



(19)  
Bundesrepublik Deutschland  
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 600 18 265 T2 2006.01.12**

(12) **Übersetzung der europäischen Patentschrift**

(97) **EP 1 152 893 B1**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **600 18 265.7**

(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/IB00/01840**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **00 977 822.6**

(87) PCT-Veröffentlichungs-Nr.: **WO 01/043970**

(86) PCT-Anmeldetag: **08.12.2000**

(87) Veröffentlichungstag  
der PCT-Anmeldung: **21.06.2001**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **14.11.2001**

(97) Veröffentlichungstag  
der Patenterteilung beim EPA: **23.02.2005**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **12.01.2006**

(51) Int Cl.<sup>8</sup>: **B32B 27/32 (2006.01)**  
**B32B 27/12 (2006.01)**

(30) Unionspriorität:  
**465852 17.12.1999 US**

(73) Patentinhaber:  
**Basell Poliolefine Italia S.p.A., Mailand/Milano, IT**

(74) Vertreter:  
**derzeit kein Vertreter bestellt**

(84) Benannte Vertragsstaaten:  
**AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT,  
LI, LU, MC, NL, PT, SE, TR**

(72) Erfinder:  
**SHAH, Alam, Bakhtiar, Elkton, US**

(54) Bezeichnung: **GLASSVERSTÄRKTE, MEHRSCHICHTIGE FOLIEN AUS POLYOLEFINMATERIALIEN**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

**Beschreibung**

Technisches Gebiet

**[0001]** Die vorliegende Erfindung betrifft mehrschichtige glasverstärkte Flächengebilde aus Olefinpolymermaterialien.

## Hintergrund der Erfindung

**[0002]** Glasfasermatten sind bereits zur Verstärkung verschiedener Polyolefinmaterialien verwendet worden. So wird beispielsweise in der US-PS 3,437,550 die Herstellung eines Laminats mit mehreren alternierenden Lagen von Glasgewebe und Folie aus kristallinem Polypropylen beschrieben. Die Glasfasern werden mit dem Umsetzungsprodukt aus einem Silan und einem mit einer ungesättigten Säure oder einem ungesättigten Anhydrid modifizierten kristallinen Polypropylen beschichtet. In der US 3,489,639 wird eine laminierte Konstruktion mit einem Flächengebilde aus Polypropylen, einem Polypropylen- und Glasfasern enthaltenden textilen Flächengebilde und einer Schicht aus in einem festen Harz, wie einem Polyester- oder Epoxidharz, eingebetteten Glasfasern beschrieben. In der US 4,435,466 wird ein mehrschichtiges Abdichtungsflächengebilde für das Baugewerbe beschrieben, das einen zwischen zwei Schichten aus elastomerem Kunstharz eingebetteten Glastextilverstärkungseinsatz mit Additiven zur Verbesserung der Witterungsbeständigkeit und Füllstoffen zur Verbesserung der mechanischen Eigenschaften des Flächengebildes enthält, wobei die Außenschichten thermisch und/oder mit Hilfe von Lösungsmitteln oder Quellungsmitteln verschweißbar sind.

**[0003]** In der US 4,438,166 wird ein für Wärmeisolationsanwendungen geeignetes Konstruktionslaminat beschrieben, das eine Deckfolie, die haftend auf eine Hartschaumstoffschicht aufgebracht ist, in welcher eine Matte aus in Schichten angeordneten Langfasern eingebettet ist, wobei jede Schicht parallel zur Deckfolie angeordnet ist, und eine zweite Deckfolie auf der anderen Seite der Schaumstoffschicht enthält. Die Deckfolien bestehen aus einem flammwidrigen Material, wie Asbest, Glasfasern oder Metallen. Bei dem schaumstoffbildenden Material kann es sich beispielsweise um Polyurethan, Polypropylen oder Polyethylen handeln.

**[0004]** In der US 5,895,709 wird ein thermoformbares mehrschichtiges flächiges Produkt beschrieben, das durch derartiges Drucklaminiere von einem oder mehreren schmelzflüssigen Polymerfilmen, wie Polypropylen- oder Polyesterfilmen, und übereinander angeordneten Schichten aus Glasgewebematerial, daß das schmelzflüssige Polymer die Glasgewebeschicht imprägniert, hergestellt wird. Die Kernstruktur kann beidseitig mit einer Schicht aus reinem Polymer, d.h. einer Schicht ohne verstärkenden oder nicht verstärkenden Füllstoff, laminiert werden.

**[0005]** Es besteht jedoch nach wie vor Bedarf an flächigen Polymermaterialien mit hohem Biegemodul sowie einer ästhetisch ansprechenden Außenfläche, wie einer Hochglanzschicht oder einer geprägten oder strukturierten Schicht.

## Kurze Darstellung der Erfindung

**[0006]** Das erfindungsgemäße mehrschichtige Flächengebilde enthält:

(1) mindestens eine Außenschicht, enthaltend ein Propylenpolymermaterial aus der Gruppe bestehend aus:

(a) einem Propylenhomopolymer oder einem Copolymer von Propylen und Ethylen oder einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Ethylen oder einpolymerisiertem alpha-Olefin von höchstens 20% aufweist, und gegebenenfalls etwa 0,15 bis etwa 0,70% eines Nukleierungsmittels,

(b) einem Pfropfcopolymer mit einer Hauptkette aus einem Propylenhomopolymermaterial, auf das polymerisierte Monomere aus der Gruppe bestehend aus (i) mindestens einem Acrylmonomer, (ii) mindestens einem styrolischen Monomer und (iii) Mischungen von (i) und (ii) aufgepfropft sind, und gegebenenfalls etwa 0,5 bis etwa 1,5% eines Nukleierungsmittels, und

(c) einer Olefinpolymerzusammensetzung, enthaltend:

(i) etwa 10 bis etwa 60 Gewichtsteile eines kristallinen Propylenhomopolymers mit einem isotaktischen Index von mehr als 80 oder eines kristallinen Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend aus (1) Propylen und Ethylen, (2) Propylen, Ethylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin und (3) Propylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Propylen von mehr als 85 Gew.-% und einen isotaktischen Index von mehr als 85 aufweist;

(ii) etwa 5 bis etwa 25 Gewichtsteile eines Copolymers von Ethylen und Propylen oder einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-al-

pha-Olefin, das bei Umgebungstemperatur in Xylol unlöslich ist; und  
 (iii) etwa 30 bis etwa 70 Gewichtsteile eines elastomeren Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend aus (1) Ethylen und Propylen, (2) Ethylen, Propylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin und (3) Ethylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer gegebenenfalls etwa 0,5 bis etwa 10 Gew.-% eines einpolymerisierten Diens und weniger als 70 Gew.-% einpolymerisiertes Ethylen enthält, bei Umgebungstemperatur in Xylol löslich ist und eine bei 135°C in Decahydronaphthalin gemessene intrinsische Viskosität von etwa 1,5 bis etwa 4,0 dl/g aufweist,

wobei die Gesamtmenge von (ii) und (iii), bezogen auf die gesamte Olefinpolymerzusammensetzung, etwa 50 bis etwa 90% beträgt, das Gewichtsverhältnis (ii)/(iii) weniger als 0,4 beträgt und die Zusammensetzung durch Polymerisation in mindestens zwei Stufen erhältlich ist und einen Biegemodul von weniger als 150 MPa aufweist;

(2) mindestens eine Schicht mit alternierenden Schichten aus (a) einem Propylenpolymermaterial aus der Gruppe bestehend aus (i) einem Propylenhomopolymer und (ii) einem Copolymer von Propylen und Ethylen oder einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Ethylen oder einpolymerisiertem alpha-Olefin von höchstens 20% aufweist und die Schmelzflußrate des Propylenpolymermaterials in Schicht (2) höher ist als die Schmelzflußrate des Propylenpolymermaterials in Schicht (1), und (b) Glasfasermatten mit einem Flächengewicht von etwa 0,5 bis etwa 4,5 oz/ft<sup>2</sup>, wobei das Propylenpolymermaterial die oberste und unterste Schicht bildet,

wobei Schicht (1) eine Dicke von etwa 0,001 Zoll bis etwa 0,25 Zoll aufweist.

**[0007]** Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung eines mehrschichtigen Flächengebildes geht man so vor, daß man:

(1) ein Flächengebilde, enthaltend ein Propylenpolymermaterial aus der Gruppe bestehend aus:

(a) einem Propylenhomopolymer oder einem Copolymer von Propylen und Ethylen oder einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Ethylen oder einpolymerisiertem alpha-Olefin von höchstens 20% aufweist, und gegebenenfalls etwa 0,15 bis etwa 0,70 eines Nukleierungsmittels,

(b) einem Pfropfcopolymer mit einer Hauptkette aus einem Propylenpolymermaterial, auf das polymerisierte Monomere aus der Gruppe bestehend aus (i) mindestens einem Acrylmonomer, (ii) mindestens einem styrolischen Monomer und (iii) Mischungen von (i) und (ii) aufgepfropft sind, und gegebenenfalls etwa 0,5 bis etwa 1,5% eines Nukleierungsmittels,

(c) einer Olefinpolymerzusammensetzung, enthaltend:

(i) etwa 10 bis etwa 60 Gewichtsteile eines kristallinen Propylenhomopolymers mit einem isotaktischen Index von mehr als 80 oder eines kristallinen Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend aus (1) Propylen und Ethylen, (2) Propylen, Ethylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin und (3) Propylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Propylen von mehr als 85 Gew.-% und einen isotaktischen Index von mehr als 85 aufweist;

(ii) etwa 5 bis etwa 25 Gewichtsteile eines Copolymers von Ethylen und Propylen oder einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, das bei Umgebungstemperatur in Xylol unlöslich ist; und

(iii) etwa 30 bis etwa 70 Gewichtsteile eines elastomeren Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend aus (1) Ethylen und Propylen, (2) Ethylen, Propylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin und (3) Ethylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer gegebenenfalls etwa 0,5 bis etwa 10 Gew.-% eines einpolymerisierten Diens und weniger als 70 Gew.-% einpolymerisiertes Ethylen enthält, bei Umgebungstemperatur in Xylol löslich ist und eine bei 135°C in Decahydronaphthalin gemessene intrinsische Viskosität von etwa 1,5 bis etwa 4,0 dl/g aufweist,

wobei die Gesamtmenge von (ii) und (iii), bezogen auf die gesamte Olefinpolymerzusammensetzung, etwa 50 bis etwa 90% beträgt, das Gewichtsverhältnis (ii)/(iii) weniger als 0,4 beträgt und die Zusammensetzung durch Polymerisation in mindestens zwei Stufen erhältlich ist und einen Biegemodul von weniger als 150 MPa aufweist;

extrudiert, wobei das Flächengebilde aus Propylenpolymermaterial eine Dicke von etwa 0,001 Zoll bis etwa 0,25 Zoll aufweist,

(2) durch Auflegen von alternierenden Schichten aus (a) einem Flächengebilde aus einem Propylenpolymermaterial aus der Gruppe bestehend aus (i) einem Propylenhomopolymer und (ii) einem Copolymer von Propylen und Ethylen oder einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Ethylen oder einpolymerisiertem alpha-Olefin von höchstens 20% aufweist und die Schmelzflußrate des Propylenpolymermaterials in Schicht (2) höher ist als die Schmelzflußrate des Propylenpolymermaterials in Schicht (1) und das Flächengebilde eine Dicke von etwa 0,01 bis etwa 0,1 Zoll aufweist, und (b) auf eine Temperatur von etwa 140°C bis etwa 200°C vorerhitzten Glasfasermatten mit einem Flächengewicht von etwa 0,5 bis etwa 4,5 oz/ft<sup>2</sup> bildet, wobei das Flächengebilde aus Polypropylenmaterial die oberste und

unterste Schicht bildet, Zusammenpressen der Schichten bei einem Druck von mindestens 300 psi und anschließendes Abkühlen unter Aufrechterhaltung dieses Drucks ein Flächengebilde herstellt und (3) die in den Schritten (1) und (2) hergestellten Flächengebilde verbindet, indem man beiden Flächengebilden bis zu einer zur Erweichung der zu verbindenden Oberflächen ausreichenden Temperatur Wärme zuführt und gleichzeitig auf das in Schritt (1) hergestellte Flächengebilde Druck ausübt.

