

	(19) 대한민국특허청(KR) (12) 공개특허공보(A)	(11) 공개번호 10-2013-0042666 (43) 공개일자 2013년04월26일
(51) 국제특허분류(Int. Cl.) B32B 7/02 (2006.01) G02B 5/08 (2006.01) E04D 1/12 (2006.01) (21) 출원번호 10-2013-7009541(분할) (22) 출원일자(국제) 2004년12월13일 심사청구일자 없음 (62) 원출원 특허 10-2006-7014700 원출원일자(국제) 2004년12월13일 심사청구일자 2009년12월10일 (85) 번역문제출일자 2013년04월15일 (86) 국제출원번호 PCT/US2004/041595 (87) 국제공개번호 WO 2005/065153 국제공개일자 2005년07월21일 (30) 우선권주장 10/746,829 2003년12월24일 미국(US)		(71) 출원인 쓰리엠 이노베이티브 프로퍼티즈 컴파니 미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 피.오.박스 33427 쓰리엠 센터 (72) 발명자 앤더슨, 마크 티. 미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 포스트 오피스 박스 33427 플레밍, 피터 비. 미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 포스트 오피스 박스 33427 (뒷면에 계속) (74) 대리인 김영, 장수길

전체 청구항 수 : 총 3 항

(54) 발명의 명칭 에너지 효율성 루핑 과립

(57) 요약

본 발명은 기재, 기재의 외부 표면의 적어도 일부분 상의 제1 반사 코팅(제1 반사 코팅을 갖는 기재는 약 25% 이상의 최소의 직접 일광 반사율 값을 가지게 됨), 및 제1 반사 코팅의 적어도 일부분 상의 제2 반사 코팅(여기에서, 제1 반사 코팅 및 제2 반사 코팅의 조합은 기재에 770 내지 2500 nm의 파장 범위 내의 실질적으로 모든 지점에서 약 20% 이상의 반사도를 제공함)을 포함하는 비-백색 구조물 표면을 제공한다.

(72) 발명자

고울드, 레이첼 에이. 티.

미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 포스트 오피스 박스 33427

그로스, 크리스토퍼 엘.

미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 포스트 오피스 박스 33427

펜더그라스, 다니엘 비. 주니어

미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 포스트 오피스 박스 33427

특허청구의 범위

청구항 1

기재(substrate);

기재 외부 표면의 일부 또는 전체 상의 제1 반사층(반사층과 기재의 조합은 25% 이상 내지 100% 미만의 최소의 직접 일광 반사율 값을 나타냄);

제1 반사층의 일부 또는 전체 상의 제2 반사층(제2 반사층은 향상된 NIR 반사도를 갖는 착색 안료를 포함하고, 제1 반사층 및 제2 반사층의 조합은 기재에 770 내지 2500 nm의 파장 범위 내의 지점들에서 20% 이상 내지 100% 미만의 반사도를 제공함); 및

산화 구리를 포함하는 보존제

를 포함하고,

제1 반사층은 기재와 제2 반사층 사이에 있는, 비-백색 구조물 표면.

청구항 2

기재;

기재 외부 표면의 일부 또는 전체 상의 제1 반사층(반사층을 갖는 기재는 25% 이상 내지 100% 미만의 최소의 직접 일광 반사율 값을 나타냄);

제1 반사층의 일부 또는 전체 상의 제2 반사층(제2 반사층은 향상된 NIR 반사도를 갖는 착색 안료를 포함하고, 제1 반사층 및 제2 반사층의 조합은 기재에 770 내지 2500 nm의 범위에서 측정 시에 7,000 이상의 총 반사율 값을 제공함); 및

산화 구리를 포함하는 보존제

를 포함하고,

제1 반사층은 기재와 제2 반사층 사이에 있는, 비-백색 구조물 표면.

청구항 3

제1 코팅을 기재 외부 표면의 일부 또는 전체에 제공하고;

제1 코팅을 경화하여 기재 상에 제1 반사층을 형성하며(제1 반사층은 25% 이상 내지 100% 미만의 최소의 직접 일광 반사율 값을 나타냄);

코팅된 기재의 일부 또는 전체 위에 향상된 NIR 반사도를 갖는 착색 안료를 포함하는 제2 코팅을 제공하고;

제2 코팅을 경화하여 제2 반사층을 형성하며(기재와 제2 반사층 사이에 있는 제1 반사층 및 제2 반사층의 조합은,

(i) 770 내지 2500 nm의 파장 범위 내의 지점들에서 20% 이상 내지 100% 미만의 반사도; 및

(ii) 770 내지 2500 nm의 범위에서 측정 시에 7,000 이상의 총 반사율 값

중 하나 이상을 제공함);

기판 상에 산화 구리를 포함하는 보존제를 제공하는 것

을 포함하는, 비-백색 구조물 표면의 제조 방법.

명세서

기술 분야

[0001]

본 발명은 외부 표면, 예컨대 아스팔트 쉑글(shingle) 지붕, 지붕 기와, 및 기타 외부 표면 상에 사용하기 위한

일광 반사도를 증진시키기 위한 반사 코팅, 및 그러한 코팅의 유효 수명을 연장시키는 방법에 관한 것이다.

