

發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動)

【發明名稱】

防止缺陷形成之多層夾層

MULTIPLE LAYER INTERLAYER RESISTING DEFECT
FORMATION

【技術領域】

本發明係關於用於多層玻璃嵌板之聚合物夾層及具有至少一聚合物夾層片之多層玻璃嵌板之領域。明確言之，本發明係關於包括多個防止光學缺陷形成之熱塑性層之聚合物夾層領域。

【先前技術】

多層嵌板一般係具有一或多個夾在其間之聚合物夾層的由二個基板(諸如(但不限於)，玻璃、聚酯、聚丙烯酸酯、或聚碳酸酯)片構成之嵌板。該層壓的多層玻璃片可通常用於建築窗戶應用及機動車輛及飛機之窗、及光伏打太陽電池板中。前兩應用通常指層壓安全玻璃。在層壓安全玻璃中夾層之主要功能係吸收產生自施加於該玻璃之衝擊或力的能量，甚至當施加該力及玻璃破碎時以保持結合之玻璃層，及防止玻璃破碎為尖利碎片。此外，該夾層亦可賦予玻璃非常高隔音評定、降低UV及/或IR光透射率，及加強有關窗之美觀。關於光伏打應用，該夾層之主要功能係封裝在商業及住宅應用中用於發電及供電之光伏打太陽電池板。

為獲得玻璃嵌板之特定性質及性能特性，通常開始實踐採用多層或多層夾層。本文使用之術語「多層」意指夾層具有多於一層，且多層(multilayer)及多層(multiple layer)可交換使用。多層夾層通常含有至少一軟層及至少一硬層。具有一夾在兩個更加剛性或硬「皮」層

間之軟「核心」層之夾層經設計具有玻璃嵌板之隔音性質。已發現具有相反構造之夾層(即具有一夾在兩個更軟層間之硬層)可改良玻璃嵌板之衝擊性能及亦可設計為隔音。多層夾層之實例亦包括具有至少一「透明」或未著色層及至少一著色層或至少一習知層(例如，非聲學層)、及至少一聲學層之夾層。多層夾層之其他實例包括具有至少兩個出於美觀之不同顏色之層的夾層。著色層通常含有色素或染料或一些色素與染料之組合。夾層之層一般藉由混合諸如聚(乙烯醇縮丁醛)之聚合物樹脂與一或多種塑化劑及藉由為一般技術者熟知之任何可應用製程或方法(包括但不限於擠壓)將該混合物熔融處理為片來製備，其中該等層藉由諸如共擠壓及層壓之製程經組合。可出於各種其他目的視情況添加其他額外成分。在形成該夾層片後，通常出於運輸與儲存及後續用於多層玻璃嵌板中之目的將其收集及捲起，如下文討論。

下文提供其中一般與夾層結合製備多層玻璃嵌板之方式之簡單描述。首先，將至少一聚合物夾層片(單或多層)放置於兩個基板間及從邊緣修整掉任何多餘夾層，產生組件。對於多聚合物夾層片或具有多層之聚合物夾層片(或二者之組合)而言將其放置在兩個基板間以產生具有多聚合物夾層之多層玻璃嵌板係普遍。隨後，藉由為一般技術者熟知之可應用製程及方法(例如經由軋輥、真空袋或另一脫氣機制)來從該組件中移除空氣。此外，藉由為一般技術者熟知之任何方法將該夾層部分壓製結合至該基板。在最後步驟中，為形成最終單塊結構，藉由高溫及壓力層壓方法、或任何一般技術者熟知之其他方法(諸如，但不限於，高壓蒸汽滅菌)，使此預結合更為牢固。

具有軟核心層及兩個硬皮層之多層夾層諸如三層夾層係市售。該硬皮層提供夾層之處置、加工及機械強度；該軟核心層提供聲學阻尼性質。含有此等多層聲學夾層之玻璃嵌板可在極端條件下產生通常

稱為冰花(亦稱為雪花)之缺陷，其在嵌板中過量殘留受困空氣及在玻璃中應力存在時引發。明確言之，在層壓之多層玻璃嵌板結構製造過程期間，當此等層堆疊在一起形成多層夾層時，空氣及其他氣體通常變得困於基板與夾層間或該多層夾層之兩個獨立層間之間隙。如上文指明，一般在嵌裝玻璃或嵌板製造過程中藉由真空或軋輥使該結構除氣來移除此受困空氣。然而，在移除受困在基板間隙之全部空氣時此等技術不總是有效。此等空氣凹穴在失配玻璃(例如，強化玻璃、熱鋼化玻璃、及厚退火玻璃)及在擋風玻璃中係特別明顯，其中該玻璃之彎曲一般導致空氣間隙。在擋風玻璃中此等空氣間隙通常稱為「彎曲間隙」。此外，當在熱壓處理期間存在彎曲間隙時，熱及壓力壓縮該玻璃以符合夾層及使間隙變窄，從而在玻璃中於初始間隙區域產生高應力。

如上文指明，除氣技術一般在從玻璃嵌板組件中移除全部空氣時不總是有效。因此，在玻璃與夾層間存在殘留空氣。在熱壓處理期間，在熱及壓力下殘留空氣溶於夾層中，大部分在皮層。位於皮層之殘留空氣可移動至核心層或皮-核心中間相，及其最終在皮層與核心層間分配以達到平衡狀態。當大量殘留空氣(例如，過量殘留空氣)存在於夾層中時，由於該夾層變軟及較不抵抗成核作用，空氣氣泡可成核，尤其於高溫下。

當多層聲學夾層具有夾在兩個硬皮層間之軟核心層(例如，軟層侷限於兩個硬皮層間)時，由於成核作用有助於較低黏性介質，故空氣氣泡通常首先在軟核心層中形成。在溫暖至熱氣候時，諸如夏季期間，在安裝於建築及車輛之層壓玻璃中玻璃溫度可提高至50°C至100°C。於此等高溫下，由於在玻璃嵌板中或擋風玻璃中之應力產生之力在垂直於其平面之玻璃上且以反方向施加壓力，從而將該玻璃嵌板彼此拉遠以努力使其恢復其初始狀態。該壓力降低空氣對成核之阻

力及膨脹並容許氣泡在核心層中生長。

氣泡亦可成核及在皮層中膨脹。由於該皮層於該溫度下之相對較高硬度，氣泡成核及膨脹及較大層體積，該氣泡球形膨脹。當該氣泡進一步膨脹時，其可膨脹至核心層，其中該氣泡之膨脹變得較低阻力。無論氣泡最初在何處形成，在高溫(例如，50°C至100°C)時，獲自彎曲間隙或玻璃失配之應力引起氣泡在核心層中隨機徑向以最少抗力之路徑膨脹。由於該缺陷持續徑向膨脹，形成分支及樹枝狀特徵形式，及獲得非所需冰花光學外觀。此外，在核心層中形成冰花通常導致層間分離，從而降低該嵌板之結構完整性。

由此，此項技術中需要開發防止形成此等光學缺陷而不降低習知多層夾層之其他光學、機械、及聲學特性的多層夾層。更明確言之，此項技術中需要開發具有至少一軟核心層的多層夾層，其防止空氣成核及膨脹以形成冰花。

【發明內容】

由於本文描述之此項技術中此等及其他問題，尤其係包括硬皮或外層及一軟核心層之多層夾層。在一實施例中，此等多層夾層包括：包括經塑化之聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂之第一聚合物層(皮層)；包括二或多種具有不同殘留羥基含量之經塑化之聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂之摻合物的第二聚合物層(核心層)及其中該塑化劑係具有至少約1.460之折射率之高折射率塑化劑；及可選之包括經塑化之聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂之第三聚合物層(皮層)。第二聚合物層位於臨近第一聚合物層。若具有三或多個層，該第二聚合物層位於第一聚合物層與第三聚合物層間，產生兩個皮層及中央核心層。

在一實施例中，揭示一種防止形成冰花缺陷之聚合物夾層，該聚合物夾層包括：至少一軟層，其中該軟層包括：具有第一殘留羥基

含量之第一聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂；具有第二殘留羥基含量之第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂，其中第一殘留羥基含量與第二殘留羥基含量間之差異係至少2.0重量%；及具有約1.460之折射率之高折射率塑化劑；至少一包括具有第三殘留羥基含量之第三聚(乙烯醇縮丁醛樹脂)的較硬層；及塑化劑，其中該聚合物夾層具有至少約0.15之阻尼損失係數(η)(如由ISO 16940測得)、小於1.0%之濁度百分比(依照ASTM D1003-61(1977年再次批准)-程序A使用發光體C於2度之觀察者角度下藉由濁度計測得)。

在實施例中，該第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂係以約5重量%至約45重量%、或約10重量%至約40重量%之含量存在。

在實施例中，該聚合物夾層之軟層具有至少一小於15°C之玻璃轉變溫度(T_g)。在實施例中，該聚合物夾層具有至少兩個不同玻璃轉變溫度(T_g)及該至少兩個不同玻璃轉變溫度(T_g)間之差異係至少3°C。

在實施例中，該塑化劑係選自二苯甲酸二丙二醇酯、二苯甲酸三丙二醇酯、二苯甲酸聚丙二醇酯、苯甲酸異癸酯、苯甲酸2-乙基己基酯、苯甲酸二乙二醇酯、苯甲酸丁氧基乙酯、苯甲酸丁氧基乙氧基乙酯、苯甲酸丁氧基乙氧基乙氧基乙酯、二苯甲酸丙二醇酯、2,2,4-三甲基-1,3-戊二醇二苯甲酸酯、2,2,4-三甲基-1,3-戊二醇苯甲酸酯異丁酸酯、二苯甲酸1,3-丁二醇酯、二鄰甲苯甲酸二乙二醇酯、二鄰甲苯甲酸三乙二醇酯、二鄰甲苯甲酸二丙二醇酯、二苯甲酸1,2-辛酯、苯三甲酸三-2-乙基己基酯、對苯二甲酸二-2-乙基己基酯、雙酚A雙(2-乙基己酸酯)、對苯二甲酸二-(丁氧基乙基)酯、對苯二甲酸二-(丁氧基乙氧基乙基)酯、及其混合物。在實施例中，該塑化劑係二或多種塑化劑之混合物。在實施例中，該夾層進一步包括具有至少1.460之折射率之第二高折射率塑化劑。在其他實施例中，該夾層進一步包括具有小於約1.450之折射率之塑化劑。

在實施例中，濁度百分比係小於0.5%(如由ASTM D1003-61(1977年再次批准)-程序A使用發光體C於2度之觀察者角度下測得)。

在實施例中，第三聚(乙烯醇縮丁醛樹脂)之殘留羥基含量係與第一聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂或第二聚(乙烯醇縮丁醛樹脂)之殘留羥基含量相同。在實施例中，第一殘留羥基含量與第二殘留羥基含量間之差異係至少4.0重量%或至少6.0重量%。

