

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6125541号
(P6125541)

(45) 発行日 平成29年5月10日(2017.5.10)

(24) 登録日 平成29年4月14日(2017.4.14)

(51) Int.Cl.		F I	
CO8L	23/08	(2006.01)	CO8L 23/08
CO8L	23/26	(2006.01)	CO8L 23/26
CO8K	3/22	(2006.01)	CO8K 3/22
CO8K	3/30	(2006.01)	CO8K 3/30
CO8K	3/32	(2006.01)	CO8K 3/32

請求項の数 8 (全 22 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2014-558921 (P2014-558921)	(73) 特許権者	390023674
(86) (22) 出願日	平成25年2月25日(2013.2.25)		イー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・
(65) 公表番号	特表2015-513586 (P2015-513586A)		アンド・カンパニー
(43) 公表日	平成27年5月14日(2015.5.14)		E. I. DU PONT DE NEMO
(86) 国際出願番号	PCT/US2013/027583		URS AND COMPANY
(87) 国際公開番号	W02013/126867		アメリカ合衆国デラウェア州19805.
(87) 国際公開日	平成25年8月29日(2013.8.29)		ウィルミントン、センターロード974.
審査請求日	平成28年2月16日(2016.2.16)		ピー・オー・ボックス2915、チェスナ
(31) 優先権主張番号	61/602,920	(74) 代理人	100092093
(32) 優先日	平成24年2月24日(2012.2.24)		弁理士 辻居 幸一
(33) 優先権主張国	米国 (US)	(74) 代理人	100082005
			弁理士 熊倉 禎男
		(74) 代理人	100084663
			弁理士 箱田 篤

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 半透明白色ポリマー組成物ならびにガラス積層体および他の物品におけるその使用

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

顔料と、エチレン酸コポリマーまたは前記エチレン酸コポリマーのアイオノマーとを含む半透明白色ポリマー組成物であって；

前記顔料の屈折率が $1.5 \sim 1.8$ であり；

前記顔料はさらに、最小平均径 380 nm 、メジアン粒径 (d_{50}) $0.2 \text{ }\mu\text{m}$ 未満で、アスペクト比が1に近い粒子から実質的になり；

半透明白色アイオノマー組成物のサンプルは、透過率が 90% 未満であり；ヘイズが $75 \sim 100\%$ であり； L^* 値が 80 より高く、 a^* 値が $-0.2 \sim -1.6$ の範囲であり、 b^* 値が $0.8 \sim 4.0$ の範囲である、半透明白色ポリマー組成物。

10

【請求項2】

顔料と、エチレン酸コポリマーまたは前記エチレン酸コポリマーのアイオノマーとを含む半透明白色ポリマー組成物であって；

前記顔料が、アルミナ三水和物及びアルミナからなる群から選択され；

前記顔料のメジアン粒径 (d_{50}) が $1 \sim 4 \text{ }\mu\text{m}$ であり、

前記半透明白色アイオノマー組成物のサンプルは、透過率が 90% 未満であり；ヘイズが $75 \sim 100\%$ であり； L^* 値が 80 より高く、 a^* 値が $-0.2 \sim -1.6$ の範囲であり、 b^* 値が $0.8 \sim 4.0$ の範囲である、半透明白色ポリマー組成物。

【請求項3】

前記エチレン酸コポリマーが、エチレンの共重合単位と；アクリル酸、メタクリル酸、

20

またはアクリル酸とメタクリル酸との組み合わせの共重合単位 8 ~ 30 重量%とを含み；1種以上の不飽和カルボン酸の誘導体からなる群から選択される1種以上の追加のコモノマーの共重合単位であって、前記不飽和カルボン酸の炭素数が2 ~ 10であり、前記誘導体が酸無水物、アミドおよびエステルからなる群から選択される追加のコモノマーの共重合単位とを含んでもよい、請求項1または2に記載の半透明白色ポリマー組成物。

【請求項4】

前記アイオノマーを含み、前記エチレン酸コポリマーの全カルボン酸含有量に基づき前記カルボン酸基の 5 % ~ 90 % が中和されている、請求項1または2に記載の半透明白色ポリマー組成物。

【請求項5】

厚さ 1.6 mm の前記半透明白色ポリマー組成物のサンプルは、透過率が 56 % ~ 75 % であり；ヘイズが 90 % ~ 100 % であり；透明度が 10 ~ 30 % である、請求項1または2に記載の半透明白色ポリマー組成物。

【請求項6】

厚さ 1.6 mm の前記半透明白色ポリマー組成物のサンプルは、透過率が 80 % ~ 90 % であり；ヘイズが 75 % ~ 85 % であり；透明度が 70 % ~ 86 % である、請求項1または2に記載の半透明白色ポリマー組成物。

【請求項7】

請求項1または2に記載の半透明白色ポリマー組成物を含む成形品。

【請求項8】

中間層を含むガラス積層体であって、前記中間層が請求項1または2に記載の半透明白色ポリマー組成物を含むガラス積層体。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

関連出願の相互参照

本願は、米国特許法第119条の下に、2012年2月24日に出願された米国仮特許出願第61/602,920号明細書の優先権を主張し、この文献は参照によりその内容全体が本明細書に援用される。

【0002】

本発明は、半透明白色ポリマー組成物に関する。特に、本組成物は、顔料と、エチレン酸コポリマーのアイオノマーであるポリマー樹脂とを含む。アルミナ三水和物 (ATH) は好ましい顔料の1つである。アルミナは別の好ましい顔料である。半透明白色ポリマー組成物は、成形品などの様々な物品に有用である。半透明白色ポリマー組成物は、安全ガラス積層体および構造用ガラス積層体を含む、ガラス積層体の中間層として特に有用である。

【背景技術】

【0003】

本発明が関係する技術分野の状況についてより十分に説明するために、幾つかの特許および刊行物を本明細書に引用する。これらの特許および刊行物のそれぞれの開示内容全体が参照により本明細書に援用される。

【0004】

建築家や設計者は、空間に光を取り入れると共に、その空間内にいる人にプライバシーを提供するために、フロストガラスを使用することが多い。平滑で透明なガラス板 (Lites) からフロストガラスを製造する方法には、サンドブラストおよび酸エッチングの2つがある。しかし、フロストガラスは、清浄化および維持が困難である。さらに、サンドブラストおよび酸エッチングは、廃棄物が多く、酸の取り扱いによる火傷やサンドブラストにより生じる塵埃の吸入による珪肺のリスクがあるため、医学的にまたは環境に優しい方法ではない。そのため、拡散性半透明中間層を有する合わせガラスが開発された。中間層は所望の光学特性を提供し、清浄化や維持が容易な、平滑なガラス板の間に積層する

10

20

30

40

50

ことができる。拡散性半透明中間層は、ポリビニルブチラール組成物をベースにすることが多い。

【0005】

半透明白色ポリビニルブチラール組成物は、ポリビニルブチラールのどの大手メーカーからも市販されている。典型的には、これらの組成物の光学特性は、約65%の光透過率(LT)；約15~30%の透明度；および95%以上のヘイズを特徴とする。市販のポリビニルブチラール組成物は、炭酸カルシウムを拡散剤として含む。所望の半透明外観を達成するために、0.76mmの厚さまたは厚みを有する中間層シートは、粒径約3.5ミクロンの炭酸カルシウムを約2.5重量%含有する。

【0006】

特定の構造用途または高強度用途には、DuPont(商標) Sentry Glass(登録商標)などのアイオノマー中間層の優れた機械的特性が必要とされる。これらの構造用途としては、例えば、階段、バルコニーおよび手摺りなどの建築部材、ならびに、悪天候または物理的攻撃により生じる損傷を受けやすい窓および天窓が挙げられる。

【0007】

さらにこれに関連して、アイオノマー製の様々な物品が日常生活で使用されている。これらの物品は、例えば、射出成形法で製造することができ、これらの物品としては、容器、蓋または栓、トレイ、医療用デバイスまたは機器、ハンドル、ノブ、押しボタン、パネル、コンソールボックス、履物の構成要素、小立像または他の装飾品などの品目、および、プリフォームまたはパリソンなどの中間品が挙げられる。DuPont(商標) Surllyn(登録商標)は、前述および他の物品の製造に使用されてきたアイオノマー材料の1種であるが、その理由は、Surllyn(登録商標)の物理的特性および光学特性が多く、熱可塑性材料のものより優れているからである。

【0008】

さらに、エッチング加工ガラス、すりガラスまたはフロストガラスに関連する光学特性はまた、これらの日用品にも望ましいと考えることができる。Surllyn(登録商標)のものと類似の特性を有する半透明白色ポリマー組成物は、所望の外観および物理的特性を有する物品を提供する。さらに、好適な半透明白色ポリマー組成物を使用すると、所望のフロストガラスの外観を得るために、特殊な型を使用して製造するまたは物品の表面を溶媒もしくは研磨材で処理する必要がなくなる。

【0009】

前述のように、炭酸カルシウムは、市販の半透明ポリビニルブチラール組成物に一般的に使用されている拡散剤である。しかし、炭酸カルシウムを好適なアイオノマー樹脂に配合すると、アイオノマーと炭酸カルシウムとの化学反応により生成するガスのため、顕著な発泡が認められることが多い。