배경 기술

- [0002] 에너지 보존의 목적을 위해, 지붕 및 기타 외부 표면으로부터의 태양 에너지를 반사하는 것이 더욱 바람직하였다. 흡수된 태양 에너지는 건물에서 냉각 에너지 비용을 증가시킨다. 부가적으로, 인구 조밀 구역, 예컨대 대도시 구역에서, 태양 에너지의 흡수는 주변 공기 온도를 증가시킨다. 태양 에너지의 일차적 흡수체는 건물 지붕이다. 대도시 구역의 주변 공기 온도가 주위 시골 구역에서보다 10°F 이상 더 따뜻한 것이 일반적이다. 이 현상은 통상 도시 열 섬 효과로 칭해진다. 태양 에너지를 흡수하기보다 반사시키는 것은 냉각 비용을 감소시킬 수 있고, 이로써 건물에서의 에너지 비용을 감소시킬 수 있다. 부가적으로, 태양 에너지 흡수를 감소시키는 것은 주변 공기 온도를 감소시키는 것을 도움으로써 인구 조밀 구역에서의 삶의 질을 증진시킬 수 있다.
- [0003] 태양 에너지 반사는 금속성 또는 금속 코팅의 지붕재를 사용함으로써 달성될 수 있다. 그러나, 금속성 또는 금속 코팅의 지붕재의 열 방출율이 낮기 때문에, 그러한 물질은 그러한 물질이 방사 열 흐름을 제한하기 때문에 비용 감소 및 에너지 보존에서 상당한 이득을 생성시키지 않는다.
- [0004] 태양 에너지의 반사는 또한 백색 또는 밝은 색 지붕을 사용함으로써 달성될 수도 있다. 그러나, 그러한 경사진 지붕은 미학적 이유에서 시장에서 잘 수용되지 않는다. 대신에, 보다 어두운 색의 지붕이 선호된다. 그러나, 보다 어두운 색의 지붕은 그 자체 성질에 의해 태양 에너지를 보다 높은 정도로 흡수하고, 태양 에너지를 보다 낮은 정도로 반사한다.
- [0005] 평평하지 않거나 경사진 지붕은 전형적으로 청갈의 외부 표면에 부착된 착색된 과립으로 코팅된 청갈을 사용한다. 그러한 청갈은 전형적으로 아스팔트에 매립된 과립을 갖는 아스팔트 기재로 이루어진다. 루핑 과립(roofing granule)은 미학적 이유에서도, 또한 청갈의 하위 기재를 보호하기 위해서도 사용된다. 그러한 과립의 자체 성질은 청갈에 상당한 표면 조도를 발생시킨다. 이로써 일광 복사는 평활한 표면에 놓인 동일 코팅에 비해, 복사가 흡수를 증가시키게 되는 다중 산란 방식으로 산란되기 때문에 반사도가 감소된다는 문제를 겪는다.
- [0006] 구조물 물질은 장착될 때 충분히 높은 태양 에너지 반사도를 가질 수 있으나, 다양한 환경 인자들이 성능을 저하시키는 경향이 있다. 미생물상, 예컨대 조류, 지의류 및 이끼류의 성장은 많은 구역들, 특히 노출 표면이 종종 축축한 구역들에 있어 지붕이 갖는 통상적 문제이다. 다른 영역들에서, 그늘음과 같은 공기 전달 물질의 침착은 감소된 태양 에너지 반사도에 일차적 기여 인자이다. 이 문제들은 당 기술에 의해 방해 외관 문제로 해결되었다.

발명의 내용

해결하려는 과제

- [0007] 보다 어두운 색의 구조물 표면에 대한 심미적 요망과, 백색 또는 근백색 표면의 보다 높은 태양 에너지 거부를 통해 수득될 수 있는 에너지 효율 사이의 충돌은 보다 밝은 색상을 지지하는 타협안을 필요로 한다. 보다 밝은 색상은 "에너지 스타(Energy Star)" 표지를 위해 필요한 것과 같은 초기 일광 반사도를 충족할 수 있으나, 그것은 분진 및 미생물상이 축적됨에 따라 경시적으로 반사도를 소실하는 경향이 있다. 수년간 유용하거나 원하는 수준의 일광 반사도를 유지하는 것은 일반적으로 초기 반사도가 궁극적 목표보다 상당히 더 높아야 하며, 이는 다시 보다 밝고, 보다 덜 바람직한 초기 색상을 요한다는 것을 의미한다.
- [0008] "에너지 스타" 표지 표준의 경우, 이 반사도의 감퇴는 노출 노화 요건을 포함시킴으로써 인지되었다. 가파른 경사 지붕에 대한 초기 일광 반사도는 25% 초과여야 하고, 3년 후에는 15% 초과로 유지되어야 한다. 더욱 더 높은 반사도를 유지하는 것이 바람직하다. 높은 오염 및(또는) 조류 성장에 좋은 수분 조건을 갖는 영역들에서는, 3년 후에 15% 반사도를 보유하기 위해, 더욱 더 높은 초기 반사도, 일부의 예들에서는 30%로 높은 반사도를 갖는 물질을 선택하는 것이 필요할 수 있다. 이는 더욱 더 밝은 색상이 필요하다는 것을 의미하였다.

과제의 해결 수단

- [0009] 본 발명은 기재(substrate), 기재의 외부 표면의 적어도 일부분 상의 제1 반사 코팅(제1 반사 코팅을 갖는 기재는 약 25% 이상의 최소의 직접 일광 반사율 값을 가지게 됨), 및 제1 반사 코팅의 적어도 일부분 상의 제2 반사 코팅(여기에서, 제1 반사 코팅 및 제2 반사 코팅의 조합은 기재에 770 내지 2500 nm의 파장 범위 내의 실질적으

로 모든 지점들에서 약 20% 이상의 반사도를 제공함)을 포함하는 비-백색 구조물 표면을 제공한다.

[0010] 일부 실시양태들에서, 생물학적 성장 억제제 또는 자기 세정 성분이 하나 또는 양자의 구조물 표면 반사 코팅에 포함된다. 다른 실시양태들에서, 생물학적 성장 억제제 또는 자기 세정 성분은 구조물 표면에, 또한 기재, 기재의 외부 표면의 적어도 일부분 상의 제1 반사 코팅(제1 반사 코팅을 갖는 기재는 약 25% 이상의 최소의 직접 일광 반사율 값을 가지게 됨), 및 제1 반사 코팅의 적어도 일부분 상의 제2 반사 코팅(여기에서, 제1 반사 코팅 및 제2 반사 코팅의 조합은 기재에 770 내지 2500 nm의 파장 범위 내의 실질적으로 모든 지점들에서 약 20% 이상의 반사도를 제공함)을 포함하는 비-백색 구조물 표면에 인접하여 제공된다.

[0011] 다른 한 측면에서, 본 발명은 기재, 기재의 외부 표면의 적어도 일부분 상의 제1 반사 코팅(제1 반사 코팅을 갖는 기재는 약 25% 이상의 최소의 직접 일광 반사율 값을 가지게 됨), 및 제1 반사 코팅의 적어도 일부분 상의 제2 반사 코팅(여기에서, 제1 반사 코팅 및 제2 반사 코팅의 조합은 기재에 770 내지 2500 nm(수치 포함)의 범위에서 측정 시에 약 7,000 이상의 총계 반사율 값을 제공함)을 포함하는 비-백색 구조물 표면을 제공한다.

