



(12) 发明专利

(10) 授权公告号 CN 103140452 B

(45) 授权公告日 2015. 09. 09

(21) 申请号 201180047678. X

(22) 申请日 2011. 09. 30

(30) 优先权数据

2010-222873 2010. 09. 30 JP

2011-009787 2011. 01. 20 JP

2011-144861 2011. 06. 29 JP

(85) PCT国际申请进入国家阶段日

2013. 04. 01

(86) PCT国际申请的申请数据

PCT/JP2011/072615 2011. 09. 30

(87) PCT国际申请的公布数据

W02012/043818 JA 2012. 04. 05

(73) 专利权人 积水化学工业株式会社

地址 日本大阪府

(72) 发明人 岛本伦男 松田匠太 梁信烈

可儿孝平 岩本达矢

(74) 专利代理机构 北京市柳沈律师事务所

11105

代理人 张平元 张涛

(51) Int. Cl.

C03C 27/12(2006. 01)

B32B 27/30(2006. 01)

C08L 29/14(2006. 01)

B32B 17/10(2006. 01)

B32B 27/22(2006. 01)

B60J 1/00(2006. 01)

(56) 对比文件

JP 特开 2006-248826 A, 2006. 09. 21, 说明书 0033 - 0041 段.

EP 1743765 A2, 2007. 01. 17, 说明书 0033-0045.

审查员 刘鹏

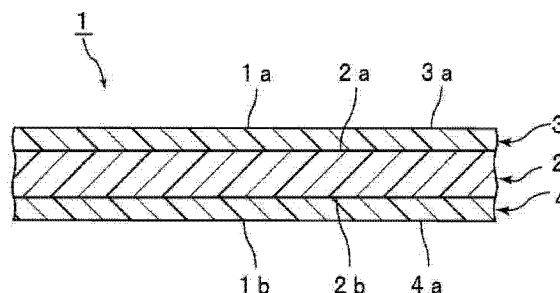
权利要求书3页 说明书33页 附图2页

(54) 发明名称

夹层玻璃用中间膜及夹层玻璃

(57) 摘要

本发明提供一种在用于构成夹层玻璃的情况下可以提高所得夹层玻璃的隔音性的夹层玻璃用中间膜及夹层玻璃。本发明的夹层玻璃用中间膜 (1) 具备含有聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂的第一层 (2)。第一层 (2) 中所含的上述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度超过 30 摩尔 %。所述夹层玻璃 (11) 具备第一、第二夹层玻璃构成部件 (21、22) 和夹在第一、第二夹层玻璃构成部件 21、22 之间的夹层玻璃用中间膜 (1)。



1. 一种夹层玻璃用中间膜, 其具有 1 层结构、或 2 层以上的层叠结构, 其中, 所述夹层玻璃用中间膜具有包含聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂的第一层, 所述第一层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度超过 30 摩尔%。

2. 根据权利要求 1 所述的夹层玻璃用中间膜, 其为具有 2 层以上的层叠结构的夹层玻璃用中间膜,

其还具有配置在所述第一层的第一表面侧的第二层。

3. 根据权利要求 2 所述的夹层玻璃用中间膜, 其中, 所述第二层含有聚乙烯醇缩醛树脂,

所述第二层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率为 20 摩尔%以上且 50 摩尔%以下。

4. 根据权利要求 2 所述的夹层玻璃用中间膜, 其中, 所述第二层含有聚乙烯醇缩醛树脂,

所述第二层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度比所述第一层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度低。

5. 根据权利要求 4 所述的夹层玻璃用中间膜, 其中, 所述第二层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度为 30 摩尔%以下。

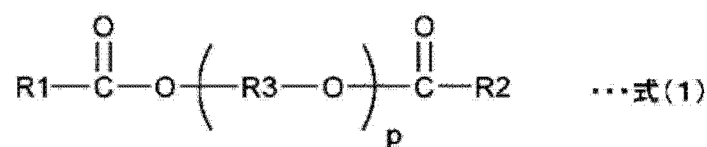
6. 根据权利要求 2~5 中任一项所述的夹层玻璃用中间膜, 其中, 所述第二层含有所述聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂,

所述第二层中所述增塑剂相对于所述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份的含量比所述第一层中所述增塑剂相对于所述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份的含量少。

7. 根据权利要求 2~5 中任一项所述的夹层玻璃用中间膜, 其中, 所述第二层层叠于所述第一层的所述第一表面。

8. 根据权利要求 2~5 中任一项所述的夹层玻璃用中间膜, 其中, 所述第二层含有增塑剂,

所述第二层中所含的所述增塑剂为下述式 (1) 所示的二酯增塑剂,



在上述式 (1) 中, R1 及 R2 分别表示碳原子数 3~10 的有机基团, R3 表示亚乙基、异亚丙基或正亚丙基, p 表示 3~10 的整数。

9. 根据权利要求 2~5 中任一项所述的夹层玻璃用中间膜, 其中, 所述第二层的厚度在 0.1mm~1mm 的范围内。

10. 根据权利要求 1~5 中任一项所述的夹层玻璃用中间膜, 其具有 2 层以上的层叠结构,

所述夹层玻璃用中间膜还具备层叠于所述第一层的第一表面、且含有聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂的第二层,

所述第一层中所述增塑剂相对于所述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份的含量为 50 重量份以上,

所述第一层中所述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率比所述第二层中所述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率低,

所述第一层中所述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率和所述第二层中所述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率之差为 8.5 摩尔%以下。

11. 根据权利要求 1~5 中任一项所述的夹层玻璃用中间膜,其中,所述第一层中的所述聚乙烯醇缩醛树脂含有绝对分子量 100 万以上的高分子量成分,且所述高分子量成分占所述第一层中所述聚乙烯醇缩醛树脂的比例为 7.4%以上,或所述第一层中的所述聚乙烯醇缩醛树脂含有聚苯乙烯换算分子量 100 万以上的高分子量成分,且所述高分子量成分占所述第一层中所述聚乙烯醇缩醛树脂的比例为 9%以上。

12. 根据权利要求 1~5 中任一项所述的夹层玻璃用中间膜,其中,在将所述第一层用作树脂膜并测定该树脂膜的粘弹性的情况下,将该树脂膜的玻璃化转变温度设为 $T_g(^{\circ}\text{C})$ 时, $(T_g+80)^{\circ}\text{C}$ 下的弹性模量 $G'(T_g+80)$ 与 $(T_g+30)^{\circ}\text{C}$ 下的弹性模量 $G'(T_g+30)$ 之比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 为 0.65 以上。

13. 根据权利要求 1~5 中任一项所述的夹层玻璃用中间膜,其中,在使用含有所述第一层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份、和作为增塑剂的三乙二醇二(2-乙基己酸酯)(3GO)60 重量份的树脂膜并测定该树脂膜的粘弹性的情况下,将该树脂膜的玻璃化转变温度设为 $T_g(^{\circ}\text{C})$ 时, $(T_g+80)^{\circ}\text{C}$ 下的弹性模量 $G'(T_g+80)$ 与 $(T_g+30)^{\circ}\text{C}$ 下的弹性模量 $G'(T_g+30)$ 之比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 为 0.65 以上。

14. 根据权利要求 1~5 中任一项所述的夹层玻璃用中间膜,其中,所述第一层中的所述聚乙烯醇缩醛树脂是通过平均聚合度超过 3000 的聚乙烯醇树脂进行缩醛化而得到的。

15. 根据权利要求 1~5 中任一项所述的夹层玻璃用中间膜,其具有 3 层以上的层叠结构,

所述夹层玻璃用中间膜还具备配置在所述第一层的第一表面侧的第二层、和配置在所述第一层的与所述第一表面相反的第二表面侧的第三层。

16. 根据权利要求 15 所述的夹层玻璃用中间膜,其中,所述第三层含有聚乙烯醇缩醛树脂,

所述第三层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率为 20 摩尔%以上且 50 摩尔%以下。

17. 根据权利要求 15 所述的夹层玻璃用中间膜,其中,所述第三层含有聚乙烯醇缩醛树脂,

所述第三层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度比所述第一层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度低。

18. 根据权利要求 17 所述的夹层玻璃用中间膜,其中,所述第三层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度为 30 摩尔%以下。

19. 根据权利要求 15 所述的夹层玻璃用中间膜,其中,所述第三层含有聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂,

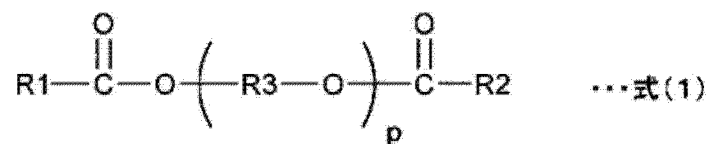
所述第三层中所述增塑剂相对于所述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份的含量比所述第一层中所述增塑剂相对于所述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份的含量少。

20. 根据权利要求 15 所述的夹层玻璃用中间膜, 其中, 所述第三层层叠于所述第一层的所述第二表面。

21. 根据权利要求 1 ~ 5 中任一项所述的夹层玻璃用中间膜, 其中, 所述第一层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度为 90 摩尔%以下。

22. 根据权利要求 1 ~ 5 中任一项所述的夹层玻璃用中间膜, 其中, 所述第一层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率为 45 摩尔%以下。

23. 根据权利要求 1 ~ 5 中任一项所述的夹层玻璃用中间膜, 其中, 所述第一层中所含的所述增塑剂为下述式 (1) 所示的二酯增塑剂,



在上述式 (1) 中, R1 及 R2 分别表示碳原子数 3 ~ 10 的有机基团, R3 表示亚乙基、异亚丙基或正亚丙基, p 表示 3 ~ 10 的整数。

24. 根据权利要求 1 ~ 5 中任一项所述的夹层玻璃用中间膜, 其中, 所述第一层厚度在 0.02 ~ 1.8mm 的范围内。

25. 一种夹层玻璃, 具备:

第一夹层玻璃构成部件、

第二夹层玻璃构成部件、和

夹在所述第一, 第二夹层玻璃构成部件之间的中间膜,

所述中间膜为权利要求 1 ~ 24 中任一项所述的夹层玻璃用中间膜。

夹层玻璃用中间膜及夹层玻璃

技术领域

[0001] 本发明涉及一种汽车及建筑物等的夹层玻璃中所使用的夹层玻璃用中间膜,更详细而言,涉及一种含有聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂的夹层玻璃用中间膜以及使用该夹层玻璃用中间膜的夹层玻璃。

背景技术

[0002] 夹层玻璃即使受到外部冲击而破损,玻璃碎片的飞散量也少,安全性优异。因此,上述夹层玻璃被广泛用于汽车、轨道车辆、飞机、船舶及建筑物等。上述夹层玻璃可通过在一对玻璃板之间夹入中间膜来制造。

[0003] 近年来,为了将夹层玻璃轻质化,对减薄夹层玻璃的厚度进行了研究。但是,减薄夹层玻璃的厚度时,隔音性变低。在将隔音性低的夹层玻璃用于汽车的挡风玻璃等的情况下,存在相对于风噪声或刮水器的驱动声等 5000Hz 左右的音域的声音无法充分地得到隔音性的问题。

[0004] 因此,研究了通过变更中间膜的材料来提高夹层玻璃的隔音性。

[0005] 作为夹层玻璃用中间膜的一个例子,在下述的专利文献 1 中公开了一种含有缩醛化度为 60 ~ 85 摩尔 % 的聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份、碱金属盐及碱土类金属盐中的至少一种金属盐 0.001 ~ 1.0 重量份和 30 重量份以上的增塑剂的隔音层。该隔音层能够以单层作为中间膜,或与其它层层叠来作为多层的中间膜使用。

[0006] 现有技术文献

[0007] 专利文献

[0008] 专利文献 1: 日本特开 2007-070200 号公报

发明内容

[0009] 发明要解决的课题

[0010] 在使用所述专利文献 1 中记载的中间膜的夹层玻璃中,虽然可以某种程度上提高隔音性,但要求隔音性的进一步提高。

[0011] 例如在使用所述专利文献 1 中记载的中间膜构成夹层玻璃的情况下,夹层玻璃在较高频区的隔音性不充分,因此,有时无法避免吻合效应引起的隔音性降低。特别是有时该夹层玻璃在 20℃ 附近的隔音性不充分。

[0012] 其中,吻合效应是指如下现象:音波入射于玻璃板时,由于玻璃板的刚性和惯性,横波在玻璃面上传播,横波和入射音发生共振,其结果,引起声音的透过。

[0013] 另外,在使用将所述专利文献 1 中记载的隔音层和别的层层叠而成的多层中间膜构成夹层玻璃的情况下,可以某种程度提高夹层玻璃在 20℃ 附近的隔音性。但是,由于多层中间膜具有所述隔音层,因此,有时在使用该多层中间膜的夹层玻璃中产生发泡。

[0014] 进而,近年来,为了提高夹层玻璃的隔音性,研究了增加中间膜中增塑剂的含量。增加中间膜中增塑剂的含量时,可以改善夹层玻璃的隔音性。然而,增加增塑剂的含量时,

有时在夹层玻璃中产生发泡。

[0015] 本发明的目的在于,提供一种在用于构成夹层玻璃的情况下可以提高得到的夹层玻璃的隔音性的夹层玻璃用中间膜、以及使用该夹层玻璃用中间膜的夹层玻璃。

[0016] 本发明的限定性目的在于,提供一种可以得到不仅隔音性高,而且可以抑制发泡产生及发泡成长的夹层玻璃的夹层玻璃用中间膜、以及使用该夹层玻璃用中间膜的夹层玻璃。

[0017] 用于解决课题的手段

[0018] 根据本发明的宽泛的方面,可提供一种夹层玻璃用中间膜,其具有 1 层结构、或 2 层以上的层叠结构,所述夹层玻璃用中间膜具有包含聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂的第一层,所述第一层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度超过 30 摩尔 %。本发明的夹层玻璃用中间膜可以为仅有所述第一层的单层的夹层玻璃用中间膜,也可以为含有该第一层的多层的夹层玻璃用中间膜。

[0019] 本发明的夹层玻璃用中间膜的某种特定方面中,其为具有 2 层以上的层叠结构的夹层玻璃用中间膜,其中,还具备配置于所述第一层的第一表面侧上的第二层。

[0020] 在本发明的夹层玻璃用中间膜的其它特定方面中,所述第二层含有聚乙烯醇缩醛树脂,所述第二层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度比所述第一层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度低。

[0021] 在本发明的夹层玻璃用中间膜的又一特定方面中,所述第二层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度为 30 摩尔 % 以下。

[0022] 在本发明的夹层玻璃用中间膜的其它特定方面中,所述第二层含有所述聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂,所述第二层中所述增塑剂相对于所述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份的含量比所述第一层中所述增塑剂相对于所述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份的含量少。

[0023] 在本发明的夹层玻璃用中间膜的又一特定方面中,所述第二层层叠于所述第一层的所述第一表面。

[0024] 在本发明的夹层玻璃用中间膜的其它特定方面中,其为具有 2 层以上的层叠结构的夹层玻璃用中间膜,其还具备层叠于所述第一层的第一表面,且含有聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂的第二层,所述第一层中所述增塑剂相对于所述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份的含量为 50 重量份以上,所述第一层中所述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率比所述第二层中所述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率低,所述第一层中所述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率和所述第二层中所述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率之差为 9.2 摩尔 % 以下,在所述第一层中所述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率和所述第二层中所述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率之差为超过 8.5 摩尔 % 且为 9.2 摩尔 % 以下的情况下,所述第一层中所述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度为 8 摩尔 % 以下。

[0025] 在本发明的夹层玻璃用中间膜的又一特定方面中,所述第一层中所述聚乙烯醇缩醛树脂含有绝对分子量 100 万以上的高分子量成分,且所述高分子量成分占所述第一层中所述聚乙烯醇缩醛树脂的比例为 7.4% 以上、或所述第一层中所述聚乙烯醇缩醛树脂含有聚苯乙烯换算分子量 100 万以上的高分子量成分,且所述高分子量成分占所述第一层中所述聚乙烯醇缩醛树脂的比例为 9% 以上。

[0026] 在本发明的夹层玻璃用中间膜的其它特定方面中,在将所述第一层用作树

脂膜并测定该树脂膜的粘弹性的情况下,将该树脂膜的玻璃化转变温度设为 $T_g(^{\circ}\text{C})$ 时, $(T_g+80)^{\circ}\text{C}$ 下的弹性模量 $G'(T_g+80)$ 与 $(T_g+30)^{\circ}\text{C}$ 下的弹性模量 $G'(T_g+30)$ 之比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 为 0.65 以上。

