

⑫

# **EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG**

⑰ Anmeldenummer: **78100606.9**

⑸ Int. Cl.<sup>2</sup>: **C 07 D 251/18, C 07 D 251/50,**  
**C 07 D 251/52, C 07 D 251/70,**  
**C 08 G 18/79**

⑱ Anmeldetag: **07.08.78**

⑳ Priorität: **19.08.77 DE 2737402**

⑶ Anmelder: **Bayer Aktiengesellschaft, Zentralbereich**  
**Patente, Marken und Lizenzen Bayerwerk, D-5090**  
**Leverkusen 1 (DE)**

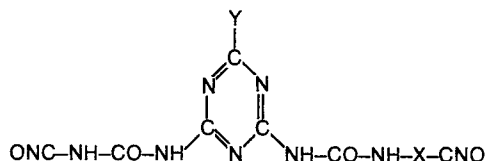
④ Veröffentlichungstag der Anmeldung: **07.03.79**  
**Patentblatt 79/5**

⑦ Erfinder: **Grögler, Gerhard, Dr., von-Diergardt-**  
**Strasse 46, D-5090 Leverkusen (DE)**  
 Erfinder: **Meyborg, Holger, Dr., Bergstrasse 92, D-5068**  
**Odenthal-Gloeibusch (DE)**

⑧ Benannte Vertragsstaaten: **BE DE FR GB**

⑤ **Polyisocyanate, ein Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung.**

⑦ S-Triazin-Ring aufweisende Polyisocyanate der Formel



in welcher

X für einen Rest steht, wie er durch Entfernung der  
 höher-reaktiven Isocyanatgruppe aus einem organischen  
 Diisocyanat der Formel  $\text{OCN-X-NCO}$  mit Isocyanatgruppen  
 unterschiedlicher Reaktivität im Sinne der Isocyanat-Addi-  
 tionsreaktion erhalten wird, und

Y für einen Chlor-, Brom-,  $\text{C}_1\text{--C}_8$ -Alkyl-,  $\text{C}_1\text{--C}_8$ -Alkoxy-,  
 $\text{C}_6\text{--C}_{10}$ -Aryl-,  $\text{C}_6\text{--C}_{10}$ -Aroxy-Rest oder einen Rest der Formel  
 $\text{--NH-CO-NH-X-CNO}$  steht,

ein Verfahren zu ihrer Herstellung durch Umsetzung von  
 s-Triazin-polyaminen mit Diisocyanaten, welche Isocyanat-  
 gruppen unterschiedlicher Reaktivität aufweisen, sowie die  
 Verwendung der neuen Verbindungen als einbaufähige  
 Füllstoffe bei der Herstellung von Polyurethankunststoffen.

**EP 0 000 893 A1**

BAYER AKTIENGESellschaft  
Zentralbereich  
Patente, Marken und Lizenzen

5090 Leverkusen, Bayerwerk  
Wr/bc

Polyisocyanate, ein Verfahren zu ihrer Herstellung und  
ihre Verwendung

Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind die Polyisocyanate gemäß Patentanspruch 1, das Verfahren zu ihrer Herstellung gemäß Patentanspruch 3 und ihre Verwendung gemäß Patentanspruch 5.

5 Es wurde gefunden, daß Melamin und andere Aminogruppen enthaltende s-Triazinderivate mit bestimmten, nachstehend näher beschriebenen Diisocyanaten unter bestimmten, nachstehend näher beschriebenen Reaktionsbedingungen zu neuen Harnstoff-,  
gruppen aufweisenden Polyisocyanaten umgesetzt werden können,  
10 ohne daß eine Kettenverlängerungsreaktion zu entsprechenden Polyharnstoffen eintritt.