[0012] 일부 실시양태들에서, 생물학적 성장 억제제 또는 자기 세정 성분은 하나 또는 양자의 구조물 표면 반사 코팅에 포함된다. 다른 실시양태들에서, 생물학적 성장 억제제 또는 자기 세정 성분은 구조물 표면에, 또한 기재, 기재의 외부 표면의 적어도 일부분 상의 제1 반사 코팅(제1 반사 코팅을 갖는 기재는 약 25% 이상의 최소의 직접 일광 반사율 값을 가지게 됨), 및 제1 반사 코팅의 적어도 일부분 상의 제2 반사 코팅(여기에서, 제1 반사 코팅 및 제2 반사 코팅의 조합은 기재에 770 내지 2500 nm(수치 포함)의 범위에서 측정 시에 약 7,000 이상의 총계 반사율 값을 제공함)을 포함하는 비-백색 구조물 표면에 인접하여 제공된다.

[0013] 다른 한 측면에서, 본 발명은 무기, 비금속성 기재, 기재의 외부 표면의 적어도 일부분 상의 제1 반사 코팅(코팅된 기재는 약 25% 이상의 최소의 직접 일광 반사율 값을 가지게 됨), 및 제1 반사 코팅의 적어도 일부분 상의 제2 반사 코팅(여기에서, 제1 반사 코팅 및 제2 반사 코팅의 조합은 기재에 (i) 770 내지 2500 nm의 파장 범위 내의 실질적으로 모든 지점들에서 약 20% 이상의 반사도, 및 (ii) 770 내지 2500 nm(수치 포함)의 범위에서 측정 시에 7,000 이상의 총계 반사율 값 중 하나 이상을 제공함)을 포함하는 비-백색 구조물 표면을 제공한다.

[0014] 상기 개요는 본 개시내용의 모든 이행 또는 각기 설명된 실시양태를 기술하고자 의도된 것은 아니다. 하기 발명의 상세한 설명은 본원에 개시된 원칙을 이용하여 특정 실시양태들을 보다 구체적으로 기술하고 예시한다.

발명의 효과

[0015] 본 발명의 한 이점은, 기재의 태양 에너지 반사 성질을 유지하면서 증진된 미학적 특성 및(또는) 연장된 유용 수명을 갖는 구조물 기재를 제공하는 것이다. 구조물 기재의 예에는 지붕 싱글 및 타일이 포함된다. 본 발명의 다른 특성들 및 이점들은 하기 본 발명의 상세한 설명 및 특허청구범위로부터 명백해질 것이다.

[0016] 본 발명은 통상적 루핑 과립에 비해 증진된 일광 반사도를 가지는 지붕재에 사용하기 위한 과립과 같은 코팅된 기재를 포함하는 비-백색 구조물 표면을 포함한다. 증진된 반사도는 먼저 기재 과립에 반사 1차 코팅 또는 하도 코팅을 제공한 후, 하도 코팅 위에 비-백색 안료를 함유하는 2차 코팅을 제공함으로써 획득된다. 일부 실시양태들에서, 안료는 일광 스펙트럼에서 근적외선(NIR)(700 내지 2500 nm) 부분에서 증진된 반사도를 가질 수 있다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0017] 일부 실시양태들에서, 기재는 무기 및 비금속성이다. 루핑 과립이 상세한 설명 전반에 걸쳐 언급될 것이나, 하도 코팅 및 외부 코팅이 유리, 타일, 예컨대 점토 또는 콘크리트 타일, 지붕 물질, 콘크리트, 또는 과립 형태일 수 있으나 그러할 필요는 없는 암석과 같은 다른 구조물 표면에 놓여질 수 있다. 일부 실시양태들에서, 구조물 표면 코팅 안 또는 위에 생물학적 성장 억제제 또는 자기 세정 성분을 포함할 것이다. 일부 실시양태들에서, 생물학적 성장 억제제 또는 자기 세정 성분은 구조물 표면 코팅 자체의 구성성분이 아닌 구조물 표면 코팅에 인접할 것이다. 또 다른 실시양태들에서, 생물학적 성장 억제제 또는 자기 세정 성분은 코팅 양면 및 코팅된 구조물 표면에 인접하여 존재할 것이다.

[0018] 그러한 구조물 표면의 제조 방법이 U.S. 특허출원 No. 10/680,693(2003년 10월 7일 출원)에 기재되어 있다. 이 코팅들은 태양 에너지의 보다 효율적인 반사물이어서, 그것을 이전 코팅물들과 동등한 반사도에서 보다 어두운 색상을 달성하도록 제형할 수 있으나, 그 성능은 여전히 오염되거나 미생물상 성장으로 얼룩짐으로써 저해된다. 구조물 표면 상의 생물학적 성장 억제제 또는 자기 세정 성분 중 하나 이상을 포함함으로써, 초기 반사도가 연

장 시간 동안 유지될 수 있다.

[0019] 일부 실시양태들에서, 생물학적 성장 억제제는 금속 화합물, 특히 산화물, 예컨대 TiO_2 , ZnO , WO_3 , SnO_2 , CaTiO_3 , Fe_2O_3 , MoO_3 , Nb_2O_5 , $\text{TiXZr}_{(1-x)}\text{O}_2$, SiC , SrTiO_3 , CdS , GaP , InP , GaAs , BaTiO_3 , KNbO_3 , Ta_2O_5 , Bi_2O_3 , NiO , Cu_2O , CuO , SiO_2 , MoS_2 , InPb , RuO_2 , CeO_2 , $\text{Ti}(\text{OH})_4$, 또는 이들의 조합으로부터 선택되는 금속 산화물을 포함할 수 있다. 본 발명에서 생물학적 성장 억제제로 유용한 다른 구리 화합물에는 브롬화제2구리, 스테아르산제2구리, 황산제2구리, 황화제2구리, 시안산제1구리, 티오시안산제1구리, 주석산제1구리, 텅스텐산제2구리, 요오드화제2수은제1구리, 및 규산제1구리, 또는 이들의 혼합물이 포함된다. 용어 생물학적 성장 억제제에는 미생물상을 살생하거나 미생물상의 성장을 상당히 지연시키는 물질이 모두 포함된다. 다른 실시양태들에서, 생물학적 성장 억제제는 PCT 공보 WO 2002/10244에 기재된 것들과 같은 유기 성분들을 포함할 수 있다. 일부 실시양태들에서, 살생제 또는 생물학적 성장 억제제는 구조물 표면의 코팅의 일면 또는 양면에 혼입될 수 있다. 다른 실시양태들에서, 그것은 분리된 코팅으로서 적용될 수 있다. 일부 실시양태들에서, 그것은 주기적으로 보충되거나 대체될 수 있다.