在另一實施例中，揭示一種防止形成冰花缺陷之聚合物夾層，該聚合物夾層包括：至少一軟層，其中該軟層包括：具有第一殘留羥基含量之第一聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂；具有第二殘留羥基含量之第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂，其中第一殘留羥基含量與第二殘留羥基含量間之差異係至少2.0重量%；及至少一具有至少1.460之折射率之塑化劑，其選自二苯甲酸二丙二醇酯、二苯甲酸三丙二醇酯、二苯甲酸聚丙二醇酯、苯甲酸異癸酯、苯甲酸2-乙基己基酯、苯甲酸二乙二醇酯、苯甲酸丁氧基乙酯、苯甲酸丁氧基乙氧基乙酯、苯甲酸丁氧基乙氧基乙氧基乙酯、二苯甲酸丙二醇酯、2,2,4-三甲基-1,3-戊二醇二苯甲酸酯、2,2,4-三甲基-1,3-戊二醇苯甲酸酯異丁酸酯、二苯甲酸1,3-丁二醇酯、二鄰甲苯甲酸二乙二醇酯、二鄰甲苯甲酸三乙二醇酯、二鄰甲苯甲酸二丙二醇酯、二苯甲酸1,2-辛酯、苯三甲酸三-2-乙基己基酯、對苯二甲酸二-2-乙基己基酯、雙酚A雙(2-乙基己酸酯)、對苯二甲酸二-(丁氧基乙基)酯、對苯二甲酸二-(丁氧基乙氧基乙基)酯、及其混合物；至少一包括具有第三殘留羥基含量之第三聚(乙烯醇縮丁醛樹脂)的較硬層；及塑化劑，其中該聚合物夾層具有至少約0.15之阻尼損失係數(η)(如由ISO 16940測得)、小於1.0%之濁度百分比(依照ASTM D1003-61(1977年再次批准)-程序A使用發光體C於2度之觀察者角度下藉由濁度計測得)。

在實施例中，該塑化劑係兩或更多種塑化劑之混合物。在實施

例中，該夾層進一步包括具有至少1.460之折射率之第二高折射率塑化劑。

在實施例中，第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂係以約5重量%至約45重量%或約10重量%至約40重量%之含量存在。

在實施例中，該濁度百分比係小於0.5%(依照ASTM D1003-61(1977年再次批准)-程序A使用發光體C於2度之觀察者角度下測得)。在實施例中，該聚合物夾層具有至少兩個不同玻璃轉變溫度(T_g)及該至少兩個不同玻璃轉變溫度(T_g)間之差異係至少5°C。

在實施例中，第三聚(乙烯醇縮丁醛樹脂)之殘留羥基含量係與第一聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂或第二聚(乙烯醇縮丁醛樹脂)之殘留羥基含量相同。在實施例中，第一殘留羥基含量與第二殘留羥基含量間之差異係至少4.0重量%、或至少6.0重量%。

在一實施例中，揭示一種防止形成冰花缺陷之聚合物夾層，該聚合物夾層包括：至少一軟層，其中該軟層包括：具有第一殘留羥基含量之第一聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂；具有第二殘留羥基含量之第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂，其中第一殘留羥基含量與第二殘留羥基含量間之差異係至少2.0重量%；及具有至少約1.460之折射率之高折射率塑化劑；至少一包括具有第三殘留羥基含量之第三聚(乙烯醇縮丁醛樹脂的)較硬層；及塑化劑，其中該聚合物夾層具有至少約0.15之阻尼損失係數(η)(如由ISO 16940測得)、小於1.0%之濁度百分比(依照ASTM D1003-61(1977年再次批准)-程序A使用發光體C於2度之觀察者角度下藉由濁度計測得)及其中該聚合物夾層防止冰花缺陷形成，及其中該第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂係以約5重量%至約45重量%之含量存在。

在實施例中，該夾層進一步包括第二塑化劑，其中該第二塑化劑具有小於約1.450之折射率。在實施例中，該第二聚(乙烯醇縮丁醛)

樹脂係以約10重量%至約40重量%之含量存在。

亦揭示一種多層嵌板。該多層嵌板包括至少一硬質基板，及如本文揭示之聚合物夾層或多層聚合物夾層。該嵌板具有經改良之光學性質。

亦揭示一種製備聚合物夾層之方法，其中揭示該多層夾層包括防止形成冰花缺陷之聚合物夾層，該聚合物夾層包括：至少一軟層，其中該軟層包括：具有第一殘留羥基含量之第一聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂；具有第二殘留羥基含量之第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂，其中第一殘留羥基含量與第二殘留羥基含量間之差異係至少2.0重量%；及具有至少約1.460之折射率之高折射率塑化劑；至少一包括具有第三殘留羥基含量之第三聚(乙烯醇縮丁醛樹脂)的較硬層；及塑化劑，其中該聚合物夾層具有如本文揭示之經改良之性質。

在特定實施例中，該(或該等)硬質基板係玻璃。

【圖式簡單說明】

無

【實施方式】

本文描述的尤其係由至少一軟核心層、至少一硬皮層及高折射率塑化劑構成之多層夾層，及其中該軟核心層包括至少第一樹脂及第二樹脂之混合物，其中第二樹脂中之殘留羥基含量(作為PVOH之重量%測得)係高於其在第一樹脂中者(或換言之，其中該兩樹脂具有不同殘留羥基含量)。本發明之夾層防止或消除冰花缺陷形成。

亦描述包括該夾層之多層玻璃嵌板。混合二或多種具有不同程度殘留羥基含量之樹脂及高折射率塑化劑以形成該多層夾層之核心層，或換言之，將第二樹脂(具有不同或較高殘留羥基含量)添加至該第一樹脂以形成該多層夾層之核心層，改良該核心層對氣泡成核及膨脹之抗性(其原本在習知多層夾層中較弱)，由此有效降低或消除常見

於習知多層夾層中之冰花光學缺陷而不犧牲習知多層夾層之其他有利/期望特性，諸如使用多層夾層製備之玻璃嵌板的隔音、光學性質、及機械強度。該多層夾層亦具有優異透明度(或非常低濁度)。本發明之多層夾層可用於多層玻璃應用，諸如擋風玻璃中之安全玻璃、側窗、及屋簷及建築窗戶。

習知多層夾層諸如三層聲學夾層含有由單一具有低殘留羥基含量之聚(乙烯醇縮丁醛)(「PVB」)樹脂與高含量習知塑化劑組成之軟核心層、及兩個具有顯著較高殘留羥基含量之硬皮層(參見，例如美國專利5,340,654、5,190,826、及7,510,771)。優化PVB核心樹脂中之殘留羥基含量及塑化劑含量使得該夾層在用於多層玻璃嵌板(諸如擋風玻璃及安裝在車輛及建築中之窗)的環境條件下提供最佳隔音性質。由於該樹脂之低殘留羥基含量及高度塑化，該核心層係軟或具有弱機械強度及高度易於冰花缺陷形成。令人驚異地，已發現將第二PVB樹脂(具有與第一PVB樹脂相比不同或較高殘留羥基含量)添加至該核心層產生降低或消除冰花缺陷形成同時維持習知多層聲學夾層之隔音性質之多層夾層。添加高折射率塑化劑(具有至少約1.460折射率)導致具有優異透明度及低濁度之多層夾層。該第二PVB樹脂具有與第一PVB樹脂之殘留羥基含量相比高出(或不同)至少約2重量%、或與第一PVB樹脂之殘留羥基含量相比高出至少約4重量%、或高出至少約6重量%、或高出至少約8重量%、或高出至少約10重量%、或高出至少約12重量%、或高出至少約14重量%之殘留羥基含量。任一樹脂可指定為「第一」或「第二」PVB樹脂。若該第一PVB樹脂具有相對較高殘留羥基含量，則該第二PVB樹脂之殘留羥基含量可係與該第一PVB樹脂之殘留羥基含量相比低出至少約2重量%。換言之，重要的是兩種樹脂之殘留羥基含量間之差異係至少約2重量%、或至少約4重量%、或至少約6重量%、或至少約8重量%、或至少約10重量%、或

至少約12重量%、或至少約14重量%。

為改良根據本發明之習知多層聲學夾層，核心層中第一聚合物樹脂經選擇以提供最佳隔音性質及第二聚合物樹脂經選擇以提供該核心層強度以防止冰花缺陷形成。由於該塑化劑將一般分配使得在具有較低殘留羥基含量之PVB樹脂中具有較多塑化劑及在具有較高殘留羥基含量之PVB樹脂中具有較少塑化劑，則用於核心層所需之塑化劑之總量可由此降低而不改變塑化第一樹脂及提供期望隔音性質所必需之塑化劑量。由此，該核心層將展現兩個不同玻璃轉變溫度，其中一者對應於經塑化之第一樹脂(其係與習知多層夾層之核心層之玻璃轉變溫度相同)，及第二較高玻璃轉變溫度對應於經塑化之第二樹脂。因此，由於添加較高殘留羥基含量之第二聚合物樹脂及降低在核心層中總塑化劑含量(使得在兩種樹脂之殘留羥基含量間之差異係至少2重量%)，故多層聲學夾層中之核心層目前與其在習知多層聲學夾層中相比更加堅硬。

在形成具有至少兩種具有不同殘留羥基含量之聚合物樹脂及習知塑化劑之核心層，或換言之，當將第二聚合物樹脂添加至第一聚合物樹脂以形成核心層時，其中該第二聚合物樹脂與第一聚合物樹脂相比具有不同(較高)殘留羥基含量，本發明者已發現包括具有多種不同殘留羥基含量之軟核心層之多層聚合物夾層可導致該多層聚合物夾層中之非所要濁度及降低透光率水平或光學透明度。本發明者進一步發現濁度將1)隨著在兩個樹脂間殘留羥基含量差異增加，2)隨著第二樹脂相對於第一樹脂之含量增加，3)隨著夾層中塑化劑之含量增加，及4)隨著該夾層厚度增加而增加(或相反地，濁度將隨著夾層厚度降低而降低)。高濁度或低透明度由摻合或混合在一起之聚合物與塑化劑之差異導致，該差異當在聚合物間及/或聚合物與塑化劑間之折射率具有足夠大差異時引起摻合物或混合物中光散射，其可導致光在不同

方向折射。在多種多層玻璃層壓嵌板(諸如擋風玻璃或窗玻璃嵌板)中，高濁度及低透光度均係不期望的。出乎意料地，藉由使用高折射率塑化劑，此等高濁度水平可降低及低透光度可增加至可接受程度。該高折射率塑化劑最小化在具有較高殘留羥基含量之經塑化PVB樹脂與具有較低殘留羥基含量之經塑化PVB樹脂之域間之折射率差異，由此降低及最小化濁度形成。該聚合物夾層亦可藉由選擇具有至少一高折射率塑化劑之塑化劑混合物而製成為透明。由此，在一些實施例中，在核心層中使用具有不同殘留羥基含量之樹脂之摻合物與至少一高折射率塑化劑組合產生具有聲學性質之多層夾層，其亦防止冰花缺陷形成以及增加透光度及低濁度而不犧牲其他重要及期望特性。在這點上，當將該塑化劑或塑化劑之組合選擇為與存在之任何其他塑化劑以及樹脂及其他添加劑相比具有特定折射率時，產生如由至少透光度及濁度測量具有優異光學性質之夾層。

