

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6960932号
(P6960932)

(45) 発行日 令和3年11月5日 (2021.11.5)

(24) 登録日 令和3年10月14日 (2021.10.14)

(51) Int. Cl.	F I
C O 8 J 5/18 (2006.01)	C O 8 J 5/18 C E X
B 3 2 B 27/28 (2006.01)	B 3 2 B 27/28 I O 2
C O 8 L 29/14 (2006.01)	C O 8 L 29/14
C O 3 C 27/12 (2006.01)	C O 3 C 27/12 C

請求項の数 14 (全 62 頁)

(21) 出願番号	特願2018-544142 (P2018-544142)	(73) 特許権者	503316891
(86) (22) 出願日	平成29年2月8日 (2017.2.8)		ソルティア・インコーポレーテッド
(65) 公表番号	特表2019-513162 (P2019-513162A)		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
(43) 公表日	令和1年5月23日 (2019.5.23)	(74) 代理人	100140109
(86) 国際出願番号	PCT/US2017/016898		弁理士 小野 新次郎
(87) 国際公開番号	W02017/146901	(74) 代理人	100118902
(87) 国際公開日	平成29年8月31日 (2017.8.31)		弁理士 山本 修
審査請求日	令和2年2月6日 (2020.2.6)	(74) 代理人	100106208
(31) 優先権主張番号	15/051, 183		弁理士 宮前 徹
(32) 優先日	平成28年2月23日 (2016.2.23)	(74) 代理人	100120112
(33) 優先権主張国・地域又は機関	米国 (US)		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】 向上した光学特性を有する中間膜

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

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少なくとも1つのポリマー層を含み、ポリマー層は少なくとも1.480の屈折率を有し、中間膜は0.50 ~ 0.85 mradの全体的なくさび角度を有するテーパー状の区域を含むテーパー状中間膜。

【請求項 2】

ポリマー層は少なくとも1.500の屈折率を有する、請求項1に記載の中間膜。

【請求項 3】

中間膜はモノリス型中間膜である、請求項1又は2に記載の中間膜。

【請求項 4】

中間膜は、ポリマー層、及びかかるポリマー層に隣接する他のポリマー層を含む多層中間膜であり、ポリマー層のガラス転移温度と他のポリマー層のガラス転移温度の間の差は少なくとも3である、請求項1又は2に記載の中間膜。

【請求項 5】

他のポリマー層は第2のポリ（ビニルアセタール）樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含み、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と他のポリマー層中の第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の間の差は少なくとも2重量%である、請求項4に記載の中間膜。

【請求項 6】

10

20

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む、請求項1から5のいずれかに記載の中間膜。

【請求項7】

テーパー状の区域は、線状の厚さプロファイル及び一定のくさび角度を有する少なくとも1つの一定角度の区域を含む、請求項1から6のいずれかに記載の中間膜。

【請求項8】

1対の硬質基材及び請求項1から7のいずれかに記載の中間膜を含み、中間膜は1対の硬質基材の間に配置されており、硬質基材は4.0mm未満の合計厚さを有する多層パネル。

10

【請求項9】

1対の硬質基材；及び

基材の間に配置されている請求項1から7のいずれかに記載の中間膜；
を含み；

多層パネルの等価屈折率は硬質基材のそれぞれの屈折率よりも少なくとも0.010高い多層パネル。

【請求項10】

基材のそれぞれの屈折率は中間膜の屈折率よりも少なくとも20%低い、請求項9に記載のパネル。

【請求項11】

中間膜の屈折率は少なくとも約1.600である、請求項9に記載のパネル。

20

【請求項12】

1対の硬質基材；及び

基材の間に配置されている請求項1から7のいずれかに記載のテーパー状中間膜；
を含み；

中間膜の屈折率は硬質基材のそれぞれの屈折率よりも少なくとも5%高い多層パネル。

【請求項13】

パネルは硬質基材のそれぞれの屈折率よりも高い等価屈折率を有する、請求項12に記載のパネル。

【請求項14】

中間膜は約0.25～約1.2mmの範囲の最小厚さ及び約0.38～約2.2mmの範囲の最大厚さを有し、中間膜の最小厚さと中間膜の最大厚さの間の差は少なくとも約0.13mmであり、硬質基材のそれぞれの合計厚さは約4.0mm未満である、請求項12に記載のパネル。

30

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

[0001]本出願は、2014年12月8日出願で現在係属中の米国特許出願14/563,011（その開示事項はその全部を参照として本明細書中に包含する）の一部継続出願である。

40

【0002】

[0002]本発明はポリマー樹脂に関し、特に多層パネルにおいて用いられるものなどのポリマー中間膜において用いるのに好適なポリマー樹脂に関する。

【背景技術】

【0003】

[0003]ポリ（ビニルブチラル）（PVB）は、例えば安全ガラス又はポリマー積層体のような光透過性積層体などの多層パネルにおいて中間膜として用いることが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。PVBはまた、光起電ソーラーパネルにおいて、商業用途及び住居用途用の電力を生成及び供給するのに用いるパネルを封入するためにも用いられている。

50

【 0 0 0 4 】

[0004]安全ガラスとは、一般にガラスの2つのシートの間に配置されている少なくとも1つのポリマーシート又は中間膜を含む透明な積層体を指す。安全ガラスは建築用途及び自動車用途において透明バリヤとしてしばしば用いられており、その主要な機能の1つは、物体にガラスを貫通させることなく衝撃又は打撃から生成するエネルギーを吸収し、加えられる力がガラスを破壊するのに十分である場合においてもガラスを結合した状態に維持することである。これによって鋭利なガラスの破片が分散するのが回避され、囲まれた領域内の人又は物体に対する損傷及び損害が最小になる。安全ガラスはまた、紫外（UV）及び/又は赤外（IR）放射線の減少のような他の利益を与えることもでき、これはまた、色、テクスチャーなどを加えることによって窓の開口部の美的外観を向上させることもできる。更に、より静かな内部空間をもたらす所望の遮音特性を有する安全ガラスも製造されている。

10

【 発明の概要 】

【 発明が解決しようとする課題 】

【 0 0 0 5 】

[0005]積層安全ガラスは、計器群又は他の重要な情報のイメージを、フロントガラス上の乗物の操縦者の眼のレベルの位置に投影するヘッドアップディスプレイ（HUD）システムを装備した乗物において用いられている。かかるディスプレイによって、運転者は、ダッシュボード情報を視覚で入手しながら近付いてくる進行路に集中し続けることが可能になる。均一で安定した厚さを有する平らなフロントガラス上に投影した場合、投影像はガラスの内表面及び外表面に反射するので、投影像の位置における差によって干渉する二重像又は反射「ゴースト」像が形成される。

20

【 0 0 0 6 】

[0006]これらのゴースト像に対処する1つの方法は、誘電体被覆のような被覆を、ガラスとポリマー中間膜の間のフロントガラスの表面の1つの上に含ませることである。この被覆は二次像の明度を大きく減少させながら一次像に非常に近接している位置に第3のゴースト像を形成して、二次像が背景中に溶け込むように見えるように設計されている。残念なことに、たまに、かかる被覆の有効性が制限される場合があり、被覆それ自体がポリマー中間膜のガラス基材への接着を妨げて、光学的歪み及び他の問題を引き起こす場合がある。

30

【 0 0 0 7 】

[0007]同時に、部分的に乗物に関する増加した燃料効率の要望のために、伝統的なパネルよりも重量が軽い多層パネルに対する需要が成長している。一般に、乗物において用いられる多層パネル（これらとしては、例えばそのフロントガラス、サイドウィンドウ、及び他のパネルを挙げることができる）は、乗物の全重量の注目に値する部分（時には5%まで）を構成する。結果として、これらのパネルの全重量を減少させると、一般に乗物の重量の減少、及びそれに伴って燃料効率の増加をもたらすであろう。これらのパネルにおける重量の大部分は中間層におけるものではなく、基材（通常はガラスを含む）に起因する。

【 0 0 0 8 】

40

[0008]したがって、軽量の多層パネルにおいても用いることができるHUD用途において用いるのに好適なポリマー中間膜に対する必要性が存在する。かかる中間膜は、二重像分離を減少させ、より薄い基材の使用を可能にする一方で、望ましい光学特性、遮音特性、及び視覚特性を示さなければならない。

【 課題を解決するための手段 】

【 0 0 0 9 】

[0009]本発明の一態様は、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少なくとも1つのポリマー層を含むテーパー状中間膜に関する。ポリマー層は少なくとも約1.480の屈折率を有し、中間膜は0.85 mrad以下の全体的なくさび角度を有するテーパー状の区域を含む。

50

【 0 0 1 0 】

[0010]本発明の他の態様は、1対の硬質基材；及び基材の間に配置されている中間膜；を含む多層パネルに関する。中間膜は0.85 mrad未満の全体的なくさび角度を有するテーパ状の区域を含み、多層パネルの等価屈折率は、硬質基材のそれぞれの屈折率よりも少なくとも0.010高い。

【 0 0 1 1 】

[0011]本発明の更に他の態様は、1対の硬質基材、及び基材の間に配置されているテーパ状中間膜を含む多層パネルに関する。テーパ状中間膜は少なくとも1種類のポリマー樹脂を含む。中間膜の屈折率は、硬質基材のそれぞれの屈折率よりも少なくとも5%高い。

10

【 0 0 1 2 】

[0012]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】

【 0 0 1 3 】

【図1】[0013]図1は、参照しやすいようにテーパ状中間膜の種々の特徴をラベル付けた、本発明の一態様にしたがって構成されたテーパ状中間膜の断面図である。

【図2】[0014]図2は、テーパ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状の区域を有するテーパ状中間膜の断面図である。

【図3】[0015]図3は、テーパ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状中間膜の断面図である。

20

【図4】[0016]図4は、テーパ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状中間膜の断面図である。

【図5】[0017]図5は、テーパ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状中間膜の断面図である。

【図6】[0018]図6は、テーパ状部が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状の区域を有するテーパ状中間膜の断面図である。

30

【図7】[0019]図7は、テーパ状の区域が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状中間膜の断面図である。

【図8】[0020]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状中間膜の平面図である。[0021]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】[0022]図9は、多層パネルの二重像分離距離を測定するために用いる装置の概要図である。

40

【図10】[0023]図10は、図9の装置を用いて多層パネルの二重像分離距離を測定する際に形成される投影像の例である。

【図11】[0024]図11は、ピクセル数を強度の関数としてプロットすることによって図10に示す投影像を分析することによって形成されるグラフの例である。

【図12】[0025]図12は、実施例11に記載する幾つかの比較試料及び本発明試料について行った二重像分離距離分析の結果のグラフ表示であり、特に種々のくさび角度の幾つかの試料の二重像分離距離を全厚さの関数として示している。

【図13】[0026]図13は、実施例11に記載する幾つかの比較試料及び本発明試料について行った二重像分離距離分析の結果のグラフ表示であり、特に種々のガラス構造の幾つかの試料の二重像分離をくさび角度の関数として示している。

50

【図 1 4】[0027]図 1 4 は、実施例 1 3 において実施した二重像分離距離分析の結果のグラフ表示であり、特に種々のガラス厚さを有するパネルを用いた幾つかのパネルの二重像分離距離を等価屈折率の関数として示している。

【発明を実施するための形態】

【0014】

[0028]本発明の種々の態様による樹脂組成物、層、及び中間膜には、1 種類以上の熱可塑性ポリマー、及び屈折率 (R I) 調整剤 (balancing agent) を含ませることができる。本明細書において用いる「屈折率調整剤」又は「R I 調整剤」という用語は、少なくとも 1 つの樹脂又は層の屈折率を調節するために組成物、層、又は中間膜中に含ませる任意の成分又は添加剤を指す。R I 調整剤は、中間膜内の樹脂又は層の少なくとも 1 つの屈折率を増加又は減少させることができ、これによって色斑、曇り度、及びノ又は明澄度などの中間膜の光学特性を、R I 調整剤を用いないで形成される同じ中間膜と比べて向上させることができる。

【0015】

[0029]本明細書において用いる「ポリマー樹脂組成物」及び「樹脂組成物」という用語は、1 種類以上のポリマー樹脂を含む組成物を指す。ポリマー組成物には、場合によって可塑剤及びノ又は他の添加剤のような他の成分を含ませることができる。本明細書において用いる「ポリマー樹脂層」、「ポリマー層」、及び「樹脂層」という用語は、ポリマーシートに成形された、場合によって 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指す。ここでも、ポリマー層に更なる添加剤を含ませることができるが、これらは必須ではない。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ために少なくとも 1 つの硬質基材と共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。「単一シート」中間膜及び「モノリス型」中間膜という用語は、1 つの単一の樹脂シートから形成される中間膜を指し、一方、「複数層」及び「多層」中間膜という用語は、共押出、積層、又は他の形態で互いと結合されている 2 以上の樹脂シートを有する中間膜を指す。

【0016】

[0030]本明細書に記載する樹脂組成物、層、及び中間膜には、1 種類以上の熱可塑性ポリマーを含ませることができる。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 (P U)、ポリ(エチレン - c o - ビニル)アセテート (E V A)、ポリ塩化ビニル (P V C)、ポリ(塩化ビニル - c o - 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 - c o - 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ノ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、熱可塑性ポリマーは、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、或いは樹脂には 1 種類以上のポリ(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ポリ(ビニルアセタール)樹脂に関して記載するが、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。

【0017】

[0031]本明細書に記載する樹脂組成物、層、及び中間膜がポリ(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。ポリ(ビニルアセタール)樹脂は、ポリビニルアルコールを酸触媒の存在下で 1 種類以上のアルデヒドによってアセタール化することによって形成することができる。得られる樹脂は、次に、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. Wade (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分離し、安定化し、乾燥することができる。得られるポリ(ビニルアセター

ル)樹脂は、他に示していない限りにおいては、ASTM-D1396にしたがっ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%の全アセタール化度を有してよい。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成分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及び残留アセテート基であり、これは下記において更に詳細に議論する。

【0018】

[0032]幾つかの態様によれば、本樹脂組成物、層、又は中間膜には、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、これは組成物、層、又は中間膜中の全樹脂の合計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%、
10 少なくとも約2重量%、少なくとも約3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30重量%、少なくとも約40重量%、又は少なくとも約45重量%の量で組成物、層、又は中間膜中に存在させることができる。全体として、少なくとも1種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、全樹脂の合計重量を基準として、組成物、層、又は中間膜の少なくとも約10重量%、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%、
20 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%、又は少なくとも約80重量%を構成させることができる。幾つかの態様においては、少なくとも1種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂以外の樹脂の量は、全樹脂の合計重量を基準として約20重量%以下、約15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%以下であってよい。

【0019】

[0033]幾つかの態様においては、本樹脂組成物、層、又は中間膜には、少なくとも第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)樹脂を含ませることができ、これらのそれぞれは、組成物、層、又は中間膜中の全樹脂の合計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3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%、
30 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%、又は少なくとも約45重量%の量で組成物、層、又は中間膜中に存在させることができる。全体として、第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、全樹脂の合計重量を基準として、組成物、層、又は中間膜の少なくとも約10重量%、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%、少なくとも約70重量%、又は少なくとも約80重量%を構成させることができる。幾つかの態様においては、第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂以外の樹脂の量は、全樹脂の合計重量を基準として約20重量%以下、約15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%以下であってよい。

【0020】

[0034]幾つかの態様においては、第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の一方は、第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の合計重量を基準として12重量%未
40 満の量で組成物、層、又は中間膜中に存在させることができる。例えば、第1又は第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の合計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1.5重量%、少なくとも約2重量%、少なくとも約2.5重量%、少なくとも約3重量%、
少なくとも約3.5重量%、少なくとも約4重量%、少なくとも約4.5重量%、少なくとも約5重量%、少なくとも約5.5重量%、少なくとも約6重量%、少なくとも約6.5重量%、少なくとも約7重量%、及び/又は約12重量%以下、約11.5重量%以下、
約11重量%以下、約10.5重量%以下、約10重量%以下、約9.5重量%以下、約9重量%以下、約8.5重量%以下、約8重量%以下、約7.5重量%以下の量で、組成物、層、又は中間膜中に存在させることができる。幾つかの態様においては、第1及び
50

第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の一方は、第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の合計重量を基準として約0.5～約12重量%、約1.5～約11.5重量%、約2～約11重量%、約2.5～約10重量%の範囲の量で、組成物、層、又は中間膜中に存在させることができる。

【0021】

[0035]第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂には、任意の好適な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 $C_1 \sim C_{10}$ アルデヒド、又は少なくとも1種類の $C_4 \sim C_8$ アルデヒドの残基を含ませることができる。好適な $C_4 \sim C_8$ アルデヒドの例としては、*n*-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、2-メチルパレルアルデヒド、*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が、これらに限定されない。第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の少なくとも一方に、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 $C_4 \sim C_8$ アルデヒドの残基を含ませることができ、及び/又は約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 $C_4 \sim C_8$ アルデヒド、或いは約20～約90重量%、約30～約80重量%、又は約40～約70重量%の範囲の少なくとも1種類の $C_4 \sim C_8$ アルデヒドを含ませることができる。 $C_4 \sim C_8$ 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、イソブチルアルデヒド、2-エチルヘキシルアルデヒド、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。

【0022】

[0036]種々の態様においては、第1及び/又は第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、ポリビニル*n*-ブチラール(PVB)樹脂であってよい。他の態様においては、第1及び/又は第2のポリ(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、例えば樹脂の全アルデヒド残基の合計重量を基準として約50重量%以下、約40重量%以下、約30重量%以下、約20重量%以下、約10重量%以下、約5重量%以下、又は約2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*n*-ブチラール)樹脂であってよい。第1及び/又は第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂がPVB樹脂である場合には、樹脂の分子量は、Cott's及びOwensの低角レーザ光散乱(SECLALS)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50,000ダルトン、少なくとも約70,000ダルトン、少なくとも約100,000ダルトン、及び/又は約600,000ダルトン以下、約550,000ダルトン以下、約500,000ダルトン以下、約450,000ダルトン以下、又は425,000ダルトン以下であってよい。本明細書において用いる「分子量」という用語は重量平均分子量(M_w)を指す。第1及び/又は第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の分子量は、約50,000～約600,000ダルトン、約70,000～約450,000ダルトン、又は約100,000～約425,000ダルトンの範囲であってよい。

【0023】

[0037]ここでは概して第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂に関して記載するが、幾つかの態様においては第1及び第2のアセタール基を含む同等の単一のポリ(ビニルアセタール)樹脂を第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂に代えて用いて同様の結果を得ることができることを理解すべきである。本明細書において用いる「ポリ(ビニルアセタール)樹脂組成物」という用語は、樹脂のブレンド中に存在する個々のポリ(ビニルアセタール)樹脂を指す場合があり、或いは単一のポリ(ビニルアセタール)樹脂上に存在するアセタール基を指す場合がある。種々の態様においては、層、中間膜、又はブレンド中における第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分と第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分との量の重量比は、約0.5:99.5～約99.5:0.5、約1:

99～99：1、約10：90～約90：10、約25：75～約75：25、又は約40：60～約60：40の範囲であってよい。

【0024】

[0038]幾つかの態様においては、少なくとも1つの樹脂組成物、層、又は中間膜に、少なくとも第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分を含ませることができる。幾つかの態様においては、第1及び第2の樹脂成分に第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含ませることができ、これを物理的に混合して樹脂ブレンドを形成することができ、これを1以上の可塑剤又は他の添加剤と混合して、ブレンドされたポリマー層又は中間膜を与えることができる。他の態様においては、第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分は、それぞれ単一のポリ(ビニルアセタール)樹脂中の第1及び第2のアセタール部分として存在させることができる。樹脂ブレンドと同様に、この単一の「複合」ポリ(ビニルアセタール)樹脂は、場合によっては可塑剤とブレンドしてポリマー層及び中間膜中において用いることができる。

10

【0025】

[0039]幾つかの態様においては、樹脂成分がポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む場合には、第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、第1及び第2の樹脂の一方が第1及び第2の樹脂の他方の中に分散されて、第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の一方のドメインを第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の他方の中に形成することができるようにブレンドすることができる。かかるブレンドされた樹脂は単一の中間膜として用いることができ、或いはこれは1以上の隣接する層と組み合わせて多層中間膜を形成することができる。他の態様においては、第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂を多層中間膜の隣接する層の中に存在させて、中間膜の複数の層の1つが第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含み、中間膜の他の層が第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含むようにすることができる。また、複数の層の少なくとも1つに隣接して更なる層を存在させることもできる。

20

【0026】

[0040]本発明の種々の態様による樹脂組成物、層、及び中間膜には、少なくとも1種類の可塑剤を更に含ませることができる。組成物、層、又は中間膜における1種類又は複数の樹脂の特定の組成に応じて、可塑剤は、樹脂100部あたりの部(phr)で少なくとも約5phr、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、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、又は約40phr以下、或いは約5～約120phr、約10～約110phr、約20～約90phr、又は約25～約75phrの範囲の量で存在させることができる。具体的な態様は下記において詳細に議論する。

30

【0027】

[0041]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部と比べて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、可塑剤は30phrの量で存在する。樹脂組成物、層、又は中間膜が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。

40

【0028】

[0042]好適な可塑剤の例としては、トリエチレングリコールジ(2-エチルヘキサノエート)(3GEH)、トリエチレングリコールジ(2-エチルブチレート)、トリエチレ

50

ングリコールジヘプタノエート、テトラエチレングリコールジヘプタノエート、テトラエチレングリコールジ(2-エチルヘキサノエート)(4-GEH)、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、及びビス(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、並びにこれらの混合物を挙げることができるが、これらに限定されない。可塑剤は、トリエチレングリコールジ(2-エチルヘキサノエート)及びテトラエチレングリコールジ(2-エチルヘキサノエート)からなる群から選択することができ、或いは可塑剤はトリエチレングリコールジ(2-エチルヘキサノエート)を含んでいてよい。

【0029】

[0043]幾つかの態様によれば、本明細書に記載する組成物、層、及び中間膜中の第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及び/又は残留アセテート含量よりも少なくとも約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%、又は少なくとも約8重量%高いか又は低い残留ヒドロキシル含量及び/又は残留アセテート含量を有していてよい。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、それぞれ処理が完了した後に樹脂上に残留しているヒドロキシル及びアセテート基の量を指す。例えば、ポリビニルn-ブチラールは、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n-ブチルアルデヒドによってアセタール化してポリビニルn-ブチラール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、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。残留ヒドロキシル含量及び残留アセテート含量は、ポリマー樹脂の重量を基準とする重量%で表され、他に示していない限りにおいてASTM-D1396にしたがって測定される。

【0030】

[0044]また、第1及び第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の間の差は、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12重量%、少なくとも約15重量%、少なくとも約20重量%、又は少なくとも約30重量%であってもよい。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、1つの数値を他のものから減じることによって算出される2つの与えられた重量%の間の差を指す。例えば、12重量%の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、14重量%の残留ヒドロキシル含量を有するポリ(ビニルアセタール)樹脂よりも2重量%低い残留ヒドロキシル含量を有する(14重量%-12重量%=2重量%)。本明細書において用いる「差」という用語は、他の値よりも高いか又は低い値を指すことができる。

【0031】

[0045]第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の少なくとも一方は、少なくとも約14重量%、少なくとも約14.5重量%、少なくとも約15重量%、少なくとも約15.5重量%、少なくとも約16重量%、少なくとも約16.5重量%、少なくとも約17重量%、少なくとも約17.5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19.5重量%、及び/又は約45重量%以下、約40重量%以下、約35重量%以下、約33重量%以下、約30重量%以下、約27重量%以下、約25重量%以下、約22重量%以下、約21.5重量%以下、約21重量%以下、約20.5重量%以下、又は約20重量%以下、或いは約14~約45

