

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5001954号

(P5001954)

(45) 発行日 平成24年8月15日(2012.8.15)

(24) 登録日 平成24年5月25日(2012.5.25)

(51) Int.Cl.	F I
<b>C O 3 C 27/12 (2006.01)</b>	C O 3 C 27/12 F
<b>B 3 2 B 17/10 (2006.01)</b>	B 3 2 B 17/10
<b>B 3 2 B 27/32 (2006.01)</b>	B 3 2 B 27/32 1 O 1

請求項の数 3 (全 23 頁)

(21) 出願番号	特願2008-548685 (P2008-548685)	(73) 特許権者	390023674
(86) (22) 出願日	平成18年12月27日(2006.12.27)		イー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・
(65) 公表番号	特表2009-522136 (P2009-522136A)		アンド・カンパニー
(43) 公表日	平成21年6月11日(2009.6.11)		E. I. DU PONT DE NEMO
(86) 国際出願番号	PCT/US2006/049312		URS AND COMPANY
(87) 国際公開番号	W02007/079091		アメリカ合衆国、デラウェア州、ウイルミ
(87) 国際公開日	平成19年7月12日(2007.7.12)		ントン、マーケット・ストリート 100
審査請求日	平成21年12月22日(2009.12.22)		7
(31) 優先権主張番号	60/755,336	(74) 代理人	100082005
(32) 優先日	平成17年12月30日(2005.12.30)		弁理士 熊倉 禎男
(33) 優先権主張国	米国 (US)	(74) 代理人	100084009
			弁理士 小川 信夫
		(74) 代理人	100084663
			弁理士 箱田 篤

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 多層ポリマー積層体及びそれから製造される高強度積層体

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

2つのガラス剛性シートと、多層ポリマー積層体の2つの外層が内層のそれぞれの面上にあるように積層された3つのアイオノマー材料層から基本的になる多層ポリマー積層体とから基本的になる、改善された音響障壁特性を有する安全ガラス積層体であって、

前記アイオノマー材料のそれぞれが独立に、オレフィンと、金属イオンで部分的に中和された、-エチレン系不飽和カルボン酸とのコポリマーを含み、

前記アイオノマー材料の内層が、3,000psi(21MPa)~10,000psi(69MPa)の弾性率(ASTM D 638-03(2003)で測定)を有し、前記アイオノマー材料層の2つの外層のそれぞれが、30,000psi(207MPa)~80,000psi(552MPa)の弾性率(ASTM D 638-03(2003)で測定)を有し、

前記アイオノマー材料の内層が20ミル(0.5mm)以上の厚さを有し、

前記アイオノマー材料層の2つの外層のそれぞれが、少なくとも1ミル(0.025mm)以上の厚さを有し、

前記多層ポリマー積層体の全体の厚さが60ミル(1.5mm)以上250ミル(6.4mm)以下であり、

前記2つの剛性シートが前記多層ポリマー積層体の反対側の面上に配置されており、

前記アイオノマー材料の内層が、アクリル酸メチル、メタクリル酸メチル、アクリル酸エチル、メタクリル酸エチル、アクリル酸プロピル、メタクリル酸プロピル、アクリル酸イソプロピル、メタクリル酸イソプロピル、アクリル酸ブチル、メタクリル酸ブチル、ア

10

20

クリル酸イソブチル、メタクリル酸イソブチル、アクリル酸 *tert*-ブチル、メタクリル酸 *tert*-ブチル、アクリル酸オクチル、メタクリル酸オクチル、アクリル酸ウンデシル、メタクリル酸ウンデシル、アクリル酸オクタデシル、メタクリル酸オクタデシル、アクリル酸ドデシル、メタクリル酸ドデシル、アクリル酸 2-エチルヘキシル、メタクリル酸 2-エチルヘキシル、アクリル酸イソボルニル、メタクリル酸イソボルニル、アクリル酸ラウリル、メタクリル酸ラウリル、アクリル酸 2-ヒドロキシエチル、メタクリル酸 2-ヒドロキシエチル、アクリル酸グリシジル、メタクリル酸グリシジル、ポリ(エチレングリコール)アクリレート、ポリ(エチレングリコール)メタクリレート、ポリ(エチレングリコール)メチルエーテルアクリレート、ポリ(エチレングリコール)メチルエーテルメタクリレート、ポリ(エチレングリコール)ベヘニルエーテルアクリレート、ポリ(エチレングリコール)ベヘニルエーテルメタクリレート、ポリ(エチレングリコール)4-ノニルフェニルエーテルアクリレート、ポリ(エチレングリコール)4-ノニルフェニルエーテルメタクリレート、ポリ(エチレングリコール)フェニルエーテルアクリレート、ポリ(エチレングリコール)フェニルエーテルメタクリレート、マレイン酸ジメチル、マレイン酸ジエチル、マレイン酸ジブチル、フマル酸ジメチル、フマル酸ジエチル、フマル酸ジブチル、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、及びこれらの混合物からなる群から選ばれる不飽和コモノマーを含む、安全ガラス積層体。

#### 【請求項 2】

2つのガラス剛性シートと、ポリマーフィルム又はシートと、多層ポリマー積層体の2つの外層が内層のそれぞれの面上にあるように積層された3つのアイオノマー材料層から基本的になる多層ポリマー積層体とから基本的になる、改善された音響障壁特性を有する安全ガラス積層体であって、

前記アイオノマー材料のそれぞれが独立に、オレフィンと、金属イオンで部分的に中和された、エチレン系不飽和カルボン酸とのコポリマーを含み、

前記アイオノマー材料の内層が、3,000psi(21MPa)~10,000psi(69MPa)の弾性率(ASTM D 638-03(2003)で測定)を有し、前記アイオノマー材料層の2つの外層のそれぞれが、30,000psi(207MPa)~80,000psi(552MPa)の弾性率(ASTM D 638-03(2003)で測定)を有し、

前記アイオノマー材料の内層が20ミル(0.5mm)以上の厚さを有し、

前記アイオノマー材料層の2つの外層のそれぞれが、少なくとも1ミル(0.025mm)以上の厚さを有し、

前記多層ポリマー積層体の全体の厚さが60ミル(1.5mm)以上250ミル(6.4mm)以下であり、

前記2つの剛性シートが前記多層ポリマー積層体の反対側の面上に配置されており、

前記ポリマーフィルム又はシートが、ガラス剛性シートのうちのひとつと、多層ポリマー積層体の間に位置しており、

前記アイオノマー材料の内層が、アクリル酸メチル、メタクリル酸メチル、アクリル酸エチル、メタクリル酸エチル、アクリル酸プロピル、メタクリル酸プロピル、アクリル酸イソプロピル、メタクリル酸イソプロピル、アクリル酸ブチル、メタクリル酸ブチル、アクリル酸イソブチル、メタクリル酸イソブチル、アクリル酸 *tert*-ブチル、メタクリル酸 *tert*-ブチル、アクリル酸オクチル、メタクリル酸オクチル、アクリル酸ウンデシル、メタクリル酸ウンデシル、アクリル酸オクタデシル、メタクリル酸オクタデシル、アクリル酸ドデシル、メタクリル酸ドデシル、アクリル酸 2-エチルヘキシル、メタクリル酸 2-エチルヘキシル、アクリル酸イソボルニル、メタクリル酸イソボルニル、アクリル酸ラウリル、メタクリル酸ラウリル、アクリル酸 2-ヒドロキシエチル、メタクリル酸 2-ヒドロキシエチル、アクリル酸グリシジル、メタクリル酸グリシジル、ポリ(エチレングリコール)アクリレート、ポリ(エチレングリコール)メタクリレート、ポリ(エチレングリコール)メチルエーテルアクリレート、ポリ(エチレングリコール)メチルエーテルメタクリレート、ポリ(エチレングリコール)ベヘニルエーテルアクリレート、ポリ(エチレングリコール)ベヘニルエーテルメタクリレート、ポリ(エチレングリコール)

4 - ノニルフェニルエーテルアクリレート、ポリ(エチレングリコール)4 - ノニルフェニルエーテルメタクリレート、ポリ(エチレングリコール)フェニルエーテルアクリレート、ポリ(エチレングリコール)フェニルエーテルメタクリレート、マレイン酸ジメチル、マレイン酸ジエチル、マレイン酸ジブチル、フマル酸ジメチル、フマル酸ジエチル、フマル酸ジブチル、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、及びこれらの混合物からなる群から選ばれる不飽和モノマーを含む、安全ガラス積層体。

【請求項3】

2つのガラス剛性シートと、2つの外層が内層のそれぞれの面上にあるように積層された3つのアイオノマー材料層からなる多層ポリマー積層体とからなる、改善された音響障壁特性を有する安全ガラス積層体であって、

前記アイオノマー材料のそれぞれが独立に、オレフィンと、金属イオンで部分的に中和された、  
- エチレン系不飽和カルボン酸とのコポリマーを含み、

前記アイオノマー材料の内層が、3,000psi(21MPa)~10,000psi(69MPa)の弾性率(ASTM D 638-03(2003)で測定)を有し、前記アイオノマー材料層の2つの外層のそれぞれが、30,000psi(207MPa)~80,000psi(552MPa)の弾性率(ASTM D 638-03(2003)で測定)を有し、

前記アイオノマー材料の内層が20ミル(0.5mm)以上の厚さを有し、

前記アイオノマー材料層の2つの外層のそれぞれが、少なくとも1ミル(0.025mm)以上の厚さを有し、

前記多層ポリマー積層体の全体の厚さが60ミル(1.5mm)以上250ミル(6.4mm)以下であり、

前記オレフィンと、前記  
- エチレン系不飽和カルボン酸とのコポリマーのそれぞれが独立に、0.1~30重量パーセントの前記  
- エチレン系不飽和カルボン酸成分を含み、

