

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第6956732号  
(P6956732)

(45) 発行日 令和3年11月2日(2021.11.2)

(24) 登録日 令和3年10月7日(2021.10.7)

(51) Int.Cl.	F 1			
B 32 B 27/30	(2006.01)	B 32 B	27/30	1 O 2
B 32 B 27/22	(2006.01)	B 32 B	27/22	
C 03 C 27/12	(2006.01)	C 03 C	27/12	D
B 60 J 1/00	(2006.01)	C 03 C	27/12	Z
B 32 B 17/10	(2006.01)	B 60 J	1/00	H

請求項の数 11 (全 33 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2018-546461 (P2018-546461)
(86) (22) 出願日	平成29年2月21日(2017.2.21)
(65) 公表番号	特表2019-513094 (P2019-513094A)
(43) 公表日	令和1年5月23日(2019.5.23)
(86) 國際出願番号	PCT/US2017/018631
(87) 國際公開番号	W02017/151345
(87) 國際公開日	平成29年9月8日(2017.9.8)
審査請求日	令和2年2月13日(2020.2.13)
(31) 優先権主張番号	15/061,418
(32) 優先日	平成28年3月4日(2016.3.4)
(33) 優先権主張国・地域又は機関	米国(US)

(73) 特許権者	503316891 ソルティア・インコーポレーテッド アメリカ合衆国ミズーリ州63141, セント・ルイス, マリーヴィル・センター・ドライブ 575
(74) 代理人	100140109 弁理士 小野 新次郎
(74) 代理人	100118902 弁理士 山本 修
(74) 代理人	100106208 弁理士 宮前 勲
(74) 代理人	100120112 弁理士 中西 基晴
(74) 代理人	100129311 弁理士 新井 規之

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 向上した特性及び性能を示すポリマー中間膜及びそれから製造される多層パネル

## (57) 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

第1の呼び厚さを有する第1の基材；

第1の呼び厚さよりも少なくとも0.1mm小さい第2の呼び厚さを有する第2の基材；並びに

第1及び第2の基材の間に配置されてそれぞれと接触している多層中間膜；  
を含み；

多層中間膜は、

第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第1のポリマー層；

第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第2のポリマー層；並びに

第3のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第3のポリマー層；

を含み；

第2のポリマー層は第1及び第3のポリマー層のそれぞれに隣接してそれぞれと接触している、第2のポリマー層が第1及び第3のポリマー層の間にサンドイッチされるようになっており；

第1、第2、及び第3のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、それぞれ第1、第2、及び第3の残留ヒドロキシル含量を有し、第1及び第3の残留ヒドロキシル含量の少なくとも

10

20

一方は少なくとも 20 重量 % であり、第 2 の残留ヒドロキシル含量は、第 1 及び第 3 の残留ヒドロキシル含量のそれよりも少なくとも 13 重量 % 低く；

第 1 、第 2 、及び第 3 のポリマー層は、それぞれ第 1 、第 2 、及び第 3 のガラス転移温度を有し、第 2 のガラス転移温度は、第 1 及び第 3 のガラス転移温度のそれよりも少なくとも 13 低く；

第 2 の呼び厚さと第 1 の呼び厚さとの比は少なくとも 0.23 : 1 乃至 1 : 1 未満の範囲であり、第 1 及び第 2 の呼び厚さの合計は 3.7 mm 未満である多層パネル。

**【請求項 2】**

第 2 の呼び厚さは第 1 の呼び厚さよりも少なくとも 0.5 mm 小さい、請求項 1 に記載の多層パネル。

10

**【請求項 3】**

第 2 の呼び厚さと第 1 の呼び厚さとの比は 0.75 : 1 以下である、請求項 1 又は 2 に記載の多層パネル。

**【請求項 4】**

第 1 及び第 3 の残留ヒドロキシル含量のそれは少なくとも 20 重量 % である、請求項 1 から 3 のいずれかに記載の多層パネル。

**【請求項 5】**

第 1 及び第 3 の残留ヒドロキシル含量の少なくとも一方は少なくとも 22 重量 % である、請求項 1 から 4 のいずれかに記載の多層パネル。

**【請求項 6】**

多層パネルは、ASTM - E 90 にしたがって測定して少なくとも 34 dB のコインシデンス周波数における音響透過損失を示す、請求項 1 から 5 のいずれかに記載の多層パネル。

20

**【請求項 7】**

中間膜は少なくとも 1 つのテーパー状の区域を含み、テーパー状の区域は少なくとも 0.10 mmrad の最小くさび角度を有する、請求項 1 から 6 のいずれかに記載の多層パネル。

**【請求項 8】**

第 2 の呼び厚さは 1.5 mm 未満である、請求項 1 から 7 のいずれかに記載の多層パネル。

30

**【請求項 9】**

2 つの外側ポリマー層のそれは樹脂 100 部あたり 35 部 (phr) 未満の可塑剤含量を有し、内側ポリマー層は 2 つの外側ポリマー層のそれよりも少なくとも 10 phr 高い可塑剤含量を有する、請求項 1 から 8 のいずれかに記載の多層パネル。

**【請求項 10】**

中間膜の少なくとも 1 つの層は少なくとも 40 のガラス転移温度を有する、請求項 1 から 9 のいずれかに記載の多層パネル。

**【請求項 11】**

中間膜は、それぞれ 2.1 mm の厚さを有するガラスの 2 つのシートの間で積層した場合に少なくとも 50 N/mm の撓み剛性を有する、請求項 1 から 10 のいずれかに記載の多層パネル。

40

**【発明の詳細な説明】**

**【技術分野】**

**【0001】**

[001] 本発明はポリマーシートを含む多層パネルに関し、特に単層又は多層中間膜として用いるのに好適なポリマーシートを含む多層パネルに関する。

**【背景技術】**

**【0002】**

[002] ポリ (ビニルブチラール) (PVB) は、ガラスの 2 つのシートの間に中間膜をサンドイッチすることによって形成される多層パネルにおいて中間膜として用いることが

50

できるポリマーシートの製造においてしばしば用いられている。かかる積層多層パネルは、通常は「安全ガラス」と呼ばれており、建築及び自動車用途の両方において用いられている。安全ガラスパネルにおける中間膜の主要な機能の1つは、物体にガラスを貫通させることなく、パネルに対する衝撃から得られるエネルギーを吸収する事である。中間膜はまた、加えられた力がガラスを破損するのに十分である場合に、ガラスが鋭利な小片を形成して散乱するのを阻止するためにガラスを結合した状態に維持することも助ける。更に、中間膜はまた、より高い遮音等級を有する積層パネルを提供し、パネルを通過する紫外(UV)及び/又は赤外(IR)光の透過を減少させ、色、テクスチャー等を加えることによってその美的外観を向上させることもできる。

## 【0003】

10

[003]伝統的に、自動車用途において用いられるガラスパネルは、それぞれが2.0~2.3mmの間の厚さを有する2つのガラスシートを用いる。殆どの場合においては、これらのシートはほぼ同じ厚さを有する。このタイプの構成によって最終パネルにおける強度及び剛性の両方が促進され、これは乗物本体の全体的な機械強度及び剛性に貢献する。一部では、乗物の全体的な剛性の30%以下がそのガラスに帰すると試算されている。而して、乗物の例えはフロントガラス、サンルーフ又はムーンルーフ、並びにサイドウインドウ及びリアウインドウを構成するために用いる多層ガラスパネルの設計及び剛性は、これらのパネルの性能のためだけでなく、乗物自体の全体的性能のためにも重要である。

## 【0004】

20

[004]燃料効率がより良好な乗物が好まれる最近の傾向により、より軽量の乗物に対する需要がもたらされている。乗物の重量を減少させる1つの方法は、より薄いガラスシートを用いることによってガラスの量を減少させることであった。例えば、1.4m<sup>2</sup>の表面積を有するフロントガラスに関しては、パネルの1つの厚さを約0.5mm減少させると、他の事項が全て同じであるならば10%超の重量減少をもたらすことができる。

## 【0005】

30

[005]より薄い多層パネルへの1つの取り組みは、パネルの1つが他よりも薄い「非対称」のガラス構造を用いることであった。対称構造を有するより薄いガラスパネルも用いられている。しかしながら、非対称構造がより多く用いられており、これは伝統的な2.0mm~2.3mmの厚さを有する「室外」ガラスパネル(即ち、乗物のキャビンの外側に面するガラスパネル)、及びより薄い「室内」ガラスパネル(即ち、キャビンの内部に面するガラスパネル)を用いることを伴っている。これは、使用中に室外パネルが曝されるであろう石、砂利、砂、及び他の道路ゴミに対する適当な強度及び耐衝撃性を確保するためである。しかしながら、通常はこれらの非対称パネルは、撓み剛性、ガラス曲げ強さ、ガラスエッジ強度、ガラス衝撃強さ、ルーフ強度、及びねじれ剛性のような特性を許容しうる範囲内に維持するために、少なくとも3.7mmの合計ガラス厚さを保持している。

## 【0006】

[006]更に、非対称構造はより薄い室内ガラスシートを用いることによって形成されるので、これらのパネルの遮音特性は、より厚いガラスを用いる同様のパネルよりも劣っている。したがって、キャビン内の交通騒音及び他の騒音を最小にするために、非対称多層パネルを形成するために用いる中間膜は、一般に遮音特性を有する中間膜(即ち、遮音中間膜)である。従来の非遮音中間膜は、殆どの用途のために十分な遮音性を提供しない。

40

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0007】

[007]而して、十分な強度、剛性、及び遮音性能をなお示しながら最適なガラス厚さを有する多層ガラスパネルに対する必要性が存在する。望ましくは、かかるパネルは、種々の自動車、航空宇宙、及び建築用途において広く用いることができる事が望ましい。

## 【課題を解決するための手段】

## 【0008】

50

[008]本発明の一態様は、第1の呼び厚さを有する第1の基材；第1の呼び厚さよりも少なくとも0.1mm小さい第2の呼び厚さを有する第2の基材；並びに、第1及び第2の基材の間に配置されてそれぞれと接触している多層中間膜；を含み；多層中間膜は、第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第1のポリマー層；第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第2のポリマー層；並びに、第3のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第3のポリマー層；を含み；第2のポリマー層は第1及び第3のポリマー層のそれぞれに隣接してそれぞれと接触して、第2のポリマー層が第1及び第3のポリマー層の間にサンドイッチされるようになっており；第1、第2、及び第3のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、それぞれ第1、第2、及び第3の残留ヒドロキシル含量を有し、第1及び第3の残留ヒドロキシル含量の少なくとも一方は少なくとも20重量%であり、第2の残留ヒドロキシル含量は、第1及び第3の残留ヒドロキシル含量のそれぞれよりも少なくとも2重量%低く；第1、第2、及び第3のポリマー層は、それぞれ第1、第2、及び第3のガラス転移温度を有し、第2のガラス転移温度は、第1及び第3のガラス転移温度のそれぞれよりも少なくとも13低く；第2の呼び厚さと第1の呼び厚さとの比は少なくとも0.23:1乃至1:1未満の範囲であり、第1及び第2の呼び厚さの合計は3.7mm未満である多層パネルに関する。10

#### 【0009】

[009]本発明の他の態様は、第1の呼び厚さを有する第1の基材；第1の呼び厚さよりも少なくとも0.5mm小さい第2の呼び厚さを有する第2の基材；並びに、第1及び第2の基材の間に配置されてそれぞれと接触している多層中間膜；を含み；多層中間膜は、第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第1のポリマー層；第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第2のポリマー層；並びに、第3のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第3のポリマー層；を含み；第2のポリマー層は第1及び第3のポリマー層のそれぞれに隣接してそれぞれと接触して、第2のポリマー層が第1及び第3のポリマー層の間にサンドイッチされるようになっており；第1、第2、及び第3のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、それぞれ第1、第2、及び第3の残留ヒドロキシル含量を有し、第1及び第3の残留ヒドロキシル含量の少なくとも一方は少なくとも20重量%であり、第2の残留ヒドロキシル含量は、第1及び第3の残留ヒドロキシル含量のそれぞれよりも少なくとも2重量%低く；第2の呼び厚さと第1の呼び厚さとの比は少なくとも0.23:1乃至1:1未満の範囲であり、第1及び第2の呼び厚さの合計は3.7mm未満であり；多層パネルはASTM-E90にしたがって測定して少なくとも34dBのコインシデンス周波数における音響透過損失を示す多層パネルに関する。20

#### 【0010】

[010]本発明の更に他の態様は、第1の呼び厚さを有する第1の基材；1.5mm未満である第2の呼び厚さを有する第2の基材；並びに、第1及び第2の基材の間に配置されてそれぞれと接触している多層中間膜；を含み；多層中間膜は、第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第1のポリマー層；第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第2のポリマー層；並びに、第3のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第3のポリマー層；を含み；第2のポリマー層は第1及び第3のポリマー層のそれぞれに隣接してそれぞれと接触して、第2のポリマー層が第1及び第3のポリマー層の間にサンドイッチされるようになっており；第1、第2、及び第3のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、それぞれ第1、第2、及び第3の残留ヒドロキシル含量を有し、第1及び第3の残留ヒドロキシル含量の少なくとも一方は少なくとも20重量%であり、第2の残留ヒドロキシル含量は、第1及び第3の残留ヒドロキシル含量のそれぞれよりも少なくとも2重量%低く；第2の呼び厚さと第1の呼び厚さとの比は少なくとも0.23:1乃至1:1の範囲であり；多層パネルはASTM-E90にしたがって測定して少なくとも34dBのコインシデンス周波数における音響透過損失を示す多層パネルに関する。30

## 【0011】

[011]下記において、添付の図面を参照して本発明の種々の態様を詳細に記載する。

## 【図面の簡単な説明】

## 【0012】

【図1】[012]図1は、参考しやすいようにテーパー状中間膜の種々の特徴をラベル付けした、本発明の一態様にしたがって構成されたテーパー状中間膜の断面図である。

【図2】[013]図2は、テーパー状の区域全体が一定のくさび角度及び線状の厚さプロファイルを有する、中間膜の全幅に及ぶテーパー状の区域を有するテーパー状中間膜の断面図である。

【図3】[014]図3は、テーパー状の区域が一定角度の区域及び変動角度の区域を含む、中間膜の幅の一部に及ぶテーパー状の区域、及び中間膜の幅の一部に及ぶ水平(flat)の端部区域を有するテーパー状中間膜の断面図である。 10

【図4】[015]図4は、テーパー状の区域が一定角度の区域及び2つの変動角度の区域を含む、中間膜の幅の一部に及ぶテーパー状の区域、及び中間膜の幅の一部に及ぶ2つの水平の端部区域を有するテーパー状中間膜の断面図である。

【図5】[016]図5は、テーパー状の区域が完全に曲線状の厚さプロファイルを有する変動角度の区域から形成されている、中間膜の幅の一部に及ぶテーパー状の区域、及び中間膜の幅の一部に及ぶ2つの水平の端部区域を有するテーパー状中間膜の断面図である。

【図6】[017]図6は、テーパー状部が2つの変動角度の区域によって互いから離隔されている3つの一定角度の区域を含む、中間膜の幅全体に及ぶテーパー状の区域を有するテーパー状中間膜の断面図である。 20