【0010】

別の一般的に使用されている白化剤(whitening agent)は、二酸化チタンである。しかし、ガラス積層体がポリビニルブチラール中間層を含むか、またはアイオノマー中間層を含むかどうかにかかわらず、二酸化チタンの平均粒径は所望の光学的效果を達成するには小さ過ぎる。より具体的には、中間層に二酸化チタンを添加すると、その光透過率は低下するが透明度は低下しない。従って、プライバシーを提供するという重要な設計機能は達成されない。

【0011】

炭酸カルシウムの屈折率と同等の比較的低い屈折率を有する他の顔料が使用可能である。例えば、シリカ、アルミナ、タルク、粘土、パーミキュライト、ガラス繊維、硫酸バリウム、アルミナ三水和物(ATH)、アルミナ(Al_2O_3)、酸化マグネシウム(ペリクレーズ)、アルミン酸ベリリウム、硫酸カルシウム、リン酸亜鉛四水和物およびムライトが、充填剤としてアイオノマー組成物に使用されてきた。実際、難燃性を達成するために、アルミナ三水和物(ATH)がアイオノマーに、ほぼATH65部対樹脂100部の高添加量で配合されてきた。Handbook of Fillers for Plas

10

20

30

40

50

tics Harry S. Katz and John Milewski, eds. Springer, 1988 pg. 296 (ISBN 978-0-442-26024-8)。しかし、得られる組成物は不透明であり、半透明ではない。さらに、ATHをアイオノマーに添加すると、配合された組成物中にかなりの量のゲルが形成されることが知られている。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0012】

成形品に使用できる半透明白色ポリマー組成物が必要とされていることが、前述から明らかである。さらに、安全ガラス積層体を含むガラス積層体の中間層として、特に、構造用途または優れた強度もしくは剛性を必要とする他の最終用途に使用される安全ガラス積層体用のアイオノマー中間層として使用するのに好適な半透明白色ポリマー組成物が必要とされていることが明らかである。

10

【課題を解決するための手段】

【0013】

従って、本明細書では、艶消しの外観を有する様々な物品に使用するのに好適な半透明白色ポリマー組成物を提供する。半透明白色ポリマー組成物は、ガラス積層体、例えば、安全ガラス積層体または構造用ガラス積層体の中間層として使用するのに特に好適である。半透明白色ポリマー組成物は、顔料と、エチレン酸コポリマーのアイオノマーを含むポリマー樹脂とを含む。アルミナ三水和物は、好ましい顔料の1つである。アルミナは、別の好ましい顔料である。本明細書では、半透明白色ポリマー組成物を含むガラス積層体などの物品、ならびに半透明白色ポリマー組成物および物品の製造方法もさらに提供する。

20

【発明を実施するための形態】

【0014】

本開示をさらに明確にし、説明するために、本明細書では以下の定義を使用する。これらの定義は、特定の場合において他に限定されない限り、本明細書全体を通して使用される用語に適用される。

【0015】

他に定義しない限り、本明細書で使用される科学技術用語は全て、本発明の属する当該技術分野の当業者により一般的に理解されるのと同じ意味を有する。矛盾がある場合、本明細書に記載の定義を含む本明細書が優先するものとする。

30

【0016】

特定の状況で他に明記しない限り、本明細書で使用されるパーセンテージ、部、および比率等の量は全て重量基準である。

【0017】

材料、方法、または機械類が、「当業者に既知の」、「慣用の」という用語または同義の語もしくは語句と共に本明細書に記載されている場合、その用語は、本願の出願時に慣用されている材料、方法、および機械類がこの記載により包含されることを意味する。また、現在は慣用されていないが、類似の目的に好適であると当該技術分野で認識されているであろう材料、方法、および機械類も包含される。

40

【0018】

本明細書で使用する場合、「含む (comprises)」、「含む (comprising)」、「含む (includes)」、「含む (including)」、「含有する」、「特徴とする」、「有する (has)」、「有する (having)」という用語、またはこれらの用語のその他の任意の変形は、非排他的な包含を含意するものとする。例えば、要素の列記を含むプロセス、方法、物品または装置は、必ずしもそれらの要素だけに限定されるものではなく、明記されていない、またはこのようなプロセス、方法、物品もしくは装置に固有ではないその他の要素も含むことができる。

【0019】

「からなる (consisting of)」という移行句は、請求項に規定されてい

50

ない要素、工程または成分を除外し、請求項が、記載されているもの以外の材料（通常それに付随する不純物を除く）を含まないものとする。「からなる」という句が、プレアンブルの直後ではなく、請求項の本体部の条項に現れる場合、それは、その条項に記載されている要素を限定するに過ぎず；他の要素は全体として請求項から除外されない。

【0020】

「から実質的になる（*consisting essentially of*）」という移行句は、請求項の範囲を、規定された材料または工程および請求される発明の基本的および新規な特徴に実質的に影響を及ぼさないものに限定する。「から実質的になる」請求項は、「からなる」の形式で記載されるクロズドクレームと「含む（*comprising*）」の形式で記載される完全オープンクレームとの間の中間の立場を取る。本明細書に記載の任意選択の添加剤であって、このような添加剤に適切なレベルの添加剤、および少量の不純物は、「から実質的になる」という用語により、組成物から除外されない。

10

【0021】

組成物、プロセス、構造、または、組成物、プロセスもしくは構造の一部が、「含む（*comprising*）」などのオープンエンドの用語を使用して本明細書に記載される場合、特記しない限り、この記載は、組成物、プロセス、構造の要素、または、組成物、プロセスもしくは構造の一部の要素「から実質的になる」または「からなる」実施形態も含む。

【0022】

さらにこれに関連して、理解し易くするために、個別の実施形態に関して本明細書に記載されている本発明の特定の特徴は、単一の実施形態で組み合わせて提供することもできる。逆に、簡潔にするために、単一の実施形態に関して記載されている本発明の様々な特徴は、個別にまたは任意の部分的組み合わせ（*sub-combination*）で提供することもできる。

20

【0023】

「1つの（*a*）」および「1つの（*an*）」という冠詞は、本明細書に記載の組成物、プロセスまたは構造の様々な要素および構成成分に関連して使用することができる。これは、単に便宜上、且つ組成物、プロセスまたは構造の一般的な意味を与えるために使用される。このような記載は、要素または構成成分の「1つまたは少なくとも1つ」を含む。さらに、本明細書で使用する場合、単数形の冠詞はまた、複数形が除外されることが特定の文脈から明らかでない限り、複数の要素または構成成分の記載も含む。

30

【0024】

さらに、特記しない限り、「または」という接続詞は、包括的なまたはを指し、排他的なまたはを指すものではない。例えば、「AまたはB」という条件を満足するのは、次：Aが真であり（または存在し）且つBが偽である（または存在しない）、Aが偽であり（または存在しない）且つBが真である（または存在する）、およびAとBの両方が真である（または存在する）のいずれか1つである。排他的な「または」は、本明細書では、例えば、「AまたはBのいずれか」および「AまたはBの一方」などの用語により示される。

【0025】

「約」という用語は、量、寸法、処方、パラメータ、ならびに他の量および特性が、正確ではなく且つ正確である必要がなく、公差、変換率、数値の丸め、および測定誤差等、ならびに当業者に既知の他の因子を反映して、近似的であってもよいおよび/または必要に応じて大きくてもよいまたは小さくてもよいことを意味する。一般的に、量、寸法、処方、パラメータ、または他の量もしくは特性は、そのように明記されているか否かにかかわらず、「約」または「近似」である。

40

【0026】

さらに、本明細書に記載されている範囲は、特記しない限り、それらの端点を含む。さらに、量、濃度、または他の値もしくはパラメータが、ある範囲、1つ以上の好ましい範囲、または、好ましい上限値および好ましい下限値の列記として記載される場合、これは

50

、任意の範囲上限または好ましい上限値と、任意の範囲下限または好ましい下限値との任意の対から形成される全ての範囲を、このような対が個別に開示されているかどうかにかかわらず、具体的に開示しているものと理解すべきである。本発明の範囲は、範囲を定義するときに記載される特定の値に限定されるものではない。

【0027】

本明細書で、単独で、または、例えば、「アルコキシ基」のように組み合わせた形態で使用される「アルキル基」という用語は、1個の置換基を有する炭素数1～8の、分岐鎖であってもまたは非分岐鎖であってもよい飽和炭化水素基を指す。「アルキレン」という用語は、メチレン、エチレンまたはプロピレンなどの、2個の置換基を有する飽和炭化水素を指す。

