von Holzwerkstoffen wie Holzspanplatten und Holzfaserplatten (vgl. Ullmanns Encyclopädie der technischen Chemie, 4. Auflage 1976, Band 12, S. 709–
30 727), die durch Verleimung von zerteiltem Holz wie z.B. Holzspänen und Holzfasern hergestellt werden können.

Die Herstellung von Spanplatten ist allgemein bekannt und wird beispielsweise in H.J. Deppe, K. Ernst Taschenbuch der Spanplattentechnik, 2. Auflage, Verlag Leinfelden 1982, beschrieben.
35

Bei der Spanplattenherstellung erfolgt die Beleimung der vorher getrockneten Späne in kontinuierlichen Mischern. Meist werden verschiedene Spanfraktionen in getrennten Mischern unterschiedlich beleimt und dann getrennt (Mehrschichtplatten) oder gemeinsam geschüttet. Die Zugabe der Mikrokapseln auf die Späne kann in wässriger Lösung vor dem Trockner in einem kontinuierlichen Mischer oder bei der Beleimung zusam-
40

men oder getrennt von dem Leim erfolgen. Auch eine Kombination der beiden Verfahren ist möglich.

5 Es werden bevorzugt Späne eingesetzt, deren mittlere Spandicke im Mittel bei 0,1 bis 2 mm, insbesondere 0,2 bis 0,5 mm liegt, und die weniger als 6 Gew.-% Wasser enthalten. Die Bindemittelzusammensetzung wird möglichst gleichmäßig auf die Holzspäne aufgetragen, beispielsweise indem man die Bindemittelzusammensetzung in feinverteilter Form auf die Späne aufsprüht.

10 Die beleimten Holzspäne werden anschließend zu einer Schicht mit möglichst gleichmäßiger Oberfläche ausgestreut, wobei sich die Dicke der Schicht nach der gewünschten Dicke der fertigen Spanplatte richtet. Die Streuschicht wird gegebenenfalls kalt vorverdichtet und bei einer Temperatur von z.B. 100 bis 250°C, bevorzugt von 140 bis 225°C durch Anwendung von Drücken von üblicherweise 10 bis 750 bar zu einer maßhaltigen Platte verpresst. Die benötigten Presszeiten können in einem weiten Bereich
15 variieren und liegen im allgemeinen zwischen 15 Sekunden bis 30 Minuten.

Die zur Herstellung von mitteldichten Holzfaserplatten (MDF) aus den Bindemitteln benötigten Holzfasern geeigneter Qualität können aus rindenfreien Holzschnitzeln
20 durch Zermahlung in Spezialmühlen oder sogenannten Refinern bei Temperaturen von ca. 180°C hergestellt werden.

Bei der MDF- und HDF-Plattenherstellung werden die Fasern nach dem Refiner in der Blowline beleimt. Zur Beleimung werden die Holzfasern im allgemeinen mit einem
25 Luftstrom aufgewirbelt und die Bindemittelzusammensetzung in den so erzeugten Fasernstrom eingedüst ("Blow-Line" Verfahren). Die beleimten Fasern durchlaufen dann einen Trockner, in dem sie auf eine Restfeuchtigkeit von 7 bis 13 Gew.-% getrocknet werden. Vereinzelt werden die Fasern auch erst getrocknet und nachträglich in speziellen kontinuierlichen Mischern beleimt. Auch eine Kombination aus Blowline und
30 Mischerbeleimung ist möglich. Die Zugabe der Mikrokapseln auf die Fasern kann in wässriger Lösung in der Blowline zusammen oder getrennt vom Leim erfolgen. Das Verhältnis Holzfasern zur Bindemittelzusammensetzung bezogen auf den Trockengehalt bzw. Feststoffgehalt beträgt üblicherweise 40:1 bis 3:1, bevorzugt 20:1 bis 4:1. Die beleimten Fasern werden in dem Fasernstrom bei Temperaturen von z.B. 130 bis
35 180°C getrocknet, zu einem Faservlies ausgestreut gegebenenfalls kalt vorverdichtet und bei Drücken von 20 bis 40 bar zu Platten oder Formkörpern verpresst.

