Octrooiraad

(12)A **Terinzagelegging** (11) **8500706**

Nederland (19) **NL**

(54) **Gelamineerde composities.**

(51) Int.Cl⁴.: B32B 18/00, B32B 17/00, C09K 21/04.

(71) Aanvrager: Armstrong World Industries, Inc. te Lancaster, Pennsylvanië, Ver. St. v. Am.

(74) Gem.: Ir. G. Jacobson c.s.
Octrooibureau Los en Stigter B.V.
Weteringschans 96
1017 XS Amsterdam.

(21) Aanvrage Nr. 8500706.

(22) Ingediend 12 maart 1985.

(32) Voorrang vanaf 12 maart 1984.

(33) Land van voorrang: Ver. St. v. Am. (US).

(31) Nummer van de voorrangsaanvrage: 588577 .

(62) - -

(43) Ter inzage gelegd 1 oktober 1985.

De aan dit blad gehechte stukken zijn een afdruk van de oorspronkelijk ingediende beschrijving met conclusie(s) en eventuele tekening(en).

Gelamineerde composities.

De uitvinding heeft betrekking op gelamineerde composities en meer in het bijzonder op gelamineerde composities, die geschikt zijn als scheidingswanden, wanden, decoratieve oppervlakken en dergelijke.

De constructie van gelamineerde velmaterialen werd bij de industrie aan een intensieve studie onderworpen. In het bijzonder werd gedacht aan materialen, die in gewicht licht zijn, een goed uiterlijk hebben, robuust en duurzaam zijn, en bovendien vuurvast of vuurbestendig zijn. De laatste aspecten hebben vooral de aandacht getrokken. Inwendige oppervlakken bij gebouwen, vliegtuigen, automobielen en dergelijke worden vaak vervaardigd uit organische materialen. Wanneer dergelijke materialen worden blootgesteld aan hitte of brand, vindt er een toxische rookontwikkeling plaats, hetgeen in veel gevallen leidt tot verstikking of resulteert in ernstige longaandoeningen bij personen, die aan een dergelijke rookontwikkeling worden blootgesteld. Dienovereenkomstig heeft de industrie een aanzienlijke hoeveelheid tijd besteed aan en inspanning getroost om te komen tot de ontwikkeling van producten, die alle bovengenoemde aspecten bezitten, met dien verstande, dat zij geen toxische rookontwikkeling vertonen bij blootstelling aan brand.

In de stand der techniek is een aantal literatuurplaatsen gevonden, die betrekking hebben op de bereiding van brandbestendige producten. Het Amerikaanse octrooischrift No. 2.744.589 heeft bijvoorbeeld betrekking op wandpaneeleenheden, die bestaan uit een geïsoleerd paneel, waarbij de kern dubbel geïsoleerd is. De isolatiematerialen blijken volgens dit Amerikaanse octrooischrift rock-woolmaterialen en gipsplaten. Evenzo beschrijft het Amerikaanse octrooischrift No. 3.466.222 een combinatie van materialen, die op zichzelf ongeschikt zouden zijn voor toepassing als vlamvertragende middelen; maar in gecombineerde toestand zijn zij geschikt voor het vervaardigen van gelamineerde materialen, waarvan gesteld wordt, dat zij vlambestendig zijn.

Recentelijk beschreef het Amerikaanse octrooischrift No. 4.375.516 stijve, waterbestendige fosfaat-keramische ma-

terialen alsmede werkwijzen voor de bereiding ervan. Zowel de opgeschuimde als niet-opgeschuimde materialen kunnen volgens de in dit octrooischrift beschreven procedures worden vervaardigd, waarbij de verkregen producten opmerkelijk geschikt zijn voor toepassing als wandborden, plafondborden, en dergelijke. Bovendien zijn deze producten vlambestendig, omdat zij vervaardigd kunnen worden als volkomen of in hoofdzaak anorganische composities. Desalniettemin zijn de volgens het bovenvermelde octrooischrift vervaardigde producten niet voor alle doeleinden helemaal bevredigend, omdat zij stijf zijn. Dat wil zeggen, dat in plaats van onder druk door te buigen, de borden de neiging hebben te breken.

Dientengevolge is een doel van de uitvinding het verschaffen van anorganische borden, die buigzaam zijn, maar tevens sterk en duurzaam zijn.

Een ander doel van de uitvinding is het verschaffen van vlambestendige borden, die bij blootstelling aan hitte of brand opzwellen en die weinig of geen rook produceren.

Een ander doel van de uitvinding is het verschaffen van anorganische laminaten, die buigzaam zijn ofschoon zij gemaakt zijn uit materialen, die in de stand der techniek beschreven zijn als materialen geschikt voor het vervaardigen van stijve producten.

Deze en andere voordelen van de uitvinding zullen duidelijk zijn aan de hand van de volgende gedetailleerde voorkeursuitvoeringsvormen.

De onderhavige uitvinding heeft betrekking op gelamineerde materialen, die gemaakt worden onder gebruikmaking van lagen van versterkende en/of niet-versterkende materialen in combinatie met lagen van een compositie, waarvan in de stand der techniek bekend is, dat deze waterbestendige fosfaat-keramische materialen oplevert. In een voorkeursuitvoeringsvorm zijn de producten vlambestendig en zwellen op bij blootstelling aan hitte of directe vlammen, waarbij zij weinig of geen rook produceren. Desalniettemin zijn deze producten taai, duurzaam en geschikt voor het verkrijgen van een decoratief en leuk uiterlijk.