**[0008]** Die erfindungsgemäßen mehrschichtigen Flächengebilde haben eine ästhetisch ansprechende Außenfläche, einen hohen Biegemodul und ein geringes Gewicht.

**[0009]** Eine weitere Ausführungsform der vorliegenden Erfindung sind Verbundmaterialien, enthaltend ein den zentralen Kern bildendes Material, wie einen Polyolefinschaumstoff oder ein Kunstharzwabenmaterial, das zwischen zwei der oben beschriebenen mehrschichtigen Flächengebilde sandwichartig angeordnet ist.

#### Nähere Beschreibung der Erfindung

**[0010]** Bei dem in der Außenschicht (1) des erfindungsgemäßen mehrschichtigen Flächengebildes verwendeten Propylenpolymermaterial kann es sich um ein Propylenhomopolymer oder ein Copolymer von Propylen und Ethylen oder einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Ethylen oder einpolymerisiertem alpha-Olefin von höchstens 20% aufweist, handeln. Der Ethylengehalt beträgt in der Regel etwa 1 bis etwa 10 und vorzugsweise etwa 1 bis etwa 5%. Der alpha-Olefin-Gehalt beträgt vorzugsweise weniger als 16%. Das bevorzugte alpha-Olefin ist Buten-1.

**[0011]** Bei dem in der Außenschicht (1) des erfindungsgemäßen mehrschichtigen Flächengebildes verwendeten Propylenpolymermaterial kann es sich auch um ein Pfcopolymer mit einer Hauptkette aus einem Propylenpolymermaterial, auf das polymerisierte Monomere aus der Gruppe bestehend aus (i) mindestens einem Acrylmonomer, (ii) mindestens einem styrolischen Monomer und (iii) Mischungen von (i) und (ii) aufgepfropft sind, handeln. Acrylmonomere sind bevorzugt.

**[0012]** Bei dem als Hauptkette des Pfcopolymers in dem erfindungsgemäßen Verbundmaterial verwendeten Propylenpolymermaterial kann es sich um:

- (1) ein Homopolymer von Propylen mit einem isotaktischen Index von mehr als 80 und vorzugsweise etwa 85 bis etwa 99;
- (2) ein Copolymer von Propylen und einem Olefin aus der Gruppe bestehend aus Ethylen und C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>-alpha-Olefinen, mit der Maßgabe, daß für den Fall, daß es sich bei dem Olefin um Ethylen handelt, der maximale Gehalt an einpolymerisiertem Ethylen etwa 10 Gew.-% und vorzugsweise etwa 4 Gew.-% beträgt, und für den Fall, daß es sich bei dem Olefin um ein C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>-alpha-Olefin handelt, der maximale einpolymerisierte Gehalt davon etwa 20 Gew.-% und vorzugsweise etwa 16 Gew.-% beträgt, wobei das Copolymer einen isotaktischen Index von mehr als 85 aufweist;
- (3) ein Terpolymer von Propylen und zwei Olefinen aus der Gruppe bestehend aus Ethylen und C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefinen, mit der Maßgabe, daß der maximale Gehalt an einpolymerisiertem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin 20 Gew.-% und vorzugsweise etwa 16 Gew.-% beträgt und für den Fall, daß es sich bei einem der Olefine um Ethylen handelt, der maximale Gehalt an einpolymerisiertem Ethylen 5 Gew.-% und vorzugsweise etwa 4 Gew.-% beträgt, wobei das Terpolymer einen isotaktischen Index von mehr als 85 aufweist;
- (4) eine Olefinpolymerzusammensetzung, enthaltend:
  - (a) etwa 10 bis etwa 60 Gew.-% und vorzugsweise etwa 15 bis etwa 55 Gew.-% eines Propylenhomopolymers mit einem isotaktischen Index von mehr als 80 und vorzugsweise etwa 85 bis etwa 98 oder eines Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend aus (i) Propylen und Ethylen, (ii) Propylen, Ethylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin und (iii) Propylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Propylen von mehr als 85 Gew.-% und vorzugsweise etwa 90 bis etwa 99 Gew.-% und einen isotaktischen Index von mehr als 85 aufweist;
  - (b) etwa 5 bis etwa 25 Gew.-% und vorzugsweise etwa 5 bis etwa 20 Gew.-% eines Copolymers von Ethylen und Propylen oder einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, das bei Umgebungstemperatur in Xylol unlöslich ist; und
  - (c) etwa 30 bis etwa 70 Gew.-% und vorzugsweise etwa 40 bis etwa 65 Gew.-% eines elastomeren Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend aus (i) Ethylen und Propylen, (ii) Ethylen, Propylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin und (iii) Ethylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer gegebenenfalls etwa 0,5 bis etwa 10 Gew.-% eines einpolymerisierten Diens und weniger als 70 Gew.-%, vorzugsweise etwa 10 bis etwa 60 Gew.-% und ganz besonders bevorzugt etwa 12 bis etwa 55 Gew.-% einpolymerisiertes Ethylen enthält, bei Umgebungstemperatur in Xylol löslich ist und eine bei 135°C in Decahydronaphthalin gemessene intrinsische Viskosität von etwa 1,5 bis etwa 4,0 dl/g aufweist, wobei die Gesamtmenge von (b) und (c), bezogen auf die gesamte Olefinpolymerzusammensetzung, etwa

50 bis etwa 90% beträgt, das Gewichtsverhältnis (b)/(c) weniger als 0,4 und vorzugsweise 0,1 bis 0,3 beträgt und die Zusammensetzung durch Polymerisation in mindestens zwei Stufen erhältlich ist und einen Biegemodul von weniger als 150 MPa aufweist; oder

(5) eine thermoplastische Olefinzusammensetzung, enthaltend:

(a) etwa 10 bis etwa 60% und vorzugsweise etwa 20 bis etwa 50% eines Propylenhomopolymers mit einem isotaktischen Index von mehr als 80 oder eines Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend aus (i) Ethylen und Propylen, (ii) Ethylen, Propylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin und (iii) Ethylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Propylen von mehr als 85% und einen isotaktischen Index von mehr als 85 aufweist;

(b) etwa 20 bis etwa 60% und vorzugsweise etwa 30 bis etwa 50% eines amorphen Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend aus (i) Ethylen und Propylen, (ii) Ethylen, Propylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin und (iii) Ethylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer gegebenenfalls etwa 0,5 bis etwa 10% eines einpolymerisierten Diens und weniger als 70% einpolymerisiertes Ethylen enthält und bei Umgebungstemperatur in Xylol löslich ist; und

(c) etwa 3 bis etwa 40% und vorzugsweise etwa 10 bis etwa 20% eines Copolymers von Ethylen und Propylen oder einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, das bei Umgebungstemperatur in Xylol unlöslich ist,

wobei das thermoplastische Olefin einen Biegemodul von mehr als 150, aber weniger als 1200 MPa, vorzugsweise von etwa 200 bis etwa 1100 MPa und ganz besonders bevorzugt von etwa 200 bis etwa 1000 MPa aufweist;  
handeln.

**[0013]** Raumtemperatur ist etwa 25°C.

**[0014]** Beispiele für die C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefine, die bei der Herstellung von (4) und (5) verwendet werden können, sind Buten-1, Penten-1, Hexen-1, 4-Methyl-1-penten und Octen-1.

**[0015]** Sofern das Dien vorhanden ist, handelt es sich dabei in der Regel um ein Butadien, 1,4-Hexadien, 1,5-Hexadien oder Ethylidennorboren.

**[0016]** Die Propylenpolymermaterialien (4) und (5) sind durch Polymerisation in mindestens zwei Stufen erhältlich, wobei man in der ersten Stufe das Propylen; Propylen und Ethylen; Propylen und ein  $\alpha$ -Olefin oder Propylen, Ethylen und ein  $\alpha$ -Olefin zu Komponente (a) von (4) oder (5) polymerisiert und in den folgenden Stufen die Mischungen von Ethylen und Propylen, Ethylen und dem  $\alpha$ -Olefin oder Ethylen, Propylen und dem  $\alpha$ -Olefin und gegebenenfalls einem Dien in Gegenwart von (a) zu den Komponenten (b) und (c) von (4) oder (5) polymerisiert.

**[0017]** Die Polymerisation kann in der Flüssigphase, Gasphase oder Flüssig/Gas-Phase unter Verwendung separater Reaktoren jeweils diskontinuierlich oder kontinuierlich durchgeführt werden. So kann man beispielsweise die Polymerisation der Komponente (a) unter Verwendung von flüssigem Propylen als Verdünnungsmittel und ohne Zwischenstufen außer dem teilweisen Ablassen des Propylens und die Polymerisation der Komponenten (b) und (c) in der Gasphase durchführen. Bevorzugt arbeitet man vollständig in der Gasphase.

**[0018]** Die Herstellung des Propylenpolymermaterials (4) wird in den US-Patentschriften 5,212,246 und 5,409,992, auf die hiermit ausdrücklich Bezug genommen wird, näher beschrieben. Die Herstellung des Propylenpolymermaterials (5) wird in den US-Patentschriften 5,302,454 und 5,409,992, auf die hiermit ausdrücklich Bezug genommen wird, näher beschrieben.

**[0019]** Als Propylenpolymer-Hauptkettenmaterial dient vorzugsweise Propylenhomopolymer.

**[0020]** Zu den Acrylmonomeren, die auf die Hauptkette von Propylenpolymermaterial aufgepfropft werden können, gehören beispielsweise Acrylsäure, Acrylatester, wie Methyl-, Ethyl-, Hydroxyethyl-, 2-Ethylhexyl- und Butylacrylatester, Methacrylsäure und Methacrylatester, wie Methyl-, Ethyl-, Butyl-, Benzyl-, Phenylethyl-, Phenoxyethyl-, Epoxypropyl- und Hydroxypropylmethacrylatester, und Mischungen davon.

**[0021]** Zu den styrolischen Monomeren, die auf die Hauptkette von Propylenpolymermaterial aufgepfropft werden können, gehören Styrol und Alkyl- oder Alkoxy-ringsubstituierte Styrole mit linearer oder verzweigter Alkyl- oder Alkoxygruppe mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen und Mischungen davon.

**[0022]** Bei Verwendung einer Mischung von Acrylmonomeren und styrolischen Monomeren kann das Verhält-

nis von Acrylmonomeren zu styrolischen Monomeren etwa 95/5 bis etwa 5/95 betragen.

**[0023]** Die Gesamtmenge an einpolymerisierten Monomeren beträgt etwa 10 bis etwa 120 Teile pro hundert Teile des Propylenpolymermaterials und vorzugsweise etwa 30 bis etwa 95 pph.

**[0024]** Bei der Propfpolymerisation polymerisieren die Monomere auch unter Bildung einer bestimmten Menge von freiem oder ungepfropftem Polymer. Morphologisch bildet das Propylenpolymermaterial im Pfpfropfcopolymer die kontinuierliche Phase oder Matrixphase, und das polymerisierte Monomer – sowohl gepfropft als auch ungepfropft – eine dispergierte Phase.

**[0025]** Das Pfpfropfcopolymer kann nach verschiedenen Verfahren hergestellt werden. Eines dieser Verfahren beinhaltet die Bildung aktiver Pfpfropfstellen auf dem Propylenpolymermaterial durch Behandlung mit einem Peroxid oder einer anderen chemischen Verbindung, bei der es sich um einen radikalischen Polymerisationsinitiator handelt, oder durch Bestrahlung mit hochenergetischer ionisierender Strahlung. Die infolge der chemischen Behandlung oder Bestrahlung im Polymer erzeugten Radikale bilden aktive Pfpfropfstellen auf dem Polymer und initiieren die Polymerisation der Monomere an diesen Stellen. Bevorzugt sind nach peroxidinitiierten Pfpfropfverfahren hergestellte Pfpfropfcopolymere.