重量%、約 16 ~ 約 30 重量%、約 18 ~ 約 25 重量%、約 18.5 ~ 約 20 重量%、又は約 19.5 ~ 約 21 重量%の範囲の残留ヒドロキシル含量を有してよい。

【0032】

[0046]他のポリ(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%、及び/又は約 16 重量%以下、約 15 重量%以下、約 14.5 重量%以下、約 13 重量%以下、約 11.5 重量%以下、約 11 重量%以下、約 10.5 重量%以下、約 10 重量%以下、約 9.5 重量%以下、又は約 9 重量%以下、或いは約 8 ~ 約 16 重量%、約 9 ~ 約 15 重量%、又は約 9.5 ~ 約 14.5 重量%の範囲の残留ヒドロキシル含量を有してよく、第 1 及び第 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の間の差が上述したように少なくとも約 2 重量%になるように選択することができる。また、1 種類以上の他のポリ(ビニルアセタール)樹脂を樹脂組成物、層、又は中間膜中に存在させることもでき、これらは上記に与えた範囲内の残留ヒドロキシルを有してよい。更に、1 種類以上の他のポリ(ビニルアセタール)樹脂の残留ヒドロキシル含量は、第 1 及び/又は第 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同一又は異なっている。10

【0033】

[0047]幾つかの態様においては、第 1 及び第 2 のポリ(ビニルアセタール)樹脂の少なくとも一方は、他方と異なる残留アセテート含量を有してよい。例えば幾つかの態様においては、第 1 及び第 2 のポリ(ビニルアセタール)樹脂の残留アセテート含量の間の差は、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 8 重量%、少なくとも約 10 重量%であってよい。ポリ(ビニルアセタール)樹脂の一方は、上記に記載のように測定して約 4 重量%以下、約 3 重量%以下、約 2 重量%以下、又は約 1 重量%以下の残留アセテート含量を有してよい。幾つかの態様においては、第 1 及び第 2 のポリ(ビニルアセタール)樹脂の少なくとも一方は、少なくとも約 5 重量%、少なくとも約 8 重量%、少なくとも約 10 重量%、少なくとも約 12 重量%、少なくとも約 14 重量%、少なくとも約 16 重量%、少なくとも約 18 重量%、少なくとも約 20 重量%、又は少なくとも約 30 重量%の残留アセテート含量を有してよい。第 1 及び第 2 のポリ(ビニルアセタール)樹脂の間の残留アセテート含量の差は上記に与えた範囲内であってよく、或いはこの差は約 3 重量%未満、約 2 重量%以下、約 1 重量%以下、又は約 0.5 重量%以下であってよい。樹脂組成物又は中間膜中に存在する更なるポリ(ビニルアセタール)樹脂は、第 1 及び/又は第 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同じか又は異なる残留アセテート含量を有してよい。20

【0034】

[0048]幾つかの態様においては、第 1 及び第 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の間の差は、約 2 重量%未満、約 1 重量%以下、約 0.5 重量%以下であってよく、第 1 及び第 2 のポリ(ビニルアセタール)樹脂の間の残留アセテート含量の差は、少なくとも約 3 重量%、少なくとも約 5 重量%、少なくとも約 8 重量%、少なくとも約 15 重量%、少なくとも約 20 重量%、又は少なくとも約 30 重量%であってよい。他の態様においては、第 1 及び第 2 のポリ(ビニルアセタール)樹脂の残留アセテート含量の差は、約 3 重量%未満、約 2 重量%以下、約 1 重量%以下、又は約 0.5 重量%以下であってよく、第 1 及び第 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の差は、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 12 重量%、少なくとも約 15 重量%、少なくとも約 20 重量%、又は少なくとも約 30 重量%であってよい。40

【0035】

[0049]種々の態様においては、第 1 及び第 2 のポリ(ビニルアセタール)樹脂の残留ヒドロキシル及び/又は残留アセテート含量の差は、最終の組成物、層、又は中間膜に対して強度、耐衝撃性、貫通抵抗性、加工性、又は遮音性能のような幾つかの性能特性を制御又は与えるように選択することができる。例えば、通常は約 16 重量%より大きなより高50

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、樹脂組成物又は層に対する高い耐衝撃性、貫通抵抗性、及び強度を促進することができ、一方、通常は16重量%未満の残留ヒドロキシル含量を有するより低いヒドロキシル含量の樹脂は、中間膜又はブレンドの遮音性能を向上させることができる。

【0036】

[0050]より高いか又はより低い残留ヒドロキシル含量及び/又は残留アセテート含量を有するポリ（ビニルアセタール）樹脂にはまた、少なくとも1種類の可塑剤と混合する場合に、最終的に異なる量の可塑剤を含ませることができる。その結果、異なる組成を有する第1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ドメインは、単一のポリマー層又は中間膜において異なる特性を有することもできる。理論によって縛られることは望まないが、与えられた可塑剤とポリ（ビニルアセタール）樹脂との相溶性は、少なくとも部分的にポリマーの組成、及び特にその残留ヒドロキシル含量によって定まる可能性があると推定される。概して、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、より低い残留ヒドロキシル含量を有する同様の樹脂と比べて与えられた可塑剤に対してより低い相溶性（又は容量）を示す傾向がある。その結果、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、より低い残留ヒドロキシル含量を有する同様の樹脂よりも可塑化されず、より高い剛軟性を示す傾向がある。これとは逆に、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、与えられた可塑剤によって可塑化した際により多量の可塑剤を導入する傾向を示す可能性があり、これによってより高い残留ヒドロキシル含量を有する同様の樹脂を含むポリマー層よりも低いガラス転移温度を示すより軟質のポリマー層が与えられる可能性がある。特定の樹脂及び可塑剤に応じて、これらの傾向は逆転する可能性がある。

【0037】

[0051]異なるレベルの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）樹脂を可塑剤とブレンドすると、可塑剤をポリマー層又はドメインの間に分配して、より低い残留ヒドロキシル含量を有する層又はドメイン中により多い可塑剤を存在させることができ、より高い残留ヒドロキシル含量を有する層又はドメイン中により少ない可塑剤を存在させることができる。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、ポリマー樹脂に適当な量の可塑剤を加えることを容易にすることができる。また、かかる相関関係によって、可塑剤を他の形態で樹脂の間で移動させる際に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。

【0038】

[0052]幾つかの態様においては、ポリマー層又は中間膜には、少なくとも、第1のポリ（ビニルアセタール）樹脂及び第1の可塑剤を含む第1のポリマー層、並びに第2のポリ（ビニルアセタール）樹脂及び第2の可塑剤を含む、第1のポリマー層に隣接する第2のポリマー層を含ませることができる。第1の可塑剤と第2の可塑剤は同じタイプの可塑剤であってよく、或いは第1の可塑剤と第2の可塑剤は異なっていてよい。幾つかの態様においては、第1及び第2の可塑剤の少なくとも一方は2種類以上の可塑剤のブレンドであってもよく、これは1以上の他の可塑剤と同一又は異なっていてよい。第1及び第2のポリ（ビニルアセタール）樹脂の一方が、他方の残留ヒドロキシル含量よりも少なくとも2重量%高いか又は低い残留ヒドロキシル含量を有する場合には、ポリマー層の間の可塑剤含量の差は、少なくとも約2 phr、少なくとも約5 phr、少なくとも約8 phr、少なくとも約10 phr、少なくとも約12 phr、又は少なくとも約15 phrであってよい。殆どの態様においては、より低いヒドロキシル含量を有する樹脂を含むポリマー層は、より高い可塑剤含量を有していてよい。ポリマー層又は中間膜の他の特性を制御又は維持するためには、第1及び第2のポリマー層の間の可塑剤含量の差は、約40 phr以下、約30 phr以下、約25 phr以下、約20 phr以下、又は約17 phr以下であってよい。他の態様においては、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40 phr、少なくとも約50 phr、少なくとも約60 phr、又は少な

くとも約70 phrであってよい。

【0039】

[0053]その結果、第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂を多層中間膜の隣接する層の中に存在させる幾つかの態様においては、第1及び第2のポリマー層は異なるガラス転移温度を示してよい。同様に、第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂をブレンド中に存在させる場合には、第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の一方のドメインは、第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の他方と異なるガラス転移温度を示してよい。ガラス転移温度又は T_g は、ポリマー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樹脂及び層のガラス転移温度は、動的機械熱分析(DMTA)によって求めた。DMTAは、試料の貯蔵(弾性)係数(G')(パスカル)、損失(粘性)係数(G'')(パスカル)、及び $\tan(G''/G')$ を、与えられた振動数及び温度スイープ速度において温度の関数として測定する。次に、温度スケールでの \tan ピークの位置によってガラス転移温度を求める。ここに与えるガラス転移温度は、1 Hzの振動数において、剪断モード下、3 /分の温度スイープ速度で求めた。

10

【0040】

[0054]第1のポリマー層と第2のポリマー層、又はブレンドされた樹脂又はポリマー層の種々の領域の間のガラス転移温度の差は、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、少なくとも約12、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、又は少なくとも約25であってよい。第1及び第2のポリマー層の一方は、少なくとも約26、少なくとも約28、少なくとも約30、少なくとも約33、少なくとも約35、及び/又は約70以下、約65以下、約60以下、約55以下、約50以下、或いは約26~約70、約30~約60、約35~約50の範囲のガラス転移温度を有してよい。第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の他方は、25以下、約20以下、約15以下、約10以下、約5以下、約0以下、約-5以下、又は約-10以下のガラス転移温度を有してよい。

20

【0041】

[0055]第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂を互いとブレンドして一方の樹脂のドメインが他方の中に分散されるようにする場合には、第1及び第2の樹脂のドメインの間に可塑剤含量及び/又はガラス転移温度のかかる差を存在させることもできる。例えば幾つかの態様においては、ポリマー層又は中間膜に、上記に記載したように、より高いか又はより低い可塑剤含量の種々のドメイン、及び/又はより高いか又はより低いガラス転移温度を有するドメインを含ませることができる。幾つかの態様においては、ポリマー層又は中間膜の少なくとも一部は、少なくとも約26、少なくとも約28、少なくとも約30、少なくとも約33、少なくとも約35、及び/又は約70以下、約65以下、約60以下、約55以下、約50以下、或いは約26~約70、約28~約60、約35~約50の範囲のガラス転移温度を有してよく、及び/又はポリマー層又は中間膜の少なくとも一部は、25以下、約20以下、約15以下、約10以下、約5以下、約0以下、約-5以下、又は-10以下のガラス転移温度を有してよい。

30

40

【0042】

[0056]本明細書に記載する1以上の樹脂ブレンド、層、及び中間膜に種々の他の添加剤を含ませて、中間膜に特定の特性又は特徴を与えることができる。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、IR吸収剤又は遮断剤、例えばインジウムスズオキシド、アンチモンズオキシド、六ホウ化ランタン(LaB_6)、及びセシウムタングステンオキシド、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、UV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。

50

【 0 0 4 3 】

[0057]更に、本発明の中間膜において種々の接着制御剤（ＡＣＡ）を用いて、ガラスへのシートの接着性を制御することができる。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ＡＣＡの量は、少なくとも約０．００３ｐｈｒ、少なくとも約０．０１ｐｈｒ、少なくとも約０．０２５ｐｈｒ、及び／又は約０．１５ｐｈｒ以下、約０．１０ｐｈｒ以下、又は約０．０４ｐｈｒ以下、或いは約０．００３～約０．１５ｐｈｒ、約０．０１～約０．１０ｐｈｒ、又は約０．０２５～約０．０４ｐｈｒの範囲であってよい。好適なＡＣＡとしては、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５，７２８，４７２において開示されているＡＣＡを挙げることができるが、これらに限定されない。

10

【 0 0 4 4 】

[0058]異なる組成を有する樹脂、及び異なる特性を有する可塑化ポリマー層はまた異なる屈折率を示す傾向があり、これによって得られる層又はブレンドの光学品質が低下する可能性がある。理論によって縛られることは望まないが、屈折率のかかる差によって、異なるポリマー層又はドメインを通過する光が異なる方向に屈折する可能性があり、これにより最終生成物において曇りを引き起こす可能性があると考えられる。時には、第１のポリ（ビニルアセタール）樹脂又は層の屈折率と第２のポリ（ビニルアセタール）樹脂又は層の屈折率の間の差の絶対値は、ＡＳＴＭ－Ｄ５４２にしたがって５８９ｎｍの波長及び２５°において測定して０．０１０を超える可能性がある。その結果、これらの組成物、層、又は中間膜は、５％より高い曇り度及び／又は３より高い色斑値を有する可能性がある。

20

【 0 0 4 5 】

[0059]しかしながら、本発明の種々の態様においては、ポリ（ビニルアセタール）樹脂を含む組成物、層、及び中間膜に更に、組成物、層、又は中間膜の屈折率を調節するために少なくとも１種類の屈折率（ＲＩ）調整剤を含ませることができる。幾つかの態様においては、本組成物、層、又は中間膜に、少なくとも第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）樹脂を、少なくとも１種類のＲＩ調整剤と一緒に含ませることができる。他の態様においては、本組成物、層、又は中間膜に、単一のポリ（ビニルアセタール）樹脂を少なくとも１種類のＲＩ調整剤と一緒に含ませることができる。上記で議論したように、ＲＩ調整剤は、少なくとも１つの樹脂又は層の屈折率を増加又は減少させて、それによって中間膜の光学特性を、ＲＩ調整剤を用いないで形成される同じ中間膜と比べて向上させることができる、樹脂若しくは樹脂ブレンド、層、又は中間膜、或いはこれらの一部の中に存在させる任意の好適な薬剤であってよい。幾つかの態様においては、樹脂ブレンド、層、又は中間膜は、ＲＩ調整剤の不存在下で形成した際に少なくとも５％の曇り度を有してよい。

30

【 0 0 4 6 】

[0060]ＲＩ調整剤は任意の好適な形態であってよく、１以上の樹脂と物理的にブレンドすることができ、或いはそれを少なくとも１つの樹脂と化学的に結合又は反応させて、ＲＩ調整剤がポリマー鎖中に導入されるようにすることができる。ＲＩ調整剤の例としては、液体ＲＩ添加剤、固体ＲＩ添加剤、及びポリ（ビニルアセタール）樹脂の１以上の中に存在する少なくとも１つのアルデヒドの残基を挙げることができるが、これらに限定されない。ここで、ＲＩ調整剤、並びにそれを含む樹脂組成物、層、及び中間膜の種々の態様を下記において詳細に議論する。

40

【 0 0 4 7 】

[0061]ＲＩ調整剤は、ポリ（ビニルアセタール）樹脂、ポリマー層、又は中間膜の屈折率を変化させるのに十分な量で樹脂、ポリマー層、又は中間膜中に存在させることができる。ＲＩ調整剤はまた、２つのポリ（ビニルアセタール）樹脂の少なくとも一方の屈折率を変化させて、それによって異なる屈折率を有する２つのポリ（ビニルアセタール）ポリマー層の屈折率の間の差を最小にするのに十分な量で組成物、層、又は中間膜中に存在さ

50

せることもできる。R I 調整剤はまた、樹脂組成物、層、又は中間膜内の 1 以上のポリ（ビニルアセタール）樹脂と 1 以上の可塑剤の屈折率の間の差を最小にすることもできる。幾つかの態様においては、R I 調整剤は、第 1 のポリ（ビニルアセタール）ポリマー層の屈折率と第 2 のポリ（ビニルアセタール）ポリマー層の屈折率の間の差の絶対値を、0.010 以下、約 0.009 以下、約 0.008 以下、約 0.007 以下、約 0.006 以下、約 0.005 以下、約 0.004 以下、又は約 0.003 以下に減少させるのに十分な量で存在させることができる。多層中間膜が 2 以上のポリマー層を含む場合には、R I 調整剤は一方又は両方の層中に存在させることができ、幾つかの態様においては、1 つの層の中に、1 以上の他の層の中におけるよりも多い量で存在させることができる。

【0048】

[0062]幾つかの態様においては、R I 調整剤は、ASTM - D 542 によって 589 nm の波長及び 25 の温度において測定して少なくとも 1.421 の屈折率を有するアルデヒドの 1 以上の残基を含んでいてよい。この R I 調整アルデヒド（ここでは「高屈折率アルデヒド」又は「高 R I アルデヒド」と呼ぶこともできる）は、少なくとも約 1.425、少なくとも約 1.450、少なくとも約 1.475、少なくとも約 1.500、少なくとも約 1.510、又は少なくとも約 1.515、及び / 又は約 1.675 以下、約 1.650 以下、又は約 1.625 以下、或いは約 1.425 ~ 約 1.675、約 1.475 ~ 約 1.650、又は約 1.515 ~ 約 1.625 の範囲の屈折率を有していてよい。高 R I アルデヒドは、少なくとも 1 つの芳香環又は基を含む芳香族アルデヒドであってよい。芳香族アルデヒドの例としては、C₇ ~ C₃₀ 芳香族アルデヒド、C₈ ~ C₂₅ 芳香族アルデヒド、又は C₉ ~ C₂₀ 芳香族アルデヒドを挙げることができるが、これらに限定されない。本発明の種々の態様において R I 調整剤として用いることができる高 R I アルデヒドの具体例を下表 1 に示す。

【0049】

【表 1】

表 1：代表的な高 R I アルデヒド

アルデヒド	屈折率
ヘキシルシンナムアルデヒド	1.517
ベンズアルデヒド	1.545
シンナムアルデヒド	1.620
4-クロロベンズアルデヒド	1.585
4-tert-ブチルフェニルアセトアルデヒド	1.530
2-フェニルプロピオンアルデヒド	1.517
ヒドロシンナムアルデヒド	1.523

【0050】

[0063]R I 調整剤が少なくとも 1 種類の高 R I アルデヒドの残基を含む場合には、第 1 及び第 2 のポリ（ビニルアセタール）樹脂の少なくとも一方に、第 1 又は第 2 のポリ（ビニルアセタール）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 0.5 %、少なくとも約 1 %、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 30 %、少なくとも約 35 %、少なくとも約 40 %、少なくとも約 45 %、少なくとも約 50 %、少なくとも約 55 %、少なくとも約 60 %、少なくとも約 65 %、少なくとも約 70 %、少なくとも約 75 %、少なくとも約 80 %、少なくとも約 85 %、少なくとも約 90 %、少なくとも約 95 %、及び / 又は約 99.5 重量 % 以下、約 99 重量 % 以下、約 97 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、約 65 重量 % 以下、又は約 60 重量 % 以下の量の少なくとも 1 種類の高 R I アルデヒドの残基を含ませることができる。第 1 及び第 2 のポリ（ビニルアセタール）樹脂

の少なくとも一方に、第1又は第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂のアルデヒド残基の全重量を基準として約0.5～約99.5重量%、約10～約90重量%、約25～約75重量%、又は約40～約60重量%の範囲の量の少なくとも1種類の高R Iアルデヒドの残基を含ませることができる。

【0051】

[0064]高R Iアルデヒド残基の量は、フーリエ変換赤外分光法(F T - I R)及びサイズ排除クロマトグラフィー(S E C)とU V検出の組み合わせを用いて求めることができる。特に、F T - I Rは樹脂の残留ヒドロキシル含量を測定するために用いられ、S E Cは高R Iアルデヒド残基の量を求めるために用いられ、任意の他のアルデヒド残基の量は差によって求められる。F T - I R分析は、A T Rサンプリングアタッチメントを備えた Perkin Elmer Spectrum 100 F T - I R 分光計(Perkin Elmer, Waltham, Massachusetts から商業的に入手できる)を用いて行う。分析は、 4 cm^{-1} の分解能での8回のスキャンを用いて行う。試験の前に、シリカを用いるデシケター内で室温において一晚乾燥して過剰の湿分を除去した、種々の残留ヒドロキシル含量の幾つかのポリ(ビニル n - ブチラール)試料から校正データを得る。ヒドロキシル伸縮バンドのピーク最大波数は、A S T M - D 1 3 9 6 によって予め求められたそれぞれの試料のビニルアルコールモル含量と相関しており、得られる直線状のカーブフィッティングを用いて、分析する試料の残留ヒドロキシルモル含量を予測する。これらの値は、下記に記載するように、S E C 分析を用いてポリ(ビニルアセタール)樹脂の組成の決定を完了した後に、計算によって重量%に変換することができる。

【0052】

[0065]S E C 分析は、拡張パックを備えたDionex Chromeleon v.6.8データ獲得ソフトウェア(Thermo Fischer Scientific, Sunnyvale, CAから商業的に入手できる)を搭載したWaters 410インライン示差屈折率検出器及びWaters 2998 P D A インラインU V 検出器を装備したWaters 2695 Allianceポンプ及び自動サンプラー(Waters Corporation, Milford, Massachusettsから商業的に入手できる)を用いて行う。分析は、PL Gel Mixed C(5ミクロン)カラム及びMixed E(3ミクロン)カラムを用い、 1.0 mL/分 の流速で50マイクロリットルの注入体積を用いて行う。試料は、0.03～0.09グラムの間の樹脂を10～15 mLの安定化テトラヒドロフラン中に溶解し、次に0.22ミクロンのP T F E フィルターを通してそれぞれを濾過することによって調製する。狭い分子量のポリスチレン標準試料及び高R Iアルデヒドの残基のみを含むポリ(ビニルアセタール)樹脂を用いてクロマトグラフの当初の校正を行い、広い分子量のポリスチレン(American Polymer Standard Corporation, Mentor, OhioからPSBR250Kとして商業的に入手できる)を用いてその後の試料を校正する。

【0053】

[0066]幾つかの態様においては、第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の一方のみが高R Iアルデヒドの残基を含み、一方、他の態様においては、樹脂の両方にかかる残基を含ませることができる。高R Iアルデヒドの残基を含む樹脂の屈折率は、少なくとも約1.492、少なくとも約1.495、少なくとも約1.500、少なくとも約1.505、少なくとも約1.510、又は少なくとも約1.515であってよい。

【0054】

[0067]種々の態様においては、第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の少なくとも一方に、1.421未満の屈折率を有する少なくとも1種類のアルデヒドの残基を含ませることもできる。これらのアルデヒドの例としては、例えば上記で議論したC₄～C₈アルデヒドのような脂肪族アルデヒドを挙げることができる。1.421未満の屈折率を有するアルデヒドは、n - ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、及び2 - エチルヘキシルアルデヒドからなる群から選択することができる。

【0055】

[0068]これらの残基を存在させる場合には、第1及び/又は第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂に、第1又は第2のポリ(ビニルアセタール)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 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 30 %、少なくとも約 35 %、少なくとも約 40 %、少なくとも約 45 %、少なくとも約 50 %、少なくとも約 55 %、少なくとも約 60 %、少なくとも約 65 %、少なくとも約 70 %、少なくとも約 75 %、少なくとも約 80 %、少なくとも約 85 %、少なくとも約 90 %、少なくとも約 95 %、及び / 又は約 99 重量 % 以下、約 97 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、約 65 重量 % 以下、又は約 60 重量 % 以下のこれらのアルデヒドを含ませることができる。

【 0 0 5 6 】

[0069] 1 . 4 2 1 未満の屈折率を有するアルデヒドの残基の量は、上記に記載の FT - IR / SEC 法を用いて求めて、次に次式：[100 重量 % - 残留ヒドロキシルの重量 % (FT - IR から) - 高 RI アルデヒド残基の重量 % (SEC から) - 残留アセタートの重量 % (FT - IR から) = 1 . 4 2 1 未満の屈折率を有するアルデヒドの残基の重量 %] にしたがって計算することによって求められる。第 1 及び / 又は第 2 のポリ (ビニルアセタール) 樹脂には、1 . 4 2 1 未満の屈折率を有するアルデヒドの残基を、第 1 又は第 2 のポリ (ビニルアセタール) 樹脂のアルデヒド残基の全重量を基準として約 10 ~ 約 99 重量 %、約 25 ~ 約 75 重量 %、又は約 40 ~ 約 60 重量 % の範囲の量で含ませることができる。これらの樹脂の一方の屈折率は、上記記載のように測定して約 1 . 4 9 2 未満、約 1 . 4 9 1 未満、又は約 1 . 4 9 0 未満であってよい。