10

【0028】

本明細書で使用する場合、「コポリマー」という用語は、2種以上のモノマーの共重合により得られる共重合単位を含むポリマーを指す。これに関連して、本明細書では、コポリマーを、その構成成分であるモノマーに関して、または、その構成成分であるモノマーの量に関して、例えば、「エチレンと、アクリル酸18重量%とを含むコポリマー」または類似の記載のように、記載することがある。このような記載は、それが、共重合単位としてのモノマーに言及していないという点；それが、コポリマーに関する慣用的な命名法、例えば、国際純正・応用化学連合(International Union of Pure and Applied Chemistry)(IUPAC)の命名法を含まないという点；それが、プロダクト・バイ・プロセスの用語法を使用していないという点；または別の理由で、非公式であると見なされることがある。しかし、本明細書で使用する場合、その構成成分であるモノマーに関する、またはその構成成分であるモノマーの量に関するコポリマーの記載は、そのコポリマーが、規定されたモノマーの共重合単位を(規定されている場合、規定された量で)含有することを意味する。当然の帰結として、コポリマーは、限られた状況でそのように明記されていない限り、所定のモノマーを所定の量で含有する反応混合物の生成物ではないということになる。「コポリマー」という用語は、2種類の異なるモノマーの共重合単位から実質的になるポリマー(ジポリマー)、または3種類以上の異なるモノマーから実質的になるポリマー(3種類の異なるモノマーから実質的になるターポリマー、4種類の異なるモノマーから実質的になるテトラポリマーなど)を指すことができる。

20

30

【0029】

「酸コポリマー」という用語は、 α -オレフィンと、 β -エチレン性不飽和カルボン酸と、任意選択により他の好適なモノマー、例えば、 α -エチレン性不飽和カルボン酸エステルとの共重合単位を含むポリマーを指す。

【0030】

「アイオノマー」という用語は、前述の酸コポリマーを部分的にまたは完全に中和することにより生成するポリマーを指す。

【0031】

本明細書で、単独で、または、例えば、「積層された(laminated)」または「積層(lamination)」などの組み合わせた形態で使用される「積層体(laminated)」という用語は、任意選択により熱、真空、または正圧を使用して、互いにしっかりと接着または結合されている少なくとも2層を有する構造を指す。層は、互いに直接または間接的に接着されてもよい。「直接」は、2層の間に、中間層または接着層などの追加の材料が存在しないことを意味し、「間接的に」は、2層の間に追加の材料が存在することを意味する。

40

【0032】

「ガラス積層体」という用語は、本明細書で使用する場合、ポリマー中間層を含む積層構造を指す。この構造はまた1枚以上のガラスシートも含む。ガラス積層体の層は、ガラス積層体が、自立状態でその一体性を保つように、互いに接着または結合されている。

【0033】

50

「安全ガラス積層体」という用語は、本明細書で使用する場合、従来、安全ガラスに関連する特性、例えば、高い透明度、粉碎した破片が中間層により保持されるようなガラスに対する十分な接着力、および約3メートルの高さでの重力加速度により生じる速度で移動する物体による貫通または穿孔に対する耐性の1つ以上を有するガラス積層体を指す。

【0034】

「構造用ガラス積層体」という用語は、本明細書で使用する場合、優れた特性を有する、例えば、弾道速度で移動する物体による貫通もしくは穿孔に耐えることができるまたはインタクテナガラスシートによる支持がなくてもその構造的な一体性を維持することができる中間層を有する安全ガラス積層体の部分集合を指す。

【0035】

本明細書では光学特性に関する幾つかの用語を使用する。「透過度」という用語は、本明細書で使用する場合、「T」と省略され、Handbook of Optics, Volume 2 Devices, Measurements and Properties 2nd Edition Optical Society of America, Michael Bass (editor) McGraw Hill 1995, pg 25.3, ISBN 0-07-047974-7 に定義されている。

【0036】

「透過率」および「光透過率」という用語ならびに「LT」という略語は同義であり、本明細書では互換的に使用される。材料の透過率は、材料に照射される入射ビーム（「入射光」）のうち、材料を通して移動し、材料から出る時に入射ビームの方向のベクトル成分を有する方向に移動する光の総量のパーセンテージである。透過光の量は、測定される材料により反射、吸収、および後方に散乱される透過光がある場合、その光の量だけ、入射光の総量と比較して低減する。透過率は、Columbia, MDのBYK-Gardner USAから入手可能なHazeGard Plusヘイズメータを使用し、ASTM法、番号D1003(2000)に準拠して測定される。

【0037】

「ヘイズ」という用語は、本明細書で使用する場合、材料を通過する際に、入射ビームからそれる角度が2.5°より大きい透過光のパーセンテージを指す。ヘイズは、HazeGard Plusヘイズメータを使用し、ASTM法、番号D1003(2000)に準拠して測定される。

【0038】

「透明度」という用語は、本明細書で使用する場合、材料を通過する際に、入射ビームからそれるが、それる角度が2.5°未満である透過光のパーセンテージに関する。透明度もHazeGard Plusヘイズメータを使用して測定される。

【0039】

さらに、透明度に関連して、散乱されない光（それる角度が0°であり、「正透過光」とも称される）は、低角度散乱光の量に含まれない。明らかに、高い透明度は、散乱される光の量が少ないことを意味する。代数的に記載すると、パーセンテージとしての透明度は、 $100(1 - (\text{低角度散乱光の量}) / (\text{透過光の総量}))$ と定義される。さらに、透過光の総量は、正透過光、高角度散乱光（ヘイズ）および低角度散乱光の合計である。

【0040】

最後に、「L*」、「a*」、および「b*」という用語は、測色値を報告するための三次元系の軸を指す。「L*a*b*」値は、バージニア州レストン(Reston)のHunter Labから入手可能なHunter Lab Ultrascan XE分光光度計を使用し、CIE Publication 15.2(1986)に準拠して測定される。

【0041】

本明細書では顔料と、ポリマー樹脂とを含む半透明白色ポリマー組成物を提供する。ポリマー樹脂は、エチレン酸コポリマーのアイオノマーを含む。

【0042】

10

20

30

40

50

好適な顔料は、アルミナ三水和物 (ATH)、アルミナ (Al_2O_3)、酸化マグネシウム (ペリクレーズ)、アルミン酸ベリリウム、硫酸カルシウム、リン酸亜鉛四水和物およびムライトを単独、または TiO_2 などのその他の白色顔料 (white pigment) との組み合わせのいずれかで含む。好適な顔料の屈折率は、約 1.5 ~ 約 2.8、好ましくは約 1.5 ~ 約 1.8 である。

【0043】

好適な顔料粒子は、可視光を散乱することができる。そのため、好適な顔料粒子の最小平均径は、可視光の波長と同程度の大きさ、即ち、約 380 ~ 720 nm である。半透明白色ポリマー組成物の外観は望ましくは均一であり、フロストガラスの外観に類似しているため、個々の顔料粒子は肉眼で視認可能であってはならない。そのため、好適な顔料粒子の最大メジアン径 (d_{50}) は、約 0.2 μm である。好ましくは、顔料のメジアン粒径 (d_{50}) は、約 1 ミクロン ~ 約 4 ミクロン；より好ましくは約 1.5 ~ 約 3.0 ミクロン、さらにより好ましくは約 1.5 ミクロンである。「メジアン粒径」という用語は、本明細書で使用する場合、顔料供給業者により報告されている値を指す。好ましくは、顔料粒子のアスペクト比は 1 に近い；換言すれば、顔料粒子は好ましくは形状がほぼ正多面体から球状である。より好ましくは、粒子のアスペクト比は、 1.00 ± 0.75 ； 1.00 ± 0.50 ； 1.00 ± 0.25 ； 1.00 ± 0.10 ；または 1.00 ± 0.05 の範囲である。

【0044】

これらの物理的および光学的基準を満たす顔料の例としては、アルミナ三水和物、アルミナ、タルク、二酸化チタン、硫酸バリウム、シリカ、幾つかの粘土、およびこれらの顔料の 2 種以上の組み合わせが挙げられる。アルミナ、およびアルミナと他の顔料との組み合わせが好ましい。より好ましいのは、アルミナ三水和物 ($Al(OH)_3$ ；CAS 番号 8064-00-4)、およびアルミナ三水和物と他の顔料、例えば、二酸化チタンなどのとの組み合わせである。さらにより好ましくは、顔料は、アルミナまたはアルミナ三水和物から実質的になる。アルミナ三水和物 (ATH) という用語は、本明細書で使用する場合、水酸化アルミニウム (III)、水和アルミナ、アルミニウム三水和物、三水和アルミナ、およびトリヒドロキシアルミニウムという用語と同義であり、互換性がある。

【0045】

半透明白色ポリマー組成物はまた、エチレン酸コポリマー、エチレン酸コポリマーのアイオノマー、およびこれらの組み合わせを含むポリマー樹脂も含む。好適なエチレン酸コポリマーおよびアイオノマーは、例えば、Bennisonらに発行された米国特許第 7,641,965 号明細書に記載されている。しかし、簡潔には、エチレン酸コポリマーは、炭素数 2 ~ 10 の α -オレフィンの共重合単位と、炭素数 3 ~ 8 の β -エチレン性不飽和カルボン酸の共重合単位約 8 ~ 約 30 重量%、好ましくは約 15 ~ 約 30 重量%、より好ましくは約 20 ~ 約 30 重量%、さらにより好ましくは約 20 ~ 約 25 重量%、またはさらにより好ましくは約 21 ~ 約 23 重量%とを含む。重量パーセンテージは、エチレン酸コポリマーの全重量に基づく。好ましくは、 α -オレフィン、 β -エチレン性不飽和カルボン酸は、アクリル酸、メタクリル酸、またはアクリル酸とメタクリル酸との組み合わせを含む。より好ましくは、 β -エチレン性不飽和カルボン酸は、アクリル酸、メタクリル酸、またはアクリル酸とメタクリル酸との組み合わせから実質的になる。