**[0026]** Die Herstellung von Pfpfropfcopolymeren durch Kontaktieren des Polypropylens mit einem radikalischen Polymerisationsinitiator wie einem organischen Peroxid oder einem Vinylmonomer wird in US-Patentschrift 5,140,074, auf die hiermit ausdrücklich Bezug genommen wird, ausführlicher beschrieben. Die Herstellung von Pfpfropfcopolymeren durch Bestrahlung eines Olefinpolymers und anschließender Behandlung mit einem Vinylmonomer wird in US-Patentschrift 5,411,994, auf die hiermit ausdrücklich Bezug genommen wird, ausführlicher beschrieben.

**[0027]** Wenn es sich bei dem Propylenpolymermaterial in der Schicht (1) um ein Pfpfropfcopolymer handelt, kann die Zusammensetzung außerdem auch noch etwa 2 bis etwa 30% und vorzugsweise etwa 5 bis etwa 30%, bezogen auf das Gesamtgewicht der Zusammensetzung, einer oder mehrerer Kautschukkomponenten und/oder etwa 15 bis etwa 50% und vorzugsweise etwa 40 bis etwa 50%, bezogen auf das Gesamtgewicht der Zusammensetzung, eines eine breite Molekulargewichtsverteilung aufweisenden Propylenpolymermaterials enthalten.

**[0028]** Die Kautschukkomponente stammt aus der Gruppe bestehend aus (i) einem Olefincopolymerkautschuk, (ii) einem Blockcopolymer aus monoalkenylaromatischem Kohlenwasserstoff und konjugiertem Dien und (iii) einem Kern-Schale-Kautschuk. Alle diese Kautschukkomponenten können Säure- oder Anhydridfunktionalitäten aufweisen oder von diesen funktionellen Gruppen frei sein. Die bevorzugten Kautschukkomponenten sind (i) oder (ii), entweder alleine oder miteinander kombiniert.

**[0029]** Beispiele für geeignete Olefincopolymerkautschuke sind u.a. gesättigte Olefincopolymerkautschuke, wie Ethylen/Propylen-Monomer-Kautschuke (EPM), Ethylen/Octen-1- und Ethylen/Buten-1-Kautschuke, und ungesättigte Olefincopolymerkautschuke, wie Ethylen/Propylen/Dien-Monomer-Kautschuke (EPDM). Die bevorzugten Olefincopolymerkautschuke sind Ethylen/Propylen-, Ethylen/Buten-1- und Ethylen/Octen-1-Copolymere.

**[0030]** Bei dem Blockcopolymer aus monoalkenylaromatischem Kohlenwasserstoff und konjugiertem Dien kann es sich um ein thermoplastisches Elastomer mit A-B-Struktur (bzw. Diblockstruktur), linearer A-B-A-Struktur (oder Triblockstruktur), radialer (A-B)<sub>n</sub>-Struktur mit n = 3–20% oder einer Kombination dieser Strukturtypen handeln, wobei jeder Block A für einen Polymerblock aus monoalkenylaromatischem Kohlenwasserstoff und jeder Block B für einen ungesättigten Kautschukblock steht.

**[0031]** Copolymere dieser Art sind in verschiedenen Qualitäten im Handel erhältlich. Die Qualitäten unterscheiden sich hinsichtlich Struktur, Molekulargewicht der Mittel- und Endblöcke und Verhältnis von monoalkenylaromatischem Kohlenwasserstoff zu Kautschuk. Das Blockcopolymer kann auch hydriert sein. Typische monoalkenylaromatische Kohlenwasserstoffmonomere sind Styrol, ringsubstituierte C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>-Alkylstyrole mit linearer oder verzweigter Alkylgruppe und Vinyltoluol. Bevorzugt ist Styrol. Beispiele für geeignete konjugierte Diene sind u.a. Butadien und Isopren. Bevorzugte Blockcopolymere sind hydrierte Styrol/Ethylen-Buten/Styrol-Triblockcopolymere.

**[0032]** Das gewichtsmittlere Molekulargewicht (M<sub>w</sub>) der Blockcopolymere liegt im allgemeinen im Bereich von etwa 45.000 bis etwa 260.000 g/mol, wobei mittlere Molekulargewichte im Bereich von etwa 50.000 bis etwa

125.000 g/mol bevorzugt sind, da sie Zusammensetzungen mit der besten Balance von Schlagzähigkeit und Steifigkeit ergeben. Außerdem kann man zwar Blockcopolymere mit ungesättigten sowie gesättigten Kautschukblöcken verwenden, jedoch sind Copolymere mit gesättigten Kautschukblöcken bevorzugt, und zwar ebenfalls aufgrund der Balance von Schlagzähigkeit und Steifigkeit der diese Copolymere enthaltenden Zusammensetzungen. Das Gewichtsverhältnis von monoalkenylaromatischem Kohlenwasserstoff zu Kautschuk aus konjugiertem Dien im Blockcopolymer liegt im Bereich von etwa 5/95 bis etwa 50/50, vorzugsweise von etwa 10/90 bis etwa 40/60.

**[0033]** Die Kern-Schale-Kautschuk-Komponenten enthalten kleine Teilchen einer Phase aus vernetztem Kautschuk, die von einer verträglichkeitsvermittelnden Schale, in der Regel einem glasartigen Polymer oder Copolymer, umgeben ist. Bei dem Kern handelt es sich in der Regel um einen Dienkautschuk, wie Butadien- oder Isoprenkautschuk, oder ein Polyacrylat. Bei der Schale handelt es sich in der Regel um ein Polymer von zwei oder mehr Monomeren, die unter Styrol, Methylmethacrylat und Acrylnitril ausgewählt sind. Besonders bevorzugte Kern-Schale-Kautschuke weisen einen Polyacrylat-Kern auf.

**[0034]** Beispiele für geeignete Schlagzähigkeitsverbesserer sind u.a. Ethylen/Octen-1-Copolymere Engage 8150 oder 8200, die im Handel von DuPont-Dow Elastomers erhältlich sind; Ethylen/Propylen-Copolymer EPM 306P, das im Handel von der Polysar Rubber Division von Miles, Incorporated, erhältlich ist; Styrol/Ethylen-Propylen/Styrol-Triblockcopolymer Kraton RP6912 und mit Maleinsäureanhydrid modifizierter Styrol/Ethylen-Buten-1/Styrol-Triblockcopolymerkautschuk Kraton FG1901X, die im Handel von Shell Chemical Company erhältlich sind.

**[0035]** Eine andere fakultative Komponente ist ein eine breite Molekulargewichtsverteilung aufweisendes Propylenpolymermaterial (BMWPP) mit einem  $M_w/M_n$ -Wert von etwa 5 bis etwa 60 und vorzugsweise etwa 5 bis etwa 40; einer Schmelzflußrate von etwa 0,5 bis etwa 50 g/10 min und vorzugsweise etwa 1 bis etwa 30 g/10 min, und einem bei 25°C in Xylol unlöslichen Anteil größer gleich 94%, vorzugsweise größer gleich 96% und ganz besonders bevorzugt größer gleich 98%. Bei dem Propylenpolymermaterial mit breiter Molekulargewichtsverteilung kann es sich um ein mit einem Ethylen/Propylen-Kautschuk schlagzäh gemachtes Propylenhomopolymer mit breiter Molekulargewichtsverteilung handeln.

**[0036]** Das BMWPP kann durch sequentielle Polymerisation in mindestens zwei Stufen in Gegenwart eines auf Magnesiumhalogenid in aktiver Form geträgerten Ziegler-Natta-Katalysators hergestellt werden. Die Polymerisation erfolgt in separaten und aufeinanderfolgenden Stufen, und in jeder Stufe findet die Polymerisation in Gegenwart des Polymers und des Katalysators aus der vorhergehenden Stufe statt.

**[0037]** Die Polymerisation kann diskontinuierlich oder kontinuierlich nach bekannten Methoden durchgeführt werden, wobei man in flüssiger Phase, gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten Verdünnungsmittels, in der Gasphase oder Flüssig/Gas-Phase arbeitet, vorzugsweise in der Gasphase. Die Herstellung des BMWPP wird in der US-PS 5,286,791, auf die hiermit ausdrücklich Bezug genommen wird, näher beschrieben.

**[0038]** Wenn es sich bei dem Propylenpolymermaterial in der Schicht (1) um ein Propylenhomopolymer oder -copolymer handelt, wird das Nukleierungsmittel, sofern vorhanden, in der Regel in einer Menge von etwa 0,15 bis etwa 0,70% und vorzugsweise etwa 0,2% bis etwa 0,4% verwendet. Wenn es sich bei dem Propylenpolymermaterial in der Schicht (1) um ein Pfropfcopolymer handelt, wird das Nukleierungsmittel, sofern vorhanden, in der Regel in einer Menge von etwa 0,5 bis etwa 1,5% und vorzugsweise etwa 0,7% bis etwa 1,3% verwendet. Beispiele für geeignete Nukleierungsmittel sind Bis(3,4-dimethylbenzyliden)sorbitol, Natriumbenzoat, Dibenzylidensorbitol, 1,2:2,4-Methyldibenzylidensorbitol; NA11, ein Natriumsalz einer Phosphorsäure, das im Handel von Ashai Denka erhältlich ist, und NC-4, Bis(P-ethylbenzyliden)sorbitol, das im Handel von Mitsui Chemicals erhältlich ist.

**[0039]** Bei dem Propylenpolymermaterial in der Schicht (1) kann es sich auch um eine Olefinpolymerzusammensetzung, enthaltend:

- (a) etwa 10 bis etwa 60 Gewichtsteile und vorzugsweise etwa 15 bis etwa 55 Teile eines kristallinen Propylenhomopolymers mit einem isotaktischen Index von mehr als 80 und vorzugsweise etwa 85 bis etwa 98 oder eines kristallinen Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend aus (i) Propylen und Ethylen, (ii) Propylen, Ethylen und einem  $C_4$ - $C_8$ -alpha-Olefin und (iii) Propylen und einem  $C_4$ - $C_8$ -alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Propylen von mehr als 85 Gew.-% und vorzugsweise etwa 90 bis etwa 99 Gew.-% und einen isotaktischen Index von mehr als 85 aufweist;
- (b) etwa 5 bis etwa 25 Gewichtsteile und vorzugsweise etwa 5 bis etwa 20 Teile eines Copolymers von Ethylen und Propylen oder einem  $C_4$ - $C_8$ -alpha-Olefin, das bei Umgebungstemperatur in Xylol unlöslich ist; und

(c) etwa 30 bis etwa 70 Gewichtsteile und vorzugsweise etwa 20 bis etwa 65 Teile eines elastomeren Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend, aus (i) Ethylen und Propylen, (ii) Ethylen, Propylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin und (iii) Ethylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer gegebenenfalls etwa 0,5 bis etwa 10 Gew.-% eines einpolymerisierten Diens und weniger als 70 Gew.-%, vorzugsweise etwa 10 bis etwa 60 Gew.-% und ganz besonders bevorzugt etwa 12 bis etwa 55 Gew.-% einpolymerisiertes Ethylen enthält, bei Umgebungstemperatur in Xylol löslich ist und eine bei 135°C in Decahydronaphthalin gemessene intrinsische Viskosität von etwa 1,5 bis etwa 4,0 dl/g aufweist,

wobei die Gesamtmenge von (b) und (c), bezogen auf die gesamte Olefinpolymerzusammensetzung, etwa 50 bis etwa 90% beträgt, das Gewichtsverhältnis (b)/(c) weniger als 0,4 und vorzugsweise 0,1 bis 0,3 beträgt und die Zusammensetzung durch Polymerisation in mindestens zwei Stufen erhältlich ist und einen Biegemodul von weniger als 150 MPa aufweist; handeln.

**[0040]** Die Gesamtmenge an einpolymerisiertem Ethylen in (c) beträgt vorzugsweise etwa 10 bis etwa 40 Gew.-%.

**[0041]** Beispiele für die C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefine, die bei der Herstellung von (c) verwendet werden können, sind Buten-1, Penten-1, Hexen-1, 4-Methyl-1-penten und Octen-1.