[0027] 在本发明的夹层玻璃用中间膜的又一特定方面中,在使用含有所述第一层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份和作为增塑剂的三乙二醇二(2-乙基己酸酯)(3G0)60 重量份的树脂膜并测定该树脂膜的粘弹性的情况下,将该树脂膜的玻璃化转变温度设为 $T_g(^{\circ}\text{C})$ 时, $(T_g+80)^{\circ}\text{C}$ 下的弹性模量 $G'(T_g+80)$ 与 $(T_g+30)^{\circ}\text{C}$ 下的弹性模量 $G'(T_g+30)$ 之比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 为 0.65 以上。

[0028] 在本发明的夹层玻璃用中间膜的其它特定方面中,所述第一层中所述聚乙烯醇缩醛树脂通过对平均聚合度超过 3000 的聚乙烯醇树脂进行缩醛化来得到。

[0029] 在本发明的夹层玻璃用中间膜的其它特定方面中,其为具有 3 层以上层叠结构的夹层玻璃用中间膜,其中,还具备配置于所述第一层的第一表面侧上的第二层、和配置于所述第一层的与所述第一表面相反的第二表面侧上的第三层。

[0030] 在本发明的夹层玻璃用中间膜的其它特定方面中,所述第三层含有聚乙烯醇缩醛树脂,所述第三层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度比所述第一层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度低。

[0031] 在本发明的夹层玻璃用中间膜的又一特定方面中,所述第三层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度为 30 摩尔 % 以下。

[0032] 在本发明的夹层玻璃用中间膜的其它特定方面中,所述第三层含有聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂,所述第三层中所述增塑剂相对于所述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份的含量比所述第一层中所述增塑剂相对于所述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份的含量少。

[0033] 在本发明的夹层玻璃用中间膜的又一特定方面中,所述第三层层叠于所述第一层的所述第二表面。

[0034] 本发明的夹层玻璃具备第一夹层玻璃构成部件、第二夹层玻璃构成部件和夹在该第一、第二夹层玻璃构成部件之间所夹持的中间膜,该中间膜为由本发明构成的夹层玻璃用中间膜。

[0035] 发明的效果

[0036] 本发明的夹层玻璃用中间膜具备包含聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂的第一层,该第一层中所含的所述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度超过 30 摩尔 %,因此,可以提高使用本发明的夹层玻璃用中间膜的夹层玻璃的隔音性。

附图说明

[0037] 图 1 为示意性地示出本发明一实施方式的夹层玻璃用中间膜的局部剖切剖面图;

[0038] 图 2 为示意性地示出使用图 1 所示的夹层玻璃用中间膜的夹层玻璃的一个例子的局部剖切剖面图;

[0039] 图 3 为用于说明使用含有第一层中所含的聚乙烯醇缩醛树脂和三乙二醇二(2-乙基己酸酯)的树脂膜并测定该树脂膜的粘弹性时的损耗角正切 $\tan \delta$ 和温度的关系、及弹性模量 G' 和温度的关系的图。

[0040] 符号说明

- [0041] 1...中间膜
- [0042] 1a...第一表面
- [0043] 1b...第二表面
- [0044] 2...第一层
- [0045] 2a...第一表面
- [0046] 2b...第二表面
- [0047] 3...第二层
- [0048] 3a...外侧的表面
- [0049] 4...第三层
- [0050] 4a...外侧的表面
- [0051] 11...夹层玻璃
- [0052] 21...第一夹层玻璃构成部件
- [0053] 22...第二夹层玻璃构成部件

具体实施方式

[0054] 以下,一边参照图面一边对本发明的具体实施方式及实施例进行说明,来明确本发明。

[0055] 图1以局部剖切剖面图示意性地示出了使用本发明一实施方式的夹层玻璃用中间膜的夹层玻璃。

[0056] 图1所示的中间膜1为多层中间膜。中间膜1用于得到夹层玻璃。中间膜1为夹层玻璃用中间膜。中间膜1具备第一层2、配置在第一层2的第一表面2a侧上的第二层3、和配置在第一层2的与第一表面2a相反的第二表面2b侧上的第三层4。第二层3层叠于第一层2的第一表面2a。第三层4层叠于第一层2的第二表面2b。第一层2为中间层,主要作为隔音层起作用。第二、第三层3、4为保护层,在本实施方式中为表面层。第一层2配置在第二、第三层3、4之间。第一层2夹在第二、第三层3、4之间。因此,中间膜1具有按顺序层叠有第二层3、第一层2和第三层4的多层结构。

[0057] 另外,也可以在第一层2和第二层3之间、及第一层2和第三层4之间分别层叠其它的层。第一层2和第二层3、及第一层2和第三层4优选分别直接层叠。作为其它的层,可以举出:含有聚乙烯醇缩醛树脂等热塑性树脂的层、及含有聚对苯二甲酸乙二醇酯等的层。

[0058] 第一层2含有乙酰化度超过30摩尔%的聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂。第二层3优选含有聚乙烯醇缩醛树脂,优选含有聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂。第二层3例如含有乙酰化度为30摩尔%以下的聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂。第三层4优选含有聚乙烯醇缩醛树脂,优选含有聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂。第三层4例如含有乙酰化度为30摩尔%以下的聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂。优选第一层2的组成不同于第二、第三层3、4。第二层3和第三层4的组成可以相同,也可以不同。

[0059] 本实施方式的主要特征在于,具备含有聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂的第一层2,第一层2中所含的上述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度超过30摩尔%。特别是,本实施方式的一大特征为:第一层2中所含的聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度非常高,超过30摩尔%。由

此,可以提高使用中间膜 1 的夹层玻璃的隔音性。

[0060] 特别是可以利用含有乙酰化度超过 30 摩尔 % 的聚乙烯醇缩醛树脂的第一层 2 来提高 20 ~ 30℃ 温度区域下的隔音性。

[0061] 近年来,从使用内燃机的燃料汽车转向使用电动机的电动汽车及使用内燃机和电动机的混合动力汽车等。在使用内燃机的燃料汽车所使用的夹层玻璃中,特别要求较低频区下的隔音性。但是,即使为使用内燃机的燃料汽车所使用的夹层玻璃,也优选高频区下的隔音性高。对此,在利用电动机的电动汽车及混合动力汽车中所使用的夹层玻璃中,为了有效地隔断电动机的驱动声,特别要求高频区下的较高隔音性。

[0062] 本发明人等也发现,利用含有乙酰化度超过 30 摩尔 % 的聚乙烯醇缩醛树脂的第一层 2,可以有效且充分地提高夹层玻璃在高频区下的隔音性。

[0063] 在中间膜 1 中,在第一层 2 的两面层叠有第二、第三层 3、4。优选在第一层的第一表面侧配置有第二层,优选在第一层的第一表面层叠有第二层。可以仅在第一层的第一表面侧配置有第二层,且在第一层的第二表面侧不配置第三层。但是,优选在第一层的第一表面侧配置有第二层,且在第一层的第二表面侧配置第三层。优选在第一层的第二表面层叠有第三层。通过在第一层的第二表面层叠有第三层,可以更进一步提高使用中间膜 1 的夹层玻璃的抗贯穿性。

[0064] 可是,在提高了隔音性的具有多层结构的夹层玻璃用中间膜中,存在在夹层玻璃中容易产生发泡的问题。针对这样的问题,本发明人等发现,在具有多层结构的夹层玻璃用中间膜中,增塑剂在各层间移动,其结果,形成增塑剂的含量多的层,例如增塑剂从第二、第三层移至第一层,其结果,第一层的增塑剂的含量变多。进而,若形成增塑剂的含量多的层,即第一层中的增塑剂的含量变多,则在使用夹层玻璃用中间膜的夹层玻璃中容易产生发泡,进而,也发现若一旦产生发泡,则产生的发泡成为核,发泡成长。

[0065] 从抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长的观点考虑,第一层 2 中上述增塑剂相对于上述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份的含量为 50 重量份以上,第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率比第二层 3 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率低,第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率和第二层 3 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率之差(以下,有时记为含有率差(1-2))为 9.2 摩尔 % 以下,进而在第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率和第二层 3 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率之差(含有率差(1-2))为超过 8.5 摩尔 % 且 9.2 摩尔 % 以下的情况下,优选第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度为 8 摩尔 % 以下。上述含有率差(1-2)可以为超过 8.5 摩尔 % 且 9.2 摩尔 % 以下,进而,也可以为 8.5 摩尔 % 以下。

[0066] 另外,第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率比第三层 4 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率低,第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率和第三层 4 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率之差(以下,有时记为含有率差(1-3))为 9.2 摩尔 % 以下,进而,在第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率和第三层 4 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率之差(含有率差(1-3))为超过 8.5 摩尔 % 且 9.2 摩尔 % 以下的情况下,优选第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度为 8 摩尔 % 以下。但是,即使含有率差(1-3)为 8.5 摩尔 % 以下,在含有率差(1-2)为超过 8.5 摩尔 % 且 9.2 摩尔 % 以下的情况下,也优选第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的乙酰化度为 8 摩尔 % 以下。上述含

有率差 (1-3) 可以为超过 8.5 摩尔 % 且 9.2 摩尔 % 以下,进而,也可以为 8.5 摩尔 % 以下。

[0067] 本发明人等为了抑制上述发泡的产生及发泡的成长进行了潜心研究,结果发现,通过如上控制第一~第三层中聚乙烯醇缩醛树脂的各羟基含有率,可以充分地抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长。可以抑制增塑剂的移动,且可以充分地抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长,因此,可以增多各层的增塑剂的含量、特别是第一层 2 中的增塑剂的含量。因此,可以更进一步提高夹层玻璃的隔音性。

[0068] 另外,第一层 2 中若上述增塑剂相对于上述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份的含量比上述增塑剂相对于第二、第三层 3、4 中上述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份的含量多,则存在更容易产生发泡的倾向。进而,若一旦产生发泡,则存在产生的发泡成为核,发泡生长的倾向。对此,通过如上抑制第一~第三层中聚乙烯醇缩醛树脂的各羟基含有率,可以充分地抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长。

[0069] 从更进一步抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长观点考虑,第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率、和第二、第三层 3、4 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的各羟基含有率之差(含有率差(1-2)及含有率差(1-3))的优选下限为 0.1 摩尔 %,更优选的下限为 1 摩尔 %,进一步优选的下限为 2 摩尔 %,优选的上限为 8.5 摩尔 %,更优选的上限为 7.8 摩尔 %,进一步优选的上限为 7 摩尔 %,特别优选的上限为 5.6 摩尔 %。从可以更进一步抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长方面考虑,第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率、和第二、第三层 3、4 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的各羟基含有率之差(含有率差(1-2)及含有率差(1-3))优选为 5 摩尔 % 以下,更优选为 4.5 摩尔 % 以下,更进一步优选为 4 摩尔 % 以下,进一步优选为 3.5 摩尔 % 以下。

[0070] 另外,第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂优选含有绝对分子量 100 万以上的高分子量成分(以下,有时记为高分子量成分 X)、或第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂含有聚苯乙烯换算分子量(以下,有时记为分子量 y)100 万以上的高分子量成分(以下,有时记为高分子量成分 Y)。该高分子量成分 X、Y 为聚乙烯醇缩醛树脂。上述高分子量成分 X 占第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的比例优选为 7.4% 以上、或上述高分子量成分 Y 占第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的比例为 9% 以上。

[0071] 第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂通过以上述特定的比例含有绝对分子量 100 万以上的高分子量成分 X,可以抑制在夹层玻璃中产生发泡。即使以上述特定的比例含有第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的分子量 y 为 100 万以上的高分子量成分 Y,也可以抑制在夹层玻璃中产生发泡。

[0072] 另外,上述高分子量成分 X 占第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的比例用以百分率(%)表示,并定义为:相当于上述高分子量成分 X 的区域的面积占测定上述绝对分子量时得到的聚乙烯醇缩醛树脂成分的峰面积的比例的值。另外,上述高分子量成分 Y 占第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的比例用以百分率(%)表示,并定义为:相当于上述高分子量成分 Y 的区域的面积占测定上述聚苯乙烯换算分子量时得到的聚乙烯醇缩醛树脂成分的峰面积的比例的值。

[0073] 第二、第三层 3、4 的组成分别优选与第一层 2 的组成不同。第二、第三层 3、4 中上述聚乙烯醇缩醛树脂可以含有绝对分子量 100 万以上的高分子量成分 X,且上述高分子量成分 X 占第二、第三层 3、4 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的比例为 7.4% 以上,也可以含有分子

量 y 为 100 万以上的高分子量成分 Y , 且上述高分子量成分 Y 占第二、第三层 3、4 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的比例为 9% 以上。

[0074] 从可以更进一步提高夹层玻璃的隔音性, 且更进一步抑制发泡的产生及发泡的成长的观点考虑, 绝对分子量 100 万以上的高分子量成分 X 占第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的比例的优选下限为 8%, 更优选的下限为 8.5%, 进一步优选的下限为 9%, 特别优选的下限为 9.5%, 最优选的下限为 10%。从可以更进一步提高夹层玻璃的隔音性, 且更进一步抑制发泡的产生及发泡的成长方面考虑, 高分子量成分 X 的比例优选为 11% 以上, 更优选为 12% 以上, 进一步优选为 14% 以上, 特别优选为 16% 以上。上述高分子量成分 X 的比例的上限没有特别限定, 优选的上限为 40%, 更优选的上限为 30%, 进一步优选的上限为 25%。

[0075] 在第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂含有分子量 y 为 100 万以上的高分子量成分 Y 的情况下, 分子量 y 为 100 万以上的高分子量成分 Y 占含有高分子量成分 Y 的第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂的比例的优选下限为 10%, 更优选的下限为 11%, 进一步优选的下限为 11.5%, 特别优选的下限为 12%。从可以更进一步提高夹层玻璃的隔音性, 且更进一步抑制发泡的产生及发泡的成长方面考虑, 高分子量成分 Y 的比例优选为 12.5% 以上, 更优选为 13.5% 以上, 进一步优选为 14% 以上, 特别优选为 15% 以上, 最优选为 18% 以上。上述高分子量成分 Y 的比例的上限没有特别限定, 优选的上限为 40%, 更优选的上限为 30%, 进一步优选的上限为 25%。若高分子量成分 Y 的比例为上述下限以上, 则可以更进一步抑制发泡的产生及发泡的成长。

[0076] 在使用含有第一层 2 中所含的上述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份和作为增塑剂的三乙二醇二(2-乙基己酸酯)(3G0)60 重量份的树脂膜 A 并测定该树脂膜 A 的粘弹性的情况下(试验法 A), 将该树脂膜 A 的玻璃化转变温度设为 $T_g(^{\circ}\text{C})$ 时, $(T_g+80)^{\circ}\text{C}$ 下的弹性模量 $G'(T_g+80)$ 与 $(T_g+30)^{\circ}\text{C}$ 下的弹性模量 $G'(T_g+30)$ 之比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 优选为 0.65 以上。

[0077] 在将第一层 2 用作树脂膜 B 并测定该树脂膜 B 的粘弹性的情况下(试验法 B), 将该树脂膜 B 的玻璃化转变温度设为 $T_g(^{\circ}\text{C})$ 时, $(T_g+80)^{\circ}\text{C}$ 下的弹性模量 $G'(T_g+80)$ 与 $(T_g+30)^{\circ}\text{C}$ 下的弹性模量 $G'(T_g+30)$ 之比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 也优选为 0.65 以上。

[0078] 在上述试验法 B 中, 第一层 2 可用作上述树脂膜 B, 第一层 2 自身为树脂膜 B。

[0079] 上述树脂膜 B 为第一层 2, 以第一层 2 中的重量比含有上述聚乙烯醇缩醛树脂和上述增塑剂。在上述试验法 B 中, 使增塑剂在夹层玻璃用中间膜 1 中移动后, 优选测定上述弹性模量 $G'(T_g+80)$ 及弹性模量 $G'(T_g+30)$ 。在上述试验法 B 中, 更优选将夹层玻璃用中间膜 1 在湿度 30%($\pm 3\%$)、温度 23°C 下保管 1 个月, 使增塑剂在夹层玻璃用中间膜 1 中移动后, 测定上述弹性模量 $G'(T_g+80)$ 及弹性模量 $G'(T_g+30)$ 。