【 0 0 5 7 】

[0070] 幾つかの態様によれば、第 1 及び第 2 のポリ (ビニルアセタール) 樹脂の一方は主として高 RI アルデヒドの残基を含み、一方、第 1 及び第 2 のポリ (ビニルアセタール) 樹脂の他方は、主として 1 . 4 2 1 未満の屈折率を有する少なくとも 1 種類のアルデヒドの残基を含む。ここで用いる「主として」という用語は少なくとも 75 重量 % を意味し、したがって主として規定されているアルデヒドの残基を含むポリ (ビニルアセタール) 樹脂は、その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 75 重量 % の規定されているアルデヒドの残基を含む。主として高 RI アルデヒドの残基を含むポリ (ビニルアセタール) 樹脂には、樹脂のアルデヒド残基の全重量を基準として約 25 重量 % 以下、約 20 重量 % 以下、約 15 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、1 . 4 2 1 未満の屈折率を有する他のアルデヒドの残基を含ませることができる。

【 0 0 5 8 】

[0071] 同様に、主として 1 . 4 2 1 未満の屈折率を有するアルデヒドの残基を含んでいてよい他のポリ (ビニルアセタール) 樹脂には、樹脂のアルデヒド残基の全重量を基準として約 25 重量 % 以下、約 20 重量 % 以下、約 15 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 % 以下の高 RI アルデヒドの残基を含ませることができる。幾つかの態様においては、組成物中における主として高 RI アルデヒドの残基を含む樹脂と他の 1 種類又は複数の樹脂との比は、少なくとも約 1 : 99、少なくとも約 5 : 95、少なくとも約 10 : 90、少なくとも約 20 : 80、少なくとも約 25 : 75、少なくとも約 30 : 70、少なくとも約 40 : 60、及び / 又は約 99 : 1 以下、約 95 : 5 以下、約 90 : 10 以下、約 85 : 15 以下、約 75 : 25 以下、約 70 : 30 以下、又は約 60 : 40 以下、或いは約 1 : 99 ~ 99 : 1、約 10 : 90 ~ 約 90 : 10、約 25 : 75 ~ 75 : 25、又は約 40 : 60 ~ 60 : 40 の範囲であってよい。

【 0 0 5 9 】

[0072] 他の態様においては、第 1 及び第 2 のポリ (ビニルアセタール) 樹脂の少なくとも一方は、高 RI アルデヒド及び 1 . 4 2 1 未満の屈折率を有する少なくとも 1 種類のアルデヒドの残基を含んでいて、それによって高及び低 RI アルデヒドの両方の残基を含む

10

20

30

40

50

「複合」樹脂を形成している。これらの態様によれば、複合樹脂における高 R I アルデヒド残基及び 1.421 未満の屈折率を有するアルデヒドの残基の量、並びに一方と他との重量比は、樹脂ブレンドに関して上記に与えたものと同じ範囲内であってよい。第 1 又は第 2 のポリ（ビニルアセタール）樹脂が高 R I 及びより低い R I のアルデヒドの両方の残基を含む場合には、2 つのポリ（ビニルアセタール）樹脂の他方にはまた、少なくとも 1 種類の高 R I アルデヒドの残基を含ませることもできる。或いは、2 つの樹脂の他方には高 R I アルデヒド残基は少ししか含ませないか又は全く含ませないで、それが約 10 重量 % 未満、約 5 重量 % 未満、約 2 重量 % 未満、又は約 1 重量 % 未満の高 R I アルデヒドの残基を含み、残りは、例えば n - ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、2 - エチルヘキシルアルデヒド、及びこれらの組合せからなる群から選択されるアルデヒドなどの、1.421 未満の屈折率を有するアルデヒドの残基であるようにすることができる。

10

【0060】

[0073] 中間膜が多層中間膜である場合には、これには、少なくとも第 1 のポリ（ビニルアセタール）樹脂を有する少なくとも 1 つのポリマー層、及び少なくとも第 2 のポリ（ビニルアセタール）樹脂を含む他のポリマー層を含ませることができ、ここで第 1 のポリ（ビニルアセタール）樹脂と第 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の間の差は少なくとも 2 重量 % である。ポリ（ビニルアセタール）樹脂の一方又は両方に高 R I アルデヒドの残基を含ませることができ、ポリマー層の 1 つは、少なくとも約 0.002、少なくとも約 0.003、少なくとも約 0.004、及び / 又は約 0.010 以下、約 0.009 以下、約 0.008 以下、又は約 0.007 以下だけ、或いは約 0.002 ~ 約 0.010、約 0.003 ~ 約 0.009、又は約 0.004 ~ 約 0.007 の範囲の量だけ他よりも高いか又は低い屈折率を有してよい。幾つかの態様においては、中間膜が少なくとも 3 つのポリマー層を含む場合には、最も内側のポリマー層はより高い屈折率を有してよく、一方、他の態様においては、外側のポリマー層の 1 つ又は両方の屈折率をより高くすることができる。幾つかの態様においては、第 1 及び第 2 のポリ（ビニルアセタール）樹脂の一方のみに高 R I アルデヒドの残基を含ませることができる。他の態様においては、ポリ（ビニルアセタール）樹脂の両方に少なくとも 1 種類の高 R I アルデヒドの残基を含ませることができるが、樹脂はなお上記に与えた範囲内の屈折率の差を示すことができる。

20

【0061】

[0074] ポリ（ビニルアセタール）樹脂の一方又は両方に、少なくとも 1 種類の高 R I アルデヒドの残基を含ませることができる。幾つかの態様において、かかる残基を含むポリ（ビニルアセタール）樹脂が例えば 15 重量 % 以下の残留ヒドロキシル含量を有する場合には、かかる樹脂を含むポリマー層は、それぞれ上記に記載したように測定して 20 未満、約 15 以下、約 10 以下、約 5 以下、約 0 以下、約 - 5 以下、又は約 - 10 以下のガラス転移温度、及び少なくとも約 1.465、少なくとも約 1.470、少なくとも約 1.475、少なくとも約 1.480、少なくとも約 1.485、少なくとも約 1.490、少なくとも約 1.495、少なくとも約 1.500、少なくとも約 1.510、少なくとも約 1.520、少なくとも約 1.525、少なくとも約 1.540、少なくとも約 1.550、少なくとも約 1.575、少なくとも約 1.590、少なくとも約 1.600、少なくとも約 1.615、少なくとも約 1.625、又は少なくとも約 1.650 の屈折率を有することができる。層の可塑剤含量は、種々の態様によれば、少なくとも約 50 phr、少なくとも約 55 phr、少なくとも約 60 phr、少なくとも約 65 phr、及び / 又は約 120 phr 以下、約 110 phr 以下、約 90 phr 以下、約 85 phr 以下、約 80 phr 以下、又は約 75 phr 以下、或いは約 50 ~ 約 120 phr、約 55 ~ 約 110 phr、約 60 ~ 約 90 phr、又は約 65 ~ 約 75 phr の範囲であってよい。

30

40

【0062】

[0075] 上記で議論した多層中間膜中の高 R I アルデヒドの残基を有する樹脂が例えば 16 重量 % より高い残留ヒドロキシル含量を有する場合には、この樹脂を含むポリマー層は

50

、それぞれ上記に記載したように測定して少なくとも約 2.6、少なくとも約 3.0、少なくとも約 3.3、又は少なくとも約 3.5 のガラス転移温度、及び少なくとも約 1.470、少なくとも約 1.475、少なくとも約 1.480、少なくとも約 1.485、少なくとも約 1.490、少なくとも約 1.495、少なくとも約 1.500、少なくとも約 1.510、少なくとも約 1.520、少なくとも約 1.525、少なくとも約 1.540、少なくとも約 1.550、少なくとも約 1.575、少なくとも約 1.590、少なくとも約 1.600、少なくとも約 1.615、少なくとも約 1.625、又は少なくとも約 1.650 の屈折率を有することができる。層の可塑剤含量は、幾つかの態様によれば、50 phr 未満、約 45 phr 以下、約 40 phr 以下、約 30 phr 以下、約 20 phr 以下であってよい。

10

【0063】

[0076]中間膜全体の屈折率は、上記に記載のように測定して少なくとも約 1.477、少なくとも約 1.478、少なくとも約 1.480、少なくとも約 1.485、少なくとも約 1.490、少なくとも約 1.495、少なくとも約 1.500、少なくとも約 1.505、少なくとも約 1.510、少なくとも約 1.515、少なくとも約 1.520、少なくとも約 1.540、少なくとも約 1.550、少なくとも約 1.575、少なくとも約 1.580、少なくとも約 1.590、少なくとも約 1.600、少なくとも約 1.610、少なくとも約 1.620、少なくとも約 1.630、少なくとも約 1.640、又は少なくとも約 1.650 にすることができる。

【0064】

20

[0077]本発明の種々の態様によれば、RI 調整剤には液体の RI 調整剤を含ませることができる。ここで用いる「液体の RI 調整剤」という用語は、25 及び 1 気圧の標準状態において液体である RI 調整剤を指す。幾つかの態様においては、液体の RI 調整剤は、例えば高 RI 可塑剤であってよい。ここで用いる「高 RI 可塑剤」という用語は、上記に記載のように測定して少なくとも 1.460 の屈折率を有する可塑剤を指す。RI 調整剤として用いるのに好適な高 RI 可塑剤は、上記で議論したように測定して少なくとも約 1.470、少なくとも約 1.480、少なくとも約 1.490、少なくとも約 1.500、少なくとも約 1.510、少なくとも約 1.520、及び / 又は約 1.600 以下、約 1.575 以下、又は約 1.550 以下の屈折率を有してよい。高 RI 可塑剤の屈折率は、約 1.460 ~ 約 1.600、約 1.470 ~ 約 1.575、約 1.480 ~ 約 1.550、約 1.490 ~ 約 1.525 の範囲であってよい。

30

【0065】

[0078]高 RI 可塑剤のタイプ又はクラスの例としては、ポリアジペート (約 1.460 ~ 約 1.485 の RI) ; エポキシ化大豆油のようなエポキシド (約 1.460 ~ 約 1.480 の RI) ; フタレート及びテレフタレート (約 1.480 ~ 約 1.540 の RI) ; ベンゾエート及びトルエート (約 1.480 ~ 約 1.550 の RI) ; 及び他の特殊な可塑剤 (約 1.490 ~ 約 1.520 の RI) を挙げることができるが、これらに限定されない。好適な RI 可塑剤の具体例としては、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、及びこれらの混合物を挙げることができるが、これらに限定されない。高 RI 可塑剤は、ジプロピレングリコールジ

40

50

ベンゾエート、及びトリプロピレングリコールジベンゾエート、及びノ又は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から選択することができる。

【0066】

[0079]ポリマー層又は中間膜が高RI可塑剤を含む場合には、可塑剤は層中に単独で存在させることができ、或いは1以上の更なる可塑剤とブレンドすることができる。また、他の1種類又は複数の可塑剤に高RI可塑剤を含ませることもでき、或いは1以上は1.460未満の屈折率を有するより低いRIの可塑剤であってよい。幾つかの態様においては、より低いRIの可塑剤は、約1.450未満、約1.445未満、又は約1.442未満の屈折率を有してよく、上記に示した群から選択することができる。2種類以上の可塑剤の混合物をRI調整剤として用いる場合には、この混合物は1以上の上記の範囲内の屈折率を有してよい。

10

【0067】

[0080]多層中間膜においてRI調整剤として用いる場合には、高RI可塑剤は、2以上のポリマー層中において異なる量で存在させることができる。同様に、樹脂組成物又はブレンドされたポリマー層においてRI調整剤として用いる場合には、高RI可塑剤は上記に記載したように分配することができ、これによってより低い残留ヒドロキシル含量を有するポリマー層又はドメインがより多い量の高RI可塑剤を有することができるようにすることができる。幾つかの態様においては、少なくとも1つの層、或いはポリマー層又は中間膜の少なくとも一部に、高RI可塑剤をRI調整剤として、少なくとも約5 phr、少なくとも約10 phr、少なくとも約15 phr、少なくとも約20 phr、少なくとも約25 phr、少なくとも約30 phr、少なくとも約35 phr、及びノ又は約50 phr以下、約45 phr以下、又は約40 phr以下の量で含ませることができる。高RI可塑剤は、約5～約50 phr、約10～約45 phr、約20～約40 phrの範囲の量でポリマー層又は中間膜中に存在させることができる。幾つかの態様においては、1以上の他の層又は部分に、高RI可塑剤を、少なくとも約50 phr、少なくとも約55 phr、少なくとも約60 phr、少なくとも約65 phr、少なくとも約70 phr、及びノ又は約120 phr以下、約110 phr以下、約100 phr以下、約90 phr以下、又は約75 phr以下、或いは約50～約120 phr、約55～約110 phr、約60～約90 phr、約65～約75 phrの範囲の量で含ませることができる。これらの量は、組成物中に存在する1.460未満の屈折率を有するものを包含する任意の他の可塑剤を含んでいてよく、或いは高RI可塑剤のみを含んでいてよい。

20

30

【0068】

[0081]高RI可塑剤を多層中間膜においてRI調整剤として用いる場合には、中間膜に、第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂を有する少なくとも1つのポリマー層、及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む他のポリマー層を含ませることができ、ここで、第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂と第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の間の差は少なくとも2重量%である。ポリマー層の少なくとも1つに、高RI可塑剤を、ポリマー層の屈折率と他のポリマー層の屈折率の間の差の絶対値が0.010以下になるのに十分な量で含ませることができる。幾つかの態様においては、中間膜が少なくとも3つのポリマー層を含む場合には、最も内側のポリマー層はより高い屈折率を有してよく、一方、他の態様においては、外側のポリマー層の1つ又は両方の屈折率をより高くすることができる。

40

【0069】

[0082]より低い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)樹脂を含むポリマー層中に高RI可塑剤を含ませる場合には、ポリマー層の少なくとも一部は25 以下、約20 以下、約15 以下、約10 以下、約5 以下、約0 以下、約-5 以下、又は約-10 以下のガラス転移温度を有することができ、この層は、上記記載のように測定して少なくとも約1.465、少なくとも約1.470、少なくとも約1.475、少なくとも約1.480、少なくとも約1.485、少なくとも約1.490、少なくとも約1.495、少なくとも約1.500、少なくとも約1.5

50

10、少なくとも約1.520、少なくとも約1.525、少なくとも約1.540、少なくとも約1.550、少なくとも約1.575、少なくとも約1.590、少なくとも約1.600、少なくとも約1.615、少なくとも約1.625、又は少なくとも約1.650の屈折率を有することができる。この層の可塑剤含量は、幾つかの態様においては、少なくとも約50phr、少なくとも約55phr、少なくとも約60phr、及び/又は約120phr以下、約110phr以下、約90phr以下、約85phr以下、約80phr以下、又は約75phr以下、或いは約50～約120phr、約55～約110phr、約60～約90phr、又は約60～約75phrの範囲であってよい。

【0070】

[0083]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)樹脂を含むポリマー層中に高RI可塑剤を存在させる場合には、層の少なくとも一部は、少なくとも約26、少なくとも約30、少なくとも約33、又は少なくとも約35のガラス転移温度を有することができ、この層は、上記に記載のように測定して少なくとも約1.470、少なくとも約1.475、少なくとも約1.480、少なくとも約1.485、少なくとも約1.490、少なくとも約1.495、少なくとも約1.500、少なくとも約1.510、少なくとも約1.520、少なくとも約1.525、少なくとも約1.540、少なくとも約1.550、少なくとも約1.575、少なくとも約1.590、少なくとも約1.600、少なくとも約1.615、少なくとも約1.625、又は少なくとも約1.650の屈折率を有することができる。この層の可塑剤含量は、幾つかの態様によれば、50phr未満、約45phr以下、約40phr以下、約30phr以下、又は約20phr以下であってよい。

【0071】

[0084]本発明の種々の態様によれば、RI調整剤は、1以上の層、又は層若しくは中間膜の1以上の部分の中に存在する固体RI添加剤であってよい。ここで用いる「固体RI添加剤」という用語は、ポリ(ビニルアセタール)樹脂、ポリマー層、又は中間膜の屈折率を調節するために用いられ、25及び1気圧の周囲条件において固体である添加剤を指す。種々の態様においては、固体RI添加剤は、少なくとも約27、少なくとも約30、少なくとも約35、少なくとも約40、少なくとも約45、少なくとも約50、少なくとも約55、少なくとも約60、少なくとも約75、少なくとも約80、少なくとも約85、少なくとも約90、少なくとも約95、又は少なくとも約100の融点を有してよい。樹脂ブレンド、層、又は中間膜において用いる場合には、固体RI添加剤は、第1と第2のポリマー層の屈折率の間の差の絶対値が約0.010以下になるのに十分な量で存在させることができる。第1と第2のポリマー層の屈折率の間の差は、固体RI添加剤の不存在で同じポリマー層中に配合した際には0.010より高い可能性がある。

【0072】

[0085]幾つかの態様においては、固体RI添加剤は、少なくとも1つのポリマー層又は中間膜の屈折率を増加させるための高RI固体添加剤であってよい。高RI固体添加剤の屈折率は、上記に記載のように測定して少なくとも約1.460、少なくとも約1.465、少なくとも約1.470、少なくとも約1.475、少なくとも約1.480、少なくとも約1.485、少なくとも約1.490、少なくとも約1.495、少なくとも約1.500、少なくとも約1.505、少なくとも約1.510、少なくとも約1.525、少なくとも約1.550、少なくとも約1.575、又は少なくとも約1.600であってよい。他の態様においては、固体RI添加剤は、少なくとも1つの樹脂又はポリマー層の屈折率を減少させるためのRI低下固体添加剤であってよい。RI低下固体添加剤は、上記に記載のように測定して1.460未満、約1.455以下、約1.450以下、約1.445以下、又は約1.440以下の屈折率を有してよい。より高い場合でも又はより低い場合でも、固体RI添加剤は、ポリ(ビニルアセタール)樹脂の屈折率と

少なくとも約 0.005、少なくとも約 0.010、少なくとも約 0.050、少なくとも約 0.10、及び/又は約 0.50 以下、約 0.35 以下、又は約 0.20 以下異なる屈折率を有してよい。固体 RI 添加剤とポリ(ビニルアセタール)樹脂の間の屈折率の差は、約 0.005 ~ 約 0.50、約 0.010 ~ 約 0.35、又は約 0.050 ~ 約 0.35 の範囲であってよい。

【0073】

[0086]種々の態様においては、固体 RI 添加剤は、樹脂組成物又は中間膜中に、添加剤及び層又は中間膜の特定にタイプに応じて、少なくとも約 0.5 phr、少なくとも約 1 phr、少なくとも約 1.5 phr、少なくとも約 2 phr、又は少なくとも約 5 phr の量で存在させることができる。固体 RI 添加剤には、高 RI 添加剤であっても又は RI 低下添加剤であっても、樹脂組成物又は層中の少なくとも 1 種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂と物理的に混合又はブレンドすることができる物理的固体 RI 添加剤を含ませることができ、或いはこれは、1 種類以上のポリ(ビニルアセタール)樹脂の骨格と反応させてその中に導入されるようにすることができる反応性固体 RI 添加剤であってよい。

【0074】

[0087]固体 RI 添加剤は、1 種類以上の低 RI 可塑剤と組み合わせて用いることができる。低 RI 可塑剤の例としては、トリエチレングリコールジ(2-エチルヘキサノエート)(3GEH)、トリエチレングリコールジ(2-エチルブチレート)、トリエチレングリコールジヘプタノエート、テトラエチレングリコールジヘプタノエート、テトラエチレングリコールジ(2-エチルヘキサノエート)(4-GEH)、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、及びビス(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、及びこれらの混合物を挙げることができるが、これらに限定されない。この可塑剤は、トリエチレングリコールジ(2-エチルヘキサノエート)及びテトラエチレングリコールジ(2-エチルヘキサノエート)からなる群から選択することができ、或いはこの可塑剤はトリエチレングリコールジ(2-エチルヘキサノエート)を含んでいてよい。固体 RI 添加剤はまた、上述した 1 種類以上の高 RI 可塑剤と組み合わせて用いることもできる。

【0075】

[0088]固体 RI 添加剤が物理的固体 RI 添加剤である場合には、これは中間膜中の 1 以上のポリ(ビニルアセタール)樹脂又は層と組み合わせることができる。幾つかの態様においては、物理的固体 RI 添加剤は、少なくとも 1 つの層又は中間膜中に、少なくとも約 1 phr、少なくとも約 2 phr、少なくとも約 3 phr、少なくとも約 5 phr、少なくとも約 8 phr、少なくとも約 10 phr、少なくとも約 12 phr、少なくとも約 15 phr、少なくとも約 20 phr、及び/又は約 60 phr 以下、約 55 phr 以下、約 50 phr 以下、約 45 phr 以下、約 40 phr 以下、約 35 phr 以下、約 30 phr 以下、約 25 phr 以下、約 20 phr 以下、又は約 15 phr 以下の量、或いは約 1 ~ 約 60 phr、約 5 ~ 約 50 phr、又は約 10 ~ 約 45 phr の範囲の量で存在させることができる。好適な物理的固体高 RI 添加剤の例としては、ポリアジペート、2500 未満の分子量を有するポリスチレン、エポキシド、フタル酸エステル、安息香酸エステル、例えば酸化ジルコニウムのような無機酸化物、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。物理的固体 RI 低下添加剤は、ハロゲン化添加剤及びケイ素含有添加剤からなる群から選択することができる。

【0076】

[0089]多層中間膜において用いる場合には、物理的固体 RI 添加剤は、ポリマー層の 1 つの中に、1 以上の他の層よりも多い量で存在させることができる。ポリマー層の 1 つの中に存在する物理的固体 RI 添加剤の量と、例えば隣接する層などの他の層の中に存在する物理的固体 RI 添加剤の量との間の差は、少なくとも約 2 phr、少なくとも約 5 phr、少なくとも約 8 phr、少なくとも約 10 phr、及び/又は約 30 phr 以下、約 25 phr 以下、又は約 20 phr 以下であってよく、或いはこれは約 2 ~ 約 30 phr

、約 5 ～ 約 25 phr、又は約 10 ～ 約 20 phr の範囲であってよい。幾つかの態様によれば、層の少なくとも 1 つに、少なくとも約 1 phr、少なくとも約 5 phr、少なくとも約 10 phr、少なくとも約 15 phr、及び / 又は約 60 phr 以下、約 55 phr 以下、約 50 phr 以下、約 45 phr 以下の物理的固体 RI 添加剤を含ませることができる、或いは物理的固体 RI 添加剤は、約 1 ～ 約 60 phr、約 10 ～ 約 50 phr、又は約 15 ～ 約 45 phr の範囲の量で存在させることができる。幾つかの態様においては、物理的固体 RI 添加剤は、1 以上の層中に、少なくとも約 5 phr、少なくとも約 10 phr、少なくとも約 15 phr、少なくとも約 20 phr、及び / 又は約 60 phr 以下、約 55 phr 以下、約 50 phr 以下の量、或いは約 5 ～ 約 60 phr、約 15 ～ 約 55 phr、又は約 20 ～ 約 50 phr の範囲の量で存在させることができる。