**[0042]** Sofern das Dien vorhanden ist, handelt es sich dabei in der Regel um ein Butadien, 1,4-Hexadien, 1,5-Hexadien oder Ethylidennorboren.

**[0043]** Raum- oder Umgebungstemperatur ist etwa 25°C.

**[0044]** Die Olefinpolymerzusammensetzung ist durch Polymerisation in mindestens zwei Stufen erhältlich, wobei man in der ersten Stufe das Propylen, Propylen und Ethylen oder  $\alpha$ -Olefin, oder Propylen, Ethylen und das  $\alpha$ -Olefin zu Komponente (a) polymerisiert und in den folgenden Stufen die Mischungen von Ethylen und Propylen oder dem  $\alpha$ -Olefin oder Ethylen, Propylen und dem  $\alpha$ -Olefin und gegebenenfalls einem Dien zu den Komponenten (b) und (c) polymerisiert.

**[0045]** Die Polymerisation kann in der Flüssigphase, Gasphase oder Flüssig/Gas-Phase unter Verwendung separater Reaktoren jeweils diskontinuierlich oder kontinuierlich durchgeführt werden. So kann man beispielsweise die Polymerisation der Komponente (a) unter Verwendung von flüssigem Propylen als Verdünnungsmittel und ohne Zwischenstufen außer dem teilweisen Ablassen des Propylens und die Polymerisation der Komponenten (b) und (c) in der Gasphase durchführen. Bevorzugt arbeitet man vollständig in der Gasphase.

**[0046]** Die Herstellung der Olefinpolymerzusammensetzung wird in den US-Patentschriften 5,212,246 und 5,409,992, auf die hiermit ausdrücklich Bezug genommen wird, näher beschrieben.

**[0047]** In der zur Herstellung von Schicht (1) des erfindungsgemäßen mehrschichtigen Flächengebildes verwendeten Zusammensetzung können auch noch andere Additive vorhanden sein, wie Pigmente, Metallplättchen, Slipmittel, Wachse, Öle, Antiblockmittel und Antioxidantien.

**[0048]** Die Dicke der Schicht (1) beträgt etwa 0,001 Zoll bis etwa 0,25 Zoll und vorzugsweise etwa 0,02 Zoll bis etwa 0,06 Zoll.

**[0049]** Die Schmelzflußrate (MFR) des Propylenpolymermaterials in der Schicht (1) beträgt in der Regel etwa 0,5 bis etwa 7 g/10 min und vorzugsweise weniger als 5 g/10 min, gemessen gemäß ASTM-Methode D-1238 bei 230°C und 2,16 kg.

**[0050]** Die Schicht (2) des erfindungsgemäßen mehrschichtigen Flächengebildes enthält alternierende Schichten aus einem Propylenpolymermaterial und Glasfasermatten, wobei das Propylenpolymermaterial die oberste und unterste Schicht bildet.

**[0051]** Das Propylenpolymermaterial stammt aus der Gruppe bestehend aus (i) einem Propylenhomopolymer und (ii) einem Copolymer von Propylen und Ethylen oder einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Ethylen oder einpolymerisiertem alpha-Olefin von höchstens 20% aufweist. Propylenhomopolymer ist bevorzugt. Die Schmelzflußrate des Propylenpolymermaterials in Schicht (2) ist höher als die Schmelzflußrate des Propylenpolymermaterials in Schicht (1).

**[0052]** Bei den Glasfasermatten kann es sich um ein- oder mehrschichtige Matten handeln. Die Fasern in den Matten sind nicht auf eine bestimmte Orientierung beschränkt. Das Flächengewicht der Matten liegt im Bereich von etwa 0,5 bis etwa 4,5 oz/ft<sup>2</sup> und vorzugsweise etwa 1,0 bis etwa 3, 5 oz/ft<sup>2</sup>.

**[0053]** In Schicht (2) kann auch ein Haftvermittler verwendet werden. Hierbei kann es sich beispielsweise um mit einer  $\alpha,\beta$ -ungesättigten Carbonsäure oder alicyclischen Carbonsäure und Derivaten davon, wie beispielsweise Acrylsäure, Methacrylsäure, Fumarsäure, Itaconsäure, endo-Cyclo[2.2.1]-5-hepten-2,3-carbonsäure und cis-4-Cyclohexen-1,2-carbonsäure und Anhydriden, Estern, Amiden und Imiden davon, modifiziertes Polypropylen handeln. Mit verschiedenen Mengen von Maleinsäureanhydrid oder Maleinsäure modifizierte Polypropylene sind bevorzugt und im Handel erhältlich, beispielsweise von Eastman Chemical Company und Aristech Chemical Corporation. Die modifizierten Polypropylene enthalten im allgemeinen etwa 0,5 bis etwa 10% Maleinsäure oder Maleinsäureanhydrid und vorzugsweise etwa 0,5 bis 5%, bezogen auf das Gesamtgewicht des modifizierten Polymers. Sofern vorhanden, wird der Haftvermittler in einer Menge von etwa 0,5 bis etwa 7% und vorzugsweise etwa 1 bis etwa 5%, bezogen auf das Gesamtgewicht des Polymers in Schicht (2), verwendet.

**[0054]** Zum Auflegen der Schicht (2) kann man eine beliebige Zahl von Flächengebilden aus Propylenpolymermaterial und Glasmatten verwenden, vorausgesetzt, daß immer ein Flächengebilde aus Propylenpolymermaterial die oberste und unterste Schicht bildet. Vorzugsweise liegen höchstens fünf Schichten aus Propylenpolymermaterial und drei Glasmattenschichten vor. Die Dicke der Schicht (2) hängt von der für das mehrschichtige Flächengebilde vorgesehenen Verwendung ab.

**[0055]** Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung eines mehrschichtigen Flächengebildes geht man so vor, daß man:

(1) ein Flächengebilde, enthaltend ein Propylenpolymermaterial aus der Gruppe bestehend aus:

(a) einem Propylenhomopolymer oder einem Copolymer von Propylen und Ethylen oder einem  $C_4$ - $C_8$ -alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Ethylen oder einpolymerisiertem alpha-Olefin von höchstens 20% aufweist, und gegebenenfalls etwa 0,15 bis etwa 0,70% und vorzugsweise etwa 0,2 bis etwa 0,4% eines Nukleierungsmittels,

(b) einem Pfropfcopolymer mit einer Hauptkette aus einem Propylenpolymermaterial, auf das polymerisierte Monomere aus der Gruppe bestehend aus (i) mindestens einem Acrylmonomer, (ii) mindestens einem styrolischen Monomer und (iii) Mischungen von (i) und (ii) aufgepfropft sind, und gegebenenfalls etwa 0,5 bis etwa 1,5% und vorzugsweise etwa 0,7 bis etwa 1,3% eines Nukleierungsmittels,

(c) einer Olefinpolymerzusammensetzung, enthaltend:

(i) etwa 10 bis etwa 60 Gewichtsteile und vorzugsweise etwa 15 bis etwa 55 Teile eines kristallinen Propylenhomopolymers mit einem isotaktischen Index von mehr als 80, vorzugsweise von etwa 85 bis etwa 98, oder eines kristallinen Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend aus (1) Propylen und Ethylen, (2) Propylen, Ethylen und einem  $C_4$ - $C_8$ -alpha-Olefin und (3) Propylen und einem  $C_4$ - $C_8$ -alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Propylen von mehr als 85 Gew.-% und vorzugsweise etwa 90 bis etwa 99% und einen isotaktischen Index von mehr als 85 aufweist;

(ii) etwa 5 bis etwa 25 Gewichtsteile und vorzugsweise etwa 5 bis etwa 20 Teile eines Copolymers von Ethylen und Propylen oder einem  $C_4$ - $C_8$ -alpha-Olefin, das bei Umgebungstemperatur in Xylol unlöslich ist; und

(iii) etwa 30 bis etwa 70 Gewichtsteile und vorzugsweise etwa 20 bis etwa 65 Teile eines elastomeren Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend aus (1) Ethylen und Propylen, (2) Ethylen, Propylen und einem  $C_9$ - $C_8$ -alpha-Olefin und (3) Ethylen und einem  $C_4$ - $C_8$ -alpha-Olefin, wobei das Copolymer gegebenenfalls etwa 0,5 bis etwa 10 Gew.-% eines einpolymerisierten Diens und weniger als 70 Gew.-%, vorzugsweise etwa 10 bis etwa 60% und ganz besonders bevorzugt etwa 12 bis etwa 55% einpolymerisiertes Ethylen enthält, bei Umgebungstemperatur in Xylol löslich ist und eine bei 135°C in Decahydronaphthalin gemessene intrinsische Viskosität von etwa 1,5 bis etwa 4,0 dl/g aufweist,

wobei die Gesamtmenge von (ii) und (iii), bezogen auf die gesamte Olefinpolymerzusammensetzung, etwa 50 bis etwa 90% beträgt, das Gewichtsverhältnis (ii)/(iii) weniger als 0,4 und vorzugsweise 0,1 bis 0,3 beträgt und die Zusammensetzung durch Polymerisation in mindestens zwei Stufen erhältlich ist und einen Biegemodul von weniger als 150 MPa aufweist;

extrudiert, wobei das Flächengebilde aus Propylenpolymermaterial eine Dicke von etwa 0,001 Zoll bis etwa 0,25 Zoll und vorzugsweise etwa 0,02 bis etwa 0,06 Zoll aufweist,

(2) durch Auflegen von alternierenden Schichten aus (a) einem Flächengebilde aus einem Propylenpolymermaterial aus der Gruppe bestehend aus (i) einem Propylenhomopolymer und (ii) einem Copolymer von Propylen und Ethylen oder einem  $C_4$ - $C_8$ -alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Ethylen oder einpolymerisiertem alpha-Olefin von höchstens 20% aufweist und die Schmelzflußrate des Propylenpolymermaterials in Schicht (2) höher ist als die Schmelzflußrate des Propylenpolymermate-

rials in Schicht (1) und das Flächengebilde eine Dicke von etwa 0,01 bis etwa 0,1 Zoll und vorzugsweise etwa 0,02 bis etwa 0,06 Zoll aufweist, und (b) auf eine Temperatur von etwa 140°C bis etwa 200°C und vorzugsweise etwa 160°C bis etwa 185°C vorerhitzten Glasfasermatten mit einem Flächengewicht von etwa 0,5 bis etwa 4,5 oz/ft<sup>2</sup> und vorzugsweise etwa 1,0 bis etwa 3,5 oz/ft<sup>2</sup> bildet, wobei das Flächengebilde aus Propylenpolymermaterial die oberste und unterste Schicht bildet, Zusammenpressen der Schichten bei einem Druck von mindestens 300 psi und vorzugsweise etwa 500 bis etwa 750 psi und anschließendes Abkühlen unter Aufrechterhaltung dieses Drucks ein Flächengebilde herstellt und (3) die in den Schritten (1) und (2) hergestellten Flächengebilde verbindet, indem man beiden Flächengebilden bis zu einer zur Erweichung der zu verbindenden Oberflächen ausreichenden Temperatur Wärme zuführt und gleichzeitig auf das in Schritt (1) hergestellte Flächengebilde Druck ausübt.

**[0056]** In Schritt (3) kann die Wärmezufuhr zu den Oberflächen der in den Schritten (1) und (2) hergestellten Flächengebilde beispielsweise unter Verwendung von überhitzter Luft aus einer Heißluftpistole, einer ähnlichen Technik, wie sie zum Heißverschweißen von zwei Schichten aus Kunststoff-Folienmaterial in der Bedachungs- und Geomembranindustrie angewandt wird, erfolgen. Die Druckausübung auf das gemäß Schritt (1) hergestellte Flächengebilde kann beispielsweise mit Hilfe einer Gummiwalze erfolgen. Der ausgeübte Druck hängt von der Gesamtdicke der Konstruktion und der Temperatur, auf die die beiden Flächengebilde vorerhitzt werden, ab. Für dickere Konstruktionen sind höhere Drücke erforderlich. Breite mehrschichtige Flächengebilde können kontinuierlich hergestellt werden, indem man die zu verbindenden Oberflächen in Öfen vorerhitzt und die Flächengebilde dann durch einen Laminierwalzenstapel mit kontinuierlicher Einspeisung führt.