Volgens een uitvoeringsvorm heeft de uitvinding betrekking op een gebonden compositiestructuur met ten minste één laag van ten minste één type laagmateriaal, waarbij elke

laag van elk laagmateriaal is gebonden aan aangrenzende lagen van laagmateriaal door middel van een waterbestendig fosfaatbindingsmateriaal, dat wordt verkregen door reactie van een mengsel van een metaaloxide, calciumsilicaat en fosforzuur.

Volgens een tweede uitvoeringsvorm heeft de uitvinding betrekking op een vlambestendige gebonden compositie met diverse lagen van ten minste één type laagmateriaal, en diverse lagen van een waterbestendig fosfaatbindingsmateriaal, verkregen door reactie van een mengsel van een metaaloxide, calciumsilicaat en fosforzuur, waarbij elke laag van laagmateriaal is gebonden aan de aangrenzende lagen van laagmateriaal door middel van het bindingsmateriaal, waarbij de gebonden compositie opzweleigenschappen bezit bij blootstelling aan vlammen en/of hitte.

Volgens een derde uitvoeringsvorm heeft de uitvinding betrekking op een werkwijze voor het vervaardigen van een gebonden compositiestructuur, welke werkwijze is gekenmerkt door stappen van vervaardiging van een gelaagde compositie met ten minste één laag van een fosfaatbindingsmengsel van een metaaloxide, calciumsilicaat en fosforzuur, welk mengsel een waterbestendig fosfaatbindingsmateriaal geeft, en ten minste één laag van ten minste één type laagmateriaal, welke compositie zodanig is opgebouwd, dat de aangrenzende lagen van het laagmateriaal in contact zijn met tussenliggende lagen van het bindingsmengsel, welke gelaagde compositie wordt gehard door deze naar keuze te onderwerpen hetzij aan hitte en/of druk.

De unieke kenmerken van de producten, die volgens de onderhavige uitvinding kunnen worden vervaardigd, zijn in de eerste plaats toe te schrijven aan de toepassing van een fosfaatbindingsmengsel, dat geschikt is voor het verschaffen van een waterbestendig fosfaat-keramisch materiaal. Dergelijke materialen zijn blijkens de stand der techniek geschikt voor het verschaffen van een stijve, opgeschuimde en niet-opgeschuimde fosfaat-keramische producten. Verrassenderwijze is echter ontdekt, dat wanneer dergelijke mengsels worden aangebracht als relatief dunne bindingslagen, zij geschikt zijn voor het verschaffen van gelamineerde structuren, die zeer flexibel zijn. Voorbeelden van mengsels, die ge-

schikt zijn voor het verkrijgen van dit resultaat zijn beschreven in het Amerikaanse octrooischrift No. 4.375.516. In dit octrooischrift is beschreven, dat mengsels van calciumsilicaat, fosforzuur en een metaaloxide, gekozen uit de groep van aluminiumoxide, magnesiumoxide, calciumoxide en zinkoxide, alsmede de hydraten ervan, omgezet kunnen worden in waterbestendige fosfaatmaterialen; ofschoon er ook gebleken is, dat andere metaaloxiden eveneens waterbestendige fosfaatmaterialen kunnen opleveren. Dientengevolge beoogt de onderhavige uitvinding alle mengsels van een metaaloxide, calciumsilicaat en fosforzuur, mits deze mengsels na omzetting een waterbestendig materiaal opleveren.

Deze mengsels worden aangebracht, bij voorkeur in naar verhouding dunne lagen in de orde van grootte van ca. 0,025-0,51 mm dik, op het oppervlak van een laagmateriaal, dat een versterkend of een niet-versterkend materiaal kan zijn. De mengsel kunnen worden aangebracht bij normale consistentie, of zij kunnen worden aangebracht in de vorm van mechanisch verkregen schuimen. In geval zeer dunne lagen gewenst zijn of daar waar laminaten met een laag gewicht gewenst zijn, verdient de laatste techniek de voorkeur, omdat het schuim opgebracht kan worden bij een dikte van ca. 0,025 mm, waarna de dikte afneemt tot een dunnere laag na inzakken van het schuim. Volgens een ander alternatief kan het bindingsmengsel discontinu worden aangebracht op bepaalde gedeelten van het laagmateriaal. Dienovereenkomstig wordt met de term "laag" bindingsmateriaal bedoeld toepassingen, waarbij dit materiaal wordt afgezet op een uniforme dan wel niet-uniforme manier.

Na het opbrengen van het bindingsmengsel, kan het beklede materiaal worden onderworpen aan harding of kan dit worden bedekt met een tweede laag van hetzelfde of een ander laagmateriaal, gevolgd door harden. Het harden kan worden verkregen onder omgevingsomstandigheden; daar waar meer dichte producten zijn gewenst, kan het harden worden uitgevoerd onder druk. Bovendien kan tijdens de harding ook hitte worden toegepast voor het versnellen van het hardingsproces.