10

【0077】

[0090]多層中間膜が 3 以上のポリマー層を含み、固体 RI 添加剤が固体高 RI 添加剤である場合には、内側又はコアの 1 つ又は複数の層に、外側又はスキンの層よりも多い量の物理的固体 RI 添加剤を含ませることができる。しかしながら、固体 RI 添加剤が固体 RI 低下添加剤である場合には、外側のスキン層に、内側のコア層よりも多い量の固体 RI 添加剤を含ませることができる。コア層には、中間膜中に存在する物理的固体 RI 添加剤の全量の少なくとも約 30%、少なくとも約 40%、少なくとも約 50%、少なくとも約 60%、少なくとも約 70%、又は少なくとも約 80% を含ませることができる。

【0078】

[0091]固体 RI 添加剤が反応性固体 RI 添加剤である場合には、それを少なくとも 1 種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂と反応させて、添加剤の少なくとも一部がポリマー鎖中に導入されるようにすることができる。反応性 RI 添加剤は芳香族添加剤であってよく、幾つかの態様においては、無水フタル酸、及び例えばジフェニルジメトキシシランなどのフェニルアルコキシシランを含ませることができる。

20

【0079】

[0092]幾つかの態様においては、反応性 RI 添加剤は、多層中間膜の 1 つの層の中に、中間膜の 1 以上の他の層の中に存在するよりも多い量で存在させることができる。幾つかの態様においては、これは 1 以上のポリマー層から排除するか、又は実質的に排除することができる。例えば、中間膜が少なくとも 3 つのポリマー層を含む多層中間膜である場合には、内側のコア層に、少なくとも約 0.5 phr、少なくとも約 1 phr、少なくとも約 1.5 phr、少なくとも約 2 phr、少なくとも約 2.5 phr、少なくとも約 3 phr、及び / 又は約 50 phr 以下、約 30 phr 以下、約 20 phr 以下、約 15 phr 以下、約 12 phr 以下、約 10 phr 以下、又は約 8 phr 以下、或いは約 0.5 ～ 約 20 phr、約 1 ～ 約 12 phr、又は約 2 ～ 約 8 phr の範囲の量の 1 種類以上の反応性固体 RI 添加剤を含ませることができる。1 つ又は複数の外側のスキン層に、約 10 phr 以下、約 5 phr 以下、約 2 phr 以下、約 1 phr 以下、又は約 0.5 phr 以下の反応性固体 RI 添加剤を含ませることができる。コア層には、中間膜中に存在する反応性 RI 添加剤の全量の少なくとも約 65%、少なくとも約 75%、少なくとも約 85%、少なくとも約 95%、又は少なくとも約 99% を含ませることができる。

30

【0080】

[0093]固体 RI 添加剤を多層中間膜において RI 調整剤として用いる場合には、中間膜に、第 1 のポリ(ビニルアセタール)樹脂を有する少なくとも 1 つのポリマー層、及び第 2 のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む他のポリマー層を含ませることができる、ここで第 1 のポリ(ビニルアセタール)樹脂と第 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の間の差は少なくとも 2 重量%である。ポリマー層の少なくとも 1 つに、高 RI 添加剤を、第 1 のポリマー層の屈折率と第 2 のポリマー層の屈折率の間の差の絶対値が 0.010 以下になるのに十分な量で含ませることができる。中間膜が少なくとも 3 つのポリマー層を含む幾つかの態様においては、最も内側のポリマー層はより高い屈折率を有していても、一方、他の態様においては、外側のポリマー層の 1 つ又は両方の屈折率をより高くすることができる。

40

50

【 0 0 8 1 】

[0094]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）樹脂を含むポリマー層中に固体 R I 添加剤を含ませる場合には、このポリマー層は、それぞれ上記に記載したように測定して、25 以下、約 20 以下、約 15 以下、約 10 以下、約 5 以下、約 0 以下、約 - 5 以下、又は約 - 10 以下のガラス転移温度、及び少なくとも約 1.465、少なくとも約 1.470、少なくとも約 1.475、少なくとも約 1.480、少なくとも約 1.485、少なくとも約 1.495、少なくとも約 1.500、少なくとも約 1.510、少なくとも約 1.520、少なくとも約 1.525、少なくとも約 1.540、少なくとも約 1.550、少なくとも約 1.575、少なくとも約 1.590、少なくとも約 1.600、少なくとも約 1.615、少なくとも約 1.625、又は少なくとも約 1.650 の屈折率を有することができる。この層の可塑剤含量は、幾つかの態様においては、少なくとも約 50 phr、少なくとも約 55 phr、少なくとも約 60 phr、少なくとも約 65 phr、及び / 又は約 120 phr 以下、約 110 phr 以下、約 90 phr 以下、約 85 phr 以下、約 80 phr 以下、又は約 75 phr 以下、或いは約 50 ~ 約 120 phr、約 55 ~ 約 110 phr、約 60 ~ 約 90 phr、約 65 ~ 約 75 phr の範囲であってよい。

10

【 0 0 8 2 】

[0095]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）樹脂を含むポリマー層中に固体 R I 添加剤を存在させる場合には、この層は、少なくとも約 26、少なくとも約 30、少なくとも約 33、又は少なくとも約 35 のガラス転移温度を有することができる。幾つかの態様においては、この層は、少なくとも約 1.470、少なくとも約 1.475、少なくとも約 1.480、少なくとも約 1.485、少なくとも約 1.490、少なくとも約 1.500、少なくとも約 1.510、少なくとも約 1.520、少なくとも約 1.525、少なくとも約 1.540、少なくとも約 1.550、少なくとも約 1.575、少なくとも約 1.590、少なくとも約 1.600、少なくとも約 1.615、少なくとも約 1.625、又は少なくとも約 1.650 の屈折率を有することができる。この層の可塑剤含量は、幾つかの態様によれば、50 phr 未満、約 45 phr 以下、約 40 phr 以下、約 30 phr 以下、又は約 20 phr 以下であってよい。

20

【 0 0 8 3 】

[0096]幾つかの態様によれば、中間膜の屈折率は、上記に記載のように測定して、1.475 より高く、少なくとも約 1.480、少なくとも約 1.490、少なくとも約 1.500、少なくとも約 1.510、少なくとも約 1.520、少なくとも約 1.530、少なくとも約 1.540、少なくとも約 1.550、少なくとも約 1.560、少なくとも約 1.570、少なくとも約 1.580、少なくとも約 1.590、少なくとも約 1.600、少なくとも約 1.610、少なくとも約 1.620、少なくとも約 1.630、少なくとも約 1.640、少なくとも約 1.650、少なくとも約 1.660、又は少なくとも約 1.670 にすることができる。中間膜には、本明細書に記載する 1 種類以上の R I 調整剤、又は具体的には言及していない 1 種類以上の他の R I 調整剤を含ませることができる。中間膜は単一層（又はモノリス中間膜）であってよく、或いはそれにはここに議論するような互いと隣接している 2 以上の層を含ませることができる。

30

40

【 0 0 8 4 】

[0097]本発明の種々の態様にしたがって少なくとも 2 種類のポリ（ビニルアセタール）樹脂及び R I 調整剤を含ませて調製した樹脂組成物、層、及び中間膜は、耐衝撃性及び遮音性能のような他の特性を犠牲にすることなく向上した光学特性を示すことができる。上記で議論したように、例えば残留ヒドロキシル含量、残留アセテート含量、又はアルデヒド残基のような樹脂の特性又は組成における差のために、R I 調整剤を用いないで調製した同じ樹脂の同じブレンドは、低下した光学性能を有する組成物、層、及び中間膜を与える可能性がある。

【 0 0 8 5 】

[0098]明澄度は、本明細書に記載する組成物、層、及び中間膜の光学性能を示すために

50

用いられる 1 つのパラメーターであり、曇り度又は % を測定することによって求めることができる。曇り度は、試料によって散乱した光を入射光に対して定量したものである。幾つかの態様においては、本明細書に記載する樹脂ブレンド、層、及び中間膜は、ASTM - D 1 0 0 3 - 1 3 - 手順 B にしたがって光源 C を用いて 2 ° の観察角度で測定して 5 % 未満、約 4 % 未満、約 3 % 未満、約 2 % 未満、約 1 % 未満、又は約 0 . 5 % 未満の曇り度を有することができる。試験は、Hunterlab UltraScan XE 装置 (Hunter Associates, Reston, VA から商業的に入手できる) のような分光光度計を用いて、それぞれが 2 . 3 mm の厚さを有する透明なガラス (Pennsylvania の Pittsburgh Glass Works から商業的に入手できる) の 2 つのシートの間に積層した 0 . 7 6 mm の厚さを有するポリマー試料に関し行う。

10

【 0 0 8 6 】

[0099]更に、本明細書に記載するポリマー層及び中間膜は、3 以下、2 以下、又は 1 以下の色斑値を有することができる。色斑は、テクスチャー又は粒状性として検出される光学品質の他の指標である。色斑は、そのレベルが過度に高いか又は過度に激しくて、それによって好ましくない外観をもたらす場合には視覚的欠陥である。色斑は、試験積層体に関するシャドウグラフの投影を、1 ~ 4 の範囲の色斑値 (1 は低い色斑 (即ち少ない数の混乱) の基準を表し、4 は高い色斑 (即ち多数の混乱) の基準を表す) のシリーズ又はスケールを表す 1 組の標準積層体シャドウグラフと交互に定性的に比較することによって評価及び分類される。高い色斑は、特に自動車及び建築用途において概して好ましくないとみなされる。場合によっては、ゼロの色斑を有する (色斑がない) 単一層の中間膜を有するモデル積層体を用いて、1 の等級よりも低いような基準セットのスケールよりも低い色斑等級を有する試験積層体における評価を容易にする。ゼロ色斑の積層体のものと同様のシャドウグラフ投影を示す試験積層体は、ゼロの色斑等級を有すると評価される。試験積層体は、それぞれが 2 . 3 mm の厚さを有する透明なガラス (Pennsylvania の Pittsburgh Glass Works から商業的に入手できる) の 2 つのシート、及び中間膜を用いて調製する。中間膜は、通常は約 3 5 ~ 4 0 ミクロンのランダムな表面粗さ: R_z 、及び 0 . 7 6 ~ 0 . 8 6 mm の厚さを有する。

20

【 0 0 8 7 】

[0100]ここで与える色斑値は、キセノンアークランプ、試料ホルダー、投影スクリーン、及びデジタルカメラを含むクリアモトルアナライザー (Clear Mottle Analyzer) (CMA) を用いて求めた。キセノンアークランプを用いてスクリーン上に積層試料のシャドウグラフを投影し、得られるシャドウグラフの画像を記録するようにカメラを構成した。次に、コンピューター画像化ソフトウェアを用いて画像をデジタル分析し、予め記録した標準試料の画像と比較して試料の色斑を求めた。CMA を用いて色斑を求める方法は、米国特許出願公開 US - 2 0 1 2 - 0 1 3 3 7 6 4 に詳細に記載されている。

30

【 0 0 8 8 】

[0101]光学性能を求めるために用いる他のパラメーターは、透明度又は可視透過率 ($\% T_{vis}$) であり、これは ASTM - D 1 0 0 3 手順 B にしたがって、HunterLab UltraScan EX のような分光光度計を用い、光源 C を用いて 2 ° の観察角度において測定される。ここで与える値は、約 0 . 7 6 mm の中間膜の厚さ及び 2 . 3 mm の透明ガラス (Pennsylvania の Pittsburgh Glass Works から商業的に入手できる) の厚さを有するガラス積層体試料を分析することによって得た。幾つかの態様においては、本発明のポリマー層及び中間膜は、少なくとも約 7 0 %、少なくとも約 7 5 %、少なくとも約 8 0 %、少なくとも約 8 1 %、少なくとも約 8 2 %、少なくとも約 8 3 %、少なくとも約 8 4 %、少なくとも約 8 5 %、少なくとも約 8 5 . 5 %、少なくとも約 8 6 %、少なくとも約 8 6 . 5 %、少なくとも約 8 7 %、少なくとも約 8 7 . 5 %、少なくとも約 8 8 %、又は少なくとも約 8 8 . 5 % の可視透過率 (%) を有することができる。より具体的には、本発明のポリマー層及び中間膜は、ACA、UV 安定剤、及び酸化防止剤の添加剤のみを含む中間膜に関しては 8 5 % より高く、或いは上述の顔料、IR 吸収剤又は遮断剤のような更なる添加剤を含む中間膜に関しては 8 0 % より高い $\% T_{vis}$ を有する。原料着色又は着色ポリマー中間

40

50

膜のような高いレベルの顔料及び／又は染料を含むポリマー中間膜は、所望通りにより低い T_{vis} の値を有することができる。

【0089】

[0102]上記の範囲内の1以上の光学特性を示すことに加えて、本明細書に記載するポリマー層及び中間膜はまた、所望の範囲内の遮音特性を示すこともできる。幾つかの態様においては、上記で議論したように、ポリマー層又は中間膜の少なくとも一部は、25以下、約20以下、約15以下、約10以下、約5以下、約0以下、約-5以下、又は約-10以下のガラス転移温度を有してよく、これによって層又は中間膜の遮音性能を促進することができる。同時に、層又は中間膜の少なくとも一部は、少なくとも約26、少なくとも約30、少なくとも約35のガラス転移温度を有してよく、これによって耐衝撃特性及び強度を促進することができる。

10

【0090】

[0103]幾つかの態様においては、本発明によるポリマー層又は中間膜は、少なくとも約0.70の $\tan \delta$ の値を有することができる。 $\tan \delta$ は、動的機械熱分析(DMTA)によって測定される試料の貯蔵弾性率(G') (パスカル)に対する損失弾性率(G'') (パスカル)の比である。DMTAは、1Hzの振動数を用いて、剪断モード下、3/分の温度スイープ速度で行う。ガラス転移温度における G''/G' 曲線のピーク値が $\tan \delta$ の値である。ここで種々の態様にしたがって記載するポリマー層又は中間膜は、少なくとも約1.0、少なくとも約1.05、少なくとも約1.10、少なくとも約1.25、少なくとも約1.50、少なくとも約1.75、少なくとも約2.0、又は少なくとも約2.25の $\tan \delta$ を有することができる。

20

【0091】

[0104]更に、本ポリマー層及び中間膜は、少なくとも約0.10、少なくとも約0.15、少なくとも約0.17、少なくとも約0.20、少なくとも約0.25、少なくとも約0.27、少なくとも約0.30、少なくとも約0.33、又は少なくとも約0.35の減衰損失係数(damping loss factor)、又は損失係数を有することができる。損失係数は、ISO標準規格16940に記載されているように機械インピーダンス測定によって測定される。それぞれが2.3mmの厚さを有する透明ガラスの2つのシートの間にポリマー試料を積層し、25mmの幅及び300mmの長さを有するように調製する。次に、積層された試料を、BrueI and Kjaer (Naerum, オランダ)から商業的に入手できる振動振盪機を用いて中心点において励振し、インピーダンスヘッド(BrueI and Kjaer)を用いて、棒材を励振して振動させるのに必要な力、及び振動の速度を測定する。得られる伝達関数を、National Instrumentデータ獲得及び分析システムに記録し、ハーフパワー法を用いて第1振動モードにおける損失係数を計算する。幾つかの態様において、RI調整剤が高RI可塑剤である場合には、層又は中間膜は、20において0.25より高く、0.27より高く、0.30より高く、又は0.35より高い損失係数を有することができる。一方他の態様において、RI調整剤が固体RI添加剤又は少なくとも1種類の高RIアルデヒドの残基である場合には、層又は中間膜は、20において少なくとも約0.10、少なくとも約0.15、少なくとも約0.20、少なくとも約0.25、又は少なくとも約0.30の損失係数を有することができる。

30

40

【0092】

[0105]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)樹脂の2つの別個の樹脂の樹脂ブレンドと同様に、2つ以上の別個のポリマー層又は中間膜をブレンドすると、しばしば予期しなかった特性及び性能属性を有する新規な1つ又は複数のポリマー層或いは1つ又は複数の中間膜を得ることができる。例えば、より低い残留ヒドロキシル含量及びより低いガラス転移温度を有するポリマー層又は中間膜を、より高い残留ヒドロキシル含量及びより高いガラス転移温度を有する他のポリマー層又は中間膜とブレンドして、より低いガラス転移温度の軟質のドメイン(これによってその遮音性能が向上する)、及びより高いガラス転移温度の硬質のドメイン(これによってポリマー層又は中間膜に向上した加工性、強度、及び耐衝撃性が与えられる)を有する新規なポリマー

50

層又は中間膜を与えることができる。他の例としては、単一シートの間膜と多層中間膜をブレンドすること、2つの多層中間膜をブレンドすること、又は1つの多層中間膜を他の多層中間膜のポリマー層中にブレンドすることが挙げられる。本質的に、2つの材料をブレンドすることによって得られる効果は、材料の内容物にしたがって2以上の樹脂、可塑剤、及び他の添加剤をブレンドすることによって達成することもできる。ここで用いる「ブレンド樹脂材料」(blend resin material)又は「ブレンド材料」(blend material)とは、他の樹脂組成物、ポリマー層、又は中間膜中にブレンドする樹脂組成物、ポリマー層、又は中間膜を指す。2つのポリマー層又は2つの中間膜をブレンドする際には、ブレンドする2つの材料の少なくとも1つに本発明のポリマー層又は中間膜を含ませることができる。他の態様においては、両方の材料に本発明のポリマー層又は中間膜を含ませることができる。

10

【0093】

[0106]幾つかの態様によれば、本明細書に記載する樹脂組成物、層、又は中間膜の少なくとも一部に、他の樹脂、層、又は中間膜を含ませることができる。幾つかの態様においては、組成物、層、又は中間膜中の樹脂の全量の少なくとも約0.5%、少なくとも約1%、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30%、又は少なくとも約50%を、ブレンド樹脂材料由来にすることができる。

【0094】

[0107]しばしば、ブレンド樹脂材料中の樹脂及び可塑剤のタイプ及び/又は量が、その中にブレンド樹脂材料を加える製造される樹脂又は可塑剤のタイプ及び/又は量と実質的に異なっている場合には、ブレンド樹脂材料を含む得られる樹脂組成物、層、又は中間膜の明澄度又は曇り度によって求められる光学性能が悪影響を受ける可能性がある。本発明の幾つかの態様によれば、より高いレベルのブレンド樹脂材料を含むポリマー層及び中間膜は、上記で議論した1種類以上のRI調整剤を用いることによって製造することができる。

20

【0095】

[0108]RI調整剤が高RI可塑剤を含む場合には、最終組成物、層、又は中間膜の明澄度を減少させるか又は曇り度を増加させることなく、本明細書に記載する樹脂組成物、層、又は中間膜を製造するプロセスに対して、より多い量のブレンド樹脂材料を加えることができる。幾つかの態様においては、ブレンド材料を含む組成物に第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)樹脂を含ませることができ、ここで樹脂の一方は他の樹脂の残留ヒドロキシル含量よりも少なくとも2重量%低くてよい残留ヒドロキシル含量を有する。かかる組成物には、1.460の屈折率を有する少なくとも1種類の高RI可塑剤を更に含ませることができ、幾つかの態様においては、組成物、層、又は中間膜中に存在する第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の合計量の3%より多くを、ブレンド組成物、層、又は中間膜由来にすることができる。第1及び第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の差にかかわらず、0.5重量%より多いブレンド樹脂材料を含む組成物は、約5以下、約4以下、約3以下、約2以下、又は約1以下、或いは約0.5以下の曇り度を有することができる。

30

40

【0096】

[0109]ブレンド樹脂組成物と共にRI調整剤として用いる高RI可塑剤は、上記に記載した1以上の範囲内の屈折率を有してよい。高RI可塑剤は、組成物、層、又は中間膜の製造中にブレンド材料と一緒に加えることができ、及び/又は高RI可塑剤の少なくとも一部を、プロセスに加えるブレンド樹脂材料中に存在させることができる。更に、例えば上記に記載のように測定して約1.450未満、約1.445未満、又は約1.442未満の屈折率を有するものなどの1種類以上の他の可塑剤を、ブレンドする樹脂材料中、及び/又は製造する樹脂組成物、層、又は中間膜の中に存在させることもできる。幾つかの態様においては、1種類以上の更なる高RI可塑剤を、ブレンド材料中、及び/又はその中にかかる材料をブレンドする樹脂組成物、層、又は中間膜中に存在させることもで

50

きる。

【0097】

[0110] 上記に記載したブレンドされた樹脂材料を含む樹脂組成物は、本発明の種々の態様による層及び中間膜を形成するために用いることができる。例えば、ブレンド樹脂材料を含む樹脂組成物を用いて単一のモノリス型中間膜を形成することができ、或いはそれを用いて多層中間膜の1以上の層を形成することができる。種々の層及び中間膜中で用いる場合には、更なる可塑剤を加えて、ポリマー層又は中間膜中に存在する可塑剤の全量を上記に記載の範囲内にすることができるようにすることができる。同様に、ブレンド樹脂材料を含む組成物から形成されるポリマー層及び中間膜のガラス転移温度及び屈折率を上記に与えた範囲内にすることもできる。更に、ブレンドされた材料を含む組成物から形成さ

10

【0098】

[0111] 幾つかの態様によれば、本明細書に記載する樹脂組成物、層、又は中間膜の少なくとも一部に、例えばリサイクルされた層又は中間膜などの1種類以上のリサイクルされた樹脂材料を含ませることができる。ここで用いる「リサイクルされた」という用語は、製造ラインから取り出されて、その後に戻されることを意味する。しばしば、リサイクルされた材料を用いると、ブレンド又は混合される材料の異なる組成及び特性のために、明澄度又は曇り度によって求められる最終組成物、層、又は中間膜の光学性能に悪影響を与える可能性がある。しかしながら、幾つかの態様においては、本明細書に記載するものと同等の光学及び/又は遮音特性をなお示しながら、本明細書に記載する層又は中間膜に少なくとも1種類のリサイクルされた樹脂材料を含ませることができる。リサイクル樹脂材料のタイプ及び/又は量は上記に記載の1以上の範囲内であってよく、層又は中間膜に少なくとも1種類のRI調整剤を更に含ませることができる。更に、リサイクルされた樹脂材料を含むポリマー層及び中間膜も、下記に記載する1以上の範囲内の光学及び/又は遮音性能を有することができる。

20

【0099】

[0112] 上記に記載した樹脂組成物、層、及び中間膜は、任意の好適な方法にしたがって製造することができる。種々の態様においては、これらの組成物、層、及び中間膜を製造する方法に、2種類以上のポリ(ビニルアセタール)樹脂を与え、少なくとも1種類の樹脂をRI調整剤、及び場合によっては少なくとも1種類の可塑剤又は他の添加剤とブレンドしてブレンドされた組成物を形成し、そしてブレンドされた組成物から層を形成することを含ませることができる。

30

【0100】

[0113] 幾つかの態様においては、本方法の最初の工程において与えられる樹脂は1種類以上のポリ(ビニルアセタール)樹脂の形態であってよく、一方、他の態様においては、1種類以上の樹脂前駆体を与えることもできる。幾つかの態様において、2種類以上のポリ(ビニルアセタール)樹脂を物理的にブレンドする場合には、2つの樹脂をブレンドすることに溶融ブレンドすることを含ませることができる。これは少なくとも約140、少なくとも約150、少なくとも約180、少なくとも約200、少なくとも約250の温度で行うことができる。他の態様において、与えられるポリ(ビニルアセタール)樹脂成分が樹脂前駆体を含む場合には、ブレンド工程に、2種類以上のアルデヒドをポリビニルアルコールと反応させて、2以上のアルデヒド基を有する単一のポリ(ビニルアセタール)樹脂を与えることを含ませることができる。更に、ブレンド工程の一部に、樹脂の1以上を少なくとも1種類の可塑剤及び/又は上記に記載のRI調整剤の1以上とブレンドすることを含ませることができる。

40

【0101】

[0114] 得られるブレンドされた樹脂は、次に任意の好適な方法にしたがって1以上のポリマー層に成形することができる。ポリマー層及び中間膜を形成す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

50

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、ブレード塗布、パドル塗布、エアナイフ塗布、印刷、粉末被覆、噴霧被覆、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。本発明の種々の態様においては、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ポリマー、可塑剤、及び場合によっては上記に記載の1種類以上のR I調整剤などの少なくとも1種類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。液体、粉末、又はペレット形態であってよいA C A、着色剤、及びU V抑制剤のような他の添加剤を用いることもでき、これらは押出装置に導入する前に熱可塑性ポリマー又は可塑剤中に混合することができる。これらの添加剤は、ポリマー樹脂中に、及び拡大解釈すると得られるポリマーシート中に導入して、それによってポリマー層又は中間膜の幾つかの特性、及び最終多層ガラスパネル又は他の最終製品におけるその性能を向上させることができる。

【0102】

[0115]種々の態様においては、層又は中間膜の厚さ又はゲージは、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、及び/又は約100ミル以下、約90ミル以下、約60ミル以下、約50ミル以下、又は約35ミル以下であってよく、或いはこれは約10～約100ミル、約15～約60ミル、又は約20～約35ミルの範囲であってよい。ミリメートルでのポリマー層又は中間膜の厚さは、少なくとも約0.25mm、少なくとも約0.38mm、少なくとも約0.51mm、及び/又は約2.54mm以下、約2.29mm以下、約1.52mm以下、又は約0.89mm以下、或いは約0.25～約2.54mm、約0.38～約1.52mm、又は約0.51～約0.89mmの範囲であってよい。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、一方、他の態様においては、例えば多層中間膜の1以上の層をテーパ状にするか、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方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つに、少なくとも1つのテーパ状の区域を含ませることができる。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にすることができ、或いはこれに少なくとも1つのテーパ状の区域を含ませることができる。テーパ状中間膜は、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(HUD)パネルにおいて有用である可能性がある。

【0103】

[0116]ここで図1～8を参照すると、本発明によるテーパ状中間膜の幾つかの態様と与えられている。図1は、種々の厚さのテーパ状の区域を含む代表的なテーパ状中間膜の断面図である。図1に示すように、テーパ状の区域は、テーパ状の区域の第1の境界において測定される最小厚さ： T_{min} 、及びテーパ状の区域の第2の境界において測定される最大厚さ： T_{max} を有する。幾つかの態様においては、 T_{min} は、少なくとも約0.25ミリメートル(mm)、少なくとも約0.40mm、又は少なくとも約0.60mm、及び/又は1.2mm以下、約1.1mm以下、又は約1.0mm以下であってよい。更に、 T_{min} は、0.25～1.2mm、0.4～1.1mm、又は0.60～1.0mmの範囲であってよい。幾つかの態様においては、 T_{max} は、少なくとも約0.38mm、少なくとも約0.53mm、又は少なくとも約0.76mm、及び/又は2.2mm以下、約2.1mm以下、又は約2.0mm以下であってよい。更に、 T_{max} は、0.38～2.2mm、0.53～2.1mm、又は0.76～2.0mmの範囲であってよい。幾つかの態様においては、 T_{max} と T_{min} の間の差は、少なくとも約0.13mm、少なくとも約0.15mm、少なくとも約0.2mm、少なくとも約0.25mm、少なくとも約0.3mm、少なくとも約0.35mm、少なくとも約0.

