(19)日本国特許庁(JP)　(12)公表特許公報(A)　(11)公表番号
特表2024-527727
(P2024-527727A)
(43)公表日　令和6年7月26日(2024.7.26)

(51)国際特許分類		FI		テーマコード（参考）
C08L	*9/00 (2006.01)*	C08L	9/00	3J048
C08L	*47/00 (2006.01)*	C08L	47/00	4F100
C08L	*23/20 (2006.01)*	C08L	23/20	4J002
C08L	*57/02 (2006.01)*	C08L	57/02	5D061
C08K	*3/013(2018.01)*	C08K	3/013	

審査請求　未請求　予備審査請求　未請求　（全31頁）　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2024-500307(P2024-500307)
(86)(22)出願日　令和4年7月5日(2022.7.5)
(85)翻訳文提出日　令和6年1月5日(2024.1.5)
(86)国際出願番号　PCT/EP2022/068506
(87)国際公開番号　WO2023/280804
(87)国際公開日　令和5年1月12日(2023.1.12)
(31)優先権主張番号　21184352.9
(32)優先日　令和3年7月7日(2021.7.7)
(33)優先権主張国・地域又は機関
欧州特許庁(EP)
(81)指定国・地域　AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,
最終頁に続く

(71)出願人　506416400
シーカ テクノロジー アクチェンゲゼルシャフト
スイス国，ツェーハー－６３４０ バール，ツガーシュトラーセ ５０
(74)代理人　100099759
弁理士　青木 篤
(74)代理人　100123582
弁理士　三橋 真二
(74)代理人　100123593
弁理士　関根 宣夫
(74)代理人　100208225
弁理士　青木 修二郎
(74)代理人　100217179
弁理士　村上 智史
最終頁に続く

(54)【発明の名称】　改良された低温接着性を有する音響減衰材料

(57)【要約】
本発明は、少なくとも１種のポリブタジエンＰＢ、少なくとも１種の２５℃で液状のゴムＬＲ、少なくとも１種のブチルゴムＢＲ、少なくとも１種の天然若しくは合成のポリイソプレンＰＩ、少なくとも１種の炭化水素樹脂ＨＲ、及び、少なくとも１種の固体粒子充填剤ＦＭを含む、音響減衰材料を目的としている。その音響減衰材料は、機械的構造物及び製品の構成要素における、望ましくない振動及び騒音を減衰させるために使用するのに好適である。本発明はまた、輸送車両及び白物家電における振動及び騒音を減衰させるための、その音響減衰材料の使用；その音響減衰材料で構成される接着層を含む振動及び騒音の減衰要素；基材の騒音を発生する表面に対して、振動及び騒音の減衰要素を適用する方法；並びに、基材及びその基材の騒音を発生する表面に対して接着された振動及び騒音の減衰要素を含む振動減衰されたシステム、も目的としている。

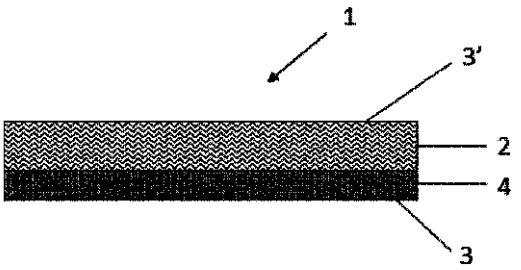
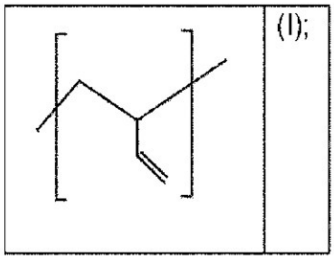
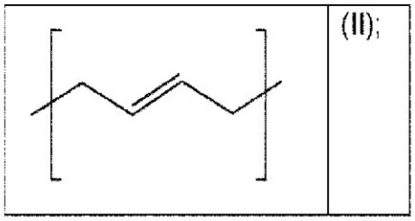


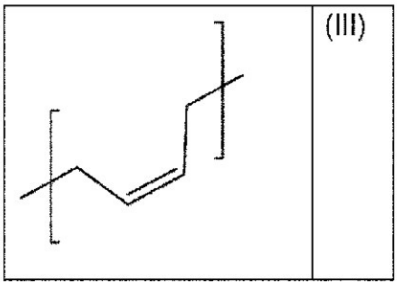
Fig. 1

【特許請求の範囲】
【請求項１】
音響減衰材料であって、
ａ）前記音響減衰材料の合計重量を基準にして、０．７５重量％以上の、１，３－ブタジエンから誘導されるモノマー単位を含む少なくとも１種のポリブタジエンＰＢ
【化１】





及び



［ここで、前記ポリブタジエンの中に存在する、１，３－ブタジエンから誘導されるモノマー単位の全体の中の式（Ｉ）のモノマー単位の比率が２５～７５モルパーセントであり、前記ポリブタジエンの中に存在する、１，３－ブタジエンから誘導されるモノマー単位の全体の中の式（ＩＩ）の単位の比率が０～１０モルパーセントであり、並びに前記ポリブタジエンの中に存在する、１，３－ブタジエンから誘導されるモノマー単位の全体の中の式（ＩＩＩ）のモノマー単位の比率が２５～７５モルパーセントであり、ここで、モノマー単位の（Ｉ）、（ＩＩ）、及び（ＩＩＩ）の全体を合計して１００モルパーセントであり、並びに前記ポリブタジエンが、好ましくは、１０００～４０００ｇ／ｍｏｌの平均分子量を有している］；
ｂ）前記音響減衰材料の合計重量を基準にして、１０重量％以上の、２５℃で液状のポリブテン及び２５℃で液状のポリイソブチレン、好ましくは２５℃で液状のポリイソブチレンからなる群から選択される、少なくとも１種の２５℃で液状のゴムＬＲ；
ｃ）前記音響減衰材料の合計重量を基準にして、３重量％以上の、少なくとも１種のブチルゴムＢＲ；
ｄ）前記音響減衰材料の合計重量を基準にして、３重量％以上の、少なくとも１種の天然若しくは合成のポリイソプレンＰＩ、好ましくは天然のポリイソプレン、最も好ましくは天然ゴム；
ｅ）前記音響減衰材料の合計重量を基準にして、４～１５重量％の、少なくとも１種の炭化水素樹脂ＨＲ；
ｆ）少なくとも１種の固体粒子充填剤ＦＭ；

を含む、音響減衰材料。
【請求項２】
前記少なくとも１種のポリブタジエンＰＢで、前記ポリブタジエンの中に存在する、１，３－ブタジエンから誘導されるモノマー単位の全体の中の前記式（Ｉ）の単位の比率が、５０～６５モルパーセント、好ましくは５９～６２モルパーセントであり、前記ポリブタジエンの中に存在する、１，３－ブタジエンから誘導されるモノマー単位の全体の中の前記式（ＩＩ）の単位の比率が、１～８モルパーセント、好ましくは２～６モルパーセントであり、並びに前記ポリブタジエンの中に存在する、１，３－ブタジエンから誘導されるモノマー単位の全体の中の前記式（ＩＩＩ）の単位の比率が、２５～４０モルパーセント、好ましくは３５～３９モルパーセントであるが、ただし、モノマー単位（Ｉ）、（ＩＩ）、及び（ＩＩＩ）の全部を合計して１００モルパーセントであり、並びに前記ポリブタジエンが、１２００～３５００ｇ／ｍｏｌ、好ましくは１５００～３０００ｇ／ｍｏｌの平均分子量を有する、請求項１に記載の音響減衰材料。
【請求項３】
前記少なくとも１種のポリブタジエンＰＢの量が、前記音響減衰材料の合計重量を基準にして、１～１５重量％、好ましくは１．２～１０重量％、好ましくは１．３～８重量％、好ましくは１．５～７重量％、好ましくは１．５～５重量％、最も好ましくは１．５～３重量％である、請求項１又は２に記載の音響減衰材料。
【請求項４】
前記２５℃で液状のゴムＬＲの量が、前記音響減衰材料の合計重量を基準にして、１２．５～３５重量％、好ましくは１４～３０重量％、好ましくは１５～２５重量％、最も好ましくは１５～２０重量％である、請求項１～３のいずれか１項に記載の音響減衰材料。
【請求項５】
前記少なくとも１種の天然若しくは合成のポリイソプレンＰＩの量が、前記音響減衰材料の合計重量を基準にして、４．５～１５重量％、好ましくは５～１２重量％、好ましくは５．５～１０重量％、最も好ましくは６～８重量％である、請求項１～４のいずれか１項に記載の音響減衰材料。
【請求項６】
前記少なくとも１種のブチルゴムＢＲの量が、前記音響減衰材料の合計重量を基準にして、４．５～１５重量％、好ましくは５～１２重量％、好ましくは５．５～１０重量％、最も好ましくは６～８重量％である、請求項１～５のいずれか１項に記載の音響減衰材料。
【請求項７】
前記少なくとも１種の炭化水素樹脂ＨＲの量が、前記音響減衰材料の合計重量を基準にして、５～１２重量％、好ましくは５．５～１０重量％、最も好ましくは６．５～９．５重量％である、請求項１～６のいずれか１項に記載の音響減衰材料。
【請求項８】
前記少なくとも１種の２５℃で液状のゴムＬＲが、５，０００ｇ／ｍｏｌ以下、好ましくは３，０００ｇ／ｍｏｌ以下、より好ましくは２，５００ｇ／ｍｏｌ以下、さらにより好ましくは２，０００ｇ／ｍｏｌ以下、なおもより好ましくは１，５００ｇ／ｍｏｌ以下の平均分子量を有する、請求項１～７のいずれか１項に記載の音響減衰材料。
【請求項９】
前記少なくとも１種のブチルゴムＢＲが、１０～６０ＭＵ（ムーニー単位）、好ましくは２０～５０ＭＵ、好ましくは２５～４０ＭＵの、好ましくはＡＳＴＭ　Ｄ１６４６に従ったムーニー粘度（ＭＬ１＋８＠１２５℃）を有する、請求項１～８のいずれか１項に記載の音響減衰材料。
【請求項１０】
前記少なくとも１種の天然若しくは合成のポリイソプレンＰＩが、３０～１２０、より好ましくは４０～６５の、好ましくはＡＳＴＭ　Ｄ１６４６に従った１００℃でのムーニー粘度（ＭＬ１＋４）を有する、請求項１～９のいずれか１項に記載の音響減衰材料。

【請求項１１】
請求項１～１０のいずれか１項に記載の音響減衰材料の使用であって、輸送車両又は白物家電における振動及び／又は騒音を減衰させるための、使用。
【請求項１２】
振動及び騒音の減衰要素（１）であって、
ｉ）第一の表面（３）及び第二の表面（３’）を有する減衰層（２）、並びに
ｉｉ）前記減衰層（２）の前記第一の表面（３）の少なくとも一部を被覆する接着層（４）であって、請求項１～１０のいずれか１項に記載の音響減衰材料を含むか、又は請求項１～１０のいずれか１項に記載の音響減衰材料からなっている接着層（４）、
を含む、振動及び騒音の減衰要素（１）。
【請求項１３】
前記接着層（４）が、０．５～５ｍｍ、好ましくは０．５～３ｍｍ、より好ましくは０．５～２ｍｍ、さらにより好ましくは０．５～１ｍｍの厚み、及び／又は０．５～５ｋｇ／ｍ^2、好ましくは０．６～４ｋｇ／ｍ^2、より好ましくは０．７～３ｋｇ／ｍ^{2}の単位面積あたりの質量を有する、請求項１２に記載の振動及び騒音の減衰要素（１）。
【請求項１４】
請求項１２又は１３に記載の振動及び騒音の減衰要素（１）を、基材（６）の騒音を発生する表面（７）に適用するための方法であって、前記方法が、
Ｉ）請求項１２又は１３に記載の振動及び騒音の減衰要素（１）を備えるステップ、
ＩＩ）前記振動及び騒音の減衰要素（１）の接着層（４）の前記外側主表面を、前記騒音を発生する表面（７）と接触させ、十分な圧力を加えて、接着接合を形成させるステップ、又は
ＩＩ’）前記接着層（４）及び／又は前記基材（６）を加熱し、前記接着層（４）の前記外側主表面を、前記騒音を発生する表面（７）と接触させ、前記接着層（４）を冷却することによって接着接合を形成させるステップ、
を含む、方法。
【請求項１５】
騒音を発生する表面（７）を有する基材（６）及び請求項１２又は１３に記載の振動及び騒音の減衰要素（１）を含む、振動減衰されたシステムであって、少なくとも、前記減衰層（２）の第一の表面（３）の一部が、前記接着層（４）を介して、前記騒音を発生する表面（７）に接着結合されており、前記騒音を発生する表面（７）を有する前記基材（６）が、好ましくは、自動車車両又は白物家電の構造物の一部である、振動減衰されたシステム。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、製品の機械的構造物における振動及び騒音を減衰させるために使用される組成物に関する。詳しくは、本発明は、自動車産業、家電製品、及び一般産業の物品の中に含まれる構成要素及び構造物の振動を減衰させるのに好適な組成物に関する。
【背景技術】
【０００２】
音響減衰材料は、望ましくない振動、構造に起因する騒音（ｓｔｒｕｃｔｕｒｅ ｂｏｒｎｅ ｎｏｉｓｅ）、及び空気に起因する騒音（ａｉｒ ｂｏｒｎｅ ｎｏｉｓｅ）を低減させるために、自動車産業、家電製品、及び一般産業において広く使用されている。例えば、自動車においては、モーター、ポンプ、ギア、及びその他の動的力の発生源によって発生する振動が、車体を介して車室の中に移行するのを防ぐのが望ましい。動的力の発生源から発生する振動が、支持構造体、典型的にはフレーム又はその他の中空構造物を介して、騒音を発生する表面、例えば金属又はプラスチック製のパネルへ移行し、それらが、その機械的な振動を音波に変換することによって、構造に起因する騒音が発生する。構造に起因する騒音及び振動は、一般的には、振動的騒乱がもたらされる構造物及び構成