Bei der OSB-Herstellung werden die Holzspäne (Strands) auf eine Restfeuchtigkeit von 1 – 4 % getrocknet, in Mittel- und Deckschichtmaterial getrennt und in kontinuierlichen
40 Mischer getrennt beleimt. Die Zugabe der Mikrokapseln auf die Holzspäne kann in wässriger Lösung vor dem Trockner in einem kontinuierlichen Mischer, oder bei der

15

Beleimung zusammen oder getrennt von dem Leim erfolgen. Auch eine Kombination der beiden Verfahren ist möglich.

Zur Fertigstellung der Platten werden die beleimten Holzspäne dann zu Matten geschüttet, gegebenenfalls kalt vorverdichtet und in beheizten Pressen bei Temperaturen von 170 bis 240°C zu Platten gepresst.

Die beleimten Holzfasern können auch, wie z.B. in DE-OS 2 417 243 beschrieben, zu einer transportablen Fasermatte verarbeitet werden. Dieses Halbzeug kann dann in einem zweiten, zeitlich und räumlich getrennten Schritt zu Platten oder Formteilen, wie z.B. Türinnenverkleidungen von Kraftfahrzeugen weiterverarbeitet werden.

Die erfindungsgemäßen Bindemittelzusammensetzungen eignen sich weiterhin zur Herstellung von Sperrholz- und Tischlerplatten nach den allgemein bekannten Herstellverfahren.

Auch andere obengenannte Naturfaserstoffe wie Sisal, Jute, Hanf, Stroh, Flachs, Kokosfasern, Bananenfasern und andere Naturfasern können mit den Bindemitteln zu Platten und Formkörpern verarbeitet werden. Die Naturfaserstoffe können auch in Mischungen mit Kunststofffasern, z.B. Polypropylen, Polyethylen, Polyester, Polyamide oder Polyacrylnitril verwendet werden. Diese Kunststofffasern können dabei auch als Cobindemittel neben dem erfindungsgemäßen Bindemittelzusammensetzung fungieren. Der Anteil der Kunststofffasern beträgt dabei bevorzugt weniger als 50 Gew.-%, insbesondere weniger als 30 Gew.-% und ganz besonders bevorzugt weniger als 10 Gew.-%, bezogen auf alle Späne, Schnitzel oder Fasern. Die Verarbeitung der Fasern kann nach dem bei den Holzfaserplatten praktizierten Verfahren erfolgen. Es können aber auch vorgeformte Naturfasermatten mit den erfindungsgemäßen Bindemitteln imprägniert werden, gegebenenfalls unter Zusatz eines Benetzungshilfsmittels. Die imprägnierten Matten werden dann im bindemittelfeuchten oder vorgetrockneten Zustand z.B. bei Temperaturen zwischen 100 und 250°C und Drücken zwischen 10 und 100 bar zu Platten oder Formteilen verpresst.

Die erfindungsgemäßen Formkörper insbesondere die Spanplatten eignen sich hervorragend für Innenanwendungen wie Wand- und Deckenverkleidungen. Ferner können sie durch Beschichtung oberflächenveredelt werden beispielsweise für die Möbel- und Laminatfußbodenherstellung. Sie haben gute Wärmespeichereigenschaften. Unerwarteter Weise zeigen die erfindungsgemäßen Platten gute Ergebnisse bei Wasseraufnahme sowie Dickenquellung nach Wasserlagerung.

Die nachfolgenden Beispiele sollen die Erfindungen näher beschreiben:

Herstellung der Mikrokapseln:

Wasserphase:

- 572 g Wasser
 80 g einer 50 gew.-%igen kolloidalen Dispersion von SiO₂ in Wasser bei pH 9,3
 5 (mittlere Teilchengröße 108,6 nm, Z-Mittelwert nach Lichtstreuung)
 2,1 g einer 2,5 gew.-%igen wässrigen Natriumnitritlösung
 20 g einer 1 gew.-%igen, wässrigen Methylcelluloselösung (Viskosität 15000 mPas bei 2% in Wasser)

10 Ölphase:

- 440 g C₁₆-C₁₈-Alkangemisch (26°C Schmelztemperatur)
 77g Methylmethacrylat
 33 g Butandioldiacrylat
 15 0,76 g Ethylhexylthioglykolat
 1,35 g t-Butylperpivalat