Die nach dem erfindungsgemäßen Verfahren zugänglichen erfindungsgemäßen Polyisocyanate entsprechen der allgemeinen Formel des Patentanspruchs 1, wobei X und Y die dort genannte Bedeutung haben. Vorzugsweise steht X für einen Isocyanatgruppen aufweisenden Rest, wie er durch Entfernung der  
15

- im Sinne der Isocyanat-Additionsreaktion höher reaktiven Isocyanatgruppe aus einem aromatischen Diisocyanat mit Isocyanatgruppen unterschiedlicher Reaktivität erhalten werden kann. Besonders bevorzugt steht X für einen 3-Isocyanato-4-methyl-phenyl- oder einen 4-(o-Isocyanato-benzyl)-phenyl-Rest. Y steht vorzugsweise für einen Rest der Formel -NH-CO-NH-X, wobei X vorzugsweise die zuletzt genannte bevorzugte bzw. insbesondere die zuletzt genannte besonders bevorzugte Bedeutung hat.
- 5
- 10 Die erfindungsgemäßen Verbindungen werden hergestellt durch Umsetzung von Aminogruppen aufweisenden s-Triazinderivaten der in Anspruch 3 genannten Formel mit Diisocyanaten der Formel X-NCO, wobei X der in Anspruch 1 genannten Definition bzw. vorzugsweise den zuletzt gemachten Definitionen entspricht, und wobei Y' die in Anspruch 3 genannte Bedeutung hat
- 15 und vorzugsweise für eine H<sub>2</sub>N-Gruppe steht.

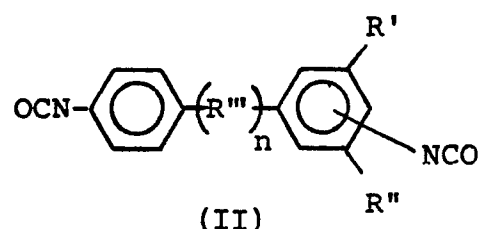
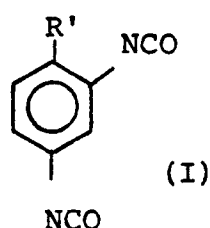
- Für das erfindungsgemäße Verfahren geeignete Diisocyanate X-NCO sind alle beliebigen organischen Diisocyanate, die im Sinne der Isocyanat-Additionsreaktion Isocyanatgruppen unterschiedlicher Reaktivität aufweisen und ansonsten unter den Bedingungen des erfindungsgemäßen Verfahrens inert sind.
- 20

Vorzugsweise werden beim erfindungsgemäßen Verfahren dieser Definition entsprechende aromatische Diisocyanate eingesetzt.

- Zu den bevorzugten aromatischen Diisocyanaten gehören insbesondere solche des Molekulargewichtsbereichs 174-400, welche neben einer freien, d.h. sterisch ungehinderten
- 25

aromatisch gebundenen Isocyanatgruppe eine weitere aromatisch gebundene Isocyanatgruppe aufweisen, welche durch mindestens einen Substituenten in o-Stellung sterisch gehindert ist. Derartige Substituenten, die zu einer sterischen Hinderung der Isocyanatgruppe führen können, sind insbesondere C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl-, C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-Aryl-, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkoxy-, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Thioäther-, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkoxycarbonyl-, Chlor-, Brom-, oder Cyano-Gruppen. Desweiteren ist eine sterische Hinderung der aromatisch gebundenen Isocyanatgruppen dann gegeben, wenn das Grundgerüst des Diisocyanats ein ggf. über Brückenglieder wie Alkylen-, Äther-, Thioäther-, Sulfoxid- oder Sulfongruppen verknüpftes System mehrerer aromatischer Ringe darstellt und die (sterisch gehinderte) Isocyanatgruppe in ortho-Stellung zu dem 2. aromatische Ringe verknüpfenden Brückenglied angeordnet ist.

Geeignete aromatische Diisocyanate sind demzufolge beispielsweise solche der Formeln (I) und (II).



