

なる群から選択され、

Aは、C₁～C₁₀アルキレン基又はアリーレン基、C₁～C₁₀アラルキレン基、C₂～C₁₆ヘテロアルキレン基又はヘテロアリーレン基、及びC₂～C₁₆アミド含有基からなる群から選択されるリンカー基である]のカルボン酸シランを含む表面改質剤で表面改質されている、金属酸化物ナノ粒子とを含む、多層フィルム。

【請求項2】

各第2の層が、テレフタレートモノマー単位とエチレングリコールモノマー単位とを含むポリエステルを含む、請求項1に記載の多層フィルム。

【請求項3】

前記第1及び第2の層の各々が500nm未満の平均厚さを有し、前記第1及び第2の層の数が合計で少なくとも50である、請求項1に記載の多層フィルム。

10

【請求項4】

可視光ミラーフィルム、赤外線ミラーフィルム、反射偏光子、又はノッチ光学フィルタである、請求項3に記載の多層フィルム。

【請求項5】

垂直入射する非偏光状態の光に対して、少なくとも80パーセントの光透過率を有する、請求項1に記載の多層フィルム。

【請求項6】

前記第1及び第2の層が、厚さ方向に沿って交互になっている、請求項1に記載の多層フィルム。

20

【請求項7】

前記第1及び第2の層と共に厚さ方向に沿って配置されたポリマーの複数の第3の層を更に含む、請求項1に記載の多層フィルム。

【請求項8】

前記複数の第1及び第2の層上に配置された複数の交互のポリマー層を更に含む、請求項1に記載の多層フィルム。

【請求項9】

垂直入射する非偏光状態の光に対し少なくとも450nmから650nmまで広がる波長範囲にわたって少なくとも70パーセントの平均光透過率、及び垂直入射する非偏光状態の光に対し少なくとも900nmから1000nmまで広がる波長範囲にわたって50%以下の平均光透過率を有する、請求項8に記載の多層フィルム。

30

【請求項10】

前記少なくとも1つのポリマーが前記第1のポリマーとブレンドされた前記第1のポリマーとは異なる第2のポリマーを更に含み、前記第2のポリマーが(メタ)アクリル酸モノマー単位を含む、請求項1に記載の多層フィルム。

【請求項11】

ガラス層と、前記ガラス層上に配置された請求項1～10のいずれか一項に記載の多層フィルムとを含む、光学スタック。

【請求項12】

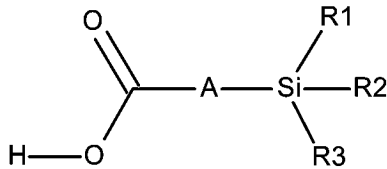
第1の層と、前記第1の層上に配置された複数の交互のポリマー層とを含む多層フィルムであって、前記第1の層が、

40

少なくとも1つのポリマーであって、(メタ)アクリル酸モノマー単位を含む第1のポリマーを含む、少なくとも1つのポリマーと、

前記少なくとも1つのポリマー中に分散された金属酸化物ナノ粒子であって、式1：

【化 2】



式 1

〔式中、

R 1 は、C₁～C₁₀アルコキシ基であり、R 2 及び R 3 は、独立して、C₁～C₁₀アルキル基及びC₁～C₁₀アルコキシ基からなる群から選択され、A は、C₁～C₁₀アルキレン基又はアリーレン基、C₁～C₁₀アラルキレン基、C₂～C₁₆ヘテロアルキレン基又はヘテロアリーレン基、及びC₂～C₁₆アミド含有基からなる群から選択されるリンカー基である〕のカルボン酸シランを含む表面改質剤で表面改質されている、金属酸化物ナノ粒子とを含む、多層フィルム。

【請求項 1 3】

第 2 の層と、前記第 1 及び第 2 の層の間に配置された少なくとも 1 つの下位群をなす前記複数の交互のポリマー層とを更に含み、前記第 2 の層が少なくとも 1 つのポリマーを含み、前記第 2 の層の前記少なくとも 1 つのポリマーが(メタ)アクリル酸モノマー単位を含む第 1 のポリマーを含む、請求項 1 2 に記載の多層フィルム。

【請求項 1 4】

前記第 2 の層が前記第 2 の層の前記少なくとも 1 つのポリマー中に分散された金属酸化物ナノ粒子を更に含み、前記第 2 の層の前記金属酸化物ナノ粒子がカルボン酸シラン表面改質剤で表面改質されている、請求項 1 3 に記載の多層フィルム。

【請求項 1 5】

前記交互のポリマー層が交互の第 1 及び第 2 の干渉層を含み、各第 1 の干渉層が少なくとも 1 つのポリマーを含み、前記第 1 の干渉層の前記少なくとも 1 つのポリマーが(メタ)アクリル酸モノマー単位を含むポリマーを含み、各第 2 の干渉層が配向ポリエステルを含む、請求項 1 2 に記載の多層フィルム。

【発明の詳細な説明】

【背景技術】

【0001】

多層窓フィルムは、窓ガラスに適用して耐飛散性を増加させることができる。

【0002】

多層光学フィルムは、光干渉によって光を反射することができる。

【発明の概要】

【0003】

本開示は、概して、多層フィルムに関する。多層フィルムは、ガラスの耐飛散性及び安全性を増加させるようガラスに結合するように適合された窓フィルムであり得、及び/又は多層フィルムは、少なくとも 1 つの偏光状態の光を少なくとも 1 つの波長範囲内で反射する多層光学フィルムであり得る。多層フィルムは、典型的には、少なくとも 1 つのナノ複合体層と少なくとも 1 つの他の層とを含む。ナノ複合体層は、少なくとも 1 つのポリマーと、少なくとも 1 つのポリマー中に分散された金属酸化物ナノ粒子とを含む。少なくとも 1 つのポリマーは(メタ)アクリル酸モノマー単位を含む第 1 のポリマーを含む。少なくとも 1 つのポリマーは第 1 のポリマーとブレンドされた第 2 のポリマーを更に含み得る。いくつかの実施形態では、ナノ複合体層は、少なくとも 1 つのポリマー(例えば、金属酸化物ナノ粒子を含まない第 1 及び第 2 のポリマーの好適なブレンド)の層で置き換えられる。金属酸化物ナノ粒子は、カルボン酸シラン表面改質剤で表面改質されている。多層

10

20

30

40

50

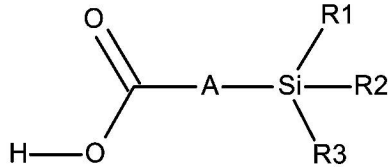
フィルムのナノ複合体層は、透明エラストマーナノ複合体層であり得る。いくつかの実施形態では、本明細書に記載のナノ複合体は、高い透過率及び低いヘイズを非常に高いナノ粒子の充填量まで有し得る。いくつかの実施形態では、ナノ複合体はまた、改善された耐衝撃性及び/又は引張弾性率などの改善された機械的特性を示す。

【0004】

いくつかの態様では、多層フィルムの厚さ方向に沿って配置された複数の第1の層及びポリマーの第2の層を含む多層フィルムが提供される。第1及び第2の層は、異なる組成を有する。第1の層のそれぞれは、少なくとも1つのポリマーと、少なくとも1つのポリマー中に分散された金属酸化物ナノ粒子とを含む。少なくとも1つのポリマーは(メタ)アクリル酸モノマー単位を含む第1のポリマーを含む。金属酸化物ナノ粒子は、式1：

10

【化1】



式1

[式中、

20

R1は、C₁~C₁₀アルコキシ基であり、

R2及びR3は、独立して、C₁~C₁₀アルキル基及びC₁~C₁₀アルコキシ基からなる群から選択され、

Aは、C₁~C₁₀アルキレン基又はアリーレン基、C₁~C₁₀アラルキレン基、C₂~C₁₆ヘテロアルキレン基又はヘテロアリーレン基、及びC₂~C₁₆アミド含有基からなる群から選択されるリンカー基である]のカルボン酸シランを含む表面改質剤で表面改質されている。

【0005】

いくつかの態様では、第1の層と第1の層上に配置された複数の交互のポリマー層とを含む多層フィルムが提供される。第1の層は、少なくとも1つのポリマーと、少なくとも1つのポリマー中に分散された金属酸化物ナノ粒子とを含む。少なくとも1つのポリマーは(メタ)アクリル酸モノマー単位を含む第1のポリマーを含む。金属酸化物ナノ粒子は、式1のカルボン酸シランを含む表面改質剤で表面改質されている。

30

【0006】

これら及び他の態様は、以下の詳細な説明から明らかになるであろう。しかしながら、いかなる場合も、この簡潔な概要は、特許請求の範囲の主題を限定するものと解釈されるべきではない。

【図面の簡単な説明】

【0007】

【図1】本開示のいくつかの実施形態による例示的な多層フィルムの概略側面図である。

40

【図2】本開示のいくつかの実施形態による例示的な多層フィルムの概略側面図である。

【図3】本開示のいくつかの実施形態による例示的な多層フィルムの概略側面図である。

【図4】本開示のいくつかの実施形態による例示的な多層フィルムの概略側面図である。

【図5】フィルムに対して実質的に垂直入射する光の概略図である

【図6】いくつかの実施形態による多層フィルムの透過率対波長の概略プロットである。

【図7】例示的なナノ複合体層の概略断面図である。

【発明を実施するための形態】

【0008】

以下の説明では、本明細書の一部を形成し様々な実施形態が例示として示されている添付図面が参照される。図面は、必ずしも縮尺通りではない。他の実施形態が想到され、本

50

明細書の範囲又は趣旨から逸脱することなく実施されてもよい点を理解されたい。したがって、以下の発明を実施するための形態は、限定的な意味では解釈されない。

【0009】

本明細書に開示されるのは、多層フィルムであって、フィルムの少なくとも1つの層が、本明細書に記載のナノ複合体を含む、多層フィルムである。多層フィルムは、ガラスの耐飛散性を増加させるようガラスに結合するよう適合された窓フィルムであり得、及び/又は多層フィルムは、少なくとも1つの偏光状態の光を少なくとも1つの波長範囲内で反射する多層光学フィルムであり得る。

【0010】

多層フィルムは、いくつかの実施形態によれば、例えば、建築用途又はビークル (vehicle) 用途で使用することができる。例えば、建築用窓フィルムは、機械的保護 (例えば、耐飛散性) のために窓ガラス (例えば、内側ガラス表面、外側ガラス表面、又はガラス層の間) に結合された防風フィルムであり得るか、又はそれを含み得、任意選択的に赤外線太陽光遮断フィルムも含むことができる。ビークル (例えば、自動車) 用途では、多層フィルムは、例えば、本明細書の他の箇所で更に説明されるように、機械的特性、赤外線反射、又は投影されたヘッドアップディスプレイ画像の反射のうちの1つ以上のためにウィンドシールドガラスの層の間に配置され得る。多層フィルムはまた、自動車又は他の用途における反射体として使用することができる。他の用途の多層フィルムとしては、いくつかの実施形態によれば、例えば、セルラーアンテナ又は他の構造の視覚的影響を低減するカムフラージュ効果を作り出すために使用することができる装置隠蔽反射フィルムが挙げられる。

10

20

【0011】

本明細書に記載のナノ複合体は、典型的には、イオン性エラストマーを含む。多層フィルムの外層中のアイオノマーエラストマーの使用により、例えば、ガラス又は他の表面へのフィルムの結合を改善することができる。これにより、多層フィルムがガラス (例えば、窓又はウィンドシールド) に直接結合することを可能にする。

【0012】

多層フィルムは、多くの場合、複数の層の共押出によって、続いていくつかの場合では、層の一部を配向させるために、フィルムを延伸することによって形成される。本明細書に記載のナノ複合体は、典型的には、イオン性エラストマーと、イオン性エラストマー中に分散されたナノ粒子とを含む。ナノ粒子を使用して、多層フィルムの他の層との共押出加工のための溶融レオロジー (例えば、メルトフローインデックス) を変更することができる。あるいは、又はそれに加えて、ブレンドのポリマーが選択される、アイオノマー (例えば、2つのモノマー単位コポリマー及びターポリマー) のブレンドが、多層フィルムの他の層との共押出加工のために溶融レオロジーを少なくとも部分的に変更するために使用され得る。

30

【0013】

ナノ複合体層の代替物は、いくつかの実施形態による、本明細書に記載の少なくとも1つのポリマー (例えば、2つ以上のアイオノマーのブレンド) から形成された層である。ナノ複合体又はアイオノマーのブレンドは、いくつかの実施形態によれば、窓フィルム及び/又は多層光学フィルムにおいて、改善された耐断裂性を提供する。

40

【0014】

多層光学フィルムは、例えば、米国特許第5,882,774号 (Jonzara)、同第6,179,948号 (Merrillら)、及び同第6,498,683号 (Condoら) に記載されている。多層光学フィルムは、当該技術分野において既知であるように、それらの屈折率について層材料を好適に選択し、層厚を好適に調整することによって、所定の偏光状態に対し所定波長範囲にわたって所望の反射を提供するように適合させることができる。

【0015】

いくつかの実施形態では、本明細書に記載の多層フィルムは、可視光ミラーフィルム (

50

例えば、実質的に垂直入射する非偏光状態の光に対し少なくとも450 nmから650 nmまで広がる波長範囲にわたって少なくとも70%の平均反射率を有する)、赤外線ミラーフィルム(例えば、実質的に垂直入射する非偏光状態の光に対し少なくとも800 nmから900 nmまで、又は900 nmから1000 nmまで広がる波長範囲にわたって少なくとも70%の平均反射率を有する)、反射偏光子(例えば、実質的に垂直入射する光に対して直交する第2の偏光状態に対してよりも、第1の偏光状態に対して少なくとも450 nmから650 nmまで広がる波長範囲にわたって少なくとも20%、又は少なくとも30%高い平均反射率を有する)、又はノッチ光学フィルタであり得る。ノッチ光学フィルタは、例えば、ノッチミラー(例えば、実質的に垂直入射する非偏光状態の光に対し少なくとも5 nmの幅かつ約100 nm以下の幅である少なくとも1つの波長範囲にわたって少なくとも70%の平均反射率を有する)、又はノッチ反射偏光子(例えば、実質的に垂直入射する光に対して直交する第2の偏光状態に対してよりも、第1の偏光状態に対して少なくとも5 nmの幅かつ約100 nm以下の幅である少なくとも1つの波長範囲にわたって少なくとも30%高い平均反射率を有する)であり得、又はノッチ光学フィルタは、少なくとも1つの偏光状態に対してノッチ透過帯域を有することができる。

10

【0016】

多層フィルムは、例えば、バックライトでの背面反射体として、又はバックライトと液晶ディスプレイとの間の反射偏光子として、液晶ディスプレイパネルに使用することができる。別の例として、多層フィルムは、ビューアに投影されたヘッドアップディスプレイ画像を反射するために、自動車ウィンドシールド内のガラス層間に組み込むことができる。そのような場合、多層フィルムは、典型的には、反射偏光子である(例えば、遮断偏光状態の実質的に垂直入射する可視光に対して、約30%~約70%の平均反射率、及び通過偏光状態で実質的に垂直入射する可視光に対して、約10%未満の平均反射率を有し、そのような多層フィルムは、例えば、米国特許第6,952,312号(Weberら)、及び国際公開第2019/145860号(Haagra)に記載されている)。

20

【0017】

多層窓フィルム及び/又は耐断裂性フィルムは、例えば、米国特許第5,604,019号(Blandら)、同第6,040,061号(Blandら)、及び同第9,776,381号(Liuら)に記載されている。場合によっては、そのようなフィルムは、配向されている、及び/又は剛性である層を含み、実質的に等方性及び/又は延展性である層を含む。異なる機械的特性を有する層の組み合わせは、ガラス上に配置されたフィルムを含むスタックのフィルムの改善された耐断裂性及び/又は改善された耐飛散性をもたらし得る。

30

【0018】

いくつかの実施形態では、本明細書に記載の多層フィルムは、窓ガラスの耐飛散性を増加させるように適合された多層窓フィルムである。いくつかの実施形態では、本開示の多層フィルムとしては、耐飛散性のための多層窓フィルム、及び太陽の加熱を低減するための多層光学フィルム(例えば、赤外線ミラーフィルム)が挙げられる。窓フィルム及び多層光学フィルムは、一体的に形成され得る(例えば、一緒に共押出される)か、又は例えば、別々に形成され、接着剤層と接合され得る。

40

【0019】

いくつかの実施形態では、多層フィルムの少なくとも1つの層(例えば、多層光学フィルムのスキン層若しくは保護境界層、及び/又は多層光学フィルムの低屈折率層、及び/又は耐断裂性フィルム若しくは窓フィルムの延展性層)は、本開示のナノ複合体を含むか、又は本開示のアイオノマーブレンドを含む。

【0020】

従来のイオン性エラストマーは、高い可視透過率及び低いヘイズ、耐薬品性、及び可撓性などの所望の特性のいくつかを有する。しかしながら、従来のイオン性エラストマーポリマーは、例えば、いくつかの用途に望ましい機械的特徴又は引張弾性率を欠いている。

【0021】

50

粒子状充填剤は、機械的特性を改善するためにポリマーに組み込まれている。しかしながら、市販の充填ポリマーの過半数は不透明であり、したがって光学物品での使用には不適切である。加えて、剛性粒子状充填剤は、それらが組み合わせられたポリマーの可撓性特性に悪影響を及ぼすことがある。

【0022】

改質された特性を提供するための1つの技術は、ポリマー材料をブレンドすることである。このアプローチは、可撓性などの1つの特性を改善するためのブレンドの調製が、光学特性などの他の特性に悪影響を及ぼすことがあるため、問題となり得る。これは、ポリマーブレンドの過半数が少なくともある程度の不混和性を有するため、光学特性に特に当てはまる。混和性の欠如は、可視光透過率、ヘイズ、及び透明度などの光学特性に劇的に影響を及ぼし得る。同じ又は同様のモノマー組成を有するポリマーであっても、例えば、ポリマーが異なる分枝度を有する場合、不混和性であり得る。したがって、ポリマー組成物を別のポリマーとブレンドすることによるポリマー組成物の改質は、類似しているように見えるポリマーであっても、特にブレンドされた組成物が所望の光学特性を有する場合には、容易なことではない。同様の含有量の(メタ)アクリル酸モノマー単位を含む異なるポリマーのブレンドは、所望の光学特性(例えば、高い光透過性及び/又は低い光学ヘイズ)を維持しながら、改善された機械的特性を提供することが予想外に見出された。

【0023】

用語「混和性の」又は「混和性」は、可視光(約400~約700nmの波長)の有意な散乱を生成するのに十分大きい相分離マイクロドメインを形成するために少なくとも2つのポリマーのブレンドが相分離しないような互いに相溶性(compatible)の少なくとも2つのポリマーを指す。

【0024】

用語「不混和性の」又は「不混和性」は、許容できないヘイズをもたらす、可視光(約400~約700nmの波長)の有意な散乱を生成するのに十分大きい相分離マイクロドメインを形成するために少なくとも2つのポリマーのブレンドが相分離するような互いに非相溶性の少なくとも2つのポリマーを指す。

【0025】

本開示の多層フィルムは、いくつかの好ましい実施形態によれば、可撓性、光学性能(例えば、所望の透明度又は反射率)及び改善された機械的特性の相反する目標を達成する。多層フィルムのナノ複合体層は、典型的には、ポリマーマトリックス及び表面改質ナノ粒子充填剤を含む。ポリマー相とも称され得るポリマーマトリックスは、少なくとも1つのポリマー(例えば、ポリマー又はポリマーのブレンド)を含む。

【0026】

本開示のナノ複合体層は、ナノメートル範囲内の平均直径を有する粒子である金属酸化物ナノ粒子を利用する。これらの粒子は、ナノ複合体に改善された機械的特性をもたらす、それらの小さいサイズのため、いくつかの実施形態によれば、ナノ粒子は可視光を感知できるほどに散乱させない。ナノ粒子は、少なくとも1つのポリマーとの適合性(compatibility)を達成して、劣った光学特性につながるナノ複合体中のナノ粒子の弱凝集(agglomeration)又は強凝集(aggregation)を回避するために、ナノ粒子を表面改質することができる。表面改質剤は、典型的にはカルボン酸官能性シランである。理論に束縛されるものではないが、表面改質剤上の酸官能基は、粒子と少なくとも1つのポリマーの酸官能性(メタ)アクリルポリマーとの適合性を改善すると考えられる。表面改質ナノ粒子上の酸官能基の一部は、(メタ)アクリルポリマー上の酸官能基の少なくとも一部のように中和されてもよい。表面改質剤中の酸官能基は、ナノ粒子の水中の分散性に好ましい。塩基性表面未改質ナノ粒子溶液(例えば、NALCO 2327)に添加される場合、酸シランの酸基は、少なくとも部分的に中和され、これは、シリカの表面が容易に改質され得るように、シランを水相に可溶性にする。更に、粒子の表面上の酸シランが、ナノ粒子と弾性アイオノマーポリマーのイオン基との相互作用を可能にすることができるイオン性エラストマーナノ複合体材料のコーティング及び溶融加工において、ホストポリマーマト

10

20

30

40

50

リックス中のナノ粒子の優れた適合性をもたらすことが見出された。

【0027】

図1は、多層フィルム100の厚さ方向(z方向)に沿って配置された複数の第1の層110及び第2の層120を含む、多層フィルム100の概略断面図である。各第1及び第2の層110及び120は、直交する第1及び第2の方向(x方向及びy方向)に沿って延びる。厚さ方向は、第1及び第2の方向に直交する。第1及び第2の層は、任意の好適な様式で順次配置することができる。図示した実施形態では、第1及び第2の層110及び120は、厚さ方向に沿って交互になっている。他の実施形態では、第1及び第2の層は、非交互順序で配置され得る。

【0028】

いくつかの実施形態では、第1の層110のそれぞれは、本明細書の他の箇所で更に説明されるように、ナノ複合体層である。いくつかの実施形態では、各第2の層120は、ポリマー層である。第2の層120に好適な材料としては、例えば、ポリエチレンナフタレート(PEN)、ポリエチレンテレフタレート(PET)、又はそれらのコポリマー若しくはブレンドが挙げられる。第2の層120に好適な他の材料としては、例えば、ポリカーボネート、ポリアクリレート、及びナフタレート、並びにテレフタレート含有ポリマー、例えば、ポリブチレンナフタレート(PBN)、ポリプロピレンナフタレート(PPN)、ポリブチレンテレフタレート(PBT)、及びポリプロピレンテレフタレート(PPT)を含む他のポリエステル、及び上記のいずれかの互いの、又は非ポリエステルポリマーとのブレンド若しくはコポリマーが挙げられる。他の好適な材料は、例えば、米国特許第6,498,683号(Condoら)及び同第8,168,302号(Hebrinkら)に記載されている。いくつかの実施形態では、各第2の層120は、テレフタレートモノマー単位及びエチレングリコールモノマー単位を含むポリエステルを含む。

【0029】

本明細書に記載の多層フィルム100又は他の多層フィルムは、図1に概略的に示されるように実質的に平面であり得るか、又は例えば、熱成形によって所望の形状に湾曲することができる。

【0030】

図2は、多層フィルム200の厚さ方向(z方向)に沿って配置された複数の第1の層110及び第2の層120を含む多層フィルム200の概略断面図である。多層フィルム200は、少なくとも1つの第3の層130を更に含むことができる。