【0046】

エチレン酸コポリマーは、炭素数 2 ~ 10 もしくは好ましくは炭素数 3 ~ 8 の不飽和カルボン酸またはこれらの誘導体などの、他のモノマーの共重合単位をさらに含み得る。好適な酸誘導体としては、酸無水物、アミド、およびエステルが挙げられる。エステルは、好ましい誘導体である。好ましくはエステルは、 β -エチレン性不飽和カルボン酸エステルモノマーであり、これには、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸イソプロピル、アクリル酸ブチルおよびこれらの組み合わせが挙げられるが、これらに

10

20

30

40

50

限定されるものではない。

【0047】

エチレン酸コポリマーは、任意の好適な重合法により合成することができる。例えば、エチレン酸コポリマーは、米国特許第3,404,134号明細書；米国特許第5,028,674号明細書；米国特許第6,500,888号明細書；および米国特許第6,518,365号明細書に記載のように重合することができる。

【0048】

好ましくは、エチレン酸コポリマーのメルトインデックス(MI)は、ASTM法D1238により190 および2.16kgで測定した場合、約60g/10分以下、より好ましくは約45g/10分以下、さらにより好ましくは約30g/10分以下、またはさらにより好ましくは約25g/10分以下、またはさらにより好ましくは約10g/10分以下である。

10

【0049】

幾つかの好適なエチレン酸コポリマー樹脂が、デラウェア州ウィルミントン(Wilmington)のE. I. du Pont de Nemours and Company(「DuPont」)からNucrel(登録商標)の商標で市販されている。

【0050】

好ましくは、半透明白色ポリマー組成物は、エチレン酸コポリマーのアイオノマーまたはこれらのアイオノマーの混合物を含むポリマー樹脂を含む。アイオノマーを得るために、エチレン酸コポリマーのカルボン酸部分の少なくとも一部を中和してカルボキシレート基を形成する。好ましくは、エチレン酸コポリマーの全カルボン酸含有量に基づき、カルボン酸基の約5～約90%、より好ましくは約10～約50%、さらにより好ましくは約20～約50%、またはさらにより好ましくは約20～約35%を中和する。エチレン酸コポリマーを中和するのに好適な手順の一例は、米国特許第3,404,134号明細書にも記載されている。

20

【0051】

アイオノマーは、カルボキシレートアニオンに対する対イオンとしてカチオンを含む。好適なカチオンとしては、アイオノマー組成物を合成、処理および使用する条件下で安定な、正電荷を有する任意の種が挙げられる。好ましくは、カチオンは、1価、2価、3価、または多価であってもよい金属カチオンである。異なるイオン価を有してもよい2種以上のカチオンの組み合わせ、例えば、 Na^+ と Zn^{2+} との混合物または NH_4^+ と K^+ との混合物も好適である。カチオンは、より好ましくは1価または2価の金属イオンである。さらにより好ましくは、金属イオンは、ナトリウム、リチウム、マグネシウム、亜鉛、およびカリウムのイオンならびにこれらの2種以上の組み合わせからなる群から選択される。さらにより好ましくは、金属イオンは、ナトリウムイオン、亜鉛イオンおよびこれらの組み合わせからなる群から選択される。さらにより好ましくは、金属イオンは、ナトリウムイオンを含むまたはそれから実質的になる。

30

【0052】

アイオノマーのMIは、ASTM法D1238により190 および2.16kgで測定した場合、好ましくは約10g/10分以下、より好ましくは約5g/10分以下、またはさらにより好ましくは約3g/10分以下、約1.0g/10分以下、約0.5g/10分以下、約0.2g/10分以下、または約0.1g/10分以下である。アイオノマーの曲げ弾性率はまた、ASTM法D790(手順A)により測定した場合、好ましくは約40,000psi(276MPa)より大きく、より好ましくは約50,000psi(345MPa)より大きく、またはさらにより好ましくは約60,000psi(414MPa)より大きい。

40

【0053】

幾つかの好適なアイオノマー樹脂は、DuPontから、Surllyn(登録商標)樹脂およびSentryGlas(登録商標)中間層シートの商標で市販されている。

【0054】

50

半透明白色ポリマー組成物中の顔料の量は、透過度、ヘイズ、透明度および色を含む、所望の光学特性を達成するのに必要なレベルによって決まる。必然的に、所望の光学特性を達成するのに必要な顔料の量は、特性が測定される半透明白色ポリマー組成物の部分の厚さによって変わる。さらに、ある顔料を別の顔料の代わりに使用する場合、光学特性の望ましいバランスを達成するのに必要な、2つの顔料のレベルは異なり得る。異なる粒径、アスペクト比または屈折率などの顔料間の差異 (variations) は、ポリマーブレンドの光学特性に影響を及ぼす。しかし、概して、規定されていない顔料が配合されている厚さ約 0.64 mm のサンプルでは、半透明白色ポリマー組成物は、半透明白色ポリマー組成物の全重量に基づき、顔料約 1.0 ~ 約 10.0 重量%と、ポリマー樹脂約 99 ~ 約 90 重量%とを含有し得る。

10

【0055】

半透明白色ポリマー組成物は、当該技術分野で既知の他の任意の好適な添加剤をさらに含み得る。このような添加剤としては、可塑剤、加工助剤、流動性向上剤、潤滑剤、顔料、染料、難燃剤、耐衝撃性改良剤、造核剤、ブロッキング防止剤 (例えば、シリカ)、紫外線安定剤、分散剤、界面活性剤、キレート剤、カップリング剤、接着剤、プライマー、補強剤 (例えば、ガラス繊維)、および、半透明白色ポリマー組成物の光学特性に影響を及ぼさない他の充填剤等を挙げることができるが、これらに限定されるものではない。好適な添加剤、添加レベル、および添加剤をアイオノマー組成物に組み込む方法は、Kirk-Othmer Encyclopedia of Chemical Technology, 5th Edition, John Wiley & Sons (ニュージャージー州 (New Jersey), 2004) に記載されている。

20

【0056】

一般的に、これらの添加剤が存在する場合、これらの添加剤の総量は、半透明白色ポリマー組成物の全重量に基づき、5重量%未満、3重量%未満、2重量%未満、1重量%未満、または0.5重量%未満である。さらに、これらの添加剤が存在する場合、これらの添加剤のそれぞれの量は、好ましくは、半透明白色ポリマー組成物の全重量に基づき、10重量%未満、5重量%未満、3重量%未満、2重量%未満、1重量%未満、0.5重量%未満、0.2重量%未満、または0.1重量%未満である。

【0057】

これに関連して、半透明白色ポリマー組成物は、有機過酸化物、禁止剤および開始剤などの、架橋を引き起こすための添加剤および制御するための添加剤を含有してもよいが、好ましくはそれらを含有しない。しかし、4種類の特に有用な添加剤は、熱安定剤、紫外線吸収剤、ヒンダードアミン光安定剤 (HALS)、およびシランカップリング剤である。架橋剤および4種類の特に有用な添加剤ならびにこれらの添加剤のレベルの好適な例は、米国特許第7,641,965号明細書に詳述されている。

30

【0058】

半透明白色ポリマー組成物は、高パーセンテージの入射光を透過させるが、透過像の鮮明度が低い、エッチング加工ガラスまたはフロストガラスのものに類似の非常に望ましい光学特性を有する。従って、プライバシーおよび周囲光の効率的な使用が維持される。

【0059】

特筆すべき2組の光学特性がある。第1組 (特性組A) では、透過率が僅かに低めで (56 ~ 75%)、ヘイズのレベルが高く、透明度のレベルが低い (10 ~ 30%) 特性のバランスを有する半透明白色ポリマー組成物が得られる。この特性組では、かなりのパーセンテージの入射光が散乱されるが、透過像の鮮明度が低いため十分なレベルのプライバシーが提供される。第2組 (特性組B) では、透過率 (80 ~ 90%)、ヘイズ (75 ~ 85%) および透明度 (70 ~ 86%) が全て比較的高い、特性のバランスを有する半透明白色ポリマー組成物が得られる。この特性組では、入射光が実質的に全部透過されるが、低角度で散乱される光のパーセンテージが比較的低い (透過像の透明度が比較的高い) ということは、提供されるプライバシーが低いことを意味する。これらの特性組のそれぞれにおける半透明白色ポリマー組成物に好適な、好ましい、およびより好ましい光学特性

40

50

値を下記の表 A および表 B に記載する。

【 0 0 6 0 】

【表 1】

表 A

特性組A	好適	好ましい	より好ましい
%T	56~75	60~73	63~70
%H	90~100	95~100	98~100
%C	10~30	12~28	15~25
L*	80~90	82~88	83~86
a*	-0.2~-1.8	-0.4~-1.3	-0.5~-1.0
b*	1.0~4.0	1.5~3.6	2.0~3.2