20 wobei

R' und R'' für gleiche oder verschiedene Reste stehen und eine die sterische Hinderung der Isocyanatgruppe bewirkende Gruppe der oben beispielhaft genannten Art darstellen, wobei bei den Produkten der Formel (II) einer der Reste R' bzw. R'' auch für Wasserstoff stehen kann, bzw. wobei in der Formel (II)

auch beide R' und R" für Wasserstoff stehen können, falls die Isocyanatgruppe ortho-ständig zur Brücke R''' bzw. im Falle von n = 0 ortho-ständig zum linken aromatischen Ring angeordnet ist;

- 5 R''' für eine die aromatischen Ringe verknüpfende Brücke der oben beispielhaft genannten Art und  
n für 0 oder 1 steht.

- Es ist auch möglich, beim erfindungsgemäßen Verfahren Gemische aromatischer Diisocyanate einzusetzen, in welchen  
10 aromatische Diisocyanate mit Isocyanatgruppen gleicher Reaktivität wie beispielsweise 4,4'-Diisocyanatodiphenylmethan oder 2,6-Diisocyanatotoluol vorliegen, falls der Anteil derartiger Diisocyanate mit Isocyanatgruppen gleicher Reaktivität eine obere Grenze von 50, vorzugsweise  
15 von 40, Gew.-% bezogen auf das Gesamtgemisch nicht übersteigt.

- Zu den besonders bevorzugten, für das erfindungsgemäße Verfahren geeigneten Diisocyanaten gehören z.B. 2,4-Diisocyanatotoluol, gegebenenfalls im Gemisch mit bis zu  
20 50 Gew.-% bezogen auf Gesamtgemisch an 2,6-Diisocyanatotoluol, 2,4'-Diisocyanatotoluol, gegebenenfalls im Gemisch mit bis zu 50 Gew.-% bezogen auf Gesamtgemisch an 4,4'-Diisocyanatodiphenylmethan. Weiterhin geeignet sind z.B. 2,4'-Diisocyanatodiphenylpropan, 2,4'-Diisocyanatodiphenylsulfid, 2,4'-Diisocyanatodiphenyläther, 2,4'-Diisocyanatodiphenylsulfon, 2,4'-Diisocyanatodiphenylsulfodioxid,  
25 3-Methyl-4,4'-diisocyanatodiphenylmethan, 3-Äthyl-4,4'-diisocyanatodiphenylmethan, 3-Isopropyl-4,4'-diisocyanatodiphenylmethan, 3,5-Dimethyl-4,4'-diisocyanatodiphenylmethan,

3,5-Diäthyl-4,4'-diisocyanatodiphenylmethan oder 3,5-Diisopropyl-4,4'-diisocyanatodiphenylmethan, 3-Carboxymethyl-4,4'-diisocyanatodiphenylmethan, 3-Carboxyäthyl-4,4'-diisocyanatodiphenylmethan

- 5 Für das erfindungsgemäße Verfahren geeignete, obigen Ausführungen entsprechende Aminogruppen aufweisende s-Triazinderivate sind z.B. Melamin, 6-Chlor-2,4-diamino-s-triazin, Benzoguanamin, Acetoguanamin oder Caprinoguanamin. Melamin ist besonders bevorzugt.
- 10 Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens kommen die Reaktionspartner in solchen Mengenverhältnissen zum Einsatz, daß für jede Aminogruppe des s-Triazinderivats mindestens 2 Isocyanatgruppen des Diisocyanats im Reaktionsgemisch vorliegen, wobei sich diese Mengenangabe im Falle der
- 15 Verwendung der obengenannten Gemische ausschließlich auf das Diisocyanat mit NCO-Gruppen unterschiedlicher Reaktivität bezieht. Im allgemeinen wird das s-Triazinderivat in einem Überschuß des vorgelegten Diisocyanats eingerührt und
- 20 die hierbei entstehende Lösung bzw. Dispersion anschließend auf 60-180°C, vorzugsweise 100-160°C, gegebenenfalls unter Zusatz bekannter Urethanisierungskatalysatoren, wie Zinkacetylacetonat, erhitzt, bis der Isocyanatgehalt des Reaktionsansatzes den berechneten Abfall zeigt. Das erfindungsgemäße Verfahrensprodukt fällt hierbei als im über-
- 25 schüssigen Diisocyanat unlöslicher Niederschlag aus.
- Nach Abkühlung des Reaktionsansatzes auf Raumtemperatur können die erfindungsgemäßen Verfahrensprodukte durch Filtration und Waschen, beispielsweise mit einem inerten Lösungsmittel wie Aceton, Chloroform oder Petroläther, in reiner Form erhalten. Die geschilderte Arbeitsweise stellt die
- 30

