



# (12) 发明专利

(10) 授权公告号 CN 107108352 B

(45) 授权公告日 2021.01.05

(21) 申请号 201580061191.5

油井太我 矾上宏一郎

(22) 申请日 2015.11.10

(74) 专利代理机构 北京林达刘知识产权代理事

(65) 同一申请的已公布的文献号

务所(普通合伙) 11277

申请公布号 CN 107108352 A

代理人 刘新宇 李茂家

(43) 申请公布日 2017.08.29

(51) Int.Cl.

(30) 优先权数据

*C03C 27/12* (2006.01)

2014-228354 2014.11.10 JP

*B32B 25/08* (2006.01)

2014-246710 2014.12.05 JP

*E06B 3/66* (2006.01)

(85) PCT国际申请进入国家阶段日

(56) 对比文件

2017.05.10

JP H05270870 A, 1993.10.19

(86) PCT国际申请的申请数据

WO 2013105657 A1, 2013.07.18

PCT/JP2015/081664 2015.11.10

JP H0551243 A, 1993.03.02

(87) PCT国际申请的公布数据

JP 2000272937 A, 2000.10.03

W02016/076336 JA 2016.05.19

CN 102482147 A, 2012.05.30

(73) 专利权人 株式会社可乐丽

JP 2002514533 A, 2002.05.21

地址 日本冈山县

CN 85106415 A, 1987.03.18

审查员 陈志君

(72) 发明人 楠藤健 小林卓哉 大下晋弥

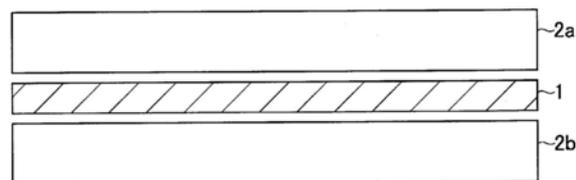
权利要求书2页 说明书46页 附图3页

## (54) 发明名称

夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃

## (57) 摘要

本发明的第一目的在于,提供隔音性和隔热性优异的夹层玻璃用中间膜和使用其的夹层玻璃。另外,本发明的第二目的在于,提供即使减薄也能够以高水平维持隔音性、耐气候性和耐热蠕变性的夹层玻璃用中间膜和使用其的夹层玻璃。本发明涉及一种夹层玻璃用中间膜,其包含至少1层含有热塑性弹性体的A层,在透明玻璃的厚度总计为4mm以下的2张透明玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃中,可见光透射率为70%以上、波长800~1100nm的红外线平均透射率为72%以下。



1. 一种夹层玻璃用中间膜,其包含至少1层含有热塑性弹性体的A层,  
在透明玻璃的厚度总计为4mm以下的2张透明玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃中,可见光透射率为70%以上、波长800~1100nm的红外线平均透射率为72%以下,  
热塑性弹性体具有硬链段嵌段和软链段嵌段,硬链段嵌段为聚苯乙烯嵌段或聚甲基丙烯酸甲酯嵌段,  
热塑性弹性体为具有包含芳香族乙烯基单体单元的聚合物嵌段和包含共轭二烯单体单元的聚合物嵌段的嵌段共聚物,或者  
热塑性弹性体为具有包含芳香族乙烯基单体单元的聚合物嵌段和包含共轭二烯单体单元的聚合物嵌段的嵌段共聚物的氢化物,其中,源自共轭二烯单体单元的碳碳间双键的残留量为2摩尔%以上。
2. 根据权利要求1所述的夹层玻璃用中间膜,其中,在透明玻璃的厚度总计为4mm以下的2张透明玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃中,波长800~1100nm的红外线平均透射率为70%以下。
3. 根据权利要求1或2所述的夹层玻璃用中间膜,其中,构成夹层玻璃用中间膜的层中的至少1层中含有隔热材料。
4. 根据权利要求1或2所述的夹层玻璃用中间膜,其中,在绿色玻璃的厚度总计为4mm以下的2张绿色玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃中,可见光透射率为70%以上、波长800~1100nm的红外线平均透射率为32%以下。
5. 根据权利要求1所述的夹层玻璃用中间膜,其中,热塑性弹性体为嵌段共聚物的氢化物,所述嵌段共聚物具有:包含芳香族乙烯基单体单元60摩尔%以上的聚合物嵌段a、和包含共轭二烯单体单元60摩尔%以上的聚合物嵌段b,  
聚合物嵌段b具有总计50摩尔%以上的异戊二烯单元和丁二烯单元作为共轭二烯单体单元,  
源自共轭二烯单体单元的碳碳间双键的残留量为2~40摩尔%。
6. 根据权利要求1或5所述的夹层玻璃用中间膜,其中,A层中含有抗氧化剂。
7. 根据权利要求6所述的夹层玻璃用中间膜,其中,抗氧化剂为选自由酚系抗氧化剂、磷系抗氧化剂和硫系抗氧化剂组成的组中的至少1种。
8. 根据权利要求1或5所述的夹层玻璃用中间膜,其中,对于A层,依据ASTM D4065-06在频率1000Hz的条件下进行动态粘弹性试验而测定的 $\tan\delta$ 达到最大的峰的温度为-10~30℃。
9. 根据权利要求1或5所述的夹层玻璃用中间膜,其中,对于A层,依据ASTM D4065-06在频率1000Hz的条件下进行动态粘弹性试验而测定的 $\tan\delta$ 的最大值为1.2以上。
10. 根据权利要求3所述的夹层玻璃用中间膜,其中,隔热材料包含选自由锡掺杂氧化铟、铟掺杂氧化锡、铟酸锌、金属掺杂氧化钨、酞菁化合物、铝掺杂氧化锌和六硼化镧组成的组中的至少1种。
11. 根据权利要求10所述的夹层玻璃用中间膜,其中,金属掺杂氧化钨为铯掺杂氧化钨。
12. 根据权利要求1所述的夹层玻璃用中间膜,其中,在A层的至少单面具有包含热塑性

树脂的B层。

13. 根据权利要求12所述的夹层玻璃用中间膜,其中,在A层的两面具有包含热塑性树脂的B层。

14. 根据权利要求12或13所述的夹层玻璃用中间膜,其中,B层中的增塑剂的含量相对于热塑性树脂100质量份为50质量份以下。

15. 根据权利要求12或13所述的夹层玻璃用中间膜,其中,B层中的依据ASTM D4065-06在频率1000Hz的条件下进行动态粘弹性试验而测定的 $\tan\delta$ 达到最大的峰的温度为30℃以上。

16. 根据权利要求12或13所述的夹层玻璃用中间膜,其中,B层中的热塑性树脂为聚乙烯醇缩醛树脂。

17. 根据权利要求12或13所述的夹层玻璃用中间膜,其中,B层中的热塑性树脂为离聚物树脂。

18. 根据权利要求12或13所述的夹层玻璃用中间膜,其中,A层或B层的至少一者中含有隔热材料。

19. 根据权利要求12或13所述的夹层玻璃用中间膜,其中,A层或B层的至少一者中含有紫外线吸收剂。

20. 根据权利要求19所述的夹层玻璃用中间膜,其中,紫外线吸收剂为选自自由苯并三唑系化合物、二苯甲酮系化合物、三嗪系化合物、受阻胺系化合物、苯甲酸酯系化合物、丙二酸酯系化合物和草酰苯胺系化合物组成的组中的至少1种。

21. 根据权利要求1或5所述的夹层玻璃用中间膜,其中,对于在玻璃的厚度总计为4mm以下的2张玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃,在照度180W/m<sup>2</sup>、黑板温度60℃、相对湿度50%的条件下进行曝露200小时的耐气候性试验时,在耐气候性试验的前后,针对夹层玻璃的JIS Z8781-4中的色差变化 $\Delta E^*_{ab}$ 为2以下。

22. 根据权利要求1或5所述的夹层玻璃用中间膜,其中,在玻璃的厚度总计为4mm以下的2张玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃的雾度为5以下。

23. 根据权利要求1或5所述的夹层玻璃用中间膜,其中,在玻璃的厚度总计为4mm以下的2张玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃中,以ASTM E90-09的条件测定的4000Hz下的声音透过损失为37dB以上。

24. 一种夹层玻璃,其是将权利要求1~23中任一项所述的夹层玻璃用中间膜配置于至少2张玻璃之间而成的。

## 夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃

### 技术领域

[0001] 本发明涉及隔音性和隔热性优异的夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃。另外,本发明涉及隔音性、耐气候性和耐热蠕变性优异的夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃。