10

【 0 0 6 1 】

【表 2】

表 B

特性組B	好適	好ましい	より好ましい
%T	80~90	82~88	83~87
%H	75~85	77~83	79~81
%C	70~86	73~83	75~80
L*	85~96	88~95	90~93
a*	-0.8~-1.6	-0.9~-1.5	-1~-1.4
b*	0.8~2	0.9~1.8	1.0~1.6

20

【 0 0 6 2 】

特性組 A および特性組 B の値は、像を透過させる半透明白色ポリマー組成物のサンプルの厚さと無関係である。例えば、厚さ 1.6 mm の中間層で特性組 A を達成するために、メジアン粒径 1.5 ~ 4.5 ミクロンの A T H の量は約 3.0 重量%である。厚さ 0.63 mm の中間層で特性組 A を達成するために、メジアン粒径 1.5 ~ 4.5 ミクロンの A T H の量は約 6.25 重量%である。同様に、厚さ 1.6 mm の中間層で特性組 B を達成するために、メジアン粒径 1.5 ~ 4.5 ミクロンの A T H の量は約 1.0 重量%である。厚さ 0.63 mm の中間層で特性組 B を達成するために、メジアン粒径 1.5 ~ 4.5 ミクロンの A T H の量は約 2.0 重量%である。

30

【 0 0 6 3 】

しかし、より一般的には、他の顔料および他の厚さを使用して、特性が異なるように調製された半透明白色ポリマー組成物を製造してもよい。例えば、透過率は、顔料の量対層厚にほぼ比例する。透明度は、一般的に、透明度の約 10 パーセントポイントにわたる一定の範囲で、行儀のよい (well-behaved)、顔料レベルの一次関数または二次関数として低下する。所望の透過率および透明度レベルが達成された後、ヘイズは高く、比較的一定となる。

40

【 0 0 6 4 】

半透明白色ポリマー組成物は、熔融混合などの任意の好適な方法により製造することができる。高剪断熔融混合が好ましい。好適な高剪断混合装置としては、スタティックミキサー、ラバーミル、ブラベンダーミキサー (Brabender mixers)、ブスニーダー (Buss kneaders)、単軸押出機、二軸押出機、および加熱または非加熱二本ロール機等が挙げられる。その他の好適な配合法および条件の例は、Kirk-Othmer Encyclopedia および Modern Plastics Encyclopedia, McGraw-Hill (ニューヨーク, 1995) にも記載されている。

【 0 0 6 5 】

50

半透明白色ポリマー組成物は、フィルム、シート、および成形品を含む、幾種類かの物品に形成することができるが、これらに限定されるものではない。成形品は、圧縮成形、射出成形、押出成形、ブロー成形、射出ブロー成形、射出延伸ブロー成形、および押出ブロー成形等の任意の慣用的な成形法により製造することができる。例えば、圧縮成形により形成されたコアを、射出成形によりオーバーモールドする場合などの、これらの方法の2つ以上の組み合わせにより物品を形成することもできる。これらの製造方法に関する情報は、例えば、Kirk Othmer Encyclopedia, Modern Plastics Encyclopedia, McGraw-Hill (ニューヨーク, 1995) または Wiley Encyclopedia of Packaging Technology, 2d edition, A.L. Brody and K.S. Marsh, Eds., Wiley-Interscience (ホーボークン (Hoboken), 1997) などの参考テキストに記載されている。

10

【0066】

1つの代替形態において、本明細書に記載の半透明白色ポリマー組成物を含む物品は、最小厚さ（即ち、物品の最小寸法における厚さ）が少なくとも約1mmの射出成形品である。好ましくは、射出成形品の厚さは、約1mm～100mm、または2mm～100mm、または3～約100mm、または約3～約50mm、または約5～約35mmであってもよい。

【0067】

別の代替形態において、物品は、オーバーモールド品などの多層構造の形態の射出成形品である。多層構造の少なくとも1層は、前述の半透明白色ポリマー組成物を含みまたはそれから実質的になり、その層の最小厚さは少なくとも約1mmである。好ましくは、多層物品の少なくとも1層は、厚さ約1mm～100mm、または2mm～100mm、または約3～約100mm、または約3～約50mm、または約5～約35mmである。

20

【0068】

さらに別の代替形態において、物品は、シート、容器（例えば、ボトルまたはボウル）、蓋または栓（例えば、容器用）、トレイ、医療用デバイスまたは機器（例えば、自動または可搬型除細動装置）、ハンドル、ノブ、押しボタン、装飾品、パネル、コンソールボックス、または履物の構成要素（例えば、ヒールカウンター、つま先の詰め物、または靴底）の形態の射出成形品である。物品は、半透明白色ポリマー組成物を含むまたはそれから実質的になる。

30

【0069】

さらに別の代替形態において、物品は、さらなる整形プロセスに使用される射出成形中間品である。例えば、物品は、容器（例えば、化粧料容器）を形成するためのブロー成形法に使用するのに好適なプリフォームまたはパリソンであってもよい。射出成形中間品は、前述のものなどの多層構造の形態であってもよく、従って、それは、多層壁構造を有する容器を製造することができる。ここでも、物品は、半透明白色ポリマー組成物を含むまたはそれから実質的になる。

【0070】

射出成形は、周知の成形法である。本明細書に記載の物品が射出成形品の形態である場合、それは、任意の好適な射出成形法により製造することができる。好適な射出成形法としては、例えば、共射出成形およびオーバーモールドが挙げられる。これらの方法は、二個取りまたは多数個取り成形法と称されることもある。

40

【0071】

射出成形品がオーバーモールド法により製造される場合、半透明白色ポリマー組成物を基体材料、オーバーモールド材料またはその両方として使用することができる。特定の物品では、オーバーモールド法を使用する場合、本明細書に記載の半透明白色ポリマー組成物をガラス容器、プラスチック容器または金属容器上にオーバーモールドすることができる。あるいは、半透明白色ポリマー組成物を、他の物品（家庭用品、医療用デバイスまたは機器、電子デバイス、自動車部品、建築構造、スポーツ用品など）の上にオーバーモー

50

ルドし、柔軟な手触りのおよび/または保護用オーバーコーティングを形成することができる。オーバーモールド材料が本明細書に記載の半透明白色ポリマー組成物を含む場合、組成物のメルトインデックスは、ASTM D 1238に準拠し、190 および2.16 kgで測定した場合、好ましくは0.1 g / 10分または0.75 g / 10分または5 g / 10分から約35 g / 10分以下である。

【0072】

例えば、射出ブロー成形、射出延伸ブロー成形および押出ブロー成形などのブロー成形の形態を組み込む製造法では、および半透明白色ポリマー組成物を含む基体または単層物品では、組成物は、好ましくは、亜鉛カチオンを有するアイオノマーを含む。オーバーモールド材料が半透明白色ポリマー組成物を含む場合、組成物は、好ましくはアイオノマーを含み、アイオノマーは任意の好適なカチオンを含んでもよい。また好ましくは、アイオノマーの前駆体である酸コポリマーのメルトインデックスは、ASTM D 1238に準拠し、190 および2.16 kgで測定した場合、好ましくは200 ~ 500 g / 10分である。さらに、アイオノマーのメルトインデックスは、ASTM D 1238に準拠し、190 および2.16 kgで測定した場合、好ましくは約0.1 ~ 約2.0 g / 10分または約0.1 ~ 約35 g / 10分である。より具体的には、基体がアイオノマーを含む場合、アイオノマーのメルトインデックスは、好ましくは約0.5 ~ 約4 g / 10分である。しかし、オーバーモールド材料がアイオノマーを含む場合、アイオノマーのメルトインデックスは、好ましくは0.1 g / 10分または0.75 g / 10分または4 g / 10分または5 g / 10分から約35 g / 10分以下である。

【0073】

使用するアイオノマー組成物および方法のタイプに基づき、当業者は、特定のタイプの物品の製造に必要な適切な成形条件を決定することができる。しかし、簡潔には、半透明白色ポリマー組成物は、約120 ~ 約250、または約130 ~ 約210の溶融温度で成形することができる。一般的に、低~中の充填速度と約69 ~ 約110 MPaの圧力を使用することができる。成形温度は、約5 ~ 約50、好ましくは5 ~ 20、より好ましくは5 ~ 15の範囲であってもよい。

【0074】

半透明白色ポリマー組成物を含むフィルムおよびシートは、任意の好適な方法により製造することができる。「フィルム」および「シート」という用語は、本明細書で使用する場合、実質的に平面状で連続的な物品を指す。「連続的」という用語は、これに関して使用する場合、フィルムまたはシートの長さが少なくとも約3 m、少なくとも約10 m、少なくとも約50 m、少なくとも約100 m、または少なくとも約250 mであることを意味する。さらに、シート材のアスペクト比、即ち、長さ対幅の比は少なくとも5、少なくとも10、少なくとも25、少なくとも50、少なくとも75または少なくとも100である。

