



(19)
 Bundesrepublik Deutschland
 Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 10 2006 013 090 A1** 2007.09.27

(12)

Offenlegungsschrift

(21) Aktenzeichen: **10 2006 013 090.1**

(22) Anmeldetag: **20.03.2006**

(43) Offenlegungstag: **27.09.2007**

(51) Int Cl.⁸: **C08J 5/06** (2006.01)

C08K 9/06 (2006.01)

C08F 251/00 (2006.01)

(71) Anmelder:

Georg-August-Universität Göttingen, 37073 Göttingen, DE; Degussa GmbH, 40474 Düsseldorf, DE; REHAU AG + Co., 95111 Rehau, DE

(74) Vertreter:

Taruttis, S., Dr., Pat.-Anw., 30159 Hannover

(72) Erfinder:

Militz, Holger, Prof. Dr., 37120 Bovenden, DE; Mai, Carsten, Dr., 37075 Göttingen, DE; Jenkner, Peter Dr., 79618 Rheinfelden, DE; Edelmann, Roland, 79618 Rheinfelden, DE; Standke, Burkhard, Dr., 79540 Lörrach, DE; Michel, Peter Dr., 95028 Hof, DE; Bergmann, Jens-Uwe, 95111 Rehau, DE; Schmidt, Steven Dr., 95182 Döhlau, DE

(56) Für die Beurteilung der Patentfähigkeit in Betracht gezogene Druckschriften:

DE10 2004 007456 A1

DE 44 43 824 A1

EP 13 62 904 A1

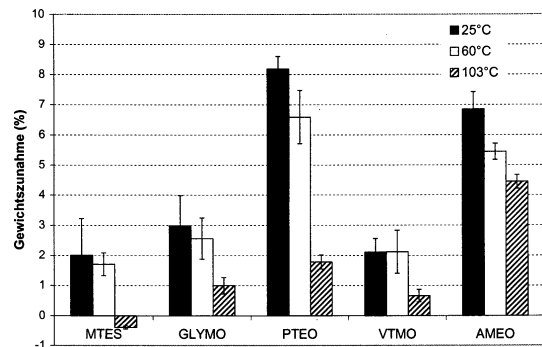
EP 07 16 128 A2

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gemäß § 44 PatG ist gestellt.

(54) Bezeichnung: **Kompositwerkstoff aus Holz und thermoplastischem Kunststoff**

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft Kompositwerkstoffe aus lignocellulosischen Fasern, beispielsweise Holzmehl, und thermoplastischem Kunststoff. Der erfindungsgemäße Kompositwerkstoff weist verbesserte mechanische Eigenschaften auf. Erfindungsgemäß ist vorgesehen, dass die lignocellulosischen Fasern vor dem Mischen mit dem thermoplastischen Kunststoff mit einem wässrigen Gemisch aus Organopolysiloxanen, die Aminoalkylalkoxysilane enthalten, behandelt werden.



Beschreibung

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft Kompositwerkstoffe aus Holz und thermoplastischen Kunststoffen, bei denen lignocellulosisches Material wie Holz in Form von Partikeln, beispielsweise als Holzmehl, Holzfasern oder Holzschnitzel, in Mischung mit einem thermoplastischen Kunststoff einen Komposit- oder Verbundwerkstoff bildet. Weiterhin betrifft die vorliegende Erfindung ein Verfahren zur Herstellung eines Kompositwerkstoffs aus lignocellulosischem Material und thermoplastischen Kunststoffen.

Stand der Technik

[0002] Die US 4717742 beschreibt gattungsgemäße, holzverstärkte thermoplastische Verbundwerkstoffe aus Holzzellstoff und Polyethylen oder isotaktischem Polypropylen, wobei der Kunststoff jeweils Maleinsäureanhydrid enthält. Zur Verbesserung der Haftung zwischen lignocellulosischen Fasern einerseits sowie Kunststoff andererseits werden die lignocellulosischen Fasern mit γ -Aminopropyltriethoxysilan in Lösungsmittel behandelt, das Lösungsmittel abdampfen gelassen und bei 105°C getrocknet. Das Maleinsäureanhydrid dient als Kopplungsmittel zwischen den silanisierten Cellulosefasern und dem Kunststoff.

Aufgabe der Erfindung

[0003] Gegenüber den bekannten Kompositwerkstoffen aus thermoplastischem Kunststoff und lignocellulosischen Fasern stellt sich der vorliegenden Erfindung die Aufgabe, einen gattungsgemäßen Verbundwerkstoff mit verbesserten Eigenschaften bereitzustellen.

[0004] Insbesondere stellt sich der vorliegenden Erfindung die Aufgabe, einen Kompositwerkstoff aus thermoplastischem Kunststoff und lignocellulosischem Material bereitzustellen, der verbesserte mechanische Eigenschaften aufweist, beispielsweise eine höhere Kerbschlagzähigkeit, ein verbessertes E-Modul, sowie eine höhere Zugfestigkeit und, bevorzugterweise, eine verringerte Wasseraufnahme.