### 背景技术

[0002] 以往,在窗户等要求隔音的场所对玻璃进行施工时,进行了如下方法:通过加厚玻璃的厚度,从而利用重量提高隔音效果,或者使用将2张以上的玻璃板与中间膜层叠而成的夹层玻璃来提高隔音效果。后者的使用中间膜的方法中,利用中间膜的衰减性能、和将振动能转化为热能的中间膜的性能,来提高玻璃的隔音性。

[0003] 作为改善隔音性的方法,提出了,用使聚苯乙烯与橡胶系树脂的共聚物增塑化而成的聚乙烯醇缩醛系树脂层叠而得到的中间膜(例如参照专利文献1)。

[0004] 另外,提出了,由聚乙烯醇缩丁醛形成的、具有一定的耐冲击性和隔音性的夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃(例如参照专利文献2)。

[0005] 进而近年来,从节能化的观点出发,汽车等的燃料消耗量改善越来越成为大的课题。作为用于改善汽车等的燃料消耗量的方法,可以举出:抑制空调使用的方法;使汽车轻量化的方法。

[0006] 作为抑制空调使用的方法,可以举出:将能够抑制汽车内的温度上升的隔热性高的夹层玻璃用于汽车的玻璃的方法。作为使汽车轻量化的方法,可以举出:使夹层玻璃本身轻量化的方法。

[0007] 使夹层玻璃本身轻量化时,必须使夹层玻璃薄。然而,现有的夹层玻璃中存在由于变薄而隔音性降低的问题。另外,想要对薄的夹层玻璃赋予隔热性时,还有如下倾向:夹层玻璃的色调受损,或者长时间使用夹层玻璃时容易引起着色。

[0008] 作为涉及用于制作具有隔热性的夹层玻璃的夹层玻璃用中间膜的现有技术,提出了,由1层或2层以上的层形成、且含有氧化钨和紫外线屏蔽剂的夹层玻璃用中间膜(例如参照专利文献3);在隔热层的两面具有紫外线吸收层、且特定频率下的电磁波屏蔽性为10db以下、雾度为1%、可见光透射率和日照透射率(屏蔽性)优异的玻璃用中间膜(例如参照专利文献4)。另外,还提出了,在特定频率(5000Hz)下隔音性和隔热性优异的夹层玻璃(例如参照专利文献5)。

[0009] 另外,作为隔音性优异、通过长期使用外观也不易变化的夹层玻璃用中间膜,提出了,包含聚乙烯醇缩醛的层与包含聚烯烃的层、且这些层间的粘接性优异的层叠体(例如参照专利文献6)。

[0010] 现有技术文献

[0011] 专利文献

[0012] 专利文献1:日本特开2007-91491号公报

[0013] 专利文献2:国际公开2005/018969号公报

[0014] 专利文献3:日本特开2013-224257号公报

- [0015] 专利文献4:国际公开2005/066094号公报  
[0016] 专利文献5:美国专利申请公开第2002-0150744号说明书  
[0017] 专利文献6:日本特开2012-6406号公报

## 发明内容

### [0018] 发明要解决的问题

[0019] 然而,任意现有技术中,使夹层玻璃薄时,均存在隔音性变得不充分的问题。因此,难以提供即使减薄也能够兼顾隔音性和隔热性的夹层玻璃。

[0020] 另一方面,作为用于改善汽车等的燃料消耗量的方法,可以举出使汽车轻量化的方法,作为使汽车轻量化的方法,考虑了使夹层玻璃轻量化的方法。使夹层玻璃本身轻量化时,必须使夹层玻璃薄。然而,现有的夹层玻璃中存在由于变薄而隔音性降低的问题。

[0021] 进而,为了夹层玻璃的轻量化,使夹层玻璃薄时,还存在夹层玻璃的耐热蠕变性降低的问题。此外,长期使用薄的夹层玻璃时,从耐气候性的观点出发,还存在夹层玻璃的色调会变化等问题。

[0022] 如以上,以往无法提供即使减薄也能够以高水平维持隔音性、耐气候性和耐热蠕变性的夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃。

[0023] 本发明是解决上述课题而作出的。即,本发明的第一目的在于,提供:即使减薄隔音性和隔热性也优异的夹层玻璃用中间膜和使用其的夹层玻璃。

[0024] 另外,本发明的第二目的在于,提供:即使减薄也能够以高水平维持隔音性、耐气候性和耐热蠕变性的夹层玻璃用中间膜和使用其的夹层玻璃。

### [0025] 用于解决问题的方案

[0026] 本发明人等为了解决上述课题进行了深入研究,结果发现:使用具有一定特定构成的夹层玻璃用中间膜的夹层玻璃的隔音性和隔热性优异。

[0027] 根据本发明,通过提供如下方法可以达成上述目的:

[0028] [1]一种夹层玻璃用中间膜,其包含至少1层含有热塑性弹性体的A层,

[0029] 在透明玻璃的厚度总计为4mm以下的2张透明玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃中,可见光透射率为70%以上、波长800~1100nm的红外线平均透射率为72%以下;

[0030] [2]根据[1]所述的夹层玻璃用中间膜,其中,在透明玻璃的厚度总计为4mm以下的2张透明玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃中,波长800~1100nm的红外线平均透射率为70%以下;

[0031] [3]根据[1]或[2]所述的夹层玻璃用中间膜,其中,构成夹层玻璃用中间膜的层中的至少1层中含有隔热材料;

[0032] [4]根据[1]~[3]中任一项所述的夹层玻璃用中间膜,其中,在绿色玻璃的厚度总计为4mm以下的2张绿色玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃中,可见光透射率为70%以上、波长800~1100nm的红外线平均透射率为32%以下;

[0033] [5]根据[1]~[4]中任一项所述的夹层玻璃用中间膜,其中,热塑性弹性体为嵌段共聚物的氢化物,所述嵌段共聚物具有:包含芳香族乙烯基单体单元60摩尔%以上的聚合物嵌段(a)、和包含共轭二烯单体单元60摩尔%以上的聚合物嵌段(b),

- [0034] 聚合物嵌段 (b) 具有总计50摩尔%以上的异戊二烯单元和丁二烯单元作为共轭二烯单体单元，
- [0035] 源自共轭二烯单体单元的碳碳间双键的残留量为2~40摩尔%；
- [0036] [6]根据[1]~[5]中任一项所述的夹层玻璃用中间膜，其中，A层中含有抗氧化剂；
- [0037] [7]根据[6]所述的夹层玻璃用中间膜，其中，抗氧化剂为选自由酚系抗氧化剂、磷系抗氧化剂和硫系抗氧化剂组成的组中的至少1种以上；
- [0038] [8]根据[1]~[7]中任一项所述的夹层玻璃用中间膜，其中，对于A层，依据ASTM D4065-06在频率1000Hz的条件下进行动态粘弹性试验而测定的 $\tan\delta$ 达到最大的峰的温度为-10~30℃；
- [0039] [9]根据[1]~[8]中任一项所述的夹层玻璃用中间膜，其中，对于A层，依据ASTM D4065-06在频率1000Hz的条件下进行动态粘弹性试验而测定的 $\tan\delta$ 的最大值为1.2以上；
- [0040] [10]根据[3]~[9]中任一项所述的夹层玻璃用中间膜，其中，隔热材料包含选自由锡掺杂氧化铟、铟掺杂氧化锡、铟酸锌、金属掺杂氧化钨、酞菁化合物、铝掺杂氧化锌和六硼化镧组成的组中的至少1种；
- [0041] [11]根据[10]所述的夹层玻璃用中间膜，其中，金属掺杂氧化钨为铯掺杂氧化钨；
- [0042] [12]根据[1]~[11]中任一项所述的夹层玻璃用中间膜，其中，在A层的至少单面具有包含热塑性树脂的B层；
- [0043] [13]根据[1]~[12]中任一项所述的夹层玻璃用中间膜，其中，在A层的两面具有包含热塑性树脂的B层；
- [0044] [14]根据[12]或[13]所述的夹层玻璃用中间膜，其中，B层中的增塑剂的含量相对于热塑性树脂100质量份为50质量份以下；
- [0045] [15]根据[12]~[14]中任一项所述的夹层玻璃用中间膜，其中，B层中的依据ASTM D4065-06在频率1000Hz的条件下进行动态粘弹性试验而测定的 $\tan\delta$ 达到最大的峰的温度为30℃以上；
- [0046] [16]根据[13]~[15]中任一项所述的夹层玻璃用中间膜，其中，B层中的热塑性树脂为聚乙烯醇缩醛树脂；
- [0047] [17]根据[12]~[15]中任一项所述的夹层玻璃用中间膜，其中，B层中的热塑性树脂为离聚物树脂；
- [0048] [18]根据[12]~[17]中任一项所述的夹层玻璃用中间膜，其中，A层或B层的至少一者中含有隔热材料；
- [0049] [19]根据[12]~[18]中任一项所述的夹层玻璃用中间膜，其中，A层或B层的至少一者中含有紫外线吸收剂；
- [0050] [20]根据[19]所述的夹层玻璃用中间膜，其中，紫外线吸收剂为选自由苯并三唑系化合物、二苯甲酮系化合物、三嗪系化合物、受阻胺系化合物、苯甲酸酯系化合物、丙二酸酯系化合物和草酰苯胺系化合物组成的组中的至少1种以上；
- [0051] [21]根据[1]~[20]中任一项所述的夹层玻璃用中间膜，其中，对于在玻璃的厚度总计为4mm以下的2张玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃，在照度180W/m<sup>2</sup>、黑板温度60℃、相对湿度50%的条件下进行曝露200小时的耐气候性试验时，在耐气候性试验的前后，针对夹层玻璃的JIS Z8781-4中的色差变化 $\Delta E^*ab$ 为2以下；

