



(12) 发明专利

(10) 授权公告号 CN 109311280 B

(45) 授权公告日 2021.10.01

(21) 申请号 201780035918.1

(22) 申请日 2017.05.08

(65) 同一申请的已公布的文献号  
申请公布号 CN 109311280 A

(43) 申请公布日 2019.02.05

(30) 优先权数据  
62/333371 2016.05.09 US

(85) PCT国际申请进入国家阶段日  
2018.12.10

(86) PCT国际申请的申请数据  
PCT/US2017/031509 2017.05.08

(87) PCT国际申请的公布数据  
W02017/196707 EN 2017.11.16

(73) 专利权人 可乐丽欧洲有限责任公司  
地址 德国哈特斯海姆

(72) 发明人 S.本尼森 C.A.史密斯 S.M.汉森  
井口利之 R.L.史密斯 楠藤健  
小林卓哉

(74) 专利代理机构 中国专利代理(香港)有限公司  
72001  
代理人 李连涛 林毅斌

(51) Int.Cl.  
B32B 17/10 (2006.01)

(56) 对比文件  
WO 2015085165 A1, 2015.06.11  
WO 2015085165 A1, 2015.06.11  
JP 2009256128 A, 2009.11.05

审查员 徐东

权利要求书3页 说明书38页 附图7页

(54) 发明名称  
多层夹层和玻璃层合体

(57) 摘要  
提供了一种含有指定离聚物表层和声阻尼中间层的多层夹层,以及含有此类夹层的层合体,其中所述层合体具有适用于运输和建筑最终用途的隔音、弯曲强度和光学性质的所需组合。

1. 一种多层夹层,所述多层夹层包括:

- (1) 第一表层A,所述第一表层A是任选含有一种或多种添加剂的第一热塑性树脂的层,
- (2) 第二表层C,所述第二表层C是任选含有一种或多种添加剂的第二热塑性树脂的层,

和

- (3) 声阻尼层B,所述声阻尼层B在所述第一表层A与所述第二表层C之间,

其特征在于(I)所述第一热塑性树脂和所述第二热塑性树脂相同或不同,(II)所述第一热塑性树脂和所述第二热塑性中的至少一者是第一离聚物树脂,并且(III)所述声阻尼层B是任选含有一种或多种添加剂的热塑性弹性体树脂的层,并且

其中所述第一离聚物树脂是至少部分中和的丙烯酸共聚物,所述丙烯酸共聚物包含以下共聚单元:

- (a) 乙烯,
- (b) 10重量%至30重量%的至少一种具有3至10个碳原子的 $\alpha,\beta$ -不饱和羧酸,和
- (c) 2重量%至15重量%的至少一种具有3至10个碳原子的 $\alpha,\beta$ -不饱和羧酸衍生物,

其中(i)所述共聚单元的重量百分比是基于所述丙烯酸共聚物总重量,并且所述共聚单元的重量百分比之和为100重量%,(ii)所述至少一种具有3至10个碳原子的 $\alpha,\beta$ -不饱和羧酸衍生物包括 $\alpha,\beta$ -不饱和羧酸酯,并且(iii)所述 $\alpha,\beta$ -不饱和羧酸的至少一部分羧酸基团经中和以形成离聚物,所述离聚物包含具有平衡离子的羧酸根基团。

2. 根据权利要求1所述的多层夹层,其特征在于所述第一离聚物树脂是至少部分中和的丙烯酸共聚物,所述丙烯酸共聚物包含以下共聚单元:

- (i) 乙烯,
- (ii) 10重量%至30重量%的至少一种具有3至10个碳原子的 $\alpha,\beta$ -不饱和羧酸,和
- (iii) 5重量%至15重量%的至少一种具有3至10个碳原子的 $\alpha,\beta$ -不饱和羧酸酯。

3. 根据权利要求1或权利要求2所述的多层夹层,其特征在于(i)所述具有3至10个碳原子的至少 $\alpha,\beta$ -不饱和羧酸基本上由甲基丙烯酸组成,或(ii)所述至少一种具有3至10个碳原子的 $\alpha,\beta$ -不饱和羧酸酯是丙烯酸正丁酯、甲基丙烯酸正丁酯、丙烯酸异丁酯和甲基丙烯酸异丁酯中的一种或多种,或者(iii)所述丙烯酸共聚物中存在的所述羧酸基团的总含量的20%至30%被中和,或(iv)所述第一离聚物树脂的平衡离子选自由钠阳离子、镁阳离子、锌阳离子以及它们的组合组成的组,或(v) (i)、(ii)、(iii)和(iv)中的两者或更多者的组合。

4. 根据权利要求1或权利要求2所述的多层夹层,其特征在于所述热塑性弹性体树脂是具有以下嵌段的嵌段共聚物的氢化产物:

(i) 芳族乙烯基聚合物嵌段(a),其含有基于所述芳族乙烯基聚合物嵌段60mol%或更多的芳族乙烯基单体单元,和

(ii) 脂肪族不饱和聚合物嵌段(b),其含有基于所述脂肪族不饱和聚合物嵌段60mol%或更多的共轭二烯单体单元,

其中所述脂肪族不饱和聚合物嵌段(b)含有总共50mol%或更多的异戊二烯单元和丁二烯单元作为所述共轭二烯单体单元,并且

其中衍生自共轭二烯单体单元的脂肪族不饱和聚合物嵌段的残余碳-碳双键的量为2mol%至40mol%。

5. 根据权利要求1或权利要求2所述的多层夹层,其特征在于层B是两种或更多种热塑性弹性体树脂的层,所述两种或更多种热塑性弹性体树脂各自具有不同的 $\tan\delta$ 峰值温度。

6. 根据权利要求1或权利要求2所述的多层夹层,其特征在于所述声阻尼层B与第一表层A直接接触,或者所述声阻尼层B与第一表层A和第二表层C两者直接接触。

7. 根据权利要求1或权利要求2所述的多层夹层,其特征在于所述第一表层A是离聚物树脂的层,并且第二表层B是不同的热塑性树脂的层。

8. 根据权利要求1或权利要求2所述的多层夹层,其特征在于所述第一表层A和第二表层C两者都是所述第一离聚物树脂的层。

9. 根据权利要求1或权利要求2所述的多层夹层,其特征在于所述热塑性弹性体树脂包含作为添加剂的含羧基的烯属聚合物。

10. 根据权利要求1或权利要求2所述的多层夹层,其特征在于热屏蔽材料包含在层A和层C两者中,并且(i)所述热屏蔽材料是铯掺杂的氧化钨并且以 $0.17\text{g}/\text{m}^2$ 至 $0.35\text{g}/\text{m}^2$ 的量包含,或者(ii)所述热屏蔽材料是锡掺杂的氧化钨并且以 $0.3\text{g}/\text{m}^2$ 至 $0.6\text{g}/\text{m}^2$ 的量包含,或者(iii)所述热屏蔽材料是铯掺杂的氧化钨与锡掺杂的氧化钨的混合物,并且以 $0.05\text{g}/\text{m}^2$ 至 $0.15\text{g}/\text{m}^2$ 的铯掺杂的氧化钨和 $0.4\text{g}/\text{m}^2$ 至 $0.5\text{g}/\text{m}^2$ 的锡掺杂的氧化钨的量包含。

11. 根据权利要求1或权利要求2所述的多层夹层,其特征在于层B的厚度为 $20\mu\text{m}$ 或更大且 $300\mu\text{m}$ 或更小;层A和层C中的每一层的厚度为 $100\mu\text{m}$ 或更大且 $500\mu\text{m}$ 或更小,所述层A和层C的组的总厚度为 $300\mu\text{m}$ 或更大且 $750\mu\text{m}$ 或更小;层B的总厚度/所述层A+C的总厚度为1/1或更小且1/30或更大;并且所述多层层合体的总厚度为 $320\mu\text{m}$ 或更大且 $1250\mu\text{m}$ 或更小。

12. 根据权利要求1或权利要求2所述的多层夹层,其特征在于当所述多层夹层层合在两块玻璃之间以制备层合体时,所述层合体具有以下项的组合:根据ASTM E90-9和ASTM E413-10测定的33或更高的声音传输等级、根据ISO16940:2008(E)测定的至少0.4的层合体损耗因数、根据ISO16940:2008(E)测定的至少70N.m的等效弯曲刚度模量、根据ISO1288-4:2016测定的至少2.8mm的有效厚度、以及根据ASTM D1003-61,方法A测定的小于0.6的层合体雾度。

13. 根据权利要求12所述的多层夹层,其具有至少100N.m,或至少130N.m的等效弯曲刚度模量。

14. 根据权利要求1或权利要求2所述的多层夹层,其特征在于所述夹层基本上不含增塑剂。

15. 一种层合体,所述层合体包括第一外部片和第二外部片,所述第一外部片和所述第二外部片具有插置在其间的多层夹层,其特征在于所述多层夹层为如权利要求1-14中任一项所述的。

16. 根据权利要求15所述的层合体,其特征在于所述第一外部片和所述第二外部片都是玻璃片。

17. 根据权利要求16所述的层合体,其特征在于所述第一玻璃片和所述第二玻璃片的厚度不同。

18. 根据权利要求15-17中任一项所述的层合体,所述层合体具有以下项的组合:根据ASTM E90-9和ASTM E413-10测定的33或更高的声音传输等级、根据ISO16940:2008(E)测定的至少0.4的层合体损耗因数、根据ISO16940:2008(E)测定的至少70N.m的等效弯曲刚度模

量、根据ISO1288-4:2016测定的至少2.8mm的有效厚度、以及根据ASTM D1003-61,方法A测定的小于0.6的层合体雾度。

19. 根据权利要求18所述的层合体,其具有至少100N.m或至少130N.m的等效弯曲刚度模量。

20. 根据权利要求15-17中任一项所述的层合体,其中所述层合体的质量在7kg/m<sup>2</sup>至10kg/m<sup>2</sup>或8kg/m<sup>2</sup>至9.5kg/m<sup>2</sup>的范围内。

21. 一种玻璃层合体,所述玻璃层合体包括第一玻璃片和第二玻璃片,所述第一玻璃片和所述第二玻璃片具有插置在其间的热塑性多层夹层,其特征在于所述热塑性多层夹层为如权利要求1-14中任一项所述的,并且所述层合体的质量在7g/cm<sup>2</sup>至10g/cm<sup>2</sup>的范围内,并且具有以下项的组合:根据ASTM E90-9和ASTM E413-10测定的33或更高的声音传输等级、根据ISO16940:2008 (E) 测定的至少0.4的层合体损耗因数、根据ISO16940:2008 (E) 测定的至少70N.m的等效弯曲刚度模量、根据ISO1288-4:2016测定的至少2.8mm的有效厚度、以及根据ASTM D1003-61,方法A测定的小于0.6的层合体雾度。

## 多层夹层和玻璃层合体

### 技术领域

[0001] 本发明整体涉及一种多层夹层和含有此类夹层的玻璃层合体。更具体地,本发明涉及一种多层夹层,所述多层夹层含有至少一个离聚物表层和至少一个隔音中间层,其中含有此类夹层的玻璃层合体具有声阻尼(acoustic damping)、声屏障(acoustic barrier)、弯曲强度、弯曲刚度和光学性质、以及任选的太阳热屏蔽性质的所需组合,所述所需组合可以允许减轻所得玻璃层合体的重量。

### [0002] 发明背景

[0003] 虽然用于窗玻璃等的玻璃板具有卓越的耐久性和光学性质,但是它们的声阻尼和声屏障性能(抗弯曲振动的 $\tan\delta$ )以及抗破损性对于许多最终用途来说可能是不够的。如果应用需要轻质玻璃装配元件,在所述轻质玻璃装配元件中需要薄玻璃板,则尤其如此。

[0004] 层合玻璃通常通过将两片玻璃层合到塑料夹层上而制成。与相对较厚的玻璃片相比,该夹层可以极大地改善层合体的抗破损性、声阻尼和声屏障性能,但往往具有光学、弯曲强度、刚度和其它性质方面的缺点。

[0005] 除了高透明度和抗破损性之外,层合玻璃的许多用途还需要在外部载荷影响下优异的隔音性质(对内部和外部声音的隔音性质)和弯曲强度与刚度的所需组合(例如,作为玻璃建筑材料和汽车最终用途时)。

[0006] 以聚乙烯醇缩丁醛为代表的聚乙烯醇缩醛在与各种有机或无机基材的粘合性或相容性方面以及在有机溶剂中的溶解性方面是优异的,并且它们被广泛用作陶瓷的各种粘合剂或粘结剂、各种油墨、涂料等以及安全玻璃夹层膜。

[0007] 含有聚乙烯醇缩醛和增塑剂的膜被广泛用作层合玻璃的夹层膜,因为它们与玻璃的粘合性优异。含有此类夹层的层合玻璃可被制成为具有良好的透明度、机械强度和柔韧性、以及抗破损性。

[0008] 在需要隔音的地方中构造玻璃(诸如窗户)的情况下,可以增加玻璃的厚度以增强重量的隔音效果,并且可以在两个或更多个玻璃片之间层合音衰减(sound dampening)夹层来增强隔音效果。在后一种使用夹层膜的方法中,通过使用具有阻尼性能的夹层膜来改善窗玻璃的隔音性质,并且夹层膜还可以具有将振动能转换成热能,从而吸收振动能的能力。

[0009] 作为改善隔音性质的一种方法,提出了一种多层夹层,其中在两个玻璃片之间层合由热塑性聚合物材料构成的两个外层之间的聚苯乙烯共聚物中间膜(参见例如JP2007-91491A)。作为热塑性聚合物材料的示例提及的是增塑的聚乙烯醇缩醛基树脂和乙烯-(甲基)丙烯酸酯共聚物树脂。然而,层合体的弯曲强度不足,使得其不适合在外部载荷影响下使用。

[0010] 其它塑料材料已广泛用于安全层合体。例如,US7951865B1公开了使用至少部分中和的乙酸共聚物(离聚物)作为用于制备安全层合玻璃的夹层的用途。虽然这些类型的离聚物具有优异的弯曲强度和玻璃粘附性质以及良好的光学性质,但由此类离聚物夹层制成的层合体不具有良好的音衰减性质。

[0011] 作为另一种方法,提出了一种用于层合玻璃的夹层膜,所述夹层膜由聚乙烯醇缩丁醛构成并具有一定的抗冲击性和隔音性质(参见例如US7452608B2)。夹层膜可以是单层或多层的,但是层合体的弯曲强度又不足以用于在外部载荷影响下使用。

[0012] 除了上述之外,在制备多层聚乙烯醇缩醛树脂膜方面已具有很大发展,在所述多层聚乙烯醇缩醛树脂膜中,中间聚乙烯醇缩醛层中的至少一个中间聚乙烯醇缩醛层具有音衰减特质。例如,提出了一种方法,其中隔音层由三层PVB膜构成(参见例如US2013/0183507A1)等。然而,在宽温度范围内所提出系统的隔音性质不能保持在高水平。

[0013] 已建议了用于替代中间聚乙烯醇缩醛音衰减层的其它材料,例如,诸如在US7121380B2中公开的粘弹性丙烯酸层、诸如在JP2009-256128A中公开的在含热粘合性树脂的各层之间的含苯乙烯与橡胶系树脂单体的共聚物的层、诸如在US2012/0204940A1中公开的含聚烯烃的层、诸如在W02015/013242A1中公开的含乙烯/乙酸乙烯酯聚合物的层,以及诸如在W02015/085165A1中公开含乙酸共聚物的层。

[0014] 在运输领域中,例如为了减轻车辆重量以提高燃料效率的目的,近年来正在推进玻璃的薄化。然而,当玻璃变薄时,相干阈值频率(相干阈值频率意为发生相干效应的频率区域中的最低频率,在所述相干效应中隔音性能落入与质量定律所预期的频率相比的高频区域中)向高频侧移动,由此降低了高频区域的隔音性能。在使用具有隔音性质的中间膜的传统层合玻璃中,易于发生上述现象,因此需要改进。

[0015] 此外,薄化玻璃会降低层合体的承载能力和刚度,从而导致轻质玻璃装配设计中的结构可靠性挑战。

[0016] 为了获得具有改善的高频区域隔音性质的层合玻璃,提出了调节多层夹层的各层厚度和聚乙烯醇缩醛树脂的羟基量的方法(参见例如US2013/0183507A1)、选择多层夹层的各层中的聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂以使得由构成各层的聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂获得的增塑剂溶液的浊点是规定关系的方法(参见例如US8741439B2)、交联隔音层的方法(参见例如JP2012-214305A)、使用增塑剂以使得与聚乙烯醇缩醛树脂的SP值差异为规定值或更大值的方法(参见例如US8883317B2)等。然而,高频区域隔音性质的改善是不足够的。

[0017] 如前所述,聚乙烯醇缩醛(特别是聚乙烯醇缩丁醛)是用作玻璃层合体的夹层的主要热塑性材料。这些材料以高度塑化的形式使用,换句话说讲,将大量增塑剂添加到聚乙烯醇缩醛中以用作夹层。

[0018] 在制备层合玻璃时,进行使用高压釜等的热处理。然而,当具有增塑组分的多层夹层膜被加热时,增塑剂的层间迁移发生,从而增塑剂的分布发生改变。在层合玻璃制备后,增塑剂的分布在常温下随着时间推移向原始状态移回;然而,鉴于增塑剂迁移到其它层内的事实,在达到平衡之前,诸如隔音性质之类的物理性质变得不稳定。鉴于此,在使用传统多层中间膜制备层合玻璃的情况下,需要将制备的层合玻璃保留一段时间,直到隔音性能稳定。从生产率的角度来看该保留时间是有问题的,并且具有隔音功能的层合玻璃需要改进。

[0019] 另外,增塑剂平衡取决于温度,因此即使用于层合玻璃的中间膜在常温下具有高隔音性质,那么也涉及隔音性质在夏季或冬季大幅下降的问题。鉴于此,需要能够在宽温度范围内显示高水平隔音性质的层合玻璃。

[0020] 发明概述

[0021] 本发明通过提供一种多层夹层解决了上述问题,所述多层夹层当层合在两块玻璃板之间时提供具有隔音、弯曲强度、刚度和光学性质以及所需的隔热性质的所需组合,甚至更希望地在广泛的环境条件下具有该所需组合的玻璃层合体。

[0022] 根据第一实施方案,本发明提供了一种多层夹层,所述多层夹层包括:

[0023] (1) 第一表层A,所述第一表层是由任选含有一种或多种添加剂的第一热塑性树脂构成的层,

[0024] (2) 第二表层C,所述第二表层是由任选含有一种或多种添加剂的第二热塑性树脂构成的层,和

[0025] (3) 声阻尼层B,所述声阻尼层在所述第一表层A与所述第二表层C之间,

[0026] 其中(I)第一热塑性树脂和第二热塑性树脂相同或不同,(II)第一热塑性树脂和第二热塑性中的至少一者是第一离聚物树脂,并且(III)声阻尼层B是由任选含有一种或多种添加剂的热塑性弹性体树脂构成的层,并且

[0027] 其中所述第一离聚物树脂是至少部分中和的乙烯酸共聚物,所述共聚物包含以下共聚单元:

[0028] (a) 乙烯,

[0029] (b) 约10重量%至约30重量%的至少一种具有3至10个碳原子的 $\alpha,\beta$ -不饱和羧酸,和

[0030] (c) 约2重量%至约15重量%的至少一种具有3至10个碳原子的 $\alpha,\beta$ -不饱和羧酸衍生物,

[0031] 其中(i)所述共聚单元的重量百分比是基于所述乙烯酸共聚物总重量的,并且所述共聚单元的重量百分比之和为100重量%,(ii)所述至少一种具有3至10个碳原子的 $\alpha,\beta$ -不饱和羧酸衍生物包括 $\alpha,\beta$ -不饱和羧酸酯,并且(iii)所述 $\alpha,\beta$ -不饱和羧酸的至少一部分羧酸基团经中和以形成离聚物,所述离聚物包含具有平衡离子的羧酸根基团。

[0032] 在一个更具体的实施方案中,热塑性弹性体树脂是嵌段共聚物的氢化产物,所述嵌段共聚物具有:

[0033] (i) 芳族乙烯基聚合物嵌段(a),所述嵌段含有基于所述芳族乙烯基聚合物嵌段约60mol%或更多的芳族乙烯基单体单元,和

[0034] (ii) 脂肪族不饱和聚合物嵌段(b),所述嵌段含有基于所述脂肪族不饱和聚合物嵌段约60mol%或更多的共轭二烯单体单元,

[0035] 其中所述脂肪族不饱和聚合物嵌段(b)含有总共约50mol%或更多的异戊二烯单元和丁二烯单元作为所述共轭二烯单体单元,并且

[0036] 其中衍生自共轭二烯单体单元的脂肪族不饱和聚合物嵌段的残余碳-碳双键的量为约2mol%至约40mol%。

[0037] 根据第二实施方案,本发明提供一种层合体,所述层合体包括第一外部片和第二外部片,所述第一外部片和所述第二外部片之间插置有如本文所述的多层夹层,其中所述外部片中的至少一个外部片是玻璃片。

[0038] 在一个更具体的优选实施方案中,第一片和第二片都是玻璃片,并且是相同类型的玻璃或者各自是不同类型的玻璃。所述层合体可以是相对于玻璃对称(两块玻璃板的厚度基本上相等)或不对称(第一玻璃片和第二玻璃片的厚度不同)的。此外,夹层整体上可以

是对称的,具有基本上一致的厚度,或者可以是不对称的,其中夹层的一部分的厚度大于另一部分(例如,如下所述的“楔形件”)。此外,层合体可以是基本上透明的,或全部或部分具有着色(例如,如下所述的“遮光带”)。

[0039] 通过使用根据本发明的多层夹层,可以制备具有优异的隔音特性、弯曲强度和刚度的层合玻璃。据此,可以将层合玻璃应用于需要良好的外部载荷影响和隔音性质的地方,诸如用于建筑物和天窗的玻璃建筑材料或用于汽车的后玻璃。同时,鉴于层合玻璃具有优异的弯曲强度和刚度的事实,也可以薄化要用于层合玻璃的玻璃,并且可以实现层合玻璃的重量减轻,同时仍然保持可接受的层合玻璃的强度和刚度。