Een groot aantal materialen kan worden gebruikt voor het verkrijgen van de hierin beschreven laminaten. Zo kan men

bijvoorbeeld gebruik maken van kraftpapier, papieren handdoeken, kaasdoek, geweven en niet-geweven glasmatten, geweven of niet-geweven synthetisch materiaal zoals polyester, nylon en dergelijke, in stukken gehakte vezels van diverse materialen, minerale wol, gaas en andere welbekende materialen als zodanig of in combinatie met elkaar als laagmaterialen. Bovendien kan men gebruik maken van niet-versterkende materialen, zoals cementachtige materialen en dergelijke, die in de meeste gevallen zullen leiden tot producten, die stijf zijn.

Bijzonder effectieve versterkende materialen voor toepassing in combinatie met de fosfaatbindingsmaterialen, die hier zijn beschreven, zijn materialen, die genoemd zijn in de hiermee samenhangende Amerikaanse octrooiaanvrage Serie No. , en ook in het Amerikaanse octrooischrift No. 4.239.519, alsmede aanverwante octrooischriften. Deze octrooidocumenten beschrijven gezamenlijk een groep materialen, die hier genoemd worden als "synthetische mica"-materialen. In wezen zijn zij niet-asbestpapieren of -doeken, die zijn bereid uit silicagellen door kationuitwisselingsreacties. Bekend is, dat materialen van dit type niet worden aangetast door hoge temperaturen terwijl zij bovendien een goede buigzaamheid vertonen.

Gelamineerde structuren met lagen van de fosfaatbindingsmaterialen en synthetische micadoeken blijken opmerkelijke eigenschappen te bezitten. Wanneer bijvoorbeeld dergelijke composities werden blootgesteld aan directe vlammen, bleken zij niet alleen vlambestendig te zijn en geen rookontwikkeling te vertonen, maar zij bleken bovendien opzwellende eigenschappen te bezitten. Dit betekent, dat door blootstelling van één oppervlak van de structuur aan directe vlammen een blijkbaar interne delaminatie van de structuur is opgetreden, onder oplevering van luchtruimtes. Dergelijke luchtruimtes bleken isolerend te werken, terwijl aanzienlijke hitteverschillen zijn genoteerd tussen twee zijden van een structuur, die op die manier is beproefd. Wanneer bijvoorbeeld slechts één zijde van een naar verhouding dunne structuur in de orde van grootte van 1,52 mm dik werd blootgesteld aan directe vlammen bij een temperatuur van ca. 1121°C

gedurende 1 min, had er inwendige opzwelling plaats, terwijl de temperatuur aan de tegenovergestelde zijde van de structuur minder was dan 316°C.

Dit verschijnsel is niet beperkt tot laminaten, die zijn vervaardigd onder gebruikmaking van synthetische micamaterialen. Zo blijken bijvoorbeeld laminaten van kraftpapier ook opzweleigenschappen te bezitten, waarbij eveneens grote temperatuurverschillen bij deze laminaten waren waargenomen tijdens het bovengenoemde onderzoek. De reden voor de delaminatie is niet duidelijk, ofschoon wordt aangenomen, dat dit te danken is, ten minste ten dele aan het in de structuur aanwezige water.

Naast opzwellende laminaten kunnen ook hittegeleidende laminaten worden vervaardigd door het opnemen daarin van een gaas als een van de lagen. Laminaten van dit type bleken heel geschikt te zijn voor het afvoeren van warmte uit de plek van toepassing; deze materialen kunnen derhalve gebruikt worden als hitteafvoerende pakkingen en dergelijke.

De dikte van de volgens de uitvinding vervaardigde laminaten kan sterk variëren. Naar de wens van de gebruiker kan de structuurdikte variëren van zeer dun (bijvoorbeeld 0,762 mm) tot zeer dik (bijvoorbeeld 12,7 mm of meer). Er zijn gelamineerde structuren vervaardigd met slechts één laag van een versterkend materiaal en één laag van fosfaatbindingsmateriaal, of met 37 lagen van versterkende lagen en 36 lagen van fosfaatbindingsmateriaal. Deze illustratie is geenszins bedoeld als enige beperking van het aantal lagen, dat in een laminaat kan voorkomen. Bovendien is er geen noodzaak voor het beperken van de versterkende materialen, die worden toegepast bij de vervaardiging van de gelamineerde structuur tot één enkel type, hetgeen betekent, dat met voordeel combinaties van versterkende materialen kunnen worden toegepast.

De voordelen van de onderhavige uitvinding zullen duidelijker zijn aan de hand van de volgende voorbeelden, waartoe de uitvinding geenszins beperkt is, maar die slechts als verduidelijking dienen.

VOORBEELDEN

VOORBEELD I

Een fosfaatbindingsmateriaal werd bereid uit de volgende bestanddelen:

Componenten	Gewicht (g)
$Al_2O_3.3H_2O$	15,0
MgO	8,0
Talk	16,0
75% H_3PO_4 (53,0% P_2O_5)	105,0
H_3BO_3	4,0
$CaSiO_3$	100,0
H_2O	18,0

Een fosfaatbindingsmateriaal werd verkregen door bereiding van een reactieoplossing, bestaande uit fosforzuur, aluminiumoxide en water. Na het verkrijgen van een heldere oplossing, terwijl de oplossing nog heet was, werd boorzuur toegevoegd, waarna het mengsel zo lang werd geroerd, totdat het wederom helder werd. De reactieoplossing werd afgekoeld tot 4°C, waarna een mengsel van de droge componenten werd toegevoegd.