**[0057]** Die erfindungsgemäßen mehrschichtigen Flächengebilde zeichnen sich durch eine Kombination aus einem Biegemodul von mindestens 1.000.000 psi (6879 MPa) und einer ästhetisch ansprechenden Außenfläche, wie einer Hochglanzschicht oder einer geprägten oder strukturierten Schicht, aus.

**[0058]** Die mehrschichtigen Flächengebilde werden in flacher flächiger Form für Anwendungen wie Karosserieteile für Freizeit- und Transportfahrzeuge, wie Lastwagen, Busse und Geländefahrzeuge; Seebauteile und Sanitärwaren, wie Wannen und Duschkabinen verwendet.

**[0059]** Eine andere Ausführungsform der vorliegenden Erfindung ist ein Verbundmaterial, enthaltend ein Kernmaterial, wie beispielsweise ein Kunstharzwabenmaterial oder eine Schicht aus Polyolefinschaumstoff niedriger Dichte, das zwischen zwei der oben beschriebenen mehrschichtigen Flächengebilde sandwichartig angeordnet ist.

**[0060]** Ein geeigneter Polyolefinschaumstoff niedriger Dichte hat eine Dichte von etwa 1 bis etwa 15 lb/ft<sup>2</sup> und eine Dicke von 1/8 Zoll bis etwa 4 Zoll und vorzugsweise > 1 Zoll bis 3 Zoll. Bei der Schicht aus Schaumstoff niedriger Dichte kann es sich um ein Flächengebilde oder eine Platte aus extrudiertem Schaumstoff handeln, oder die Schicht kann aus Schaumstoffkügelchen geformt sein. Die Schicht aus Schaumstoff niedriger Dichte kann eine einzige Schaumstoffdicke oder einige dünne Schichten, die miteinander verbunden sind, z.B. thermisch, wie mit Hilfe eines Heißmessers, oder mit Hilfe eines geeigneten Klebstoffs, wie beispielsweise niedermolekularer Polyolefine aus funktionalisierten ungesättigten Monomeren mit polaren Gruppen, wie einfach ungesättigten Carbonsäuren oder deren Anhydridderivaten, wie Maleinsäure oder Itaconsäure oder deren Anhydriden, oder unfunktionalisierten ungesättigten Monomeren, Schmelzklebstoffen oder Emulsionen auf Wasser- oder Lösungsmittelbasis, enthalten. Geeignete Verbindungsmittel sind beispielsweise hydrierte Kohlenwasserstoffharze, wie Regalrez-Klebrigmacher, die im Handel von Hercules Incorporated erhältlich sind, und Arkon-P-Klebrigmacher, die im Handel von Arakawa Chemical (USA) Incorporated erhältlich sind; 1023PL-Klebrigmacher aus amorphem Polypropylen, der von Eastman Chemical Company erhältlich ist, und überwiegend amorphe Ethylen/Propylen-Copolymere, die allgemein unter der Bezeichnung Ethylen/Propylen-Kautschuk (EPR) bekannt sind.

**[0061]** Die Schaumstoffschicht und die mehrschichtigen Flächengebilde werden separat hergestellt und dann verbunden, beispielsweise entweder thermisch oder mit Hilfe eines geeigneten Klebstoffs, wie den im vorhergehenden Absatz beschriebenen Klebstoffen.

**[0062]** Bei dem zur Herstellung des Schaumstoffs verwendeten Polyolefin handelt es sich vorzugsweise um ein eine hohe Schmelzfestigkeit aufweisendes Propylenpolymer mit Dehnverfestigungsdehnviskosität. Bei dem eine hohe Schmelzfestigkeit aufweisenden Propylenpolymer handelt es sich vorzugsweise um ein normalerweise festes, hochmolekulares, gelfreies, überwiegend isotaktisches, teilkristallines Propylenhomopolymer oder ein Copolymer von Propylen und Ethylen oder einem C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>-alpha-Olefin, mit der Maßgabe, daß für den Fall, daß es sich bei dem Olefin um Ethylen handelt, der maximale Gehalt an einpolymerisiertem Ethylen

5 Gew.-% und vorzugsweise etwa 4 Gew.-% beträgt, und für den Fall, daß es sich bei dem Olefin um ein C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>-alpha-Olefin handelt, der maximale einpolymerisierte Gehalt davon etwa 20 Gew.-% und vorzugsweise etwa 16 Gew.-% beträgt. Der Verzweigungsindex des Propylenhomopolymers und -copolymers beträgt weniger als 1, und beide weisen Dehnverfestigungsdehnviskosität auf.

**[0063]** Der Verzweigungsindex ist eine quantitative Angabe des Langkettenverzweigungsgrads. Nach bevorzugten Ausführungsformen beträgt der Verzweigungsindex des eine hohe Schmelzefestigkeit aufweisenden Propylenpolymers vorzugsweise weniger als etwa 0,9 und ganz besonders bevorzugt etwa 0,3 bis 0,5. Er ist definiert durch die Gleichung:

$$g' = \frac{[IV]_{Br}}{[IV]_{Lin}} M_w$$

in der g' für den Verzweigungsindex steht, [IV]<sub>Br</sub> für die intrinsische Viskosität des verzweigten Propylenpolymermaterials steht und [IV]<sub>Lin</sub> für die intrinsische Viskosität eines normalerweise festen, überwiegend isotaktischen, teilkristallinen, linearen Propylenpolymermaterials mit weitgehend dem gleichen gewichtsmittleren Molekulargewicht und – im Fall von Copolymeren – weitgehend dem gleichen relativen molekularen Anteil an Monomereinheiten steht.

**[0064]** Die intrinsische Viskosität, die auch unter der Bezeichnung Grenzviskositätszahl bekannt ist, ist in ihrem allgemeinsten Sinne ein Maß für die Fähigkeit eines Polymermoleküls, die Viskosität einer Lösung zu erhöhen. Diese hängt sowohl von der Größe als auch von der Gestalt des gelösten Polymermoleküls ab. Beim Vergleich eines nichtlinearen Polymers mit einem linearen Polymer mit weitgehend dem gleichen gewichtsmittleren Molekulargewicht ist die intrinsische Viskosität ein Anhaltspunkt für die Konfiguration des nichtlinearen Polymermoleküls. Das obige Verhältnis intrinsischer Viskositäten ist ein Maß für den Verzweigungsgrad des nichtlinearen Polymers. Ein Verfahren zur Bestimmung der intrinsischen Viskosität von Propylenpolymermaterialien wird von Elliot et al., J. App. Poly. Sci., 14, 2947–2963 (1970), beschrieben. Die Bestimmung der intrinsischen Viskosität erfolgt an einer Lösung des Polymers in Decahydronaphthalin bei 135°C.

**[0065]** Das gewichtsmittlere Molekulargewicht kann nach verschiedenen Methoden gemessen werden. Vorzugsweise verwendet man hier jedoch die Methode der Laserlicht-Kleinwinkelstreuungsphotometrie, die von McConnell in Am. Lab., Mai 1978, in dem Aufsatz mit dem Titel „Polymer Molecular Weights and Molecular Weight Distribution by Low-Angle Laser Light Scattering“ beschrieben wird.

**[0066]** Die Dehnviskosität ist die Dehnungsfestigkeit einer fluiden oder teilfluiden Substanz. Sie ist eine Schmelzeigenschaft eines thermoplastischen Materials, die mit einem die Spannung und die Dehnung (Verformung) eines Prüfkörpers in schmelzflüssigem Zustand bei Einwirkung einer Zugdehnung mit konstanter Geschwindigkeit messenden Instrument bestimmt werden kann. Ein derartiges Instrument wird von Munstedt, J. Rheology, 23 (4), 421–425 (1979), beschrieben und in **Fig. 1** gezeigt. Ein ähnlich konstruiertes handelsübliches Instrument ist das Dehnrheometer RER-9000 von Rheometrics. Schmelzflüssiges, hochmolekulares, lineares Propylenpolymermaterial hat eine Dehnviskosität, die im allgemeinen beim Dehnen oder Ausziehen mit konstanter Geschwindigkeit von einem relativen Fixpunkt aus über einen von der Dehnrate abhängigen Weg zunimmt und dann schnell abnimmt, bis sie auf Null geschrumpft ist, was als duktiler Versagen oder Versagen unter Halsbildung („necking failure“) bezeichnet wird. Dagegen weist ein schmelzflüssiges Propylenpolymermaterial mit weitgehend dem gleichen gewichtsmittleren Molekulargewicht und weitgehend der gleichen Prüftemperatur wie das entsprechende schmelzflüssige, hochmolekulare, lineare Propylenpolymermaterial eine Dehnviskosität auf, die beim Dehnen oder Ausziehen von einem relativen Fixpunkt aus mit weitgehend der gleichen Dehnrate im allgemeinen über einen längeren Weg zunimmt und durch Bruch versagt, was als sprödes oder elastisches Versagen bezeichnet wird. Diese Charakteristika deuten auf Dehnverfestigung hin. Je mehr Langkettenverzweigung das erfindungsgemäße Propylenpolymermaterial aufweist, desto größer ist die Neigung der Dehnviskosität, bei Annäherung des gedehnten Materials an den Versagenspunkt zuzunehmen. Diese letztere Tendenz ist am augenfälligsten, wenn der Verzweigungsindex unter etwa 0,8 liegt.

**[0067]** Die eine hohe Schmelzefestigkeit aufweisenden Polymere können durch Behandeln eines normalerweise festen, überwiegend kristallinen Propylenpolymers ohne Dehnverfestigungsdehnviskosität mit einem eine niedrige Zersetzungstemperatur aufweisenden Peroxid oder energiereicher ionisierender Strahlung unter weitgehendem Ausschluß von atmosphärischem Sauerstoff, beispielsweise in einer Umgebung, in der eine Konzentration an aktivem Sauerstoff von weniger als etwa 15 Vol.-% eingehalten wird, hergestellt werden. Dann wird das peroxidbehandelte oder bestrahlte Propylenpolymer zur weitgehend vollständigen Desaktivierung der in dem Propylenpolymer vorliegenden freien Radikale unter weitgehendem Ausschluß von atmosphä-

rischem Sauerstoff mit einem Radikalfänger behandelt oder erhitzt.

**[0068]** Die Herstellung der eine hohe Schmelzfestigkeit aufweisenden Propylenpolymere mit Dehnverfestigungsdehnviskosität wird in den US-Patentschriften 5,047,446 und 5,047,485, auf die hiermit ausdrücklich Bezug genommen wird, ausführlicher beschrieben.

**[0069]** Alternativ dazu kann das eine hohe Schmelzfestigkeit aufweisende Propylenpolymer durch mindestens (a) einen  $M_z$ -Wert von mindestens  $1,0 \times 10^6$  oder ein  $M_z/M_w$ -Verhältnis von mindestens 3,0 und (b) entweder eine Gleichgewichtsnachgiebigkeit  $J_{eo}$  von mindestens  $12 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{dyne}$  oder eine reversible Nachgiebigkeit bei Scherung pro Spannungseinheit  $Sr/S$  von mindestens  $5 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{dyne}$  bei  $1 \text{ s}^{-1}$  gekennzeichnet sein.

**[0070]** Die Molekulargewichtsverteilung einer Probe des Propylenpolymermaterials kann mittels Hochtemperatur-Gelpermeationschromatographie (GPC) bestimmt werden. In Betracht kommt ein Chromatograph 150 CV GPC von Waters bei  $135^\circ\text{C}$  mit Trichlorbenzol als Trägerlösungsmittel und ein Satz Säulen des Typs  $\mu$ -Styragel HT  $10^3$ ,  $10^4$ ,  $10^5$  und  $10^6$  von Waters. Die Lösungskonzentration beträgt 0,2% (w/v) und die Strömungsrate 1 ml/min.