多層聲學夾層(諸如三層)目前可藉由以下步驟設計：(1)在核心層中混合較高殘留羥基含量之第二聚合物樹脂與具有較低羥基含量之第一聚合物樹脂，(2)選擇可最小化或消除濁度及增加透明度之塑化劑或塑化劑混合物，(3)降低總核心層塑化劑含量，(4)維持在核心層與兩個皮層間及在核心層中第一樹脂與第二樹脂間之塑化劑平衡，及(5)藉由可應用方法(諸如共擠壓或層壓)組合核心層與皮層以形成多層夾層。所得多層聲學夾層降低或消除冰花缺陷形成及提供優異透明度而不犧牲習知多層夾層之其他有利及期望特性，例如，使用該多層聲學夾層製備之玻璃嵌板的隔音性質、光學性質及機械強度。

在討論將該特殊第二聚合物樹脂添加至核心層以製備防止冰花缺陷形成之經改良夾層之前，將討論在夾層中(一般及在本發明夾層中)發現之一些術語以及常規組分、及其形成。本文使用之術語「聚合物夾層片」、「夾層」、及「聚合物熔融片」一般可指單層片或多層s

夾層。「單層片」如其名稱暗示，係作為一層擠出之單一聚合物層。在另一方面，多層夾層可包括多層，包括分別擠壓的層、共擠壓的層、或任何分別與共擠壓的層之組合。由此該多層夾層可包括，例如：二或多個組合在一起之單層片（「多層片」）；二或多個共擠壓在一起之層（「共擠壓片」）；二或多個組合在一起之共擠壓片；至少一單層片與至少一共擠壓片之組合；單層片與多層片之組合；及至少一多層片與至少一共擠壓片之組合。在本發明之各種實施例中，多層夾層包括至少兩個彼此直接接觸佈置之聚合物層（例如，單層或共擠壓及/或層壓在一起之多層），其中各個層包括如下文更全面闡明之聚合物樹脂。如本文用於具有至少三層之多層夾層，「皮層」一般指該夾層之外層及「核心層」一般指內層。由此，一例示性實施例可係：皮層//核心層//皮層。

該PVB樹脂係藉由在酸催化劑存在時使聚乙烯醇（「PVOH」）與丁醛反應、分離、穩定、及乾燥該樹脂之熟知縮醛作用方法來製備。此等縮醛作用方法於例如美國專利第2,282,057號及第2,282,026號及在由B.E. Wade的Encyclopedia of Polymer Science & Technology，第三版，第8卷，第381至399頁的Vinyl Acetal Polymers (2003)中揭示，其全部揭示內容以引用的方式併入本文中。該樹脂可以各種形式自市面購得，例如獲自Solutia Inc.(Eastman Chemical Company之全資子公司)之Butvar®樹脂。

如本文使用，在PVB中殘留羥基含量（計算為以重量計之乙醇%或PVOH%）指在處理完成後在該聚合物鏈上餘留之羥基含量。例如，PVB可藉由將聚（乙酸乙烯酯）水解為聚（乙醇）（PVOH），及隨後使PVOH與丁醛反應來製備。在水解聚（乙酸乙烯酯）過程中，通常並非全部乙酸側基轉化為羥基。此外，與丁醛之反應通常不導致全部羥基轉化為縮醛基團。由此，在任何完成之PVB樹脂中，通常在該聚合

物鏈上具有作為側基之殘留乙酸基團(作為乙酸乙烯酯基)及殘留羥基(作為乙烯基羥基)。如本文使用，殘留羥基含量及殘留乙酸含量係按照ASTM D1396基於重量%(重量%)測量。

在各種實施例中，該第一PVB樹脂包括約7至約16重量%(重量%)計算為PVOH%-之羥基、約7至約14重量%、約9至約14重量%，及對於特定實施例而言，約11至約13重量%計算為PVOH%-之羥基。該樹脂亦可包括小於30重量%-之殘留酯基、小於25重量%-之殘留酯基，小於20重量%、小於15重量%、小於13重量%、小於10重量%、小於7重量%、小於5重量%、或小於1重量%-之殘留酯基，其計算為聚乙烯酯(例如乙酸酯)，剩餘係縮醛，諸如丁縮醛，但視情況係其他縮醛基，諸如異丁縮醛基，或2-乙基己縮醛基，或丁縮醛、異丁縮醛、及2-乙基己縮醛之任意二者之混合。該第二樹脂包括約9至約35重量%、約12至約35重量%、約15至約25重量%，及對於特定實施例而言，約16至約22重量%計算為PVOH%-之羥基。該樹脂亦包括小於30重量%-之殘留酯基、小於25重量%-之殘留酯基、小於20重量%、小於15重量%、小於13重量%、小於10重量%、小於7重量%、小於5重量%、或小於1重量%-之殘留酯基，其計算為聚乙烯酯(例如乙酸酯)，剩餘係縮醛，諸如丁縮醛，但是視情況係其他縮醛基，諸如異丁縮醛基、2-乙基己縮醛基、或丁縮醛、異丁縮醛、及2-乙基己縮醛基之任意二者之混合。該第二樹脂經選擇使得該樹脂具有高於(或不同於)該第一PVB樹脂之殘留羥基含量至少約2重量%、或高於該第一PVB樹脂之殘留羥基含量至少約4重量%、或至少約6重量%、或至少約8重量%、或至少約10重量%、或至少約12重量%、或至少約14重量%的殘留羥基含量。藉由從具有較高殘留羥基含量之第二樹脂之殘留羥基含量中減去具有較低殘留羥基含量之第一樹脂之殘留羥基含量來計算第一樹脂與第二樹脂間之差異。例如，若第一樹脂具有12重量%-之殘留羥基含

量，及第二聚合物板具有15重量%之殘留羥基含量，則該兩種樹脂之殘留羥基含量差為3重量%，或第二樹脂中殘留羥基含量與第一樹脂之殘留羥基含量相比高出3重量%。

在各種實施例中，其中該夾層係多層夾層諸如三層，用於硬(或皮)層之PVB樹脂的殘留羥基含量係與在核心層中第一樹脂之殘留羥基含量相比高出至少2重量%、或至少4重量%、或至少6重量%、或至少8重量%、或至少10重量%，及在該皮層中樹脂可包括約15至約35重量%、約15至約30重量%、或約17至約22重量%；及，對於特定實施例而言，約17.25至約22.25重量%計算為PVOH%之殘留羥基含量。在各種實施例中，在核心層中第二樹脂之殘留羥基含量與在皮層中樹脂之殘留羥基含量相比可係相同、較高或較低。在各種實施例中，用於核心層之第一樹脂、第二樹脂，或用於硬層之樹脂，或此等樹脂之任意二者，或全部此等樹脂亦可包括小於30重量%之殘留酯基、小於25重量%之殘留酯基、小於20重量%、小於15重量%、小於13重量%、小於10重量%、小於7重量%、小於5重量%、小於1重量%之殘留酯基，其計算為聚乙烯酯(例如乙酸酯)，剩餘係縮醛，諸如丁縮醛，但視情況係其他縮醛基，諸如異丁縮醛基、2-乙基己縮醛基，或丁縮醛、異丁縮醛、及2-乙基己縮醛基之任何二者之混合，如先前討論。

在核心層中第二樹脂相對於第一樹脂之含量可在自1至99重量%、5至95重量%、10至90重量%、15至85重量%、20至80重量%、25至75重量%、或約50重量%變化。在特定實施例中，第二樹脂之含量從約5至約45重量%變化，在其他實施例中，第二樹脂從10至45重量%、或從約10至約40重量%、或約10至約35重量%變化。在特別有用實施例中，在核心層中之第二樹脂從約10至約40重量%變化。

本發明之PVB樹脂(或樹脂)通常具有大於50,000道爾頓、或小於500,000道爾頓、或約50,000至約500,000道爾頓、或約70,000至約

500,000道爾頓、或約100,000至約425,00道爾頓之分子量，如藉由尺寸排除層析法使用低角雷射光散射測得。如本文使用，術語「分子量」指重量平均分子量。

各種黏著控制劑(「ACA」)可用於本發明之夾層中以控制該夾層片對玻璃之黏著。在本發明夾層之各種實施例中，該夾層可包括約0.003至約0.15份ACA/100份樹脂；約0.01至約0.10份ACA/100份樹脂；及約0.01至約0.04份ACA/100份樹脂。此ACA包括(但不限於)於美國專利第5,728,472號(其全部揭示內容以引用的方式併入本文中)中揭示之ACA、殘留乙酸鈉、乙酸鉀、雙(2-乙基丁酸)鎂及/或雙(2-乙基己酸)鎂。

可將其他添加劑併入夾層中以加強在終產物中之其性能及賦予該夾層特定額外性質。此等添加劑在為一般技術者熟知之添加劑中尤其包括(但不限於)染料、色素、穩定劑(例如，紫外線穩定劑)、抗氧化劑、防結塊劑、阻燃劑、IR吸收劑或阻斷劑(例如，氧化銦錫、氧化銻錫、六硼化鏷(LaB₆)及氧化銻鎢)、加工助劑、流動加強添加劑、潤滑劑、衝擊改良劑、成核劑、熱穩定劑、UV吸收劑、分散劑、表面活性劑、螯合劑、偶合劑、黏著劑、底漆、加強添加劑、及填充劑。

在皮及核心層中之塑化劑或塑化劑之混合物經選擇使得多層聲學夾層顯示可接受濁度水平及視覺透光度。在各種實施例中，該塑化劑係選自高折射率塑化劑、二或多種高折射率塑化劑之混合物、或習知與高折射率塑化劑之混合物。在各種實施例中，選擇高折射率塑化劑以消除產生自摻合二或多種不同殘留羥基含量之樹脂的潛在高濁度。例如，在含有90份具有11重量%殘留羥基含量之第一PVB樹脂、10份具有21重量%殘留羥基含量之第二樹脂、及71份三乙二醇二-(2-乙基己酸酯)(「3GEH」)習知塑化劑(於25°C下之折射率=1.442)，濁度s

係85%(如由濁度計，諸如獲自Hunter Associates(Reston, VA)之型號D25，依照ASTM D1003-61(1977年再次批准)-程序A使用發光體C於2度之觀察者角度下測得)。當3GEH由具有1.513之折射率之高折射率塑化劑摻合物(10:34重量/重量3GEH與Benzoflex™ 2088之摻合物)替代時，濁度降低至1.9%。當該塑化劑之折射率增加至1.524或更高時，濁度進一步降低至小於1%。在各種本發明之實施例中，濁度係小於5%、小於3%、及小於1%。

如本文使用，具有約1.450或更低折射率之塑化劑稱為「習知塑化劑」。習知塑化劑包括(但不限於)三乙二醇二-(2-乙基己酸酯)(「3GEH」)、三乙二醇二-(2-乙基丁酸酯)、三乙二醇二庚酸酯、四乙二醇二庚酸酯、四乙二醇二-(2-乙基己酸酯)、己二酸二己酯、己二酸二辛酯、環己基己二酸己酯、己二酸二異壬酯、己二酸庚基酯壬基酯、己二酸二(丁氧乙基)酯及己二酸雙(2-(2-丁氧基乙氧基)乙基)酯、癸二酸二丁酯、癸二酸二辛酯、及其混合物。此等塑化劑具有約1.442至約1.449之折射率。相比之下，PVB樹脂具有約1.485至1.495之折射率。3GEH(折射率=1.442)係在製備用於各種性質及應用之夾層中存在的最常用塑化劑。