【0031】

いくつかの実施形態では、多層フィルム200は、第1及び第2の層110及び120と共に、厚さ方向に沿って配置されたポリマーの複数の第3の層130を含む。

【0032】

いくつかの実施形態では、多層フィルム100及び/又は200は、ガラスの耐飛散性を増加させるように適合された窓フィルムである。いくつかの実施形態では、多層フィルムは、実質的に垂直入射する非偏光状態の光に対して、少なくとも70パーセント、又は少なくとも80パーセント、又は少なくとも90パーセントの光透過率を有する。光透過率は、ASTM D1003-00「Standard Test Method for Haze and Luminous Transmittance of Transparent Plastics」に従って決定することができる。「光/視感(luminous)」という用語は、国際照明委員会(Commission Internationale de l'Éclairage)(CIE, 1987)によって確立された分光光視感効率関数 $V(\lambda)$ に従って重み付けされた波長に対する平均を示す。

【0033】

多層フィルム100及び200は、概略的に示されているよりも多くの層を有してもよい。いくつかの実施形態では、多層フィルムは、30層以下の層を含む。例えば、いくつかの実施形態では、第1及び第2の層は、合計で4~30層、又は5~25層、又は5~20層の数である。いくつかの実施形態では、合計5層が含まれ、層の厚さは、20マイ

10

20

30

40

50

クロメートル～100マイクロメートル、又は35マイクロメートル～175マイクロメートル、又は50マイクロメートル～250マイクロメートルの範囲内である。いくつかの実施形態では、合計7層が含まれ、層の厚さは、20マイクロメートル～140マイクロメートル、又は25マイクロメートル～175マイクロメートル、又は30マイクロメートル～210マイクロメートルの範囲内である。いくつかの実施形態では、合計13層が含まれ、層の厚さは、10マイクロメートル～130マイクロメートル、又は15マイクロメートル～195マイクロメートル、又は20マイクロメートル～260マイクロメートルの範囲内である。

【0034】

いくつかの実施形態では、多層フィルムは、主に光干渉によって光を透過及び反射するように適合されている。例えば、層110及び120は、所望の光の波長を反射するように選択された光学的厚さを有する光学繰返し単位に配置された干渉層であり得る。当技術分野において既知であるように、交互の層を含む多層光学フィルムを使用して、それらの屈折率及び層厚の好適な選択について層材料を好適に選択することによって、所望の反射及び透過帯域を提供することができる。多層光学フィルム及び多層光学フィルムを作製する方法は、例えば、米国特許第5,882,774号(Jonzar)、同第6,179,948号(Merrill)、同第6,783,349号(Neavin)、同第6,967,778号(Wheatley)、及び同第9,162,406号(Neavin)に記載されている。多層フィルム、又は多層フィルムの干渉層は、主に光干渉によって光を反射又は透過するとして説明され得、フィルム又は干渉層の反射率及び透過率を光干渉によって妥当に説明できるか、又は光干渉から生じるとして妥当に正確にモデル化できる。

【0035】

干渉層は、典型的には、約500nm未満の厚さである。いくつかの実施形態では、第1及び第2の層110及び120の各々は、500nm未満、又は400nm未満、又は300nm未満の平均厚さを有する。いくつかの実施形態では、第1及び第2の層110及び120の各々は、10nm～200nm又は10nm～100nmの範囲の平均厚さを有する。

【0036】

層の数は、図1～図2に概略的に示されるよりも少なくても、それよりも多くても、又はそれよりも実質的に多くてもよい。例えば、いくつかの実施形態では、第1及び第2の層の数は、合計で少なくとも50である。層の総数は、例えば、50～1000、又は50～400、又は100～300であり得る。層のより多い数は、例えば、より高い反射率を提供し、及び/又はより広い波長範囲にわたって反射するために望まれる場合がある。いくつかの実施形態では、多層光学フィルムは、例えば、30～250マイクロメートル、又は50～200マイクロメートルの範囲の厚さを有する。

【0037】

いくつかの実施形態では、第1の層は、実質的に光学的に等方性である。例えば、第1の層の $|n_x - n_y|$ 及び/又は

【数1】

$$|n_z - \frac{1}{2}(n_x + n_y)|$$

は、0.03未満、又は0.02未満であり得、式中、 n_x 、 n_y 、及び n_z は、それぞれ x 、 y 、及び z 方向に沿った屈折率である。屈折率は、例えば、532nmで決定することができる。いくつかの実施形態では、第2の層は、複屈折である。例えば、第2の層の $|n_x - n_y|$ 及び/又は

【数2】

$$|n_z - \frac{1}{2}(n_x + n_y)|$$

10

20

30

40

50

は、0.05超、又は0.1超であり得る。

【0038】

多層光学フィルムの低屈折率層が本明細書のナノ複合体層を含む実施形態では、平均ナノ粒子サイズは、好ましくは4～20nmの範囲であり得る。好ましいナノ粒子サイズは、ナノ粒子が、フィルムが配向された後、ナノ複合体層の厚さの半分未満の平均直径を有するようなものである。いくつかの実施形態では、ナノ粒子は、例えば、2%～25%、2%～20%、又は2%～15重量%の範囲で、ナノ複合体層中に存在し得る。

【0039】

いくつかの実施形態では、多層フィルムは、例えば、所望の耐裂断特性及び/又は耐飛散特性を提供する複数の第1及び第2の層を含み、また、複数の第1及び第2の層上に配置された複数の交互のポリマー層を更に含む。例えば、図1～図2の多層フィルムは、所望の耐裂断特性及び/又は耐飛散特性を提供することができ、任意選択的に、所望の波長範囲において所望の反射率を提供するために、例示された層上に配置された複数の交互のポリマー層を更に含むことができる。

10

【0040】

図3は、ガラス層350上に配置された多層フィルム300を含む光学スタック301の概略断面図である。多層フィルム300は、複数の第1及び第2の層110及び120を含み、また、複数の第1及び第2の層110及び120上に配置された複数の交互のポリマー層210及び220を含む。いくつかの実施形態では、多層フィルム300は窓フィルムであり、ガラス層350は窓ガラスであり、複数の交互のポリマー層210及び220が赤外光を反射するように適合され、複数の第1及び第2の層110及び120が、ガラス層350に所望の耐飛散性を提供するように適合されている。

20

【0041】

追加のガラス層が、層110及び120に対向する複数の交互のポリマー層210及び220上に配置され得る。いくつかの実施形態では、多層フィルムは、追加のガラス層と交互のポリマー層210及び220との間に配置されている複数の追加の層（例えば、110及び120に対応する）を更に含む。追加の層は、例えば、強化された耐飛散性のために含まれ得る。いくつかの実施形態では、多層フィルム300は、強度（例えば、耐飛散性）及び反射特性（例えば、ヘッドアップディスプレイ用及び/又は太陽光赤外線遮断用）の両方のために、ガラス層上に、又はガラス層の間に配置される。他の実施形態では、多層フィルム（例えば、光学的に厚い層が使用される多層フィルム100又は200）は、主に強度のために、ガラス層上、又はガラス層の間に配置される。他の実施形態では、多層フィルム（例えば、干渉層が使用される、他の箇所では説明される多層フィルム400）は、主に反射特性のために（例えば、ヘッドアップディスプレイ用及び/又は太陽光赤外線遮断用）ガラス層の間に配置される。多層フィルムがガラス層上に配置されるか、又はガラス層の間に配置される実施形態では、ガラス層に直接隣接する多層フィルムの層は、本明細書に記載のナノ複合体又はアイオノマー層を含むことが典型的には好ましい。

30

【0042】

いくつかの実施形態では、少なくとも第1の層110は、本開示のナノ複合体を含む。いくつかの実施形態では、層210及び220並びに/又は層210及び220とともに形成された任意選択的なスキン層、若しくは保護境界層（図3には示されず、例えば、図4を参照）のうちの1つは、本開示のナノ複合体を含む。

40

【0043】

図4は、第1の層（層140、142、及び141のうちのいずれか1つを、図示した実施形態では第1の層と見なすことができる）と、第1の層上に配置された複数の交互のポリマー層210及び220とを含む、多層フィルム400の概略断面図である。いくつかの実施形態では、交互のポリマー層210及び220は、500nm未満、又は400nm未満の平均厚さを有する。いくつかの実施形態では、層140、142、及び144の各々は、1マイクロメートル超、又は2マイクロメートル超の厚さを有する。第1の層は、本開示のナノ複合体を含む。いくつかの実施形態では、層140、142、及び14

50

1のうちの2つは、本開示のナノ複合体を含む。いくつかの実施形態では、層140、142、及び141の各々は、本開示のナノ複合体を含む。層140、142、及び144は、保護境界層であってもスキン層であってもよい。当該技術分野で既知であるように、フィルムの加工中に干渉層を保護するために、干渉層のパケットの外層として保護境界層を追加することができる。

【0044】

いくつかの実施形態では、複数の交互のポリマー層210及び220は、1つ以上の光学的に厚い層（例えば、約1マイクロメートル超の平均厚さ）によって分離された下位群をなす複数の交互の層を含む。いくつかの実施形態では、多層フィルム400は、第1の層140及び第2の層142を含み、少なくとも1つの下位群146をなす複数の交互のポリマー層が、第1及び第2の層140及び142の間に配置される。あるいは、層142を省略することができ（例えば、交互層の単一のパケットがあり得る）、層144は、第1及び第2の層の間に配置された複数の交互のポリマー層を有する第2の層であると見なすことができる。

10

【0045】

第1の層は、本開示のナノ複合体を含む。例えば、第1の層は、少なくとも1つのポリマーと、少なくとも1つのポリマー中に分散された金属酸化物ナノ粒子とを含むことができ、少なくとも1つのポリマーは（メタ）アクリル酸モノマー単位を含む第1のポリマーを含み、金属酸化物ナノ粒子は、カルボン酸シラン表面改質剤（例えば、他の箇所に記載された式1に従う）で表面改質されている。いくつかの実施形態では、少なくとも1つのポリマーが第1のポリマーとブレンドされた第1のポリマーとは異なる第2のポリマーを更に含み、第2のポリマーは（メタ）アクリル酸モノマー単位を含む。いくつかの実施形態では、第2の層は少なくとも1つのポリマーを含み、第2の層の少なくとも1つのポリマーは（メタ）アクリル酸モノマー単位を含む第1のポリマーを含む。いくつかの実施形態では、第2の層は、第2の層の少なくとも1つのポリマー中に分散された金属酸化物ナノ粒子を更に含み、第2の層の金属酸化物ナノ粒子は、カルボン酸シラン表面改質剤（例えば、他の箇所に記載される式1に従う）で表面改質されている。いくつかの実施形態では、第2の層の少なくとも1つのポリマーが第2の層の第1のポリマーとブレンドされた第2の層の第1のポリマーとは異なる第2のポリマーを更に含み、第2の層の第2のポリマーは（メタ）アクリル酸モノマー単位を含む。

20

30

【0046】

いくつかの実施形態では、交互のポリマー層は交互の第1（210）及び第2（220）の干渉層を含む。各第1の干渉層は、少なくとも1つのポリマー（例えば、1つのポリマー又は第1及び第2のポリマーのブレンド）を含み、第1の干渉層の少なくとも1つのポリマーは（メタ）アクリル酸モノマー単位を含むポリマーを含む。いくつかのそのような実施形態では、又は他の実施形態では、各第2の干渉層は、配向ポリエステルを含む。例えば、各第2の干渉層は、テレフタレートモノマー単位及びエチレングリコールモノマー単位を含むポリエステルを含むことができる。いくつかの実施形態では、第1の層210は、第2の層220よりも複屈折が少ない。いくつかの実施形態では、第1の層210は、実質的に光学的に等方性である。いくつかの実施形態では、第1の層210は低屈折率層であり、第2の層220は高屈折率層である。

40

【0047】

いくつかの実施形態では、本明細書に記載のナノ複合体は、層が低屈折率を有し及び/又は配向されないままであることが望まれる、層で使用される。例えば、ナノ複合体は、交互になった高屈折率層及び低屈折率層が多層光学フィルムで使用される場合、低屈折率層として使用することができる。いくつかの実施形態では、ナノ複合体に含まれるナノ粒子（例えば、シリカナノ粒子）は、ナノ複合体のポリマー又はポリマーブレンドよりも低い屈折率を有する。したがって、いくつかの実施形態では、ナノ粒子は、ナノ複合体層の有効屈折率を低下させる。あるいは、又はそれに加えて、高屈折率層を配向させるためにフィルムが延伸される場合、ナノ粒子は、屈折率を増加させる層及び他の方法で起こり得

50

る層の配向を阻害することができる。

【0048】

図5は、実質的に垂直入射する（例えば、垂直入射する20度、10度、又は5度以内）の光170を概略的に例示する、本開示の多層フィルム500の概略断面図である。光170の一部分は、光174として反射され、光170の一部分は光172として透過される。

【0049】

いくつかの実施形態では、多層フィルムは、実質的に垂直入射する非偏光状態の光に対し少なくとも450nmから650nmまで広がる波長範囲にわたって少なくとも70パーセントの平均光透過率を有する。いくつかのそのような実施形態では、又は他の実施形態では、多層フィルムは、実質的に垂直入射する非偏光状態の光に対し少なくとも900nmから1000nmまで広がる波長範囲にわたって50%以下の平均光透過率を有する。いくつかの実施形態では、実質的に垂直入射する非偏光状態の光に対し少なくとも450nmから650nmまで広がる波長範囲にわたっての平均光透過率は少なくとも70パーセントであり、実質的に垂直入射する非偏光状態の光に対し少なくとも900nmから1000nmまで広がる波長範囲にわたっての平均光透過率は30パーセント以下である。

【0050】

図6は、いくつかの実施形態による多層フィルムの透過率対波長の概略プロットである。図示した透過率は、実質的に垂直入射する光に対するものであり得る。多層フィルムは、1~2の波長範囲にわたりT1の平均透過率、及び3~4の波長範囲にわたりT2の平均透過率を有する。波長は、1<2<3<4であるようになる。いくつかの実施形態では、1?450nm及び2 650nmである場合、T1は、少なくとも60パーセント、又は少なくとも70パーセント、又は少なくとも80パーセント、又は少なくとも90パーセントである。いくつかのそのような実施形態では、又は他の実施形態では、T2は、3?900nm及び4 1000nmである場合、50パーセント以下、又は40パーセント以下、又は30パーセント以下、又は20パーセント以下、又は10パーセント以下である。

【0051】

他の実施形態では、多層フィルムは、図6に概略的に示されるものとは実質的に異なる透過率を有する。例えば、多層フィルムは、1つの偏光状態に対して、又は2つの直交偏光状態の各々に対して、1と2との間に1つ以上の反射帯域を有することができる。

【0052】

ナノ複合体層での使用に好適な組成物は、少なくとも1つの(メタ)アクリルポリマー(例えば、1つの(メタ)アクリルポリマー又は2つ以上の混和性(メタ)アクリルポリマー)と表面改質金属酸化物ナノ粒子とを含むナノ複合体であり、表面改質金属酸化物ナノ粒子は酸官能性シラン表面改質剤で表面改質されており、(メタ)アクリルポリマーは、少なくとも部分的に中和されている。ナノ複合体は、光学的に透明なフィルムに溶融加工可能であり得る。溶融加工可能とは、ナノ複合体が溶融加工可能であること、すなわち、ナノ複合体を加熱し、分解を引き起こすことなく流動させることができることを意味する。溶融加工可能であることは、ナノ複合体が溶融加工されたことを意味せず、決して加工工程を示すものではない。ナノ複合体層はまた、層が基材から除去され得るように基材上への水性分散液からのコーティングプロセスによって作製され得る。

【0053】

図7は、少なくとも1つのポリマー108(例えば、ポリマーマトリックス)と、少なくとも1つのポリマー中に分散された金属酸化物ナノ粒子105とを含むナノ複合体層310の概略断面図である。

【0054】

広範な(メタ)アクリルポリマーが、本開示のナノ複合体での使用に好適である。(メタ)アクリルポリマーは、(メタ)アクリル酸モノマー単位(すなわち、アクリル酸モノマー単位、メタアクリル酸モノマー単位、又はアクリル酸モノマー単位とメタアクリル酸モノ

10

20

30

40

50

マー単位との両方)を含む。いくつかの実施形態では、(メタ)アクリルポリマーは、アクリル酸又はメタクリル酸のホモポリマーである。他の実施形態では、(メタ)アクリルポリマーは、酸官能性である少なくとも1つの(メタ)アクリルモノマー単位と、酸官能性ではない(メタ)アクリレートである少なくとも1つのモノマーとのコポリマーである。更に、(メタ)アクリルポリマーは、(メタ)アクリル及び(メタ)アクリレートモノマーと共重合可能な他の非(メタ)アクリレートモノマーを含有することができる。コポリマーは、フリーラジカル重合技術を使用して重合又は共重合によって形成することができる。いくつかの実施形態では、少なくとも1つの(メタ)アクリルポリマーは、(メタ)アクリル酸と少なくとも1つのコモノマーとを含有するコポリマーを含む。広範なコモノマーが好適である。好適なコモノマーとしては、エチレン、プロピレン、アルキル(メタ)アクリレート、アリール(メタ)アクリレート、アルカリール(メタ)アクリレート、アクリロニトリル、及び一酸化炭素が挙げられる。

10

【0055】

いくつかの実施形態では、ナノ複合体は、少なくとも1つのポリマーと、ナノ複合体の少なくとも1つのポリマー中に分散された金属酸化ナノ粒子とを含む。各ポリマーは、少なくとも10000グラム/モルの数平均分子量を有することができる。ナノ複合体の少なくとも1つのポリマーは、(メタ)アクリル酸モノマー単位(メタクリル酸モノマー単位及びアクリル酸モノマー単位からなる群から選択されるモノマー単位)を含む第1のポリマーを含む。金属酸化ナノ粒子は、本明細書の他の箇所で記載される式1のカルボン酸シランを含む表面改質剤で表面改質されている。

20

【0056】

いくつかの実施形態では、第1のポリマーは、少なくとも12000グラム/モル又は少なくとも15000グラム/モルの数平均分子量を有する。いくつかの実施形態では、少なくとも1つのポリマーの各ポリマーは、少なくとも12000グラム/モル又は少なくとも15000グラム/モルの数平均分子量を有する。例えば、少なくとも1つのポリマーは、第1及び第2のポリマーのブレンドであり得、第1及び第2のポリマーの各々は、少なくとも12000グラム/モル又は少なくとも15000グラム/モルの数平均分子量を有し得る。ポリマーの数平均分子量は、ゲル浸透クロマトグラフィー(gel permeation chromatography)(GPC)によって決定することができる。GPCシステムによるポリマー特定は周知である。そのようなシステムの例は、Viscotek TD Amax(Malvern Panalytical, Spectrisの一部)である。このシステムには、分子量を決定するための複数の検出器が装備されている。小さなポリマーの絶対分子量は、直角光散乱検出器を使用して測定することができ、外挿なしのポリマーの絶対分子量の直接出力は、低角度光散乱を使用して得ることができる。追加の検出器を使用して、ポリマー構造に関する情報、例えば、分枝を評価するために固有粘度検出器を使用することができ、コポリマー組成物に関連する情報は、UV吸収成分が存在する場合にフォトダイオードアレイUV検出器を使用して調査することができる。この機器の更なる詳細は、供給元から見出すことができる。いくつかの実施形態では、第1のポリマー、又は少なくとも1つのポリマーの各ポリマーは、100,000グラム/モル未満の数平均分子量を有する。

30

40

【0057】

いくつかの実施形態では、第1のポリマーは、エチレン、プロピレン、アルキル(メタ)アクリレート、アリール(メタ)アクリレート、アルカリール(メタ)アクリレート、アクリロニトリル、及び一酸化炭素からなる群から選択される、少なくとも1つのモノマー単位(例えば、(メタ)アクリル酸モノマー単位が第1のタイプのモノマー単位である場合、第2のタイプのモノマー単位)を更に含む。いくつかの実施形態では、第1のポリマーは、エチレン及びプロピレンからなる群から選択される少なくとも1つのモノマー単位(例えば、第2のタイプのモノマー単位)を含む。いくつかのそのような実施形態では、第1のポリマーは、n-ブチルアクリレート、イソブチルアクリレート、イソプロピルアクリレート、n-プロピルアクリレート、エチルアクリレート、メチルアクリレート、

50

2 - エチルヘキシルアクリレート、イソ - オクチルアクリレート、及びメチルメタクリレートからなる群から選択される少なくとも1つのモノマー単位（例えば、第3のタイプのモノマー単位）を更に含む。第1のポリマーは、例えば、ターポリマーであり得る。いくつかの実施形態では、第1のポリマーは、（メタ）アクリル酸モノマー単位、エチレンモノマー単位、プロピレンモノマー単位、又はエチレンとプロピレンモノマー単位との組み合わせ、及び少なくとも1つのアルキル（メタ）アクリレートモノマー単位を含む。

【0058】

少なくとも1つのポリマーは、2つ以上の（メタ）アクリルポリマーのブレンドであり得る。（メタ）アクリルポリマーの広範囲のブレンドが好適である。好適なブレンドの例としては、アクリル酸又はメタクリル酸ホモポリマーと、アクリル酸又はメタクリル酸と、少なくとも1つの追加のモノマー（例えば、エチレン、プロピレン、アルキル（メタ）アクリレート、アリール（メタ）アクリレート、アルカリール（メタ）アクリレート、アクリロニトリル、及び一酸化炭素からなる群から選択される）とのコポリマーとのブレンドが挙げられる。他の例としては、アクリル酸又はメタクリル酸ホモポリマーと、アクリル酸又はメタクリル酸と、少なくとも2つの追加のモノマーとのコポリマー（例えば、コポリマーは、ターポリマーであり得る）とのブレンドが挙げられる。いくつかの実施形態では、ブレンドは、アクリル酸又はメタクリル酸と少なくとも1つの追加のモノマーとのコポリマーと、アクリル酸又はメタクリル酸と少なくとも1つの追加のモノマーとの異なるコポリマーとを含む。更に他の実施形態は、アクリル酸又はメタクリル酸と少なくとも1つの追加のモノマーとのコポリマーと、アクリル酸又はメタクリル酸と少なくとも2つの追加のモノマーとのコポリマーとのブレンドを含む。加えて、ブレンドはまた、アクリル酸又はメタクリル酸と少なくとも2つの追加のモノマーとの異なるコポリマーを含み得る。

【0059】

いくつかの実施形態では、少なくとも1つのポリマーは、第1のポリマーとは異なる第2のポリマーを含む。第1及び第2のポリマーは、例えば、異なる分子量、異なる酸含有量、異なる中和パーセント、異なる量の同じモノマー単位、及び/又は組成的に別個のものを有することによって異なり得る。いくつかの実施形態では、第2のポリマーは、第1のポリマーと組成的に別個のものである。この文脈において組成的に別個には、第1及び第2のポリマーのうちの少なくとも1つが、第1及び第2のポリマーの他方には存在しない少なくとも1つのタイプのモノマー単位を有することを意味すると理解され得る。例えば、第1のポリマーは、2つの異なるモノマー単位（例えば、（メタ）アクリル酸及びエチレン又はプロピレンのいずれか）を含むことができ、第2のポリマーは、第1のポリマーの2つのモノマー単位に加えて、異なる第3のモノマー単位（例えば、*n*-ブチルアクリレート又はイソブチルアクリレート）を含むことができる。組成的に別個とは、例えば、異なる酸タイプ（例えば、メタクリル酸モノマー単位対アクリル酸モノマー単位）及び異なるイオンタイプ（アイオノマーを少なくとも部分的に中和するイオンは、アイオノマーの一部であると見なすことができる）を含む。第2のポリマーは、少なくとも10000グラム/モル、又は少なくとも12000グラム/モル、又は少なくとも15000グラム/モルの数平均分子量を有することができる。