[0052] [22]根据[1]~[21]中任一项所述的夹层玻璃用中间膜,其中,在玻璃的厚度总计为4mm以下的2张玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃的雾度为5以下;

[0053] [23]根据[1]~[22]中任一项所述的夹层玻璃用中间膜,其中,在玻璃的厚度总计为4mm以下的2张玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃中,以ASTM E90-09的条件测定的4000Hz下的声音透过损失为37dB以上;

[0054] [24]根据[1]~[23]中任一项所述的夹层玻璃用中间膜,其中,热塑性弹性体具有硬链段嵌段和软链段嵌段;

[0055] [25]根据[24]所述的夹层玻璃用中间膜,其中,硬链段嵌段为聚苯乙烯嵌段或聚甲基丙烯酸甲酯嵌段;

[0056] [26]一种夹层玻璃,其是将[1]~[25]中任一项所述的夹层玻璃用中间膜配置于至少2张玻璃之间而成的。

[0057] 发明的效果

[0058] 根据本发明,作为第一效果,可以提供即使减薄隔音性和隔热性也优异的夹层玻璃用中间膜和使用其的夹层玻璃。

[0059] 另外,根据本发明,作为第二效果,可以提供即使减薄也能够以高水平维持隔音性、耐气候性和耐热蠕变性的夹层玻璃用中间膜和使用其的夹层玻璃。

## 附图说明

[0060] 图1为层叠体的构成的截面图的一例。

[0061] 图2为基于ASTM D4065-06在频率1000Hz的条件下进行动态粘弹性试验而测定的A层的 $\tan\delta$ 的测定结果的一例。

[0062] 图3为耐热蠕变性的评价中使用的夹层玻璃的示意图的一例。

[0063] 图4为在耐热蠕变性的评价中使用的夹层玻璃上胶合铁板时的示意图的一例。

[0064] 图5为用于评价耐热蠕变性而将胶合有铁板的夹层玻璃靠于支架时的示意图的一例。

## 具体实施方式

[0065] 以下,对本发明的实施方式进行说明,但本发明不限于本实施方式。

[0066] [A层]

[0067] 本发明的夹层玻璃用中间膜包含至少1层含有热塑性弹性体的A层。另外,在透明玻璃的厚度总计为4mm以下的2张透明玻璃之间配置本发明的夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃中,可见光透射率为70%以上、波长800~1100nm的红外线平均透射率为72%以下。

[0068] 如上所述,构成本发明的夹层玻璃用中间膜的层叠体中使用的A层包含含有特定热塑性弹性体的组合物。通过由含有特定热塑性弹性体的组合物构成A层,可以提高所得层叠体的隔音性。热塑性弹性体是指,加热时发生软化而显示塑性,冷却时发生固化而显示橡胶弹性的高分子化合物,与热塑性树脂相区别。

[0069] 本发明中使用的热塑性弹性体没有特别限定,例如可以举出:聚苯乙烯系弹性体(软链段;聚丁二烯、聚异戊二烯等/硬链段;聚苯乙烯)、聚烯烃系弹性体(软链段;乙烯丙烯橡胶/硬链段;聚丙烯)、聚氯乙烯系弹性体(软链段;聚氯乙烯/硬链段;聚氯乙烯)、聚氨酯

系弹性体(软链段;聚醚、聚酯/硬链段;聚氨酯)、聚酯系弹性体(软链段;聚醚/硬链段;聚酯)、聚酰胺系弹性体(软链段;聚丙二醇、聚四亚甲醚二醇或者聚酯系、聚醚系/硬链段;聚酰胺<尼龙树脂>)、聚丁二烯系弹性体(软链段;非晶性丁基橡胶/硬链段;间规1,2-聚丁二烯树脂)等热塑性弹性体。需要说明的是,上述热塑性弹性体可以单独使用,也可以组合使用2种以上。

[0070] 从利用适合的橡胶弹性而薄的夹层玻璃也能够兼顾成形性和隔音性的观点出发,本发明的热塑性弹性体中优选使用至少均具有各1个硬链段和软链段的嵌段聚合物(嵌段共聚物)。进而,从更进一步提高隔音性的观点出发,更优选使用硬链段为聚苯乙烯嵌段或聚甲基丙烯酸甲酯嵌段的热塑性弹性体。

[0071] 另外,本发明的热塑性弹性体中也可以使用天然橡胶、异戊二烯橡胶、丁二烯橡胶、氯丁橡胶、腈橡胶、丁基橡胶、乙烯丙烯橡胶、聚氨酯橡胶、硅酮橡胶、氯磺化聚乙烯橡胶、丙烯酸酯橡胶、氟橡胶等橡胶。

[0072] 从兼顾发挥隔音性的作为橡胶的功能和作为塑料的功能的观点出发,优选本发明的热塑性弹性体中的至少一种为具有芳香族乙烯基聚合物嵌段(以下,有时称为聚合物嵌段(a))和脂肪族不饱和烃聚合物嵌段(以下,有时称为聚合物嵌段(b))的嵌段共聚物,例如为聚苯乙烯系弹性体。

[0073] 作为热塑性弹性体,使用具有芳香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时,这些聚合物嵌段的键合形态没有特别限制,可以为直链状、支链状、放射状、或组合了它们的2种以上的键合形态,均可,优选为直链状的键合形态。作为热塑性弹性体,使用具有芳香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时,一部分也可以包含其他热塑性弹性体。

[0074] 这些聚合物嵌段的键合形态没有特别限制,可以为直链状、支链状、放射状、或组合了它们的2种以上的键合形态,均可,优选为直链状的键合形态。作为直链状的键合形态的例子,将包含芳香族乙烯基单体单元的聚合物嵌段(a)用a表示、将包含共轭二烯单体单元的聚合物嵌段(b)用b表示时,可以举出:a-b所示的二嵌段共聚物、a-b-a或b-a-b所示的三嵌段共聚物、a-b-a-b所示的四嵌段共聚物、a-b-a-b-a或b-a-b-a-b所示的五嵌段共聚物、(a-b)<sub>n</sub>X型共聚物(X表示偶联残基,n表示2以上的整数)、和它们的混合物。其中,优选二嵌段共聚物或三嵌段共聚物,作为三嵌段共聚物,更优选为a-b-a所示的三嵌段共聚物。

[0075] 嵌段共聚物中的芳香族乙烯基单体单元和脂肪族不饱和烃单体单元的总量相对于全部单体单元优选为80质量%以上、更优选为95质量%以上、进一步优选为98质量%以上。需要说明的是,前述嵌段共聚物中的脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的一部分或全部可以被氢化。

[0076] 作为热塑性弹性体,使用具有芳香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时,嵌段共聚物中的芳香族乙烯基单体单元的含量相对于嵌段共聚物的全部单体单元优选为5质量%以上、更优选为10质量%以上、进一步优选为12质量%以上。嵌段共聚物中的芳香族乙烯基单体单元的含量低于5质量%时,有层叠体的成形变困难的倾向。

[0077] 嵌段共聚物中的芳香族乙烯基单体单元的含量相对于嵌段共聚物的全部单体单元优选为40质量%以下、更优选为30质量%以下、进一步优选为25质量份以下、特别优选为

20质量%以下。嵌段共聚物中的芳香族乙烯基单体单元的含量超过40质量%时,有不易发挥作为热塑性弹性体的特性、隔音性降低的倾向。嵌段共聚物中的芳香族乙烯基单体单元的含量可以根据合成嵌段共聚物时的各单体的投入比、嵌段共聚物的<sup>1</sup>H-NMR等的测定结果而求出。本说明书的实施例中,根据<sup>1</sup>H-NMR的测定结果求出单体物质的比例,将各单体的比例以质量%记载。此处,混合多种前述嵌段共聚物时,嵌段共聚物中的芳香族乙烯基单体单元的含量以混合物的平均值来考虑。