前記アイオノマー材料のそれぞれは独立に、全カルボン酸含有率を基準にして5~100パーセントが金属イオンで中和されており、

前記アイオノマー材料の内層が、アクリル酸メチル、メタクリル酸メチル、アクリル酸エチル、メタクリル酸エチル、アクリル酸プロピル、メタクリル酸プロピル、アクリル酸イソプロピル、メタクリル酸イソプロピル、アクリル酸ブチル、メタクリル酸ブチル、アクリル酸イソブチル、メタクリル酸イソブチル、アクリル酸tert-ブチル、メタクリル酸tert-ブチル、アクリル酸オクチル、メタクリル酸オクチル、アクリル酸ウンデシル、メタクリル酸ウンデシル、アクリル酸オクタデシル、メタクリル酸オクタデシル、アクリル酸ドデシル、メタクリル酸ドデシル、アクリル酸2-エチルヘキシル、メタクリル酸2-エチルヘキシル、アクリル酸イソボルニル、メタクリル酸イソボルニル、アクリル酸ラウリル、メタクリル酸ラウリル、アクリル酸2-ヒドロキシエチル、メタクリル酸2-ヒドロキシエチル、アクリル酸グリシジル、メタクリル酸グリシジル、ポリ(エチレングリコール)アクリレート、ポリ(エチレングリコール)メタクリレート、ポリ(エチレングリコール)メチルエーテルアクリレート、ポリ(エチレングリコール)メチルエーテルメタクリレート、ポリ(エチレングリコール)ベヘニルエーテルアクリレート、ポリ(エチレングリコール)ベヘニルエーテルメタクリレート、ポリ(エチレングリコール)4-ノニルフェニルエーテルアクリレート、ポリ(エチレングリコール)4-ノニルフェニルエーテルメタクリレート、ポリ(エチレングリコール)フェニルエーテルアクリレート、ポリ(エチレングリコール)フェニルエーテルメタクリレート、マレイン酸ジメチル、マレイン酸ジエチル、マレイン酸ジブチル、フマル酸ジメチル、フマル酸ジエチル、フマル酸ジブチル、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、及びこれらの混合物からなる群から選ばれる不飽和モノマーを含む、安全ガラス積層体。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本出願は、2005年12月30日に出願された米国仮特許出願第60/755,33

10

20

30

40

50

6号明細書に対する優先権を主張し、その開示全体を本明細書に援用する。

【0002】

本発明は、改善された音響障壁特性を有する多層ポリマー積層体、およびそれから製造された高強度積層体に関する。

【背景技術】

【0003】

安全ガラス用途のガラス積層製品は、高い耐衝撃性および貫入抵抗性を特徴とし、粉碎された場合に、ガラスの破片および残骸が散乱しない。典型的にはガラス積層体は、ポリマーフィルムまたはシートの間層により互いに接合された2つのガラス板またはガラスパネルからなり、この中間層は2つのガラス板の間に配置される。ガラス板の一方または両方は、ポリカーボネート材料などの光学的に透明な剛性ポリマーシートで置き換えることができる。ポリマーフィルムまたはシートの複数の中間層で互いに接合されたガラス板（またはガラスの代わりに使用される光学的に透明な剛性ポリマーシート）の複数の層を含む安全ガラスもさらに開発されている。

10

【0004】

通常、中間層は、靱性および接合性を示し、ガラスの亀裂または破壊が生じた場合にガラスに対する接着力が得られる比較的厚いポリマーフィルムまたはシートでできている。長年にわたって、積層製品を製造するための多種多様なポリマー中間層が開発されている。一般に、これらのポリマー中間層は、必要条件の中で特に、非常に高い光学的透明性（低曇り度）、高い耐衝撃性、高い貫入抵抗性、優れた紫外光抵抗性、長期にわたって良好な熱安定性、ガラスおよび他の剛性ポリマーシートに対する優れた接着性、低い紫外光透過率、低い吸湿性、高い耐湿性、長期にわたって優れた耐候性などの特性を併せ持つ必要がある。現在広く使用されている中間層材料としては、ポリビニルブチラル（PVB）、ポリウレタン（PU）、ポリ塩化ビニル（PVC）、線状低密度ポリエチレン（好ましくはメタロセン触媒によるもの）、エチレン酢酸ビニル（EVA）、ポリマー脂肪酸ポリアミド、ポリ（エチレンテレフタレート）などのポリエステル樹脂、シリコーンエラストマー、エポキシ樹脂、エラストマー性ポリカーボネートなどを主成分とする複合多成分組成物が挙げられる。

20

【0005】

より最近の傾向は、住居およびオフィス構造の建設事業におけるガラス積層製品の使用である。設計者が、より多くのガラス面を建造物中に組み込んでいるため、この何年もの間、建築用ガラスの使用が急速に増加している。建築用ガラス積層製品に対して、耐脅威性の要求が絶えず増加し続けている。これらのより新しい製品は、天災および人災の両方に抵抗するように設計されている。これらの要求の例としては、最近開発された、ハリケーンが発生しやすい地域において現在義務づけられているハリケーン抵抗性ガラス、盗難防止グレージング、ならびにより最近では建造物およびそれらの居住者を保護するように設計された耐爆発性ガラス積層製品が挙げられる。これらの製品は、ガラス積層体が破壊された後でさえも、すなわち、ハリケーンによってガラス積層体が強い力の風および飛来する破片の衝撃にさらされる場合、あるいは乗り物または構造内に犯罪的に侵入しようとするために窓に繰り返し衝撃が加えられる場合の後でさえも、貫入に抵抗する十分大きな強度を有する。

30

40

【0006】

さらに、ガラス積層製品は、現在では、建造物の構造要素として組み込むために必要な強度に達している。このような例は、多くの建造物の特徴となっているガラス製階段である。

【0007】

この傾向の一部では、ガラス積層体中間層材料としてコポリエチレンアイオノマー樹脂が使用されている。このようなアイオノマー樹脂は、ポリビニルブチラルおよびエチレン酢酸ビニル材料などの他の一般的な中間層材料に対して見出されているよりもはるかに高い強度が得られる。たとえば、米国特許第3,344,014号明細書、米国特許第4

50

、663、228号明細書、米国特許第4、668、574号明細書、米国特許第4、799、346号明細書、米国特許第5、002、820号明細書、米国特許第5、763、062号明細書、国際公開第99/58334号パンフレット、および国際公開第2004/011755号パンフレットを参照されたい。

#### 【0008】

ある種のアイオノマー材料を含む多層積層構造体が、当該技術分野において開示されている。Clockらの米国特許第3、762、988号明細書には、コア層としての金属イオンまたはアミンで中和されているポリ(エチレン-コ-メタクリル酸)材料と、負荷分散層とを含むことができるガラス積層体多層中間層が開示されている。Friedmanらの米国特許第6、432、522号明細書には、少なくとも2つのポリマーフィルム層を含む中間層フィルムと、弾性率が少なくとも25,000psiであり、アイオノマー材料であってよいコア層と、最大弾性率が15,000psiである表面フィルム層とを含む光学的に透明なグレージングが開示されている。Vogelらの米国特許出願公開第2002/0055006号明細書および米国特許出願公開第2005/0106386号明細書には、a)アイオノマーから実質的になる第1の同時押出ポリマー層と、b)アイオノマー、アイオノマー-ポリエチレンブレンド、およびアイオノマー-ポリアミドブレンドからなる群から選択される少なくとも1つの第2の同時押出ポリマー層とを含む多層フィルムまたはシートが開示されている。

10

#### 【0009】

Robertsらの米国特許出願公開第2005/0136263号明細書には、実質的に可塑剤を含有せずアイオノマーを含むことができるポリマー材料から形成された透明可撓性基層と、透明可撓性基層よりも高い耐摩耗性を有する第1の透明可撓性保護層とを含む透明多層シートであって、亀裂や破損を生じさせずに円筒形に巻き取ることができるように十分に可撓性である透明多層シートを含む可撓性窓が開示されている。Durbinnらの国際公開第01/60604号パンフレットには、アイオノマー樹脂の層と、アイオノマー層よりも高い粘度を有するポリマー材料層との間に接合された、赤外線を反射する透明可撓性プラスチックを含む積層グレージングが開示されている。

20

#### 【発明の開示】

#### 【発明が解決しようとする課題】

#### 【0010】

社会では、積層ガラス製品に対して、前述の安全および強度特性以外のさらなる機能性が要求され続けている。ある分野では、ガラス積層体に取り付けられる建造物または自動車などの構造内に入り込む騒音を減少させるための音響障壁として機能することがガラス積層体に求められている。遮音性積層ガラスは一般に当該技術分野において周知であり、一般に、低弾性率の高可塑化ポリ(ビニルアセタール)シートを含むものが開示されているが、これは低貫入抵抗性を有する積層体を得られるという欠点を有する。遮音性積層体の開示としては、たとえば、米国特許第5、190、826号明細書、米国特許第5、340、654号明細書、米国特許第5、368、917号明細書、米国特許第5、464、659号明細書、米国特許第5、478、615号明細書、米国特許第5、773、102号明細書、米国特許第6、074、732号明細書、米国特許第6、119、807号明細書、米国特許第6、132、882号明細書、米国特許第6、432、522号明細書、米国特許第6、825、255号明細書、国際公開第01/19747号パンフレット、および国際公開第2004/039581号パンフレットが挙げられる。

30

40

#### 【課題を解決するための手段】

#### 【0011】

一態様において、本発明は、2つの外層が内層のそれぞれの面上にあるように積層された3つのアイオノマー材料層を含む多層ポリマー積層体であって、アイオノマー材料の内層が、約1,000psi(7MPa)~約15,000psi(103MPa)、好ましくは約3,000psi(21MPa)~約10,000psi(69MPa)の弾性率を有し、アイオノマー材料の各層が、少なくとも約1ミル(0.025mm)以上の厚

50

さを有し、多層ポリマー積層体の全体の厚さが少なくとも約20ミル(0.5mm)以上となる多層ポリマー積層体を提供する。それぞれのアイオノマー材料は独立に、-オレフィンと、金属イオンで部分的に中和された、-エチレン系不飽和カルボン酸とのコポリマーを含む。