[0005] Eine weitere Aufgabe ist die Bereitstellung eines Verfahrens zur Herstellung des Kompositwerkstoffs, das im Wesentlichen ohne organisches Lösungsmittel ausgeführt werden kann.

Allgemeine Beschreibung der Erfindung

[0006] Die Erfindung löst die vorgenannten Aufgaben dadurch, dass lignocellulosische Fasern durch Behandlung mit Silanen derivatisiert werden, die einerseits eine haftvermittelnde Wirkung zwischen lignocellulosischen Fasern und thermoplastischem Kunststoff herstellen, andererseits die lignocellulosischen Fasern hydrophobieren.

[0007] Im bevorzugten Verfahren wird ein oligomeres Kondensationsprodukt verschiedener Silane, nachfolgend als Organopolysiloxan bezeichnet, das als Haftvermittler und als Hydrophobierungsmittel dient, in wässriger Lösung mit den lignocellulosischen Fasern kontaktiert, so dass im Wesentlichen keine organischen Lösungsmittel eingesetzt werden.

[0008] Weiterhin ist bevorzugt, dass im Anschluss an die Behandlung mit dem Silangemisch die lignocellulosischen Fasern getrocknet und einer Erwärmung von ca. 80–120°C, bevorzugt ca. 100–105°C unterworfen werden. Diese Trocknung und Erwärmung kann ein- oder mehrstufig ausgeführt werden, z.B. als Vortrocknung bei 40°C und Aushärten bei 120°C.

[0009] Der Gehalt an lignocellulosischen Fasern beträgt in erfindungsgemäßen Kompositwerkstoffen beispielsweise 10 bis 90 Gew.-%, wobei als lignocellulosische Fasern Holzmehl, Holzspäne und/oder Holzschnitzel aus Laub- oder Nadelhölzern und Gemische daraus eingesetzt werden können. Als thermoplastischer Kunststoff eignen sich insbesondere Polyethylen, Polypropylen, vorzugsweise isotaktisches Polypropylen, Blockcopolymere und Mischpolymere aus Polyethylen- und Propyleneinheiten.

Genauere Beschreibung der Erfindung

[0010] Lignocellulosische Fasern werden erfindungsgemäß durch eine Behandlung mit Organopolysiloxanen bzw. deren Copolymerisaten in einer Mischung auf Wasserbasis umgesetzt. Im Ergebnis wird die Haftvermittlung zwischen lignocellulosischen Fasern und thermoplastischem Kunststoff im Kompositwerkstoff verbessert. Dadurch werden sowohl die mechanisch-physikalischen Eigenschaften des Kompositwerkstoffs verbessert als

auch die Aufnahme von flüssigem und gasförmigem Wasser reduziert.

[0011] Die erfindungsgemäß einzusetzenden Organopolysiloxane sind erhältlich durch Mischen wasserlöslicher Aminoalkyl-Alkoxysilane, die die allgemeine Formel I



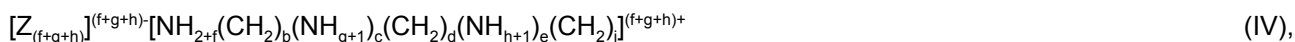
aufweisen, mit nicht wasserlöslichen Alkyltrialkoxysilanen, die die allgemeine Formel II



aufweisen, optional zusätzlich in Kombination mit nicht wasserlöslichen Dialkyldialkoxysilanen der allgemeinen Formel III



[0012] Dabei ist R eine aminofunktionale Gruppe, aliphatisch verzweigt oder unverzweigt oder aromatisch mit 2 bis 8 Kohlenstoffatomen, die primäre, sekundäre, tertiäre, bevorzugt quartäre aliphatische oder aromatische Aminogruppen enthält oder die allgemeine Formel IV aufweisen kann:



bei der b, d und i unabhängig 0 bis 3 sind, c, e, f, g und h unabhängig 0 bis 1 sind und $b + d + i = 0$ ist, für $b = 0$ auch $c = 0$ ist, für $d = 0$ auch $e = 0$ ist, für $i = 0$ auch $e = 0$ ist und für $d = i = 0$ auch $c = 0$ ist. Dabei ist Z ein einwertiger anorganischer oder organischer Säurerest. R^1 , R^{1*} , R^{1***} und R^{1****} sind unabhängig ein Methyl- oder Ethylrest, R^2 ein linearer, zyklischer oder verzweigter Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, A ein unverzweigter oder verzweigter Alkylrest mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und A' ein unverzweigter oder verzweigter Alkylrest mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen ist und y 0 oder 1 ist. Vorzugsweise beträgt das Molverhältnis von Verbindungen der Formel I zur Summe derjenigen der Formeln II und III zwischen 0 und 2.

[0013] In bevorzugter Ausführungsform ist das wasserlösliche Aminoalkylalkoxysilan 3-Aminopropyltriethoxysilan und das wasserunlösliche Alkyltrialkoxysilan Isobutyltrialkoxysilan.