Elk van vijf tweevoudige lagen van Reichhold Modiglass 2,5X-SM scrim dunne lagen van 7,6 cm x 30,5 cm werd snel voorzien van 0,076 mm lagen van het bovengenoemde mengsel. De vijf lagen werden onmiddellijk op elkaar gelegd en gedurende 25 sec samengeperst bij een druk van 3,83 MPa in een pers, die werd verhit tot 121°C. De verkregen laag was sterk en waterbestendig edoch buigzaam.

Het MOR van het laminaat, gemeten volgens ASTM D-1037, was 14,5 MPa; de MOE-waarde werd berekend als 96,3 kg/cm²; en de NBS-vlamwaarde was 0 voor smeulen en 2 voor vlam, gemeten volgens ASTM E-662-79.

VOORBEELD II

De in voorbeeld I beschreven werkwijze werd herhaald, behalve dat de pers aan één zijde was voorzien van een reliëfplaat. Het verkregen monster heeft de zeer fijne details van de reliëfplaat meegekregen.

VOORBEELD III

Een 0,025 mm laag van een fosfaatbindingsmateriaal met de in voorbeeld I beschreven samenstelling, werd aangebracht op elk van de tien afzonderlijke vellen kraftpapier met afmetingen van 30,5 cm x 30,5 cm x 0,030 cm. De tien vellen werden onmiddellijk op elkaar gelegd, vervolgens gedurende 1 min bij een druk van 3,86 MPa samengeperst in een pers, die werd verhit tot 93°C. Het verkregen monster was sterk en buigzaam, ofschoon het niet zo buigzaam was als de met glas versterkte structuur, zoals uiteengezet in voorbeeld I. Zijn MOR-waarde, gemeten op de in voorbeeld I beschreven wijze, was 31,0 MPa.

De gebonden compositiestructuur werd in stukken gesneden van 10,2 cm x 10,2 cm, waaruit voor onderzoek willekeurig twee stukken werden uitgekozen. Elk stuk werd horizontaal op een ringstandaard gelegd en een thermokoppel werd gelegd op een plaats op het ondervlak, waar de blauwe propaanvlam werd geplaatst. Een tweede thermokoppel werd gelegd op het bovenvlak van het laminaat direct boven de eerste thermokoppel. Wanneer de vlam werd aangezet, werden de temperaturen van beide thermokoppels van tijd tot tijd gemeten. Monster 3A nam in dikte toe van 0,216 cm tot 0,505 cm na verhitting gedurende 7 min. Aan het eind van die periode mat de thermokoppel aan de vlamzijde van het vlak een temperatuur van 1034°C, terwijl de temperatuur op de topzijde 328°C bleek te zijn. Monster 3B werd gedurende 6 min verhit en vertoonde een toename in dikte van 0,216 cm tot 0,422 cm, terwijl de temperatuursaflezingen aan de vlamzijde en de topzijde respectievelijk 1007°C en 378°C waren.

VOORBEELD IV

Een fosfaatbindingsmateriaal, zoals uiteengezet in voorbeeld I, werd bereid, behalve dat het 50 gew.% gekleurde No. 17 silicakorrels van Ottawa Silica Company bevatte. Dit werd verkregen door vermengen van de korrels met de droge componenten, gevolgd door de bereiding van het fosfaatbindingsmateriaal. Het gevulde bindingsmateriaal werd aangebracht in een dikte van 0,076 mm op elk vel van Johns-Manville-glaspapier, terwijl tegelijkertijd, eveneens een laag van 0,076 mm werd aangebracht op drie afzonderlijke drievoudige vellen

van de in voorbeeld I beschreven Modiglasslaag. De drie Modiglasslagen werden op elkaar gelegd, terwijl het Johns-Manville-glaspapier werd gelegd bovenop de top van de stapel met het korrelgevulde bindingsmateriaal erbovenop. Het aldus gestapelde materiaal werd vervolgens samengeperst onder een druk van 3,83 MPa bij een temperatuur van 104°C gedurende 2 min onder oplevering van een buigzaam vel met goede krasbestendigheid.

VOORBEELD V

De procedure van voorbeeld IV werd herhaald, behalve dat de pers aan één zijde was voorzien van een reliëfplaat. Het verkregen product liet fijne details zien van de reliëfplaat.

VOORBEELD VI

Een fosfaatbindingsmateriaal werd bereid uit de volgende componenten:

Componenten	Gewicht (g)
$Al_2O_3.3H_2O$	18,0
MgO	8,0
Talk	16,0
75% H_3PO_4 (53,0% P_2O_5)	108,0
H_3BO_3	4,0
$CaSiO_3$	100,0
H_2O	18,0

De reactieoplossing werd bereid door vermengen van fosforzuur, water en aluminiumoxidetrihydraat, waarbij het verkregen mengsel zo lang werd geroerd tot een heldere oplossing werd verkregen. Het boorzuur werd aan de verkregen warme oplossing toegevoegd, waarna de oplossing werd geroerd. Nadat deze oplossing helder was geworden, werd de reactieoplossing afgekoeld tot ca. 2-4°C.

