

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6719464号  
(P6719464)

(45) 発行日 令和2年7月8日(2020.7.8)

(24) 登録日 令和2年6月18日(2020.6.18)

(51) Int.Cl.

F 1

B32B 27/30 (2006.01)

B32B 27/30

102

C03C 27/12 (2006.01)

C03C 27/12

D

C08F 16/38 (2006.01)

C08F 16/38

請求項の数 18 (全 40 頁)

(21) 出願番号 特願2017-530630 (P2017-530630)  
 (86) (22) 出願日 平成27年12月4日 (2015.12.4)  
 (65) 公表番号 特表2018-501125 (P2018-501125A)  
 (43) 公表日 平成30年1月18日 (2018.1.18)  
 (86) 國際出願番号 PCT/US2015/063897  
 (87) 國際公開番号 WO2016/094216  
 (87) 國際公開日 平成28年6月16日 (2016.6.16)  
 審査請求日 平成30年12月3日 (2018.12.3)  
 (31) 優先権主張番号 14/562,865  
 (32) 優先日 平成26年12月8日 (2014.12.8)  
 (33) 優先権主張国・地域又は機関  
米国(US)  
 (31) 優先権主張番号 14/563,014  
 (32) 優先日 平成26年12月8日 (2014.12.8)  
 (33) 優先権主張国・地域又は機関  
米国(US)

(73) 特許権者 503316891  
ソルティア・インコーポレーテッド  
アメリカ合衆国ミズーリ州63141, セント・ルイス, マリーヴィル・センター・ドライブ 575  
 (74) 代理人 100140109  
弁理士 小野 新次郎  
 (74) 代理人 100118902  
弁理士 山本 修  
 (74) 代理人 100106208  
弁理士 宮前 哲  
 (74) 代理人 100120112  
弁理士 中西 基晴  
 (74) 代理人 100112634  
弁理士 松山 美奈子

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】向上した特性を有するポリ(ビニルアセタール)樹脂組成物、層、及び中間膜

## (57) 【特許請求の範囲】

## 【請求項1】

第1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5重量%の*i*-ブチルアルデヒドの残基を含み、16重量%~20重量%の範囲の残留ヒドロキシル含量を有する第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び40phr以下の量で第1の樹脂層中に存在する第1の可塑剤を含む第1の樹脂層；並びに

少なくとも5重量%の*n*-ブチルアルデヒド残基を含み、9重量%~11重量%の範囲の残留ヒドロキシル含量を有する第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の樹脂層に隣接している第2の樹脂層；

を含み；

第2の可塑剤は樹脂100部あたり50~70部(phr)の量で第2の樹脂層中に存在し、第1の樹脂層中の第1の可塑剤の量と第2の樹脂層中の第2の可塑剤の量の間の差は10phrより多く；

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、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5重量%の*n*-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含み；そして

第1の樹脂層のガラス転移温度は第2の樹脂層のガラス転移温度よりも少なくとも3高く、そして第1の樹脂層の屈折率と第2の樹脂層の屈折率の間の差の絶対値は0.010以下である中間膜。

## 【請求項2】

10

20

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、第1のポリ(ビニルアセタール)又は第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂のアルデヒドの残基の全重量を基準として少なくとも50重量%のn-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含む、請求項1に記載の中間膜。

**【請求項3】**

n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドはC<sub>3</sub>～C<sub>12</sub>脂肪族アルデヒドである、請求項1に記載の中間膜。

**【請求項4】**

中間膜は、下記の基準(i)及び(ii)：

(i) 第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、1.485以下の屈折率を有する；及び

(ii) 第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂は75以下ガラス転移温度を有する；の少なくとも1つを満足する、請求項1に記載の中間膜。

**【請求項5】**

第1及び第2の可塑剤はそれぞれ1.460未満の屈折率を有する、請求項1に記載の中間膜。

**【請求項6】**

第1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)を含み、第2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)を含み、第1の樹脂層のガラス転移温度と第2の樹脂層のガラス転移温度の差は少なくとも20である、請求項1に記載の中間膜。

**【請求項7】**

第1及び第2の可塑剤はテトラエチレングリコールジ(2-エチルヘキサノエート)を含み、第1の樹脂層は少なくとも30のガラス転移温度を有し、第2の樹脂層のガラス転移温度は10以下である、請求項1に記載の中間膜。

**【請求項8】**

中間膜は5%未満の曇り度を有する、請求項1に記載の中間膜。

**【請求項9】**

請求項1に記載の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。

30

**【請求項10】**

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の樹脂層；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の樹脂層に隣接している第2の樹脂層；を含み；

中間膜は下記の基準(i)及び(ii)：

(i) 第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は第1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5重量%のi-ブチルアルデヒドの残基を含み、第2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)樹脂のアルデヒド残基の全重量を基準として少なくとも10重量%の6個以下の炭素原子を有するアルデヒドの残基を含み、第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は16重量%～20重量%の範囲の残留ヒドロキシル含量を有し、第1の樹脂層の屈折率は比較のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂層の屈折率よりも少なくとも0.002低く、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は12重量%以下であり、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；

40

(ii) 第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は第1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5重量%のi-ブチルアルデヒドの残基を含み、第2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)樹脂のアルデヒド残基の全重量を基準として少なくとも10重量%の6個より多い炭素原子を

50

有するアルデヒドの残基を含み、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は第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よりも少なくとも0.25%高く、第2の樹脂層中の第2の可塑剤の量は第1の樹脂層中の第1の可塑剤の量よりも少なくとも樹脂100部あたり10部(phr)多い;  
の少なくとも1つを満足する中間膜。

**【請求項11】**

中間膜は基準(i)を満足し、第1及び第2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)を含む、請求項10に記載の中間膜。

**【請求項12】**

基準(ii)が満足され、第2の可塑剤は50phr以下の量で第2の樹脂層中に存在し、第2の樹脂層のガラス転移温度は10未満である、請求項10に記載の中間膜。 10

**【請求項13】**

第1及び第2の可塑剤はテトラエチレングリコールジ(2-エチルヘキサノエート)を含む、請求項12に記載の中間膜。

**【請求項14】**

第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂のガラス転移温度と第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂のガラス転移温度の間の差は少なくとも10である、請求項10に記載の中間膜。

**【請求項15】**

第1の樹脂層の屈折率と第2の樹脂層の屈折率の間の差は0.010以下であり、中間膜は5%未満の曇り度を有する、請求項10に記載の中間膜。 20

**【請求項16】**

第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び可塑剤を含む樹脂層を含み、第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は第1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10重量%の少なくとも1種類の分枝脂肪族アルデヒドの残基を含み、10重量%未満の残留ヒドロキシル含量を有し、可塑剤は50~70phrの量で樹脂層中に存在し、樹脂層は少なくとも1.05のtan $\theta$ を有し、樹脂層は第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂と物理的にブレンドされた第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂を更に含み、第2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)樹脂のアルデヒド残基の全重量を基準として20重量%未満のn-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含む、中間膜。 30

**【請求項17】**

第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は第1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50重量%の少なくとも1種類の分枝脂肪族アルデヒドの残基を含む、請求項16に記載の中間膜。

**【請求項18】**

第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は少なくとも8重量%の残留ヒドロキシル含量を有する、請求項16に記載の中間膜。

**【発明の詳細な説明】**

**【技術分野】**

**【0001】**

[0001]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】**

**【0002】**

[0002]ポリ(ビニルブチラール)(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。

## 【0003】

[0003] 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、物体がガラスを貫通す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

## 【0004】

[0004] ポリ(ビニルアセタール)樹脂は、通常は、アセテート懸垂基、ヒドロキシル懸垂基、及びPVB樹脂に関してはn-ブチルアルデヒド基のようなアルデヒド懸垂基を含んでおり、これらはビニルポリマー骨格に沿って存在している。ポリ(ビニルアセタール)樹脂の特性は、部分的に、ヒドロキシル、アセテート、及びアルデヒド基の相対量によって、及び/又は樹脂に加える可塑剤のタイプ及び量によって決定される。したがって、幾つかの樹脂の組成、及びこれらの樹脂と種々のタイプ及び量の可塑剤の組み合わせを選択することによって、異なる特性を有する樹脂組成物、層、及び中間膜を与えることができる。20

## 【0005】

[0005] しかしながら、かかる選択は種々の欠点を有する可能性がある。例えば、多い残留ヒドロキシル含量及び少ない可塑剤含量を有するPVB樹脂組成物は、より高いガラス転移温度を有する傾向があり、このためにかかる樹脂は安全性能用途において望ましい。しかしながら、これらの樹脂は非常に劣った消振及び音響減衰性能を示す。同様に、より少ない残留ヒドロキシル含量及びより多い量の可塑剤を含むPVB樹脂組成物は、良好な消振及び消音特性を示すことができるが、通常は、存在したとしても限定された広い温度範囲にわたる耐衝撃性を有する可能性がある。30

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0006】

[0006] 而して、複数の望ましい特性を示し、必要に応じて調節することができる機械特性、光学特性、及び/又は音響特性を有していて、樹脂を広範囲の用途において用いることができるポリマー樹脂に対する必要性が存在する。更に、安全ガラスにおいて、及びポリマー積層体としてなどの幾つかの最終用途において用いることができるかかる樹脂を含む樹脂組成物、層、及び中間膜に対する必要性が存在する。

## 【課題を解決するための手段】

## 【0007】

[0007] 本発明の一態様は、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の樹脂層；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の樹脂層に隣接している第2の樹脂層；を含み；第2の可塑剤は樹脂100部あたり少なくとも50部(phr)の量で第2の樹脂層中に存在し、第1の樹脂層中の第1の可塑剤の量と第2の樹脂層中の第2の可塑剤の量の間の差は10phrより多く、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、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5重量%のn-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含み、そして第1の樹脂層のガラス転移温度は第2の樹脂層のガラス転移温度よりも少なくとも3℃高く、そして第1の樹脂層の屈折率と第2の樹脂層の屈折率の間の差の絶対値は0.010以下である中間膜に関する。40

## 【0008】

10

20

30

40

50

[0008]本発明の他の態様は、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の樹脂層；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の樹脂層に隣接している第2の樹脂層；を含み；中間膜は下記の基準(i)～(iii)：(i)第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は第1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5重量%の*i*-ブチルアルデヒドの残基を含み、第2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)樹脂のアルデヒド残基の全重量を基準として少なくとも10重量%の6個以下の炭素原子を有するアルデヒドの残基を含み、第1の樹脂層の屈折率は比較のポリ(ビニル*n*-ブチラール)樹脂層の屈折率よりも少なくとも0.002低く、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は12重量%以下であり、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；(ii)第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は第1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5重量の*i*-ブチルアルデヒドの残基を含み、第2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)樹脂のアルデヒド残基の全重量を基準として少なくとも10重量%の6個より多い炭素原子を有するアルデヒドの残基を含み、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は第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よりも少なくとも0.25%高く、第2の樹脂層中の第2の可塑剤の量は第1の樹脂層中の第1の可塑剤の量よりも少なくとも樹脂100部あたり10部(*p h r*)多い；及び、(iii)第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂のいずれも*i*-ブチルアルデヒドの残基を含まず、第2の樹脂層は比較のポリ(ビニル*n*-ブチラール)樹脂層のガラス転移温度よりも少なくとも3低いガラス転移温度を有する；の少なくとも1つを満足する中間膜に関する。  
10  
20

#### 【0009】

[0009]本発明の更に他の態様は、第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び第1の可塑剤から第1の樹脂層を形成し；第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び第2の可塑剤から第2の樹脂層を形成し；そして第1の樹脂層及び第2の樹脂層を用いて中間膜を製造する；工程を含み、中間膜中ににおいて第1の樹脂層は第2の樹脂層に隣接しており、第1の樹脂層のガラス転移温度は第2の樹脂層のガラス転移温度よりも少なくとも3高く、第1の樹脂層の屈折率と第2の樹脂層の屈折率の間の差は0.010以下である、中間膜の製造方法に関する。  
30

#### 【0010】

[00010]以下において、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】

#### 【0011】

【図1】[00011]図1は、30～110の温度範囲にわたる、実施例1に記載する幾つかの可塑化ポリ(ビニルアセタール)樹脂のtan $\theta$ を示すグラフである。

【図2】[00012]図2は、30～60の温度範囲にわたる、実施例3に記載する幾つかの可塑化ポリ(ビニルアセタール)樹脂のtan $\theta$ を示すグラフである。

【図3】[00013]図3は、実施例4に記載する幾つかのポリ(ビニルアセタール)樹脂の屈折率を可塑剤含量の関数として示すグラフである。  
40

【図4】[00014]図4は、実施例8に記載する2種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂の曇り点を残留ヒドロキシル含量の関数として示すグラフである。

【図5】[00015]図5は、-20～30の温度範囲にわたる、実施例9に記載する幾つかの可塑化樹脂組成物のtan $\theta$ を示すグラフである。

【図6】[00016]図6aは、実施例10に記載する幾つかの可塑化樹脂のガラス転移温度を可塑剤装填量の関数として示すグラフである。

#### 【0012】

[00017]図6bは、実施例10において記載し、図6aにおいて示す樹脂組成物のtan $\theta$ をガラス転移温度の関数として示すグラフである。  
50

## 【発明を実施するための形態】

## 【0013】

[00018]本発明は、従来のポリ(ビニルn-ブチラール)(PVB)樹脂と異なる特性を示すが、例えば安全ガラス用途などの多くのPVBと同じ用途において用いることができる少なくとも1種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含むポリマー樹脂組成物、層、及び中間膜に関する。本発明の種々の態様による組成物、層、及び中間膜は、n-ブチルアルデヒドの残基のみを含む比較のポリ(ビニルアセタール)樹脂と異なるガラス転移温度、異なる屈折率、及び/又は異なる粘度を有することができる。その結果、ここに記載する樹脂、組成物、層、及び中間膜はまた、向上した光学的、機械的、及び/又は音響的性能を示すこともできる。本発明の種々の態様による最適化された特性を有する組成物、層、及び中間膜を製造する方法も、ここに記載する。10