[0014] Das Organopolysiloxan, das aus wasserlöslichem Aminoalkylalkoxysilan und zumindest einem wasserunlöslichen Alkyltrialkoxysilan, optional mindestens einem weiteren wasserunlöslichen Dialkyldialkoxysilan besteht, wird vorzugsweise unter Säurekatalyse hergestellt. Dabei bedeutet Säurekatalyse vorzugsweise, dass der pH einen Wert zwischen 1 bis 8 aufweist, bevorzugt 3 bis 5.

[0015] In besonders bevorzugter Ausführungsform wird das Organopolysiloxan auf Wasserbasis im Wesentlichen frei von Alkoholen eingesetzt, wobei das Organopolysiloxan herstellbar ist durch Mischen des wasserlöslichen Aminoalkoxysilans mit dem wasserunlöslichen Dialkyldialkoxysilan in Wasser, Einstellen des pH-Werts auf einen Wert zwischen 1 und 8, vorzugsweise 3 bis 5 und Entfernen von Alkohol, vorzugsweise durch Vakuumdestillation. Für die Säurekatalyse bzw. zum Einstellen des pH-Werts können anorganische oder organische Säuren eingesetzt werden, vorzugsweise Ameisensäure oder Essigsäure.

[0016] Eine bevorzugte, wasserbasierte Organopolysiloxan-Zusammensetzung ist aus EP 0 716 128 A2 bekannt und unter dem Namen Dynasilan[®] von der Degussa AG, Deutschland, erhältlich.

[0017] Es ist bevorzugt, dass die Behandlung der lignocellulosischen Fasern über eine längere Zeitdauer stattfindet, beispielsweise über zwei Stunden unter Bewegung. Es ist bevorzugt, dass die Silanisierung der lignocellulosischen Fasern bei von ca. 40 bis 70°C, bevorzugt 40°C durchgeführt wird, was zu einer Erhöhung der in das lignocellulosische Material eingetragenen Menge an Organopolysiloxan führt. Weiterhin ist bevorzugt, dass eine wässrige Formulierung der erfindungsgemäßen Organopolysiloxane bei der Behandlung einen pH von 3 bis 4 aufweist, beispielsweise durch Ameisensäure eingestellt, und durch längeres Mischen der wässrigen Gebrauchslösung vollständig hydrolysiert ist.

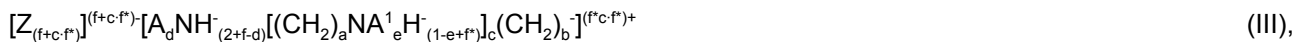
[0018] Alternativ kann eine organopolysiloxanhaltige Zusammensetzung, vorzugsweise auf Wasserbasis, hergestellt werden durch Mischen wasserlöslicher Aminoalkylalkoxysilane der allgemeinen Formel I



im molaren Verhältnis von > 0 bis maximal 2 mit nicht wasserlöslichen Aminoalkoxysilanen der allgemeinen Formel II



wobei R eine aminofunktionelle organische Gruppe der allgemeinen Formel III



darstellt, bei der a und b 1 bis 6 sind, c 0 bis 6 ist, d und e 0 bis 2 sind, f und f* 0 bis 1 sind, A und A¹ einen Benzyl- oder Vinylbenzylrest darstellen, N Stickstoff und Z ein einwertiger anorganischer oder organischer Säurerest ist, wobei R¹, R^{1*} und R^{1**} einen Methyl- oder Ethylrest und R² einen linearen, cyclischen oder verzweigten Alkylrest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder eine Ureido-Alkylgruppe der allgemeinen Formel IV darstellt



und y 0 bis 1 ist,
anschließendes Versetzen des Gemischs mit Wasser,
Einstellen des pH-Werts auf einen Wert zwischen 1 und 8, und
Entfernen des vorhandenen und/oder bei der Umsetzung entstehenden Alkohols.

[0019] Die Erfindung wird nun genauer mit Bezug auf die Figuren beschrieben, in denen

[0020] [Fig. 1](#) die Gewichtszunahme von Fichtenholzspänen nach der Behandlung mit verschiedenen Organopolysiloxanen in Abhängigkeit von der Trocknungstemperatur zeigt und

[0021] [Fig. 2](#) mit verschiedenen Organopolysiloxanen behandelte Holzspäne im Schwimmtest nach 48 Stunden zeigt.

Beispiel 1: Behandlung von lignocellulosischen Fasern mit Organopolysiloxanen.

[0022] Als Beispiel für lignocellulosische Fasern wurden Fichtenholzspäne mit verschiedenen Silanen in Wasser, zur Kontrolle nur in Wasser, suspendiert und gerührt. Dabei wurden die Organopolysiloxane vor Zugabe der Fichtenholzspäne zu einer Konzentration von 3 Gew.-% in Wasser, mit einem Zusatz an Essigsäure auf pH 4 eingestellt, angesetzt und für 30 Minuten gerührt, um eine vollständige Hydrolyse zu gewährleisten. Dabei wurde beobachtet, dass die zunächst entstandene Emulsion zu einer klaren Lösung wurde. Zu dieser Lösung wurden 40 g Späne (10,2 % Feuchtigkeit) gegeben und für 2 Stunden im Horizontalschüttler geschüttelt, anschließend abfiltriert.