【0060】

いくつかの実施形態では、第2のポリマーは（メタ）アクリル酸モノマー単位を含む。いくつかの実施形態では、第2のポリマーは、エチレン、プロピレン、アルキル（メタ）アクリレート、アリール（メタ）アクリレート、アルカリール（メタ）アクリレート、アクリロニトリル、及び一酸化炭素からなる群から選択される少なくとも1つのモノマー単位を含む。いくつかの実施形態では、第2のポリマーは、エチレン及びプロピレンからなる群から選択される少なくとも1つのモノマー単位を含む。いくつかの実施形態では、第2のポリマーは、*n*-ブチルアクリレート、イソブチルアクリレート、イソプロピルアクリレート、*n*-プロピルアクリレート、エチルアクリレート、メチルアクリレート、2 - エチルヘキシルアクリレート、イソ - オクチルアクリレート及びメチルメタクリレートが

10

20

30

40

50

らなる群から選択される少なくとも1つのモノマー単位を更に含む。いくつかの実施形態では、第2のポリマーは、(メタ)アクリル酸モノマー単位、エチレンモノマー単位、プロピレンモノマー単位、又はエチレンとプロピレンモノマー単位との組み合わせ、及び少なくとも1つのアルキル(メタ)アクリレートモノマー単位を含む。

【0061】

いくつかの実施形態では、第1のポリマー中、及び任意選択的に第2のポリマー中の(メタ)アクリル酸モノマー単位の含有量は、12重量パーセント超である。これは、第1のポリマー、及び任意選択的に第2のポリマーを水中に分散させるのに役立つことが見出された。いくつかの実施形態では、第1及び第2のポリマー中の(メタ)アクリル酸モノマー単位の含有量は同様である。これは、例えば、ポリマーの相溶性に役立ち、光学特性を改善することが見出された。いくつかの実施形態では、第1のポリマーは第1の重量パーセント w_1 で(メタ)アクリル酸モノマー単位を含み、第2のポリマーは第2の重量パーセント w_2 で(メタ)アクリルモノマー単位を含む。いくつかの実施形態では、 w_1 及び w_2 のうちの少なくとも1つ(w_1 、又は w_2 、又は w_1 及び w_2 の各々)は、12重量パーセント超、又は13重量パーセント超、又は14重量パーセント超、又は15重量パーセント超である。いくつかの実施形態では、 w_1 及び w_2 のうちの少なくとも1つは、50重量パーセント未満、又は30重量パーセント未満、又は25重量パーセント未満である。いくつかのそのような実施形態では、又は他の実施形態では、 $|w_1 - w_2|$ は、15重量パーセント未満、又は14重量パーセント未満、又は12重量パーセント未満、又は10重量パーセント未満、又は8重量パーセント未満、又は7重量パーセント未満、又は6重量パーセント未満である。第1及び第2のポリマーの両方が水性分散液から形成される場合、差 $|w_1 - w_2|$ の値が小さくなることが好ましく、一方いくつかの実施形態では、第2のポリマーが熔融加工工程で添加される場合、差の値が大きくなるのが有用であり得る。

【0062】

いくつかの実施形態では、ナノ複合体は、本明細書の他の箇所で更に記載されるような、第1及び第2のポリマーを含む水性分散液から形成される。いくつかのそのような実施形態では、又は他の実施形態では、 w_1 及び w_2 の各々は、12重量パーセント超、又は13重量パーセント超、又は14重量パーセント超、又は15重量パーセント超である。いくつかのそのような実施形態では、又は他の実施形態では、 $|w_1 - w_2|$ は、10重量パーセント未満、又は9重量パーセント未満、又は8重量パーセント未満、又は7重量パーセント未満、又は6重量パーセント未満である。いくつかの実施形態では $|w_1 - w_2|$ は、0~10重量パーセントの範囲、又は0~約9重量パーセントの範囲(例えば、8.8又は9又は9.2重量パーセントは、約9重量パーセントであると見なすことができる)である。場合によっては、分散液中の2つのポリマーの各々が、2つのモノマー単位(例えば、(メタ)アクリル酸モノマー単位及びエチレン又はプロピレンなどの第2のモノマー単位)を含む場合、第1のポリマーの酸含有量(w_1)又は第2のポリマーの酸含有量(w_2)は、例えば、27重量パーセント超の範囲であり得る。2つのポリマーのうちの1つ(例えば、第1のポリマー)が27%超の酸含有量を有する場合、差 $|w_1 - w_2|$ は、例えば、最大15重量パーセントであり得る。

【0063】

いくつかの実施形態では、第1のポリマーを含む第1のナノ複合体、又は第1の濃縮水性分散液は、第2のポリマー(追加のポリマーとも称される)と熔融加工されて、第1及び第2のポリマーの両方を含むナノ複合体(例えば、第2のナノ複合体)を形成する。いくつかのそのような実施形態では、第2のポリマーは、中和剤を含むか又は含まずに、水中で分散性ではない。いくつかの実施形態では、 w_2 は、12重量パーセント未満であり得、及び/又は $|w_1 - w_2|$ は、例えば、15重量パーセントもの高さであり得る。いくつかの実施形態では、 w_1 は、12重量パーセント超、又は13重量パーセント超、又は14重量パーセント超、又は15重量パーセント超、又は13~50重量パーセントの範囲、又は13~35重量パーセント、又は13~27重量パーセント、又は14~22

10

20

30

40

50

重量パーセント、又は15～21.5重量パーセント、又は15～21重量パーセント、又は15～20.5重量パーセントである。いくつかのそのような実施形態では、又は他の実施形態では、 w_2 は、少なくとも10重量パーセント、又は10重量パーセント～25重量パーセント、又は～21.5重量パーセント、～21重量パーセント、又は～20.5重量パーセントの範囲であり、又は、 w_2 は、 w_1 について記載されたいずれかの範囲であり得る。例えば、いくつかの実施形態では、 w_1 は15～20.5重量パーセントの範囲であり、 w_2 は10～20.5重量パーセント、又は15～20.5重量パーセントの範囲である。いくつかの実施形態では、 w_1 及び w_2 のうちの少なくとも1つは、14～22重量パーセントの範囲、又は15～21.5重量パーセントの範囲である。

【0064】

いくつかの実施形態では、第1のポリマーは、(メタ)アクリル酸モノマー単位を重量パーセント w_1 で含み、エチレンモノマー単位を更に含み、第2のポリマーは、(メタ)アクリル酸モノマー単位を重量パーセント w_1 で含み、エチレンモノマー単位を更に含む。いくつかのそのような実施形態では、 w_1 は15重量パーセント超であり、 $|w_1 - w_2|$ は10重量パーセント未満である。

【0065】

いくつかの実施形態では、第1のポリマーは、(メタ)アクリル酸モノマー単位を重量パーセント w_1 で含み、エチレンモノマー単位を更に含み、第2のポリマーは、(メタ)アクリル酸モノマー単位を重量パーセント w_1 で含み、エチレンモノマー単位を更に含み、*n*-ブチルアクリレート、イソブチルアクリレート、イソプロピルアクリレート、*n*-プロピルアクリレート、エチルアクリレート、メチルアクリレート、2-エチルヘキシルアクリレート、イソ-オクチルアクリレート、及びメチルメタクリレートからなる群から選択される少なくとも1つのモノマー単位を更に含む。いくつかのそのような実施形態では、 w_1 は15重量パーセント超であり、 $|w_1 - w_2|$ は15重量パーセント未満、又は13重量パーセント未満、又は12重量パーセント未満である。

【0066】

いくつかの実施形態では、第1のポリマーは、少なくとも部分的に中和されている。これは、第1のポリマーがカルボン酸基を含み、カルボン酸基のプロトンが金属カチオンなどのカチオンによって置き換えられることを意味する。一価、二価、及びより高い価数のカチオンが好適である。いくつかの実施形態では、第1のポリマーは、金属カチオン、アルキルアンモニウムカチオン、又はそれらの組み合わせで少なくとも部分的に中和されている。いくつかの実施形態では、第1のポリマーは、ナトリウムカチオン、カルシウムカチオン、カリウムカチオン、亜鉛カチオン、リチウムカチオン、マグネシウムカチオン、アルミニウムカチオン、又はそれらの組み合わせで少なくとも部分的に中和されている。いくつかの実施形態では、第1のポリマーは、非金属カチオンで少なくとも部分的に中和されている。例えば、第1のポリマーは、アルキルアンモニウムカチオンで少なくとも部分的に中和され得る。いくつかの実施形態では、ナノ複合体は、本明細書の他の箇所でも更に説明されるように、水性分散液から形成される。いくつかの実施形態では、水性分散液中で、第1のポリマーは、少なくとも1つの不揮発性中和剤、又は少なくとも1つの揮発性中和剤、又は揮発性及び不揮発性中和剤の組み合わせで少なくとも部分的に中和されている。例えば、いくつかの実施形態では、水性分散液中で、第1のポリマーは、不揮発性アミンカチオン、揮発性アミンカチオン(例えば、ジメチルエタノールアミンのカチオン又はアンモニウムカチオン)、又は揮発性及び不揮発性アミンカチオンの組み合わせで少なくとも部分的に中和されている。第1のポリマーは、異なるタイプのカチオンの組み合わせ(例えば、金属及び非金属カチオン、又は本明細書に記載のカチオンの任意の組み合わせ)で少なくとも部分的に中和され得る。第1のポリマーは、水性分散液中に分散される前に、少なくとも部分的に中和されたアイオノマーであり得る。いくつかの実施形態では、アイオノマーは、水性分散液に追加の中和剤を添加する必要がないように十分に中和されている。他の実施形態では、アイオノマーは、本明細書の他の箇所でも更に説明されるように、水性分散液に添加される追加の中和剤によって更に少なくとも部分的に中和され

10

20

30

40

50

る。

【0067】

いくつかの実施形態では、第2のポリマーは少なくとも部分的に中和されている。いくつかの実施形態では、少なくとも1つのポリマーの各ポリマー、又は(メタ)アクリル酸モノマー単位を含む各ポリマーは、少なくとも部分的に中和されている。第2のポリマー、又は少なくとも1つのポリマーの他方のポリマーは、第1のポリマーについて記載された任意のカチオン又はカチオンの組み合わせで少なくとも部分的に中和され得る。

【0068】

好適なエチレン(メタ)アクリル酸コポリマーは、例えば、Dow Chemical Company (Midland, MI)からのPRIMACOR 5980i、E. I. du Pont de Nemours and Company (Wilmington, DE)からのNUCREL 925並びに960、Exxon-Mobil (Irving, TX)からのESCOR 5200、及びHoneywell (Morris Plains, NJ)からのAC-5180などの市販の供給元から入手することができる。好適な部分的に中和されたエチレン(メタ)アクリル酸コポリマーは、例えば、E. I. du Pont de Nemours and Company (Wilmington, DE)からのSURLYN 1601、1706、1707、7940、9020、9120、8150及びPC-350、例えば、並びにHPF 1000が挙げられる、市販の供給元から入手することができる。

【0069】

広範囲の金属酸化物ナノ粒子が好適である。好適な金属酸化物ナノ粒子の例としては、ケイ素(ケイ素は半金属(metalloid)であるとみなされ、したがって金属酸化物のリストに含まれる)、チタン、アルミニウム、ハフニウム、亜鉛、スズ、セリウム、イットリウム、インジウム、アンチモンの金属酸化物、又はそれらの混合の金属酸化物が挙げられる。とりわけより望ましい金属酸化物ナノ粒子は、ケイ素のものである。例えば、金属酸化物ナノ粒子は、シリカ(SiO_2)ナノ粒子又は SiO_x ($0 < x < 2$)ナノ粒子であり得る。

【0070】

そのような粒子のサイズは、大幅な可視光散乱を回避し、粒子が組み込まれる層の厚さの半分以下の平均直径を有するように選択することができる。表面改質金属酸化物ナノ粒子は、1 nm(ナノメートル)超かつ200 nm未満の(例えば、非会合)一次粒子サイズ又は会合粒子サイズを有する粒子であり得る。いくつかの実施形態では、粒子サイズは、4 nm超、5 nm超、10 nm超、又は20 nm超である。いくつかの実施形態では、粒子サイズは、190 nm未満、150 nm未満、100 nm未満、75 nm未満、又は50 nm未満である。典型的には、ナノ粒子は、4~190 nm、4~100 nm、4~75 nm、10~50 nm、又は20~50 nmの範囲のサイズを有する。低光学ヘイズが所望である実施形態では、100 nm未満、75 nm未満、又は50 nm未満の粒子サイズが典型的には好ましい。多層光学フィルムの低屈折率層が、本明細書のナノ複合体層を含む実施形態では、平均ナノ粒子サイズは、好ましくは4~20 nmの範囲であり得る。ナノ粒子は、非会合であることが典型的には望ましい。粒子サイズは、透過型電子顕微鏡(TEM)によるなどの多種多様な方法で測定することができる。典型的には、市販の金属酸化物ナノ粒子は、列挙された粒子サイズ又は粒子サイズ範囲で供給される。

【0071】

ナノ粒子は、ポリマーマトリックス材料との適合性を改善し、ナノ粒子の非会合、非弱凝集、非強凝集、又はこれらの組み合わせを維持するように表面改質される。表面改質ナノ粒子を生成するために使用される表面改質は、少なくとも1つの酸官能性シラン表面改質剤を含む。酸官能性シラン表面改質剤は、一般式1:

10

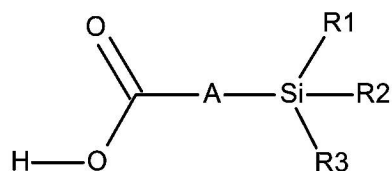
20

30

40

50

【化2】



式1

[式中、R1は、C₁～C₁₀アルコキシ基であり、R2及びR3は、独立して、C₁～C₁₀アルキル基及びC₁～C₁₀アルコキシ基からなる群から選択される] を有し得る。基Aは、C₁～C₁₀アルキレン基又はアリーレン基、C₁～C₁₀アラルキレン基、C₂～C₁₆ヘテロアルキレン基又はヘテロアリーレン基、及びC₂～C₁₆アミド含有基からなる群から選択されるリンカー基である。アミド含有基としては、-(CH₂)_a-NH-(CO)-(CH₂)_b-のタイプの基(式中、a及びbは、1以上の整数であり、(CO)はカルボニル基C=Oである)が挙げられる。いくつかの実施形態では、Aは、1～3個の炭素原子を有するアルキレン基である。

10

【0072】

酸官能性シランは市販されていることがあるが、本開示の一態様は、式1のカルボン酸官能性シランの合成を含む。以下に示す合成プロセスに加えて、Gelest, Inc. (Morrisville, PA)などの市販の供給元から入手することができる、(3-トリエトキシシリル)プロピルコハク酸無水物などの無水物官能性シランを使用して、酸官能性シラン表面改質剤を調製することができる。

20

【0073】

いくつかの実施形態では、溶液は、第1の有機溶媒中に溶解された有機酸無水物から調製される。第2の溶液は、第2の有機溶媒中のアミノシランから調製される。2つの溶液を組み合わせる。組み合わせた溶液を好適な温度及び持続時間で連続的に攪拌して、式1のカルボン酸官能性シランを合成する。他の実施形態では、溶液は、有機溶媒中に溶解された有機酸無水物から調製される。アミノシランを有機酸無水物溶液中に溶解させる。有機酸無水物及びアミノシランを含有する溶液を、好適な温度及び持続時間で連続的に攪拌して、式1のカルボン酸シランを合成する。第1及び第2の有機溶媒は、同じであっても、又は異なってもよい。第1及び第2の有機溶媒が異なる場合、第1及び第2の有機溶媒は混和性である。第1及び第2の有機溶媒の両方は、水と混和性である。

30

【0074】

好適な有機酸無水物としては、無水コハク酸(3,4-ジヒドロフラン-2,5-ジオン)、テトラヒドロフラン-2,5-ジオン、3-アルキルテトラヒドロフラン-2,5-ジオン、例えば3-メチルテトラヒドロフラン-2,5-ジオン及び3-エチルテトラヒドロフラン-2,5-ジオン、テトラヒドロピラン-2,6-ジオン、3-アルキルテトラヒドロピラン-2,6-ジオン、例えば、3-メチルテトラヒドロピラン-2,6-ジオン及び3-エチルテトラヒドロピラン-2,6-ジオン、4-アルキルテトラヒドロピラン-2,6-ジオン、例えば、4-メチルテトラヒドロピラン-2,6-ジオン、4-エチルテトラヒドロピラン-2,6-ジオン、及び4,4'-メチルテトラヒドロピラン-2,6-ジオン、オキセパン-2,7-ジオンが挙げられる。好適な有機酸無水物は、Alfa Aesar (Ward Hill, MA)及びMillipore Sigma (Burlington, MA)などの市販の供給元から入手することができる。無水コハク酸は、特に好適な有機酸無水物である。

40

【0075】

好適なアミノシランとしては、アミノプロピルトリメトキシシラン、アミノプロピルトリエトキシシラン、p-アミノフェニルトリメトキシシラン、p-アミノフェニルトリエトキシシラン、N-フェニルアミノプロピルトリメトキシシラン、N-フェニルアミノプ

50

ロピルトリエトキシシラン、*n*-ブチルアミノプロピルトリメトキシシラン、*n*-ブチルアミノプロピルトリエトキシシラン、3-(*N*-アリルアミノ)プロピルトリメトキシシラン、(*N,N*-ジエチル-3-アミノプロピル)トリメトキシシラン、及び(*N,N*-ジエチル-3-アミノプロピル)トリエトキシシランが挙げられる。好適なアミノシランは、Gelest, Inc. (Morrisville, PA)、Alfa Aesar (Ward Hill, MA)、Millipore Sigma (Burlington, MA)、及びMomentive Performance Materials (Waterford, NY)などの市販の供給元から入手することができる。特に好適なアミノシランは、アミノプロピルトリメトキシシランである。

【0076】

多種多様な有機溶媒を使用することができる。好適な有機溶媒としては、Omni Solv (Billerica, MA)などの市販の供給元から入手することができる*N,N*-ジメチルホルムアミド(DMF)が挙げられる。

【0077】

いくつかの実施形態では、表面改質金属酸化物ナノ粒子は、塩基性pHの表面未改質の金属酸化物ナノ粒子の水性ナノ分散液とカルボン酸官能性シラン表面改質剤とを組み合わせ、カルボン酸官能性シラン表面剤を金属酸化物ナノ粒子表面と反応させることにより、表面改質金属酸化物ナノ粒子の水性ナノ分散液をもたらすことによって調製され、このナノ粒子はカルボン酸で表面改質されている。これは、様々な方法で行われてもよい。いくつかの実施形態では、表面未改質の金属酸化物ナノ粒子の水性ナノ分散液は、有機溶媒中の式1のカルボン酸シランの溶液と組み合わせられる。他の実施形態では、表面未改質の金属酸化物ナノ粒子の水性ナノ分散液は、塩基、及び有機溶媒中の式1のカルボン酸シランの溶液と組み合わせられる。他の実施形態では、表面未改質の金属酸化物ナノ粒子の水性ナノ分散液は、式1のカルボン酸シランと組み合わせられる。概して、式1のカルボン酸シランは、ナノ分散液中の全金属酸化物ナノ粒子表面積の10~100%を改質するのに十分な濃度で添加される。上述したように、金属酸化物ナノ粒子は、様々なサイズを有し得る。典型的には、平均粒子サイズは、1nm超かつ200nm未満である。いくつかの実施形態では、粒子サイズは、4nm超、5nm超、10nm超、又は20nm超である。いくつかの実施形態では、粒子サイズは、190nm未満、150nm未満、100nm未満、75nm未満、又は50nm未満である。典型的には、ナノ粒子は、4~190nm、4~100nm、4~75nm、10~50nm、又は20~50nmの範囲のサイズを有する。低いヘイズの場合、典型的な好ましい範囲は、4~100nm、4~75nm、又は4~50nmである。場合によっては、式1のカルボン酸シラン溶液を添加することにより、pHが低下する傾向があるので、塩基は、pHを所望の範囲に維持するために、表面未改質の金属酸化物ナノ粒子の水性ナノ分散液に添加されてもよい。場合によっては、有機溶媒は、カルボン酸シランと表面未改質の金属酸化物ナノ粒子の水性ナノ分散液とを組み合わせる前に、有機溶媒中のカルボン酸シランの溶液から除去される。

【0078】

未改質の金属酸化物ナノ粒子の水性ナノ分散液は、調製されてもよく、又はいくつかの実施形態では、未改質の金属酸化物ナノ粒子の水性ナノ分散液を商業的に入手することができる。好適な表面未改質の金属酸化物ナノ粒子としては、Nalco Chemical Company (Naperville, IL)から商品名「Nalco Colloidal Silicas」、例えば製品NALCO 2326、1130、DVSZN002、1142、2327、1050、DVSZN004、1060、及び2329Kで；Nissan Chemical America Corporation (Houston, TX)から商品名SNOWTEX、例えば製品ST-NXS、ST-XS、ST-S、ST-30、ST-40、ST-N40、ST-50、ST-XL、及びST-YLで；Nyacol Nano Technologies, Inc. (Ashland, MA)から、例えばNEXSIL 5、6、12、20、85-40、20A、20K-30、及び20NH4で市販されている水性ナノ分散液が挙げられる。場合によっては、表

10

20

30

40

50

面未改質の金属酸化物ナノ粒子は、8 ~ 12の範囲のpHを有する水溶液中に分散され得る。

【0079】

好適な塩基としては、Millipore Sigma (Burlington, MA)などの市販の供給元から入手することができる水酸化アンモニウムが挙げられる。

【0080】

典型的には、表面改質金属酸化物ナノ粒子はナノ分散液として使用され、粒子は単離されない。本開示の別の態様は、沈殿、ゲル化、弱凝集、又は強凝集を伴わずに表面改質金属酸化物ナノ粒子のナノ分散液の調製を伴い、金属酸化物ナノ粒子は、式1のカルボン酸シランで表面改質されている。

10

【0081】

いくつかの実施形態では、表面未改質の金属酸化物ナノ粒子の水性ナノ分散液及び有機溶媒中の式1のカルボン酸シランの溶液を反応器内で組み合わせ、好適な温度及び持続時間で加熱して、式1のカルボン酸シランを金属酸化物ナノ粒子の表面と反応させる。他の実施形態では、表面未改質の金属酸化物ナノ粒子の水性ナノ分散液、塩基、及び有機溶媒中の式1のカルボン酸シランの溶液を反応器内で組み合わせ、好適な温度及び持続時間で加熱して、式1のカルボン酸シランを金属酸化物ナノ粒子の表面と反応させる。いくつかの実施形態では、有機溶媒を除去するために、表面改質金属酸化物ナノ粒子及び有機溶媒の水性ナノ分散液上で溶媒交換が行われる。いくつかの実施形態では、反応器は、還流条件下で開放され、他の実施形態では、反応器は閉鎖され、圧力下にある。いくつかの実施形態では、反応器はガラスであり、いくつかの実施形態では、反応器はステンレス鋼である。

20

【0082】

ナノ複合体中の表面改質金属酸化物ナノ粒子の広範囲の充填量が好適である。典型的には、ナノ複合体は、少なくとも1重量%の表面改質金属酸化物ナノ粒子かつ70重量%以下の表面改質金属酸化物ナノ粒子を含む。いくつかの実施形態では、表面改質金属酸化物ナノ粒子濃度は、5 ~ 60重量%、又は10 ~ 50重量%である。ナノ粒子のより低い充填量は、ナノ複合体層が多層光学フィルムの低屈折率層として使用される場合に使用され得る。いくつかの実施形態では、ナノ粒子は、例えば、2% ~ 15重量%の範囲でナノ複合体層中に存在し得る。

30

【0083】

追加の添加剤としては、例えば、難燃剤、熱安定剤、滑り止め剤、中和剤、紫外線吸収剤、光安定剤、酸化防止剤、架橋剤、離型剤、触媒、着色剤、帯電防止剤、消泡剤、可塑剤、及び他の加工助剤を挙げることができる。