**[0071]** Die rheologische Charakterisierung der Propylenpolymermaterialien kann mit einem programmierten mechanischen Spektrometer von Rheometrics (RMS-800) durchgeführt werden. Harzpellets werden durch Formpressen zu Flächengebilden verarbeitet, aus denen mit einer Kreisdüse mit einem Durchmesser von 25 mm Proben ausgestanzt werden. Prüfungen werden bei  $210 \pm 1^\circ\text{C}$  mit 25-m-Parallelplattengeometrie mit einem 1,4 mm großen Spalt durchgeführt. Kriechdaten werden unter einer konstanten Spannung von 1000 dyne/cm<sup>2</sup> über einen Zeitraum von 0–300 s erhalten. Die Kriechnachgiebigkeit  $J(t)$  ist gegeben durch

$$J(t) = \tau(t)/\sigma_o = J_{eo} + t/\eta_o$$

wobei

$\tau$	Dehnung
$\sigma_o$	Spannung
$J_{eo}$	Gleichgewichtsnachgiebigkeit
$\eta_o$	Nullscherviskosität.

**[0072]** Die Gleichgewichtsnachgiebigkeit  $J_{eo}$  ist ein Maß für die Schmelzeelastizität und wird bestimmt, indem man zunächst die Dehnung gegen die Zeit bei konstanter Spannung aufträgt. Die Dehnung als Funktion der Zeit wird durch die Spannung dividiert, was  $J(t)$  ergibt.  $J_{eo}$  ist der Achsenabschnitt der Auftragung von  $J(t)$  gegen die Zeit.

**[0073]** Auch die reversible Nachgiebigkeit bei Scherung pro Spannungseinheit  $Sr/S$  zeichnet die eine hohe Schmelzfestigkeit aufweisenden Propylenpolymermaterialien aus. Diese Größe ist ein grundlegendes Maß der Schmelzeelastizität. Unter Verwendung des programmierten mechanischen Spektrometers von Rheometrics wird die Polymerschmelze durch den Treiber einer Rotationsscherung im Uhrzeigersinn unterworfen und die resultierende Scherspannung  $S$ , und die erste Normalspannung  $N_1$  werden von einem Aufnehmer gemessen. Der Scherratenbereich liegt bei  $0,01$  bis  $10 \text{ s}^{-1}$ , die Zeit vor der Messung bei 2,2 min und die Meßzeit bei 0,3 min. Bei jeder Scherrate werden Normalspannungsmessungen erhalten. Die reversible Nachgiebigkeit bei Scherung  $Sr$  wird aus der ersten Normalspannungsdifferenz  $N_1$  erhalten.

$$Sr = \frac{N_1}{2S}$$

**[0074]** Die normalisierte Größe  $Sr/S$ , d.h. die reversible Nachgiebigkeit bei Scherung pro Spannungseinheit, ist ein Maß für die Schmelzeelastizität.

**[0075]** Flächengebilde aus extrudiertem Schaumstoff können nach herkömmlichen Techniken hergestellt werden, wie beispielsweise unter Verwendung einer Tandemextrusionslinie. Bei dem Verfahren geht man so vor, daß man das Propylenpolymer mit hoher Schmelzfestigkeit und hoher Schmelzeelastizität in einem Primärextruder mit einem Nukleierungsmittel vermischt, die Mischung verknetet, in die Mischung ein physikalisches Treibmittel einspritzt, wobei man eine Verschäumungsmischung erhält, die Verschäumungsmischung in

einen Sekundärextruder überführt, die Verschäumungsmischung vermischt und abkühlt und die Verschäumungsmischung durch eine Ring- oder Flachdüse zu einem kontinuierlichen Schaumstoffflächengebilde extrudiert. Als Nukleierungsmittel eignen sich u.a. eine Mischung aus Citronensäure und Natriumhydrogencarbonat, Talk und Titandioxid. Als Treibmittel eignen sich u.a.

**[0076]** Kohlenwasserstoffe, wie Butan und Isopentan, chlorierte Kohlenwasserstoffe, vollhalogenierte Chlorfluorkohlenwasserstoffe, Stickstoff, Kohlendioxid und andere inerte Gase.

**[0077]** Aus Schaumstoffkügelchen geformte Schichten aus Schaumstoff niedriger Dichte können beispielsweise hergestellt werden, indem man durch Extrudieren eines eine hohe Schmelzfestigkeit aufweisenden Propylenpolymers in Gegenwart eines Treibmittels, wie beispielsweise Pentan, Hexan, Dichlortrifluorethan und Methylenchlorid, vorgeschäumte Kügelchen herstellt. Das Polymer kann vor oder während der Extrusion mit einem oder mehreren Nukleierungsmitteln, wie Talk, kolloidalem Siliciumdioxid, Natriumhydrogencarbonat oder Mischungen davon mit Citronensäure und Azodicarbonamid versetzt werden: Die vorgeschäumten Kügelchen werden dann durch Sintern thermogeformt. Eine Form mit den gewünschten Abmessungen wird mit den vorgeschäumten Kügelchen gefüllt, und die Kügelchen werden durch Hindurchleiten eines heißen Druckgases, wie überhitztem Dampf, durch die Form erhitzt, wodurch die Sinterung bewirkt und der fertige Gegenstand produziert wird. Ein derartiges Verfahren wird beispielsweise in der US-PS 5,324,753, auf die hiermit ausdrücklich Bezug genommen wird, beschrieben.

**[0078]** Bei Verwendung eines Kunstharzwabenmaterials als Schicht für den zentralen Kern werden die Oberflächen des mit den mehrschichtigen Flächengebilden zu verbindenden Wabenmaterials zunächst von allem losen Schmutz und Fremdkörpermaterial gereinigt. Dann erhitzt man eine Seite des Wabenmaterials, in der Regel über einen Zeitraum von etwa 30 Sekunden, und gleichzeitig eines der mehrschichtigen Flächengebilde, in der Regel über einen Zeitraum von etwa drei Minuten, bei einer Heizplattentemperatur von 230°C. Dann preßt man die erhitzten Seiten des Wabenmaterials und des mehrschichtigen Flächengebildes mit einer hydraulischen Presse gegeneinander. Dann wiederholt man das Erhitzen und Pressen, um das zweite mehrschichtige Flächengebilde auf die andere Seite des wabenmaterials aufzulaminieren.

**[0079]** Der isotaktische Index ist definiert als der Prozentanteil an xylolunlöslichem Olefinpolymer. Zur Bestimmung des Gewichtsprozentanteils an bei Raumtemperatur in Xylol löslichem Olefinpolymer löst man 2,5 g des Polymers in 250 ml Xylol bei Raumtemperatur in einem Behälter mit Rührer, der unter Rühren 20 Minuten auf 135°C erhitzt wird. Die Lösung wird unter fortgesetztem Rühren auf 25°C abgekühlt und dann ohne Rühren 30 Minuten stehen gelassen, so daß sich die Feststoffe absetzen können. Dann filtriert man die Feststoffe mit Filterpapier ab, dampft die verbleibende Lösung durch Behandlung mit einem Stickstoffstrom ein und trocknet den festen Rückstand im Vakuum bei 80°C bis zur Gewichtskonstanz. Der Gewichtsprozentanteil an bei Raumtemperatur in Xylol unlöslichem Polymer ist der isotaktische Index des Polymers. Der auf diese Art und Weise erhaltene Wert entspricht weitgehend dem durch Extraktion mit siedendem n-Heptan bestimmten isotaktischen Index, der definitionsgemäß den isotaktischen Index des Polymers darstellt.

**[0080]** Die intrinsische Viskosität wird in Decahydronaphthalin bei 135°C gemessen.

**[0081]** Die Schmelzflußrate der Propylenpolymermaterialien wurde gemäß ASTM-Methode D-1238 bei 230°C mit einem Gewicht von 2,16 g gemessen.

**[0082]** In der vorliegenden Beschreibung beziehen sich alle Teile- und Prozentangaben auf das Gewicht, sofern nicht anders vermerkt.

#### Beispiel 1 und Vergleichsbeispiel 1

**[0083]** Dieses Beispiel beschreibt die Herstellung des erfindungsgemäßen mehrschichtigen Flächengebildes. Es wird ein Vergleich zwischen dem Biegemodul des erfindungsgemäßen Flächengebildes und dem Biegemodul eines im Handel erhältlichen Flächenmaterials mit mehreren in ein Kunstharz eingebetteten Glasmattenschichten angestellt.

**[0084]** Die Zusammensetzung der obersten Schicht des Flächengebildes in Beispiel 1 ist in Tabelle 1 aufgeführt. Die Proben wurden auf einem gleichsinnig drehenden, kämmenden 40-mm-Doppelschneckenextruder ZSK von Werner & Pfleiderer compounding.

Tabelle 1	
	Gew. - %
Einem Visbreakingprozeß unterworfenen PP	97,88
Antioxidans LC20FF	0,2
Ca-Salz Pationic 1240	0,05
Antioxidans Tinuvin 328	0,29
Antioxidans Tinuvin 770	0,24
Antioxidans Chimassorb 119	0,24
Nukleierungsmittel Millad 3988	0,25
Calicumstearat	0,1
TiO <sub>2</sub>	0,75

**[0085]** Das einem Visbreakingprozeß unterworfenen Polypropylen (PP) wurde durch Hindurchführen einer (a) 100 Teile eines Propylenhomopolymers mit einer Schmelzflußrate (MFR) von 0,4 dg/min, das im Handel von Basell USA Inc. (f/k/a Montell USA Inc.) erhältlich ist, (b) 0,10 pph Antioxidans Irgafos 168, bei dem es sich um Tris(3,4-di-tert.-butylphenyl)phosphat handelt, (c) 0,10 pph Antioxidans Irganox 1010, bei dem es sich um Tetraakis[methylen(3,5-di-tert.-butyl-4-hydroxyhydrocinnamat)]methan handelt, und (d) eine zur Erzielung einer MFR von 2,5 dg/min (0,067 g/lb Harz) ausreichende Menge von Lupersol 101, bei dem es sich um 2,5-Dimethyl-2,5-(t-butylperoxy)hexan handelt und das im Handel von Elf Atochem erhältlich ist, enthaltenden Mischung durch eine 3,5-Zoll-Einzelschnecke mit Mischkopf hergestellt. Beide Antioxidantien sind im Handel von Ciba Specialty Chemicals Company erhältlich.

**[0086]** Bei dem Antioxidans LC20FF handelt es sich um eine Mischung aus 50% Antioxidans Irganox 1010 und 50% Antioxidans Irgafos 12, bei dem es sich um 2,2',2''-Nitrilotriethyltris[3,3',5,5'-tetra-tert.-butyl-1,1'-biphenyl-1,2,2'-diyl]phosphit handelt und das im Handel von Ciba Specialty Chemicals Company erhältlich ist, in freifließender Form. Bei Pationic 1240 handelt es sich um ein von Milchsäure abgeleitetes modifiziertes Calciumsalz, das im Handel von Patco Polymer Additives Division, American Ingredients Company, erhältlich ist. Das Antioxidans Tinuvin 328, bei dem es sich um 2-(2-Hydroxy-3,5-di-tert.-amylphenyl)-2H-benzotriazol handelt, das Antioxidans Tinuvin 770, bei dem es sich um Bis(2,2,6,6-Tetramethyl-4-piperidinyl)sebacat handelt, und das Antioxidans Chimassorb 119 sind alle im Handel von Ciba Specialty Chemicals Corporation erhältlich. Das Nukleierungsmittel Millad 3988, bei dem es sich um Bis(3,4-dimethylbenzyliden)sorbitol handelt, ist im Handel von Milliken Chemical Company erhältlich und hat einen Schmelzpunkt von 275°C. Das Additivpaket wurde als 5%iges Konzentrat in einem Propylenhomopolymer mit einer MFR von 12 dg/min und einer Löslichkeit in Xylol bei Raumtemperatur von 4% als Träger, das im Handel von Basell USA Inc. (f/k/a Montell USA Inc.) erhältlich ist, zugegeben.