## 【0014】

[00019]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/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」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、樹脂層には1種類以上の更なる添加剤を含ませることができる。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。「单一シート」及び「モノリス型」中間膜という用語は、1つの单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に結合されている2以上の樹脂シートを有する中間膜を指す。20

## 【0015】

[00020]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種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含ませることができる。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水性又は溶剤ベースでアセタール化することによって形成することができる。得られる樹脂は、次に、例えば米国特許第2,282,057号明細書及び米国特許第2,282,026号明細書、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)樹脂中に存在する残留アルデヒド基又は残基の全量は、ASTM-D1396によ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%、少なくとも約90重量%、少なくとも約92重量%であってよい。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を含み、これは下記において更に詳細に議論する。30

## 【0016】

[00021]ポリ(ビニルアセタール)樹脂がポリ(ビニルn-ブチラール)(PVB)樹脂である場合には、アセタール成分又は全アルデヒド残基の90重量%より多く、少なくとも約95重量%、少なくとも約97重量%、又は少なくとも約99重量%は、n-ブチルアルデヒドの残基を含んでいてよい。更に、ポリ(ビニルn-ブチラール)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10重量%未満、約5重量%以下、約2重量%以下、約1重量%以下、又は約0.5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。40

## 【0017】

[00022]本発明の幾つかの態様による組成物、層、及び中間膜には、少なくとも約10重量%のn-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含む少なくとも1種類のポリ(50

ビニルアセタール)樹脂を含ませることができる。幾つかの態様においては、ポリ(ビニルアセタール)樹脂には、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%、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80重量%、少なくとも約90重量%、少なくとも約95重量%、又は少なくとも約99重量%のn-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含ませることができる。この樹脂にはまた、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重量%以下、約5重量%以下、約2重量%以下、又は約1重量%以下のn-ブチルアルデヒドの残基を含ませることもできる。

## 【0018】

10

[00023]ポリ(ビニルアセタール)樹脂が1種類以上のn-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含む場合には、任意の好適なアルデヒドを用いることができる。幾つかの態様においては、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドは、例えば、n-ブチルアルデヒド以外の、分子あたり3個~12個の間の炭素原子を有するアルデヒド(即ちC<sub>3</sub>~C<sub>12</sub>アルデヒド)、分子あたり4個~10個の間の炭素原子を有するアルデヒド(即ちC<sub>4</sub>~C<sub>10</sub>アルデヒド)、或いは分子あたり4個~8個の間の炭素原子を有するアルデヒド(即ちC<sub>4</sub>~C<sub>8</sub>アルデヒド)を含んでいてよい。幾つかの態様においては、アルデヒドは、分子あたり8個以下の炭素原子、分子あたり6個以下の炭素原子、又は分子あたり4個以下の炭素原子を含んでいてよい。他の態様においては、アルデヒドは、分子あたり4個より多い炭素原子、分子あたり5個より多い炭素原子、又は分子あたり6個より多い炭素原子を有していてよい。

## 【0019】

20

[00024]n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドは脂肪族アルデヒドであってよく、分枝又は直鎖分子のいずれかであってよい。好適なn-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの例としては、i-ブチルアルデヒド、2-メチルバレルアルデヒド、n-ヘキシリアルデヒド、2-エチルヘキシリアルデヒド、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。幾つかの態様においては、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドは、i-ブチルアルデヒド、2-メチルブチルアルデヒド、2-エチルヘキシリアルデヒド、及びこれらの組み合わせからなる群から選択することができ、一方、幾つかの態様においては、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドは、i-ブチルアルデヒド、2-エチルヘキシリアルデヒド、及びこれらの組み合わせからなる群から選択することができる。

## 【0020】

30

[00025]種々の態様によれば、本樹脂組成物、層、又は中間膜にはまた、n-ブチルアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂を含ませることもできる。幾つかの態様においては、n-ブチルアルデヒドのこれらの残基は、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を有する同じ樹脂中に存在させて、それによって多様なアルデヒド残基を有する単一の「複合」樹脂を形成することができる。他の態様においては、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含む第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂と物理的にブレンドされた第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂上にn-ブチルアルデヒド残基を存在させて、このブレンドを組成物、層、又は中間膜中に存在させることができる。通常は樹脂の各ブレンドに関して、同等の単一の複合ポリ(ビニルアセタール)樹脂も存在させて、これをブレンドと置き換えて同様の結果を達成することができる。

## 【0021】

40

[00026]本組成物、層、又は中間膜が異なる複数種のアルデヒドの残基を有する単一の複合樹脂を含む場合には、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基及びn-ブチルアルデヒドの残基は、それぞれ、単一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約1%、少なくとも約2%、少なくとも約5%、少なくとも約10%、少なくとも約15%、少なくとも約20%、少なくとも約25%、少なくとも約30%、少なくとも約35%、少なくとも約40%、又は少なくとも約45%の量で樹脂中に存在させること

50

ができる。これらの2種類の残基の合計量は、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40%、少なくとも約50%、少なくとも約60%、少なくとも約70%、少なくとも約80%、又は少なくとも約90%を構成していくよい。幾つかの態様においては、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基とn-ブチルアルデヒド残基との重量比は、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15:85、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、約60:40以下、或いは約1:99~約99:1、約5:95~約95:5、約10:90~約90:10、約15:85~約85:15、約25:75~約75:25、約30:70~約70:30、又は約40:60~約60:40の範囲であってよく、或いはn-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基は、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基とn-ブチルアルデヒドの残基の合計重量を基準として少なくとも約1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25重量%、少なくとも約30重量%、又は少なくとも約40重量%の量でポリ(ビニルアセタール)樹脂中に存在させることができる。  
10

## 【0022】

[00027]同様に、本組成物、層、又は中間膜が、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含む第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂と、n-ブチルアルデヒドの残基を含む第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の物理的ブレンドを含む場合には、これらのポリ(ビニルアセタール)樹脂のそれぞれは、組成物中の樹脂の全重量を基準として少なくとも約1重量%、少なくとも約2重量%、少なくとも約5重量%、少なくとも約10重量%、少なくとも約15重量%、少なくとも約20重量%、少なくとも約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)樹脂の合計量は、組成物、層、又は中間膜中の樹脂の全重量の少なくとも約40%、少なくとも約50%、少なくとも約60%、少なくとも約70%、少なくとも約80%、又は少なくとも約90%を構成していくよい。  
20

## 【0023】

[00028]本樹脂組成物、層、又は中間膜が第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂のブレンドを含む場合には、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)樹脂との重量比は、約1:99~99:1、約5:95~95:5、約10:90~90:10、約15:85~85:15、約25:75~75:25、約30:70~70:30、又は約40:60~60:40の範囲であってよい。幾つかの態様においては、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第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、第1及び第2の樹脂の合計重量を基準として少なくとも約1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25重量%、少なくとも約30重量%、又は少なくとも約40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。  
30

## 【0024】

[00029]1種類以上のアルデヒドの残基に加えて、ここに記載するポリ(ビニルアセタール)樹脂はまた、残留ヒドロキシル及び/又は残留アセテート基も含んでいてよい。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ポリビニルヒドロキシル及びポリビニル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  
40

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、PVOH基として)、及び残留アセテート基(酢酸ビニル、PVA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、ASTM-D1396にしたがって測定される。

#### 【0025】

[00030]種々の態様においては、組成物、層、又は中間膜中に存在するポリ(ビニルアセタール)樹脂の1以上は、上記に記載のように測定して少なくとも約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23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、約20重量%以下、約19.5重量%以下、約19重量%以下、約18.7重量%以下の残留ヒドロキシル含量を有していてよい。残留ヒドロキシル含量は、約14重量%～約45重量%、約16重量%～約30重量%、約18重量%～約25重量%、約18.5重量%～約20重量%、又は約19.5重量%～約21重量%の範囲であってよい。10  
20

#### 【0026】

[00031]幾つかの態様においては、少なくとも1つのポリ(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8.5重量%、少なくとも約9重量%、少なくとも約9.5重量%、及び/又は約13重量%以下、約12.5重量%以下、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、又は約9重量%以下、或いは約8重量%～約13重量%、約9重量%～約12重量%、又は約9.5重量%～約11.5重量%の範囲の残留ヒドロキシル含量を有していてよい。

#### 【0027】

[00032]ここに記載する樹脂組成物、層、又は中間膜中に2種類以上のポリ(ビニルアセタール)樹脂を存在させる場合には、1以上の樹脂は他の1以上の樹脂の残留ヒドロキシル含量と異なる残留ヒドロキシル含量を有していてよい。例えば、本樹脂組成物、層、又は中間膜が第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)樹脂を含む場合には、樹脂の少なくとも一方は他方と少なくとも2重量%異なる残留ヒドロキシル含量を有していてよい。一方又は両方の樹脂に、上記に記載したn-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含ませることができる。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つの数値を他の数値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)樹脂と、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)樹脂は、2の重量%の差を有する。本明細書において用いる「異なる」という用語は、他の値よりも高いか又は低い場合の両方を包含する。30  
40

#### 【0028】

[00033]幾つかの態様によれば、1つのポリ(ビニルアセタール)樹脂の残留ヒドロキシル含量は、他のものの残留ヒドロキシル含量よりも少なくとも約3重量%、少なくとも約4重量%、少なくとも約6重量%、又は少なくとも約8重量%多いか又は低くてよい。幾つかの態様においては、ここに記載する組成物、層、及び中間膜中の1つのポリ(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(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50

い。

**【0029】**

[00034]本樹脂組成物、層、又は中間膜が異なる残留アセテート含量を有する2種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む場合には、2つの樹脂の間の残留アセテート含量の差は、少なくとも約2重量%、少なくとも約4重量%、少なくとも約6重量%、少なくとも約8重量%、少なくとも約10重量%、少なくとも約12重量%、及び/又は約30重量%以下、約20重量%以下、約15重量%以下、又は約10重量%以下であってよく、或いはこの差は約2重量%~約30重量%、約4重量%~約20重量%、約6重量%~約15重量%、又は約8重量%~約10重量%の範囲であってよい。例えば、幾つかの態様においては、ここに記載するポリ(ビニルアセタール)樹脂の少なくとも1つは、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いてよい。幾つかの態様においては、ポリ(ビニルアセタール)樹脂の少なくとも他の1つは、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%、又は少なくとも約20重量%の残留アセテート含量を有していてよい。10

**【0030】**

[00035]幾つかの態様においては、本樹脂組成物、層、又は中間膜が複数の樹脂の物理的ブレンドを含む場合には、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のポリ(ビニルアセタール)樹脂の一方が第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層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

**【0031】**

[00036]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42phr、少なくとも約45phr、少なくとも約50phr、少なくとも約55phr、少なくとも約60phr、少なくとも約65phr、少なくとも約70phr、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5phr~約120phr、約10phr~約110phr、約20phr~約90phr、又は約25phr~約75phrの範囲の量で存在させることができる。30

**【0032】**

[0023]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部に対し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樹脂の合計量と比較して樹脂100部あたりの重量部を求める。更に、本明細書において層又は中40

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。

### 【0033】

[00038]幾つかの態様においては、可塑剤は、少なくとも約42phr、少なくとも約45phr、少なくとも約50phr、少なくとも約55phr、少なくとも約60phr、少なくとも約65phr、又は少なくとも約70phrの量で存在させることができ、一方、幾つかの態様においては、可塑剤は、約50phr以下、約45phr以下、約42phr以下、約40phr以下、約38phr以下、約35phr以下、約30phr以下、約30phr以下、約25phr以下、約20phr以下、約17phr以下、約15phr以下、約12phr以下、又は約10phr以下の量で存在させることができる。10

### 【0034】

[00039]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)、ポリエチレングリコールビス(2-エチルヘキサノエート)、ジプロピレングリコールジベンゾエート、ジヘキシルアジペート、ジオクチルアジペート、ヘキシルシクロヘキシルアジペート、ジイソノニルアジペート、ヘプチルノニルアジペート、ジ(ブトキシエチル)アジペート、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)、テトラエチレングリコールジ(2-エチルヘキサノエート)、及びこれらの組み合わせからなる群から選択することができる。幾つかの態様においては、ここに記載する組成物、層、及び中間膜中に少なくとも2種類の可塑剤を存在させて、可塑剤の1つによって組成物中の1以上の他の可塑剤の相溶性を向上させることができる。組成物中の1つ又は全ての可塑剤の589nmの波長及び25°におけるASTM-D542にしたがって測定される屈折率は、少なくとも約1.440、少なくとも約1.442、少なくとも約1.445、及び/又は約1.500以下、約1.475以下、約1.460以下、約1.455以下、又は約1.450以下、或いは約1.440～約1.500、約1.442～約1.475、約1.445～約1.460の範囲であってよい。2030

### 【0035】

[00040]ここに記載する1以上の樹脂組成物、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、アンチモンスズオキシド、六ホウ化ランタン(LaB<sub>6</sub>)、及びセシウムタンクステンオキシド、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。40

### 【0036】

[00041]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0.003phr～約0.15phr、約0.01phr～約0.10phr、又は約0.025phr～約0.04phrの範囲であってよい。好適なACAとしては、残留酢酸ナトリウム、酢酸カリウム、マグネシウムビス(2-エチルブチレート)、マグネシウムビス(2-エチルヘキサノエート)、及びこれらの組み合わせ、並びに米国特許第5,728,472号明細書にお50