[0040] 另外,根据本发明,可以制备这样的层合玻璃,在所述层合玻璃中由于相干现象而会导致的高频区域隔音性能下降得到抑制并且所述层合玻璃具有优异的隔音性质。

[0041] 此外,根据本发明,可以提供这样的层合玻璃,在所述层合玻璃中,层合玻璃在制备后隔音性能随时间的变化小,并且所述层合玻璃具有优异的隔音性能稳定性。

[0042] 除上述之外,根据本发明,可以提供在宽温度范围内具有优异隔音性质的层合玻璃。

[0043] 另外,根据本发明,可以制备具有优异的整体光学性质的层合玻璃。

[0044] 因此,根据本发明的层合体提供了隔音、弯曲强度、刚度和光学性质以及所需的太阳热屏蔽性质的所需组合,所述所需组合适用于各种运输和建筑最终用途。

[0045] 通过阅读以下详细描述,本领域普通技术人员将更容易理解本发明的这些和其它实施方案、特征和优点。

[0046] 附图简述

[0047] 图1是根据本发明的层合体的第一实施方案的图,所述层合体的第一实施方案含有多层夹层和不同表层。

[0048] 图2是根据本发明的层合体的第二实施方案的图,所述层合体的第二实施方案含有多层夹层和相同表层。

[0049] 图3是根据本发明的层合体的第三实施方案的图,所述层合体的第三实施方案具有不同厚度和类型的玻璃,并且含有多层夹层和不同表层。

[0050] 图4是根据本发明的层合体的第五实施方案的图,所述层合体的第五实施方案具有相同的厚度和类型的玻璃,并且含有不对称的多层夹层,其中一个表层具有较厚部分而导致“全楔形”构型。

[0051] 图5是根据本发明的层合体的第四实施方案的图,所述层合体的第四实施方案具有相同的厚度和类型的玻璃,并且含有不对称的多层夹层,其中一个表层具有较厚部分以导致“部分楔形”构型。

[0052] 图6是根据本发明的层合体的第六实施方案的图,所述层合体的第六实施方案含有多层夹层(三层)和相同的表层,以及着色剂层,所述着色剂层在所述声学层的一部分与所述表层之间以导致偏移“遮光带”构型。

[0053] 图7是根据本发明的层合体的第七实施方案的图,所述层合体的第七实施方案含有多层夹层(4层)和相同的表层,以及着色剂层,所述着色剂层大致在两层所述中心层(声学层)之间的中心处以导致集中的“遮光带”构型。

## 具体实施方式

[0054] 本发明涉及一种多层夹层,一种含有此类多层夹层的玻璃层合体以及此类玻璃层合体的各种最终用途。以下提供进一步细节。

[0055] 在本说明书的上下文中,除非另有说明,否则本文提及的所有出版物、专利申请、专利和其它参考文献均为了所有目的而全部内容明确地以引用方式并入本文,如同全文列出一样。

[0056] 除非另外定义,否则本文使用的所有技术术语和科学术语具有与本公开所属领域的普通技术人员通常所理解的相同的含义。在发生冲突的情况下,以本说明书包括其中定义为准。

[0057] 除非明确叙述,否则商标以上标表示。

[0058] 除非另有说明,否则所有百分比、份数、比率等以重量计。

[0059] 除非另有说明,否则以psi单位表示的压力为表压,并且以kPa单位表示的压力为绝对压力。然而,压力差表示为绝对值(例如,压力1比压力2高25psi)。

[0060] 当量、浓度或其它值或参数作为范围或上限值和下限值列表给出时,这应理解为具体公开由任意一对任何范围上限和范围下限形成的所有范围,而不管所述范围是否单独公开。在本文中列举一系列数值的情况下,除非另有说明,否则该范围旨在包括其端值,以及该范围内的所有整数和分数。这并不意味着本公开的范围限于在定义范围时列举的具体值。

[0061] 当使用术语“约”时,其用于表示可以在一定公差范围内获得一定的效果或结果,并且本领域的技术人员知道如何获得该公差。当术语“约”用于描述值或范围的端值时,本公开应被理解为包括所提及的特定值或端值。

[0062] 如本文所用,术语“包括”、“包含”、“具有”、或它们的任何其它变体旨在涵盖非排他性的包含。例如,包括要素列表的过程、方法、制品或装置未必仅限于那些要素,还可包括未明确列出的或者这些过程、方法、制品或装置固有的其它要素。

[0063] 连接短语“由.....组成”不包括未在权利要求中指定的任何要素、步骤或成分,从而将权利要求限定为只包括列出的那些材料,而不含除杂质外通常与其相关的那些物项。当短语“由.....组成”出现在一个权利要求的主体的条款中,而不是立即跟在前言之后时,它只限制该条款中阐述的要素;其它要素作为整体未被排除在该权利要求之外。

[0064] 连接短语“基本上由.....组成”将权利要求的范围限制为指定的材料或步骤,并且不会对所要求保护的发明的基本特征和新型特征造成实质影响的那些材料或步骤。基本上由.....组成的权利要求处于以“由.....组成”格式书写的封闭式权利要求和以“包括/包含”格式起草的全开放式权利要求之间的中间地带。如本文所定义,术语“基本上由.....组成”并不将任选的添加剂(其含量适合此类添加剂)以及微量杂质排除在组合物之外。

[0065] 另外,除非明确说明其相反,“或(or)”和“和/或(and/or)”是指包含性的或,而不是排他性的或。例如,条件A或B,或A和/或B由以下条件中的任何一个条件满足:A为真(或存在)并且B为假(或不存在)、A为假(或不存在)并且B为真(或存在)、以及A和B都为真(或存在)。

[0066] 在本文中使用“一”或“一个”来描述各种要素和组分只是为了方便起见,并且表示

本公开的一般含义。该描述应理解为包括一个或至少一个,并且单数也包括复数,除非明显另有所指。

[0067] 如本文所用,除非本文另有定义,否则术语“主要部分”是指所提及的材料大于50%。如果未指定,则当提及分子(诸如氢和乙烯)时百分比是基于摩尔的,否则是基于重量(诸如添加剂含量)的。

[0068] 术语“耗尽”或“减少”与从最初存在的减少同义。例如,从料流中去除大部分材料将产生材料耗尽的料流,该料流基本上耗尽了该材料。相反,术语“富集的”或“增加的”与最初存在的大于同义。

[0069] 如本文所用,术语“共聚物”是指包含由两种或更多种共聚单体发生共聚合所生成的共聚单元的聚合物。就这一点而言,共聚物可以结合其组成共聚单体或其组成共聚单体的量在本文中描述,例如“共聚物包含乙烯和15重量%的丙烯酸”,或者类似的描述。此类描述可视为非正式的,因为它不涉及作为共聚单元的共聚单体;因为它不包括常规的共聚物命名法,例如国际纯化学和应用化学联合会(IUPAC)命名法;因为它不使用方法限定产品术语;或出于另外的原因。然而,如本文所用,结合其组成共聚单体或其组成共聚单体的量对共聚物进行的描述是指该共聚物含有指定共聚单体的共聚单元(在指定时具有指定量)。由此得出如下推论,即共聚物不是包含给定量的给定共聚单体的反应混合物的产物,除非在限定情况下进行此类明确表述。

[0070] 术语“二聚物”是指基本上由两个单体组成的聚合物,并且术语“三元共聚物”是指包含至少三个单体的聚合物。

[0071] 本文所用的术语“酸共聚物”是指包含以下共聚单元的共聚物: $\alpha$ -烯炔、 $\alpha,\beta$ -烯键式不饱和羧酸,以及任选其它合适的共聚单体,诸如 $\alpha,\beta$ -烯键式不饱和羧酸酯。

[0072] 如本文所用,单独或结合形式的术语“(甲基)丙烯酸类”,例如“(甲基)丙烯酸酯”,是指丙烯酸类或甲基丙烯酸类,例如“丙烯酸或甲基丙烯酸”、或“丙烯酸烷基酯或甲基丙烯酸烷基酯”。

[0073] 如本文所用的术语“离聚物”是指包含离子基团的聚合物,所述离子基团为羧酸盐,例如羧酸铵、碱金属羧酸盐、碱土金属羧酸盐、过渡金属羧酸盐和/或此类羧酸盐的组合。如本文所定义,此类聚合物通常通过部分或完全中和(例如通过与碱反应)前体或母体聚合物的羧酸基团来制备,其中所述前体或母体聚合物为酸共聚物。如本文所用的碱金属离聚物的示例为钠离聚物,例如乙烯与甲基丙烯酸的共聚物,其中共聚的甲基丙烯酸单元的羧酸基团的全部或部分为羧酸钠基团的形式。如本文所用的混合金属离聚物的示例是锌/钠离聚物(或锌/钠中和的混合离聚物),例如乙烯与甲基丙烯酸的共聚物,其中共聚的甲基丙烯酸单元的全部或部分羧酸基团为羧酸锌和羧酸钠的形式。

[0074] 尽管与本文描述的那些方法和材料类似或等效的方法和材料可于本公开的实践或测试中,但本文描述了适合的方法和材料。因此,本文的材料、方法和实施例仅为示例性的,并且除非特别说明,否则并非旨在限制。

[0075] 夹层和层合体结构

[0076] 如上所述,本发明的夹层是多层结构,所述多层结构具有在两个表层(层A和层C)之间的隔音层(层B)。

[0077] 本发明的层合体是这样的层合体,所述层合体包括层合在两片材料之间的多层夹

层,所述两片材料中的至少一片材料是(并且优选两者都是)玻璃片。

[0078] 在一个实施方案中,层B与层A和层C两者直接接触,但也可以如下所述使用中间层。

[0079] 图1中示出了根据本发明的多层夹层(10)和玻璃层合体(12)的优选实施方案。多层夹层(10)包括第一表层A(14),所述第一表层是如上文所一般描述和如下文详细描述的高聚物树脂。如下面进一步描述的,多层夹层(10)还包括第二表层C(16),所述第二表层可以是适用于玻璃层合体中的任何热塑性树脂。插置在第一表层A(14)与第二表层C(16)之间的是声阻尼层(18),所述声阻尼层是热塑性弹性体树脂。多层夹层(10)层合在两个玻璃片(20)之间。作为示例,在图1中,两个玻璃片(20)具有相同的类型和尺寸(对称玻璃)。

[0080] 另一个优选的实施方案是这样的多层夹层(24),在所述多层夹层中两个表层(14)A和C都是如上文一般描述和下文详细描述的高聚物树脂。插置在表层A与C(14)之间的是声阻尼层(18),所述声阻尼层是热塑性弹性体树脂。将多层夹层(24)层合在两个玻璃片(20)之间以制成玻璃层合体(22)。作为示例,在图2中,两个玻璃片(20)也是具有相同类型和尺寸的(对称层合体)。

[0081] 图3示出了又一优选实施方案,该图示出了玻璃层合体(26),所述玻璃层合体包含如上文关于图1所述的多层夹层(10),但是第一玻璃片(28)具有与第二玻璃片(29)不同的厚度和类型(不对称玻璃)。

[0082] 图4中示出了另一优选实施方案,所述优选实施方案是包含楔形多层夹层(44)的层合体(38)。

[0083] 在如图4所示的“标准楔形件”中,夹层将通常是等腰梯形或直角梯形,所述梯形的厚度从一条边到另一条边逐渐变化,楔角通常在约0.1mrad至约0.7mrad的范围内,并且厚边与薄边之间的差异通常大于约0.1mm。

[0084] 如图4所示,表层(40)是楔形的,而声学层(18)和表层(16)是矩形的。外部玻璃片(20)接触并基本上平行于表层(16),而外部玻璃片(42)接触表层(40)的非平行侧并且因此不与片(20)平行。

[0085] 图5中示出了另一优选实施方案,所述优选实施方案是被称为“部分楔形件”的层合体(32)。在所述部分楔形件中,夹层(30)通常对于至少约20%的宽度应具有均匀的厚度轮廓,然后楔形轮廓的厚度从具有均匀厚度的区域不断减小,并且楔角和其它范围应类似于标准楔形件。

[0086] 如图5所示,表层(34)是部分楔形的,而声学层(18)和表层(16)是矩形的。外部玻璃片(20)接触并基本上平行于表层(16),而外部玻璃片(36)接触并贴合表层(34)的非平行部分并且因此在该部分不与片(20)平行。

[0087] 通常,在“楔形件”中,整个多层结构可以是楔形的(所有层),或者任何单个层或层的组合可以是楔形的,例如外层中的一个或两个外层可以是楔形的并且芯层是矩形的,或者芯层可以是楔形的并且一个或多个外层是矩形的。对楔形夹层和层合体的另外描述和细节可例如参照US8574706B2、US9067386B2和US5639538找到。

[0088] 图6中示出了另一优选实施方案,所述优选实施方案是层合体(48),其中夹层(46)结构中的着色层(50)插置在声学层(18)与表层(14)之间的一个端部处。这种构型是典型的遮光带层合体。如图6所示,夹层(46)被视为三层体系,在所述三层体系中着色层(50)偏离

夹层(46)和层合体(48)的中心。

[0089] 图7中示出了另一优选实施方案,所述优选实施方案是遮光带形式,其中着色层(56)基本上在夹层(52)与层合体(54)的中心。在此类变型中,声学层具有两个层(18a)和(18b),从而使夹层(52)为4层系统(A/B1/B2/C)。

[0090] 例如,遮光带夹层和层合体的另外细节可以参照US4316868、US8075983B2和US7842395B2找到。

[0091] 同样,这些构型仅为示例性的,并且根据以下描述许多另外的构型对于相关领域的普通技术人员将是显而易见的。

[0092] 多层夹层

[0093] 层B-声阻尼层

[0094] 当将正弦波形的畸变施加到粘弹性体时的应力响应被定义为复数模量。此时,在要施加的正弦波畸变与作为响应获得的正弦波应力之间产生相移,并且该相位差以 $\delta$ 表示。此外,复数模量使用复数以等式表示,并且复数模量的实数部分称为储能模量,而其虚数部分称为损耗模量。具体地,在以剪切模式测量粘弹性体的动态粘弹性特性的情况下,它们分别被称为复数剪切模量、剪切储能模量和剪切损耗模量。将损耗模量除以储能模量获得的值称为损耗角正切,并以 $\tan\delta$ 表示。 $\tan\delta$ 的值是损耗因数,并且意味着在某一温度下的损耗因数越高,则该温度下的隔音性质越高。

[0095] 当绘制在每个测量温度下由两种粘弹性体组成的构造中 $\tan\delta$ 值的曲线时,通常显示出双峰曲线。低温侧的峰(最大点)是源于相对软的粘弹性体的峰,并且高温侧的峰(最大点)是源于相对硬的粘弹性体的峰。在本实施方案中,低温侧的峰是源于层B的峰(在存在多个峰的情况下,瞬时峰意味着最高峰),并且高温侧的峰是源于表层的峰。

[0096] 层B基于指定的热塑性弹性体树脂。层B中含有的树脂有利地具有这样的峰,在所述峰处,通过根据JIS K 7244-10在1Hz频率的条件下进行复数剪切粘度测试测得的 $\tan\delta$ 在约-40°C或更高、或约-30°C或更高,或约-20°C或更高处最大。此外,层B中含有的树脂有利地具有这样的峰,在所述峰处, $\tan\delta$ 在约30°C或更低,或约10°C或更低,或约0°C或更低处最大。当在所述峰处层B中含有的树脂的 $\tan\delta$ 在约30°C或更低处最大时,在宽温度区域中表现出了优异的隔音性质。当层B中包含的树脂的 $\tan\delta$ 最大的峰存在于约-40°C或更高处时,层B的剪切储能模量是合适的值,并且高频区域中的隔音性质优异。

[0097] 具体地,层B中包含的树脂的 $\tan\delta$ 可以通过以下方法测量。根据JIS K 7244-10,使用盘直径为8mm的应变控制型动态粘度仪(由Rheomix,ARES制造)作为平行板振荡流变仪。使用层B的单层片(厚度:0.76mm)作为盘形测试片。在使用前将片在20°C的温度和60%RH的湿度下储存24小时。将两个平板之间的间隙完全用测试片填充。将应变量为1.0%的振动以1Hz的频率施加到测试片上,其中温度以1°C/min的恒定速率从-40°C不断升高至100°C。保持测试片和盘的温度,直到剪切损耗模量和剪切储能模量的测量值不改变。然后可以测定层B的 $\tan\delta$ 的峰高度和峰值温度。

[0098] 作为调节峰,使得在所述峰处层B中包含的树脂的 $\tan\delta$ 在约-40°C至约30°C为最大的方法,例如例示了使用热塑性弹性体的方法,所述热塑性弹性体的硬链段(例如,芳族乙烯基聚合物嵌段)的含量为相对于嵌段共聚物(例如,具有芳族乙烯基聚合物嵌段和脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的嵌段共聚物)的总质量,约5质量%或更大且约40质量%或更小;含

有软链段结构的方法,例如以允许共轭二烯嵌段中支化单体的含量比,1,4-键、1,2-键和3,4-键的比率或氢化比落入适当范围内;等等。

[0099] 关于支化单体的含量比,例如在丁二烯和异戊二烯的共聚物的情况下,共聚物中异戊二烯单元的含量比优选为约20质量%或更大,或约50质量%或更大。关于1,4-键、1,2-键和3,4-键的比率,优选1,2-键和3,4-键的总和的比率为相对于1,4-键、1,2-键和3,4-键的总摩尔数,优选约20mol%或更大,或约30mol%或更大,或约40mol%或更大,或约50mol%或更大。氢化比优选为约60mol%或更大,或约65mol%或更大,或约70mol%或更大,或约75mol%或更大。

[0100] 用于本发明的层B可以仅由指定的树脂组成,或者可以是包括所述树脂和另一种组分的层。

[0101] 如所指出的,本发明的夹层在层B中含有热塑性弹性体。在一个实施方案中,层B含有含有两种或更多种具有彼此不同的 $\tan\delta$ 峰值温度( $\tan\delta$ 为最大的所述峰的温度)的热塑性弹性体。隔音性质在与 $\tan\delta$ 的峰值温度相关的指定温度附近变高,因此考虑到含有热塑性弹性体的层B含有两种或更多种彼此不同的 $\tan\delta$ 峰值温度的热塑性弹性体的事实,可以在更宽的温度范围内增强隔音性质。

[0102] 此外,为了在室温附近显示出合适的隔音特性,优选在复数剪切粘弹性测试中在1Hz频率的条件下将 $\tan\delta$ 的峰值温度调节至约0°C或更低,或约-5°C或更低,或约-10°C或更低。在这种情况下,通过使用具有物理或化学交联位点的弹性体,可以抑制在层合玻璃所暴露于的高温下发生玻璃偏离。此外,通过使用热塑性弹性体作为弹性体,可以通过共挤出法进行成膜,并且因此这是特别优选的。

[0103] 此外,具有彼此不同的 $\tan\delta$ 峰值温度的至少两种热塑性弹性体优选为这样的热塑性弹性体,所述热塑性弹性体包含芳族乙烯基单体与乙烯基单体或共轭二烯单体的共聚物,或所述共聚物的氢化产物。芳族乙烯基单体与乙烯基单体或共轭二烯单体的共聚物,或所述共聚物的氢化产物具有合适的粘弹性。鉴于此,考虑到此类热塑性弹性体包含在夹层中的事实,显示出合适的隔音性质。

[0104] 此外,通过形成夹层(所述夹层具有含热塑性弹性体的层B作为内层,并且具有层A和C用作粘合层、用作各个最外层),可以提供具有改善的隔音性质的层合玻璃用夹层膜,同时改善与玻璃的粘合性。

[0105] 除了上述之外,在所述两种或更多种具有彼此不同的 $\tan\delta$ 峰值温度的热塑性弹性体中(所述两种或更多种热塑性弹性体包含于含热塑性弹性体的层B中), $\tan\delta$ 峰值温度的差值优选为约5°C或更大,或约10°C或更大,或约15°C或更大。当 $\tan\delta$ 峰值温度的差值小于约5°C时,损耗因数为约0.2或更大的温度范围的宽度是窄的,因此往往难以揭示宽温度范围内的隔音性质。

[0106] 此外,在本发明的夹层中,当含有热塑性弹性体的层B由两个或更多个层组成时,至少一个层B中含有的热塑性弹性体的 $\tan\delta$ 峰值温度与另一层B中含有的热塑性弹性体的 $\tan\delta$ 峰值温度之间的差值为优选约5°C或更大,或约10°C或更大,或约15°C或更大。当所述至少两个层B中含有的热塑性弹性体之间的 $\tan\delta$ 峰值温度的差值小于约5°C时,损耗因数为约0.2或更大的温度范围宽度是窄的,因此往往难以揭示宽温度范围内的隔音性质。

[0107] 在用于本发明的层B中,通过根据JIS K 7244-10在1Hz频率的条件下进行复数剪

切粘度测试测得的 $\tan\delta$ 的至少一个峰的高度为优选约0.5或更高,或约0.75或更高,或约0.8或更高。此外,从进一步改善隔音性质的观点来看,在层B中, $\tan\delta$ 为最大的峰的高度优选为约1.0或更高,或约1.3或更高,或约1.5或更高。在层B中,当 $\tan\delta$ 的峰的高度小于约0.5时,所得到的层合玻璃用中间膜的隔音性质趋于变低。

[0108] 作为将层B中含有的树脂中的 $\tan\delta$ 峰高度调节到约0.5或更高的方法,例如例示了使用热塑性弹性体的方法,所述热塑性弹性体的硬链段(例如,芳族乙烯基聚合物嵌段)的含量为相对于嵌段共聚物(例如,具有芳族乙烯基聚合物嵌段和脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的嵌段共聚物)的总量,约40质量%或更小,或约30质量%或更小;使用热塑性弹性体的方法,所述热塑性弹性体具有软链段,在所述软链段中在直链二烯(例如,丁二烯)与支链二烯(异戊二烯)的共聚合中支链二烯(例如,异戊二烯)组分的比率为约10质量%或更大,或约30质量%或更大;使用热塑性弹性体的方法,所述热塑性弹性体具有软链段,在所述软链段中,相对于二烯单体中1,4-键的含量和1,2-键的含量的总和,1,2-键的含量的比率为约20mol%或更多,或约40mol%或更多;以及此外,调节构成硬链段或软链段的单体的种类、聚合物键和交联、各链段本身的玻璃化转变温度等的方法;等等。