在各種實施例中，對於核心及皮層兩者而言，選擇高折射率塑化劑使得該塑化劑之折射率係至少約1.460、或大於約1.460、或大於約1.470、或大於約1.480、或大於約1.490、或大於約1.500、或大於1.510、或大於1.520。如本文使用，「高折射率塑化劑」係具有至少約1.460之折射率之塑化劑。在一些實施例中，該高折射率塑化劑係與習知塑化劑結合使用，及在一些實施例中，若包括，該習知塑化劑係三乙二醇二-(乙基己酸酯)(「3GEH」)，及該塑化劑混合物之折射率係至少1.460。如本文使用，用於本發明全文中之塑化劑或樹脂之折射率(亦稱為折射指數)係依照ASTM D542於589 nm之波長及25°C下測

量或在依照ASTM D542之文獻中記錄。

可使用之具有高折射率之塑化劑的實例包括(但不限於)聚癸二酸酯(RI為約1.460至1.485)；環氧化物(RI為約1.460至1.480)；鄰苯二甲酸酯及對苯二甲酸酯(RI為約1.480至約1.540)；苯甲酸酯(RI為約1.480至約1.550)；及其他特定塑化劑(RI為約1.490至1.520)。高折射率塑化劑之實例包括(但不限於)多元酸或多元醇之酯、聚癸二酸酯、環氧化物、鄰苯二甲酸酯、對苯二甲酸酯、苯甲酸酯、甲苯甲酸酯、苯六甲酸酯及其他特定塑化劑等。適宜高折射率塑化劑之實例包括(但不限於)二苯甲酸二丙二醇酯、二苯甲酸三丙二醇酯、二苯甲酸聚丙二醇酯、苯甲酸異癸酯、苯甲酸2-乙基己基酯、苯甲酸二乙二醇酯、二苯甲酸丙二醇酯、二苯甲酸2,2,4-三甲基-1,3-戊二醇酯、2,2,4-三甲基-1,3-戊二醇苯甲酸酯異丁酸酯、二苯甲酸1,3-丁二醇酯、二鄰甲苯甲酸二乙二醇酯、二鄰甲苯甲酸三乙二醇酯、二鄰甲苯甲酸二丙二醇酯、二苯甲酸1,2-辛酯、苯三甲酸三-2-乙基己基酯、對苯二甲酸二-2-乙基己基酯、雙酚A雙(2-乙基己酸酯)、乙醇酸化壬基酚、及其混合物。

在任何此等實施例中，該塑化劑係可任何上文描述之彼等。在一些實施例中，選擇塑化劑使得在核心層中經塑化第一樹脂與經塑化第二樹脂間及夾層之層間之 ΔRI 最小化(即，盡可能接近0.000)，小於0.010、或小於0.009、或小於0.008、或小於0.007、或小於0.006、或小於0.005、或小於0.004、或小於0.003、或小於0.002、或小於0.001、或約0.000。在其他實施例中，選擇塑化劑使得在樹脂與塑化劑間 ΔRI 係小於0.075、或小於0.070、或小於約0.065、或小於0.060、或小於0.055、或小於0.050、或小於0.040、或小於0.030、或小於0.020、或小於0.010、或約0.000。

在本發明夾層之各種實施例中，該夾層包括大於5 phr、約5至約

120 phr、約10至約90 phr、約20至約70 phr、約30至約60 phr、或至少120 phr、或至少90 phr、或至少60 phr、或至少40 phr、或至少30 phr總塑化劑。當該總塑化劑量係上文表明時，在皮層或核心層中塑化劑含量可不同於總塑化劑量。此外，皮層及核心層可具有不同塑化劑類型及在先前討論之範圍內之塑化劑量，如於平衡狀態之各自獨立層之塑化劑量可藉由層之各自殘留羥基含量測得，如在美國專利第7,510,771號中(其全部揭示內容以引用的方式併入本文中)所揭示。例如，於平衡時，該夾層可包括兩個皮層，各皮層具有30 phr塑化劑，及核心層具有65 phr塑化劑，當組合之皮層厚度等於核心層厚度時，約45.4 phr之該夾層之總塑化劑含量。對於較厚或較薄皮層而言，該夾層之總塑化劑含量可由此改變。在本發明之各種實施例中，該核心層及皮層之塑化劑含量相差至少8 phr、或至少9 phr、或至少10 phr、或至少12 phr、或至少13 phr、或至少14 phr、或至少15 phr、或至少16 phr、或至少17 phr、或至少18 phr、或至少19 phr、或至少20 phr、或至少25 phr或更多。如本文使用，塑化劑，或在夾層中任何其他組分之含量，可作為每一百份樹脂之份數(phr)測量，基於重量基礎。例如，若將30克塑化劑添加至100克聚合物樹脂中，則所得經塑化之聚合物的塑化劑含量可係30 phr。如本文使用，當給定夾層之塑化劑含量時，參考用於製備夾層之混合物或熔體中塑化劑之phr來確定塑化劑含量。

可調節在夾層中塑化劑之含量以影響玻璃轉變溫度(T_g)。玻璃轉變溫度(T_g)係標記從夾層之玻璃態轉變至橡膠態之溫度。一般而言，較高塑化劑負載量將導致較低 T_g 。常規而言，先前使用之夾層一般具有在約-10至25°C範圍內之 T_g 以用於聲學(減少雜音)夾層，及多達約45°C之 T_g 以用於颶風及飛機(較硬或結構化)夾層應用。

在各種實施例中，本發明夾層之核心層具有多個玻璃轉變溫

度。例如，第一經塑化樹脂之 T_g 可係約 -40°C 至約 15°C 、或約 15°C 或更低、或約 10°C 或更低、或約 -20°C 至 10°C ，及第二經塑化樹脂之 T_g 可係約 0 至約 45°C 、約 0°C 或更高、約 5°C 或更高、約 10°C 或更高、約 15°C 或更高，或在特定實施例中，約 15 至約 40°C 、或約 45°C 或更低、或約 40°C 或更低、或約 35°C 或更低。在各種實施例中，該第二經塑化樹脂之 T_g 係比該第一經塑化樹脂之 T_g 大至少約 3°C 、或比該第一經塑化樹脂之 T_g 大約 4°C 、或大約 5°C 、或大約 6°C 、或大約 7°C 、或大約 8°C 、或大約 9°C 、或大約 10°C 、或大約 15°C 、或大約 25°C 、或大約 35°C ，及對於特定實施例而言，與第一經塑化樹脂之 T_g 相比高出約 16°C 至約 35°C 。在一些實施例中，該第二經塑化樹脂之玻璃轉變可藉由第一經塑化樹脂之玻璃轉變發生使得其不顯示不同玻璃轉變溫度。在核心層中第二經塑化樹脂之 T_g 係由在與第一樹脂混合前經塑化第二樹脂之 T_g 決定。

不論由擠壓或共擠壓形成，最終夾層一般具有無規粗糙表面形態，這是由於其係隨著其退出擠壓模具經由聚合物熔體之熔融破碎形成及可額外藉由為一般技術者熟知之任何浮雕方法在無規粗糙表面之一或兩面(例如，皮層)上浮雕。

雖然預期為一般技術者熟知之用於製備聚合物夾層片之全部方法為可能用於製備本文描述之聚合物夾層片之方法，但是本申請案將關注經由擠壓及共擠壓方法製備之聚合物夾層片。使用此項技術中熟知之層壓方法形成本發明之最終多層玻璃層壓嵌板。

一般而言，該聚合物夾層片之厚度或量規可在約 15 密耳至 100 密耳(約 0.38 mm 至約 2.54 mm)、約 15 密耳至 60 密耳(約 0.38 mm 至約 1.52 mm)、約 20 密耳至約 50 密耳(約 0.51 至 1.27 mm)、及約 15 密耳至約 35 密耳(約 0.38 至約 0.89 mm)之範圍內。在各種實施例中，該多層夾層之各個層(諸如皮及核心層)可具有約 1 密耳至 99 密耳(約 0.025 至 2.51 mm)、

約1密耳至59密耳(約0.025至1.50 mm)、1密耳至約29密耳(約0.025至0.74 mm)、或約2密耳至約28密耳(約0.05至0.71 mm)之厚度。

儘管下文描述之實施例係關於聚合物樹脂為PVB，但是一般技術者應瞭解該聚合物可係任何適宜用於多層嵌板之聚合物。典型聚合物包括(但不限於)聚乙烯基縮醛(PVA)(諸如聚(乙烯醇縮丁醛)(PVB)或異構聚(乙烯基異丁縮醛)(PVisoB)、聚胺基甲酸酯(PU)、聚(乙烯-共聚-乙酸乙烯酯)(EVA)、聚氯乙烯(PVC)、聚(氯乙烯-共聚-甲基丙烯酸酯)、聚乙烯、聚烯烴、乙烯丙烯酸酯共聚物、聚(乙烯-共聚-丙烯酸丁酯)、聚矽氧彈性體、環氧樹脂、及酸共聚物諸如乙烯/羧酸共聚物及由任何前述可能熱塑性樹脂衍生之其異構體、前述之組合等等。PVB及其異構聚合物PVisoB、聚氯乙烯、及聚胺基甲酸酯係一般用於夾層之特別有用聚合物；PVB(及其異構聚合物)係特佳。例如，該多層夾層可由PVB//PVisoB//PVB構成。其他實例包括PVB//PVC//PVB或PVB//PU//PVB。進一步實例包括PVC//PVB//PVC或PU//PVB//PU。或者，該皮及核心層可全部係使用相同或不同起始PVB樹脂之PVB。

如本文使用，多層嵌板可包括單一基板，諸如玻璃、丙烯酸系、或聚碳酸酯與位於其上之聚合物夾層片，及更通常而言，進一步位於該聚合物夾層上之聚合物膜。聚合物夾層片與聚合物膜之組合通常在此項技術中稱為雙層。典型具有雙層結構之多層嵌板係：(玻璃)/(聚合物夾層片)/(聚合物膜)，其中該聚合物夾層片可包括如上文表明之多個夾層。該聚合物膜提供光滑、薄、硬質基板，其與一般單獨經由聚合物夾層片獲得之聚合物膜相比具有較佳光學特性及充當性能增強層。聚合物膜與如本文使用聚合物夾層片之區別係該聚合物膜本身不提供必需抗穿透性及玻璃滯留性質，而是提供性能改良，諸如紅外線吸收特性。聚(對苯二甲酸乙二酯)(「PET」)係最常使用之聚合物膜。一般而言，如本文使用，聚合物膜與聚合物片相比係較薄，