要素の表面、例えば、車両のパネル、フロアの表面、並びに、機械、洗濯機、及び乾燥機の外殻に、振動減衰材料を直接適用することによって、効果的に低減させることができる。

【０００３】

パネル及びプレートの振動を減衰させるために使用される音響減衰材料は、一般的には、予備成形された単一層及び多層の減衰要素の形態、又は基材の表面に直接適用される液状組成物として、提供される。中空構造物、例えばキャビティの中での振動及び騒音を減衰させるように設計された減衰材料は、通常、発泡性組成物を含むキャビティ充填剤インサート及び、そのキャビティ充填剤インサートをその中空構造物の内部の所望の位置に保持させることを可能とする１種又は複数の取付け要素の形態で提供される。

【０００４】

予備成形された単一層及び多層の減衰要素には、減衰層（ｄａｍｐｉｎｇ　ｌａｙｅｒ）が含まれ、それが、振動的騒乱に対して減衰される基材の表面と直接的な接触状態にある。減衰層は、その減衰層の物質の伸縮を介して、振動している表面の運動エネルギーを熱エネルギーに消散させることができる。減衰層のために広く使用されている材料としては、比較的に高い含量での粒子充填剤、並びに各種の量での添加剤、特には可塑剤、レオロジー調節剤、及び乾燥剤を含む、ビチューメンベース及びゴムベースの組成物が挙げられる。予備成形された単一層及び多層の減衰要素には、多くの場合、接着剤組成物、例えば感圧接着剤（ＰＳＡ）又はホットメルト接着剤の層が含まれていて、基材、例えば自動車のパネル又はフロアの表面にその減衰層を接合させることを可能としている。液状で適用される減衰システムは、典型的には、加熱乾燥性、ゲル化性、又は反応性の組成物であって、それらは、液の状態で、例えばスプレー法によって、基材の表面に適用される。

【０００５】

パネル及びプレートの振動を減衰させるために使用される音響減衰材料はさらに、拘束層（ｃｏｎｓｔｒａｉｎｅｄ　ｌａｙｅｒ）減衰要素の形態で提供することも可能であるが、その層には、減衰層と、減衰層を堅い外側層と減衰対象の基材の表面との間に挟み込んで、それを「拘束（ｃｏｎｓｔｒａｉｎｔ）」する、堅い外側層とが含まれる。その外側層の剛性は、一般的には、減衰材料の層の剛性よりも、１０倍高い。外側のトップ層に一般的に使用される材料としては、例えば、アルミニウム及びガラス繊維布が挙げられる。拘束層のダンパーは、典型的には、望ましくない振動を減衰させるには、単一層の減衰要素よりも効果が高いが、それらの製造コストが高い。

【０００６】

キャビティ充填剤インサートは、中空構造構成要素のキャビティの内部での空気に起因する騒音を減衰させるため、及びキャビティの壁面を介して振動が伝わることを防止するために使用される。キャビティ充填剤インサートは、典型的には、減衰材料と、そのキャビティ充填剤インサートをその中空構造物の内部の所望の位置に保持することを可能とする、少なくとも１種の取付け部材とからなっている。そのキャビティ充填剤インサートの減衰材料は、典型的には、発泡性組成物として配合され、それが、例えば昇温で活性化されると、膨張して、そのキャビティの壁の内部表面にシールを形成する。キャビティの内部で空気に起因する騒音を減衰させるのに適した発泡性減衰材料は、一般的には、「音響バッフル（ａｃｏｕｓｔｉｃ　ｂａｆｆｌｅ）」と呼ばれている。

【０００７】

自動車産業及び家電製品産業における音響減衰材料として、ビチューメンベースの組成物が広く使用されてきたが、その理由は、それらが、低コストの原料でありながら、高い振動減衰性能、さらには信頼性が高くそして容易に制御することが可能な物理的性質を備えているからである。家電製品市場においては、現在のところ、ビチューメンベースの減衰システムが、ほとんど１００％の市場占有率を有している。高充填のビチューメン組成物は特に、防音被覆及び減音コーティングを与えるために使用されてきたが、それらは、自動車及び家電製品の組立プロセスにおいて、金属及びプラスチック構成要素に適用される。慣用されている手順においては、ビチューメンと充填剤との混合物を、最初に、押出

し加工及び／又はカレンダー加工して、フィルムを形成させ、それから、減衰要素として使用するのに適した好適な成形部品を、パンチング又はダイカッティングによって調製する。次いでその減衰要素を、減衰対象の金属又はプラスチックシートに接着させる。その成形部品を、加熱によりさらに加工して、金属の形状又はプラスチックのシートに適合させることもまた可能である。

【０００８】

米国特許出願公開第２０１７２６７８４２号明細書には、固形のゴム、オレフィン性二重結合含有ポリマー、炭化水素、液状のポリジエン、及び加硫系を含む加熱硬化可能な組成物、並びに車両における騒音抑制材料としてのそれらの使用が開示されている。さらに開示されているのは、それをポンプによって１５～６０℃の範囲の温度で適用ポイントに注入し、基材の上に、液状又はペースト状で析出させる、その組成物を適用するためのプロセスである。

【０００９】

米国特許第６３６１６４３号明細書には、反応性オレフィン性二重結合を含む液状ゴム、及び場合によっては、固形のゴム及び硫黄をベースとする加硫系をベースとする、一成分系の、加熱硬化反応性組成物が開示されており、それらは、それらの加硫された形態で、ほぼ＋１０℃～＋４０℃の広い使用温度範囲で、高い音響損失係数（ａｃｏｕｓｔｉｃ　ｌｏｓｓ　ｆａｃｔｏｒ）極大値を有している。それらの組成物は、場合によっては、追加の構成要素として、微粒子の熱可塑性ポリマーを含んでいる。それらの組成物は、騒音減衰用の、接着剤、シーリング化合物、又はコーティング組成物として使用するのに適している。

【００１０】

音響減衰要素の主たる応用領域の一つとしては、自動車の内装及び家電製品の洗濯機が挙げられる。これらの用途において、特に自動車の場合においては、その音響減衰材料が、低温暴露にさらされる。自動車産業においては、自動車で使用される構成要素の、ほぼ－２０～－４０℃の低温での品質及び性能が、自動車メーカーによって管理されている。例えば、－３０℃での落球試験を使用して、寒冷時の音響減衰要素の接着性が評価される。自動車及び白物家電（ｗｈｉｔｅ　ｇｏｏｄ）用途で使用するための、従来からの材料は、低温、特に－３０℃での落球試験における性能での欠陥を有している。

【００１１】

したがって、低温、特に－３０℃での落球試験で良好な性能を示し、好ましくは、それが適用された基材に対する良好な接着性を有し、そして最新技術のゴムベースの減衰材料に比較して、同等又は改良された振動及び騒音減衰性能を与える、新規なタイプの音響減衰材料が必要とされている。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【００１２】

本発明の目的は、機械的構造物及び製品の構成要素における望ましくない振動及び騒音を減衰させるのに使用するための材料を提供することであり、その材料はさらに、低温、特に－３０℃での落球試験において、最新技術のゴムベースの音響減衰材料に比較して、改良された性能を有している。

【００１３】

本発明の主題は、請求項１において定義されている音響減衰材料である。

【００１４】

驚くべきことには、本発明による音響減衰材料が、市販されているゴムベースの音響減衰材料に比較して、同等、又はさらには改良された振動及び騒音減衰性能を示すことが見出された。具体的には、本発明の音響減衰材料が、高い振動減衰性能（ほぼ１０～２０℃の範囲の温度での損失係数によって定義される）を示し、それによって、自動車の構造物及び構成要素の振動及び騒音の減衰における使用に特に好適となることが見出された。

【００１５】

本発明の他の主題は、他の独立請求項に提示されている。本発明の好ましい態様は、従属請求項に提示されている。

【図面の簡単な説明】

【００１６】

【図１】第一の表面（３）及び第二の表面（３’）を有する減衰層（２）、並びにその減衰層（２）の第一の表面（３）を被覆する接着層（４）を含む、振動及び騒音の減衰要素（１）を示す断面図である。

【図２】第一の表面（３）及び第二の表面（３’）を有する減衰層（２）、その減衰層（２）の第一の表面（３）を被覆する接着層（４）、及びその減衰層（２）の第二の表面（３’）を被覆する拘束層（５）を含む、振動及び騒音の減衰要素（１）を示す断面図である。

【図３】騒音を発生する表面（７）を有する基材（６）並びに減衰層（２）及び接着層（４）を含む振動及び騒音の減衰要素（１）を含む、振動減衰されたシステムを示す断面図であり、ここで、その減衰層（２）の第一の表面（３）は、接着層（４）を介して、騒音を発生する表面（７）に接着結合されている。

【図４】騒音を発生する表面（７）を有する基材（６）並びに、減衰層（２）、接着層（４）、及び拘束層（５）を含む振動及び騒音の減衰要素（１）を含む振動減衰されたシステムを示す断面図であり、ここで、その減衰層（２）の第一の表面（３）は、接着層（４）を介して、騒音を発生する表面（７）に接着結合されており、そしてここで、その減衰層（２）は、接着層（４）と拘束層（５）との間に挟み込まれている。

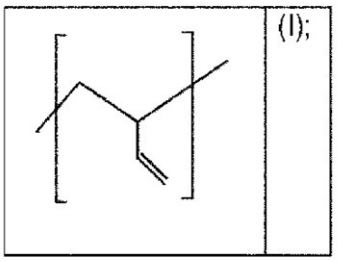
【発明を実施するための形態】

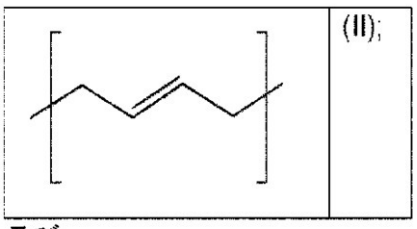
【００１７】

本発明の主題は、以下のものを含む音響減衰材料である：

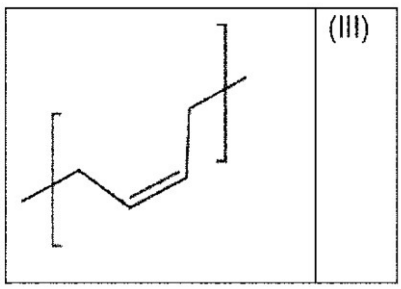
ａ）その音響減衰材料の合計重量を基準にして、０．７５重量％以上の、１，３－ブタジエンから誘導されるモノマー単位を含む少なくとも１種のポリブタジエンＰＢ

【化１】





及び



［ここで、そのポリブタジエンの中に存在する、１，３－ブタジエンから誘導されるモノマー単位の全体の中の式（Ｉ）のモノマー単位の比率が２５～７５モルパーセントであり、そのポリブタジエンの中に存在する、１，３－ブタジエンから誘導されるモノマー単位の全体の中の式（ＩＩ）の単位の比率が０～１０モルパーセントであり、並びにそのポリブタジエンの中に存在する、１，３－ブタジエンから誘導されるモノマー単位の全体の中の式（ＩＩＩ）のモノマー単位の比率が２５～７５モルパーセントであり、ここで、モノマー単位の（Ｉ）、（ＩＩ）、及び（ＩＩＩ）の全体を合計して１００モルパーセントであり、並びにそのポリブタジエンが、好ましくは、１０００～４０００ｇ／ｍｏｌの平均分子量を有している］；