【図7】[018]図7は、テーパー状の区域が3つの一定角度の区域及び4つの変動角度の区域を含む、中間膜の幅の一部に及ぶテーパー状の区域、及び中間膜の幅の一部に及ぶ2つの水平の端部区域を有するテーパー状中間膜の断面図である。

【図8】[019]図8aは、中間膜の厚さプロファイルが図2に示す中間膜の厚さプロファイルと同様である、乗物のフロントガラスにおいて用いるように構成されているテーパー状中間膜の平面図である。[020]図8bは、中間膜の厚さプロファイルを示す、図8aの中間膜の断面図である。

【図9】[021]図9は、実施例1において記載したように形成して試験した幾つかの多層パネルの音響透過損失のグラフである。 30

【図10】[022]図10は、3点曲げ試験を行うために用いた実験装置を示す図である。

【図11】[023]図11は、3点曲げ試験にかけた試験パネルの荷重vs撓みのグラフ表示である。

【図12】[024]図12は、実施例2に記載したように調製して試験した幾つかのパネルに関する、ガラスの対称度の関数としてのコインシデンス周波数における音響透過損失のグラフである。

## 【発明を実施するための形態】

## 【0013】

[025]本発明は、概して、1対の基材、及びその間に積層されている遮音中間膜を含む多層パネルに関する。幾つかの態様においては、本発明の多層パネルは非対称のガラス構造を有していて、基材の1つが他と異なる厚さを有するようになっていてよい。しかしながら、厚さにおけるこの差にかかわらず、本発明の複数の態様にしたがって構成される多層パネルは、なお十分な強度、剛性、及び遮音性能を示すことができ、それによりこのパネルは、種々の自動車、建築、及び航空用途などの広範囲の用途において用いることができる。 40

## 【0014】

[026]本明細書に記載する多層パネルは、一般に、少なくとも、第1の基材、第2の基材、並びに第1及び第2の基材の間に配置されてそれぞれと接触している中間膜を含む。第1及び第2の基材のそれぞれは、ガラスのような硬質材料で形成することができ、同じか又は異なる材料から形成することができる。幾つかの態様においては、第1及び第2の 50

基材の少なくとも一方はガラス基材であってよく、一方で他の態様においては、第1及び第2の基材の少なくとも一方は、例えばポリカーボネート、アクリル樹脂、ポリエステル、コポリエステル、及びこれらの組合せのような硬質ポリマーなどの他の材料で形成することができる。通常は、第1又は第2の基材のいずれも、下記に詳細に記載するように、熱可塑性ポリマー材料などのより軟質のポリマー材料からは形成しない。

#### 【0015】

[027]幾つかの態様においては、第1及び第2の基材の少なくとも一方にはガラス基材を含ませることができる。任意の好適なタイプのガラスを用いてかかる基材を形成することができ、幾つかの態様においては、ガラスは、アルミナ・シリケートガラス、ホウケイ酸ガラス、石英又は溶融シリカガラス、及びソーダ石灰ガラスからなる群から選択することができる。ガラス基材は、用いる場合には、アニーリング、熱強化又は焼入れ、化学強化、エッティング、被覆、又はイオン交換による強化にかけることができ、或いは、これらの処理の1以上にかけたものであってよい。ガラスそれ自体は、圧延ガラス、フロートガラス、又は厚板ガラスであってよい。第1及び第2の基材がガラス基材である場合には、それぞれを形成するのに用いるガラスのタイプは同じであってよく、或いは異なっていてよい。

#### 【0016】

[028]第1及び第2の基材は、任意の好適な厚さを有していてよい。幾つかの態様においては、第1及び/又は第2の基材の呼び厚さは、少なくとも約0.4mm、少なくとも約0.5mm、少なくとも約0.6mm、少なくとも約0.7mm、少なくとも約0.8mm、少なくとも約0.9mm、少なくとも約1.0mm、少なくとも約1.1mm、少なくとも約1.2mm、少なくとも約1.3mm、少なくとも約1.4mm、少なくとも約1.5mm、少なくとも約1.6mm、少なくとも約1.7mm、少なくとも約1.8mm、少なくとも約1.9mm、少なくとも約2.0mm、少なくとも約2.1mm、少なくとも約2.2mm、及び/又は約3.2mm未満、約3.1mm未満、約3.0mm未満、約2.9mm未満、約2.8mm未満、約2.7mm未満、約2.6mm未満、約2.5mm未満、約2.4mm未満、約2.3mm未満、約2.2mm未満、約2.1mm未満、約2.0mm未満、約1.9mm未満、約1.8mm未満、約1.7mm未満、約1.6mm未満、約1.5mm未満、約1.4mm未満、約1.3mm未満、約1.2mm未満、約1.1mm未満、又は約1.0mm未満であってよい。

#### 【0017】

[029]更に、或いは別の態様においては、第1及び/又は第2の基材は、少なくとも約2.3mm、少なくとも約2.4mm、少なくとも約2.5mm、少なくとも約2.6mm、少なくとも約2.7mm、少なくとも約2.8mm、少なくとも約2.9mm、少なくとも約3.0mm、及び/又は約12.5mm未満、約12mm未満、約11.5mm未満、約11mm未満、約10.5mm未満、約10mm未満、約9.5mm未満、約9mm未満、約8.5mm未満、約8mm未満、約7.5mm未満、約7mm未満、約6.5mm未満、約6mm未満、約5.9mm未満、約5.8mm未満、約5.7mm未満、約5.6mm未満、約5.5mm未満、約5.4mm未満、約5.3mm未満、約5.2mm未満、約5.1mm未満、約5.0mm未満、約4.9mm未満、約4.8mm未満、約4.7mm未満、約4.6mm未満、約4.5mm未満、約4.4mm未満、約4.3mm未満、約4.2mm未満、約4.1mm未満、又は約4.0mm未満の呼び厚さを有していてよい。

#### 【0018】

[030]幾つかの態様によれば、本多層パネルには同じ呼び厚さを有する2つの基材を含ませることができる。かかる態様は、他の基材の呼び厚さに対する1つの基材の呼び厚さの比が1に等しいので「対称構造」と呼ぶことができる。

#### 【0019】

[031]他の態様においては、本明細書に記載する多層パネルには、異なる呼び厚さを有する2つの基材を含ませることができる。「非対称構造」とも呼ぶかかる態様は、より厚

10

20

30

40

50

い基材の呼び厚さに対するより薄い基材の呼び厚さの比が1未満であることをと特徴とする。本明細書において用いる「対称度」という用語は、より厚い基材の呼び厚さに対するより薄い基材の呼び厚さの比を指す。幾つかの態様においては、本明細書に記載する多層パネルは、少なくとも約0.20、少なくとも約0.23、少なくとも約0.25、少なくとも約0.30、少なくとも約0.35、少なくとも約0.40、少なくとも約0.45、少なくとも約0.50、少なくとも約0.55、少なくとも約0.60、少なくとも約0.65、少なくとも約0.70、少なくとも約0.75、及び/又は約1未満、約0.99以下、約0.97以下、約0.95以下、約0.90以下、約0.85以下、約0.80以下、約0.75以下、約0.70以下、約0.65以下、約0.60以下、約0.55以下、約0.50以下、約0.45以下、約0.40以下、約0.35以下、約0.30以下の対称度を有していてよい。 10

#### 【0020】

[032]多層パネルが非対称構造を有する場合には、より厚い基材の呼び厚さとより薄い基材の呼び厚さの間の差は、少なくとも約0.1mmであってよい。幾つかの態様においては、より厚い基材の呼び厚さは、より薄い基材の呼び厚さよりも少なくとも約0.2mm、少なくとも約0.3mm、少なくとも約0.4mm、少なくとも約0.5mm、少なくとも約0.6mm、少なくとも約0.7mm、少なくとも約0.8mm厚くてよい。更に、又は別の態様においては、より厚い基材の呼び厚さは、より薄い基材の呼び厚さよりも約7mm以下、約6mm以下、約5mm以下、約4mm以下、約3mm以下、約2mm以下、約1.5mm以下、約1mm以下、約0.9mm以下、約0.8mm以下、約0.7mm以下、約0.6mm以下、約0.5mm以下、約0.4mm以下、又は約0.3mm以下厚くてよい。 20

#### 【0021】

[033]第1及び第2の基材のそれぞれの呼び厚さの合計(ここでは「合計ガラス厚さ」とも呼ぶ)は、従来の多層パネルよりも薄くすることができ、或いはそれよりも厚くすることができる。通常は、従来の商業的に入手できる多層パネルは、3.7mm~4.6mmの範囲の合計ガラス厚さを有する。これに対して、本発明の幾つかの態様によれば、第1及び第2の基材の呼び厚さの合計は、3.7mm未満、約3.6mm未満、約3.5mm未満、約3.4mm未満、約3.3mm未満、又は約3.2mm未満にすることができる。全ての場合において、第1及び第2の基材の呼び厚さの合計は、少なくとも約0.9mm、少なくとも約1.2mm、少なくとも約1.5mm、少なくとも約2.0mm、少なくとも約2.5mm、少なくとも約3.0mm、少なくとも約3.1mm、少なくとも約3.2mm、少なくとも約3.3mm、少なくとも約3.4mm、又は少なくとも約3.5mmにすることができる。 30

#### 【0022】

[034]或いは、又は更には、第1及び第2の基材の呼び厚さの合計は、4.6mmより大きく、約4.7mmより大きく、約4.8mmより大きく、約4.9mmより大きく、約5.0mmより大きく、約5.2mmより大きく、約5.5mmより大きく、約5.7mmより大きく、約6.0mmより大きく、約6.2mmより大きく、約6.5mmより大きく、約6.7mmより大きく、約7.0mmより大きく、約7.2mmより大きく、約7.5mmより大きく、約7.7mmより大きく、約8.0mmより大きく、約8.2mmより大きく、約8.5mmより大きく、約8.7mmより大きく、約9.0mmより大きく、約9.5mmより大きく、約10.0mmより大きく、約10.5mmより大きく、約11.0mmより大きく、約11.5mmより大きく、約12.0mmより大きく、約12.5mmより大きく、約13.0mmより大きく、約13.5mmより大きく、約14.0mmより大きく、約14.5mmより大きく、又は約15.0mmより大きくすることができる。 40

#### 【0023】

[035]具体的なガラス構造は、多層パネルの最終的な最終用途に応じて選択することができる。例えば、多層パネルを自動車用途において用いる幾つかの態様においては、基材 50

の 1 つの呼び厚さは、0.4 ~ 1.8 mm、0.5 ~ 1.7 mm、又は0.6 ~ 1.4 mm の範囲にすることができる、一方で他の基材の呼び厚さは、0.5 ~ 2.9 mm、0.6 ~ 2.8 mm、1.0 ~ 2.4 mm、又は1.6 ~ 2.4 mm の範囲の呼び厚さを有していてよい。基材の厚さの合計は、3.7 mm 未満、3.6 mm 未満、3.5 mm 未満、又は3.4 mm 未満にすることができ、より厚い基材の呼び厚さに対するより薄い基材の呼び厚さの比は、0.23 乃至 1 未満、0.25 ~ 0.75、又は0.3 ~ 0.60 の範囲であってよい。

#### 【 0 0 2 4 】

[036]多層パネルを航空又は建築用途において用いる他の態様においては、基材の 1 つの呼び厚さは、2.2 ~ 12.5 mm、2.6 ~ 8 mm、又は2.8 ~ 5 mm の範囲にすることができる、一方で他の基材の呼び厚さは、1.6 ~ 12.4 mm、1.8 ~ 7.5 mm、又は2.3 ~ 5 mm の範囲にすることができる。これらの態様における基材の厚さの合計は、4.7 mm より大きく、5 mm より大きく、5.5 mm より大きく、又は6 mm より大きくてよく、対称度は0.23 乃至 1 未満、0.25 ~ 0.75、又は0.3 ~ 0.60 の範囲である。

#### 【 0 0 2 5 】

[037]基材に加えて、本明細書に記載する多層パネルは、第 1 及び第 2 の基材のそれぞれの間に配置されていてそれぞれと接触している少なくとも 1 つのポリマー中間膜を含む。本明細書において用いる「中間膜」という用語は、多層パネルを形成する際に用いるのに好適な単層又は多層ポリマーシートを指す。本明細書において用いる「単層」及び「モノリス型」という用語は、1 つの単一のポリマー層から形成される中間膜を指し、一方、「複数層」又は「多層」という用語は、互いと隣接して互いと接触している 2 以上のポリマー層を有する中間膜を指す。中間膜のそれぞれのポリマー層には、場合によっては 1 種類以上の可塑剤と混合した 1 種類以上のポリマー樹脂を含ませることができ、これを任意の好適な方法によってシートに成形している。中間膜中の 1 以上のポリマー層には更なる添加剤を更に含ませることができるが、これらは必須ではない。

#### 【 0 0 2 6 】

[038]好適な熱可塑性ポリマーの例としては、ポリ(ビニルアセタール)樹脂、ポリウレタン(PU)、ポリ(エチレン-co-ビニルアセテート)樹脂(EVA)、ポリ塩化ビニル(PVC)、ポリ(塩化ビニル-co-メタクリレート)、ポリエチレン、ポリオレフィン、エチレンアクリレートエステルコポリマー、ポリ(エチレン-co-ブチルアクリレート)、シリコーンエラストマー、エポキシ樹脂、並びに上記に示した任意のポリマーから誘導されるエチレン/カルボン酸コポリマー及びそのイオノマーのような酸コポリマー、並びにこれらの組合せを挙げることができるが、これらに限定されない。幾つかの態様においては、多層中間膜の 1 以上の層に熱可塑性ポリマーを含ませることができ、これは、ポリ(ビニルアセタール)樹脂、ポリ塩化ビニル、及びポリウレタンからなる群から選択することができる。幾つかの態様においては、1 以上のポリマー層に少なくとも 1 種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含ませることができる。本明細書においては概してポリ(ビニルアセタール)樹脂について記載するが、本発明の種々の態様にしたがって、下記に記載するポリ(ビニルアセタール)樹脂と一緒に、又はこれに代えて 1 種類以上の上記のポリマー樹脂を含ませることができることを理解すべきである。

#### 【 0 0 2 7 】

[039]ポリウレタンは異なる硬度を有する可能性がある。代表的なポリウレタンポリマーは、ASTM-D2240 にしたがって 85 未満のショア A 硬度を有する。ポリウレタンポリマーの例は、20 未満のガラス転移温度を有する脂肪族イソシアネートポリエーテル系ポリウレタンである AG8451 及び AG5050 (Woburn, MA の Thermedics Inc. から商業的に入手できる) である。EVA ポリマーは、種々の量の酢酸ビニル基を含む可能性がある。望ましい酢酸ビニル含量は、一般に約 10 ~ 約 90 モル % である。より低い酢酸ビニル含量を有する EVA は、低温における遮音のために用いることができる。エチレン/カルボン酸コポリマーは、一般に 1 ~ 25 モル % のカルボン酸含量を有するポリ(エチレン-

10

20

30

40

50

c o - メタクリル酸) 及びポリ(エチレン - c o - アクリル酸)である。エチレン / カルボン酸コポリマーのイオノマーは、アルカリ金属(例えばナトリウム)及びアルカリ金属(alkaline metals)(例えばマグネシウム)の水酸化物、アンモニア、又は亜鉛のような遷移金属の他の水酸化物のような塩基でコポリマーを部分的又は完全に中和することによって得ることができる。好適なイオノマーの例としては、Surlyn(登録商標)イオノマー樹脂(Wilmington, DelawareのDuPontから商業的に入手できる)が挙げられる。