- mit Abstand bevorzugte Verfahrensweise dar, da bei Verwendung eines NCO/NH<sub>2</sub>-Äquivalentverhältnisses von  $\geq 2:1$ , beispielsweise in Gegenwart inerter Lösungsmittel im allgemeinen keine erfindungsgemäßen Verfahrensprodukte, sondern
- 5 hochvernetzte Umsetzungsprodukte erhalten werden. (Die Mitverwendung von die Verfahrensprodukte nicht lösenden unpolaren Verdünnungsmittel wie z.B. Lösungsbenzinen oder aromatischen Kohlenwasserstoffen wäre allerdings möglich, ist im allgemeinen jedoch überflüssig). Im allgemeinen
- 10 wird der Überschuß der Diisocyanat-Komponente hierbei so gewählt, daß im Reaktionsgemisch für jedes H<sub>2</sub>N-Äquivalent des s-Triazin-Polyamins 3-10 vorzugsweise 5-8 NCO-Äquivalente bezogen auf alle Diisocyanate der Diisocyanat-Komponente vorliegen.
- 15 Die neuen erfindungsgemäßen Verbindungen sind in praktisch allen gängigen organischen Lösungsmitteln schwer- bis unlöslich, ausgenommen z.B. hochpolare, wie Dimethylformamid oder Dimethylsulfoxid. Die neuen Verbindungen sind hochschmelzend und zer-
- 20 setzen sich in der Schmelze. Sie eignen sich als Isocyanatkomponente in Pulverlacken auf Polyurethanbasis und insbesondere als aktive Füllstoffe bei der Herstellung von Polyurethankunststoffen nach dem an sich bekannten Isocyanat-Polyadditionsverfahren. Bei dieser bevorzugten Verwendung der erfindungsgemäßen Verbindungen werden die erfindungs-
- 25 gemäßen Verbindungen vorzugsweise in der zur Herstellung des Polyurethankunststoffes eingesetzten Isocyanat-Komponente dispergiert. Derartige Dispersionen der erfindungsgemäßen Verfahrensprodukte in organischen Polyisocyanaten werden dann in an sich bekannter Weise mit Polyhydroxypolyäthern
- 30 und/oder Polyhydroxypolyestern gegebenenfalls in Kombination mit an sich bekannten Kettenverlängerungsmitteln zu Polyurethankunststoffen, insbesondere Polyurethanelastomeren, verarbeitet, die sich dann dank der Mitverwendung der erfindungsgemäßen Verbindungen durch eine verbesserte Wärme-

standfestigkeit, eine verbesserte Weiterreißfestigkeit, eine verbesserte Bruchdehnung und eine verbesserte Zugfestigkeit auszeichnen.