[0078] 芳香族乙烯基聚合物嵌段中所含的芳香族乙烯基单体单元为60摩尔%以上、优选为70摩尔%以上、更优选为80摩尔%以上、进一步优选为90摩尔%以上。聚合物嵌段(a)中所含的芳香族乙烯基单体单元低于60摩尔%时,不易发挥作为热塑性弹性体的特性,成形性、强度降低。

[0079] 作为构成芳香族乙烯基聚合物嵌段的芳香族乙烯基单体,可以举出:苯乙烯;α-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、4-十二烷基苯乙烯等烷基苯乙烯;2-乙基-4-苄基苯乙烯、4-(苯基丁基)苯乙烯、1-乙烯基萘、2-乙烯基萘等芳基苯乙烯;卤代苯乙烯;烷氧基苯乙烯;苯甲酸乙烯酯等。它们可以单独使用,也可以组合使用2种以上。

[0080] 芳香族乙烯基聚合物嵌段中,在不有损本发明的效果的范围内,也可以共聚除芳香族乙烯基单体之外的单体。作为除芳香族乙烯基单体之外的单体的例子,可以举出: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、降冰片烯、乙炔等不饱和单体、丙烯酸甲酯、甲基丙烯酸甲酯等(甲基)丙烯酸酯系单体、丁二烯、1,3-戊二烯、1,3-己二烯、异戊二烯、环戊二烯、1,3-环己二烯、1,3-辛二烯、1,3-环辛二烯等共轭二烯单体等。除芳香族乙烯基单体之外的单体的含量相对于芳香族乙烯基聚合物嵌段中的全部单体单元优选低于40摩尔%、更优选低于30摩尔%、进一步优选低于20摩尔%、更优选低于10摩尔%。

[0081] 嵌段共聚物中的脂肪族不饱和烃单体单元(共轭二烯单体单元等)的含量相对于嵌段共聚物的全部单体单元优选为60质量%以上、更优选为70质量%以上、进一步优选为80质量%以上。嵌段共聚物中的脂肪族不饱和烃单体单元的含量低于60质量%时,有不易发挥作为热塑性弹性体的特性的倾向。

[0082] 嵌段共聚物中的脂肪族不饱和烃单体单元(共轭二烯单体单元等)的含量相对于嵌段共聚物的全部单体单元优选为95质量%以下、更优选为90质量%以下、进一步优选为88质量%以下。嵌段共聚物中的脂肪族不饱和烃单体单元的含量超过95质量%时,有层叠体的成形变困难的倾向。嵌段共聚物中的脂肪族不饱和烃单体单元的含量可以根据合成嵌段共聚物时的各单体的投入比、嵌段共聚物的<sup>1</sup>H-NMR等的测定结果而求出。本说明书的实施例中,根据<sup>1</sup>H-NMR的测定结果求出单体物质的比例,将各单体的比例以质量%记载。此处,混合多种前述嵌段共聚物时,嵌段共聚物中的芳香族乙烯基单体单元的含量以混合物的平均值来考虑。

[0083] 作为脂肪族不饱和烃聚合物嵌段中的脂肪族不饱和烃单体,优选使用共轭二烯单

体。共轭二烯单体的种类没有特别限定,例如可以举出:丁二烯、1,3-戊二烯、1,3-己二烯、异戊二烯、环戊二烯、1,3-环己二烯、1,3-辛二烯、1,3-环辛二烯等。这些共轭二烯单体可以单独使用,也可以组合使用2种以上。共轭二烯单体中,优选使用丁二烯或异戊二烯。另外,更优选组合使用丁二烯和异戊二烯。需要说明的是,作为构成脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的单体,也可以使用异丁烯代替上述共轭二烯单体。另外,也可以与共轭二烯单体一起使用异丁烯。该聚合物嵌段中的共轭二烯的含量优选60质量%以上、更优选70质量%以上、进一步优选80质量%以上、特别优选90质量%以上。共轭二烯单体单元的比例为上述范围内时,有容易发挥橡胶弹性等作为热塑性弹性体的特性、隔音性提高的倾向。

[0084] 另外,对于脂肪族不饱和烃聚合物嵌段中的脂肪族不饱和烃单体,作为除共轭二烯单体之外的单体的例子,可以举出: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、降冰片烯、乙炔等不饱和单体等芳基苯乙烯;卤代苯乙烯;烷氧基苯乙烯;乙烯基苯甲酸酯;丙烯酸甲酯、甲基丙烯酸甲酯等(甲基)丙烯酸酯系单体等芳香族乙烯基单体等。除共轭二烯单体之外的单体的含量相对于聚合物嵌段(b)中的全部单体单元优选低于40摩尔%、更优选为25摩尔%以下、进一步优选为10摩尔%以下。除共轭二烯单体之外的单体单元的比例相对于聚合物嵌段(b)中的全部单体单元为40摩尔%以上时,不易发挥橡胶弹性等作为热塑性弹性体的特性,隔音性降低。

[0085] 另外,本发明的夹层玻璃用中间膜优选的是,热塑性弹性体为嵌段共聚物的氢化物,所述嵌段共聚物具有:包含芳香族乙烯基单体单元60摩尔%以上的聚合物嵌段(a)、和包含共轭二烯单体单元60摩尔%以上的聚合物嵌段(b),聚合物嵌段(b)具有总计50摩尔%以上的异戊二烯单元和丁二烯单元作为共轭二烯单体单元,源自共轭二烯单体单元的碳碳间双键的残留量为2~40摩尔%。通过设为上述特征,可以形成隔音性、耐气候性和耐热蠕变性优异的夹层玻璃用中间膜。

[0086] 聚合物嵌段(b)中的异戊二烯单元和丁二烯单元的含量的总计为50摩尔%以上、优选为75摩尔%以上、更优选为90摩尔%以上。聚合物嵌段(b)中的异戊二烯单元和丁二烯单元的含量的总计为50摩尔%以上时,容易发挥橡胶弹性等作为热塑性弹性体的特性,隔音性提高。

[0087] 作为聚合物嵌段(b)中的异戊二烯单元和丁二烯单元的键合形态,对于异戊二烯单元,有1,4-键合、1,2-键合、3,4-键合,对于丁二烯单元,有1,4-键合和1,2-键合。异戊二烯单元的1,2-键合和3,4-键合的含量以及丁二烯单元的1,2-键合的含量总计相对于聚合物嵌段(b)中的异戊二烯单元和丁二烯单元的总量优选20摩尔%以上、更优选30摩尔%以上、进一步优选40摩尔%以上。另外,上述总计优选为100摩尔%以下、更优选为95摩尔%以下、进一步优选为90摩尔%以下。聚合物嵌段(b)中包含异戊二烯单元时,上述总计优选为85摩尔%以下、进一步优选为75摩尔%以下。为上述范围内时,有 $\tan\delta$ 的峰温度适合化、 $\tan\delta$ 的最大值变高的倾向。

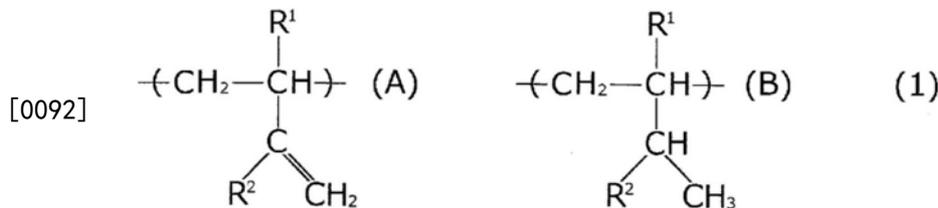
[0088] 作为聚合物嵌段(b)中的共轭二烯单元包含90摩尔%以上的异戊二烯单元时,异

戊二烯单元的1,2-键合和3,4-键合的含量以及丁二烯单元的1,2-键合的含量总计相对于异戊二烯单元和丁二烯单元的总量优选为30摩尔%以上、更优选为40摩尔%以上。另外,上述总计优选为75摩尔%以下、更优选为60摩尔%以下。为上述范围内时,有 $\tan\delta$ 的峰温度适合化、 $\tan\delta$ 的最大值变高的倾向。