[0080] 本发明者人等为了抑制上述发泡的产生及发泡的成长进行了潜心研究, 结果发现, 通过上述试验法 A 或上述试验法 B 测得的上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 为 0.65 以上, 可以充分地抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长。即使第一层 2 中上述增塑剂的含量多, 也可以充分地抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长, 因此, 可以提高夹层玻璃的隔音性。特别是通过使用在以上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 为 0.65 以上的方式构成的第一层 2 的两面层叠有第二、第三层 3、4 的夹层玻璃用中间膜 1, 可以更进一步抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长。

[0081] 上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 为 0.65 以上, 优选为 1.0 以下。若上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 为 0.65 以上, 则即使在非常严酷条件下或经过长时间保管夹层玻璃, 也可以充分地抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长。另外, 若上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 为上述下限以上及上述上限以下, 则即使在非常严酷的条件或经过长时间保管夹层玻璃, 也可以更进一步有效地抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长。

[0082] 另外, 从充分地提高夹层玻璃的隔音性的观点考虑, 优选上述增塑剂相对于第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份的含量为 40 重量份以上。即使上述第一层的增塑剂的含量多, 通过上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 为 0.65 以上的方式构成上述第一层, 也可以抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长。

[0083] 上述玻璃化转变温度 $T_g(^{\circ}\text{C})$ 表示由通过上述粘弹性的测定所得测定结果得到的损耗角正切 $\tan \delta$ 的峰温度。从更进一步抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长的观点考虑, 上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 更优选为 0.7 以上, 更优选为 0.95 以下, 进一步优选为 0.75 以上, 进一步优选为 0.9 以下。特别是在以聚乙烯醇树脂的平均聚合度控制上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 的情况下, 从可以充分地抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长, 且更进一步提高夹层玻璃的隔音性的方面考虑, 上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 优选为 0.65 以上, 更优选为 0.66 以上, 进一步优选为 0.67 以上, 特别优选为 0.7 以上, 优选为 0.82 以下, 更优选为 0.8 以下。进而, 若上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 为 0.82 以下或 0.8 以下, 则可以使中间膜容易成形。

[0084] 作为使上述试验法 A 或上述试验法 B 测得的上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 为 0.65 以上的方法, 可以举出: 在合成第一层 2 中的聚乙烯醇缩醛树脂时, 使用平均聚合度较高的聚乙烯醇树脂的方法; 或使第一层 2 中的聚乙烯醇缩醛树脂的分子间相互作用较强的方法等。作为使上述第一层 2 中的聚乙烯醇缩醛树脂的分子间相互作用较强的方法, 可以举出: 将该聚乙烯醇缩醛树脂的分子间物理性交联的方法或化学性交联的方法。其中, 从可以用挤出机使中间膜 1 容易成形的方面考虑, 优选在合成第一层 2 中的聚乙烯醇缩醛树脂时, 使用平均聚合度较高的聚乙烯醇树脂的方法; 或将第一层 2 中的聚乙烯醇缩醛树脂的分子间物理性交联的方法。

[0085] 使用图 3 对通过上述粘弹性的测定得到的损耗角正切 $\tan \delta$ 和温度的关系、及弹性模量 G' 和温度的关系的一个例子进行说明。

[0086] 损耗角正切 $\tan \delta$ 和温度处于如图 3 所示那样的关系。损耗角正切 $\tan \delta$ 的峰 P 中的温度为玻璃化转变温度 T_g 。

[0087] 另外, 图 3 所示的虚线 A2 的弹性模量 G' 中的玻璃化转变温度 T_g 和实线 A1 的弹性模量 G' 中的玻璃化转变温度 T_g 为相同的温度。例如以弹性模量 $G'(T_g+30)$ 作为基准, 弹性模量 $G'(T_g+80)$ 的变化量 D 越小, 越可有效地抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长。实线 A1 的弹性模量 G' 中的变化量 D1 比虚线 A2 的弹性模量 G' 中的变化量 D2 小。因此, 在图 3 中, 与表示变化量 D2 较大的虚线 A2 的弹性模量 G' 的情况相比, 表示变化量 D1 较小的实线 A1 的弹性模量 G' 的情况可有效地抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长。

[0088] 上述 $G'(T_g+30)$ 优选为 20 万 Pa 以上。上述 $G'(T_g+30)$ 更优选为 22 万 Pa 以上, 进一步优选为 23 万 Pa 以上, 特别优选为 24 万 Pa 以上, 优选为 1000 万 Pa 以下, 更优选为 500 万 Pa 以下, 特别优选为 100 万 Pa 以下, 最优选为 50 万 Pa 以下, 进一步最优选为 30 万

Pa 以下。若上述 $G'(T_g+30)$ 为上述下限以上,则可以更进一步有效地抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长。

[0089] 另外,上述弹性模量 G' 和温度的关系受聚乙烯醇缩醛树脂的种类影响较大,特别是受用于得到聚乙烯醇缩醛树脂的上述聚乙烯醇树脂的平均聚合度影响较大,受增塑剂种类的影响不大,在一般的增塑剂的含量中,受该增塑剂含量的影响不大。使用 3G0 以外的一元性有机酸酯等增塑剂代替 3G0 作为增塑剂时上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 、特别是使用 3G0 以外的下述 (1) 所示的二酯增塑剂、或三乙二醇二(2-乙基丁酸酯)(3GH) 及三乙二醇二正庚酸酯(3G7) 作为增塑剂时的上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 与使用 3G0 时的上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 相差不大。另外,在增塑剂的含量相对于聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份为 50 ~ 80 重量份的情况下,上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 相差不大。使用含有聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份和作为增塑剂的三乙二醇二(2-乙基己酸酯)(3G6) 60 重量份的树脂膜测定的上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 与使用第一层 2 自身测定的上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 相差不大。优选上述试验法 A 及上述试验法 B 中得到的上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 均为 0.65 以上,但更优选上述试验法 B 中得到的上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 为 0.65 以上。

[0090] 另外,为了抑制夹层玻璃用中间膜中发泡的产生,第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂也优选通过对平均聚合度超过 3000 的聚乙烯醇树脂进行缩醛化而得到。此时,上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 也可以不为 0.65 以上,但优选为 0.65 以上。另外,从更进一步抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长的观点考虑,第一层 2 中上述增塑剂相对于通过对平均聚合度超过 3000 的聚乙烯醇树脂进行缩醛化而得到的上述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份的含量优选为 40 重量份以上。进而,从更进一步抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长的观点考虑,通过对第一层 2 中的平均聚合度超过 3000 的聚乙烯醇树脂进行缩醛化而得到的上述聚乙烯醇缩醛树脂的羟基含有率优选为 30 摩尔 % 以下。

[0091] 另外,从更进一步提高夹层玻璃的隔音性的观点考虑,上述增塑剂相对于第一层 2 中上述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份的含量优选为 40 重量份以上,更优选为 50 重量份以上,进一步优选为 55 重量份以上,特别优选为 60 重量份以上。即使如上所述第一层 2 中增塑剂的含量多,通过如上控制第一~第三层中聚乙烯醇缩醛树脂的各羟基含有率、或控制上述绝对分子量 100 万以上的高分子量成分 X 的比例或上述分子量 y 为 100 万以上的高分子量成分 Y 的比例、或上述比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$,可以更进一步有效地抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长。

[0092] 以下,对构成本发明的夹层玻璃用中间膜的第一~第三层的详细情况以及该第一~第三层中所含的聚乙烯醇缩醛树脂及增塑剂的详细情况进行说明。

[0093] (热塑性树脂)

[0094] 第一层中所含的聚乙烯醇缩醛树脂(以下,有时记为聚乙烯醇缩醛树脂(1))只要乙酰化度(乙酰基量)超过 30 摩尔 % 就没有特别限定。第二层优选含有热塑性树脂,更优选含有聚乙烯醇缩醛树脂(以下,有时记为聚乙烯醇缩醛树脂(2))。第三层优选含有热塑性树脂,更优选含有聚乙烯醇缩醛树脂(以下,有时记为聚乙烯醇缩醛树脂(3))。若第二、第三层中所含的热塑性树脂为聚乙烯醇缩醛树脂(2)、(3),则第二、第三层和夹层玻璃构成部件的粘接力足够高。

[0095] 作为上述热塑性树脂,可以举出:聚乙烯醇缩醛树脂、乙烯-醋酸乙烯酯共聚物树脂、乙烯-丙烯酸共聚物树脂、聚氨酯树脂及聚乙烯醇树脂等。也可以使用这些以外的热塑性树脂。

[0096] 上述聚乙烯醇缩醛树脂(1)的乙酰化度超过30摩尔%,优选的下限为30.5摩尔%,更优选的下限为32摩尔%,进一步优选的下限为35摩尔%,特别优选的下限为40摩尔%,优选的上限为90摩尔%,进一步优选的上限为80摩尔%,特别优选的上限为70摩尔%,最优选的上限为50摩尔%。若上述乙酰化度为上述下限以上,则中间膜及夹层玻璃的隔音性变高。进而,若上述乙酰化度为上述下限以上,则聚乙烯醇缩醛树脂(1)和增塑剂的相溶性变高。

[0097] 上述聚乙烯醇缩醛树脂(2)、(3)的乙酰化度分别优选比上述聚乙烯醇缩醛树脂(1)的乙酰化度低。通过上述聚乙烯醇缩醛树脂(2)、(3)的乙酰化度比上述聚乙烯醇缩醛树脂(1)的乙酰化度低,可以更进一步提高夹层玻璃的抗贯穿性。

[0098] 上述聚乙烯醇缩醛树脂(2)、(3)的乙酰化度分别优选为0摩尔%以上,更优选为0.1摩尔%以上,进一步优选为0.5摩尔%以上,优选为30摩尔%以下,更优选为20摩尔%以下,进一步优选为10摩尔%以下,特别优选为5摩尔%以下,最优选为3摩尔%以下。若上述乙酰化度为上述上限以下,则中间膜及夹层玻璃的抗贯穿性变高。进而,若乙酰化度为上述上限以下,则可以抑制增塑剂的渗出。

[0099] 另外,若上述聚乙烯醇缩醛树脂(2)、(3)的乙酰化度为3摩尔%以下,则中间膜的机械物性更进一步提高。其结果,可以更进一步提高夹层玻璃的抗贯穿性。

[0100] 上述乙酰化度为以百分率(摩尔%)表示用从主链的总乙烯基量中减去缩醛基键合的乙烯基量和羟基键合的乙烯基量的值除以主链的总乙烯基量而求出的摩尔分数的值。上述缩醛基键合的乙烯基量例如可依据JIS K6728“聚乙烯醇缩丁醛试验方法”进行测定。

[0101] 上述聚乙烯醇缩醛树脂(1)的乙酰化度和上述聚乙烯醇缩醛树脂(2)的乙酰化度的差、及聚乙烯醇缩醛树脂(1)的乙酰化度和聚乙烯醇缩醛树脂(3)的乙酰化度的差分别优选为10摩尔%以上,更优选为20摩尔%以上,优选为50摩尔%以下,更优选为30摩尔%以下。若聚乙烯醇缩醛树脂(1)和聚乙烯醇缩醛树脂(2)、(3)的乙酰化度的差为上述下限以上及上述上限以下,则中间膜及夹层玻璃的隔音性及抗贯穿性更进一步变高。

[0102] 上述聚乙烯醇缩醛树脂(1)~(3)例如可以通过利用醛对聚乙烯醇进行缩醛化来制造。上述聚乙烯醇例如可通过对聚醋酸乙烯酯进行皂化来得到。上述聚乙烯醇的皂化度通常在70~99.9摩尔%的范围内,优选在75~99.8摩尔%的范围内,更优选在80~99.8摩尔%的范围内。

[0103] 用于得到上述聚乙烯醇缩醛树脂(1)~(3)的上述聚乙烯醇的平均聚合度优选为200以上,更优选为500以上,进一步优选为1600以上,特别优选为2600以上,最优选为2700以上,优选为5000以下,更优选为4000以下,进一步优选为3500以下。若上述平均聚合度为上述下限以上,则夹层玻璃的抗贯穿性更进一步变高。若上述平均聚合度为上述上限以下,则中间膜的成形变得容易。

[0104] 从更进一步提高夹层玻璃的抗贯穿性的观点考虑,上述聚乙烯醇的平均聚合度特别优选为2700以上且5000以下。

[0105] 从进一步抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长的观点考虑,用于得到上述第

一层中的聚乙烯醇缩醛树脂 (1) 的上述聚乙烯醇树脂的平均聚合度的优选的下限为 3010, 优选的下限为 3050, 优选的下限为 3500, 优选的下限为 3600, 优选的下限为 4000, 优选的下限为 4050, 优选的上限为 7000, 优选的上限为 6000, 优选的上限为 5000, 优选的上限为 4900, 优选的上限为 4500。特别是从可以更进一步抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长、充分地提高夹层玻璃的隔音性、且使中间膜容易成形的方面考虑, 用于得到上述第一层中的聚乙烯醇缩醛树脂 (1) 的上述聚乙烯醇树脂的平均聚合度优选为 3010 以上, 更优选为 3020 以上, 优选为 4000 以下, 更优选低于 4000, 进一步优选为 3800 以下, 特别优选为 3600 以下, 最优选为 3500 以下。

[0106] 另外, 上述第二、三层中的聚乙烯醇缩醛树脂 (2)、(3) 可通过对聚乙烯醇树脂进行缩醛化来制造。用于得到上述第二、三层中的聚乙烯醇缩醛树脂 (2)、(3) 的聚乙烯醇树脂的平均聚合度的优选下限为 200, 更优选的下限为 500, 进一步优选的下限为 1000, 特别优选的下限为 1500, 优选的上限为 4000, 更优选的上限为 3500, 进一步优选的上限为 3000, 特别优选的上限为 2500。若上述平均聚合度满足上述优选的下限, 则可以更进一步提高夹层玻璃的抗贯穿性。若上述平均聚合度满足上述优选的上限, 则中间膜的成形变得容易。

[0107] 用于得到上述第一层中的聚乙烯醇缩醛树脂 (1) 的聚乙烯醇树脂的平均聚合度优选比用于得到上述第二、三层中的聚乙烯醇缩醛树脂 (2)、(3) 的聚乙烯醇树脂的平均聚合度高, 优选高 500 以上, 优选高 800 以上, 更优选高 1000 以上, 进一步优选高 1300 以上, 特别优选高 1800 以上。

[0108] 另外, 上述聚乙烯醇的平均聚合度可通过依据 JIS K6726 “聚乙烯醇试验方法”的方法来求出。

[0109] 上述聚乙烯醇缩醛树脂中所含的缩醛基的碳原子数没有特别限定。制造上述聚乙烯醇缩醛树脂时使用的醛没有特别限定。上述聚乙烯醇缩醛树脂中缩醛基的碳原子数优选为 3 ~ 5, 更优选为 3 或 4。若上述聚乙烯醇缩醛树脂中缩醛基的碳原子数为 3 以上, 则中间膜的玻璃化转变温度充分变低, 低温下固体音的隔音性更进一步变高。

[0110] 上述醛没有特别限定。作为上述醛, 通常可使用碳原子数 1 ~ 10 的醛。作为上述碳原子数 1 ~ 10 的醛, 例如可以举出: 丙醛、正丁醛、异丁醛、正戊醛、2-乙基丁醛、正己醛、正辛醛、正壬醛、正癸醛、甲醛、乙醛及苯甲醛等。其中, 优选丙醛、正丁醛、异丁醛、正己醛或正戊醛, 更优选丙醛、正丁醛或异丁醛, 进一步优选正丁醛。上述醛可以仅使用 1 种, 也可以组合使用 2 种以上。

[0111] 上述聚乙烯醇缩醛树脂优选为聚乙烯醇缩丁醛树脂。本发明的夹层玻璃用中间膜优选分别含有聚乙烯醇缩丁醛树脂作为上述第一~第三层中所含的上述聚乙烯醇缩醛树脂。聚乙烯醇缩丁醛树脂的合成容易。进而, 通过使用聚乙烯醇缩丁醛树脂, 更进一步适当地表现出中间膜对夹层玻璃构成部件的粘接力。进而, 可以更进一步提高耐光性及耐气候性等。