[0023] Als Organopolysiloxane wurden Methyltriethoxysilan (Dynasilan MTES), 3-Glycidylxypropyltrimethoxysilan (Dynasilan GLYMO), Propyltriethoxysilan (Dynasilan PTEO), Vinyltrimethoxysilan (Dynasilan VTMO) sowie 3-Aminopropyltriethoxysilan (Dynasilan AMEO) verwendet. Die Organopolysiloxane mit der Bezeichnung Dynasilan sind von der Degussa AG, Marl, Deutschland, erhältlich.

[0024] Aliquots wurden bei 25°C, 60°C bzw. 103°C über 72 Stunden getrocknet. Anschließend wurden die Späne bei 20°C und 25 % relativer Feuchte bis zur Gewichtskonstanz klimatisiert und gewogen. Von jeder Probe wurde das Trockengewicht bzw. die Feuchte durch Trocknen bei 103°C und Wiegen bestimmt.

[0025] Die Ergebnisse der Gewichtszunahme von Fichtenholzspänen sind in [Fig. 1](#) dargestellt, wobei deutlich wird, dass bei der Trocknung bei 20°C und 65°C keine nennenswerten Silanmengen auf die Späne aufgezogen sind, die einer Temperaturbehandlung von 103°C zur Trockengewichtsbestimmung standhalten. Dies wird darauf zurückgeführt, dass bei niedrigeren Temperaturen keine oder nur eine geringere Kondensation der Silane eintrat und diese sich während der anschließenden Trocknung bei 103°C verflüchtigten. Daher ist es bevorzugt, dass lignocellulosische Fasern im Anschluss an die Kontaktierung mit Organopolysiloxanen durch Erwärmen auf eine Temperatur bei oder oberhalb von 80°C behandelt werden.

[0026] Der Gewichtsverlust der Kontrollspäne, die nur in Wasser ohne Organopolysiloxan behandelt wurden, lag bei 1,9 % (103°C).

[0027] In [Fig. 1](#) wird deutlich, dass mit Ausnahme von MTES alle eingesetzten Organopolysiloxane auch bei einer Trocknung bei 103°C zu einer Gewichtszunahme der Fichtenholzspäne führten.

Beispiel 2: Haftvermittlung und Hydrophobierung lignocellulosischer Fasern

[0028] Entsprechend Beispiel 1 behandelte Fichtenholzspäne, wurden in Wasser suspendiert und für 48 Stunden stehengelassen. Dieser so genannte Schwimmtest ist in [Fig. 2](#) dargestellt und macht deutlich, dass die stärkste Hydrophobierung mit Vinyltrimethoxysilan (Dynasilan VTMO), gefolgt von 3-Aminopropyltriethoxysilan (Dynasilan AMEO) erzielt wurde.

[0029] Mit Dynasilan VTMO bzw. Dynasilan AMEO als Organopolysiloxan silanisierte Fichtenholzspäne, sowie mit Wasser behandelte Kontrollspäne wurden mit isotaktischem Polypropylen zu Kompositwerkstoffen verarbeitet. Dabei wurde ein Späneanteil von 60 Gew.-% bei 40 Gew.-% Polypropylen eingesetzt.

[0030] Der Kompositwerkstoff aus silanisierten Fichtenholzspänen und Polypropylen wurde dadurch erzeugt, dass eine mechanische Mischung der silanisierten Fichtenholzspäne mit granuliertem Polypropylen (Polypropylen-Random-Copolymer (statistisch verteiltes Copolymer), Schmelzflußindex nach ISO 1133 (MFI) = $1,8 \pm 0,4$ g/10 min bei 230°C/2,16 kg) im Walzwerk bzw. Walzenstuhl hergestellt und anschließend gepresst wurde. Dazu wurden auf dem Walzwerk aus der Mischung aus granuliertem Polypropylen und silanisierten Fichtenholzspänen bei 180°C und einer Umdrehungszahl von 25 U/min über 5 bis 10 min homogene Walzfelle hergestellt, die anschließend in der Presse (z.B. Plattenpresse „Schwabendan“, Typ Polystat 400A) zunächst ohne Druck über 20 min auf ca. 180°C aufgeheizt und dann für 30 s bei 10 bar gepreßt wurden. Die Abkühlung auf Raumtemperatur erfolgte über 20 min in der Presse bei aufrecht erhaltenem Druck.

[0031] Die mechanischen Eigenschaften wurden anschließend in Anlehnung an die Normen ISO 180 (Kerbschlagzähigkeit), ISO 527-2 (Zugfestigkeit) bzw. ISO 1183-1 (Dichte) bestimmt und sind in der nachfolgenden Tabelle 1 dargestellt.