Zulauf 1: 1,09 g t-Butylhydroperoxid, 70 gew.-%ig in Wasser

Zulauf 2: 0,34 g Ascorbinsäure, 0,024 g NaOH, 56 g H₂O

20

- Bei Raumtemperatur wurde die obige Wasserphase vorgelegt und mit 3 g 10 %iger Salpetersäure auf pH 4 gestellt. Nach Zugabe der Ölphase wurde mit einem schnelllaufenden Dissolverrührer bei 4800 Upm dispergiert. Nach 40 Minuten Dispergierung wurde eine stabile Emulsion der Teilchengröße 1 bis 9 µm Durchmesser erhalten. Die
 25 Emulsion wurde unter Rühren mit einem Ankerrührer in 40 Minuten auf 56°C aufgeheizt, innerhalb von weiteren 20 Minuten auf 58°C, innerhalb von weiteren 60 Minuten auf 71°C und innerhalb von weiteren 60 Minuten auf 85°C aufgeheizt. Die entstandene Mikrokapseldispersion wurde unter Rühren auf 70°C gekühlt und der Zulauf 1 dazugegeben. Der Zulauf 2 wurde unter Rühren bei 70°C über 80 Minuten dosiert zugegeben.
 30 Anschließend wurde abgekühlt. Die entstandene Mikrokapseldispersion besaß einen Feststoffgehalt von 47,2 Gew.-% und eine mittlere Teilchengröße 5,8 µm (Volumenmittelwert, gemessen mittels Fraunhofer-Beugung).

- Die Dispersion konnte in einem Laborsprühtrockner mit Zweistoffdüse und Zyklonabscheidung mit 130°C Eingangstemperatur des Heizgases und 70°C Ausgangstemperatur des Pulvers aus dem Sprühturm problemlos getrocknet werden. Mikrokapseldispersion und Pulver zeigten beim Aufheizen in der Differentialkalorimetrie bei einer Heizrate von 1 K/Minute einen Schmelzpunkt zwischen 24,5 und 27,5°C mit einer Umwandlungsenthalpie von 110 J/g Alkanmischung.

40

17

Beispiel 1: Spanplatte mit Latentwärmespeicher

Auf 5400 g getrocknete Späne wurden 1628 g einer Mischung aus

Harnstoff-Formaldehyd-Harz, 68 %ig	100,0 g
Paraffin-Emulsion, 60 %ig	6,3 g
Ammoniumnitrat-Lsg. 52 %ig	4,0 g
Mikrokapseln 42 %ig	23,5 g
Mikrokapseln, Pulver	14,8 g

5

bedüst und davon 3370 g in eine Form (56,5 cm x 44 cm) geschüttet. Das Material wurde in einer Presse bei 190 °C auf eine Stärke von 18 mm in 230 s zu einer Spanplatte gepresst.

- 10 Die Spanplatte enthielt 14 % Festharz/atro Späne, 0,5 % Festwachs/atro Späne und 5 % Mikrokapseln/atro Späne (atro = auf trockene Späne).

Prüfung der Spanplatten:

- 15 Dickenquellung: Es wurde die prozentuale Zunahme der Plattendicke infolge der Wasserlagerung mittels einer Schieblehre bestimmt.

Eigenschaften der Spanplatte:

Dicke	mm	18,0
Dichte	kg/m ³	689
Querzugfestigkeit trocken	N/mm ²	0,70
Quellung nach 2 h Wasserlagerung	%	1,8
Quellung nach 24 h Wasserlagerung	%	11,0

- 20 Beispiel 2: MDF-Platte mit Latentwärmespeicher

1000 g atro Fasern wurden mit 50 g Mikrokapseln 42 %ig und mit einem Leimansatz aus

Harnstoff-Formaldehyd-Harz, 68 %ig	100,0 g
Paraffin-Emulsion, 60 %ig	3,2 g
Wasser	11,8 g

25

bedüst und auf eine Feuchte von 8 % getrocknet. Davon wurden 920 g in einer Form (30 cm x 30 cm) geschüttet. Das Material wurde in einer Presse bei 190 °C auf eine Stärke von 12 mm in 300 s zu einer MDF-Platte gepresst.

18

Die MDF-Platte enthielt 14 % Festharz/atro Fasern, 0,5 % Festwachs/atro Fasern und 5 % Mikrokapseln/atro Fasern.