**[0087]** Die erste Schicht wurde auf einem 1½-Zoll-Killian-Extruder mit einer 12-Zoll-Schlitzdüse für die Extrusion von einschichtigen Flächengebilden bei einer Schmelztemperatur von 460°F hergestellt. Das Extrudat aus dieser Düse wurde zur Abkühlung und Verfestigung des Extrudats und zum Polieren der Oberfläche des Flächengebildes durch einen Satz von drei hochpolierten Chromwalzen geführt.

**[0088]** Die zweite Schicht des mehrschichtigen Flächengebildes gemäß Beispiel 1 wurde durch Auflegen von drei Schichten von 0,04 Zoll dicker Propylenhomopolymerfolie und zwei E-Glasmattenschichten mit der Polypropylenfolie als erste, dritte und fünfte Schicht hergestellt. Das Propylenhomopolymer besaß eine MFR von 5 dg/min und ist im Handel von Basell USA Inc. (f/k/a Montell USA Inc.) erhältlich. Die Glasmatten bestanden aus unidirektionalen Glasfasern und Wirrfasern, besaßen ein Flächengewicht von 3,3 oz/ft<sup>2</sup> und sind im Handel von PPG Industries erhältlich.

**[0089]** Die alternierenden Schichten aus Polypropylenfolie und E-Glasmatte wurden dann in einer heißen hydraulischen Presse unter den folgenden Bedingungen formgepreßt:

- (a) 10 Minuten Vorerhitzen der Glasmatten und der Polypropylenfolien bei 180°C in einer Formpresse;
- (b) Ausüben eines Drucks von etwa 700 psi auf die Konstruktion bei einer Temperatur von 180°C bis 190°C über einen Zeitraum von 10 Minuten;

(c) Abkühlen der Konstruktion in der geschlossenen Presse.

**[0090]** Die Verbindung des Flächengebilde aus nukleiertem Polypropylen mit dem glasverstärkten Flächengebilde wurde durch Aufbringen von überhitzter Luft aus einer Heißluftpistole an den zu verbindenden Oberflächen erreicht. Gleichzeitig wurde mit einer Gummiwalze auf das Flächengebilde aus nukleiertem Polypropylen Druck ausgeübt.

**[0091]** Der Glanz des Flächengebilde aus nukleiertem Polypropylen wurde mit einem Glanzmeßgerät bei einem Winkel von 60° gemessen und war > 60.

**[0092]** Das wie oben beschrieben hergestellte mehrschichtige Flächengebilde wurde mit einem Laminat von endlosglasfaserverstärktem Polypropylen mit der Bezeichnung PH10420, das im Handel von Azdel, Inc., erhältlich ist, verglichen. Das handelsübliche Material wird in Tabelle 2 als Vergleichsbeispiel 1 bezeichnet. Der Biegemodul wurde gemäß ASTM D-790-86 gemessen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 2 aufgeführt.

Tabelle 3		
	Bsp. 1	Vgl. -Bsp. 1
Dicke (mm)	2,0	3,75
Dichte (g/cm <sup>3</sup> )	1,3	1,2
Biegemodul (MPa)	19.000	10.000

Beispiel 2

**[0093]** Dieses Beispiel beschreibt die Herstellung eines Verbundmaterials mit einem Kunstharzwabenmaterial, das zwischen zwei Schichten aus dem erfindungsgemäßen mehrschichtigen Flächengebilde sandwichartig angeordnet ist.

**[0094]** Zwei Flächengebilde aus nukleiertem Polypropylen und zwei Flächengebilde aus alternierenden Schichten von Propylenhomopolymer und Glasfasermatte wurden in Analogie zu Beispiel 1 hergestellt.

**[0095]** Bei dem Wabenmaterial handelte es sich um Tubulam, ein überwiegend aus Polypropylen bestehendes Material, das im Handel von Airex Corporation erhältlich ist. Das Material besaß die folgenden Eigenschaften: Zellendurchmesser 0,33 Zoll; Dicke 1,0 Zoll; Flächengewicht 0,53 lb/ft<sup>2</sup>; Scherfestigkeit 1160 psi; Schermodul 58 psi; Druckfestigkeit senkrecht zur Ebene 159 psi; Druckmodul senkrecht zur Ebene 15.080 psi.

**[0096]** Vor dem Verbinden der glasverstärkten Flächengebilde mit dem Wabenmaterial wurden alle Verbindungsoberflächen von allem losen Fremdkörpermaterial und Schmutz gereinigt, wonach eine Seite des Wabenmaterials über einen Zeitraum von 30 Sekunden und ein glasverstärktes Flächengebilde über einen Zeitraum von drei Minuten bei einer Heizplattentemperatur von 230°C erhitzt wurde. Beiden Konstruktionen wurde gleichzeitig Wärme zugeführt. Die erhitzten Seiten des Wabenmaterials und des glasverstärkten Flächengebilde wurden mit einer hydraulischen Presse gegeneinander gepreßt. Diese Schritte wurden wiederholt, um das zweite glasverstärkte Flächengebilde auf die andere Seite des Wabenmaterials aufzulaminieren. Bei den Preßschritten wurde eine Verringerung der Dicke des Wabenmaterials von etwa 0,08 Zoll festgestellt.

**[0097]** Ein Flächengebilde aus nukleiertem Polypropylen wurde durch Aufbringen von überhitzter Luft aus einer Heißluftpistole auf die zu verbindenden Oberflächen auf einer Seite des Wabenmaterials mit dem glasverstärkten Flächengebilde verbunden. Gleichzeitig wurde mit einer Gummiwalze auf das Flächengebilde aus nukleiertem Polypropylen Druck ausgeübt. Das Verfahren wurde wiederholt, um das zweite Polypropylenflächengebilde auf der anderen Seite des Wabenmaterials mit dem glasverstärkten Flächengebilde zu verbinden.

**[0098]** Die Eigenschaften der Verbundkonstruktion sind nachstehend in Tabelle 3 aufgeführt.

Beispiel 3

**[0099]** Dieses Beispiel beschreibt die Herstellung eines Verbundmaterials mit einem Polyolefinschaumstoff, der zwischen zwei Schichten aus dem erfindungsgemäßen mehrschichtigen Flächengebilde sandwichartig angeordnet ist.

**[0100]** Zwei mehrschichtige Flächengebilde mit einer obersten Schicht aus nukleiertem Polypropylen und einer zweiten Schicht aus alternierenden Schichten von Polypropylen und Glasfasermatte wurden in Analogie zu Beispiel 1 hergestellt.

**[0101]** Der Polyolefinschaumstoff lag in Form eines extrudierten Flächengebildes mit einer Dicke von 1,25 Zoll aus einem Propylenhomopolymer mit Dehnverfestigungsdehnviskosität vor. Der Schaumstoff besaß einen Modul von 222 Kpsi und eine Dichte von 11 lb/ft<sup>3</sup> und ist im Handel von Nomaco Inc. erhältlich.

**[0102]** Die mehrschichtigen Flächengebilde und der Schaumstoffkern wurden mit dem Klebstoff Hi-Strength 90, der im Handel von Minnesota Mining and Manufacturing Company erhältlich ist, verbunden. Zuvor wurden alle zu verbindenden Oberflächen durch Abwischen mit Aceton gereinigt. Der Klebstoff wurde nach den Anweisungen des Herstellers auf beide zu verbindende Oberflächen aufgesprüht. Der größte Teil der Glasfasern in der zweiten Schicht des mehrschichtigen Flächengebildes zeigte in die gleiche Richtung. Es ist daher wünschenswert, daß die Glasfasern in jedem der mehrschichtigen Flächengebilde beim Verbinden der mehrschichtigen Flächengebilde mit dem Schaumstoffkern in der gleichen Richtung ausgerichtet sind. Der Verbund mit einem mehrschichtigen Flächengebilde auf beiden Seiten des Schaumstoffkerns wurde dann zwischen zwei Stahlplatten eingespannt, und der Klebstoff wurde 24 Stunden härten gelassen.

**[0103]** Eine wie oben beschriebene Verbundkonstruktion mit einer Länge von 18 Zoll, einer Breite von 2 Zoll und einer Dicke von 1,25 Zoll wurde an den Enden abgestützt und genau in der Mitte des Balkens bei Raumtemperatur mit einem 50-lb-Gewicht belastet. Die Gesamtdurchbiegung (Zoll) wurde gemäß ASTM-Methode C-393 für Kernkonstruktionen gemessen. Zum Vergleich wurden Durchbiegungswerte für eine in Analogie zu Beispiel 2 hergestellte Verbundkonstruktion mit einem Wabenkern gemessen. Außerdem wurden die Gesamtdurchbiegungswerte für einen Verbund mit einem Schaumstoffkern mit einem Modul von 400 Kpsi, der im Handel von Nomaco Inc. erhältlich ist, mit Hilfe der in ASTM-Methode C-393 angegebenen Gleichungen und für einen Stahlträger mit einem Modul von 20 Mpsi und einen Aluminiumträger mit einem Modul von 8 Mpsi mit Hilfe der in ASTM-Methode D-790 für Einschichtkonstruktionen angegebenen Gleichungen berechnet. Die Ergebnisse sind in Tabelle 3 aufgeführt.

<b>Tabelle 3</b>			
	<b>Gesamt- durch- biegung (Zoll)</b>	<b>Flächen- gewicht (lb/ft<sup>3</sup>)</b>	<b>Gesamt- dicke (Zoll)</b>
Verbund mit Wabenkern	0,096	2,34	1,25
Verbund mit Schaumstoffkern (Modul = 222 Kpsi)	0,039	3,0	1,25
Verbund mit Schaumstoffkern (Modul = 400 Kpsi) (berechnet)	0,027	3,5	1,25
Stahlträger (berechnet)	0,027	14,59	0,36
Aluminiumträger (berechnet)	0,27	7,76	0,55

**[0104]** Die Daten zeigen, daß die erfindungsgemäßen Konstruktionen die gleiche Lastfestigkeit aufweisen wie die Stahl- und Aluminiumträger, obwohl sie ein viel geringeres Gewicht aufweisen.

**[0105]** Andere Merkmale, Vorteile und Ausführungsformen der hier offenbarten Erfindung sind für den Durchschnittsfachmann nach dem Studium der vorhergehenden Offenbarungen leicht ersichtlich. In diesem Zusammenhang können trotz der recht ausführlichen Beschreibung spezieller Ausführungsformen der Erfindung Variationen und Modifikationen dieser Ausführungsformen vorgenommen werden, ohne den Grundgedanken und den Schutzbereich der Erfindung gemäß Beschreibung und Ansprüchen zu verlassen.