【0075】

フィルムとシートとの差は厚さであるが、フィルムとシートを区別する正確な厚さに関して定められた工業規格はない。しかし、本明細書で使用する場合、フィルムの厚さは、約10 mil (0.25 mm) 以下; 好ましくは約0.5 mil (0.012 mm) ~ 約10 mil (0.25 mm); より好ましくは約1 mil (0.025 mm) ~ 約5 mil (0.13 mm) である。シートの厚さは、約10 mil (0.25 mm) より大きく; 好ましくは約15 mil (0.38 mm) より大きく; より好ましくは約30 mil (0.75 mm) より大きく; さらにより好ましくは約60 mil (1.50 mm)、90 mil (2.25 mm)、または120 mil (3.00 mm) より大きい。特定の場合において他に限定されない限り、本明細書における記載は、等しくフィルムおよびシートに関する。しかし、便宜上、場合によりこれらの用語の一方だけを使用することがある。

【0076】

従って、好適なシート形成法は、Kirk - Othmer Encyclopedia およびModern Plastics Encyclopediaに記載されている。

例えば、シートは、浸漬塗工、溶液流涎、圧縮成形、射出成形、積層、溶融押出、インフレーション、押出塗工、タンデム押出塗工、または他の任意の好適な手順により形成することができる。好ましくは、シートは、溶融押出法、溶融共押出法、溶融押出塗工法、またはタンデム溶融押出塗工法により形成される。

【0077】

さらに、半透明白色ポリマー組成物を含むシートは、片面または両面が平滑面または粗面であってもよい。好ましくは、シートは、積層プロセス中の脱気を容易にするために両面が粗面となっている。機械的型押などの慣用的な方法により粗面を形成することができる。例えば、押し出されたままのシートを、ダイの出口に近接して配置されたダイロールの特殊加工面を通してさせることができる。このダイロールで、溶融ポリマーの片面に所望の表面特性を付与する。従って、このようなテクスチャ加工ロールの表面が微細な山と谷を有する場合、テクスチャ加工ロール上に流涎された依然として型押し可能なポリマーシートは、ロールと接触する面が粗面となる。粗面は、一般的に、ロール表面の谷と山にそれぞれ適合する。テクスチャ加工ロールは、例えば、米国特許第4,035,549号明細書および米国特許出願公開第2003-0124296号明細書に記載されている。

10

【0078】

本明細書ではさらに、半透明白色ポリマー組成物の中間層を含むガラス積層体を提供する。ガラス積層体の中間層として使用するのに好適な半透明白色ポリマー組成物は、前述の望ましい光学特性を特徴とする。好ましくは、ガラス積層体は安全ガラス積層体である。安全ガラス積層体の中間層として使用するのに好適な半透明白色ポリマー組成物は、ガラスへの良好な接着力、高強度、および破壊後構造性能、例えば、良好な耐穿孔性などを含む物理的特性を有する。

20

【0079】

中間層のガラスへの接着力は、パンメル (pummel) 試験または90°剥離接着力により測定することができる。実験方法は、下記の実施例で詳述する。安全ガラス積層体に使用するのに好適な中間層のパンメル接着力評価は6パンメル単位より大きい。安全ガラス積層体に使用するのに好適な中間層の90°剥離接着力は、2.0 N/mmより大きい。

【0080】

優れた強度および良好な破壊後構造性能は、中間層の弾性率と相関する。例えば、S. Bennison, M. Qin, P. Davies, Innovative Light-Weight Structures and Sustainable Facades, 香港 2008年5月; D. Delincé, D. Callewaert, J. Belis, R. Van Impe in Conference on Architectural and Structural Applications of Glass, Delft University, 2008年5月を参照されたい。弾性率は、動的機械分析により、TA Instruments, デラウェア州ニューキャッスル (New Castle) から入手可能なTA Instruments Q800 DMAを使用し、ASTM 4065に準拠して、1 Hzの周波数で-150~100の温度範囲にわたり測定することができる。構造用ガラス積層体の中間層として使用するのに好適な材料の弾性率は、約20~約60 kpsiである。安全ガラス積層体の中間層として使用するのに好適な材料の弾性率は、それより幾分低くてもよい。

30

40

【0081】

引張特性も良好な破壊後構造性能と相関する。強度および破断点伸びなどの引張特性は、ASTM D882に準拠して測定することができる。実験方法についても下記の実施例で説明する。一般的に、構造用ガラス積層体の中間層として使用するのに好適な材料の強度は、約20~約40 MPaであり、破断点伸びは約200~約400%である。安全ガラス積層体の中間層として使用するのに好適な材料の強度および破断点伸びは、それより幾分低くてもよい。

【0082】

50

半透明白色中間層を好適に含み得るガラス積層体の構造としては、米国特許出願公開第2007/0228341号明細書に詳述されている構造が挙げられるが、これらに限定されるものではない。半透明白色中間層は、本明細書に記載の任意のポリマー中間層の代わりに使用することができる。最も一般的な積層体は、ガラス/中間層/ガラス積層体である。半透明白色中間層を使用する場合、これらの積層体は、フロストガラスの光学特性と共に、平滑なガラス表面に関連する清浄化の容易さ、および好ましくはアイオノマー中間層を有する安全ガラスに関連する優れた機械的特性を提供する。他の有用な構造としては、ガラス/中間層/ポリエステルフィルムおよびガラス/中間層/ポリエステルフィルム/中間層/ガラスが挙げられ、ここで、2つの中間層は同じであってもまたは異なってもよく、例えば、一方は着色されており、一方は着色されていなくてもよく、または一方はアイオノマーであり、一方はポリビニルブチラールもしくはエチレン酢酸ビニルをベースにしてもよい。構造用ガラス積層体に関連する優れた特性を達成するために、中間層は、好ましくはアイオノマーであり、好ましくは全厚が少なくとも62milである。

【0083】

ガラス積層体のその他の層は、例えば、平滑で、透明で、無色のガラスまたは非着色ポリマー中間層などの無色透明となり得るため、一般的に、ガラス積層体の所望の光学特性は、半透明白色ポリマー組成物によって決定される。しかし、当業者は、半透明白色ポリマー組成物の光学特性とガラス積層体のその他の構成要素の光学特性とを組み合わせ、所望の効果を提供することができる。例えば、艶消しされ且つ薄く着色されている(tinted)ガラス積層体は、半透明白色ポリマー組成物を薄く着色することにより、薄く着色されたガラスを使用することにより、または積層体構造中に薄く着色されたPETフィルムを含むことにより得ることができる。光学特性を組み合わせる別の例では、例えば、積層体中の印刷PETフィルムを半透明白色ポリマー組成物の中間層と組み合わせることにより；積層体中の半透明白色ポリマー組成物の中間層を印刷された中間層と組み合わせ、DuPontからSentryGlas(登録商標)Expressions(商標)装飾ガラスの商標で入手可能なものなどの積層体を形成することにより；または、画像が直接印刷された半透明白色ポリマー組成物の中間層から積層体を形成することにより、艶消し効果が印刷画像と組み合わせられている装飾ガラス積層体を製造することができる。

【0084】

画像を有する積層体の構造およびそれらの製造方法は、米国特許出願公開第2007/0245605号明細書に詳述されている。この参考文献は、2つの画像と1つの不透明介在層とを含むディスプレイに関するが、有利には、不透明層または別のポリマーシートの代わりに半透明白色ポリマー組成物の中間層を使用することにより、これらのディスプレイを製造することができる。さらに、当業者は、必要に応じて、ディスプレイが画像を1つだけ含むように、ディスプレイを製造することができる。さらに、当業者は、米国特許出願公開第2007/0245605号明細書に記載の積層体に基づき、様々な光学的效果を設計することもできるであろう。例えば、半透明白色ポリマー組成物の中間層を通して画像を見ると不明瞭な画像を表示する積層体が製造される。半透明白色ポリマー組成物中間層の背景に対して画像を見ると、艶消しの背景に対する画像が生成される。半透明白色ポリマー組成物中間層の背景に対して1つの画像を見、半透明白色ポリマー組成物中間層を通して1つの画像を見ると、鮮明な画像と共に不明瞭な画像を表示する積層体が製造される。この最後の構造は、米国特許出願公開第2007/0245605号明細書に記載の積層体構造に対応するが、但し、不透明層の代わりに透明白色ポリマー組成物の層が使用される。

【0085】

半透明白色ポリマー組成物を含むガラス積層体は、任意の好適な方法により製造することができる。一般的に、ガラス積層体は、米国特許第7,763,360号明細書および米国特許出願公開第2007/0228341号明細書に記載のものなどのオートクレーブ積層法により製造される。しかし、オートクレーブ以外の積層法を使用することもでき

10

20

30

40

50

る。オートクレーブ以外の好適な積層法の幾つかの例は、米国特許第7,763,360号明細書および米国特許出願公開第2007/0228341号明細書に記載されている。

【0086】

本明細書に記載の半透明白色ポリマー組成物中の顔料の量は非常に少ないため、他の点は同じ組成の非着色中間層と比較して、積層法の著しい変更を必要としない。しかし、当業者は、積層法に、必要となり得るどのような調節も行うことができるであろうと考えられる。例えば、半透明白色中間層の熱伝導度が非着色中間層の熱伝導度と比較して高い場合、プロセスの適切な調節には、積層温度またはサイクル時間の低減が含まれる。