Eigenschaften der MDF-Platte:

5

Dicke	mm	10,7
Dichte	kg/m ³	744
Querzugfestigkeit	N/mm ²	0,95
Quellung nach 2 h Wasserlagerung	%	2,2
Quellung nach 24 h Wasserlagerung	%	7,1

Patentansprüche

1. Formkörper aus lignocellulosehaltigen Materialien enthaltend bezogen auf das Gewicht des Formkörpers
5
5 – 20 Gew.-% Leimharz, gerechnet als Feststoff, und
1 - 30 Gew.-% Mikrokapseln mit einem Polymer als Kapselwand und einem Kapselkern bestehend überwiegend aus Latentwärmespeichermaterialien.
- 10
2. Formkörper nach Anspruch 1, wobei man das Leimharz unter Aminoplastharzen, Phenolharzen, Isocyanatharzen und Polycarbonsäureharzen auswählt.
- 15
3. Formkörper nach Anspruch 1 oder 2, wobei das Leimharz ein Harnstoff- und/oder Melamin-Formaldehydharz ist.
- 20
4. Formkörper nach einem der Ansprüche 1 bis 3, wobei die Latentwärmespeichermaterialien lipophile Substanzen mit einem fest/flüssig Phasenübergang im Temperaturbereich von -20 bis 120°C sind.
5. Formkörper nach einem der Ansprüche 1 bis 4, wobei die Latentwärmespeichermaterialien aliphatische Kohlenwasserstoffverbindungen sind.
- 25
6. Formkörper nach einem der Ansprüche 1 bis 5, wobei die Kapselwand ein hochvernetztes Methacrylsäureesterpolymer ist.
7. Formkörper nach einem der Ansprüche 1 bis 6, wobei die Kapselwand aufgebaut ist aus
30
30 bis 100 Gew.-% eines oder mehrerer C_1 - C_{24} -Alkylester der Acryl- und/oder Methacrylsäure (Monomere I),
0 bis 80 Gew.-% eines bi- oder polyfunktionellen Monomers (Monomere II),
welches in Wasser nicht löslich oder schwer löslich ist und
0 bis 40 Gew.-% sonstige Monomere (Monomer III)
35
jeweils bezogen auf das Gesamtgewicht der Monomere.
- 40
8. Formkörper nach einem der Ansprüche 1 bis 7, wobei die Mikrokapseln durch Erwärmen einer Öl-in-Wasser-Emulsion, in der die Monomere, ein Radikalstarter und die Latentwärmespeichermaterialien als disperse Phase vorliegen, erhältlich sind.

20

9. Formkörper nach einem der Ansprüche 1 bis 8, erhältlich, indem man die lignocellulosehaltigen Materialien mit einer Bindemittelzusammensetzung vermischt und diese Mischung thermisch härtet, wobei die Bindemittelzusammensetzung
- 5 40 – 95 Gew.-% Leimharz, gerechnet als Feststoff,
5 – 40 Gew.-% Mikrokapseln mit einem Polymer als Kapselwand und einem Kapselkern bestehend überwiegend aus Latentwärmespeichermaterialien und
10 0 – 20 Gew.-% Wasser
enthält.
10. Verfahren zur Herstellung von Formkörpern gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man die lignocellulosehaltigen Materialien zusammen mit
- 15 den Mikrokapseln trocknet und anschließend mit dem Leimharz thermisch härtet.
11. Verfahren zur Herstellung von Formkörpern gemäß Anspruch 9 dadurch gekennzeichnet, dass man die lignocellulosehaltigen Materialien mit einer Bindemittelzusammensetzung vermischt und diese Mischung thermisch härtet, wobei
- 20 die Bindemittelzusammensetzung
- 40 – 95 Gew.-% Leimharz, gerechnet als Feststoff,
5 – 40 Gew.-% Mikrokapseln mit einem Polymer als Kapselwand und einem
- 25 Kapselkern bestehend überwiegend aus Latentwärmespeichermaterialien und
0 – 20 Gew.-% Wasser
enthält.
- 30 12. Verfahren nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass man Holz- und/oder Naturfasern, Holzspäne und/oder -schnitzel im Gemisch mit der Bindemittelzusammensetzung thermisch härtet.
13. Bindemittelzusammensetzung enthaltend
- 35 40 – 95 Gew.-% Leimharz, gerechnet als Feststoff,
5 – 40 Gew.-% Mikrokapseln mit einem Polymer als Kapselwand und einem Kapselkern bestehend überwiegend aus Latentwärmespeichermaterialien und
- 40 0 – 20 Gew.-% Wasser.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP2005/005522