諸如約0.001至0.2 mm厚。

本發明之夾層最常用於包括兩個基板，諸如一對玻璃片(或在此項技術中已知之其他硬質材料，諸如聚碳酸酯或丙烯酸系)之多層嵌板，在兩基板間具有夾層。此結構之一實例應係：(玻璃)/(聚合物夾層片)/(玻璃)，其中該聚合物夾層片可包括如上文指明之多層夾層，及其中該多層夾層之核心層包括第一樹脂及具有較高殘留羥基含量之第二樹脂及至少一高折射率塑化劑使得產生防止冰花缺陷形成之透明多層嵌板(具有高 T_{vis} %)且該多層嵌板之透明度係優異(具有最小濁度)。多層嵌板之此等實例不以任何方式限制，如一般技術者已瞭解可使用本發明之夾層製備數個不同於上文描述彼等之結構。

典型玻璃層壓方法包括以下步驟：(1)組裝兩塊基板(例如，玻璃)及夾層；(2)經由IR放射或對流構件短期加熱該組件；(3)使該組件經過壓力軋輥以第一次脫氣；(4)再次加熱該組件至約60°C至約120°C以賦予該組件足夠臨時黏著力以密封夾層邊緣；(5)使該組件經過第二壓力軋輥以進一步密封夾層邊緣及容許進一步處置；及(6)在介於135°C與150°C間之溫度及介於180 psig與200 psig間之壓力熱壓處理該組件30至90分鐘。實際步驟、以及時間與溫度必要時可如一般技術者所知變化。

在此項技術中熟知及商業上實踐之用於夾層玻璃界面脫氣(步驟2至5)之其他構件包括真空袋及真空環方法，其中真空用於移除空氣。

如先前指明，透明度係用於描述本文揭示之聚合物夾層之參數。透明度藉由測量濁度值或濁度百分比而測定。使用濁度計(諸如獲自Hunter Associates(Reston, VA)之型號D25)及依照ASTM D1003-61(1977年再次批准)-程序A，使用發光體C，於2度之觀察者角度進行濁度百分比試驗。使用一對各自2.3 mm厚之透明玻璃片(可自Pennsylvania的Pittsburgh Glass Works獲得)層壓該聚合物夾層及測量

濁度值。本發明之夾層具有小於約5%、小於約4%、小於約3%、小於約2%、小於約1%、或小於約0.5%之濁度百分比。

透光率，或視覺透光度百分比($T_{vis}\%$)亦用於描述本文揭示之聚合物夾層。該透光率亦使用濁度計(諸如獲自 Hunter Associates (Reston, VA)之型號D25)及在發光體D65於10度之觀察者角度測量。使用一對各自2.3 mm厚之透明玻璃片(可自Pennsylvania的Pittsburgh Glass Works獲得)層壓該聚合物夾層及測量 $T_{vis}\%$ 。本發明之聚合物夾層對於僅含有添加劑ACA、UV穩定劑、及抗氧化劑之夾層而言具有大於85之 $T_{vis}\%$ ，或對於含有額外添加劑諸如上文提及之色素、IR吸收劑或阻斷劑之夾層而言大於80%。含有高含量色素及/或染料之聚合物夾層可具有如所需之較低 $T_{vis}\%$ ，諸如在大量著色或染色之聚合物夾層中。

依照ASTM D542測量折射率(RI)。於589 nm之波長及25°C下獲得記錄之RI值。

藉由動態機械熱分析(DMTA)測定玻璃轉變溫度(T_g)。DMTA測量以帕斯卡計之存儲(彈性)模量(G')，以帕斯卡計之損失(黏性)模量(G'')，該樣品之 $\tan \delta(=G''/G')$ 作為於給定頻率下之溫度、及溫度掃描速度之函數。本文使用1 Hz頻率及3°C/min之溫度掃描速度。隨後藉由在以°C計之溫標上的 $\tan \delta$ 峰之位置來測定 T_g 。

藉由如在ISO 16940中所描述之機械阻抗測量法測得阻尼損失係數(η)。製備25 mm寬、300 mm長及具有一對2.3 mm透明玻璃之經層壓之玻璃棒樣品及於該棒之中心點使用震蕩器(Brüel及Kjær)刺激。阻抗頭(Brüel及Kjær)用於測量以刺激該棒振動的力與振動速率及所得轉移函數記錄於國際儀器資料擷取及分析系統。使用半功率方法計算於第一振動模式之損失係數。

根據ASTM E90(2009)於20°C之固定溫度下測定本發明之層壓板

或固定尺寸之對比嵌板之「聲傳遞損失」(STL)。測得2.3 mm透明玻璃//「參考夾層」//2.3 mm透明玻璃之「參考嵌板」具有於3,150 Hz處之重合頻率及於此重合頻率下31 dB之STL，其中該「參考夾層」係藉由混合及熔融擠壓100份具有18至19重量%之殘留羥基含量及2重量%之乙酸乙烯酯殘留之聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂、38重量份之3GEH塑化劑、及其他常規添加劑(如上文描述)來製備。該參考夾層具有0.76 mm之厚度、30°C之玻璃轉變溫度。根據上文描述用來製備參考(或試驗)層壓玻璃嵌板之方法，使本發明之多層夾層或對比多層夾層層壓2.3 mm透明玻璃。該嵌板具有50 cm乘80 cm之尺寸。使用該試驗嵌板於「參考嵌板」之重合頻率下之STL(例如，於3,150 Hz下之STL)來評定該嵌板之隔音性質。在各種實施例中，包括本發明多層夾層之玻璃嵌板之STL係大於約35 dB、大於約36 dB、大於約37 dB、大於約38 dB、或大於約39 dB。

如先前討論，在三層層壓板中常會發現稱為冰花之光學缺陷。在三層聲學PVB層壓板中冰花之形成可藉由模擬在擋風玻璃及其他嵌裝玻璃中之實際情況來測試，其中已知該大彎曲間隙及不良脫氣之組合係在此領域中冰花形成之根本原因。首先，將具有放置在中心之聚對苯二甲酸乙二酯(PET)膜環(具有7.5 cm內直徑；14 cm外直徑；及0.10 mm至0.18 mm厚度)之30 cm乘30cm之三層夾層夾在兩片2.3 mm玻璃之30 cm乘30 cm間。隨後預層壓及熱壓處理該結構。容許所得層壓板於室溫下調理48小時，在習知烘箱中(於80°C下)烘烤48小時，及隨後使其冷卻。該層壓板隨後經視覺檢查以確定在層壓板中之冰花形成比率(例如，產生冰花缺陷之層壓板之百分數)及在PET環中具有冰花缺陷之面積百分數(例如，在美國專利申請案公開案20130236693 A1中所揭示，其全部揭示內容以引用的方式併入本文中)。總共使用十(10)塊層壓板來獲得三層夾層類型之冰花形成比率之平均值。 5

本發明亦包括如下列出的以下實施例1至18。

實施例1係一種防止冰花缺陷形成之聚合物夾層，該聚合物夾層包括：至少一軟層，其中該軟層包括：具有第一殘留羥基含量之第一聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂；具有第二殘留羥基含量之第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂，其中第一殘留羥基含量與第二殘留羥基含量間之差異係至少2.0重量%；及具有至少約1.460之折射率之高折射率塑化劑；至少一包括具有第三殘留羥基含量之第三聚(乙烯醇縮丁醛樹脂)之較硬層；及塑化劑，其中該聚合物夾層具有至少約0.15之阻尼損失係數(η)(如由ISO 16940測得)、小於1.0%之濁度百分比(如依照ASTM D1003-61(1977年再次批准)-程序A使用發光體C於2度之觀察者角度下藉由濁度計測得)。

實施例2係一種防止冰花缺陷形成之聚合物夾層，該聚合物夾層包括：至少一軟層，其中該軟層包括：具有第一殘留羥基含量之第一聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂；具有第二殘留羥基含量之第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂，其中第一殘留羥基含量與第二殘留羥基含量間之差異係至少2.0重量%；及至少一具有至少1.460之折射率之塑化劑，其選自二苯甲酸二丙二醇酯、二苯甲酸三丙二醇酯、二苯甲酸聚丙二醇酯、苯甲酸異癸酯、苯甲酸2-乙基己基酯、苯甲酸二乙二醇酯、苯甲酸丁氧基乙酯、苯甲酸丁氧基乙氧基乙酯、苯甲酸丁氧基乙氧基乙氧基乙酯、二苯甲酸丙二醇酯、2,2,4-三甲基-1,3-戊二醇二苯甲酸酯、2,2,4-三甲基-1,3-戊二醇苯甲酸酯異丁酸酯、二苯甲酸1,3-丁二醇酯、二鄰甲苯甲酸二乙二醇酯、二鄰甲苯甲酸三乙二醇酯、二鄰甲苯甲酸二丙二醇酯、二苯甲酸1,2-辛酯、苯三甲酸三-2-乙基己基酯、對苯二甲酸二-2-乙基己基酯、雙酚A雙(2-乙基己酸酯)、對苯二甲酸二-(丁氧基乙基)酯、對苯二甲酸二-(丁氧基乙氧基乙基)酯、及其混合物；至少一包括具有第三殘留羥基含量之第三(乙烯醇縮丁醛樹脂)之較硬層；

及塑化劑，其中該聚合物夾層至少約0.15之阻尼損失係數(η)(如由ISO 16940測得)、小於1.0%之濁度百分比(依照ASTM D1003-61(1977年再次批准)-程序A使用發光體C於2度之觀察者角度下藉由濁度計測得)。

實施例3係一種包括實施例1至2中任一項之特徵之聚合物夾層，其中該第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂係以約5重量%至約45重量%之含量存在。

實施例4係一種防止冰花缺陷形成之聚合物夾層，該聚合物夾層包括：至少一軟層，其中該軟層包括：具有第一殘留羥基含量之第一聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂；具有第二殘留羥基含量之第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂，其中第一殘留羥基含量與第二殘留羥基含量間之差異係至少2.0重量%；及具有至少約1.460之折射率之高折射率塑化劑；至少一包括具有第三殘留羥基含量之第三聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂之較硬層；及塑化劑，其中該聚合物夾層具有至少約0.15之阻尼損失係數(η)(如由ISO16940測得)、小於1.0%之濁度百分比(依照ASTM D1003-61(1977年再次批准)-程序A使用發光體C於2度之觀察者角度下藉由濁度計測得)，及其中該第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂係以約5重量%至約45重量%之含量存在。

實施例5係一種包括實施例1至4中任一項之特徵之聚合物夾層，其中該第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂係以約10重量%至約40重量%之含量存在。

實施例6係一種包括實施例1至5中任一項之特徵之聚合物夾層，其中該聚合物夾層之軟層具有至少一小於15°C之玻璃轉變溫度(T_g)。

實施例7係一種包括實施例1或4中任一項之特徵之聚合物夾層，其中該塑化劑選自二苯甲酸二丙二醇酯、二苯甲酸三丙二醇酯、二苯甲酸聚丙二醇酯、苯甲酸異癸酯、苯甲酸2-乙基己基酯、苯甲酸二乙二醇酯、苯甲酸丁氧基乙酯、苯甲酸丁氧基乙氧基乙酯、苯甲酸5