ｂ）その音響減衰材料の合計重量を基準にして、１０重量％以上の、２５℃で液状のポリブテン及び２５℃で液状のポリイソブチレン、好ましくは２５℃で液状のポリイソブチレンからなる群から選択される、少なくとも１種の２５℃で液状のゴムＬＲ；

ｃ）その音響減衰材料の合計重量を基準にして、３重量％以上の、少なくとも１種のブチルゴムＢＲ；

ｄ）その音響減衰材料の合計重量を基準にして、３重量％以上の、少なくとも１種の天然若しくは合成のポリイソプレンＰＩ、好ましくは天然のポリイソプレン、最も好ましくは天然ゴム；

ｅ）その音響減衰材料の合計重量を基準にして、４～１５重量％の、少なくとも１種の炭化水素樹脂ＨＲ；

ｆ）少なくとも１種の固体粒子充填剤ＦＭ。

【００１８】

「ポリ（ｐｏｌｙ）」で始まる物質名は、形式上、１分子あたり、それらの名称にある官能基を２個以上含む物質を指している。例えば、ポリオールは、少なくとも２個のヒドロキシル基を有する化合物を指している。ポリエーテルは、少なくとも２個のエーテル基を有する化合物を指している。

【００１９】

「ポリマー」という用語は、重合反応（重合、重付加、重縮合）によって製造される、化学的に均質な、一団のマクロモレキュールを指しているが、ここでそのマクロモレキュールは、重合度、分子量、及び鎖長の点で異なっている。この用語には、重合反応の結果から得られる前記総称的マクロモレキュールの誘導体、すなわち、例えば、あらかじめ決められているマクロモレキュールの中の官能基の付加反応又は置換反応によって得られる化合物も含まれ、そしてそれらは、化学的に均質であっても、或いは化学的に不均質であってもよい。

【００２０】

「分子量」という用語は、分子又は分子の一部（「残基（ｍｏｉｅｔｙ）」とも呼ばれる）のモル質量（ｇ／ｍｏｌ）を指している。「平均分子量」という用語は、分子又は残基のオリゴマー性又はポリマー性混合物の数平均分子量（M_n）を指している。その分子量は、慣用されている方法、好ましくは、標準としてのポリスチレン、カラムとしての、分子に応じて１００オングストローム、１０００オングストローム、及び１００００オングストロームの多孔度を有するスチレン－ジビニルベンゼンゲル、温度３５℃での溶媒としてのテトラヒドロフラン又は１６０℃での溶媒としての１，２，４－トリクロロベンゼンを使用する、ゲル浸透クロマトグラフィー（ＧＰＣ）によって求めることができる。

【００２１】

「ガラス転移温度」（Ｔｇ）という用語は、それより高いと、ポリマー構成要素が柔らかく、曲りやすくなり、そしてそれより低いと、それが硬く、ガラス質となるような温度を指している。ガラス転移温度（Ｔｇ）は、動的機械的分析（ＤＭＡ）により、１Ｈｚの振動数、０．１％の歪みを加えて測定した損失弾性率（Ｇ”）曲線のピークとして測定するのが好ましい。

【００２２】

「軟化点」という用語は、化合物が軟化してゴム様の状態となる温度、又は化合物の中

の結晶部分が溶融する温度を指している。軟化点は、ＤＩＮ　ＥＮ　１２３８標準に従って実施される環球測定法（Ｒｉｎｇ　ａｎｄ　Ｂａｌｌ　ｍｅａｓｕｒｅｍｅｎｔ）によって求めることができる。

【００２３】

「室温」という用語は、２３℃の温度を指している。

【００２４】

本発明の音響減衰材料は、製品、例えば自動車又は家電製品又は一般的産業の製品の機械的構造要素における、望ましくない振動及び騒音を減衰させる使用に特に好適である。これらの用途においては、典型的には成形物品、例えば層又はパッドの形態で提供されるその音響減衰材料は、振動的騒乱に直面する、機械的構造物又は構成要素の表面に直接適用される。その音響減衰材料は、慣用されている、押出加工法及び／又はカレンダー加工法若しくはホットプレス法を使用することにより、好適な成形物品の形態とすることができる。その音響減衰材料の構成要素ａ）～ｆ）のタイプ及び量を最適化して、その減衰材料の伸縮を介して、振動している表面の運動エネルギーを消散させて熱エネルギーとする材料の効率を、その用途に関連する温度範囲で最大化させることができる。

【００２５】

本発明の音響減衰材料が、ビチューメンを実質的に含まないのが好ましい。「実質的に含まない（ｅｓｓｅｎｔｉａｌｌｙ　ｆｒｅｅ）」という表現は、音響減衰が、ビチューメンを、痕跡量、例えばその音響減衰材料の合計重量を基準にして０．５重量％未満、好ましくは０．２５重量％未満、より好ましくは０．１重量％未満、なおもより好ましくは０．０１重量％未満しか含まないことを意味していると理解されたい。「ビチューメン」という用語は、本開示においては、室温で固体のコンシステンシーを有する重質の炭化水素ブレンド物を指している。それらは通常、適切な原油の、蒸留（トッピング又は真空蒸留）及び／又は２次加工プロセス、例えば、熱分解及びビスブレーキングであってよい、精製プロセスからの真空蒸留残渣として得られる。さらには、「ビチューメン」という用語はさらに、天然及び合成のビチューメン、さらにはタール及び瀝青砂の抽出から得られるビチューメン系物質も指している。

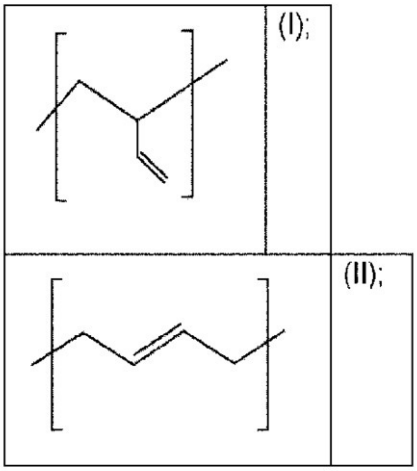
【００２６】

さらには、その音響減衰材料が、遊離ラジカル架橋剤、例えばペルオキシドのような架橋／硬化剤を実質的に含まないのが好ましいであろう。「実質的に含まない（ｓｕｂｓｔａｎｔｉａｌｌｙ　ｆｒｅｅ）」という文言は、その音響減衰材料に架橋剤が見出されたとしても、前記量が、その架橋剤の効果が得られない程に無視できる量であることを意味することを意図している。別の言い方をすれば、その音響減衰材料の中に見出された架橋剤の量では、ポリマー性の構成要素の硬化を開始されることができないか、又は実質的に無視することが可能な程度の架橋しか開始させることができない。１つ又は複数の実施形態においては、その音響減衰材料には、その音響減衰材料の合計重量を基準にして、０．１５重量％未満、好ましくは０．１重量％未満、より好ましくは０．０１重量％未満、さらにより好ましくは０重量％の、架橋／硬化剤しか含まれない。

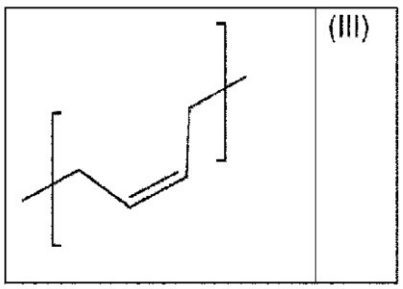
【００２７】

その音響減衰材料には、その音響減衰材料の合計重量を基準にして、０．７５重量％以上の、１，３－ブタジエンから誘導されるモノマー単位を含む少なくとも１種のポリブタジエンＰＢが含まれる；

【化２】



及び



ここで、そのポリブタジエンの中に存在する、１，３－ブタジエンから誘導されるモノマー単位の全体の中の式（Ｉ）の単位の比率が、２５～７５モルパーセント、好ましくは５０～６５モルパーセント、好ましくは５９～６２モルパーセントであり、そのポリブタジエンの中に存在する、１，３－ブタジエンから誘導されるモノマー単位の全体の中の式（ＩＩ）の単位の比率が、０～１０モルパーセント、好ましくは１～８モルパーセント、好ましくは２～６モルパーセントであり、並びにそのポリブタジエンの中に存在する、１，３－ブタジエンから誘導されるモノマー単位の全体の中の式（ＩＩＩ）の単位の比率が、２５～７５モルパーセント、好ましくは２５～４０モルパーセント、好ましくは３５～３９モルパーセントであるが、ただし、モノマー単位（Ｉ）、（ＩＩ）、及び（ＩＩＩ）の全部を合計して１００モルパーセントであり、並びにポリブタジエンが、１０００～４０００ｇ／ｍｏｌ、好ましくは１２００～３５００ｇ／ｍｏｌ、好ましくは１５００～３０００ｇ／ｍｏｌの平均分子量を有しているのが好ましい。

【００２８】

本発明の文脈においては、「ポリブタジエン」という用語は、それぞれ少なくとも２個の共役二重結合を有するモノマー単位を重合させることによって得ることが可能な反応生成物を意味していると理解されたいが、ここで、好適度を増大させるためには、そのモノマー単位の、少なくとも８０％、好ましくは少なくとも８５％、好ましくは少なくとも９０％、好ましくは少なくとも９５％、好ましくは少なくとも９８％、好ましくは少なくとも９９％、最も好ましくは少なくとも９９．９％、好ましくは全部が、１，３－ブタジエンである。可能性のあるさらなる化合物（不純物）は、例えば、３～５個の炭素原子を有するアルカン又はアルケン、具体的には、プロペン、１－ブテン、又は１，２－ブタジエンであってよい。

【００２９】

驚くべきことには、０．７５重量％より少ない量では、不十分な、低温での落球試験性能をもたらすことが見出された。このことは、Ｒｅｆ．１～３を、Ｅ１～Ｅ５と比較すれ

ば理解できる。

【００３０】

好ましくは、少なくとも１種のポリブタジエンＰＢの量は、その音響減衰材料の合計重量を基準にして、１～１５重量％、好ましくは１．２～１０重量％、好ましくは１．３～８重量％、好ましくは１．５～７重量％、好ましくは１．５～５重量％、最も好ましくは１．５～３重量％である。このことは、良好な低温での落球試験性能、高い接着強度、及び凝集破壊パターンの点で有利である。このことは、Ｒｅｆ．３を、Ｅ１～Ｅ５と比較すれば理解できる。

【００３１】

式（Ｉ）、（ＩＩ）、及び（ＩＩＩ）で示されるモノマー単位において、本明細書で選択された式表示の中の角括弧は、そのポリブタジエンの中に存在する１，３－ブタジエンから誘導される、モノマー単位（Ｉ）、（ＩＩ）、及び（ＩＩＩ）を示しており、それぞれの角括弧でマーキングした結合は、例えば、メチル基で終わることはなく、その代わりに、関連するモノマー単位が、この結合を介して、他のモノマー単位に結合されている。この場合において、それらのモノマー単位（Ｉ）、（ＩＩ）、及び（ＩＩＩ）は、ポリマーの中で、各種所望の並びで配列されていてよい。ランダムな配列が好ましい。

【００３２】

ポリブタジエンＰＢの中の、式（Ｉ）、（ＩＩ）、又は（ＩＩＩ）のいずれにも適合しないモノマー単位の比率は、そのモノマー単位の全体を基準にして、好ましくは２０モルパーセント未満、好ましくは５モルパーセント未満、特に好ましくは１モルパーセント未満、特別に好ましくは０．１モルパーセント未満であるのが好ましい。ポリブタジエンＰＢの中の、式（Ｉ）、（ＩＩ）、又は（ＩＩＩ）のいずれにも適合しないモノマー単位の比率は、製造プロセスにおいて、不純物、特には１，３－ブタジエンではないジエンを、相応に、好ましくは２０モルパーセント未満、好ましくは５モルパーセント未満、特に好ましくは１モルパーセント未満、特別に好ましくは０．１モルパーセント未満しか含まない１，３－ブタジエンを使用することによって、制御することができる。