【0012】

本発明の多層ポリマー積層体の好ましい実施形態においては、アイオノマー材料の2つの外層のそれぞれが、約16,000psi(110MPa)~約100,000psi(690MPa)、好ましくは約30,000psi(207MPa)~約80,000psi(552MPa)、より好ましくは約50,000psi(345MPa)~約75,000psi(517MPa)の弾性率を有する。

10

【0013】

本発明の多層ポリマー積層体の別の実施形態においては、アイオノマー材料の2つの外層のそれぞれが、約1,000psi(7MPa)~約15,000psi(103MPa)、好ましくは約3,000psi(21MPa)~約10,000psi(69MPa)の弾性率を有する。

【0014】

別の一態様においては、本発明は、2つの剛性シートと、3つのアイオノマー材料層を含む多層ポリマー積層体であって、2つの外層が、内層のそれぞれの面上にあるように積層された多層ポリマー積層体とを含む高強度積層体であって、アイオノマー材料の内層が、約1,000psi(7MPa)~約15,000psi(103MPa)、好ましくは約3,000psi(21MPa)~約10,000psi(69MPa)の弾性率を有し、アイオノマー材料の各層が、少なくとも約1ミル(0.025cm)以上の厚さを有し、多層ポリマー積層体の全体の厚さが少なくとも約20ミル(0.5mm)以上であり、2つの剛性シートが、多層ポリマー積層体の反対側に配置される、高強度積層体を提供する。好ましくは、剛性シートがガラスである。

20

【0015】

本発明の高強度積層体の好ましい実施形態においては、アイオノマー材料の2つの外層のそれぞれが、約16,000psi(110MPa)~約100,000psi(690MPa)、好ましくは約30,000psi(207MPa)~約80,000psi(552MPa)、より好ましくは約50,000psi(345MPa)~約75,000psi(517MPa)の弾性率を有する。

30

【0016】

本発明の高強度積層体の別の実施形態においては、アイオノマー材料の2つの外層のそれぞれが、約1,000psi(7MPa)~約15,000psi(103MPa)、好ましくは約3,000psi(21MPa)~約10,000psi(69MPa)の弾性率を有する。

【0017】

安全ガラスに一般に必要であると考えられる高い透明性および優れた貫入抵抗性を維持し、改善された音響障壁特性が得られる高強度積層体が、本発明の多層積層体によって得られる。

40

【発明を実施するための最良の形態】

【0018】

本明細書において言及されるすべての刊行物、特許出願、特許、およびその他の参考文献は、それらの記載内容全体が本明細書に援用される。特に定義されない限り、本明細書において使用されるすべての技術用語および科学用語は、本発明が属する技術分野の当業者に一般に理解されている意味と同じ意味を有する。矛盾が生じる場合には、定義を含めて本明細書に従うものとする。

【0019】

特に他の記載がない限り、すべてのパーセント値、部数、比率などは重量を基準としている。

50

## 【 0 0 2 0 】

ある量、濃度、あるいはその他の値またはパラメータが、ある範囲、好ましい範囲、あるいは一連の上位の好ましい値および下位の好ましい値のいずれかで与えられる場合、複数の範囲が別個に開示されているかどうかとは無関係に、任意の上限値または好ましい値と、任意の下限値または好ましい値とのあらゆる組み合わせから形成されるあらゆる範囲を明確に開示しているものと理解すべきである。本明細書内にある数値範囲が記載されている場合、特に明記しない限り、その範囲が、その範囲の端点、ならびにその範囲内のあらゆる整数および分数を含むことを意図している。ある範囲が画定される場合に、本発明の範囲が、記載される特定の値に限定されることを意図するものではない。

## 【 0 0 2 1 】

ある範囲またはある範囲の端点の説明に用語「約」が使用される場合、本開示が、言及されるそのような特定の値または端点を含むものと理解すべきである。

## 【 0 0 2 2 】

本発明の複数の要素または成分を説明するために「a」または「an」が使用される。これは単に便宜上のものであり、本発明の一般的な意味を提供するために行っている。この記述は、1つまたは少なくとも1つを含むものと読むべきであり、明らかに別の意味である場合を除けば、単数形は複数形も含んでいる。

## 【 0 0 2 3 】

あるポリマーを説明する場合、本出願人が、ポリマーの製造に使用されるモノマーによって、またはポリマーの製造に使用されるモノマー量によってそのポリマーに言及することがあることを理解されたい。このような説明は、最終的なポリマーを説明するために使用される具体的な命名を含まない場合もあり、特定の方法によって得られる生成物に関する用語を含まない場合もあるが、このようなモノマーおよび量に対するあらゆる言及は、それらのモノマーまたはそのモノマー量、ならびに対応するポリマー、およびそれらの組成物から、ポリマーが製造されることを意味するものと解釈すべきである。

## 【 0 0 2 4 】

本明細書における材料、方法、および実施例は、明記されている場合を除けば、単なる説明であって、限定を意図したものではない。

## 【 0 0 2 5 】

すべての弾性率への言及は、ASTM D 638 - 03 (2003) に準拠した弾性率測定値である。

## 【 0 0 2 6 】

本発明の多層ポリマー積層体は、2つの外層が内層のそれぞれの面上にあるように積層された3つのアイオノマー材料層を含む。内層は、約1,000 psi (7 MPa) ~ 約15,000 psi (103 MPa)、好ましくは約3,000 psi (21 MPa) ~ 約10,000 psi (69 MPa)の弾性率、および約1ミル以上の厚さを有するアイオノマー材料の「軟質層」である。好ましくは、内層の厚さは20ミル (0.5 mm) 以上である。

## 【 0 0 2 7 】

最も好ましい実施形態においては、2つの外層は、それぞれが、約16,000 psi (110 MPa) ~ 約100,000 psi (690 MPa)、好ましくは約30,000 psi (207 MPa) ~ 約80,000 psi (552 MPa)、より好ましくは約50,000 psi (345 MPa) ~ 約75,000 psi (517 MPa)の弾性率、および約1ミル (0.025 mm) 以上の厚さを有するアイオノマー材料の「剛直層」である。2つの外層のアイオノマー材料は、同種の場合も異種の場合もある。多層ポリマー積層体のこの実施形態は、「剛直層 - 軟質層 - 剛直層」構造を含む。

## 【 0 0 2 8 】

別の一実施形態においては、2つの外層は、それぞれが約1,000 psi (7 MPa) ~ 約15,000 psi (103 MPa)、好ましくは約3,000 psi (21 MPa) ~ 約10,000 psi (69 MPa)の弾性率、および約1ミル (0.025 mm

10

20

30

40

50

）以上の厚さを有するアイオノマー材料の「軟質層」である。2つの外層のアイオノマー材料は、同種の場合も異種の場合もあり、内層のアイオノマー材料と同種の場合も異種の場合もある。多層ポリマー積層体のこの実施形態は、「軟質層 - 軟質層 - 軟質層」構造を含む。

#### 【0029】

本発明の多層ポリマー積層体の厚さは、より厚い積層体の貫入強度が増加することに基づいて、約20ミル(0.5mm)以上、好ましくは約30ミル(0.75mm)以上、さらにより好ましくは約60ミル(1.5mm)以上である。ハリケーン抵抗性および耐脅威性の最終用途において現在要求されている条件の多くを満たすために、貫入強度の増加が本発明内で必要となる。多くの最終用途では、多層ポリマー積層体中間層がさらに厚くなることが要求される。60ミル(1.50mm)、90ミル(2.25mm)、さらには120ミル(3.00mm)より厚い中間層が、市場において一般的になりつつある。

10

#### 【0030】

好ましい一実施形態においては、本発明の多層ポリマー積層体の全体の厚さは、約20ミル(0.5mm)～約500ミル(12.7mm)、好ましくは約30ミル(0.75mm)～約250ミル、(6.4mm)、より好ましくは約60ミル、(1.5mm)～約120ミル、(3.0mm)である。

#### 【0031】

好ましくは、本発明の多層ポリマー積層体は、75パーセント以上の光透過率を有する。

20

#### 【0032】

「剛直層 - 軟質層 - 剛直層」構造を有する本発明の多層ポリマー積層体は、1つ以上の組のアイオノマー材料層をさらに含む。各組は、約16,000psi(110MPa)～約100,000psi(690MPa)、好ましくは約30,000psi(207MPa)～約80,000psi(552MPa)、より好ましくは約50,000psi(345MPa)～約75,000psi(517MPa)の弾性率、および約1ミル(0.025mm)以上の厚さを有する1つのアイオノマー材料層を有する。他方のアイオノマー材料層は、約1,000psi(7MPa)～約15,000psi(103MPa)、好ましくは約3,000psi(21MPa)～約10,000psi(69MPa)の弾性率、および約1ミル以上の厚さを有する。好ましくは、この層の厚さは20ミル(0.5mm)以上である。結果として得られる多層ポリマー積層体の外層は常に「剛直層」であり、そのため5層積層体の場合、追加の組の層によって「剛直層 - 軟質層 - 剛直層 - 軟質層 - 剛直層」構造が得られる。

30

#### 【0033】

「軟質層 - 軟質層 - 軟質層」構造を有する本発明の多層ポリマー積層体は、1つ以上のアイオノマー材料層をさらに含む。各アイオノマー材料層は、約1,000psi(7MPa)～約15,000psi(103MPa)、好ましくは約3,000psi(21MPa)～約10,000psi(69MPa)の弾性率、および約1ミル(0.025mm)以上の厚さを有する。

40

#### 【0034】

本発明のそれぞれのアイオノマー材料は独立に、オレフィンと、金属イオンで部分的に中和された、-エチレン系不飽和カルボン酸とのコポリマーを含む。オレフィンと、-エチレン系不飽和カルボン酸とのコポリマーのそれぞれは、独立に、約0.1～約30重量パーセントは、-エチレン系不飽和カルボン酸成分を含む。好ましくは、オレフィンと、-エチレン系不飽和カルボン酸とのコポリマーのそれぞれは、独立に、約10～約25重量パーセントの、-エチレン系不飽和カルボン酸成分を含む。より好ましくは、オレフィンと、-エチレン系不飽和カルボン酸とのコポリマーのそれぞれは、独立に、約15～約25重量パーセントの、-エチレン系不飽和カルボン酸成分を含む。オレフィンは、2～10個の炭素原子を含む。好ましくは、オレ