Aan de 148 g koude vloeistof werd onder krachtig roeren 124 g droge componenten toegevoegd, nadat het geheel tot een uniform materiaal werd gemengd. Het verkregen mengsel werd tot homogeen geroerd, waarna het werd overgebracht in een ijsbad teneinde de vloeibare consistentie te behouden;

dat wil zeggen het beletten van de interactie van de componenten. De opslagtijd van dit materiaal kon worden gevarieerd van 30 sec tot ca. 7 min, afhankelijk van het vermogen om de exotherme reactietemperatuur in het ijsbad te regelen.

Een synthetisch micavel werd bereid uit de volgende componenten, in hoofdzaak op de in de hiermee samenhangende aanvrage beschreven manier:

Component	Gewicht (g)
Magnesiumfluorhectoriet	100,0
Gebleekte redwoodcellulose	10,0
0,318 cm DE glasvezels	5,0
Polyamine P vlokmiddel	0,075
Hydraid 777 vlokmiddel	0,037
Water	---

De gebleekte redwoodcellulose werd in water gedispergeerd met behulp van een hydropulper, waarna het mengsel werd geraffineerd in een Jordan Refiner, tot een sonsistentie van 500 (Canadian Freeness). De geraffineerde pulp werd overgebracht in een grote, aan de bovenzijde open tank en werd vermengd met de glasvezels onder vorming van een suspensie. Na toevoeging van de vereiste hoeveelheid water aan de tank voor het verkrijgen van een consistentie van 1,3% vaste stof, werd het magnesiumfluorhectoriet vlokmiddel toegevoegd, waarna het mengsel tot homogeen werd geroerd. Daarna werden polyamine P en Hydraid 7777 toegevoegd, waarna het mengsel onmiddellijk werd overgebracht op een vormzeef van een Fourdrinier-machine. Na verwijdering van het grootste gedeelte van het water werd de mat onderworpen aan vacuum in een reeks vacuumpersen. Het restwater werd vervolgens verwijderd door de synthetische micamat over een verhitte trommel te leiden.

Een dunne laag van het bovengenoemde fosfaatbindingsmateriaal (I) werd met een kwast aangebracht op een oppervlak van een synthetisch micavel (S) bij een geschikte dikte van 0,254 mm. Een stuk microlithglasvel (G), aangeduid als SH 20/1 van Glaswerk Schuller GmbH, werd onmiddellijk in het bindingsmateriaal geplaats en verzadigd, waarna een tweede synthetisch micavel bovenop de glaslaag werd aange-

bracht. De op elkaar gelegde materialen werden overgebracht in een pers tussen glasoppervlakken en gedurende 5 min bij een temperatuur van 77°C en onder een druk van 1,72 MPa samengeperst. Na voltooiing van het persen werd de geperste compositie geconditioneerd bij 77°C gedurende verscheidene minuten ter verwijdering van water onder oplevering van een product, dat sterk en buigzaam was.

Opgemerkt wordt, dat tengevolge van de poreuze aard van het glasvel, het bindingsmateriaal niet aan beide zijden van het glasvel behoeft te worden aangebracht. Het bindingsmateriaal was in staat onder druk door de glaslaag te lopen (verzadiging), zodanig dat beide aangrenzende lagen van synthetische mica aan het glas konden worden gebonden door middel van een eenmalig aanbrengen van het bindingmateriaal. In dit en de volgende voorbeelden wordt de verzadiging aangegeven door (GI) of (IG). Dientengevolge had de structuur van dit voorbeeld de laminaire volgorde S(IG)S.

VOORBEELD VII

Een soortgelijke werkwijze als van voorbeeld VI werd herhaald, behalve, dat de buitenlagen werden gevormd door glasvellen en het compositiemateriaal de structuur (GI)S(IG) had. De glasvellen werden met het fosfaatbindingsmiddel gebonden aan de enkelvoudige inwendige laag van synthetisch micavel door de compositie over te brengen in een pers, die was voorzien van reliëfplaten met ondiep patroon. De platen gaven een fijne textuur in een gewenst patroon aan het oppervlak van het laminaat.

VOORBEELD VIII

De procedure van voorbeeld VII werd herhaald met dien verstande, dat het compositiemateriaal werd gelegd tussen een opgeschuimd siliconrubber kussen en mannelijke of vrouwelijke metaalvormen, die een patroon droegen. Dit resulteerde in de productie van gevormde producten met diep ingedrukte afbeeldingen.

VOORBEELD IX

Een reeks laminaten werd vervaardigd in hoofdzaak op de in voorbeeld VI beschreven wijze, waarbij elk monster

synthetische mica, fosfaatbindingsmateriaal en eventueel glasvel bevatte. Net als in voorbeeld VI werd het glasvel door het fosfaatbindingsmiddel verzadigd, zodanig dat wanneer dit werd opgenomen in een gelamineerde structuur, het bindmiddel diende voor het aan elkaar binden van de aangrenzende lagen synthetische mica zelfs wanneer het bindmiddel slechts aan één oppervlak van het glasvel werd aangebracht of slechts op één van de aangrenzende synthetische micavellen.