【００３３】

式（Ｉ）、（ＩＩ）、及び（ＩＩＩ）で表されるモノマー単位のモル比は、ポリブタジエンを標準としたＩＲ分光法によって求めるのが好ましい。この目的のためには、サンプル（約８０～２５０ｍｇ）を、１０ｍＬの二硫化炭素（CS_2）の中に溶解させる。ビニル含量が高い場合には、低い濃度を使用し、ｃｉｓ含量が高い場合には、より高い濃度を使用する。その測定は、ＮａＣｌ窓で、０．５ｍｍの経路長を有するＩＲセルの中で実施する。溶媒を差し引いて、スペクトルは、１１００～６００ｃｍ$^{-1}$の評価範囲での吸光度として表す。吸光度が１よりも高い場合には、もっと低い濃度で、測定をくり返す。下記の波数での、ベースラインより上の吸光度を求める：

ｔｒａｎｓ－１，４－ポリブタジエン：９６８ｃｍ$^{-1}$

１，２－ポリブタジエン：９１１ｃｍ$^{-1}$

ｃｉｓ－１，４－ポリブタジエン：７３０ｃｍ$^{-1}$。

【００３４】

それらのモノマー構成要素のモル比は、次式に従って求めるのが好ましい：

$$\%comp(i) = Ext(i) * 100\% / (E(i) * c * d *)$$

［式中、

Ｅｘｔ（ｉ）＝ベースラインより上の吸光度

Ｅ（ｉ）＝吸光係数（物質特有、較正によって求める）

［Ｅ］＝Ｌ／（ｇ＊ｃｍ）

ｄ＝セルの経路長（単位：ｃｍ）

ｃ＝サンプルの濃度（単位；ｇ／Ｌ）

である］。

【００３５】

そのポリブタジエンＰＢは、２０００～８０００ｍＰａ・ｓ、好ましくは３０００～７

０００ｍＰａ・ｓの、２０℃での粘度を有しているのが好ましい。この粘度（コーンプレート法粘度）は、ＤＩＮ　５３０１８に従い、Ｒｈｅｏｍｅｔｅｒ　Ｐｈｙｓｉｃａ　ＭＣＲ３０１（ＡＮＴＯＮ　ＰＡＡＲ　Ｇｅｒｍａｎｙ　ＧｍｂＨ製）を用いて測定するのが好ましい。

【００３６】

そのポリブタジエンＰＢが、２．１～３．０の分散度を有していれば有利であろう。分散度は、数平均モル質量（Ｍｎ）を重量平均モル質量（Ｍｗ）で除することにより定義される。

【００３７】

特に好ましいポリブタジエンＰＢは、以下のものである：そのポリブタジエンの中に存在する、１，３－ブタジエンから誘導されるモノマー単位の全体の中の式（Ｉ）の単位の比率が、５０～６５モルパーセント、好ましくは５９～６２モルパーセントであり、そのポリブタジエンの中に存在する、１，３－ブタジエンから誘導されるモノマー単位の全体の中の式（ＩＩ）の単位の比率が、１～８モルパーセント、好ましくは２～６モルパーセントであり、並びにそのポリブタジエンの中に存在する、１，３－ブタジエンから誘導されるモノマー単位の全体の中の式（ＩＩＩ）の単位の比率が、２５～４０モルパーセント、好ましくは３５～３９モルパーセントであるが、ただし、モノマー単位の（Ｉ）、（ＩＩ）、及び（ＩＩＩ）の全体を合計して１００モルパーセントであり、並びにそのポリブタジエンが、１０００～４０００ｇ／ｍｏｌ、好ましくは１２００～３５００ｇ／ｍｏｌ、好ましくは１５００～３０００ｇ／ｍｏｌの平均分子量、並びに、好ましくは２０００～８０００ｍＰａ・ｓ、より好ましくは３０００～７０００ｍＰａ・ｓの２０℃での粘度を有している。

【００３８】

その音響減衰材料には、その音響減衰材料の合計重量を基準にして、１０重量％以上の、２５℃で液状のポリブテン及び２５℃で液状のポリイソブチレン、好ましくは２５℃で液状のポリイソブチレンからなる群から選択される、少なくとも１種の、２５℃で液状のゴムＬＲが含まれる。

【００３９】

１０重量％未満の量では、低温での落球試験性能が不十分となる。このことは、Ｒｅｆ．７を、Ｅ２及びＥ８と比較すれば理解できる。

【００４０】

その２５℃で液状のゴムＬＲの量は、その音響減衰材料の合計重量を基準にして、１２．５～３５重量％、好ましくは１４～３０重量％、好ましくは１５～２５重量％、最も好ましくは１５～２０重量％であるのが好ましい。このことは、良好な低温での落球試験性能、高い接着強度、及び凝集破壊パターンの点で有利である。このことは、Ｒｅｆ．７を、Ｅ２及びＥ８と比較すれば理解できる。

【００４１】

「２５℃で液状のポリブテン」という用語は、好ましくは、本開示においては、イソブチレン及び／又は１－ブテン及び／又は２－ブテンを含む、オレフィンオリゴマーを指している。それらのC_4－オレフィン異性体の比率は、製造業者やグレードによって、変化する可能性がある。

【００４２】

「２５℃で液状のポリイソブチレン」という用語は、好ましくは、本開示においては、好ましくは少なくとも７５％、より好ましくは少なくとも８５％の、イソブチレンから誘導される繰り返し単位を含む、イソブチレンのポリオレフィン及びオレフィンオリゴマーを指している。

【００４３】

特に好適な、２５℃で液状のポリブテン及びポリイソブチレンは、５，０００ｇ／ｍｏｌ以下、好ましくは３，０００ｇ／ｍｏｌ以下、より好ましくは２，５００ｇ／ｍｏｌ以下、さらにより好ましくは２，０００ｇ／ｍｏｌ以下、なおもより好ましくは１，５００

ｇ／ｍｏｌ以下の平均分子量を有している。
【００４４】
特に好適な、２５℃で液状のポリブテン及びポリイソブチレンは、７．５以下、より好ましくは５．０以下、例えば０．５～５．０、好ましくは１．０～４．５、より好ましくは１．０～３．５、さらにより好ましくは１．２５～２．５の範囲のゲル浸透クロマトグラフィー（ＧＰＣ）で求めた多分散性指数（Ｍｗ／Ｍｎ）を有している。
【００４５】
液状のポリブテンとしては、例えば以下のものが市販されている：商品名Ｉｎｄｏｐｏｌ（登録商標）Ｈ－及びＬ－シリーズ（Ｉｎｅｏｓ　Ｏｌｉｇｏｍｅｒｓ製）、商品名Ｉｎｆｉｎｅｕｍ（登録商標）Ｃ－シリーズ及びＰａｒａｐｏｌ（登録商標）シリーズ（Ｉｎｆｉｎｅｕｍ製）、及び商品名ＰＢ－シリーズ（Ｄａｅｌｉｍ製）。液状のポリイソブチレン（ＰＩＢ）としては、例えば以下のものが市販されている：商品名Ｇｌｉｓｓｏｐａｌ（登録商標）Ｖ－シリーズ（ＢＡＳＦ製）、及び商品名Ｄｙｎａｐａｋ（登録商標）－シリーズ（Ｕｎｉｖａｒ　ＧｍｂＨ（Ｇｅｒｍａｎｙ）製）。
【００４６】
その音響減衰材料は、その音響減衰材料の合計重量を基準にして、３重量％以上の少なくとも１種のブチルゴムＢＲを含む。
【００４７】
３重量％未満の量では、低温での落球試験性能が不十分となる。このことは、Ｒｅｆ．４及びＲｅｆ．６を、Ｅ２、Ｅ６、及びＥ７と比較すれば理解できる。
【００４８】
好ましくは、少なくとも１種のブチルゴムＢＲの量は、その音響減衰材料の合計重量を基準にして４．５～１５重量％、好ましくは５～１２重量％、好ましくは５．５～１０重量％、最も好ましくは６～８重量％である。このことは、良好な低温での落球試験性能、高い接着強度、及び凝集破壊パターンの点で有利である。このことは、Ｒｅｆ．４～６を、Ｅ２及びＥ６～７と比較すれば理解できる。
【００４９】
「ブチルゴム」という用語は、本明細書においては、メジャー部分のＣ$_4$～Ｃ$_7$モノオレフィンモノマー、好ましくはイソオレフィンモノマー、及びマイナー部分の、例えば３０重量％以下の、Ｃ$_4$～Ｃ$_{14}$マルチオレフィンモノマー、好ましくは共役ジオレフィンを含む、モノマー混合物から誘導されるポリマーを指している。好ましいＣ$_4$～Ｃ$_7$モノオレフィンモノマーは、イソブチレン、２－メチル－１－ブテン、３－メチル－１－ブテン、２－メチル－２－ブテン、４－メチル－１－ペンテン、及びそれらの混合物、好ましくはイソブチレンからなる群から選択することができる。
【００５０】
好ましいＣ$_4$～Ｃ$_{14}$マルチオレフィンとしては、Ｃ$_4$～Ｃ$_{10}$共役ジオレフィンが挙げられる。好ましいＣ$_4$～Ｃ$_{10}$共役ジオレフィンは、以下のものを含む群から選択することができる：イソプレン、ブタジエン、２，４－ジメチルブタジエン、ピペリリン、３－メチル－１，３－ペンタジエン、２，４－ヘキサジエン、２－ネオペンチル－１，３－ブタジエン、２－メチル－１，５－ヘキサジエン、２，５－ジメチル－２，４－ヘキサジエン、２－メチル－１，４－ペンタジエン、２－メチル－１，６－ヘプタジエン、シクロペンタジエン、メチルシクロペンタジエン、シクロヘキサジエン、１－ビニル－シクロヘキサジエン、及びそれらの混合物、好ましくはイソプレン。
【００５１】
そのブチルゴムＢＲが、イソブチレン及びイソプレンから誘導されるポリマーであるのが、最も好ましい。
【００５２】
その少なくとも１種のブチルゴムＢＲが、ブチルゴム及びハロゲン化ブチルゴム、好ましくはブチルゴム、クロロブチルゴム及びブロモブチルゴム、より好ましくはブチルゴム及びブロモブチルゴム、最も好ましくはブロモブチルゴム、からなる群から選択されるの

が好ましい。
【００５３】
好ましいブチルゴムＢＲは、１０～６０ＭＵ（ムーニー単位）、好ましくは２０～５０ＭＵ、好ましくは２５～４０ＭＵのムーニー粘度（ＭＬ１＋８@１２５℃）を有している。好ましくは、ムーニー粘度が、ゴムの粘度の目安を与えている。それは、円筒状のキャビティの中で、ゴムの中に埋め込まれた円筒状の金属ディスク（すなわちローター）の回転に抵抗する、剪断トルクであると定義される。ムーニー粘度を測定するための、剪断ディスク粘度計の寸法、試験温度、及び手順は、ＡＳＴＭ　Ｄ１６４６に規定されている。
【００５４】
その音響減衰材料は、その音響減衰材料の合計重量を基準にして、３重量％以上の、少なくとも１種の天然若しくは合成のポリイソプレンＰＩ、好ましくは天然のポリイソプレン、最も好ましくは天然ゴムを含んでいる。
【００５５】
３重量％未満の量では、低温での落球試験性能が不十分となる。このことは、Ｒｅｆ．４及びＲｅｆ．６を、Ｅ２、Ｅ６、及びＥ７と比較すれば理解できる。
【００５６】
好ましくは、少なくとも１種の天然若しくは合成のポリイソプレンＰＩの量は、その音響減衰材料の合計重量を基準にして４．５～１５重量％、好ましくは５～１２重量％、好ましくは５．５～１０重量％、最も好ましくは６～８重量％である。このことは、良好な低温での落球試験性能、高い接着強度、及び凝集破壊パターンの点で有利である。このことは、Ｒｅｆ．４～６を、Ｅ２及びＥ６～７と比較すれば理解できる。
【００５７】
その少なくとも１種の天然若しくは合成のポリイソプレンＰＩが、１００，０００ｇ／ｍｏｌ以上、好ましくは１００，０００～２，０００，０００ｇ／ｍｏｌ、より好ましくは１００，０００～１，０００，０００ｇ／ｍｏｌの平均分子量を有しているのが好ましい。
【００５８】
天然ゴムは、イソプレン（メチルブタ－１，３－ジエン）のポリマーではあるが、合成のポリイソプレン（これは、金属触媒反応の反応生成物である）とは、区別される。
【００５９】
その天然若しくは合成のポリイソプレンＰＩが、３０～１２０、より好ましくは４０～６５の、１００℃でのムーニー粘度（ＭＬ１＋４）を有しているのが好ましい。本明細書においてムーニー粘度試験と呼んでいるのは、ＡＳＴＭ　Ｄ－１６４６に従ったものである。
【００６０】
その音響減衰材料は、その音響減衰材料の合計重量を基準にして、４～１５重量％の、少なくとも１種の炭化水素樹脂ＨＲを含む。
【００６１】
その少なくとも１種の炭化水素樹脂ＨＲの量が、その音響減衰材料の合計重量を基準にして、５～１２重量％、好ましくは５．５～１０重量％、最も好ましくは６．５～９．５重量％であるのが好ましい。このことは、良好な低温での落球試験性能、高い接着強度、及び凝集破壊パターンの点で有利である。このことは、Ｒｅｆ．８～９を、Ｅ２及びＥ９と比較すれば理解できる。
【００６２】
「炭化水素樹脂」という用語は、好ましくは、本明細書においては、石油ベースの原料、例えば天然液化ガス、ガスオイル、又は石油ナフサのクラッキングの副生物から得られる不飽和モノマーの混合物を重合させることによって製造される、合成樹脂を表す。これらのタイプの炭化水素樹脂は、「石油樹脂」又は「石油炭化水素樹脂」としても知られている。それらの炭化水素樹脂にはさらに、純粋なモノマーの芳香族樹脂も含まれるが、それらは、着色の原因となる夾雑物を除去し、製品の組成を正確に調節するために予め精製