[0112] 上述聚乙烯醇缩醛树脂 (1) 的羟基含有率 (羟基量) 优选为 45 摩尔 % 以下, 更优选为 35 摩尔 % 以下, 进一步优选为 30 摩尔 % 以下, 更进一步优选为 25 摩尔 % 以下, 特别优选为 20 摩尔 % 以下, 最优选为 15 摩尔 % 以下。若上述羟基含有率为上述上限以下, 则夹层玻璃的隔音性更进一步变高。进而, 中间膜的柔软性变高, 中间膜的处理变得容易。从更进一步提高夹层玻璃在高频区下的隔音性的观点考虑, 上述聚乙烯醇缩醛树脂 (1) 的羟基含

有率越低越好。上述聚乙烯醇缩醛树脂 (1) 的羟基含有率可以为 0 摩尔 %。

[0113] 上述聚乙烯醇缩醛树脂 (2)、(3) 的羟基含有率 (羟基量) 优选比上述聚乙烯醇缩醛树脂 (1) 的羟基含有率高。上述聚乙烯醇缩醛树脂 (2)、(3) 的羟基含有率 (羟基量) 优选为 20 摩尔 % 以上, 更优选为 25 摩尔 % 以上, 进一步优选为 30 摩尔 % 以上, 优选为 50 摩尔 % 以下, 更优选为 45 摩尔 % 以下, 进一步优选为 40 摩尔 % 以下, 特别优选为 35 摩尔 % 以下。若上述羟基含有率为上述下限以上, 则夹层玻璃的抗贯穿性更进一步变高。另外, 若上述羟基含有率为上述上限以下, 则不易产生增塑剂的渗出。进而, 中间膜的柔软性变高, 中间膜的处理变得容易。

[0114] 上述聚乙烯醇缩醛树脂 (1) ~ (3) 的羟基含有率为以百分率 (摩尔 %) 表示用羟基键合的乙烯基量除以主链的总乙烯基量而求出的摩尔分数的值。上述羟基键合的乙烯基量例如可以通过依据 JIS K6726 “聚乙烯醇试验方法” 测定作为原料的聚乙烯醇的羟基键合的乙烯基量来求出。

[0115] 上述聚乙烯醇缩醛树脂 (1) 的缩醛化度 (在聚乙烯醇缩丁醛树脂的情况下为丁缩醛化度) 优选为 20 摩尔 % 以上, 更优选为 25 摩尔 % 以上, 进一步优选为 30 摩尔 % 以上, 优选为 65 摩尔 % 以下, 更优选为 60 摩尔 % 以下, 进一步优选为 55 摩尔 % 以下。若上述缩醛化度为上述下限以上, 则聚乙烯醇缩醛树脂 (1) 和增塑剂的相溶性变高, 可以抑制增塑剂的渗出。若上述缩醛化度为上述上限以下, 则制造聚乙烯醇缩醛树脂所需要的反应时间变短。

[0116] 上述聚乙烯醇缩醛树脂 (2)、(3) 的缩醛化度 (在聚乙烯醇缩丁醛树脂的情况下为丁缩醛化度) 优选为 55 摩尔 % 以上, 更优选为 60 摩尔 % 以上, 进一步优选为 63 摩尔 % 以上, 优选为 85 摩尔 % 以下, 更优选为 75 摩尔 % 以下, 进一步优选为 70 摩尔 % 以下。若上述缩醛化度为上述下限以上, 则聚乙烯醇缩醛树脂 (2)、(3) 和增塑剂的相溶性变高。若上述缩醛化度为上述上限以下, 则制造聚乙烯醇缩醛树脂所需要的反应时间变短。

[0117] 上述缩醛化度为以百分率 (摩尔 %) 表示用缩醛基键合的乙烯基量除以主链的总乙烯基量而求出的摩尔分数的值。

[0118] 上述缩醛化度可通过如下操作算出: 通过依据 JIS K6728 “聚乙烯醇缩丁醛试验方法” 的方法, 测定乙酰化度和羟基含有率 (乙烯醇量), 由得到的测定结果算出摩尔分数, 接着, 100 摩尔 % 中减去乙酰化度和羟基含有率。

[0119] 上述缩醛化度可通过如下操作算出: 通过依据 JIS K6728 “聚乙烯醇缩丁醛试验方法” 的方法, 测定乙酰化度和羟基含有率 (乙烯醇量), 由得到的测定结果算出摩尔分数, 接着, 从 100 摩尔 % 中减去乙酰化度和羟基含有率。

[0120] 另外, 在聚乙烯醇缩醛树脂为聚乙烯醇缩丁醛树脂的情况下, 上述缩醛化度 (丁缩醛化度) 及乙酰化度可由通过依据 JIS K6728 “聚乙烯醇缩丁醛试验方法” 或者 ASTM D1396-92 的方法测得的结果算出。优选通过依据 ASTM D1396-92 的方法进行测定。

[0121] 上述聚乙烯醇缩醛树脂 (1) ~ (3) 的重均分子量的优选下限为 100,000, 更优选的下限为 300,000, 优选的上限为 10,000,000, 更优选的上限为 5,000,000。若上述聚乙烯醇缩醛树脂的重均分子量为上述优选的下限以下, 则有时中间膜的强度降低。若上述聚乙烯醇缩醛树脂的重均分子量超过上述优选的上限, 则有时得到的中间膜的强度变得过强。另外, 上述重均分子量表示利用凝胶渗透色谱 (GPC) 测定的聚苯乙烯换算下的重均分子量。

[0122] 另外,上述重均分子量及上述数均分子量表示利用凝胶渗透色谱(GPC)测定的聚苯乙烯换算下的重均分子量及数均分子量。例如为了测定聚苯乙烯换算下的重均分子量及数均分子量,进行分子量已知的聚苯乙烯标准试样的GPC测定。作为聚苯乙烯标准试样(昭和电工公司制“Shodex Standard SM-105”、“Shodex Standard SH-75”),使用重均分子量580、1,260、2,960、5,000、10,100、21,000、28,500、76,600、196,000、630,000、1,130,000、2,190,000、3,150,000、3,900,000这14个试样。将相对于各个标准试样峰的峰顶表示的溶出时间描绘分子量而得到的近似直线用作标准曲线。从在恒温恒湿室(湿度30%(±3%)、温度23℃)下放置1个月后的多层中间膜上剥离表面层(上述第二、第三层)和中间层(上述第一层),使剥离的第一层(中间层)溶解于四氢呋喃(THF),制备0.1重量%的溶液。利用GPC装置对得到的溶液进行分析,可以测定重均分子量及数均分子量。作为GPC装置,使用连接有GPC用光散射检测器(VISCOTEK公司制“Model 270 (RALS+VISCO)”)的GPC装置(日立High-Tech公司制“RI:L2490、自动取样分析记录仪:L-2200、泵:L-2130、色谱柱恒温器:L-2350、柱:GL-A120-S和GL-A100MX-S的串联”),可以分析上述重均分子量及上述数均分子量。

[0123] (含有绝对分子量100万以上的高分子量成分X或分子量y为100万以上的高分子量成分Y的聚乙烯醇缩醛树脂的制造方法)

[0124] 以下,对含有绝对分子量100万以上的高分子量成分X或分子量y为100万以上的高分子量成分Y的聚乙烯醇缩醛树脂的具体制造方法进行说明。

[0125] 首先,准备聚乙烯醇。该聚乙烯醇例如可通过对聚醋酸乙烯酯进行皂化来得到。上述聚乙烯醇的皂化度通常在70~99.9摩尔%的范围内,优选在75~99.8摩尔%的范围内,更优选在80~99.8摩尔%的范围内。

[0126] 上述聚乙烯醇的聚合度的优选下限为200,更优选的下限为500,进一步优选的下限为1,000,特别优选的下限为1,500,优选的上限为3,000,更优选的上限为2,900,进一步优选的上限为2,800,特别优选的上限为2,700。若上述聚合度过低,则存在夹层玻璃的抗贯穿性降低的倾向。若上述聚合度过高,则中间膜的成形变得困难。

[0127] 接着,使用催化剂使上述聚乙烯醇和醛反应,对聚乙烯醇进行缩醛化。此时,也可以使用含有上述聚乙烯醇的溶液。作为含有该聚乙烯醇的溶液中所使用的溶剂,可以举出水等。

[0128] 上述第一层中所含的聚乙烯醇缩醛树脂的制造方法优选为如下制造方法:使用催化剂使聚乙烯醇和醛反应,对聚乙烯醇进行缩醛化,由此得到聚乙烯醇缩醛树脂。

[0129] 上述第一层的制造方法优选具备如下工序:使用催化剂使聚乙烯醇和醛反应,对聚乙烯醇进行缩醛化,由此得到聚乙烯醇缩醛树脂的工序;和使用将得到的聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂混合而成的混合物,得到上述第一层的工序。在得到该第一层的工序中或得到第一层后,通过在该第一层上层叠第二层,进一步根据需要层叠第三层,可以得到多层的中间膜。另外,可以通过共挤出第一层及第二层来得到多层的中间膜,也可以通过共挤出第一层、第二层及第三层来制造多层的中间膜。

[0130] 上述醛没有特别限定。作为上述醛,通常可优选使用碳原子数1~10的醛。作为上述碳原子数1~10的醛,例如可以举出:丙醛、正丁醛、异丁醛、正戊醛、2-乙基丁醛、正己醛、正辛醛、正壬醛、正癸醛、甲醛、乙醛及苯甲醛等。其中,优选正丁醛、正己醛或正戊醛,

更优选正丁醛。上述醛可以仅使用 1 种,也可以组合使用 2 种以上。

[0131] 从容易得到以上所述特定的比例含有绝对分子量 100 万以上或分子量 y 为 100 万以上的高分子量成分 X、Y 的聚乙烯醇缩醛树脂的观点考虑,例如可以举出:在利用醛的缩醛化反应前或过程中,为了使邻接的聚乙烯醇的主链交联,添加二醛等交联剂的方法;或通过投入过量的醛来进行分子间的缩醛化反应的方法或添加聚合度高的聚乙烯醇的方法等。另外,这些方法可以单独使用,也可以组合使用 2 种以上。

[0132] 上述催化剂优选为酸催化剂。作为该酸催化剂,可以举出:硝酸、盐酸、硫酸、磷酸及对甲苯磺酸等。

[0133] 上述聚苯乙烯换算分子量表示利用凝胶渗透色谱(GPC)测定的聚苯乙烯换算下的分子量。上述分子量 y 为 100 万以上的高分子量成分 Y 占上述聚乙烯醇缩醛树脂的比例(%) 在利用上述聚乙烯醇缩醛树脂的 GPC 测定聚苯乙烯换算分子量时,由用 RI 检测器所检测的峰面积中相当于分子量 y 为 100 万以上的区域的面积的比例算出。另外,峰面积是指作为测定对象的成分的峰和基线之间的面积。

[0134] 聚苯乙烯换算分子量例如可如下进行测定。

[0135] 为了测定聚苯乙烯换算分子量,进行分子量已知的聚苯乙烯标准试样的 GPC 测定。作为聚苯乙烯标准试样(昭和电工公司制“Shodex Standard SM-105”、“Shodex Standard SH-75”),使用重均分子量 580、1,260、2,960、5,000、10,100、21,000、28,500、76,600、196,000、630,000、1,130,000、2,190,000、3,150,000、3,900,000 这 14 个试样。将相对于各个标准试样峰的峰顶表示的溶出时间描绘重均分子量而得到的近似直线用作标准曲线。例如在测定上述分子量 y 为 100 万以上的高分子量成分 Y 占将表面层、中间层和表面层按顺序层叠而成的多层中间膜的中间层中的聚乙烯醇缩醛树脂的比例(%)的情况下,从在恒温恒湿室(湿度 30%(±3%)、温度 23℃)中放置 1 个月后的多层中间膜上剥离表面层和中间层。使剥离的中间层溶解于四氢呋喃(THF),制备 0.1 重量%的溶液。利用 GPC 装置对得到的溶液进行分析,测定中间层中聚乙烯醇缩醛树脂的峰面积。接着,由中间层中聚乙烯醇缩醛树脂的溶出时间和标准曲线算出相当于中间层中的聚乙烯醇缩醛树脂的聚苯乙烯换算分子量为 100 万以上的区域的面积。通过以百分率(%)表示将相对于中间层中的聚乙烯醇缩醛树脂的聚苯乙烯换算分子量为 100 万以上的区域的面积除以中间层中的聚乙烯醇缩醛树脂的峰面积而得到的值,可以算出上述分子量 y 为 100 万以上的高分子量成分 Y 占上述聚乙烯醇缩醛树脂的比例(%)。例如可以使用凝胶渗透色谱(GPC)装置(日立 High-Tech 公司制“RI:L2490、自动取样分析记录仪:L-2200、泵:L-2130、色谱柱恒温器:L-2350、柱:GL-A120-S 和 GL-A100MX-S 的串联”)测定聚苯乙烯换算分子量。

[0136] (增塑剂)

[0137] 第一层含有增塑剂(以下,有时记为增塑剂(1))。第二层优选含有增塑剂(以下,有时记为增塑剂(2))。第三层优选含有增塑剂(以下,有时记为增塑剂(3))。第一~第三层中所含的各增塑剂(1)~(3)没有特别限定。作为该增塑剂(1)~(3),可以使用现有公知的增塑剂。上述增塑剂(1)~(3)可仅使用 1 种,也可组合使用 2 种以上。

[0138] 作为上述增塑剂(1)~(3),例如可以举出一元有机酸酯及多元有机酸酯等有机酯增塑剂、以及有机磷酸增塑剂及有机亚磷酸增塑剂等磷酸增塑剂等。其中,优选有机酯增塑剂。上述增塑剂优选为液态增塑剂。

[0139] 作为上述有机酸酯,没有特别限定,例如可以举出:通过二醇和一元有机酸的反应得到的二醇酯以及三乙二醇或三丙二醇与一元有机酸的酯等。作为上述二醇,可以举出:三乙二醇、四乙二醇及三丙二醇等。作为上述一元有机酸,可以举出:丁酸、异丁酸、己酸、2-乙基丁酸、庚酸、正辛酸、2-乙基己酸、正壬酸及癸酸等。

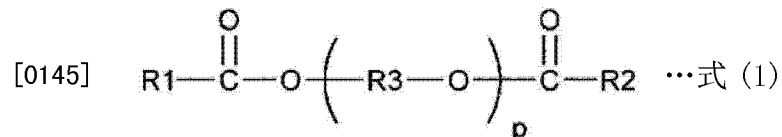
[0140] 作为上述多元有机酸酯,没有特别限定,例如可以举出:多元有机酸和具有碳原子数 4~8 的直链或支链结构的醇的酯化合物。作为上述多元有机酸,可以举出:己二酸、癸二酸及壬二酸等。

[0141] 作为上述有机酯增塑剂,没有特别限定,可以举出:三乙二醇二(2-乙基丁酸酯)、三乙二醇二(2-乙基己酸酯)、三乙二醇二辛酸酯、三乙二醇二正辛酸酯、三乙二醇二正庚酸酯、四乙二醇二正庚酸酯、癸二酸二丁酯、壬二酸二辛酯、二丁基卡比醇己二酸酯、乙二醇二(2-乙基丁酸酯)、1,3-丙二醇二(2-乙基丁酸酯)、1,4-丁二醇二(2-乙基丁酸酯)、二乙二醇二(2-乙基丁酸酯)、二乙二醇二(2-乙基己酸酯)、二丙二醇二(2-乙基丁酸酯)、三乙二醇二(2-乙基戊酸酯)、四乙二醇二(2-乙基丁酸酯)、二乙二醇二辛酸酯、己二酸二己酯、己二酸二辛酯、己二酸己基环己酯、己二酸庚酯和己二酸壬酯的混合物、己二酸二异壬酯、己二酸二异癸酯、己二酸庚基壬酯、癸二酸二丁酯、油改性癸二酸醇酸、及磷酸酯和己二酸酯的混合物等。也可以使用这些以外的有机酯增塑剂。

[0142] 作为上述有机磷酸增塑剂,没有特别限定,例如可以举出:三丁氧基乙基磷酸酯、异癸基苯基磷酸酯及三异丙基磷酸酯等。

[0143] 上述增塑剂(1)~(3)优选为下述式(1)所示的二酯增塑剂。

[0144] [化学式 1]



[0146] 在上述式(1)中,R₁及R₂分别表示碳原子数3~10的有机基团,R₃表示亚乙基、异亚丙基或正亚丙基,p表示3~10的整数。在上述式(1)中,R₁及R₂分别优选为碳原子数5~10的烷基。