#### 【0028】

[040] 代表的な多層中間膜構造の例としては、P V B / P V B / P V B 及び P V n B / P V i s o B / P V n B (ここで、P V B (ポリビニルブチラール)、P V n B (ポリビニルn - ブチラール)、及び / 又は P V i s o B (ポリビニルイソブチラール)層は、単一の樹脂、又は異なる残留ヒドロキシル含量若しくは異なるポリマー組成を有する2種類以上の樹脂を含む) ; P V C / P V B / P V C、P U / P V B / P U、イオノマー / P V B / イオノマー、イオノマー / P U / イオノマー、イオノマー / E V A / イオノマー、イオノマー / イオノマー / イオノマー(ここで、コア層のP V B (P V i s o B を含む)、P U、E V A、又はイオノマーは、単一の樹脂、又は異なるガラス転移を有する2種類以上の樹脂を含む)が挙げられるが、これらに限定されない。或いは、スキン及びコア層は全て、同じか又は異なる出発樹脂を用いるP V B、P V n B、及び / 又は P V i s o B であってよい。樹脂とポリマーの他の組合せは当業者に明らかであろう。一般に、P V B 樹脂とは、P V n B、又はP V i s o B、或いはP V n BとP V i s o Bの組み合わせを指す。

10

#### 【0029】

[041] 熱可塑性ポリマー樹脂は任意の好適な方法によって形成することができる。熱可塑性ポリマー樹脂がポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む場合には、かかる樹脂は、例えば米国特許2,282,057及び2,282,026、並びに"Vinyl Acetal Polymers", Encyclopedia of Polymer Science & Technology, 3版, vol.8, p.381-399, B.E. Wad e (2003)に記載されているもののような公知の方法にしたがって、ポリ(ビニルアルコール)を触媒の存在下で1種類以上のアルデヒドでアセタール化することによって形成することができる。得られるポリ(ビニルアセタール)樹脂は、A S T M - D 1 3 9 6 にしたがって樹脂のアセタール化%として測定して少なくとも約50重量%、少なくとも約60重量%、少なくとも約70重量%、少なくとも約75重量%、少なくとも約80重量%、少なくとも約85重量%、少なくとも約90重量%の少なくとも1種類のアルデヒドの残基を含んでいてよい。ポリ(ビニルアセタール)樹脂中のアルデヒド残基の全量はアセタール含量として総称することができ、ポリ(ビニルアセタール)樹脂の残りは残留ヒドロキシル基(ビニルヒドロキシル基として)及び残留エステル基(酢酸ビニル基として)であり、これは下記において更に詳細に議論する。

20

#### 【0030】

[042] 好適なポリ(ビニルアセタール)樹脂には任意のアルデヒドの残基を含ませることができ、幾つかの態様においては少なくとも1種類のC<sub>4</sub> ~ C<sub>8</sub>アルデヒドの残基を含ませることができる。好適なC<sub>4</sub> ~ C<sub>8</sub>アルデヒドの例としては、例えばn - ブチルアルデヒド、i - ブチルアルデヒド、2 - メチルバレルアルデヒド、n - ヘキシルアルデヒド、2 - エチルヘキシルアルデヒド、n - オクチルアルデヒド、及びこれらの組み合わせを挙げることができる。本明細書に記載する層及び中間膜において用いるポリ(ビニルアセタール)樹脂の1以上に、樹脂のアルデヒド残基の全重量を基準として少なくとも約20重量%、少なくとも約30重量%、少なくとも約40重量%、少なくとも約50重量%、少なくとも約60重量%、又は少なくとも約70重量%の少なくとも1種類のC<sub>4</sub> ~ C<sub>8</sub>アルデヒドの残基を含ませることができる。或いは、又は更には、ポリ(ビニルアセタール)樹脂に、約99重量%以下、約95重量%以下、約90重量%以下、約85重量%以下、約80重量%以下、約75重量%以下、約70重量%以下、又は約65重量%以下の少なくとも1種類のC<sub>4</sub> ~ C<sub>8</sub>アルデヒドを含ませることができる。C<sub>4</sub> ~ C<sub>8</sub>アルデヒドは上記に示した群から選択することができ、或いはこれはn - ブチルアルデヒド、i -

30

40

50

ブチルアルデヒド、2-エチルヘキシリアルデヒド、及びこれらの組合せからなる群から選択することができる。他の態様においては、ポリ(ビニルアセタール)樹脂に、シンナムアルデヒド、ヘキシリシンナムアルデヒド、ベンズアルデヒド、ヒドロシンナムアルデヒド、4-クロロベンズアルデヒド、4-t-ブチルフェニルアセトアルデヒド、プロピオニアルデヒド、2-フェニルプロピオニアルデヒド、及びこれらの組合せなど(しかしながらこれらに限定されない)の他のアルデヒドの残基を、単独か又は本明細書に記載する1種類以上のC<sub>4</sub>~C<sub>8</sub>アルデヒドと組み合わせて含ませることができる。

#### 【0031】

[043]種々の態様においては、ポリ(ビニルアセタール)樹脂は、主としてn-ブチルアルデヒドの残基を含み、例えば約30重量%以下、約20重量%以下、約10重量%以下、約5重量%以下、約2重量%以下、又は約1重量%以下のn-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含んでいてよいポリ(ビニルブチラール)(PVB)樹脂であってよい。通常は、ポリ(ビニルブチラール)樹脂中に存在するn-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基としては、イソブチルアルデヒド、2-エチルヘキシリアルデヒド、及びこれらの組合せをを挙げることができる。ポリ(ビニルアセタール)樹脂がポリ(ビニルブチラール)樹脂を含む場合には、樹脂の重量平均分子量は、Cotts及びOuanoの低角レーザー光散乱(SEC/LALLS)法を用いてサイズ排除クロマトグラフィーによって測定して少なくとも約30,000ダルトン、少なくとも約50,000ダルトン、少なくとも約80,000ダルトン、少なくとも約100,000ダルトン、少なくとも約130,000ダルトン、少なくとも約150,000ダルトン、少なくとも約175,000ダルトン、少なくとも約200,000ダルトン、少なくとも約300,000ダルトン、又は少なくとも約400,000ダルトンであってよい。

#### 【0032】

[044]一般に、ポリ(ビニルアセタール)樹脂は、ポリ(酢酸ビニル)をポリ(ビニルアルコール)に加水分解し、次にポリ(ビニルアルコール)を1以上の上記のアルデヒドによってアセタール化してポリ(ビニルアセタール)樹脂を形成することによって製造することができる。ポリ(酢酸ビニル)を加水分解するプロセスにおいては、全てのアセテート基がヒドロキシル基に転化する訳ではなく、その結果、残留アセテート基が樹脂上に残留する。同様に、ポリ(ビニルアルコール)をアセタール化するプロセスにおいては、全てのヒドロキシル基がアセタール基に転化する訳ではなく、同様に樹脂上に残留ヒドロキシル基が残留する。その結果、殆どのポリ(ビニルアセタール)樹脂は、ポリマー鎖の一部として、残留ヒドロキシル基(ビニルヒドロキシル基として)、及び残留アセテート基(酢酸ビニル基として)の両方を含む。本明細書において用いる「残留ヒドロキシル含量」及び「残留アセテート含量」という用語は、処理が完了した後に樹脂上に残留するそれぞれヒドロキシル基及びアセテート基の量を指す。残留ヒドロキシル含量及び残留アセテート含量は両方ともポリマー樹脂の重量を基準とする重量%で表され、ASTM-D1396にしたがって測定される。

#### 【0033】

[045]本明細書において記載する1以上のポリマー層中で用いるポリ(ビニルアセタール)樹脂は、少なくとも約8重量%、少なくとも約9重量%、少なくとも約10重量%、少なくとも約11重量%、少なくとも約12重量%、少なくとも約13重量%、少なくとも約14重量%、少なくとも約15重量%、少なくとも約16重量%、少なくとも約17重量%、少なくとも約18重量%、少なくとも約18.5重量%、少なくとも約19重量%、少なくとも約20重量%、少なくとも約21重量%、少なくとも約22重量%、少なくとも約23重量%、少なくとも約24重量%、少なくとも約25重量%、少なくとも約26重量%、少なくとも約27重量%、少なくとも約28重量%、少なくとも約29重量%、少なくとも約30重量%、少なくとも約31重量%、少なくとも約32重量%、又は少なくとも約33重量%の残留ヒドロキシル含量を有していてよい。更に、又は別の態様においては、本発明のポリマー層中で用いる1種類又は複数のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、約45重量%以下、約43重量%以下、約40重量%以下、約37重量%以下、

10

20

30

40

50

約 3 5 重量 % 以下、約 3 4 重量 % 以下、約 3 3 重量 % 以下、約 3 2 重量 % 以下、約 3 1 重量 % 以下、約 3 0 重量 % 以下、約 2 9 重量 % 以下、約 2 8 重量 % 以下、約 2 7 重量 % 以下、約 2 6 重量 % 以下、約 2 5 重量 % 以下、約 2 4 重量 % 以下、約 2 3 重量 % 以下、約 2 2 重量 % 以下、約 2 1 重量 % 以下、約 2 0 重量 % 以下、約 1 9 重量 %、約 1 8 . 5 重量 %、約 1 8 重量 % 以下、約 1 7 重量 % 以下、約 1 6 重量 % 以下、約 1 5 重量 % 以下、約 1 4 重量 % 以下、約 1 3 重量 % 以下、約 1 2 重量 % 以下、約 1 1 重量 % 以下、又は約 1 0 重量 % 以下の残留ヒドロキシル含量を有していてよい。

#### 【 0 0 3 4 】

[046]幾つかの態様においては、1 以上のポリマー層に、少なくとも約 2 0 重量 %、少なくとも約 2 1 重量 %、少なくとも約 2 2 重量 %、少なくとも約 2 3 重量 %、少なくとも約 2 4 重量 %、少なくとも約 2 5 重量 %、少なくとも約 2 6 重量 %、少なくとも約 2 7 重量 %、少なくとも約 2 8 重量 %、少なくとも約 2 9 重量 %、又は少なくとも約 3 0 重量 %、及び / 又は約 4 5 重量 % 以下、約 4 3 重量 % 以下、約 4 0 重量 % 以下、約 3 7 重量 % 以下、約 3 5 重量 % 以下、約 3 4 重量 % 以下、約 3 3 重量 % 以下、又は約 3 2 重量 % 以下の残留ヒドロキシル含量を有する少なくとも 1 種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含ませることができる。10

#### 【 0 0 3 5 】

[047]幾つかの態様においては、1 以上のポリマー層に、少なくとも約 8 重量 %、少なくとも約 9 重量 %、少なくとも約 1 0 重量 %、少なくとも約 1 1 重量 %、少なくとも約 1 2 重量 %、及び / 又は約 1 7 重量 % 以下、約 1 6 重量 % 以下、約 1 5 重量 % 以下、又は約 1 4 重量 % 以下の残留ヒドロキシル含量を有する少なくとも 1 種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含ませることができる。20

#### 【 0 0 3 6 】

[048]ポリマー層又は中間膜が 1 つより多いタイプのポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む場合には、ポリ(ビニルアセタール)樹脂のそれぞれは実質的に同等の残留ヒドロキシル含量を有していてよく、或いはポリ(ビニルアセタール)樹脂の 1 以上は、1 以上の他のポリ(ビニルアセタール)樹脂と実質的に異なる残留ヒドロキシル含量を有していてよい。1 種類より多いポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む幾つかの中間膜の種々の態様を下記において更に詳細に議論する。

#### 【 0 0 3 7 】

[049]本発明による中間膜において用いる 1 種類以上のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、約 2 5 重量 % 以下、約 2 0 重量 % 以下、約 1 8 重量 % 以下、約 1 5 重量 % 以下、約 1 2 重量 % 以下、約 1 0 重量 % 以下、約 8 重量 % 以下、約 6 重量 % 以下、約 4 重量 % 以下、約 3 重量 % 以下、又は約 2 重量 % 以下の残留アセテート含量を有していてよい。或いは、又は更には、本明細書に記載するポリマー層又は中間膜において用いる少なくとも 1 種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、少なくとも約 3 重量 %、少なくとも約 4 重量 %、少なくとも約 5 重量 %、少なくとも約 6 重量 %、少なくとも約 7 重量 %、少なくとも約 8 重量 %、少なくとも約 9 重量 %、少なくとも約 1 0 重量 %、少なくとも約 1 2 重量 %、少なくとも約 1 4 重量 %、又はそれ以上の残留アセテート含量を有していてよい。ポリマー層又は中間膜が 2 種類以上のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む場合には、樹脂は実質的に同等の残留アセテート含量を有していてよく、或いは 1 以上の樹脂は、1 以上の他のポリ(ビニルアセタール)樹脂の残留アセテート含量と異なる残留アセテート含量を有していてよい。40

#### 【 0 0 3 8 】

[050]本発明は、遮音ポリマー中間膜を含む多層パネルを開示する。複数の態様においては、ポリマー中間膜は、モノリス型遮音中間膜又は多層遮音中間膜のいずれか、或いはモノリス型と多層の中間膜の組合せであってよい。遮音又は防音特性を有するモノリス型又は単層のポリマー中間膜は、熱可塑性ポリマー樹脂及び場合によっては可塑剤を混合し、混合物を押出してポリマー中間膜を形成することによって製造することができる。得られる遮音ポリマー中間膜は、通常は 2 5 以下の少なくとも 1 つのガラス転移温度 :  $T_g$

を示す。複数の態様においては、熱可塑性樹脂は上述した熱可塑性ポリマーの1つであつてよい。他の態様においては、熱可塑性樹脂は、ポリ(ビニルブチラール)(PVB)のようなポリ(ビニルアセタール)樹脂である。モノリス型又は単層遮音PVB中間膜は、17重量%以下のような低い残留ヒドロキシル含量(PVOHの重量%)を有するPVB樹脂を、より多い量のトリエチレングリコールジ(2-エチルヘキサノエート)(GEH)のような可塑剤と混合し、混合物を押出してポリマー中間膜を形成することによって製造することができる。或いは、遮音特性を有するモノリス型又は単層PVB中間膜は、18重量%以上のような高い残留ヒドロキシル含量を有するPVB樹脂を、多い量の可塑剤、或いは混合物中の少なくとも1種類の可塑剤が従来の可塑剤(例えばGEH)よりもPVB樹脂を可塑化するのにより有効である複数の可塑剤の混合物と混合することによって製造することができる。遮音特性を示し、多層ガラスパネルを通る音響透過を減少させる多層中間膜(互いに接觸している少なくとも2つの隣接するポリマー層を含む)は、本明細書において更に記載するように2以上の層の間に種々の組成的な変更又は相違が存在するように製造することができる。10