[0089] 作为聚合物嵌段 (b) 中的共轭二烯包含90摩尔%以上的丁二烯单元时,异戊二烯单元的1,2-键合和3,4-键合的含量以及丁二烯单元的1,2-键合的含量总计相对于异戊二烯单元和丁二烯单元的总量,丁二烯单元的1,2-键合的含量优选为65摩尔%以上、更优选为80摩尔%以上。另外,上述含量优选为100摩尔%以下。为上述范围内时,有 $\tan\delta$ 的峰温度适合化、 $\tan\delta$ 的最大值变高的倾向。

[0090] 作为聚合物嵌段 (b) 中的共轭二烯,异戊二烯单元和丁二烯单元的总计含量为90摩尔%以上、异戊二烯单元与丁二烯单元的质量比为10/90~90/10时,异戊二烯单元的1,2-键合和3,4-键合的含量以及丁二烯单元的1,2-键合的含量总计相对于异戊二烯单元和丁二烯单元的总量,异戊二烯单元和丁二烯单元的1,2-键合和3,4-键合的含量总计优选为20摩尔%以上、更优选为40摩尔%以上、进一步优选为50摩尔%以上。另外,上述总计优选为95摩尔%以下、更优选为85摩尔%以下。为上述范围内时,有 $\tan\delta$ 的峰温度适合化、 $\tan\delta$ 的最大值变高的倾向。

[0091] 需要说明的是,异戊二烯单元中的1,2-键合和3,4-键合的含量总计以及丁二烯单元中的1,2-键合的含量在将嵌段共聚物中的聚合物嵌段 (b) 氢化(氢化)的前后没有变化。即,异戊二烯单元中的1,2-键合是指,下述化学式(1)的结构单元(A)和结构单元(B)中成为 $(R_1, R_2) = (CH^3, H)$ 的结构。另外,异戊二烯单元中的3,4-键合是指,下述化学式(1)的结构单元(A)和结构单元(B)中成为 $(R^1, R^2) = (H, CH_3)$ 的结构。进而,丁二烯单元中的1,2-键合是指,下述化学式(1)的结构单元(A)和结构单元(B)中成为 $(R^1, R^2) = (H, H)$ 的结构。



[0093] 本发明中,如上所述,从获得容易性、操作性、合成的容易性的观点出发,使用共轭二烯单体。而且,本发明中,从提高热稳定性等耐热蠕变性、色差变化等耐气候性的观点出发,使用将包含共轭二烯单体单元的聚合物嵌段 (b) 的一部分氢化(以下,有时简称为“氢化”)了的氢化物。通过将聚合物嵌段 (b) 氢化,可以调整源自共轭二烯单体单元的碳碳间双键的残留量。

[0094] 从耐气候性的观点出发,作为氢化率,优选为60摩尔%以上、优选为65摩尔%以上、更优选为70摩尔%以上、优选为75摩尔%以上。

[0095] 从提高耐热蠕变性的观点出发,源自共轭二烯单体单元的碳碳间双键的残留量优选为2摩尔%以上、更优选为3摩尔%以上、进一步优选为4摩尔%以上、特别优选为5摩尔%以上。源自共轭二烯单体单元的碳碳间双键的残留量为2摩尔%以上时,有夹层玻璃用中间膜的耐热蠕变性变高的倾向。

[0096] 从抑制长时间使用夹层玻璃时的色差变化等提高耐气候性的观点出发,源自共轭

二烯单体的碳碳间双键的残留量优选为40摩尔%以下、更优选为35摩尔%以下、进一步优选为30摩尔%以下、特别优选为25摩尔%以下。源自共轭二烯单体单元的碳碳间双键的残留量超过40摩尔%时,长时间使用夹层玻璃的情况下,有色差变化变大等耐气候性降低的倾向。氢化率和残留双键量可以测定氢化前后的碘值,根据其测定值而算出。

[0097] 嵌段共聚物的重均分子量从其力学特性、成形加工性的观点出发,优选为30000以上、更优选为50000以上。另外,嵌段共聚物的重均分子量优选为400000以下、更优选为300000以下。

[0098] 嵌段共聚物的重均分子量与数均分子量的比 ( $M_w/M_n$ ) 优选为1.0以上。另外,嵌段共聚物的重均分子量与数均分子量的比 ( $M_w/M_n$ ) 优选为2.0以下、更优选为1.5以下。此处,重均分子量是指,通过凝胶渗透色谱法 (GPC) 测定求出的聚苯乙烯换算的重均分子量,数均分子量是指,通过GPC测定求出的聚苯乙烯换算的数均分子量。

[0099] 嵌段共聚物的制造方法没有特别限定,例如可以通过阴离子聚合法、阳离子聚合法、自由基聚合法等来制造。例如阴离子聚合的情况下,具体而言,可以举出:

[0100] (i) 使用烷基锂化合物作为引发剂,使前述芳香族乙烯基单体、前述共轭二烯单体、接着前述芳香族乙烯基单体依次聚合的方法;

[0101] (ii) 使用烷基锂化合物作为引发剂,使前述芳香族乙烯基单体、前述共轭二烯单体依次聚合,接着加入偶联剂进行偶联的方法;

[0102] (iii) 使用二锂化合物作为引发剂,使前述共轭二烯单体、接着前述芳香族乙烯基单体依次聚合的方法等。

[0103] 作为脂肪族不饱和烃单体使用共轭二烯的情况下,上述阴离子聚合时,通过添加有机路易斯碱,可以增加热塑性弹性体的1,2-键含量和3,4-键含量,根据该有机路易斯碱的添加量,可以容易控制热塑性弹性体的1,2-键含量和3,4-键含量。

[0104] 作为该有机路易斯碱,例如可以举出:乙酸乙酯等酯;三乙胺、N,N,N',N'-四甲基亚乙基二胺 (TMEDA)、N-甲基吗啉等胺;吡啶等含氮杂环式芳香族化合物;二甲基乙酰胺等酰胺;二甲醚、二乙醚、四氢呋喃 (THF)、二氧杂环己烷等醚;乙二醇二甲醚、二乙二醇二甲醚等二醇醚;二甲基亚砷等亚砷;丙酮、甲乙酮等酮等。

[0105] 将未氢化的聚苯乙烯系弹性体供至氢化反应时,可以如下进行:使所得未氢化的聚苯乙烯系弹性体溶解在对氢化催化剂为非活性的溶剂中,或者,直接使用未氢化的聚苯乙烯系弹性体而不从反应液分离,在氢化催化剂的存在下,使其与氢气反应。

[0106] 作为氢化催化剂,例如可以举出:阮内镍;使Pt、Pd、Ru、Rh、Ni等金属负载于碳、氧化铝、硅藻土等单质而成的非均相系催化剂;由过渡金属化合物与烷基铝化合物、烷基锂化合物等的组合形成的齐格勒系催化剂;茂金属系催化剂等。氢化反应通常可以在氢气压力0.1MPa以上且20MPa以下、反应温度20℃以上且250℃以下、反应时间0.1小时以上且100小时以下的条件下进行。

[0107] 夹层玻璃用中间膜的动态粘弹性由ASTM D4065-06定义,例如可以利用机械光谱仪 (Mettler-Toledo International Inc. 制DMA/SDTA861e模型等) 来测定。测定可以在最大振幅0.1%的剪切应变下、以频率1000Hz的固定正弦波的剪切振动来实施。从由压缩成形得到的聚合物片切出的试验样品可以使用厚度1mm (且直径3~10mm:根据样品的状态来确定) 的具有圆柱状形状样品。测定可以以升温速度1℃/分钟在-20~60℃的范围内进行。

剪切储能模量 ( $G'$ ) 和剪切损耗模量 ( $G''$ ) 可以根据上述测定而直接求出。作为聚合物的减振性的指标的 ( $\tan\delta$ ) 可以根据上述  $G'$  和  $G''$  由 ASTM D4092-07 的定义而求出。特别是, 1000~5000Hz 的频率区域为人的听力灵敏度敏锐的区域, 因此可以使用 20°C、1000Hz 下的  $\tan\delta$  作为用于判断聚合物的隔音性的指标。从高的隔音性和高的减振性的观点出发, 优选具有高的  $\tan\delta$  值的夹层玻璃用中间膜。将基于上述测定方法得到的、A 层的  $\tan\delta$  的测定结果的一例示于图 2。