Tabelle 1: Mechanische Eigenschaften von Kompositwerkstoffen

	Dynasilan VTMO	Dynasilan AMEO	Kontrolle (Wasser)
Kerbschlagzähigkeit (J)	4,37	4,78	4,07
E-Modul (N/mm ²)	3144	3316	3721
Zugfestigkeit (N/mm ²)	25,6	33,8	25,8
Dichte (g/cm ³)	1,08	1,094	1,07

[0032] Die Ergebnisse in Tabelle 1 zeigen deutlich, dass die Kerbschlagzähigkeit erfindungsgemäßer Kompositwerkstoffe gegenüber dem Kontrollwerkstoff mit unbehandelten Fichtenholzspänen deutlich erhöht war, während das E-Modul niedriger lag. Die Zugfestigkeit blieb für die mit Dynasilan VTMO behandelten Fichtenholzspäne annähernd unverändert, während sie für den Kompositwerkstoff der mit Dynasilan AMEO behandelten Fichtenholzspäne deutlich gesteigert war. Die Dichte der erfindungsgemäßen Kompositwerkstoffe war erhöht, was ebenso wie die gesteigerte Kerbschlagzähigkeit und die gleiche bis gesteigerte Zugfestigkeit auf einen engeren Verbund zwischen lignocellulosischen Fasern und Kunststoff hinweist.

[0033] Zur Bestimmung der Einlagerung von Wasser wurden die Kompositwerkstoffe in Anlehnung an die EN ISO62 für 14 Tage in Wasser gelagert, wobei die Gewichtszunahme nach 1, 3, 7 und 14 Tagen bestimmt wurde. Die prozentualen Gewichtszunahmen sind in der nachfolgenden Tabelle 2 dargestellt.

Tabelle 2: Gewichtszunahme durch Wassereinlagerung in Kompositwerkstoffe

	Dynasilan VTMO	Dynasilan AMEO	Kontrolle (Wasser)
Ausgangsgewicht (g)	3,5440	3,7151	3,4980
Gewichtszunahme n. 1 d (%)	1,43	1,67	2,17
Gewichtszunahme n. 3 d (%)	2,24	2,54	3,35
Gewichtszunahme n. 7 d (%)	3,30	3,60	5,03
Gewichtszunahme n. 14 d (%)	4,50	4,53	6,93

[0034] Die Werte der Tabelle 2 zeigen anhand der geringeren Gewichtszunahme bei den erfindungsgemäßen

Kompositwerkstoffen am Beispiel der mit Dynasilan VTMO bzw. Dynasilan AMEO behandelten Fichtenholzspäne im Verbund mit Polypropylen, eine deutlich geringere Wassereinlagerung gegenüber dem Kompositwerkstoff mit unbehandelten Fichtenholzspänen (Kontrolle).

Beispiel 3: Kompositwerkstoff aus Polypropylen und Fichtenholzspänen die mit Dynasilan HS 2909 behandelt sind

[0035] Fichtenholzspäne wurden entsprechend Beispiel 1 mit einer wässrigen Formulierung aus 3-Aminopropyltriethoxysilan und Isobutyltriethoxysilan, kommerziell erhältlich unter der Bezeichnung Dynasilan HS 2909 (Degussa AG, Deutschland) in Konzentrationen von 3, 4, 5 und 7,5 Gew.-% für 12 Stunden unter Schütteln inkubiert. Die Späne wurden anschließend abgeseibt und bei 103°C für 72 Stunden getrocknet.

[0036] Die mit Dynasilan HS 2909 behandelten Fichtenholzspäne wurden zu 60 Gew.-% mit isotaktischem Polypropylen (40 Gew.-%) durch Mischen mit Granulat und anschließender Extrusion zu einem erfindungsgemäßen Kompositwerkstoff verarbeitet. Die mechanischen Eigenschaften sind in der nachfolgenden Tabelle 3 in Abhängigkeit von der eingesetzten Konzentration an Organopolysiloxan (Dynasilan HS 2909) dargestellt.

Tabelle 3: Mechanische Eigenschaften des Kompositwerkstoffs aus isotaktischem Polypropylen mit Fichtenholzspänen behandelt mit Dynasilan HS 2909

	Dynasilan HS 2909 (3 %)	Dynasilan HS 2909 (4,5 %)	Dynasilan HS 2909 (7,5 %)	Kontrolle (Wasser)
Kerbschlagzähigkeit (J)	6,0	6,25	5,72	4,07
E-Modul (N/mm ²)	3274	3441	3449	3721
Zugfestigkeit (N/mm ²)	31,3	34,2	35,7	25,8
Dichte (g/cm ³)	1,09	1,09	1,09	1,07

[0037] Die Werte in Tabelle 3 zeigen, dass zumindest die Kerbschlagzähigkeit und die Zugfestigkeit des Kompositwerkstoffs durch die Behandlung der lignocellulosischen Fasern mit einem erfindungsgemäßen Organopolysiloxan gegenüber der Kontrolle, die nur mit Wasser behandelte Fichtenholzspäne enthielt, verbessert waren.

[0038] Die Einlagerung von Wasser wurde entsprechend Beispiel 2 bestimmt, die Werte sind in der nachfolgenden Tabelle 4 zusammengefasst.