丁氧基乙氧基乙氧基乙酯、二苯甲酸丙二醇酯、2,2,4-三甲基-1,3-戊二醇二苯甲酸酯、2,2,4-三甲基-1,3-戊二醇苯甲酸酯異丁酸酯、二苯甲酸1,3-丁二醇酯、二鄰甲苯甲酸二乙二醇酯、二鄰甲苯甲酸三乙二醇酯、二鄰甲苯甲酸二丙二醇酯、二苯甲酸1,2-辛酯、苯三甲酸三-2-乙基己基酯、對苯二甲酸二-2-乙基己基酯、雙酚A雙(2-乙基己酸酯)、對苯二甲酸二-(丁氧基乙基)酯、對苯二甲酸二-(丁氧基乙氧基乙基)酯、及其混合物。

實施例8係一種包括實施例1至7中任一項之特徵之聚合物夾層，其中該塑化劑係兩種或多種塑化劑之混合物。

實施例9係一種包括實施例1至8中任一項之特徵之聚合物夾層，其進一步包括具有至少1.460之折射率之第二高折射率塑化劑。

實施例10係一種包括實施例1至9中任一項特徵之聚合物夾層，其中該聚合物夾層進一步包括具有小於約1.450之折射率之塑化劑。

實施例11係一種包括實施例1至10中任一項特徵之聚合物夾層，其中濁度百分比係小於0.5%(依照ASTM D1003-61(1977年再次批准)-程序A使用發光體C於2度之觀察者角度下測得)。

實施例12係一種包括實施例1至11中任一項特徵之聚合物夾層，其中該聚合物夾層具有至少兩個不同玻璃轉變溫度(T_g)且該至少兩個不同玻璃轉變溫度(T_g)間之差異係至少3°C。

實施例13係一種包括實施例1至12中任一項特徵之聚合物夾層，其中該聚合物夾層具有至少兩個不同玻璃轉變溫度(T_g)且該至少兩個不同玻璃轉變溫度(T_g)間之差異係至少5°C。

實施例14係一種包括實施例1至13中任一項特徵之聚合物夾層，其中該第三聚(乙烯醇縮丁醛樹脂)之殘留羥基含量係與第一聚(乙烯醇縮丁醛樹脂)或第二聚(乙烯醇縮丁醛樹脂)之殘留羥基含量相同。

實施例15係一種包括實施例1至14中任一項之特徵之聚合物夾

層，其中第一殘留羥基含量與第二殘留羥基含量間之差異係至少4.0重量%。

實施例16係一種包括實施例1至15中任一項之特徵之聚合物夾層，其中第一殘留羥基含量與第二殘留羥基含量間之差異係至少6.0重量%。

實施例17係一種包括實施例1至16中任一項之聚合物夾層之多層玻璃嵌板。

實施例18係一種包括以下之多層玻璃嵌板：第一玻璃嵌板；包括實施例1至16中任一項特徵之聚合物夾層，第二玻璃嵌板，其中該聚合物夾層位於第一與第二玻璃嵌板間。

實例

藉由混合及熔融擠壓100份聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂及如在表1中顯示之各種量之塑化劑、及其他常規添加劑(如上文描述)來製備本發明之例示性核心層(指定為「揭示層」及顯示為在下文表1中DL1至8)及對照或對比核心層(指定為「對比層」及顯示為在下文表1中CL1至2)。在表1中指明之核心層隨後用於構造各種如在表2及表3中顯示及在下文更全面描述之多層夾層。

可藉由比較在核心層中具有兩種不同殘留羥基含量之樹脂之摻合物及至少一塑化劑的多層(三層)夾層(指定為「揭示夾層」)與具有由在核心層中僅單一樹脂(固定殘留羥基含量)及至少一塑化劑形成之核心層的多層夾層(指定為「對比夾層」)最為容易瞭解多層夾層中冰花缺陷形成之改良(或降低)。在表2及表3中，對比夾層係如Cl-1至Cl-4顯示，及揭示夾層係如Dl-1至Dl-16顯示。此等實例闡明當至少兩種具有不同殘留羥基含量之PVB樹脂用於核心層時(諸如當在核心層中將具有較高殘留羥基含量之第二PVB樹脂添加至具有較低殘留羥基含量之第一PVB樹脂(或與其組合))，可顯著降低或完全消除冰花缺陷。5

額外對比層及揭示層在表4中指出。表4中之實例闡明當將具有不同(或較高)殘留羥基含量之第二PVB樹脂添加至具有第一PVB樹脂之層中時，當高折射率塑化劑用於替代習知塑化劑時所得濁度(獲自添加第二PVB樹脂)可降低或最小化。

用於下文表中之樹脂係具有如下殘留羥基含量及乙酸乙烯酯殘留之PVB樹脂：

樹脂-A：約10至11重量%殘留羥基含量及2%乙酸乙烯酯殘留。

樹脂-B：約16重量%殘留羥基含量及2%乙酸乙烯酯殘留。

樹脂-C：約18至19重量%殘留羥基含量及2%乙酸乙烯酯殘留。

樹脂-D：約21至22重量%殘留羥基含量及2%乙酸乙烯酯殘留。

在實例中用於皮層之聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂具有約18至19重量%殘留羥基含量(樹脂-C)。對於在表1中顯示之核心層而言，用於核心層之第一聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂具有約10至11重量%殘留羥基含量(樹脂-A)，及用於核心層之第二樹脂如在表1中顯示變化(樹脂-B、樹脂-C或樹脂-D)。根據上文過程使用具有不同殘留羥基含量之第一與第二PVB樹脂之組合及塑化劑(習知塑化劑(3GEH，於25℃之RI=1.442)或高折射率塑化劑(苯甲酸異癸酯，於25℃之RI=1.490))製備核心層，如下文表1中指明。

表 1

核心層	樹脂-A(重量份)	樹脂-B(重量份)	樹脂-C(重量份)	樹脂-D(重量份)	在PVB中塑化劑		經塑化樹脂-A之Tg(°C)	經塑化第二樹脂之Tg(°C)
					化劑(3GEH)之含量(phr)	在PVB中塑化劑(苯甲酸異癸酯)之含量(phr)		
CL-1	100				75		-3	-
DL-1	95		5		73		-3	30
DL-2	90		10		71		-3	30
DL-3	80		20		68		-3	30
DL-4	65		35		62		-3	30
DL-5	85	15			75		-3	17
DL-6	70	30			75		-4	16



DL-7	55	45	75	-5	15
CL-2	100		78	-2	-
DL-8	95	5	78	-2	37

如在表1中顯示，核心層DL-1至DL-4含有第一樹脂(樹脂A，具有約10至11重量%之殘留羥基含量)、含量從5至35重量%變化的第二樹脂(樹脂-C，具有18至19重量%之殘留羥基含量)，及以62至73 phr含量之習知塑化劑(3GEH)。核心層CL-1為僅具有第一樹脂(樹脂-A)及75 phr習知塑化劑(3GEH)之對照或對比實例。核心層DL-5至DL-7含有第一樹脂(樹脂-A，具有約10至11重量%之殘留羥基含量)、含量從15至45重量%變化的第二樹脂(樹脂-B，具有約16重量%之殘留羥基含量)，及以75 phr含量之習知塑化劑(3GEH)。核心層CL-2僅具有第一樹脂(樹脂-A)及78 phr之高折射率塑化劑(苯甲酸異癸酯)。核心層DL-8含有第一樹脂(樹脂-A，具有約10至11重量%之殘留羥基含量)、第二樹脂(樹脂-D，具有約21至22重量%之殘留羥基含量)及以78 phr含量之高折射率塑化劑(苯甲酸異癸酯)。

如在表1中顯示，隨著第二樹脂含量增加，核心層DL-1至DL-4中塑化劑含量逐漸從73 phr降低至62 phr，以導致塑化劑分配在皮及核心層間。對於核心層DL-5至DL-7而言，塑化劑含量穩定維持在75 phr。對於DL-1至DL-4而言，經塑化樹脂-A之T_g係-3℃，對於DL-5至DL-7而言係-3至-5℃，及對於DL-8而言其係-2℃。

表1之核心層隨後用於如下文表2中顯示之多層(三層)夾層中以製備對照或對比夾層CI-1至CI-4及根據本發明之揭示夾層DI-1至DI-16。

揭示夾層DI-1至DI-12均使用核心層DL-1至DL-4(獲自表1)製備，該核心層包括樹脂-A(10至11重量%殘留羥基含量)及變化含量(如在表1中顯示)的第二樹脂，樹脂-C(18至19重量%殘留羥基含量)。樹脂-C用於製備皮層。第二樹脂之殘留羥基含量與第一樹脂之殘留羥基含量

相比高出約7至9重量%(及與皮層樹脂相同)。

在C1-1至C1-3及D1-1至D1-12中，核心層中第一樹脂具有75 phr之塑化劑含量，及核心層中第二樹脂具有38 phr之塑化劑含量(其係與在樣品之皮層中含量相同)。在樣品C1-1至C1-3及D1-1至D1-12中核心層厚度從0.13 mm至0.51 mm變化。

使用包括變化量(如在表1中顯示)之樹脂-A(10至11重量%殘留羥基含量)及第二樹脂，樹脂-B(16重量%殘留羥基含量)的核心層DL-5至DL-7(分別獲自表1)製備揭示夾層D1-13至D1-15。第二樹脂之殘留羥基含量與第一樹脂之殘留羥基含量相比高出約5至6重量%及與皮層樹脂之殘留羥基含量相比低約3重量%。核心層厚度係0.13 mm(5密耳)。由於塑化劑分配在核心層中第一與第二樹脂間及在核心層中樹脂與皮層中樹脂之間，獲得分配在此等樹脂間之塑化劑之新平衡。於平衡處，核心層中第一樹脂具有約77至81 phr之塑化劑(其高於在對比樣品C1-3中75 phr之塑化劑含量)；核心層中第二樹脂具有約50 phr之塑化劑及皮層樹脂具有約38至39 phr之塑化劑。

使用包括樹脂-A(10至11重量%之殘留羥基含量)及第二樹脂，樹脂-D(21至22重量%之殘留羥基含量)之核心層DL-8(獲自表1)製備揭示夾層D1-16。核心層DL-8含有5重量%樹脂-D(其係11至12重量%高出第一樹脂及3至4重量%高出皮層樹脂)，及高折射率塑化劑。分配在D1-16中第一樹脂(樹脂-A)與皮層樹脂(樹脂-C)間之塑化劑與在對比夾層C1-4(其在核心層中具有100%樹脂-A)中相同。由於該第二樹脂具有不同殘留羥基含量，分配在第一與第二核心層樹脂間及在第二樹脂與皮層樹脂間之塑化劑與對比夾層C1-4不同。