4 mm、及び/又は1.2 mm以下、約0.9 mm以下、約0.85 mm以下、約0.8 mm以下、約0.75 mm以下、約0.7 mm以下、約0.65 mm以下、又は約0.6 mm以下であってよい。更に、 T_{max} と T_{min} の間の差は、0.13~1.2 mm、0.25~0.75 mm、又は0.4~0.6 mmの範囲であってよい。幾つかの態様においては、テーパ状の区域の第1と第2の境界の間の距離（即ちテーパ状の区域の幅）は、少なくとも約5センチメートル（cm）、少なくとも約10 cm、少なくとも約15 cm、少なくとも約20 cm、又は少なくとも約30 cm、及び/又は約200 cm以下、約150 cm以下、約125 cm以下、約100 cm以下、又は約75 cm以下であってよい。更に、テーパ状の区域の幅は、5~200 cm、15~125 cm、又は30~75 cmの範囲であってよい。

10

【0104】

[0117]図1に示すように、テーパ状中間膜は、反対側の第1及び第2の外側末端部を含む。幾つかの態様においては、第1と第2の外側末端部の間の距離（即ち中間膜の幅）は、少なくとも約20 cm、少なくとも約40 cm、又は少なくとも約60 cm、及び/又は約400 cm以下、約200 cm以下、又は約100 cm以下であってよい。更に、中間膜の幅は、20~400 cm、40~200 cm、又は60~100 cmの範囲であってよい。図1に示す態様においては、テーパ状の区域の第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状である。テーパ状の区域が中間膜の一部のみを形成している場合には、中間膜の幅とテーパ状の区域の幅との比は、少なくとも約0.05:1、少なくとも約0.1:1、少なくとも約0.2:1、少なくとも約0.3:1、少なくとも約0.4:1、少なくとも約0.5:1、少なくとも約0.6:1、又は少なくとも約0.7:1、及び/又は約1:1以下、約0.95:1以下、約0.9:1以下、約0.8:1以下、又は約0.7:1以下であってよい。更に、中間膜の幅とテーパ状の区域の幅との比は、0.05:1~1:1、又は0.3:1~0.9:1の範囲であってよい。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状である。中間膜全体がテーパ状である場合には、テーパ状の区域の幅は中間膜の幅に等しく、テーパ状の区域の第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。

20

【0105】

[0118]図1に示すように、中間膜のテーパ状の区域は、第1及び第2のテーパ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つの点を通して伸びる第1の基準線と、第1及び第2のテーパ状の区域の境界が中間膜の第2の（下）表面と交差する2つの点を通して伸びる第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を有する。幾つかの態様においては、テーパ状の区域のくさび角度は、少なくとも約0.13ミリラジアン（mrad）、少なくとも約0.15 mrad、少なくとも約0.2 mrad、少なくとも約0.25 mrad、少なくとも約0.3 mrad、少なくとも約0.35 mrad、少なくとも約0.4 mrad、及び/又は約1.2 mrad以下、約1.0 mrad以下、約0.9 mrad以下、約0.85 mrad以下、約0.8 mrad以下、約0.75 mrad以下、約0.7 mrad以下、約0.65 mrad以下、約0.6 mrad以下、約0.55 mrad以下、約0.5 mrad以下、又は約0.45 mrad以下であってよい。更に、テーパ状の区域のくさび角度は、0.13~1.2 mrad、0.2~0.8 mrad、0.25~0.75 mrad、0.3~0.6 mrad、又は0.4~0.55 mradの範囲であってよい。

30

40

【0106】

[0119]テーパ状の区域の第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

50

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。

【0107】

[0120]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20の第1の末端部24aから中間膜20の第2の末端部24bに完全に及んでいるテーパー状の区域22を含む中間膜20を示す。この構造においては、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の末端部24a、bに位置する。図2に示す中間膜20のテーパー状の区域22の全体は、単純に中間膜20の第1(上)の平面状及び第2(下)の平面状の表面の間に形成される角度である一定のくさび角度： θ を有する。

10

【0108】

[0121]図3は、テーパー状の区域32及び水平の端部区域33を含む中間膜30を示す。テーパー状の区域32の第1の境界35aは中間膜30の第1の末端部34aに位置し、一方でテーパー状の区域32の第2の境界35bは、テーパー状の区域32と水平の端部区域33が交わる箇所に位置する。テーパー状の区域32は、一定角度の区域36及び変動角度の区域37を含む。一定角度の区域36は線状の厚さプロファイル及び一定のくさび角度： θ を有し、一方で変動角度の区域37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。変動角度の区域37の出発くさび角度は一定のくさび角度： θ_0 に等しく、変動角度の区域37の終了くさび角度は0である。図3に示す中間膜30は、テーパー状の区域32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： θ_c を有する。

20

【0109】

[0122]図4は、第1及び第2の水平の端部区域43a、bの間に位置するテーパー状の区域42を含む中間膜40を示す。テーパー状の区域42の第1の境界45aは、テーパー状の区域42と第1の水平の端部区域43aが交わる箇所に位置し、一方でテーパー状の区域42の第2の境界45bは、テーパー状の区域42と第2の水平の端部区域43bが交わる箇所に位置する。テーパー状の区域42は、第1及び第2の変動角度の区域47a、bの間に位置する一定角度の区域46を含む。第1の変動角度の区域47aは、第1の水平の端部区域43aと一定角度の区域46の間の遷移区域を形成する。第2の変動角度の区域47bは、第2の水平の端部区域43bと一定角度の区域46の間の遷移区域を形成する。一定角度の区域46は線状の厚さプロファイル及び一定のくさび角度： θ を有し、一方で第1及び第2の変動角度の区域47a、b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。第1の変動角度の区域47aの出発くさび角度は0に等しく、第1の変動角度の区域47bの終了くさび角度は一定のくさび角度： θ_0 に等しい。第2の変動角度の区域47bの出発くさび角度は一定のくさび角度： θ_0 に等しく、第2の変動角度の区域47bの終了くさび角度は0である。図4に示す中間膜40は、テーパー状の区域42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： θ_c を有する。

30

【0110】

[0123]図5は、第1及び第2の水平の端部区域53a、bの間に位置するテーパー状の区域52を含む中間膜50を示す。中間膜50のテーパー状の区域52は、一定角度の区域を含まない。それどころか、中間膜50のテーパー状の区域52全体は、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変動角度の区域である。上記に記載したように、テーパー状の区域52の全体的なくさび角度： θ は、テーパー状の区域52の第1及び第2の境界55a、bが中間膜50の第1の(上)表面と交わる2つの点を通して伸びる第1の基準線「A」と、テーパー状の区域52の第1及び第2の境界55a、bが中間膜50の第2の(下)表面と交わる2つの点を通して伸びる第2の基準線「B」との間の角度として測定される。しかしながら、テーパー状の区域52内において、曲線状の厚さプロファイルは、テーパー状の区域52全体の全体的なくさび角度： θ よりも大きい、小さいか、又は等しくてよい無限数のくさび角度を与える。

40

50

【 0 1 1 1 】

[0124]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 のテーパ状の区域 6 2 は中間膜 6 0 全体を形成する。而して、テーパ状の区域 6 0 の第 1 及び第 2 の境界 6 5 a、b は、中間膜 6 0 の第 1 及び第 2 の末端部 6 4 a、b に位置する。中間膜 6 0 のテーパ状の区域 6 2 は、第 1 及び第 2 の変動角度の区域 4 7 a、b によって離隔されている第 1、第 2、及び第 3 の一定角度の区域 4 6 a、b、c を含む。第 1、第 2、及び第 3 の一定角度の区域 4 6 a、b、c は、それぞれ線状の厚さプロファイルを有し、それぞれは、それぞれ固有の第 1、第 2、及び第 3 の一定のくさび角度： c_1 、 c_2 、 c_3 を有する。第 1 の変動角度の区域 4 7 a は、第 1 と第 2 の一定角度の区域 4 6 a、b の間の遷移区域として機能する。第 2 の変動角度の区域 4 7 b は、第 2 と第 3 の一定角度の区域 4 6 b、c の間の遷移区域として機能する。上記で議論したように、テーパ状の区域 6 2 の全体的なくさび角度： θ は、第 1 の基準線「A」と第 2 の基準線「B」の間の角度として測定される。第 1 の一定のくさび角度： c_1 は、テーパ状の区域 6 2 の全体的なくさび角度： θ よりも小さい。第 2 の一定のくさび角度： c_2 は、テーパ状の区域 6 2 の全体的なくさび角度： θ よりも大きい。第 3 の一定のくさび角度： c_3 は、テーパ状の区域 6 2 の全体的なくさび角度： θ よりも小さい。第 1 の変動角度の区域 4 7 a のくさび角度は、第 1 の一定のくさび角度： c_1 から第 2 の一定のくさび角度： c_2 へ連続的に増加する。第 2 の変動角度の区域 4 7 b のくさび角度は、第 2 の一定のくさび角度： c_2 から第 3 のくさび角度： c_3 へ連続的に減少する。

10

【 0 1 1 2 】

[0125]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状の区域 7 2 を含む中間膜 7 0 を示す。テーパ状の区域 7 2 の第 1 及び第 2 の境界 7 5 a、b は、中間膜 7 0 の第 1 及び第 2 の外側端部 7 4 a、b から内側に離隔している。中間膜 7 0 のテーパ状の区域 7 2 は、第 1、第 2、第 3、及び第 4 の変動角度の区域 7 7 a、b、c、d、並びに第 1、第 2、及び第 3 の一定角度の区域 7 6 a、b、c を含む。第 1 の変動角度の区域 7 7 a は、第 1 の水平の端部区域 7 3 a と第 1 の一定角度の区域 7 6 a の間の遷移区域として機能する。第 2 の変動角度の区域 7 7 b は、第 1 の一定角度の区域 7 6 a と第 2 の一定角度の区域 7 6 b の間の遷移区域として機能する。第 3 の変動角度の区域 7 7 c は、第 2 の一定角度の区域 7 6 b と第 3 の一定角度の区域 7 6 c の間の遷移区域として機能する。第 4 の変動角度の区域 7 7 d は、第 3 の一定角度の区域 7 6 c と第 2 の水平の端部区域 7 3 b の間の遷移区域として機能する。第 1、第 2、及び第 3 の一定角度の区域 7 6 a、b、c は、それぞれ線状の厚さプロファイルを有し、それぞれは、それぞれ固有の第 1、第 2、及び第 3 の一定のくさび角度： c_1 、 c_2 、 c_3 を有する。上記で議論したように、第 1、第 2、第 3、及び第 4 の変動角度の区域 7 7 a、b、c、d は、変動角度の区域 7 7 の一方の側における一定角度の区域のくさび角度から、変動角度の区域 7 7 の他方の側における一定角度の区域のくさび角度へ連続的に遷移するくさび角度を有する。

20

30

【 0 1 1 3 】

[0126]上記で議論したように、テーパ状中間膜は、それぞれがテーパ状の区域全体の全体的な幅よりも小さい幅を有し、それぞれがテーパ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する 1 以上の一定角度のテーパ状の区域を含んでいてよい。例えば、テーパ状の区域は、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状の区域を含んでいてよい。複数の一定角度のテーパ状の区域を用いる場合には、一定角度のテーパ状の区域は、隣接する一定角度のテーパ状の区域の間で遷移するように働く変動角度のテーパ状の区域によって互いから離隔してよい。

40

【 0 1 1 4 】

[0127]幾つかの態様においては、それぞれの一定角度のテーパ状の区域の幅は、少なくとも約 2 cm、少なくとも約 5 cm、少なくとも約 10 cm、少なくとも約 15 cm、又は少なくとも約 20 cm、及び / 又は約 150 cm 以下、約 100 cm 以下、又は約 5

50

0 cm以下であってよい。幾つかの態様においては、それぞれの一定角度のテーパー状の区域の幅と、テーパー状の区域全体の全体的な幅との比は、少なくとも約0.1:1、少なくとも約0.2:1、少なくとも約0.3:1、又は少なくとも約0.4:1、及び/又は約0.9:1以下、約0.8:1以下、約0.7:1以下、約0.6:1以下、又は約0.5:1以下であってよい。

【0115】

[0128]幾つかの態様においては、それぞれの一定角度のテーパー状の区域のくさび角度は、少なくとも約0.13 mrad、少なくとも約0.15 mrad、少なくとも約0.2 mrad、少なくとも約0.25 mrad、少なくとも約0.3 mrad、少なくとも約0.35 mrad、又は少なくとも約0.4 mrad、及び/又は約1.2 mrad以下、約1.0 mrad以下、約0.9 mrad以下、約0.85 mrad以下、約0.8 mrad以下、約0.75 mrad以下、約0.7 mrad以下、約0.65 mrad以下、又は約0.6 mrad以下であってよい。更に、それぞれの一定角度のテーパー状の区域のくさび角度は、0.13 ~ 1.2 mrad、0.25 ~ 0.75 mrad、又は0.4 ~ 0.6 mradの範囲であってよい。幾つかの態様においては、少なくとも1つの一定角度のテーパー状の区域のくさび角度は、テーパー状の区域全体の全体的なくさび角度よりも少なくとも約0.01 mrad、少なくとも約0.05 mrad、少なくとも約0.1 mrad、少なくとも約0.2 mrad、少なくとも約0.3 mrad、又は少なくとも約0.4 mrad大きい。幾つかの態様においては、少なくとも1つの一定角度のテーパー状の区域のくさび角度は、テーパー状の区域全体の全体的なくさび角度よりも少なくとも約0.01 mrad、少なくとも約0.05 mrad、少なくとも約0.1 mrad、少なくとも約0.2 mrad、少なくとも約0.3 mrad、又は少なくとも約0.4 mrad小さい。幾つかの態様においては、少なくとも1つの一定角度のテーパー状の区域のくさび角度は、テーパー状の区域全体の全体的なくさび角度よりも約0.4 mrad以下、約0.3 mrad以下、約0.2 mrad以下、約0.1 mrad以下、約0.05 mrad以下、又は約0.01 mrad以下大きい。幾つかの態様においては、少なくとも1つの一定角度のテーパー状の区域のくさび角度は、テーパー状の区域全体の全体的なくさび角度よりも約0.4 mrad以下、約0.3 mrad以下、約0.2 mrad以下、約0.1 mrad以下、約0.05 mrad以下、又は約0.01 mrad以下小さい。

【0116】

[0129]図8a及び8bは、厚さプロファイルが図3の中間膜30と同様である中間膜80を示す。図8a及び8bの中間膜80は、乗物のフロントガラスにおいて用いるために、ガラスの2つのシートの間に中間膜を固定することによって構成されている。図8aにおいて示すように、中間膜80の第1の末端部84aはフロントガラスの底部に配置することができ、一方で中間膜80の第2の末端部84bはフロントガラスの頂部に配置することができる。中間膜80のテーパー状の区域82は、ヘッドアップディスプレイを配置するフロントガラスの領域内に配置する。中間膜80のテーパー状の区域82は、一定角度の区域86及び変動角度の区域87を含む。図8aにおいて示すように、幾つかの態様においては、テーパー状の区域82は、中間膜80の第1の側端部88a及び第2の側端部88bの間で中間膜80を全体的に横切って伸びる。図8bは、図3と同様に、フロントガラスの底部とフロントガラスの頂部の間の中間膜80の厚さプロファイルを示す。

【0117】

[0130]図面においては示していないが、幾つかの態様においては、テーパー状中間膜は多層中間膜であってよいことを理解すべきである。テーパー状中間膜が複数の個々の層を含む場合には、個々の層の全てがテーパー状であってよく、個々の層の一部がテーパー状であってよく、或いは個々の層の1つのみがテーパー状であってよい。更に、幾つかの態様においては、個々の層のガラス転移温度は互いと異なっていてよい。例えば一態様においては、本中間膜は、中間膜の2つのテーパー状の外側層よりも低いガラス転移温度を有するテーパー状の中央層を含み、この場合には外側層の一方又は両方のガラス転移温度は

、中央層のガラス転移温度よりも少なくとも10、少なくとも約20、少なくとも約30、少なくとも約40、又は少なくとも約50 高い。

【0118】

【0131】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、一方、他の態様においては、例えば多層中間膜の1以上の層を楔形状にするか、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端部が他方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つを楔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又は楔形状にすることができる。楔形状の中間膜は、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(HUD)パネルにおいて有用である可能性がある。

10

【0119】

【0132】本発明の複数の態様による樹脂組成物、層、及び中間膜は、ポリマー層又は中間膜及び少なくとも1つの硬質基材を含む多層パネルにおいて用いることができる。幾つかの態様においては、多層パネルは1対の硬質基材を含み、その間に樹脂中間膜が配置される。基材と中間膜の合計厚さとして測定されるパネルの全厚さは、少なくとも約2mm、少なくとも約3mm、少なくとも約3.5mm、少なくとも約4mm、少なくとも約4.5mm、少なくとも約4.65mm、少なくとも約4.75mm、又は少なくとも約5mm、及び/又は約6.5mm以下、約6.25mm以下、約6.0mm以下、約5.75mm以下、約5.5mm以下、又は約5mm以下であってよい。一方又は両方の基材の厚さは、従来の多層パネルに関して予測されるものよりも実質的に小さくすることができる。例えば幾つかの態様においては、硬質基材のそれぞれの合計厚さは、約4.0mm以下、約3.9mm以下、約3.8mm以下、約3.7mm以下、約3.6mm以下、約3.5mm以下、約3.4mm以下にすることができる。

20

【0120】

【0133】任意の好適な硬質基材を用いて多層パネルを形成することができ、幾つかの態様においては、基材には、ガラス、ポリカーボネート、二軸配向PET、コポリエステル、アクリル樹脂、及びこれらの組合せからなる群から選択される材料を含ませることができる。硬質基材がポリマー材料を含む場合には、ポリマー材料にハードコート表面層を含ませることができ、又は含ませなくてもよい。幾つかの態様においては、硬質基材は、多層パネルを形成するのに用いる中間膜の屈折率よりも小さい屈折率を有してよい。例えば、硬質基材の少なくとも1つの屈折率は、上記に記載したように測定して約1.550以下、約1.545以下、約1.540以下、約1.535以下、約1.530以下、又は約1.525以下であってよい。幾つかの態様においては、硬質基材の少なくとも1つの屈折率は、多層パネルを形成するのに用いる中間膜の屈折率よりも少なくとも約5%、少なくとも約10%、少なくとも約15%、少なくとも約20%低くてよい。幾つかの態様においては、一方又は両方の基材の屈折率は、中間膜の屈折率よりも少なくとも約0.25単位、少なくとも約0.50単位、少なくとも約0.75単位、少なくとも約1.0単位、少なくとも約1.1単位、又は少なくとも約1.5単位低くてよい。或いは、中間膜の屈折率は基材の少なくとも1つの屈折率よりもここに記載する量又はパーセントだけ高いと言える。

30

40

【0121】

【0134】本発明の幾つかの態様にしたがって構成される多層パネルは、硬質基材の1以上の屈折率よりも高い等価屈折率を有することができる。ここで用いる「等価屈折率」という用語は、例えば多層パネルのような複合体材料の全体的な屈折率を指す。特定の多層パネルの等価屈折率(n_{eq})は、次の等式(1)及び(2)にしたがって計算される。

【0122】

【化 1】

$$\tan \theta_{eq} = \frac{x_T}{t_T} \quad (1)$$

$$n_A \sin \theta_1 = n_{eq} \sin \theta_{eq} \quad (2),$$

【 0 1 2 3 】

式中、 x_T 及び t_T は次のように規定される。

【 0 1 2 4 】

【化 2】

$$t_T = \sum_{i=1}^m t_i \quad (3)$$

$$x_T = \sum_{i=1}^m x_i = \sum_{i=1}^m t_i \tan \theta_i \quad (4)$$

【 0 1 2 5 】

[0135] 上式中、 θ_{eq} は複合体の等価入射角であり、 x_T は複合体全体を通して光が走る距離であり、 t_T は m 個の層を有する複合体の全厚さであり、 n_A は空気の屈折率であり、 θ_1 は空気 / 層 1 の界面を通過する光の入射角であり、 n_{eq} は複合体の等価屈折率であり、 t_i は層 i の厚さであり、 θ_i は層 i を通過する光の入射角である。本明細書に記載する多層パネルの等価屈折率は、少なくとも約 1.490、少なくとも約 1.495、少なくとも約 1.500、少なくとも約 1.505、少なくとも約 1.510、少なくとも約 1.515、少なくとも約 1.520、少なくとも約 1.525、少なくとも約 1.530、少なくとも約 1.535、少なくとも約 1.540、又は少なくとも約 1.545 にすることができる。