【0084】

水性分散液は、ナノ複合体、又はナノ粒子を含まないアイオノマー層を形成する際に使用することができる。高分子量(メタ)アクリルポリマー(例えば、少なくとも10000グラム/モルの数平均分子量)を水に(例えば、好適な中和剤とともに)分散させることができ、得られた水性分散液は、例えば、所望の機械的特性及び光学特性を有するナノ複合体を作製するのに有用であることが予想外に見出された。いくつかの実施形態では、水性分散液は、水と、水中に分散された少なくとも1つのポリマーと、水中に分散された金属酸化物ナノ粒子とを含む。少なくとも1つのポリマーは(メタ)アクリル酸モノマー単位を含み、任意選択的に少なくとも10000グラム/モルの数平均分子量を有する第1のポリマーを含む。第1のポリマーは、少なくとも部分的に中和されている。金属酸化物ナノ粒子は、カルボン酸シラン表面改質剤で表面改質されている。カルボン酸シラン表面改質剤は、本明細書の他の箇所に記載される式1のカルボン酸シランであり得るか、又は式1のカルボン酸シランを含み得る。ナノ粒子を含まないアイオノマー層が所望である場合、金属酸化物ナノ粒子は、任意選択的に省略され得る。

40

【実施例】

【0085】

50

例示的なナノ複合体

【表 1】

表 1. ナノ複合体の作製に使用される材料

材料	説明	供給元
PRIMACOR 5980i	ポリ(エチレン-コ-アクリル酸)	SK Global Chemical Co. Ltd. (Seoul, South Korea)
PRIMACOR 1410	ポリ(エチレン-コ-アクリル酸)	
NUCREL 699	ポリ(エチレン-コ-メタクリル酸)	Dow Chemical Co. (Midland, MI)
NUCREL 960	ポリ(エチレン-コ-メタクリル酸)	Dow Chemical Co.
SURLYN 1601	Na ⁺ イオンで部分的に中和された ポリ(エチレン-コ-メタクリル酸)	Dow Chemical Co.
SURLYN 1650	Zn ⁺⁺ イオンで部分的に中和された ポリ(エチレン-コ-メタクリル酸)	Dow Chemical Co.
SURLYN 1706	Zn ⁺⁺ イオンで部分的に中和された ポリ(エチレン-コ-メタクリル酸)	Dow Chemical Co.
SURLYN 1707	Na ⁺ イオンで部分的に中和された ポリ(エチレン-コ-メタクリル酸)	Dow Chemical Co.
SURLYN 7940	Li ⁺ イオンで部分的に中和された ポリ(エチレン-コ-メタクリル酸)	Dow Chemical Co.
SURLYN 8150	Na ⁺ イオンで部分的に中和された ポリ(エチレン-コ-メタクリル酸)	Dow Chemical Co.
SURLYN 9120	Zn ⁺⁺ イオンで部分的に中和された ポリ(エチレン-コ-メタクリル酸)	Dow Chemical Co.
SURLYN PC-350	Na ⁺ イオンで部分的に中和された ポリ(エチレン-コ-メタクリル酸)	Dow Chemical Co.
SURLYN 9020	Zn ⁺⁺ イオンで部分的に中和されたポリ(エチレン- コ-メタクリル酸-コ-イソブチルアクリレート)	Dow Chemical Co.
HPF 1000	Mg ⁺⁺ イオンで部分的に中和されたポリ(エチレン- コ-メタクリル酸-コ-n-ブチルアクリレート)	Dow Chemical Co.
NaOH	水酸化ナトリウム	MilliporeSigma Co. (Burlington, MA)
KOH	水酸化カリウム	VWR Chemical (Radnor, PA)
NH ₄ OH	水酸化アンモニウム溶液	MilliporeSigma Co.
DMEA	N,N-ジメチルエタノールアミン	Alfa Aesar (Haverhill, MA)
MOR	モルホリン	Alfa Aesar
TEA	トリエチルアミン	Alfa Aesar
AMP (95%)	2-アミノ-2-メチル-1-プロパノール	Alfa Aesar
MEA	モノアミノエタノール	Alfa Aesar
T (EtOH) A	トリエタノールアミン	Alfa Aesar
ZnO	酸化亜鉛	Alfa Aesar
ZnAc	酢酸亜鉛二水和物	Alfa Aesar
AMINO-TMOS	3-アミノプロピルトリメトキシシラン	Gelest, Inc. (Morrisville, PA)
DMF	N,N-ジメチルホルムアミド	OmniSolv (Billerica, MA)
SA	無水コハク酸	Alfa Aesar
NALCO 2327	水性コロイド状シリカナノ分散液	Nalco Co. (Naperville, IL)
DI H ₂ O	脱イオン水	

【 0 0 8 6 】

NaOH中和剤溶液

3000グラムの脱イオン水を3.78リットルの透明なガラスジャーに入れた。テフロンコーティングされた攪拌棒をジャーに加えた。ジャーを攪拌プレート (RCT Basic Model Magnetic Stirrer/Hot Plate Combination, IKA Works, Inc., Wilmington, NC) 上に置き、攪拌を開始した。1156.1グラムの水酸化ナトリウム (NaOH) ペレットを、ジャーに添加した。NaOHペレットは水に溶解し、透明な溶液を形成した。

【 0 0 8 7 】

KOH中和剤溶液

10

20

30

40

50

72グラムの脱イオン水を0.24リットルの透明なガラスジャーに入れた。テフロンコーティングされた攪拌棒をジャーに加えた。ジャーを攪拌プレート上に置き、攪拌を開始した。28グラムの水酸化カリウム (KOH) チップを、ジャーに添加した。KOHチップは水中に溶解し、透明な溶液を形成した。

【0088】

LiOH中和剤溶液

90グラムの脱イオン水を0.24リットルの透明なガラスジャーに入れた。テフロンコーティングされた攪拌棒をジャーに加えた。ジャーを攪拌プレート上に置き、攪拌を開始した。10グラムの水酸化リチウム (LiOH) 顆粒を、ジャーに添加した。LiOH顆粒は水中に溶解し、透明な溶液を形成した。

10

【0089】

亜鉛中和剤溶液

10グラムの酸化亜鉛 (ZnO) を3.78リットルの透明なガラスジャーに入れた。テフロンコーティングされた攪拌棒をジャーに加えた。707グラムの脱イオン水をジャーに添加した。394グラムの水酸化アンモニウム溶液 (NH₄OH) 溶液をジャーに添加した。ジャーを攪拌プレート上に置き、攪拌を開始した。攪拌を一晩継続し、透明な溶液を得た。

【0090】

酸シラン表面剤溶液

225グラムの無水コハク酸 (SA) を、4リットルの褐色ガラスジャグに入れた。テフロンコーティングされた攪拌棒をジャグに添加した。ジャグを攪拌プレート上に置いた。2500グラムのN,N-ジメチルホルムアミド (DMF) をジャーに添加し、攪拌を開始した。無水コハク酸が溶解してから、400グラムの3-アミノプロピルトリメトキシシラン (AMINO-TMOS) をジャグに添加した。ジャグの内容物を室温で24時間攪拌し続け、反応を完了させて、DMF中で酸シランを形成した。

20

【0091】

イオン性エラストマー分散液

分散液D1、D4~D10:

分散液D1、D4~D10は開放型(大気)反応器内でのイオン性エラストマー分散液の調製を例示する。各成分の質量を表2に示す。脱イオン水を2リットルの円筒型透明ガラス反応器 (Ace Glass, Vineland, NJ) に入れた。ペレット形態の未中和(メタ)アクリル酸エラストマーを反応器に添加して、15重量パーセントのエラストマー分散液を得た。攪拌を120rpmで開始した。中和剤を反応器に添加して、(メタ)アクリル酸エラストマーの75%の中和を達成した。加熱を100の設定点温度で開始し、反応器を還流下で操作した。バッチ温度が100に達してから、反応器の内容物を、連続攪拌下、100で2.5時間維持した。得られた分散液を、200μmのソックフィルター (Pall Corp., Port Washington, NY) を通して濾過し、透明なガラスジャーに移した。プロセス条件と共に、得られた分散液のpHを表3に詳述する。

30

【0092】

分散液D2:

分散液D2は、閉鎖型(加圧)反応器内でのイオン性エラストマー分散液の調製を例示する。各成分の質量を表2に示す。脱イオン水を37.85リットルのステンレス鋼反応器に入れた。ペレット形態の未中和(メタ)アクリル酸エラストマーを反応器に添加して、15重量パーセントのエラストマー分散液を得た。攪拌を30rpmで開始した。中和剤を反応器に添加して、(メタ)アクリル酸エラストマーの75%の中和を達成した。攪拌を60rpmに上げた。材料の損失を防ぐために反応器を密封した。100の設定点温度で加熱を開始した。バッチ温度が100に達してから、反応器の内容物を、連続攪拌下、100で2.5時間維持した。得られた分散液を、200μmソックフィルター (Pall Corp., Port Washington, NY) を通して濾過し、2つ

40

50

の18.93リットルのプラスチックライニングされた金属ペイルに移した。プロセス条件と共に、得られた分散液のpHを表3に詳述する。

【0093】

分散液D3：

分散液D3は、閉鎖型（加圧）反応器内でのイオン性エラストマー分散液の調製を例示する。各成分の質量を表2に示す。脱イオン水を265リットルのステンレス鋼反応器に入れた。ペレット形態の未中和（メタ）アクリル酸エラストマーを反応器に添加して、15重量パーセントのエラストマー分散液を得た。攪拌を開始した。中和剤を反応器に添加して、（メタ）アクリル酸エラストマーの75%の中和を達成した。材料の損失を防ぐために反応器を密封した。100 の設定点温度で加熱を開始した。バッチ温度が100 に達してから、反応器の内容物を、連続攪拌下、100 で4.5時間維持した。得られた分散液を、200 μmのソックフィルター（Pall Corp., Port Washington, NY）を通して濾過し、208リットルのプラスチックドラムに移した。プロセス条件と共に、得られた分散液のpHを表3に詳述する。

10

【0094】

分散液D11：

分散液D11は、閉鎖型（加圧）反応器内でのイオン性エラストマー分散液の調製を例示する。各成分の質量を表2に示す。脱イオン水を37.85リットルのステンレス鋼反応器に入れた。ペレット形態の未中和（メタ）アクリル酸コポリマーエラストマーを反応器に添加して、15重量パーセントのエラストマー分散液を得た。攪拌を60rpmで開始した。中和剤を反応器に添加して、（メタ）アクリル酸エラストマーの75%の中和を達成した。攪拌を120rpmに上げた。材料の損失を防ぐために反応器を密封した。100 の設定点温度で加熱を開始した。バッチ温度が100 に達してから、反応器の内容物を、連続攪拌下、100 で2.5時間維持した。得られた分散液を、200 μmソックフィルター（Pall Corp., Port Washington, NY）を通して濾過し、2つの18.93リットルのプラスチックライニングされた金属ペイルに移した。プロセス条件と共に、得られた分散液のpHを表3に詳述する。

20

【0095】

分散液D12：

分散液D12は、閉鎖型（加圧）反応器内でのイオン性エラストマー分散液の調製を例示する。各成分の質量を表2に示す。脱イオン水を37.85リットルのステンレス鋼反応器に入れた。ペレット形態の未中和（メタ）アクリル酸エラストマーを反応器に添加して、15重量パーセントのエラストマー分散液を得。攪拌を120rpmで開始した。中和剤を反応器に添加して、（メタ）アクリル酸エラストマーの75%の中和を達成した。150 の設定点温度で加熱を開始した。反応器を密封して、より高い温度での処理を可能にし、材料の損失を防止した。バッチ温度が150 に達してから、反応器の内容物を、連続攪拌下、150 で2.5時間維持した。得られた分散液を、200 μmソックフィルター（Pall Corp., Port Washington, NY）を通して濾過し、2つの18.93リットルのプラスチックライニングされた金属ペイルに移した。プロセス条件と共に、得られた分散液のpHを表3に詳述する。

30

40

【表 2】

表2. イオン性エラストマー分散液

分散液	D1	D2	D3	D4	D5	D6	D7	D8	D9	D10	D11	D12
エラストマー												
PRIMACOR 5980i (g)	225	5139	28395	225	225	225	225	225	225	225	5107	
NUCREL 960 (g)												5098
水												
DI H ₂ O (g)	1206	27578	152407	1179	1160	1232	1230	1246	1226	828	27669	27946
中和剤												
NaOH溶液 (g)	69	1528	8437									948
KOH溶液 (g)				96								
LiOH溶液 (g)					115							
MOR (g)												
DMEA (g)						43						
T(EtOH)A (g)												
AMP (g)							45					
MEA (g)								29				
TEA (g)									49			
Zn錯体溶液 (g)										447		
NH ₄ OH溶液 (g)											1315	
反応器												
	開放型	閉鎖型	閉鎖型	開放型	開放型	開放型	開放型	開放型	開放型	開放型	閉鎖型	閉鎖型
反応器温度(°C)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	150
時間(時)	2.5	2.5	4.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5

10

20

【表 3】

表3. イオン性エラストマー分散液の特性評価

分散液	エラストマー	エラストマー (重量%)	酸 (重量%)	イオン	中和 (%)	pH
D1	PRIMACOR 5980i	15	20.5	Na ⁺	75	NM ¹
D2				Na ⁺		9.5
D3				Na ⁺		9.5
D4				K ⁺		9.5
D5				Li ⁺		10.0
D6				DMEA ⁺		9.5
D7				AMP ⁺		9.5
D8				MEA ⁺		9.5
D9				TEA ⁺		NM ¹
D10				Zn(NH ₃) ₄ ⁺⁺		10.0
D11				NH ₄ ⁺		10.5
D12	NUCREL 960	15	15	Na ⁺	75	10.5

¹NMは、「測定されていない」を示す。²DNDは、「分散しなかった」を示す。

【0096】

分散液D13～D15、D17～D21、D23、D24：

分散液D13～D15、D17～D21、D23、及びD24は開放型(大気)反応器内でのイオン性エラストマー分散液の調製を例示する。各成分の質量を表6に示す。脱イオン水を2リットルの円筒型透明ガラス反応器(Ace Glass, Vineland, NJ)に入れた。ペレット形態の予め中和された(メタ)アクリル酸エラストマーを反応器に添加して、15重量パーセントのエラストマー分散液を得た。攪拌を120rpmで開始した。中和剤を反応器に添加して、(メタ)アクリル酸エラストマーの75%の中和を達成した。加熱を100の設定点温度で開始し、反応器を還流下で操作した。バッチ温度が100に達してから、反応器の内容物を、連続攪拌下、100で2.5時間維持した。得られた分散液を、200µmのソックフィルター(Pall Corp., Port Washington, NY)を通して濾過し、透明なガラスジャーに移した

40

50

。プロセス条件と共に、特性評価結果を表7に詳述する。各分散液のpHを測定した。粒子サイズ分析は、全ての分散液が、100nm未満の分散相サイズを有する単峰性であることを示した。分散液は、分散相サイズと相関する様々な程度のヘイズを示す。濾過されていない分散液及び濾過された分散液の乾燥重量の同様の値は、エラストマーが完全に分散していることを示す。

【0097】

分散液D16：

分散液D16は、開放型（大気）反応器内でのイオン性エラストマー分散液の調製を例示する。各成分の質量を表6に示す。脱イオン水を2リットルの円筒型透明ガラス反応器（Ace Glass, Vineland, NJ）に入れた。ペレット形態の予め中和された（メタ）アクリル酸エラストマーを反応器に添加して、15重量パーセントのエラストマー分散液を得た。攪拌を120rpmで開始した。中和剤を反応器に添加しなかった。加熱を100の設定点温度で開始し、反応器を還流下で操作した。バッチ温度が100に達してから、反応器の内容物を、連続攪拌下、100で2.5時間維持した。得られた分散液を、200µmのソックフィルター（Pall Corp., Port Washington, NY）を通して濾過し、透明なガラスジャーに移した。プロセス条件及び特性評価結果を表7に詳述する。得られた分散液のpHは、9.5であった。粒子サイズ分析は、44.26nmの単峰性分散相サイズを示した。分散液は、11.6%の測定ヘイズを有して濁っていた。濾過されていない分散液及び濾過された分散液の乾燥重量の同様の値は、エラストマーが完全に分散していることを示す。

10

20

【0098】

分散液D22：

分散液D22は、閉鎖型（加圧）反応器内でのイオン性エラストマー分散液の調製を例示する。各成分の質量を表6に示す。脱イオン水を37.85リットルのステンレス鋼反応器に入れた。ペレット形態の予め中和された（メタ）アクリル酸エラストマーを反応器に添加して、15重量パーセントのエラストマー分散液を得た。攪拌を30rpmで開始した。中和剤を反応器に添加した。攪拌を120rpmに上げた。反応器を密封して、より高い温度での処理を可能にし、材料の損失を防止した。150の設定点温度で加熱を開始した。バッチ温度が150に達してから、反応器の内容物を、連続攪拌下、150で2.5時間維持した。得られた分散液を、200µmソックフィルター（Pall Corp., Port Washington, NY）を通して濾過し、2つの18.93リットルのプラスチックライニングされた金属ペイルに移した。プロセス条件と共に、特性評価結果を表7に詳述する。得られた分散液のpHは、11.5であった。粒子サイズ分析は、23.25nm及び140.5nmのサイズの二峰性分散を示した。分散液は、81.6%の測定ヘイズを有して乳白色であった。濾過されていない分散液及び濾過された分散液の乾燥重量の同様の値は、エラストマーが完全に分散していることを示す。

30

40

50

【表 4】

表4. イオン性エラストマー分散液

分散液	D13	D14	D15	D16	D17	D18	D19	D20	D21	D22	D23	D24
エラストマー												
SURLYN 8150 (g)	225	225	225	225								
SURLYN PC-350 (g)					225	225	225	225				
SURLYN 7940 (g)									225			
SURLYN 9120 (g)										5110		
SURLYN 1707 (g)											225	225
水												
DI H ₂ O (g)	1264	1242	1271	1275	1255	1247	1248	1264	1249	27760	1248	1264
中和剤												
NaOH溶液 (g)	11				20					1210		
KOH溶液 (g)						27						
DMEA (g)		33	13				26	10	26		26	10
反応器												
開放型	開放型	開放型	開放型	開放型	開放型	開放型	開放型	開放型	開放型	閉鎖型	開放型	開放型
反応器温度(°C)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	150	100	100
時間(時)	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5

10

【表 5】

表5. イオン性エラストマー分散液の特性評価

分散液	エラストマー	エラストマー (重量%)	酸 (重量%)	イオン	中和 (%)	pH	濾過されていない (重量%)	濾過された (重量%)	粒子サイズ ² (nm)	H (%)
D13	SURLYN 8150	15	19	Na ⁺	60	10.0	15.55	15.61	NM ²	6.4
D14		15		Na ⁺ , DMEA ⁺	118	10.5	15.46	15.45	21.86	3.1
D15		15		Na ⁺ , DMEA ⁺	75	10.0	15.40	15.48	28.22	2.9
D16		15		Na ⁺	45	9.5	15.77	15.66	44.26	11.6
D17	SURLYN PC-350	15	15	Na ⁺	90	11.5	16.04	16.02	50.24	9.3
D18		15		Na ⁺ , K ⁺	90	11.0	15.85	15.86	33.49	6.5
D19		15		Na ⁺ , DMEA ⁺	128	10.5	15.31	15.40	44.12	8.4
D20		15		Na ⁺ , DMEA ⁺	85	10.0	15.33	15.37	73.84	45.0
D21	SURLYN 7940	15	15	Li ⁺ , DMEA ⁺	115	10.5	15.87	15.75	170.7	99.3
D22	SURLYN 9120	15	19	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	113	11.5	15.59	15.65	23.25 (13.8) 140.5 (86.2)	81.6
D23	SURLYN 1707	15	15	Na ⁺ , DMEA ⁺	128	10.5	15.95	15.69	45.78	6.8
D24		15		Na ⁺ , DMEA ⁺	90	10.0	15.37	15.30	92.06	40.3

20

括弧内の¹数字は粒子サイズ集団のパーセンテージである。表示「not measured」²は、「測定されていない」を示す。

【0099】

イオン性エラストマーブレンド分散液

分散液 D 25 :

分散液 D 25 は、開放型 (大気) 反応器内でのイオン性エラストマーブレンド分散液の調製を例示する。各成分の質量を表 10 に示す。脱イオン水を 2 リットルの円筒型透明ガラス反応器 (Ace Glass, Vineland, NJ) に入れた。2 つの未中和 (メタ) アクリル酸エラストマーを、両方ともペレット形態で反応器に添加して、15 重量パーセントのエラストマー分散液を得た。攪拌を 120 rpm で開始した。2 つの中和剤を反応器に添加した。加熱を 100 の設定点温度で開始し、反応器を還流下で操作した。バッチ温度が 100 に達してから、反応器の内容物を、連続攪拌下、100 で 2.5 時間維持した。得られた分散液を、200 μm のソックフィルター (Pall Corp., Port Washington, NY) を通して濾過し、透明なガラスジャーに移した。プロセス条件と共に、特性評価結果を表 11 に提供する。得られた分散液の pH は、10.5 であった。粒子サイズ分析は、47.09 及び 5350 nm の二峰性分散サ

40

50

イズを示し、小さい方のサイズが、結果の99.1%に相当した。分散液は、22.6%の測定ヘイズを有して濁っていた。濾過されていない分散液及び濾過された分散液の乾燥重量の同様の値は、2つのエラストマーが完全に分散していることを示す。

【0100】

分散液D26、D27：

分散液D26及びD27が、閉鎖型（加圧）反応器内でのイオン性エラストマーブレンド分散液の調製を例示する。各成分の質量を表10に示す。脱イオン水を37.85リットルのステンレス鋼反応器に入れた。1つの予め中和された（メタ）アクリル酸エラストマー及び1つの未中和（メタ）アクリル酸エラストマーを両方ともペレット形態で反応器に添加して、15重量パーセントのエラストマー分散液を得た。攪拌を30rpmで開始した。中和剤を反応器に添加した。攪拌を120rpmに上げた。反応器を密封して、より高い温度での処理を可能にし、材料の損失を防止した。150 の設定点温度で加熱を開始した。バッチ温度が150 に達してから、反応器の内容物を、連続攪拌下、150 で2.5時間維持した。得られた分散液を、200µmソックフィルター（Pall Corp., Port Washington, NY）を通して濾過し、2つの18.93リットルのプラスチックライニングされた金属ペイルに移した。プロセス条件と共に、特性評価結果を表11に詳述する。得られた分散液のpHは、D26及びD27について、それぞれ10.5及び11.0であった。粒子サイズ分析は、同様の分散相サイズを有する分散液D26及びD27の両方について二峰性分散を示した。両方の分散液は、D26及びD27について、それぞれ61.2%及び48.0%の測定されたヘイズで乳白色であった。濾過されていない分散液及び濾過された分散液の乾燥重量の同様の値は、2つのエラストマーが完全に分散していることを示す。

【0101】

分散液D28：

分散液D28は、閉鎖型（加圧）反応器内でのイオン性エラストマーブレンド分散液の調製を例示する。各成分の質量を表10に示す。脱イオン水を37.85リットルのステンレス鋼反応器に入れた。1つの予め中和された（メタ）アクリル酸エラストマー及び1つの未中和（メタ）アクリル酸エラストマーを両方ともペレット形態で反応器に添加して、15重量パーセントのエラストマー分散液を得た。攪拌を30rpmで開始した。中和剤を反応器に添加した。攪拌を120rpmに上げた。反応器を密封して、より高い温度での処理を可能にし、材料の損失を防止した。150 の設定点温度で加熱を開始した。バッチ温度が150 に達してから、反応器の内容物を、連続攪拌下、150 で2.5時間維持した。得られた分散液を、200µmソックフィルター（Pall Corp., Port Washington, NY）を通して濾過し、2つの18.93リットルのプラスチックライニングされた金属ペイルに移した。プロセス条件と共に、特性評価結果を表11に詳述する。得られた分散液のpHは、11.5であった。粒子サイズ分析は、12.26及び194.0nmの分散相サイズの二峰性分布を示した。分散液は、88.1%の測定ヘイズを有して乳白色であった。濾過されていない分散液及び濾過された分散液の乾燥重量の同様の値は、2つのエラストマーが完全に分散していることを示す。

【0102】

分散液D29：

分散液D29は、閉鎖型（加圧）反応器内でのイオン性エラストマーブレンド分散液の調製を例示する。各成分の質量を表10に示す。脱イオン水を37.85リットルのステンレス鋼反応器に入れた。1つの予め中和された（メタ）アクリル酸エラストマー及び1つの未中和（メタ）アクリル酸エラストマーを両方ともペレット形態で反応器に添加して、15重量パーセントのエラストマー分散液を得た。攪拌を30rpmで開始した。中和剤を反応器に添加した。攪拌を120rpmに上げた。反応器を密封して、より高い温度での処理を可能にし、材料の損失を防止した。140 の設定点温度で加熱を開始した。バッチ温度が140 に達してから、反応器の内容物を、連続攪拌下、140 で2.5時間維持した。得られた分散液を、200µmソックフィルター（Pall Corp.