表 2

夾層編號	皮層樹脂OH%含量 (重量%)	皮層塑化劑含量 (phr)	皮層(1與2)組合之 厚度(mm)	核心層(獲 自表I)	核心層厚 度(mm)	皮層中最終塑化劑 含量(phr)	核心層第一樹脂中最終 塑化劑含量(phr)	核心層第二樹脂中最終 塑化劑含量(phr)	核心層中經塑化第一 樹脂之Tg(°C)	核心層中經塑化第二 樹脂之Tg(°C)
CI-1	19	38	0.33	CL-1	0.51	38	75	-	-3	-
DI-1	19	38	0.33	DL-1	0.51	38	75	38	-3	30
DI-2	19	38	0.33	DL-2	0.51	38	75	38	-3	30
DI-3	19	38	0.33	DL-3	0.51	38	75	38	-3	30
DI-4	19	38	0.33	DL-4	0.51	38	75	38	-3	30
CI-2	19	38	0.58	CL-1	0.26	38	75	-	-3	30
DI-5	19	38	0.58	DL-1	0.26	38	75	38	-3	30
DI-6	19	38	0.58	DL-2	0.26	38	75	38	-3	30
DI-7	19	38	0.58	DL-3	0.26	38	75	38	-3	30
DI-8	19	38	0.58	DL-4	0.26	38	75	38	-3	30
CI-3	19	38	0.71	CL-1	0.13	38	75	-	-3	-
DI-9	19	38	0.71	DL-1	0.13	38	75	38	-3	30
DI-10	19	38	0.71	DL-2	0.13	38	75	38	-3	30
DI-11	19	38	0.71	DL-3	0.13	38	75	38	-3	30
DI-12	19	38	0.71	DL-4	0.13	38	75	38	-3	30
DI-13	19	38	0.71	DL-5	0.13	38	77	49	-3	19
DI-14	19	38	0.71	DL-6	0.13	39	80	49	-3	19
DI-15	19	38	0.71	DL-7	0.13	39	81	50	-3	19
CI-4	19	39	0.71	CL-2	0.13	39	78	-	-2	-
DI-16	19	39	0.71	DL-8	0.13	39	78	34	-2	37

可比較在表2中例示性多層夾層D1-1至D1-16及對比多層夾層C1-1至C1-4，以顯示當該多層夾層用於多層層壓玻璃嵌板中時本發明之多層夾層在防止冰花缺陷形成中之改良。如上文指明，在表1中描述之核心層用於構造如在表2中顯示之各種多層夾層，所得多層夾層用於構造如在表3中顯示之層壓板。該多層夾層具有皮層/核心層/皮層之一般構造。使用之各個夾層之總厚度係0.84 mm。在表3中之層壓板各自使用兩(2)片2.3 mm透明玻璃，如上文描述在中心之夾層(如在表3中顯示)及0.13 mm PET膜環，連同如表3中顯示之獲自表2之夾層製備。該層壓板隨後經軋輥脫氣。無規粗糙表面夾層之平均表面粗糙度(Rz)係約36微米。隨後測試層壓板以測定冰花缺陷含量(測量為面積%)、於20℃下之阻尼損失係數(η)、 T_{vis} %、濁度%及聲傳遞損失(STL，於3150 Hz之參考頻率下，以dB計)。結果在表3中顯示。

表3

夾層編號	核心層 (獲自 表1)	核心層厚 度(mm)	第二樹 脂之羥 基含量 (重量%)	在夾層中 塑化劑類 型	冰花缺陷 面積(%)	於20℃之 阻尼損失 係數	T_{vis} (%)	濁度 (%)	於3,150 Hz 之參考頻率 下之STL(dB)
C1-1	CL-1	0.51	-	3GEH	18	0.38	88	0.3	40
D1-1	DL-1	0.51	19	3GEH	14	0.37	86	2.1	N.T.
D1-2	DL-2	0.51	19	3GEH	6	0.38	85	4.7	40
D1-3	DL-3	0.51	19	3GEH	2	0.40	84	16	N.T.
D1-4	DL-4	0.51	19	3GEH	0	0.30	83	34	40
C1-2	CL-1	0.26	-	3GEH	20	0.41	88	0.3	40
D1-5	DL-1	0.26	19	3GEH	18	0.41	88	0.8	N.T.
D1-6	DL-2	0.26	19	3GEH	10	0.42	87	2.1	40
D1-7	DL-3	0.26	19	3GEH	4	0.36	85	8.3	N.T.
D1-8	DL-4	0.26	19	3GEH	0	0.25	87	18	39
C1-3	CL-1	0.13	-	3GEH	35	0.36	88	0.3	40
D1-9	DL-1	0.13	19	3GEH	25	0.35	88	0.4	N.T.
D1-10	DL-2	0.13	19	3GEH	10	0.31	87	0.7	40
D1-11	DL-3	0.13	19	3GEH	6	0.29	87	3	N.T.
D1-12	DL-4	0.13	19	3GEH	0	0.16	87	7.5	38
D1-13	DL-5	0.13	16	3GEH	0.13	N.T.	N.T.	N.T.	N.T.
D1-14	DL-6	0.13	16	3GEH	0.13	N.T.	N.T.	N.T.	N.T.
D1-15	DL-7	0.13	16	3GEH	0.13	N.T.	N.T.	N.T.	N.T.



C1-4	CL-2	0.13	-	苯甲酸異 癸酯	30	0.36	88	0.3	40
DI-16	DL-8	0.13	21.0	苯甲酸異 癸酯	5	0.35	88	0.3	40

N.T.=未測試

表3闡明將具有較高殘留羥基含量之第二樹脂添加至第一樹脂(具有較低殘留羥基含量)以製備多層夾層中之核心層導致與核心層厚度無關之顯著降低或甚至消除冰花缺陷形成。冰花缺陷形成之降低與第二樹脂之殘留羥基含量相關。例如，當第二樹脂具有18至19重量%之殘留羥基含量(樹脂-C)時，當此樹脂以35重量%存在時冰花缺陷消除。當該第二樹脂具有16重量%之殘留羥基含量時，當第二樹脂以45重量%存在時冰花缺陷可消除。換言之，冰花缺陷可以消除，與處於較高殘留羥基水平之樹脂所需量相比，處於較低殘留羥基含量之第二樹脂係更多需要。

第二樹脂降低或消除冰花缺陷之有效性進一步藉由比較在具有不同核心層厚度之相同核心層的層壓板中冰花缺陷面積而證明。例如，比較DI-1、DI-5及DI-9，均具有5重量%樹脂-C，隨著核心層厚度降低，冰花缺陷面積增加。但是當樹脂-C含量增加時，冰花缺陷水平降低。於35重量%樹脂-C時，於全部三種核心厚度下冰花缺陷完全消除。

全部夾層顯示高聲學阻尼性能(表示為於20℃下之阻尼損失係數(η))及隔音(表示為於參考頻率3,150 Hz下之STL)。隨著核心層改良及核心層厚度變化，聲學阻尼及隔音性能亦變化。例如，於0.51 mm之較厚核心水平下，在具有5至20重量%樹脂-C之核心中阻尼損失係數(η)及STL係相當恆定(或實質上未改變)於0.37與0.40間及40 dB，而於僅0.13 mm核心厚度下，在具有5至20重量%樹脂-C之核心中損失係數係介於0.29與0.35間及STL係介於38至40 dB間。於35重量%第二樹脂，樹脂-C之水平下，阻尼損失係數(η)於全部厚度下輕微降低及STL₅

係相當恆定。如由表3中數據顯示，聲學性能(阻尼損失係數(η))主要取決於核心層厚度，及增加核心層厚度改良聲學性能(增加阻尼損失係數(η))。

藉由調節核心厚度、核心中第二PVB樹脂之水平、及在皮及核心層中樹脂之殘留羥基含量，可設計及製備具有經改良性質(諸如降低之冰花缺陷水平)之多層夾層而不影響其聲學性能或阻尼損失係數。例如，C1-3及D1-11(0.13 mm(5密耳)核心層)分別具有0及20重量%第二樹脂，樹脂-C及0.36與0.29之阻尼損失係數(η)。從0.13 mm(5密耳)增加至0.26 mm(10密耳)核心層厚度同時保持於20重量%之第二樹脂，樹脂-C水平，將阻尼損失係數從0.29(D1-11)增加至0.36(D1-7)。藉由增加核心層厚度，可獲得相同樹脂摻合組合物之相同聲學性能(或阻尼損失係數(η))。僅將5重量%第二、較高殘留羥基含量之PVB樹脂添加至核心層，提供顯著降低冰花缺陷形成而不會不利或消極影響聲學阻尼性能。由此，可藉由將具有較高殘留羥基含量之PVB樹脂添加至核心層以顯著降低或消除冰花缺陷而不消極影響其阻尼損失係數來改良夾層。

使用高折射率塑化劑替代習知塑化劑3GEH塑化夾層C1-4及D1-16。藉由將5重量%第二樹脂(樹脂D)添加至核心層，濁度不受不利影響，如由隨著5%第二樹脂添加至核心層不改變之 $T_{vis}\%$ 及濁度%顯示。使用習知塑化劑(具有較低折射率)，當在核心中摻合兩種樹脂時，隨著添加第二樹脂，製備之夾層具有增加之濁度水平。例如，將5重量%樹脂-C添加至核心層及使用3GEH作為塑化劑，將濁度%從C1-1之0.3增加至D1-1之2.1、從C1-2之0.3至D1-5至0.8、及從C1-3之0.3至D1-9之0.4。隨著樹脂含量增加，濁度%增加。於全部核心厚度下於較高第二樹脂水平下， $T_{vis}\%$ 輕微降低。

由於核心層DL-1至DL-4中塑化劑含量降低(從73 phr至62 phr)，

在第一樹脂中塑化劑含量維持在75 phr及分配在核心層中第一PVB樹脂與皮層中樹脂間之塑化劑(如在表2中顯示)與在對照或對比夾層C1-1、C1-2、及C1-3中相同。第二樹脂中塑化劑含量係約38 phr。

核心層DL-5至DL-7分別含有15、30及45重量%水平之第二樹脂(具有16重量%之殘留羥基含量之樹脂-B)，及75 phr塑化劑含量。由於塑化劑分配在核心中第一與第二樹脂間，第一樹脂中塑化劑含量係大於75 phr及第二樹脂中塑化劑含量係小於75 phr。隨著核心層DL-5至DL-7與皮層組合(如在表2中顯示)，存在分配在皮層與核心層間之額外塑化劑，從而導致皮層中及核心層中不同於初始添加量之塑化劑含量。

核心層CL-2由僅單一樹脂及高折射率塑化劑(苯甲酸異癸酯，於25℃下之折射率=1.490)組成，及核心層DL-8由與高折射率塑化劑(苯甲酸異癸酯)組合之樹脂-A(具有10至11重量%殘留羥基含量)及樹脂-D(具有21至22重量%殘留羥基含量)之摻合物組成。

額外對比層(C0至C5)及揭示層(D0至D5)描繪在表4中。在表4中實例進一步闡明當將具有不同(或較高)殘留羥基含量之第二PVB樹脂添加至具有第一PVB樹脂之層(諸如核心層)時，當使用高折射率塑化劑替代習知(即，較低折射率)塑化劑時所得經由添加第二不同PVB樹脂形成之濁度可降低或最小化。如上文描述製備夾層。該夾層之厚度係0.76 mm。測量折射率、T_{vis}%及濁度%，及結果在下表4中顯示。