Tabelle 4: Wassereinlagerung in Kompositwerkstoff aus isotaktischem Polypropylen mit Fichtenholzspänen, silanisiert mit Dynasilan HS 2909

	Dynasilan HS 2909 (3 %)	Dynasilan HS 2909 (4,5 %)	Dynasilan HS 2909 (7,5 %)	Kontrolle (Wasser)
Ausgangsgewicht (g)	3,5688	3,6480	3,6231	3,4980
Gewichtszunahme n. 1 d (%)	1,28	1,06	0,98	2,17
Gewichtszunahme n. 3 d (%)	1,93	1,76	1,58	3,35
Gewichtszunahme n. 7 d (%)	2,85	2,56	2,35	5,03
Gewichtszunahme n. 14 d (%)	3,87	3,49	3,2	6,93

[0039] Die Messwerte von Tabelle 4 zeigen, dass die Wassereinlagerung durch die Behandlung mit einem erfindungsgemäßen Organopolysiloxan deutlich verringert wird, wobei bereits die Behandlung mit einer 3 Gew.-% Lösung ausreicht, um die Gewichtszunahme nach 14 Tagen auf einen Wert von kleiner 4 % zu senken, was in etwa der Wasseraufnahme durch isotaktisches Polypropylen ohne Fichtenholzspäne entspricht. Ein höherer Gehalt an erfindungsgemäßen Organopolysiloxanen, beispielsweise erhältlich durch Behandlung der Fichtenholzspäne mit höheren Konzentrationen der erfindungsgemäßen wässrigen Organopolysiloxane, führt zu weiter erniedrigten Werten für die Wassereinlagerung des Kompositwerkstoffs.

Patentansprüche

1. Kompositwerkstoff, der lignocellulosische Fasern und thermoplastischen Kunststoff enthält, **dadurch gekennzeichnet**, dass die lignocellulosischen Fasern mit einer wässrigen Zusammensetzung behandelt sind, die ein Organopolysiloxan umfaßt, das zumindest ein wasserlösliches Aminoalkyltrialkoxysilan und zumindest ein wasserunlösliches Alkyltrialkoxysilan aufweist.

2. Kompositwerkstoff nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das Organopolysiloxan zumindest ein wasserunlösliches Dialkyldialkoxysilan enthält.

3. Kompositwerkstoff nach einem der vorangehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das wasserlösliche Aminoalkoxysilan die allgemeine Formel I

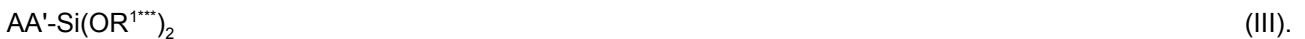


hat und das wasserunlösliche Alkyltrialkoxysilan die allgemeine Formel II



wobei R^1 , R^{1*} und R^{1**} unabhängig ein Methyl- oder Ethylrest ist, R^2 ein linearer, zyklischer oder verzweigter Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen ist und $y = 0$ oder 1 und wobei R eine primäre, sekundäre, tertiäre, bevorzugt quartäre aliphatische oder aromatische Aminogruppe ist.

4. Kompositwerkstoff nach einem der Ansprüche 2 oder 3, dadurch gekennzeichnet, dass das wasserunlösliche Dialkyldialkoxysilan die allgemeine Formel III



aufweist,

wobei R^1 , R^{1*} , R^{1**} und R^{1***} unabhängig ein Methyl- oder Ethylrest ist, R^2 ein linearer, zyklischer oder verzweigter Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen,

A ein unverzweigter oder verzweigter Alkylrest mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und A^1 ein unverzweigter oder verzweigter Alkylrest mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen ist.

5. Kompositwerkstoff nach einem der Ansprüche 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass das wasserlösliche Aminoalkoxysilan die allgemeine Formel I



hat und das wasserunlösliche Alkyltrialkoxysilan die allgemeine Formel II



wobei R eine aminofunktionelle organische Gruppe der allgemeinen Formel III



darstellt, bei der a und b 1 bis 6 sind, c 0 bis 6 ist, d und e 0 bis 2 sind, f und f^* 0 bis 1 sind,

A und A^1 einen Benzyl- oder Vinylbenzylrest darstellen, N Stickstoff ist und Z ein einwertiger anorganischer oder organischer Säurerest ist,

wobei R^1 , R^{1*} und R^{1**} einen Methyl- oder Ethylrest und

R^2 einen linearen, cyclischen oder verzweigten Alkylrest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder eine Ureido-Alkylgruppe der allgemeinen Formel IV darstellt



und y 0 bis 1 ist.

6. Kompositwerkstoff nach einem der vorangehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das Organopolysiloxan 3-Aminopropyltriethoxysilan in Mischung mit Isobutyltriethoxysilan aufweist.