[0020] 다른 실시양태들에서, 살생제 또는 생물학적 성장 억제제는 한 별도의 요소로서 구조물 표면 상에 존재할 수 있다. 예를 들어, 3M 컴퍼니(미국 미네소타주 세인트폴 소재)로부터 #7000, #7022, #7050 또는 #7070으로 입수 가능한 구리 함유 루핑 과립을 U.S. 특허출원 No. 10/680,693의 비-백색 반사 과립과 함께 섞어, 비-백색 과립만을 갖는 지붕 청결의 초기 일광 반사도와 근사한 초기 일광 반사도를 가지나, 반사도가 초기 반사도의 임의적으로 선택된 분율보다 더 크게 유지되는 연장된 수명을 제공하는 지붕 청결을 제공할 수 있다. 생물학적 성장 억제제는 전형적으로 연장된 시간동안 생물학적 성장 억제를 제공하기에 유효한 양으로 사용된다. 그러한 시간의 예에는 2 내지 5년, 3 내지 7년, 4 내지 10년, 5 내지 15년, 10년 초과, 15년 초과, 및 20년 초과가 포함된다.

[0021] 대안적으로, 반사 과립은 보다 어두운 초기 색상을 가지도록 재제형될 수 있고, 오염 또는 미생물상 얼룩이 일어나는 임의적 시간 간격 후에 남은 원하는 정도의 반사도를 유지할 것이다.

[0022] 일부 실시양태들에서, 자기 세정 성분은 광촉매를 포함할 수 있다. 광촉매는 활성화 또는 일광 노출 시에 산화 부위 및 환원 부위 모두를 확립한다. 이 부위는 기재 상의 조류의 성장을 방지 또는 억제하거나, 기재 상의 조류의 성장을 억제하는 반응종을 발생시킬 수 있다. 다른 실시양태들에서, 부위는 기재 상의 생물상의 성장을 억제하는 생물종을 발생시킨다. 당업자에 의해 통상적으로 인식되는 광촉매 입자는 본 발명과 함께 사용하기에 적당하다. 적당한 광촉매에는 TiO_2 , ZnO , WO_3 , SnO_2 , CaTiO_3 , Fe_2O_3 , MoO_3 , Nb_2O_5 , $\text{TiXZr}_{(1-x)}\text{O}_2$, SiC , SrTiO_3 , CdS , GaP , InP , GaAs , BaTiO_3 , KNbO_3 , Ta_2O_5 , Bi_2O_3 , NiO , Cu_2O , SiO_2 , MoS_2 , InPb , RuO_2 , CeO_2 , $\text{Ti}(\text{OH})_4$, 또는 이들의 조합이 포함되나, 이들에 제한되지 않는다. 일부 실시양태들에서, 전이금속 산화물 광촉매는 나노결정성 아나타제 TiO_2 이다. 광촉매 요소는 또한 휘발되거나 용이하게 행구어 제거되는 물질로 전환시키는 유기 오염물과 반응하는 반응종을 발생시킬 수 있다.

[0023] 반사 일차 또는 하도 코트, 및 비-백색 안료를 함유하는 2차 코팅 또는 외부 코팅으로 코팅된 기재 미네랄을 포함하는 루핑 과립은 단일 코팅을 갖는 유사 가시적 색상의 과립에 비해 증진된 일광 반사도를 나타낸다는 것이 밝혀졌다. 일부 실시양태들에서, 얻어지는 일광 반사도는 관심 파장에서 20% 이상 초과한다. 25% 이상의 일광 반사도 값은 "에너지 스타"의 표제 하의 프로그램으로 U.S. 환경보호국(EPA)이 제시하는 본 가파른 경사의 지붕 일광 반사도 표준을 충족한다. 일광 반사도 및 직접 일광 반사율이라는 용어는 본 명세서에서 상호 교환적으로 사용된다. EPA는 제조업자에게 특정 에너지 규격을 충족하는 상기 지붕 제품들에 대해 명칭 "에너지 스타"를 사용하도록 허용한다.

[0024] 일부 실시양태들에서, 본 발명은 이전 착색제에 비해, 일광 스펙트럼의 NIR 부분에서의 증진된 반사도를 나타내는 착색 안료를 이용한다. NIR은 태양의 입사 에너지의 대략 50 내지 60%를 포함한다. 일광 스펙트럼의 NIR 부분에서의 향상된 반사도는 에너지 효율의 상당한 이득을 초래하고, 그러한 안료는 본 발명의 일부 실시양태들에서 유용하다.

[0025] 직접 일광 반사율은 ASTM 방법 G159에 정의된 일반 절차의 변형에 따라 계산된 대로 300 내지 2500 nm의 파장 범위 내에서의 복사측에 수직인 표면에 수취된 입사 일광 복사의 반사 분율을 의미한다. ASTM 방법 G159로부터의 직접적 및 반구형 일광 조사 에어 매스(Solar Irradiance Air Mass) 1.5 데이터를 조합하는, 로렌스 버클리 라보라토리(Lawrence Berkley Laboratory)(미국 캘리포니아주 버클리 소재)로부터의 요청 시에 입수가능한 스프

레드시이트를 사용하여, 관심 영역에서 5 nm 간격으로 삽입 조사 데이터를 계산하였다. 5 nm 간격 데이터를 사용하여, 개별 조사를 300 내지 2500 nm의 총계 조사로 나눔으로써 가중치 부여 인자를 산출하였다. 이어서, 가중치 부여 인자를 5 nm 간격에서 취해진 실험적 반사율 데이터와 곱하여, 상기 파장들에서의 직접 일광 반사율을 획득하였다.

[0026] 총계 반사율 값이란, 770 및 2500 nm(수치 포함) 범위에서의 5 nm 간격으로 측정된 구별된 백분율의 반사율의 수치값의 합을 의미한다.