[0147] 上述增塑剂优选含有三乙二醇二(2-乙基己酸酯)(3G0)、三乙二醇二丁酸酯(3GB)、己二酸二丁酯及三乙二醇二(2-乙基丁酸酯)(3GH)中的至少1种,更优选含有三乙二醇二(2-乙基己酸酯)或三乙二醇二丁酸酯。

[0148] 在上述第一层中,相对于上述聚乙烯醇缩醛树脂(1)100重量份,上述增塑剂(1)的含量优选为25~60重量份。相对于上述聚乙烯醇缩醛树脂(1)100重量份,上述增塑剂(1)的含量更优选为30重量份以上,进一步优选为40重量份以上,更优选为55重量份以下,进一步优选为50重量份以下。若上述增塑剂(1)的含量为上述下限以上,则中间膜的柔软性变高,中间膜的处理变得容易。若上述增塑剂(1)的含量为上述上限以下,则中间膜的透明性更进一步变高。

[0149] 在上述第二层(2)中,相对于上述聚乙烯醇缩醛树脂(2)100重量份,上述增塑剂(2)的含量优选为15~45重量份。另外,在上述第三层(3)中,相对于上述聚乙烯醇缩醛树脂(3)100重量份,上述增塑剂(3)的含量优选为15~45重量份。相对于上述聚乙烯醇缩醛树脂(2)、(3)100重量份,上述增塑剂(2)、(3)的含量更优选为20重量份以上,更优选

为 40 重量份以下。若上述增塑剂 (2)、(3) 的含量为上述下限以上,中间膜的柔软性变高,中间膜的处理变得容易。若上述增塑剂 (2)、(3) 的含量为上述上限以下,则中间膜的抗贯穿性更进一步变高。

[0150] 上述第二层中上述增塑剂 (2) 相对于上述聚乙烯醇缩醛树脂 (2) 100 重量份的含量 (以下,有时记为含量 (2)) 优选比上述第一层中上述增塑剂 (1) 相对于上述聚乙烯醇缩醛树脂 (1) 100 重量份的含量 (以下,有时记为含量 (1)) 少。另外,上述第三层中上述增塑剂 (3) 相对于上述聚乙烯醇缩醛树脂 (3) 100 重量份的含量 (以下,有时记为含量 (3)) 优选比上述第一层中上述增塑剂 (1) 相对于上述聚乙烯醇缩醛树脂 (1) 100 重量份的含量 (以下,有时记为含量 (1)) 少。通过上述含量 (2)、(3) 比上述含量 (1) 少,夹层玻璃的抗贯穿性更进一步变高。

[0151] 上述含量 (1) 和上述含量 (2)、(3) 的差的优选下限为 1 重量份,更优选的下限为 5 重量份,进一步优选的下限为 10 重量份,特别优选的下限为 15 重量份,最优选的下限为 20 重量份,优选的上限为 40 重量份,更优选的上限为 35 重量份,进一步优选的上限为 30 重量份,特别优选的上限为 25 重量份。若上述含量 (1) 和上述含量 (2)、(3) 的差为上述下限以上,则夹层玻璃的隔音性更进一步变高,若为上述上限以下,则夹层玻璃的抗贯穿性更进一步变高。另外,上述含量 (1) 和上述含量 (2)、(3) 的差为从上述含量 (1) 中扣除上述含量 (2)、(3) 后得到的数值。

[0152] (其它成分)

[0153] 本发明的夹层玻璃用中间膜也可以根据需要含有紫外线吸收剂、抗氧化剂、光稳定剂、阻燃剂、抗静电剂、颜料、染料、粘接力调节剂、耐湿剂、荧光增白剂及红外线吸收剂等添加剂。这些添加剂可以仅使用 1 种,也可以组合使用 2 种以上。

[0154] (夹层玻璃用中间膜)

[0155] 上述第一层的厚度优选在 0.02 ~ 1.8mm 的范围内。第一层的厚度更优选为 0.05mm 以上,进一步优选为 0.08mm 以上,更优选为 0.5mm 以下,进一步优选为 0.15mm 以下。通过使其为这样的优选厚度,中间膜的厚度不会变得过厚,且可以更进一步提高中间膜及夹层玻璃的隔音性。

[0156] 上述第二、第三层的厚度分别优选在 0.1mm ~ 1mm 的范围内。上述第二、第三层的厚度更优选为 0.2mm 以上,进一步优选为 0.3mm 以上,更优选为 0.5mm 以下,进一步优选为 0.4mm 以下。若上述第二、第三层的厚度为上述下限以上及上述上限以下,则中间膜的厚度不会变得过厚,且中间膜及夹层玻璃的隔音性更进一步变高,可以进一步抑制增塑剂的渗出。

[0157] 另外,在中间膜具有 2 层以上的层叠结构的情况下,上述第一层的厚度相对于上述中间膜的厚度之比 ((第一层的厚度)/(中间膜的厚度)) 小,存在上述第一层中所含的增塑剂的含量越多,夹层玻璃中越产生发泡,发泡越成长的倾向。特别是在中间膜中上述比为 0.05 以上且 0.35 以下的情况下,即使上述第一层中上述增塑剂相对于上述聚乙烯醇缩醛树脂 100 重量份的含量多,也可充分抑制夹层玻璃中发泡的产生及发泡的成长,且更进一步提高夹层玻璃的隔音性。上述比 ((第一层的厚度)/(中间膜的厚度)) 优选为 0.06 以上,更优选为 0.07 以上,进一步优选为 0.08 以上,特别优选为 0.1 以上,优选为 0.3 以下,更优选为 0.25 以下,进一步优选为 0.2 以下,特别优选为 0.15 以下。

[0158] 本发明的夹层玻璃用中间膜的厚度优选在 0.1 ~ 3mm 的范围内。中间膜的厚度更优选为 0.25mm 以上,更优选为 1.5mm 以下。若中间膜的厚度为上述下限以上,则中间膜及夹层玻璃的抗贯穿性足够高。若中间膜的厚度为上述上限以下,则中间膜的透明性更好。

[0159] 本发明的夹层玻璃用中间膜的制造方法没有特别限定。作为该中间膜的制造方法,可以使用现有公知的方法。例如可以举出:将聚乙烯醇缩醛树脂、增塑剂和根据需要配合的其它成分混炼,对中间膜进行成形的制造方法等。为了适于连续的生产,优选挤出成形的制造方法。

[0160] 上述混炼的方法没有特别限定。作为该方法,例如可以举出:使用挤出机、塑性变形图描记器、捏合机、密闭式混炼机或压延辊等的方法。其中,为了适于连续的生产,优选使用挤出机的方法,更优选使用双轴挤出机的方法。另外,本发明的夹层玻璃用中间膜可以在分别制作第一层和第二、第三层后,层叠第一层和第二、第三层来得到多层中间膜,也可以通过共挤出来层叠第一层和第二、第三层而得到中间膜。

[0161] 从中间膜的制造效率优异的方面考虑,优选在上述第二、第三层中含有相同的聚乙烯醇缩醛树脂,更优选在上述第二、第三层中含有相同的聚乙烯醇缩醛树脂及相同的增塑剂,进一步优选利用相同的组合物形成上述第二、第三层。

[0162] (夹层玻璃)

[0163] 图 2 中以剖面图示出了使用本发明一实施方式的夹层玻璃用中间膜的夹层玻璃的一个例子。

[0164] 图 2 所示的夹层玻璃 11 具备中间膜 1 和第一、第二夹层玻璃构成部件 21、22。中间膜 1 夹在第一、第二夹层玻璃构成部件 21、22 之间。在中间膜 1 的第一表面 1a 层叠有第一夹层玻璃构成部件 21。在中间膜 1 的与第一表面 1a 相反的第二表面 1b 层叠有第二夹层玻璃构成部件 22。在第二层 3 的外侧表面 3a 层叠有第一夹层玻璃构成部件 21。在第三层 4 的外侧表面 4a 层叠有第二夹层玻璃构成部件 22。

[0165] 如上所述,本发明的夹层玻璃具备第一夹层玻璃构成部件、第二夹层玻璃构成部件和夹在上述第一、第二夹层玻璃构成部件之间的中间膜,作为该中间膜,可使用本发明的夹层玻璃用中间膜。

[0166] 作为上述第一、第二夹层玻璃构成部件,可以举出:玻璃板及 PET(聚对苯二甲酸乙二醇酯)膜等。上述夹层玻璃不仅是在 2 张玻璃板之间夹入中间膜的夹层玻璃,而且也包括在玻璃板和 PET 膜等之间夹入中间膜的夹层玻璃。夹层玻璃为具备玻璃板的层叠体,优选使用至少一张玻璃板。

[0167] 作为上述玻璃板,可以举出:无机玻璃及有机玻璃。作为上述无机玻璃,可以举出:浮法平板玻璃、热线吸收平板玻璃、热线反射平板玻璃、抛光平板玻璃、压花平板玻璃、夹丝平板玻璃、夹线平板玻璃及绿色玻璃等。上述有机玻璃为替代无机玻璃的合成树脂玻璃。作为上述有机玻璃,可以举出聚碳酸酯板及聚(甲基)丙烯酸树脂板等。作为上述聚(甲基)丙烯酸树脂板,可以举出聚(甲基)丙烯酸甲酯板等。

[0168] 上述第一、第二夹层玻璃构成部件的厚度没有特别限定,优选在 1 ~ 5mm 的范围内。在上述夹层玻璃构成部件为玻璃板的情况下,该玻璃板的厚度优选在 1 ~ 5mm 的范围内。在上述夹层玻璃构成部件为 PET 膜的情况下,该 PET 膜的厚度优选在 0.03 ~ 0.5mm 的范围内。

[0169] 上述夹层玻璃的制造方法没有特别限定。例如在上述第一、第二夹层玻璃构成部件之间夹入上述中间膜,通过挤压辊、或放入橡胶袋中进行减压抽吸、或对残留在第一、第二夹层玻璃构成部件和中间膜之间的空气进行脱气。然后,在约 70 ~ 110℃ 下进行预粘接而得到层叠体。接着,将层叠体放入高压釜或进行压制,或在约 120 ~ 150℃ 及 1 ~ 1.5MPa 的压力下进行压接。如上所述,可以得到夹层玻璃。

[0170] 上述夹层玻璃可用于汽车、轨道车辆、飞机、船舶及建筑物等。夹层玻璃也可以用于这些用途以外的用途。上述中间膜优选为建筑用或车辆用的中间膜,更优选为车辆用的中间膜。上述夹层玻璃优选为建筑用或车辆用的夹层玻璃,更优选为车辆用的夹层玻璃。上述中间膜及上述夹层玻璃可优选用于使用电动机的电动汽车及内燃机和使用电动机的混合动力电动汽车。上述夹层玻璃可用于汽车的挡风玻璃、侧面玻璃、后面玻璃或车顶玻璃等。

[0171] 以下,举出实施例对本发明进一步详细地进行说明。本发明并不限定于以下的实施例。

[0172] 在实施例及比较例中,使用下述的聚乙烯醇缩丁醛树脂(聚乙烯醇缩醛树脂)。聚乙烯醇缩丁醛树脂的丁缩醛化度(缩醛化度)、乙酰化度及羟基含有率通过依据 ASTM D1396-92 的方法进行测定。另外,通过 JIS K6728“聚乙烯醇缩丁醛试验方法”进行测定的情况下,也显示与依据 ASTM D1396-92 的方法同样的数值。

[0173] (合成例 1)

[0174] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 a 的合成:

[0175] 将乙酰化度 0.5 摩尔%、丁缩醛化度 40 摩尔%、羟基含有率 59.5 摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛树脂(平均聚合度 3000)溶解于吡啶,相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 30 摩尔当量的醋酸酐,在 80℃ 的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶,将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥,由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 a(平均聚合度 3000)。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 a 的乙酰化度为 30.5 摩尔%、丁缩醛化度为 40 摩尔%、羟基含有率为 29.5 摩尔%。

[0176] (合成例 2)

[0177] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 b 的合成:

[0178] 将乙酰化度 0.5 摩尔%、丁缩醛化度 35 摩尔%、羟基含有率 64.5 摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛树脂(平均聚合度 3000)溶解于吡啶,相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 39.5 摩尔当量的醋酸酐,在 80℃ 的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶,将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥,由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 b(平均聚合度 3000)。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 b 的乙酰化度为 40 摩尔%、丁缩醛化度为 35 摩尔%、羟基含有率为 25 摩尔%。

[0179] (合成例 3)

[0180] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 c 的合成:

[0181] 将乙酰化度 0.5 摩尔%、丁缩醛化度 25 摩尔%、羟基含有率 74.5 摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛树脂(平均聚合度 3000)溶解于吡啶,相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 49.5 摩尔当量的醋酸酐,在 80℃ 的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶,将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥,由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 c(平均聚合度 3000)。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 c 的乙酰化度为 50 摩尔%、丁缩醛化度为 25 摩尔%、羟基含有率为 25 摩尔%。

[0182] (合成例 4)

[0183] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 d 的合成:

[0184] 在纯水 2910g 中加入聚合度 1700 的聚乙烯醇 190g 并进行加热使其溶解,将得到的溶液温度调节为 12℃,加入 35 重量 % 盐酸 201g 和正丁醛 134g,使聚乙烯醇缩丁醛树脂析出。然后,在温度 50℃ 下保持 4 小时,使反应结束。通过用过量的水进行清洗来洗去未反应的正丁醛,中和盐酸催化剂,除去盐后,使其干燥,得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 d。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 d 的乙酰化度为 1 摩尔 %、丁缩醛化度为 68.5 摩尔 %、羟基含有率为 30.5 摩尔 %。

[0185] (合成例 5)

[0186] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 e 的合成:

[0187] 在纯水 2890g 中加入聚合度 3000 的聚乙烯醇 191g 并进行加热使其溶解,将得到的溶液温度调节为 12℃,加入 35 重量 % 盐酸 201g 和正丁醛 150g,使聚乙烯醇缩丁醛树脂析出。然后,在温度 50℃ 下保持 5 小时,使反应结束。通过用过量的水进行清洗来洗去未反应的正丁醛,中和盐酸催化剂,除去盐后,使其干燥,得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 e。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 e 的乙酰化度为 12.8 摩尔 %、丁缩醛化度为 63.5 摩尔 %、羟基含有率为 23.7 摩尔 %。

[0188] (合成例 6)

[0189] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 f 的合成:

[0190] 将乙酰化度 13 摩尔 %、丁缩醛化度 59 摩尔 %、羟基含有率 28 摩尔 % 的聚乙烯醇缩丁醛树脂 (平均聚合度 3000) 溶解于吡啶,相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 22 摩尔当量的醋酸酐,在 80℃ 的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶,将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥,由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 f。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 f 的乙酰化度为 35 摩尔 %、丁缩醛化度为 59 摩尔 %、羟基含有率为 6 摩尔 %。

[0191] (合成例 7)

[0192] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 g 的合成:

[0193] 将乙酰化度 20 摩尔 %、丁缩醛化度 45 摩尔 %、羟基含有率 35 摩尔 % 的聚乙烯醇缩丁醛树脂 (平均聚合度 3000) 溶解于吡啶,相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 20 摩尔当量的醋酸酐,在 80℃ 的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶,将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥,由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 g。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 g 的乙酰化度为 40 摩尔 %、丁缩醛化度为 45 摩尔 %、羟基含有率为 15 摩尔 %。

[0194] (合成例 8)

[0195] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 h 的合成:

[0196] 将乙酰化度 20 摩尔 %、丁缩醛化度 58 摩尔 %、羟基含有率 22 摩尔 % 的聚乙烯醇缩丁醛树脂 (平均聚合度 2800) 和乙酰化度 20 摩尔 %、丁缩醛化度 58 摩尔 %、羟基含有率 22 摩尔 % 的聚乙烯醇缩丁醛树脂 (平均聚合度 4000) 的混合产品 (重量比 1:1) 溶解于吡啶,相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 15 摩尔当量的醋酸酐,在 80℃ 的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶,将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥,由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 h。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 h 的乙酰化度为 35 摩尔 %、丁缩醛化度为 58 摩尔 %、羟基含有率为 7 摩尔 %。绝对分子量 100 万以上的高分子量成分 X (聚乙烯醇缩丁醛树脂) 占得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂的比例为 19.6%。分子量 y 为 100 万以上的高分子量成分 Y (聚乙烯醇缩丁醛树脂) 占得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 Z 的比例为 23.1%。

[0197] (合成例 9)