10

20

30

40

50

、Port Washington, NY)を通して濾過し、2つの18.93リットルのプラスチックライニングされた金属ペイルに移した。プロセス条件と共に、特性評価結果を表11に詳述する。得られた分散液のpHは、11.5であった。粒子サイズ分析は、26.21及び290.0nmの分散相サイズの二峰性分布を示した。分散液は、70.2%の測定ヘイズを有して乳白色であった。濾過されていない分散液及び濾過された分散液の乾燥重量の同様の値は、2つのエラストマーが完全に分散していることを示す。

【0103】

分散液D30~D33、D35、D36：

分散液D30~D33、D35、D36は開放型(大気)反応器内でのイオン性エラストマーブレンド分散液の調製を例示する。各成分の質量を表10に示す。脱イオン水を2リットルの円筒型透明ガラス反応器(Ace Glass, Vineland, NJ)に入れた。2つの予め中和された(メタ)アクリル酸エラストマーを、両方ともペレット形態で反応器に添加して、15重量パーセントのエラストマー分散液を得た。攪拌を120rpmで開始した。中和剤を反応器に添加した。加熱を100の設定点温度で開始し、反応器を還流下で操作した。バッチ温度が100に達してから、反応器の内容物を、連続攪拌下、100で2.5時間維持した。得られた分散液を、200µmのソックフィルター(Pall Corp., Port Washington, NY)を通して濾過し、透明なガラスジャーに移した。プロセス条件と共に、特性評価結果を表11に提供する。得られた分散液のpHは、10.0~11.0の範囲であった。粒子サイズ分析は、分散液D30、D31、D32、及びD35が単峰性分散サイズを示し、分散液D33及びD36が二峰性を示したことを示した。分散液は、表11に提示されるヘイズと相関する、様々な程度の濁度を示した。ヘイズは、二峰性に対して単峰性分散相を有する分散液について顕著に低かった。濾過されていない分散液及び濾過された分散液の乾燥重量の同様の値は、2つのエラストマーが完全に分散していることを示す。

【0104】

分散液D34：

分散液D34は、開放型(大気)反応器内でのイオン性エラストマーブレンド分散液の調製を例示する。各成分の質量を表10に示す。脱イオン水を2リットルの円筒型透明ガラス反応器(Ace Glass, Vineland, NJ)に入れた。1つの予め中和された(メタ)アクリル酸エラストマー及び1つの未中和(メタ)アクリル酸エラストマーを両方ともペレット形態で反応器に添加して、15重量パーセントのエラストマー分散液を得た。攪拌を120rpmで開始した。中和剤を反応器に添加した。加熱を100の設定点温度で開始し、反応器を還流下で操作した。バッチ温度が100に達してから、反応器の内容物を、連続攪拌下、100で2.5時間維持した。得られた分散液を、200µmのソックフィルター(Pall Corp., Port Washington, NY)を通して濾過し、透明なガラスジャーに移した。プロセス条件と共に、特性評価結果を表11に詳述する。得られた分散液のpHは、10.0であった。粒子サイズ分析は、30.29nmの単峰性分散相サイズを示した。分散液は、7.2%のヘイズを有して濁っている。濾過されていない分散液及び濾過された分散液の乾燥重量の同様の値は、2つのエラストマーが完全に分散していることを示す。

10

20

30

40

50

【表 6】

表 10. イオン性エラストマーブレンド分散液

分散液	D25	D26	D27	D28	D29	D30	D31	D32	D33	D34	D35	D36
エラストマー												
SURLYN 9120 (g)		2900	2900	4600	4600							
SURLYN 8150 (g)						112	112	112	112	112		
SURLYN PC-350 (g)						112	112	112	112		112	112
SURLYN 1707 (g)											112	112
PRIMACOR 5980i (g)	99	2270	2270	520						112		
NUCREL 960 (g)	126				520							
水												
DI H ₂ O (g)	1198	27580	27580	27670	27710	1249	1239	1245	1259	1237	1249	1264
中和剤												
NaOH溶液 (g)	43	1530	1530	1240	1180	26						
KOH溶液 (g)							36					
DMEA (g)	33							30	16	38	26	11
反応器												
	開放型	閉鎖型	閉鎖型	閉鎖型	閉鎖型	開放型	開放型	開放型	開放型	開放型	開放型	開放型
反応器温度(°C)	100	150	150	150	140	100	100	100	100	100	100	100
時間(時)	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5

10

20

【表 7】

表 11. イオン性エラストマーブレンド分散液

分散液	エラストマーブレンド ¹	エラストマー(重量%)	ブレンド(重量%)	酸(重量%)	Δ ¹ (重量%)	イオン	中和(%)	分散液外観
D25	PRIMACOR 5980i NUCREL 960	15	44 56	20.5 15	5.5	Na ⁺ , DMEA ⁺	134	濁りを帯びた
D26	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	15	44 56	20.5 19	1.9	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	102	乳白色
D27	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	15	44 56	20.5 19	1.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	102	乳白色
D28	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	15	10 90	20.5 19	1.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	108	乳白色
D29	NUCREL 960 SURLYN 9120	15	10 90	15 19	4	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	111	乳白色
D30	SURLYN 8150 SURLYN PC-350	15	50 50	19 15	4	Na ⁺	90	濁った
D31	SURLYN 8150 SURLYN PC-350	15	50 50	19 15	4	Na ⁺ , K ⁺	90	濁った
D32	SURLYN 8150 SURLYN PC-350	15	50 50	19 15	4	Na ⁺ , DMEA ⁺	125	濁りを帯びた
D33	SURLYN 8150 SURLYN PC-350	15	50 50	19 15	4	Na ⁺ , DMEA ⁺	90	濁った
D34	PRIMACOR 5980i SURLYN 8150	15	50 50	20.5 19	1.5	Na ⁺ , DMEA ⁺	101	濁りを帯びた
D35	SURLYN PC-350 SURLYN 1707	15	50 50	15 15	0	Na ⁺ , DMEA ⁺	132	濁りを帯びた
D36	SURLYN PC-350 SURLYN 1707	15	50 50	15 15	0	Na ⁺ , DMEA ⁺	90	濁った

30

40

¹ Δは、ブレンドのポリマーの酸含有量の差を示す。

50

【表 8】

表 12. イオン性エラストマーブレンド分散液の特性評価

分散液	エラストマーブレンド	エラストマー(重量%)	ブレンド(重量%)	酸(重量%)	Δ^1 (重量%)	イオン	中和(%)	pH	濾過されていない(重量%)	濾過された(重量%)	粒子サイズ ² (nm)		H(%)
D25	PRIMACOR 5980i NUCREL 960	15	44 56	20.5 15	5.5	Na ⁺ , DMEA	134	10.5	16.23	16.22	47.06 (99.1)	5,350 (0.9)	22.6
D26	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	15	44 56	20.5 19	1.9	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	102	11.0	15.77	15.83	24.75 (21.9)	150.8 (78.1)	61.2
D27	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	15	44 56	20.5 19	1.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	102	10.5	15.81	15.87	23.47 (24.5)	148.6 (75.5)	48.0
D28	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	15	10 90	20.5 19	1.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	108	11.5	15.53	15.47	12.26 (2.2)	194.0 (97.8)	88.1
D29	NUCREL 960 SURLYN 9120	15	10 90	15 19	4	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	111	11.5	15.60	15.59	26.21 (13.9)	290.0 (86.1)	70.2
D30	SURLYN PC -350 SURLYN 8150	15	50 50	15 19	4	Na ⁺	90	11.0	15.69	15.67	50.65		10.1
D31	SURLYN PC -350 SURLYN 8150	15	50 50	15 19	4	Na ⁺ , K ⁺	90	11.0	15.78	15.82	34.07		6.4
D32	SURLYN PC -350 SURLYN 8150	15	50 50	15 19	4	Na ⁺ , DMEA	125	10.5	15.56	15.61	49.00		16.4
D33	SURLYN PC -350 SURLYN 8150	15	50 50	15 19	4	Na ⁺ , DMEA	90	10.5	15.37	15.31	25.11 (3.8)	121.0 (96.2)	55.7
D34	PRIMACOR 5980i SURLYN 8150	15	50 50	20.5 19	1.5	Na ⁺ , DMEA	101	10.0	15.82	15.84	30.29		7.2
D35	SURLYN PC -350 SURLYN 1707	15	50 50	15 15	0	Na ⁺ , DMEA	132	10.5	15.47	15.53	44.30		9.9
D36	SURLYN PC -350 SURLYN 1707	15	50 50	15 15	0	Na ⁺ , DMEA	90	10.5	15.63	15.51	99.35 (99.0)	5,037 (1.0)	43.8

Δ^1 は、ブレンドのポリマーの酸含有量の差を示す。²括弧内の数字は、粒子サイズ集団のパ
ーセンテージである。

【 0 1 0 5 】

分散液 D 3 7 ~ D 4 0 :

分散液 D 3 7 ~ D 4 0 は、2つの(メタ)アクリル酸エラストマー分散液を混合することによるイオン性エラストマーブレンド分散液の調製を例示する。100グラムの表 1 3 に示した2つの分散液を、室温で攪拌プレート上20分間混合して、イオン性エラストマーブレンド分散液を形成した。特性評価結果を表 1 4 及び表 1 5 に示す。表 1 4 は、4つ全ての分散液が、一方又は両方のブレンドされていない分散液と一致する乳白色であったことを示す。得られた分散液のpHは、10.5~11.0の範囲であった。粒子サイズ分析は、単峰性又は二峰性の分散相サイズのいずれかを有するブレンド分散液を示した。ブレンド分散液の乳白色の外観は、67.8~99.2%の範囲の高ヘイズと相関する。濾過されていない分散液及び濾過された分散液の乾燥重量の同様の値は、2つのエラストマーが完全に分散していることを示す。

10

20

30

40

50

【表 9】

表 13. イオン性エラストマーブレンド分散液

分散液	SURLYN 9120 分散液 D22 (g)	SURLYN 7940 分散液 D21 (g)	SURLYN 8150 分散液 D16 (g)	SURLYN PC-350 分散液 D20 (g)	SURLYN 1707 分散液 D24 (g)
D37	100	100			
D38	100		100		100
D39		100		100	
D40	100				100

10

【表 10】

表 14. イオン性エラストマーブレンド分散液

分散液	エラストマー ブレンド	エラストマー (重量%)	ブレンド (重量%)	酸 (重量%)	Δ^1 (w%)	イオン	中和 (%)	反応器	温度 (°C)	分散液 外観
D37	SURLYN 9120 SURLYN 7940	15	50 50	19 15	4	Na ⁺ , Li ⁺ , Zn ⁺⁺	133	n/a	25	乳白色
D38	SURLYN 9120 SURLYN 8150	15	50 50	19 19	0	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	98	n/a	25	乳白色
D39	SURLYN PC-350 SURLYN 7940	15	50 50	15 15	0	Na ⁺ , Li ⁺	100	n/a	25	乳白色
D40	SURLYN 9120 SURLYN 1707	15	50 50	19 15	4	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	120	n/a	25	乳白色

20

¹ Δ は、ブレンドのポリマーの酸含有量の差を示す。

【表 11】

表 15. イオン性エラストマーブレンド分散液の特性評価

分散液	エラストマー ブレンド	エラストマー (重量%)	ブレンド (重量%)	イオン	中和 (%)	pH	濾過され ていない (重量%)	濾過さ れた (重量%)	粒子サイズ ¹ (nm)	H (%)
D37	SURLYN 9120 SURLYN 7940	15	50 50	Na ⁺ , Li ⁺ , Zn ⁺⁺ , DMEA	133	10.5	15.68	15.69	206.2	99.2
D38	SURLYN 9120 SURLYN 8150	15	50 50	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	98	11.0	15.62	15.66	68.66 (97.3) 3,921 (2.7)	67.8
D39	SURLYN PC- 350 SURLYN 7940	15	50 50	Na ⁺ , Li ⁺ , DMEA	100	10.5	15.55	15.48	167.0	99.2
D40	SURLYN 9120 SURLYN 1707	15	50 50	Na ⁺ , Zn ⁺⁺ , DMEA	120	10.5	15.54	15.47	102.5 (99.6) 4,979 (0.4)	74.8

30

¹ 括弧内の数字は、粒子サイズの集団のパーセンテージである。

【0106】

イオン性エラストマーコーティング

コーティング C 1 ~ C 1 2 :

40

コーティング C 1 ~ C 1 2 は、透明イオン性エラストマーコーティングの配合を例示する。スロットダイを通して分散液が移動ウェブに定量供給される連続ロールツーロールプロセスにおいて、各分散液をブライミングされていない PET 基材フィルム上にコーティングした。イオン性エラストマー分散液を、定量供給ポンプ及び質量流量計によって定量供給した。各コーティング配合物についての体積流量を表 16 に示す。コーティング配合物（すなわち、イオン性エラストマー分散液）の揮発性成分を、3ゾーン空気浮上オープンで除去した。各ゾーンの温度は、オープンの入口から出口まで、それぞれ 65.6、79.4、及び 135 であり、各オープンセクションは名目上、3.05 m の長さを有した。表 17 は、10 マイクロメートルの名目上のコーティング厚さ、及び 93% 超の可視透過率並びに 1% 未満のヘイズを含む特性評価の結果を示す。光学特性評価は、PE

50

T基材及びコーティングを含むことに留意されたい。全てのコーティングC1～C78についての75μmのPET基材は、91.9%の透過率、00.65%のヘイズ、及び99.9%の透明度を有した。

【表12】

表16. イオン性エラストマーコーティング

材料	エラストマー (重量%)		コーティング	C1	C2	C3	C4	C5	C6	C7	C8	C9	C10	C11	C12
エラストマー分散液															
SURLYN 9120	15	D22	(g)	750											
SURLYN 8150	15	D14	(g)		750										
	15	D15	(g)			750									
	15	D13	(g)				750								
	15	D16	(g)					750							
SURLYN PC-350	15	D18	(g)						750						
	15	D17	(g)							750					
	15	D19	(g)								750				
SURLYN 1707	15	D20	(g)									750			
	15	D23	(g)										750		
SURLYN 7940	15	D24	(g)											750	
	15	D21	(g)												750
流量(cc/min)				77.8	69.6	75.8	80.1	80.7	79.4	78.9	71.1	76.2	70.6	75.5	70.0

【表13】

表17. イオン性エラストマーコーティングの特性評価

コーティング	エラストマー	酸 (重量%)	イオン	中和 (%)	厚さ (μm)	T (%)	H (%)	C (%)
C1	SURLYN 9120	19	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	113	10.4	93.0	0.82	99.9
C2	SURLYN 8150	19	Na ⁺	118	9.4	93.2	0.52	99.9
C3				75	11.2	93.0	0.51	99.9
C4				60	10.6	93.3	0.57	99.9
C5				45	10.3	93.2	0.81	99.7
C6				90	11.3	93.1	0.53	99.8
C7	SURLYN PC- 350	15	Na ⁺ , K ⁺	90	11.0	93.0	0.60	99.9
C8			Na ⁺	128	9.7	93.1	0.54	99.9
C9			85	10.0	93.1	0.58	99.8	
C10	SURLYN 1707	15	Na ⁺	128	9.6	93.0	0.54	99.9
C11				90	10.4	93.0	0.75	97.1
C12	SURLYN 7940	15	Li ⁺	115	9.3	93.0	0.82	99.9

【0107】

コーティングC13～C22:

コーティングC13～C22は、透明イオン性エラストマーコーティングの配合を更に例示する。コーティングC13～C22を、コーティングC1～C12と同じ様式でコーティングした。表17Aは、10μmの名目上のコーティング厚さ、及び93%超の可視透過率並びに1%未満のヘイズを含む特性評価の結果を示す。光学特性評価は、PET基材及びコーティングを含むことに留意されたい。

10

20

30

40

50

【表 1 4】

表17A. イオン性エラストマーコーティング

材料	エラストマー (重量%)		コーティング	C13	C14	C15	C16	C17	C18	C19	C20	C21	C22
エラストマー分散液													
PRIMACOR 5980i	15	D11	(g)	750									
	15	D11	(g)		565								
	15	D1	(g)			485							
	15	D4	(g)				414						
	15	D5	(g)					389					
	15	D7	(g)						443				
	15	D9	(g)							593			
	15	D8	(g)								597		
NUCREL 960	15	D12	(g)									616	750
流量 (cc/min)				77.1	69.1	76.2	77.0	78.5	66.4	63.5	70.9	62.7	76.4

10

【表 1 5】

表18. イオン性エラストマーコーティングの特性評価

コーティング	エラストマー	酸 (重量%)	イオン	中和 (%)	厚さ (μm)	T (%)	H (%)	C (%)
C13	PRIMACOR 5980i	20.5	NH_4^+	75	9.5	93.1	0.60	99.9
C14			$\text{Zn}(\text{NH}_3)_4^{++}$		9.2	93.4	0.56	99.9
C15			Na^+		10.0	93.1	0.51	99.8
C16			K^+		10.6	93.1	0.59	99.9
C17			Li^+		10.9	93.1	0.66	99.8
C18			DMEA^+		8.6	93.1	0.88	99.8
C19			AMP^+		8.4	93.0	0.68	99.8
C20			MEA^+		9.5	93.0	0.73	99.8
C21			TEA^+		8.3	92.9	0.64	99.8
C22			SURLYN 1707		15	Na^+	75	11.3

20

【0108】

イオン性エラストマーブレンドコーティング

コーティングC23～C30:

コーティングC23～C30は、透明イオン性エラストマーブレンドコーティングの配合を例示する。コーティングC23～C30を、コーティングC1～C12と同じ様式でコーティングした。表21は、コーティングC28を除いて、 $10\mu\text{m}$ の名目上のコーティング厚さ、及び93%超の可視透過率並びに1%未満のヘイズを含む特性評価の結果を示す。光学特性評価は、PET基材及びコーティングを含むことに留意されたい。

30

40

50

【表 1 6】

表19. イオン性エラストマーブレンドコーティング

材料	エラストマー (重量%)	ブレンド (重量%)		コーティング	C23	C24	C25	C26	C27	C28	C29	C30
エラストマー分散液												
PRIMACOR 5980i NUCREL 960	15	44 56	D25	(g)	750							
SURLYN 8150 SURLYN PC-350	15	50 50	D31	(g)		750						
SURLYN 8150 SURLYN PC-350	15	50 50	D30	(g)			750					
SURLYN 8150 SURLYN PC-350	15	50 50	D32	(g)				750				
SURLYN 8150 SURLYN PC-350	15	50 50	D33	(g)					750			
SURLYN 9120	15		D22	(g)						390	390	390
SURLYN 1707	15		D24	(g)						390		
SURLYN PC-350	15		D20	(g)							390	
SURLYN 7940	15		D27	(g)								390
流量(cc/min)					66.2	78.1	78.9	70.3	74.6	76.4	76.4	73.4

10

【表 1 7】

表20. イオン性エラストマーブレンドコーティング

材料	エラストマー (重量%)	ブレンド (重量%)		コーティング	C31	C32	C33	C34	C35	C36	C37	C38
エラストマーブレンド分散液												
PRIMACOR 5980i SURLYN 8150	15	50 50	D42	(g)	750							
PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	15	10 90	D36	(g)		750						
PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	15	44 56	D35	(g)			750					
SURLYN PC-350 SURLYN 1707	15	50 50	D43	(g)				750				
SURLYN PC-350 SURLYN 1707	15	50 50	D44	(g)					750			
SURLYN PC-350 SURLYN 1707	15	50 50	D29	(g)						750		
SURLYN 9120	15		D22	(g)							390	
SURLYN 8150	15		D19	(g)							390	
SURLYN PC-350	15		D24	(g)								390
SURLYN 7940	15		D27	(g)								390
流量(cc/min)					67.9	77.6	77.4	71.1	75.3	77.7	78.9	73.4

20

30

40

50

【表 18】

表21. イオン性エラストマーブレンドコーティングの特性評価

コーティング	エラストマー ブレンド	ブレンド (重量%)	酸 (重量%)	Δ^1 (%)	イオン	中和 (%)	厚さ (μm)	T (%)	H (%)	C (%)
C23	PRIMACOR 5980i NUCREL 960	44 56	20.5 15	5.5	Na^+	75	9.1	93.3	0.58	99.9
C24	SURLYN 8150 SURLYN PC-350	50 50	19 15	4	Na^+, K^+	90	10.9	93.1	0.58	99.8
C25	SURLYN 8150 SURLYN PC-350	50 50	19 15	4	Na^+	90	11.2	93.3	0.54	99.9
C26	SURLYN 8150 SURLYN PC-350	50 50	19 15	4	Na^+	125	9.3	93.2	0.55	99.9
C27	SURLYN 8150 SURLYN PC-350	50 50	19 15	4	Na^+	90	9.6	93.3	0.54	99.8
C28	SURLYN 1707 SURLYN 9120	50 50	15 19	4	$\text{Na}^+, \text{Zn}^{++}$	100	9.0	93.3	1.67	97.7
C29	SURLYN PC-350 SURLYN 9120	50 50	15 19	4	$\text{Na}^+, \text{Zn}^{++}$	98	9.8	93.2	0.62	99.4
C30	SURLYN 7940 SURLYN 9120	50 50	15 19	4	$\text{Na}^+, \text{Li}^+, \text{Zn}^{++}$	113	9.7	93.2	0.72	99.8
C31	PRIMACOR 5980i SURLYN 8150	50 50	20.5 19	1.5	Na^+	101	9.0	93.2	0.55	99.9
C32	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	10 90	20.5 19	1.5	$\text{Na}^+, \text{Zn}^{++}$	108	10.2	93.2	0.75	99.8
C33	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	44 56	20.5 19	1.5	$\text{Na}^+, \text{Zn}^{++}$	102	10.8	93.4	0.54	99.9
C34	SURLYN PC-350 SURLYN 1707	50 50	15 15	0	Na^+	132	9.4	93.1	0.54	99.9
C35	SURLYN PC-350 SURLYN 1707	50 50	15 15	0	Na^+	90	10.4	93.2	0.86	97.2
C36	NUCREL 960 SURLYN 9120	10 90	15 15	0	$\text{Na}^+, \text{Zn}^{++}$	111	10.3	93.0	0.74	99.9
C37	SURLYN 8150 SURLYN 9120	50 50	19 19	0	$\text{Na}^+, \text{Zn}^{++}$	78	10.0	93.1	0.71	99.8
C38	SURLYN PC-350 SURLYN 7940	50 50	15 15	0	Na^+, Li^+	100	9.3	93.2	0.83	98.7