[0027] CIELAB는 그 값에 있어 균일한 색안 간격을 보다 잘 나타낸 모델로서 1976년에 CIE에 의해 채택된 2가지 시스템 중 2번째이다. 색 대비는 시신경과 뇌 사이의 어느 부분에서 망막 색 자극이 명과 암, 적색과 녹색 및 청색과 황색 간의 구분으로 해석된다. CIELAB는 3개 축, 즉 L^* , a^* 및 b^* 에서의 상기 값을 가리킨다. 중심 수직축은 0(흑색) 내지 100(백색) 사이에 운용되는 값들을 갖는 명도(L^* 로 표시됨)를 나타낸다. 색 축은 적색과 녹색, 및 청색과 황색은 상호 반대되기 때문에, 색이 적색 및 녹색 모두, 또는 청색 및 황색 모두가 될 수 없다는 사실에 기초한다. 각 축에서, 값은 양에서 음으로 운용된다. $a-a'$ 축에서, 양의 값은 적색의 양을 가리키고, 한편 음의 값은 녹색의 양을 가리킨다. $b-b'$ 축에서, 황색은 양이고, 청색은 음이다. 양 축 모두에 있어, 0은 중간조의 회색(neutral gray)이다.

[0028] 본원의 목적 상, 방정식:

[0029]
$$-(L^*) + [(L_0^*) + (y(a^*)^2 + z(b^*)^2)^{0.5}]/x] \leq 0$$

[0030] (식 중에서, $L_0^*=67$, $x=1.05$, $y=1.0$, $z=1.0$ 이고, 값 L^* , a^* 및 b^* 는 CIE $L^*a^*b^*$ 스케일로 정의됨)에 의해 정의되는 반전된 원뿔 부피 내에 속하는 색상을 갖는 물품은 백색인 것이라 하고, 원뿔을 벗어나는 색을 갖는 물품은 비-백색인 것이라고 한다.

[0031] 수직 L^* 축에 근접하는 원뿔 내에 속하는 백색에 상응하는 색 공간의 값은 a^* 및 b^* 축 중 어느 하나 또는 양자를 따른 적은 전위로 표시되는 바대로 강한 색이 아니며, L_0^* 초과와 L^* 에 의해 표시되는 바와 같이 비교적 높은 명도를 가진다. L_0^* 은 원뿔의 꼭지점이다. 본원의 목적 상, "보다 어두운 색"은 비교되는 물품과 관련된 L^* 값보다 적어도 약 1 단위 더 낮거나, 바람직하게는 약 2 단위 더 낮은 L^* 값을 가짐을 의미한다.

[0032] 지붕 성글과 같은 역청질 시이트 물질이 본 발명의 과립을 이용하여 제조될 수 있다. 지붕 성글은 전형적으로 펠트, 유리섬유 등과 같은 물질을 포함한다. 아스팔트와 같은 포화제 또는 함침제의 적용은 펠트 또는 유리섬유 기재를 전체적으로 투과하기 위해 필수적인 것으로 판단된다. 전형적으로, 함침된 기재 위에 방수 또는 내수성 코팅, 예컨대 아스팔트가 적용되고, 그 위에 다시 미네랄 과립의 마무리 면을 적용하여, 통상적 지붕 성글을 완성한다.

[0033] 각종 다른 층들, 예를 들어, 내후성 또는 내충격성에 유용한 필름, 반사 필름 등이 사용될 수 있다.

[0034] 하기 실시예는 본 발명의 측면들을 더욱 설명하기 위해 제공된다. 실시예는 본 발명의 범주를 결코 제한하는 것으로 의도되지 않는다.

[실시예]

[0036] 시험 방법 1

[0037] PELA-1000 적분구 부착장치가 장착된 퍼어킨 엘머(Perkin Elmer) 램다 900 분광광도계로 반사율을 측정하였다. 이 구는 직경이 150 mm(6 인치)이고, ["ASTM Standards on Color and Appearance Measurement", 제3판, ASTM, 1991]에 공개된 ASTM 방법 E903, D1003 및 E308에 따른다. 확산 광 반사율(DLR)은 250 내지 2500 nm의 스펙트럼 범위에 걸쳐 측정되었다. UV-가시광 통합을 0.44초로 설정하였다. 슬릿 폭은 4 nm이었다. "포획(trap)"을 이용하여 거울 반사율에서 비롯되는 복잡 문제들을 제거하였다.

[0038] 모든 측정들은 샘플 앞에 또는 표준 백색 플레이트 앞에 투명하고 광학적으로 평평한 융합 실리카(석영)를 이용하여 행해졌다. 약 50 mm의 직경 및 약 10 mm의 깊이를 갖는 컵을 특징화하려는 과립으로 채웠다.

[0039] **시험 방법 2**

[0040] 샘플 홀더가 장착된 랩스캔(Labscan) XE 분광광도계(헌터 어소시에이츠 라보라토리(Hunter Associates Laboratory)(미국 버지니아주 레스톤 소재)를 이용하고, 측정을 위해 균일하게 평평한 수준 표면을 확실히 제조 되도록 다각 물러를 이용하여, $L^*a^*b^*$ 색을 측정하였다. 측정된 값들이 과립에 기인함을 확실히 하기 위해, 홀더를 약 5 mm의 깊이까지 채웠다. 샘플 홀더 및 샘플 제조에 대한 보다 상세한 설명은 U.S. 특허 No. 4,582,425를 참고한다.

[0041] **시험 방법 3**

[0042] 시험하려는 과립을 스크리닝하여, 16 메쉬를 통과하고 20 메쉬 US 표준 스크린 슬리브에 보유된 사이즈 컷을 제공하였다. 15 그램(g)의 스크리닝된 과립을 폴리에틸렌 스냅-링, 홀딩 링, 31 mm 직경의 말단 개방형 컵(스펙스 서티프레프(Spex CertiPrep)(미국 뉴저지주 메투첸 소재)에 넣음으로써, 스크리닝된 구리의 초기 구리 함량을 구하였다. 조립된 샘플 컵의 기저부를 0.2 mil(5 마이크로미터) 두께, 2 7/8 인치 폭(7.3 cm)(스펙스 서티프레프(미국 뉴저지주 메투첸 소재)의 폴리프로필렌 윈도우 필름으로 라이닝하였다. 태핑하거나 그와 다르게 과립이 컵에서 재배치되지 않도록 주의하면서, 컵을 60 mCi Cm-244 여기원으로 설정된 표면 분석 탐침기가 장착된 XMET 880 X-선 형광(XRF) 기기(메토렉스(Metorex)(미국 뉴저지주 에빙 소재)의 탐침기에 두었다. 샘플링 시간은 20초로 설정되었다. 기기를 기지의 구리 함량의 일련의 과립들로 보정하였고, 데이터를 g/미터 톤의 단위로 기록한다.