【 0 1 2 6 】

[0136] 幾つかの態様においては、多層パネルは、多層中間膜を形成するのに用いる基材の少なくとも 1 つの屈折率よりも少なくとも約 0.25%、少なくとも約 0.5%、少なくとも約 0.75%、少なくとも約 1%、又は少なくとも約 1.5% 高い等価屈折率を有することができる。例えば、パネルは、パネルを形成するのに用いる 1 以上の硬質基材の屈折率よりも少なくとも約 0.010、少なくとも約 0.015、少なくとも約 0.020、又は少なくとも約 0.025 高い等価屈折率を有することができる。幾つかの態様においては、多層パネルの等価屈折率は、パネルを形成するのに用いる中間膜の屈折率よりも低くすることができ、例えば、多層パネルを形成するのに用いる中間膜の屈折率よりも少なくとも約 0.5%、少なくとも約 1%、少なくとも約 1.5%、少なくとも約 2%、少なくとも約 2.5%、少なくとも約 3%、少なくとも約 5%、又は少なくとも約 7% 低くすることができる。中間膜の屈折率とパネルの等価屈折率の間の差は、少なくとも約 0.010、少なくとも約 0.025、少なくとも約 0.050、少なくとも約 0.10、少なくとも約 0.125、少なくとも約 0.50、又は少なくとも約 0.75 にすることができる。

【 0 1 2 7 】

[0137] 本明細書に記載する多層パネルは、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、バラスト、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。

【 0 1 2 8 】

[0138] 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、例えば自動車又は航空機のフロントガラス上にヘッドアップディスプレイ (HUD) 像を投影するために用いると、干渉する二重又は反射「ゴースト」像の減少を示すことができる。通常は、ゴー

10

20

30

40

50

スト像は、投影像がガラスの内側表面及び外側表面に反射する際のその位置の相違のために、フロントガラスが概して均一な厚さプロファイルを有する場合に最も問題である。しかしながら、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、ゴースト像の投影を最小にして、例えばパネルが従来のパネルによって示されるよりも非常に短い二重像分離距離を有するようにすることができる。

【0129】

[0139]二重像分離を測定する方法は、少なくとも1対の硬質基材及びその間に配置されている中間膜を含む多層パネルを与えることを含む。中間膜には本明細書に記載する任意の中間膜の任意の特性を含ませることができ、或いは中間膜は本明細書に記載する任意の中間膜であってよい。幾つかの態様においては、中間膜は、例えば少なくとも0.05 mradのくさび角度を有する少なくとも1つのテーパ状の区域を含むテーパ状中間膜であってよい。基材にはまた、本明細書に記載する基材の1以上の特性を含ませることができ、幾つかの態様においては、基材にはガラスを含ませることができる。

10

【0130】

[0140]与えられたパネルの二重像分離を測定するために、パネルの少なくとも一部を通して光を通過させることによって投影像を生成させることができる。幾つかの態様においては、パネルを通過する光は、例えば格子、線、形状、又は画像のような像を含む。幾つかの態様においては、像は、実質的に平らな鏡面仕上げされた表面に薄膜トランジスタの表示を反射させることによって生成させることができるが、像を生成させる他の好適な方法を用いることができる。テーパ状中間膜を用いて多層パネルを形成すると、パネルを通過する光の少なくとも一部がテーパ状の区域の少なくとも一部を通過するようにすることができる。或いは、又は更には、これらの区域を通して光が投影される際に形成される二重像分離を測定するために、光がパネルに沿った1以上の他の対象の区域を通過するようにすることができる。

20

【0131】

[0141]光がパネルの表面を通過し、且つその表面に反射したら、表面上に投影像を投影させ、次に撮像して撮像画像を形成することができる。幾つかの態様においては、表面上に表示される投影像は、図10に示されるように、一次像、及び一次像からずれて僅かに重なっている二次「ゴースト」像を含む場合がある。投影像はデジタルカメラ又は他の好適な装置を用いて撮像することができ、撮像には、投影像をデジタル化して、複数のピクセルを含むデジタル投影像を形成することを含ませることができる。

30

【0132】

[0142]デジタル化したら、撮像画像を定量分析して、少なくとも1つの一次像の指標、及び少なくとも1つの二次像の指標を含むプロファイルを形成することができる。分析は、デジタル投影像の少なくとも一部を、像のその部分におけるピクセルの強度を表す数値を含む垂直像マトリクスに変換することによって行うことができる。次に、図11に示すように、マトリクスの列を抽出し、ピクセル数に対してグラフ化してプロファイルを与えることができる。次に、プロファイルの一次像指標をプロファイルの二次像指標と比較して差を求めることができる。幾つかの態様においては、一次像指標にはグラフの最も高強度のピークを含ませることができ、一方で二重像指標にはより低い強度のピークを含ませることができる。2つの指標の間の任意の好適な差を求めることができ、幾つかの態様においては、これはプロファイルグラフにおける2つの指標の間の位置の差であってよい。この差に基づいて、試験したパネルの部分に関する二重像分離距離を計算することができる。二重像分離距離を求めるための上記の方法の具体的な使用を実施例11に記載する。

40

【0133】

[0143]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、従来法で形成されたパネルよりも非常に低い二重像分離距離を有することができる。例えば幾つかの態様においては、本明細書に記載するパネルの二重像分離距離は、例えば1.480未満の屈折率を有し、他の事項は全て同等であるもののような従来の中間膜から形成されるパネルの二重像分離距離よりも少なくとも約10%、少なくとも約20%、少なくとも約30%、少

50

なくとも約40%短くすることができる。与えられたパネルに関する二重像分離距離は、部分的には、その中間膜及び基材のタイプ及び寸法などのその具体的な構成によって定まる可能性がある。幾つかの本発明パネル及び比較パネルに関する二重像分離距離の具体例を実施例に与える。

【0134】

[0144] ガラスのような2つの硬質基材の間にポリマー層又は中間膜を積層する場合には、このプロセスに少なくとも次の：(1) 2つの基材及び中間膜を組み立て；(2) IR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の脱気のために加圧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の加圧ニップロール中を通して、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 psig ~ 200 psig 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；工程を含ませることができる。幾つかの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

【0135】

[0145] 幾つかの態様においては、多層パネルに、層又は中間膜上に配置される少なくとも1つのポリマーフィルムを含ませて、「二重層」と呼ばれる多層パネルを形成することができる。幾つかの態様においては、二重層において用いる中間膜には多層中間膜を含ませることができ、一方、他の態様においてはモノリス型中間膜を用いることができる。本明細書に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と、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シートより薄くてもよく、0.001 ~ 0.25 mm の範囲の厚さを有してよい。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。

20

【実施例】

【0136】

[0146] 以下の実施例は、本発明を製造及び使用することを当業者に教示するために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。

[0147] 以下の実施例は、種々のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む幾つかの樹脂組成物、層、及び中間膜の製造を記載する。下記に記載するように、多くの組成物、層、及び中間膜について行う幾つかの試験を用いて、種々の比較材料及び本発明材料の遮音及び光学特性を評価した。

30

【0137】

実施例1：高屈折率のポリ(ビニルアセタール)樹脂の製造：

[0148] n - ブチルアルデヒド($n\text{BuCHO}$; $RI = 1.377$)、イソブチルアルデヒド($i\text{BuCHO}$; $RI = 1.374$)、及び2 - エチルヘキシルアルデヒド(2EHCHO ; $RI = 1.414$)を含む1種類以上のアルデヒドを用いてポリビニルアルコールをアセタール化することによって、下表2において比較樹脂CR - 1 ~ CR - 12 と呼ぶ幾つかの比較ポリ(ビニルアセタール)樹脂を調製した。上記に詳細に記載したASTM - D1396又はFT - IR / SEC法のいずれかを用いて、得られた樹脂の組成を測定した。また、上記に記載した方法にしたがって幾つかの樹脂の屈折率及びガラス転移温度(T_g)も測定し、結果を下表2に与える。

40

【0138】

【表 2】

表 2：幾つかの比較ポリ（ビニルアセタール）樹脂の特性

樹脂	残留ヒドロキシ (重量%)	残留アセテート (重量%)	残留ポリ ビニル nBuCHO (重量%)	残留ポリ ビニル iBuCHO (重量%)	残留ポリ ビニル 2EHCHO (重量%)	樹脂 屈折率 (nD25)
CR-1	21	1	78	-	-	1.491
CR-2	19	1	80	-	-	1.490
CR-3	19	1	46	-	34	1.489
CR-4	16	1	83	-	-	1.488
CR-5	15	1	39	-	45	1.487
CR-6	13	1	86	-	-	1.486
CR-7	12	18	70	-	-	1.481
CR-8	12	12	76	-	-	nd
CR-9	12	10	78	-	-	1.483
CR-10	11	1	88	-	-	1.485
CR-11	12	1	-	88	-	nd
CR-12	13	1	-	86	-	nd

nd = 測定せず

【0139】

[0149]更に、同様の方法で本発明の複数の態様による幾つかのポリ（ビニルアセタール）樹脂も調製した。これらの本発明樹脂（表3において本発明樹脂DR-1～DR-21と呼ぶ）は、n-ブチルアルデヒドと、ベンズアルデヒド（ $BzCHO$ ； $RI = 1.545$ ）、シンナムアルデヒド（ $CCHO$ ； $RI = 1.620$ ）、4-クロロベンズアルデヒド（ $4-ClBzCHO$ ； $RI = 1.5850$ ）、2-フェニルプロピオンアルデヒド（ $2PhPrCHO$ ； $RI = 1.517$ ）、及びヒドロシンナムアルデヒド（ $HCCCHO$ ； $RI = 1.523$ ）を含む種々の高屈折率アルデヒドの混合物を用いてポリビニルアルコールをアセタール化することによって形成した。幾つかの本発明樹脂の屈折率も求め、結果を下表3にまとめる。

【0140】

10

20

30

【表 3】

表 3：本発明樹脂の特性

樹脂	残留ヒド ロキシ ル (重量%)	残留アセ テート (重量%)	アルデヒ ド成分 (重量%)	HCCCHO/ BuCHO (モル/モル)	CCHO/ BuCHO (モル/モル)	2PhPrCHO/ BuCHO (モル/モル)	BzCHO/ BuCHO (モル/モル)	4ClBzCHO/ BuCHO (モル/モル)	HCCCHO/ iBuCHO	樹脂 屈折率 (nD25)
DR-1	11	1	88	5/95	-	-	-	-	-	1.496
DR-2	11	1	88	10/90	-	-	-	-	-	1.500
DR-3	11	1	88	15/85	-	-	-	-	-	1.504
DR-4	11	1	88	20/80	-	-	-	-	-	1.510
DR-5	11	1	88	25/75	-	-	-	-	-	1.511
DR-6	11	1	88	50/50	-	-	-	-	-	1.528
DR-7	11	1	88	100/0	-	-	-	-	-	1.552
DR-8	19	1	80	10/90	-	-	-	-	-	nd
DR-9	19	1	80	25/75	-	-	-	-	-	nd
DR-10	19	1	80	50/50	-	-	-	-	-	nd
DR-11	19	1	80	100/0	-	-	-	-	-	nd
DR-12	12	18	70	25/75	-	-	-	-	-	nd
DR-13	12	10	78	25/75	-	-	-	-	-	nd
DR-14	17	1	82	-	25/75	-	-	-	-	1.507
DR-15	15	1	84	-	-	25/75	-	-	-	1.505
DR-16	14	1	85	-	-	25/75	-	-	-	1.503
DR-17	18	1	81	-	-	-	25/75	-	-	1.507
DR-18	14	1	85	-	-	-	25/75	-	-	1.501
DR-19	20	1	79	-	-	-	-	25/75	-	1.507
DR-20	14	1	85	-	-	-	-	25/75	-	1.509
DR-21	11	1	88	-	-	-	-	-	25/75	nd

nd = 測定せず

【0141】

[0150] 上表 2 及び 3 において示されように、上記に示したものを含む少なくとも 1 種類

10

20

30

40

50

の高屈折率アルデヒドの残基を含むポリビニルアセタール樹脂は、*n*-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、及び2-エチルヘキシルアルデヒドのようなアルデヒドの残基を含むものよりも高い屈折率を示す傾向がある。

【0142】

実施例2：高屈折率樹脂中間膜の製造：

[0151]上記の表2に示す幾つかの比較樹脂及び表3に示す幾つかの本発明樹脂を、種々の量の可塑剤のトリエチレングリコールビス(2-エチルヘキサノエート)(3GEH)と混合及び溶融ブレンドすることによって、幾つかの比較及び本発明中間膜を形成した。それぞれの得られた中間膜(比較中間膜CL-1~CL-14及び本発明中間膜DL-1~DL-26と呼ぶ)の組成、屈折率、及びガラス転移温度を上記に記載のように測定し、結果をそれぞれ下表4及び5にまとめる。

10

【0143】

【表4】

表4：幾つかの比較中間膜の特性

中間膜	樹脂	可塑剤 (phr)	屈折率 (nD25)	T _g (°C)
CL-1	CR-1	34	1.478	36
CL-2	CR-2	38	1.477	30
CL-3	CR-3	38	1.475	28
CL-4	CR-4	50	1.472	17
CL-5	CR-4	30	1.477	30
CL-6	CR-5	75	1.468	6
CL-7	CR-6	75	1.467	2
CL-8	CR-7	75	1.464	-4
CL-9	CR-8	75	1.466	-3
CL-10	CR-9	75	1.465	-3
CL-11	CR-10	75	1.466	-2
CL-12	CR-10	50	1.47	12
CL-13	CR-11	75	nd	nd
CL-14	CR-12	75	nd	nd

nd = 測定せず

20

30

【0144】

【表 5】

表 5：幾つかの本発明中間膜の特性

中間膜	樹脂	可塑剤 含量 (phr)	シート 屈折率 (nD25)	T _g (°C)
DL-1	DR-1	75	1.473	1
DL-2	DR-1	50	1.479	12
DL-3	DR-2	75	1.475	0
DL-4	DR-3	75	1.477	0
DL-5	DR-4	75	1.480	1
DL-6	DR-5	75	1.482	1
DL-7	DR-6	75	1.490	2
DL-8	DR-7	75	1.506	3
DL-9	DR-14	75	1.480	12
DL-10	DR-15	75	1.478	11
DL-11	DR-16	75	1.477	7
DL-12	DR-17	75	1.480	22
DL-13	DR-18	75	1.476	12
DL-14	DR-19	75	1.480	17
DL-15	DR-20	75	1.479	12
DL-16	DR-12	75	nd	nd
DL-17	DR-13	75	nd	nd
DL-18	DR-21	75	nd	nd
DL-19	DR-8	38	1.477	30
DL-20	DR-9	38	1.487	nd
DL-21	DR-10	38	1.501	nd
DL-22	DR-11	38	1.525	nd
DL-23	DR-5	38	nd	nd
DL-24	DR-5	50	1.488	nd
DL-25	DR-5	60	1.484	2
DL-26	DR-7	38	nd	nd

nd = 測定せず

【0145】

[0152]上表 4 及び 5 において示されるように、表 3 からのより高い屈折率の本発明樹脂を用いた本発明中間膜は、表 2 に示す比較樹脂のようなより低い屈折率の樹脂を用いて調製した比較中間膜よりも高い屈折率を示す。更に、本発明中間膜 DL-1 及び DL-2 及び DL-6 並びに DL-23 ~ DL-25 を比較することによって示されるように、中間膜を形成するために用いる可塑剤の量は、層のガラス転移温度及び屈折率の両方に影響を与えるが、必ずしも全ての樹脂に関して同程度ではない。例えば DL-1 (75 phr の 3 GEH; DR-1) と DL-2 (50 phr の 3 GEH; DR-1) を比較することによって示されるように、可塑剤の量を約 33% 減少させると、中間膜のガラス転移温度が 11 (1 から 12 へ) 上昇するが、屈折率は 0.006 (1.473 から 1.479 へ) しか増加しない。しかしながら、DL-25 (60 phr の 3 GEH; DR-5) と DL-6 (75 phr の 3 GEH; DR-5) を比較することによって示されるように

10

20

30

40

50

、この樹脂によって形成される層中の可塑剤含量を減少させると、ガラス転移温度は 1 (1 から 2 へ) しか上昇せず、一方、屈折率は 0 . 0 0 4 (1 . 4 8 4 から 1 . 4 8 8 へ) 増加する。

【 0 1 4 6 】

実施例 3 : 高屈折率樹脂を用いる中間膜の製造 :

[0153] 実施例 2 において形成し、それぞれ上表 4 及び 5 においてまとめた幾つかの比較中間膜及び本発明中間膜を用いて、幾つかの比較及び本発明多層中間膜を生成させた。それぞれの多層中間膜は、通常はより低い残留ヒドロキシル含量を有する樹脂で形成された 5 ミルの厚さを有する内側の「コア」層をサンドイッチしている合計で 2 8 ミルの厚さを有する 1 対の外側の「スキン」層を含んでいた。中間膜の組成、並びに屈折率、ガラス転移温度、色斑、及び損失係数を含む幾つかの特性を上記に記載のように測定し、比較多層中間膜 (C I - 1 ~ C I - 1 6) 及び本発明多層中間膜 (D I - 1 ~ D I - 2 9) に関する結果を下表 6 及び 7 にまとめる。

【 0 1 4 7 】

【表 6】

表 6 : 幾つかの比較多層中間膜の特性

中間膜	ポリマー層			T _g (°C)			屈折率			Δ 屈折率 (スキン- コア)	中間膜の 屈折率 (nD25)	色斑	20℃における 損失係数
	スキン		コア	スキン		コア	スキン		コア				
	1	2		1	2		1	2					
CI-1	CL-2	CL-7	CL-2	30	2	30	1.477	1.467	1.477	0.010	1.475	4	0.29
CI-2	CL-2	CL-11	CL-2	30	-2	30	1.477	1.466	1.477	0.011	1.475	5	0.33
CI-3	CL-2	CL-8	CL-2	30	-4	30	1.477	1.464	1.477	0.013	1.475	5	nd
CI-4	CL-1	CL-9	CL-1	36	-3	36	1.478	1.466	1.478	0.012	1.477	5	nd
CI-5	CL-1	CL-8	CL-1	36	-4	36	1.478	1.464	1.478	0.014	nd	5	0.36
CI-6	CL-2	CL-9	CL-2	30	-3	30	1.477	1.466	1.477	0.011	nd	5	nd
CI-7	CL-1	CL-11	CL-1	36	-2	36	1.478	1.466	1.478	0.012	1.477	5	0.35
CI-8	CL-2	CL-10	CL-2	30	-3	30	1.477	1.465	1.477	0.012	nd	5	0.31
CI-9	CL-1	CL-7	CL-1	36	2	36	1.478	1.467	1.478	0.011	nd	5	nd
CI-10	CL-1	CL-10	CL-1	36	-3	36	1.478	1.465	1.478	0.013	nd	5	nd
CI-11	CL-2	CL-13	CL-2	30	nd	30	nd	nd	nd	nd	nd	>5	nd
CI-12	CL-2	CL-14	CL-2	30	nd	30	nd	nd	nd	nd	nd	>5	nd
CI-13	CL-1	CL-13	CL-1	36	nd	36	nd	nd	nd	nd	nd	>5	nd
CI-14	CL-1	CL-14	CL-1	36	nd	36	nd	nd	nd	nd	nd	>5	nd
CI-15	CL-2	DL-7	CL-2	30	2	30	1.477	1.490	1.477	-0.013	1.479	>5	nd
CI-16	CL-2	DL-8	CL-2	30	3	30	1.477	1.506	1.477	-0.029	1.481	>5	nd

nd = 測定せず

【表 7】

表 7：幾つかの本発明多層中間膜の特性

中間膜	ポリマー層				T _g (°C)		屈折率 (nD25)		Δ 屈折率 (スキン-コア)	中間膜の屈折率	色斑	
	スキンの		スキンの		コア	スキンの	スキンの	コア				
	1	2	1	2								
DI-1	CL-2	DL-1	CL-2	30	1	30	1.477	1.473	1.477	0.004	1.476	1
DI-2	CL-2	DL-4	CL-2	30	0	30	1.477	1.477	1.477	0.000	1.477	1
DI-3	CL-5	DL-6	CL-5	30	1	30	1.477	1.482	1.477	-0.005	1.478	nd
DI-4	CL-2	DL-6	CL-2	30	1	30	1.477	1.482	1.477	-0.005	nd	<1
DI-5	CL-1	DL-6	CL-1	36	1	36	1.478	1.482	1.478	-0.004	nd	<1
DI-6	CL-2	DL-3	CL-2	30	0	30	1.477	1.475	1.477	0.002	nd	<1
DI-7	CL-2	DL-5	CL-2	30	1	30	1.477	1.480	1.477	-0.003	nd	<1
DI-8	CL-2	DL-6	CL-1	30	1	36	1.477	1.482	1.478	-0.005	nd	<1
DI-9	CL-2	DL-6	CL-5	30	1	30	1.477	1.482	1.477	-0.005	nd	<1
DI-10	CL-2	DL-16	CL-2	30	nd	30	1.477	nd	1.477	nd	nd	<1
DI-11	CL-2	DL-17	CL-2	30	nd	30	1.477	nd	1.477	nd	nd	<1
DI-12	CL-1	DL-16	CL-1	36	nd	36	1.478	nd	1.478	nd	nd	<1
DI-13	CL-1	DL-17	CL-1	36	nd	36	1.478	nd	1.478	nd	nd	<1
DI-14	CL-2	DL-18	CL-2	30	nd	30	1.477	nd	1.477	nd	nd	<1
DI-15	CL-1	DL-18	CL-1	36	nd	36	1.478	nd	1.478	nd	nd	<1

nd = 測定せず

nd = 測定せず

【 0 1 4 9 】

10

20

30

40

【表 8】

表 7 (続き) : 幾つかの本発明多層中間膜の特性

中間膜	ポリマー層						T _g (°C)		屈折率 (nD25)		Δ 屈折率 (スキン-コア)	中間膜の屈折率	色斑
	スキン 1	コア	スキン 2	スキン 1	スキン 2	コア	スキン 1	スキン 2	コア	スキン 1			
DI-16	DL-19	DL-24	DL-19	30	1	30	1.477	1.488	1.477	-0.005	1.478	<1	
DI-17	CL-2	DL-9	CL-2	30	12	30	1.477	1.480	1.477	-0.003	nd	<1	
DI-18	CL-2	DL-10	CL-2	30	11	30	1.477	1.478	1.477	-0.001	nd	<1	
DI-19	CL-2	DL-11	CL-2	30	7	30	1.477	1.477	1.477	0.000	nd	<1	
DI-20	CL-2	DL-12	CL-2	30	22	30	1.477	1.480	1.477	-0.003	nd	<1	
DI-21	CL-2	DL-13	CL-2	30	12	30	1.477	1.476	1.477	0.001	nd	<1	
DI-22	CL-2	DL-14	CL-2	30	17	30	1.477	1.480	1.477	-0.003	nd	<1	
DI-23	CL-2	DL-15	CL-2	30	12	30	1.477	1.479	1.477	-0.002	nd	<1	
DI-24	DL-20	DL-7	DL-20	nd	2	nd	1.487	1.490	1.487	-0.003	nd	<1	
DI-25	DL-21	DL-7	DL-21	nd	2	nd	1.501	1.490	1.501	-0.011	nd	>5	
DI-26	DL-22	DL-7	DL-22	nd	2	nd	1.525	1.490	1.525	-0.035	nd	>5	
DI-27	DL-20	DL-8	DL-20	nd	3	nd	1.487	1.506	1.487	-0.009	nd	3	
DI-28	DL-21	DL-8	DL-21	nd	3	nd	1.501	1.506	1.501	-0.005	nd	<1	
DI-29	DL-22	DL-8	DL-22	nd	3	nd	1.525	1.506	1.525	-0.019	nd	>5	

nd = 測定せず

【0150】

[0154] 上表 6 において示されるように、0.010 以上の屈折率の差を有するスキン及びコア層から形成された中間膜は、5 より高い色斑値によって示されるように光学欠陥を示した。しかしながら、表 7 において示されるように、0.010 未満の屈折率の差を有