7. Lignocellulosische Fasern zur Verwendung in einem Kompositwerkstoff nach einem der vorangehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die lignocellulosischen Fasern mit einem Organopolysiloxan, erhältlich durch Mischen wasserlöslicher Aminoalkylalkoxysilane der allgemeinen Formel I,



mit einem wasserunlöslichen Alkyltrialkoxysilan der allgemeinen Formel II



und/oder einem wasserunlöslichen Dialkyldialkoxysilan der allgemeinen Formel III



wobei R^1 , R^{1*} , R^{1**} und R^{1***} unabhängig ein Methyl- oder Ethylrest ist, R^2 ein linearer, zyklischer oder verzweigter Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, A ein unverzweigter oder verzweigter Alkylrest mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und A' ein unverzweigter oder verzweigter Alkylrest mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen ist und $y = 0$ oder 1 und wobei R eine primäre, sekundäre, tertiäre, bevorzugt quartäre aliphatische oder aromatische Aminogruppen ist, kontaktiert worden sind und auf eine Temperatur oberhalb 80°C erwärmt worden sind.

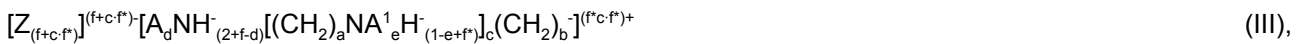
8. Lignocellulosische Fasern zur Verwendung in einem Kompositwerkstoff nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass die lignocellulosischen Fasern mit einem Organopolysiloxan, erhältlich durch Mischen wasserlöslicher Aminoalkylalkoxysilane der allgemeinen Formel I,



mit einem wasserunlöslichen Alkyltrialkoxysilan der allgemeinen Formel II



wobei R eine aminofunktionelle organische Gruppe der allgemeinen Formel III



darstellt, bei der a und b 1 bis 6 sind, c 0 bis 6 ist, d und e 0 bis 2 sind, f und f^* 0 bis 1 sind, A und A^1 einen Benzyl- oder Vinylbenzylrest darstellen, N Stickstoff ist und Z ein einwertiger anorganischer oder organischer Säurerest ist, wobei R^1 , R^{1*} und R^{1**} einen Methyl- oder Ethylrest und R^2 einen linearen, cyclischen oder verzweigten Alkylrest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder eine Ureido-Alkylgruppe der allgemeinen Formel IV



darstellt und y 0 bis 1 ist, kontaktiert worden sind und auf eine Temperatur oberhalb 80°C erwärmt worden sind.

9. Verfahren zur Herstellung eines Kompositwerkstoffs nach einem der Ansprüche 1 bis 6, gekennzeichnet durch die Behandlung lignocellulosischer Fasern mit einem Organopolysiloxan in wässriger Zusammensetzung, erhältlich durch Mischen eines wasserunlöslichen Aminoalkylalkoxysilans der allgemeinen Formel I



mit einem wasserunlöslichen Alkyltrialkoxysilan der allgemeinen Formel II



und/oder einem wasserunlöslichen Dialkyldialkoxysilan der allgemeinen Formel III



wobei R^1 , R^{1*} , R^{1**} und R^{1***} unabhängig ein Methyl- oder Ethylrest ist, R^2 ein linearer, zyklischer oder verzweigter Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, A ein unverzweigter oder verzweigter Alkylrest mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und A' ein unverzweigter oder verzweigter Alkylrest mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen ist und $y = 0$ oder 1 und wobei R eine primäre, sekundäre, tertiäre, bevorzugt quartäre aliphatische oder aromatische Aminogruppe ist, Trocknen der lignocellulosischen Fasern bei einer Temperatur oberhalb 80°C , und Vermischen mit einem thermoplastischen Kunststoff oberhalb der Schmelztemperatur des thermoplastischen Kunststoffs.

10. Verfahren zur Herstellung eines Kompositwerkstoffs nach einem der Ansprüche 1 bis 6, gekennzeichnet durch die Behandlung lignocellulosischer Fasern mit einem Organopolysiloxan in wässriger Zusammensetzung, erhältlich durch Mischen eines wasserunlöslichen Aminoalkylalkoxysilans der allgemeinen Formel I



mit einem wasserunlöslichen Alkyltrialkoxysilan der allgemeinen Formel II



wobei R eine aminofunktionelle organische Gruppe der allgemeinen Formel III

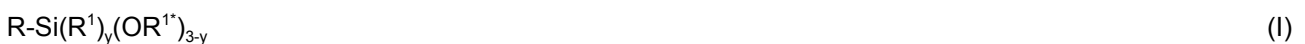


darstellt, bei der a und b 1 bis 6 sind, c 0 bis 6 ist, d und e 0 bis 2 sind, f und f^* 0 bis 1 sind, A und A^1 einen Benzyl- oder Vinylbenzylrest darstellen, N Stickstoff ist und Z ein einwertiger anorganischer oder organischer Säurerest ist, wobei R^1 , R^{1*} und R^{1**} einen Methyl- oder Ethylrest und R^2 einen linearen, cyclischen oder verzweigten Alkylrest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder eine Ureido-Alkylgruppe der allgemeinen Formel IV



darstellt und y 0 bis 1 ist, Trocknen der lignocellulosischen Fasern bei einer Temperatur oberhalb 80°C , und Vermischen mit einem thermoplastischen Kunststoff oberhalb der Schmelztemperatur des thermoplastischen Kunststoffs.