[0043] 50 그램의 스크리닝된 과립을 200 mL의 비등 5% $Al_2(SO_4)_3$ 이 포함된 500 mL 엘른마이어 플라스크에 두었다. 과립이 정확히 3분 동안 황산알루미늄 용액에서 비등하도록 하였다. 이어서, 플라스크를 핫플레이트에서 제거하였고, 상등액을 즉시 데칸테이션하였다. 플라스크에서 과립이 전혀 소실되지 않도록 주의하였다. 각 데칸테이션에서 과립 소실이 없도록 주의하면서, 과립을 200 mL의 탈이온수로 3번 행구었다. 과립을 230°F(110°C)에서 12분 동안 오픈 내의 건조대에 있는 종이 타월에 두었다. 이어서, 과립을 오픈에서 제거하여 냉각시켰고, 시험 방법 3B에 따라 최종 구리 함량을 다시 구하였다. 여기 전 및 후의 XRF 읽은 값들의 차이를 걸러진 양(Leached Amount)으로 기록한다. 단위는 kg/미터 톤이다.

[0044] **시험 방법 4**

[0045] 과립의 상대적 광촉매 활성을, 과립 내 또는 상에서의 UV-조사 광촉매에 의해 히드록실 라디칼이 생성되는 속도를 가리키는 급속 화학 시험을 통해 구하였다. 이 시험의 결과는, 현장 시험에서 루핑 과립의 광촉매 성능과 상관관계가 있는 것으로 나타났다.

[0046] 대략 40 g의 피험 과립을 칭량하고, 탈이온수로 세척하여, 건조시키고, 500 mL의 결정화 디쉬로 옮겼다. 과립을 디쉬 바닥에 균일하게 전착시켰다. 디쉬에 500 g의 4×10^{-4} M 테레프탈산이 나트륨 수용액을 첨가하였다. 과립 상에 있는 수중 작은 페트리디쉬의 바닥에 놓은 자기 교반바에 의해 교반하였다. 작은 페트리디쉬는 교반바에 의한, 에러 활성이 임해지도록 할 수 있는 현탁 입자를 초래하는 과립 코팅의 가능한 마모를 방지하는 작용을 하였다. 큰 결정화 디쉬를, 2개의 특별히 설계된 발라스트(ballast)(악티온 랩스 인코포레이티드(Action Labs, Inc.)(미국 위스콘신주 우드빌 소재)에 의해 가동되는 4개의 동등 간격의 4 ft(1.2 m) 길이의 흑광 전구(실바니아(Sylvania) 350 BL 40W F40/350BL)로 구성된 UV 광의 बैं크 하에 자기 바에 두어, 방출광의 강도를 증가시켰다. $\sim 2.3 \text{ mW/cm}^2$ UV 플럭스가 제공되도록 전구의 높이를 조정하였다. UVA 라디오미터 모델 UVA365이 장착된 VWR(미국 펜실베이니아주 웨스트체스터 소재) UV 노출계(모델 21800-016) 및 광역 파장 320 내지 390 nm를 이용하여, 밝은 플럭스를 측정하였다. 조사 중에, 대략 3 mL의 용액을 피펫으로 대략 5분 간격으로 제거하여, 일회용 4-윈도우 폴리메틸메타크릴레이트 또는 석영 큐벳에 옮겼다. 큐벳 내의 샘플을 플루오로맥스(Fluoromax)-3 형광분광계(스펙스 플루오레슨스 그룹(SPEX Fluorescence Group), 조빈 이본 인코포레이티드(Jobin Yvon, Inc.)(미국 뉴저지주 에드슨 소재)에 두었다. λ_{ex} 314 nm, λ_{em} 424에서의 샘플의 형광 강도를 샘플 조사 시간 대비 플로팅하였다. 상이한 루핑 과립 제형들에 대한 형광 강도 대 시간 플롯을 비교를 위해 동일 도면에서 플로팅할 수 있다. 곡선의 선형 부분의 기울기(초기 3 내지 5개 데이터 점의 기울기)는 상이한 과립 제형들의 상대 광촉매 활성을 가리킨다.

[0047] **과립 코팅 방법**

[0048] 표 1 내지 3에 나와 있는 슬러리 성분들을 수직 믹서에서 조합하였다. 1000 중량부의 기재를 90 내지 95℃로 예비가열한 후, 수직 또는 수평 믹서에서 지시량의 슬러리와 조합하였다. 실시예 1은 등급 #11의 비코팅 루핑 과립을 기제로 사용하였다. 실시예 2 내지 4는 실시예 1에서와 같이 제조된 과립을 기제로 사용하였다. 이어서, 슬러리로 코팅된 과립을 약 10분의 시간에 걸쳐 실시예 3에서는 850℃, 나머지 실시예들에서는 750 내지 850℃에 도달하는 회전 가마(천연가스/산소 화염)에서 연소시켰다. 연소 후에, 과립을 실온으로 냉각시켰다.

[0049] **시험 방법 5**

[0050] 이하 기재되는 영양 배지에서 유지된, 미국 플로리다에 있는 아스팔트 침글로부터 배양된 단세포 녹조류인 네오클로리스(*Neochloris*)의 배양물을 실험실 조류 도전 시험에 사용하여, 모의 침글 기재에 접종된 조류의 생육성을 결정하였다. 조류 도전 시험을 24℃±2℃에 유지된 환경실(주행 인큐베이터 모델 #RI-50-555-ABA; 레브코(REVCO)(미국 노스캐롤라이나주 애쉬빌 소재))에서 수행하였다. 라이트 사이클을, 광은 16시간 동안, 암은 8시간 동안 유지되도록 설정하였다. 10 g의 용융 아스팔트 내에 매립된 대략 2 g의 루핑 과립을 함유하는 작은 페트리디쉬를 제조하였다. 조류 시험을 개시하기 전에 매립된 과립을 탈이온수로 3회 세척하고 건조시켰다. 각 과립 유형의 두 세트를 제조하였다.