¹ Δ は、ブレンドのポリマーの酸含有量の差を示す。

【0109】

ナノ粒子分散液

分散液 D 4 1 :

分散液 D 4 1 は、ナノ粒子表面がカルボン酸官能基で改質されているシリカナノ粒子分散液の調製を示す。カルボン酸官能基は、ナノ粒子と(メタ)アクリル酸エラストマーとの間の適合性を確立するために求められる。400グラムの水性コロイド状シリカ分散液(NALCO 2327)を、0.95リットルの透明なガラスジャーに入れた。テフロンコーティングされた攪拌棒をジャーに加えた。ジャーを攪拌プレート上に置き、攪拌を開始した。317.5グラムの脱イオン水をジャーに添加した。132.5グラムの酸シラン表面剤溶液をジャーに添加した。ジャーの内容物を20分間混合した。攪拌棒をジャーから取り出し、内容物を予熱した80のオープンに24時間入れた。24時間後、ジャーをオープンから取り出し、ナノ粒子分散液を周囲条件下で室温まで放冷した。ナノ粒子分散液のpHは5.5であり、ナノ粒子濃度は19.3重量%であると計算された。

【0110】

分散液 D 4 2 :

分散液 D 4 2 は、ナノ粒子の表面がカルボン酸官能基で改質されているシリカナノ粒子分散液の調製を示す。カルボン酸官能基は、ナノ粒子と(メタ)アクリル酸エラストマーとの間の適合性を確立するために求められる。49.33kgの水性コロイド状シリカ分散液(NALCO 2327)を、2.67リットルのステンレス鋼反応器に入れた。

攪拌を開始した。15.58キログラムの酸シラン表面剤溶液を反応器に添加した。反応器の内容物を、80℃に加熱した。80℃に達した時、反応器を密封し、反応器の内容物を、24時間連続攪拌しながら、80℃で維持した。24時間後、反応器の内容物を冷却し、50μmのフィルターで濾過し、2つの18.93リットルのプラスチックライニングされた金属ドラムに移した。ナノ粒子分散液のpHは5.5であり、ナノ粒子濃度は31.3重量%であると計算された。

【表19】

表22. ナノ粒子分散液

分散液	NALCO 2327 (g)	DI H ₂ O (g)	酸シラン 溶液 (g)	SiO ₂ (重量%)	pH
D41	400	318	133	19.3	5.5
D42	49328	—	15581	31.3	5.5

10

【0111】

分散液D43:

D42のシリカナノ粒子分散液のpHを増加させるために、水酸化アンモニウム溶液を添加した。3000グラムのナノ粒子分散液D42を、3.78リットルの透明なガラスジャーに入れた。テフロンコーティングされた攪拌棒をジャーに加えた。ジャーを攪拌プレート上に置き、攪拌を開始した。名目上28重量%の71.2グラムの水酸化アンモニウム水溶液をナノ粒子分散液に添加した。ジャーの内容物を20分間混合し、次いで攪拌棒をジャーから取り出した。ナノ粒子分散液のpHは10.0であり、ナノ粒子濃度は30.6重量%であると計算された。

20

【表20】

表23. ナノ粒子分散液

分散液	SiO ₂ 分散液 D42 (g)	NH ₄ OH 溶液 (g)	SiO ₂ (重量%)	pH
D43	3000	71.2	30.6	10.0

30

【0112】

イオン性エラストマーナノ複合体コーティング

コーティングC39~C48:

コーティングC39~C48は、透明イオン性エラストマーナノ複合体コーティングの調製を例示する。各コーティング配合物で使用される各分散液の質量を表24に詳述する。各コーティングについての、イオン性エラストマー分散液の質量を透明なガラスジャーに入れた。テフロンコーティングされた攪拌棒をジャーに加えた。ジャーを攪拌プレート上に置き、攪拌を開始した。ナノ粒子分散液の所望の質量をイオン性エラストマー分散液に添加した。アイオノマー/ナノ粒子分散液を20分間混合した。各アイオノマー/ナノ粒子分散液を、コーティングC1~C12と同じ様式で、プライミングされていないPET基材フィルム上にコーティングした。表25は、60重量%のナノ粒子を含有するコーティングC44を除いて、10μmの名目上のコーティング厚さ、及び93%超の可視透過率並びに1%未満のヘイズを含む特性評価の結果を示す。コーティングC39~C43は、10~50重量%のナノ粒子のコーティング光学部品に及ぼすナノ粒子濃度の最小効果を例示する。コーティングC39~C48は、40重量%の高いナノ粒子の充填量を有する様々なイオン性エラストマーについての良好な光学性能を更に例示する。光学特性評価は、PET基材及びコーティングを含むことに留意されたい。

40

50

【表 2 1】

表24. イオン性エラストマーナノ複合体コーティング

材料	SiO ₂ (重量%)	エラストマー (重量%)	コーティング	C39	C40	C41	C42	C43	C44	C45	C46	C47	C48
エラストマー分散液													
SURLYN 9120		15	D22 (g)	711	668	620	565	503	432	1319			
SURLYN 8150		15	D18 (g)								1319		
SURLYN 1707		15	D31 (g)									933	
			D24 (g)									386	
SURLYN 7940		15	D21 (g)										1319
ナノ粒子分散液													
SiO ₂	30.6		D51 (g)	39	82	130	185	247	318	431	431	431	431
流量 (cc/min)				77.0	76.0	75.0	73.8	72.4	70.9	73.8	81.1	80.5	80.7

10

【表 2 2】

表25. イオン性エラストマーナノ複合体コーティングの特性評価

コーティング	エラストマー	SiO ₂ (重量%)	酸 (重量%)	イオン	中和 (%)	厚さ (μ m)	T (%)	H (%)	C (%)
C39	SURLYN 9120	10	19	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	113	10.7	92.8	0.77	99.9
C40		20		Na ⁺ , Zn ⁺⁺	113	10.0	92.7	0.63	99.9
C41		30		Na ⁺ , Zn ⁺⁺	113	10.1	92.9	0.60	99.9
C42		40		Na ⁺ , Zn ⁺⁺	113	10.0	92.8	0.54	99.9
C43		50		Na ⁺ , Zn ⁺⁺	113	10.1	92.7	0.65	99.9
C44		60		Na ⁺ , Zn ⁺⁺	113	10.3	93.0	1.09	99.8
C45		40		Na ⁺ , Zn ⁺⁺	113	9.0	93.0	0.66	99.9
C46		SURLYN 8150		40	19	Na ⁺	45	10.0	93.0
C47	SURLYN 1707	40	15	Na ⁺	60	10.0	92.9	0.70	98.9
C48	SURLYN 7940	40	15	Li ⁺	40	10.6	92.9	0.66	99.8

20

【0 1 1 3】

コーティング C 4 9 ~ C 5 9 :

コーティング C 4 9 ~ C 5 9 は、透明イオン性エラストマーナノ複合体コーティングの調製を更に例示する。アイオノマー/ナノ粒子コーティング配合物を、コーティング C 3 9 ~ C 4 8 に記載されているものと同じ様式で調製した。各アイオノマー/ナノ粒子分散液を、コーティング C 1 ~ C 1 2 と同じ様式で、プライミングされていない P E T 基材フィルム上にコーティングした。配合物及びコーティングの詳細を表 2 6 に提供する。表 2 7 は、10 μ m の名目上のコーティング厚さ、及び 9 2 ~ 9 3 % 超の可視透過率並びに 1 % 未満のヘイズを含む特性評価の結果を示す。コーティング C 4 9 ~ C 5 9 は、10 ~ 60 重量%のナノ粒子のコーティング光学部品に及ぼすナノ粒子濃度の最小効果を例示する。コーティング C 3 9 ~ C 4 8 は、40 重量%の高いナノ粒子の充填量を有する様々なイオン性エラストマーについての良好な光学性能を更に例示する。コーティング C 5 8 は、蒸発によってコーティングプロセス中に除去される揮発性中和剤で意図的にコーティングした。光学特性評価は、P E T 基材及びコーティングを含むことに留意されたい。

30

40

50

【表 2 3】

表26. イオン性エラストマーナノ複合体コーティング

材料	SiO ₂ (重量%)	エラストマー (重量%)	コーティング	C49	C50	C51	C52	C53	C54	C55	C56	C57	C58	C59	
エラストマー分散液															
PRIMACOR 5980i		15	D3	(g)	711	668	620	565	503	432			1319		
		15	D11	(g)									1319		
		15	D2	(g)							494	494			
NUCREL 960		15	D12	(g)										1319	
ナノ粒子分散液															
SiO ₂	30.6		D51	(g)	39	82	130	185	247	318			431	369	431
	19.3		D49	(g)							256	256			
流量(cc/min)					76.2	75.4	74.4	73.2	72.0	70.6	75.2	75.2	73.2	80.5	79.6

10

【表 2 4】

表27. イオン性エラストマーナノ複合体コーティングの特性評価

コーティング	エラストマー	SiO ₂ (重量%)	酸 (w%)	イオン	中和 (%)	厚さ (μ m)	T (%)	H (%)	C (%)
C49	PRIMACOR 5980i	10	20.5	Na ⁺	75	10.1	92.8	0.60	99.8
C50		20		Na ⁺	75	10.3	92.9	0.61	99.9
C51		30		Na ⁺	75	10.1	92.7	0.63	99.8
C52		40		Na ⁺	75	10.4	92.9	0.64	99.8
C53		50		Na ⁺	75	10.3	92.7	0.77	99.7
C54		60		Na ⁺	75	10.2	92.9	0.90	99.9
C55		40		Na ⁺	75	5.7	91.3	0.52	99.9
C56		40		Na ⁺	75	9.6	93.2	0.57	99.7
C57		40		Na ⁺	75	10.4	92.9	0.54	99.9
C58		40			0	10.0	93.2	1.92	99.9
C59	NUCREL 960	40	15	Na ⁺	75	10.2	92.7	0.54	99.9

20

【0 1 1 4】

イオン性エラストマーナノ複合体ブレンドコーティング

コーティングC 6 0 ~ C 6 8 :

コーティングC 6 0 ~ C 6 8は、透明イオン性エラストマーナノ複合体ブレンドコーティングの調製を例示する。配合物及びコーティングの詳細を表 2 9 に提供する。コーティングC 6 3 ~ C 6 6 についてのアイオノマーブレンド分散液の調製は、分散液D 5 2 ~ D 5 4 及び表 2 9 に記載されている。各コーティングについての、イオン性エラストマーブレンド分散液の質量を透明なガラスジャーに入れた。テフロンコーティングされた攪拌棒をジャーに加えた。ジャーを攪拌プレート上に置き、攪拌を開始した。ナノ粒子分散液の所望の質量をイオン性エラストマーブレンド分散液に添加した。アイオノマー/ナノ粒子分散液を20分間混合した。各アイオノマーブレンド/ナノ粒子分散液を、コーティングC 1 ~ C 1 2 と同じ様式で、プライミングされていないPET基材フィルム上にコーティングした。表 3 2 は、最大40重量%のナノ粒子を有するナノ複合体コーティングについて、10 μ mの名目上のコーティング厚さ、及び92 ~ 93 %超の可視透過率並びに1 %未満のヘイズを含む特性評価の結果を示す。光学特性評価は、PET基材及びコーティングを含むことに留意されたい。

30

40

50

【表 2 5】

表29. イオン性エラストマーナノ複合体ブレンドコーティング

材料	SiO ₂ (重量%)	エラストマー (重量%)	ブレンド (重量%)		コーティング	C60	C61	C62	C63	C64	C65	C66	C67	C68
エラストマーブレンド分散液														
SURLYN 9120 SURLYN 1707		15	50 50	D52	(g)	565								
SURLYN 9120 SURLYN 7940		15	50 50	D53	(g)		565							
SURLYN 9120 SURLYN 8150		15	50 50	D54	(g)			565						
SURLYN 9120		15		D22	(g)				1131		660			
SURLYN 8150		15		D16	(g)				1131	660				
PRIMACOR 5980i		15		D3	(g)					660				
NUCREL 960		15		D12	(g)						660			
SURLYN PC- 350 SURLYN 1707		15	50 50	D35	(g)							1319		
SURLYN PC- 350 SURLYN 8150		15	50 50	D32	(g)								1319	
NUCREL 960 SURLYN 9120		15	10 90	D29	(g)									1319
ナノ粒子分散液														
SiO ₂	30.6			D51	(g)	185	185	185	739	431	431	431	431	431
流量(cc/min)						74.3	74.3	74.8	74.8	81.6	80.6	82.7	83.3	81.0

10

20

【0 1 1 5】

分散液 D 5 2 ~ D 5 4 :

分散液 D 5 2 ~ D 5 4 は、イオン性エラストマーナノ複合体コーティング C 6 0 ~ C 6 2 で使用するためのイオン性エラストマーブレンド分散液の調製を例示する。300グラムの分散液 D 2 2 を、0.95リットルの透明なガラスジャーに入れた。テフロンコーティングされた攪拌棒をジャーに加えた。ジャーを攪拌プレート上に置き、攪拌を開始した。300グラムのイオン性エラストマー分散液 D 2 4 を分散液 D 2 2 に添加して、イオン性エラストマーブレンド分散液 D 5 2 を形成した。分散液 D 2 2 及び D 2 4 を組み合わせた後、分散液 D 5 2 を 20 分間混合した。同様に、表 3 0 に詳述されるように、イオン性エラストマーブレンド D 5 3 を、分散液 D 2 2 と D 2 7 とを混合することによって形成し、分散液 D 5 4 を、分散液 D 2 4 と D 1 9 とを組み合わせることによって形成した。

30

【表 2 6】

表30. イオン性エラストマーブレンド分散液

分散液	SURLYN 9120 分散液 D22 (g)	SURLYN 1707 分散液 D24 (g)	SURLYN 7940 分散液 D27 (g)	SURLYN 8150 分散液 D19 (g)
D52	300	300		
D53	300		300	
D54	300			300

40

【0 1 1 6】

コーティング C 6 9 ~ C 7 8 :

コーティング C 6 9 ~ C 7 8 は、イオン性エラストマーナノ複合体ブレンドコーティングの調製を更に例示する。配合物及びコーティングの詳細を表 3 1 に提供する。各アイオノマーブレンド/ナノ複合体分散液を、コーティング C 6 0 ~ C 6 8 と同じ様式で調製した。各アイオノマーブレンド/ナノ粒子分散液を、コーティング C 1 ~ C 1 2 と同じ様式で、プライミングされていないPET基材フィルム上にコーティングした。表 3 2 は、最

50

大 4 0 重量 % のナノ粒子を有するナノ複合体コーティングについて、1 0 μ m の名目上のコーティング厚さ、及び 9 2 ~ 9 3 % 超の可視透過率並びに 1 % 未満のヘイズを含むコーティング C 6 9 ~ C 7 8 の特性評価の結果を示す。光学特性評価は、P E T 基材及びコーティングを含むことに留意されたい。

【表 2 7】

表 31. イオン性エラストマーナノ複合体ブレンドコーティング

材料	SiO ₂ (重量%)	エラストマー (重量%)	ブレンド (重量%)		コーティング	C69	C70	C71	C72	C73	C74	C75	C76	C77	C78
エラストマーブレンド分散液															
PRIMACOR 5980i SURLYN 9120		15	44	D34	(g)	690	628	563	494	494	494	565	2261		
			56	D35	(g)										1319
PRIMACOR 5980i SURLYN 9120		15	10 90	D36	(g)										1319
ナノ粒子分散液															
SiO ₂	19.3			D41	(g)	60	122	187	256	256	256				
	30.6			D43	(g)							185	739	431	431
流量 (cc/min)						79.1	78.0	76.9	75.5	75.5	75.5	72.6	72.6	79.9	80.5

10

20

30

40

50

【表 28】

表32. イオン性エラストマーナノ複合体ブレンドコーティングの特性評価

コーティング	ブレンド	SiO ₂ (重量%)	ブレンド (重量%)	酸 (重量%)	Δ ¹ (重量%)	イオン	中和 (%)	厚さ (μm)	T (%)	H (%)	C (%)
C60	SURLYN 9120 SURLYN 1707	40	30 30	19 15	4	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	87	10.3	92.9	0.74	98.8
C61	SURLYN 9120 SURLYN 7940	40	30 30	19 15	4	Na ⁺ , Li ⁺ , Zn ⁺⁺	77	10.2	92.9	0.94	99.8
C62	SURLYN 9120 SURLYN 8150	40	30 30	19 19	0	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	79	9.8	92.8	0.61	99.9
C63	SURLYN 9120 SURLYN 8150	40	30 30	19 15	4	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	79	9.0	93.2	0.64	99.9
C64	SURLYN 8150 PRIMACOR 5980i	40	30 30	19 20.5	1.5	Na ⁺	60	10.3	92.8	0.57	99.9
C65	SURLYN 9120 NUCREL 960	40	30 30	19 15	4	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	94	10.0	93.1	0.54	99.9
C66	SURLYN PC- 350 SURLYN 1707	40	30 30	15 15	0	Na ⁺	57	10.6	93.2	0.52	99.9
C67	SURLYN PC- 350 SURLYN 8150	40	30 30	15 19	4	Na ⁺	50	10.6	93.0	0.54	99.9
C68	NUCREL 960 SURLYN 9120	40	6 54	15 19	4	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	109	9.8	92.7	0.62	99.9
C69	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	10	40 50	20.5 19	1.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	87	10.3	93.4	0.58	99.9
C70	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	20	35 45	20.5 19	1.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	77	10.9	93.3	0.53	99.9
C71	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	30	31 39	20.5 19	1.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	67	9.1	93.1	0.61	99.9
C72	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	40	26 34	20.5 19	1.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	58	11.0	93.1	0.63	99.3
C73	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	40	26 34	20.5 19	1.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	58	10.8	93.1	0.69	98.7
C74	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	40	26 34	20.5 19	1.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	58	10.1	93.1	0.68	99.1
C75	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	40	26 34	20.5 19	1.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	58	10.3	92.8	0.61	99.9
C76	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	40	26 34	20.5 19	1.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	58	8.7	93.0	0.60	99.9
C77	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	40	26 34	20.5 19	1.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	58	10.4	92.9	0.53	99.9
C78	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	40	6 54	20.5 19	1.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	111	10.1	92.7	0.58	99.9

¹Δは、ブレンドのポリマーの酸含有量の差を示す。

【0117】

イオン性エラストマーナノ複合体フィルム

フィルムF1～F10:

フィルムF1～F10は、溶融プロセスによって調製されたイオン性エラストマーナノ複合体フィルムを例示する。フィルムF1～F11の組成詳細を表33に提供する。前述のナノ複合体コーティングをPET基材から分離し、溶融加工中にイオン性エラストマーナノ複合体として使用した。フィルムF1～F3及びF7～F10については、純粋な(メタ)アクリル酸エラストマーをナノ複合体コーティングとともに溶融加工して、ナノ粒子濃度を低下させた。フィルムF4～F6については、ナノ複合体のみが溶融加工された。フィルムF8については、溶融プロセス中に中和剤を添加した。イオン性エラストマーナノ複合体を、Plasti-corder (C.W. Brabender Instruments, Inc., South Hackensack, NJ)を使用して溶融加工した。全てのナノ複合体配合物を、150及び75rpmで15分間配合した。配合後、ナノ複合体を、Auto Seriesホットプレス (Carver Inc., Wabash, IN)を使用してフィルムにプレスした。ホットプレスプロセスでは、配合された材料の一部をポリイミドシート間に配置し、次いで、艶出しされたアルミニウムブ

10

20

30

40

50

レート間に配置した。２段階ホットプレスプロセスを使用して、ナノ複合体をフィルムにプレスした。最初に、ナノ複合体を選択されたプレス温度で５分間、９００重量kgでプレスした。ほとんどのナノ複合体を、１２５でプレスした。より高いナノ粒子充填量を有するナノ複合体には、より高いプレス温度が必要であった。ホットプレス温度は、添付の表に詳述されている。第２の段階では、プレスは、圧力を同じ温度で０．１分間１０，９００重量kgに自動的に増加させた後、プレス機が自動的に開放された。プレスされたフィルムをアルミニウムシートの間から取り出し、ポリイミドシートを除去する前に室温まで冷却した。プレスされたフィルムの特性評価は、厚さ及び光学特性を含み、表３４に詳述されている。６０重量％のナノ粒子を有するナノ複合体フィルムを除いて、ナノ複合体フィルムは、９０％超の可視透過率を示す。フィルムＦ６及びＦ９を除いて、残りの８つのナノ複合体フィルムは、２．７～４．０％のヘイズを示す。熱重量分析（ＴＧＡ）を、フィルムＦ１～Ｆ４で実施して、ナノ粒子濃度を決定した。表３４に示すように、フィルムＦ１～Ｆ４の固形分含有量は、予想されるナノ粒子濃度と十分に相関する。ナノ複合体中の金属イオンの存在は、ＴＧＡによって決定される固形分パーセントを増加させることが予想される。

10

【表２９】

表３３．イオン性エラストマーナノ複合体フィルム

材料	SiO ₂ (重量%)	エラストマー (重量%)		フィルム	F1	F2	F3	F4	F5	F6	F7	F8	F9	F10
エラストマーナノ複合体														
SURLYN 9120	40	60	C45	(g)	12.5	25.0	37.5	50.0						
	50	50	C43	(g)					50.0					
	60	40	C44	(g)						50.0				
SURLYN 8150	40	60	C46	(g)							12.5	25.0		
SURLYN 7940	40	60	C48	(g)									12.5	
SURLYN 1707	40	60	C47	(g)										25.0
エラストマー														
SURLYN 9120		100		(g)	37.5	25.0	12.5							
SURLYN 8150		100		(g)							37.5	25.0		
SURLYN 7940		100		(g)									37.5	
SURLYN 1707		100		(g)										25.0
中和剤														
ZnAc				(g)								3.0		
					プレス温度(°C)									
					125	125	175	175	225	225	125	125	125	125

20

30

【表３０】

表３４．イオン性エラストマーナノ複合体フィルムの特性評価

フィルム	アイオノマー	SiO ₂ (重量%)	酸 (重量%)	イオン	中和 (%)	SiO ₂ (重量%) TGA ¹	厚さ (mil)	T (%)	H (%)	C (%)
F1	SURLYN 9120	10	19	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	38	13.43	6.3	93.4	3.2	91.5
F2		20			38	22.86	8.7	92.8	3.8	93.7
F3		30			38	32.55	5.8	91.6	3.8	95.7
F4		40			38	42.94	9.4	90.0	3.9	96.4
F5		50			38	NM ²	10.3	90.9	4.0	95.8
F6		60			38	NM ²	10.9	85.7	5.4	92.9
F7	SURLYN 8150	10	15	Na ⁺	45	NM ²	6.3	93.9	3.1	94.2
F8		20		Na ⁺ , Zn ⁺⁺	120	NM ²	5.6	93.8	2.7	94.4
F9	SURLYN 7940	10	15	Li ⁺	60	NM ²	6.5	93.1	5.0	94.2
F10	SURLYN 1707	20	15	Na ⁺	60	NM ²	7.8	93.2	3.5	94.7

40

¹TGAは、TGAによって測定されたナノ複合体のSiO₂含有量を示す。²NMは、「測定されていない」を示す。

【 0 1 1 8 】

フィルム F 1 2 ~ F 2 1 :