[0109] 从进一步改善隔音性质的观点来看,层B中含有的树脂的玻璃化转变温度为优选约10°C或更低,或约-5°C或更低。对于层B中含有的树脂的玻璃化转变温度的下限没有特别限制,并且层B中含有的树脂的玻璃化转变温度为优选约-50°C或更高,或约-40°C或更高。差示扫描量热法(DSC)可用于玻璃化转变温度的测量方法。

[0110] 从制备隔音性质随时间变化小的层合玻璃或制备在宽温度范围内具有优异隔音性质的层合体的观点来看,如通过根据JIS K 7244-10在1Hz频率的条件下进行复数剪切粘度测试测量的,本发明中使用的层B(或层B中含有的树脂)在25°C的温度下的剪切储能模量为优选约0.1MPa或更大,或约0.2MPa或更大,或约0.3MPa或更大。此外,从上述观点来看,层B的剪切储能模量为优选约5.0MPa或更小,或约4.0MPa或更小,或约3.0MPa或更小,或约1.0MPa或更小,或约0.8MPa或更小,或约0.6MPa或更小。当层A的剪切储能模量小于约0.1MPa时,存在生产层合体的处理性质劣化或导致膜厚度不均匀的问题。此外,当层B的剪切储能模量大于约5.0MPa时,作为层合玻璃用中间膜的阻尼性能变低,因此作为隔音膜的功能趋于降低。

[0111] 剪切储能模量为约0.1MPa或更大且约5.0MPa或更小的层B可以例如通过以下方法获得:通过选择这样的热塑性弹性体作为层B中含有的树脂来调节硬链段(例如,芳族乙烯基聚合物嵌段)含量的方法,所述热塑性弹性体是由硬链段和软链段构成的作为嵌段共聚物的树脂,其中硬链段的含量为约5质量%或更大或约30质量%或更低;或者调节构成硬链段或软链段的单体的种类、聚合物键和交联、各链段本身的玻璃化转变温度等的方法。

[0112] 此外,从制备由于相干现象引起的高频区域隔音性能下降被抑制并且隔音性质优异的层合玻璃的观点来看,如通过根据JIS K 7244-10在1Hz频率的条件下进行复数剪切粘度测试测量的,本发明中使用的层B(或层B中含有的树脂)在25°C的温度下的剪切储能模量为优选约0.6MPa或更大,或约0.8MPa或更大,或约1.0MPa或更大。此外,从上述观点来看,层B的剪切储能模量为优选约3.0MPa或更小,或约2.0MPa或更小,或约1.5MPa或更小。当层B的剪切储能模量小于约0.6MPa时,层压板的刚性趋于降低。此外,当层B的剪切储能模量大于约3.0MPa时,模制或处理性质趋于降低。

[0113] 剪切储能模量为约0.6MPa或更大且约3.0MPa或更小的层B可以例如通过以下方法获得:通过使用嵌段共聚物(例如,具有芳族乙烯基聚合物嵌段和脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的嵌段共聚物)作为构成层B的树脂组合物中所含有的树脂并使用硬链段(例如,芳族乙烯基聚合物嵌段)的含量为相对于总量约14质量%或更大且约40质量%或更小的热塑性弹性体来调节硬链段的含量的方法;或者调节构成硬链段或软链段的单体的种类、聚合物键和交联、各链段本身的玻璃化转变温度等的方法。

[0114] 在由外力和对主体的应变产生的能量中,剪切储能模量是储存在该主体内的组分的指标,并且可以根据在应变控制型动态粘度仪中在测量温度下和恒定加热速率下动态模量与温度之间的关系来确定。

[0115] 虽然可以适当地设定剪切储能模量的测量条件,但是例如可以通过设置1Hz的频率和-40℃至100℃的温度来进行测量。JIS K 7244-10中的测试系统包括应力控制系统和应变控制系统。

[0116] 平行板振荡流变仪可用于JIS K 7244-10中的测试仪器。平行板振荡流变仪由两个同轴的刚性平行盘构成。动态粘弹性特征,诸如剪切损耗模量、剪切储能模量,可以通过将测试片放置在盘之间并将所述盘中的一个盘固定,以及以固定频率振动另一个盘来测量。

[0117] 所述盘的直径通常为20mm或更大且50mm或更小,并且测试片的厚度定义为所述盘之间的距离。为了使测量误差最小化,需要使用约3g或更重且5g或更轻的测试片并且使测试片的厚度落入0.5mm或更大且3mm或更小的范围内。此外,盘的直径与测试片的厚度之比有利地在10或更大且50或更小的范围内。借助于注射模制、压缩模制或从片切断,来以盘形状形成测试片。此外,可以在盘之间填充颗粒、液体或熔融聚合物。此外,将两个平板之间的间隙完全用测试片填充。

[0118] 在应变控制系统中,施加固定角频率的正弦波形畸变,并测量正弦扭矩和作为结果产生的扭矩与角位移之间的相位差。将扭矩测量仪器连接到一侧的平板,并且测量使测试片变形所需的扭矩。将角位移测量仪器连接到可移动侧上的平板,并测量角位移和频率。以固定频率向测试板提供正弦波形扭矩或角位移,并且根据测量的扭矩和位移以及测试片尺寸确定剪切损耗模量和剪切储能模量。

[0119] 此外,需要将测试仪器加热到测试温度,从而使测试仪器处于热平衡状态。需要通过使温度计与固定侧上的盘接触或将温度计埋在固定侧的盘中来测量测试温度。借助于强制对流、高频加热或适当的方法进行加热。完全保持测试片和盘,直到测试仪器在测试温度下达到热平衡状态,使得剪切损耗模量和剪切储能模量的测量值不改变。平衡时间有利地为15分钟或更长且30分钟或更短。

[0120] 从使模制性能和隔音性质两者相互兼容的观点来看,层B中使用的树脂是热塑性弹性体(有时简称为“弹性体”)。合适的热塑性弹性体的示例包括聚苯乙烯类弹性体(软链段:聚丁二烯、聚异戊二烯/硬链段:聚苯乙烯)、聚烯烃类弹性体(软链段:乙烯丙烯橡胶/硬链段:聚丙烯)、聚氯乙烯类弹性体(软链段:聚氯乙烯/硬链段:聚氯乙烯),聚氨酯类弹性体(软链段:聚醚、聚酯或聚碳酸酯/硬链段:聚氨酯)、聚酯类弹性体(软链段:脂肪族聚酯/硬链段:芳族聚酯)、聚醚酯类弹性体(软链段:聚醚/硬链段:聚酯)、聚酰胺类弹性体(软链段:聚丙二醇、聚四亚甲基醚二醇、聚酯或聚醚/硬链段:聚酰胺(诸如尼龙树脂))、聚丁二烯类

弹性体(软链段:无定形丁基橡胶/硬链段:间同立构的1,2-聚丁二烯树脂)、丙烯酸弹性体(软链段:聚丙烯酸酯/硬链段:聚甲基丙烯酸甲酯)。应注意,上述热塑性弹性体可以单独使用,或者可以两种或更多种热塑性弹性体的组合使用。

[0121] 热塑性弹性体中的硬链段的含量为相对于热塑性弹性体的总量,优选约5质量%或更大,或约7质量%或更大,或约8质量%或更大,或约10质量%或更大,或约14质量%或更大,或约16质量%或更大,或约18质量%或更大。硬链段的含量为相对于热塑性弹性体的总量,优选约40质量%或更小,或约30质量%或更小,或约20质量%或更小。当硬链段的含量小于约5质量%时,存在以下趋势:难以模制层B,  $\tan\delta$ 的峰的高度小,层合体的弯曲刚度小,或者高频区域中的隔音性质降低。当硬链段的含量为大于约40质量%时,存在以下趋势:难以表现出作为热塑性弹性体的特性,隔音性能的稳定性下降,或者室温附近的隔音特性下降。

[0122] 热塑性弹性体中的软链段的含量为相对于热塑性弹性体的总量,优选约60质量%或更大,或约70质量%或更大,或约80质量%或更大。软链段的含量为相对于热塑性弹性体的总量,优选约95质量%或更小,或约92质量%或更小,或约90质量%或更小,或约88质量%或更小,或约86质量%或更小,或约84质量%或更小,或约82质量%或更小。当软链段的含量小于约60质量%时,趋于难以表现出作为热塑性弹性体的特性。当软链段的含量大于约95质量%时,存在以下趋势:难以模制层B,  $\tan\delta$ 的峰的高度小,层合体的弯曲刚度小,或者高频区域中的隔音性质降低。在此,在混合多种热塑性弹性体的情况下,热塑性弹性体中的硬链段和软链段的含量各自被视为混合物的平均值。

[0123] 从使模制性能和隔音性质两者相互兼容的观点来看,更优选使用具有硬链段和软链段的嵌段共聚物作为热塑性弹性体。此外,从进一步改善隔音性质的观点来看,优选使用聚苯乙烯类弹性体。

[0124] 此外,可以使用天然橡胶、异戊二烯橡胶、丁二烯橡胶、氯丁橡胶、丁腈橡胶、丁基橡胶、乙丙橡胶,聚氨酯橡胶,硅橡胶、氯磺化聚乙烯橡胶、丙烯酸橡胶、氟橡胶等的交联橡胶作为热塑性弹性体。

[0125] 热塑性弹性体优选是芳族乙烯基单体与乙烯基单体或共轭二烯单体的共聚物,或所述共聚物的氢化产物。从使作为表现出隔音性质的橡胶的功能和作为塑料的功能彼此相容的观点来看,共聚物优选为具有芳族乙烯基聚合物嵌段和脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的嵌段共聚物,例如,聚苯乙烯类弹性体。

[0126] 在具有芳族乙烯基聚合物嵌段与乙烯基聚合物嵌段或共轭二烯聚合物嵌段的共聚物的情况下,例如,具有芳族乙烯基聚合物嵌段和脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的嵌段共聚物用作热塑性弹性体,对这些聚合物嵌段的结合形式没有特别限制,并且所述结合形式可以是以下项中的任何一种:直链结合形式、支链结合形式、径向结合形式(radial binding form),以及它们中的两种或更多种的组合结合形式。其中,直链结合形式是优选的。

[0127] 当芳族乙烯基聚合物嵌段表示为“a”,并且脂肪族不饱和烃聚合物嵌段表示为“b”时,直链结合形式的示例包括由a-b表示的二嵌段共聚物、由a-b-a或b-a-b表示的三嵌段共聚物、由a-b-a-b表示的四嵌段共聚物、由a-b-a-b-a或b-a-b-a-b表示的五嵌段共聚物、(a-b)<sub>n</sub>X型共聚物(X表示偶联残基,并且n表示2或更大的整数),以及它们的混合物。其中,二嵌段共聚物或三嵌段共聚物是优选的,并且三嵌段共聚物更优选为由a-b-a表示的三嵌段共

聚物。

[0128] 嵌段共聚物中芳族乙烯基单体单元和脂肪族不饱和烃单体单元的总和为相对于全部单体单元,优选约80质量%或更大,或约95质量%或更大,或约98质量%或更大。应注意,嵌段共聚物中的部分或全部脂肪族不饱和烃聚合物嵌段可以被氢化。

[0129] 嵌段共聚物中芳族乙烯基单体单元的含量为相对于嵌段共聚物的全部单体单元,优选约5质量%或更大,或约7质量%或更大,或约8质量%或更大,或约14质量%或更大,或约16质量%或更大,或约18质量%或更大。芳族乙烯基单体单元的含量为相对于嵌段共聚物的全部单体单元,优选约40质量%或更小,或约30质量%或更小,或约25质量%或更小,或约20质量%或更小。

[0130] 当嵌段共聚物中芳族乙烯基单体单元的含量小于约5质量%时,存在以下趋势:难以模制层A,由于热引起玻璃偏差, $\tan\delta$ 的峰高度小,层合体的弯曲刚度小,或者高频区域中的隔音性质降低。当嵌段共聚物中芳族乙烯基单体单元的含量大于约40质量%时,存在以下趋势:难以表现出作为热塑性弹性体的特性,或者隔音性能的稳定性降低。

[0131] 嵌段共聚物中芳族乙烯基单体单元的含量可以根据相应单体在该嵌段共聚物合成中的电荷比,或者该嵌段共聚物的 $^1\text{H-NMR}$ 和类似项的测量结果来确定。在本说明书的实施例中,单体物质的比例根据 $^1\text{H-NMR}$ 的测量结果来确定,并且各单体的比例以质量%进行描述。在此,在混合多种嵌段共聚物的情况下,嵌段共聚物中芳族乙烯基单体单元的含量被视为混合物的平均值。

[0132] 在芳族乙烯基聚合物嵌段中,除芳族乙烯基单体之外的单体可以共聚,只要所述单体的量小即可。芳族乙烯基聚合物嵌段中的芳族乙烯基单体单元的比例为相对于芳族乙烯基聚合物嵌段中的全部单体单元,优选约80质量%或更大,或约95质量%或更大,或约98质量%或更大。

[0133] 构成芳族乙烯基聚合物嵌段的芳族乙烯基单体的示例包括苯乙烯;烷基苯乙烯,诸如 $\alpha$ -甲基苯乙烯、2-甲基苯乙烯、3-甲基苯乙烯、4-甲基苯乙烯、4-丙基苯乙烯、4-环己基苯乙烯和4-十二烷基苯乙烯;芳基苯乙烯,诸如2-乙基-4-苄基苯乙烯、4-(苯基丁基)苯乙烯、1-乙烯基萘和2-乙烯基萘;卤代苯乙烯;烷氧基苯乙烯;乙烯基苯甲酸酯;等等。这些芳族乙烯基单体可以单独使用,或者可以两种或更多种芳族乙烯基单体的组合使用。

[0134] 嵌段共聚物中的脂肪族不饱和烃单体单元的含量为相对于嵌段共聚物的全部单体单元,优选约60质量%或更大,或约70质量%或更大,或约75质量%或更大,或80质量%或更大。嵌段共聚物中脂肪族不饱和烃单体单元的含量为相对于嵌段共聚物的全部单体单元,优选约95质量%或更小,或约92质量%或更小,或约90质量%或更小,或约88质量%或更小,或约86质量%或更小,或约84质量%或更小,或约82质量%或更小。

[0135] 当嵌段共聚物中脂肪族不饱和烃单体单元的含量小于约60质量%时,存在以下趋势:难以表现出作为热塑性弹性体的特性,或者隔音性能的稳定性降低。当嵌段共聚物中脂肪族不饱和烃单体单元的含量大于约95质量%时,存在以下趋势:难以模制层B, $\tan\delta$ 的峰的高度小,层合体的弯曲刚度小,或者高频区域中的隔音性质降低。

[0136] 嵌段共聚物中脂肪族不饱和烃单体单元的含量可以根据相应单体在该嵌段共聚物合成中的电荷比,或者该嵌段共聚物的 $^1\text{H-NMR}$ 和类似项的测量结果来确定。在本说明书的实施例中,单体物质的比例根据 $^1\text{H-NMR}$ 的测量结果来确定,并且各单体的比例以质量%

进行描述。在此,在混合多种嵌段共聚物的情况下,嵌段共聚物中脂肪族不饱和烃单体单元的含量被视为混合物的平均值。

[0137] 在脂肪族不饱和烃聚合物嵌段中,除脂肪族不饱和烃单体之外的单体可以共聚,只要所述单体的量小即可。脂肪族不饱和烃聚合物嵌段中的脂肪族不饱和烃单体单元的比例为相对于脂肪族不饱和烃聚合物嵌段中的全部单体单元,优选约80质量%或更大,或约95质量%或更大,或约98质量%或更大。

[0138] 构成脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的脂肪族不饱和烃单体的示例包括乙烯、丙烯、1-丁烯、1-戊烯、1-己烯、1-庚烯、1-辛烯、1-壬烯、1-癸烯、4-苯基-1-丁烯、6-苯基-1-己烯、3-甲基-1-丁烯、4-甲基-1-丁烯、3-甲基-1-戊烯、4-甲基-1-戊烯、3-甲基-1-己烯、4-甲基-1-己烯、5-甲基-1-己烯、3,3-二甲基-1-戊烯、3,4-二甲基-1-戊烯、4,4-二甲基-1-戊烯、乙烯基环己烷、六氟丙烯、四氟乙烯、2-氟丙烯,氟乙烯、1,1-二氟乙烯、3-氟丙烯、三氟乙烯、3,4-二氯-1-丁烯、丁二烯、异戊二烯、二环戊二烯、降冰片烯、乙炔等。这些脂肪族不饱和烃单体可以单独使用,或者可以两种或更多种脂肪族不饱和烃单体的组合使用。

[0139] 从易得性和处理性质的观点来看,脂肪族不饱和烃单体优选为具有2个或更多个碳原子的脂肪族不饱和烃,或具有4个或更多个碳原子的脂肪族烃,并且优选为具有12个或更少个碳原子的脂肪族不饱和烃,或具有8个或更少个碳原子的脂肪族烃。其中,丁二烯、异戊二烯、以及丁二烯和异戊二烯的组合是优选的。

[0140] 此外,从易获得性和处理性质以及易合成性的观点来看,脂肪族不饱和烃单体优选为共轭二烯。从改善热稳定性的观点出发,在使用共轭二烯作为脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的组成单元的情况下,共轭二烯优选为通过氢化共轭二烯的部分或全部而得到的氢化物。在此时,氢化率为优选80%或更大,或90%或更大。在此提及的氢化率是通过测量氢化反应前后嵌段共聚物的碘值获得的值。

[0141] 从机械特性和模制可加工性观点来看,嵌段共聚物的重均分子量为优选约30,000或更高,或约50,000或更高,并且优选约400,000或更低,或约300,000或更低。嵌段共聚物的重均分子量与数均分子量之比 ( $M_w/M_n$ ) 为优选约1.0或更高,并且优选约2.0或更低,或约1.5或更低。在此,重均分子量是指通过凝胶渗透色谱 (GPC) 测量测定的还原成聚苯乙烯的重均分子量,并且数均分子量是指通过GPC测量测定的还原成聚苯乙烯的数均分子量。

[0142] 虽然对嵌段共聚物的制备方法没有特别限制,但是嵌段共聚物可以例如通过阴离子聚合法、阳离子聚合法、自由基聚合法等制备。例如,在阴离子聚合的情况下,其具体示例包括:

[0143] (i) 通过使用烷基锂化合物作为引发剂,连续聚合芳族乙烯基单体、共轭二烯单体和随后的芳族乙烯基单体的方法;

[0144] (ii) 通过使用烷基锂化合物作为引发剂连续聚合芳族乙烯基单体和共轭二烯单体并随后加入偶联剂以进行偶联的方法;

[0145] (iii) 通过使用二锂化合物作为引发剂,连续聚合共轭二烯单体和随后的芳族乙烯基单体的方法;等等。

[0146] 在使用共轭二烯作为脂肪族不饱和烃单体的情况下,通过在阴离子聚合时加入有机路易斯碱,可以增加热塑性弹性体的1,2-键量和3,4-键量,并且通过有机路易斯碱的添加量可以容易地控制热塑性弹性体的1,2-键量和3,4-键量。通过控制它们,可以调节 $\tan\delta$

的峰值温度或峰高度。

[0147] 有机路易斯碱的示例包括酯类,诸如乙酸乙酯;胺类,诸如三乙胺, $N,N,N',N'$ -四甲基乙二胺 (TMEDA) 和 $N$ -甲基吗啉;含氮的杂环芳族化合物,诸如吡啶;酰胺类,诸如二甲基乙酰胺;醚类,诸如二甲醚、二乙醚、四氢呋喃 (THF) 和二噁烷;乙二醇醚,诸如乙二醇二甲醚和二乙二醇二甲醚;亚砷类,诸如二甲基亚砷;酮类,诸如丙酮和甲基乙基酮;等等。

[0148] 在使未氢化的聚苯乙烯类弹性体进行氢化反应的情况下,可以通过以下方式进行氢化反应:将所获得的未氢化的聚苯乙烯类弹性体溶解在对氢化催化剂惰性的溶剂中,或者使未氢化的聚苯乙烯类弹性体在氢化催化剂存在下,在不与反应液分离的情况下直接与氢反应。氢化率为优选约60%或更高,或约80%或更高,或约90%或更高。

[0149] 氢化催化剂的示例包括雷尼镍;非均相催化剂,在所述非均相催化剂中金属如Pt、Pd、Ru、Rh和/或Ni负载在载体上,所述非均相催化剂为诸如碳、氧化铝和/或硅藻土;基于齐格勒的催化剂,所述基于齐格勒的催化剂由过渡金属化合物与烷基铝化合物和/或烷基锂化合物的组合组成;基于茂金属的催化剂;等等。氢化反应通常可在约0.1MPa或更高且约20MPa或更低的氢压力和约20°C或更高且约250°C或更低的反应温度条件下进行约0.1小时或更长且约100小时或更短的反应时间。

[0150] 在一个优选实施方案中,热塑性弹性体具有海岛状的相分离结构,在所述结构中包括硬链段嵌段作为岛部件,并且包括软链段嵌段作为海部件。已经发现,有时在层合玻璃用夹层中使用的层中增大岛部件的相分离尺寸,并且因此,当制造层合玻璃时层合玻璃用夹层收缩或层合玻璃的雾度降低,并且还发现,使用具有特定结构的层合玻璃用夹层的层合玻璃即使当厚度减小时也具有优异的隔音性质,并且还具有低收缩性。

[0151] 在本实施方案中更具体地,热塑性弹性体包括硬链段嵌段和软链段嵌段,并且层B具有海岛相分离结构,在所述结构中包括硬链段嵌段作为岛部件并且包括软链段嵌段作为海部件,并且当取向度(1)由下式(i)基于180°的任意方位角范围内的最大强度值和最小强度值定义,所述任意方位角范围包括通过小角度X射线散射测量获得的由层A的硬链段嵌段或软链段嵌段进行的周期性散射或相干散射的方位角强度分布中强度达到最大值的方位角时,取向度(1)为约0.9或更小。