[0198] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 i 的合成：

[0199] 将乙酰化度 20 摩尔 %、丁缩醛化度 26 摩尔 %、羟基含有率 54 摩尔 % 的聚乙烯醇缩丁醛树脂 (平均聚合度 3050) 溶解于吡啶, 相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 47 摩尔当量的醋酸酐, 在 80℃ 的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶, 将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥, 由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 i。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 i 的乙酰化度为 67 摩尔 %、丁缩醛化度为 26 摩尔 %、羟基含有率为 7 摩尔 %。

[0200] (合成例 10)

[0201] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 j 的合成：

[0202] 将乙酰化度 30 摩尔 %、丁缩醛化度 13 摩尔 %、羟基含有率 57 摩尔 % 的聚乙烯醇缩丁醛树脂 (平均聚合度 3050) 溶解于吡啶, 相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 50 摩尔当量的醋酸酐, 在 80℃ 的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶, 将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥, 由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 j。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 j 的乙酰化度为 80 摩尔 %、丁缩醛化度为 13 摩尔 %、羟基含有率为 7 摩尔 %。

[0203] (合成例 11)

[0204] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 k 的合成：

[0205] 将乙酰化度 20 摩尔 %、丁缩醛化度 58 摩尔 %、羟基含有率 22 摩尔 % 的聚乙烯醇缩丁醛树脂 (平均聚合度 3200) 溶解于吡啶, 相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 20 摩尔当量的醋酸酐, 在 80℃ 的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶, 将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥, 由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 k。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 k 的乙酰化度为 40 摩尔 %、丁缩醛化度为 58 摩尔 %、羟基含有率为 2 摩尔 %。

[0206] (合成例 12)

[0207] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 l 的合成：

[0208] 将乙酰化度 20 摩尔 %、丁缩醛化度 52 摩尔 %、羟基含有率 28 摩尔 % 的聚乙烯醇缩丁醛树脂 (平均聚合度 3200) 溶解于吡啶, 相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 12 摩尔当量的醋酸酐, 在 80℃ 的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶, 将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥, 由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 l。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 l 的乙酰化度为 32 摩尔 %、丁缩醛化度为 52 摩尔 %、羟基含有率为 16 摩尔 %。

[0209] (合成例 13)

[0210] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 m 的合成：

[0211] 将乙酰化度 20 摩尔 %、丁缩醛化度 50 摩尔 %、羟基含有率 30 摩尔 % 的聚乙烯醇缩丁醛树脂 (平均聚合度 3200) 溶解于吡啶, 相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 10.5 摩尔当量的醋酸酐, 在 80℃ 的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶, 将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥, 由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 m。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 m 的乙酰化度为 30.5 摩尔 %、丁缩醛化度为 50 摩尔 %、羟基含有率为 19.5 摩尔 %。

[0212] (合成例 14)

[0213] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 n 的合成：

[0214] 将乙酰化度 20 摩尔 %、丁缩醛化度 55 摩尔 %、羟基含有率 25 摩尔 % 的聚乙烯醇缩丁醛树脂 (平均聚合度 3200) 溶解于吡啶, 相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 10.5 摩

尔当量的醋酸酐,在 80℃的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶,将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥,由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 n。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 n 的乙酰化度为 30.5 摩尔 %、丁缩醛化度为 55 摩尔 %、羟基含有率为 14.5 摩尔 %。

[0215] (合成例 15)

[0216] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 q 的合成:

[0217] 将乙酰化度 10 摩尔 %、丁缩醛化度 65 摩尔 %、羟基含有率 25 摩尔 % 的聚乙烯醇缩丁醛树脂(平均聚合度 3000)溶解于吡啶,相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 20.5 摩尔当量的醋酸酐,在 80℃的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶,将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥,由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 q。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 q 的乙酰化度为 30.5 摩尔 %、丁缩醛化度为 65 摩尔 %、羟基含有率为 4.5 摩尔 %。

[0218] (合成例 16)

[0219] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 r 的合成:

[0220] 将乙酰化度 30 摩尔 %、丁缩醛化度 45 摩尔 %、羟基含有率 25 摩尔 % 的聚乙烯醇缩丁醛树脂(平均聚合度 3200)溶解于吡啶,相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 10 摩尔当量的醋酸酐,在 80℃的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶,将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥,由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 r。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 r 的乙酰化度为 40 摩尔 %、丁缩醛化度为 45 摩尔 %、羟基含有率为 15 摩尔 %。

[0221] (合成例 17)

[0222] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 t 的合成:

[0223] 将乙酰化度 20 摩尔 %、丁缩醛化度 50 摩尔 %、羟基含有率 30 摩尔 % 的聚乙烯醇缩丁醛树脂(平均聚合度 3200)溶解于吡啶,相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 20 摩尔当量的醋酸酐,在 80℃的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶,将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥,由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 t。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 t 的乙酰化度为 40 摩尔 %、丁缩醛化度为 50 摩尔 %、羟基含有率为 10 摩尔 %。

[0224] (合成例 18)

[0225] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 u 的合成:

[0226] 将乙酰化度 20 摩尔 %、丁缩醛化度 45 摩尔 %、羟基含有率 35 摩尔 % 的聚乙烯醇缩丁醛树脂(平均聚合度 3200)溶解于吡啶,相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 30.7 摩尔当量的醋酸酐,在 80℃的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶,将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥,由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 u。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 u 的乙酰化度为 50.7 摩尔 %、丁缩醛化度为 45 摩尔 %、羟基含有率为 4.3 摩尔 %。

[0227] (合成例 19)

[0228] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 v 的合成:

[0229] 将乙酰化度 30 摩尔 %、丁缩醛化度 33.5 摩尔 %、羟基含有率 36.5 摩尔 % 的聚乙烯醇缩丁醛树脂(平均聚合度 3200)溶解于吡啶,相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 20.2 摩尔当量的醋酸酐,在 80℃的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶,将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥,由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 v。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 v 的乙酰化度为 50.2 摩尔 %、丁缩醛化度为 33.5 摩尔 %、羟基含有率为 16.3 摩尔 %。

[0230] (合成例 20)

[0231] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 w 的合成：

[0232] 将乙酰化度 30 摩尔 %、丁缩醛化度 28.4 摩尔 %、羟基含有率 41.6 摩尔 % 的聚乙烯醇缩丁醛树脂（平均聚合度 3200）溶解于吡啶，相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 20.5 摩尔当量的醋酸酐，在 80℃ 的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶，将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥，由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 w。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 w 的乙酰化度为 50.5 摩尔 %、丁缩醛化度为 28.4 摩尔 %、羟基含有率为 21.1 摩尔 %。

[0233] （合成例 21）

[0234] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 x 的合成：

[0235] 将乙酰化度 30 摩尔 %、丁缩醛化度 35 摩尔 %、羟基含有率 35 摩尔 % 的聚乙烯醇缩丁醛树脂（平均聚合度 3200）溶解于吡啶，相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 30 摩尔当量的醋酸酐，在 80℃ 的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶，将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥，由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 x。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 x 的乙酰化度为 60 摩尔 %、丁缩醛化度为 35 摩尔 %、羟基含有率为 5 摩尔 %。

[0236] （合成例 22）

[0237] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 y 的合成：

[0238] 将乙酰化度 30 摩尔 %、丁缩醛化度 29.5 摩尔 %、羟基含有率 40.5 摩尔 % 的聚乙烯醇缩丁醛树脂（平均聚合度 3200）溶解于吡啶，相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 30 摩尔当量的醋酸酐，在 80℃ 的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶，将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥，由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 y。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 y 的乙酰化度为 60 摩尔 %、丁缩醛化度为 29.5 摩尔 %、羟基含有率为 10.5 摩尔 %。

[0239] （合成例 23）

[0240] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 z 的合成：

[0241] 将乙酰化度 30 摩尔 %、丁缩醛化度 24.3 摩尔 %、羟基含有率 45.7 摩尔 % 的聚乙烯醇缩丁醛树脂（平均聚合度 3200）溶解于吡啶，相对于溶解的聚乙烯醇缩丁醛树脂加入 30 摩尔当量的醋酸酐，在 80℃ 的环境下搅拌 120 分钟。除去吡啶，将聚乙烯醇缩丁醛树脂水洗并使其干燥，由此得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 z。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 z 的乙酰化度为 60 摩尔 %、丁缩醛化度为 24.3 摩尔 %、羟基含有率为 15.7 摩尔 %。

[0242] （合成例 24）

[0243] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 o 的合成：

[0244] 在纯水 3000g 中加入皂化度 98.2%、聚合度 1700 的聚乙烯醇 190g 并进行加热使其溶解，将得到的溶液温度调节为 12℃，加入 35 重量 % 盐酸 212g 和正丁醛 136g，使聚乙烯醇缩丁醛树脂析出。然后，在温度 50℃ 下保持 4 小时，使反应结束。通过用过量的水进行清洗来洗去未反应的正丁醛，中和盐酸催化剂，除去盐后，使其干燥，得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 o。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 o 的乙酰化度为 1.8 摩尔 %、丁缩醛化度为 68.5 摩尔 %、羟基含有率为 29.7 摩尔 %。

[0245] （合成例 25）

[0246] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 p 的合成：

[0247] 在纯水 3000g 中加入皂化度 98.8%、聚合度 1700 的聚乙烯醇 190g 并进行加热，将溶解的溶液温度调节为 12℃，加入 35 重量 % 盐酸 206g 和正丁醛 142g，使聚乙烯醇缩丁醛

树脂析出。然后,在温度 50℃下保持 4 小时,使反应结束。通过用过量的水进行清洗来洗去未反应的正丁醛,中和盐酸催化剂,除去盐后,使其干燥,得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 p。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 p 的乙酰化度为 1.2 摩尔 %、丁缩醛化度为 72.4 摩尔 %、羟基含有率为 26.4 摩尔 %。

[0248] (合成例 26)

[0249] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 s 的合成:

[0250] 在纯水 2910g 中加入聚合度 1700 的聚乙烯醇 190g 进行加热使其溶解,将得到的溶液温度调节为 12℃,加入 35 重量 % 盐酸 201g 和正丁醛 122g,使聚乙烯醇缩丁醛树脂析出。然后,在温度 50℃下保持 4 小时,使反应结束。通过用过量的水进行清洗来洗去未反应的正丁醛,中和盐酸催化剂,除去盐后,使其干燥,得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 s。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 s 的乙酰化度为 1 摩尔 %、丁缩醛化度为 62.5 摩尔 %、羟基含有率为 36.5 摩尔 %。

[0251] (合成例 27)

[0252] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 AA 的合成:

[0253] 在纯水 3000g 中加入皂化度 99.0%、聚合度 1700 的聚乙烯醇 190g 并进行加热使其溶解,将得到的溶液温度调节为 12℃,加入 35 重量 % 盐酸 212g 和正丁醛 124g,使聚乙烯醇缩丁醛树脂析出。然后,在温度 50℃下保持 4 小时,使反应结束。通过用过量的水进行清洗来洗去未反应的正丁醛,中和盐酸催化剂,除去盐后,使其干燥,得到聚乙烯醇缩丁醛树脂 AA。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 AA 的乙酰化度为 1.0 摩尔 %、丁缩醛化度为 62.5 摩尔 %、羟基含有率为 36.5 摩尔 %。

[0254] (合成例 28)

[0255] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 AB 的合成:

[0256] 用常法将皂化度 87.2%、聚合度 2300 的聚乙烯醇进行丁缩醛化,得到树脂 AB。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 AB 的乙酰化度为 12.8 摩尔 %、丁缩醛化度为 63.5 摩尔 %、羟基含有率为 23.7 摩尔 %。

[0257] (合成例 29)

[0258] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 AC 的合成:

[0259] 用常法将皂化度 70.5%、聚合度 2300 的聚乙烯醇进行丁缩醛化,得到树脂 AC。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 AC 的乙酰化度为 29.5 摩尔 %、丁缩醛化度为 34 摩尔 %、羟基含有率为 36.5 摩尔 %。

[0260] (合成例 30)

[0261] 聚乙烯醇缩丁醛树脂 AD 的合成:

[0262] 用常法将皂化度 70.5%、聚合度 2300 的聚乙烯醇进行丁缩醛化,得到树脂 AD。得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 AD 的乙酰化度为 29.5 摩尔 %、丁缩醛化度为 30.0 摩尔 %、羟基含有率为 40.5 摩尔 %。

[0263] (实施例 1)

[0264] (1) 中间膜的制作

[0265] 将得到的聚乙烯醇缩丁醛树脂 a(乙酰化度 30.5 摩尔 %) 100 重量份和作为增塑剂的三乙二醇二(2-乙基己酸酯) 50 重量份用混合辊充分地混炼,得到中间层用组合物。

[0266] 将聚乙烯醇缩丁醛树脂 d(乙酰化度 1 摩尔 %) 100 重量份和作为增塑剂的三乙二醇二 (2-乙基己酸酯) (3GO) 20 重量份充分地混炼, 得到保护层用组合物。

[0267] 将得到的中间层用组合物及保护层用组合物使用共挤出机进行成形, 制作具有保护层 B(厚度 0.35mm)/中间层 A(厚度 0.1mm)/保护层 B(厚度 0.35mm) 的层叠结构的多层中间膜(厚度 0.8mm)。

[0268] (2) 用于损失系数的测定的夹层玻璃的制作

[0269] 将得到的多层中间膜切成长 30mm×宽 320mm。接着, 在 2 张透明的浮法玻璃(长 25mm×宽 305mm×厚 2.0mm) 之间夹入多层中间膜, 用真空层压机在 90℃ 下保持 30 分钟, 进行真空压制, 得到层叠体。在层叠体中, 切下从玻璃露出的多层中间膜部分, 得到用于损失系数的测定的夹层玻璃。

[0270] (3) 用于发泡试验 A 及 B 的夹层玻璃的制作

[0271] 将得到的多层中间膜切断成长 30cm×宽 15cm 的大小, 在温度 23℃ 的环境下保管 10 小时。另外, 在得到的多层中间膜的两面形成有压花, 该压花的微观不平度十点高度为 30 μm。在切断的多层中间膜中, 在从多层中间膜的端部沿纵向分别向内侧 8cm 的位置和从多层中间膜的端部沿横方向分别向内侧 5cm 的位置的 4 个交点处制作直径 6mm 的通孔。

[0272] 在 2 张透明的浮法玻璃(长 30cm×宽 15cm×厚 2.5mm) 之间夹入具有通孔的多层中间膜, 得到层叠体。层叠体的外周缘通过热融合距端部幅宽 2cm 进行密封, 由此封住压花中残留的空气及通孔中残留的空气。通过将该层叠体在 135℃、压力 1.2MPa 的条件下压接 20 分钟, 将残留的空气溶入多层中间膜中, 得到用于发泡试验 A 及 B 的夹层玻璃。另外, 关于用于发泡试验 A 及 B 的夹层玻璃, 使用实施例 6~41 及比较例 2~4 的多层中间膜来制作。

[0273] (实施例 2~41 及比较例 1~4)

[0274] 将用于中间层 A 及保护层 B 的聚乙烯醇缩丁醛树脂的种类及含量、以及增塑剂的种类及含量如下述表 1~5 所示那样进行设定, 除此以外, 与实施例 1 同样地得到多层中间膜及夹层玻璃。另外, 在实施例 12、19 及 27 中, 将中间层 A 的厚度变更为 0.13mm, 将保护层 B 的各厚度变更为 0.375mm, 在实施例 13、20 及 28 中, 将中间层 A 的厚度变更为 0.08mm, 将保护层 B 的各厚度变更为 0.36mm。

[0275] (评价)

[0276] (1) 低温侧的 $\tan \delta$ 的峰温度、低温侧的 $\tan \delta$ 的峰最大值、及高温侧的 $\tan \delta$ 的峰最大值

[0277] 将得到的中间膜在 20℃ 的环境下保管 1 个月后, 将中间膜切成直径 8mm 的圆形, 使用粘弹性测定装置 (Rheometrics 公司制“ARES”) 利用剪切法在变形量 1.0% 及频率 1Hz 的条件下以升温速度 5℃/分钟进行动态粘弹性的温度分散测定, 由此测定低温侧的 $\tan \delta$ 的峰温度、低温侧的 $\tan \delta$ 的峰最大值、及高温侧的 $\tan \delta$ 的峰最大值。

[0278] (2) 损失系数

[0279] 将用于损失系数的测定的夹层玻璃在 20℃ 的环境下保管 1 个月。关于在 20℃ 的环境下保管 1 个月的夹层玻璃, 使用测定装置“SA-01”(Rion 公司制) 在 20℃ 的条件下通过中心振动法测定损失系数。对得到的损失系数的共振频率的 4 次模式 (3150Hz 附近) 下的损失系数 (20℃ 损失系数)。