#### 【0039】

[051]本明細書に記載するポリマー層及び中間膜において用いる1種類又は複数のポリマー樹脂には、1種類以上の熱可塑性ポリマー樹脂を含ませることができる。幾つかの態様においては、1種類又は複数の熱可塑性樹脂は、ポリマー層の全重量を基準として少なくとも約50重量%、少なくとも約55重量%、少なくとも約60重量%、少なくとも約65重量%、少なくとも約70重量%、少なくとも約75重量%、少なくとも約80重量%、少なくとも約85重量%、少なくとも約90重量%、又は少なくとも約95重量%の量でポリマー層中に存在させることができる。2種類以上の樹脂を存在させる場合には、それぞれは、ポリマー層又は中間膜の全重量を基準として少なくとも約0.5重量%、少なくとも約1重量%、少なくとも約2重量%、少なくとも約5重量%、少なくとも約10重量%、少なくとも約15重量%、少なくとも約20重量%、少なくとも約25重量%、少なくとも約30重量%、少なくとも約35重量%、少なくとも約40重量%、少なくとも約45重量%、又は少なくとも約50重量%の量で存在させることができる。20

#### 【0040】

[052]本明細書に記載する1以上のポリマー層にはまた、少なくとも1種類の可塑剤を含ませることができる。存在させる場合には、1以上のポリマー層の可塑剤含量は、樹脂100部あたり少なくとも約2部(phr)、少なくとも約5phr、少なくとも約6phr、少なくとも約8phr、少なくとも約10phr、少なくとも約15phr、少なくとも約20phr、少なくとも約25phr、少なくとも約30phr、少なくとも約35phr、少なくとも約40phr、少なくとも約45phr、少なくとも約50phr、少なくとも約55phr、少なくとも約60phr、少なくとも約65phr、少なくとも約70phr、少なくとも約75phr、少なくとも約80phr、及び/又は約120phr以下、約110phr以下、約105phr以下、約100phr以下、約95phr以下、約90phr以下、約85phr以下、約75phr以下、約70phr以下、約65phr以下、約60phr以下、約55phr以下、約50phr以下、約45phr以下、約40phr以下、又は約35phr以下であつてよい。幾つかの態様においては、1以上のポリマー層は、35phr以下、約32phr以下、約30phr以下、約27phr以下、約26phr以下、約25phr以下、約24phr以下、約23phr以下、約22phr以下、約21phr以下、約20phr以下、約19phr以下、約18phr以下、約17phr以下、約16phr以下、約15phr以下、約14phr以下、約13phr以下、約12phr以下、約11phr以下、又は約10phr以下の可塑剤含量を有してよい。3040

#### 【0041】

[053]本明細書において用いる「樹脂100部あたりの部」又は「phr」という用語は、重量基準で樹脂100部あたりに存在する可塑剤の量を指す。例えば、30gの可塑剤を100gの樹脂に加えた場合には、可塑剤含量は30phrである。ポリマー層がが50

2種類以上の樹脂を含む場合には、可塑剤の重量を存在する全樹脂の合計量と比較して樹脂100部あたりの部を求める。更に、本明細書において層又は中間膜の可塑剤含量が与えられている場合には、これは、他に示していない限りにおいて層又は中間膜を製造するために用いた混合物又は溶融体中の可塑剤の量に関して与えられている。

#### 【0042】

[054]未知の可塑剤含量の層に関しては、可塑剤含量は、適当な溶媒又は複数の溶媒の混合物を用いてポリマー層又は中間膜から可塑剤を抽出する湿式化学法によって求めることができる。可塑剤を抽出する前に、試料層の重量を測定し、抽出後にそれから可塑剤が除去された層の重量と比較する。この差に基づいて可塑剤の重量を求めて、可塑剤含量( $\text{phr}$ )を計算することができる。多層中間膜に関しては、ポリマー層を互いから物理的に分離して、上記の手順にしたがって個々に分析することができる。10

#### 【0043】

[055]理論によって縛られることは望まないが、与えられたタイプの可塑剤に関して、ポリ(ビニルアセタール)樹脂中における可塑剤の相溶性は樹脂の残留ヒドロキシル含量と相関する可能性があると理解される。より詳しくは、より高い残留ヒドロキシル含量を有するポリ(ビニルアセタール)樹脂は一般に減少した可塑剤相溶性又は容量を有する可能性があり、一方で、より低い残留ヒドロキシル含量を有するポリ(ビニルアセタール)樹脂は増加した可塑剤相溶性又は容量を示す可能性がある。一般に、ポリマー樹脂に対して適切な量の可塑剤の添加を容易にし、中間膜内の複数の層の間の可塑剤含量の差を安定に維持するために、ポリマーの残留ヒドロキシル含量とその可塑剤相溶性/容量の間のこの相関関係を操作することができる。また、可塑剤の相溶性とポリ(ビニルアセタール)樹脂における残留アセテート含量に関しても、同様の相関関係が存在する可能性がある。20

#### 【0044】

[056]本明細書に記載するポリマー層中において任意の好適な可塑剤を用いることができる。可塑剤は、少なくとも約6、及び/又は約30以下、約25以下、約20以下、約15以下、約12以下、又は約10以下の炭素原子の炭化水素セグメントを有していてよい。種々の態様においては、可塑剤は、従来の可塑剤、又は2種類以上の従来の可塑剤の混合物から選択される。幾つかの態様においては、約1.450未満の屈折率を有する従来の可塑剤としては、トリエチレンジリコールジ(2-エチルヘキサノエート)(3GEH)、トリエチレンジリコールジ(2-エチルブチレート)、テトラエチレンジリコールジ(2-エチルヘキサノエート)(4-GEH)、トリエチレンジリコールジヘプタノエート、テトラエチレンジリコールジヘプタノエート、ジヘキシルアジペート、ジオクチルアジペート、ヘキシルシクロヘキシルアジペート、ジイソノニルアジペート、ヘプチルノニルアジペート、ジ(ブトキシエチル)アジペート、ビス(2-(2-ブトキシエトキシ)エチル)アジペート、ジブチルセバケート、ジオクチルセバケート、ブチルリシノレート、ヒマシ油、ココナツ油脂肪酸のトリエチルグリコールエステル、及びオイル変性セバシン酸アルキド樹脂を挙げることができる。幾つかの態様においては、従来の可塑剤は3GEH(屈折率=25において1.442)である。30

#### 【0045】

[057]幾つかの態様においては、より高い屈折率を有する可塑剤(即ち高屈折率可塑剤)のような当業者に公知の他の可塑剤を用いることができる。本明細書において用いる「高屈折率可塑剤」とは、少なくとも約1.460の屈折率を有する可塑剤である。ここで用いる、本明細書全体において用いられる可塑剤又は樹脂の屈折率(屈折係数としても知られる)は、ASTM-D542にしたがって589nmの波長及び25において測定されるか、或いはASTM-D542にしたがって文献において報告されているもののいずれかである。種々の態様においては、可塑剤の屈折率は、コア及びスキン層の両方に關して少なくとも約1.460、又は約1.470より高く、又は約1.480より高く、又は約1.490より高く、又は約1.500より高く、又は1.510より高く、或いは1.520より高い。幾つかの態様においては、1種類又は複数の高屈折率可塑剤を従来の可塑剤と組み合わせて用い、幾つかの態様においては、含ませる場合には従来の可塑4050

剤は 3 G E H であり、可塑剤混合物の屈折率は少なくとも 1 . 4 6 0 である。好適な可塑剤の例としては、ジプロピレングリコールジベンゾエート、トリプロピレングリコールジベンゾエート、ポリプロピレングリコールジベンゾエート、イソデシルベンゾエート、2 - エチルヘキシルベンゾエート、ジエチレングリコールベンゾエート、ブトキシエチルベンゾエート、ブトキシエトキシエチルベンゾエート、ブトキシエトキシエトキシエチルベンゾエート、プロピレングリコールジベンゾエート、2 , 2 , 4 - トリメチル - 1 , 3 - ペンタンジオールジベンゾエート、2 , 2 , 4 - トリメチル - 1 , 3 - ペンタンジオールベンゾエートイソブチレート、1 , 3 - ブタンジオールジベンゾエート、ジエチレングリコールジ - o - トルエート、トリエチレングリコールジ - o - トルエート、ジプロピレングリコールジ - o - トルエート、1 , 2 - オクチルジベンゾエート、トリ - 2 - エチルヘキシルトリメリテート、ジ - 2 - エチルヘキシルテレフタレート、ビスフェノール A ビス ( 2 - エチルヘキサノエート ) 、ジ ( ブトキシエチル ) テレフタレート、ジ ( ブトキシエトキシエチル ) テレフタレート、ジブトキシエチルフタレート、ジエチルフタレート、ジブチルフタレート、トリオクチルホスフェート、ポリエチレンオキシドロジン誘導体のフェニルエーテル、及びトリクレシルホスフェート、並びにこれらの混合物が挙げられるが、これらに限定されない。幾つかの態様においては、可塑剤には、従来の可塑剤と高屈折率可塑剤の混合物を含ませることができ、又はこれらから構成することができる。

## 【 0 0 4 6 】

[058]更に、少なくとも 1 つのポリマー層にはまた、ポリマー層又は中間膜に特定の特性又は特徴を与えることができる他のタイプの添加剤を含ませることもできる。かかる添加剤としては、染料、顔料、安定剤、例えば紫外線安定剤、酸化防止剤、アンチブロッキング剤、難燃剤、I R 吸収剤又は遮断剤、例えばインジウムスズオキシド、アンチモンスズオキシド、六ホウ化ランタン ( La B<sub>6</sub> ) 、及びセシウムタンゲスタンオキシド、加工助剤、流動向上添加剤、潤滑剤、耐衝撃性改良剤、成核剤、熱安定剤、U V 吸収剤、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、強化添加剤、及び充填剤を挙げることができるが、これらに限定されない。かかる添加剤の具体的なタイプ及び量は、特定の中間膜の最終的な特性又は最終用途に基づいて選択することができる。

## 【 0 0 4 7 】

[059]更に、層又は中間膜のガラスのシートへの接着性を制御するために、1 以上のポリマー層中において種々の接着制御剤 ( A C A ) を用いることができる。種々の態様においては、樹脂組成物、層、又は中間膜中に存在させる A C A の量は、少なくとも約 0 . 0 0 3 p h r 、少なくとも約 0 . 0 1 p h r 、少なくとも約 0 . 0 2 5 p h r 、及び / 又は約 0 . 1 5 p h r 以下、約 0 . 1 0 p h r 以下、約 0 . 0 4 p h r 以下であってよい。好適な A C A としては、残留酢酸ナトリウム、酢酸カリウム、マグネシウムビス ( 2 - エチルブチレート ) 、マグネシウムビス ( 2 - エチルヘキサノエート ) 、及びこれらの組み合わせ、並びに米国特許 5 , 7 2 8 , 4 7 2 において開示されている A C A を挙げることができるが、これらに限定されない。

## 【 0 0 4 8 】

[060]ポリマーのタイプ及び層の組成に応じて、本明細書に記載するポリマー層は広範囲のガラス転移温度を示すことができる。幾つかの態様においては、2 以上のポリマー又はポリマー層を含む中間膜は 2 以上のガラス転移温度を示すことができる。ポリマー材料のガラス転移温度 ( T<sub>g</sub> ) は、材料のガラス状態からゴム状態への転移を示す温度である。本明細書に記載するポリマー層のガラス転移温度は、以下の手順にしたがって動的機械熱分析 ( D M T A ) によって求めた。ポリマーシートを直径 2 5 ミリメートル ( m m ) の試料ディスクに成形する。ポリマー試料ディスクを、Rheometrics Dynamic Spectrometer II の 2 つの直径 2 5 m m の平行プレート試験治具の間に配置する。試料の温度を 2 / 分の速度で - 2 0 から 7 0 へ、又は他の温度範囲で上昇させながら、ポリマー試料ディスクを剪断モードにおいて 1 ヘルツの振動数で試験する。温度に依存してプロットした tan ( 減衰 ) の最大値の位置を用いてガラス転移温度を求める。実験は、この方法が ± 1 の範囲内で再現可能であることを示している。

10

20

30

40

50

## 【0049】

[061]本明細書に記載する中間膜には、少なくとも約 - 20 、少なくとも約 - 10 、少なくとも約 - 5 、少なくとも約 - 1 、少なくとも約 0 、少なくとも約 1 、少なくとも約 2 、少なくとも約 5 、少なくとも約 10 、少なくとも約 15 、少なくとも約 20 、少なくとも約 25 、少なくとも約 27 、少なくとも約 30 、少なくとも約 32 、少なくとも約 33 、少なくとも約 35 、少なくとも約 36 、少なくとも約 37 、少なくとも約 38 、又は少なくとも約 40 のガラス転移温度を有する少なくとも 1 つのポリマー層を含ませることができる。或いは、又は更には、ポリマー層は、約 45 以下、約 44 以下、約 43 以下、約 42 以下、約 41 以下、約 40 以下、約 39 以下、約 38 以下、約 37 以下、約 36 以下、約 35 以下、約 34 以下、約 33 以下、約 32 以下、約 30 以下、約 25 以下、約 20 以下、約 15 以下、約 10 以下、約 5 以下、約 2 以下、約 0 以下、約 - 1 以下、又は約 - 5 以下のガラス転移温度を有していてよい。 10

## 【0050】

[062]幾つかの態様においては、1 以上のポリマー層は、少なくとも約 30 、少なくとも約 32 、少なくとも約 33 、少なくとも約 35 、少なくとも約 36 、少なくとも約 37 、少なくとも約 38 、少なくとも約 39 、又は少なくとも約 40 、及び / 又は約 100 以下、約 90 以下、約 80 以下、約 70 以下、約 60 以下、約 50 以下、約 45 以下、約 44 以下、約 43 以下、約 42 以下、約 41 以下、約 40 以下、約 39 以下、約 38 以下、又は約 37 以下のガラス転移温度を有していてよい。或いは、又は更には、少なくとも 1 つのポリマー層は、少なくとも約 - 10 、少なくとも約 - 5 、少なくとも約 - 2 、少なくとも約 - 1 、少なくとも約 0 、少なくとも約 1 、少なくとも約 2 、又は少なくとも約 5 、及び / 又は約 25 以下、約 20 以下、約 15 以下、約 10 以下、約 5 以下、約 2 以下、約 1 以下、約 0 以下、又は約 - 1 以下のガラス転移温度を有していてよい。ポリマー層又は中間膜が 2 以上のポリマー層を含む場合には、層の少なくとも 1 つは、中間膜内の 1 以上の他のポリマー層と異なるガラス転移温度を有していてよい。多層中間膜の種々の態様は下記において更に詳細に議論する。 20

## 【0051】

[063]本発明の幾つかの態様によれば、中間膜は単層又はモノリス型中間膜であってよい。他の態様においては、中間膜は、少なくとも第 1 のポリマー層及び第 2 のポリマー層を含む多層中間膜であってよい。幾つかの態様においては、多層中間膜にはまた第 3 のポリマー層を含ませることもでき、第 2 のポリマー層は第 1 及び第 3 のポリマー層のそれぞれに隣接してそれぞれと接触させて、第 2 のポリマー層が第 1 及び第 3 のポリマー層の間にサンドイッチされるようにする。本明細書において用いる「第 1 」、「第 2 」、「第 3 」などの用語は種々の部材を説明するために用いるが、かかる部材はこれらの用語によつて不必要に限定すべきではない。これらの用語は 1 つの部材を他から区別するためだけに用いられ、必ずしも具体的な順番又は更には具体的な部材を与えない。例えば、1 つの部材は、矛盾なしに明細書において「第 1 の」部材、特許請求の範囲において「第 2 の」部材とみなすことができる。明細書内及びそれぞれの独立請求項について一貫性が維持されるが、かかる命名は必ずしもそれらの間で一貫していることを意図していない。このような 3 層中間膜は、2 つの外側「スキン」層の間にサンドイッチされている少なくとも 1 つの内側「コア」層を有すると説明することができる。 30