De breukmodulus (MOR)-waarden werden bepaald volgens ASTM D-1037, terwijl de elasticiteitsmoduluswaarden (MOE) werden berekend via standaard mathematische formules uit de MOR-waarden. De structuren van elk laminaat werden aangegeven, top tot bodem. Tenzij anders vermeld werd het bindingsmateriaal aangebracht in 0,203 mm afzettingen, terwijl SH 20/1 glasvel werd toegepast.

Voorbeeld	Structuur	MOR (MPa)	MOE (kg/cm²)
9A	SISISIS	9,98	25,4
9B	S(IG)S(IG)S(IG)S	10,8	27,1
9C*	S(IG)S(IG)S(IG)S	11,6	32,7
9D	(GI)S(IG)S(IG)S(IG)S(IG)	23,8	89,3

* = I aangebracht als een 0,305 mm afzetting.

De resultaten van deze monsters vertonen een opmerkelijke toename in de sterkte, wanneer op het laminaat het glasvel is aangebracht.

Voorbeeld	Structuur	MOR (MPa)	MOE(kg/cm²)
9E	(GI)SISISIS(IG)	22,2	91,2
9F**	(GI)SISISIS(IG)	26,9	88,1
9G	(GI)SISIS(IG)	22,4	94,6
9H	(GI)SIS(IG)	24,1	90,2

** = SH 50/1 glasvel werd gebruikt in plaats van SH 20/1 glasvel.

Deze resultaten, vergeleken met de waarden, welke werden verkregen voor voorbeeld 9D, suggereren, dat de bovenop liggende dunne vellen aanzienlijk meer tot de sterkte van het laminaat bijdragen dan de inwendige glasvellen.

Voorbeeld	Structuur	MOR (MPa)	MOE (kg/cm²)
9I	SISIS	11,8	50,1
9J	S(IG)S(IG)S	16,0	59,7
9K	IS(IG)S(IG)SI	16,2	73,0

Deze data zijn gegeven voor vergelijkingsdoeleinden.

VOORBEELD X

Dit voorbeeld illustreert de resultaten, wanneer diverse monsters werden verhit met een propaanvlam, zoals in voorbeeld III beschreven. De resultaten zijn hieronder weergegeven voor laminaten met diverse componenten en structurele opbouw.

Door verhitting werden aanzienlijke veranderingen bij de laminaten waarneembaar, welke veranderingen meer uitgesproken waren wanneer het aantal lagen toenam. Wanneer bijvoorbeeld een enkelvoudig synthetisch micavel werd verhit, was slechts een kleine expansie van het vel waarneembaar. Wanneer echter twee of meer synthetische mica- en fosfaatbindingslagen (met of zonder glasversterking) werden toegepast, werd blaarvorming meer uitgesproken. Het effect met de dikkere monsters, zoals hieronder aangegeven, was het verschaffen van goede isolatie-eigenschappen. De tabel toont de toename in de dikte, die in elk monster werd geïnduceerd door de verhitting.

De monsters werden opgebouwd uit lagen van SH 20/1 glasvel en/of synthetische mica, samengebonden met fosfaatbindingsmateriaal van het in voorbeeld IX beschreven type. In de verkregen laminaten werd reliëf aangebracht. Zij werden aangeduid als monsters 10A tot en met 10H, terwijl de "Structuur"-kolom de laminaire volgorde van top tot bodem aangeeft.

		Dikteverandering (cm)		
Voorbeeld	Structuur	Begin	Einde	Toename
10A	S	0,069	0,097	0,028
10B	ISI	0,086	0,318	0,231
10C	(GI)S(IG)	0,094	0,330	0,236
10D	ISISI	0,140	0,381	0,241
10E	(GI)S(GI)S(IG)	0,160	0,439	0,279
10F	ISISISI	0,185	0,493	0,307
10G	(GI)S(GI)SIS(IG)	0,216	0,533	0,318
10H	(GI)S(GI)S(GI)S	0,213	0,635	0,422

De temperatuurverschillen waren als volgt, gemeten bij de aangegeven tijdsintervallen. De metingen werden uitgevoerd door de temperatuur aan de topzijde thermokoppel (Ts) af te trekken van de vlamzijde thermokoppel (Fs) onder oplevering van het verschil (D).

		Temperaturen (°C) als aangegeven Tijdsintervallen (seconden)				
Monster	Locatie	15	30	60	120	180
10A	Fs	1184	1193	1202	-	-
	Ts	547	588	597	-	-
	D	637	605	605	-	-
10B	Fs	1202	1217	1226	-	-
	Ts	457	556	551	-	-
	D	745	661	675	-	-
10C	Fs	1246	1276	1268	1255	1262
	Ts	234	573	573	579	576
	D	1012	703	695	676	686
10D	Fs	1017	1092	1102	1114	1126
	Ts	84	173	423	463	465
	D	933	919	679	651	661
10E	Fs	1036	1117	1117	1133	1137
	Ts	71	114	289	391	402
	D	965	1003	828	742	735
10F	Fs	1127	1152	1183	1200	1191
	Ts	82	93	185	379	386
	D	1045	1059	998	821	805
10G	Fs	1194	1215	1213	1234	1239
	Ts	76	83	138	348	364
	D	1118	1132	1075	886	875
10H	Fs	1122	1109	1134	1176	1186
	Ts	70	80	105	307	328
	D	1052	1029	1029	869	858

De resultaten laten zien, dat door verhitting de laminaten gaan opzwellen, hetgeen betekent, dat zij opzwel-eigenschappen hebben.