[0280] 另外,关于在 20℃的环境下保管 1 个月的夹层玻璃,使用测定装置“SA-01”(Rion 公司制),在 30℃的条件下通过中心振动法测定损失系数。对得到的损失系数的共振频率的 6 次模式(6300Hz 附近)下的损失系数(30℃损失系数)进行评价。

[0281] (3) 发泡试验 A(发泡的状态)

[0282] 关于实施例 6~41 及比较例 2~4 的多层中间膜,制作 5 张用于发泡试验 A 的夹层玻璃,在 50℃的烤箱内放置 100 小时。在放置后的夹层玻璃中,肉眼俯视观察发泡的有无及发泡的大小,用下述的判定基准判定发泡的状态。

[0283] [利用发泡试验 A 的发泡状态判定基准]

[0284] 将 5 张夹层玻璃中产生的发泡模拟为椭圆,将该椭圆面积设为发泡面积。求出 5 张夹层玻璃中所观察到的椭圆面积的平均值,求出椭圆面积的平均值(发泡面积)相对于夹层玻璃的面积(30cm×15cm)的比例(百分率)。

[0285] ○○:5 张夹层玻璃中均未观察到发泡

[0286] ○:椭圆面积的平均值(发泡面积)的比例低于 5%

[0287] △:椭圆面积的平均值(发泡面积)的比例为 5% 以上且低于 10%

[0288] ×:椭圆面积的平均值(发泡面积)的比例为 10% 以上

[0289] (4) 发泡试验 B(发泡的状态)

[0290] 关于实施例 6~41 及比较例 2~4 的多层中间膜,制作 30 张用于发泡试验 B 的夹层玻璃,在 50℃的烤箱内放置 24 小时。在放置后的夹层玻璃中,确认肉眼观察到发泡的夹层玻璃的张数,用下述判定基准进行判定。

[0291] [利用发泡试验 B 的发泡状态判定基准]

[0292] ○○:肉眼观察到发泡的夹层玻璃为 5 张以下

[0293] ○:肉眼观察到发泡的夹层玻璃为 6 张以上且 10 张以下

[0294] △:肉眼观察到发泡的夹层玻璃为 11 张以上且 15 张以下

[0295] ×:肉眼观察到发泡的夹层玻璃为 16 张以上

[0296] (5) 利用试验法 A 测定的弹性模量 G'

[0297] 充分地混炼实施例 6~41 及比较例 2~4 的夹层玻璃用中间膜的中间层(第一层)中所含的各聚乙烯醇缩醛树脂(用于中间层的聚乙烯醇缩醛树脂)100 重量份和作为增塑剂的三乙二醇二(2-乙基己酸酯)(3GO)60 重量份,得到混炼物。将得到的混炼物用压制成型机进行压制成型,得到平均厚度为 0.35mm 的树脂膜 A。将得到的树脂膜 A 在 25℃及相对湿度 30%的条件下放置 2 小时。放置 2 小时后,使用 TAINSTRUMENTS 公司制的 ARES-G2,测定粘弹性。作为夹具,使用直径 8mm 的平行板。在以 3℃/分钟的降温速度使温度从 100℃降低至 -10℃的条件、及频率 1Hz 及变形 1%的条件下进行测定。在得到的测定结果中,将损耗角正切的峰温度设为玻璃化转变温度 T_g (℃)。另外,由得到的测定结果和玻璃化转变温度 T_g 读取 (T_g+30) ℃下的弹性模量 $G'(T_g+30)$ 的值和 (T_g+80) ℃下的弹性模量 $G'(T_g+80)$ 的值。另外,求出比 $(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))$ 。

[0298] (6) 利用试验法 B 的弹性模量 G' 的测定

[0299] 将实施例 6~41 及比较例 2~4 的夹层玻璃用中间膜在恒温恒湿室(湿度 30%(±3%)、温度 23℃)中保管 1 个月。保管 1 个月后立即剥离表面层、中间层和表面层,由此取出中间层。在 2 张聚对苯二甲酸乙二醇酯(PET)膜之间所配置的模板(长 2cm×宽

2cm×厚0.76mm)内放置剥离的中间层1g,在温度150℃、压力0kg/cm²下预热10分钟后,以80kg/cm²进行15分钟压制成型。在预先设定为20℃的手动压力机中配置压制成型的中间层,通过在10Mpa下压制10分钟来冷却。接着,从配置在2张PET膜之间的模板上剥离1张PET膜,在恒温恒湿室(湿度30%(±3%)、温度23℃)中保管24小时后,使用TA INSTRUMENTS公司制的ARES-G2测定粘弹性。作为夹具,使用直径8mm的平行板。在以3℃/分钟的降温速度使温度从100℃降低至-10℃的条件及频率1Hz及变形1%的条件下进行测定。在得到的测定结果中,将损耗角正切的峰温度设为玻璃化转变温度T_g(℃)。另外,由得到的测定结果和玻璃化转变温度T_g读取(T_g+30)℃下的弹性模量G'(T_g+30)的值和(T_g+80)℃下的弹性模量G'(T_g+80)的值。另外,求出比(G'(T_g+80)/G'(T_g+30))。

[0300] (7) 绝对分子量及分子量 y 的测定

[0301] (绝对分子量的测定)

[0302] 用于求出上述合成例8中记载的高分子量成分X、Y的比例的绝对分子量及聚苯乙烯换算分子量为从得到的多层中间膜剥离表面层和中间层并如下求出的值。

[0303] 为了测定绝对分子量,首先,将多层中间膜在恒温恒湿室(湿度30%(±3%)、温度23℃)中放置1个月。放置1个月后,从多层中间膜剥离表面层和中间层。使剥离的中间层溶解于四氢呋喃(THF),制备0.1重量%的溶液。将得到的溶液通过Gel Permeation Chromatography(GPC)装置(日立High-Tech公司制“RI:L2490、自动取样分析记录仪:L-2200、泵:L-2130、色谱柱恒温器:L-2350、柱:GL-A120-S和GL-A100MX-S的串联”)进行分析。另外,该GPC装置中连接有GPC用光散射检测器(VISCOTEK公司制“Model270(RALS+VISCO)”),可以通过各检测器进行色谱的分析。通过使用分析软件(OmniSEC)分析RI检测器及RALS检测器的色谱中聚乙烯醇缩醛树脂成分的峰,求出聚乙烯醇缩醛树脂在各溶出时间的绝对分子量。将聚乙烯醇缩醛树脂的绝对分子量为100万以上的区域的面积占用RI检测器检测的聚乙烯醇缩醛树脂的峰面积的比例用百分率(%)表示。

[0304] 色谱中各成分的峰满足下式。

[0305] $A_{RI} = c \times (dn/dc) \times K_{RI} \cdots$ 式(1)

[0306] $A_{RALS} = c \times M \times (dn/dc)^2 \times K_{RALS} \cdots$ 式(2)

[0307] 其中, c 为溶液中聚合物的浓度、 (dn/dc) 为折射率增量、 M 为绝对分子量、 K 为装置常数。

[0308] 作为具体的测定顺序,首先,使用 c 、 M 、及 (dn/dc) 已知的聚苯乙烯标准试样(VISCOTEK公司制PolyCAL(注册商标)TDS-PS-NB $M_w = 98390$ $dn/dc = 0.185$),制备0.1重量%的THF溶液。根据得到的聚苯乙烯溶液的GPC测定结果使用式(1)及(2)求出各检测器的装置常数 K 。

[0309] 接着,使剥离的中间层溶解于THF,制备THF溶液。根据得到的聚乙烯醇缩醛树脂溶液的GPC测定结果用式(1)及(2)求出聚乙烯醇缩醛树脂的绝对分子量 M 。

[0310] 但是,为了对中间层(含有聚乙烯醇缩醛树脂和增塑剂)进行分析,需要求出聚乙烯醇缩醛树脂溶液中聚乙烯醇缩醛树脂的浓度。聚乙烯醇缩醛树脂的浓度的求出方法由以下的增塑剂的含量测定结果计算。

[0311] 增塑剂的含量的测定:

[0312] 将增塑剂溶解于THF使得增塑剂的含量为10重量%、15重量%、20重量%、25重

量%、30重量%、35重量%、40重量%、45重量%及50重量%，制备增塑剂-THF溶液。对得到的增塑剂-THF溶液进行GPC测定，求出增塑剂的峰面积。相对于增塑剂的浓度描绘增塑剂的峰面积，得到近似直线。接着，对使中间层溶解于THF得到的THF溶液进行GPC测定，通过使用由增塑剂的峰面积模拟得到的近似直线，求出增塑剂的含量。

[0313] （分子量 y 的测定）

[0314] 与上述绝对分子量的测定方法同样地通过凝胶渗透色谱（GPC）测定聚苯乙烯换算分子量，由用RI检测器检测的峰面积（GPC的测定结果）中相当于分子量为100万以上的区域的面积比例算出分子量 y 为100万以上的高分子量成分 Y 占聚乙烯醇缩醛树脂的比例（%）。

[0315] 为了测定聚苯乙烯换算分子量，进行分子量已知的聚苯乙烯标准试样的GPC测定。作为聚苯乙烯标准试样（昭和电工公司制“Shodex Standard SM-105”、“Shodex Standard SH-75”），使用重均分子量580、1,260、2,960、5,000、10,100、21,000、28,500、76,600、196,000、630,000、1,130,000、2,190,000、3,150,000、3,900,000这14个试样。将相对于各个标准试样峰的峰顶表示的溶出时间描绘重均分子量而得到的近似直线用作标准曲线。从在恒温恒湿室（湿度30%（ $\pm$ 3%）、温度23℃）中放置1个月的多层中间膜中剥离表面层和中间层。使剥离的中间层溶解于四氢呋喃（THF），制备0.1重量%的溶液。利用GPC装置对得到的溶液进行分析，测定中间层中聚乙烯醇缩醛树脂的峰面积。接着，由中间层中聚乙烯醇缩醛树脂的溶出时间和标准曲线算出相当于中间层中的聚乙烯醇缩醛树脂的聚苯乙烯换算分子量为100万以上的区域的面积。以百分率（%）表示将相当于中间层中聚乙烯醇缩醛树脂的聚苯乙烯换算分子量为100万以上的区域的面积除以中间层中聚乙烯醇缩醛树脂的峰面积而得到的值，由此，算出上述分子量 y 为100万以上的高分子量成分 Y 占上述聚乙烯醇缩醛树脂的比例（%）。

[0316] 将结果示于下述表1～5。需要说明的是，在下述表1～5中，“3G0”表示三乙二醇二（2-乙基己酸酯），“DBA”表示己二酸二丁酯，“3GB”表示三乙二醇二丁酸酯。

[0317] [表1]

[0318]

			实施例 1	实施例 2	实施例 3	实施例 4	实施例 5	比较例 1
中间层 A	树脂	种类	a	b	c	f	g	e
		丁缩醛化度(mol%)	40	35	25	59	45	63.5
		乙酰化度(mol%)	30.5	40	50	35	40	12.8
		含量(重量份)	100	100	100	100	100	100
	增塑剂	种类	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
		含量(重量份)	50	45	40	40	40	60
保护层 B	树脂	种类	d	d	d	d	d	d
		丁缩醛化度(mol%)	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5
		乙酰化度(mol%)	1	1	1	1	1	1
		含量(重量份)	100	100	100	100	100	100
	增塑剂	种类	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
		含量(重量份)	20	20	20	38.5	38.5	38.5
膜构成			B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B
低温侧的 tanδ 峰温度 (℃)			-2.4	-3.2	-4	-2.8	-3.6	-1.8
低温侧的 tanδ 峰最大值			1.38	1.46	1.51	1.58	1.64	1.05
高温侧的 tanδ 峰最大值			0.56	0.59	0.55	0.52	0.51	0.54
20℃损失系数 3150Hz 附近			0.31	0.33	0.36	0.49	0.5	0.28
30℃损失系数 6300Hz 附近			0.12	0.14	0.16	0.17	0.18	0.09

[0319]

[表 2]

		实施例 6	实施例 7	实施例 8	实施例 9	实施例 10	实施例 11	实施例 12	实施例 13	实施例 14	实施例 15	实施例 16
中间层 A	种类	h	i	j	k	l	m	n	n	n	n	n
	丁缩醛化度 (mol%)	58	26	13	58	52	50	55	55	55	55	55
	乙酐化度 (mol%)	35	67	80	40	32	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5
	含量 (重量份)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
中间层 B	种类	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
	含量 (重量份)	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50
	种类	d	d	d	d	d	d	d	d	d	d	d
	丁缩醛化度 (mol%)	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	72.4	68.5
膜构成	乙酐化度 (mol%)	1	1	1	1	1	1	1	1	1.8	1.2	1
	含量 (重量份)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	种类	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
	含量 (重量份)	28	30	34	27	30	33	31	31	35	36	32.5
B/A/B		B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B
低温侧的 $\tan \delta$ 峰温度 (°C)		-1.7	-2.2	-2.7	-3.1	-2.9	-3.52	-4.12	-4.21	-4.88	-5.12	-4.65
低温侧的 $\tan \delta$ 峰最大值		1.66	1.64	1.59	1.74	1.58	1.57	1.74	1.62	1.64	1.62	1.67
高温侧的 $\tan \delta$ 峰最大值		0.55	0.56	0.55	0.56	0.56	0.55	0.51	0.53	0.56	0.58	0.54
20°C 损失系数 3150Hz 附近		0.53	0.52	0.51	0.56	0.49	0.49	0.55	0.5	0.51	0.5	0.52
30°C 损失系数 6300Hz 附近		0.18	0.17	0.17	0.2	0.15	0.16	0.19	0.17	0.17	0.16	0.17
发泡试验 A (发泡的状态)		○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
发泡试验 B (发泡的状态)		○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
试验法 A: 玻璃化转变温度 (Tg) (°C)		-2.51	-2.9	-3.2	-3.7	-3.5	-2.88	-4.67	-4.67	-4.67	-4.67	-4.67
试验法 A: G'(Tg+30)(Pa)		231500	223000	219000	212000	214500	234000	228500	228500	228500	228500	228500
试验法 A: G'(Tg+80)(Pa)		158000	154600	148800	143000	145000	159000	157900	157900	157900	157900	157900
试验法 A: G'(Tg+80)/G' (Tg+30)		0.68	0.69	0.68	0.67	0.68	0.68	0.69	0.69	0.69	0.69	0.69
试验法 B: 玻璃化转变温度 (Tg) (°C)		-4.72	-4.22	-6.2	-5.8	-5.41	-4.12	-4.53	-4.6	-5.12	-5.33	-5.02
试验法 B: G'(Tg+30)(Pa)		221500	216900	198500	201500	204300	225600	227500	227000	221300	220700	224300
试验法 B: G'(Tg+80)(Pa)		150400	148300	132700	132500	135400	152700	154300	156000	152800	150600	154200
试验法 B: G'(Tg+80)/G'(Tg+30)		0.68	0.68	0.67	0.66	0.66	0.68	0.68	0.69	0.69	0.68	0.69
高分子量成分 X 的比例 (%)		19.6	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
高分子量成分 Y 的比例 (%)		23.1	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—

[0320]

[表 3]