しておいた、芳香族モノマー原料を重合させることによって調製される。

【００６３】

少なくとも１種の炭化水素樹脂ＨＲとして使用される好適な炭化水素樹脂の例としては、以下のものが挙げられる；Ｃ５脂肪族樹脂、混合Ｃ５／Ｃ９脂肪族／芳香族樹脂、芳香族変性Ｃ５脂肪族樹脂、脂環族樹脂、混合Ｃ５脂肪族／脂環族樹脂、混合Ｃ９芳香族／脂環族樹脂、混合Ｃ５脂肪族／脂環族／Ｃ９芳香族樹脂、芳香族変性脂環族樹脂、Ｃ９芳香族樹脂、さらには、上述の樹脂の水素化物。「Ｃ５」及び「Ｃ９」の表記は、それらの樹脂の原料となったモノマーが、主として、それぞれ４～６個及び８～１０個の炭素原子を有する炭化水素であることを示している。「水素化（ｈｙｄｒｏｇｅｎａｔｅｄ）」という用語には、完全水素化、実質的に水素化、及び少なくとも部分的に水素化された樹脂が含まれる。部分的に水素化された樹脂は、好ましくは、例えば、５０％、７０％、又は９０％の水素化レベルを有している。

【００６４】

その少なくとも１種の炭化水素樹脂ＨＲのタイプには、本発明においては、特段の制限はない。その少なくとも１種の炭化水素樹脂ＨＲの選択は、少なくとも部分的には、その音響減衰材料のバインダーマトリックスに含まれる他の構成要素のタイプ、特にそのポリマー構成要素Ｐのタイプに依存する。

【００６５】

その少なくとも１種の炭化水素樹脂ＨＲが、以下の性質を有しているのが好ましい：

－　少なくとも７０℃、好ましくは少なくとも８０℃、より好ましくは７０～１８０℃、好ましくは８０～１５０℃、より好ましくは９０～１２０℃の範囲の、ＤＩＮ　ＥＮ　１２３８標準の定義に従い、環球法を使用して測定した軟化点、及び／又は、好ましくは及び；

－　２５０～７５００ｇ／ｍｏｌ、好ましくは３００～５０００ｇ／ｍｏｌの範囲の平均分子量（M_n）。

【００６６】

好適な炭化水素樹脂は、例えば、以下のようなものとして、市販されている：商品名Ｗｉｎｇｔａｃｋ（登録商標）シリーズ、Ｗｉｎｇｔａｃｋ（登録商標）Ｐｌｕｓ、Ｗｉｎｇｔａｃｋ（登録商標）Ｅｘｔｒａ、及びＷｉｎｇｔａｃｋ（登録商標）ＳＴＳ（すべて、Ｃｒａｙ　Ｖａｌｌｅｙ製）；商品名Ｅｓｃｏｒｅｚ（登録商標）１０００シリーズ、Ｅｓｃｏｒｅｚ（登録商標）２０００シリーズ、及びＥｓｃｏｒｅｚ（登録商標）５０００シリーズ（すべて、Ｅｘｘｏｎ　Ｍｏｂｉｌ　Ｃｈｅｍｉｃａｌ製）；商品名Ｎｏｖａｒｅｓ（登録商標）Ｔシリーズ、Ｎｏｖａｒｅｓ（登録商標）ＴＴシリーズ、Ｎｏｖａｒｅｓ（登録商標）ＴＤシリーズ、Ｎｏｖａｒｅｓ（登録商標）ＴＬシリーズ、Ｎｏｖａｒｅｓ（登録商標）ＴＮシリーズ、Ｎｏｖａｒｅｓ（登録商標）ＴＫシリーズ、及びＮｏｖａｒｅｓ（登録商標）ＴＶシリーズ（すべて、ＲＵＥＴＧＥＲＳ　Ｎｏｖａｒｅｓ　ＧｍｂＨ製）；並びに商品名Ｋｒｉｓｔａｌｅｘ（登録商標）、Ｐｌａｓｔｏｌｙｎ（登録商標）、Ｐｉｃｃｏｔｅｘ（登録商標）、Ｐｉｃｃｏｌａｓｔｉｃ（登録商標）及びＥｎｄｅｘ（登録商標）（すべて、Ｅａｓｔｍａｎ　Ｃｈｅｍｉｃａｌｓ製）。

【００６７】

その音響減衰材料には、ｅ）少なくとも１種の固体粒子充填剤ＦＭ、好ましくは少なくとも１種の固体で微粒子状の鉱物質充填剤ＦＭが含まれる。

【００６８】

その音響減衰材料が、その音響減衰材料の合計重量を基準にして、５～７５重量％、好ましくは１５～７０重量％、より好ましくは２５～６５重量％、さらにより好ましくは３５～６５重量％、なおもより好ましくは４０～６５重量％の少なくとも１種の固体粒子充填剤ＦＭを含んでいるのが好ましい。

【００６９】

その少なくとも１種の固体粒子充填剤ＦＭが、好ましくは２．５ｍｍ以下、より好ましくは１．５ｍｍ以下のd_{90}粒子直径を有する固体の粒子状物質の形態で、その音響減衰

材料の中に存在しているのが好ましい。「粒子直径d_{90}」という用語は、本開示においては、全部の粒子状物質の体積での９０％が、そのd_{90}値よりも小さい直径を有している粒子直径を指している。「粒子直径（ｐａｒｔｉｃｌｅ　ｄｉａｍｅｔｅｒ）」という用語は、本開示においては、粒子と面積が等価な球の直径（X_{area}）を指している。粒子直径分布は、ＩＳＯ　１３３２２－２：２００６標準に従って実施される、動的画像解析法を使用して測定するのが好ましい。その粒子直径分布を測定するためには、その粒子状物質を、好ましくは空気圧分散法を使用して、分散させるのが好ましい。その測定は、各種のタイプの動的画像解析装置、例えばＣａｍｓｉｚｅｒ　ＸＴ装置（ＲｅｔｓｃｈＴｅｃｈｎｏｌｏｇｙ　ＧｍｂＨの商標）を使用して実施することができる。

【００７０】

その少なくとも１種の固体粒子充填剤ＦＭが、不活性な鉱物質充填剤であって、２０℃の温度で、０．１ｇ／（１００ｇの水）未満、より好ましくは０．０５ｇ／（１００ｇの水）未満、さらにより好ましくは０．０１ｇ／（１００ｇの水）未満の水－溶解度を有しているのもまた好ましい。化合物の水中への溶解度は、より多くの化合物を添加してもその溶液の濃度を上げることができない、すなわち過剰の物質が沈殿しはじめる、飽和濃度として測定することができる。「不活性な鉱物質充填剤」という用語は、本開示においては、鉱物質バインダーとは異なって、反応性がない、すなわち、水の存在下でも水和反応をしない鉱物質充填剤を指している。

【００７１】

１つ又は複数の実施形態においては、その少なくとも１種の固体粒子充填剤ＦＭが、以下のものからなる群から選択される：炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、酸化カルシウム、タルク、カオリン、珪藻土、ウォラストナイト、長石、モンモリロナイト、ドロマイト、シリカ、好ましくはヒュームドシリカ、クリストバライト、酸化鉄、鉄ニッケル酸化物、ストロンチウムフェライト、バリウム－ストロンチウムフェライト、中空セラミック球、中空ガラス球、中空有機球、ガラス球、マイカ、硫酸バリウム、及びグラファイト。

【００７２】

その音響減衰材料には、場合によっては、音響減衰材料で慣用される添加剤が含まれていてもよい。好適な添加剤の例としては、例えば、顔料、チクソトロープ剤、熱安定剤、乾燥剤、及び難燃剤が挙げられる。仮に添加剤を使用するのであれば、それらの添加剤は、その音響減衰材料の合計重量の、好ましくは２５重量％以下、より好ましくは１５重量％以下、さらにより好ましくは１０重量％以下の量で含まれる。

【００７３】

好ましい音響減衰材料には、以下のものが含まれる：

－　その音響減衰材料の合計重量を基準にして、１～１５重量％、好ましくは１．５～３重量％の、少なくとも１種のポリブタジエンＰＢ；

－　その音響減衰材料の合計重量を基準にして、１２．５～３５重量％、好ましくは１５～２０重量％の、２５℃で液状のゴムＬＲ；

－　その音響減衰材料の合計重量を基準にして、４．５～１５重量％、好ましくは６～８重量％の、少なくとも１種の天然若しくは合成のポリイソプレンＰＩ；

－　その音響減衰材料の合計重量を基準にして、４．５～１５重量％、好ましくは６～８重量％の、少なくとも１種のブチルゴムＢＲ；

－　その音響減衰材料の合計重量を基準にして、５～１２重量％、好ましくは５．５～１０重量％、最も好ましくは６．５～９．５重量％の、少なくとも１種の炭化水素樹脂ＨＲ；及び

－　その音響減衰材料の合計重量を基準にして、５～７５重量％、好ましくは４０～６５重量％の、少なくとも１種の固体粒子充填剤ＦＭ。

【００７４】

本発明の別の主題は、本発明による音響減衰材料を製造するための方法であって、その方法には、構成要素ａ）～ｆ）を互いに、高温、好ましくは１２０～２００℃、より好ましくは１３０～１８０℃の範囲の温度で、均一に混合された混合物が得られるまで混合す

ることが含まれる。

【００７５】

「均一に混合された混合物」という用語は、本明細書においては、その個々の構成要素が、その組成物の中で、実質的に均一に分散されている組成物を指している。さらには、均一に混合された混合物が、好ましくは、多相混合物である。当業者には明らかであるが、そのような混合組成物の内部では、それらの構成要素の一つの濃度が、他の領域よりもわずかに高いような領域が形成される可能性があるが、構成要素の全部が１００％均一に分布するようなことは、一般的には、達成不能である。しかしながら、本発明においては、構成要素の「不完全な」分布を有するそのような混合組成物も、「均一に混合された混合物」という用語に包含されるものとする。

【００７６】

構成要素ａ）～ｆ）を互いに混合するのに、慣用されている各種のタイプの混合装置を使用することができる。その混合ステップは、バッチタイプのミキサー例えば、ブラベンダーミキサー、バンバリーミキサー、ロールミキサーを使用するバッチ法としても実施できるし、或いは、連続タイプのミキサー例えば、エクストルーダー、特には単軸スクリューもしくは二軸スクリューのエクストルーダーを使用する連続法としても実施できる。

【００７７】

混合ステップで得られた均一に混合されたその混合物を、次いで、冷却して、１００℃未満、より好ましくは８０℃未満の温度とする。混合ステップにおいてエクストルーダー装置を使用する場合には、冷却ステップよりも前に、その均一に混合された混合物をエクストルーダーダイに通して、押出し加工するのが好ましい。その冷却した均一に混合された混合物は、通常の貯蔵法でも、貯蔵安定性がある。「貯蔵安定性がある（ｓｔｏｒａｇｅ　ｓｔａｂｌｅ）」という用語は、本開示においては、長期間、例えば少なくとも１ヶ月、特には少なくとも３ヶ月の間、特定の貯蔵条件下で、その物質の用途性能にいかなる顕著な変化を与えることなく、貯蔵することが可能な物質を指している。「典型的な貯蔵条件」という用語は、６０℃以下、特には５０℃以下の温度を指している。