[0108] A 层的  $\tan\delta$  受到 A 层中使用的热塑性弹性体等高分子化合物的种类较大影响。另外, A 层的  $\tan\delta$  不会受到 A 层中所含的添加剂的种类、量较大影响, 但 A 层中含有增塑剂时, 有时受到增塑剂的种类、量影响。因此, 可以将对于 A 层用组合物 (是指由 A 层中使用的热塑性弹性体等高分子化合物、增塑剂和其他添加剂形成的组合物) 测定的  $\tan\delta$  作为 A 层的  $\tan\delta$  进行评价。另外, A 层的  $\tan\delta$  不会如增塑剂那样受到 A 层中所含的除增塑剂之外的添加剂的种类、量较大影响, 因此, 将对于 A 层主成分 (是指 A 层中使用的热塑性弹性体等高分子化合物, A 层中含有增塑剂时, 是指由 A 层中含有的热塑性弹性体等高分子化合物和增塑剂形成的组合物) 测定的  $\tan\delta$  也有时作为 A 层的  $\tan\delta$  进行评价。评价 B 层的  $\tan\delta$  的情况也同样。

[0109] 含有热塑性弹性体的 A 层的  $\tan\delta$  可以通过依据 ASTM D4065-06 在频率 1000Hz 的条件下进行动态粘弹性试验来测定。A 层中,  $\tan\delta$  (频率 1000Hz) 达到最大的峰的温度 (示出  $\tan\delta$  的最大值的峰顶的温度) 优选为 -10°C 以上、更优选为 -5°C 以上、进一步优选为 0°C 以上。A 层中,  $\tan\delta$  (频率 1000Hz) 达到最大的峰低于 -10°C 时, 有在作为夹层玻璃使用的温度区域、特别是高温区域中不易发挥隔音性的倾向。另外, 优选 A 层主成分、热塑性弹性体的  $\tan\delta$  也满足上述范围。

[0110] 含有热塑性弹性体的 A 层中,  $\tan\delta$  (频率 1000Hz) 达到最大的峰温度优选为 30°C 以下、更优选为 29°C 以下、进一步优选为 28°C 以下。A 层中,  $\tan\delta$  (频率 1000Hz) 达到最大的峰超过 30°C 时, 有在作为夹层玻璃使用的温度区域、特别是低温区域中不易发挥隔音性的倾向。另外, 优选 A 层主成分、热塑性弹性体的  $\tan\delta$  也满足上述范围。

[0111] 含有热塑性弹性体的 A 层中, 依据 ASTM D4065-06 在频率 1000Hz 的条件下进行动态粘弹性试验而测定的至少一个  $\tan\delta$  的峰的高度、即  $\tan\delta$  (频率 1000Hz) 的最大值优选为 1.2 以上、更优选为 1.3 以上、进一步优选为 1.4 以上、特别优选为 1.5 以上、进一步优选为 1.55 以上、最优选为 1.6 以上。上述条件下的  $\tan\delta$  的峰的高度、即  $\tan\delta$  (频率 1000Hz) 的最大值为 1.2 以上时, 有所得夹层玻璃用中间膜的隔音性提高的倾向, 特别是薄的夹层玻璃中有隔音性提高的倾向。另外, 优选 A 层主成分、热塑性弹性体的  $\tan\delta$  也满足上述范围。

[0112] 同样地, 含有热塑性弹性体的 A 层的  $\tan\delta$  可以通过依据 JIS K 7244-10 在频率 1Hz 的条件下进行复数剪切粘度试验来测定。A 层中,  $\tan\delta$  (频率 1Hz) 达到最大的峰温度优选为 -40°C 以上、更优选为 -30°C 以上、进一步优选为 -25°C 以上。A 层中,  $\tan\delta$  (频率 1Hz) 达到最大的峰 (示出最大值的峰顶的温度) 低于 -40°C 时, 有在作为夹层玻璃使用的温度区域、特别是高温区域中不易发挥隔音性的倾向。另外, 优选 A 层主成分、热塑性弹性体的  $\tan\delta$  也满足上述范围。

[0113] 含有热塑性弹性体的 A 层中,  $\tan\delta$  (频率 1Hz) 达到最大的峰温度优选为 30°C 以下、更优选为 10°C 以下、进一步优选为 0°C 以下。A 层中,  $\tan\delta$  (频率 1Hz) 达到最大的峰超过 30°C 时, 有在作为夹层玻璃使用的温度区域、特别是低温区域中不易发挥隔音性的倾向。另外,

优选A层主成分、热塑性弹性体的 $\tan\delta$ 也满足上述范围。

[0114] 含有热塑性弹性体的A层中,依据JIS K 7244-10在频率1Hz的条件下进行复数剪切粘度试验而测定的至少一个 $\tan\delta$ 的峰的高度、即 $\tan\delta$ (频率1Hz)的最大值优选为1.3以上、更优选为1.5以上、更优选为1.6以上、进一步优选为1.7以上。上述条件下的 $\tan\delta$ 的峰的高度、即 $\tan\delta$ (频率1Hz)的最大值低于1.3时,有夹层玻璃用中间膜的隔音性变低的倾向,特别是在薄的夹层玻璃中有隔音性变低的倾向。另外,优选A层主成分、热塑性弹性体的 $\tan\delta$ 也满足上述范围。

[0115] 需要说明的是,在频率1000Hz的条件下测定的 $\tan\delta$ 达到最大的峰温度( $T_{1000\text{Hz}}$ )与在频率1Hz的条件下测定的 $\tan\delta$ 达到最大的峰温度( $T_{1\text{Hz}}$ )之间, $T_{1\text{Hz}} = (0.92 \sim 0.94) \times T_{1000\text{Hz}} - (21 \sim 22)$ 的关系大致成立。另外,对于在频率1000Hz的条件下测定的 $\tan\delta$ 的最大值,在频率1000Hz的条件下测定的峰温度为 $0 \sim 20^\circ\text{C}$ 时,与在频率1Hz下测定的 $\tan\delta$ 的最大值相比,显示大致低 $0.3 \sim 0.6$ 左右的值。

[0116] 从更进一步提高隔音性的观点出发,A层中使用的热塑性弹性体的玻璃化转变温度优选为 $10^\circ\text{C}$ 以下、更优选为 $-5^\circ\text{C}$ 以下。上述热塑性弹性体的玻璃化转变温度的下限没有特别限定,热塑性弹性体的玻璃化转变温度优选为 $-50^\circ\text{C}$ 以上、优选为 $-40^\circ\text{C}$ 以上。玻璃化转变温度的测定方法也可以使用差示扫描量热测定(DSC)。

[0117] A层的膜厚优选为 $20\mu\text{m}$ 以上、更优选为 $30\mu\text{m}$ 以上、进一步优选为 $50\mu\text{m}$ 以上。A层的膜厚低于 $20\mu\text{m}$ 时,有隔音性降低的倾向。构成本发明的夹层玻璃用中间膜的层叠体中包含多个A层时,优选A层整体的厚度满足上述条件。

[0118] A层的膜厚优选为 $400\mu\text{m}$ 以下、更优选为 $300\mu\text{m}$ 以下、进一步优选为 $250\mu\text{m}$ 以下、特别优选为 $200\mu\text{m}$ 以下。A层的膜厚超过 $400\mu\text{m}$ 时,有制作夹层玻璃时耐贯通性等机械特性恶化,作为夹层玻璃的安全性能受损的倾向。构成本发明的夹层玻璃用中间膜的层叠体中包含多个A层时,优选A层整体的厚度满足上述条件。

[0119] 在A层中,也可以根据需要添加作为除热塑性弹性体之外的成分的其他树脂成分、进而隔热材料(例如,具有红外线吸收能力的无机隔热性微粒或有机隔热性材料)、紫外线吸收剂、抗氧化剂、光稳定剂、粘接力调节剂、防粘连剂、颜料、染料等各种添加剂。

[0120] (隔热材料)

[0121] A层中可以含有隔热材料(例如具有红外线吸收能力的无机隔热性微粒或有机隔热性材料)。

[0122] 对于本发明的夹层玻璃用中间膜,在透明玻璃的厚度总计为 $4\text{mm}$ 以下的2张透明玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃中,波长 $800 \sim 1100\text{nm}$ 的红外线平均透射率为 $72\%$ 以下。另外,本发明的夹层玻璃用中间膜优选的是,在绿色玻璃的厚度总计为 $4\text{mm}$ 以下的2张绿色玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃中,波长 $800 \sim 1100\text{nm}$ 的红外线平均透射率为 $32\%$ 以下。作为得到这样的夹层玻璃用中间膜的方法,可以举出:使夹层玻璃用中间膜含有隔热材料;将具有隔热功能的层进行层叠等。隔热材料可以均包含于A层、后述的B层、C层。可以仅包含于任意一层,也可以包含于多层。含有隔热材料时,从抑制光学不均的观点出发,优选在至少一个A层中含有。