Falls die Verwendung der erfindungsgemäßen Verbindungen  
5 zur Herstellung derartiger verbesserter Polyurethankunst-  
stoffe beabsichtigt ist, erübrigt sich oft ein Entfernen  
des bei der Herstellung der erfindungsgemäßen Verfahrens-  
produkte im Überschuß eingesetzten Diisocyanats. Vielmehr  
kann die bei der erfindungsgemäßen Umsetzung anfallende  
10 Dispersion der erfindungsgemäßen Verfahrensprodukte im  
Überschuß eingesetzten Ausgangsdiisocyanat direkt zur Her-  
stellung der Polyurethankunststoffe eingesetzt werden. Ge-  
mäß einer bevorzugten Ausführungsform der erfindungsgemäßen  
Verwendung der erfindungsgemäßen Verbindungen werden die  
15 zuletzt genannten Dispersionen mit den in der Polyurethan-  
chemie an sich bekannten Polyätherpolyolen oder Polyester-  
polyolen zu NCO-Gruppen aufweisenden Präpolymeren umgesetzt  
und zwar in solchen Mengenverhältnissen, daß in den ent-  
stehenden NCO-Präpolymeren sowohl vom unmodifizierten Diiso-  
20 cyanat herrührende Isocyanatgruppen als auch die Isocyanat-  
gruppen der erfindungsgemäßen Verbindungen vorliegen. Diese  
NCO-Präpolymeren werden dann mit Kettenverlängerungsmitteln  
beispielsweise einem Diamin der in Beispiel 10 beispielhaft  
genannten Art zum hochmolekularen Polyurethan-Polyharnstoff  
25 umgesetzt, wobei die Menge des Kettenverlängerungsmittels  
entweder so gewählt wird, daß für alle Isocyanatgruppen  
des Präpolymeren inkl. den Isocyanatgruppen der dispergier-  
ten erfindungsgemäßen Verbindungen in erster Näherung eine  
Isocyanat-reaktive Gruppe des Kettenverlängerungsmittels  
30 zur Verfügung steht oder aber so, daß in erster Näherung



- lediglich für die Isocyanatgruppen des Präpolymeren, welche nicht von den erfindungsgemäßen Verbindungen herrühren, Isocyanat-reaktive Gruppen des Kettenverlängerungsmittels zur Verfügung stehen, wobei ein nachträglicher chemischer Ein-
- 5 bau der zunächst dispergierten erfindungsgemäßen Verbindungen durch Tempern der Umsetzungsprodukte bei 100 - 150°C erreicht wird (vgl. Beispiel 10). Insbesondere im erstgenannten Falle der Verwendung in etwa äquivalenter Mengen des Kettenverlängerungsmittels bezogen auf die Ge-
- 10 samtmenge der vorliegenden Isocyanatgruppen empfiehlt sich die Mitverwendung der bekannten Polyurethan-Katalysatoren wie z.B. Dibutylzinndilaurat, Zinndioctoat, Diazobicyclo-octan und/oder Dimethyltetrahydropyrimidin.

Beispiel 1

Eine Mischung aus 1000 g (5,75 Mol) Toluylendiisocyanat (2,4- und 2,6-Isomere im Verhältnis 80:20) und 72,5 g (0,575 Mol) Melamin werden unter kräftigem Rühren 3 Stunden auf 120 bis 130°C erhitzt. Nach dem Abkühlen der Reaktionsmischung wird das Reaktionsprodukt abgesaugt und mit Aceton isocyanatfrei gewaschen. Nach Trocknung im Vakuum fallen 373 g eines farblosen, in organischen Lösungsmitteln extrem schwerlöslichen Produkts an. Ausbeute, berechnet auf ein Additionsprodukt von Melamin und Toluylendiisocyanat im Mol-Verhältnis 1:3, 98 %, Fp = 350-380 (Z).

Analyse: MG 648  $C_{30}H_{24}N_{12}O_6$

	C	H	N
Berechnet	55,4	3,7	26,0
Gefunden	55,6	3,7	26,3

Das Triisocyanat reagiert in der Kälte (RT) nur langsam mit aliphatischen Aminen wie Di-n-butylamin. Der NCO-Wert ist deshalb bei RT erst nach längerer Reaktionszeit feststellbar:

	Titrationszeit (min)	NCO (%)
20	15	5,5
	30	10,8
	60	14,7
	120	19,0

Wenn die Titration bei 50-70°C durchgeführt wird, findet man hingegen schon nach 3 bis 5 Minuten einen NCO-Wert von 19,3 % (berechnet 19,5 %).