【0087】

本発明をさらに詳細に説明するために、以下の実施例を記載する。これらの実施例は、特定の実施形態および本発明を実施するために現在考えられる好ましい態様を記載しており、本発明を例証するものであって、本発明を限定するものではない。

【実施例】

【0088】

材料

フロートガラスは、ペンシルバニア州ピッツバーグのPPG Industries, Inc. から入手可能な、厚さ2.3mmのアニール処理された透明なフロートガラス(「PPG」)であった。アイオノマーは、エチレンとメタクリル酸(22重量%、コポリマーの重量に基づく)とのコポリマーから誘導された。エチレンとメタクリル酸とのコポリマーは、中和前のメルトインデックスが1.8g/10分(ASTM D1238; 190°C、2.16kg)であった。アイオノマーの中和レベルは1.6%または15%であり、カチオンはナトリウムであった。アルミナ三水合物($Al(OH)_3$ またはATH)は、ペンシルバニア州フィラデルフィアのBrenntag Specialties, Inc. から入手したグレードBSI 3400であった。アルミナ(Al_2O_3)は粒径3ミクロンであり、アリゾナ州ツーソン(Tucson)のPace Technologiesから入手した。

【0089】

標準的手順

後述するガラス積層体は、プリプレスアセンブリを形成するために積層体の個々の層を積み重ねることにより製造した。プリプレスアセンブリは、120 で1時間減圧加熱された後、エアオートクレーブ内にて135 / 200 psigで30分の保持時間処理され、ガラス積層体を提供する。

【0090】

パンメル接着力試験用の積層体は、アイオノマーシート材を2枚のフロートガラス板の間に配置することにより製造した。フロートガラス板の「スズ」面は、アイオノマーと接触した。このプリプレスアセンブリを、標準的手順に準拠して積層した。パンメル接着力試験を行う前に、積層体を23~25 で最低2時間調整した。調整した積層体を、支持台上に45°の角度で保持し、454g(1lb)のハンマーを用いて手で打ち、約3×4インチの面積にわたりフロートガラスの上層を粉碎した。粉碎されたガラスで中間層に接着していなかったものを除去した。接着したまま残っているガラスがない中間層の面積を目視評価し、下記の表に記載する基準に従って評価値を付けた。

【0091】

10

20

30

40

【表 3】

パンメル評価基準表

裸の中間層%	パンメル値
100	0
95	1
90	2
85	3
60	4
40	5
20	6
10	7
5	8
2	9
0	10

10

【0092】

90°剥離接着力試験用の積層体は、アイオノマーシート材を1枚のフロートガラス板に積層することにより製造した。フロートガラス板の「スズ」面がアイオノマーと接触した。このプリプレスアセンブリを、標準的手順に準拠して積層した後、室温(23~25)で少なくとも24時間調整した。イリノイ州グレンビュー(Glenview)のIllinois Tool Worksの営業部門であるInstronから入手可能なInstron Model 5500R引張試験機を使用して、調整された積層体の90°剥離試験を行った。Instron Worldwide本社は、マサチューセッツ州ノーウッド(Norwood)にある。引張試験機は、50lbのロードセルを備え、クロスヘッド速度は25.4mm/分であった。

20

【0093】

引張特性は、ASTM D882に準拠し、Instron Model 1122機械的試験装置を使用して測定した。フィルムは、試験を行う前に室温(23 ± 2)、相対湿度50%で調整した。

【0094】

比較例1:

厚み0.76mmのButacite(登録商標)半透明白色ポリビニルブチラールシート材(DuPontから入手可能)を2枚のフロートガラス板の間に積層した。

30

【0095】

比較例2:

アイオノマーおよびTi-Pure(登録商標)R105二酸化チタン(添加量0.027重量%; DuPontから入手可能)を1.5インチ単軸押出機(Model DS-15H、コネティカット州ポーカタック(Pawcatuck)のDavis-Standard, LLCから入手可能)に供給し、厚み0.63mmのシートを製造した。押出機温度条件は、次の通りであった。

40

ゾーン1 128

ゾーン2 149

ゾーン3 180

ゾーン4 180

ダイ 180

このシート材を2枚のフロートガラス板の間に積層した。

【0096】

比較例3および4ならびに実施例5~11、比較例12:

アイオノマーをAl(OH)₃と配合し、比較例2で前述している押出機条件下でシート材に押出成形した。シート材の厚みは0.63mmであった。各シート中のAl(OH

50

)₃の添加量は、半透明白色ポリマー組成物の全重量に基づく重量パーセンテージであり、表1に記載する。各シートの一部を2枚のフロートガラス板の間に積層した。

【0097】

比較例13：

アイオノマーを、最外層が透明であり、内層が $Al(OH)_3$ (6.25%)を含有する3層シート材として押出成形した。シート材の全厚は1.59mmであり；半透明白色層の厚さは0.63mmであり、2つの透明な外層のそれぞれの厚さは0.48mmであった。3層は、14インチロールを有するKillion水平3層スタックと連結された3台の押出機により製造された。白色層は、Model DS-15H押出機により製造され；1つの透明層はHPE-150サイド押出機(side extruder)により製造され、第2の透明層はDS-15サイド押出機により製造された。Killion装置および2台のサイド押出機は、Davis-Standard, LLCから入手可能である。3層シート材を2枚のフロートガラス板の間に積層した。

10

【0098】

実施例14：

アイオノマーをアルミナ(Al_2O_3)と配合し、比較例2に前述している押出機条件下でシート材として押出成形した。添加量を表1に記載する。シート材の厚みは0.63mmであった。シート材を2枚のフロートガラス板の間に積層した。

【0099】

実施例15および16：

アイオノマーを $Al(OH)_3$ と配合し、比較例2に記載の条件下で厚み0.63mmのシート材に押出成形した。2層のシート材と一緒に重ね合わせて、全厚1.26mmの中間層を形成した。重ね合わせたシート材を、標準の手順に準拠して2枚のフロートガラス板の間に積層した。実施例15および16の結果は、表1に記載しており、それぞれ実施例7および6で得られたものと類似している。

20

【0100】

実施例17：

アイオノマーを $Al(OH)_3$ (6.25%)と配合し、比較例2に記載の条件下で厚み0.63mmのシート材に押出成形した。このシート材の層を透明なシート材の層と重ね合わせた。アイオノマーは、どちらの層でも同じであり、透明なシート材の厚みは0.96mmであった。重ね合わせたシート材を、標準的手順に準拠して2枚のフロートガラス板の間に積層した。その結果は、表1に記載しており、実施例7で得られたものと類似している。

30

【0101】

実施例18：

アイオノマーをアルミナ(Al_2O_3 、1.15%)と配合し、比較例2に記載の条件下で厚み0.89mmのシート材に押出成形した。シート材はまた、紫外線吸収剤としてニュージャージー州フローラムパーク(Florham Park)のBASF Corporationから入手可能なTinuvin(登録商標)328(0.17%)も含有した。シート材を、標準的手順に準拠して2枚のフロートガラス板の間に積層した。結果を表1に示す。

40

【0102】

【表 4】

表 1.
積層体の光学特性

サンプル	顔料	添加量、wt%	%T	%H	%C	L*	a*	b*
C1 PVB	CaCO ₃	5.0	64.1	98.5	20.9	82.6	-1.33	3.33
C2	TiO ₂	0.027	71.2	30.6	98.9	86.2	-0.25	4.3
C3	Al(OH) ₃	1.0	88.8	58	95.8	94.12	-1.32	0.97
C4	Al(OH) ₃	2.0	86.5	80.2	91.7	92.78	-1.20	1.02
5	Al(OH) ₃	3.0	80.8	95	78.6	89.70	-1.04	1.66
6	Al(OH) ₃	4.0	75.2	97.7	59.7	86.99	-0.86	2.30
7	Al(OH) ₃	6.25	65.40	98.90	25.17	81.89	-0.66	3.08
8	Al(OH) ₃	6.50	64.33	98.93	21.87	81.26	-0.65	3.10
9	Al(OH) ₃	6.75	63.23	99.03	19.03	80.69	-0.61	3.11
10	Al(OH) ₃	7.00	62.57	99.00	18.43	80.73	-0.64	3.13
11	Al(OH) ₃	7.25	61.93	98.43	17.43	80.22	-0.61	3.16
12	Al(OH) ₃	8.00	59.77	98.93	14.37	78.93	-0.67	3.09
13	Al(OH) ₃	6.25	60.7	99.10	12.50	79.05	-0.57	3.36
14	Al ₂ O ₃	2.5	69.2	96.1	33.7	83.9	-1.12	1.6
15	Al(OH) ₃	3.0/3.0	68.90	98.7	27.9	82.31	-0.62	3.33
16	Al(OH) ₃	2.0/2.0	79.0	95.2	76.9	89.26	-1.01	2.10
17	Al(OH) ₃	6.25/0	67.93	98.8	24.9	82.4	-1.03	2.53
18	Al ₂ O ₃	1.15	72.2	95.3	58.3	84.28	-1.17	2.09

10

20

【 0 1 0 3 】

比較例 C 1 9 および実施例 2 0 ~ 2 4 :