50



フィン、エチレン、プロピレン、1 - ブテン、1 - ペンテン、1 - ヘキセン、1 - ヘブテン、3 - メチル - 1 - ブテン、4 - メチル - 1 - ペンテンなど、およびそれらの混合物からなる群から選択することができる。より好ましくは、オレフィン、エチレンである。好ましくは、 $\alpha$  - エチレン系不飽和カルボン酸成分は、アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、マレイン酸、無水マレイン酸、フマル酸、モノメチルマレイン酸、およびそれらの混合物からなる群から選択することができる。より好ましくは、 $\alpha$  - エチレン系不飽和カルボン酸成分は、アクリル酸、メタクリル酸、およびそれらの混合物からなる群から選択することができる。

#### 【0035】

本発明のアイオノマー材料は、場合により他の不飽和モノマーを含有することができる。他の不飽和モノマーは、アクリル酸メチル、メタクリル酸メチル、アクリル酸エチル、メタクリル酸エチル、アクリル酸プロピル、メタクリル酸プロピル、アクリル酸イソプロピル、メタクリル酸イソプロピル、アクリル酸ブチル、メタクリル酸ブチル、アクリル酸イソブチル、メタクリル酸イソブチル、アクリル酸tert - ブチル、メタクリル酸tert - ブチル、アクリル酸オクチル、メタクリル酸オクチル、アクリル酸ウンデシル、メタクリル酸ウンデシル、アクリル酸オクタデシル、メタクリル酸オクタデシル、アクリル酸ドデシル、メタクリル酸ドデシル、アクリル酸2 - エチルヘキシル、メタクリル酸2 - エチルヘキシル、アクリル酸イソボルニル、メタクリル酸イソボルニル、アクリル酸ラウリル、メタクリル酸ラウリル、アクリル酸2 - ヒドロキシエチル、メタクリル酸2 - ヒドロキシエチル、アクリル酸グリシジル、メタクリル酸グリシジル、ポリ(エチレングリコール)アクリレート、ポリ(エチレングリコール)メタクリレート、ポリ(エチレングリコール)メチルエーテルアクリレート、ポリ(エチレングリコール)メチルエーテルメタクリレート、ポリ(エチレングリコール)ベヘニルエーテルアクリレート、ポリ(エチレングリコール)ベヘニルエーテルメタクリレート、ポリ(エチレングリコール)4 - ノニルフェニルエーテルアクリレート、ポリ(エチレングリコール)4 - ノニルフェニルエーテルメタクリレート、ポリ(エチレングリコール)フェニルエーテルアクリレート、ポリ(エチレングリコール)フェニルエーテルメタクリレート、マレイン酸ジメチル、マレイン酸ジエチル、マレイン酸ジブチル、フマル酸ジメチル、フマル酸ジエチル、フマル酸ジブチル、フマル酸ジメンチル、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル、およびそれらの混合物からなる群から選択することができる。好ましくは、他の不飽和モノマーは、アクリル酸メチル、メタクリル酸メチル、アクリル酸エチル、メタクリル酸エチル、アクリル酸ブチル、メタクリル酸ブチル、アクリル酸イソブチル、メタクリル酸イソブチル、メタクリル酸グリシジル、酢酸ビニル、およびそれらの混合物からなる群から選択される。他の不飽和モノマーの量は、希望する弾性率を有するアイオノマー材料が得られるように調整することができる。好ましくは、本発明のエチレンコポリマーは、組成物の全重量を基準にして、0 ~ 約50重量パーセントの間の他の不飽和モノマーを含む。より好ましくは、本発明のエチレンコポリマーは、組成物の全重量を基準にして、0 ~ 約25重量パーセントの間の他の不飽和モノマーを含む。最も好ましくは、本発明のエチレンコポリマーは、組成物の全重量を基準にして、0重量パーセント ~ 約10重量パーセントの間の他の不飽和モノマーを含む。本発明のエチレンコポリマーは、たとえば、米国特許第3,264,272号明細書、米国特許第3,355,319号明細書、米国特許第3,404,134号明細書、米国特許第3,520,861号明細書、米国特許第4,248,990号明細書、米国特許第5,028,674号明細書、米国特許第5,057,593号明細書、米国特許第5,827,559号明細書、米国特許第6,500,888号明細書、および米国特許第6,518,365号明細書に開示されるように重合させることができる。

#### 【0036】

本発明のアイオノマー材料は、独立に、全カルボン酸含有率を基準にして約5 ~ 約100パーセントが金属イオンで中和される。金属イオンは一価、二価、三価、多価、またはそれらの混合物であってよい。好ましい一価金属イオンは、ナトリウム、カリウム、リチ

10

20

30

40

50

ウム、銀、水銀、銅、およびそれらの混合物からなる群から選択される。好ましい二価金属イオンは、ベリリウム、マグネシウム、カルシウム、ストロンチウム、バリウム、銅、カドミウム、水銀、スズ、鉛、鉄、コバルト、ニッケル、亜鉛、およびそれらの混合物からなる群から選択される。好ましい三価金属イオンは、アルミニウム、スカンジウム、鉄、イットリウム、およびそれらの混合物からなる群から選択される。好ましい多価金属イオンは、チタン、ジルコニウム、ハフニウム、バナジウム、タンタル、タングステン、クロム、セリウム、鉄、およびそれらの混合物からなる群から選択される。好ましくは、金属イオンが多価である場合、米国特許第3,404,134号明細書に開示されているようにステアレート基、オレエート基、サリチレート基、およびフェノレート基などの錯化剤が含まれる。より好ましくは、金属イオンは、ナトリウム、リチウム、マグネシウム、亜鉛、アルミニウム、およびそれらの混合物からなる群から選択される。最も好ましくは、金属イオンは、ナトリウム、亜鉛、およびそれらの混合物からなる群から選択される。高い光学的透明性が得られるので、ナトリウムイオンが好ましい。高耐湿性が得られるので亜鉛イオンが最も好ましい。好ましくは、アイオノマー材料は、独立に、全カルボン酸含有率を基準にして約10～約90パーセントが金属イオンで中和される。より好ましくは、アイオノマー材料は、独立に、全カルボン酸含有率を基準にして約15～50パーセントが金属イオンで中和される。本発明のアイオノマー材料は、たとえば、米国特許第3,404,134号明細書、米国特許第4,666,988号明細書、米国特許第4,774,290号明細書、および米国特許第4,847,164号明細書に開示されるように中和することができる。

10

20

#### 【0037】

本発明の組成物は、当該技術分野において周知の添加剤を使用することができる。添加剤としては、可塑剤、加工助剤、流動向上剤、潤滑剤、顔料、染料、難燃剤、衝撃改質剤、結晶化度を増加させるための核剤、シリカなどのブロッキング防止剤、熱安定剤、UV吸収剤、UV安定剤、分散剤、界面活性剤、キレート剤、カップリング剤、接着剤、およびプライマーが挙げられる。典型的な着色剤としては、黄変を軽減するための青味剤、積層体を着色するための着色剤、ならびに無機または有機の赤外線吸収剤などの太陽光を制御するための着色剤が挙げられる。

#### 【0038】

本発明の組成物は、高透明性および低曇り度を得るために、層組成物の全重量を基準して5重量パーセント以下、好ましくは1重量パーセント以下の顔料を含むことができる。低曇り度を得るためには顔料は透明顔料であるべきである。一般に、透明顔料はナノ粒子である。顔料ナノ粒子は、好ましくは約200nm未満、より好ましくは約100nm未満、さらにより好ましくは約50nm未満、最も好ましくは約1nm～約20nmの範囲内の公称粒度を有する。本発明において使用可能な顔料濃縮組成物の好ましい形成方法の1つが、たとえば国際公開第01/00404号パンフレットに開示されている。

30

#### 【0039】

本発明の多層ポリマー積層体および高強度積層体の曇り度は5パーセント以下、好ましくは2.5パーセント以下となるべきである。

#### 【0040】

本発明の積層体中でより強い接着力が望まれる場合には、層中にシランカップリング剤を混入させることができる。典型的には、シランカップリング剤は、組成物の全重量を基準にして約0.01～約5重量パーセントの量で加えられる。

40

#### 【0041】

本発明の組成物は、有効量の熱安定剤を含むことができる。当該技術分野において周知のあらゆる熱安定剤で、本発明における有用性が見出されるであろう。本発明の組成物は、組成物の全重量を基準にして、好ましくは0～約10.0重量パーセント、より好ましくは0～約5.0重量パーセントの熱安定剤、最も好ましくは0～約1.0重量パーセントの熱安定剤を含む。

#### 【0042】

50

本発明の組成物は、有効量のUV吸収剤を含むことができる。当該技術分野において周知のあらゆるUV吸収剤で、本発明における有用性が見出されるであろう。本発明の組成物は、組成物の全重量を基準にして、好ましくは0～約10.0重量パーセント、より好ましくは0～約5.0重量パーセント、最も好ましくは0～約1.0重量パーセントのUV吸収剤を含む。

#### 【0043】

本発明の組成物は、有効量のヒンダードアミン光安定剤(HALS)を含むことができる。当該技術分野において周知のあらゆるヒンダードアミン光安定剤で、本発明における有用性が見出されるであろう。一般に、HALSは、一般にアミン官能基に隣接する炭素原子状の脂肪族置換基に由来する立体障害をさらに有する、第2級アミン、第3級アミン、アセチル化アミン、N-ヒドロカルビルオキシ置換アミン、ヒドロキシ置換N-ヒドロカルビルオキシ置換アミン、またはその他の置換環状アミンである。本発明の組成物は、組成物の全重量を基準にして、好ましくは0～約10.0重量パーセント、より好ましくは0～約5.0重量パーセント、最も好ましくは0～約1.0重量パーセントのヒンダードアミン光安定剤を含む。