50

フィルム F 1 2 ~ F 2 1 は、溶融プロセスによって生成されたイオン性エラストマーナノ複合体フィルムを更に例示する。フィルム F 1 2 ~ F 2 1 を、フィルム F 1 ~ F 1 1 と同様の様式で加工した。すなわち、コーティングされたフィルムのイオン性エラストマーナノ複合体を、PET 基材から除去し、溶融加工した。フィルム F 1 2 ~ F 2 1 についての組成の詳細を、ナノ複合体がフィルムにプレスされる温度と共に、表 3 5 に提供する。フィルム F 1 2 ~ F 2 1 は、10 ~ 40 重量%のナノ粒子充填量を有する溶融加工イオン性エラストマーナノ複合体フィルムを更に例示する。フィルム F 1 7 は、中和剤がプロセス中に意図的に除去されたイオン性エラストマーナノ複合体フィルムを例示する。フィルム F 1 6 は、溶融加工中に中和を伴うイオン性エラストマーナノ複合体フィルムを例示する。フィルム F 1 7 は、分散液中及び溶融加工フィルムにおける異なる中和剤の使用を例示する。

10

【表 3 1】

表 35. イオン性エラストマーナノ複合体フィルム

材料	SiO ₂ (重量%)	エラストマー (重量%)		フィルム	F12	F13	F14	F15	F16	F17	F18	F19	F20	F21	
エラストマーナノ複合体															
PRIMACOR 5980i	40	60		C57 (g)	12.5	25.0	37.5	50.0							
				C58 (g)				25.0	25.0						
NUCREL 960	40	60		C59 (g)							12.5	25.0	37.5	50.0	
エラストマー															
PRIMACOR 5980i		100		(g)	37.5	25.0	12.5		25.0	25.0					
				(g)							37.5	25.0	12.5		
NUCREL 960		100		(g)											
中和剤															
				(g)					4.8						
					プレス温度(°C)										
					125	125	125	175	125	125	125	125	125	125	125

20

【表 3 2】

表 36. イオン性エラストマーナノ複合体フィルムの特性評価

フィルム	コポリマー	SiO ₂ (重量%)	酸 (重量%)	イオン	中和 (%)	厚さ (mil)	T (%)	H (%)	C (%)	
F12	PRIMACOR 5980i	10	20.5	Na ⁺	75	4.2	93.7	3.2	93.2	
F13		20			75	4.9	93.6	3.2	95.1	
F14		30			75	7.7	93.0	3.4	93.8	
F15		40			75	4.2	92.4	3.8	93.9	
F16		20			K ⁺	75	7.7	93.0	3.5	95.4
F17		20			—	0	4.2	93.0	6.9	94.9
F18	NUCREL 960	10	15	Na ⁺	75	10.3	93.3	2.9	96.3	
F19		20			75	4.8	93.9	2.7	96.8	
F20		30			75	7.8	93.8	3.1	95.0	
F21		40			75	16.3	91.0	3.8	96.5	

30

【0 1 1 9】

イオン性エラストマーナノ複合体ブレンドフィルム

40

フィルム F 2 2 ~ F 4 3 :

フィルム F 2 2 ~ F 4 3 は、溶融プロセスによるイオン性エラストマーナノ複合体ブレンドフィルムの調製を例示する。フィルム F 2 2 ~ F 4 3 をフィルム F 1 ~ F 1 1 と同様の様式で加工した。すなわち、イオン性エラストマーナノ複合体コーティングを、PET 基材フィルムから分離し、溶融加工した。フィルム F 2 2 ~ F 4 3 については、ナノ複合体コーティングを、コーティングのものとは異なる第 2 の (メタ) アクリル酸エラストマーとともに溶融加工して、イオン性エラストマーナノ複合体ブレンドフィルムを形成した。組成の詳細及びホットプレス温度を表 3 7 及び表 3 8 に提供する。表 3 9 の特性評価の結果は、91% 超の可視透過率及び 2.9 ~ 26.6% のヘイズ値の範囲を示す。高ヘイズ値 10.1 ~ 26.6% は、ブレンドの (メタ) アクリルエラストマー間のより高い酸

50

の差と相関する。光学特性評価は、透明イオン性エラストマーナノ複合体が、分散及びコーティングのみによってアクセス可能であるよりも、溶融加工によってより高い酸の差で達成され得ることを示した。フィルム F 3 8 ~ F 4 1 に関する T G A の結果は、計算されたナノ粒子充填量と十分に相関する。T G A の結果は、溶融加工されたナノ複合体ブレンドフィルムのみではなく、それらが誘導されるコーティングされたナノ複合体フィルムに対しても技術的な支援を提供する。

【表 3 3】

表 37. イオン性エラストマーナノ複合体ブレンドフィルム

材料	SiO ₂ (重量%)	エラストマー (重量%)	フィルム	F22	F23	F24	F25	F26	F27	F28	F29	F30	F31	F32
エラストマーナノ複合体														
PRIMACOR 5980i	40	60	C55 (g)	10.0		25.0						25.0		
			C56 (g)	15.0	10.0									25.0
			C57 (g)		15.0				25.0					25.0
SURLYN 9120	40	60	C45 (g)				25.0	25.0		25.0				
SURLYN 8150	40	60	C46 (g)								25.0			
エラストマー														
SURLYN 1410		100	(g)	20.0			20.0							
SURLYN 1601		100	(g)		20.0			20.0						
NUCREL 699		100	(g)			20.0				20.0				
SURLYN 1650		100	(g)						20.0		20.0			
NUCREL 960		100	(g)									20.0		
SURLYN 1706		100	(g)										20.0	
SURLYN 1707		100	(g)											20.0
PRIMACOR 5980i		100	(g)	5.0	5.0	5.0			5.0			5.0	5.0	5.0
SURLYN 9120		100	(g)				5.0	5.0		5.0				
SURLYN 8150		100	(g)								5.0			
プレス温度(°C)				125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125

10

20

30

40

50

【表 3 4】

表38. イオン性エラストマーナノ複合体ブレンドフィルム

材料	SiO ₂ (重量%)	エラストマー (重量%)	ブレンド (重量%)	フィルム	F33	F34	F35	F36	F37	F38	F39	F40	F41	F42	F43	
エラストマーナノ複合体																
PRIMACOR 5980i	40	60		C55 (g)												
				C56 (g)	25.0	25.0			25.0							
				C73 (g)						37.5	25.0	16.8				
				C74 (g)								20.7	50.0			
SURLYN 9120	40	60		C45 (g)				25.0								
SURLYN PC-350 SURLYN 8150	40	60	30	C67 (g)			25.0									
		30														
SURLYN 9120 SURLYN 8150	40	60	30	C63 (g)										25.0		
SURLYN 1707	40	60		C47 (g)											25.0	
エラストマー																
NUCREL 960		100		(g)				20.0								
SURLYN 1706		100		(g)											25.0	
SURLYN 7940		100		(g)	20.0											
SURLYN PC-350		100		(g)		20.0	12.5									
PRIMACOR 5980i		100		(g)	5.0	5.0			5.0	12.5						
SURLYN 9120		100		(g)				5.0			25.0	12.5		12.5		
SURLYN 8150		100		(g)			12.5		20.0					12.5		
					プレス温度(°C)											
					125	125	125	125	125	125	125	125	175	175	125	125

10

20

30

40

50

【表 3 5】

表39. イオン性エラストマーナノ複合体ブレンドフィルムの特性評価

フィルム	エラストマー ブレンド	SiO ₂ (重量%)	ブレンド (重量%)	酸 (重量%)	Δ ¹ (重量%)	イオン	中和 (%)	SiO ₂ (重量%) TGA ²	厚さ (mil)	T (%)	H (%)	C (%)
F22	PRIMACOR 5980i PRIMACOR 1410	20	40 40	20.5 9.7	10.8	Na ⁺	28	NM ³	5.7	91.1	10.1	96.7
F23	PRIMACOR 5980i SURLYN 1601	20	40 40	20.5 10	10.5	Na ⁺	55	NM ³	6.9	91.6	10.4	95.0
F24	PRIMACOR 5980i NUCREL 699	20	40 40	20.5 11	9.5	Na ⁺	28	NM ³	3.5	93.6	26.6	94.5
F25	SURLYN 9120 SURLYN 1410	20	40 40	20.5 9.7	9.3	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	28	NM ³	11.3	91.2	3.6	96.1
F26	SURLYN 9120 SURLYN 1601	20	40 40	19 10	9	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	74	NM ³	11.8	91.5	3.6	96.0
F27	PRIMACOR 5980i SURLYN 1650	20	40 40	20.5 12	8.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	47	NM ³	5.4	92.4	4.8	95.7
F28	SURLYN 9120 NUCREL 699	20	40 40	19 11	8	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	47	NM ³	7.7	93.0	3.4	94.3
F29	SURLYN 8150 SURLYN 1650	20	40 40	19 12	7	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	42	NM ³	6.3	92.6	4.0	93.4
F30	PRIMACOR 5980i NUCREL 960	20	40 40	20.5 15	5.5	Na ⁺	28	NM ³	4.1	93.1	5.3	95.0
F31	PRIMACOR 5980i SURLYN 1706	20	40 40	20.5 15	5.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	58	NM ³	8.2	93.1	2.9	95.8
F32	PRIMACOR 5980i SURLYN 1707	20	40 40	20.5 15	5.5	Na ⁺	58	NM ³	9.3	91.8	3.4	95.5
F33	PRIMACOR 5980i SURLYN 7940	20	40 40	20.5 15	5.5	Na ⁺ , Li ⁺	48	NM ³	8.0	92.9	3.1	96.7
F34	PRIMACOR 5980i SURLYN PC-350	20	40 40	20.5 15	5.5	Na ⁺	56	NM ³	6.1	93.4	3.3	94.6
F35	SURLYN 8150 SURLYN PC-350	20	40 40	19 15	4	Na ⁺	78	NM ³	6.2	93.1	6.1	95.6
F36	SURLYN 9120 NUCREL 960	20	40 40	19 15	4	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	47	NM ³	8.5	93.3	3.1	94.6
F37	PRIMACOR 5980i SURLYN 8150	20	40 40	20.5 19	1.5	Na ⁺	51	NM ³	7.6	93.9	2.9	94.2
F38	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	10	40 50	20.5 19	1.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	44	12.60	6.9	92.8	3.6	93.6
F39	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	20	35 45	20.5 19	1.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	52	22.55	6.5	93.8	3.2	92.0
F40	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	30	31 39	20.5 19	1.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	62	32.33	7.8	91.9	3.7	95.5
F41	PRIMACOR 5980i SURLYN 9120	40	26 34	20.5 19	1.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	75	42.53	6.8	93.3	4.0	95.4
F42	SURLYN 9120 SURLYN 8150	20	40 40	19 19	0	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	43	NM ³	7.6	93.2	3.0	95.2
F43	SURLYN 1707 SURLYN 1706	20	40 40	15 15	0	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	62	NM ³	9.6	92.5	3.8	94.5

¹ Δ は、ブレンドのポリマーの酸含有量の差を示す。² TGA は、TGA によって測定されるナノ複合体の SiO₂ 含有量を示す。³ NM は、「測定されていない」を示す。

【 0 1 2 0】

フィルム F 4 4 ~ F 4 8 :

フィルム F 4 4 ~ F 4 8 は、溶融プロセスによるイオン性エラストマーナノ複合体ブレンドフィルムを更に例示する。フィルム F 4 4 ~ F 4 8 をフィルム F 2 2 ~ F 4 3 と同様の様式で加工した。すなわち、イオン性エラストマーナノ複合体コーティングを、PET 基材フィルムから分離し、第 2 の (メタ) アクリル酸エラストマーとともに溶融加工してイオン性エラストマーナノ複合体ブレンドを形成した。フィルム F 4 4 ~ F 4 8 については、第 2 のイオン性エラストマーは水中で分散性ではないが、容易に溶融加工され得ることが見出された中和ターポリマーである。組成の詳細を、ホットプレス温度と共に表 4 0 に提供する。表 4 1 の特性評価の結果は、イオン性エラストマーナノ複合体ブレンドフィルムが、93% 超の可視透過率及び 4% 未満のヘイズを示すことを示す。

10

20

30

40

50

【表 3 6】

表40. イオン性エラストマーナノ複合体ブレンドフィルム

材料	SiO ₂ (重量%)	エラストマー (重量%)		フィルム	F44	F45	F46	F47	F48
エラストマーナノ複合体									
PRIMACOR 5980i	40	60	C55	(g)	25.0	25.0			
SURLYN 8150	40	60	C46	(g)			25.0	25.0	
NUCREL 960	40	60	C59	(g)					25.0
エラストマー									
HPF 1000		100		(g)	20.0		20.0		20.0
SURLYN 9020		100		(g)		20.0		20.0	
PRIMACOR 5980i		100		(g)	5.0	5.0			
SURLYN 8150		100		(g)			5.0	5.0	
NUCREL 960		100		(g)					5.0
プレス温度(°C)					125	125	150	150	125

10

【表 3 7】

表41. イオン性エラストマーナノ複合体ブレンドフィルムの特性評価

フィルム	エラストマー	SiO ₂ (重量%)	ブレンド (重量%)	酸 (重量%)	Δ^1 (重量%)	イオン	中和 (%)	厚さ (mil)	T (%)	H (%)	C (%)
F44	PRIMACOR 5980i HPF 1000	20	40 40	20.5 8.5	12	Na ⁺ , Mg ⁺⁺	78	3.9	93.1	3.9	93.3
F45	PRIMACOR 5980i SURLYN 9020	20	40 40	20.5 10	10.5	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	43	5.3	93.3	3.6	96.9
F46	SURLYN 8150 HPF 1000	20	40 40	19 8.5	10.5	Na ⁺ , Mg ⁺⁺	73	3.1	93.4	3.5	93.5
F47	SURLYN 8150 SURLYN 9020	20	40 40	19 10	9	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	38	3.5	93.7	3.6	94.7
F48	NUCREL 960 HPF 1000	20	40 40	15 8.5	6.5	Na ⁺ , Mg ⁺⁺	78	5.7	93.3	3.7	95.2

20

¹ Δ は、ブレンドのポリマーの酸含有量の差を示す。

30

【0 1 2 1】

試験方法

pH :

アイオノマー水性分散液の pH を、pH 試験紙 (Ricca Chemical Co. , Arlington , TX) を用いて測定した。

【0 1 2 2】

固形分重量パーセント :

固形分重量パーセントを、濾過された分散液及び濾過されていない分散液の両方で測定した。濾過されていない分散液については、名目上 3 グラムの分散液の試料を、小さな Pyrex Petri Dish (Corning Inc. Corning , NY) に入れた。試料を、120 に予熱したオープンに 12 時間入れた後、試料をオープンから取り出し放冷した。乾燥分散液及び皿の質量を測定した。固形分重量パーセントを、以下の式に従って、皿の質量、皿 + 分散液の質量、及び皿 + 乾燥分散液の質量から計算した。濾過された分散液については、名目上 3 グラムの分散液の試料を、使い捨てシリンジ (Becton , Dickinson and co. , Franklin Lakes , NJ) に接続された 1 ミクロンのガラス繊維フィルター (Pall Corp. , Port Washington , NY) を介して小さな Pyrex Petri Dish に濾過した。試料を、120 に予熱したオープンに 12 時間入れた後、試料をオープンから取り出し放冷した。乾燥分散液及び皿の質量を測定した。固形分重量パーセントを、以下の式に

40

50

従って、皿の質量、皿 + 分散液の質量、及び皿 + 乾燥分散液の質量から計算した。全ての固形分重量パーセントの測定は、二回行った。

【数 3】

$$\text{固形分重量パーセント} = \left(\frac{\text{質量}_{\text{皿+乾燥分散液}} - \text{質量}_{\text{皿}}}{\text{質量}_{\text{皿+乾燥されていない分散液}} - \text{質量}_{\text{皿}}} \right) \times 100$$

【0123】

粒子サイズ：

粒子サイズを、Zetasizer NS (Malvern Instruments Ltd., Worcester, UK) で測定した。分散液を、分散液の pH と一致する NaOH 溶液を使用して、1:10、1:100、1:1,000、及び場合に
10
より 1:10,000 に希釈した。各希釈で 3 回測定を行い、平均化した。希釈に大幅な変化がなくなってから、粒子サイズを選択した。

【0124】

透過率、ヘイズ、透明度 (THC)

光透過率 (Luminous transmission)、ヘイズ、及び透明度を、モデル 4725 Gardner Haze-Guard Plus (BYK-Gardner, Columbia, MD) を使用して、ASTM D1003-00 に従って測定した。

【0125】

ヘイズ：

液体分散液のヘイズを、Ultrascan PRO 分光光度計 (Hunter Lab, Reston, VA) で測定した。
20

【0126】

フィルムの厚さ：

フィルムの厚さを、デジタルインジケータモデル H0530E (Mitutoyo America Corporation, Aurora, IL) を使用して測定した。

【0127】

コーティングの厚さ：

コーティングの厚さを、白色干渉法及び FTM-ProVis Lite ソフトウェアを使用して測定した。

【0128】

熱重量分析 (TGA)：

溶融加工ナノ複合体フィルム中のナノ粒子濃度を、TGA によって測定した。モデル TGA Q500 (TA Instruments, New Castle, DE) を使用した。約 5 ミリグラムのナノ複合体フィルム又はナノ複合体ブレンドフィルムの試料を、器具によってあらかじめ風袋引きされた白金パン上に配置した。ナノ粒子濃度は、35 から 700 まで 20 / 分で加熱した後の試料の最終重量として決定した。

【0129】

核磁気共鳴 (NMR)：

合成したカルボン酸シラン化学を、低温冷却されたプローブヘッド (Bruker Corporation, Billerica, MA) を装備した Bruker Avance 600 MHz NMR スペクトル計を使用して確認した。カルボン酸シラン / DMF 溶液を重水素化 DMF と混合した。1 次元 (1D) ¹H 及び ¹³C NMR データを 25 で収集した。残留するプロトン - 溶媒共鳴のうちの 1 つを、プロトン次元 (= 8.03 ppm) における二次化学シフト基準として使用した。
40

[実施例]

【0130】

調製例 1 : NaOH 溶液

3000 グラムの脱イオン水を 3.78 リットルの透明なガラスジャーに入れた。テフロンコーティングされた攪拌棒をジャーに加えた。ジャーを攪拌プレート (RCT Basic Model Magnetic Stirrer / Hot Plate Comb
50

ination, IKA Works, Inc., Wilmington, NC)上に置き、攪拌を開始した。1156グラムの水酸化ナトリウム(NaOH)ペレットを、ジャーに添加した。NaOHペレットを水に溶解し、透明な溶液を形成した。

【0131】

調製例2：酸シラン溶液

225グラムの無水コハク酸(SA)を、4リットルの褐色ガラスジャグに入れた。テフロンコーティングされた攪拌棒をジャグに加えた。ジャグを攪拌プレート上に置いた。2500グラムのN,N-ジメチルホルムアミド(DMF)をジャーに添加し、攪拌を開始した。無水コハク酸が溶解してから、400グラムの3-アミノプロピルトリメトキシシラン(AMINO-TMOS)をジャグに添加した。ジャグの内容物を室温で24時間攪拌し続け、反応を完了させて、DMF中で酸シランを形成した。

10

【0132】

調製例3：イオン性エラストマー分散液

27.76キログラムの脱イオン水を37.85リットルのステンレス鋼反応器に入れた。ペレット形態の5.11キログラムのSURLYN 9120を反応器に添加して、15重量パーセントのエラストマー分散液を得た。SURLYN 9120は、Zn⁺⁺による38%の中和で予め中和された(メタ)アクリル酸エラストマーである。攪拌を30rpmで開始した。1.20キログラムのNaOH溶液(調製例1)を反応器に添加した。攪拌を120rpmに上げた。反応器を密封して、より高い温度での処理を可能にし、材料の損失を防止した。150の設定点温度で加熱を開始した。バッチ温度が150に達してから、反応器の内容物を、連続攪拌下、150で2.5時間維持した。得られた分散液を、200μmソックフィルター(Pall Corp., Port Washington, NY)を通して濾過し、2つの18.93リットルのプラスチックライニングされた金属ペイルに移した。プロセス条件と共に、特性評価結果を表2に詳述する。得られた分散液のpHは、11.5であった。粒子サイズ分析は、23.25nm及び140.5nmのサイズの二峰性分散を示した。分散液は、81.6%の測定ヘイズを有して乳白色であった。濾過されていない分散液及び濾過された分散液の乾燥重量の同様の値は、エラストマーが完全に分散していることを示す。

20

【表38】

表2. イオン性エラストマー分散液(調製例3)の特性評価

30

PE	エラストマー	エラストマー (重量%)	酸 (重量%)	イオン	中和 (%)	pH	濾過され ていない (重量%)	濾過され た (重量%)	粒子サイズ ¹ (nm)		H (%)
3	SURLYN 9120	15	19	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	113	11.5	15.59	15.65	23.25 (13.8)	140.5 (86.2)	81.6

¹括弧内の数字は、粒子サイズの集団のパーセンテージである。

【0133】

調製例4：シリカナノ粒子分散液

49.33kgの水性コロイド状シリカ分散液(NALCO 2327)を、75.71リットルのステンレス鋼反応器に入れた。攪拌を開始した。15.58キログラムの酸シラン溶液(調製例2)を反応器に添加した。反応器の内容物を、80に加熱した。80に達した時、反応器を密封し、反応器の内容物を、24時間連続攪拌しながら、80で維持した。24時間後、反応器の内容物を冷却し、50μmのフィルターで濾過し、2つの18.93リットルのプラスチックライニングされた金属ドラムに移した。ナノ粒子分散液のpHは5.5であり、ナノ粒子濃度は31.3重量%であると計算された。

40

【0134】

調製例5：シリカナノ粒子分散液

3000グラムのシリカナノ分散液(調製例4)を3.78リットルの透明なガラスジャーに入れた。テフロンコーティングされた攪拌棒をジャーに加えた。ジャーを攪拌プレート上に置き、攪拌を開始した。名目上28重量%の71.2グラムの水酸化アンモニウ

50

ム溶液をナノ粒子分散液に添加した。ジャーの内容物を20分間混合し、次いで攪拌棒をジャーから取り出した。ナノ粒子分散液のpHは10.0であり、ナノ粒子濃度は30.6重量%であると計算された。

【0135】

調製例6：イオン性エラストマーナノ複合体コーティング

1319グラムのイオン性エラストマー分散液（調製例3）を透明なガラスジャーに入れた。テフロンコーティングされた攪拌棒をジャーに加えた。ジャーを攪拌プレート上に置き、攪拌を開始した。431グラムのシリカナノ粒子分散液（調製例5）をジャーに添加した。アイオノマー/ナノ粒子分散液を20分間混合した。アイオノマー/ナノ粒子分散液を、分散液がスロットダイを通して移動ウェブ上に定量供給された連続ロールツーロールプロセスで、プライミングされていないPET基材フィルム上にコーティングした。アイオノマー/ナノ粒子分散液を、定量供給ポンプ及び質量流量計によって定量供給した。各アイオノマー/ナノ粒子分散液の体積流量は、73.8cc/分であった。コーティング配合物（すなわち、アイオノマー/ナノ粒子分散液）の揮発性成分を3ゾーン空気浮上オープンで除去した。各ゾーンの温度は、オープンの入口から出口まで、それぞれ65.6、79.4、及び135であり、各オープンセクションは名目上、3.05mの長さを有した。表3は、9.0マイクロメートルのコーティング厚さ、93%の可視透過率、及び1%未満のヘイズを含むイオン性エラストマーナノ複合体コーティング（調製例6）についての特性評価の結果を示す。光学特性評価は、PET基材及びコーティングを含むことに留意されたい。PET基材は、名目上75マイクロメートルの厚さで、91.5%の透過率、0.65%のヘイズ、及び99.9%の透明度を有した。