[0152] 取向度(1) = (最大强度值 - 最小强度值) / (最大强度值 + 最小强度值) (i)

[0153] 优选的是,如由下式(ii)所定义的取向度(2)为约10或更少。

[0154] 取向度(2) = 最大强度值 / 最小强度值 (ii)

[0155] 还优选的是,当在通过用原子力显微镜观察在200nm × 200nm范围内通过沿着基本上平行于层B的平面在层B的厚度方向上切割中心区域而获得的切片表面上的任意5个位置处的区域获得的每个相位图像中,具有最大长轴尺寸的岛部件选自具有大致椭圆形状或基本上连续线性形状的岛部件时,所选岛部件的长轴尺寸的平均值为约100nm或更小。

[0156] 合适的热塑性弹性体的具体示例可以例如参考US2010239802A1找到。

[0157] 在一个优选实施方案中,热塑性弹性体是通过氢化至少包含聚合物嵌段(A)和聚合物嵌段(B)的嵌段共聚物形成的氢化嵌段共聚物,所述聚合物嵌段(A)主要由芳族乙烯基化合物单元构成,所述聚合物嵌段(B)主要由1,3-丁二烯单元构成或主要由异戊二烯单元和1,3-丁二烯单元构成,其中聚合物嵌段(A)的含量为基于氢化嵌段共聚物的总量为约5质量%至约40质量%,其中聚合物嵌段(B)的氢化率为约70%或更高,并且其中氢化嵌段共聚

物的玻璃化转变温度为约-45℃至约30℃。

[0158] 在另一个优选实施方案中,热塑性弹性体是通过氢化至少包含聚合物嵌段(C)和聚合物嵌段(D)的嵌段共聚物形成的氢化嵌段共聚物,所述聚合物嵌段(C)主要由芳族乙烯基化合物单元构成,所述聚合物嵌段(D)主要由1,3-丁二烯单元构成或主要由异戊二烯单元和1,3-丁二烯单元构成,其中聚合物嵌段(C)的含量为基于氢化嵌段共聚物的总量为约10质量%至约40质量%,其中聚合物嵌段(D)的氢化率为约80%或更高,并且其中氢化嵌段共聚物的玻璃化转变温度小于约-45℃。

[0159] 在上述两个优选实施方案中,有利地是芳族乙烯基化合物是苯乙烯,和/或聚合物嵌段(B)和(D)主要由异戊二烯单元和1,3-丁二烯单元构成,和/或氢化嵌段共聚物是具有A1-B-A2或C1-D-C2型结构的三嵌段共聚物。

[0160] 如果需要的话,在层B中,可以加入抗氧化剂、紫外线吸收剂、光稳定剂、防粘剂、颜料、染料、热屏蔽材料、粘合调节剂等,或它们的混合物作为其它组分。抗氧化剂、紫外线吸收剂、光稳定剂和粘合调节剂的示例包括后面描述的层B中包含的那些抗氧化剂、紫外线吸收剂、光稳定剂和粘合调节剂。

[0161] 当例如将作为热屏蔽材料的无机热屏蔽微粒或热屏蔽化合物掺入到层B中以赋予层合体热屏蔽功能,从而形成层合玻璃时,可以将波长为1,500nm的透射率调节至约50%或更小。稍后将详细描述热屏蔽材料。

[0162] 在层B中含有热塑性弹性体以外的组分的情况下,在含有构成层B的热塑性弹性体的组合物中,热塑性弹性体组分的含量为优选约60质量%或更大,或者约70质量%或更大,或约80质量%或更大,或约90质量%或更大,或约95质量%或更大。当层B中的热塑性弹性体的含量小于约60质量%时,存在以下趋势:难以表现出作为热塑性弹性体的特性,或者光学特性受损。

[0163] 有利地,层B的热塑性弹性体不需要增塑剂,并且避免了如上所述的增塑剂迁移的缺点。在此类情况下,层B被视为基本上不含增塑剂(基本上不含树脂增塑剂)。

[0164] 在本发明的夹层中,所含有的热塑性弹性体的量为基于夹层的总质量,优选约5质量%或更高,或约10质量%或更高,或约13质量%或更高。当夹层中热塑性弹性体的含量小于约5质量%时,隔音性质趋于降低。

[0165] 表层

[0166] 在用于本发明夹层的表层中,通过根据JIS K 7244-10在1Hz频率下进行复数剪切粘度测试测得的25℃温度下的剪切储能模量为优选约1MPa或更高,和或约2MPa或更高。当25℃温度下的剪切储能模量小于约1MPa时,存在以下趋势:表层的粘性增大,并且层合玻璃制造过程中的处理窗口降低。

[0167] 此外,在需要补偿玻璃薄化(重量减轻)后层合玻璃的强度降低的情况下,在25℃温度下的剪切储能模量为优选约10.0MPa或更高。例如,通过使用在25℃温度下的剪切储能模量为约10.0MPa或更高的表层作为最外层,可以获得具有优异处理性质的夹层。在25℃温度下的剪切储能模量为优选约12.0MPa或更高,或约20.0MPa或更高,或约40.0MPa或更高,或约60.0MPa或更高,或约80.0MPa或更高。当在上述条件下的剪切储能模量小于约10.0MPa时,存在以下趋势:不能保持合适的剪切储能模量和最大损耗因数,并且用于层合玻璃的中间膜的隔音性质或弯曲刚度降低。剪切储能模量为约10.0MPa或更高的表层可以例如通过

基于100质量份热塑性树脂(诸如聚乙烯醇缩醛树脂),将增塑剂的量调节至的约50质量份或更少来获得。另外,对在25℃下的剪切储能模量的上限没有特别限制,并且从层合体的模制性能和处理性质的观点来看,所述剪切储能模量的上限为优选约900MPa或更小。

[0168] 在本发明的夹层中,优选的是,作为最外层的表层含有至少一种热塑性树脂和含有粘合剂官能团的聚烯烃,所述至少一种热塑性树脂选自以下项组成的组:聚乙烯醇缩醛树脂、离聚物、乙烯·乙酸乙烯酯共聚物。这些热塑性树脂的一般描述和示例可参考先前并入的PCT/JP2015/81664、PCT/JP2015/81665、PCT/JP2015/81666、PCT/JP2015/81667和PCT/JP2015/81668而获得。

[0169] 当表层由含有上述热塑性树脂的组合物构成时,可以改善层合玻璃用中间膜的耐候性或强度,或者可以改善所得层合玻璃的弯曲强度或抗穿透性。

[0170] 此外,对于本发明的表层,在将本发明的层合体插置在两片长度为300mm、宽度为25mm和厚度为1.9mm的浮法玻璃(float glass)之间时,层合体经选择为使得:通过中心激发方法在20℃下测量的四元共振频率下的损耗因数为约0.2或更大,并且根据ISO 16940(2008)计算的四元共振频率下的弯曲刚度为约150N·m或更大。对满足此类处方的树脂没有特别限制,并且所述树脂的示例包括上述热塑性树脂等。

[0171] 此外,优选的是,用于本发明的表层的树脂包括具有玻璃粘附性的树脂。对具有此类性质的树脂没有特别限制,并且所述树脂的示例包括上述热塑性树脂等。

[0172] 在表层A和C中,如果需要的话,可以添加增塑剂、抗氧化剂、紫外线吸收剂、光稳定剂、粘合调节剂、防粘剂、颜料、染料、热屏蔽材料(例如,各自具有红外吸收能力的无机热屏蔽微粒或有机热屏蔽材料)等作为热塑性树脂(诸如聚乙烯醇缩醛树脂)以外的组分。此类添加剂在下面进一步详细描述。

[0173] 有利地,当使用离聚物时,不需要增塑剂,并且避免了如上所述的增塑剂迁移的缺点。在此类情况下,表层A和/或C被视为基本上不含增塑剂(基本上不含树脂增塑剂)。此外,当声学层B中没有增塑剂时,夹层整体上可以基本上不含增塑剂(基本上不含夹层增塑剂)。

#### [0174] 三元共聚物离聚物

[0175] 如上所述,表层A和表层C中的至少一者(并且优选两者)是特定类型的三元共聚物离聚物,所述三元共聚物离聚物是至少部分中和的乙酸共聚物,优选包含以下共聚单元:

[0176] (i) 乙烯,

[0177] (ii) 从约10wt%、或从约15wt%、或从约18wt%、或从约20wt%,至约30wt%、或至约25wt%、或至约23wt%或至约22wt%的至少一种具有3-10个碳原子的 $\alpha,\beta$ -不饱和羧酸,

[0178] (iii) 从约2wt%、或从约3wt%、或从约4wt%、或从约5wt%,至约15wt%、或至约12wt%、或至约11wt%或至约10wt%的至少一种具有3-10个碳原子的 $\alpha,\beta$ -不饱和羧酸酯,以及

[0179] (iv) 任选地,除(iii)之外的 $\alpha,\beta$ -不饱和羧酸衍生物,所述 $\alpha,\beta$ -不饱和羧酸衍生物的量使得(iii)+(iv)为约15重量%或更少,或约12重量%或更少,或约11重量%或更少,

[0180] 其中所述共聚单元的重量百分比是基于所述乙酸共聚物总重量的,并且所述共聚单元的重量百分比之和为100重量%,并且其中所述 $\alpha,\beta$ -不饱和羧酸的至少一部分羧酸基团经中和以形成离聚物,所述离聚物包含具有平衡离子的羧酸根基团。

[0181] 此类离聚物通常在W02015/199750A1和W02014/100313A1中公开。

[0182] 合适的第一 $\alpha,\beta$ -烯键式不饱和酸共聚单体包括但不限于丙烯酸、甲基丙烯酸、衣康酸、马来酸、富马酸,以及它们中的两种或更多种的混合物。在一种优选共聚物中, $\alpha,\beta$ -烯键式不饱和羧酸选自丙烯酸、甲基丙烯酸,以及它们中的两种或更多种的混合物。在另一种优选共聚物中, $\alpha,\beta$ -烯键式不饱和羧酸是甲基丙烯酸。

[0183] 乙烯酸共聚物还包含以下共聚单元:一种或多种另外的共聚单体,诸如 $\alpha,\beta$ -烯键式不饱和羧酸酯。具有3至10个,或优选3至8个碳的烷基酯是优选的。优选不饱和羧酸酯的具体示例包括但不限于丙烯酸甲酯、甲基丙烯酸甲酯、丙烯酸乙酯、甲基丙烯酸乙酯、丙烯酸丙酯、甲基丙烯酸丙酯、丙烯酸异丙酯、甲基丙烯酸异丙酯、丙烯酸正丁酯、甲基丙烯酸正丁酯、丙烯酸异丁酯、甲基丙烯酸异丁酯、丙烯酸叔丁酯、甲基丙烯酸叔丁酯、丙烯酸辛酯、甲基丙烯酸辛酯、丙烯酸十一烷基酯、甲基丙烯酸十一烷基酯、丙烯酸十八烷基酯、甲基丙烯酸十八烷基酯、丙烯酸十二烷基酯、甲基丙烯酸十二烷基酯、丙烯酸2-乙基己酯、甲基丙烯酸2-乙基己酯、丙烯酸异冰片酯、甲基丙烯酸异冰片酯、丙烯酸月桂酯、甲基丙烯酸月桂酯、丙烯酸2-羟乙酯、甲基丙烯酸2-羟乙酯、丙烯酸缩水甘油酯、甲基丙烯酸缩水甘油酯、马来酸二甲酯、马来酸二乙酯、马来酸二丁酯、富马酸二甲酯、富马酸二乙酯、富马酸二丁酯、富马酸二甲酯,乙酸乙烯酯、丙酸乙烯酯,以及它们中的两种或更多种的混合物。在一种优选共聚物中,合适的另外的共聚单体选自丙烯酸甲酯、甲基丙烯酸甲酯、丙烯酸正丁酯、甲基丙烯酸正丁酯、丙烯酸异丁酯、甲基丙烯酸异丁酯、甲基丙烯酸缩水甘油酯、乙酸乙烯酯,以及它们中的两种或更多种的混合物。在一个更优选的实施方案中,合适的另外的共聚单体是丙烯酸正丁酯、甲基丙烯酸正丁酯、丙烯酸异丁酯和甲基丙烯酸异丁酯中的一种或多种,并且还更优选地为丙烯酸正丁酯和丙烯酸异丁酯中的一种或两种。

[0184] 合适的乙烯酸共聚物的熔体流动速率(MFR)为从约1g/10min或从约2g/10min至约4000g/10min、或至1000g/10min、或至约400g/10min,如根据ASTM方法D1238-89在190°C和2.16kg下测定的。

[0185] 最后,合适的乙烯酸共聚物可以如例如US3404134、US5028674、US6500888、US6518365、US8334033或US8399096中所述合成。在一个实施方案中,使用US8399096中描述的方法,并且在反应混合物中存在足够高水平和补充量的第二 $\alpha,\beta$ -烯键式不饱和羧酸衍生物。

[0186] 为了获得离聚物,将乙烯酸共聚物通过与一种或多种碱反应而部分中和。用于中和乙烯酸共聚物的合适方法的示例描述于US3404134和US6518365中。中和后,乙烯酸共聚物中存在的羧酸基团的氢原子的约1%、或约10%、或约15%、或约20%,至约90%、或约60%、或约55%、或约30%被其它阳离子取代。换言之,乙烯酸共聚物中存在的羧酸基团的总含量的约1%、或约10%、或约15%、或约20%,至约90%、或至约60%、或至约55%,或至约30%被中和。在另一个替代表达中,基于针对未中和的乙烯酸共聚物计算或测量的乙烯酸共聚物中存在的羧酸基团的总含量,酸基团被中和至约1%、或约10%、或约15%、或约20%、至约90%、或至约60%、或至约55%、或至约30%的水平。中和水平可以针对特定的最终用途定制。

[0187] 离聚物包含阳离子作为羧酸根阴离子的平衡离子。合适的阳离子包括在合成、处理和使用离聚物组合物的条件下稳定的任何带正电荷的物质。合适的阳离子可以两种或更多种阳离子的组合使用。在一些优选的离聚物中,阳离子是金属阳离子,所述金属阳离子可

以是单价的、二价的、三价的或多价的。有用的一价金属阳离子包括但不限于钠、钾、锂、银、汞、铜等的阳离子。有用的二价金属阳离子包括但不限于铍、镁、钙、锶、钡、铜、镉、汞、锡、铅、铁、钴、镍、锌等的阳离子。有用的三价金属阳离子包括但不限于铝、铈、铁、钇等的阳离子。有用的多价金属阳离子包括但不限于钛、锆、钪、钒、钽、钨、铬、铈、铁等的阳离子。当金属阳离子是多价的时，可以包含络合剂，诸如硬脂酸根、油酸根、水杨酸根和酚根基团，如US3404134中所述。在另一种优选的组合物中，所用的金属阳离子是一价或二价金属阳离子。优选的金属阳离子是钠、锂、镁、锌、钾，以及这些金属阳离子中的一种或多种的组合。在一种更优选的组合物中，阳离子是钠阳离子、镁阳离子、锌阳离子，以及它们的组合。

[0188] 如根据ASTM方法D1238-89在190°C和2.16kg下测定的，所得中和的离聚物的熔体指数低于相应的丙烯酸共聚物的熔体指数。离聚物的熔体指数取决于许多因素，包括丙烯酸共聚物的熔体指数、共聚酸的量、中和水平、阳离子的特性及其化合价。此外，离聚物熔体指数的所需值可以通过其预期的最终用途来确定。然而，如根据ASTM方法D1238-89在190°C和2.16kg下测定的，优选地离聚物的熔体指数为约1000g/10min或更低，或约750g/10min或更低，或约500g/10min或更低，或约250g/10min或更低，或约100g/10min或更低，或约50g/10min或更低，或约25g/10min或更低，或约20g/10min或更低，或约10g/10min或更低，或约7.5g/10min或更低。

#### [0189] 添加剂

[0190] 用于多层层合体的各层的典型添加剂包括抗氧化剂、紫外线吸收剂、光稳定剂、粘合调节剂和热屏蔽材料(红外线吸收剂)。

[0191] 抗氧化剂的示例包括酚类抗氧化剂、磷类抗氧化剂、硫类抗氧化剂等。在抗氧化剂中，酚类抗氧化剂是优选的，并且烷基取代的酚类抗氧化剂是特别优选的。

[0192] 酚类抗氧化剂的示例包括丙烯酸酯类化合物，诸如丙烯酸2-叔丁基-6-(3-叔丁基-2-羟基-5-甲基苄基)-4-甲基苯基酯和丙烯酸2,4-二叔戊基-6-(1-(3,5-二叔戊基-2-羟基苯基)乙基)苯基酯；烷基取代的酚类化合物，诸如2,6-二叔丁基-4-甲基苯酚、2,6-二叔丁基-4-乙基苯酚、丙酸十八烷基-3-(3,5-二叔丁基-4-羟基苯基)酯、2,2'-亚甲基-双(4-甲基-6-叔丁基苯酚)、4,4'-亚丁基-双(4-甲基-6-叔丁基苯酚)、4,4'-亚丁基-双(6-叔丁基-间甲酚)、4,4'-硫化双(3-甲基-6-叔丁基苯酚)、双(3-环己基-2-羟基-5-甲基苄基)甲烷、3,9-双(2-(3-(3-叔丁基-4-羟基-5-甲基苄基)丙酰氧基)-1,1-二甲基乙基)-2,4,8,10-四氧杂螺[5.5]十一烷、1,1,3-三(2-甲基-4-羟基-5-叔丁基苄基)丁烷、1,3,5-三甲基-2,4,6-三(3,5-二叔丁基-4-羟基苄基)苯、四(亚甲基-3-(3',5'-二叔丁基-4'-羟基苯基)丙酸酯)甲烷和三乙二醇双(3-(3-叔丁基-4-羟基-5-甲基苄基)丙酸酯)；含三嗪基的酚类化合物，诸如1,3,5-三(2,6-二甲基-3-羟基-4-叔丁基苄基)-1,3,5-三嗪-2,4,6(1H,3H,5H)-三酮、6-(4-羟基-3,5-二叔丁基苯胺基)-2,4-双-辛基硫代-1,3,5-三嗪、6-(4-羟基-3,5-二甲基苯胺基)-2,4-双-辛基硫代-1,3,5-三嗪、6-(4-羟基-3-甲基-5-叔丁基苯胺基)-2,4-双-辛基硫代-1,3,5-三嗪和2-辛基硫代-4,6-双-(3,5-二叔丁基-4-氧基苯胺基)-1,3,5-三嗪；等等。

[0193] 磷类抗氧化剂的示例包括单亚磷酸酯类化合物，诸如亚磷酸三苯酯、亚磷酸二苯基异癸酯、亚磷酸苯基二异癸酯、亚磷酸三(壬基苄基)酯、亚磷酸三(二壬基苄基)酯、亚磷酸三(2-叔丁基-4-甲基苄基)酯、亚磷酸三(2,4-二叔丁基)酯、亚磷酸三(环己基苄基)酯、

亚磷酸2,2-亚甲基双(4,6-二叔丁基苯基)辛基酯、9,10-二氢-9-氧杂-10-磷杂菲-10-氧化物、10-(3,5-二叔丁基-4-羟基苄基)-9,10-二氢-9-氧杂-10-磷杂菲-10-氧化物和10-癸氧基-9,10-二氢-9-氧杂-10-磷杂菲;二亚磷酸酯类化合物,诸如4,4'-亚丁基-双(3-甲基-6-叔丁基苯基-双十三烷基亚磷酸酯)、4,4'-异亚丙基-双(苯基-二烷基(C12-C15)亚磷酸酯)、4,4'-异亚丙基-双(二苯基单烷基(C12-C15)亚磷酸酯)、1,1,3-三(2-甲基-4-双十三烷基亚磷酸酯-5-叔丁基苯基)丁烷和亚磷酸四(2,4-二叔丁基苯基)-4,4'-亚联苯基酯;等等。其中,单亚磷酸酯类化合物是优选的。

[0194] 硫类抗氧化剂的示例包括3,3'-硫代二丙酸二月桂酯、3,3'-硫代二丙酸二硬脂酯、3,3'-硫代二丙酸月桂基硬脂酯,季戊四醇-四-(β-月桂基-硫代丙酸酯)、3,9-双(2-十二烷基硫代乙基)-2,4,8,10-四氧杂螺[5.5]十一烷等。

[0195] 这些抗氧化剂可以单独使用,或者可以两种或更多种抗氧化剂的组合使用。抗氧化剂的配混量为基于100质量份的热塑性树脂/弹性体,优选约0.001质量份或更多,或约0.01质量份或更多。此外,抗氧化剂的配混量为基于100质量份的热塑性树脂/弹性体,优选约5质量份或更低,或约1质量份或更低。当抗氧化剂的量小于约0.001质量份时,存在难以表现出足够效果的问题,然而即使当其大于约5质量份时,也无法预期显著的效果。

[0196] 当在层B中使用时,抗氧化剂的面密度为优选约0.1g/m<sup>2</sup>或更高,或约0.2g/m<sup>2</sup>或更高,或约0.5g/m<sup>2</sup>或更高。当层B中抗氧化剂的面密度小于约0.1g/m<sup>2</sup>时,层B容易被氧化,并且在长时间使用层合玻璃的情况下,色差的变化增加等等,因此耐候性趋于降低。

[0197] 层B中抗氧化剂的面密度为优选约2.5g/m<sup>2</sup>或更低,或约2.0g/m<sup>2</sup>或更低,或约1.5g/m<sup>2</sup>或更低。当层A中抗氧化剂的面密度超过约2.5g/m<sup>2</sup>时,层B的色调趋于受损或层合玻璃的雾度趋于降低。