## 【0052】

[064]幾つかの態様においては、中間膜中のポリマー層のそれぞれにポリ(ビニルアセタール)樹脂を含ませることができる。中間膜が多層中間膜である場合には、それに、第 1 のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む第 1 のポリマー層、及び第 2 のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む第 2 のポリマー層を含ませることができる。第 1 及び第 2 のポリマー層は互いに隣接させることができ、又は場合によってはそれらの間に 1 以上の介在ポリマー層を与えることができる。 40

## 【0053】

[065]存在させる場合には、それぞれの第1及び第2のポリマー層の第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂は異なる組成を有していてよい。例えば幾つかの態様においては、第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の残留ヒドロキシル含量と少なくとも約2重量%、少なくとも約3重量%、少なくとも約4重量%、少なくとも約6重量%、少なくとも約7重量%、少なくとも約8重量%、少なくとも約9重量%、少なくとも約10重量%、少なくとも約11重量%、少なくとも約12重量%、少なくとも約13重量%、少なくとも約14重量%、少なくとも約15重量%、少なくとも約16重量%、少なくとも約17重量%、少なくとも約18重量%、少なくとも約19重量%、少なくとも約20重量%、少なくとも約21重量%、少なくとも約22重量%、少なくとも約23重量%、又は少なくとも約24重量%異なる残留ヒドロキシル含量を有していてよい。

10

## 【0054】

[066]更に、又は別の態様においては、第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の残留アセテート含量と少なくとも約2重量%、少なくとも約3重量%、少なくとも約4重量%、少なくとも約5重量%、少なくとも約6重量%、少なくとも約7重量%、少なくとも約8重量%、少なくとも約9重量%、少なくとも約10重量%、少なくとも約11重量%、少なくとも約12重量%、少なくとも約13重量%、少なくとも約15重量%、少なくとも約18重量%、又は少なくとも約20重量%異なる残留アセテート含量を有していてよい。他の態様においては、第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の残留アセテート含量と約2重量%以下、約1.5重量%以下、約1重量%以下、又は約0.5重量%以下異なる残留アセテート含量を有していてよい。

20

## 【0055】

[067]本明細書において用いる「・・・重量%異なる」又は「差は少なくとも・・・重量%である」という用語は、2つの数の間の数学的な差の絶対値を見出す事によって算出される2つの与えられたパーセントの間の差を指す。与えられた値と「異なる」値は、与えられた値よりも高いか又は低くてよい。例えば、第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の残留ヒドロキシル含量と「少なくとも2重量%異なる」残留ヒドロキシル含量を有する第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、第2の残留ヒドロキシル含量よりも少なくとも2重量%高いか又は少なくとも2重量%低い残留ヒドロキシル含量を有していてよい。例えば、例となる第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の残留ヒドロキシル含量が14重量%である場合には、例となる第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂の残留ヒドロキシル含量は、少なくとも16重量% (例えば少なくとも2重量%高い)、又は12重量%以下 (例えば少なくとも2重量%低い) であってよい。

30

## 【0056】

[068]異なる組成を有する結果として、第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂から形成される層又は中間膜の複数の部分は、例えば可塑剤含量の差のために異なる特性を有することができる。上記に記載したように、異なる残留ヒドロキシル含量を有する2種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂を1種類又は複数の可塑剤とブレンドすると、可塑剤は異なる樹脂の間に分配されて、より低い残留ヒドロキシル含量の樹脂から形成される層中により多い量の可塑剤が存在し、より高い残留ヒドロキシル含量の樹脂を含む層の部分により少ない可塑剤が存在するようになる。最終的には、2つの樹脂の間に平衡状態が達成される。ポリ(ビニルアセタール)樹脂の残留ヒドロキシル含量と可塑剤相溶性/容量との間の相関関係によって、ポリマー樹脂に適切な量の可塑剤を加えることを容易にすることができます。また、かかる相関関係によって、可塑剤を他の形態で1つから他へ移動させる際に2以上の樹脂の間の可塑剤含量の差を安定に維持することも促進される。

40

## 【0057】

[069]第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂が異なる残留ヒドロキシル含量を

50

有するか、又は異なる残留アセテート含量を有する場合には、第1及び第2のポリマー層に異なる量の可塑剤を含ませることもできる。その結果、これらの部分のそれぞれが、例えばガラス転移温度のような異なる特性を示すようにすることもできる。幾つかの態様においては、隣接する第1及び第2のポリマー層の間の可塑剤含量の差は、上記に記載したように測定して少なくとも約2 p h r、少なくとも約5 p h r、少なくとも約8 p h r、少なくとも約10 p h r、少なくとも約12 p h r、又は少なくとも約15 p h rであってよい。他の態様においては、隣接する第1及び第2のポリマー層の間の可塑剤含量の差は、少なくとも約18 p h r、少なくとも約20 p h r、少なくとも約25 p h r、少なくとも約30 p h r、少なくとも約35 p h r、少なくとも約40 p h r、少なくとも約45 p h r、少なくとも約50 p h r、少なくとも約55 p h r、少なくとも約60 p h r、又は少なくとも約65 p h rであってよい。  
10

## 【0058】

[070]更に、又は別の態様においては、隣接する第1及び第2のポリマー層の可塑剤含量の間の差は、約40 p h r以下、約35 p h r以下、約30 p h r以下、約25 p h r以下、約20 p h r以下、約17 p h r以下、約15 p h r以下、又は約12 p h r以下であってよい。第1及び第2のポリマー層のそれぞれの可塑剤含量に関する値は、上記に与えた1以上の範囲内であってよい。

## 【0059】

[071]幾つかの態様においては、第1のポリマー層のガラス転移温度は、第2のポリマー層と少なくとも約3、少なくとも約5、少なくとも約8、少なくとも約10、20  
少なくとも約12、少なくとも約13、少なくとも約15、少なくとも約18、  
少なくとも約20、少なくとも約22、少なくとも約25、少なくとも約30、  
少なくとも約35、又は少なくとも約40 異なっていてよい。第1及び第2のポリマー層のそれぞれのガラス転移温度に関する値は、上記に与えた1以上の範囲内であってよい。

## 【0060】

[072]多層中間膜が3つのポリマー層を含む場合には、それぞれ第1、第2、及び第3のポリマー層のそれぞれに、少なくとも1種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂、及び場合によっては上記に詳しく述べたタイプ及び量の可塑剤を含ませることができる。幾つかの態様によれば、第2の内側ポリマー層に、第1及び第3のポリマー層のそれぞれにおけるポリ(ビニルアセタール)樹脂の残留ヒドロキシル含量よりも低い残留ヒドロキシル含量を有する樹脂を含ませることができる。したがって、可塑剤が層の間に分配されると、第2の内側層は、第1及び第3の外側ポリマー層のそれぞれのガラス転移温度よりも低いガラス転移温度を有することができる。理論によって縛られることは望まないが、比較的「硬質」(即ちより高いガラス転移温度)の外側ポリマー層で「軟質」(即ち相対的に低いガラス転移温度)の内側層をサンドイッチしているこのタイプの構造によって、中間膜からの増大した遮音性能を促進させることができる。  
30

## 【0061】

[073]幾つかの態様においては、第1及び第3の外側ポリマー層は同じか又は同様の組成及び/又は特性を有していてよい。例えば幾つかの態様においては、第1のポリマー層中のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、第3のポリマー層中のポリ(ビニルアセタール)樹脂の残留ヒドロキシル含量の約2重量%以内、約1重量%以内、又は約0.5重量%以内の残留ヒドロキシル含量を有していてよい。同様に、第1と第3の層中のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、互いの約2重量%以内、約1重量%以内、又は約0.5重量%以内の残留アセテート含量を有していてよい。更に、第1及び第3の外側ポリマー層は、同等の可塑剤含量を有していてよく、及び/又は同等のガラス転移温度を示していてよい。例えば、第1のポリマー層の可塑剤含量は、第3のポリマー層の可塑剤含量と2 p h r未満、約1 p h r以下、又は約0.5 p h r以下異なっていてよく、及び/又は第1と第3のポリマー層は、2 未満、約1 以下、又は約0.5 以下異なるガラス転移温度を有していてよい。  
40  
50

## 【0062】

[074]本発明の中間膜は任意の好適な方法にしたがって形成することができる。代表的な方法としては、溶液キャスト、圧縮成形、射出成形、溶融押出、メルトブロー、及びこれらの組合せを挙げることができるが、これらに限定されない。2以上のポリマー層を含む多層中間膜はまた、例えば共押出、ブローンフィルム、メルトブロー、浸漬被覆、溶液被覆、プレード塗布、パドル塗布、エアナイフ塗布、印刷、粉末被覆、噴霧被覆、積層、及びこれらの組合せのような任意の好適な方法にしたがって製造することもできる。

## 【0063】

[075]本発明の種々の態様によれば、層又は中間膜は押出又は共押出によって形成することができる。押出プロセスにおいては、1種類以上の熱可塑性樹脂、可塑剤、及び場合によっては上記に記載の1種類以上の添加剤を予め混合して、押出装置中に供給することができる。押出装置は、押出シートを生成させるために熱可塑性組成物に特定のプロファイル形状を与えるように構成する。全体的に上昇した温度及び高粘稠質である押出シートは、次に冷却してポリマーシートを形成することができる。シートを冷却して硬化させたら、それを切断して、その後の中間膜としての貯蔵、輸送、及び/又は使用のために巻き取ることができる。

10

## 【0064】

[076]共押出は、ポリマー材料の複数の層を同時に押出すプロセスである。一般に、このタイプの押出は、一定の体積の処理量の異なる粘度又は他の特性の複数の異なる熱可塑性樹脂溶融体を、溶融し、共押出ダイを通して供給して所望の最終形態にするために2以上の押出機を用いる。共押出プロセスにおいて押出ダイから排出される複数のポリマー層の厚さは、一般に、押出ダイを通る溶融体の相対速度を調節すること、及びそれぞれの溶融した熱可塑性樹脂材料を処理する個々の押出機の寸法によって制御することができる。

20

## 【0065】

[077]本発明の種々の態様による中間膜の全体的な平均厚さは、少なくとも約10ミル、少なくとも約15ミル、少なくとも約20ミル、少なくとも約25ミル、少なくとも約30ミル、又は少なくとも約35ミル(1ミル=0.0254mm)、及び/又は約120ミル以下、約90ミル以下、約75ミル以下、約60ミル以下、約50ミル以下、約45ミル以下、約40ミル以下、約35ミル以下、又は約32ミル以下であってよい。中間膜が2つの基材の間に積層されていない場合には、その平均厚さは、カリパス又は他の同等の装置を用いて中間膜の厚さを直接測定することによって求めることができる。中間膜が2つの基材の間に積層されている場合には、その厚さは、多層パネルの全厚さから基材の合計厚さを減じることによって求めることができる。

30

## 【0066】

[078]幾つかの態様においては、1以上のポリマー層は、少なくとも約1ミル、少なくとも約2ミル、少なくとも約3ミル、少なくとも約4ミル、少なくとも約5ミル、少なくとも約6ミル、少なくとも約7ミル、少なくとも約8ミル、少なくとも約9ミル、又は少なくとも約10ミル、或いはそれ以上の平均厚さを有していてよい。更に、又は別の態様においては、本明細書に記載する中間膜中の1以上のポリマー層は、約25ミル以下、約20ミル以下、約15ミル以下、約12ミル以下、約10ミル以下、約8ミル以下、約6ミル以下、又は約5ミル以下の平均厚さを有していてよい。

40

## 【0067】

[079]幾つかの態様においては、ポリマー層又は中間膜に、シートの長さ若しくは最長寸法及び/又は幅若しくは第2の最長寸法に沿って実質的に同じ厚さを有する平坦なポリマー層を含ませることができる。他の態様においては、中間膜の1以上の層をくさび形状にするか、或いは楔形状のプロファイルを与えて、中間膜の厚さがシートの長さ及び/又は幅に沿って変化して、層又は中間膜の一方の縁部が他の縁部よりも大きい厚さを有するようにすることができる。中間膜が多層中間膜である場合には、中間膜の複数の層の少なくとも1つ、少なくとも2つ、又は少なくとも3つ(又はそれ以上)をくさび形状にすることができる。中間膜がモノリス型中間膜である場合には、ポリマーシートは平坦か又は

50

くさび形状にすることができる。くさび形状の中間膜は、例えば自動車及び航空機用途におけるヘッドアップディスプレイ（H U D）パネルにおいて有用である可能性がある。

【 0 0 6 8 】

[080]ここで図 1～8 b を参照すると、本発明によるくさび形状又はテーパー状の中間膜の幾つかの態様が与えられている。図 1 は、種々の厚さのテーパー状の区域を含む代表的なテーパー状中間膜の断面図である。図 1 に示すように、テーパー状中間膜は、反対側の第 1 及び第 2 の外側末端部を含む。図 1 に示す態様においては、テーパー状の区域の第 1 及び第 2 の境界は、中間膜の第 1 及び第 2 の外側末端部から内側に離隔している。かかる態様においては、中間膜の一部のみがテーパー状である。下記に議論する別の態様においては、中間膜全体がテーパー状である。中間膜全体がテーパー状である場合には、テーパー状の区域の幅は中間膜の幅に等しく、テーパー状の区域の第 1 及び第 2 の境界は、それぞれ第 1 及び第 2 の末端部に位置する。

【 0 0 6 9 】

[081]図 1 に示すように、中間膜のテーパー状の区域は、第 1 及び第 2 のテーパー状の区域の境界が中間膜の第 1 の（上）表面と交差する中間膜の 2 つの点を通って伸びる第 1 の基準線と、第 1 及び第 2 のテーパー状の区域の境界が中間膜の第 2 の（下）表面と交差する 2 つの点を通って伸びる第 2 の基準線との間に形成される角度として規定されるくさび角度（ $\gamma$ ）を有する。テーパー状の区域の第 1 及び第 2 の表面がそれぞれ平面状である場合には、テーパー状の区域のくさび角度は、単純に第 1 の（上）表面と第 2 の（下）表面の間の角度である。しかしながら、下記において更に詳細に議論するように、幾つかの態様においては、テーパー状の区域は、曲線状の厚さプロファイル及び連続的に変化するくさび角度を有する少なくとも 1 つの変動角度の区域を含んでいてよい。更に、幾つかの態様においては、テーパー状の区域は 2 以上の一定角度の区域を含んでいてよく、この場合には、一定角度の区域はそれぞれ線状の厚さプロファイルを有するが、一定角度の区域の少なくとも 2 つは異なるくさび角度を有する。