#### 【0044】

本発明の組成物は、熱硬化性層の形成の限界まで樹脂のメルトフローを効率的に低下させる添加剤をさらに含むことができる。このような添加剤を使用することで、本発明の多層ポリマー積層体および高強度積層体の最高最終使用温度が上昇する。典型的には、最終使用温度が20～70上昇する。さらに、このような材料を使用して製造された積層体は耐火性となる。多層ポリマー積層体の組成物のメルトフローを低下させることによって、これらの組成物が熔融し、積層体から流出して、炎のさらなる燃料として機能する傾向が小さくなる。メルトフローを低下させる添加剤の例は有機過酸化物である。好ましくは、有機過酸化物は、約100以上の温度で分解してラジカルを発生する。より好ましくは、混合作業における安定性を改善するために、有機過酸化物は約70以上において10時間の半減期が得られる分解温度を有する。典型的には、有機過酸化物は、エチレンコポリマー組成物の全重量を基準にして約0.01～約10重量パーセントの量で加えられる。必要に応じて、ジブチルスズジラウレートなどの開始剤を使用することができる。典型的には、開始剤は、エチレンコポリマー組成物の全重量を基準にして約0.01重量パーセント～約0.05重量パーセントの量で加えられる。必要に応じて、反応および安定性の制御を向上させるために、ヒドロキノン、ヒドロキノンモノメチルエーテル、p-ベンゾキノン、およびメチルヒドロキノンなどの阻害剤を加えることができる。典型的には、阻害剤は、組成物の全重量を基準にして約5重量パーセント未満の量で加えられる。

#### 【0045】

本発明の多層ポリマー積層体は、積層、同時押出、カレンダー加工、射出成形、インフレーションフィルム、浸漬コーティング、溶液コーティング、溶液流延、ブレード、パドル、エアナイフ、印刷、Dahlgren、グラビア印刷、粉末コーティング、吹き付け、または他の技術分野の方法によって形成することができる。これらの方法のそれぞれのパラメータは、ポリマー材料の粘度特性、および積層体の層の所望の厚さに基づいて、当業者により容易に決定することができる。好ましくは、多層ポリマー積層体は、同時押出法またはラミネート法によって製造される。

#### 【0046】

本発明の多層ポリマー積層体を製造するためのラミネート法は、一般に、予備プレス組立体を形成するステップ、すなわち、あらかじめ形成された層を希望する順序で積み重ねた後に積層するステップを含む。たとえば、接着剤および/または結合層ラミネート、溶剤積層、熱ラミネート、およびそれらの組み合わせなどのあらゆるラミネート法または複数の方法の組み合わせを使用することができる。好ましくは、あらかじめ形成された層は、ラミネートプロセス中の脱気を促進するための粗面を含む。

#### 【0047】

より好ましくは、多層ポリマー積層体は、同時押出法により形成される。この方法は、

10

20

30

40

50

予備プレス組立体の形成が回避され、積層プロセス中に要求される真空が低くなるため、より効率的な方法となる。連続した長さで出現するシートなどの「エンドレス」製品を形成する場合には、同時押出が特に好ましい。同時押出では、一般に各層組成物が個別の押出機から供給される。多層ポリマー積層体中に含まれる2つ以上の層組成物が同一である場合は、希望通りにそれらを同じ押出機から供給することも、個別の押出機から供給することもできる。各層組成物について、熔融ポリマーとして、あるいはプラスチックのペレットまたは顆粒としてのいずれかで供給されるポリマー材料は、流動化および均一化が行われる。必要に応じて前述のような添加剤を加えることができる。好ましくは、本発明のポリマー組成物の熔融加工温度は約50～約300であり、より好ましくは約100～約250である。本発明のポリマー組成物は、優れた熱安定性を有し、有効熔融粘度を低下させるのに十分高い温度で加工することができる。未使用のポリマー組成物とともに、再利用のポリマー組成物を使用することができる。熔融材料は同時押出アダプターに送られ、そこで熔融材料が組み合わされて多層同時押出構造が形成される。得られた層状ポリマー材料は、所定の間隙で開かれた押出ダイに通される。ダイ開口部は、ある広い範囲内にあってよい。押出力は、ピストンまたはラム（ラム押出）によってか、あるいは回転するスクリー（スクリー押出）によって作用させることができ、これは材料の加熱および可塑化が行われるシリンダー内で動作し、次に、材料がシリンダーからダイを通じて連続流として押し出される。当該技術分野において周知のように、一軸スクリー押出機、二軸スクリー押出機、および多軸スクリー押出機を使用することができる。シートおよびストリップ（スロットダイ）、ならびに中空および中実の断面（円形ダイ）などの種々の製品を製造するために、さまざまな種類のダイが使用される。一般に、多層シートの製造のために、スロットダイ（T字型または「コートハンガー」ダイ）が使用される。このダイは、10フィート程度の幅を有することができ、典型的には、内圧によるリップのゆがみを最小限にするために最終ランド上に厚肉部分を有することができる。

#### 【0048】

本発明の多層ポリマー積層体シートは、次に、典型的には約15～約55の範囲内に維持された一次冷却ロールまたはキャストイングロールによって意図するゲージ厚さまでドロウダウンされる。未完成の多層流延シートは、シートを巻き取るロールの速度に依存して、大きなドロウダウンおよび薄層化を行うことができる。典型的なドロウダウン比は約1:1～約5:1～約40:1の範囲である。次に、本発明の多層ポリマー積層体シートは、平坦シートとしてローラー上に巻き取られ、冷却されて、固化する。これは、水浴中、または水冷用のコアを有する2つ以上のクロムめっき冷却ロール上にシートを通すことによって行うことができる。次に、流延多層ポリマー積層体シートは、ニップロールを通して、端部を切り取るためのスリッターに送られ、シートが後に変形するのを防止しながら、巻き取りまたは切断、ならびに積み重ねが行われる。

#### 【0049】

本発明の多層ポリマー積層体は、平滑な表面を有することができる。高強度積層体などの積層体中の中間層として本発明の多層ポリマー積層体を使用される場合、好ましくは、積層プロセス中に積層体の複数の表面の間から大部分の空気を効率的に除去できるようにするために、本発明の多層ポリマー積層体は少なくとも1つの粗面を有する。これは、たとえば、前述のような押出後にシートを機械的にエンボス加工することによって、または押出中のメルトフラクチャーによって実現することができる。

#### 【0050】

本発明は、本発明の多層ポリマー積層体と2つの剛性シートとを含む高強度積層体も提供する。本発明の多層ポリマー積層体から製造された高強度積層体は、当該技術分野の単層シート、または異なる構造の多層ポリマー積層体よりも有益となる。

#### 【0051】

剛性シートは、ガラス、あるいは、たとえば、ポリカーボネート、アクリル、ポリアクリレート、エチレンノルボルネンポリマーなどの環状ポリオレフィン、メタロセン触媒によるポリスチレンなど、およびそれらの組み合わせなどの剛性透明プラスチックシートで

あってよい。積層体に透明性が不要である場合には、剛性ポリマーシートおよびガラスの代わりに、金属板またはセラミック板を使用することができる。

【0052】

好ましくは、剛性シートはガラスである。用語「ガラス」は、窓ガラス、厚板ガラス、ケイ酸塩ガラス、板ガラス、およびフロートガラスだけを含むのではなく、色ガラス、ソーラーヒーティングを制御する成分などを含む特殊ガラス、ソーラーコントロールの目的で銀またはインジウムスズ酸化物などのスパッタ金属がコーティングされたガラス、Eガラス、Torglass、およびSolalex（登録商標）ガラスも含むことを意味している。このような特殊ガラスは、たとえば、米国特許第4,615,989号明細書、米国特許第5,173,212号明細書、米国特許第5,264,286号明細書、米国特許第6,150,028号明細書、米国特許第6,340,646号明細書、米国特許第6,461,736号明細書、および米国特許第6,468,934号明細書に開示されている。個別の積層体用に選択すべきガラスの種類は、意図する用途によって決定される。

10

【0053】

本発明の高強度積層体は、高強度積層体にさらなる特徴を付与するために、ポリマーフィルムまたはポリマーシートの1つ以上の層をさらに含むことができる。フィルムとシートとの違いは厚さであるが、フィルムがシートとなる厚さを定義する工業基準は存在しない。本明細書において、「フィルム」は約10ミル(0.25mm)以下の厚さを意味し、「シート」は約10ミル(0.25mm)を超える厚さを意味する。周知のあらゆるポリマーをフィルムまたはシートの材料として使用することができる。好ましくは、ポリマーのフィルムまたはシートは透明である。

20

【0054】

ポリマーフィルム層としての使用に好ましいフィルムは、延伸済みおよび未延伸のポリエステルフィルム、ポリカーボネートフィルム、ポリウレタンフィルム、およびポリ塩化ビニルフィルムである。最も好ましくは、追加のフィルム層が、二軸延伸ポリ(エチレンテレフタレート)である。

【0055】

ポリマーフィルムとして二重層および多層フィルム構造を使用することもできる。多層フィルムの利点の1つは、重要な使用要求を解決するために個別の性質をフィルム内で調整しながら、より高価な成分をより必要性が高くなる外層に移行できることである。追加層は、障壁層、接着層、ブロッキング防止層、または他の目的で機能することができる。

30

【0056】

好ましくは、追加ポリマーシートは、ポリ(ビニルブチラール)組成物、遮音性ポリビニルアセタール組成物、遮音性ポリビニルブチラール組成物、エチレン酢酸ビニル組成物、酸官能性が組み込まれたエチレンコポリマー組成物およびそれより誘導されるアイオノマー、熱可塑性ポリウレタン組成物、ポリ塩化ビニルコポリマー組成物、ISDポリアクリレート材料などの遮音性組成物、ならびにそれらの組み合わせで構成される。

【0057】

本発明の高強度積層体の製造方法は、当該技術分野において周知のあらゆる方法によって製造することができる。特に、本発明の積層体は、後述のオートクレーブ法および非オートクレーブ法によって製造することができる。