10

20

30

40

50

するスキン及びコア層から形成された中間膜は、1以下の低い色斑値を示した。更に、表7において示されるように、かかる低い色斑値は、隣接する層の屈折率の間の差の絶対値が0.010未満である限りにおいては、スキン層よりも高いか又は低い屈折率を有するコア層を有する中間膜によって達成することができた。また、表7において示されるように、高RIアルデヒド残基、及び0.010より大きい屈折率の差の両方を有するスキン及びコア層から形成された中間膜は、5以上の高い色斑値を示した。

【0151】

実施例4：多層中間膜の安定性：

[0155]上記の実施例1～3に記載するように製造した2つの比較多層中間膜のCI-2及びCI-7、並びに2つの本発明多層中間膜のDI-4及びDI-5を試験して、時間経過に伴う中間膜の相対的安定性を求めた。最初の時点（ $t = 0$ ）及び層が平衡に達した後のそれぞれの層のガラス転移温度を比較することによって、正味の可塑剤移動を測定した。結果を下表8にまとめる。

【0152】

【表9】

表8：代表的な比較及び本発明中間膜の正味の可塑剤移動及び特性

中間膜	t=0における T_g ($^{\circ}\text{C}$)		平衡における T_g ($^{\circ}\text{C}$)		ΔT_g ($^{\circ}\text{C}$)		Δ 屈折率 (スキン- コア)	色斑
	T_g スキン	T_g コア	T_g スキン	T_g コア	ΔT_g スキン	ΔT_g コア		
CI-2	36	4.2	36	4.6	0.0	0.4	0.011	>5
DI-4	36	1.4	36.4	1.4	0.4	0.0	-0.005	<1
CI-7	42.5	2.2	42.5	1.4	0.0	-0.8	0.012	>5
DI-5	40.9	0.2	41.7	-1.8	0.8	-2.0	-0.004	<1

【0153】

[0156]本発明中間膜DI-4（並びに比較中間膜CI-2及びCI-7）は、平衡状態において中間膜のスキン及びコア層の両方のガラス転移温度における最小の変化を示した。これは、中間膜CI-2、CI-7、及びDI-4のそれぞれのスキン層とコア層の間の少量の可塑剤移動を示す。比較中間膜CI-2及びCI-7は比較的安定である可能性があるが、両方とも5より高い色斑値を示し、これは殆どの光学用途において許容できない。これに対して、本発明中間膜DI-4によって示された色斑値は1未満であった。

【0154】

[0157]平衡状態における本発明中間膜DI-5によって示されたガラス転移温度における僅かな低下は、少量の可塑剤がスキン層からコア層へ移動したことを示した。かかる移動は、スキン層中においてより少ない量の可塑剤、又はコア中においてより多い量を用いることによって軽減することができる。それでも、本発明中間膜DI-5のコア層とスキン層の屈折率は0.004しか相違しておらず、その結果、この中間膜も1未満の色斑値を示した。

【0155】

実施例5：ブレンドされたポリ（ビニルアセタール）樹脂：

[0158]上記の実施例1において記載したように製造した幾つかの比較樹脂及び本発明樹脂を、38phrの3GEH可塑剤と混合及び溶融ブレンドして、比較のブレンドされた層CBL-16及びCBL-17、並びに本発明のブレンドされた層DBL-27及びDBL-28を形成した。比較ポリマー層CL-2は表4に示す。比較ポリマー層CL-15は比較樹脂CR-10及び38phrの3GEHを用いて調製し、一方、本発明のポリマー層DL-27及びDL-28は、それぞれ本発明樹脂DR-3及びDR-5、並びに38phrの3GEHを用いて調製した。それぞれのブレンドされた樹脂中間膜に関する

曇り度及び可視透過率(%) (T_{vis}) を、曇り度及び可視透過率(%) と共に測定した。結果を下表 9 に与える。

【0156】

【表10】

表 9：幾つかのポリマー層の曇り度及び可視透過率(%)

中間膜	層の組成				特性		
	CR-2 (重量%)	CR-10 (重量%)	DR-3 (重量%)	DR-5 (重量%)	可塑剤 含量 (phr)	曇り度 (%)	% T_{vis}
CL-2	100	-	-	-	38	0.5	87.7
CL-15	-	100	-	-	38	0.5	87.8
CBL-16	96	4	-	-	38	2.1	84.3
CBL-17	89	11	-	-	38	14.7	80.2
DBL-27	96	-	4	-	38	0.8	87.8
DBL-28	89	-	-	11	38	0.6	87.8
DL-27	-	-	100	-	38	0.5	87.7
DL-28	-	-	-	100	38	0.5	87.8

【0157】

[0159] 上表 9 において示されるように、比較樹脂 CR-2 及び CR-10 のブレンドから形成した比較のブレンドされた中間膜 CBL-16 及び CBL-17 は、高い色斑値、並びに比較樹脂 CR-2 の単一のポリマー層（比較層 CL-2）又は CR-10 の単一のポリマー層（比較中間膜 CL-15）よりも低い可視透過率(%)を示した。これに対して、比較樹脂 CR-2 及び高屈折率の本発明樹脂（層 DBL-27 においては樹脂 DR-3、又は層 DBL-28 においては樹脂 DR-5）のブレンドから形成した本発明のブレンドされた中間膜 DBL-27 及び DBL-28 は、比較樹脂 CR-2 のみを用いて調製した比較中間膜 CL-2 と実質的に同等の曇り度及び可視透過率(%)を示した。而して、本発明の高屈折率樹脂を比較中間膜に加えても、得られる中間膜の光学品質は低下しない。

【0158】

実施例 6：高屈折率添加剤を有する中間膜の製造：

[0160] ポリビニルアルコールを n-ブチルアルデヒドでアセタール化することによって幾つかのポリ（ビニルアセタール）樹脂を調製した。異なる残留ヒドロキシル含量を有する樹脂を、種々の量の 3GEH 可塑剤と溶解ブレンドし、多層中間膜の種々の層を形成するために用いた。それぞれの中間膜は、それぞれが 14 ミルの厚さを有する 2 つの外側の「スキン」層の間にサンドイッチされている 5 ミルの厚さを有する内側の「コア」層を有していた。コア層を形成するために用いたポリ（ビニルブチラール）樹脂は 11 重量%のヒドロキシル含量を有しており、スキン層のために用いた樹脂は 19 重量%のヒドロキシル含量を有していた。いずれの樹脂も約 2 重量%の残留アセテート含量を有していた。

【0159】

[0161] 3GEH で可塑化したポリマー層を用い、コア及びスキン層中に種々の量で存在させて、比較中間膜 CI-17 ~ CI-19 を形成した。本発明中間膜 DI-30 ~ DI-38 には、3GEH に加えて、種々の量の 2 種類の異なる高屈折率の添加剤：Benzoflex（登録商標）2-45（ジエチレングリコールジベンゾエート；Eastman Chemical Company, Kingsport, Tennessee から商業的に入手できる）（添加剤 A-1）（28 の融点及び 1.542 の屈折率を有していた）；及び Benzoflex（登録商標）352（1,4-シクロヘキサジメタノールジベンゾエート；Eastman Chemical Company から商業的に入手できる）（添加剤 A-2）（118 の融点及び 1.554 の屈折率を有していた）；も含ませ

た。比較中間膜 C I - 17 ~ C I - 19 及び本発明中間膜 D I - 30 ~ D I - 38 のそれぞれの層の屈折率及びガラス転移温度を測定し、結果を下表 10 にまとめる。

【 0 1 6 0 】

【 表 1 1 】

表 10 : 幾つかの比較及び本発明中間膜の特性

中間膜	スキン層						コア層						Δ 屈折率 (スキン- コア)		
	可塑性 含量 (P) (phr)	高 RI 添加剤 のタイプ	高 RI 添加剤 (A) (phr)	A+P の 合計	A:P の比	RI	T _g (°C)	可塑性 含量 (P) (phr)	高 RI 添加剤 のタイプ	高 RI 添加剤 (A) (phr)	A+P の 合計	A:P の比		RI	T _g (°C)
CI-17	40	-	-	-	-	1.476	30	65.0	-	-	-	-	1.467	2.9	0.008
CI-18	40	-	-	-	-	1.476	30	75.0	-	-	-	-	1.466	-2.0	0.010
CI-19	40	-	-	-	-	1.476	30	85.0	-	-	-	-	1.465	-3.1	0.011
DI-30	20	A-1	20	40	1.0	1.492	29	32.5	A-1	32.5	65	1.0	1.488	4.2	0.004
DI-31	20	A-1	20	40	1.0	1.492	29	37.5	A-1	37.5	75	1.0	1.488	-0.6	0.004
DI-32	20	A-1	20	40	1.0	1.489	29	42.5	A-1	42.5	85	1.0	1.488	-3.3	0.004
DI-33	17.2	A-1	22.8	40	1.3	1.496	30	22.8	A-1	42.2	65	1.9	1.494	5.2	0.002
DI-34	17.2	A-1	22.8	40	1.3	1.496	30	26.2	A-1	48.8	75	1.9	1.494	2.4	0.002
DI-35	17.2	A-1	22.8	40	1.3	1.496	30	29.8	A-1	55.2	85	1.9	1.494	-2.1	0.002
DI-36	20	A-2	20	40	1.0	1.493	34	27.5	A-2	27.5	55	1.0	1.490	15.9	0.003
DI-37	20	A-2	20	40	1.0	1.493	34	35.0	A-2	35.0	70	1.0	1.490	8.4	0.003
DI-38	20	A-2	20	40	1.0	1.493	34	42.5	A-2	42.5	85	1.0	1.491	1.8	0.002

10

20

30

40

50

【 0 1 6 1 】

[0162]上表 1 0 において示されるように、3 G E H 可塑剤のみを含んでいた中間膜のコア層の可塑剤含量を増加させると、層のガラス転移温度が低下し、最終的にはその遮音性能が向上した。しかしながら、かかる増加によってまた、スキン層とコア層の屈折率の間の差が広がり、それによって中間膜の光学品質が低下した。表 1 0 における本発明中間膜 D I - 3 0 ~ D I - 3 8 を比較することによって示されるように、更なる高屈折率添加剤を用いて調製したコア層の屈折率は、可塑剤装填量の増加に伴ってほぼ一定に維持され、一方、ガラス転移温度における同様の低下をなお示した。この結果、ほぼ同等の屈折率を有するコア及びスキン層を有する中間膜が得られ、これは色斑のような光学欠陥が大きく減少した。同時に、コア層はまた十分に低いガラス転移温度も示し、これはこの樹脂は遮音特性も有していたことを示す。

10

【 0 1 6 2 】

実施例 7：反応性高屈折率添加剤を有するコア層の製造：

[0163] 1 1 重量 % の残留ヒドロキシル含量及び約 2 重量 % の残留アセテート含量を有するポリビニル n - ブチラール樹脂を種々の量の 3 G E H 可塑剤と溶融ブレンドすることによって、多層中間膜の内側のコア層をシミュレートするために用いる幾つかのポリマー層を形成した。比較層 C L - 1 6 は 7 5 p h r の 3 G E H を含んでおり、一方、本発明層 D L - 2 9 ~ D L - 3 1 は、3 G E H と反応性高屈折率添加剤（反応性高 R I 添加剤）の種々の混合物を用いて調製した。本発明層 D L - 2 9 及び D L - 3 0 において用いた反応性高 R I 添加剤（添加剤 A）はジフェニルジメトキシシラン（Gelest Inc., Morrisville, Pennsylvania から SID4535.0 として商業的に入手できる）であり、本発明層 D L - 3 1 において用いた反応性高 R I 添加剤（添加剤 B）は無水フタル酸（Sigma Aldrich Co., St. Louis, Missouri から商業的に入手できる）であった。比較層 C L - 1 6 及び本発明層 D L - 2 9 ~ D L - 3 1 のそれぞれの屈折率を測定し、結果を下表 1 1 に与える。

20

【 0 1 6 3 】

【表 1 2】

表 1 1：比較及び本発明のコアポリマー層の屈折率

ポリマー層	可塑剤 含量 (phr)	添加剤 A 含量 (phr)	添加剤 B 含量 (phr)	屈折率 (nD25)
CL-16	75	-	-	1.466
DL-29	72	3	-	1.468
DL-30	72	6	-	1.470
DL-31	72	-	3	1.470

30

【 0 1 6 4 】

[0164]表 1 1 において示されるように、3 G E H を 1 種類以上の反応性高屈折率添加剤と組み合わせて用いて形成したポリマー層は、3 G E H のみを用いて調製したポリマー層よりも高い屈折率を有していた。その結果、多層中間膜における内側のコア層として用いた場合に、本発明層 D L - 2 9 ~ D L - 3 1 は、ポリビニル n - ブチラールで形成したスキン層の屈折率（R I = 1 . 4 7 7）により密に合致する屈折率を有していた。その結果、コア層として本発明層 D L - 2 9 ~ D L - 3 1 を用いて形成した多層中間膜は、内側のコア層として比較層 C L - 1 6 を用いて形成した多層中間膜よりも少ない光学欠陥を示す。

40

【 0 1 6 5 】

実施例 8：高屈折率可塑剤を有する樹脂ブレンドを用いる種々の中間膜：

[0165]実施例 1 において上記に記載した手順にしたがって、2 種類のポリビニル n - ブチラール樹脂の R - 1 及び R - 2 を調製した。樹脂 R - 1 は 1 9 重量 % の残留ヒドロキシ

50

ル含量を有しており、一方、樹脂 R - 2 は 1 1 重量 % の残留ヒドロキシル含量を有していた。両方の樹脂とも 2 重量 % の残留アセテート含量を有していた。種々のブレンド割合をシミュレートするために、種々の量の樹脂 R - 1 及び R - 2 を含ませた幾つかの樹脂ブレンドを調製した。このブレンドを、3 G E H (可塑剤 P - 1 ; R I = 1 . 4 4 2) 、ジオクチルフタレート (可塑剤 P - 2 ; R I = 1 . 4 8 5) 、 3 0 重量 % の 3 G E H と 7 0 重量 % の Benzoflex (登録商標) 2088 (Eastman Chemical Company, Kingsport, Tennessee から商業的に入手できる) のブレンド (可塑剤 P - 3 ; R I = 1 . 5 0 6) 、及びノニルフェニルテトラエチレングリコール (可塑剤 P - 4 ; R I = 1 . 5 0 0) から選択される 3 8 p h r の可塑剤と混合した。次に、両方の樹脂及び可塑剤を含ませた得られた可塑化樹脂を単一のシートに成形した。それぞれのシートに関する屈折率、曇り度、及び可視透過率 (%) を求め、結果を下表 1 2 に与える。

【 0 1 6 6 】

【表 1 3】

表 1 2 : 幾つかの樹脂ブレンドの特性

樹脂 A (重量%)	樹脂 B (重量%)	可塑剤 P-1			可塑剤 P-2			可塑剤 P-3			可塑剤 P-4		
		中間膜 の RI	曇り度 (%)	T _{vis} (%)	中間膜 の RI	曇り度 (%)	T _{vis} (%)	中間膜 の RI	曇り度 (%)	T _{vis} (%)	中間膜 の RI	曇り度 (%)	T _{vis} (%)
100	0	1.477	0.4	88.5	1.494	0.4	88.5	1.495	0.3	88.4	1.493	0.3	88.5
98.9	1.1	1.477	0.6	87.9	1.494	0.4	88.6	1.495	0.3	88.8	1.493	0.3	88.7
97.8	2.2	1.476	1.2	87.1	1.498	0.3	88.4	1.495	0.3	88.7	1.493	0.2	88.7
95.6	4.4	1.477	1.9	84.6	1.495	0.4	88.4	1.495	0.3	88.6	1.492	0.4	88.5
91.2	8.8	1.476	5.4	81.7	1.495	0.5	88.3	1.495	0.4	88.5	1.493	0.3	88.6
88.9	11.1	1.476	12.9	80.6	1.494	0.6	88.2	1.495	0.4	88.2	1.492	0.4	88.2

【 0 1 6 7 】

[0166] 上表 1 2 において示されるように、可塑剤 P - 1 を用いて調製したブレンドされたポリマー層は、より低いヒドロキシル含量の樹脂の R - 2 の量が増加するに伴って実質

10

20

30

40

50

的に一定の屈折率を維持したが、高いレベルの R - 2 を有するこれらの樹脂ブレンドの光学特性は、R - 2 の量が増加するにつれて悪化した。例えば表 1 2 において示されるように、1 . 1 % より多い樹脂 R - 2 を含ませたブレンドの曇り度は増加し、一方、これらのブレンドの可視透過率 (%) は 8 8 . 5 % から 8 1 . 7 % へ減少した。

【 0 1 6 8 】

[0167]これに対し、より高屈折率の可塑剤の P - 2 ~ P - 4 で可塑化した樹脂 R - 2 を 2 . 2 % より多く含む樹脂ブレンドは、それぞれ、より少ない量の樹脂 R - 2 を有するブレンドと実質的に同等の曇り度及び可視透過率 (%) を示した。したがって、可塑剤 P - 2 ~ P - 4 のようなより高屈折率の可塑剤を用いた樹脂ブレンドは、最終ブレンドの光学特性に悪影響を与えることなく、より低いヒドロキシル含量の樹脂をより多い量で用いることを可能にすることができると結論することができる。

10

【 0 1 6 9 】

実施例 9 : 高屈折率可塑剤を含むポリ (ビニルブチラール) 層 :

[0168] 3 種類の異なるポリ (ビニル n - ブチラール) 樹脂 (P V B - 1 ~ P V B - 3) を異なるタイプ及び量の可塑剤と混合及び溶融ブレンドすることによって、幾つかのポリ (ビニル n - ブチラール) 層を形成した。樹脂 P V B - 1 ~ P V B - 3 のそれぞれは、1 1 ~ 2 0 . 4 重量 % の範囲の異なる残留ヒドロキシル含量を有しており、3 つの樹脂は全て 1 重量 % の残留酢酸ビニル含量を有していた。比較層 C L - 1 7 ~ C L - 1 9 は種々の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) (3 G E H ; R I = 1 . 4 4 2) を用いて調製し、一方、本発明層 D L - 3 2 ~ D L - 3 7 には 3 G E H と Benzoflex (登録商標) 354 (Eastman Chemical Company, Kingsport, Tennessee から商業的に入手できる) (R I = 1 . 5 3) の混合物を含ませた。それぞれの層の屈折率を測定し、結果を下表 1 3 にまとめる。

20

【 0 1 7 0 】

【 表 1 4 】

表 1 3 : 種々の可塑剤を用いた幾つかのポリ (ビニル) ブチラール層

ポリマー層	残留ヒドロキシル含量 (重量%)	可塑剤含量				屈折率 (nD25)
		3GEH 含量 (phr)	Benzoflex 354 (phr)	3GEH : Benzoflex 354 の比	全可塑剤含量 (phr)	
CL-17	19	38	-	-	38	1.477
CL-18	19	38	-	-	38	1.477
CL-19	11	75	-	-	38	1.466
DL-32	20.4	30.1	12.9	30/70	43	1.484
DL-33	20.4	25.8	17.2	40/60	43	1.485
DL-34	20.4	21.5	21.5	50/50	43	1.488
DL-35	11	59.5	25.5	30/70	85	1.479
DL-36	11	51	34	40/60	85	1.481
DL-37	11	42.5	42.5	50/50	85	1.486

30

40

【 0 1 7 1 】

[0169]上表 1 3 において示されるように、高屈折率可塑剤を含むポリマー層は、低屈折率可塑剤のみを含むものよりも高い屈折率を示した。

実施例 1 0 : 高屈折率添加剤を有する中間膜の製造 :

[0170]実施例 9 において形成し、上表 1 3 にまとめた比較及び本発明中間膜の幾つかを用いて、幾つかの比較及び本発明多層中間膜を生成させた。それぞれの多層中間膜は、より低い残留ヒドロキシル含量を有する樹脂で形成した 5 ミルの厚さを有する内側の「コア」層をサンドイッチしているそれぞれ 1 4 ミルの厚さを有する 1 対の外側の「スキン」層

50

を含んでいた。上記に記載のように多層中間膜の組成、並びに全可塑剤含量、屈折率、ガラス転移温度、色斑、及び損失係数などの幾つかの特性を測定し、比較多層中間膜C I - 20及びC I - 21並びに本発明多層中間膜D I - 39～D I - 41に関する結果を下表14にまとめる。

【0172】

【表15】

表14：幾つかの比較及び本発明中間膜の特性

中間膜 No	スキン 層1	コア層	スキン 層2	全可塑剤 含量 (phr)	Δ 屈折率 (スキン- コア)	屈折率 (nD25)	T _g (°C)		色斑	20°Cにおける 損失係数
							スキン	コア		
CI-20	CL-17	CL-18	CL-17	38	0.000	1.477	30	-	0	0.02
CI-21	CL-17	CL-19	CL-17	42.5	0.011	1.475	35	3	5	0.32
DI-39	DL-32	DL-35	DL-32	48	0.005	1.484	38.8	2.6	0.4	0.41
DI-40	DL-33	DL-36	DL-33	48	0.004	1.486	39.6	4.7	0.4	0.39
DI-41	DL-34	DL-37	DL-34	48	0.002	1.488	40.9	8.7	0.4	0.33

【0173】

10

20

30

40

50

[0171]上表 1 4 において示されるように、0.010 より大きい屈折率の差を有するスキン及びコア層から形成した中間膜は、5 の色斑値によって示されるようにより多い光学欠陥を示した。更に、高屈折率可塑剤を用いた本発明中間膜 DI - 39 ~ DI - 41 は、1.460 未満の屈折率を有する可塑剤のみを用いた比較中間膜 CI - 20 及び CI - 21 と比べてより高い全体的な屈折率を示した。

【0174】

実施例 11：種々の厚さ及びくさび角度を有する比較及び本発明多層パネルに関する二重像分離距離の測定：

[0172] 18.7 重量%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)樹脂を、38 phr の可塑剤のトリエチレングリコールビス(2-エチルヘキサノエート)(3GEH)と混合し、得られた混合物を押出して単一層のシートを形成することによって、幾つかの中間膜を形成した。約30ミル(約0.76mm)の均一な厚さを有する平坦な、即ちテーパ状の区域を有しない中間膜シートを形成し、これを切断して0°のくさび角度を有する幾つかの比較中間膜を形成した。

【0175】

[0173]それぞれが異なる一定のくさび角度を有するテーパ状の区域を有する幾つかのシートを形成し、それぞれのシートを切断して幾つかのテーパ状のモノリス型中間膜を形成した。テーパ状中間膜は、それぞれ0.30~0.73mradの範囲のくさび角度を有していた。次に、それぞれの中間膜試料を、6インチ×12インチの1対のガラスシートの間に積層した(それぞれのガラス/中間膜/ガラス多層パネルは、3.0mm、4.32mm、又は5.0mmの厚さを有していた)。比較多層パネル(CP-1~CP-3)及び本発明の多層パネル(DP-1~DP-15)のそれぞれの具体的な構成を下表15に示す。