【 0 0 7 0 】

[082]図 2～7 は、本発明の複数の態様にしたがって構成される種々のテーパー状中間膜を示す。図 2 は、中間膜 2 0 の第 1 の末端部 2 4 a から中間膜 2 0 の第 2 の末端部 2 4 b に完全に及んでいるテーパー状の区域 2 2 を含む中間膜 2 0 を示す。図 3 は、テーパー状の区域 3 2 及び水平の端部区域 3 3 を含む中間膜 3 0 を示す。図 3 に示す中間膜 3 0 は、テーパー状の区域 3 2 全体の全体的なくさび角度よりも大きい一定のくさび角度： $\gamma_c$  を有する。図 4 は、第 1 及び第 2 の水平の端部区域 4 3 a、b の間に位置するテーパー状の区域 4 2 を含む中間膜 4 0 を示す。図 4 に示す中間膜 4 0 は、テーパー状の区域 4 2 全体の全体的なくさび角度よりも大きい一定のくさび角度： $\gamma_c$  を有する。図 5 は、第 1 及び第 2 の水平の端部区域 5 3 a、b の間に位置するテーパー状の区域 5 2 を含む中間膜 5 0 を示す。図 6 は、水平の端部を含まない中間膜 6 0 を示す。それどころか、中間膜 6 0 のテーパー状の区域 6 2 は中間膜 6 0 全体を形成する。図 7 は、第 1 及び第 2 の水平の端部区域 7 3 a、b の間に位置するテーパー状の区域 7 2 を含む中間膜 7 0 を示す。

【 0 0 7 1 】

[083]上記で議論したように、テーパー状中間膜は、それぞれがテーパー状の区域全体の全体的な幅よりも小さい幅を有する 1 以上の一定角度のテーパー状の区域を含んでいてよい。それぞれのテーパー状の区域は、テーパー状の区域全体の全体的なくさび角度と同じか又は異なるくさび角度を有していてよい。例えば、テーパー状の区域は、1 つ、2 つ、3 つ、4 つ、5 つ、又はそれ以上の一定角度のテーパー状の区域を含んでいてよい。複数の一定角度のテーパー状の区域を用いる場合には、一定角度のテーパー状の区域は、隣接する一定角度のテーパー状の区域の間で遷移するように働く変動角度のテーパー状の区域によって互いから離隔していてよい。

【 0 0 7 2 】

[084]幾つかの態様においては、1 つ又は複数の中間膜に加えて、多層パネルにはまた、1 つ又は複数の中間膜及び少なくとも 1 つのポリマーフィルムを含ませることもでき、

10

20

30

40

50

ここで1つ又は複数のポリマーフィルムは、中間膜の2つの層の間に封入するように中間膜の2つの層の間に配することができる。本明細書において記載する多層パネルにおいてポリマーフィルムを用いることによって、赤外吸収性のような他の性能の向上も与えながら、最終パネルの光学的性質又は特性を向上させることができる。ポリマーフィルムは、フィルム単独では必要な貫通抵抗及びガラス保持特性を与えないという点で、ポリマー層又は中間膜とは異なる。ポリマーフィルムはまた一般にはシートより薄く、一般に0.01~0.25mmの範囲の厚さを有していてよい。ポリ(エチレンテレフタレート)(PET)が、ポリマーフィルムを形成するのに用いる材料の一例である。ポリマーフィルムを用いることができる好適な構造の例としては、ガラス/中間膜/フィルム/中間膜/ガラス、及びガラス/中間膜/フィルム/多層中間膜/ガラスが挙げられ、ここでポリマーフィルムは上記に記載したような被覆又は1つ又は複数の任意の他の機能性の層を有していてよい。10

#### 【0073】

[085]幾つかの態様によれば、本発明の多層パネルは、例えばそれが中間膜を通過する際の音響の透過の減少(即ちその音響透過損失)によって示される望ましい遮音特性を示すことができる。幾つかの態様においては、本発明の多層パネルは、ASTM-E90にしたがって20において測定して、50cm×80cmのパネル寸法を有する場合に、少なくとも約34、少なくとも約34.5、少なくとも約35、少なくとも約35.5、少なくとも約36、少なくとも約36.5、少なくとも約37、少なくとも約37.5、少なくとも約38、少なくとも約38.5、少なくとも約39、少なくとも約39.5、少なくとも約40、又は少なくとも約41のコインシデンス周波数における音響透過損失を示すことができる。かかる遮音特性は、上記で詳細に記載したように、例えばガラスの合計厚さが3.7mm未満又はそれより薄い場合であっても達成することができる。20

#### 【0074】

[086]幾つかの態様においては、本明細書に記載する非対称多層パネルは、比較の対称パネルのコインシデンス周波数における音響透過損失よりも少なくとも2dB、少なくとも約2.5dB、少なくとも約3dB、少なくとも約3.5dB、少なくとも約4dB、少なくとも約4.5dB、又は少なくとも約5dB大きいコインシデンス周波数における音響透過損失を示すことができる。本明細書において用いる「比較の対称パネル」という用語は、透明なガラスの2つのシート、及びその間に配置されている単層の従来の中間膜から形成される多層パネルを指す。従来の中間膜は、18.5重量%の残留ヒドロキシル含量、及び2重量%未満の残留アセテート含量を有するポリ(ビニルブチラール)から形成され、38phrの3GEH可塑剤を含む。ガラスの2つのシートは与えられた非対称パネルと同じ合計厚さを有するが、同等の厚さのものであり、比較パネルにおける2つのガラスシートの対称度は1.0である。30

#### 【0075】

[087]更に、又は別の態様においては、本発明の多層パネルは好適な強度を有することができる。例えば幾つかの態様においては、本発明の多層パネルは、下記の実施例2において下記に記載するように測定して少なくとも約15N/mm、少なくとも約20N/mm、少なくとも約25N/mm、少なくとも約30N/mm、少なくとも約35N/mm、少なくとも約40N/mm、少なくとも約45N/mm、少なくとも約50N/mm、少なくとも約55N/mm、少なくとも約60N/mm、少なくとも約70N/mm、又は少なくとも約80N/mmの撓み剛性を有することができる。40

#### 【0076】

[088]本発明の多層パネルは、低い曇り度及び良好な明澄度のような優れた光学特性を有することができる。本発明の多層パネルはまた、所望の最終用途に応じて高い可視透過率(%T<sub>vis</sub>)も有することができる。

#### 【0077】

[089]本明細書に記載する多層パネルは、任意の好適な方法によって形成することができる。通常のガラス積層プロセスは、次の:(1)2つの基材及び中間膜を組み立て;(2)

2 ) I R 放射材又は対流装置によってアセンブリを第 1 の短い時間加熱し ; ( 3 ) アセンブリを、第 1 の脱気のために加压ニップロール中に通し ; ( 4 ) アセンブリを約 60 ~ 約 120 へ短時間加熱して、中間膜の縁部を封止するのに十分な一時的接着をアセンブリに与え ; ( 5 ) アセンブリを第 2 の加压ニップロール中に通して、中間膜の縁部を更に封止して更なる取扱いを可能にし ; そして ( 6 ) アセンブリを、135 ~ 150 の間の温度及び 150 p s i g ~ 200 p s i g の間の圧力において約 30 ~ 90 分間オートクレーブ処理する ; 工程を含む。一態様にしたがって上記の工程 ( 2 ) ~ ( 5 ) において記載した中間膜 - ガラス界面を脱気するための他の方法としては、真空バッグ及び真空リングプロセスが挙げられ、これらの両方も本明細書に記載する本発明の中間膜を形成するために用いることができる。

10

#### 【 0 0 7 8 】

[090]本発明の多層パネルは、例えば、自動車用フロントガラス及び窓、航空機用フロントガラス及び窓、船舶用途、鉄道用途等のような種々の輸送用途用のパネル、窓、扉、階段、通路、バラスター付き手すり、装飾建築パネルのような構造建築パネル、ハリケーン用ガラス又は竜巻用ガラスのような耐候パネル、耐弾パネル、及び他の同様の用途などの種々の最終用途のために用いることができる。

#### 【 実施例 】

#### 【 0 0 7 9 】

[091]以下の実施例は、本発明の種々の態様を製造及び使用することを当業者に教示するため本発明を例示する意図であり、いかなるようにも発明の範囲を限定することは意図しない。

20

#### 【 0 0 8 0 】

##### 実施例 1 :

[092]18 . 5 重量 % の残留ヒドロキシル含量及び 2 重量 % 未満の残留アセテート含量を有するポリ ( ビニルブチラール ) 樹脂 ( 樹脂 B ) を、樹脂 100 部あたり 38 部 ( p h r ) のトリエチレングリコールジ ( 2 - エチルヘキサノエート ) ( 3 G E H ) 可塑剤と溶融ブレンドすることによって、幾つかのポリマーシートを形成した。得られた可塑化樹脂を押出して 0 . 76 mm の厚さを有するポリマーシートを形成し、これを次に切断して、それぞれが 30 のガラス転移温度を有する幾つかの単層中間膜シートにした。この構造を有する中間膜を、ここでは中間膜「 P V B - 1 」又は「従来のモノリス型中間膜」と呼ぶ。

30

#### 【 0 0 8 1 】

[093]また、樹脂 B を、75 p h r の 3 G E H と溶融ブレンドした 10 . 5 重量 % の残留ヒドロキシル含量及び 2 重量 % 未満の残留アセテート含量を有する他のポリ ( ビニルブチラール ) 樹脂 ( 樹脂 A ) と共に押出することによって、幾つかの 3 層 ( 又は三重層 ) 中間膜も形成した。得られた多層中間膜は、可塑化樹脂 A から形成された内側層をサンドイッチしている可塑化樹脂 B から形成された 2 つの外側層を含んでおり、これらはここでは中間膜「 P V B - 2 」と呼ぶ。

#### 【 0 0 8 2 】

[094]次に、上記に記載の単層及び多層中間膜の P V B - 1 及び P V B - 2 を用いて、幾つかの多層パネルを形成した。それぞれのパネルは、種々の厚さを有するガラスの 500 mm × 800 mm の 1 対のシートの間に中間膜を積層することによって形成した。積層は、2 つのガラス基材及び中間膜を、ガラス基材の間に中間膜を配して組み立て ; ( 2 ) アセンブリを約 40 に加熱し ; ( 3 ) アセンブリを第 1 の脱気のために加压ニップロール中に通し ; ( 4 ) アセンブリに対して約 100 への 2 回目の加熱を行って、中間膜の縁部を封止するのに十分な一時的接着をアセンブリに与え ; ( 5 ) アセンブリを第 2 の加压ニップロール中に通して、中間膜の縁部を更に封止して、更なる取扱いを可能にし ; そして ( 6 ) アセンブリを約 143 の温度及び約 190 p s i g の圧力において約 30 分間オートクレーブ処理する ; ことによって行った。それぞれのパネルの構造を下表 1 にまとめる。

40

50

【0083】

【表1】

表1：パネルの構造

ガラスパネル	中間膜	ガラスの構造 (mm/mm)	合計ガラス厚さ (mm)	対称度	
LG-1	PVB-1	1.85/1.85	3.7	1	10
LG-2	PVB-1	2.1/1.6	3.7	0.76	
LG-3	PVB-1	3.0/0.7	3.7	0.23	
LG-4	PVB-1	1.6/1.6	3.2	1	
LG-5	PVB-1	1.9/1.25	3.2	0.66	
LG-6	PVB-2	1.85/1.85	3.7	1	
LG-7	PVB-2	2.1/1.6	3.7	0.76	
LG-8	PVB-2	3.0/0.7	3.7	0.23	
LG-9	PVB-2	1.6/1.6	3.2	1	
LG-10	PVB-2	1.9/1.25	3.2	0.66	

【0084】

[095] ASTM - E 90 によって記載されている手順にしたがって、20において、  
200 Hz ~ 8,000 Hz の範囲にわたる種々の周波数に関して、パネル LG - 1 ~ LG - 10 のそれぞれの音響透過損失を求めた。結果を下表2にまとめる。

【0085】

【表2】

表2：ガラスパネルの音響透過損失

周波数 (Hz)	音響透過損失 (dB) PVB-1 中間膜を用いたパネル					音響透過損失 (dB) PVB-2 中間膜を用いたパネル					30
	LG-1 1.85/1.85	LG-2 2.1/1.6	LG-3 3.0/0.7	LG-4 1.6/1.6	LG-5 1.9/1.25	LG-6 1.85/1.85	LG-7 2.1/1.6	LG-8 3.0/0.7	LG-9 1.6/1.6	LG-10 1.9/1.25	
	200	21.5	19.3	18.6	20.0	20.1	20.7	20.3	20.2	20.6	
200	20.9	21.5	19.3	18.6	20.0	20.1	20.7	20.3	20.2	20.6	40
250	23.3	23.1	23.3	21.3	20.8	24.8	24.8	24.8	22.0	21.1	
315	26.5	26.4	26.3	24.1	23.2	25.8	25.6	25.9	23.4	22.9	
400	28.0	28.0	28.1	26.9	26.0	28.6	28.9	28.1	26.4	25.4	
500	28.8	29.0	28.6	27.3	27.1	30.5	30.3	30.3	28.3	27.5	
630	31.2	31.0	30.4	30.5	30.2	31.6	31.7	31.3	30.9	30.7	
800	32.4	32.4	31.9	31.3	31.1	33.4	33.3	33.0	32.1	32.2	
1000	33.3	33.5	33.3	33.2	33.1	34.7	34.5	34.1	33.8	33.7	
1250	35.0	35.1	35.0	34.4	34.3	36.7	36.4	35.8	35.2	35.1	
1600	35.8	35.7	35.7	35.3	35.2	37.5	37.5	37.2	36.7	36.5	
2000	35.3	35.2	35.1	35.8	35.7	38.4	38.3	37.7	37.7	37.6	50
2500	34.3	34.3	33.9	35.2	35.0	39.8	39.6	38.6	38.5	38.3	
3150	32.0	31.8	30.6	33.0	32.5	40.3	40.1	37.7	39.5	39.2	
4000	31.8	31.7	31.1	30.3	30.1	39.7	39.5	34.5	39.7	39.2	
5000	36.2	36.2	36.4	32.6	32.1	38.4	38.1	34.1	39.4	38.5	
6300	41.2	41.4	41.3	37.4	37.3	38.4	38.1	40.6	38.9	37.1	
8000	43.5	43.7	44.3	40.0	40.1	42.4	42.6	43.7	39.4	38.6	

【0086】

[096] 下表3a及び3bはそれぞれ、従来のモノリス型中間膜 (PVB-1) を用いて形成したパネル LG - 1 ~ LG - 5 のそれぞれ、及び多層 (3層) 中間膜 (PVB-2)

50

を用いて形成したパネル L G - 6 ~ L G - 1 0 のそれぞれに関するコインシデンス周波数における音響透過損失をまとめている。表 3 a 及び 3 b はまた、パネル L G - 2 ~ L G - 5 及び L G - 7 ~ L G - 1 0 のそれぞれに関するコインシデンス周波数における音響透過損失と、同様のモノリス型又は 3 層中間膜を用い、3.7 mm の合計ガラス厚さを有する対称構造のパネル（それぞれ L G - 1 及び L G - 6 ）に関するコインシデンス周波数における音響透過損失との間の差もまとめている。