Beispiel 2 (Vergleich)

Eine Mischung aus 63 g (0,5 Mol) Melamin und 313 g (1,8 Mol) des Toluylendiisocyanat des Beispiels 1 in 1 l Nitrobenzol wird auf 140°C erhitzt. Nach 45 Minuten ist der Reaktions-  
 5 ansatz nicht mehr rührbar. Er wird mit Aceton verdünnt und abgesaugt. Der getrocknete Niederschlag weist einen NCO-Wert von 2,5 % auf (berechnet 19,5 %).

Beispiel 3 (Vergleich)

31,5 g (0,25 Mol) Melamin und 480 g (3 Mol) 1,3-Phenylendiisocyanat werden 7 Stunden unter kräftigem Rühren auf  
 10 100-140°C erhitzt. Anschließend wird der Reaktionsansatz mit Chloroform verdünnt und abgesaugt. Der im Vakuum getrocknete Niederschlag weist einen NCO-Wert von 10,9 % auf (berechnet 20,8 %).

15 Beispiel 4

31,5 g (0,25 Mol) Melamin und 500 g (2 Mol) eines Diphenylmethandiisocyanats mit ca. 40 % 4,4'-Isomeren und 60 % 2,4'-Isomeren werden 4 Stunden unter kräftigem Rühren auf 100°C  
 20 erhitzt. Anschließend wird der Reaktionsansatz mit Chloroform /Petroläther verdünnt und abgesaugt. Der Niederschlag wird im Vakuum getrocknet. Ausbeute 200 g (91 %). Festpunkt 252-60°C (Zersetzung).

	Analyse (MG 876)	$C_{48}H_{36}N_{12}O_6$		
		C	H	N
	Berechnet	65,8	4,12	19,2
25	Gefunden	65,4	3,90	18,0
	NCO-Wert 13,9 % (theoretisch 14,4 %)			

Beispiel 5 (Vergleich)

Eine Mischung aus 12,6 g (0,1 Mol) Melamin und 250 g (1 Mol) geschmolzenem 4,4'-Diphenylmethandiisocyanat wird auf 120°C erhitzt. Nach 30 Minuten ist der Reaktionsansatz fest.

5 Beispiel 6

7,6 g (0,06 Mol) Melamin und 252 g (1 Mol) 2,4'-Diisocyanato-diphenyläther werden 4 Stunden auf 100°C erhitzt. Anschließend wird der Reaktionsansatz mit Methylenchlorid/Petroläther verdünnt und abgesaugt. Der Niederschlag wird im Vakuum ge-  
10 trocknet. Ausbeute 48 g (91 %). Festpunkt 265-68°C.

Analyse: (MG 882)  $C_{45}H_{30}N_{12}O_9$

	C	H	N
Berechnet	61,2	3,4	19,0
Gefunden	59,8	3,1	18,5

15 NCO-Wert 13,1 % (theoretisch 14,3 %)

Beispiel 7

Zu 7,1 kg (40,8 Mol) 2,4-Toluylendiisocyanat werden bei RT unter Rühren 0,567 kg (4,5 Mol) Melamin zugesetzt. Das Reaktionsgemisch wird auf 125-130°C erhitzt. Nach 2 Stunden  
20 wird auf 80-85°C abgekühlt. Anschließend wird das Melamin-triisocyanat in Form einer feinverteilten Aufschlämmung enthaltende überschüssige 2,4-Toluylendiisocyanat mit 27,31 kg (13,7 Mol) eines difunktionellen Polypropylenglykols (OH-Zahl 56) präpolymerisiert. Nach 4 bis 5 Stunden

bei 80-85°C weist das Präpolymer einen NCO-Wert von 3,2-  
3,4 % auf. Wird die NCO-Bestimmung in der Hitze oder in  
Dimethylsulfoxid-Lösung durchgeführt, wird ein NCO-Wert  
von 4,4-4,6 % bestimmt, da dann auch der NCO-Gehalt  
5 des Melamin-Diisocyanat-Adduktes miterfaßt wird.