表4

樣品	樹脂-D(重量份)	樹脂-A(重量份)	塑化劑(3GEH)含量(phr)	塑化劑(摻合物*)含量(phr)	折射率	T _{vis} (%)	濁度(%)
C0	100	0	75	0	1.467	88	1.0
C1	95	5	73	0	1.467	77	44
C2	90	10	71	0	1.467	75	85
C3	80	20	68	0	1.468	80	90
C4	70	30	64	0	1.469	81	95

C5	60	40	60	0	1.469	82	92
D0	100	0	0	75	1.496	88	1.0
D1	95	5	0	73	1.496	88	1.0
D2	90	10	0	71	1.496	89	1.9
D3	80	20	0	68	1.496	88	3.1
D4	70	30	0	64	1.497	88	3.8
D5	60	40	0	60	1.497	88	2.4

如在表4中顯示，隨著在使用具有較低折射率(於25℃下之RI為約1.442)之習知塑化劑製備的對比層(C0至C5)中第二樹脂之含量從0增加至40重量%，濁度%顯著增加(從使用僅一樹脂之1.0至95高)及 T_{vis} %降低。在使用具有較高折射率(於25℃下之RI=1.513)之塑化劑摻合物製備的揭示夾層(D0至D5)中，隨著第二樹脂含量增加，濁度%增加少許多，從僅一種樹脂之1.0至3.8高，及 T_{vis} %實質上保持相同(於約88%)。

總之，具有本文描述核心層之多層夾層具有數個優於先前用於此項技術之習知多層夾層的優點。一般而言，與先前用於此項技術之多層夾層相比，包括如本文描述核心層之多層夾層具有增加之對常見於多層嵌板中之冰花缺陷形成之抗性而不犧牲其他性質，諸如聲學性能或光學性質(諸如濁度%及 T_{vis} %)。對於彼等熟習此項技術者而言其他優點係明顯。

雖然本發明已經結合特定實施例(包括彼等目前認為係較佳實施例)之描述進行揭示，但是詳細描述意在闡明而不應理解為限制本發明之範疇。如一般技術者所瞭解，本發明涵蓋不同於本文詳細描述之彼等的實施例。可在不脫離本發明之精神及範疇下進行描述實施例之改良及變化。

應進一步瞭解，針對本發明之任何單一組分給定的任何範圍、值、或特徵可與針對本發明之任何其他組分給定的任何範圍、值或特徵在相容處交換使用，以形成如全文給出之具有限定之各個組分值的實施例。例如，可形成包括具有任何給定範圍內之殘留羥基含量之聚

(乙烯醇縮丁醛)之夾層，以及包括任何給定範圍內之塑化劑以形成眾多在本發明範疇內之組合，但其難以列出。此外，除非另作聲明，否則針對屬或類目，諸如鄰苯二甲酸酯或苯甲酸酯提供之範圍，亦可用於屬中之種或類目之成員，諸如對苯二酸二辛酯。

【符號說明】

無

I648158

發明摘要

※ 申請案號：

※ 申請日：

※IPC 分類：

【發明名稱】

防止缺陷形成之多層夾層

MULTIPLE LAYER INTERLAYER RESISTING DEFECT
FORMATION

【中文】

本發明揭示一種包括硬皮層及軟核心層之多層夾層。該多層夾層包括：包括經塑化之聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂之第一聚合物層(皮層)；包括兩或更多種具有不同殘留羥基含量之經塑化之聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂之摻合物的第二聚合物層(核心層)，其中該塑化劑係具有至少約1.460之折射率之高折射率塑化劑；及可選之包括經塑化之聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂之第三聚合物層(皮層)。

【英文】

Multilayered interlayers comprising stiff skin layers and a soft core layer(s) are disclosed. The multilayered interlayers comprise: a first polymer layer (skin layer) comprising plasticized poly(vinyl butyral) resin; a second polymer layer (core layer) comprising a blend of two or more plasticized poly(vinyl butyral) resins having different residual hydroxyl content wherein the plasticizer is a high refractive index plasticizer having a refractive index of at least about 1.460; and optionally, a third polymer layer (skin layer) comprising plasticized poly(vinyl butyral) resin.

【代表圖】

【本案指定代表圖】：無。

【本代表圖之符號簡單說明】：

無

【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特性的化學式】：

無

申請專利範圍

1. 一種防止冰花缺陷形成之聚合物夾層，該聚合物夾層包括：
 - 至少一軟層，其中該軟層包括：
 - 具有第一殘留羥基含量之第一聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂；
 - 具有第二殘留羥基含量之第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂，其中該第一殘留羥基含量與該第二殘留羥基含量間之差異係至少2.0重量%；及
 - 具有至少約1.460之折射率之高折射率塑化劑；
 - 至少一包括具有第三殘留羥基含量之第三聚(乙烯醇縮丁醛樹脂)的較硬層；及
 - 塑化劑，
 其中該聚合物夾層具有至少0.15之阻尼損失係數(η)(如由ISO 16940測得)、小於1.0%之濁度百分比(依照ASTM D1003-61(1977年再次批准)-程序A使用發光體C於2度之觀察者角度下藉由濁度計測得)。
2. 如請求項1之聚合物夾層，其中該第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂係以5重量%至45重量%之含量存在。
3. 如請求項1之聚合物夾層，其中該第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂係以10重量%至40重量%之含量存在。
4. 如請求項1之聚合物夾層，其中該聚合物夾層之該軟層具有至少一小於15°C之玻璃轉變溫度(T_g)。
5. 如請求項1之聚合物夾層，其中該塑化劑係選自二苯甲酸二丙二醇酯、二苯甲酸三丙二醇酯、二苯甲酸聚丙二醇酯、苯甲酸異癸酯、苯甲酸2-乙基己基酯、苯甲酸二乙二醇酯、苯甲酸丁氧基乙酯、苯甲酸丁氧基乙氧基乙酯、苯甲酸丁氧基乙氧基乙氧基

乙酯、二苯甲酸丙二醇酯、2,2,4-三甲基-1,3-戊二醇二苯甲酸酯、2,2,4-三甲基-1,3-戊二醇苯甲酸酯異丁酸酯、二苯甲酸1,3-丁二醇酯、二鄰甲苯甲酸二乙二醇酯、二鄰甲苯甲酸三乙二醇酯、二鄰甲苯甲酸二丙二醇酯、二苯甲酸1,2-辛酯、苯三甲酸三-2-乙基己基酯、對苯二甲酸二-2-乙基己基酯、雙酚A雙(2-乙基己酸酯)、對苯二甲酸二-(丁氧基乙基)酯、對苯二甲酸二-(丁氧基乙氧基乙基)酯、及其混合物。

6. 如請求項4之聚合物夾層，其中該塑化劑係兩或更多種塑化劑之混合物。
7. 如請求項1之聚合物夾層，其進一步包括具有至少1.460之折射率之第二高折射率塑化劑。
8. 如請求項1之聚合物夾層，其中該聚合物夾層進一步包括具有小於1.450之折射率之塑化劑。
9. 如請求項1之聚合物夾層，其中該濁度百分比係小於0.5%(依照ASTM D1003-61(1977年再次批准)-程序A使用發光體C於2度之觀察者角度下測得)。
10. 如請求項1之聚合物夾層，其中該聚合物夾層具有至少兩個不同玻璃轉變溫度(T_g)且該至少兩個不同玻璃轉變溫度(T_g)間之差異係至少3°C。
11. 一種防止冰花缺陷形成之聚合物夾層，該聚合物夾層包括：
 - 至少一軟層，其中該軟層包括：
 - 具有第一殘留羥基含量之第一聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂；
 - 具有第二殘留羥基含量之第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂，其中該第一殘留羥基含量與該第二殘留羥基含量間之差異係至少2.0重量%；及
 - 至少一種具有至少1.460之折射率之塑化劑，其選自二苯甲

酸二丙二醇酯、二苯甲酸三丙二醇酯、二苯甲酸聚丙二醇酯、苯甲酸異癸酯、苯甲酸2-乙基己基酯、苯甲酸二乙二醇酯、苯甲酸丁氧基乙酯、苯甲酸丁氧基乙氧基乙酯、苯甲酸丁氧基乙氧基乙氧基乙酯、二苯甲酸丙二醇酯、2,2,4-三甲基-1,3-戊二醇二苯甲酸酯、2,2,4-三甲基-1,3-戊二醇苯甲酸酯異丁酸酯、二苯甲酸1,3-丁二醇酯、二鄰甲苯甲酸二乙二醇酯、二鄰甲苯甲酸三乙二醇酯、二鄰甲苯甲酸二丙二醇酯、二苯甲酸1,2-辛酯、苯三甲酸三-2-乙基己基酯、對苯二甲酸二-2-乙基己基酯、雙酚A雙(2-乙基己酸酯)、對苯二甲酸二-(丁氧基乙基)酯、對苯二甲酸二-(丁氧基乙氧基乙基)酯、及其混合物；

至少一包括具有第三殘留羥基含量之第三聚(乙烯醇縮丁醛樹脂)之較硬層；及

塑化劑，

其中該聚合物夾層具有至少0.15之阻尼損失係數(η)(如由ISO 16940測得)、小於1.0%之濁度百分比(依照ASTM D1003-61(1977年再次批准)-程序A使用發光體C於2度之觀察者角度藉由濁度計測得)。

12. 如請求項11之聚合物夾層，其中該塑化劑係兩或更多種塑化劑之混合物。
13. 如請求項11之聚合物夾層，其中該第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂係以5重量%至45重量%之含量存在。
14. 如請求項11之聚合物夾層，其中該第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂係以10重量%至40重量%之含量存在。
15. 如請求項11之聚合物夾層，其進一步包括具有至少1.460之折射率之第二高折射率塑化劑。

16. 如請求項11之聚合物夾層，其中該濁度百分比係小於0.5%(依照 ASTM D1003-61(1977年再次批准)-程序A使用發光體C於2度之觀察者角度下測得)。
17. 如請求項11之聚合物夾層，其中該聚合物夾層具有至少兩個不同玻璃轉變溫度(T_g)且該至少兩個不同玻璃轉變溫度(T_g)間之差異係至少5°C。
18. 一種防止冰花缺陷形成之聚合物夾層，該聚合物夾層包括：
至少一軟層，其中該軟層包括：
具有第一殘留羥基含量之第一聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂；
具有第二殘留羥基含量之第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂，其中該第一殘留羥基含量與該第二殘留羥基含量間之差異係至少2.0重量%；及
具有至少約1.460之折射率之高折射率塑化劑；
至少一包括具有第三殘留羥基含量之第三聚(乙烯醇縮丁醛樹脂)之較硬層；及
塑化劑，
其中該聚合物夾層具有至少約0.15之阻尼損失係數(η)(如由 ISO 16940測得)、小於1.0%之濁度百分比(依照 ASTM D1003-61(1977年再次批准)-程序A使用發光體C於2度之觀察者角度藉由濁度計測得)，及其中該第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂係以5重量%至45重量%之含量存在。
19. 如請求項18之聚合物夾層，其進一步包括第二塑化劑，其中該第二塑化劑具有小於1.450之折射率。
20. 如請求項18之聚合物夾層，其中該第二聚(乙烯醇縮丁醛)樹脂係以10重量%至40重量%之含量存在。