조류 성장 배양 영양 배지

화학 성분	g/L
NH ₄ NO ₃	0.071
KH ₂ PO ₄	0.068
Na ₂ HPO ₄	0.071
MgSO ₄ · 7H ₂ O	0.0075
Na ₂ CO ₃	0.002
CaCl ₂ · 2H ₂ O	0.0027
FeCl ₃ · 6H ₂ O	0.000054
H ₃ BO ₄	0.000286
MnCl ₂ · 4H ₂ O	0.00018
ZnSO ₄ · 7H ₂ O	0.000022
NaMoO ₄ · 2H ₂ O	0.000039
CuSO ₄ · 5H ₂ O	0.000008
Co(NO ₃) ₂ · 6H ₂ O	0.000005
NaOH (1 N)	pH를 6.8-7.0으로 조정

[0051]

[0052] 네오클로리스 조류의 2주령 조류 현탁액을 50 mL의 무균 원심분리관에 폴딩하였고, 200 내지 300 g에서 15분간 원심분리하여 균체를 펠렛화하였다. 균체를 MnCl₂를 사용하지 않고 제조된 영양 배지에 재현탁시키고, 다시 원심분리하였다. 균체를 MnCl₂ 없이 제조된 30 mL의 배지에 재현탁시켰고, 이를 다시 과립 디쉬에 접종하기 위해 사용하였다. 2 mL의 이 희석되고 약간 담녹색이며 세척된 조류 균체 현탁액을 각 디쉬에 첨가하였고, 디쉬를 UV 투명 zip-락(zip-lock) 비닐봉지에 두었다. 디쉬들의 한 세트를 UV 램프 하에 두었고, 다른 것들은 표에 기재된 바와 같은 냉 백색 형광 램프 하에 두었다. 빛 강도를 시험 방법 4에 기재된 UV 노출계를 이용하여 측정하였다. 또한, 유니버설 엔터프라이즈 인코포레이티드(Universal Enterprises, Inc.)(미국 오레곤주 베아버톤 소재)의 노출계 모델 DLM2를 이용하여 가시광 강도를 측정하였다.

램프 유형	UV광 강도	가시광 강도
실바니아 350 블랙 라이트 F20T12/350BL 20W	271 μW/cm ²	1340 럭스
실바니아 쿨 화이트 F20T12/CW 20W	6.5 μW/cm ²	1945 럭스

[0053]

[0054] 매일 수분 수준을 체크하여, 필요한 경우 보충하였다. 7일째에, 대조군이 조류의 녹색이 가시적일도록 하기에 충분한 성장을 가져왔는지 확인하기 위해 디쉬를 체크하였다. 충분한 성장이 존재하는 경우, 시험을 종료하였

고, 주관적 평가를 이용하여 효율도를 결정하였다. 과립에서 가시적인 녹색이 없는 디쉬에서, 입체현미경을 사용하여, 임의의 조류가 과립 또는 아스팔트 상에서 성장하고 있는지를 결정하였다. 대조군에서의 성장이 경미한 경우, $MnCl_2$ 없이 제조된 1 mL의 영양 배지를 각 디쉬에 첨가하여, 균체를 효율 평가를 수행하기 4일 전에 다시 성장시켰다.

[0055] **재료**

[0056] 실시예에서 하기 물질들을 사용하였다:

[0057] PQ 코포레이션(미국 펜실베이니아주 벨리포지 소재)으로부터 입수가 가능한 규산나트륨 용액(39.4% 고형분, 2.75의 $SiO_2:Na_2O$ 비)

[0058] 카울린 점토(유니민 코포레이션(Unimin Corp.)(미국 코네티컷주 뉴카나안 소재)으로부터 스노브라이트(Snobrite)TM로 입수가 가능함),

[0059] 도버 점토(Dover Clay), 카울린 점토(W.R. 그레이스 컴퍼니(W.R. Grace Company)(미국 매릴랜드주 콜롬부스 소재)로부터 입수가 가능함),

[0060] 보락스(붕산나트륨, 5 Mol, 전형적 조성: 21.7% Na_2O , 48.8% B_2O_3 및 29.5% H_2O)(U.S. 보락스(U.S. Borax)(미국 캘리포니아주 보론 소재)로부터 입수가 가능함),

[0061] 이산화티탄(트로녹스(Tronox)[®] CR-800, 전형적 조성: 95% TiO_2 , 알루미늄 처리)(케르-맥기 코포레이션(Kerr-McGee Corp.)(미국 미시시피주 해밀턴 소재)으로부터 입수가 가능함),

[0062] 안료(10411 골든 옐로우, 10241 포레스트 그린, V-3810 레드, V-9250 브라이트 블루)(페로 코포레이션(Ferro Corp.)(미국 오하이오주 클레브랜드 소재)으로부터 입수가 가능함),

[0063] (ASTM D451에 따라) 하기 범위에 의해 특정되는 등급 #11 비코팅 루핑 과립(3M 컴퍼니(미국 미네소타주 세인트폴 소재)로부터 입수가 가능함):

[0064] WA9300 오일 비함유 백색 루핑 과립(3M 컴퍼니로부터 입수가 가능함)

[0065] 크로노스(Kronos) 1000 이산화티탄(크로노스 인코포레이티드(Kronos, Inc.)(미국 메사추세츠주 챔스포드 소재)로부터 입수가 가능함)

[0066] FC-129(불소화합 계면활성제)(3M 컴퍼니(미국 미네소타주 세인트폴 소재)로부터 입수가 가능함)

[0067] LR7070 구리 방출 루핑 과립(3M 컴퍼니로부터 입수가 가능함)

[0068] **실시예 1 내지 3**

[0069] 표 1에 열거된 과립 코팅 방법 및 코팅 성분을 이용하여 과립을 제조하였다. 양은 달리 언급하지 않는 한, 그램이다.