Der Feststoffanteil des Präpolymers beträgt 8,4 %, seine  
Viskosität liegt bei 4500 cP (25°C).

#### Beispiel 8

10 14,4 g (0,11 Mol) Melamin und 336 g (1,34 Mol) eines Diphe-  
nylmethandiisocyanats mit ca. 40 % 4,4'-Isomeren- und 60 %  
2,4'-Isomerenanteil werden 4 Stunden unter kräftigem Rüh-  
ren auf 100°C erhitzt. Anschließend werden 1000 g eines  
difunktionellen Polyätherdiols (OH-Zahl 28) bei 80°C zu-  
gesetzt. Nach 3 Stunden bei 90°C weist das Präpolymer einen  
15 NCO-Wert von 3,6 % auf. Sein Feststoffgehalt beträgt 7,4 %.

#### Beispiel 9

20 27,5 g (0,24 Mol) Äthylenglykolmonobutyläther in 100 ml  
Chlorbenzol werden mit 50 g (0,08 Mol) der im Beispiel 1  
isolierten Verbindung vermischt. Der Reaktionsansatz wird  
auf 130°C erhitzt. Er ist nach 90 Minuten nicht mehr rühr-  
bar. Bei Zusatz von 0,5 g Dibutylzinndilaurat unter sonst  
gleichen Bedingungen ist der Reaktionsansatz bereits nach  
20 Minuten nicht mehr rührbar, bei Zusatz von 0,5 g Dime-

thyltetrahydropyrimidin schon nach 14 Minuten.

Das Triisocyanat reagiert also unter den üblichen Bedingungen zum Urethan ab.

### Beispiel 10

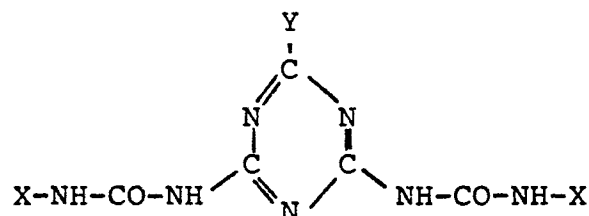
- 5 100 Gew.-Teile des in Beispiel 7 hergestellten, modifizierten NCO-Präpolymeren werden bei 60 bis 80°C im Vakuum entgast und anschließend mit 6 Gew.-Teilen 3,5-Diäthyl-1-methyl-2,4-diaminobenzol innerhalb von 30 Sekunden ver-  
 10 rührt. Je die Hälfte des Reaktionsansatzes wird dann in eine auf 110 bzw. 130°C heiße Metallform gegossen. Die Gießzeit beträgt ca. 2 Minuten. Nach 4 bis 5 Minuten kann der Gießling entformt werden. Nach Temperung bei 110°C (24 Stunden) und bei 130°C werden jeweils die mechanischen Eigenschaften des Elastomers bestimmt:

15	<u>Tempertemperatur</u>		
		110°C	130°C
	Zugfestigkeit (DIN 53504)	7,5 MPa	14,0 MPa
	Bruchdehnung (DIN 53504)	350 %	650 %
	Weiterreißwiderstand (DIN 53515)	170 N	230 N
20	Shore Härte A (DIN 53505)	77	76
	Elastizität (DIN 53512)	60	60

- Aus der Zunahme der Zugfestigkeit, Bruchdehnung und Weiterreißfestigkeit bei gleicher Härte ist erkennbar, daß erst nach Temperung des Elastomeren bei  $\geq 130^{\circ}\text{C}$  der Füllstoff in  
 25 die PU-Matrix eingebaut wird, was in dem verstärkenden Effekt deutlich sichtbar wird.