[0123] 作为隔热材料,可以举出:锡掺杂氧化铟(ITO)、锑掺杂氧化锡(ATO)、铝掺杂氧化锌(AZO)、通式 $M_m\text{W}_n\text{O}_n$ (M表示金属元素,m为 $0.01$ 以上且 $1.0$ 以下,n为 $2.2$ 以上且 $3.0$ 以下)所示

的金属掺杂氧化钨、铋酸锌 ( $\text{ZnSb}_2\text{O}_5$ )、六硼化镧等无机隔热性微粒、酞菁化合物 (NIOBP)、萘酞菁化合物、具有Anthracocyanine骨架的化合物等有机隔热性材料。其中,从红外线吸收效率的观点出发,优选ITO、ATO、金属元素复合氧化钨,特别优选金属掺杂氧化钨(金属元素复合氧化钨等)。作为前述金属元素复合氧化钨中的M所示的金属元素,例如可以举出Cs、Tl、Rb、Na、K等,特别优选由Cs构成的CWO(铯掺杂氧化钨)。从隔热性的观点出发,上述m优选为0.2以上、更优选为0.3以上。另外,上述m优选为0.5以下、更优选为0.4以下。从红外线吸收性能的观点出发,优选为酞菁化合物配位于镍(II)而成的化合物。

[0124] 需要说明的是,从透明性的观点出发,无机隔热性微粒的平均粒径优选100nm以下、更优选50nm以下。需要说明的是,此处所谓无机隔热性微粒的平均粒径是指,利用激光衍射装置测定的粒径。

[0125] A层中含有隔热材料时,隔热材料的红外线吸收能力与红外线通过A层时的光路长(m)和A层中的隔热材料的浓度( $\text{g}/\text{m}^3$ )成比例。因此,隔热材料的红外线吸收能力与A层中的隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )成比例。

[0126] A层中作为隔热材料使用金属掺杂氧化钨(铯掺杂氧化钨)时,隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为0.10以上、更优选为0.15以上、进一步优选为0.20以上。A层中的隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )低于0.10时,有不易得到充分的隔热效果的倾向。A层中作为隔热材料使用金属掺杂氧化钨(铯掺杂氧化钨)时,隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为1.00以下、更优选为0.70以下、进一步优选为0.50以下。A层中的隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )超过1.00时,形成夹层玻璃的情况下,有如下倾向:可见光线透射率降低,或雾度恶化,或耐气候性降低,或色差变化增大。

[0127] A层中作为隔热材料使用锡掺杂氧化钨时,隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为0.50以上、更优选为1.00以上、进一步优选为1.50以上、特别优选为2.25以上、最优选为3.00以上。A层中作为隔热材料使用锡掺杂氧化钨时的、隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为15.00以下、更优选为10.50以下、进一步优选为7.50以下。

[0128] A层中作为隔热材料使用铋掺杂氧化锡时,隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为1.00以上、更优选为1.50以上、进一步优选为2.00以上。A层中作为隔热材料使用铋掺杂氧化锡时的、隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为10.00以下、更优选为7.00以下、进一步优选为5.00以下。

[0129] A层中作为隔热材料使用酞菁化合物时,隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为0.010以上、更优选为0.015以上、进一步优选为0.020以上。A层中作为隔热材料使用酞菁化合物时的、隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为0.100以下、更优选为0.070以下、进一步优选为0.050以下。

[0130] A层中作为隔热材料使用铝掺杂氧化锌时,隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为1.00以上、更优选为1.50以上、进一步优选为2.00以上。A层中作为隔热材料使用铝掺杂氧化锌时的、隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为10.00以下、更优选为7.00以下、进一步优选为5.00以下。

[0131] A层中作为隔热材料使用铋酸锌时,隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为1.00以上、更优选为1.50以上、进一步优选为2.00以上。A层中作为隔热材料使用铋酸锌时的、隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为10.00以下、更优选为7.00以下、进一步优选为5.00以下。

[0132] A层中作为隔热材料使用六硼化镧时,隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为0.02以上、更优选为0.03以上、进一步优选为0.04以上。A层中作为隔热材料使用六硼化镧时的、隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为0.20以下、更优选为0.14以下、进一步优选为0.10以下。

[0133] 本发明的夹层玻璃用中间膜优选的是,A层中含有隔热材料。另外,优选构成夹层玻璃用中间膜的至少一层中包含紫外线吸收剂,特别优选后述的B层的至少一层中含有至少1种的紫外线吸收剂。通过将夹层玻璃用中间膜制成上述构成,例如,使A层为内层、B层为外层时,保护A层的热塑性弹性体免受紫外线,并且可以提高夹层玻璃用中间膜的隔热性,也可以抑制光学不均。

[0134] 本发明的夹层玻璃用中间膜中,优选的是,A层中含有苯并三唑系化合物、二苯甲酮系化合物、三嗪系化合物、苯甲酸酯系化合物、丙二酸酯系化合物、或草酰苯胺系化合物等紫外线吸收剂。通过A层中含有上述紫外线吸收剂,可以保护A层中所含的热塑性弹性体免受紫外线。因此,形成夹层玻璃时,可以防止雾度的恶化、耐气候性的降低,或者抑制色差变化。

[0135] 本发明中能够使用的紫外线吸收剂没有特别限定,例如可以举出:2-(5-甲基-2-羟基苯基)苯并三唑、2-[2-羟基-3,5-双( $\alpha,\alpha'$ -二甲基苄基)苯基]-2H-苯并三唑、2-(3,5-二叔丁基-2-羟基苯基)苯并三唑、2-(5-氯-2-苯并三唑基)-6-叔丁基-对甲酚、2-(3-叔丁基-5-甲基-2-羟基苯基)-5-氯苯并三唑、2-(3,5-二叔丁基-5-甲基-2-羟基苯基)-5-氯苯并三唑、2-(3,5-二叔戊基-2-羟基苯基)苯并三唑或2-(2'-羟基-5'-叔辛基苯基)苯并三唑等苯并三唑系紫外线吸收剂、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、或4-(3-(3,5-二叔丁基-4-羟基苯基)丙酰氧基)-1-(2-(3-(3,5-二叔丁基-4-羟基苯基)丙酰氧基)乙基)-2,2,6,6-四甲基哌啶等受阻胺系紫外线吸收剂、2,4-二叔丁基苯基-3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲酸酯、或十六烷基-3,5-二叔丁基-4-羟基苯甲酸酯等苯甲酸酯系紫外线吸收剂等。此外,可以举出:三嗪系化合物、二苯甲酮系化合物、丙二酸酯化合物、或草酰苯胺化合物等。

[0136] 作为上述三嗪系化合物,例如可以举出:6-(4-羟基-3,5-二叔丁基苯胺基)-2,4-双-辛硫基-1,3,5-三嗪、6-(4-羟基-3,5-二甲基苯胺基)-2,4-双-辛硫基-1,3,5-三嗪、6-(4-羟基-3-甲基-5-叔丁基苯胺基)-2,4-双-辛硫基-1,3,5-三嗪、或2-辛硫基-4,6-双-(3,5-二叔丁基-4-氧苯胺基)-1,3,5-三嗪等。需要说明的是,本说明书中,以三嗪系化合物相当于紫外线吸收剂而不相当于抗氧化剂来处理。

[0137] 作为上述二苯甲酮系化合物,例如可以举出:2-羟基-4-甲氧基二苯甲酮、2,2'-二羟基-4-甲氧基二苯甲酮、2-羟基-4-甲氧基-2-羧基二苯甲酮、2-羟基-4-正辛氧基二苯甲酮等。

[0138] 作为上述丙二酸酯化合物,例如可以举出:2-(对甲氧基苄叉基)丙二酸二甲酯、四乙基-2,2-(1,4-亚苯基二甲叉基)双丙二酸酯、2-(对甲氧基苄叉基)-双(1,2,2,6,6-五甲基-4-哌啶基)丙二酸酯等。

[0139] 作为上述丙二酸酯化合物的市售品,例如可以举出:Hostavin B-CAP、Hostavin PR-25、Hostavin PR-31(均为Clariant公司制)。

[0140] 作为上述草酰苯胺化合物,例如可以举出:N-(2-乙基苯基)-N'-(2-乙氧基-5-叔

丁基苯基) 乙二酰胺、N-(2-乙基苯基)-N'-(2-乙氧基-苯基) 乙二酰胺、2-乙基-2'-乙氧基-氧苯胺(Clariant公司制“SanduvorVSU”)等氮原子上具有取代的芳基等的乙二酰胺类等。