[0070] [표 1]

성분	실시예 1	실시예 2	실시예 3
비코팅 과립	2000	2000	2000
규산나트륨(PQ 코포레이션)	40	40	56
물	15	15	26.4
카울린 점토(스노브라이트)	20	20	---
도버 점토(W.R. 그레이스)	---	---	25
트로녹스 [®] CR-800	2	---	10
페로(Ferro) 10550 브라운(페로)	0.5	0.5	---
페로 10415 옐로우 포레스트 그린(페로)	2.5	2.5	---
페로 V-13810 레드(페로)	0.075	0.075	---
페로 12650 카모 그린(Camo green)(페로)	0.25	0.25	---
보락스 [®] (U.S. 보락스 인코포레이티드)	1	1	1.3
크로노스 1000 이산화티탄	---	20	---
FC-129	-----	-----	0.03
Cu_2O	-----	-----	70

[0071]

[0072] 표 2에 열거된 코팅 성분을 이용하여 과립 코팅 방법에 따라, 실시예의 과립들 중 일부에 2차 코팅을 제공하였다. 양은 달리 언급하지 않는 한, 그램이다.

[0073] [표 2]

성분	실시예 1	실시예 2	실시예 3
규산나트륨 (PQ 코포레이션)	---	---	56
물	---	---	26.4
트로낙스® CR-800	---	---	1.3
도버 점토(W.R. 그레이스)	---	---	25
보락스® (U.S. 보락스 인코포레이티드)	---	---	1.3
FC-129	---	---	0.03
Cu ₂ O	---	---	25

[0074]

[0075] 표 3에 열거된 코팅 성분을 이용하여 과립 코팅 방법에 따라, 실시예의 선택된 과립에 3차 코팅을 제공하였다. 양은 달리 언급하지 않는 한, 그램이다.

[0076] [표 3]

성분	실시예 1	실시예 2	실시예 3
규산나트륨 (PQ 코포레이션)	---	---	40
물	---	---	15
트로낙스® CR-800	---	---	2
카울린 점토(W.R. 그레이스)	---	---	20
보락스® (U.S. 보락스 인코포레이티드)	---	---	1
페로 10550 브라운(페로)	-----	-----	0.5
페로 10415 옐로우 포레스트 그린(페로)	---	---	2.5
페로 V-13810 레드(페로)	---	---	0.075
페로 12650 카모 그린(페로)	---	---	0.25

[0077]

[0078] 실시예 4

[0079] 실시예 4는 90 wt%의, 실시예 1의 과립 및 10 wt%의, 3M 컴퍼니로부터 LR707로 입수가 가능한 구리 방출 과립의 배합물이었다.

[0080] 대조군은 90 wt%의, 3M 컴퍼니로부터 입수가 가능한 오일 비함유 WA9300 루핑 과립, 및 10 wt%의, 3M 컴퍼니로부터 LR707로 입수가 가능한 구리 방출 과립의 배합물이었다. 이 과립 배합물은 WA9300 단독과 함께, 조류 성장 억제 시험(방법 5)을 위한 공지 성능을 제공하였다. WA9300 단독은 조류가 성장하는 것으로 예기되었고, 한편 배합된 과립은 조류 성장을 억제하는데 효과적인 것으로 알려져 있다.

[0081] 시험 방법 1 내지 5에 따른 시험 결과가 표 4에 요약되어 있다.

[0082] [표 4]

	실시예 1	실시예 2	실시예 3	실시예 4	대조군	WA9300
L*	60.99	59.63	50.82	60.08	---	---
a*	3.26	5.23	4.57	2.77	---	---
b*	14.07	14.78	9.63	12.71	---	---
기계충 일광 반사율 (방법 1)	30	29	25	---	---	---
과립 직접 일광 반사율 (방법 1)	29	29	25	29	---	---
최소의 과립 일광 반사율(방법 1)	22.50	16.62	23.78	22.47	---	---
총계 반사율(방법 1)	9801.3	9290.5	10248.6	9910.3	---	---
걸러진 양(방법 3)	---	---	1.5	---	---	---
초기 기울기(방법 4)	---	---	6.1×10^5	---	---	1.5×10^4
조류 성장 억제(방법 5)	없음	있음	있음	있음	있음	없음

[0083]

[0084] 실시예 5 내지 7

[0085] 실시예 2 내지 4의 과립을 각기 사용하여, 성글을 제조하였다.

[0086] 375°F(190℃)로 가열된 용융 아스팔트(트럼블 아스팔트 서플라이(Trumbul Asphalt Supply)(미국 미네소타주 미네아폴리스 소재)를, 중력 공급에 의해 이동 아스팔트 함침 유리섬유 매팅(A. H. 베네트 컴퍼니(A. H. Bennett Co.)(미국 미네소타주 미네아폴리스 소재)) 웹에 적용하였다. 아스팔트 두께를 대략 2 mm의 두께로 닥터 바에 의해 정량하였다. 냉각된 매트를 0.0058 m^2 조각으로 절단하였고, 아스팔트가 연화되고 유동할 때까지 176°F(80℃) 오븐에서 3분 동안 가열하였다. (실시예 2 내지 5로부터의) 과립을 즉시 가열된 매트에 적용하였다. 대략 100 g의 과립을 뚜껑에 펀칭된 동등 간격의 구멍(3 mm 직경)이 있는 유리병에 두었다. 유리병을 가열된 아스팔트 위로 9 인치(22.8 cm) 지점에 고정하여, 병 수준을 유지시켰고 과립은 아스팔트의 표면에 낙하하였다.

250 mL 엘렌마이어 플라스크의 기저부를 이용하고, 아스팔트 표면 전반에 걸쳐 균일한 압력 스트로크를 인가함으로써, 과립을 아스팔트에 매립하였다. 과량의 과립을 수집하고, 유사 방식으로 재적용하였다. 평가 전에 과립 함침 아스팔트 판넬을 냉각시켰다. 결과가 표 5에 요약되어 있다.

[표 5]

	실시예 5	실시예 6	실시예 7
L*	59.04	50.75	59.0
a*	5.03	4.31	2.55
b*	14.48	9.68	11.9
과립 직접 일광 반사율 (방법 1)	33	29	31
최소의 과립 일광 반사율 (방법 1)	20.6	27.3	25.2
총계 반사율(방법 1)	10756	11601	10742
초기 기울기(방법 4)	2.4×10^6	---	---

본원에 인용된 모든 특허, 특허출원 및 공보들은 그것들이 개별적으로 인용된 것과 같이 각기 참고로 인용된다. 본 발명의 범주 및 기술적 사상을 벗어나지 않는 한, 본 발명의 예측가능한 변형 및 변경이 당업자에게 명백할 것이다. 본 발명은 설명적 목적을 위해 본원에 나와 있는 실시양태들로 제한되지 않도록 한다.