11. Verwendung von Organopolysiloxan in wässriger Zusammensetzung in einem Kompositwerkstoff nach einem der Ansprüche 1 bis 6, erhältlich durch Mischen eines wasserunlöslichen Aminoalkylalkoxysilans der allgemeinen Formel I



mit einem wasserunlöslichen Alkyltrialkoxysilan der allgemeinen Formel II

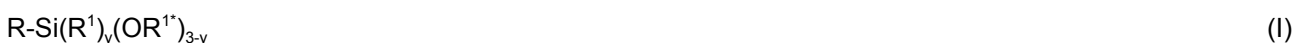


und/oder einem wasserunlöslichen Dialkyldialkoxysilan der allgemeinen Formel III



wobei R^1 , R^{1*} , R^{1**} und R^{1***} unabhängig ein Methyl- oder Ethylrest ist, R^2 ein linearer, zyklischer oder verzweigter Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, A ein unverzweigter oder verzweigter Alkylrest mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen und A' ein unverzweigter oder verzweigter Alkylrest mit 1 bis 3 Kohlenstoffatomen ist und $y = 0$ oder 1 und wobei R eine primäre, sekundäre, tertiäre, bevorzugt quartäre aliphatische oder aromatische Aminogruppen.

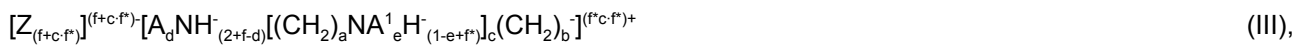
12. Verwendung von Organopolysiloxan in wässriger Zusammensetzung in einem Kompositwerkstoff nach einem der Ansprüche 1 bis 6, erhältlich durch Mischen eines wasserunlöslichen Aminoalkylalkoxysilans der allgemeinen Formel I



mit einem wasserunlöslichen Alkyltrialkoxysilan der allgemeinen Formel II



wobei R eine aminofunktionelle organische Gruppe der allgemeinen Formel III



darstellt, bei der a und b 1 bis 6 sind, c 0 bis 6 ist, d und e 0 bis 2 sind, f und f* 0 bis 1 sind, A und A¹ einen Benzyl- oder Vinylbenzylrest darstellen, N Stickstoff ist und Z ein einwertiger anorganischer oder organischer Säurerest ist, wobei R¹, R^{1*} und R^{1**} einen Methyl- oder Ethylrest und R² einen linearen, cyclischen oder verzweigten Alkylrest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen oder eine Ureido-Alkylgruppe der allgemeinen Formel IV

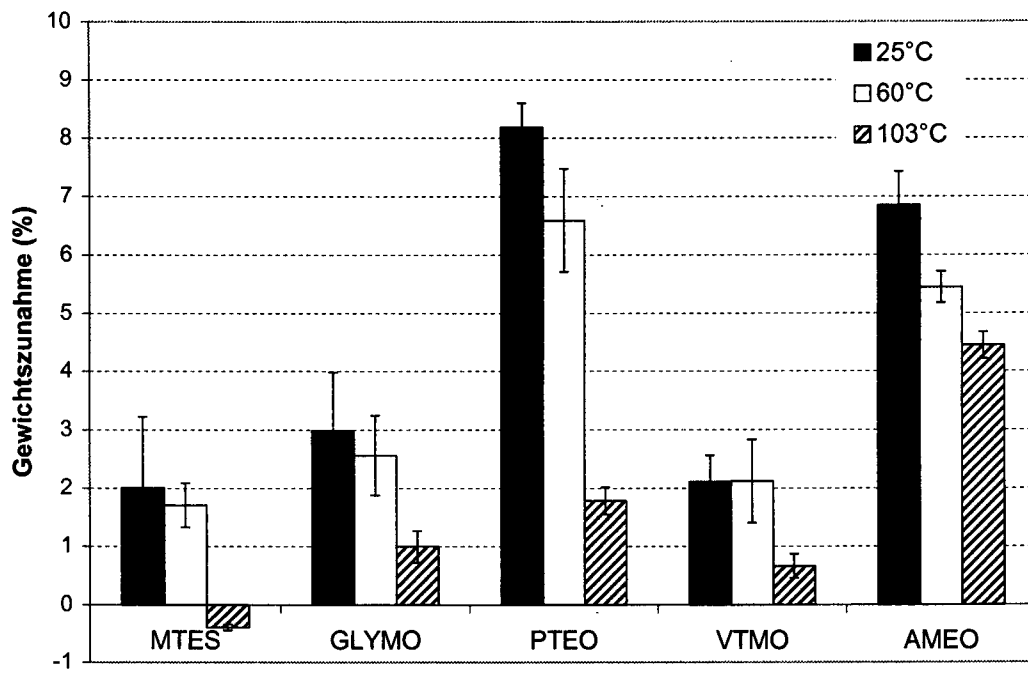


darstellt und y 0 bis 1 ist.

Es folgt ein Blatt Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

Figur 1



Figur 2