VOORBEELD XI

De in voorbeeld VI beschreven procedure werd herhaald onder gebruikmaking van synthetische mica, Schuller 20/1 dun glasvel, Burlington No. 1653 Lenoweave (16x8) dun glasvel (afgekort "B") en/of gegalvaniseerd ijzerraamgaas (W) met 2,1 strengen versus 2,7 strengen per cm^2. De volgende monsters werden bereid:

Voorbeeld	Structuur
11A	SIS
11B	ISI
11C	S(IG)S
11D	(GI)S(IG)
11E	S(IB)S
11F	S(IW)S

De producten werden onderzocht op treksterkte en ook op buigzaamheid. De treksterkten werden in hoofdzaak bepaald volgens ASTM F-152 onder gebruikmaking van Type 1 monsterafmetingen op een Instron treksterktemeter bij 2,54 cm/min kruiskopsnelheid en een strooksnelheid van 2,54 cm/min; de monsters werden echter niet gepreconditioneerd. De monsters werden gesneden in een 1,27 cm haltervorm, met uitzondering van voorbeeld 11F, dat werd gesneden in een 2,54 cm haltervorm. De volgende resultaten werden verkregen:

Voorbeeld	Resultaten			
	kg breuk		MPa	
11A	9,21	(0,56)	7,10	(0,73)
11B	4,33	(0,90)	5,36	(1,94)
11C	11,2	(1,4)	8,83	(1,65)
11D	9,14	(0,67)	8,34	(1,24)
11E	16,8	(0,86)	13,0	(1,24)
11F	54,5	(4,1)	40,2	(1,17)

De opgegeven waarden zijn een gemiddelde van drie metingen, waarbij de getallen tussen haken het verschil tussen de hoogste en laagste voor elke set genoteerde getallen aangeven.

De buigzaamheid werd bepaald volgens ASTM F-147, hetgeen in het algemeen als een "spilbuigproef" wordt aangeduid. Monsters 11A-11D konden de proef met een 2,54 cm spil

niet doorstaan; monster 11F doorstond een proef onder gebruikmaking van een 2,54 cm spil; en monster 11E doorstond een proef onder gebruikmaking van een 2,22 cm spil. Geen van de monsters was gepreconditioneerd.

VOORBEELD XII

Dit voorbeeld toont de warmtegeleidingsresultaten, die kunnen worden verkregen door het opnemen van een metaalgaas in een laminaat. Laminaat C met de structuur (GI)S(WI)S, werd bereid op de gebruikelijke manier, behalve dat thermokoppels werden opgenomen in de structuur door ze op het bovenvlak van de bovenste synthetische micaplaat te leggen. Zij werden vervolgens op hun plaats gehouden door aanbrengen van de bovenste (GI)-lagen. De thermokoppels werden op bepaalde gemeten afstanden van de plaats van het aanbrengen van de vlam gelegd hetzij in de draadrichting (WD) hetzij diagonaal dwars op de maas (scheef), als volgt:

Thermokoppel	Locatie	Afstand (cm)
TC 1	plaats waar de vlam wordt aangebracht	-
TC 2	scheef	5,1
TC 3	scheef	10,2
TC 4	scheef	12,7
TC 5	scheef	15,2
TC 6	WD	10,2

Laminaat C werd bereid onder gebruikmaking van gegalvaniseerd ijzergaas, zoals in voorbeeld XI beschreven, terwijl laminaat B bereid werd met een vergelijkbaar koperdraad. Laminaat A, dat geen draad bevatte, werd bereid als controle. De volgende temperaturen werden gemeten.

Gemeten temperaturen (°C)

Tijd (min)	TC 1			TC 2			TC 3		
	A	B	C	A	B	C	A	B	C
0	27	27	26	27	27	26	27	27	26
3	1087	1033	1044	74	88	99	37	38	36
10	1049	1018	1048	72	104	124	38	42	42
15	1016	1025	1022	93	114	127	39	43	44

Gemeten temperaturen (°C) (vervolg)

Tijd (min)	TC 4			TC 5			TC 6		
	A	B	C	A	B	C	A	B	C
0	27	27	26	27	27	26	27	27	26
3	34	35	32	32	33	30	47	69	62
10	35	37	36	33	34	33	47	73	76
15	36	38	37	33	35	34	49	78	76

Deze resultaten tonen, dat een gelamineerd gaas de warmtegeleiding bevordert vanaf het verwarmingspunt, terwijl koperdraad efficiënter geleidt dan gegalvaniseerd ijzerdraad. Bovendien blijkt door vergelijking van de rsultaten van TC 5 en TC 6 dat de warmte efficiënter wordt geleid in een draadrichting dan in een schuine richting.