[0198] 此外,紫外线吸收剂的示例包括苯并三唑类紫外线吸收剂,诸如2-(5-甲基-2-羟苯基)苯并三唑、2-[2-羟基-3,5-双(α,α'-二甲基苄基)苯基]-2H-苯并三唑、2-(3,5-二叔丁基-2-羟苯基)苯并三唑、2-(3-叔丁基-5-甲基-2-羟苯基)-5-氯代苯并三唑、2-(3,5-二叔丁基-5-甲基-2-羟苯基)-5-氯代苯并三唑和2-(3,5-二叔戊基-2-羟苯基)苯并三唑、2-(2'-羟基-5'-叔辛基苄基)三唑;受阻胺类紫外线吸收剂,诸如2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基苯甲酸酯、双(2,2,6,6-四甲基-4-哌啶基)癸二酸酯、双(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)-2-(3,5-二叔丁基-4-羟基苄基)-2-正丁基丙二酸酯和4-(3-(3,5-二叔丁基-4-羟基苄基)丙酰氧基)-1-(2-(3-(3,5-二叔丁基-4-羟基苄基)丙酰氧基)乙基)-2,2,6,6-四甲基哌啶;苯甲酸酯类紫外线吸收剂,诸如2,4-二叔丁基苯基-3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲酸酯和3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲酸十六烷基酯;等等。此类紫外线吸收剂的添加量为基于相对于热塑性树脂/弹性体的质量,优选约10ppm或更多,和或约100ppm或更多。此外,紫外线吸收剂的添加量为基于相对于热塑性树脂/弹性体的质量,优选约50,000ppm或更低,或约10,000ppm或更低。当紫外线吸收剂的添加量小于约10ppm时,存在难以表现出足够效果的问题,然而即使当紫外线吸收剂的添加量大于约50,000ppm时,也无法预期显著的效果。这些紫外线吸收剂也可以两种或更多种紫外线吸收剂的组合使用。

[0199] 在层B中含有UV吸收剂的情况下,层B中的UV吸收剂的面密度(g/m<sup>2</sup>)为优选约0.1或更大,或约0.2或更大,或约0.5或更大。当层B中的UV吸收剂的面密度(g/m<sup>2</sup>)为约0.1或更大时,在形成层合玻璃的情况下,雾度趋于改善,耐候性趋于保持,或者色差的变化趋于被

抑制。

[0200] 在层B中含有UV吸收剂的情况下,层B中的UV吸收剂的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )为优选约10或更小,或约9或更小,或约8或更小。当层B中的UV吸收剂的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )超过约10时,在形成层合玻璃的情况下,可见光透射率趋于降低,雾度趋于劣化,耐候性趋于降低,或色差的变化趋于增加。

[0201] 在一些实施方案中,也可以使用两种或更多种类型的UV吸收剂的组合。

[0202] 在其它实施方案中,不加入紫外线吸收剂,或层合体基本上不含UV吸收剂的添加剂。

[0203] 光稳定剂的示例包括受阻胺类材料,诸如由Adeka Corporation制造的“ADEKA STAB LA-57”(商品名)和由Ciba Specialty Chemicals公司制造的;“TINUVIN 622”(商品名)。

[0204] 此外,如果需要的话,还可以控制所得层合体与玻璃等的粘合性。作为控制粘合性的方法,通常例示添加用作层合玻璃的粘合调节剂的粘合剂的方法、添加用以调节粘合性的各种添加剂的方法等。通过此类方法,获得了一种层合玻璃用中间膜,所述层合玻璃用中间膜含有粘合调节剂和/或用以调节粘合性的各种粘合剂。

[0205] 作为粘合调节剂,例如可以使用W003/033583A1中公开的那些粘合调节剂;优选使用碱金属盐和碱土金属盐;所述碱金属盐和碱土金属盐的示例包括钾、钠、镁等的盐。盐的示例包括有机酸盐,诸如辛酸、己酸、丁酸、乙酸和甲酸;无机酸,诸如盐酸和硝酸;等等。

[0206] 诸如在US2010/0108125A1和US2011/0105681A1中公开的硅烷也可用作粘合调节剂。在一个实施方案中,当离聚物用作热塑性树脂时,在层A和层C中使用硅烷偶联剂。示例性的硅烷偶联剂包括但不限于 $\gamma$ -氯丙基甲氧基硅烷、乙烯基三甲氧基硅烷、乙烯基三乙氧基硅烷、乙烯基三( $\beta$ -甲氧基乙氧基)硅烷、 $\gamma$ -乙烯基苄基苯基三甲氧基硅烷、N- $\beta$ -(N-乙烯基苄基氨基乙基)- $\gamma$ -氨基丙基三甲氧基硅烷、 $\gamma$ -甲基丙烯酰氧基-丙基-三甲氧基硅烷、乙烯基三甲氧基硅烷、 $\gamma$ -环氧丙氧基丙基三甲氧基硅烷、 $\gamma$ -环氧丙氧基丙基三乙氧基硅烷、 $\beta$ -(3,4-环氧环己基)乙基三甲氧基硅烷、乙烯基三氯硅烷、 $\gamma$ -巯丙基甲氧基硅烷、 $\gamma$ -氨基丙基三乙氧基硅烷、N- $\beta$ -(氨基乙基)- $\gamma$ -氨基丙基三甲氧基硅烷,以及它们中的两种或更多种的混合物。

[0207] 硅烷偶联剂优选基于离聚物组合物的总重量以约0.01重量%或约0.05重量%至约5重量%或约1重量%的水平掺入离聚物组合物中。

[0208] 含反应性官能团的烯属聚合物(在下文中称为含羧基的烯属聚合物)也可用作粘合调节剂,其中该官能团是选自羧基和羧基衍生基团(下文称为羧基)的至少一个基团。在一个实施方案中,在层B中使用含反应性官能团的烯属聚合物。

[0209] 如果所述烯属聚合物是含羧基的烯属聚合物,则对合适的含羧基的烯属聚合物没有特别限制,但是优选地所述烯属聚合物是选自具有2至12个碳原子的脂肪族不饱和烃化合物和具有8至12个碳原子的芳族不饱和烃化合物的至少一种化合物的聚合物,或该聚合物的氢化分子,其中羧基包含在分子链的端链或侧链中。

[0210] 本发明中使用的含羧基的烯属聚合物可以根据常规已知的方法制备和使用。例如,它可以通过以下方式获得:共聚合选自具有2至12个碳原子的脂肪族不饱和烃化合物和具有8至12个碳原子的芳族不饱和烃化合物以及具有羧基和碳-碳双键的化合物中的至少

一种化合物,或聚烯烃的接枝聚合,所述聚烯烃接枝聚合优选是具有碳-碳双键的聚烯烃与具有羧基和碳-碳双键的化合物的接枝聚合。具有羧基和碳-碳双键的化合物的示例包括不饱和羧酸及其酸酐,如(甲基)丙烯酸、巴豆酸、马来酸、富马酸、衣康酸、柠康酸、四氢化邻苯二甲酸、马来酸酐、衣康酸酐和四氢化邻苯二甲酸酐;不饱和羧酸盐,如(甲基)丙烯酸锂、(甲基)丙烯酸钠、(甲基)丙烯酸钾、(甲基)丙烯酸镁和马来酸钠,以及;不饱和羧酸酯,如(甲基)丙烯酸甲酯、(甲基)丙烯酸乙酯、(甲基)丙烯酸酯、(甲基)丙烯酸正丙酯、(甲基)丙烯酸异丙酯、(甲基)丙烯酸正丁酯、(甲基)丙烯酸异丁酯、(甲基)丙烯酸叔丁酯、(甲基)丙烯酸2-乙基己酯、(甲基)丙烯酸十二烷基酯、(甲基)丙烯酸十八烷基酯、马来酸二甲酯,但不限于此。

[0211] 含羧基的烯属聚合物的优选示例是通过使用马来酸酐对聚烯烃(诸如乙烯基聚合物或丙烯基聚合物)进行改性(例如,接枝)而获得的烯属聚合物,并且特别是马来酸酐改性的聚丙烯。参见例如US7989083B2。

[0212] 当使用时,层B中含羧基的烯属聚合物的量为使得层B中羧基的量为优选但不特别限于以原子计从约 $1\mu\text{eq/g}$ ,或从约 $2\mu\text{eq/g}$ ,或从约 $3\mu\text{eq/g}$ ,至约 $1500\mu\text{eq/g}$ ,或至约 $700\mu\text{eq/g}$ ,或至约 $500\mu\text{eq/g}$ 。羧基的量表示基于羧基中包含的羰基计算的。当羧基的量小于约 $1\mu\text{eq/g}$ 时,可能不会注意到层之间的改善的粘合性。在另一方面,当羧基的量大于约 $1500\mu\text{eq/g}$ 时,不仅各层间的粘合性没有得到显著改善(相对于较低的量),而且含羧基的烯属聚合物的生产成本增加,并且含羧基的烯属聚合物与树脂之间的相容性可能降低。

[0213] 虽然粘合调节剂的最佳添加量随使用的添加剂而变化,但是优选以这样的方式调节粘合调节剂的最佳添加量,使得在击打测试(在W003/033583A1等中描述)中,所得层合体对玻璃的粘合力通常被调节至约3或更高且约10或更低。具体地,在需要高抗穿透性的情况下,更优选以使得粘合力为约3或更高且约6或更低的方式调节粘合调节剂的添加量,而在需要高防玻璃散射性质的情况下,更优选以使得粘合力为约7或更高且约10或更低的方式调节粘合调节剂的添加量。在需要高防玻璃散射性质的情况下,不添加粘合调节剂也是有用的方法。

[0214] 合适的热屏蔽材料如下所述。

[0215] 夹层和层合体

[0216] 本发明的层合体由夹层构成,在所述夹层中具有上述性质的一个或多个层B插在具有上述性质的至少两个表层A和C之间。通过采用此类构造,可以从此类夹层获得具有优异的隔音性质、弯曲强度,刚度和光学性质,并且理想地还具有太阳热屏蔽性质的层合体。

[0217] 对本发明夹层的制备方法没有特别限制,并且所述夹层可以通过以下方法制备:在均匀捏合构成层B的树脂组合物后通过已知的成膜方法制备层B的方法,诸如挤出方法、压延方法、压制方法、浇铸方法和吹胀方法,层A和层C通过相同的方法用树脂制备,并且这些层可以借助于压模等方式层合,或者层B以及层A和层C以及其它必要的层可以通过共挤出方法模制。

[0218] 在已知的成膜方法中,具体地,适当采用使用共挤出机生产夹层的方法。挤出时的树脂温度为优选约 $150^{\circ}\text{C}$ 或更高,或约 $170^{\circ}\text{C}$ 或更高。此外,挤出时的树脂温度为优选约 $250^{\circ}\text{C}$ 或更低,或约 $230^{\circ}\text{C}$ 或更低。当树脂温度太高时,存在所使用的树脂会引起分解,从而使树

脂劣化的问题。相反地,当温度太低时,从挤出机的排放不稳定,从而导致产生机械故障。为了有效地去除挥发性物质,优选通过从挤出机的排气口测量减压来去除挥发性物质。

[0219] 在本发明的夹层中,通过根据JIS K 7244-10在1Hz频率的条件下进行复数剪切粘度测试测得的在25℃温度下的剪切储能模量为优选约1.30MPa或更高,或约2.00MPa或更高,或约3.00MPa或更高。在上述条件下的剪切储能模量为约1.30MPa或更高的情况下,在使用层合玻璃用夹层时,弯曲强度提高。另一方面,从使层合玻璃用中间膜的外观更良好并且使层合玻璃的制造容易的观点来看,在夹层中,在上述条件下的剪切储能模量为优选约10.0MPa或更低,或约8.00MPa或更低,或约6.00MPa或更低。在上述条件下测量的剪切储能模量为约1.30MPa或更高的夹层可以例如通过以下方式获得:层合层B和多个层A/C以使得层B插置在所述至少两个层A与C之间,所述层B包含含有弹性体的组合物,所述弹性体具有在从约-40℃至约30℃的范围内 $\tan\delta$ 为最大的峰,并且层A/C在25℃的温度下的剪切储能模量为约10.0MPa或更大。

[0220] 在本发明的夹层中,通过根据JIS K 7244-10在1Hz频率的条件下进行复数剪切粘度测试测得的在50℃温度下的剪切储能模量为优选约1.30MPa或更高,或约1.50MPa或更高,或约2.00MPa或更高。在上述剪切储能模量为约1.30MPa或更高的情况下,具体地,在使用层合玻璃用层合体时,即使当层合体的温度升高到50℃或更高时,弯曲强度也得到改善。另一方面,从使外观更良好并且使层合玻璃的制造容易的观点来看,在层合体中,在上述条件下的剪切储能模量为优选约6.00MPa或更低,或约4.00MPa或更低,或约3.00MPa或更低。在上述条件下测量的50℃温度下的剪切储能模量为约1.30MPa或更高的层合体可以通过以下方式获得:层合层A和多个层B,使得层A插置在所述至少两个层B之间,所述层A包含含有弹性体的组合物,所述弹性体具有在从约-40℃至约30℃的范围内 $\tan\delta$ 为最大的峰,所述层B在25℃的温度下的剪切储能模量为约10.0MPa或更大。

[0221] 层B的膜厚度为优选约20 $\mu\text{m}$ 或更高,或约25 $\mu\text{m}$ 或更高,或约30 $\mu\text{m}$ 或更高,或约50 $\mu\text{m}$ 或更高,或约100 $\mu\text{m}$ 或更高。此外,层B的膜厚度为优选约500 $\mu\text{m}$ 或更小,或约400 $\mu\text{m}$ 或更小,或约300 $\mu\text{m}$ 或更小。当层B的膜厚度小于约20 $\mu\text{m}$ 时,隔音性质趋于降低,而当层B的膜厚度大于约400 $\mu\text{m}$ 时,则存在以下趋势:当制备层合玻璃时,诸如抗穿透性之类的机械特性劣化,从而作为层合玻璃的安全性能受损。在本发明的层合体中包含多个层B的情况下,优选整个层B的总厚度满足上述范围。

[0222] 层A或层C的膜厚度为优选约100 $\mu\text{m}$ 或更大,或约150 $\mu\text{m}$ 或更大,或约200 $\mu\text{m}$ 或更大。层A或层C的膜厚度为优选约650 $\mu\text{m}$ 或更小,或约500 $\mu\text{m}$ 或更小,或约350 $\mu\text{m}$ 或更小,或约300 $\mu\text{m}$ 或更小。当层A或层C的膜厚度小于约100 $\mu\text{m}$ 时,存在以下趋势:层合体的弯曲刚度小,使得高频区域中的隔音性质下降,而当层A或层C的膜厚度大于约650 $\mu\text{m}$ 时,存在以下趋势:无论频率区域如何隔音性质都下降,或者易引起隔音性能随时间的变化,使得隔音性能的稳定性下降。

[0223] 层A和层C的组的总厚度为优选约300 $\mu\text{m}$ 或更大,或约400 $\mu\text{m}$ 或更大,或约500 $\mu\text{m}$ 或更大,或约600 $\mu\text{m}$ 或更大。层A和层C的组的总厚度为优选约750 $\mu\text{m}$ 或更小,或约720 $\mu\text{m}$ 或更小,或约700 $\mu\text{m}$ 或更小。当层A和层C的组的总厚度为约300 $\mu\text{m}$ 或更大时,层合体的弯曲强度趋于变大,而当层A和层C的组的总厚度为750 $\mu\text{m}$ 或更小的情况下,可模制性得到改善,因此所得层合体易被辊卷绕。

[0224] 声学层(例如,层B)的总厚度与表层(例如A和C)的总厚度之比((层B的总厚度)/(层A+层C的总厚度))为优选约1/1或更小,或约1/2或更小,或约1/3或更小。层B的总厚度与层A+C的总厚度之比为优选约1/30或更大,或约1/15或更大,或约1/6.5或更大,或约1/5或更大。当上述比率小于约1/30时,层合体的隔音效果趋于变小。另一方面,当上述比例大于约1/1时,存在以下趋势:层合体的弯曲刚度变小,高频区域中的隔音性质下降,易引起隔音性能随时间的变化,而使得隔音性能的稳定性的下降,或层合体的剪切储能模量下降,而使得层合体的弯曲强度下降。

[0225] 例如,在层B中含有的热塑性弹性体只是一种类型的情况下(或者,即使在层B中含有两种或更多种热塑性弹性体的情况下,当使用 $\tan\delta$ 的峰值温度差小于约 $5^{\circ}\text{C}$ 的热塑性弹性体时),当热塑性弹性体层的 $\tan\delta$ 的峰值温度为约 $-20^{\circ}\text{C}$ 或更低时,热塑性弹性体层的膜厚度为优选约 $20\mu\text{m}$ 或更大,或约 $30\mu\text{m}$ 或更大,并且其为优选约 $120\mu\text{m}$ 或更小,或约 $100\mu\text{m}$ 或更小。当含有热塑性弹性体的层B的 $\tan\delta$ 的峰值温度高于约 $-20^{\circ}\text{C}$ 且约 $-15^{\circ}\text{C}$ 或更低时,含有热塑性弹性体的层B的膜厚度为优选约 $50\mu\text{m}$ 或更大,或约 $70\mu\text{m}$ 或更大,并且其为优选约 $200\mu\text{m}$ 或更小,或约 $160\mu\text{m}$ 或更小。当含有热塑性弹性体的层B的 $\tan\delta$ 的峰值温度高于约 $-15^{\circ}\text{C}$ 时,含有热塑性弹性体的层B的膜厚度为优选约 $80\mu\text{m}$ 或更大,或约 $100\mu\text{m}$ 或更大,并且其为优选约 $300\mu\text{m}$ 或更小,或约 $260\mu\text{m}$ 或更小。当含有热塑性弹性体的层B的膜厚度落在优选范围之外时,存在以下趋势:室温下的隔音性质降低,或者所得层合玻璃的弯曲强度下降。

[0226] 通常,本发明的层合体具有层合构造,在所述构造中层B插置在层A与层C之间。虽然层合体中的层合构造是根据目的确定的,但除了(层A)/(层B)/(层C)的层合构造之外,其也可以是(层A)/(层B)/(层C)/(层B)、(层A)/(层B)/(层A)/(层B)/(层C)、或(层A)/(层B1)/(层B2)/(层C)的层合构造。当层合体为(层A)/(层B)的双层构造时,层合玻璃用中间膜的隔音性质或弯曲强度趋于下降。

[0227] 还可以包括一个或多个其它类型的层作为除层A、层B和层C之外的层(称为“层D”)。例如,可以采用诸如以下的层合构造:(层A)/(层B)/(层D)/(层C)、(层A)/(层B)/(层C)/(层D)、(层A)/(层D)/(层B)/(层D)/(层C)、(层A)/(层D)/(层B)/(层C)/(层D)、(层A)/(层B)/(层D)/(层C)/(层D)、(层D)/(层A)/(层B)/(层C)/(层D)、(层D)/(层A)/(层B)/(层D)/(层C)/(层D)、(层D)/(层A)/(层D)/(层B)/(层D)/(层C)/(层D)。此外,在上述层合构造中,层D中的组分可以彼此相同或不同。这也适用于层A、层B或层C中的组分。

[0228] 层合体的总膜厚度为优选约 $320\mu\text{m}$ 或更大,或约 $420\mu\text{m}$ 或更大。此外,层合体的总膜厚度为优选约 $1250\mu\text{m}$ 或更小,或约 $1,000\mu\text{m}$ 或更小。当层合体的膜厚度太薄时,存在在制备层合玻璃时,不能很好地实现层合的问题。层合体的膜厚度太厚会导致成本增加,因此此类膜厚度不是优选的。

[0229] 应注意,由已知树脂组成的层可用作层D。例如,可以使用聚乙烯、聚丙烯、聚氯乙烯、聚苯乙烯、聚醋酸乙烯酯、聚氨酯、聚四氟乙烯、丙烯酸树脂、聚酰胺、聚缩醛、聚碳酸酯、包括聚对苯二甲酸乙二醇酯和聚对苯二甲酸丁二醇酯的聚酯、环状聚烯烃、聚苯硫醚、聚四氟乙烯、聚砜、聚醚砜、聚芳酯、液晶聚合物、聚酰亚胺、聚乙烯醇缩醛(诸如聚乙烯醇缩丁醛)等。

[0230] 此外,在层D中,如果需要的话,还可以加入增塑剂、抗氧化剂、紫外线吸收剂、光稳定剂、防粘剂、颜料、染料、热屏蔽材料(例如,各自具有红外吸收能力的无机热屏蔽微粒、有

机热屏蔽材料)和/或粘合促进剂等。

[0231] 例如,当通过将热屏蔽微粒或热屏蔽化合物作为热屏蔽材料掺入到本发明的层合体中以赋予所述层合体热屏蔽功能来制备层合玻璃时,可以将1,500nm波长下的透射率调节至约50%或更低。如果需要的话,热屏蔽微粒可以包含在层A、层B、层C和/或层D中的任何一层中。热屏蔽微粒可以仅包含在所述层中的一个层中,也可以包含在多个层中。在掺入绝缘细颗粒的情况下,从抑制光学不均匀性的观点来看,优选的是所述绝缘细颗粒包含在至少一个层B中。热屏蔽微粒的示例包括金属掺杂的氧化铟,诸如锡掺杂的氧化铟(ITO);金属掺杂的氧化锡,诸如锑掺杂的氧化锡(ATO);金属掺杂的氧化锌,诸如铝掺杂的氧化锌(AZO);由以下通式表示的金属元素复合氧化钨: $M_mWO_n$ (M表示金属元素;m是约0.01或更大且约1.0或更小;并且n为约2.2或更大且约3.0或更小);锑酸锌( $ZnSb_2O_5$ );六硼化镧;等等。在所述示例中,ITO、ATO和金属元素复合氧化钨是优选的,并且金属元素复合氧化钨是更优选的。在金属元素复合氧化钨中由M表示的金属元素的示例包括Cs、Tl、Rb、Na、K等,并且具体地,Cs是优选的。从热屏蔽性质的观点来看,m为优选约0.2或更大,或者约0.3或更大,并且其为优选约0.5或更小,或约0.4或更小。

[0232] 热屏蔽微粒的含量为相对于用于构成层合体的各层的全部树脂,优选约0.01质量%或更大,或约0.05质量%或更大,或约0.1质量%或更大,或约0.2质量%或更大。此外,热屏蔽微粒的含量为优选约5质量%或更小,或约3质量%或更小。当热屏蔽微粒的含量大于约5质量%时,存在可见光线的透射率受到影响的问题。从层合体的透明性的观点来看,热屏蔽微粒的平均粒径为优选约100nm或更小,或约50nm或更小。应注意,在此提及的热屏蔽颗粒的平均粒径是指用激光衍射仪器测量的平均粒径。