いて開示されている A C A を挙げることができるが、これらに限定されない。

【 0 0 3 7 】

[00042]本樹脂組成物、層、又は中間膜において 2 種類以上のポリ(ビニルアセタール)樹脂を用い、樹脂の少なくとも 1 つが 1 以上の他の樹脂と異なる残留ヒドロキシル及び / 又はアセテート含量を有する場合には、その差は、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、又は音響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 14 重量%より大きなより多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増加した耐衝撃性、貫通抵抗性、及び強度を促進することができ、一方、通常は 13 重量%未満の残留ヒドロキシル含量を有するより少ないヒドロキシル含量の樹脂は、中間膜又はブレンドの音響性能を向上させることができる。10

【 0 0 3 8 】

[00043]より多いか又はより少な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、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。その結果、例えば多層中間膜内の異なる複数の層に異なる特性を与えることができる。理論によって縛られることは望まないが、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理解される。概して、より多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、より少な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、より多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、より少な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、より少な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い量の可塑剤を含める傾向を示す可能性があり、これによってより多い残留ヒドロキシル含量を有する同様の樹脂よりも低いガラス転移温度を示すより軟質の樹脂層を与えることができる。しかしながら、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。20

【 0 0 3 9 】

[00044]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、可塑剤を樹脂層又はドメインの間に分配して、より少な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、より多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ます。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。30

【 0 0 4 0 】

[00045]幾つかの態様において、樹脂層又は中間膜が少なくとも、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 の樹脂層、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 の樹脂層に隣接する第 2 の樹脂層を含む場合には、これらの樹脂層は異なる可塑剤含量を有していてよい。例えば、これらの樹脂層の間の可塑剤含量の差は、少なくとも約 2 p h r、少なくとも約 5 p h r、少なくとも約 8 p h r、少なくとも約 10 p h r、少なくとも約 12 p h r、又は少なくとも約 15 p h r であってよい。殆どの態様においては、より少ないヒドロキシル含量を有する樹脂を含む樹脂層は、より多い可塑剤含量を有していてよい。樹脂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 の樹脂層の間の可塑剤含量の差は、約 30 p h r 以下、約 25 p h r 以下、約 20 p h r 以下、又は約 17 p h r 以下であってよい。40

【 0 0 4 1 】

50

20

30

40

50

[00046]幾つかの態様においては、第1及び第2の樹脂層は異なるガラス転移温度を示していてよい。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。ここ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(DTMA)によって求めた。DTMA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 $\tan(\theta)$ ( $G''/G'$ )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 $\tan(\theta)$ ピークの位置によってガラス転移温度を求めた。ここに与えるガラス転移温度は、1Hzの振動数及び3/分のスイープ速度において求めた。

## 【0042】

[00047]第1の樹脂層のガラス転移温度と第2の樹脂層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の樹脂層の一方は、少なくとも約25、少なくとも約27、少なくとも約30、少なくとも約33、少なくとも約35、少なくとも約37、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25～約70、約27～約60、約35～約50の範囲のガラス転移温度を有していてよい。第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂の他方は、25未満、約20以下、約15以下、約10以下、約5以下、約2以下、約1以下、約0以下、約-1以下、約-2以下のガラス転移温度を有していてよい。

10

20

## 【0043】

[00048]本発明の種々の態様によれば、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を有する少なくとも1種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含むここに記載する樹脂組成物、層、及び中間膜は、従来のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂を用いて形成される同様の樹脂組成物、層、及び中間膜と比べて、例えばガラス転移温度、屈折率、及び $\tan(\theta)$ のような異なる特性を示すことができる。

## 【0044】

[00049]例えば、幾つかの態様においては、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂は、比較のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂と異なる分子量を有していてよい。本明細書において用いる「比較のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂」という用語は、与えられたポリ(ビニルアセタール)樹脂と同じ残留アセタール、残留ヒドロキシル、及びアセテート含量を有するが、n-ブチルアルデヒドの残基のみを含むアセタール成分を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂を指す。種々の態様においては、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂は、比較のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂の分子量よりも少なくとも約5%、少なくとも約10%、少なくとも約15%、又は少なくとも約20%高いか又は低い分子量を有していてよい。

30

## 【0045】

[00050]幾つかの態様においては、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂の分子量は、比較のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂よりも低くてよい。n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂の分子量は、少なくとも約10,000ダルトン、少なくとも約15,000ダルトン、少なくとも約20,000ダルトン、少なくとも約25,000ダルトン、及び/又は約250,000ダルトン以下、約200,000ダルトン以下、約150,000ダルトン以下、約100,000ダルトン以下、又は約50,000ダルトン以下若しくは未満、或いは約10,000ダルトン～約250,000ダルトン、約15,000ダルトン～約200,000ダルトン、約20,000ダルトン～約150,000ダルトン、又は約25,000ダルトン～約50,000ダルトンであってよい。これに対して、ポリ(ビニルn-ブチラール)(PVB)樹脂は、サイズ排除クロマトグラフィーによって、Cotts及びOuanoの低角レーザー光散乱(SEC/LALLS)法を用いて

40

50

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 80,000 ダルトン、少なくとも約 90,000 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、約 425,000 ダルトン以下、又は約 325,000 ダルトン以下の分子量を有していてよい。本明細書において用いる「分子量」とは重量平均分子量 ( $M_w$ ) を指す。PVB 樹脂の分子量は、約 50,000 ダルトン～約 600,000 ダルトン、約 70,000 ダルトン～約 450,000 ダルトン、約 80,000 ダルトン～約 425,000 ダルトン、又は約 90,000 ダルトン～約 325,000 ダルトンの範囲であってよい。

## 【0046】

10

[00051] 幾つかの態様においては、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を有するポリ(ビニルアセタール)樹脂は、比較のポリ(ビニル n-ブチラール)樹脂よりも高い可塑剤との相溶性を有することができる。与えられた可塑剤中におけるポリ(ビニルアセタール)樹脂のより高い相溶性は、その可塑剤中における樹脂の曇り点として測ることができる。本明細書において用いる「曇り点」という用語は、溶解している固形分もはや液体中に完全には可溶でない温度を指す。曇り点は、室温において 0.05 グラムの樹脂を 1.95 グラムの可塑剤と混合し、次にシリコーン油浴中、連続攪拌条件下において、樹脂が完全に溶解して溶液が透明になるまで混合物を加熱することによって測定される。次に加熱を停止し、温度を連続的に監視する。溶液が曇り始める(これは、溶液からの固形の樹脂の沈澱を示している)温度が曇り点温度である。

## 【0047】

20

[00052] 幾つかの態様においては、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂は、1種類以上の可塑剤中において比較のポリ(ビニル n-ブチラール)樹脂よりも低い曇り点を有することができる。これらの可塑剤に関しては、これは比較のポリ(ビニル n-ブチラール)樹脂よりも高い可塑剤との相溶性を示している。幾つかの態様においては、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂は、与えられた可塑剤中において、比較のポリ(ビニル n-ブチラール)樹脂の曇り点温度よりも少なくとも約 1、少なくとも約 2、少なくとも約 5、又は少なくとも約 10 低い曇り点温度を有することができる。

## 【0048】

30

[00053] 更に、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂は、比較のポリ(ビニル n-ブチラール)樹脂よりも低い粘度を有することができる。例えば、幾つかの態様においては、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂の粘度は、比較のポリ(ビニル n-ブチラール)樹脂の粘度よりも少なくとも約 5%、少なくとも約 10%、少なくとも約 15%、又は少なくとも約 20% 低くすることができる。本明細書において用いる溶液粘度は、Cannon Instrument Company, State College, PA から商業的に入手できる Cannon Fenske 毛細管粘度計サイズ 400 を用いて、20 において 7.5% のメタノール溶液中で測定した。溶液を調製したら、溶液を 20 ± 0.1 の水浴中において少なくとも 30 分間平衡化する。粘度計を水浴中に配置し、高速流ピペットを用いて、流体を加圧バルブによって粘度計の上部の印を超えて押出すことによって 10 mL の溶液を粘度計に移し、液体レベルが上部の印と下部の印の間を通過するのにかかる時間を記録する。n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂の粘度は、比較のポリ(ビニル n-ブチラール)樹脂の粘度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、又は少なくとも約 30 センチポアズ (c p s) 低くすることができる。

## 【0049】

40

[00054] 更に、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂はまた、比較のポリ(ビニル n-ブチラール)樹脂のガラス転移温度と異なるガラス転移温度を有することもできる。例えば、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒ

50

ドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂のガラス転移温度は、比較のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂のガラス転移温度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%、又は少なくとも約25%高いか又は低くてよい。n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)のガラス転移温度は、比較のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂のガラス転移温度よりも少なくとも約2%、少なくとも約3%、少なくとも約3.5%、少なくとも約4%、少なくとも約4.5%、少なくとも約5%、少なくとも約6%、少なくとも約10%、又は少なくとも約12%高いか又は低くてよい。

#### 【0050】

[00055]幾つかの態様においては、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂は、約83以下、約82以下、約80以下、約75以下、約70以下、約65以下、約60以下、又は約55以下のガラス転移温度を有することができ、一方、他の態様においては、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂のガラス転移温度は、上記に記載のように測定して少なくとも約80%、少なくとも約82%、少なくとも約83%、少なくとも約84%、少なくとも約85%、又は少なくとも約86%であってよい。2種類以上のポリ(ビニルアセタール)樹脂を組成物、層、又は中間膜中に存在させる場合には、1つの樹脂と少なくとも1つ又はそれ以上の他の樹脂との間のガラス転移温度の差は、少なくとも約2%、少なくとも約5%、少なくとも約10%、又は少なくとも約15%であってよい。

10

#### 【0051】

[00056]更に、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂はまた、比較のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂と異なる屈折率を有することもできる。屈折率は、ASTM-D542にしたがって、589nmの波長及び25において測定した。n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂の屈折率は、比較のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂の屈折率よりも少なくとも約0.001、少なくとも約0.002、少なくとも約0.003、少なくとも約0.004、少なくとも約0.005、及び/又は約0.010以下、約0.007以下、又は約0.006以下高いか又は低くてよく、或いはこの差は、約0.001~約0.010、約0.002~約0.007、又は約0.003~約0.006の範囲であってよい。幾つかの態様においては、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂の屈折率は、少なくとも約1.480、少なくとも約1.481、少なくとも約1.482、少なくとも約1.483、又は少なくとも約1.484であってよい。幾つかの態様においては、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂の屈折率は、約1.490以下、約1.489以下、約1.488以下、約1.487以下、約1.486以下、約1.485以下、約1.484以下、約1.483以下、約1.482以下、約1.481以下、又は約1.480以下であってよい。n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂の屈折率は、約1.480~約1.490、約1.482~約1.489、又は約1.483~約1.488の範囲であってよい。

20

30

40

#### 【0052】

[00057]上記で議論したように、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂は、幾つかの態様においてはポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂と物理的に混合することができ、或いはn-ブチルアルデヒドの残基を更に含ませることができる。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)樹脂成分を含むかかる組合せも、ガラス転移温度、粘度、屈折率などの予期しなかった特性を示すことができる。本明細書において用いる「ポリ(ビニルアセタール)樹脂成分」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、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部分のいずれかを指す。本発明の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

50

脂成分のブレンドは、それぞれの個々の成分と異なる特性を示すことができるだけでなく、その組合せに関して予期しなかった特性を示すこともできる。

#### 【0053】

[00058] 例えば、幾つかの態様においては、樹脂組成物に第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。第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分は、選択された樹脂特性に関して第1の値Aを有していてよく、第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分は、同じ選択された樹脂特性に関して第2の値Bを有していてよい。複数のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分が単一の樹脂上に異なるアセタール部分を含む場合には、選択された樹脂特性に関する値A及びBは、そのアルデヒドの残基のみを含むポリ(ビニルアセタール)樹脂によって示されるその特性に関する値に対応する。例えば、第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分が*i*-ブチルアルデヒドの残基を含んでいた場合には、第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分に関する選択された樹脂特性に関する値Aは、*i*-ブチルアルデヒドの残基のみを含むポリ(ビニルアセタール)樹脂に関するその特性の値である。選択された樹脂特性は、ポリ(ビニルアセタール)樹脂の任意の測定可能な特性であってよい。樹脂特性の例としては、ガラス転移温度、tan $\delta$ 、屈折率、粘度、メルトフロー、耐衝撃性など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、樹脂特性は、ガラス転移温度、tan $\delta$ 、屈折率、及び粘度からなる群から選択することができる。10

#### 【0054】

[00059] 本発明の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)樹脂成分を含み、これらはY及びZ重量%のそれぞれの量で組成物中に存在させができる樹脂組成物は、下記の等式(1)：20

$$C' = (Y \times A) + (Z \times B) \quad (1)$$

によって算出される計算値C'の約15%以内、約10%以内、又は約5%以内の値に等しくない選択された樹脂特性に関する実際値Cを有していてよい。

#### 【0055】

[00060] 幾つかの態様においては、樹脂組成物に関する選択された樹脂特性の実際値Cは、第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分の選択された樹脂特性の値Aにより近接して、AとCの間の差の絶対値がCとBの間の差の絶対値よりも小さくなっていてよい。他の態様においては、選択された樹脂特性の実際値Cは、第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分の選択された樹脂特性の値Bにより近接して、BとCの間の差の絶対値がCとAの間の差の絶対値よりも小さくなっていてよい。30