半透明白色アイオノマーの接着性は、パンメル接着力試験および90°剥離接着力試験により、上記標準の手順に記載のように測定した。アイオノマーをATH(実施例19および20)と配合し、比較例2に記載の条件下で厚み0.63mmのシート材に押出成形した。

30

【 0 1 0 4 】

接着力測定値は表2に記載しており、それから、顔料がアイオノマー中間層のガラスへの接着力に好ましい効果を及ぼし得ることが分かる。

【 0 1 0 5 】

【表 5】

表 2.
接着性

実施例	顔料	添加量、%	パンメル接着力	90° 剥離接着力 N/mm ²
C19	なし	0	7	0.9
20	Al(OH) ₃	6.25	9	2.9
21	Al(OH) ₃	6.50	9	3.1
22	Al ₂ O ₃	1.15	9	入手不可
23	Al ₂ O ₃	2.3	9	入手不可
24	Al ₂ O ₃	3.45	9	入手不可

40

【 0 1 0 6 】

比較例 C 2 5 および C 3 1 ならびに実施例 2 6 ~ 3 5

前述の標準の手順に従って、半透明白色アイオノマーの引張特性を測定した。アイオノマーをATH(実施例26~30)またはAl₂O₃(実施例32~35)と配合し、比較例2に記載の条件下でシート材に押出成形した。その結果は表3に記載しており、それか

50

ら、半透明白色ポリマー組成物は、半透明白色ポリマー組成物が機能性安全ガラス積層体の中間層として機能することを可能にするのに十分な値で引張強度および破断点伸びを維持していることが分かる。

【 0 1 0 7 】

【表 6】

表 3.

機械的特性

実施例	顔料	添加量、%	引張強度、psi	% 破断点伸び
C25	ATH	0	5248	481
26	ATH	2.0	4253	344
27	ATH	4.0	3865	291
28	ATH	6.25	5198	182
29	ATH	7.0	3942	318
30	ATH	8.0	3984	352
C31	Al ₂ O ₃	0	6333	592
32	Al ₂ O ₃	2.5	6376	581
33	Al ₂ O ₃	5	6139	570
34	Al ₂ O ₃	6.25	5978	557
35	Al ₂ O ₃	7.5	5549	547

10

20

【 0 1 0 8 】

本発明の好ましい実施形態の幾つかを上記で説明し、具体的に例示してきたが、本発明はこのような実施形態に限定されるものではない。以下の特許請求の範囲に記載の本発明の範囲および精神から逸脱することなく、様々な変更を行うことができる。

本発明のまた別の態様は、以下のとおりであってもよい。

〔 1 〕 顔料と、エチレン酸コポリマーまたは前記エチレン酸コポリマーのアイオノマーとを含む半透明白色ポリマー組成物であって；

前記顔料の屈折率が約 1.5 ~ 約 2.8 であり；

前記顔料はさらに、最小平均径約 380 nm、メジアン粒径 (d₅₀) 0.2 mm 未満で、アスペクト比が 1 に近い粒子から実質的になり；

半透明白色アイオノマー組成物のサンプルは、透過率が 90 % 未満であり；ヘイズが 75 ~ 100 % であり；L* 値が 80 より高く、a* 値が -0.2 ~ -1.6 の範囲であり、b* 値が 0.8 ~ 4.0 の範囲である、半透明白色ポリマー組成物。

30

〔 2 〕 前記顔料が、アルミナ三水和物、アルミナ、酸化マグネシウム、アルミン酸ベリリウム、硫酸カルシウム、リン酸亜鉛四水和物、およびムライトからなる群から選択される、前記〔 1 〕に記載の半透明白色ポリマー組成物。

〔 3 〕 顔料と、エチレン酸コポリマーまたは前記エチレン酸コポリマーのアイオノマーとを含む半透明白色ポリマー組成物であって；

前記顔料が、アルミナ三水和物、アルミナ、酸化マグネシウム、アルミン酸ベリリウム、硫酸カルシウム、リン酸亜鉛四水和物、およびムライトからなる群から選択され；

前記半透明白色アイオノマー組成物のサンプルは、透過率が 90 % 未満であり；ヘイズが 75 ~ 100 % であり；L* 値が 80 より高く、a* 値が -0.2 ~ -1.6 の範囲であり、b* 値が 0.8 ~ 4.0 の範囲である、半透明白色ポリマー組成物。

40

〔 4 〕 前記顔料は、最小平均径約 380 nm、メジアン粒径 (d₅₀) 0.2 mm 未満で、アスペクト比が 1 に近い粒子から実質的になる、前記〔 1 3 〕に記載の半透明白色ポリマー組成物。

〔 5 〕 前記エチレン酸コポリマーが、炭素数 2 ~ 10 の - オレフィンの共重合単位と；炭素数 3 ~ 8 の - エチレン性不飽和カルボン酸の共重合単位約 8 ~ 約 30 重量 % と；任意選択により、炭素数 2 ~ 10 の不飽和カルボン酸および前記不飽和カルボン酸の誘導体からなる群から選択される 1 種以上の追加のコモノマーの共重合単位とを含む、前記

50

〔 1 〕 または〔 3 〕 に記載の半透明白色ポリマー組成物。

〔 6 〕 前記エチレン酸コポリマーが、エチレンの共重合単位と；アクリル酸、メタクリル酸、またはアクリル酸とメタクリル酸との組み合わせの共重合単位の共重合単位約 8 ~ 約 30 重量%と；任意選択により、1 種以上の不飽和カルボン酸の誘導体からなる群から選択される 1 種以上の追加のコモノマーの共重合単位であって、前記不飽和カルボン酸の炭素数が 2 ~ 10 であり、前記誘導体が酸無水物、アミドおよびエステルからなる群から選択される追加のコモノマーの共重合単位とを含む、前記〔 1 〕または〔 3 〕に記載の半透明白色ポリマー組成物。

〔 7 〕 前記アイオノマーを含み、前記エチレン酸コポリマーの全カルボン酸含有量に基づき前記カルボン酸基の約 5 % ~ 約 90 % が中和されている、前記〔 1 〕または〔 3 〕に記載の半透明白色ポリマー組成物。

10

〔 8 〕 前記半透明白色ポリマー組成物の全重量に基づき、前記顔料約 1 . 0 ~ 約 10 . 0 重量%と、前記ポリマー樹脂約 99 ~ 約 90 重量%と含む、前記〔 1 〕または〔 3 〕に記載の半透明白色ポリマー組成物。

〔 9 〕 厚さ約 1 . 6 mm の前記半透明白色ポリマー組成物のサンプルは、透過率が約 56 % ~ 約 75 % であり；ヘイズが約 90 % ~ 約 100 % であり；透明度が約 10 ~ 約 30 % である、前記〔 1 〕または〔 3 〕に記載の半透明白色ポリマー組成物。

〔 10 〕 厚さ約 1 . 6 mm の前記半透明白色ポリマー組成物のサンプルは、透過率が約 80 % ~ 約 90 % であり；ヘイズが約 75 % ~ 約 85 % であり；透明度が約 70 % ~ 約 86 % である、前記〔 1 〕または〔 3 〕に記載の半透明白色ポリマー組成物。

20

〔 11 〕 前記〔 1 〕または〔 3 〕に記載の半透明白色ポリマー組成物を含む成形品。

〔 12 〕 中間層を含むガラス積層体であって、前記中間層が前記〔 1 〕または〔 3 〕に記載の半透明白色ポリマー組成物を含むガラス積層体。

〔 13 〕 中間層を含む安全ガラス積層体であって、前記中間層が前記〔 1 〕または〔 3 〕に記載の半透明白色ポリマー組成物を含む安全ガラス積層体。

〔 14 〕 中間層を含む構造用ガラス積層体であって、前記中間層が前記〔 1 〕または〔 3 〕に記載の半透明白色ポリマー組成物を含む構造用ガラス積層体。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I			
C 0 8 K	3/34	(2006.01)	C 0 8 K	3/34	
B 3 2 B	17/10	(2006.01)	B 3 2 B	17/10	
B 3 2 B	27/28	(2006.01)	B 3 2 B	27/28	1 0 1
B 3 2 B	27/20	(2006.01)	B 3 2 B	27/20	A

(74)代理人 100093300

弁理士 浅井 賢治

(74)代理人 100119013

弁理士 山崎 一夫

(74)代理人 100123777

弁理士 市川 さつき

(74)代理人 100179925

弁理士 窪田 真紀

(72)発明者 ハンセン スティーブン エム

アメリカ合衆国 デラウェア州 1 9 8 0 3 ウィルミントン チルトン ロード 6

(72)発明者 スミス レベッカ エル

アメリカ合衆国 ウェストバージニア州 2 6 1 0 5 ヴィエンナ メリーウッド レーン 8

審査官 今井 督

(56)参考文献 特開2007-314752(JP,A)

特開2009-289544(JP,A)

特表2005-524596(JP,A)

特表2008-528766(JP,A)

特開2004-352975(JP,A)

特開2006-021951(JP,A)

特表2013-537495(JP,A)

特開2005-232399(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C 0 8 L 1 / 0 0 - 1 0 1 / 1 4

C 0 8 K 3 / 0 0 - 1 3 / 0 8

B 3 2 B 1 / 0 0 - 4 3 / 0 0