[0233] 热屏蔽化合物的示例包括酞菁化合物、萘酞菁化合物等。从进一步提高热屏蔽性质的观点来看,优选的是热屏蔽化合物含有金属。金属的示例包括Na、K、Li、Cu、Zn、Fe、Co、Ni、Ru、Rh、Pd、Pt、Mn、Sn、V、Ca、Al等,其中Ni是特别优选的。

[0234] 热屏蔽化合物的含量为相对于用于构成层合体的各层的全部树脂,优选约0.001质量%或更大,或约0.005质量%或更大,或约0.01质量%或更大。此外,热屏蔽化合物的含量为优选约1质量%或更小,或约0.5质量%或更小。当热屏蔽化合物的含量大于约1质量%时,存在可见光线的透射率受到影响的问题。

[0235] 此外,优选通过常规已知的方法在本发明的夹层的表面上形成凹凸结构,诸如熔体破裂和/或压花。对熔体破裂或压花的形状没有特别限制,并且可以采用常规已知的那些形状。

[0236] 优选地,使层合玻璃用夹层的至少一个表面(并且更优选地两个表面)成形。通过使层合玻璃用夹层的至少一个表面成形,在制备层合玻璃的情况下,在所述层合玻璃用夹层与玻璃之间的界面处存在的气泡容易地逸出到层合玻璃的外部,并且因此,可制成良好的层合玻璃外观。优选的是,通过压花辊方法、熔体破裂等来使层合玻璃用夹层的至少一个表面成形。通过使层合玻璃用夹层的表面成形,在层合玻璃用夹层的表面形成凹部和/或凸部。

[0237] 用于使层合玻璃用夹层的表面成形的方法的示例包括常规已知的压花辊法、外形挤压方法和利用熔体破裂的挤压唇压花方法。在这些方法示例中,压花辊方法优选用于稳定地获得层合玻璃用夹层,所述层合玻璃用夹层具有在其上形成的均匀且微细的凹部分和

凸部分。

[0238] 压花辊方法中使用的压花辊可以通过例如使用具有所需凹凸图案的雕刻磨机(母磨机)并将凹凸图案转印到金属辊的表面上来制备。此外,还可以使用激光蚀刻来制备压花辊。此外,在如上所述在金属辊的表面上形成微细凹凸图案之后,使用诸如氧化铝、氧化硅或玻璃珠之类的磨料对具有微细凹凸图案的表面进行喷砂处理。由此也可以形成更微细的凹凸图案。

[0239] 此外,优选对压花辊方法中使用的压花辊进行脱模处理。在使用未进行脱模处理的压花辊的情况下,变得难以从压花辊上剥离层合玻璃用夹层。用于剥离处理的方法的示例包括已知方法,诸如硅氧烷处理,Teflon(注册商标)处理和等离子体处理。

[0240] 通过压花辊方法或类似方法成形的层合玻璃用夹层的表面的凹部深度和/或凸部高度(下文中有时称为“压花部分的高度”)为优选约5 $\mu\text{m}$ 或更大,或约10 $\mu\text{m}$ 或更大,或约20 $\mu\text{m}$ 或更大。当压花部分的高度为约5 $\mu\text{m}$ 或更高时,在制备层合玻璃的情况下,在层合玻璃用夹层与玻璃之间的界面处存在的气泡不太可能保留,并且因此,层合玻璃的外观趋于改善。

[0241] 压花部分的高度为优选约150 $\mu\text{m}$ 或更小,或约100 $\mu\text{m}$ 或更小,或约80 $\mu\text{m}$ 或更小。当压花部分的高度为约150 $\mu\text{m}$ 或更低时,在制备层合玻璃的情况下,层合玻璃用夹层与玻璃之间的粘合性变得良好,并且因此,层合玻璃的外观趋于改善。

[0242] 在本发明中,压花部分的高度是指在JIS B 0601(2001)中定义的最大高度粗糙度(Rz)。压花部分的高度可以通过例如利用激光显微镜的共焦原理等来测量。附带地讲,压花部分的高度,即凹部的深度或凸部的高度可以在不脱离本发明的主旨的范围内变化。

[0243] 通过压花辊方法等赋予的形状形式的示例包括格子、斜格、斜椭圆、椭圆、斜槽和凹槽。在所述示例中,从气泡更有利地逸出的观点来看,该形状优选为斜格、斜槽等。相对于膜流动方向(MD方向),倾斜角为优选10°至80°。

[0244] 通过压花辊方法等进行的成形可以在层合玻璃用夹层的一个表面上进行,或者可以在两个表面上进行,但更优选在两个表面上进行。此外,成形图案可以是规则图案或不规则图案,诸如无规无光图案;或者诸如US7351468B2中公开的图案。

[0245] 层合玻璃

[0246] 当本发明的层合体构造包含在玻璃内部时,可以获得具有优异弯曲强度的层合玻璃,具有优异隔音性质(特别是高频区域中的隔音性质)的层合玻璃,具有优异隔音性质和隔音性能稳定性的层合玻璃,以及在宽温度范围内具有优异隔音性质的层合玻璃。

[0247] 因此,本发明的层合玻璃可以适用于汽车挡风玻璃/汽车侧窗玻璃,汽车天窗、汽车后玻璃、抬头显示器用玻璃等;用于窗户、墙壁、屋顶、天窗、隔音墙、橱窗、阳台,扶手墙等的建筑构件;会议室的隔断玻璃构件;等等。在将内部包含本发明的层合体构造的层合玻璃应用于抬头显示器用玻璃的情况下,所使用的层合体的横截面形状为优选这样的形状,在所述形状中,一侧的端面侧较厚,而另一侧的端面侧较薄。在这种情况下,横截面形状可以是这样的形状,在所述形状中整体为楔形的,使得所述形状从一侧的端面侧朝向另一侧的端面侧逐渐变薄,或者可以是这样的形状,在所述形状中横截面的一部分是楔形,使得直到一侧的端面和另一侧的端面之间的任意位置,厚度都是相同的,并且所述形状从上述任意位置朝向另一侧的端面逐渐变薄。

[0248] 通常,使用两个玻璃片用于本发明的层合玻璃。虽然对构成本发明的层合玻璃的

玻璃的厚度没有特别限制,但是所述玻璃的厚度为优选约100mm或更小。此外,由于本发明的层合体具有优异的弯曲强度和刚性,因此即使当使用厚度为约2.8mm或更小的薄片玻璃制备层合玻璃时,也能够在不损害层合玻璃的强度或柔韧性的情况下实现层合玻璃的重量减轻。从减轻重量的观点来看,相对于玻璃的厚度,至少一个玻璃片的厚度为优选约2.8mm或更小,或约2.5mm或更小,或约2.0mm或更小,或约1.8mm或更小。具体地,通过将一侧玻璃的厚度调节至约1.8mm或更大,将另一侧玻璃的厚度调节至约1.8mm或更小,并将各玻璃之间的厚度差调节至约0.2mm或更大,可以制备这样的层合玻璃,在所述层合玻璃中已经在不损害弯曲强度的情况下实现了减薄和重量减轻。各个玻璃之间的厚度差为优选约0.5mm或更大。

[0249] 就轻量化而言,在一个实施方案中,根据本发明的层合玻璃的质量(面密度)为约10kg/m<sup>2</sup>或更小,或约9.5kg/m<sup>2</sup>或更小。在另一个实施方案中,根据本发明的层合玻璃的质量在从约7kg/m<sup>2</sup>,或从约7.5kg/m<sup>2</sup>,或从约8kg/m<sup>2</sup>,至约10kg/m<sup>2</sup>,或至约9.5kg/m<sup>2</sup>,或至约9kg/m<sup>2</sup>的范围内。

#### [0250] 总体隔音性质

[0251] 层合玻璃的隔音性质可以使用声音传输损耗(STL)方法直接测量,所述STL方法为诸如ASTM E90-09中规定的方法。在该方法中,两个相邻的混响室被布置为在它们之间有开口,测试样品安装在所述开口中。在一个室即源室中产生近似扩散的声场。在测试隔断物上的入射声音使测试隔断物振动并在第二室即接收室中产生声场。测定两个室中的空间平均声压级和时间平均声压级。此外,在试样在适当位置的情况下,测定接收室中的声吸收。使用两个室中的声压级、接收室中的声吸收和样本面积来计算声音传输损耗。声音传输损耗是由样本的声屏障性质引起的声压变化的量度。由于隔声量是频率的函数,因此在一系列频带下进行测量。

[0252] 在一系列测试频率上的隔声量表现可能是复杂的。为了加速不同层合玻璃结构之间的比较,声屏障性能可以简单地由称为声音传输等级(STC)的单个数字分类等级表示。通过遵循ASTM E413-10中规定的程序将标准参考曲线与STL测量值拟合来确定STC分类。较高的STC值表示优异的声屏障性能。

[0253] 当如下进行测量时,STC为优选约32或更高,或约33或更高。

[0254] 在50Hz至10,000Hz的频率范围内测量1/3倍频带处的STL。采用495mm×495mm的样本尺寸,并且根据ASTM E90-09在20℃下进行所有测量。通过遵循ASTM E413-10中规定的分析程序,根据STL测量值来确定STC。

[0255] 层合玻璃的层合体损耗因数和等效弯曲刚性模量与层合玻璃的STL有关。损耗因数和等效弯曲刚度模量可以根据按照ISO16940:2008(E)进行的玻璃束样本的输入阻抗测量来确定。输入阻抗是一个点中的注入力与速度之间的传递函数。该传递函数具有对应于系统响应的最大值的共振(给定振动模式下的共振频率)。

[0256] 在一个实施方案中,当根据ISO16940:2008(E)进行测量时,第三振动模式下的层合体损耗因数为至少约0.4,或至少约0.41,或至少约0.42,或至少约0.44,或至少约0.45。

[0257] 在另一个实施方案中,当根据ISO16940:2008(E)进行测量时,第三振动模式下的等效弯曲刚度模量为至少约70N.m,或至少约100N.m,或至少约130N.m,或至少约160N.m。

#### [0258] 最大损耗因数

[0259] 层合玻璃的隔音性质也可以根据通过用中央激励方法进行阻尼测试获得的损耗因数来评估。阻尼测试是用于通过频率或温度来评估损耗因数取值的测试。当频率固定时,在某个温度范围内变为最大的损耗因数被称为最大损耗因数。根据用中央激励方法进行的阻尼测量,获得关于固定温度下的某一频率的损耗因数的值。为了获得最大损耗因数,通过将温度分别改变到0、10、20、30、40和50℃来进行测量,并且在固定频率下与该温度相关的损耗因数的线性形式可以根据所获得的值获得。最大损耗因数是表示阻尼的指标,并且具体地,它是表示板状材料中产生的挠曲振动衰减的速度的指标。即,最大损耗因数是隔音性质的指标,并且可以说层合玻璃的最大损耗因数越高,则层合玻璃的隔音性质越高。

[0260] 在另一个实施方案中,在通过使用层合体作为层合玻璃用中间膜来制备层合玻璃,并且通过中央激励方法对所得层合玻璃进行阻尼测试的情况下,在2,000Hz频率和0至50℃的温度下的最大损耗因数为优选约0.20或更大,或约0.25或更高,或约0.28或更大。在上述条件下的最大损耗因数小于约0.20的情况下,层合玻璃的隔音性质差,使得所得层合玻璃不适用于以隔音为目的的应用。在上述条件下测量的最大损耗因数为约0.20或更大的层合玻璃可以通过以下方式获得:层合层B和多个层(层A和层C),使得层B插置在所述至少两个层A与C之间,所述层B包含含有弹性体的组合物,所述弹性体具有在从约-40℃至约30℃的范围内 $\tan\delta$ 为最大的峰,并且通过进行复数剪切粘度测试测得的所述多个层在25℃的温度下的剪切储能模量为约10.0MPa或更大。

#### [0261] 高频区域中的隔音性质

[0262] 在此,从能够抑制由于相干现象引起的高频区域中隔音性能下降的层合玻璃的观点来看,当本发明的层合体插置在长度为300mm、宽度为25mm和厚度为1.9mm的两片浮法玻璃之间以制备层合玻璃时,通过中央激励方法在20℃下测得的四元共振频率下的损耗因数为优选约0.2或更大,或约0.4或更大,或约0.6或更大。当四元共振频率下的损耗因数小于约0.2时,隔音性质趋于变得不足够。例如为了将四元共振频率下的损耗因数调节到约0.2或更高,可以通过关于构成层B的热塑性弹性体,使用硬链段含量为规定比例或更大(约14质量%或更高)的材料,并将层B的总厚度与充当层合体保护层的层A+C的总厚度的比率调节到规定部分或更大(例如,约1/6.5或更高)的方法或其它方法来实现。

[0263] 四元共振频率下的损耗因数可以例如通过以下方法测量。层合体插置在两片市售浮法玻璃(长300mm×宽25mm×厚1.9mm)之间,并通过真空装袋(vacuum bagging)法制备层合玻璃(条件:在60分钟内将温度从30℃升高至160℃,然后在160℃下保持30分钟)。此后,将层合玻璃的中心固定到内置于机械阻抗仪的激励器的阻抗头中的激励力检测器的尖端部分,以在从0到10,000Hz范围内的频率向层合玻璃的中心施加振动,并且检测此时的激励力和加速度波形,从而通过中央激励方法对层合玻璃进行阻尼测试。基于所获得的激励力和通过进行加速度单积分而获得的速度信号来确定激励点(振动施加到的层合玻璃中心)处的机械阻抗;并且在通过分别设置横坐标上为频率和纵坐标上为机械阻抗而获得的阻抗曲线中,可以根据表示四元模式的峰值的频率和半宽值来确定层合玻璃在四元共振频率下的损耗因数。

[0264] 此外,从制备能够抑制由于相干现象引起的高频区域中隔音性能下降的层合玻璃的观点来看,当本发明的层合体插置在长度为300mm、宽度为25mm和厚度为1.9mm的两片浮法玻璃之间以制备层合玻璃时,根据ISO 16940(2008)计算的四元共振频率下的弯曲刚度

为优选约 $150\text{N}\cdot\text{m}$ 或更大,或约 $200\text{N}\cdot\text{m}$ 或更大。当四元共振频率下的弯曲刚度小于约 $150\text{N}\cdot\text{m}$ 时,易于产生相干现象,使得高频区域中的隔音性质趋于下降。例如为了将四元共振频率下的弯曲刚度调节到约 $150\text{N}\cdot\text{m}$ 或更高,可以通过使用相对于构成层B的热塑性弹性体,硬链段含量为规定比例或更大(约14质量%或更高)的材料,并将层B的总厚度与充当层合体保护层的层A+C的总厚度的比率调节到规定部分或更大(例如,约1/1或更低)的方法或其它方法来实现。

[0265] 此外,通过使用四元共振频率下的损耗因数和弯曲刚度根据ISO 16940(2008)计算的6,300Hz下的声传输损耗为优选约43dB或更高,或约45dB或更高。8,000Hz下的声传输损耗为优选约50dB或更高,或约53dB或更高。10,000Hz下的声传输损耗为优选约56dB或更高,或60约dB或更高。

#### [0266] 隔音性能的稳定性

[0267] 在此,从制备在制备层合玻璃后隔音性能随时间的变化较小并且具有优异的隔音性能稳定性的层合玻璃的观点来看,本发明的层合体优选为这样的层合体,所述层合体具有定位在表层A与C之间的层B并且满足使得关于通过将本发明的层合体插置在厚度为2mm的玻璃之间并在 $140^{\circ}\text{C}$ 温度和1MPa压力的条件下保持接触粘合60分钟而制备的层合玻璃,通过用中央激励方法进行阻尼测试测得的 $20^{\circ}\text{C}$ 和2,000Hz下的损耗因数 $\alpha$ 为约0.2或更大,并且关于在 $18^{\circ}\text{C}$ 下保持一个月后的层合玻璃,通过用中央激励方法进行阻尼测试测得的 $20^{\circ}\text{C}$ 和2,000Hz下的损耗因数 $\alpha$ 与损耗因数 $\beta$ 之比 $\beta/\alpha$ 为约0.70或更大;或者层合体具有定位在表层A与C之间的层B并且满足使得关于含有所述层合体的层合玻璃,将层合玻璃在 $18^{\circ}\text{C}$ 下保持一个月后,通过用中央激励方法进行阻尼测试测得的 $20^{\circ}\text{C}$ 和2,000Hz下的损耗因数 $\beta$ 为约0.2或更大,并且关于层合玻璃,在 $100^{\circ}\text{C}$ 下加热已经在 $18^{\circ}\text{C}$ 下保持一个月的层合玻璃24小时后,通过用中央激励方法进行阻尼测试测得的 $20^{\circ}\text{C}$ 和2,000Hz下的损耗因数 $\beta$ 与损耗因数 $\gamma$ 之比 $\gamma/\beta$ 为约0.80或更大且约1.30或更小。

[0268] 作为后面描述的用于获得能够满足层合玻璃关于通过用中央激励方法进行阻尼测试测得的损耗因数 $\alpha$ 、 $\beta$ 和 $\gamma$ 的规定要求的层合体的方法,例如例示了用于构成层合体的以下方法。

[0269] 第一种构造是这样的构造,在所述构造中层B是这样的层,所述层含有具有至少一种芳族乙烯基聚合物嵌段和至少一种脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的嵌段共聚物,或所述共聚物的氢化产物;层A是含有离聚物树脂的层,并且层C是含有离聚物树脂或聚乙烯醇缩醛树脂且不含增塑剂或含有增塑剂(特别是对于聚乙烯醇缩醛树脂来说)的层,并且在含有增塑剂的情况下,增塑剂的含量为基于100质量份的树脂,大于0且约30质量份或更少(优选约25质量份或更少,或约20质量份或更少,或约15质量份或更少,或约10质量份或更少);并且层B的总厚度与层A+C的总厚度之比((层B的总厚度)/(层A+C的总厚度))在约1/30至约1/3的范围内。

[0270] 此外,第二种构造是层合体,所述层合体具有定位在表层A与C之间的层B并且具有这样的构造,在所述构造中层B是这样的层,所述层含有具有至少一种芳族乙烯基聚合物嵌段和至少一种脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的嵌段共聚物,或所述共聚物的氢化产物;层A是含有离聚物树脂的层,并且层C是含有离聚物树脂或聚乙烯醇缩醛树脂且不含增塑剂或含有增塑剂的层,并且在含有增塑剂的情况下(特别是对于聚乙烯醇缩醛树脂来说),增塑剂

的含量为基于100质量份的树脂,大于0且约25质量份或更少(或约20质量份或更小,或约15质量份或更小,或约10质量份或更小,或约3质量份或更小)。在这种情况下,层B的总厚度与表层A+C的总厚度之比优选在约1/30至约1/1的范围内。此外,优选使用如层B章节所述的嵌段共聚物作为嵌段共聚物。

[0271] 应当指出的是,在采用这些构造的场合下,优选使用在表层A和C的章节所述的离聚物树脂或聚乙烯醇缩醛树脂作为离聚物树脂或聚乙烯醇缩醛树脂。这些构造仅例示了本发明的层合体的构造,并且本发明的层合体不限于这些构造。此外,可以包含在用于这些构造的层A或C中的增塑剂是酯类增塑剂或醚类增塑剂,所述酯类增塑剂或醚类增塑剂各自具有约30°C或更低的熔点或者是无定形的并且还具具有约15至约450mgKOH/g或更低的羟值。

[0272] 在由本发明的层合体获得的层合玻璃中,所述层合玻璃是通过将所述层合体插置在两片厚度为2mm的玻璃之间并在温度140°C和压力1MPa的条件下进行接触粘合60分钟而制备的,通过用中央激励方法进行阻尼测试测得的制备后(例如,在刚制备好时)的层合玻璃在20°C和2,000Hz下的损耗因数 $\alpha$ 为约0.2或更大,或约0.25或更大,或约0.30或更大。当在上述条件下的损耗因数 $\alpha$ 为约0.2或更大时,层合玻璃具有极高的隔音性质。应注意,术语“在刚制备好层合玻璃时”是指在制备层合玻璃并精加工后不断冷却至室温的2小时内的时间。

[0273] 此外,对于将制备的层合玻璃在18°C下保持一个月后的层合玻璃,通过用中央激励方法进行阻尼测试测得的20°C和2,000Hz下的损耗因数 $\alpha$ 与损耗因数 $\beta$ 之比 $\beta/\alpha$ 为优选约0.70或更高,或约0.80或更高,或约0.87或更高。此外, $\beta/\alpha$ 为优选约1.20或更小,或约1.10或更小。当 $\beta/\alpha$ 为约0.70或更高时,隔音性能的稳定性的提高。另一方面,当 $\beta/\alpha$ 为约1.20或更小时,可以缩短保持时间。

[0274] 此外,关于将已经在18°C下保持一个月的层合玻璃于100°C下加热24小时之后的层合玻璃,通过用中央激励方法进行阻尼测试测得的20°C和2,000Hz下的损耗因数 $\gamma$ 与损耗因数 $\beta$ 之比 $\gamma/\beta$ 为优选约0.80或更大,或约0.87或更大,或约0.90或更大。此外, $\gamma/\beta$ 为约1.30或更小,或约1.20或更小,或约1.10或更小。当 $\gamma/\beta$ 为约0.80或更大,或约1.30或更小时,隔音性能的稳定性的提高,并且保持时间可以被缩短。