#### 【0056】

[00061] 更に、第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分は、他の樹脂特性に関してそれぞれ第1及び第2の値R及びSを有していてよく、樹脂組成物は他の特性に関する値Tを有していてよい。幾つかの態様においては、実際の組成物の値Tは、下記の等式(2)：40

$$T' = (Y \times R) + (Z \times S) \quad (2)$$

によって算出される値T'の約15%以内、約10%以内、又は約5%以内の値を有していないなくてもよい。

#### 【0057】

[00062] しかしながら、他の態様においては、少なくとも1つの樹脂特性は、上記の等式(2)によって求められる計算値T'の約15%以内、約10%以内、約5%以内、約2%以内の実際の組成物の値を有していてよく、或いはかかる計算値と同等であってよい。幾つかの態様においては、R、S、及びTに関する値は実質的に同等であって、それぞれの値が他のそれぞれの約15%以内、約10%以内、又は約5%以内になっていてよい。第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分並びに樹脂組成物は、上記に記載の1以上の範囲内の1以上の他の特性を含んでいてよい。第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分、第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分、及びノ又は樹脂組成物は、上記に与えた1以上の範囲内のガラス転移温度及び粘度などの他の樹脂特性に関する値を有していてよい50

。

## 【0058】

[00063]樹脂層又は中間膜がn-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含む少なくとも1種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む場合には、この層又は中間膜はまた、ポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂並びに同じタイプの同じ量の可塑剤から形成される比較の樹脂層と比べて予期しなかったか又は向上した特性を示すこともできる。本明細書において用いる「比較のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂層」という用語は、上記に規定する比較のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂、及び与えられた層と同じタイプの可塑剤を同じ量で用いて形成される樹脂層を指す。

## 【0059】

[00064]n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を有する少なくとも1種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む樹脂層は、比較のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂層と異なるガラス転移温度を有することができる。例えば、種々の態様においては、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を有するポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む樹脂層のガラス転移温度は、比較のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂層のガラス転移温度よりも少なくとも約0.25、少なくとも約0.50、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3、少なくとも約4、又は少なくとも約5高いか又は低くてよい。幾つかの態様においては、上記に記載のように測定して、n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を有するポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む樹脂層のガラス転移温度は、少なくとも約25、少なくとも約30、少なくとも約35、又は少なくとも約37であってよく、一方、幾つかの態様においては、これは約25未満、約20以下、約15以下、約10以下、約5以下、約2以下、約1以下、約0以下、約-1以下、約-2以下であってよい。

## 【0060】

[00065]本発明の幾つかの態様によれば、樹脂層は、例えば約46より高いガラス転移温度のような高いガラス転移温度を有することができる。かかる樹脂層(これは、単一層の中間膜として用いることもでき、或いは1以上の他の層と組み合わせて二重層中間膜又は3つ以上の層を含む多層中間膜を形成することができる)は、高いレベルの耐衝撃性又は強度が必要な用途において用いることができる。種々の態様においては、かかる中間膜は、少なくとも10重量%のn-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含む少なくとも1種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び可塑剤を混合することによって形成することができる。可塑剤は、例えば少なくとも約1phr、少なくとも約2phr、少なくとも約5phr、及び/又は約30phr以下、約25phr以下、約20phr以下、約15phr以下、又は約10phr以下、或いは約1phr～約30phr、約2phr～約25phr、約5phr～約15phr、約5phr～約30phr、又は約5phr～約20phrの範囲の量のような、46より高いガラス転移温度を有する樹脂層を与える量で組成物中に存在させることができる。本層又は中間膜のガラス転移温度は、少なくとも約30、少なくとも約37、少なくとも約40、少なくとも約46、少なくとも約48、少なくとも約50、少なくとも約52、少なくとも約54、少なくとも約55、少なくとも約60、少なくとも約65、又は少なくとも約70であってよい。

## 【0061】

[00066]幾つかの態様においては、かかる層及び中間膜は、少なくとも1つの硬質基材(その例は下記に示す)を有する多層パネルにおいて用いることができる。硬質基材は任意の透明の硬質基材であってよい。幾つかの態様においては、硬質基材はガラス基材であってよく、例えばガラス基材は、板ガラス、フロートガラス、湾曲ガラス、波型ガラス、強化ガラス、耐熱ガラス、曲げガラス、化学強化ガラス、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。幾つかの態様においては、ガラス基材は、湾曲ガラス、波型ガラス、強化ガラス、耐熱ガラス、曲げガラス、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。1以上の異なるタイプの硬質基材を含む多層パネルの更なる態様を直

10

20

30

40

50

ぐ後に詳細に議論する。

【0062】

[00067] n - プチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含む少なくとも1種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む樹脂層はまた、例えば屈折率のような向上した光学特性を示すこともできる。幾つかの態様においては、n - プチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含む少なくとも1種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む樹脂層の屈折率は、比較のポリ(ビニルn - ブチラール)樹脂層の屈折率よりも少なくとも約0.001、少なくとも約0.002、少なくとも約0.003、少なくとも約0.004、少なくとも約0.005、及び/又は約0.010以下、約0.007以下、又は約0.006以下高いか又は低くてよい。n - プチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含む少なくとも1種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む樹脂層の屈折率と比較のポリ(ビニルn - ブチラール)樹脂層の屈折率の間の差は、0.001~約0.010、約0.002~約0.007、又は約0.003~約0.006の範囲であってよい。  
10

【0063】

[00068]幾つかの態様においては、n - プチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を有する少なくとも1種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む樹脂層の屈折率は、上記に記載のように測定して、少なくとも約1.470、少なくとも約1.471、少なくとも約1.472、少なくとも約1.473、少なくとも約1.474、少なくとも約1.475、少なくとも約1.476、少なくとも約1.477、少なくとも約1.480、及び/又は約1.490以下、約1.489以下、約1.488以下、約1.487以下、約1.486以下、約1.485以下、約1.484以下、約1.483以下、約1.482以下、約1.481以下、約1.480以下、又は約1.479以下、或いは約1.478以下であってよい。n - プチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を有する樹脂層の屈折率は、約1.470~約1.490、約1.572~約1.488、約1.475~約1.486、約1.477~約1.485、約1.480~約1.484の範囲であってよい。  
20

【0064】

[00069]幾つかの態様においては、n - プチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を有する少なくとも1種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む樹脂層はまた、例えば比較のポリ(ビニルn - ブチラール)樹脂層と比べて向上したtanのような向上した音響特性を示すこともできる。tan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の値である。より高いtanの値はより高い減衰を示しており、これはより良好な音響減衰性又は音響性能に変換することができる。  
30

【0065】

[00070]幾つかの態様においては、n - プチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を有する少なくとも1種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む樹脂層のtanは、比較のポリ(ビニルn - ブチラール)樹脂のtanよりも少なくとも約1%、少なくとも約2%、少なくとも約3%、少なくとも約4%、少なくとも約5%、少なくとも約10%、少なくとも約15%、又は少なくとも約20%高くてよい。n - プチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む樹脂層のtanは、上記に記載のように測定して、少なくとも約0.70、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1.15、少なくとも約1.20、少なくとも約1.25、少なくとも約1.30、少なくとも約1.35、又は少なくとも約1.40であってよい。  
40

【0066】

[00071]更に、樹脂層又は中間膜が少なくとも第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)樹脂成分を少なくとも1種類の可塑剤と一緒に含  
50

む場合には、層又は中間膜の 1 以上の特性は予期したものと異なるものになる可能性がある。例えば、 $x p h r$  の可塑剤を Y 重量 % の第 1 のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分及び Z 重量 % の第 2 のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分と一緒に含んでいてよい樹脂層はまた、下記の等式(3)によって求められる計算値 D' に等しくない少なくとも 1 つの樹脂層の特性に関する実際値 D を有する可能性がある。等式(3)においては、E は第 1 のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分のみを含む樹脂及び  $x p h r$  の可塑剤から形成される樹脂層に関する選択された層の特性の値であり、F は第 2 のポリ(ビニルアセタール)樹脂成分のみを含む樹脂及び  $x p h r$  の可塑剤から形成される樹脂層に関する選択された樹脂層の特性の値である。

## 【0067】

10

$$D' = (Y \times E) + (Z \times F) \quad (3)$$

[00072]樹脂層の特性の例としては、ガラス転移温度、屈折率、及び  $tan$  を挙げることができるが、これらに限定されない。これらの特性に関する値は、上記に与えた範囲内であってよい。更に、樹脂組成物中に存在する可塑剤の量は、上記の任意の範囲内であつてよい。樹脂層はまた、上記の等式(3)によって求められる計算値 D' の約 15 以内、約 10 以内、又は約 5 % 以内の値に等しくない少なくとも 1 つの他の実際の樹脂層の値を有する可能性があり、及び / 又は上記の等式(3)によって求められる計算値 D' の約 15、約 10、約 5、約 2 以内、又はこれに等しい少なくとも 1 つの他の実際の樹脂層の値を有する可能性がある。種々の態様においては、E 及び F は、両方とも、実際の樹脂層の値 D の約 15 % 以内、約 10 % 以内、又は約 5 % 以内の値を有していてよい。

20

## 【0068】

[00073]本発明の種々の態様によれば、望ましい最終特性を有するブレンドされた樹脂組成物、層、又は中間膜を与えるために、少なくとも第 1 のポリ(ビニルアセタール)樹脂又はその前駆体及び第 2 のポリ(ビニルアセタール)樹脂又はその前駆体を選択してブレンドすることを含むポリマー中間膜の製造方法が提供される。この方法には、例えばガラス転移温度、屈折率、粘度、 $tan$ 、耐衝撃性、メルトフロー、及びこれらの組合せからなる群から選択される 1 以上の特性などの少なくとも 1 つの樹脂層の特性を同定する工程を含ませることができる。1 以上の樹脂層の特性に関する目標値は、上記に与えた少なくとも 1 つの範囲内であってよい。

## 【0069】

30

[00074]この方法にはまた、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)樹脂成分を選択及びブレンドして、ブレンドされた樹脂組成物を与える工程を含ませることもできる。第 1 及び第 2 のポリ(ビニルアセタール)樹脂又はその前駆体のタイプ及び量は、ここに記載する任意のものにすることができる、幾つかの態様においてはここに記載する任意のものであってよい。ブレンドが第 1 及び第 2 のポリ(ビニルアセタール)樹脂をブレンドすることを含む場合には、ブレンドに溶融ブレンド工程を含ませることができ、これは少なくとも約 150、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、ブレンドが複数のポリ(ビニルアセタール)樹脂前駆体をブレンドすることを含む場合には、ブレンド工程に、第 1 及び第 2 のアルデヒドを混合し、混合したアルデヒドを用いてブレンドされた樹脂を形成することを含ませることができる。幾つかの態様においては、アルデヒドは、樹脂を形成する前に混合して、混合したアルデヒドをポリ(ビニルアルコール)と反応させるようにすることができる。他の態様においては、アルデヒドのブレンドの少なくとも一部はアセタール化中に行うことができる。アセタール化の後に、上記に記載のようにブレンドされた樹脂の形成を行うことができる。その後、ブレンドされた樹脂を、場合によつては上記で議論したタイプ及び量の 1 種類以上の可塑剤と組み合わせて用いて、少なくとも 1 つの樹脂層を形成することができる。

40

## 【0070】

[00075]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)樹脂成分又はその前駆体のタイプ及び / 又は量は、上記に規定した目標値の約 20 % 以内、約 10 %

50

以内、約 5 % 以内、又は約 2 % 以内である選択された樹脂層の特性に関する値が達成されるように選択することができる。幾つかの態様においては、ブレンドは、比較のポリ(ビニル n - ブチラール)樹脂よりも低いガラス転移温度を有するブレンドされた樹脂を生成させて、最終層に関して所定のガラス転移温度又は幾つかの音響特性を達成するためにより少ない可塑剤しか必要でないように行うことができる。幾つかの態様においては、ブレンドは、より低い屈折率の添加剤による希釈を最小にするため、或いは 2 つの樹脂層の屈折率の間の差を最小にするために、比較のポリ(ビニル n - ブチラール)樹脂よりも高いか又は低い屈折率を有するブレンドされた樹脂を生成させるように行うことができる。ポリ(ビニルアセタール)樹脂又はその前駆体のブレンドに関する他の用途又は使用も可能であり、本発明の種々の態様にしたがって用いることができる。

10

## 【 0 0 7 1 】

[00076] 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 以上の樹脂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、メルトプロー、及びこれらの組合せを挙げることができるが、これらに限定されない。2 以上の樹脂層を含む多層中間膜はまた、例えば共押出、ローンフィルム、メルトプロー、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。

20

## 【 0 0 7 2 】

[00077] 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 1.0 ミル、少なくとも約 1.5 ミル、少なくとも約 2.0 ミル、及び / 又は約 1.00 ミル以下、約 9.0 ミル以下、約 6.0 ミル以下、約 5.0 ミル以下、又は約 3.5 ミル以下であってよく、或いはこれは約 1.0 ミル～約 1.00 ミル、約 1.5 ミル～約 6.0 ミル、又は約 2.0 ミル～約 3.5 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 0.25 mm、少なくとも約 0.38 mm、少なくとも約 0.51 mm、及び / 又は約 2.54 mm 以下、約 2.29 mm 以下、約 1.52 mm 以下、又は約 0.89 mm 以下、或いは約 0.25 mm～約 2.54 mm、約 0.38 mm～約 1.52 mm、又は約 0.51 mm～約 0.89 mm の範囲であってよい。

30

## 【 0 0 7 3 】

[00078] 幾つかの態様においては、樹脂層又は中間膜に、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 つを楔形状にすることができます。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ます。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。

40

## 【 0 0 7 4 】

[00079] 上記に記載の樹脂組成物及び層を用いて中間膜を形成する幾つかの態様によれば、中間膜も 1 以上の改良又は向上した特性を示すことができる。中間膜は、单一又はモ