## 【 0 0 8 7 】

## 【表 3】

表 3 a : コインシデンス周波数における音響透過損失 : モノリス型中間膜

ガラス パネル	中間膜	ガラスの 構造 (mm/mm)	合計ガラ ス厚さ (mm)	対称度	コインシ デンス 周波数 (Hz)	コインシデ ンス周波数 における 透過損失 (dB)	LG-1 から の TL の減少 (dB)
LG-1	PVB-1	1.85/1.85	3.7	1	4000	31.9	-
LG-2	PVB-1	2.1/1.6	3.7	0.76	4000	31.8	-0.1
LG-3	PVB-1	3.0/0.7	3.7	0.23	3150	30.6	-1.3
LG-4	PVB-1	1.6/1.6	3.2	1	4000	30.3	-1.6
LG-5	PVB-1	1.9/1.25	3.2	0.66	4000	30.1	-1.8

10

20

表 3 b : コインシデンス周波数における音響透過損失 : 3 層中間膜

ガラス パネル	中間膜	ガラスの 構造 (mm/mm)	合計ガラ ス厚さ (mm)	対称度	コインシ デンス周波数 (Hz)	コインシデ ンス周波数 における 透過損失 (dB)	LG-1 から の TL の減少 (dB)
LG-6	PVB-2	1.85/1.85	3.7	1	5000~6300	38.4	-
LG-7	PVB-2	2.1/1.6	3.7	0.76	5000~6300	38.1	-0.3
LG-8	PVB-2	3.0/0.7	3.7	0.23	5000	34.1	-4.3
LG-9	PVB-2	1.6/1.6	3.2	1	6300	38.9	0.5
LG-10	PVB-2	1.9/1.25	3.2	0.66	6300	37.1	-1.3

30

## 【 0 0 8 8 】

[097] 上表 2 及び 3 a において示されるように、従来のモノリス型中間膜である P V B - 1 を含むパネル（ L G - 1 ~ L G - 5 ）はいずれも、コインシデンス周波数領域において 32 dB より大きい音響透過損失（ S T L ）を達成しない。対称構造及び 3.7 mm の合計ガラス厚さを有するパネルの L G - 1 は、コインシデンス周波数において最良の性能を示す。しかしながら、上表 2 及び 3 a におけるパネル L G - 1 ~ L G - 3 に関する結果を比較することによって示されるように、3.7 mm の合計ガラス厚さを維持しながら P V B - 1 から形成されたパネルにおいて個々のガラスシートの厚さを変化させると、音響透過損失における変化の比較的少量の差がもたらされる。例えばそれぞれ 3.2 mm の合計ガラス厚さを有し、それぞれ 1 及び 0.66 の対称度を有するパネルの L G - 4 及び L G - 5 によって示されるように、より小さい合計厚さにおいても同様の傾向を観察することができる。

40

## 【 0 0 8 9 】

[098] 対照的に、表 2 及び 3 b において示されるように、同じ合計ガラス厚さを維持しながら 3 層中間膜（ P V B - 2 ）から形成されたパネルにおいて個々のガラスシートの厚さを変化させると、コインシデンス周波数における音響透過損失におけるより顕著な変化

50

がもたらされる。例えば、パネル L G - 6 をパネル L G - 7 及び L G - 8 と比較する（そのグラフ表示を図 9 に与える）ことによって示されるように、対称度がより低いガラス構造（即ち 1 未満の対称度）は、コインシデンス周波数においてより低い音響透過損失をもたらす。表 3 b 及び図 9 において示されるように、3 層中間膜から形成されたパネルがコインシデンス周波数において少なくとも 34 dB の音響透過損失を示す最小の対称度は 0.23 である。0.23 未満の対称度を有する同様のパネルに関するコインシデンス周波数における音響透過損失は 34 dB 未満になると予測され、これは遮音性能が必要な用途において用いるのには一般に好適でない。

## 【0090】

実施例 2 :

10

[099] 2 つのモノリス型中間膜の PVB - 1 及び PVB - 4 を用いて多層パネルを形成した。中間膜 PVB - 1 は、38 phr の 3GEH 可塑剤を、実施例 1 に記載した 18.5 重量 % の残留ヒドロキシル含量、2 重量 % 未満の残留アセテート含量、及び 30 のガラス転移温度を有するポリ（ビニルブチラール）樹脂と、30 ミルの平均厚さを有する平坦なポリマーシートとして溶融ブレンドすることによって形成した。また、同じポリ（ビニルブチラール）樹脂を 38 phr の 3GEH 可塑剤と溶融ブレンドし、得られた可塑化樹脂を押出して、0.43 mmrad のくさび角度及び 30 のガラス転移温度を有するくさび形状の中間膜を形成することによって、他の従来のモノリス型中間膜（PVB - 4）も形成した。

## 【0091】

20

[0100] また、2 種類の異なるポリ（ビニルブチラール）樹脂を、異なる組成のより軟質の内側層に隣接してそれと接触させた同様の組成を有する 2 つの硬質の外側層を含む 3 層構造に共押出することによって、2 つの多層中間膜 PVB - 2 及び PVB - 3 も形成した。中間膜 PVB - 2 は、上記の実施例 1 に記載したように調製及び構成し、中間膜 PVB - 3 は、外側層を 22 重量 % の残留ヒドロキシル含量及び 2 重量 % 未満の残留アセテート含量を有するポリ（ビニルブチラール）樹脂（樹脂 D）及び 27 phr の 3GEH 可塑剤から形成し、内側層を 70 phr の 3GEH で可塑化した 9 重量 % の残留ヒドロキシル含量及び 2 重量 % 未満の残留アセテート含量を有するポリ（ビニルブチラール）樹脂（樹脂 C）から形成した他は同じように構成した。中間膜 PVB - 2 の外側層は 30 のガラス転移温度を有し、一方で中間膜 PVB - 3 の外側層は 42 のガラス転移温度を有していた。中間膜 PVB - 2 及び PVB - 3 の内側層のガラス転移温度は -2 であった。PVB - 2 及び PVB - 3 は両方とも、33 ミルの平均厚さを有し、4.5 ミルの平均内側層厚さを有していた。

30

## 【0092】

[0101] 他の 3 層中間膜の PVB - 5 は、PVB - 5 が 0.43 mmrad のくさび角度を有するくさび形状の中間膜であった他は、PVB - 2 と同じように調製及び構成した。中間膜の PVB - 5 は、4.5 ミルの内側層厚さ、及びより薄い端部において 31 ミルの中間膜の厚さを有していた。中間膜 PVB - 6 は、0.43 mmrad のくさび角度及びより薄い端部において 53 ミルの中間膜厚さを有するくさび形状の中間膜であり、中間膜 PVB - 3 と PVB - 4 を組み合わせて 1 つの中間膜を形成することによって調製した。或いは所望の場合には、PVB - 6 中間膜は、PVB - 6 がくさび形状を有する他は PVB - 3 を形成するのに用いたものと同様の方法で可塑化樹脂 D 及び樹脂 C を用いる共押出プロセスを用いることによって形成することができるであろう。PVB - 1 ~ PVB - 6 中間膜のそれぞれの具体的な構造を下表 4 にまとめる。

40

## 【0093】

【表4】

【 0 0 9 4 】

[0102]上記に記載のPVB-1～PVB-6中間膜の試料を、種々の厚さの透明なガラスの500mm×800mmのシートの対の間に積層することによって、幾つかの多層パネルを形成した。得られたパネル(LG-11～LG-39)のそれぞれの構造を下表5にまとめる。パネルLG-11～LG-37のそれぞれについて、ASTM-E90にしたがって20においてコインシデンス周波数における音響透過損失を求め、この結果も下表5に与える。

【 0 0 9 5 】

## 【表5】

表5：ガラスパネルに関する  
コインシデンス周波数における音響透過損失

ガラスパネル	中間膜	ガラスシート1の厚さ (mm)	ガラスシート2の厚さ (mm)	合計厚さ (mm)	対称度	コインシデンス周波数 (Hz)	コインシデンス周波数における透過損失 (dB)	
LG-11	PVB-1	2.1	2.1	4.2	1	3150	31.3	10
LG-12	PVB-1	1.85	1.85	3.7	1	4000	31.9	
LG-13	PVB-1	1.6	1.6	3.2	1	4000	30.3	
LG-14	PVB-1	2.1	1.6	3.7	0.76	4000	31.8	
LG-15	PVB-1	1.9	1.25	3.15	0.66	4000	30.1	
LG-16	PVB-1	1.6	0.7	2.3	0.44	5000	28.8	
LG-17	PVB-1	2.1	0.7	2.8	0.33	4000	29.0	
LG-18	PVB-1	2.3	0.7	3.0	0.30	4000	29.6	
LG-19	PVB-1	3	0.7	3.7	0.23	3150	30.6	
LG-20	PVB-2	2.1	2.1	4.2	1	5000	38.2	
LG-21	PVB-2	1.85	1.85	3.7	1	5000~6300	38.4	20
LG-22	PVB-2	1.6	1.6	3.2	1	6300	38.9	
LG-23	PVB-2	2.1	1.6	3.7	0.76	5000~6300	38.1	
LG-24	PVB-2	1.9	1.25	3.15	0.66	6300	37.1	
LG-25	PVB-2	1.6	0.7	2.3	0.44	8000	36.7	
LG-26	PVB-2	2.1	0.7	2.8	0.33	6300	35.6	
LG-27	PVB-2	2.3	0.7	3.0	0.30	6300	35.6	
LG-28	PVB-2	3	0.7	3.7	0.23	5000	34.1	
LG-29	PVB-3	2.1	2.1	4.2	1	5000	39.3	
LG-30	PVB-3	1.85	1.85	3.7	1	-	-	
LG-31	PVB-3	1.6	1.6	3.2	1	6300	39.4	30
LG-32	PVB-3	2.1	1.6	3.7	0.76	5000~6300	38.5	
LG-33	PVB-3	1.9	1.25	3.15	0.66	-	-	
LG-34	PVB-3	1.6	0.7	2.3	0.44	8000	37.4	
LG-35	PVB-3	2.1	0.7	2.8	0.33	5000	36.5	
LG-36	PVB-3	2.3	0.7	3.0	0.30	5000	35.6	
LG-37	PVB-3	3	0.7	3.7	0.23	5000	34.5	
LG-38	PVB-5	1.6	0.7	2.3	0.44	-	-	
LG-39	PVB-6	1.6	0.7	2.3	0.44	-	-	

## 【0096】

[0103]上表5に示されるように、単層の非遮音PVB-1中間膜を用いるパネルのLG-11～LG-19に関する音響透過損失においては明確な傾向はない。遮音中間膜PVB-2及びPVB-3を用いたパネルは、減少した対称度のガラス構造を用いると減少した音響透過損失を示す傾向を有する。また、中間膜PVB-3を含むパネルのLG-29～LG-37に関する対称度の関数としてのコインシデンス周波数における音響透過損失を、図12にグラフでまとめる。上表5に示されるように、0.23の対称度においては、パネルLG-28及びLG-37によって示された音響透過損失は34dBより高く、これは対称構造の非遮音パネルのLG-1～LG-3よりも高い。しかしながら、PVB-3(3層遮音中間膜)から形成したパネルの対称度を更に減少させると、音響透過損失が、非遮音PVB層から形成したパネルの音響透過損失の値付近の値まで減少する。

## 【0097】

40

50

[0104] LG-11～LG-13、LG-20～LG-22、及びLG-29～LG-31を比較することによって示されるように、これらのパネルのコインシデンス周波数における音響透過損失は、ガラス厚さとは無関係であると思われる。例えば、LG-11～LG-13、LG-20～LG-22、及びLG-29～LG-31のそれぞれは1の対称度を有するが、4.2mm (LG-11、LG-20、及びLG-29)、3.7mm (LG-12、LG-21、及びLG-30)、並びに3.2mm (LG-12、LG-22、及びLG-31)の合計ガラス厚さを有する。合計ガラス厚さの差にかかわらず、LG-11～LG-13、LG-20～LG-22、及びLG-29～LG-31の群のそれぞれは、コインシデンス周波数において同等の音響透過損失を示す。而して、合計ガラス厚さのみを調節しても、パネルの音響透過損失は十分には変化しないと思われる。 10

#### 【0098】

[0105] また、3点曲げ試験を用いて幾つかのパネルの撓み剛性も試験した。3点曲げ試験を行うために用いた装置の図を図10に与える。50%の一定の湿度及び23℃の温度において2時間コンディショニングした後、試験パネルを図10に示す装置中に装填した。15cmのスパンの2つの固定した支持材をパネルの下側に当て、0.953cmの直径及び5.08cmの長さを有する円筒形のロッドを第3の点であるパネルの上側のその中央付近に当てた。次に、第3の点において力を加えて、試験パネルに対して約1.27mm/分の一定の速度を生成させた。試験パネルに対する荷重(N)、及びパネルの撓み(cm)に関する値を記録した。図11に与える代表的なグラフと同じようにこれらの値を互いにに対してプロットし、荷重における明白な降下(これは一般にパネルの破損を表す)の前の荷重とパネルの撓みとをグラフ化することによって作成された線の平均勾配を求ることによって、パネルの撓み剛性を計算した。試験したパネルに関する結果を下表6にまとめた。 20

#### 【0099】

#### 【表6】

表6：ガラスパネルの撓み剛性

ガラスパネル	中間膜	ガラスの構造 (mm/mm)	合計ガラス厚さ (mm)	撓み剛性 (N/mm)	コインシデンス周波数 (Hz)	コインシデンス周波数における透過損失(dB)
LG-13	PVB-1	1.6/1.6	3.2	26	4000	30.3
LG-14	PVB-1	2.1/1.6	3.7	38	4000	31.8
LG-11	PVB-1	2.1/2.1	4.2	54	3150	31.3
LG-22	PVB-2	1.6/1.6	3.2	21	6300	38.9
LG-23	PVB-2	2.1/1.6	3.7	31	5000～6300	38.1
LG-20	PVB-2	2.1/2.1	4.2	48	5000	38.2
LG-31	PVB-3	1.6/1.6	3.2	30	6300	39.4
LG-32	PVB-3	2.1/1.6	3.7	47	5000～6300	38.5
LG-29	PVB-3	2.1/2.1	4.2	58	5000	39.3

#### 【0100】

[0106] 上表6において示されるように、より硬質の外側層を含むPVB-3を含むパネルは、PVB-2又はPVB-1中間膜から形成されたパネルよりも高い撓み剛性を示す。更に、PVB-3中間膜から形成されたパネルはまた、上表6において示すように全てのガラス構造に関してより高いコインシデンス周波数における音響透過損失も示す。したがって、例えばLG-31とLG-23を比較することによって示されるように、PVB-3中間膜を用いたパネルは、より高い音響透過損失(LG-23に関して38.1dBと比べてLG-31に関して39.4dB)を更に与え、且つ同等の撓み剛性(LG-23に関して31N/mmと比べてLG-31に関して30N/mm)を示しながら、より 50

低い合計ガラス厚さ (LG-23 に関して 3.7 mm と比べて LG-31 に関して 3.2 mm) を用いることができる。

【0101】

[0107] 好ましい態様であると現在考えられているものを含む幾つかの態様の記載に関連して発明を開示したが、詳細な説明は例示の意図であり、本発明の範囲を限定すると理解すべきではない。当業者に理解されるように、本明細書において詳細に記載されているもの以外の態様は本発明に包含される。発明の精神及び範囲から逸脱することなく、記載されている態様の修正及び変更を行うことができる。