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 F28D20/02

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)
IPC 7 E04C F28D B27N

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	DE 39 33 279 C (MAYER) 19 July 1990 (1990-07-19)	1-8, 10
A	column 1, line 8 - line 15 column 2, line 6 - line 11 column 3, line 5 - line 10; claims 1,5	9-13
Y	DE 101 39 171 A (BASF AG) 27 February 2003 (2003-02-27)	1-8, 10
A	paragraphs '0013!', '0020!', '0036!', '0061!' - '0064!'	11
A	DE 31 32 468 A (PATENTES Y NOVEDADES S.A.) 6 May 1982 (1982-05-06) page 8, line 4 - page 9, line 15; claims 1,2,4	9-12
A,P	DE 103 38 327 B (HERAKLITH AG) 27 January 2005 (2005-01-27) the whole document	1,9-11

Further documents are listed in the continuation of box C. Patent family members are listed in 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 August 2005	Date of mailing of the international search report 08/09/2005
---	--

Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer Mysliwetz, W
--	--

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP2005/005522

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 3933279	C	19-07-1990	DE 3933279 C1	19-07-1990
			CS 9004792 A3	13-05-1992
			DE 4020969 C1	18-07-1991
			WO 9105020 A1	18-04-1991
			IE 903558 A1	10-04-1991
			PL 287174 A1	23-09-1991
DE 10139171	A	27-02-2003	DE 10139171 A1	27-02-2003
			WO 03016650 A1	27-02-2003
			EP 1421243 A1	26-05-2004
			JP 2005503500 T	03-02-2005
			US 2004234738 A1	25-11-2004
DE 3132468	A	06-05-1982	ES 8104064 A1	01-07-1981
			AR 225361 A1	15-03-1982
			AT 374517 B	10-05-1984
			AT 330181 A	15-09-1983
			CA 1190372 A1	16-07-1985
			DE 3132468 A1	06-05-1982
			MX 158012 A	29-12-1988
			NO 812760 A ,B,	19-02-1982
			SE 442101 B	02-12-1985
			SE 8104755 A	19-02-1982
DE 10338327	B	27-01-2005	DE 10338327 B3	27-01-2005
			EP 1508552 A2	23-02-2005

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2005/005522

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 F28D20/02

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

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchiertes Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 E04C F28D B27N

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.
Y	DE 39 33 279 C (MAYER) 19. Juli 1990 (1990-07-19)	1-8, 10
A	Spalte 1, Zeile 8 - Zeile 15 Spalte 2, Zeile 6 - Zeile 11 Spalte 3, Zeile 5 - Zeile 10; Ansprüche 1,5	9-13
Y	DE 101 39 171 A (BASF AG) 27. Februar 2003 (2003-02-27)	1-8, 10
A	Absätze '0013!', '0020!', '0036!', '0061! - '0064!	11
A	DE 31 32 468 A (PATENTES Y NOVEDADES S.A.) 6. Mai 1982 (1982-05-06) Seite 8, Zeile 4 - Seite 9, Zeile 15; Ansprüche 1,2,4	9-12
	----- -/--	

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

Z Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

18. August 2005

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

08/09/2005

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Mysliwetz, W

INTERNATIONALES RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP2005/005522

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A,P	DE 103 38 327 B (HERAKLITH AG) 27. Januar 2005 (2005-01-27) das ganze Dokument -----	1,9-11

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2005/005522

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
DE 3933279	C	19-07-1990	DE 3933279 C1	19-07-1990
			CS 9004792 A3	13-05-1992
			DE 4020969 C1	18-07-1991
			WO 9105020 A1	18-04-1991
			IE 903558 A1	10-04-1991
			PL 287174 A1	23-09-1991
			DE 10139171	A
			WO 03016650 A1	27-02-2003
			EP 1421243 A1	26-05-2004
			JP 2005503500 T	03-02-2005
			US 2004234738 A1	25-11-2004
DE 3132468	A	06-05-1982	ES 8104064 A1	01-07-1981
			AR 225361 A1	15-03-1982
			AT 374517 B	10-05-1984
			AT 330181 A	15-09-1983
			CA 1190372 A1	16-07-1985
			DE 3132468 A1	06-05-1982
			MX 158012 A	29-12-1988
			NO 812760 A ,B,	19-02-1982
			SE 442101 B	02-12-1985
			SE 8104755 A	19-02-1982
			DE 10338327	B
			EP 1508552 A2	23-02-2005