#### [0275] 宽温度范围内的隔音性质

[0276] 在此,从获得在宽温度范围内具有优异隔音性质的层合玻璃的观点来看,用中央激励方法测量的第三模式下的最大损耗因数为优选约0.2或更大,或约0.23或更大,或者约0.25或更大。当第三模式下的损耗因数小于约0.2时,隔音性质趋于不足。例如为了将第三模式下的损耗因数调节到约0.2或更高,可以通过以下方法来实现此调节:使用具有通过根据JIS K 7244-10在1Hz频率的条件下进行复数剪切粘度测试测得的 $\tan\delta$ 在约-40°C或更高且约30°C或更低的范围内为最大的峰(所述峰有时缩写为“ $\tan\delta$ 的峰值温度”)的层作为充当隔音层的内层(层B),或者使用硬链段含量为规定部分或更少(例如,约50质量%或更少)的弹性体作为构成层B的热塑性弹性体,并且将充当隔音层的内层(层B)的厚度调节至约20 $\mu\text{m}$ 或更大,或者可以通过其它方法来实现此调节。此外,20°C下的损耗因数为优选约0.2或更大,或约0.25或更大。当20°C下的损耗因数小于约0.2,室温下的隔音性质趋于不足。为了将20°C下的损耗因数调节至约0.2或更高,例如例示了使在层B的 $\tan\delta$ 的峰值温度与层B的厚度之间的平衡落入适当范围内的方法。

[0277] 第三模式下的损耗因数可以例如通过以下方法测量。层合体插置在两片市售浮法玻璃(宽50mm×长300mm×厚3mm)之间,并通过真空装袋法制备层合玻璃(条件:在60分钟内将温度从30℃升高至160℃,然后在160℃下保持30分钟)。此后,将层合玻璃的中心固定到内置于机械阻抗仪的激励器的阻抗头中的激励力检测器的尖端部分,以在从0到8,000Hz范围内的频率向层合玻璃的中心施加振动,并且检测此时的激励力和加速度波形,从而通过中央激励方法对层合玻璃进行阻尼测试。基于所获得的激励力和通过进行加速度单积分而获得的速度信号来确定激励点(振动施加到的层合玻璃中心)处的机械阻抗;并且可以根据表示第三模式的峰值的频率和半宽值来确定层合玻璃的损耗因数。

[0278] 损耗因数为0.2或更大的温度范围的宽度可以根据通过上述方法确定的损耗因数确定。损耗因数为0.2或更大的温度范围的宽度为优选约15℃或更大,或约20℃或更大,或约23℃或更大,或约25℃或更大。当损耗因数为0.2或更大的温度范围的宽度小于约15℃时,不能在宽温度范围内显示出隔音性质,因此层合玻璃在低温区域和/或高温区域中的隔音性质趋于下降。

[0279] 加宽损耗因数为0.2或更大的温度范围的宽度的方法的示例包括:根据热塑性弹性体的类型优化内层(层B)的厚度的方法;使用具有彼此不同的 $\tan\delta$ 峰值温度的两种或更多种热塑性弹性体的混合物作为内层(层B)的方法;这样的方法,在所述方法中内层(B层)由两个或更多个层组成,并且使用 $\tan\delta$ 峰值温度不同于用于所述至少一个层的热塑性弹性体的 $\tan\delta$ 峰值温度的热塑性弹性体用于与前述层不同的层;这样的方法,在所述方法中使用 $\tan\delta$ 峰值温度差异较大的那些热塑性弹性体作为具有彼此不同的 $\tan\delta$ 峰值温度的两种或更多种热塑性弹性体;等等。 $\delta$ 通常,即使在使用两种弹性体的混合物的情况下,这两种弹性体也彼此相容以呈现一个峰;然而,在观察到两个峰的情况下, $\tan\delta$ 的峰值温度中的任一峰值温度都可以包括在本发明规定的范围内。

#### [0280] 热屏蔽性质

[0281] 在本发明的层合玻璃包含热屏蔽材料的情况下,1,500nm波长下的透射率为优选约50%或更低,或约20%或更低。当1,500nm波长下的透射率为约50%或更低时,存在红外线屏蔽系数高的趋势,从而提高了层合玻璃的热屏蔽性能。

#### [0282] 雾度

[0283] 雾度是以指定角度散射的光通量的百分比。

[0284] 在一个实施方案中,在本发明的层合玻璃中,当多层夹层层合在两块厚度各自为1.6mm的玻璃板之间以制备层合体时,根据ASTM D1003-61(方法A)在与由行进穿过层合体的不散射光的路径所限定的轴线成大于2.5度的角度处测量(使用可从美国马里兰州哥伦比亚的BYK-Gardner USA购得的Hazegard-i hazemeter雾度计)的所述层合体的雾度为优选约0.6%或更小,或约0.55%或更小,或约0.5%或更小,或约0.45%或更小。

[0285] 在本发明的层合玻璃的另一个实施方案中,当厚度为0.75mm的夹层层合在两片厚度为2mm的浮法玻璃之间时,根据JIS K 7136测量的所述层合玻璃的雾度优选小于约5,或小于约3,或小于约2,或小于约1,或小于约0.5。当雾度为约5或更高时,层合玻璃的透明度趋于下降。

#### [0286] 断裂强度

[0287] 在通过将本发明的层合体插置在两片长26mm×宽76mm×厚2.8mm的浮法玻璃之间

获得的层合玻璃中,所述层合玻璃在三点弯曲测试(温度:20℃,支点间距离:55mm,测试速度:0.25mm/min)中的断裂强度为优选约0.3kN或更大,或约0.5kN或更大,或约0.6kN或更大。当在上述条件下测量的断裂强度小于约0.3kN时,层合玻璃的强度趋于下降。

#### [0288] 层合体的有效弯曲厚度

[0289] 层合玻璃的刚度特性可以通过层合体有效厚度 $t_{\text{eff}}$ 来表征(Reference Shitanoki等人,ASTM E1300-09)。有效厚度是根据按照ISO1288-4:2016对层合体的四点弯曲表现的分析确定的。应注意,层合体的有效厚度值越大,则表示层合体的刚度特性越高。

[0290] 层合体的有效弯曲厚度 $t_{\text{eff}}$ 是根据以下程序确定的:

[0291] 1. 测量负载(P)-使用四点弯曲测试的挠曲( $\delta$ )表现-ISO1288-4:2016,其中改变后的样本尺寸为500mm x 360mm,支撑在300mm的跨度(L1)上并且加载有150mm的跨度(L2)。

[0292] 2. 使用等式1计算层合体的有效厚度 $t_{\text{eff}}$

$$[0293] \quad t_{\text{eff}} = [PL_3(3L_1^2 - 4L_3^2) / (4\delta Eb)]^{1/3} \quad (1)$$

[0294] 其中E为玻璃杨氏模量(=71.6GPa),b是样本宽度(=360mm)并且 $L_3 = (L_1 - L_2) / 2$ (=150mm)。

[0295] 应注意,采用0.1mm/sec的加载速率,并且所有测量均在20℃下进行。

[0296] 当根据ISO1288-4:2016,但使用通过将本发明的层合体插置在两片长500mm×宽360mm×厚4.0mm的浮法玻璃之间而获得的层合玻璃进行测量时,所述层合玻璃在四点弯曲测试(温度:20℃,支撑跨度=300mm并且加载跨度=150mm,测试速度:0.1毫米/秒)中的有效厚度为优选约2.8mm或更大,或约3.0mm或更大,或约3.4mm或更大。

#### [0297] 双折射

[0298] 优选的是,夹层当夹在两块玻璃之间时具有约0至约140nm的双折射相位差。

#### [0299] 层合玻璃的制备方法

[0300] 可以通过常规已知方法来制备本发明的层合玻璃。常规已知方法的示例包括使用真空层压机的方法、使用真空袋的方法、使用真空环的方法、使用压料辊的方法等。此外,可以使用这样的方法,在所述方法中在暂时接触粘合之后,将所得层合体放入高压釜中进行最终粘合。

[0301] 在使用真空层压机的情况下,例如使用用于生产太阳能电池的已知仪器,并且在约 $1 \times 10^{-6}$ MPa或更高且约 $3 \times 10^{-2}$ MPa或更低的减压下,在约100℃或更高或约130℃或更高且约200℃或更低或约170℃或更低的温度下层合组件。使用真空袋或真空环的方法例如在EP1235683A1(CA2388107A1)的说明书中描述,并且例如在约 $2 \times 10^{-2}$ MPa的压力下,在约130℃或更高且约145℃或更低下层合组件。

[0302] 关于层合玻璃的制备方法,在使用压料辊的情况下,例如例示了这样的方法,在所述方法中在表层树脂的流动起始温度或更低温度下进行第一暂时接触粘合之后,在接近所述流动起始温度的条件下进一步进行暂时接触粘合。具体地,例如例示了这样的方法,用红外加热器等在约30℃或更高且约100℃或更低下加热组件,然后用辊脱气,然后在约50℃或更高且约150℃或更低下进一步加热,接着用辊进行接触粘合以实现粘合或暂时粘合。

[0303] 此外,还可以通过聚集和层压玻璃来制备层合玻璃,在所述层合玻璃中,层B覆盖在层A的两个表面上,使得本发明的层合体的构造包含在层合玻璃的内部中。

[0304] 虽然在暂时接触粘合之后补充进行的高压釜工艺可根据模块的厚度或构造而变

化,但是该高压釜工艺例如在约1MPa或更高且约15MPa或更低的压力下,在约120℃或更高且约160℃或更低的温度下进行约0.5小时或更长且约2小时或更短。

[0305] 对在制备层合玻璃时使用的玻璃没有特别限制。可以使用无机玻璃,诸如浮法平板玻璃、抛光平板玻璃、压花玻璃、嵌丝平板玻璃、热射线吸收玻璃;以及此外,传统上已知的有机玻璃,诸如聚甲基丙烯酸甲酯和聚碳酸酯等。这些玻璃可以是无色玻璃、有色玻璃、透明玻璃或不透明玻璃中的任何一种玻璃。这些玻璃可以单独使用,也可以两种或更多种玻璃的组合使用。

#### [0306] 具体实施方案

[0307] 以下是对基于以上描述的本发明具体实施方案的例示。这些具体实施方案仅仅是示例性的,并且对于相关领域的普通技术人员来说,根据以上描述与相关领域普通技术人员通常已知的其它信息的任选组合,许多其它具体实施方案将是明显的。

[0308] 一种夹层,其中层B的厚度总和与层A和C的厚度总和之比((层B的厚度的总和)/(层A+C的厚度的总和))在约1/30至约1/1的范围内。

[0309] 一种层合体,其中1,500nm波长下的透射率为约50%或更低。

[0310] 一种夹层,其中热屏蔽材料包含在层B或层A和/或C中的至少一个层中。

[0311] 一种夹层,其中热屏蔽材料是选自以下项的至少一种材料:锡掺杂的氧化铟、铟掺杂的氧化锡、铟酸锌、金属掺杂的氧化钨、酞菁化合物、铝掺杂的氧化锌和六硼化镧。

[0312] 一种夹层,其中金属掺杂的氧化钨是铯掺杂的氧化钨。

[0313] 一种夹层,其中热屏蔽材料包含在层A和层C两者中。

[0314] 一种夹层,其中热屏蔽材料是铯掺杂的氧化钨(CWO),包含在层A和层C两者中,并且以约0.17g/m<sup>2</sup>至约0.35g/m<sup>2</sup>的量包含。

[0315] 一种夹层,其中热屏蔽材料是锡掺杂的氧化铟(ITO),包含在层A和层C两者中,并且以约0.3g/m<sup>2</sup>至约0.6g/m<sup>2</sup>的量包含。

[0316] 一种夹层,其中热屏蔽材料是CWO与ITO的混合物,包含在层A和层C两者中,并且以约0.05g/m<sup>2</sup>至约0.15g/m<sup>2</sup>的CWO和约0.4g/m<sup>2</sup>至约0.5g/m<sup>2</sup>的ITO的量包含。

[0317] 一种夹层,其中紫外线吸收剂包含在层A和层C中的至少一者或两者中,或者包含在层A、层B和层C中的所有层中。

[0318] 一种夹层,其中紫外线吸收剂以基于所述层的总重量,约0.2重量%至约1重量%的量包含在层A和层C两者中。

[0319] 一种夹层,其中紫外线吸收剂以基于所述层的总重量,约0.25重量%至约0.5重量%的量包含在层B中。

[0320] 一种夹层,其中紫外线吸收剂以基于所述层的总重量,约0.2重量%至约1重量%的量包含在层A和层C两者中,并且以基于所述层的总重量,约0.25重量%至约0.5重量%的量包含在层B中。

[0321] 一种夹层,所述夹层含有至少一种紫外线吸收剂,所述紫外线吸收剂选自由以下项组成的组:苯并三唑类化合物、二苯甲酮类化合物,三嗪类化合物、苯甲酸酯类化合物、丙二酸酯类化合物和草酸苯胺类化合物。

[0322] 一种含有紫外线吸收剂的夹层,其中所述紫外线吸收剂是氯化苯并三唑。

[0323] 一种夹层,其中光稳定剂包含在层A和层C中的至少一者或两者中,或者包含在层

A、层B和层C中的所有层中。

[0324] 一种夹层,其中光稳定剂以基于所述层的总重量,至多约0.8重量%的量包含在层A和层C两者中。

[0325] 一种夹层,其中光稳定剂以基于所述层的总重量,至多约0.4重量%的量包含在层B中。

[0326] 一种夹层,其中光稳定剂以基于所述层的总重量,至多约0.8重量%的量包含在层A和层C两者中,并且以基于所述层的总重量,至多约0.4重量%的量包含在层B中。

[0327] 一种夹层,其中抗氧化剂包含在层A和层C中的至少一者或两者中,或者包含在层A、层B和层C中的所有层中。

[0328] 一种夹层,其中抗氧化剂以基于所述层的总重量,至多约0.2重量%的量包含在层A和层C两者中。

[0329] 一种夹层,其中抗氧化剂以基于所述层的总重量,至多约0.1重量%的量包含在层B中。

[0330] 一种夹层,其中抗氧化剂以基于所述层的总重量,至多约0.2重量%的量包含在层A和层C两者中,并且以基于所述层的总重量,至多约0.1重量%的量包含在层B中。

[0331] 一种含有抗氧化剂的夹层,所述抗氧化剂是酚/亚磷酸酯的组合。

[0332] 一种层合玻璃,所述层合玻璃是汽车挡风玻璃、汽车侧玻璃、汽车天窗、汽车后玻璃,或者抬头显示器用玻璃。

[0333] 一种层合玻璃,其中构成层合玻璃的每个玻璃片是厚度为约2.8mm或更小的薄片玻璃。

[0334] 一种层合玻璃,其中一侧的玻璃片的厚度为约1.8mm或更大,另一侧的玻璃片的厚度为约1.8mm或更小,并且各玻璃片之间的厚度差为约0.2mm或更大。

[0335] 一种多层夹层,所述多层夹层当层合在两块厚度各自为1.6mm的玻璃之间以制备层合体时,所得层合体具有以下项的组合:约33或更高的声音传输等级(STC)(如根据如上所述的ASTM E90-9和ASTM E413-10);至少约0.4的层合体损耗因数(如根据如上所述的ISO16940:2008(E)测定);至少约70N.m、或至少约100N.m、或至少约130N.m的等效弯曲刚度模量(如根据如上所述的ISO16940:2008(E)测定);至少约2.8mm的有效厚度(如根据ISO1288-4:2016(如上所述经改进,参见等式-1)测定);以及小于约0.6的层合体雾度(如根据如上所述的ASTM D1003-61(方法A)测定)。

[0336] 一种玻璃层合体,所述玻璃层合体包括第一玻璃片和第二玻璃片,所述第一玻璃片和第二玻璃片具有插置在其间的热塑性多层夹层,其中层合体具有在约7kg/m<sup>2</sup>至约10kg/m<sup>2</sup>的范围内的质量,并且具有以下项的组合:约33或更高的声音传输等级(STC)(如根据如上所述的ASTM E90-9和ASTM E413-10);至少约0.3或至少约0.4的层合体损耗因数(如根据如上所述的ISO16940:2008(E)测定);至少约100N.m或至少约130N.m的等效弯曲刚度模量(如根据如上所述的ISO16940:2008(E)测定);至少约2.6mm或至少约2.8mm的有效厚度(如根据ISO1288-4:2016(如上所述经改进,参见等式-1)测定);以及小于约0.6的层合体雾度(如根据如上所述的ASTM D1003-61(方法A)测定)。

[0337] 实施例

[0338] 将根据以下层合玻璃性质的具体实施例来进一步理解本发明。然而,应该理解,这

些实施例不应被解释为以任何方式限制本发明的范围。

[0339] 对以下实施例A-1至A-5、B-1至B-3、C-1至C-3、D-1和对比例CEX-1至CEX-6中获得的层合玻璃进行以下物理性质评价。

[0340] 材料

[0341] 以下实施例中使用的材料如下。

[0342] 熔体指数(MI)是根据ASTM D1238,在190°C的聚合物熔体温度和2.16kg的重量下测量的。

[0343] 所述实施例中使用的钠钙硅浮法玻璃(1.6mm标称厚度)得自Technical Glass Products, Inc. (Ivyland, PA, USA)。

[0344] PVB1-由Kuraray America, Inc. (Wilmington, DE, USA)以商标“BUTACITE”销售的单层PVB夹层。

[0345] AC-PVB-由Sekisui America, LLC以商标“S-LEC Sound Acoustic Film”销售的三层PVB声学夹层。

[0346] CI1-从E. I. du Pont de Nemours & Co. (Wilmington, DE, USA)获得的至少部分中和的乙烯酸二聚物离聚物(21.7%的甲基丙烯酸, 26%是被Na中和的, MI=1.8)。

[0347] 片1-由Kuraray America, Inc. (Wilmington, DE, USA)以商标“SENTRYGLAS”销售的单层离聚物夹层,所述夹层由CI1制成。

[0348] I1-至少部分中和的乙烯酸三元共聚物离聚物(22%的甲基丙烯酸, 10%的丙烯酸正丁酯, 26%是被Na中和的, MI=6.3)。

[0349] I2-至少部分中和的乙烯酸三元共聚物离聚物(21.7%的甲基丙烯酸, 10%的丙烯酸正丁酯, 25%是被Zn中和的, MI=3.9)。

[0350] I3-至少部分中和的乙烯酸三元共聚物离聚物(21.7%的甲基丙烯酸, 6.5%的丙烯酸异丁酯, 25%是被Zn中和的, MI=3.8)。

[0351] TPE1-氢化聚苯乙烯-聚异戊二烯-聚苯乙烯三嵌段共聚物热塑性弹性体,所述热塑性弹性体的1,2-键和3,4-键含量为75%。硬嵌段/软嵌段比[Mw(A1)/Mw(A2)]为1.00,玻璃化转变温度为-15°C,苯乙烯含量为21质量%,氢化率为84%,并且重均分子量为120,000。

[0352] TPE2-氢化聚苯乙烯-聚异戊二烯/聚丁二烯-聚苯乙烯三嵌段共聚物热塑性弹性体。硬嵌段/软嵌段比[Mw(A1)/Mw(A2)]为0.30,玻璃化转变温度为-30°C,苯乙烯含量为13质量%,氢化率为85%,并且重均分子量为130,000。

[0353] MAN-PP-由Sanyo Chemical以商品名UMEX 1010销售的马来酸酐改性的低分子量聚丙烯,所述低分子量聚丙烯含有羧酸酐基团作为官能团。

[0354] 多层膜制备

[0355] 将离聚物树脂粒料和添加剂(在母料中)进料到表层挤出机中。将聚合物熔融并加热通过挤出机的各区域,并在约385°F(196°C)的熔融温度下排出。通过受热的熔体产线将离聚物熔体输送到送料区块,在所述送料区块中离聚物流经分流而形成夹层结构的两个外层(A和C)。

[0356] 将热塑性弹性体树脂粒料和添加剂(在母料中)进料到芯层挤出机中。将弹性体聚合物熔融并加热通过挤出机,并在约415°F(213°C)的熔融温度下排出。通过受热的熔体产

线将弹性体熔体输送到保持在约400°F (204°C) 下的送料区块。弹性体熔体流过送料区块，其中分离的离聚物层接触弹性体的顶部和底部以形成三层片结构。

[0357] 将熔融相传送到保持在约400°F (204°C) 下的挤出模头并通过模唇挤出。调节来自表层(离聚物)挤出机和芯(弹性体)挤出机的流速，以得到最终片材中所需的表层比芯层厚度比。调节每个挤出机的熔体温度以使每个聚合物相的熔体粘度良好匹配，以防止片材的流动不稳定性和光学畸变。打开或关闭模唇上的调节器，以允许调节和改善整个片材的宽度上的厚度(卡尺)均匀性。调节产线速度以得到所需的总片厚度(片厚度)。

[0358] 离开挤出模头的熔体经过一系列冷铸轧辊以冷却熔体，从而形成片材产品。将片材输送通过一组未受热的输送辊以进一步冷却所述片材。使固体片材通过压料辊组以控制和保持恒定的产线速度。然后将片材在压料辊与卷绕机之间卷绕到卷绕机处的卷芯上(设定为保持片材中的恒定张力)。

#### [0359] 玻璃层合体制备

[0360] 将聚合物夹层层合体和玻璃在室温下以所需顺序堆叠而成的预压组件放入一次性真空袋中并在25至30英寸水柱的真空下保持60分钟以移除在预压组件的各层之间所包含的任何空气。装载预压组件，同时仍然对袋子施加真空，放入空气高压釜。在施加的100psig的流体静压空气压力下将样本和袋子加热至135°C。在达到135°C后去除袋子的真空，并将层合体在空气高压釜中在施加的100psig的流体静压下保持90分钟。然后在恒定压力下以约4°C/分钟的速率冷却样本。冷却约25分钟后，当空气温度低于约50°C时，排放过压，并将层合体冷却至室温并从高压釜中取出。

[0361] 实施例中使用的方法类似于许多用于制造层合玻璃的标准工业方法，并且产生具有高透明度和最小缺陷(气泡等)的材料。

#### [0362] 物理性质评估

[0363] 测量每个实施例和对比例的以下性质：

[0364] STC-根据如上所述的ASTM E430-10从STL衍生。

[0365] 层合体损耗因数(第3模式)-根据如上所述的ISO16940:2008(E)确定。

[0366] 层合体弯曲刚度模量(第3模式)-根据如上所述的ISO16940:2008(E)确定。

[0367] 层合体有效厚度-根据如上所述的改进的ISO1288-4:2016确定。

[0368] 层合体雾度-根据如上所述的ASTM D1003-61(方法A)确定。

[0369] 面密度是材料每单位面积重量的量度。在这些实施例中，面密度是通过测量STC评估中使用的层合体的重量和面积来确定的。面密度是重量(kg)除以样本投影面积(m<sup>2</sup>)。