Patentansprüche

1) Polyisocyanate der Formel



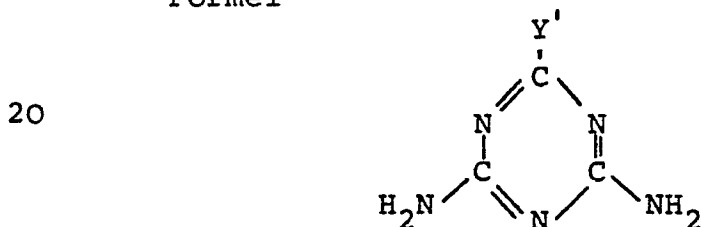
in welcher

- 5 X für einen Rest steht, wie er durch Entfernung der höher-reaktiven Isocyanatgruppe aus einem organischen Diisocyanat mit Isocyanatgruppen unterschiedlicher Reaktivität im Sinne der Isocyanat-Additionsreaktion erhalten wird, und
- 10 Y für einen Chlor-, Brom-, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl-, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkoxy-, C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-Aryl-, C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-Aroxy-Rest oder einen Rest der Formel -NH-CO-NH-X steht.

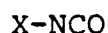
2) Polyisocyanate der Formel gemäß Anspruch 1, für welche

- 15 X für einen 3-Isocyanato-4-methyl-toluyll- oder einen 4-(o-Isocyanatobenzyl)-phenylrest und Y für -NH-CO-NH-X steht.

3) Verfahren zur Herstellung von Polyisocyanaten gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man Polyamine der Formel



mit Diisocyanaten der Formel



in einem molaren NCO/NH<sub>2</sub>-Verhältnis von mindestens 2:1 zur Reaktion bringt, wobei

- 5 X die in Anspruch 1 genannte Bedeutung hat und  
Y' für eine -NH<sub>2</sub>-, -Cl-, -Br-, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl-, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alk-  
oxy-, C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-Aryl- oder C<sub>6</sub>-C<sub>10</sub>-Aroxy-Gruppe steht.
- 4) Verfahren gemäß Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß  
man als Polyamin der genannten Formel Melamin und als  
10 Diisocyanat der genannten Formel 2,4-Diisocyanatotoluol,  
gegebenenfalls im Gemisch mit 2,6-Diisocyanatotoluol,  
und/oder 2,4'-Diisocyanatodiphenylmethan, gegebenenfalls  
im Gemisch mit 4,4'-Diisocyanatodiphenylmethan ver-  
wendet.
- 15 5) Verwendung der Polyisocyanate gemäß Anspruch 1 als ein-  
baufähige Füllstoffe bei der Herstellung von Polyurethan-  
kunststoffen.





EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE			KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int.Cl. <sup>2</sup> )
Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	betrifft Anspruch	
X	DE - A - 2 653 408 (SHELL INTERNATIONALE RESEARCH) * Ansprüche 1,5 *	1,3	C 07 D 251/18 251/50 251/52 251/70 C 08 G 18/79
	--		
	DE - A - 2 436 740 (BAYER) * Anspruch 1 *	3	
	--		
	FR - A - 2 243 936 (ARIES) * Anspruch 8 *	3	
	--		
A	DE - A - 1 943 635 (BAYER)		C 07 D 251/18 251/50 251/52 251/70 C 08 G 18/79
	--		
A	DE - B - 2 032 547 (BAYER)		
	--		
	DE - A - 2 507 682 (BAYER) * Ansprüche *	1,5	
	-----		
			KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE
			X: von besonderer Bedeutung A: technologischer Hintergrund O: nichtschriftliche Offenbarung P: Zwischenliteratur T: der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze E: kollidierende Anmeldung D: in der Anmeldung angeführtes Dokument L: aus andern Gründen angeführtes Dokument &: Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument
<input checked="" type="checkbox"/>	Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt.		
Recherchenort Berlin		Abschlußdatum der Recherche 09-11-1978	Prüfer FROELICH