50

ノリス型の中間膜、或いは1対の隣接する樹脂層を有する二重層の中間膜を含んでいてよい。幾つかの態様においては、中間膜に、少なくとも第1、第2、及び第3の樹脂層を有していて、第2の樹脂層は第1及び第3の間にサンドイッチされている3つ以上の樹脂層を含ませることができる。中間膜が2以上の樹脂層を含む場合には、隣接する樹脂層に異なるポリ(ビニルアセタール)樹脂を含ませることができ、互いと異なる1以上の特性を与えることができる。幾つかの態様においては、隣接する層の中に存在するポリ(ビニルアセタール)樹脂は、上記に与えた範囲内の量だけ互いと相違する異なる残留ヒドロキシル及び/又はアセタール含量を有していてよい。

#### 【0075】

[00080]幾つかの態様においては、隣接する樹脂層は、例えば少なくとも約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だけ互いと異なるガラス転移温度のような異なるガラス転移温度を有していてよい。しかしながら、幾つかの態様においては、隣接する層の屈折率の間の差は、例えばn-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含む少なくとも1種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂を用いることによって最小にすることができる。例えば、幾つかの態様においては、隣接する樹脂層(その少なくとも1つはn-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む)の間の屈折率の間の差の絶対値は、約0.010以下にすることができる。幾つかの態様においては、かかる層の間の屈折率の差の絶対値は、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、約0.003以下、又は約0.002以下にすることができる。10

#### 【0076】

[00081]その結果、本発明の種々の態様による中間膜は、最適化又は向上した光学特性を示す。明澄度は、ここに記載する組成物、層、及び中間膜の光学性能を示すために用いられる1つのパラメーターであり、曇り度すなわち%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、ここに記載する樹脂ブレンド、層、及び中間膜は、ASTM-D 1003-61(1977年再認可)手順A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、Hunter Associates(Reston, VA)から商業的に入手できるモデルD25透過度計のような透過度計を用いて、それぞれが2.3mm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ポリマー試料に関して行う。20

#### 【0077】

[00082]光学性能を決定す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<sub>vis</sub>)であり、これはHunter Associates(Reston, VA)から商業的に入手できるモデルD25透過度計のような透過度計を用い、光源D 6 5において10°の観察角度で測定される。ここで与える値は、それぞれが2.3mmの厚さを有する透明ガラス(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ポリマー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、本発明の樹脂組成物、層、及び中間膜は、少なくとも約80%、少なくとも約81%、少なくとも約82%、少なくとも約83%、少なくとも約84%、少なくとも約85%、少なくとも約85.5%、少なくとも約86%、少なくとも約86.5%、少なくとも約87%、少なくとも約87.5%、少なくとも約88%、又は少なくとも約88.5%の可視透過率(%)を有することができる。30

#### 【0078】

[00083]上記の範囲内の1以上の光学特性を示すことに加えて、ここに記載する樹脂層及び中間膜はまた、所望の範囲内の音響特性を示すこともできる。例えば、幾つかの態様においては、本樹脂層及び中間膜は、少なくとも約0.10、少なくとも約0.15、少40

10

20

30

40

50

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、Brue 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。

#### 【0079】

[00084]本発明の幾つかの態様による樹脂組成物、層、及び中間膜は、樹脂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。任意の好適な硬質基材を用いることができ、幾つかの態様においては、これはガラス、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することができる。硬質基材がガラスを含む場合には、ガラスは、上記に示す群から選択することができる。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、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。このパネルは、例えば、自動車用フロントガラス及び窓、航空機用風防及び窓、船舶用途、鉄道用途等のような種々の輸送用途用のパネル、窓、扉、階段、通路、バラスター、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。

#### 【0080】

[00085]ガラスのような2つの硬質基材の間に樹脂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てアセンブリにし；(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に通して、中間膜の縁部を更に封止して更なる取扱いを可能にし；そして(6)アセンブリを、135～150

の間の温度及び150psig～200psigの間の圧力において約30分間～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、これらの両方もここ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。

#### 【0081】

[00086]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。ここ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、0.001mm～0.25mmの範囲の厚さを有していてよい。ポリ(エチレンテレフタレート)(PET)が、ポリマーフィルムを形成するのに用いる材料の一例である。

#### 【実施例】

10

20

30

30

40

50

## 【0082】

[00087]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。

[00088]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、比較材料及び本発明材料の両方の幾つかの特性を評価した。

## 【0083】

実施例1：ポリ(ビニルアセタール)樹脂の製造：

[00089]4個～8個の炭素原子のアセタール鎖長を有する幾つかの異なる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、幾つかのポリ(ビニルアセタール)樹脂を調製した。それぞれの樹脂は、まず5Lのガラス反応器内で周囲温度においてポリ(ビニルアルコール)粉末を水中に分散させることによって調製した。次に、得られたスラリーを90より高い温度に加熱してポリ(ビニルアルコール)を溶解し、次に得られた溶液を周囲温度に冷却した。アルデヒド及び酸触媒を加えると、ポリ(ビニルアセタール)ポリマーが数分以内に沈澱した。ポリ(ビニルアルコール)の目標転化率を達成するために、得られた混合物を数時間保持し、必要な場合には反応混合物を加熱して転化を促進させた。*n*-ブチルアルデヒド(*n*BuCHO)、*i*-ブチルアルデヒド(*i*BuCHO)、2-メチルブチルアルデヒド(2MeBuCHO)、2-メチルバニラルアルデヒド(2MeVanCHO)；及び2-エチルヘキサンアルデヒド(2EHC)を含む幾つかのアルデヒドを用いて種々の樹脂を形成した。

10

## 【0084】

[00090]ポリ(ビニルアセタール)固体物を溶液から沈澱させ、次に濾過によって反応流体から分離した。次に、回収された固体物を水及び水酸化カリウムで複数回洗浄して、不純物を除去し、酸触媒を中和した。次に、実験室スケールの流動層乾燥機を用いて、洗浄されたポリ(ビニルアセタール)を乾燥した。水蒸気加熱プレスを用いる標準的な圧縮成形技術を用いて、樹脂のシート試料を形成した。試料の残留ヒドロキシル含量(%)、ガラス転移温度( $T_g$ )、及び屈折率を測定し、結果を下表1に示す。

## 【0085】

【表1】

30

表1：幾つかのポリ(ビニルアセタール)樹脂の特性

樹脂	アルデヒド	PVOH (重量%)	屈折率 (nD25)	Tg(°C)
R-1	<i>n</i> -ブチルアルデヒド	18.7	1.487	78.8
R-2	<i>n</i> -ブチルアルデヒド	10.5	1.486	76.3
R-3	<i>n</i> -ブチルアルデヒド	9.1	1.483	nd
R-4	<i>i</i> -ブチルアルデヒド	18.7	1.480	88.6
R-5	<i>i</i> -ブチルアルデヒド	16.7	1.478	88.0
R-6	2-メチルブチルアルデヒド	26.7	1.488	81.1
R-7	2-メチルブチルアルデヒド	19.2	1.486	76.7
R-8	2-メチルバニラルアルデヒド	22.3	1.487	65.2
R-9	2-エチルヘキサンアルデヒド	17.3	1.486	50.7

40

nd=測定されず

## 【0086】

[00091]更に、表1に示した幾つかの樹脂のtan $\theta$ の温度の関数としてのグラフ表示を図1に示す。

[00092]表1において示されるように、同等の屈折率及び残留ヒドロキシル含量を有す

50

るが、異なるガラス転移温度を有するポリ(ビニルアセタール)樹脂を製造することができる。更に、表1に示されるように、例えば樹脂R-7(RI=1.486;T<sub>g</sub>=76.7)とR-9(RI=1.485;T<sub>g</sub>=50.7)、又はR-1(RI=1.487;T<sub>g</sub>=78.8)とR-9(RI=1.485;T<sub>g</sub>=50.7)のように、同等の屈折率を有するポリ(ビニルアセタール)樹脂が大きく異なるガラス転移温度を有する可能性がある。これにより、例えばかかる樹脂を音響多層中間膜において用いると、異なる樹脂層の間の屈折率の差を最小にしながらより少ない量の可塑剤の使用を可能にすることができる。その結果、2種類以上の上記の樹脂を用いて調製した中間膜は、以下の実施例において示されるように向上した光学及び音響特性を示すことができる。

## 【0087】

10

## 実施例2：混合ポリ(ビニルアセタール)樹脂の製造：

[00093]ポリ(ビニルアセタール)スラリーに加えたアルデヒドが2種類の異なるアルデヒドの混合物を含んでいた他は、上記の実施例1に記載のものと同様の方法で幾つかの混合ポリ(ビニルアセタール)樹脂を調製した。上記に記載のNMR及び滴定法の両方を用いて、得られた混合ポリ(ビニルアセタール)樹脂の残留ヒドロキシル含量を求めた。全ての樹脂は2重量%の残留アセテート含量を有していた。それぞれの樹脂のシートのガラス転移温度及びtan $\delta$ も測定した。結果を下表2にまとめる。

## 【0088】

## 【表2】

表2：幾つかの混合ポリ(ビニルアセタール)樹脂の特性

20

樹脂	残留nBuCHO (重量%)	残留2EHCHO (重量%)	残留2MeBuCHO (重量%)	残留2MeValCHO (重量%)	残留OH (重量%)	Tg (°C)	Tan $\delta$
R-10	42	30	-	-	26	76.5	1.5
R-11	16	49	-	-	33	76.2	0.6
R-12	57	17	-	-	24	82.1	1.7
R-13	49	24	-	-	25	78.7	1.6
R-14	40	41	-	-	17	72.5	1.8
R-15	40	42	-	-	16	70.7	1.8
R-16	55	28	-	-	15	74.3	2.1
R-17	52	28	-	-	18	77.7	1.9
R-18	38	51	-	-	9	49.0	1.8
R-19	75	11	-	-	12	68.2	2.3
R-20	75	16	-	-	7	60.4	1.2
R-21	73	17	-	-	8	55.0	2.0
R-22	75	13	-	-	10	66.0	2.2
R-23	-	81	-	-	17	50.7	1.8
R-24	-	-	71	-	27	81.1	1.8
R-25	-	-	78	-	20	76.7	2.5
R-26	-	-	-	75	23	65.2	1.9

nd=測定されず

## 【0089】

## 実施例3：ポリ(ビニルアセタール)樹脂の屈折率マッ칭：

[00094]上記の実施例1において調製した幾つかの樹脂を、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)、又はテトラエチレングリコールジ(2-エチルヘキサノエート)(4GEH)と溶融ブレンドした。次に、可塑化した樹脂をシートに成形し、それぞれのシートのガラス転移温度及び屈折率を測定し

50

た。3GEH及び4GEHを用いて可塑化した樹脂に関する結果を、それぞれ下表3a及び3bに示す。

【0090】

【表3a】

表3a：3GEH可塑剤を含むポリ(ビニルアセタール)樹脂層の特性

樹脂	残留ヒドロキシル 含量 (重量%)	3GEH 可塑剤含量						
		20phr	38phr	50phr	70phr	75phr		
		T <sub>g</sub> (°C)	RI	T <sub>g</sub> (°C)	RI	T <sub>g</sub> (°C)	RI	T <sub>g</sub> (°C)
R-1	18.7	nd	nd	32.0	1.476	nd	nd	nd
R-2	10.5	nd	nd	21.1	1.475	9.14	1.472	nd
R-3	9.1	51	1.480	nd	nd	nd	0	1.466
R-4	18.7	nd	nd	33.8	1.474	nd	nd	nd
R-5	16.7	52	1.481	31.0	1.474	18	1.471	nd
R-9	17.3	nd	nd	13.4	1.472	6.7	1.470	nd

nd=測定されず

【0091】

【表3b】

樹脂	残留ヒドロキシル 含量 (重量%)	4GEH 可塑剤含量					
		35phr	38phr	50phr	70phr	T <sub>g</sub> (°C)	R <sub>I</sub>
R-1	18.7	31	1.478	nd	nd	nd	nd
R-2	10.5	nd	nd	nd	nd	nd	nd
R-5	16.7	nd	nd	31.0	1.475	nd	nd
R-9	17.3	nd	nd	nd	nd	3	1.473

nd=測定されず

【 0 0 9 2 】

[00095]更に、表 3 a に示す幾つかの可塑化樹脂に関する  $t_{an}$  の温度の関数としてのグラフ表示を図 2 に示す。

[00096]多層中間膜を調製する際には、1種類以上より高いガラス転移温度の樹脂を外側の「スキン」層、及びより低いガラス転移温度の1種類又は複数の樹脂を内側の「コア」層として含ませることがしばしば望ましい。かかる構成によって中間膜の取扱いが容易になり、並びに音響性能も与えながらそれに機械強度及び衝撃強度が与えられる。表3a及び3bに示されるように、より少ない残留ヒドロキシル含量を有する樹脂は、通常はより多い可塑剤含量を含み、より多いヒドロキシル含量でより少ない可塑剤含量の樹脂層よりも低いガラス転移温度を示す。

【 0 0 9 3 】

[00097] それぞれ多層中間膜におけるスキン及びコア層として好適な表3a及び3bに示す高いガラス転移温度及び低いガラス転移温度の樹脂の幾つかの組合せを下表4に示す。