实施例 17		实施例 18	实施例 19	实施例 20	实施例 21	实施例 22	实施例 23	实施例 24	实施例 25	实施例 26	实施例 27
中间层 A	种类	q	r	r	r	r	r	t	u	v	v
	树脂	65	45	45	45	45	45	50	45	33.5	33.5
	丁缩醛化度 (mol%)	30.5	40	40	40	40	40	40	50.7	50.2	50.2
	乙酐化度 (mol%)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
中间层 B	含量 (重量份)	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
	种类	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50
	含量 (重量份)	d	d	d	d	d	d	d	d	d	d
	种类	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	62.5	68.5	68.5	68.5	68.5
中间层 C	丁缩醛化度 (mol%)	1	1	1	1	1.2	1	1	1	1	1
	乙酐化度 (mol%)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	含量 (重量份)	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
	种类	34	28	28	32	34	24	30	34	31	31
中间层 D	含量 (重量份)	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B
	种类	-3.77	-4.12	-4.65	-5.01	-4.22	-4.33	-3.54	-4.77	-4.21	-4.51
	tan δ 峰温度 (°C)	1.75	1.69	1.76	1.63	1.67	1.74	1.74	1.78	1.72	1.76
	tan δ 峰最大值	0.54	0.53	0.5	0.51	0.54	0.55	0.56	0.52	0.54	0.57
中间层 E	tan δ 峰最大值	0.56	0.52	0.55	0.5	0.51	0.55	0.56	0.57	0.55	0.56
	20°C 损失系数	0.2	0.17	0.2	0.16	0.16	0.19	0.2	0.21	0.19	0.2
	30°C 损失系数	0.2	0.17	0.2	0.16	0.16	0.19	0.2	0.21	0.19	0.2
	发泡试验 A (发泡的状态)	OO	OO	OO	OO	OO	OO	OO	OO	OO	OO
中间层 F	发泡试验 B (发泡的状态)	O	O	O	O	O	O	O	O	O	O
	试验法 A: 玻璃化转变温度 (Tg) (°C)	-6.43	-8.21	-8.21	-8.21	-8.21	-12.14	-5.77	-3.12	-5.68	-5.68
	试验法 A: G' (Tg+30)(Pa)	202700	210600	210600	210600	210600	200400	205300	229200	224500	224500
	试验法 A: G' (Tg+80)(Pa)	136000	145700	145700	145700	145700	134500	136900	152900	153900	153900
中间层 G	试验法 A: G' [(Tg+80)/G' (Tg+30)]	0.67	0.69	0.69	0.69	0.69	0.67	0.67	0.67	0.69	0.69
	试验法 B: 玻璃化转变温度 (Tg) (°C)	-4.11	-4.56	-4.83	-5.33	-4.56	-4.83	-4.1	-5.04	-4.51	-4.86
	试验法 B: G' (Tg+30)(Pa)	219600	224600	226000	221500	225300	225600	220100	208400	227400	226000
	试验法 B: G' (Tg+80)(Pa)	145800	152400	153200	153700	153000	149700	148000	135900	156100	155800
中间层 H	试验法 B: G' [(Tg+80)/G' (Tg+30)]	0.66	0.68	0.68	0.69	0.68	0.66	0.67	0.66	0.69	0.69
	高分子量成分 X 的比例 (%)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	高分子量成分 Y 的比例 (%)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	高分子量成分 Z 的比例 (%)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—

[0321]

[表 4]

		实施例 28	实施例 29	实施例 30	实施例 31	实施例 32	实施例 33	实施例 34	实施例 35	实施例 36	实施例 37	实施例 38
中间层 A	种类	v	v	v	w	x	y	y	y	y	y	z
	树脂	33.5	33.5	33.5	28.4	35	29.5	29.5	29.5	29.5	29.5	24.3
	丁缩醛化度 (mol%)	50.2	50.2	50.2	50.5	60	60	60	60	60	60	60
	乙缩醛化度 (mol%)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
中间层 B	含量 (重量份)	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
	种类	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50
	增塑剂	d	o	p	d	d	d	d	d	o	p	d
	丁缩醛化度 (mol%)	68.5	68.5	72.4	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	72.4	68.5
中间层 C	乙缩醛化度 (mol%)	1	1.8	1.2	1	1	1	1	1	1.8	1.2	1
	含量 (重量份)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	种类	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
	增塑剂	31	34	36	33	35	33	33	33	36	37.5	35
膜构成		B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B
低温侧的 tan δ 峰温度 (°C)		-4.77	-4.66	-5.24	-4.56	-3.88	-4.01	-4.23	-4.56	-4.22	-5.02	-4.65
低温侧的 tan δ 峰最大值		1.66	1.7	1.68	1.61	1.74	1.73	1.75	1.63	1.7	1.68	1.61
高温侧的 tan δ 峰最大值		0.54	0.56	0.58	0.55	0.54	0.55	0.51	0.53	0.57	0.58	0.57
20°C 损失系数 3150Hz 附近		0.51	0.52	0.52	0.5	0.55	0.54	0.56	0.5	0.52	0.51	0.49
30°C 损失系数 6300Hz 附近		0.18	0.18	0.18	0.17	0.2	0.2	0.2	0.18	0.18	0.18	0.17
发泡试验 A (发泡的状态)		OO	OO	OO	OO	OO	OO	OO	OO	OO	OO	OO
发泡试验 B (发泡的状态)		O	O	O	O	O	O	O	O	O	O	O
试验法 A: 玻璃化转变温度 (Tg) (°C)		-5.88	-5.68	-5.88	-3.84	-2.52	-3.86	-3.86	-3.86	-3.86	-3.86	-4.29
试验法 A: G'(Tg+30)(Pa)		224500	224500	224500	228400	231800	229800	229800	229800	229800	229800	227700
试验法 A: G'(Tg+80)(Pa)		153900	153900	153900	161000	154600	156000	156000	156000	156000	156000	160400
试验法 A: G'(Tg+80)/G' (Tg+30)		0.69	0.69	0.69	0.70	0.67	0.68	0.68	0.68	0.68	0.68	0.70
试验法 B: 玻璃化转变温度 (Tg) (°C)		-5.22	-5.05	-5.64	-5.37	-4.11	-4.5	-4.52	-4.88	-4.56	-5.49	-4.87
试验法 B: G'(Tg+30)(Pa)		224700	218000	209300	210400	213800	220500	220700	222200	218900	208100	223700
试验法 B: G'(Tg+80)(Pa)		156000	150800	143600	147600	140700	146800	147100	147900	148600	140600	157200
试验法 B: G'(Tg+80)/G'(Tg+30)		0.69	0.69	0.69	0.70	0.66	0.67	0.67	0.67	0.68	0.68	0.70
高分子量成分 X 的比例 (%)		—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
高分子量成分 Y 的比例 (%)		—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—

[0322] [表 5]

[0323]

			实施例 39	实施例 40	实施例 41	比较例 2	比较例 3	比较例 4
中间层 A	树脂	种类	r	r	r	AB	AC	AD
		丁缩醛化度(mol%)	45	45	45	63.5	34	30
		乙酰化度(mol%)	40	40	40	12.8	29.5	29.5
		含量(重量份)	100	100	100	100	100	100
	增塑剂的种类		3GB	DBA	3GH	3GO	3GO	3GO
	增塑剂的含量(重量份)		40	40	50	60	60	60
保护层 B	树脂	种类	AA	AA	d	d	d	d
		丁缩醛化度(mol%)	62.5	62.5	68.5	68.5	68.5	68.5
		乙酰化度(mol%)	1	1	1	1	1	1
		含量(重量份)	100	100	100	100	100	100
	增塑剂的种类		3GB	DBA	3GH	3GO	3GO	3GO
	增塑剂的含量(重量份)		30	30	26.5	37.5	37.5	37.5
膜构成			B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B
低温侧的 tanδ 峰温度 (℃)			-4.27	-4.02	-3.24	-2.43	-2.85	4.22
低温侧的 tanδ 峰最大值			1.82	1.75	1.73	1.03	1.05	1.07
高温侧的 tanδ 峰最大值			0.56	0.55	0.55	0.53	0.53	0.53
20℃损失系数 3150Hz 附近			0.55	0.54	0.53	0.28	0.29	0.22
30℃损失系数 6300Hz 附近			0.19	0.18	0.18	0.09	0.09	0.14
发泡试验 A(发泡的状态)			○○	○○	○○	×	×	×
发泡试验 B(发泡的状态)			○	○	○	×	×	×
试验法 A: 玻璃化转变温度(Tg) (℃)			-12.56	-11.88	10.45	1.8	1.99	7.21
试验法 A: G'(Tg+30)(Pa)			184500	187500	211600	236500	237700	265000
试验法 A: G'(Tg+80)(Pa)			123900	128400	143700	142000	143500	163500
试验法 A: G'(Tg+80)/G'(Tg+30)			0.67	0.68	0.68	0.60	0.60	0.62
试验法 B: 玻璃化转变温度(Tg) (℃)			-5.01	-4.76	-4.14	-3.2	-3.33	3.77
试验法 B: G'(Tg+30)(Pa)			224700	225600	229300	226000	227300	245700
试验法 B: G'(Tg+80)(Pa)			150000	150800	153600	131000	132500	146500
试验法 B: G'(Tg+80)/G'(Tg+30)			0.67	0.67	0.67	0.58	0.58	0.60

[0324]

高分子量成分 X 的比例(%)	-	-	-	-	-	-
高分子量成分 Y 的比例(%)	-	-	-	-	-	-

[0325] 如上述表 2 ~ 5 所示,在实施例及比较例的夹层玻璃用中间膜中,使用以上述表 2 ~ 5 的含量含有构成第一层的聚乙烯醇缩醛树脂和构成第一层的增塑剂的树脂膜 B (第一层),使增塑剂在多层中间膜的各层间移动后,测定该树脂膜 B (第一层) 的弹性模量 G' ,结果该树脂膜 B 之比 ($G' (Tg+80) / G' (Tg+30)$) 与含有 100 重量份的第一层中所含的聚乙烯醇缩醛树脂和 60 重量份 3G0 的树脂膜 A 之比 ($G' (Tg+80) / G' (Tg+30)$) 大致相同。

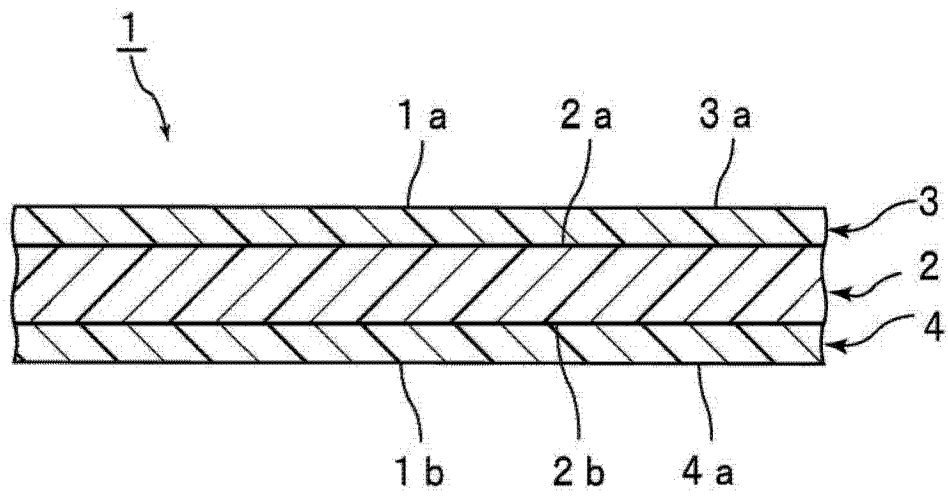


图 1

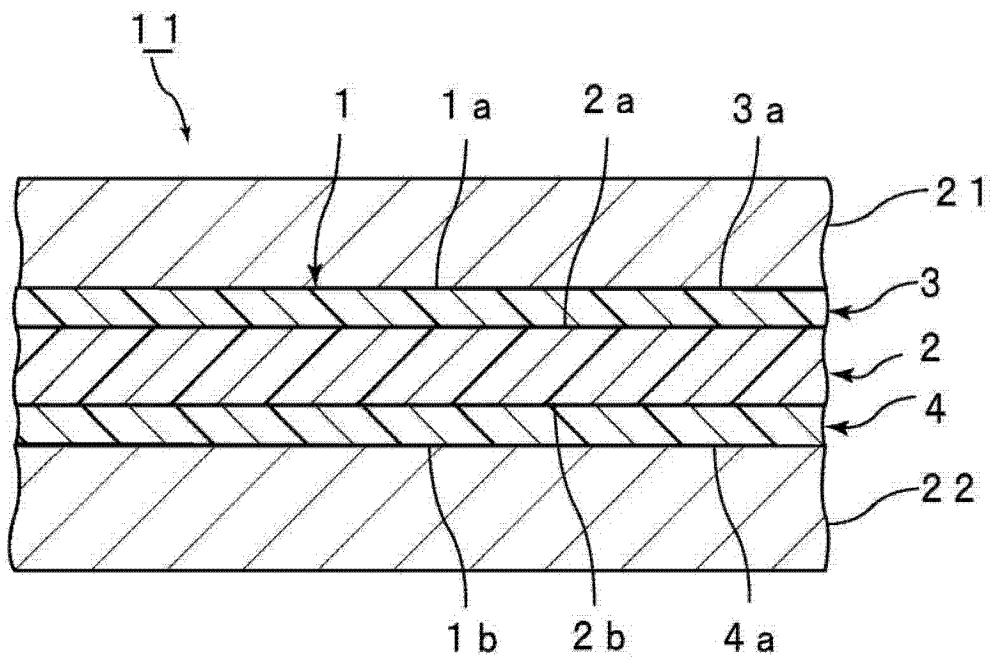


图 2

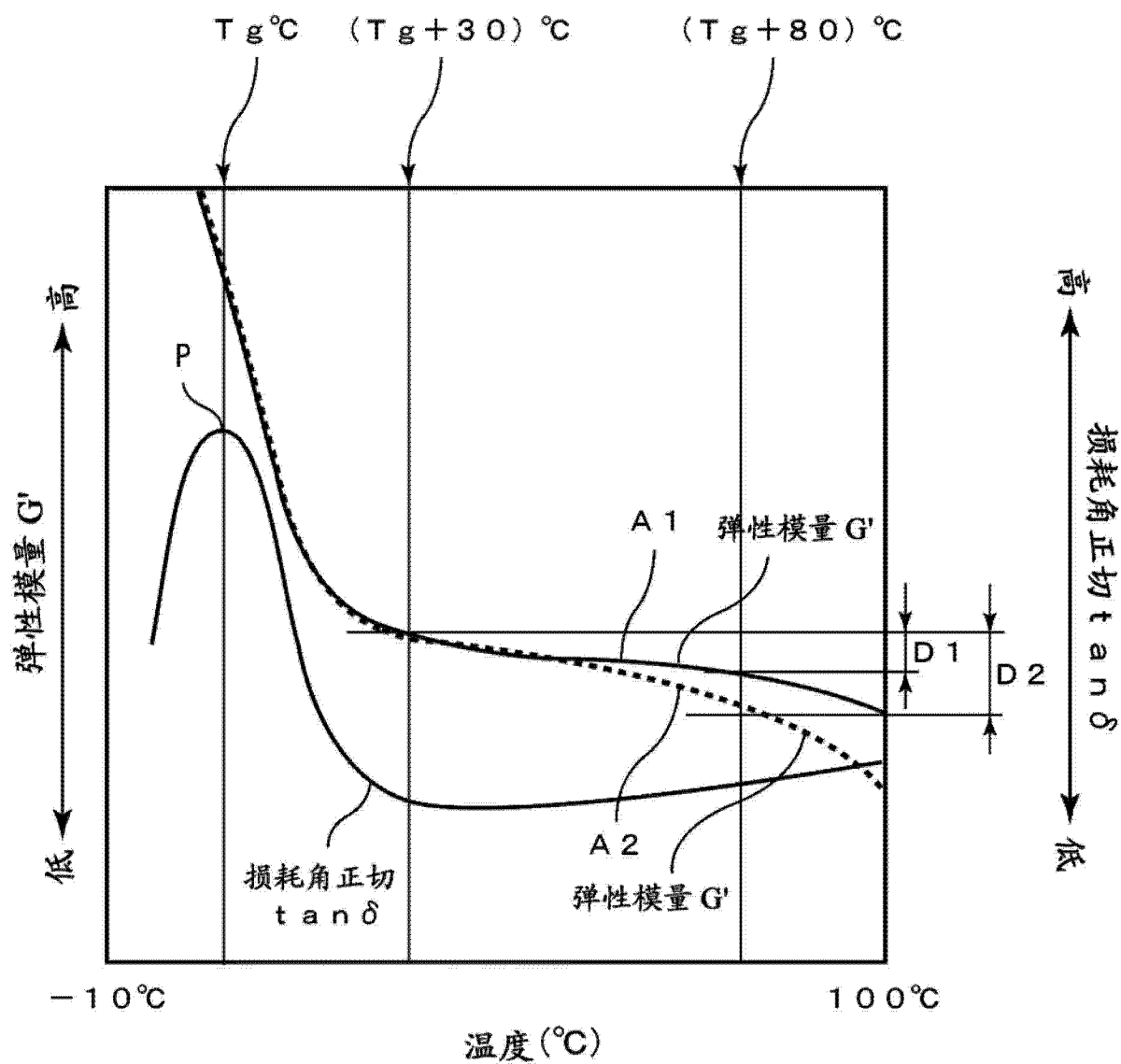


图 3