40

【0058】

典型的なオートクレーブ法の1つでは、ガラス板、本発明の多層ポリマー積層体を含む中間層、および第2のガラス板を、熱および圧力下、ならびに空気を除去するために真空(たとえば、約27~28インチ(689~711mm)Hgの範囲内)下で互いに積層する。好ましくは、中間層をガラス板のスズ側に接触させる。好ましくは、ガラス板は洗浄および乾燥を行っておく。典型的なガラスの種類1つは、厚さ90ミルのアニールした板ガラスである。典型的な手順の1つでは、ガラス板の間に中間層が配置されて、ガラス/中間層/ガラス予備プレス組立体が形成される。この予備プレス組立体を、減圧を維

50

持することができるバッグ（「真空バッグ」）中に入れる。真空ライン、またはバッグを真空にする他の手段を使用してバッグから空気を抜き取る。減圧を維持しながら、バッグを封止する。封止したバッグを、温度が約 130 ～ 約 180 で、圧力が約 200 p s i（15 パール）のオートクレーブ中に約 10 ～ 約 50 分間入れる。好ましくは、バッグは、温度約 120 ～ 約 160 で 20 分間～約 45 分間オートクレーブ処理される。より好ましくは、バッグは温度約 135 ～ 約 155 で 20 分間～約 40 分間オートクレーブ処理される。真空バッグの代わりに真空リングを使用することもできる。真空バッグの種類の一つは米国特許第 3,311,517 号明細書に開示されている。

#### 【0059】

あるいは、ガラス／中間層／ガラス予備プレス組立体中に取り込まれた空気は、ニップロール法によって除去することもできる。たとえば、ガラス／中間層／ガラス予備プレス組立体は、オープン中で約 80 ～ 約 120 の間、好ましくは約 90 ～ 約 100 の間に、約 30 分間加熱することができる。その後、加熱したガラス／中間層／ガラス予備プレス組立体を 1 組のニップロールに通すことで、ガラスと中間層との間の空隙中の空気を絞り出し、組立体の端部を封止することができる。

#### 【0060】

次に、予備プレス組立体を空気オートクレーブ中に入れ、温度を約 120 ～ 約 160 の間、好ましくは約 135 ～ 約 160 の間に上昇させ、圧力を約 100 p s i g ～ 約 300 p s i g の間、好ましくは約 200 p s i g（14.3 bar）に上昇させることができる。これらの条件を約 15 分間～約 1 時間、好ましくは約 20 分間～約 50 分間維持し、その後、オートクレーブに余分な空気が入らないようにしながら空気を冷却する。約 20 分間冷却した後、過剰の空気圧を排出し、積層体をオートクレーブから取り出す。当該技術分野において周知の実質的にあらゆる積層方法を、本発明の中間層に使用することができる。

#### 【0061】

本発明の積層体は、非オートクレーブ法で製造することもできる。このような非オートクレーブ法は、たとえば、米国特許第 3,234,062 号明細書、米国特許第 3,852,136 号明細書、米国特許第 4,341,576 号明細書、米国特許第 4,385,951 号明細書、米国特許第 4,398,979 号明細書、米国特許第 5,536,347 号明細書、米国特許第 5,853,516 号明細書、米国特許第 6,342,116 号明細書、米国特許第 5,415,909 号明細書、米国特許出願公開第 2004/0182493 号明細書、欧州特許第 1,235,683 B1 号明細書、国際公開第 91/01880 号パンフレット、および国際公開第 03/057478 A1 号パンフレットに開示されている。一般に、前記非オートクレーブ法は、予備プレス組立体の加熱と、真空、圧力、またはその両方の使用とを含む。たとえば、予備プレスを加熱オープンおよびニップロールに連続的に通すことができる。

#### 【0062】

本発明の高強度積層体中に、接着剤、プライマー、ならびにポリマーシートおよびフィルムの「追加層」を組み込むことができる。

#### 【0063】

建築における使用、ならびに自動車、トラック、および列車などの運搬車両における使用の場合、本発明の代表的な高強度積層体の一つは、2 つのガラス層を有し、本発明の多層ポリマー積層体中間層がそれらのガラス層に直接接着する。高強度積層体の全体の厚さが約 3 mm ～ 約 30 mm である。中間層の典型的な厚さは約 0.38 mm ～ 約 4.6 mm であり、各ガラス層は通常少なくとも 1 mm 以上の厚さである。本発明の中間層は、ガラスに直接接着するので、ガラスと中間層との間に中間接着層やコーティングは不要である。

#### 【実施例】

#### 【0064】

実施例および比較実験

10

20

30

40

50

## 標準積層手順

積層体中の層が希望する順序で積み重ねられた予備プレス組立体を、真空バッグ中に入れ、90 ~ 100 で30分間加熱することで、予備プレス組立体の層の間に含まれる空気を除去する。その予備プレス組立体を、空気オートクレーブ中200 psig (14 . 3 バール) の圧力で135 で30分間加熱する。次に、ガスを追加することなく空気を冷却することで、オートクレーブ内の圧力を低下させる。20分間冷却すると、空気の温度は約50 未満となり、その後、過剰の圧力を排出し、積層体をオートクレーブから取り出す。

【0065】

## 分析方法

10

## 弾性率

すべての弾性率は、ASTM D 638 - 03 (2003) に準拠して測定した。

【0066】

## 曇り度

曇り度は、積層体を透過する非散乱光の経路によって画定される軸から2 . 5 度を超える角度で散乱する光束のパーセント値である。曇り度は、Columbia, MD の BYK - Gardner USA より入手可能な Hazegard ヘイズメーターを使用し、ASTM 規格 D 1003 - 61 の方法 A に一致する ASTM 規格 NF - 54 - 111 に準拠して測定した。曇り度は、積層体の左側、積層体の中央、および積層体の右側で測定し、これらの測定値を平均して、各シート厚さにおける平均曇り度を求めた。

20

【0067】

## 透過率

パーセント透過率は、UV - Vis 分光計による 350 nm ~ 800 nm の間の算術平均透過率を表している。

【0068】

## 剥離試験

90 度剥離強度接着試験法によって剥離試験を行った。Model SP - 102B - 3M90 SLIP / PEE L Tester (Instrumentors, Inc., Strongsville, Ohio 44149) を使用して90 度の角度で積層体を剥離した。積層体は5 インチ / 分の速度で剥離した。

30

【0069】

## 音響損失係数測定

ガラスビーム試料の入力インピーダンスを測定することによって音響損失係数を求めた。ガラス / 多層ポリマー積層体 / ガラス積層体、(約 25 mm x 300 mm) の中央を衝撃ボタン (直径 15 mm) 上に置き、シアノアクリル接着剤で固定した。衝撃ボタンはインピーダンスヘッド上に支持されており、これは、衝撃ボタンによって試験体に測定された力を加えるために使用した。0 ~ 7000 Hz の間のホワイトノイズ型の力を使用して、試験体に力を加えた。次に、次式を使用して損失係数を計算した：

$$\text{損失係数} = f_i / f_{\text{resi}}$$

式中、 $f_i$  は、最大インピーダンスよりも 3 dB 小さいインピーダンスを有する共鳴曲線上の周波数の間の周波数差であり、および  $f_{\text{resi}}$  は共鳴周波数である。試験体は、測定前および測定中は所望の設定温度の環境室中に維持した。試料は、10、20、および 30 の温度で試験を行った。インピーダンスはダッシュポットに接続し、ダッシュポットは電力増幅器に接続し、電力増幅器は雑音発生器に接続した。インピーダンスは、FFT アナライザー / コンピューターセットアップによって測定した。このような方法は、たとえば ISO 140 試験プロトコルにまとめられている。

40

【0070】

## 比較実験 CE 1

層 A、B、および C のすべてが、19 重量パーセントのメタクリル酸を含み、37 パーセントの量までナトリウムイオンで中和されたエチレン - コ - メタクリル酸コポリマーで

50

ある、「剛直層 - 剛直層 - 剛直層」構造（層 A / B / C）を有する多層ポリマー積層体を作製した。

【 0 0 7 1 】

A 層のコポリマーは、以下の温度プロファイルを有する直径 1 . 0 インチ（ $L / D = 24$ ）の Killion 押出機（押出機 A）に供給した。

【 0 0 7 2 】

押出機 ゾーン	温度 ( )
供給	周囲温度
ゾーン1	180
ゾーン2	205
ゾーン3	210

10

【 0 0 7 3 】

B 層のコポリマーは、以下の温度プロファイルを有する直径 1 . 5 インチ（ $L / D = 24$ ）の Killion 押出機（押出機 B）に供給した。

【 0 0 7 4 】

押出機 ゾーン	温度 ( )
供給	周囲温度
ゾーン1	170
ゾーン2	180
ゾーン3	206
ブロック	210
ダイ	210

20

【 0 0 7 5 】

C 層のコポリマーは、以下の温度プロファイルを有する直径 1 . 2 5 インチ（ $L / D = 24$ ）の Killion 押出機（押出機 C）に供給した。

【 0 0 7 6 】

押出機 ゾーン	温度 ( )
供給	周囲温度
ゾーン1	170
ゾーン2	180
ゾーン3	205

30

【 0 0 7 7 】

押出機 A の処理量は、スクリー速度を 1 5 . 2 r p m に調整することによって制御した。押出機 B の処理量は、スクリー速度を 7 0 . 6 r p m に調整することによって制御した。押出機 C の処理量は、スクリー速度を 1 0 . 8 r p m に調整することによって制御した。押出機は、公称間隙 0 . 0 3 8 インチの 1 4 インチの「コートハンガー」同時押出ダイに供給した。キャストされた多層ポリマー積層体を、T e f l o n（登録商標）剥離フィルムで覆われた直径 6 インチのゴムニップロール 1 つと、多層ポリマー積層体を約 2 0 の温度に維持する直径 1 2 インチの艶出シクロム冷却ロール 2 つとからなる 3 本ロールスタック中に供給した。次に、公称厚さ 2 . 5 ミル（0 . 0 6 4 m m）の A 層、公称厚さ 2 5 ミル（0 . 6 4 m m）の B 層、および公称厚さ 2 . 5 ミル（0 . 0 6 4 m m）の C 層からなる公称厚さ 3 0 ミル（0 . 7 6 m m）の A / B / C 多層ポリマー積層体を、4 . 6 フィート / 分の速度で紙管上に巻き取った。