【 0 0 9 4 】

【表4】

表4：ポリ(ビニルアセタール)樹脂の組合せの特性

中間膜	スキン				コア				$\Delta T_g$ (スキン- コア)	$\Delta RI$ (スキン- コア)
	樹脂	可塑剤	T <sub>g</sub>	RI	樹脂	可塑剤	T <sub>g</sub>	RI		
C-I-1	R-1	38 (3GEH)	32	1.476	R-2	70 (3GEH)	0	1.466	32	0.010
D-I-1	R-4	38 (3GEH)	33.8	1.474	R-3	70 (3GEH)	0	1.468	33.8	0.006
D-I-2	R-5	38 (3GEH)	31	1.474	R-3	70 (3GEH)	0	1.468	31	0.006
D-I-3	R-5	38 (4GEH)	31	1.475	R-2	70 (4GEH)	0	1.471	31	0.004
D-I-4	R-1	38 (4GEH)	31	1.478	R-9	50 (4GEH)	3	1.473	28	0.005
D-I-5	R-5	38 (4GEH)	31	1.475	R-9	50 (4GEH)	3	1.473	28	0.002

## 【0095】

[00098]表4に示されるように、比較中間膜C-I-1は、低いガラス転移温度のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂(R-2)を有する樹脂層に隣接する高いガラス転移温度のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂(R-1)を有する樹脂層を含んでいた。これらの2つの樹脂の屈折率の間の差は0.010であり、これは最終中間膜において減少した明澄度又は曇り度及び/又は色斑のような光学欠陥を引き起こすのに十分に高い。

## 【0096】

[00099]しかしながら、本発明中間膜D-I-1～D-I-5の高いガラス転移温度及び低いガラス転移温度の樹脂は、最大で0.006の屈折率の差(D-I-1及びD-I-2)、及び0.002のように小さい差(D-I-5)を有していた。本発明中間膜D-I-1～D-I-5は比較中間膜C-I-1より小さい屈折率の差を有しており、これは最終積層製品においてより少ない光学欠陥に変換することができる。しかしながら、表4に示されるように、本発明中間膜D-I-1～D-I-5は、比較中間膜C-I-1と同等のスキン層とコア層

10

20

30

40

50

の間のガラス転移温度の差を有しており、その結果、本発明中間膜は向上した光学品質を示しながら比較中間膜 C I - 1 の強度及び音響特性を保持する。

#### 【0097】

実施例4：混合ポリ（ビニルアセタール）樹脂の特性：

[000100]上記の実施例1に記載したようにして、それぞれn-ブチルアルデヒド及びi-ブチルアルデヒドを用いて2種類のポリ（ビニルアセタール）樹脂R-10及びR-11を形成した。次に、得られたポリ（ビニルn-ブチラール）（PVB）樹脂（R-10）及びポリ（ビニルi-ブチラール）（PViB）樹脂（R-11）を幾つかの部分に分割し、種々の量の3GEHと溶融ブレンドした。50重量%のポリ（ビニルn-ブチラール）樹脂R-10及び50重量%のポリ（ビニルi-ブチラール）樹脂R-11を混合及び溶融ブレンドすることによって、更なるポリ（ビニルアセタール）樹脂（R-12）を形成した。混合樹脂R-12も幾つかの部分に分割して、種々の量の3GEHと混合した。それぞれの可塑化樹脂試料の屈折率を測定し、可塑剤含量の関数として示す結果を図3においてグラフで示す。  
10

#### 【0098】

[000101]図3に示されるように、ポリ（ビニルi-ブチラール）樹脂R-11は、他の2種類の樹脂とは異なり、試験した3つの樹脂の中で最も低い屈折率を示し、約20phrの可塑剤装填量まで実質的に一定の屈折率を維持した。更に、図3に示されるように、これらの樹脂のいずれも、可塑剤装填量と屈折率の間に厳密な直線関係は示さなかった。それぞれの可塑剤装填量に関して、ブレンドされた樹脂R-12はその成分樹脂の屈折率の間の屈折率を有していたが、その値は2つの算術平均ではなかった。  
20

#### 【0099】

[000102]実施例1に記載したものと同様の方法で、しかしながら当重量のi-ブチルアルデヒドとn-ブチルアルデヒドを含んでいた混合アルデヒドを用いて、他の混合ポリ（ビニルアセタール）樹脂（R-13）を形成した。得られた複合樹脂R-13は、i-ブチルアルデヒドとn-ブチルアルデヒドの両方の部分を含むアセタール成分を有しており、物理的にブレンドした樹脂R-12と同様の可塑剤装填量の関数としての屈折率の傾向を示した。

#### 【0100】

[000103]また、種々の量の3GEH可塑剤を有する樹脂R-10、R-11、物理的にブレンドした樹脂R-12、及び複合樹脂R-13に関して、ガラス転移温度、tan $\delta$ 及び（7.5重量%メタノール溶液中における）粘度を含む幾つかの更なる特性も測定した。結果を下表5にまとめた。更に、ニートの樹脂R-10及びR-11に関するそれぞれの特性の値の算術平均を表5に示す。  
30

#### 【0101】

【表5】

表5：ボリ（ビニルアセタール）樹脂及び混合ボリ（ビニルアセタール）樹脂の特性

成分 重量% 混合法	樹脂					
	R-10 PV <sub>B</sub>	R-11 PV <sub>B</sub>	R-12 PV <sub>B</sub> /PV <sub>B</sub> 50/50 ブレンド	R-13 PV <sub>B</sub> /PV <sub>B</sub> 50/50 複合	R-10&R-11 樹脂の 算術平均	
	100	100	-	-		
樹脂						
Tg (°C)	79	89	75, 89	83.6	84	
屈折率 (nD25)	1.487	1.48	1.483	1.483	1.484	
tanδ	2.35	2.75	2.02	2.64	2.55	
粘度 (cps)	175	122	137	115	148.5	
20phr の 3GEH を有する樹脂						
Tg (°C)	46	52	49.5	51	49	
屈折率 (nD25)	1.483	1.481	1.481	1.483	1.482	
tanδ	1.58	1.75	1.83	1.33	1.67	
38phr の 3GEH を有する樹脂						
Tg (°C)	30	34	31.2	30.2	32	
屈折率 (nD25)	1.476	1.474	1.477	1.476	1.475	
tanδ	1.25	1.45	1.21	1.32	1.35	

## 【0102】

[000104]表5に示されるように、ブレンドされた樹脂R-12及びR-13に関して得られた幾つかの測定された特性の値は、ブレンドの構成成分であるニートの樹脂R-10及びR-11に関して得られた値の間であるが、必ずしもその平均ではない。更に、ガラス転移温度及び屈折率のような幾つかの特性は、ニートの樹脂R-10及びR-11と混合樹脂R-12及びR-13の間で僅かしか変化せず、一方、粘度及びtanδのような他のものは僅かにより大きな変化を示す。かかる情報によって、種々の中間膜の用途のた

10

20

30

40

50

めの所望の特性又は複数の特性の組合せを与える特定の樹脂又は樹脂ブレンドの選択が容易になる。

### 【0103】

実施例5：混合ポリ（ビニルアセタール）樹脂の特性：

[000105]実施例1において上記に記載したようにして、2種類のアルデヒドを種々の比で用いてポリ（ビニル*i*-ブチラール）（PVB）及びポリ（ビニル2-エチルヘキサナール）（PV2EH）樹脂を調製した。混合アセタール樹脂のガラス転移温度、並びに純粋なPVB及びPV2EH樹脂のガラス転移温度を求め、結果を下表6にまとめる。

### 【0104】

【表6】

表6：PVB及びPV2EHのブレンドのガラス転移温度

樹脂	PVB (重量%)	PV2EH (重量%)	PV2EH:PVB の比	残留ヒドロキシル 含量 (重量%)	T <sub>g</sub> (°C)
R-14	81.2	0.0	-	18.9	79.8
R-15	86.5	0.0	-	13.5	77.7
R-16	75.0	11.0	0.15:1	15.5	63.2
R-17	75.0	13.0	0.17:1	14.6	61.0
R-18	75.0	16.0	0.21:1	12.4	55.4
R-19	73.0	17.0	0.23:1	12.1	50.0
R-20	57.0	17.0	0.30:1	25.0	77.1
R-21	49.0	24.0	0.49:1	26.4	73.7
R-22	55.0	28.0	0.51:1	18.1	69.3
R-23	52.0	28.0	0.54:1	19.1	72.7
R-24	42.0	30.0	0.71:1	27.0	71.5
R-25	40.0	41.0	1.03:1	19.2	67.5
R-26	40.0	42.0	1.05:1	19.9	65.7
R-27	38.0	51.0	1.34:1	12.9	44.0
R-28	16.0	49.0	3.06:1	35.0	71.2
R-29	0.0	81.7	-	17.3	50.7

### 【0105】

[000106]表6に示されるように、ポリ（ビニル*n*-ブチラール）及びポリ（ビニル2-エチルヘキサナール）を種々の比で用いて、広範囲のガラス転移温度を有する混合ポリ（ビニルアセタール）樹脂を製造することができる。しかしながら、下表7に示されるように、等重量部のPVB及びPV2EHを有する混合アセタールはまた、表6に示す範囲にわたって一定の屈折率も示す。

### 【0106】

## 【表7】

表7 : PVBとPV2EHのブレンドの更なる特性

成分 重量%	樹脂		
	R-30 PVB	R-31 PV2EH	R-32 PVB/PV2EH
	86.5	81.7	40/41
樹脂の Tg (°C)	77	51	68
屈折率	1.486	1.486	1.486
38phr の 3GEH における Tg (°C)	28.5	18.4	20

## 【0107】

[000107] 而して、PVB及びPV2EHのような樹脂を、広いブレンド範囲にわたって異なるガラス転移温度を示すが、実質的に同等の屈折率を有する混合ポリ(ビニルアセタール)樹脂に配合することができる。

## 【0108】

実施例6：高流動性ポリ(ビニルアセタール)樹脂の製造：

[000108] 上記の実施例1に記載した手順にしたがって、n-ブチルアルデヒド(BuCHO)を用いて98%～98.8%の加水分解ポリ(ビニルアルコール)(PVOH)をアセタール化することによって、ポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂(R-33)を調製した。PVOHは、20において4%の水中で測定して28cps～32cpsの間の粘度を有していた。全く同じ条件下において、しかしながらi-ブチルアルデヒド(iBuCHO)を用いてポリ(ビニルi-ブチラール樹脂)(R-34)を調製した。また、同じ条件下において、しかしながら18.5cps～21.5cpsの間の粘度を有する加水分解ポリ(ビニルアルコール)(PVOH)を用いて、2種類の更なる樹脂(1つはポリ(ビニルn-ブチラール)(R-35)、1つはポリ(ビニルi-ブチラール)(R-36))も調製した。得られた樹脂R-33～R-36の粘度を、20においてメタノールの7.5%溶液中で測定し、結果を下表8にまとめる。

## 【0109】

## 【表8】

表8；ポリ(ビニルn-ブチラール)及び  
ポリ(ビニルi-ブチラール)樹脂の特性

樹脂	アセタール部分	PVOH 粘度 (cps)	樹脂 粘度 (cps)	樹脂 Tg (°C)	38phr の 3GEH に おける 樹脂 Tg (°C)
R-33	nBuCHO	28-32	170	78.8	30
R-34	iBuCHO	28-32	110	88.6	35
R-35	nBuCHO	18.5-21.5	90	nd	nd
R-36	iBuCHO	18.5-21.5	68	nd	nd

nd=測定されず

## 【0110】

[000109] 表8に示されるように、ポリ(ビニルi-ブチラール)樹脂R-34及びR-36は、同じポリ(ビニルアルコール)を用いて同じ条件下で調製したポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂のR-33及びR-35よりも低い粘度を示した。更に、ポリ(ビニルi-ブチラール)樹脂(R-34)は、その比較のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂(

10

20

30

40

50

R - 33、38 phr の 3GEH で可塑化した場合であっても) よりも高いガラス転移温度を示した。

#### 【0111】

実施例 7：高ガラス転移温度の樹脂の製造：

[00010] 実施例 1において上記に記載した手順にしたがって、幾つかのポリ(ビニルアセタール)樹脂を調製した。3つの樹脂は i - プチルアルデヒドを用いて調製し (R - 38 ~ R - 40)、1つは n - プチルアルデヒドを用いて形成した (R - 37)。樹脂のそれを異なる量の 3GEH 可塑剤と混合して、シートに成形した。それぞれのシートのガラス転移温度を求め、結果を下表 9 にまとめる。

#### 【0112】

10

#### 【表 9】

表 9：可塑化ポリ(ビニルアセタール)樹脂のガラス転移温度

樹脂	アセタール部分	可塑剤含量(phr)	Tg(°C)
R-37	nBuCHO	20	46
R-38	iBuCHO	20	52
R-39	iBuCHO	15	60
R-40	iBuCHO	10	70

20

#### 【0113】

[000111] 表 9 に示されるように、同じ可塑剤含量に関しては、ポリ(ビニル i - プチラール)樹脂の R - 38 は、ポリ(ビニル n - プチラール)樹脂の R - 37 よりも高いガラス転移温度を達成する。更に、ポリ(ビニル i - プチラール)樹脂の R - 38 ~ R - 40 において可塑剤のより低いレベルは上昇したガラス転移温度をもたらし、これによって、これらの樹脂に増加した耐衝撃性及び貫通抵抗性が与えられる。

#### 【0114】

30

実施例 8：ポリ(ビニルアセタール)樹脂層の可塑剤相溶性：

[000112] 上記の実施例 1 に記載のようにして、種々の残留ヒドロキシル含量の幾つかのポリ(ビニルアセタール)樹脂を調製した。樹脂の幾つかは n - プチルアルデヒドを用いて形成し、他のものは i - プチルアルデヒドを用いて形成した。0.05 グラムの樹脂を室温において 1.95 グラムの可塑剤中に混合することによって、それぞれの樹脂の曇り点温度をトリエチレングリコールビス(2-エチルヘキサノエート)中で測定した。次に、混合物を、シリコーン油浴中において連続攪拌条件下で、樹脂が完全に溶解して溶液が透明になるまで加熱した。加熱を停止し、絶えず温度を監視しながら、溶液を徐々に冷却した。溶液が曇り始めた時点での温度を、この可塑剤中における樹脂の曇り点温度であると決定した。上記に記載した方法にしたがって、幾つかの樹脂に関して残留ヒドロキシル含量の関数としての曇り点温度を測定し、結果を図 4 にグラフでまとめる。