【００７８】

その均一に混合された混合物を、慣用されている技術、例えば押出加工法、カレンダー加工法、ホットプレス法技術を使用することによりさらに加工して、成形物品の形態、例えばシート又はフィルムとすることも可能である。その成形ステップを、冷却ステップより前に実施するのが好ましい。１つ又は複数の実施形態においては、その均一に混合された混合物を、フラットダイを通して押出し加工してフィルムのシートを形成させるが、それを、一対のカレンダー加工冷却ロールの間で冷却するのが好ましい。押出加工したフィルムのシートから、例えばパンチング又はダイカッティングによって、特定の寸法を有する成形物品を作成することができる。

【００７９】

本発明の別の主題は、輸送車両又は白物家電における振動及び／又は騒音を減衰させるための、本発明による音響減衰材料の使用である。

【００８０】

本発明の別の主題は、以下のものを含む、振動及び騒音の減衰要素（１）である：

ｉ）第一及び第二の表面（３、３’）を有する減衰層（２）、並びに

ｉｉ）その減衰層（２）の第一の表面（３）の少なくとも一部を被覆する接着層（４）（ここで、その接着層（４）は、本発明の音響減衰材料を含むか、又は本発明の音響減衰材料からなっている）。

【００８１】

本発明による振動及び騒音の減衰要素の断面図を図１に示す。

【００８２】

１つ又は複数の実施形態においては、その減衰層が、それらの間の厚みを規定する第一及び第二の主表面を有し、そしてそのシート状の要素の厚みの少なくとも５倍、好ましくは少なくとも１５倍、より好ましくは少なくとも２５倍の長さ及び幅を有する、シート状

の要素である。「厚み」という用語は、好ましくは、その要素の長さ及び幅の寸法に対して垂直な状態にある平面で測定される、シート状の要素の寸法を指している。その減衰層がシート状の要素である実施形態においては、その減衰層の第一及び第二の表面は、シート状の要素の第一及び第二の主表面に相当する。

【００８３】

減衰層と接着層とは、それらの相向いの表面で、互いに直接接合されているのが好ましい。「直接接合されている（ｄｉｒｅｃｔｌｙ　ｃｏｎｎｅｃｔｅｄ）」という表現は、本発明の文脈においては、それら二つの層の間には、さらなる層又は物質が存在せず、そしてそれらの層の相向いの表面が、互いに直接接着されているということを意味していると理解されたい。１つ又は複数の実施形態においては、その接着層が、その減衰層の第一の表面の、少なくとも５０％、好ましくは少なくとも６５％、より好ましくは少なくとも７５％を被覆している。１種又は複数のさらなる実施形態においては、その接着層が、その減衰層の第一の表面の、実質的に全面積を被覆している。「実質的に全面積」という表現は、その合計面積の少なくとも９０％、好ましくは少なくとも９５％、より好ましくは少なくとも９８．５％を意味していると理解されたい。

【００８４】

その減衰層が、ビチューメン構成要素Ｂ、熱可塑性ポリマー構成要素Ｐ、及びゴム構成要素Ｒｕ、好ましくはゴム構成要素Ｒｕのリストから選択される構成要素を含んでいるのが好ましい。

【００８５】

好ましいゴム構成要素Ｒｕは、２５℃で液状のポリブテン及び２５℃で液状のポリイソブチレン、ブチルゴムＢＲ、天然若しくは合成のポリイソプレンＰＩ、ニトリルゴムＮＢＲ、エチレン－プロピレンターポリマーＥＰＤＭ、エチレン－プロピレンコポリマーＥＰＭ、及びクロロプレンゴムＣＲからなる群から選択される２５℃で液状のゴムＬＲのリストから選択され、好ましくは、２５℃で液状のポリブテン及び２５℃で液状のポリイソブチレン、ブチルゴムＢＲ、及び天然若しくは合成のポリイソプレンＰＩからなる群から選択される２５℃で液状のゴムＬＲから選択される。

【００８６】

そのビチューメン構成要素Ｂは、例えば、ペネトレーショングレード（蒸留）ビチューメン、エア・レクティファイド（セミブローン）ビチューメン、及びハードグレードビチューメンのような、１種又は複数の異なったタイプのビチューメン材料を含んでいてよい。

【００８７】

「ビチューメン」という用語は、本開示においては、室温で固体のコンシステンシーを有する重質の炭化水素ブレンド物を指している。それらは通常、適切な原油の、蒸留（トッピング又は真空蒸留）及び／又は２次加工プロセス例えば、熱分解及びビスブレーキングであってよい、精製プロセスからの真空蒸留残渣として得られる。さらには、「ビチューメン」という用語はさらに、天然及び合成のビチューメン、さらにはタール及び瀝青砂の抽出から得られるビチューメン系物質を指している。

【００８８】

「ペネトレーショングレード（ｐｅｎｅｔｒａｔｉｏｎ　ｇｒａｄｅ）ビチューメン」という用語は、本明細書においては、原油の「分別蒸留」から得られるビチューメンを指している。ガソリン、灯油、及び軽油留分を除去した後で得られる、高分子量の炭化水素からなる重質留分（ロングレジデュー（ｌｏｎｇ　ｒｅｓｉｄｕｅ）とも呼ばれる）を真空蒸留カラムの中で最初に蒸留して、さらなる軽油、留出物、及びショートレジデュー（ｓｈｏｒｔ　ｒｅｓｉｄｕｅ）が得られる。次いでそのショートレジデューを供給原料として使用して、典型的には標準試験方法下で、針がそのビチューメンに貫入する距離（０．１ミリメートル（ｄｍｍ）刻み）である、ＰＥＮ値で定義される、それらの貫入指数（ｐｅｎｅｔｒａｔｉｏｎ　ｉｎｄｅｘ）によって分類される、各種のグレードのビチューメンを製造する。ペネトレーショングレードのビチューメンは、貫入度と軟化点によって

特徴づけられる。「エア・レクティファイド（ａｉｒ－ｒｅｃｔｉｆｉｅｄ）ビチューメン」又は「エア・リファインド（ａｉｒ－ｒｅｆｉｎｅｄ）ビチューメン」という用語は、本開示においては、舗装－グレードのビチューメンの規格に適合するビチューメンを製造することを目標として穏やかな酸化を受けたビチューメンを指している。「ハードグレード（ｈａｒｄ　ｇｒａｄｅ）ビチューメン」という用語は、本開示においては、プロパンで沈殿させたビチューメンから、幾分かの空気精留を用いる拡張真空蒸留を使用して製造されたビチューメンを指している。ハードビチューメンは、典型的には、低い貫入値と高い軟化点を有している。

【００８９】

１つ又は複数の実施形態においては、そのビチューメン構成要素Ｂには、少なくとも７５重量％、好ましくは少なくとも８５重量％、より好ましくは少なくとも９０重量％の、少なくとも１種のペネトレーショングレードのビチューメンが含まれるが、それらは、好ましくは１５～５０ｄｍｍ、より好ましくは２０～４５ｄｍｍの範囲の貫入値、及び／又はＤＩＮ　ＥＮ　１２３８標準に従って実施される環球測定法によって測定して、４０～１２５℃、好ましくは５０～１００℃の範囲の軟化点を有している。

【００９０】

好適な熱可塑性ポリマー構成要素Ｐは、その音響減衰材料の最大の振動減衰効果が起きる温度範囲が、振動に対して減衰される基材の表面がその使用の際に受ける温度範囲と一致するように選択される。振動を消散させて熱エネルギーとするポリマーの性能は、そのポリマーが、硬質／ガラス質と、軟質／ゴム状態との間の遷移状態にあるときに最大となるので、その音響減衰材料において使用される好適な熱可塑性ポリマーＰは、適用温度で意図される範囲の中に入るガラス転移温度（Ｔｇ）を有している。例えば、その音響減衰材料が、自動車の構造物の中で振動及び騒音を減衰させるために使用される場合においては、その適用温度は、典型的には－４０℃～６０℃、特には－３５℃～５０℃の範囲である。その一方で、音響減衰材料の中で使用される好ましい熱可塑性ポリマーＰは、その音響減衰材料の最高適用温度よりも高い、軟化点（T_s）及び／又は溶融温度（T_m）を有している。

【００９１】

１つ又は複数の実施形態においては、その熱可塑性ポリマーＰが、以下の性質を有している：

－　２５℃未満、好ましくは５℃未満、より好ましくは０℃未満の、動的機械的分析（ＤＭＡ）により、適用振動数１Ｈｚ、歪みレベル０．１％を使用して求めた損失弾性率（Ｇ”）曲線のピークとして測定したガラス転移温度（T_g）、及び／又は

－　３５℃より高く、好ましくは４５℃より高く、より好ましくは５５℃より高く、例えば３５～２５０℃、好ましくは４５～２００℃、より好ましくは５５～１８０℃の範囲の、ＤＩＮ　ＥＮ　１２３８標準に従って実施される環球測定法に従って求めた軟化点（T_s）。

【００９２】

熱可塑性ポリマーＰのタイプには、特段の制限はない。結晶質、半晶質、及び非晶質ポリマー並びに熱可塑性エラストマーも含めて、各種のタイプの熱可塑性ポリマーが、その少なくとも１種の熱可塑性ポリマーＰとして使用するのに適している。好適な熱可塑性ポリマーＰとしては、具体的には、ポリオレフィンのホモポリマー及びコポリマー、エチレンと酢酸ビニルとのコポリマー、並びに熱可塑性オレフィンエラストマー（ＴＰＥ－Ｏ）が挙げられる。

【００９３】

より好ましくは、その減衰層が、以下のものを含んでいるのが好ましい：

その減衰層の合計重量を基準にして、１０～１８重量％の、２５℃で液状のポリブテン及び２５℃で液状のポリイソブチレン、好ましくは２５℃で液状のポリイソブチレンからなる群から選択される、少なくとも１種の２５℃で液状のゴムＬＲ；

その減衰層の合計重量を基準にして、２～５重量％の、少なくとも１種のブチルゴムＢＲ

；
その減衰層の合計重量を基準にして、０．５～３重量％の、少なくとも１種の天然若しくは合成のポリイソプレンＰＩ、好ましくは天然のポリイソプレン、最も好ましくは天然ゴム；
その減衰層の合計重量を基準にして、５～１０重量％の、少なくとも１種の炭化水素樹脂ＨＲ；
その減衰層の合計重量を基準にして、５０～８０重量％の、少なくとも１種の固体粒子充填剤ＦＭ。

【００９４】

好ましい、２５℃で液状のポリブテン及び２５℃で液状のポリイソブチレンからなる群から選択される２５℃で液状のゴムＬＲ、ブチルゴムＢＲ、天然若しくは合成のポリイソプレンＰＩ、炭化水素樹脂ＨＲ、及び固体粒子充填剤ＦＭは、先に、音響減衰材料の組成物として好ましいとされてきたものである。

【００９５】

１つ又は複数の実施形態においては、その減衰層が、０．５～１０ｍｍ、好ましくは０．５～７ｍｍ、より好ましくは０．５～５ｍｍ、さらにより好ましくは０．５～３ｍｍの範囲の最大厚み；及び／又は１～４ｇ／ｃｍ^3、好ましくは１～３ｇ／ｃｍ^3、より好ましくは１～２ｇ／ｃｍ^{3}の範囲の密度；及び／又は１～５ｋｇ／ｍ^2、好ましくは１～４．５ｋｇ／ｍ^2、より好ましくは１．５～４．５ｋｇ／ｍ^2、なおもより好ましくは１．５～３．５ｋｇ／ｍ^{2}の単位面積あたりの質量を有している。

【００９６】

接着層４は、本発明の音響減衰材料を含むか、又は好ましくはそれからなっている。先に記載した音響減衰材料のために好ましい実施形態は、接着層４における音響減衰材料にもあてはまる。

【００９７】

１つ又は複数の実施形態においては、その接着層が、０．５～５ｍｍ、好ましくは０．５～３ｍｍ、より好ましくは０．５～２ｍｍ、さらにより好ましくは０．５～１ｍｍの範囲の最大厚み；及び／又は１～４ｇ／ｃｍ^3、好ましくは１～３ｇ／ｃｍ^3、より好ましくは１～２ｇ／ｃｍ^{3}の範囲の密度；及び／又は０．５～５ｋｇ／ｍ^2、好ましくは０．６～４ｋｇ／ｍ^2、より好ましくは０．７～３ｋｇ／ｍ^{2}の単位面積あたりの質量を有している。