40

【 0 0 7 8 】

この多層ポリマー積層体は平均曇り度が 0 . 7 8 であることが分かった。

【 0 0 7 9 】

比較実験 C E 2

50



1つのガラス層と、比較実験C E 1で作製した多層ポリマー積層体とからなる積層体を以下の方法で作製した。比較実験C E 1で作製した多層ポリマー積層体を、相対湿度(R H) 8パーセント未満および温度72 ° Fで終夜コンディショニングした。順番に、アニールした透明フロートガラス板層、ガラス層のスズ側を多層ポリマー積層体と接触するようにした比較実験C E 1で作製した多層ポリマー積層体、薄いT e f l o n (登録商標) フィルム層、およびアニールした透明フロートガラス層(各層の寸法は7インチ×3.5インチ(178mm×89mm); ガラス層の厚さ2.5mm; 多層ポリマー積層体の厚さ30ミル(0.75mm))からなるガラス/多層ポリマー積層体/T e f l o n (登録商標) フィルム/ガラス予備プレス組立体を、標準積層手順により積層した。T e f l o n (登録商標) フィルムおよびガラスカバーシートを除去して、所望の積層体を得た。

10

【0080】

この積層体の剥離接着力は3.0ポンド・インチであった。

【0081】

比較実験C E 3

比較実験C E 2に記載の方法を使用して、1つのガラス層と、比較実験C E 1で作製した多層ポリマー積層体とからなる積層体を作製したが、唯一の相違点は、比較実験C E 1で作製した多層ポリマー積層体を、相対湿度(R H) 23パーセントおよび温度72 ° Fで終夜コンディショニングした後に予備プレス組立体中に使用したことであった。

【0082】

この積層体の剥離接着力は3.9ポンド・インチであった。

20

【0083】

比較実験C E 4

比較実験C E 2に記載の方法を使用して、1つのガラス層と、比較実験C E 1で作製した多層ポリマー積層体とからなる積層体を作製したが、唯一の相違点は、比較実験C E 1で作製した多層ポリマー積層体を、相対湿度(R H) 50パーセントおよび温度72 ° Fで終夜コンディショニングした後に予備プレス組立体中に使用したことであった。

【0084】

この積層体の剥離接着力は0.8ポンド・インチであった。

【0085】

比較実験C E 5

1つのガラス層、比較実験C E 1で作製した多層ポリマー積層体、および1つのガラス層とからなる積層体を以下の方法で作製した。比較実験C E 1で作製した多層ポリマー積層体を、相対湿度(R H) 23パーセントおよび温度72 ° Fで終夜コンディショニングした。順番に、アニールした透明フロートガラス板層、比較実験C E 1で作製した多層ポリマー積層体、およびアニールした透明フロートガラス層(各層の寸法は12インチ×12インチ(305mm×305mm); ガラス層の厚さ2.15mm; 多層ポリマー積層体の厚さ30ミル(0.75mm))からなるガラス/多層ポリマー積層体/ガラス予備プレス組立体を、標準積層手順により積層した。

30

【0086】

この積層体は、平均曇り度が0.78であり、透過率が87.4パーセントであった。

40

【0087】

この積層体を約25mm×277mmの積層体ストリップに切断し、音響損失係数測定プロトコルに従った。種々の照明周波数および3つの温度において計算した損失係数を表Iに示す。

【0088】

表I

10℃		20℃		30℃	
周波数(Hz)	損失係数	周波数(Hz)	損失係数	周波数(Hz)	損失係数
213	0.0612	213	0.0636	211	0.0699
1232	0.0104	1223	0.0108	1210	0.0129
3110	0.0125	3072	0.0117	3024	0.0140
5465	0.0140	5384	0.0139	5283	0.0195

## 【 0 0 8 9 】

## 比較実験 C E 6

10

「剛直層 - 剛直層 - 剛直層」構造（層 A / B / C）を有する多層ポリマー積層体を、比較実験 1 に記載の方法を使用して作製したが、以下の相違点を有した。11 重量パーセントのメタクリル酸および 6 重量パーセントのマレイン酸モノメチルエステルを含み、酸官能性の全量に基づいて 40 パーセントの量までナトリウムイオンと亜鉛イオンとの混合物で中和されたエチレン - コ - メタクリル酸 - コ - マレイン酸モノメチルエステルターポリマーから層 A を形成した。19 重量パーセントのメタクリル酸を含み、37 パーセントの量までナトリウムイオンで中和されたエチレン - コ - メタクリル酸コポリマーから層 B を形成した。層 C は、層 A に使用したものと実質的に同じターポリマーから形成した。押出機 A の処理量は、スクリュース速度を 70 . 0 r p m に調整することによって制御した。押出機 B の処理量は、スクリュース速度を 13 . 4 r p m に調整することによって制御した。押出機 C の処理量は、スクリュース速度を 14 . 6 r p m に調整することによって制御した。3 本ロールスタックに通した後、得られた多層ポリマー積層体を 4 . 5 フィート / 分の速度で紙管上に巻き取った。

20

## 【 0 0 9 0 】

## 比較実験 C E 7

比較実験 2 に記載の方法を使用して、1 つのガラス層と、比較実験 C E 6 で作製した多層ポリマー積層体とからなる積層体を作製した。

## 【 0 0 9 1 】

この積層体の剥離接着力は 1 . 3 ポンド・インチであった。

## 【 0 0 9 2 】

30

## 比較実験 C E 8

比較実験 3 に記載の方法を使用して、1 つのガラス層と、比較実験 C E 6 で作製した多層ポリマー積層体とからなる積層体を作製した。

## 【 0 0 9 3 】

この積層体の剥離接着力は 1 . 2 ポンド・インチであった。

## 【 0 0 9 4 】

## 比較実験 C E 9

比較実験 4 に記載の方法を使用して、1 つのガラス層と、比較実験 C E 6 で作製した多層ポリマー積層体とからなる積層体を作製した。

## 【 0 0 9 5 】

40

この積層体の剥離接着力は 0 . 6 ポンド・インチであった。

## 【 0 0 9 6 】

## 比較実験 C E 1 0

比較実験 5 に記載の方法を使用して、1 つのガラス層と、比較実験 C E 6 で作製した多層ポリマー積層体と、1 つのガラス層からなる積層体を作製した。

## 【 0 0 9 7 】

この積層体の透過率は 84 . 9 パーセントであった。

## 【 0 0 9 8 】

この積層体を約 25 mm × 277 mm の積層体ストリップに切断し、音響損失係数測定プロトコルに従った。種々の照明周波数および 3 つの温度において計算した損失係数を表

50

I I に示す。

【 0 0 9 9 】

表II

10°C		20°C		30°C	
周波数(Hz)	損失係数	周波数(Hz)	損失係数	周波数(Hz)	損失係数
202	0.0639	201	0.0592	201	0.0561
1192	0.0106	1184	0.0108	1174	0.0130
3051	0.0108	3019	0.0123	2975	0.0143
5414	0.0145	5338	0.0151	5241	0.0184

10

【 0 1 0 0 】

#### 比較実験 1 1

比較実験 1 に記載の方法を使用して、「軟質層 - 剛直層 - 軟質層」構造（層 A / B / C）を有する多層ポリマー積層体を作製したが、以下の相違点を有した。9 . 6 重量パーセントのメタクリル酸および 2 3 . 5 重量パーセントのアクリル酸 n - ブチルを含み、5 2 パーセントの量までナトリウムイオンで中和されたエチレン - コ - メタクリル酸 - コ - アクリル酸 n - ブチルターポリマーから層 A を形成した。1 9 重量パーセントのメタクリル酸を含み、3 7 パーセントの量までナトリウムイオンで中和されたエチレン - コ - メタクリル酸コポリマーから層 B を形成した。層 C は、層 A に使用したものと実質的に同じターポリマーから形成した。押出機 A の処理量は、スクリー速度を 7 0 . 5 r p m に調整することによって制御した。押出機 B の処理量は、スクリー速度を 1 4 . 5 r p m に調整することによって制御した。押出機 C の処理量は、スクリー速度を 1 5 . 1 r p m に調整することによって制御した。3 本ロールスタックに通した後、得られた多層ポリマー積層体を 4 . 5 フィート / 分の速度で紙管上に巻き取った。

20

【 0 1 0 1 】

#### 比較実験 1 2

比較実験 2 に記載の方法を使用して、1 つのガラス層と、比較実験 C E 1 1 で作製した多層ポリマー積層体とからなる積層体を作製した。

【 0 1 0 2 】

この積層体の剥離接着力は 1 8 . 5 ポンド・インチであった。

30

【 0 1 0 3 】

#### 比較実験 C E 1 3

比較実験 3 に記載の方法を使用して、1 つのガラス層と、比較実験 C E 1 1 で作製した多層ポリマー積層体とからなる積層体を作製した。

【 0 1 0 4 】

この積層体の剥離接着力は 9 . 5 ポンド・インチであった。

【 0 1 0 5 】

#### 比較実験 C E 1 4

比較実験 4 に記載の方法を使用して、1 つのガラス層と、比較実験 C E 1 1 で作製した多層ポリマー積層体とからなる積層体を作製した。

40

【 0 1 0 6 】

この積層体の剥離接着力は 8 . 6 ポンド・インチであった。

【 0 1 0 7 】

#### 比較実験 C E 1 5

比較実験 5 に記載の方法を使用して、1 つのガラス層と、比較実験 C E 1 1 で作製した多層ポリマー積層体と、1 つのガラス層からなる積層体を作製した。

【 0 1 0 8 】

この積層体は、平均曇り度が 0 . 8 7 であり、透過率が 8 4 . 1 パーセントであった。

【 0 1 0 9 】

この積層体を約 2 5 m m × 2 7 7 m m の積層体ストリップに切断し、音響損失係数測定

50

プロトコルに従った。種々の照明周波数および3つの温度において計算した損失係数を表IIIに示す。

【0110】

表III					
10℃		20℃		30℃	
周波数(Hz)	損失係数	周波数(Hz)	損失係数	周波数(Hz)	損失係数
199	0.0516	199	0.0571	195	0.0706
1157	0.0248	1123	0.0334	1076	0.0463
2923	0.0397	2794	0.0515	2627	0.0654
5144	0.0534	4865	0.0647	4550	0.0757