#### 【0115】

40

[000113] 図 4 に示されるように、与えられた残留ヒドロキシル含量に関して、i - プチルアルデヒドを用いて形成した樹脂は、n - プチルアルデヒドを用いて形成した樹脂よりも低い曇り点温度を有していた。より低い曇り点温度はより高い可塑剤相溶性を示し、図 4 に示されるように、同じ残留ヒドロキシル含量に関して、i - プチルアルデヒド樹脂を用いて調製したポリ(ビニルアセタール)樹脂は、n - プチルアルデヒドを用いて形成したポリ(ビニルアセタール)樹脂よりも 3GEH とより相溶性であった。

#### 【0116】

実施例 9：ポリ(ビニルアセタール)樹脂の減衰特性：

[000114] 上記の実施例 1 に記載の手順にしたがって、それぞれが異なる残留ヒドロキシル含量を有する 2 種類のポリ(ビニル i - プチラール)アセタール樹脂の R - 41 及び R

50

- 4 2 を調製した。樹脂 R - 4 1 は 1 0 . 9 重量 % の残留ヒドロキシル含量を有しており、樹脂 R - 4 2 は 9 . 1 重量 % の残留ヒドロキシル含量を有していた。また、上記の実施例 1 に記載のようにして、しかしながら n - プチルアルデヒドを用いて他の樹脂の R - 4 3 も調製した。得られたポリ(ビニル n - プチラール)樹脂の R - 4 3 は、1 0 . 5 重量 % のヒドロキシル含量を有していた。それぞれの樹脂を、別々に種々の量の 3 G E H 又は 4 G E H 可塑剤と混合及び溶融ブレンドし、それぞれの可塑化樹脂の tan を - 2 0 ~ 3 0 の温度範囲にわたって測定した。結果を図 5 にグラフでまとめる。

#### 【 0 1 1 7 】

[000115] 図 5 に示されるように、7 5 p h r の 3 G E H で可塑化されたポリ(ビニル i - プチラール)樹脂の R - 4 2 は、0 . 5 の温度において 1 . 4 の tan を示し、これはポリ(ビニル n - プチラール)樹脂の R - 4 3 の tan よりもほぼ 3 1 % 高かった。樹脂 R - 4 2 の tan はまた、同じタイプ及び量の可塑剤を含んでいたが、樹脂 R - 4 2 よりも多い残留ヒドロキシル含量を有していた樹脂 R - 4 1 の tan よりもほぼ 1 8 % 高かった。

#### 【 0 1 1 8 】

実施例 1 0 : ポリ(ビニルアセタール)樹脂の tan 及びガラス転移温度 :

[000116] 実施例 1 に記載した手順にしたがって、2 種類のポリ(ビニルアセタール)樹脂の R - 4 5 及び R - 4 6 を調製した。両方とも同じ条件下で調製し、両方とも約 9 . 1 重量 % の残留ヒドロキシル含量を有していた。しかしながら、樹脂 R - 4 5 は i - プチルアルデヒドを用いて形成されたポリ(ビニル i - プチラール)樹脂であり、樹脂 R - 4 6 は n - プチルアルデヒドを用いて形成されたポリ(ビニル n - プチラール)であった。樹脂 R - 4 6 を 3 G E H 可塑剤と混合及び溶融ブレンドして、2 . 2 3 のガラス転移温度を有する可塑化樹脂を生成させた。

#### 【 0 1 1 9 】

[000117] また、樹脂 R - 4 5 の幾つかの試料を種々の量の 3 G E H と混合及び溶融ブレンドしたが、いずれも 2 . 2 3 のガラス転移温度を示さなかった。樹脂 R - 4 5 に関して 2 . 2 3 のガラス転移温度を達成するのに必要な可塑剤の量を求めるために、R - 4 5 の試料のそれぞれの tan 、ガラス転移温度、及び可塑剤含量を、図 6 a 及び 6 b において示す 2 つのグラフにまとめた。図 6 a 及び 6 b に示す相関関係を用いて、7 1 p h r の可塑剤含量によって 2 . 2 3 のガラス転移温度を有する可塑化樹脂 R - 4 5 が与えられると算出された。更に、図 6 b に示すグラフを用いて、得られる可塑化樹脂は 1 . 4 5 の tan を有すると算出された。而して、n - プチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含む樹脂 R - 4 5 のような樹脂は、同じガラス転移温度のためには n - プチルアルデヒドの残基のみを含む同様の樹脂よりも多い可塑剤装填量が必要であり、より高いガラス転移温度を示す。

#### 【 0 1 2 0 】

[000118] 好ましい態様であると現在考えられているものを含む幾つかの態様の記載に関連して発明を開示したが、詳細な説明は例示の意図であり、本発明の範囲を限定すると理解すべきではない。当業者に理解されるように、本明細書において詳細に記載されているもの以外の態様は本発明に包含される。発明の精神及び範囲から逸脱することなく、記載されている態様の修正及び変更を行うことができる。

#### 【 0 1 2 1 】

[000119] 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

10

20

30

40

50

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) 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の樹脂層；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の樹脂層に隣接している第2の樹脂層；

を含み；

第2の可塑剤は樹脂100部あたり少なくとも50部(phr)の量で第2の樹脂層中に存在し、第1の樹脂層中の第1の可塑剤の量と第2の樹脂層中の第2の可塑剤の量の間の差は10phrより多く；

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、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5重量%のn-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含み；そして

第1の樹脂層のガラス転移温度は第2の樹脂層のガラス転移温度よりも少なくとも3高く、そして第1の樹脂層の屈折率と第2の樹脂層の屈折率の間の差の絶対値は0.010以下である中間膜。

(2) 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、第1のポリ(ビニルアセタール)又は第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂のアルデヒドの残基の全重量を基準として少なくとも50重量%のn-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含む、(1)に記載の中間膜。

(3) n-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドはC<sub>3</sub>～C<sub>12</sub>脂肪族アルデヒドである、(1)に記載の中間膜。

(4) 中間膜は、下記の基準(i)及び(ii)：

(i) 第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は、少なくとも16重量%の残留ヒドロキシル含量及び1.485以下の屈折率を有する；及び

(ii) 第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂は75以下ガラス転移温度を有する；

の少なくとも1つを満足する、(1)に記載の中間膜。

(5) 第1及び第2の可塑剤はそれぞれ1.460未満の屈折率を有する、(1)に記載の中間膜。

(6) 第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は第1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5重量%のi-ブチルアルデヒドの残基を含み、第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は16重量%～20重量%の範囲の残留ヒドロキシル含量を有し、第1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)を含み、40phr以下の量で第1の樹脂層中に存在し、第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂は少なくとも5重量%のn-ブチルアルデヒド残基を含み、9重量%～11重量%の範囲の残留ヒドロキシル含量を有し、第2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)を含み、約70phr以下の量で第2の樹脂層中に存在し、第1の樹脂層のガラス転移温度と第2の樹脂層のガラス転移温度の差は少なくとも約20である、(1)に記載の中間膜。

(7) 第1及び第2の可塑剤はテトラエチレングリコールジ(2-エチルヘキサノエート)を含み、第1の可塑剤は40phr以下の量で第1の樹脂層中に存在し、第1の樹脂層は少なくとも30のガラス転移温度を有し、第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂は少なくとも14重量%の残留ヒドロキシル含量を有し、第2の可塑剤は50phr以下の量で第2の樹脂層中に存在し、第2の樹脂層のガラス転移温度は10以下である、(1)に記載の中間膜。

(8) 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%であり、中間膜は5%未満の疊り度を有する、(1)に記載の中間膜。

10

20

30

40

50

(9)(1)に記載の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。

(10)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の樹脂層；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の樹脂層に隣接している第2の樹脂層；

を含み；

中間膜は下記の基準(i)～(iii)：

(i)第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は第1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5重量%の*i*-ブチルアルデヒドの残基を含み、第2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)樹脂のアルデヒド残基の全重量を基準として少なくとも10重量%の6個以下の炭素原子を有するアルデヒドの残基を含み、第1の樹脂層の屈折率は比較のポリ(ビニル*n*-ブチラール)樹脂層の屈折率よりも少なくとも0.002低く、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は12重量%以下であり、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；

(ii)第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は第1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5重量%の*i*-ブチルアルデヒドの残基を含み、第2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)樹脂のアルデヒド残基の全重量を基準として少なくとも10重量%の6個より多い炭素原子を有するアルデヒドの残基を含み、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は第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よりも少なくとも0.25%高く、第2の樹脂層中の第2の可塑剤の量は第1の樹脂層中の第1の可塑剤の量よりも少なくとも樹脂100部あたり10部(phr)多い；及び

(iii)第1及び第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂のいずれも*i*-ブチルアルデヒドの残基を含まず、第2の樹脂層は比較のポリ(ビニル*n*-ブチラール)樹脂層のガラス転移温度よりも少なくとも3低いガラス転移温度を有する；

の少なくとも1つを満足する中間膜。

(11)中間膜は基準(i)を満足し、第1及び第2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)を含む、(10)に記載の中間膜。

(12)基準(ii)及び基準(iii)の少なくとも1つが満足され、第2の可塑剤は50phr以下の量で第2の樹脂層中に存在し、第2の樹脂層のガラス転移温度は10未満である、(10)に記載の中間膜。

(13)第1及び第2の可塑剤はテトラエチレングリコールジ(2-エチルヘキサノエート)を含む、(12)に記載の中間膜。

(14)第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂のガラス転移温度と第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂のガラス転移温度の間の差は少なくとも10である、(10)に記載の中間膜。

(15)第1の樹脂層の屈折率と第2の樹脂層の屈折率の間の差は0.010以下であり、中間膜は5%未満の曇り度を有する、(10)に記載の中間膜。

(16)ポリ(ビニルアセタール)樹脂及び可塑剤を含む樹脂層を含み、ポリ(ビニルアセタール)樹脂はポリ(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10重量%の少なくとも1種類の分枝脂肪族アルデヒドの残基を含み、可塑剤は少なくとも50phrの量で樹脂層中に存在し、樹脂層は少なくとも1.05のtanを有する中間膜。

(17)ポリ(ビニルアセタール)樹脂はポリ(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50重量%の少なくとも1種類の分枝脂肪族アルデヒドの残基を含む、(16)に記載の中間膜。

(18)樹脂層はポリ(ビニルアセタール)樹脂と物理的にブレンドされた他のポリ(ビニルアセタール)樹脂を更に含み、他のポリ(ビニルアセタール)樹脂は他のポリ(ビニ

10

20

30

40

50

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20重量%未満のn-ブチルアルデヒド以外のアルデヒドの残基を含む、(17)に記載の中間膜。

(19)可塑剤は少なくとも55phrの量で樹脂層中に存在し、ポリ(ビニルアセタール)樹脂は少なくとも8重量%の残留ヒドロキシル含量を有する、(16)に記載の中間膜。

(20)ポリ(ビニルアセタール)樹脂は10重量%未満の残留ヒドロキシル含量を有する、(19)に記載の中間膜。

(21)ポリ(ビニルアセタール)樹脂は比較のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂の曇り点温度よりも少なくとも5低いかかる可塑剤中における曇り点温度を有する、(16)に記載の中間膜。

(22)樹脂層は比較のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂層よりも少なくとも1%高いtanを有する、(16)に記載の中間膜。

(23)第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂を含む第1の樹脂層；並びに第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び可塑剤を含む、第1の樹脂層に隣接している第2の樹脂層；  
を含み；

第2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)樹脂のアルデヒド残基の全重量を基準として少なくとも10重量%の少なくとも1種類の分枝脂肪族アルデヒドの残基を含み、第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂は12重量%未満の残留ヒドロキシル含量を有し、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の間の差は少なくとも2重量%であり、第2の樹脂層は少なくとも1.05のtanを有する中間膜。

(24)第2の樹脂層は少なくとも1.20のtanを有し、このtanは比較のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂のtanよりも少なくとも5%高い、(23)に記載の中間膜。

(25)第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂は約10重量%以下の残留ヒドロキシル含量を有する、(23)に記載の中間膜。

(26)第2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)樹脂のアルデヒド残基の全重量を基準として少なくとも50重量%の少なくとも1種類の分枝脂肪族アルデヒドの残基を含み、第1のポリ(ビニルアセタール)樹脂は第1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10重量%のn-ブチルアルデヒドの残基を含む、(23)に記載の中間膜。

(27)第2の樹脂層は第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂とブレンドされた他のポリ(ビニルアセタール)樹脂を更に含み、他のポリ(ビニルアセタール)樹脂は他のポリ(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50重量%のn-ブチルアルデヒドの残基を含む、(23)に記載の中間膜。

(28)第1の樹脂層は第1の可塑剤を更に含み、第2の層は第2の可塑剤を更に含み、第1の樹脂層中に存在する第1の可塑剤の量と第2の層中に存在する第2の可塑剤の量の間の差は少なくとも10phrであり、第1の樹脂層のガラス転移温度と第2の樹脂層のガラス転移温度の間の差は少なくとも3である、(23)に記載の中間膜。

(29)第2のポリ(ビニルアセタール)樹脂は比較のポリ(ビニルn-ブチラール)樹脂の曇り点温度よりも少なくとも5低い第2の可塑剤中における曇り点温度を有する、(28)に記載の中間膜。