[0370] 层合体的结构和测量结果如下。从结果可以看出，只有使用根据本发明的夹层才能提供具有声阻尼、声屏障、弯曲强度、弯曲刚度和光学性质的整体所需组合的层合体。

表 1

实施例	夹层	外层	芯层	层比率	层合结构型		
					玻璃-1的厚度 (mm)	夹层厚度 (mm)	玻璃-2的厚 度(mm)
CEX-1	无	不适用	不适用	所有玻璃	4	不适用	不适用
CEX-2	片 I (CII)	不适用	不适用	单层	1.6	0.9	1.6
CEX-3	PVB	不适用	不适用	单层	1.6	0.8	1.6
CEX-4	AC-PVB	PVB	PVB	7 2 7	1.6	0.8	1.6
CEX-5	二元共聚物/TPE/二元共聚物	CII	TPE1/TPE2 (3:1)	1 1 1	1.6	0.8	1.6
CEX-6	二元共聚物/TPE/二元共聚物	CII	TPE1	1 1 1	1.6	0.8	1.6
A-1	三元共聚物/TPE/三元共聚物	II	TPE1/TPE2 (1:1)	3 5 3	1.6	0.8	1.6
A-2	三元共聚物/TPE/三元共聚物	II	TPE1	2 3 2	1.6	0.8	1.6
A-3	三元共聚物/TPE/三元共聚物	II	TPE1/TPE2 (3:1)	1 1 1	1.6	0.8	1.6
A-4	三元共聚物/TPE/三元共聚物	II	TPE1/TPE2 (1:3)	1 0.6 1	1.6	0.8	1.6
A-5	三元共聚物/TPE/三元共聚物	II	TPE1/TPE2 (1:1)	1 0.6 1	1.6	0.8	1.6
B-1	三元共聚物/TPE/三元共聚物	II	TPE1/TPE2 (3:1)	1 1 1	1.6	0.8	1.6
B-2	三元共聚物/TPE/三元共聚物	II	TPE1/TPE2 (3:1)	10 9 10	1.6	0.8	1.6
B-3	三元共聚物/TPE/三元共聚物	II	TPE1/TPE2 (3:1)	5 6 5	1.6	0.8	1.6
C-1	三元共聚物/TPE/三元共聚物	I3	TPE1/TPE2 (3:1)	1 1 1	1.6	0.8	1.6
C-2	三元共聚物/TPE/三元共聚物	I3	TPE1/TPE2 (3:1)	10 9 10	1.6	0.8	1.6
C-3	三元共聚物/TPE/三元共聚物	I3	TPE1/TPE2 (3:1)	5 6 5	1.6	0.8	1.6
D-1	三元共聚物/TPE/三元共聚物	I3	TPE1/TPE2 (3:1)+5% MAN-PP	1 1 1	1.6	0.8	1.6

[0371]

表 2

实施例	层合体系声传输等级	层合体系损耗因数-第3模式	层合体系弯曲刚度模量-第3模式(N.m)	层合体系有效厚度(mm)	层合体系雾度(%)	层合体系面密度(kg.m <sup>2</sup> )
CEX-1	31	0.01	384	3.81	0.20	9.6
CEX-2	31	0.03	361	3.92	0.51	9.1
CEX-3	32	0.12	231	2.88	0.29	9.0
CEX-4	33	0.45	124	2.64	0.33	9.0
CEX-5	33	0.45	175	2.99	0.68	8.9
CEX-6	33	0.40	184	3.01	0.60	8.9
A-1	33	0.41	70.7	2.81	0.42	8.9
A-2	33	0.52	237	2.91	0.44	8.9
A-3	33	0.45	170	2.96	0.34	8.9
A-4	34	0.45	130	3.19	0.36	8.9
A-5	33	0.48	183	3.16	0.52	8.9
B-1	33	0.45	161	3.01	0.39	8.9
B-2	33	0.41	165	3.05	0.39	8.9
B-3	33	0.49	133	2.95	0.38	8.9
C-1	33	0.44	184	3.10	0.31	8.9
C-2	33	0.44	190	3.17	0.33	8.9
C-3	33	0.50	175	3.09	0.32	8.9
D-1	33	0.44	190	3.21	0.31	8.9

[0372]

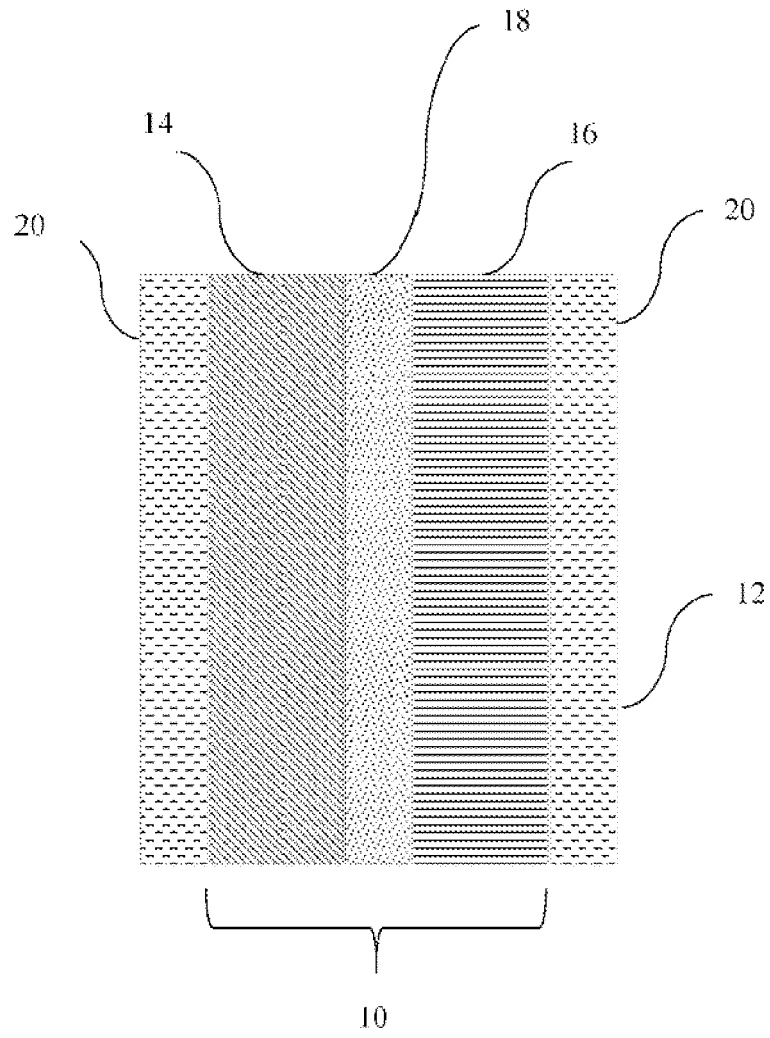


图 1

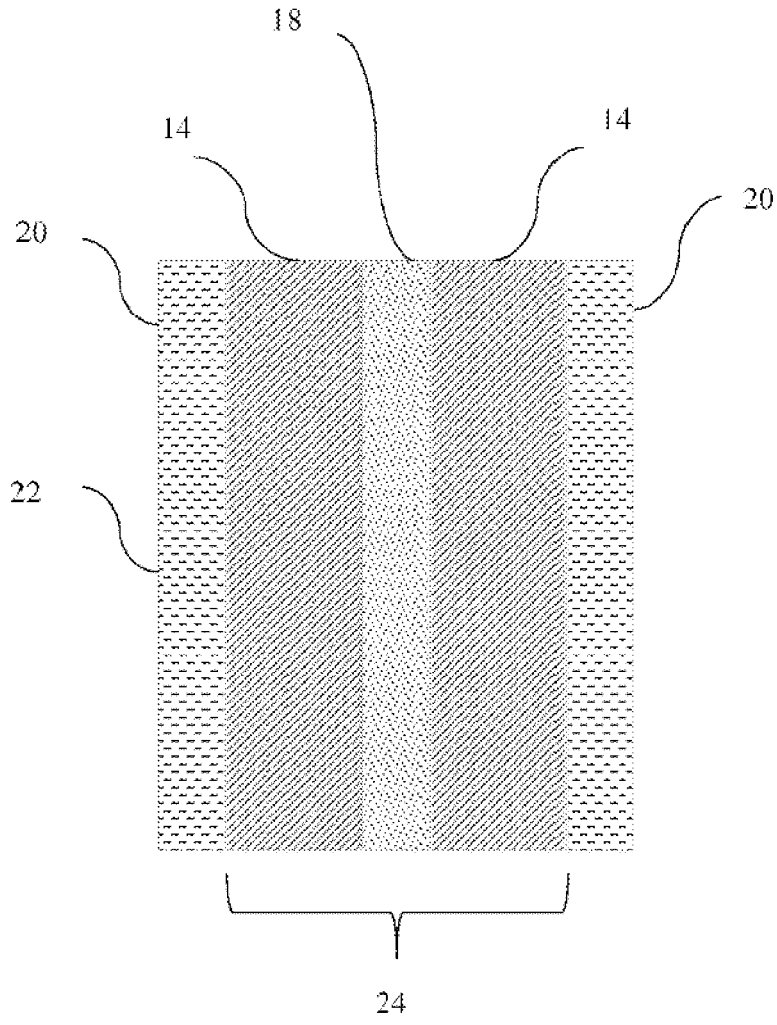


图 2

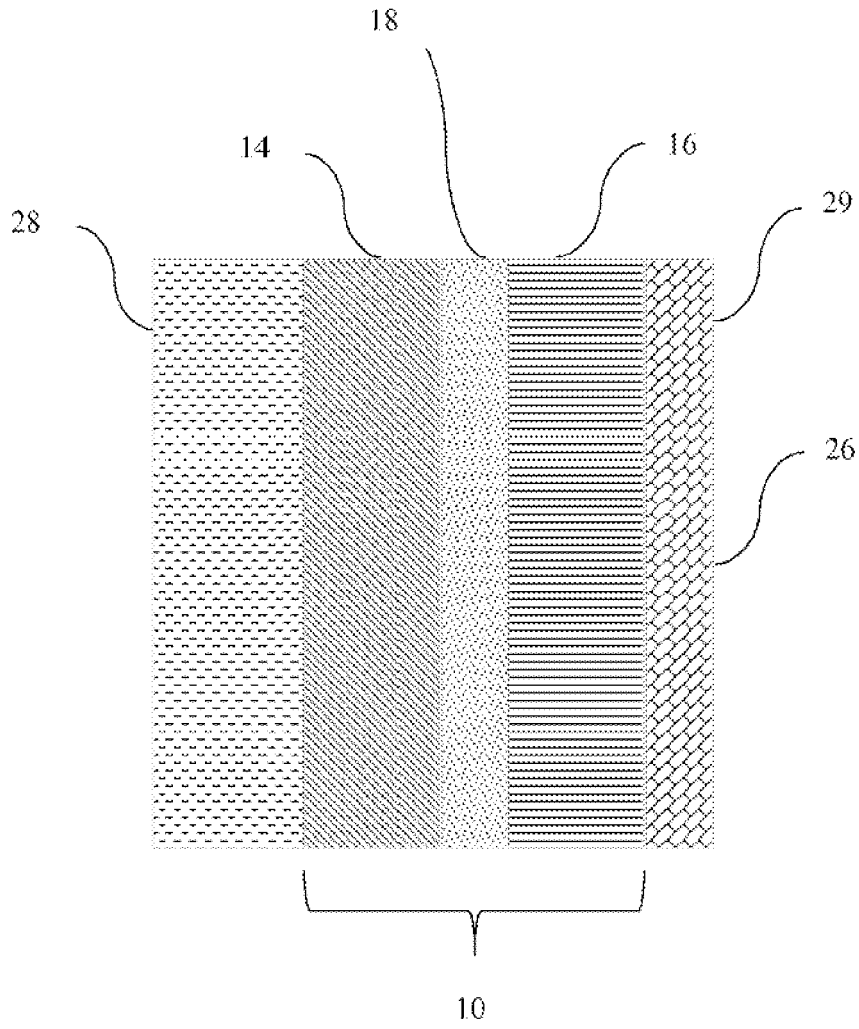


图 3

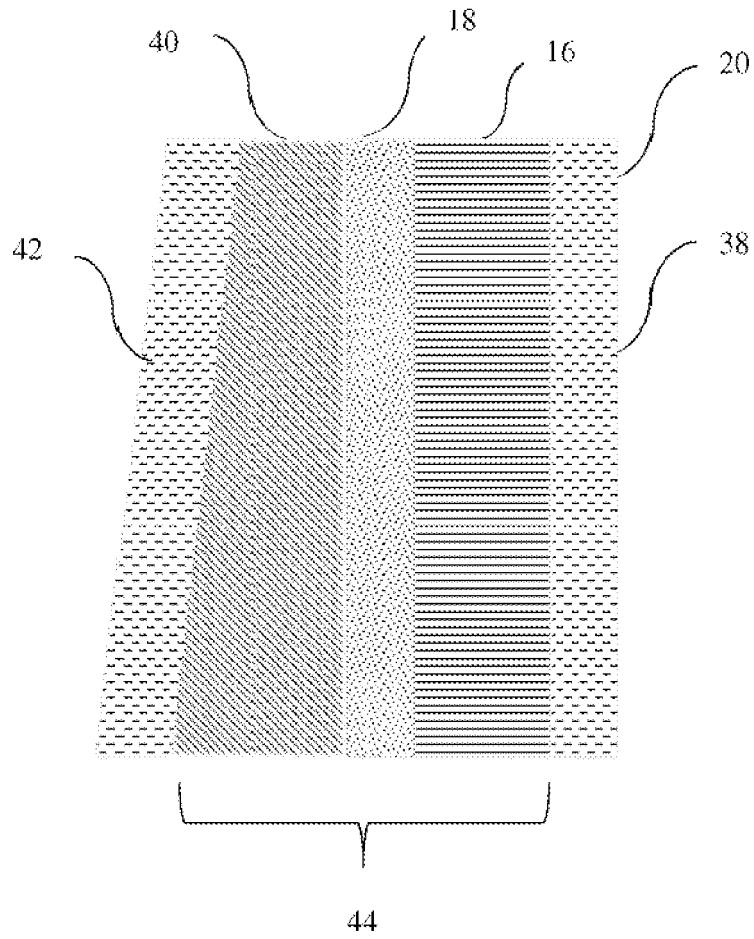


图 4

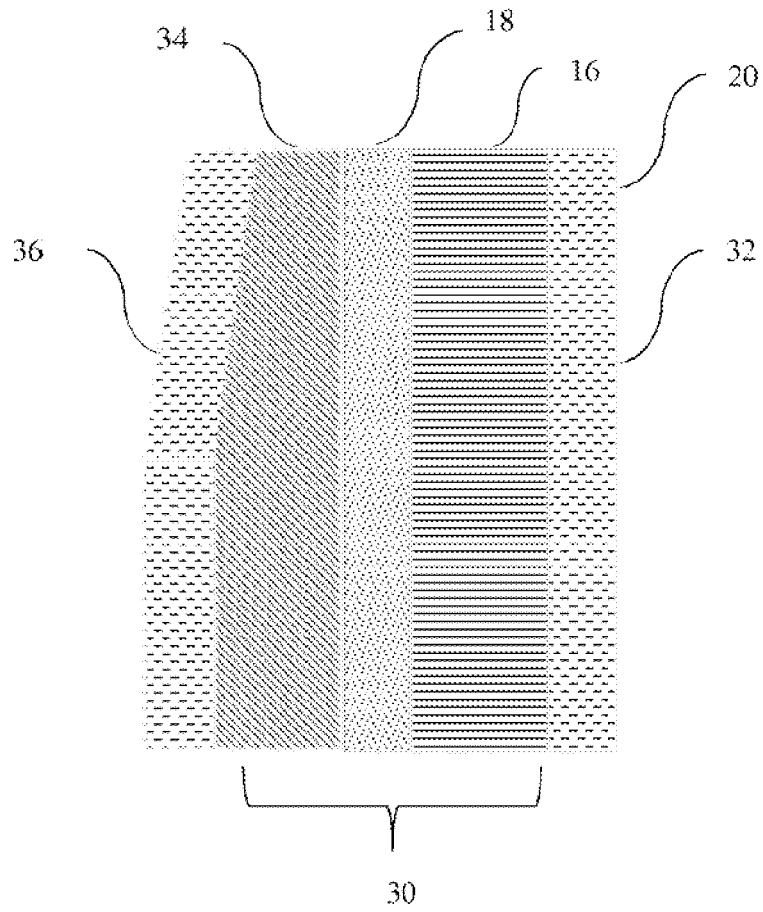


图 5

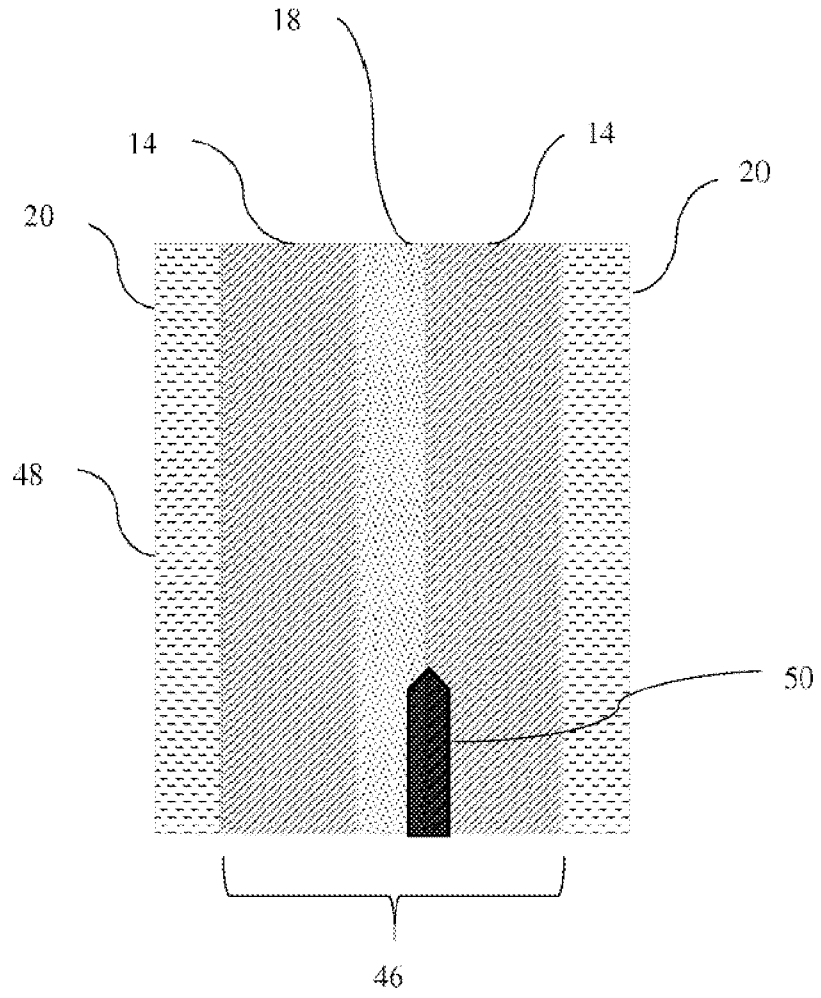


图 6

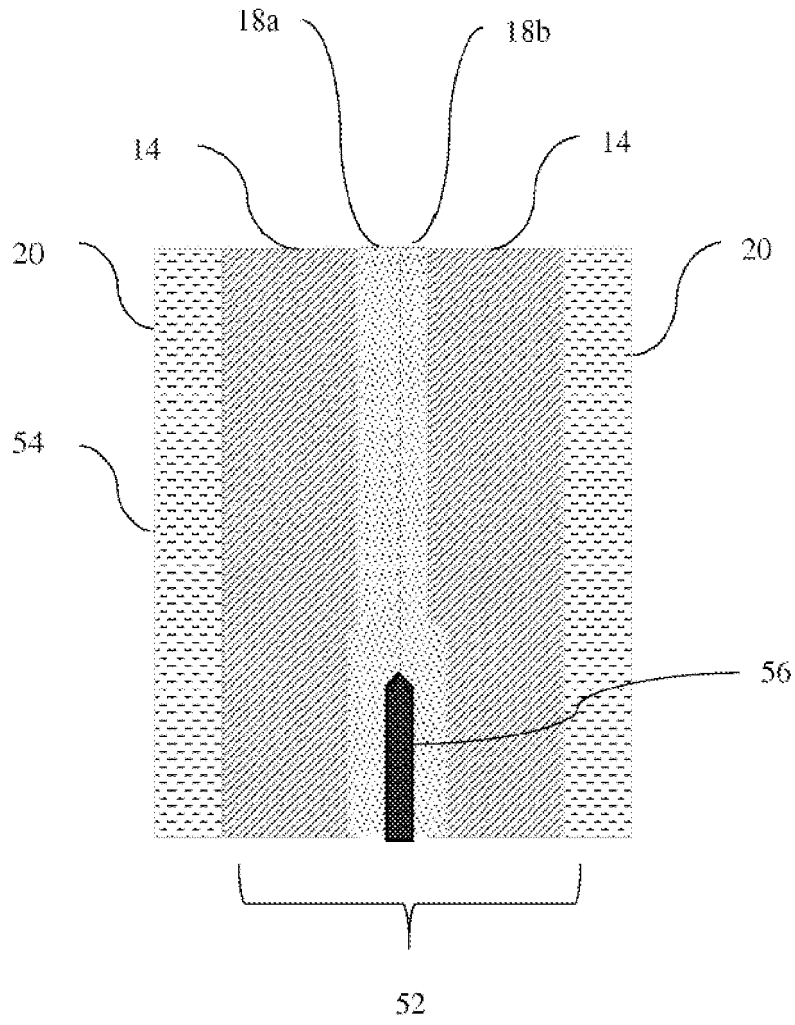


图 7