VOORBEELD XIII

Dit voorbeeld toont de bereiding van een monster, dat niet werd gehard onder hitte en druk. Een 0,015 mm laag van het bindingsmateriaal, zoals beschreven in voorbeeld I, (ca. 125 g) werd aangebracht op een 30,5 cm x 30,5 cm stuk van 2,5X-SM Modiglassvel, terwijl een tweede stuk van het vel werd aangebracht bovenop de laag. Het gelaagde materiaal werd kort samengeperst teneinde het bindingsmateriaal in de desbetreffende dunne lagen te doen doordringen, waarna de compositie bij chemische omstandigheden werd gehard. De harding nam ca. 5 min in beslag.

VOORBEELD XIV

Dit voorbeeld toont het aanbrengen van een opgeschuimd bindingsmateriaal op een laag "vel".

Het bindingsmateriaal werd bereid op de in voorbeeld I beschreven wijze en vervolgens gedurende 25 sec gemengd. Aan het bindingsmateriaal (268 g) werd 10,1 g (3,8%) Millifoam oppervlakactieve stof van Onyx Chemical Co. toegevoegd, waarbij het schuim werd verkregen door mechanisch mengen met een luchtroerder gedurende 40 sec. Op beide oppervlakken van een 30,5 cm x 30,5 cm stuk van 7,5X-SM Modiglassvel werd een 0,076 mm laag aangebracht, waarbij het totaal aangebrachte gewicht ca. 82 g bedroeg. Het beklede vel werd

gedurende 25 sec bij 82°C samengeperst onder oplevering van een gehard vel.

De onderhavige uitvinding is niet beperkt tot het bovenbeschrevene en geïllustreerde, doch omvat alle modificaties van de volgende conclusies.

C O N C L U S I E S

1. Gebonden gelamineerde compositiestructuur, in het bijzonder vlambestendige structuur, g e k e n m e r k t door ten minste één laag van ten minste één type laagmateriaal, waarbij ten minste één zijde van de laag van laagmateriaal is voorzien van een waterbestendig fosfaatbindingsmateriaal, dat is verkregen uit de reactie van een mengsel van een metaaloxide, calciumsilicaat en fosforzuur, als geharde deklagen of voor het binden van verdere lagen van laagmateriaal.

2. Gebonden compositiestructuur volgens conclusie 1, m e t h e t k e n m e r k, dat het metaaloxide aluminiumoxide, magnesiumoxide, calciumoxide, zinkoxide of een hydraat daarvan is.

3. Gebonden compositiestructuur volgens conclusie 2, m e t h e t k e n m e r k, dat het bindingsmateriaal aluminoiumoxidetrihydraat is.

4. Gebonden compositiestructuur volgens een der conclusies 1-3, m e t h e t k e n m e r k, dat het bindingsmateriaal een praktisch uniforme laag is.

5. Gebonden compositiestructuur volgens conclusie 2, m e t h e t k e n m e r k, dat het bindingsmateriaal een praktisch discontinue laag is.

6. Gebonden compositiestructuur volgens een der conclusies 1-5, m e t h e t k e n m e r k, dat het bindingsmateriaal een synthetisch micalaagmateriaal is.

7. Gebonden compositiestructuur volgens een der conclusies 1-6, m e t h e t k e n m e r k, dat het bindingsmateriaal een geweven, niet-geweven of gehakt glaslaagmateriaal is.

8. Gebonden compositiestructuur volgens een der conclusies 1-7, m e t h e t k e n m e r k, dat het bindingsmateriaal een geweven, niet-geweven of gehakt synthetisch laagmateriaal is.

9. Gebonden compositiestructuur volgens een der conclusies 1-8, m e t h e t k e n m e r k, dat het bindingsmateriaal een kraftpapierlaagmateriaal is.

10. Gebonden compositiestructuur volgens een der conclusies 1-9, m e t h e t k e n m e r k, dat het bindings-

materiaal een draadgaaslaagmateriaal is.

11. Werkwijze voor het vervaardigen van een gebonden compositiestructuur volgens een der voorgaande conclusies, g e k e n m e r k t door de stappen: het aanbrengen op ten minste één laag van ten minste één type laagmateriaal aan ten minste één zijde van een laag van een fosfaatbindingsmateriaal, dat een metaaloxide, calciumsilicaat en fosforzuur bevat, welk bindingsmateriaal geschikt is voor het verschaffen van een waterbestendig fosfaatbindingsmateriaal als een deklaag of voor het binden van verdere lagen van laagmateriaal, en door het harden van de gelamineerde structuur eventueel door deze bloot te stellen aan warmte en/of druk.

12. Werkwijze volgens conclusie 11, m e t h e t k e n m e r k, dat het bindingsmateriaal wordt aangebracht in een dikte van 0,025 tot 0,5 mm.

13. Werkwijze volgens conclusie 11 of 12, m e t h e t k e n m e r k, dat het bindingsmateriaal wordt aangebracht in de vorm van een langs mechanische weg verkregen schuim.

14. Werkwijze volgens een der conclusies 11-13, m e t h e t k e n m e r k, dat het bindingsmateriaal is aangebracht in de vorm van een praktisch continue laag van materiaal.

15. Werkwijze volgens een der conclusies 11-13, m e t h e t k e n m e r k, dat het bindingsmateriaal is aangebracht in de vorm van een praktisch discontinue laag materiaal.