【００９８】

振動及び騒音の減衰要素のための好ましいサイズは、長さ及び幅が２０～１０００ｍｍ、より好ましくは５０～５００ｍｍ、最も好ましくは１００～４００ｍｍである要素である。

【００９９】

その振動及び騒音の減衰要素が、以下の性質を有しているのが好ましい：
－　最大損失係数が測定される温度（Ｔ＠ＬＦ$_{max}$）が、５℃～２５℃の間、好ましくは１５℃～２５℃の間である。
－　最大損失係数（ＬＦ$_{max}$）の値が、０．３以上、好ましくは０．３５以上、好ましくは０．３９以上、好ましくは０．４０以上、最も好ましくは０．４１以上である。

【０１００】

その損失係数は、好ましくはＩＳＯ　６７２１標準に規定された測定方法、より好ましくは実験の項で記載した測定方法を使用して求める。

【０１０１】

１つ又は複数の実施形態においては、その振動及び騒音の減衰要素にさらに、減衰層及び接着層に加えて、その減衰層の第二の表面の少なくとも一部を被覆する拘束層が含まれる。これらの実施形態における振動及び騒音の減衰要素は、一般的に、「拘束層ダンパー」と呼ばれている。その減衰層と拘束層とは、好ましくは、それらの相向いの表面で互いに直接的に接合されており、その減衰層が、接着層と拘束層との間に挟み込まれているの

が好ましい。１つ又は複数の実施形態においては、その拘束層が、その減衰層の第二の表面の全面積を、実質的に、好ましくは完全に被覆している。これらの実施形態による振動及び騒音の減衰要素の断面図を、図２に示す。

【０１０２】

１つ又は複数の実施形態においては、その拘束層が、金属シート、好ましくはアルミニウム若しくは鋼のシート、又はポリマーシート、好ましくはガラス繊維強化ポリマーシートである。その拘束層の厚みには特段の制限はないが、減衰層よりは薄い拘束層を使用するのが、一般的には好ましい。好ましい厚みは、その拘束層の材料にも依存する。１つ又は複数の実施形態においては、その拘束層が、０．０５～１．５ｍｍ、好ましくは０．１～１．２５ｍｍ、より好ましくは０．１～１．０ｍｍの厚みを有している。１つ又は複数の実施形態においては、その拘束層が、０．０５～０．５ｍｍ、好ましくは０．０５～０．４ｍｍの厚みを有する金属シートである。１種又は複数のさらなる実施形態においては、その拘束層が、０．１～１．２ｍｍ、好ましくは０．２５～１．０ｍｍの厚みを有するポリマーシートである。

【０１０３】

その拘束層が、減衰層の弾性率よりも高い、例えば、少なくとも３倍、好ましくは少なくとも５倍、より好ましくは少なくとも１０倍の弾性率を有しているのが好ましいが、ここでその弾性率は、ＩＳＯ　６８９２－１：２０１６標準（金属シートの場合）又はＩＳＯ　５２７－２標準（ポリマーシートの場合）に規定された方法を使用して測定したものである。

【０１０４】

好ましい実施形態においては、その振動及び騒音の減衰要素が、減衰層、接着層、及び拘束層からなっている。

【０１０５】

本発明の別の主題は、本発明の振動及び騒音の減衰要素を製造するための方法であるが、その方法には、以下のステップが含まれる：

ｉ）第一及び第二の表面を有する減衰層を備えるステップ、

ｉｉ）その減衰層の第一の表面の上に、本発明の音響減衰材料を含むか又は本発明の音響減衰材料からなる接着剤組成物を適用するステップ。

【０１０６】

ステップｉ）は、当業者には公知の各種の慣用されている技法により実施することができる。例えば、その音響減衰材料を、最初にエクストルーダー装置の中で溶融加工し、次いでエクストルーダーダイ、好ましくはフラットダイを通過させて押出加工して、減衰層の形状にすることができる。別な方法として、カレンダー加工法又はホットプレス法を使用して、本発明の音響減衰材料を減衰層に加工することも可能である。

【０１０７】

ステップｉｉ）は、当業者には公知の各種の慣用されている技法により実施することができる。各種の慣用されている技法を用いて、減衰層の表面の上に接着剤組成物を適用することができる。例えば、ノズル押出法、粉体分散法、カレンダー加工法、又は噴霧積層法、好ましくはカレンダー加工法によって、接着剤組成物をシートの表面の上に適用することができる。

【０１０８】

本発明の別の主題は、本発明による振動及び騒音の減衰要素を基材の騒音を発生する表面に適用するための方法であるが、その方法には、以下のステップが含まれる：

Ｉ）本発明による振動及び騒音の減衰要素を備えるステップ、

ＩＩ）その振動及び騒音の減衰要素の接着層の外側主表面を、騒音を発生する表面と接触させ、十分な圧力を加えて、接着接合（ａｄｈｅｓｉｖｅ　ｂｏｎｄ）を形成させるステップ、又は

ＩＩ’）その接着層及び／又は基材を加熱し、その接着層の外側主表面を、騒音を発生する表面と接触させ、その接着層を冷却することによって接着接合を形成させるステップ。

【０１０９】
接着層の「外側主表面」という用語は、減衰層の側とは反対側の上の接着層の主表面を指している。騒音を発生する表面を有する基材は、例えば、金属、プラスチック、又は繊維強化プラスチックで構成された、例えば、パネル、シート、又はフィルムのような、各種のタイプの成形物品であってよい。ステップＩＩ’）における接着層及び／又は基材の加熱は、各種の慣用されている方法、例えば、オーブン中での加熱、空気流による加熱、又は赤外（ＩＲ）線照射を用いた加熱などで実施することができる。
【０１１０】
本発明のさらに別の主題は、騒音を発生する表面（７）を有する基材（６）と本発明による振動及び騒音の減衰要素（１）とを含む振動減衰されたシステムであり、ここで、少なくともその減衰層（２）の第一の表面（３）の一部が、接着層（４）を介して、騒音を発生する表面（７）に接着結合されている。振動減衰されたシステムの断面図を、図３に示す。
【０１１１】
１つ又は複数の実施形態においては、その振動及び騒音の減衰要素（１）が、拘束層（５）を含む拘束された減衰要素であり、ここで、その減衰層（２）は、接着層（４）と拘束層（５）との間に挟み込まれている。この実施形態による振動減衰されたシステムの断面図を、図４に示す。
【０１１２】
１つ又は複数の実施形態においては、騒音を発生する表面を有するその基材が、自動車車両又は白物家電の構造物の一部である。
【実施例】
【０１１３】
表１に示した原料を、表３及び４それぞれに示した接着層のため、及び表２に示した減衰層のための組成物において使用した。
【０１１４】

【表１】

PB-Ref.1	Polyvest 110, 粘度@20°C 700 - 860mPa*s, Mn=2600g/mol, (I) 1%, (II) 24%, (III) 75%, Evonik
PB-Ref.2	Polyvest 130, 粘度@20°C 2700 - 3300mPa*s, Mn=4600g/mol, (I) 1%, (II) 22%, (III) 77%, Evonik
PB	Polyvest EP MV, 粘度@20°C = 5'000-7'000mPa*s, Mn=1'700-2'700g/mol, Tg -65°C 式 (I)の単位 61%, 式(II)の単位 2%, 式(III)の単位 37%, Evonik
LR	PIB 32, 25°Cで液状の合成　ポリイソブチレン, Mn: 1300g/mol, Braskem
PI	天然ゴム, ムーニー粘度: 50 +/- 5 MU (ML (1+4) 100°C)
BR	臭素化イソブチレン－イソプレンコポリマー, X Butyl BB 2030, ムーニー粘度: 32 +/- 4 MU (ML (1+8) 125°C), Arlanxeo
HR	Wingtack 95, 炭化水素樹脂, 軟化点: 98°C, Mn: 1,700g/mol, Cray Valley
方解石	方解石
HDK	HDK, ヒュームドシリカ, Wacker
CaO	酸化カルシウム
顔料	カーボンブラック
抗酸化剤	立体障害フェノール系一次抗酸化剤
P	25°Cで固体の非晶質ポリ－α－オレフィン

表 1

【０１１５】

組成物の調製

接着層の中で使用し、表３及び表４に示した、実施例Ｅｘ－１～Ｅｘ－６の本発明の音響減衰材料、さらには参照例Ｒｅｆ．１～Ｒｅｆ．９は、以下の手順に従って調製した。

【０１１６】

第一のステップにおいて、構成要素ＢＲ、ＰＩ、ＨＲ、及び方解石の半分を、バッチタイプのミキサーの中で混合した。その後で、残りの原料を、１時間以上の時間をかけて、一定速度で添加し、２０分間混合した。次いでその混合した組成物を、シールされていないドラムの中に貯蔵し、混合した直後に使用した。

【０１１７】

第二のステップにおいて、減衰層組成物のための構成要素を、表２に示した下記の構成要素と混合した：

【０１１８】

【表２】

構成要素	Wt.-%
LR	14
PI	1.5
BR	3.0
HR	7.0
P	4.5
方解石	66.3
HDK	0.4
CaO	2.9
顔料	0.2
抗酸化剤	0.2
合計 wt.-%	100

表 2

【０１１９】
ＢＲ、ＰＩ、ＨＲ、及び方解石の半分を、バッチタイプのミキサーの中で混合した。その後で、残りの原料を、１時間以上の時間をかけて、一定速度で添加し、２０分間混合した。次いで、その混合した減衰層組成物を、シールされていないドラムの中に貯蔵し、混合した直後に使用した。

【０１２０】
以下の試験のために、試験サンプル（振動及び騒音の減衰要素）を、それぞれ組成物Ｅｘ－１～Ｅｘ－６、参照例Ｒｅｆ．１～Ｒｅｆ．９からなる、厚み０．６ｍｍの接着層を用いて調製した。この接着層の上に、上述の減衰層組成物の、厚み１．１ｍｍの減衰層を加えた。その減衰層の上に、厚み０．３ｍｍのアルミニウム層（拘束層）を加えた。それらの試験結果を、表３及び表４に示す。

【０１２１】
高温抵抗性の測定（「ｈｔ抵抗性」）
２１０℃での耐熱性試験は、ＢＭＷグループの標準に従って実施した：車体工場で使用される接着剤及びシーリング材料（Ａｄｈｅｓｉｖｅｓ ａｎｄ ｓｅａｌｉｎｇ ｍａｔｅｒｉａｌｓ ｕｓｅｄ ｉｎ ｔｈｅ ｂｏｄｙ ｓｈｏｐ）防振パッド、要求性能及び試験（Ｄａｍｐｉｎｇ ｐａｄ，Ｒｅｑｕｉｒｅｍｅｎｔｓ ａｎｄ ｔｅｓｔｉｎｇｓ），ＧＳ ９７０２８－１６：２０１２－０２，４頁，表１：高温に対する耐性（Ｒｅｓｉｓｔａｎｃｅ ｔｏ ｈｉｇｈ ｔｅｍｐｅｒａｔｕｒｅ）（“Ｗａｅｒｍｅｔｅｓｔ”），ＡＡ－０４１５，２０１８－１０版。それらの試験サンプルの、長さ×幅は、１６ｃｍ×７ｃｍであった。