(30)(23)に記載の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。

(31)ポリ(ビニルアセタール)樹脂及び可塑剤を含む樹脂層を含み、ポリ(ビニルアセタール)樹脂はポリ(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10重量%のn-ブチルアルデヒド以外の少なくとも1種類のアルデヒドの残基を含み、可塑剤は30より高いガラス転移温度を有する樹脂層を与えるのに十分な量で樹脂層中に存在する中間膜。

(32)可塑剤は5phr~30phrの範囲の量で樹脂層中に存在し、樹脂層のガラス

転移温度は少なくとも 37 である、(31)に記載の中間膜。

(33) 可塑剤は 5 p h r ~ 20 p h r の範囲の量で樹脂層中に存在し、樹脂層のガラス

転移温度は少なくとも 46 である、(31)に記載の中間膜。

(34) 可塑剤は 5 p h r ~ 20 p h r の範囲の量で樹脂層中に存在し、樹脂層のガラス

転移温度は少なくとも 50 である、(31)に記載の中間膜。

(35) 可塑剤は 10 p h r 以下の量で樹脂層中に存在し、樹脂層のガラス 転移温度は少  
なくとも 65 である、(31)に記載の中間膜。

(36) ポリ(ビニルアセタール)樹脂はポリ(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 50 重量%の n - プチルアルデヒド以外の少なくとも  
1 種類のアルデヒドの残基を含み、ポリ(ビニルアセタール)樹脂は n - プチルアルデヒ  
ドの残基を更に含む、(31)に記載の中間膜。 10

(37) ポリ(ビニルアセタール)樹脂はポリ(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 50 重量%の n - プチルアルデヒド以外の少なくとも  
1 種類のアルデヒドの残基を含み、樹脂層はポリ(ビニルアセタール)樹脂とブレンドさ  
れた第 2 のポリ(ビニルアセタール)樹脂を更に含み、第 2 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)樹脂のアルデヒド残基の全重量を基準として少  
なくとも 50 重量%の n - プチルアルデヒドの残基を含み、第 1 及び第 2 のポリ(ビニルア  
セタール)樹脂のそれぞれは第 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 5 重量%の量で樹脂層中に存在する、(31)に記載の中間膜。

(38) 第 1 及び第 2 のポリ(ビニルアセタール)樹脂のそれぞれは第 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 10 重量%の量で樹脂層  
中に存在する、(31)に記載の中間膜。 20

(39) ポリ(ビニルアセタール)樹脂は少なくとも 80,000 ダルトンの重量平均分  
子量を有する、(31)に記載の中間膜。

(40) (31)に記載の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。

(41) 第 1 のポリ(ビニルアセタール)樹脂及び可塑剤を含み、第 1 のポリ(ビニルア  
セタール)樹脂は第 1 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 10 重量%の n - プチルアルデヒド以外の少なくとも 1 種類のアルデヒ  
ドの残基を含む第 1 の樹脂層；及び

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 の樹脂層に隣接し  
ている第 2 の樹脂層；  
を含み； 30

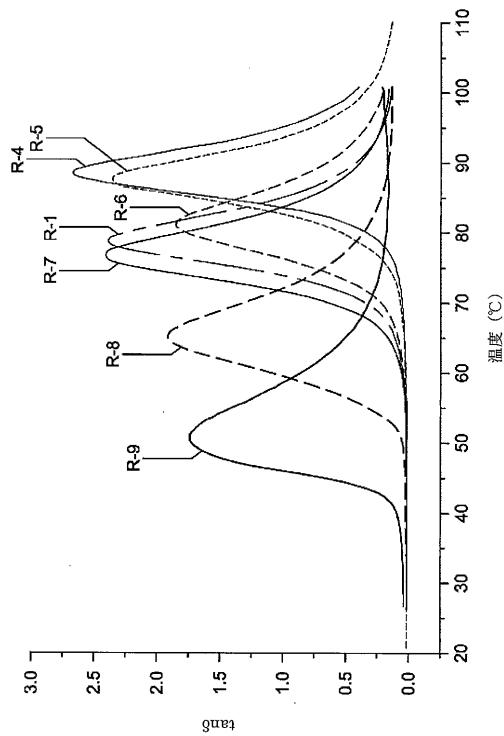
第 2 のポリ(ビニルアセタール)樹脂は 12 重量%未満の残留ヒドロキシル含量を有し  
、第 1 のポリ(ビニルアセタール)樹脂の残留ヒドロキシル含量と第 2 のポリ(ビニルア  
セタール)樹脂の残留ヒドロキシル含量の間の差は少なくとも 2 %であり；

第 1 のポリ(ビニルアセタール)樹脂は比較のポリ(ビニル n - プチラール)樹脂の粘  
度よりも少なくとも 10 %低い粘度を有し、第 1 の樹脂層は比較のポリ(ビニル n - プチ  
ラール)樹脂層よりも少なくとも 3 倍高いガラス転移温度を有するポリマー中間膜。

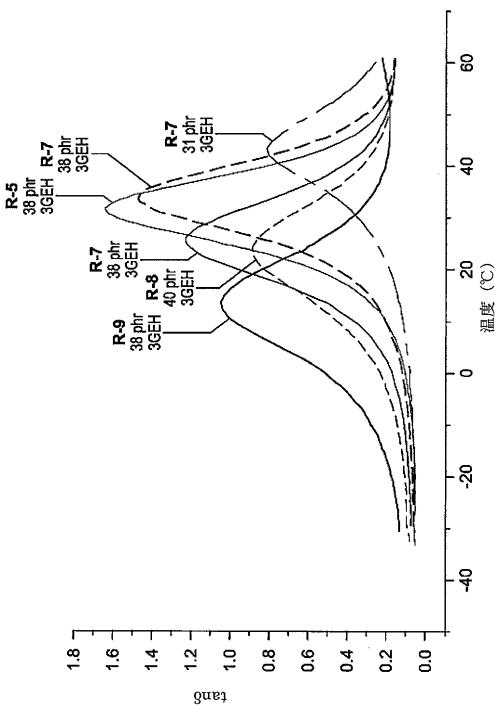
(42) 第 1 の樹脂層のガラス転移温度と第 2 の樹脂層のガラス転移温度の間の差は少  
なくとも 5 °C であり、第 1 の樹脂層中に存在する第 1 の可塑剤の量と第 2 の樹脂層中に存在  
する第 2 の可塑剤の量の間の差は少なくとも 10 p h r であり、第 2 の可塑剤は少なくとも  
42 p h r の量で第 2 の樹脂層中に存在する、(41)に記載の中間膜。 40

(43) 第 1 のポリ(ビニルアセタール)樹脂は第 1 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 50 重量%の i - プチルアルデヒドの残  
基を含み、ポリ(ビニルアセタール)樹脂の分子量は少なくとも 10,000 ダルトンで  
あり、第 2 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)樹脂のア  
ルデヒド残基の全重量を基準として少なくとも 50 重量%の n - プチルアルデヒドの残基  
を含む、(42)に記載の中間膜。

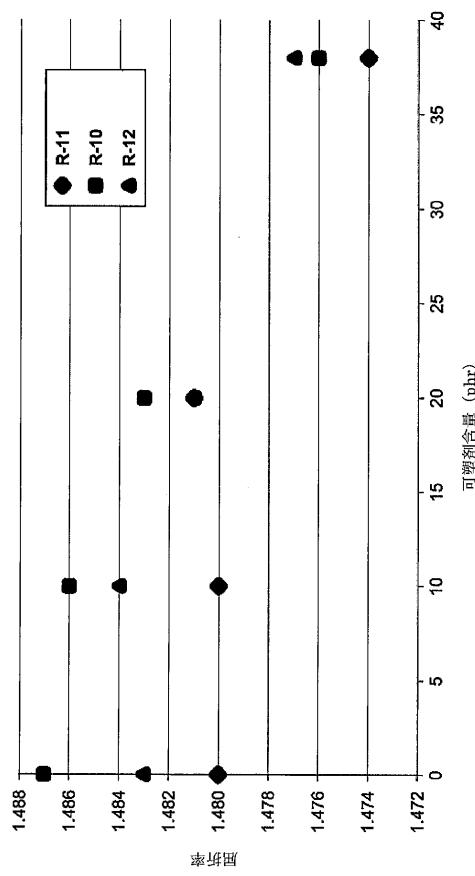
【図1】



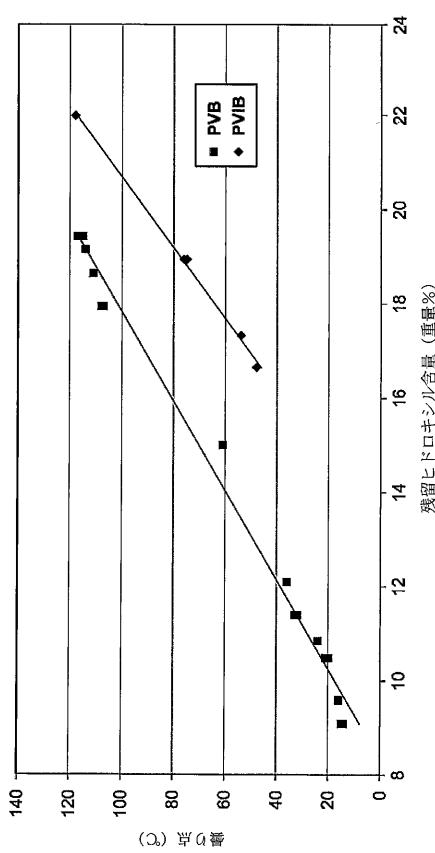
【図2】



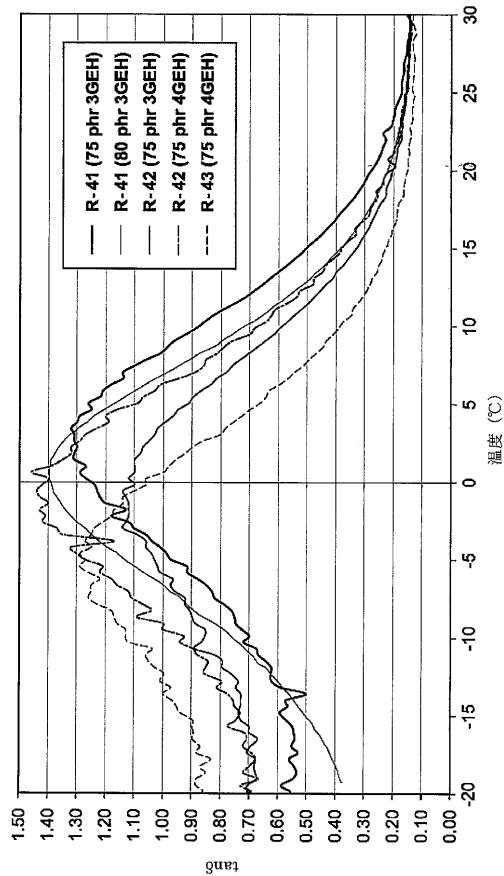
【図3】



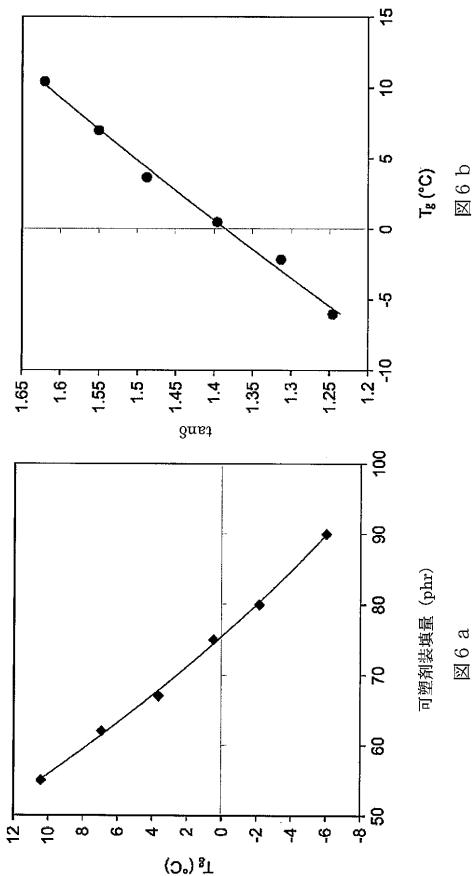
【図4】



【図5】



【図6】



---

フロントページの続き

(31)優先権主張番号 14/563,077

(32)優先日 平成26年12月8日(2014.12.8)

(33)優先権主張国・地域又は機関

米国(US)

(72)発明者 マ , イノン

アメリカ合衆国マサチューセッツ州 01106 , ロングメドー , メープル・ロード 945

(72)発明者 ウキドウェ , ナンダン・ユー

アメリカ合衆国コネチカット州 06078 , サフィールド , ラファウンテン・ロード 6

(72)発明者 ウィットコム , カイル・エヴァン

アメリカ合衆国マサチューセッツ州 01151 , ヒンガム , ボニー・ブライヤー・サークル 55

(72)発明者 カラギアンニス , アリストテリス

アメリカ合衆国マサチューセッツ州 01002 , アマースト , ウィンドフラワー・ドライブ 19

5

審査官 増田 亮子

(56)参考文献 国際公開第 2010 / 038801 (WO , A1 )

特表平 10 - 508804 (JP , A )

国際公開第 2012 / 043819 (WO , A1 )

国際公開第 2012 / 043818 (WO , A1 )

国際公開第 2012 / 108536 (WO , A1 )

特開平 05 - 104687 (JP , A )

特開 2010 - 235432 (JP , A )

特開 2013 - 022963 (JP , A )

(58)調査した分野(Int.Cl. , DB名)

B32B 1 / 00 - 43 / 00

C03C 27 / 12