【0102】

[0108] 更に、本発明の任意の単一の構成要素に関して与えられている任意の範囲、値、又は特徴は、互換的な場合には、本発明の任意の他の構成要素に関して与えられている任意の範囲、値、又は特徴と互換的に用いて、本明細書全体にわたって与えられているそれぞれの構成要素に関して規定されている値を有する一態様を形成することができることが理解される。例えば、与えられている任意の範囲の可塑剤を含むことに加えて、与えられている任意の範囲の残留ヒドロキシル含量を有するポリ(ビニルブチラール)を含む中間膜を形成して、本発明の範囲内であるが、列記するのは煩雑である多くの変形体を形成することができる。更に、フタレート又はベンゾエートのような属又はカテゴリーに関して与えられている範囲はまた、他に示していない限りにおいて、ジオクチルテレフタレートのようなそのカテゴリーの属又は構成要素の中の種に適用することもできる。

本発明は以下の実施態様を含む。

10

(1) 第1の呼び厚さを有する第1の基材；

第1の呼び厚さよりも少なくとも 0.1 mm 小さい第2の呼び厚さを有する第2の基材；並びに

第1及び第2の基材の間に配置されてそれぞれと接触している多層中間膜；  
を含み；

多層中間膜は、

第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第1のポリマー層；

第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第2のポリマー層；並びに

第3のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第3のポリマー層；

を含み；

第2のポリマー層は第1及び第3のポリマー層のそれぞれに隣接してそれぞれと接触している、第2のポリマー層が第1及び第3のポリマー層の間にサンドイッチされるようになっており；

第1、第2、及び第3のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、それぞれ第1、第2、及び第3の残留ヒドロキシル含量を有し、第1及び第3の残留ヒドロキシル含量の少なくとも一方は少なくとも 20 重量 % であり、第2の残留ヒドロキシル含量は、第1及び第3の残留ヒドロキシル含量のそれぞれよりも少なくとも 2 重量 % 低く；

第1、第2、及び第3のポリマー層は、それぞれ第1、第2、及び第3のガラス転移温度を有し、第2のガラス転移温度は、第1及び第3のガラス転移温度のそれぞれよりも少なくとも 13 低く；

第2の呼び厚さと第1の呼び厚さとの比は少なくとも 0.23 : 1 乃至 1 : 1 未満の範囲であり、第1及び第2の呼び厚さの合計は 3.7 mm 未満である多層パネル。

(2) 第2の呼び厚さは第1の呼び厚さよりも少なくとも 0.5 mm 小さい、(1)に記載の多層パネル。

(3) 第2の呼び厚さと第1の呼び厚さとの比は 0.75 : 1 以下である、(1)に記載の多層パネル。

(4) 第1及び第3の残留ヒドロキシル含量のそれぞれは少なくとも 20 重量 % である、

20

30

40

50

(1)に記載の多層パネル。

(5)第1及び第3の残留ヒドロキシル含量の少なくとも一方は少なくとも22重量%である、(1)に記載の多層パネル。

(6)多層パネルは、ASTM-E90にしたがって測定して少なくとも34dBのコインシデンス周波数における音響透過損失を示す、(1)に記載の多層パネル。

(7)中間膜は少なくとも1つのテーパー状の区域を含み、テーパー状の区域は少なくとも0.10mmradの最小くさび角度を有する、(1)に記載の多層パネル。

(8)第1の呼び厚さを有する第1の基材；

第1の呼び厚さよりも少なくとも0.5mm小さい第2の呼び厚さを有する第2の基材；並びに

第1及び第2の基材の間に配置されてそれぞれと接触している多層中間膜；  
を含み；

多層中間膜は、

第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第1のポリマー層；

第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第2のポリマー層；並びに

第3のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第3のポリマー層；

を含み；

第2のポリマー層は第1及び第3のポリマー層のそれぞれに隣接してそれぞれと接触している、第2のポリマー層が第1及び第3のポリマー層の間にサンドイッチされるようになっており；

第1、第2、及び第3のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、それぞれ第1、第2、及び第3の残留ヒドロキシル含量を有し、第1及び第3の残留ヒドロキシル含量の少なくとも一方は少なくとも20重量%であり、第2の残留ヒドロキシル含量は、第1及び第3の残留ヒドロキシル含量のそれぞれよりも少なくとも2重量%低く；

第2の呼び厚さと第1の呼び厚さとの比は少なくとも0.23:1乃至1:1未満の範囲であり、第1及び第2の呼び厚さの合計は3.7mm未満であり；

多層パネルはASTM-E90にしたがって測定して少なくとも34dBのコインシデンス周波数における音響透過損失を示す多層パネル。

(9)第2の呼び厚さと第1の呼び厚さとの比は0.75:1以下である、(8)に記載の多層パネル。

(10)第2の呼び厚さは1.5mm未満である、(8)に記載の多層パネル。

(11)第1、第2、及び第3のポリマー層は、それぞれ第1、第2、及び第3のガラス転移温度を有し、第2のガラス転移温度は、第1及び第3のガラス転移温度のそれぞれよりも少なくとも13低い、(8)に記載の多層パネル。

(12)2つの外側ポリマー層のそれぞれは樹脂100部あたり35部(phr)未満の可塑剤含量を有し、内側ポリマー層は2つの外側ポリマー層のそれぞれよりも少なくとも10phr高い可塑剤含量を有する、(11)に記載の多層パネル。

(13)中間膜の少なくとも1つの層は少なくとも40のガラス転移温度を有する、(8)に記載の多層パネル。

(14)中間膜は、それぞれ2.1mmの厚さを有するガラスの2つのシートの間で積層した場合に少なくとも50N/mmの撓み剛性を有する、(8)に記載の多層パネル。

(15)中間膜は少なくとも1つのテーパー状の区域を含み、テーパー状の区域は少なくとも0.10mmradの最小くさび角度を有する、(8)に記載の多層パネル。

(16)第1の呼び厚さを有する第1の基材；

1.5mm未満である第2の呼び厚さを有する第2の基材；並びに

第1及び第2の基材の間に配置されてそれぞれと接触している多層中間膜；  
を含み；

多層中間膜は、

第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第1のポリマー層；

第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第2のポリマー層；並びに

第3のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含む第3のポリマー層；

を含み；

第2のポリマー層は第1及び第3のポリマー層のそれぞれに隣接してそれぞれと接触している、第2のポリマー層が第1及び第3のポリマー層の間にサンドイッチされるようになつてあり；

第1、第2、及び第3のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、それぞれ第1、第2、及び第3の残留ヒドロキシル含量を有し、第1及び第3の残留ヒドロキシル含量の少なくとも一方は少なくとも20重量%であり、第2の残留ヒドロキシル含量は、第1及び第3の残留ヒドロキシル含量のそれぞれよりも少なくとも2重量%低く；

第2の呼び厚さと第1の呼び厚さとの比は少なくとも0.23:1乃至1:1の範囲であり；

多層パネルはASTM-E90にしたがつて測定して少なくとも34dBのコインシデンス周波数における音響透過損失を示す多層パネル。

(17) 中間膜の少なくとも1つの層は少なくとも40のガラス転移温度を有する、(16)に記載の多層パネル。

(18) 第1、第2、及び第3のポリマー層は、それぞれ第1、第2、及び第3のガラス転移温度を有し、第2のガラス転移温度は、第1及び第3のガラス転移温度のそれぞれよりも少なくとも13低い、(16)に記載の多層パネル。

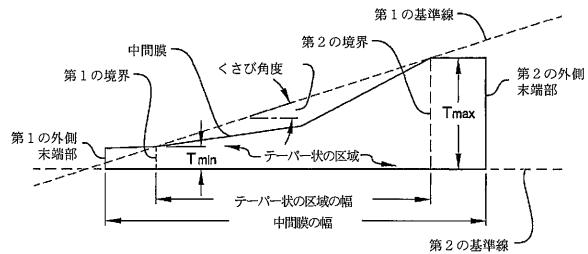
(19) 第1及び第2の呼び厚さの合計は3.7mm未満である、(16)に記載の多層パネル。

(20) 中間膜は少なくとも1つのテーパー状の区域を含み、テーパー状の区域は少なくとも0.10mradの最小くさび角度を有する、(16)に記載の多層パネル。

10

20

【図1】



【図4】

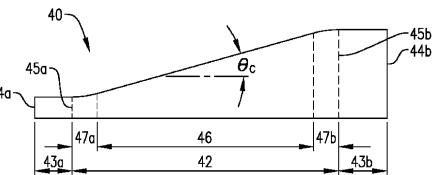


FIG. 4

【図2】

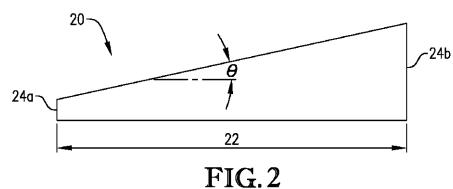


FIG. 2

【図5】

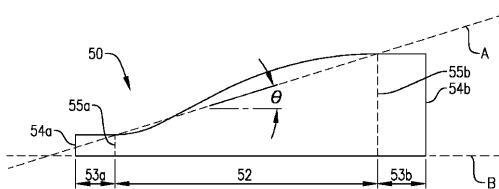


FIG. 5

【図3】

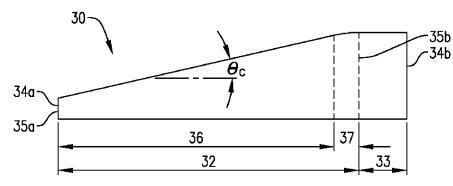


FIG. 3

【図6】

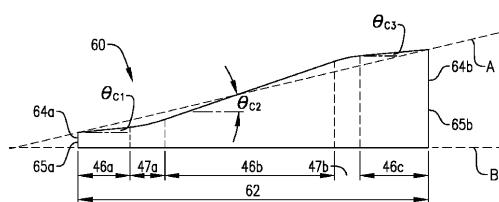


FIG. 6

【図7】

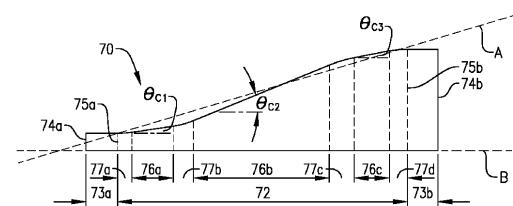


FIG. 7

【図8 b】

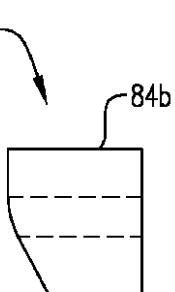


FIG. 8b

【図8 a】

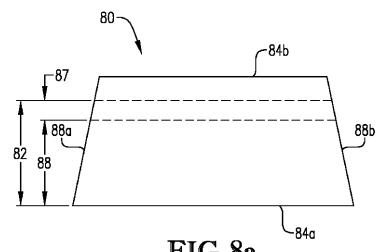
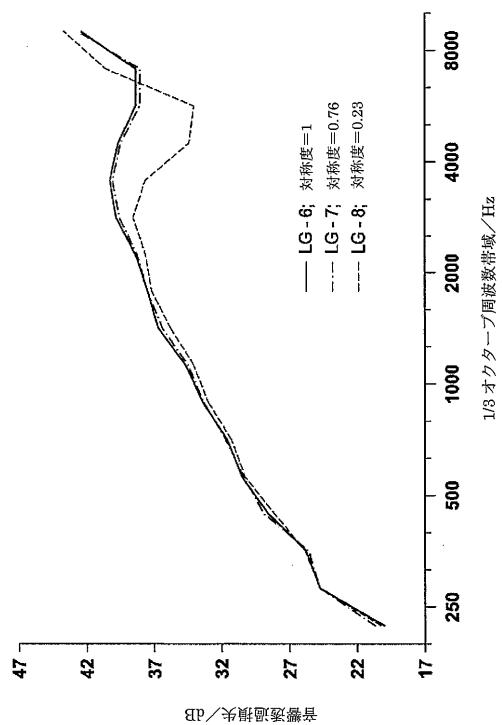
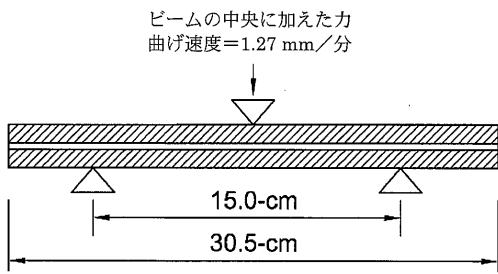


FIG. 8a

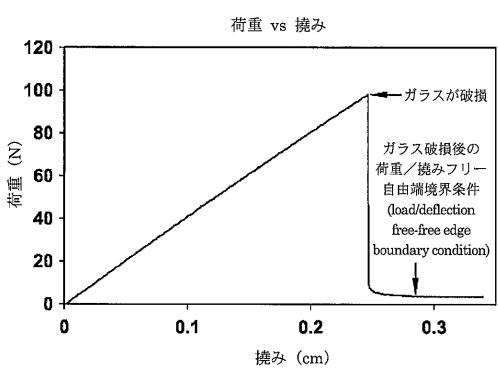
【図 9】



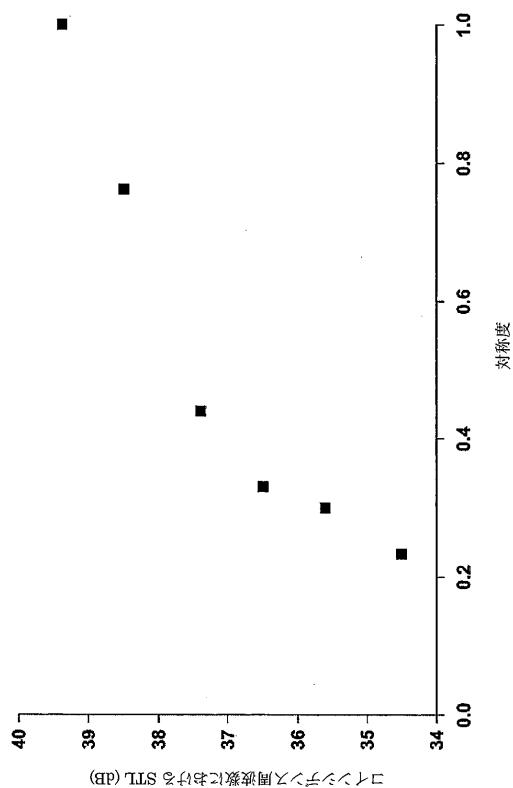
【図 10】



【図 11】



【図 12】



---

フロントページの続き

(51)Int.CI. F I  
B 3 2 B 3/26 (2006.01) B 3 2 B 17/10  
B 3 2 B 3/26 Z

(72)発明者 ルー, ジュン  
アメリカ合衆国マサチューセッツ州01028, イースト・ロングメドー, ストーンヒル・ロード  
16

審査官 團野 克也

(56)参考文献 特表2015-516934 (JP, A)  
特表2008-532917 (JP, A)  
特開2015-155376 (JP, A)  
特表2014-523389 (JP, A)  
特表2015-525185 (JP, A)  
米国特許出願公開第2014/0363651 (US, A1)

(58)調査した分野(Int.CI., DB名)

IPC B 3 2 B 1/00 - 43/00  
C 0 3 C 2 7 / 0 0 - 2 9 / 0 0