【０１２２】
評価方式（ｇｒａｄｉｎｇ ｓｙｓｔｅｍ）：
評価＝ＯＫを得るためには、膨れが無く、溶解せず、スリップが無く、そして、収縮が無いことが必要である。

【０１２３】
－３０℃での落球試験による低温での接着性の測定／定量（「Ｂｄｔ－３０℃」）
－３０℃での落球試験は、Ｖｏｌｋｓｗａｇｅｎグループの標準に従って実施した：品質要求性能、自己接着性硬化パッド及び消音パッド（ｑｕａｌｉｔｙ ｒｅｑｕｉｒｅｍｅｎｔｓ，ｓｅｌｆ－ａｄｈｅｓｉｖｅ ｓｔｉｆｆｅｎｉｎｇ ｐａｄｓ ａｎｄ ｓｏｕｎｄ ｄｅａｄｅｎｉｇ ｐａｄｓ），ＱＰ Ｍ０５２，１２頁，ポイント３．７．５，冷時接着物の落球試験／測定（Ｂａｌｌ ｄｒｏｐ ｔｅｓｔ／ｄｅｔｅｒｍｉｎａｔｉｏｎ ｏｆ ｃｏｌｄ ａｄｈｅｓｉｏｎ）（“Ｋｕｇｅｌｆａｌｌ／Ｂｅｓｔｉｍｍｕｎｇ ｄｅｒ Ｋａｅｒｌｔｅｈａｆｔｕｎｇ”）、ＰＶ ３９７１，２０２０－０３版。それらの試験サンプルの、長さ×幅は、７ｃｍ×７ｃｍであった。
【０１２４】
評価方式：
評価１：試験片のクラッキング（ｃｒａｃｋｉｎｇ）又はスプリンタリング（ｓｐｌｉｎｔｅｒｉｎｇ）無し、試験シートのチッピング（ｃｈｉｐｐｉｎｇ）無し
評価２：試験片のクラッキング又はスプリンタリングは有るが、試験シートのチッピング無し
評価３：試験シートからのチッピングは無いが、わずかな曲げ荷重をかけるだけで、その試験シートから試験片が離層する可能性がある
評価４：試験片のクラッキング又はスプリンタリング有り、試験シートから部分的にチッピング
評価５：試験片のクラッキング又はスプリンタリング有り、試験シートから大規模なチッピング
評価６：試験シートから完全に層間剥離。
【０１２５】
接着性／剥離強度の測定（「剥離強度」）
剥離強度の試験は、ＢＭＷグループの標準に従って実施した：車体工場で使用される接着剤及びシーリング材料（Ａｄｈｅｓｉｖｅｓ ａｎｄ ｓｅａｌｉｎｇ ｍａｔｅｒｉａｌｓ ｕｓｅｄ ｉｎ ｔｈｅ ｂｏｄｙ ｓｈｏｐ）
防振パッド、要求性能及び試験（Ｄａｍｐｉｎｇ ｐａｄ，Ｒｅｑｕｉｒｅｍｅｎｔｓ ａｎｄ ｔｅｓｔｉｎｇ），ＧＳ ９７０２８－１６：２０１２－０２，４頁，表１：接着性（「車体工場における、消音及び硬化材料の剥離強度」）（Ａｄｈｅｓｉｏｎ（“Ｐｅｅｌ－ｒｅｓｉｓｔａｎｃｅ ｏｆ ｓｏｕｎｄ ｄｅａｄｅｎｉｎｇ ａｎｄ ｓｔｉｆｆｅｎｉｎｇ ｍａｔｇｅｒｉａｌｓ ｉｎ ｔｈｅ ｂｏｄｙ ｓｈｏｐ”）），ＡＡ－０００７，２０１８－１０版。それらの試験サンプルの、長さ×幅は、２０ｃｍ×３ｃｍであった。それに加えて、破損パターンを目視で確認した。
【０１２６】
評価方式：
－ 油引き鋼板上、３０分後、室温：＞１．５Ｎ／ｃｍ
－ 油引き鋼板上、３０分後、１９５℃：＞４Ｎ／ｃｍ
【０１２７】
損失係数の測定（「損失係数」）
ＩＳＯ ６７２１標準に規定された測定方法を使用して、試験片についての損失係数を測定した。その測定は、市販の損失係数試験機を使用し、２００Ｈｚの反共振点、２０～６０℃の温度範囲で実施した。それらの試験サンプルの、長さ×幅は、２０ｃｍ×１ｃｍであった。
【０１２８】
表１及び表２における損失係数の最大値が、１０℃又は２０℃、好ましくは２０℃で測定されているのならば有利であるが、その理由は、この温度が、車両における最も普通の操作温度であるからである。
【０１２９】

【表３】

接着層組成物	Ref.1	Ref.2	Ref.3	E1	E2	E3	E4	E5
PB-Ref.1	2							
PB-Ref.2		2						
PB			0.25	1	2	4	6	8
LR	16	16	16	16	16	16	16	16
PI	6.4	6.4	6.4	6.4	6.4	6.4	6.4	6.4
BR	6.8	6.8	6.8	6.8	6.8	6.8	6.8	6.8
HR	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5
方解石	58.6	58.6	58.35	57.6	56.6	54.6	52.6	50.6
HDK	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4
CaO	2.9	2.9	2.9	2.9	2.9	2.9	2.9	2.9
顔料	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
抗酸化剤	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
合計wt.-%	100	100	100	100	100	100	100	100
抵抗性ht	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK
Bdt -30°C	4 / 4	4 / 4	5 / 5	3 / 3	1 / 1	1 / 1	1 / 1	1 / 1
剥離強度[N/cm]	9.3	9.7	10.2	10.5	10.1	9.5	9.8	9.4
損失係数								
30°C	0.281	0.32	0.308	0.304	0.331	0.279	0.216	0.184
20°C	0.379	0.394	0.381	0.396	0.417	0.408	0.367	0.302
10°C	0.353	0.322	0.309	0.335	0.344	0.384	0.430	0.400
0°C	0.219	0.174	0.163	0.187	0.191	0.224	0.288	0.303
破壊パターン	50% cf	50% cf	50% cf	75% cf	100% cf	100% cf	75% cf	50% cf

表 3, cf = 凝集破壊

【０１３０】

【表４】

接着層組成物	Ref.4	Ref.5	Ref.6	E6	E7	Ref.7	E8	Ref.8	E9	Ref.9
PB-Ref.1										
PB-Ref.2										
PB	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2
LR	16	16	16	16	16	8	24	16	16	16
PI	13.2	0	2	8	12	6.4	6.4	6.4	6.4	6.4
BR	0	13.2	2	8	12	6.8	6.8	6.8	6.8	6.8
HR	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5	3	6	18
方解石	56.6	56.6	65.8	53.8	45.8	64.6	48.6	62.1	59.1	47.1
HDK	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4
CaO	2.9	2.9	2.9	2.9	2.9	2.9	2.9	2.9	2.9	2.9
顔料	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
抗酸化剤	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
合計 wt.-%	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
抵抗性 ht	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK	OK
Bdt -30°C	5 / 5	6 / 6	6 / 6	1 / 1	1 / 1	3 / 5	1 / 1	5 / 5	1 / 1	5 / 5
剥離強度[N/cm]	7.1	15.2	6.9	11.7	11.5	5.1	12.7	8	10.2	12.7
損失係数										
30°C	0.226	0.435	0.364	0.273	0.244	0.324	0.243	0.269	0.295	0.303
20°C	0.338	0.440	0.434	0.392	0.35	0.373	0.387	0.334	0.375	0.495
10°C	0.392	0.268	0.279	0.367	0.386	0.267	0.422	0.314	0.336	0.331
0°C	0.292	0.130	0.134	0.24	0.28	0.152	0.267	0.208	0.215	0.18
破壊パターン	100% cf	af	25% cf	100% cf	100% cf	af	100% cf	af	af	100% cf

表 4, cf = 凝集破壊, af. = 純然たる接着破壊

【図面】

【図１】

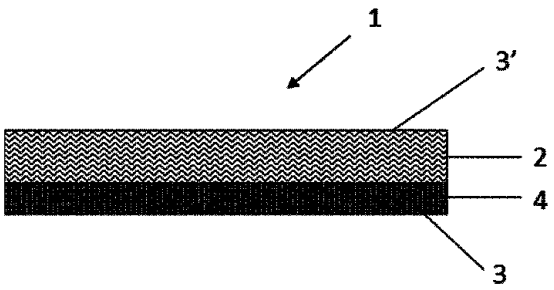


Fig. 1

【図２】

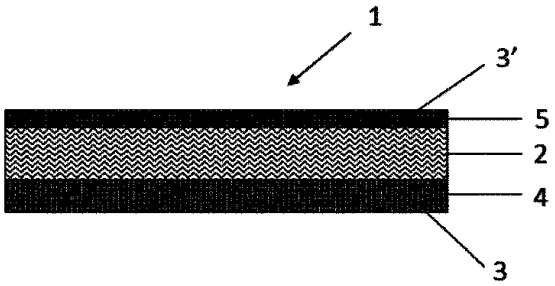


Fig. 2

【図３】

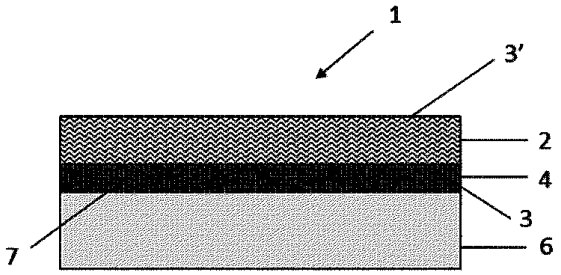


Fig. 3

【図４】

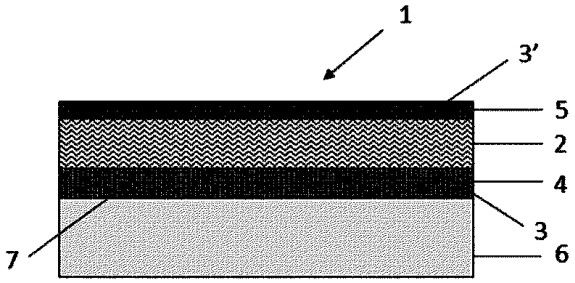


Fig. 4

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2022/068506

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
INV. C08L23/22 C09K3/10
ADD.

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
G02F C08L C09K C08K

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 2017/267842 A1 (OHKUBO MAKOTO [JP] ET AL) 21 September 2017 (2017-09-21) page 8; examples 1-4; table 2 paragraphs [0002], [0005], [0008] - [0010], [0027] - [0029], [0042] - [0045], [0049] - [0053], [0066], [0067]	1-15
A	US 6 361 643 B2 (HENKEL TEROSON GMBH [DE]) 26 March 2002 (2002-03-26) column 1, line 25 - line 36 column 3, line 30 - line 40 column 4, line 1 - column 5, line 10 column 6, line 5 - line 43	1-15

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☒ See patent family annex.

* Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance;; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance;; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
17 October 2022	04/11/2022

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Lippert, Sigrid

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (April 2005)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No
PCT/EP2022/068506

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 2017267842 A1	21-09-2017	BR 112017012306 A2	02-05-2018
		CA 2970454 A1	16-06-2016
		CN 107108973 A	29-08-2017
		EP 3231839 A1	18-10-2017
		ES 2780203 T3	24-08-2020
		JP 6655285 B2	26-02-2020
		JP 2016113524 A	23-06-2016
		KR 20170097029 A	25-08-2017
		US 2017267842 A1	21-09-2017
		WO 2016093339 A1	16-06-2016
US 6361643 B2	26-03-2002	NONE	

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (April 2005)

フロントページの続き

(51)国際特許分類		FI			テーマコード（参考）
C08L 7/00 (2006.01)		C08L	7/00		
G10K 11/162 (2006.01)		G10K	11/162		
F16F 15/02 (2006.01)		F16F	15/02	Q	
B32B 25/02 (2006.01)		B32B	25/02		
B32B 25/04 (2006.01)		B32B	25/04		
B32B 27/00 (2006.01)		B32B	27/00	104	
B32B 27/20 (2006.01)		B32B	27/20	Z	

MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DJ,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IQ,IR,IS,IT,JM,JO,JP,KE,KG,KH,KN,KP,KR,KW,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LU,LY,MA,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SA,SC,SD,SE,SG,SK,SL,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,WS,ZA,ZM,ZW

(74)代理人 100227352
弁理士 白倉 加苗
(72)発明者 ロベルト ビット
ドイツ連邦共和国，６３１１０ ロートガウ，ニーウポオルター シュトラーセ １１０アー
(72)発明者 マルコ ビドビック
ドイツ連邦共和国，６７２２７ フランケンタール，フランケンシュトラーセ ２３エフ
(72)発明者 フレデリック シュバブ
ドイツ連邦共和国，６０５９４ フランクフルト，シュテクシュトラーセ ７０
(72)発明者 クリスティアン ハルト
ドイツ連邦共和国，６５４５１ ケルスターバハ，キルシュアレー ３５
(72)発明者 ヤン スペングラー
ドイツ連邦共和国，６４７４７ ブロイベルク，イン デン ゼクス モルゲン ５

Ｆターム（参考） 3J048 AC03 BD04 BD05 EA07 EA36
4F100 AA37A AA37B AK29A AK29B AN01A AN01B AN02A AN02B BA02 BA10A BA10B CA06A CA13A CA23A CA23B CB00B DE01A DE01B GB32 GB48 JA04 JA06 JA07A JA07B JH01A JH01B JK06 JL11B YY00A YY00B
4J002 AC01Y AC04Z AC05Z AC06Y BA01U BB17W BB18W BB18X DA026 DE086 DE096 DE116 DE236 DG046 DJ006 DJ016 DJ036 DJ046 DJ056 DL006 DM006 FA096 FD016 GF00 GJ01 GN00 GQ00
5D061 AA04 AA06