【表39】

表3. イオン性エラストマーナノ複合体コーティングの特性評価

PE	エラストマー	SiO ₂ (重量%)	酸 (重量%)	イオン	中和 (%)	厚さ (um)	T (%)	H (%)	C (%)
6	SURLYN 9120	40	19	Na ⁺ ,Zn ⁺⁺	113	9.0	93.0	0.66	99.9

【0136】

実施例1：イオン性エラストマーナノ複合体フィルム

37.5グラムのSURLYN 9120を、予熱したPlasti-corder (C.W.Brabender Instruments, Inc., South Hackensack, NJ)に入れ、150及び75rpmで熔融した。12.5グラムのイオン性エラストマーナノ複合体コーティング（調製例6）をPET基材から除去し、Plasti-corderに加えて、内容物を150及び75rpmで15分間配合した。配合後、ナノ複合体を、Auto Seriesホットプレス (Carver Inc., Wabash, IN) を使用してフィルムにプレスした。ホットプレスプロセスでは、配合された材料の一部分をポリイミドシート間に配置し、次いで、艶出しされたアルミニウムプレート間に配置した。2段階ホットプレスプロセスを使用して、ナノ複合体をフィルムにプレスした。最初に、ナノ複合体を125にて900重量キログラムでプレスし、5分間保持した。第2の段階では、プレスは、0.1分間保持された同じ温度で圧力を10900重量キログラムに自動的に増加させ、その後、プレス機が自動的に開放された。プレスされたフィルムをアルミニウムシートの間から取り出し、ポリイミドシートを除去する前に室温まで冷却した。プレスされたフィルムの一部を、同じ2段階ホットプレスプロセスを使用して再びプレスした。表4は、イオン性エラストマーナノ複合体フィルム（調製例7）についての特性評価の結果を示す。フィルムは、93.4%の透過率及び3.2%のヘイズを示した。TGAを使用してナノ複合体フィルム中のナノ粒子濃度を測定した。13.43重量%のTGAの結果は、計算された10重量%のナノ粒子濃度と十分に相関する。金属イオンは、TGAの結果を増加させることに留意されたい。

10

20

30

40

50

【表 4 0】

表4. イオン性エラストマーナノ複合体フィルムの特性評価

PE	アイオノマー	SiO ₂ (重量%)	酸 (重量%)	イオン	中和 (%)	SiO ₂ (重量%) TGA ¹	厚さ (mil)	T (%)	H (%)	C (%)
7	SURLYN 9120	10	19	Na ⁺ , Zn ⁺⁺	38	13.43	6.3	93.4	3.2	91.5

¹TGAは、TGAによって測定されたナノ複合体のSiO₂含有量を示す。

【0137】

仮想例1：イオン性エラストマーナノ複合体

仮想例1は、イオン性エラストマーナノ複合体の連続配合を例示する。18mmの二軸型押出機(Leistritz Extrisiontechnik GmbH, Nuremberg, Germany)を次の温度プロファイルで加熱する：ゾーン1 = 260、ゾーン2、3 = 265、ゾーン4~6 = 268、及びゾーン7、8 = 271。イオン性エラストマーナノ複合体コーティング(調製例6)をPET基材から除去し、2.0kg/時の速度で押出機に供給する。SURLYN 9120を同じ押出機に6kg/時の速度で供給する。ストランドダイを、押出機の端部に取り付ける。ストランドの形態の押出物を、イオン性エラストマーナノ複合体をペレットにカットするペレタイザーである、その端部の水浴を通過させる。

【0138】

仮想例2：多層キャストウェブ

仮想例2は、共押出された5層A : B : A : B : Aキャストウェブを例示し、ここでは、中心及び2つの外側のA層がPETなどの熱可塑性物質であり、2つの内側B層がイオン性エラストマーナノ複合体である。PETを、25mmの二軸型押出機(Leistritz Extrisiontechnik GmbH, Nuremberg, Germany)及び次の温度プロファイルで押出する：ゾーン1 = 232、ゾーン2 = 246、ゾーン3 = 254、ゾーン4 = 260、ゾーン5 = 265。ペレットの形態のイオン性エラストマーナノ複合体(仮想例1)を、18mmの二軸型押出機(Leistritz Extrisiontechnik GmbH, Nuremberg, Germany)にて次の温度プロファイルで押出する：ゾーン1 = 260、ゾーン2、3 = 265、ゾーン4~6 = 268、及びゾーン7、8 = 271。2つの押出機は、5層A : B : A : B : A層構造を生成するように設計されたフィードブロックに供給し、ダイは271である。多層押出物を、静電ピンニングの助けを借りてチルロール上にキャストし、巻取り機に巻き取る。供給速度及びキャストホイールの速度を、名目上500~2000マイクロメートルのキャストウェブの厚さを達成するように調整する。

【0139】

仮想例3：配向多層フィルム

仮想例2の5層キャストウェブの100mm×100mm片を、KARO IV実験室バッチ配向(Bruckner Maschinenbau GmbH & Co KG, Siegsdorf, Germany)を使用して配向させる。キャストウェブを、配向機に装填する。キャストウェブを、95~120の延伸温度で1分間予熱する。キャストウェブを、20%/秒の速度で延伸させる。延伸比は、2.5×2.5及び4.0×4.0(MD×TD)である。配向フィルムは、31~162マイクロメートルの厚さである。上記の説明に基づいて、所望の厚さの連続ロールツーロールフィルムは、厚い多層フィルムがキャストされ、次いでテンター内で配向されて、例えば150µmの厚さを有するフィルムのロールを生成するプロセスで作製され得ることがよく分かる。

【0140】

仮想例4：コーティングを有する配向多層フィルム

150µmの厚さを有する配向多層フィルムのロール(仮想例3)を、イオン性エラストマー分散液(調製3)でコーティングする。1319グラムのイオン性エラストマー分

10

20

30

40

50

散液（調製例 3）を透明なガラスジャーに入れる。テフロンコーティングされた攪拌棒をジャーに加える。ジャーを攪拌プレート上に置き、攪拌を開始する。431グラムのシリカナノ粒子分散液（調製例 5）をジャーに添加する。アイオノマー/ナノ粒子分散液を 20 分間混合する。アイオノマー/ナノ粒子分散液を、分散液がスロットダイを通して移動ウェブ上に定量供給される連続ロールツーロールプロセスで、プライミングされていない PET 基材フィルム上にコーティングする。アイオノマー/ナノ粒子分散液を、定量供給ポンプ及び質量流量計によって定量供給する。各アイオノマー/ナノ粒子分散液の体積流量は、73.8 cc/分である。コーティング配合物（アイオノマー/ナノ粒子分散液）の揮発性成分を 3 ゾーン空気浮上オープンで除去する。各ゾーンの温度は、オープンの入口から出口まで、それぞれ 65.6、79.4、及び 135 であり、各オープンセクションは名目上、3.05 m の長さを有する。

10

【0141】

仮想例 5：多層フィルム物品

仮想例 4 のコーティングされた物品をガラスにラミネート (laminated) した。厚さが約 3 mm の第 1 の 15 cm x 15 cm のソーダ石灰ガラス層を提供する。数滴の脱イオン水をガラス上に置き、SURLYN 9120 ナノ複合体アイオノマー層をガラスに湿潤させた。スキージを使用して圧搾し、ガラスとアイオノマーフィルムとの間の過剰な DI 水を除去した。フィルムを室温で約 1 時間静置し、次いで 70 のオープンに入れて、アイオノマーフィルムをガラスに結合させた。アイオノマーガラス複合体構造体を、オープンから取り出し、放冷して、ガラスに結合した多層フィルム物品を提供する。

20

【0142】

仮想例 6：多層フィルム物品

多層光学フィルムを、約 580 um のキャストウェブ厚さで PET 及び copolymers の 224 個の交互の層を、共押出することによって生成する。イオン性エラストマーナノ複合体（仮想例 1）を、PET : copolymers 光学スタックの両側の外層として共押出する。外側イオン性エラストマーナノ複合体層の各々は、約 1500 um の厚さである。キャストウェブを予熱し、機械方向 (MD) に約 90 で 3.7 : 1 の比に延伸させ、次いで、約 100 で、横方向 (TD) で、3.9 : 1 の比で延伸させて各イオン性エラストマーナノ複合体層が 104 um であり、光学スタックが 40 um である、約 248 um の厚さのフィルムを生成する。

30

【0143】

多層光学フィルムと一緒に結合されたガラス層を備えた 2 つのガラス層構造を、以下のプロセスによって作製する。厚さが約 3 mm の第 1 の 15 cm x 15 cm のソーダ石灰ガラス層を提供する。数滴の脱イオン水をガラス上に置き、イオン性エラストマースキンを有する多層光学フィルムの片側をガラスに湿潤させる。スキージを使用して圧搾し、ガラスとナノ複合体層との間の過剰な DI 水を除去する。フィルムを、室温で約 1 時間静置させる。露出したイオン性エラストマースキン層を、第 2 の 15 cm x 15 cm ソーダ石灰ガラス層に結合させる。脱イオン水を、第 2 のガラス層の中心に置き、第 1 のガラス層に取り付けられたイオン性エラストマースキンを、水がイオン性エラストマースキン層と第 2 のガラス層との間のほぼ空気のない接触を許容するように、水と接触して注意深く置く。ガラス構造体全体を 1 時間静置させる。次いで、ガラスアセンブリを、70 のオートクレーブに入れ、加圧して、イオン性エラストマーナノ複合体層をガラス層に結合させ、空気を除去する。十分な時間後、ガラスアセンブリをオートクレーブから取り出し、2 層ガラス複合体アセンブリをもたらす。

40

【0144】

「約 (about)」などの用語は、これらが本明細書に使用及び記載されている文脈において、当業者によって理解されよう。特徴部のサイズ、量、及び物理的特性を表す量に適用される「約」の使用が、本明細書に使用及び記載されている文脈において、当業者にとって明らかではない場合、「約」とは、特定の値の 10 パーセント以内を意味すると理解されよう。約特定の値として与えられる量は、正確に特定の値であり得る。例えば、それ

50

が本明細書に使用及び記載されている文脈において、当業者にとって明らかではない場合、約1の値を有する量とは、その量が0.9~1.1の値を有することを意味し、その値が1であり得ることを意味する。

【0145】

上記において参照された参照文献、特許、又は特許出願の全ては、それらの全体が参照により本明細書に一貫して組み込まれている。組み込まれている参照文献の部分と本出願との間に不一致又は矛盾がある場合、前述の説明における情報が優先される。

【0146】

図中の要素についての説明は、別段の指示がない限り、他の図中の対応する要素に等しく適用されると理解されたい。特定の実施形態が本明細書において図示及び説明されているが、図示及び記載されている特定の実施形態は、本開示の範囲を逸脱することなく、様々な代替的实施態様及び/又は等価の実施態様によって置き換えられ得ることが、当業者には理解されよう。本出願は、本明細書で論じられた特定の実施形態のいずれの適応例、又は変形例、又は組み合わせも包含することが意図されている。したがって、本開示は、特許請求の範囲及びその均等物によってのみ限定されることが意図されている。以下、例示的实施態様を示す。

10

[項目1]

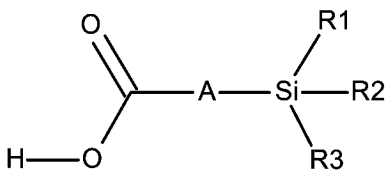
多層フィルムであって、前記多層フィルムの厚さ方向に沿って配置された複数の第1の層とポリマーの第2の層とを含み、前記第1及び第2の層が異なる組成を有し、第1の層のそれぞれが、

20

少なくとも1つのポリマーであって、(メタ)アクリル酸モノマー単位を含む第1のポリマーを含む、少なくとも1つのポリマーと、

前記少なくとも1つのポリマー中に分散された金属酸化物ナノ粒子であって、式1：

【化1】



式1

30

[式中、

R1は、C₁~C₁₀アルコキシ基であり、

R2及びR3は、独立して、C₁~C₁₀アルキル基及びC₁~C₁₀アルコキシ基からなる群から選択され、

Aは、C₁~C₁₀アルキレン基又はアリーレン基、C₁~C₁₀アラルキレン基、C₂~C₁₆ヘテロアルキレン基又はヘテロアリーレン基、及びC₂~C₁₆アミド含有基からなる群から選択されるリンカー基である]のカルボン酸シランを含む表面改質剤で表面改質されている、金属酸化物ナノ粒子とを含む、多層フィルム。

40

[項目2]

各第2の層が、テレフタレートモノマー単位とエチレングリコールモノマー単位とを含むポリエステルを含む、項目1に記載の多層フィルム。

[項目3]

前記第1及び第2の層の各々が500nm未満の平均厚さを有し、前記第1及び第2の層の数が合計で少なくとも50である、項目1に記載の多層フィルム。

[項目4]

可視光ミラーフィルム、赤外線ミラーフィルム、反射偏光子、又はノッチ光学フィルタである、項目3に記載の多層フィルム。

[項目5]

50

実質的に垂直入射する非偏光状態の光に対して、少なくとも80パーセントの光透過率を有する、項目1に記載の多層フィルム。

[項目6]

前記第1及び第2の層が、厚さ方向に沿って交互になっている、項目1に記載の多層フィルム。

[項目7]

前記第1及び第2の層と共に厚さ方向に沿って配置されたポリマーの複数の第3の層を更に含む、項目1に記載の多層フィルム。

[項目8]

前記複数の第1及び第2の層上に配置された複数の交互のポリマー層を更に含む、項目1に記載の多層フィルム。

10

[項目9]

実質的に垂直入射する非偏光状態の光に対し少なくとも450nmから650nmまで広がる波長範囲にわたって少なくとも70パーセントの平均光透過率、及び実質的に垂直入射する非偏光状態の光に対し少なくとも900nmから1000nmまで広がる波長範囲にわたって50%以下の平均光透過率を有する、項目8に記載の多層フィルム。

[項目10]

前記少なくとも1つのポリマーが前記第1のポリマーとブレンドされた前記第1のポリマーとは異なる第2のポリマーを更に含み、前記第2のポリマーが(メタ)アクリル酸モノマー単位を含む、項目1に記載の多層フィルム。

20

[項目11]

ガラス層と、前記ガラス層上に配置された項目1~10のいずれか一項に記載の多層フィルムとを含む、光学スタック。

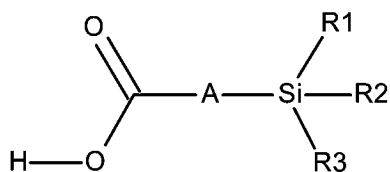
[項目12]

第1の層と、前記第1の層上に配置された複数の交互のポリマー層とを含む多層フィルムであって、前記第1の層が、

少なくとも1つのポリマーであって、(メタ)アクリル酸モノマー単位を含む第1のポリマーを含む、少なくとも1つのポリマーと、

前記少なくとも1つのポリマー中に分散された金属酸化物ナノ粒子であって、式1：

【化2】



式1

30

[式中、

R1は、C₁~C₁₀アルコキシ基であり、

40

R2及びR3は、独立して、C₁~C₁₀アルキル基及びC₁~C₁₀アルコキシ基からなる群から選択され、

Aは、C₁~C₁₀アルキレン基又はアリーレン基、C₁~C₁₀アラルキレン基、C₂~C₁₆ヘテロアルキレン基又はヘテロアリーレン基、及びC₂~C₁₆アミド含有基からなる群から選択されるリンカー基である]のカルボン酸シランを含む表面改質剤で表面改質されている、金属酸化物ナノ粒子とを含む、多層フィルム。

[項目13]

第2の層と、前記第1及び第2の層の間に配置された少なくとも1つの下位群をなす前記複数の交互のポリマー層とを更に含み、前記第2の層が少なくとも1つのポリマーを含み、前記第2の層の前記少なくとも1つのポリマーが(メタ)アクリル酸モノマー単位を

50

含む第 1 のポリマーを含む、項目 1 2 に記載の多層フィルム。

[項目 1 4]

前記第 2 の層が前記第 2 の層の前記少なくとも 1 つのポリマー中に分散された金属酸化物ナノ粒子を更に含み、前記第 2 の層の前記金属酸化物ナノ粒子がカルボン酸シラン表面改質剤で表面改質されている、項目 1 3 に記載の多層フィルム。

[項目 1 5]

前記交互のポリマー層が交互の第 1 及び第 2 の干渉層を含み、各第 1 の干渉層が少なくとも 1 つのポリマーを含み、前記第 1 の干渉層の前記少なくとも 1 つのポリマーが(メタ)アクリル酸モノマー単位を含むポリマーを含み、各第 2 の干渉層が配向ポリエステルを含む、項目 1 2 に記載の多層フィルム。

10

【 図面 】

【 図 1 】

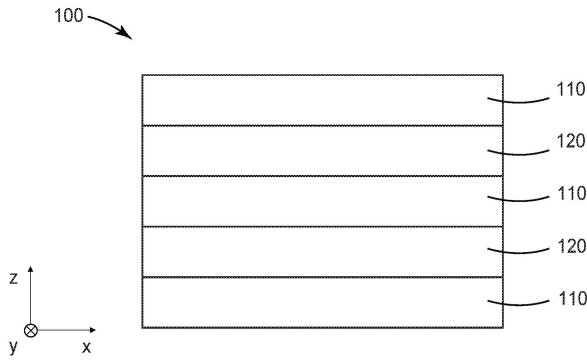


FIG. 1

【 図 2 】

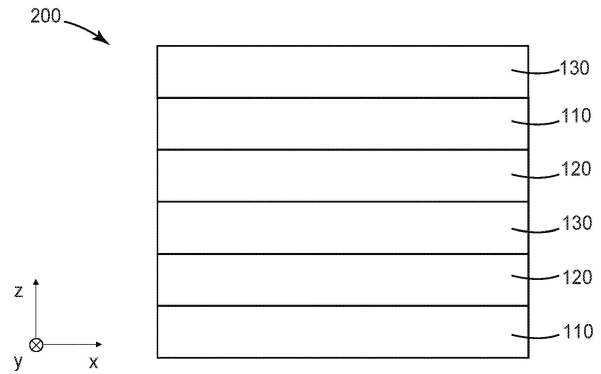


FIG. 2

20

【 図 3 】

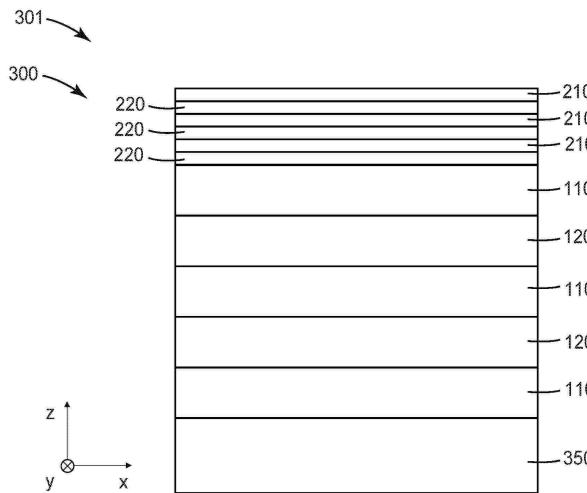


FIG. 3

【 図 4 】

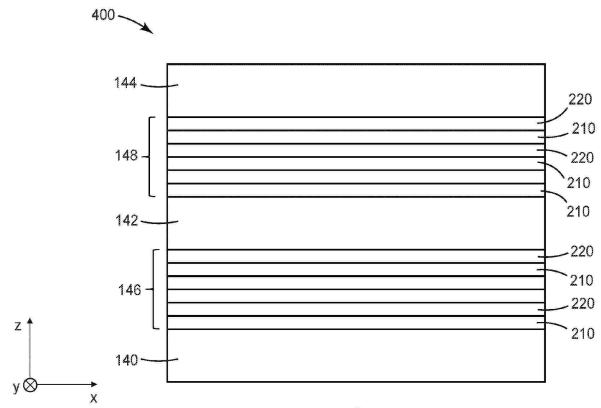


FIG. 4

30

40

50

【 図 5 】

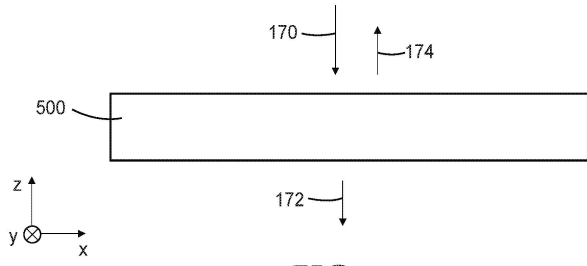


FIG. 5

【 図 6 】

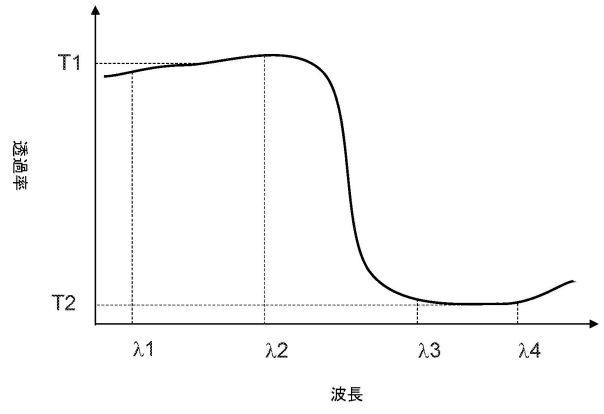


FIG. 6

【 図 7 】

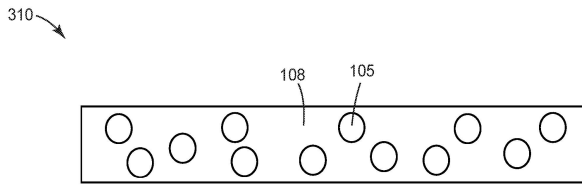


FIG. 7

10

20

30

40

50

フロントページの続き

(72)発明者 コンドウ, ピーター ディー .
アメリカ合衆国, ミネソタ州 5 5 1 3 3 - 3 4 2 7, セント ポール, ポスト オフィス ボックス
3 3 4 2 7, スリーエム センター

(72)発明者 トンプソン, ディヴィッド スコット .
アメリカ合衆国, ミネソタ州 5 5 1 3 3 - 3 4 2 7, セント ポール, ポスト オフィス ボックス
3 3 4 2 7, スリーエム センター

審査官 酒井 康博

(56)参考文献 国際公開第 2 0 1 7 / 0 1 5 8 8 5 (W O , A 1)
特開 2 0 0 2 - 2 4 1 5 8 3 (J P , A)
特開 2 0 1 7 - 0 9 7 3 8 1 (J P , A)
国際公開第 2 0 1 4 / 0 2 5 7 6 2 (W O , A 1)
特開 2 0 1 8 - 0 2 4 7 1 7 (J P , A)
特開 2 0 1 4 - 0 7 1 4 1 9 (J P , A)
特開 2 0 1 6 - 1 0 3 0 1 5 (J P , A)
米国特許出願公開第 2 0 1 9 / 0 1 1 2 7 1 4 (U S , A 1)
特開 2 0 0 8 - 1 0 5 9 1 9 (J P , A)
特開 2 0 1 9 - 0 1 9 2 3 2 (J P , A)

(58)調査した分野 (Int.Cl., D B 名)
B 3 2 B 1 / 0 0 - 4 3 / 0 0
C 0 8 K 3 / 0 0 - 1 3 / 0 8
C 0 8 L 1 / 0 0 - 1 0 1 / 1 6
C A p l u s / R E G I S T R Y (S T N)