【0176】

10

20

【表 16】

表 15：幾つかの比較&本発明積層体の二重像分離

積層体	くさび角度 (mrad)	積層体厚さ (mm)	二重像分離 (分)
CP-1	0.00	3.0	5.459
CP-2	0.00	4.3	7.389
CP-3	0.00	5.0	8.491
DP-1	0.20	3.0	3.305
DP-2	0.20	4.3	5.362
DP-3	0.20	5.0	6.527
DP-4	0.30	3.0	2.228
DP-5	0.30	4.3	4.411
DP-6	0.30	5.0	5.576
DP-7	0.41	3.0	1.088
DP-8	0.41	4.3	3.271
DP-9	0.41	5.0	4.436
DP-10	0.50	3.0	-0.618
DP-11	0.50	4.3	1.789
DP-12	0.50	5.0	3.042
DP-13	0.73	3.0	-2.714
DP-14	0.73	4.3	-0.403
DP-15	0.73	5.0	0.888

10

20

【0177】

[0174]表 15 に示す積層体のそれぞれを、図 9 に示す装置 100 を用いた二重像分離試験にかけた。図 9 に示すように、試験装置 100 は、投影機 130、調節可能な鏡 140、及び検出器 120 を含む。図 9 において線 A として示す投影機 130 と調節可能な鏡 140 の間の距離は 43.8 cm であり、図 9 において線 B として示す調節可能な鏡 140 とパネル 110 の間の距離は 31.7 cm であり、図 9 において線 C として示すパネル 110 と検出器 120 の間の距離は 47 センチであった。更に、図 9 において θ_1 として示す投影機 130 からの光が調節可能な鏡 140 に衝突する入射角は 30.11° であり、パネル 110 は、図 9 において θ_2 として示す鏡 140 からパネル 110 上への像の入射角、及び θ_2' として示すパネル 110 から検出器 120 へ反射する光が、それぞれほぼ同等で 24.8° に等しくなるように配置した。最後に、図 9 において θ_3 によって示されるように、パネル 110 は垂直線から 30.5° の角度に合わせた。

30

【0178】

[0175]図 9 に示す装置 100 を用いてパネル 110 の二重像分離距離を測定するために、標準的な薄膜トランジスタディスプレイを用いて像を生成させ、鏡 140 の平坦な表面によってパネル 110 に反射させた。像は、パネル 110 の 1 以上の表面に反射させて、検出器 120 に投影した。次に、デジタルカメラを用いて像を記録して図 10 に示すような撮像画像を形成し、これを次に、デジタル像を、デジタル像のそれぞれのピクセルの強度を表す要素（グレースケールレベル）を有するマトリクスに変換することによって分析してプロファイルを形成した。次に、図 11 に示すようにマトリクスをカラム毎にピクセル数の関数としてプロットした。図 11 に示すより高強度のピークはパネルから反射した一次像を表し、一方でより短いより低強度のピークは二次又は「ゴースト」像に対応していた。次に、一次ピークと二次ピークの間の分離距離（ピクセル）を求め、これを用いて

40

50

、次式：

【 0 1 7 9 】

【 化 3 】

$$D = \frac{\text{ピーク分離 (ピクセル)}}{\text{虚像距離 (mm)}} \times 3427.75$$

【 0 1 8 0 】

にしたがってそれぞれのパネルに関する二重像分離距離 (D) を計算した。

[0176] 上記に記載の手順を用いて、比較パネル (C P - 1 ~ C P - 3) のそれぞれ、及び本発明パネル (D P - 1 ~ D P - 1 5) のそれぞれに関する二重像分離距離を測定し、結果を上表 1 5 に与える。結果はまた、図 1 2 にグラフでまとめる。

【 0 1 8 1 】

[0177] 更に、幾つかの更なる比較多層パネル (C P - 4 ~ C P - 8) 及び本発明の多層パネル (D P - 1 6 ~ D P - 2 9) を、上記に記載にもと同様の方法で、しかしながら幾つかの異なるくさび角度で厚さを変化させて構成した。次に、比較パネル C P - 4 ~ C P - 8 及び本発明パネル D P - 1 6 ~ D P - 2 9 のそれぞれについて上記に記載の二重像分離試験を行い、結果を下表 1 6 に与える。図 1 3 は、種々のガラス構造の比較パネル C P - 4 ~ C P - 8 及び本発明パネル D P - 1 6 ~ D P - 2 9 に関するくさび角度の関数としての二重像分離距離を示す。

【 0 1 8 2 】

【 表 1 7 】

表 1 6 : 幾つかの比較及び本発明積層体の二重像分離

積層体	くさび角度 (mrad)	積層体厚さ (mm)	二重像分離 (分)
CP-4	0.0	2.16	3.97
CP-5	0.0	3.06	5.45
CP-6	0.0	3.97	6.83
CP-7	0.0	4.66	7.96
CP-8	0.0	5.36	9.02
DP-16	0.20	3.19	3.49
DP-17	0.20	4.07	4.82
DP-18	0.20	5.45	7.06
DP-19	0.41	3.39	0.55
DP-20	0.41	4.12	2.88
DP-21	0.41	5.47	4.44
DP-22	0.50	4.16	1.22
DP-23	0.50	4.64	2.39
DP-24	0.50	2.20	-2.10
DP-25	0.50	5.44	3.43
DP-26	0.73	2.30	-4.27
DP-27	0.73	3.20	-2.59
DP-28	0.73	3.90	-0.53
DP-29	0.73	4.60	-0.04

【 0 1 8 3 】

実施例 1 2 : 幾つかの比較及び本発明多層パネルに関する等価屈折率 (n_{eq}) の測定 :

[0178] 下記の実施例において、比較多層パネル及び本発明多層パネルの等価屈折率 : n_{eq} を求めた。0.76 mm の均一な厚さ及び 1.475 の屈折率を有する PVB 中間膜を、一方は 1.6 mm の厚さを有し、他方は 2.3 mm の厚さを有するガラスパネルの間に積層することによって、比較パネル (CP - A) を形成した。ガラスパネルはそれぞれ、ASTM - D 542 にしたがって 589 nm の波長及び 25 ° において測定して 1.52 の屈折率を有していた。60 ° の入射角 (θ_i) において、上記の等式 (1) ~ (4) にしたがって比較パネルの等価屈折率を求めたところ、1.512 であった。

10

【 0 1 8 4 】

[0179] 同様に、0.76 mm の均一な厚さを有する他の PVB 中間膜を、それぞれのパネルが比較多層パネルを形成するのに用いたパネルと同等の厚さを有する 2 枚のガラスパネルの間に積層することによって、本発明多層パネル (DP - B) を形成した。しかしながら、本発明多層パネル (DP - B) 形成するのに用いた PVB 中間膜は、1.65 の屈折率を有していた。上記の式を用いて、本発明多層パネルの等価屈折率を計算したところ、1.540 であった。この本発明多層パネルの DP - B は、幾つかの場合において達成しうる等価屈折率の実用的な最大値 (又は実用的な限界値) を示すことができる。結果を下表 1 7 にまとめる。

20

【 0 1 8 5 】

【 表 1 8 】

表 1 7 : 中間膜の屈折率特性 (60 ° の入射角)

試料	厚さ (mm)				屈折率		
	ガラス パネル 1	ガラス パネル 2	中間膜	合計	ガラス	中間膜	n_{eq}
ガラスのみ	4.66	-	-	4.66	1.52	-	1.520
比較 CP-A	1.6	2.3	0.76	4.66	1.52	1.475	1.512
本発明 DP-B	1.6	2.3	0.76	4.66	1.52	1.65	1.540

30

【 0 1 8 6 】

実施例 1 3 : 種々の積層体に関する二重像分離に対する屈折率の効果 :

[0180] 幾つかのガラス / 空気 / ガラス積層体を形成し、異なる等価屈折率を有する多層パネルをシミュレートした。それぞれの積層体は、ガラスシートの間に空隙を形成して保持するために、適当な寸法の金属シムを用いて種々の厚さの幾つかのガラスシートを互いから離隔させることによって構成した。得られたガラス / 空気 / ガラス積層体の合計厚さを 4 ~ 5 ミリの間に維持し、上記の式 (1) ~ (4) にしたがってそれぞれに関する等価屈折率を計算した。2 つの代表的なパネル AGL - 1 及び AGL - 2 に関する具体的な構成及び上記の式 (1) ~ (4) のパラメーターに関する値を、それぞれ下表 1 8 及び 1 9 にまとめる。

40

【 0 1 8 7 】

【表 19】

表 18 : AGL-1 に関する構成及び等価屈折率パラメーター

層	材料	厚さ (mm)	n_1	θ_1	n_2	θ_2	x_i (mm)
層 1	空気		1	65.20			
層 2	ガラス	0.7	1	65.20	1.52	36.67	0.521217
層 3	空気	3.6	1.52	36.67	1.00	65.20	7.791114
層 4	ガラス	0.7	1	65.20	1.52	36.67	0.521217
層 5	空気		1.52	36.67	1.00	65.20	
等価		5			1.04	60.49	8.833547

【0188】

【表 20】

表 19 : AGL-2 に関する構成及び等価屈折率パラメーター

層	材料	厚さ (mm)	n_1	θ_1	n_2	θ_2	x_i (mm)
層 1	空気		1	65.20			
層 2	ガラス	2.3	1	65.20	1.52	36.67	1.712569
層 3	空気	0.4	1.52	36.67	1.00	65.20	0.865679
層 4	ガラス	2.3	1	65.20	1.52	36.67	1.712569
層 5	空気		1.52	36.67	1.00	65.20	
等価		5			1.39	40.63	4.290818

【0189】

[0181]次に、上記に記載したように形成したガラス／空気／ガラスパネルのそれぞれを、図 9 に示す装置を用いて、上記の実施例 11 において記載したものと同様の二重像分離試験にかけた。但し、これらのパネルを分析する際に形成した撮像画像は、ガラスと空気の屈折率の間の大きな差のために 1 つではなく 3 つの二重像を含んでいた。この分析に関しては、それぞれのパネルに関する二重像分離距離を求める際に、一次像と最後の二重像の間の分離を分析した。これらの分析の結果を図 14 にグラフでまとめる。

【0190】

[0182]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。

【0191】

[0183]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。

[1] 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少なくとも1つのポリマー層を含み、ポリマー層は少なくとも1.480の屈折率を有し、中間膜は0.85 mrad以下の全体的なくさび角度を有するテーパー状の区域を含むテーパー状中間膜。

[2] テーパー状の区域は0.55 mrad未満の全体的なくさび角度を有し、ポリマー層は少なくとも1.500の屈折率を有する、[1]に記載の中間膜。

[3] 中間膜はモノリス型中間膜である、[1]に記載の中間膜。

[4] 中間膜は、ポリマー層、及びかかるポリマー層に隣接する他のポリマー層を含む多層中間膜であり、ポリマー層のガラス転移温度と他のポリマー層のガラス転移温度の間の差は少なくとも3 である、[1]に記載の中間膜。

[5] 他のポリマー層は第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び少なくとも1種類の可塑剤を含み、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と他のポリマー層中の第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の間の差は少なくとも2重量%である、[4]に記載の中間膜。

[6] 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む、[1]に記載の中間膜。

[7] テーパー状の区域は、線状の厚さプロファイル及び一定のくさび角度を有する少なくとも1つの一定角度の区域を含む、[1]に記載の中間膜。

[8] 1対の硬質基材及び[1]に記載の中間膜を含み、中間膜は1対の硬質基材の間に配置されており、硬質基材は4.0 mm未満の合計厚さを有する多層パネル。

[9] 1対の硬質基材；及び

基材の間に配置されており、0.85 mrad未満の全体的なくさび角度を有するテーパー状の区域を含む中間膜；
を含み；

多層パネルの等価屈折率は硬質基材のそれぞれの屈折率よりも少なくとも0.010高い多層パネル。

[10] 多層パネルの等価屈折率は少なくとも1.500である、[9]に記載のパネル。

[11] 基材のそれぞれの屈折率は中間膜の屈折率よりも少なくとも20%低い、[9]に記載のパネル。

[12] 中間膜の屈折率は少なくとも約1.600である、[9]に記載のパネル。

[13] テーパー状の区域は0.55 mrad未満の全体的なくさび角度を有する、[9]に記載のパネル。

[14] 中間膜はポリ(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少なくとも1つのポリマー層を含み、硬質基材のそれぞれの合計厚さは4.0 mm以下である、[9]に記載のパネル。

[15] 中間膜は、それぞれがポリ(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2以上のポリマー層を含む多層中間膜を含み、中間膜は少なくとも2つのガラス転移温度を有し、2つのガラス転移温度の間の差は少なくとも約3 である、[14]に記載のパネル。

[16] 1対の硬質基材；及び

基材の間に配置されており、少なくとも1種類のポリマー樹脂を含むテーパー状中間膜；
を含み；

中間膜の屈折率は硬質基材のそれぞれの屈折率よりも少なくとも5%高い多層パネル。

[17] テーパー状部は0.85 mrad以下のくさび角度を有するテーパー状の区域を含み、中間膜は少なくとも約1.480の屈折率を有する少なくとも1つのポリマー層を含む、[16]に記載のパネル。

10

20

30

40

50

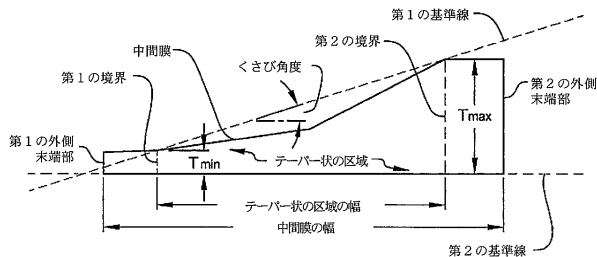
[1 8] パネルは硬質基材のそれぞれの屈折率よりも高い等価屈折率を有する、[1 6] に記載のパネル。

[1 9] 中間膜は、少なくとも第 1 のポリマー層及び第 1 のポリマー層に隣接する第 2 のポリマー層を含む多層中間膜であり、第 1 のポリマー層は第 1 のポリ（ビニルアセタール）樹脂及び少なくとも 1 種類の可塑剤を含み、第 2 のポリマー層は第 2 のポリ（ビニルアセタール）樹脂及び少なくとも 1 種類の可塑剤を含み、第 1 のポリマー層のガラス転移温度と第 2 のポリマー層のガラス転移温度の間の差は少なくとも 3 であり、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と第 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の間の差は少なくとも 2 重量%である、[1 6] に記載のパネル。

10

[2 0] 中間膜は約 0 . 2 5 ~ 約 1 . 2 mm の範囲の最小厚さ及び約 0 . 3 8 ~ 約 2 . 2 mm の範囲の最大厚さを有し、中間膜の最小厚さと中間膜の最大厚さの間の差は少なくとも約 0 . 1 3 mm であり、硬質基材のそれぞれの合計厚さは約 4 . 0 mm 未満である、[1 6] に記載のパネル。

【 図 1 】



【 図 4 】

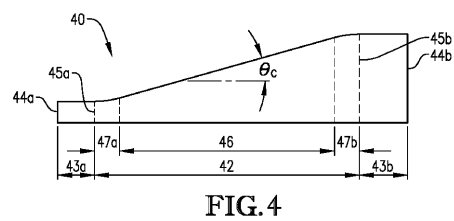


FIG. 4

【 図 2 】

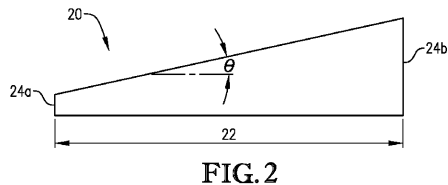


FIG. 2

【 図 5 】

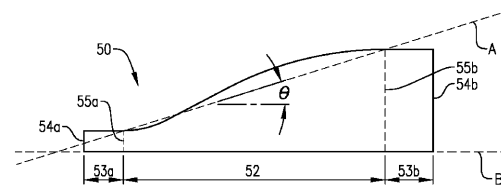


FIG. 5

【 図 3 】

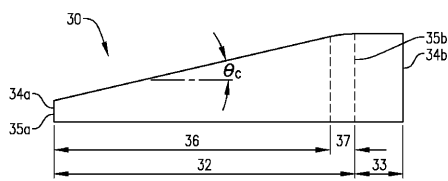


FIG. 3

【 図 6 】

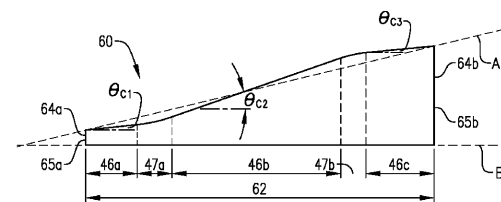


FIG. 6

【図 7】

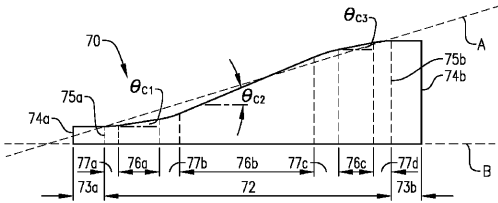


FIG. 7

【図 8 a】

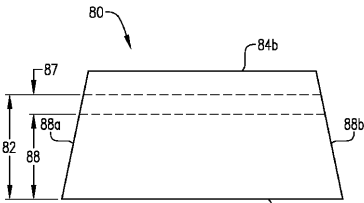


FIG. 8a

【図 8 b】

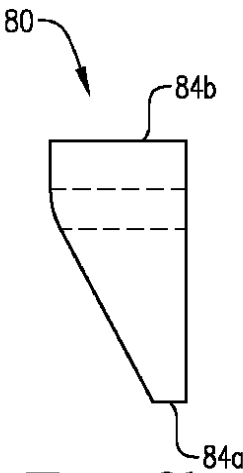


FIG. 8b

【図 9】

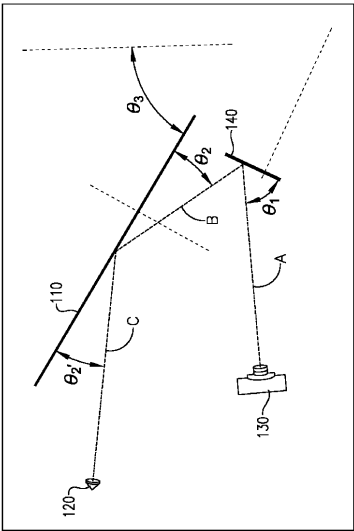


FIG. 9

【図 1 0】

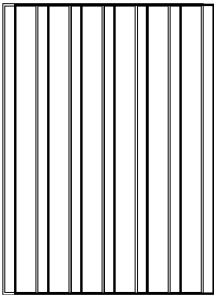
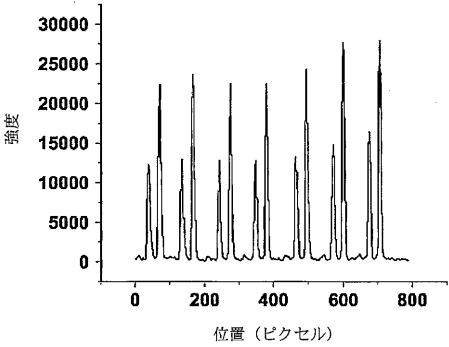
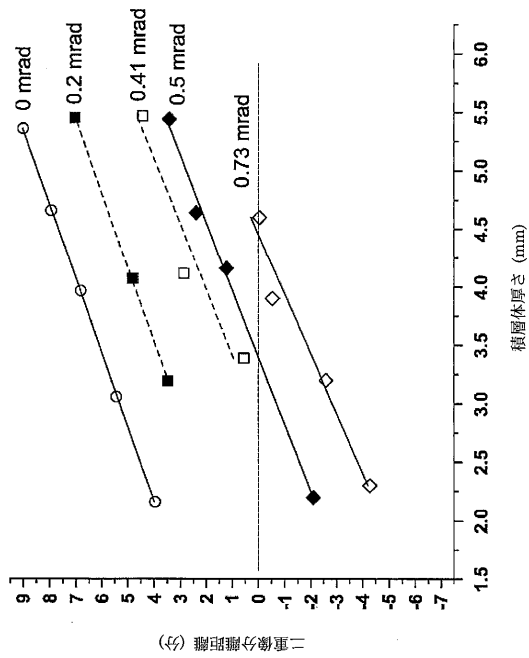


FIG. 10

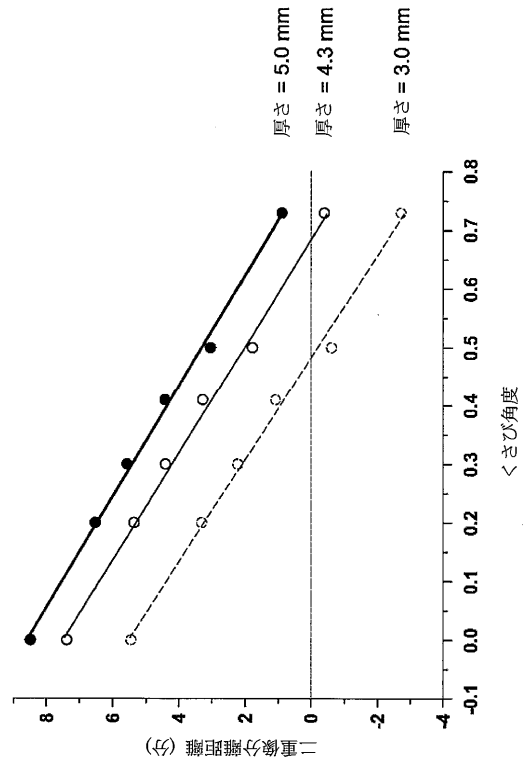
【図 1 1】



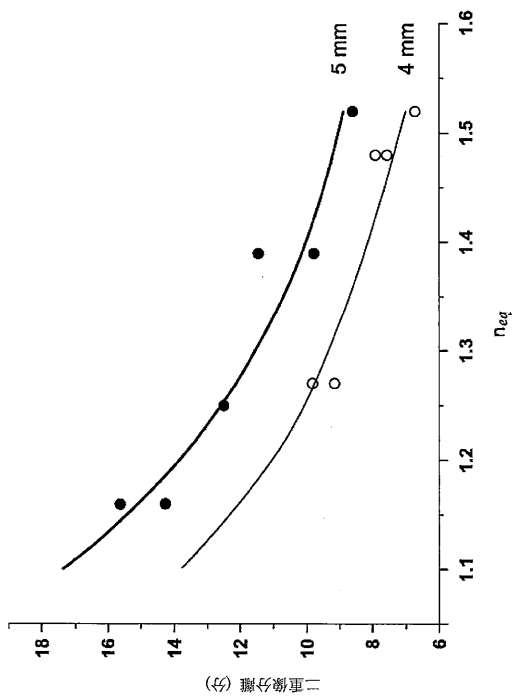
【図 1 2】



【図 1 3】



【図 1 4】



フロントページの続き

- (72)発明者 スバングレー, ローラ・リー
アメリカ合衆国マサチューセッツ州 0 1 0 0 7, ベルチャータウン, バードウェル・ストリート
3 4 2
- (72)発明者 ハールバット, ジェフリー・ビー
アメリカ合衆国マサチューセッツ州 0 1 0 8 9, ウェスト・スプリングフィールド, デューイー・
ストリート 3 1 7
- (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 0 1 0 2 8, イースト・ロングメドレー, ストーンヒル・ロード
1 6

審査官 加賀 直人

- (56)参考文献 特表 2 0 0 8 - 5 3 2 9 1 7 (J P , A)
国際公開第 2 0 1 5 / 0 3 8 4 9 7 (W O , A 1)
国際公開第 2 0 1 4 / 2 0 0 9 9 3 (W O , A 1)
特開 2 0 0 4 - 0 5 0 8 1 0 (J P , A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., D B 名)
- | | |
|---------|-----------|
| C 0 8 J | 5 / 1 8 |
| B 3 2 B | 2 7 / 2 8 |
| C 0 8 L | 2 9 / 1 4 |
| C 0 3 C | 2 7 / 1 2 |