10

【0111】

#### 実施例1

比較実験1に記載の方法を使用して、「剛直層-軟質層-剛直層」構造(層A/B/C)を有する多層ポリマー積層体を作製したが、以下の相違点を有した。19重量パーセントのメタクリル酸を含み、37パーセントの量までナトリウムイオンで中和されたエチレン-コ-メタクリル酸コポリマーから層Aを形成した。9.6重量パーセントのメタクリル酸および23.5重量パーセントのアクリル酸n-ブチルを含み、52パーセントの量までナトリウムイオンで中和されたエチレン-コ-メタクリル酸-コ-アクリル酸n-ブチルターポリマーから層Bを形成した。層Cは、層Aに使用したものと実質的に同じターポリマーから形成した。押出機Aの処理量は、スクリー速度を70.6rpmに調整することによって制御した。押出機Bの処理量は、スクリー速度を15.4rpmに調整することによって制御した。押出機Cの処理量は、スクリー速度を14.3rpmに調整することによって制御した。3本ロールスタックに通した後、得られた多層ポリマー積層体を4.2フィート/分の速度で紙管上に巻き取った。

20

【0112】

#### 実施例2

比較実験2に記載の方法を使用して、1つのガラス層と、実施例1で作製した多層ポリマー積層体とからなる積層体を作製した。

【0113】

この積層体の剥離接着力は10.8ポンド・インチであった。

30

【0114】

#### 実施例3

比較実験3に記載の方法を使用して、1つのガラス層と、実施例1で作製した多層ポリマー積層体とからなる積層体を作製した。

【0115】

この積層体の剥離接着力は7.7ポンド・インチであった。

【0116】

#### 実施例4

比較実験4に記載の方法を使用して、1つのガラス層と、実施例1で作製した多層ポリマー積層体とからなる積層体を作製した。

40

【0117】

この積層体の剥離接着力は6.5ポンド・インチであった。

【0118】

#### 実施例5

比較実験CE5に記載の方法を使用して、1つのガラス層と、実施例1で作製した多層ポリマー積層体と、1つのガラス層からなる積層体を作製した。

【0119】

この積層体の透過率は84.5パーセントであった。

【0120】

50

この積層体を約 25 mm × 277 mm の積層体ストリップに切断し、音響損失係数測定プロトコルに従った。種々の照明周波数および 3 つの温度において計算した損失係数を表 I V に示す。

【 0 1 2 1 】

表IV

10℃		20℃		30℃	
周波数(Hz)	損失係数	周波数(Hz)	損失係数	周波数(Hz)	損失係数
201	0.0637	196	0.0762	186	0.0824
1054	0.0741	973	0.0828	885	0.0928
2536	0.0973	2314	0.1010	2097	0.1011
4384	0.1091	3992	0.1065	3654	0.0940
6568	0.1075	6048	0.1016	5620	0.0838

10

【 0 1 2 2 】

比較実験 C E 5、10 および 15 の音響損失測定をこの実施例と比較すると、ガラス / 多層ポリマー積層体 / ガラス積層体の音響特性は、多層ポリマー積層体の構造に大きく依存することが示されている。比較実験 C E 5 および 10 では、「剛直層 - 剛直層 - 剛直層」構造は、高周波数において低損失の結果が得られた。比較実験 C E 15 では、「軟質層 - 剛直層 - 軟質層」構造は、高周波数におけるすべての周波数で中程度の損失の結果が得られた。しかし、この実施例で使用した本発明の「剛直層 - 軟質層 - 剛直層」構造は、高周波数で高損失の結果が得られ、したがって、「剛直層 - 剛直層 - 剛直層」構造および「軟質層 - 剛直層 - 軟質層」構造よりも音響障壁特性が優れている。

20

次に、本発明の好ましい態様を示す。

1. 2 つの外層が内層のそれぞれの面上にあるように積層された 3 つのアイオノマー材料層を含む多層ポリマー積層体であって、前記アイオノマー材料のそれぞれが独立に、オレフィンと、金属イオンで部分的に中和された、- エチレン系不飽和カルボン酸とのコポリマーを含み、前記アイオノマー材料の内層が、約 1,000 p s i ( 7 M P a ) ~ 約 15,000 p s i ( 103 M P a ) の弾性率を有し、前記アイオノマー材料層のそれぞれが、少なくとも約 1 ミル ( 0.025 mm ) 以上の厚さを有し、多層ポリマー積層体の全体の厚さが少なくとも約 20 ミル ( 0.5 mm ) 以上である、多層ポリマー積層体。
2. 前記アイオノマー材料の 2 つの外層のそれぞれが、約 16,000 p s i ( 110 M P a ) ~ 約 100,000 p s i ( 690 M P a ) の弾性率を有する、上記 1 に記載の多層ポリマー積層体。
3. 前記アイオノマー材料の 2 つの外層のそれぞれが、約 30,000 p s i ( 207 M P a ) ~ 約 80,000 p s i ( 552 M P a ) の弾性率を有し、前記アイオノマー材料の内層が、約 3,000 p s i ( 21 M P a ) ~ 約 10,000 p s i ( 69 M P a ) の弾性率を有する、上記 1 に記載の高強度積層体。
4. 前記 オレフィンと前記、- エチレン系不飽和カルボン酸とのコポリマーのそれぞれが独立に、約 0.1 ~ 約 30 重量パーセントの前記、- エチレン系不飽和カルボン酸成分を含み、前記アイオノマー材料のそれぞれは独立に、全カルボン酸含有率を基準にして約 5 ~ 約 100 パーセントが金属イオンで中和されている、上記 1 に記載の多層ポリマー積層体。
5. 前記アイオノマー材料の 2 つの外層のそれぞれが、約 1,000 p s i ( 7 M P a ) ~ 約 15,000 p s i ( 103 M P a ) の弾性率を有する、上記 1 に記載の多層ポリマー積層体。
6. 2 つの剛性シートと、2 つの外層が内層のそれぞれの面上にあるように積層された 3 つのアイオノマー材料層を含む多層ポリマー積層体とを含む高強度積層体であって、前記アイオノマー材料のそれぞれが独立に、オレフィンと、金属イオンで部分的に中和された、- エチレン系不飽和カルボン酸とのコポリマーを含み、前記アイオノマー材料の内層が、約 1,000 p s i ( 7 M P a ) ~ 約 15,000 p s i ( 103 M P a ) の弾

30

40

50

性率を有し、前記アイオノマー材料層のそれぞれが、少なくとも約 1 ミル ( 0 . 0 2 5 m m ) 以上の厚さを有し、前記多層ポリマー積層体の全体の厚さが少なくとも約 2 0 ミル ( 0 . 5 m m ) 以上であり、前記 2 つの剛性シートが前記多層ポリマー積層体の反対側の面上に配置されている、高強度積層体。

7. 前記剛性シートがガラスである、上記 6 に記載の高強度積層体。

8. 前記アイオノマー材料の 2 つの外層のそれぞれが、約 1 6 , 0 0 0 p s i ( 1 1 0 M P a ) ~ 約 1 0 0 , 0 0 0 p s i ( 6 9 0 M P a ) の弾性率を有する、上記 6 に記載の高強度積層体。

9. 前記アイオノマー材料の 2 つの外層のそれぞれが、約 3 0 , 0 0 0 p s i ( 2 0 7 M P a ) ~ 約 8 0 , 0 0 0 p s i ( 5 5 2 M P a ) の弾性率を有し、前記アイオノマー材料の内層が、約 3 , 0 0 0 p s i ( 2 1 M P a ) ~ 約 1 0 , 0 0 0 p s i ( 6 9 M P a ) の弾性率を有する、上記 6 に記載の高強度積層体。

10

10. 前記 オレフィンと前記 , - エチレン系不飽和カルボン酸とのコポリマーのそれぞれが独立に、約 0 . 1 ~ 約 3 0 重量パーセントの前記 , - エチレン系不飽和カルボン酸成分を含み、前記アイオノマー材料のそれぞれは独立に、全カルボン酸含有率を基準にして約 5 ~ 約 1 0 0 パーセントが金属イオンで中和されている、上記 6 に記載の高強度積層体。

11. 前記ガラス剛性シート的一方と前記多層ポリマー積層体との間に配置されたポリマーフィルムまたはシートをさらに含む、上記 7 に記載の高強度積層体。

12. 前記アイオノマー材料の 2 つの外層のそれぞれが約 1 , 0 0 0 p s i ( 7 M P a ) ~ 約 1 5 , 0 0 0 p s i ( 1 0 3 M P a ) の弾性率を有する、上記 6 に記載の高強度積層体。

20

---

フロントページの続き

(74)代理人 100093300

弁理士 浅井 賢治

(74)代理人 100114007

弁理士 平山 孝二

(72)発明者 サミュエルズ サム ルイス

アメリカ合衆国 ペンシルバニア州 19350 ランデンバーグ ペラム ドライヴ 34

(72)発明者 ヘイズ リチャード アレン

アメリカ合衆国 テキサス州 77706 ボーモント ベルヴェデーレ ドライヴ 630

審査官 前田 知也

(56)参考文献 米国特許出願公開第2005/0279401(US, A1)

特表2002-514533(JP, A)

特開平08-295541(JP, A)

特開昭60-226435(JP, A)

特開平08-295543(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

B32B1/00-43/00

C03C27/00-29/00