## Patentansprüche

## 1. Mehrschichtiges Flächengebilde, enthaltend:

- (1) mindestens eine Außenschicht, enthaltend ein Propylenpolymermaterial aus der Gruppe bestehend aus:
- (a) einem Propylenhomopolymer oder einem Copolymer von Propylen und Ethylen oder einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Ethylen oder einpolymerisiertem alpha-Olefin von höchstens 20% aufweist, und gegebenenfalls etwa 0,15 bis etwa 0,70% eines Nukleierungsmittels,
- (b) einem Pfropfcopolymer mit einer Hauptkette aus einem Propylenhomopolymermaterial, auf das polymerisierte Monomere aus der Gruppe bestehend aus (i) mindestens einem Acrylmonomer, (ii) mindestens einem styrolischen Monomer und (iii) Mischungen von (i) und (ii) aufgepfropft sind, und gegebenenfalls etwa 0,5 bis etwa 1,5% eines Nukleierungsmittels, und
- (c) einer Olefinpolymerzusammensetzung, enthaltend:
- (i) etwa 10 bis etwa 60 Gewichtsteile eines kristallinen Propylenhomopolymers mit einem isotaktischen Index von mehr als 80 oder eines kristallinen Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend aus (1) Propylen und Ethylen, (2) Propylen, Ethylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin und (3) Propylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Propylen von mehr als 85 Gew.-% und einen isotaktischen Index von mehr als 85 aufweist;
- (ii) etwa 5 bis etwa 25 Gewichtsteile eines Copolymers von Ethylen und Propylen oder einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, das bei Umgebungstemperatur in Xylol unlöslich ist; und
- (iii) etwa 30 bis etwa 70 Gewichtsteile eines elastomeren Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend aus (1) Ethylen und Propylen, (2) Ethylen, Propylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin und (3) Ethylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer gegebenenfalls etwa 0,5 bis etwa 10 Gew.-% eines einpolymerisierten Diens und weniger als 70 Gew.-% einpolymerisiertes Ethylen enthält, bei Umgebungstemperatur in Xylol löslich ist und eine bei 135°C in Decahydronaphthalin gemessene intrinsische Viskosität von etwa 1,5 bis etwa 4,0 dl/g aufweist,
- wobei die Gesamtmenge von (ii) und (iii), bezogen auf die gesamte Olefinpolymerzusammensetzung, etwa 50 bis etwa 90% beträgt, das Gewichtsverhältnis (ii)/(iii) weniger als 0,4 beträgt, und die Zusammensetzung durch Polymerisation in mindestens zwei Stufen erhältlich ist und einen Biegemodul von weniger als 150 MPa aufweist;
- (2) mindestens eine Schicht mit alternierenden Schichten aus (a) einem Propylenpolymermaterial aus der Gruppe bestehend aus (i) einem Propylenhomopolymer und (ii) einem Copolymer von Propylen und Ethylen oder einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Ethylen oder einpolymerisiertem alpha-Olefin von höchstens 20% aufweist und die Schmelzflußrate des Propylenpolymermaterials in Schicht (2) höher ist als die Schmelzflußrate des Propylenpolymermaterials in Schicht (1), und (b) Glasfasermatten mit einem Flächengewicht von 0,15 bis 1,37 kg/m<sup>2</sup> (0,5 bis 4,5 oz/ft<sup>2</sup>), wobei das Propylenpolymermaterial die oberste und unterste Schicht bildet, wobei Schicht (1) eine Dicke von 0,025 bis 6,35 mm (0,001 Zoll bis 0,25 Zoll) aufweist.

2. Mehrschichtiges Flächengebilde nach Anspruch 1, bei dem es sich bei den polymerisierten Monomeren in dem Pfropfcopolymer (b) der Schicht (1) um eine Mischung von Methylmethacrylat und Methylacrylat handelt.

3. Mehrschichtiges Flächengebilde nach Anspruch 1, bei dem das Propylenpolymermaterial, bei dem es sich um das Hauptkettenpolymer des Pfropfcopolymers (b) in Schicht (1) handelt, aus der Gruppe bestehend aus:

- (a) einem Homopolymer von Propylen mit einem isotaktischen Index von mehr als 80;
- (b) einem Copolymer von Propylen und einem Olefin aus der Gruppe bestehend aus Ethylen und C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>-alpha-Olefinen, mit der Maßgabe, daß für den Fall, daß es sich bei dem Olefin um Ethylen handelt, der maximale Gehalt an einpolymerisiertem Ethylen etwa 10 Gew.-% beträgt, und für den Fall, daß es sich bei dem Olefin um ein C<sub>9</sub>-C<sub>10</sub>-alpha-Olefin handelt, der maximale einpolymerisierte Gehalt davon etwa 20 Gew.-% beträgt, wobei das Copolymer einen isotaktischen Index von mehr als 85 aufweist;
- (c) einem Terpolymer von Propylen und zwei Olefinen aus der Gruppe bestehend aus Ethylen und C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefinen, mit der Maßgabe, daß der maximale Gehalt an einpolymerisiertem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin 20 Gew.-% beträgt und für den Fall, daß es sich bei einem der Olefine um Ethylen handelt, der maximale einpolymerisierte Ethylengehalt 5 Gew.-% beträgt, wobei das Terpolymer einen isotaktischen Index von mehr als 85 aufweist;
- (d) einer Olefinpolymerzusammensetzung, enthaltend:
- (i) etwa 10 bis etwa 60 Gew.-% eines Propylenhomopolymers mit einem isotaktischen Index von mehr als 80 oder eines Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend aus (1) Propylen und Ethylen, (2) Propy-

len, Ethylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin und (3) Propylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Propylen von mehr als 85 Gew.-% und einen isotaktischen Index von mehr als 85 aufweist;

(ii) etwa 5 bis etwa 25 Gew.-% eines Copolymers von Ethylen und Propylen oder einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, das bei Umgebungstemperatur in Xylol unlöslich ist; und

(iii) etwa 30 bis etwa 70 Gew.-% eines elastomeren Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend aus (1) Ethylen und Propylen, (2) Ethylen, Propylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin und (3) Ethylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer gegebenenfalls etwa 0,5 bis etwa 10 Gew.-% eines einpolymerisierten Diens und weniger als 70 Gew.-% einpolymerisiertes Ethylen enthält, bei Umgebungstemperatur in Xylol löslich ist und eine bei 135°C in Decahydronaphthalin gemessene intrinsische Viskosität von 1,5 bis 4,0 dl/g aufweist,

wobei die Gesamtmenge von (ii) und (iii), bezogen auf die gesamte Olefinpolymerzusammensetzung, etwa 50 bis etwa 90% beträgt, das Gewichtsverhältnis (ii)/(iii) weniger als 0,4 beträgt und die Zusammensetzung durch Polymerisation in mindestens zwei Stufen erhältlich ist und einen Biegemodul von weniger als 150 MPa aufweist; und

(e) einer thermoplastischen Olefinzusammensetzung, enthaltend:

(i) etwa 10 bis etwa 60% eines Propylenhomopolymers mit einem isotaktischen Index von mehr als 80 oder eines Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend aus (1) Ethylen und Propylen, (2) Ethylen, Propylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin und (3) Ethylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Propylen von mehr als 85% und einen isotaktischen Index von mehr als 85 aufweist;

(ii) etwa 20 bis etwa 60% eines amorphen Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend aus (1) Ethylen und Propylen, (2) Ethylen, Propylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin und (3) Ethylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer gegebenenfalls etwa 0,5 bis etwa 10% eines einpolymerisierten Diens und weniger als 70% einpolymerisiertes Ethylen enthält und bei Umgebungstemperatur in Xylol löslich ist; und

(iii) etwa 3 bis etwa 40% eines Copolymers von Ethylen und Propylen oder einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, das bei Umgebungstemperatur in Xylol unlöslich ist,

wobei das thermoplastische Olefin einen Biegemodul von mehr als 150, aber weniger als 1200 MPa aufweist; stammt.

4. Verbundmaterial, enthaltend einen zentralen Kern aus Kunstharzmaterial, das zwischen zwei der mehrschichtigen Flächengebilden gemäß Anspruch 1 sandwichartig angeordnet ist, wobei sich die Schicht (1) immer auf der Außenseite des Verbundmaterials befindet.

5. Verbundmaterial nach Anspruch 4, bei dem es sich bei dem Kern um einen aus einem Polyolefin mit Dehnverfestigungsdehnviskosität hergestellten Schaumstoff handelt.

6. Verbundmaterial nach Anspruch 4, bei dem es sich bei dem Kern um ein Polyolefin-Wabenmaterial handelt.

7. Verfahren zur Herstellung eines mehrschichtigen Flächengebildes, bei dem man:

(1) ein Flächengebilde, enthaltend ein Propylenpolymermaterial aus der Gruppe bestehend aus:

(a) einem Propylenhomopolymer oder einem Copolymer von Propylen und Ethylen oder einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Ethylen oder einpolymerisiertem alpha-Olefin von höchstens 20% aufweist, und gegebenenfalls etwa 0,15 bis etwa 0,70 eines Nukleierungsmittels,

(b) einem Pfropfcopolymer mit einer Hauptkette aus einem Propylenpolymermaterial, auf das polymerisierte Monomere aus der Gruppe bestehend aus (i) mindestens einem Acrylmonomer, (ii) mindestens einem styrolischen Monomer und (iii) Mischungen von (i) und (ii) aufgepfropft sind, und gegebenenfalls etwa 0,5 bis etwa 1,5% eines Nukleierungsmittels,

(c) einer Olefinpolymerzusammensetzung, enthaltend:

(i) etwa 10 bis etwa 60 Gewichtsteile eines kristallinen Propylenhomopolymers mit einem isotaktischen Index von mehr als 80 oder eines kristallinen Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend aus (1) Propylen und Ethylen, (2) Propylen, Ethylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin und (3) Propylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Propylen von mehr als 85 Gew.-% und einen isotaktischen Index von mehr als 85 aufweist;

(ii) etwa 5 bis etwa 25 Gewichtsteile eines Copolymers von Ethylen und Propylen oder einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, das bei Umgebungstemperatur in Xylol unlöslich ist; und

(iii) etwa 30 bis etwa 70 Gewichtsteile eines elastomeren Copolymers von Monomeren aus der Gruppe bestehend aus (1) Ethylen und Propylen, (2) Ethylen, Propylen und einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin und (3) Ethylen und

einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer gegebenenfalls etwa 0,5 bis etwa 10 Gew.-% eines einpolymerisierten Diens und weniger als 70 Gew.-% einpolymerisiertes Ethylen enthält, bei Umgebungstemperatur in Xylol löslich ist und eine bei 135°C in Decahydronaphthalin gemessene intrinsische Viskosität von etwa 1,5 bis etwa 4,0 dl/g aufweist,

wobei die Gesamtmenge von (ii) und (iii), bezogen auf die gesamte Olefinpolymerzusammensetzung, etwa 50 bis etwa 90% beträgt, das Gewichtsverhältnis (ii)/(iii) weniger als 0,4 beträgt und die Zusammensetzung durch Polymerisation in mindestens zwei Stufen erhältlich ist und einen Biegemodul von weniger als 150 MPa aufweist;

extrudiert, wobei das Flächengebilde aus Propylenpolymermaterial eine Dicke von 0,025–6,35 mm (0,001 Zoll bis 0,25 Zoll) aufweist, (2) durch Auflegen von alternierenden Schichten aus (a) einem Flächengebilde aus einem Propylenpolymermaterial aus der Gruppe bestehend aus (i) einem Propylenhomopolymer und (ii) einem Copolymer von Propylen und Ethylen oder einem C<sub>4</sub>-C<sub>8</sub>-alpha-Olefin, wobei das Copolymer einen Gehalt an einpolymerisiertem Ethylen oder einpolymerisiertem alpha-Olefin von höchstens 20% aufweist und die Schmelzflußrate des Propylenpolymermaterials in Schicht (2) höher ist als die Schmelzflußrate des Propylenpolymermaterials in Schicht (1) und das Flächengebilde eine Dicke von etwa 0,01 bis etwa 0,1 Zoll aufweist, und (b) auf eine Temperatur von etwa 140°C bis etwa 200°C vorerhitzten Glasfasermatten mit einem Flächengewicht von 0,15 bis 1,37 kg/m<sup>2</sup> (0,5 bis 4,5 oz/ft<sup>2</sup>) bildet, wobei das Flächengebilde aus Propylenpolymermaterial die oberste und unterste Schicht bildet, Zusammenpressen der Schichten bei einem Druck von mindestens 2,07 MPa (300 psi) und anschließendes Abkühlen unter Aufrechterhaltung dieses Drucks ein Flächengebilde herstellt und

(3) die in den Schritten (1) und (2) hergestellten Flächengebilde verbindet, indem man beiden Flächengebilden bis zu einer zur Erweichung der zu verbindenden Oberflächen ausreichenden Temperatur Wärme zuführt und gleichzeitig auf das in Schritt (1) hergestellte Flächengebilde Druck ausübt.

8. Verfahren nach Anspruch 7, bei dem es sich bei den polymerisierten Monomeren in dem Pfropfcopolymer (b) der Schicht (1) um eine Mischung von Methylmethacrylat und Methylacrylat handelt.

Es folgt kein Blatt Zeichnungen