[0141] A层中的紫外线吸收剂的面密度优选为 $0.1\text{g}/\text{m}^2$ 以上、更优选为 $0.2\text{g}/\text{m}^2$ 以上、进一步优选为 $0.5\text{g}/\text{m}^2$ 以上。A层中的紫外线吸收剂的面密度低于 $0.1\text{g}/\text{m}^2$ 时,形成夹层玻璃时,有雾度恶化、或耐气候性降低、或色差变化增大的倾向。

[0142] A层中的紫外线吸收剂的面密度优选为 $10\text{g}/\text{m}^2$ 以下、更优选为 $9\text{g}/\text{m}^2$ 以下、进一步优选为 $8\text{g}/\text{m}^2$ 以下。A层中的紫外线吸收剂的面密度超过 $10\text{g}/\text{m}^2$ 时,形成夹层玻璃时,有可见光透射率降低、或雾度恶化、或耐气候性降低、或色差变化增大的倾向。

[0143] 紫外线吸收剂的添加量相对于A层中含有的热塑性弹性体,以质量基准计,优选为10ppm以上、更优选为100ppm以上。添加量小于10ppm时,有时不易发挥充分的效果。需要说明的是,紫外线吸收剂也可以组合2种以上使用。

[0144] 紫外线吸收剂的添加量相对于A层中含有的热塑性弹性体,以质量基准计,优选为50000ppm以下、更优选为10000ppm以下。即使使添加量大于50000ppm,也无法期望有显著的效果。

[0145] 本发明的夹层玻璃用中间膜中,优选的是,A层中含有酚系抗氧化剂、磷系抗氧化剂、或硫系抗氧化剂等抗氧化剂。其中优选酚系抗氧化剂,酚系抗氧化剂中,特别优选烷基取代酚系抗氧化剂。

[0146] 作为酚系抗氧化剂的例子,可以举出:丙烯酸2-叔丁基-6-(3-叔丁基-2-羟基-5-甲基苄基)-4-甲基苯酯、丙烯酸2,4-二叔戊基-6-(1-(3,5-二叔戊基-2-羟基苄基)乙基)苯酯等丙烯酸酯系化合物、2,6-二叔丁基-4-甲基苯酚、2,6-二叔丁基-4-乙基苯酚、十八烷基-3-(3,5-)二叔丁基-4-羟基苄基)丙酸酯、2,2'-亚甲基-双(4-甲基-6-叔丁基苯酚)、4,4'-丁叉基-双(4-甲基-6-叔丁基苯酚)、4,4'-丁叉基-双(6-叔丁基-间甲酚)、4,4'-硫代双(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(4-叔丁基-3-羟基-2,6-二甲基苄基)-1,3,5-三嗪-2,4,6-(1H,3H,5H)-三酮、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'-羟基苄基)丙酸酯)甲烷、或三乙二醇双(3-(3-叔丁基-4-羟基-5-甲基苄基)丙酸酯)等烷基取代苯酚系化合物等。

[0147] 作为磷系抗氧化剂,例如可以举出:亚磷酸三苯酯、亚磷酸二苯基异癸酯、亚磷酸苯基二异癸酯、三(壬基苄基)亚磷酸酯、三(二壬基苄基)亚磷酸酯、三(2-叔丁基-4-甲基苄基)亚磷酸酯、三(环己基苄基)亚磷酸酯、三(2,4-二叔丁基苄基)磷酸酯、2,2-亚甲基双(4,6-二叔丁基苄基)辛基亚磷酸酯、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、或10-癸氧基-9,10-二氢-9-氧杂-10-磷杂菲等单亚磷酸酯系化合物、4,4'-丁叉基-双(3-甲基-6-叔丁基苄基-二-十三烷基亚磷酸酯)、4,4'-异丙叉基-双(苄基-二-烷基(C12以上、C15以下)亚磷酸酯)、4,4'-异丙叉基-双(二苄基单烷基(C12以上、C15以下)亚磷酸酯)、1,1,3-三(2-甲基-4-二-十三烷基亚磷酸酯-5-叔丁基苄基)丁烷、或四(2,4-二叔丁基苄基)-4,4'-亚联苄基亚磷酸酯等二亚磷酸酯系化合物等。其中优选单亚磷酸酯系化合物。

[0148] 作为硫系抗氧化剂,例如可以举出:二月桂基3,3'-硫代二丙酸酯、二硬脂基3,3'-

硫代二丙酸酯、月桂基硬脂基3,3'-硫代二丙酸酯、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。

[0149] 抗氧化剂可以单独使用,或者组合2种以上使用。A层中的抗氧化剂的面密度优选为 $0.1\text{g}/\text{m}^2$ 以上、更优选为 $0.2$ 以上、进一步优选为 $0.5$ 以上。A层中的抗氧化剂的面密度低于 $0.1\text{g}/\text{m}^2$ 时,A层容易被氧化,长时间使用夹层玻璃时,有色差变化变大等耐气候性降低的倾向。

[0150] A层中的抗氧化剂的面密度优选为 $2.5\text{g}/\text{m}^2$ 以下、更优选为 $1.5$ 以下、进一步优选为 $2.0$ 以下。A层中的抗氧化剂的面密度超过 $2.5\text{g}/\text{m}^2$ 时,有A层的色调受损、或夹层玻璃的雾度降低的倾向。

[0151] 抗氧化剂的配混量相对于A层中的热塑性弹性体100质量份优选为 $0.001$ 质量份以上、更优选为 $0.01$ 质量份以上。抗氧化剂的量小于 $0.001$ 质量份时,有时不易发挥充分的效果。

[0152] 抗氧化剂可以单独使用,或者组合2种以上使用。抗氧化剂的配混量相对于热塑性弹性体100质量份优选为5质量份以下、更优选为4质量份以下、进一步优选为3质量份以下。即使使抗氧化剂的量大于5质量份也无法期望有显著的效果。

[0153] 作为光稳定剂,可以举出:受阻胺系光稳定剂,例如,株式会社ADEKA制“ADK STAB LA-57(商品名)”、Ciba Specialty Chemicals株式会社制“Tinuvin-622SF(商品名)”(琥珀酸二甲酯与4-羟基-2,2,6,6-四甲基-1-哌啶乙醇的聚合物)等。光稳定剂的配混量相对于A层中含有的热塑性弹性体100质量份优选为 $0.01$ 质量份以上、更优选为 $0.05$ 质量份以上。光稳定剂的量小于 $0.01$ 质量份时,有时不易发挥充分的效果。另外,光稳定剂的含量优选10质量份以下、更优选5质量份以下。即使使光稳定剂的量大于10质量份,也无法期望有显著的效果。A层中,光稳定剂的面密度优选为 $0.05\text{g}/\text{m}^2$ 以上、更优选为 $0.5\text{g}/\text{m}^2$ 以上。另外,该面密度优选为 $70\text{g}/\text{m}^2$ 以下、更优选为 $30\text{g}/\text{m}^2$ 以下。

[0154] (粘接力调节剂)

[0155] 为了调整A层与B层的粘接力,也可以在A层或B层中添加粘接力调节剂。作为粘接力调节剂,可以举出:具有羧基、羧基的衍生物基团、环氧基、硼酸基、硼酸基的衍生物基团、烷氧基、或烷氧基的衍生物基团等粘接性官能团的聚烯烃类。

[0156] 特别是,B层中使用聚乙烯醇缩醛树脂时,通过向A层中添加具有粘接性官能团的聚烯烃类,进行A层与B层的共挤出成形,从而可以适合地调整A层与B层的粘接力。具有粘接性官能团的聚烯烃类的添加量相对于A层的热塑性弹性体100质量份优选为20质量份以下、更优选为15质量份以下、进一步优选为10质量份以下。具有粘接性官能团的聚烯烃类的添加量超过20质量份时,制作夹层玻璃时,有时雾度恶化。作为具有粘接性官能团的聚烯烃类,从获得的容易性、粘接性调整的容易性和雾度调整的容易性的观点出发,上述聚烯烃类中,含有羧基的聚丙烯是适合的。

[0157] A层中包含除热塑性弹性体之外的成分时,含有构成A层的热塑性弹性体的组合物中,热塑性弹性体成分优选为60质量%以上、更优选为70质量%以上、进一步优选为80质量%以上、特别优选为90质量%以上、最优选为95质量%以上。A层中的热塑性弹性体低于60质量%时,有作为热塑性弹性体的特性不易发挥、或光学特性受损的倾向。

[0158] 本发明中,热塑性弹性体在夹层玻璃用中间膜中优选包含5质量%以上、更优选包

含10质量%以上、进一步优选包含13质量%以上。夹层玻璃用中间膜中的热塑性弹性体低于5质量%时,有隔音性降低的倾向。

[0159] [B层]

[0160] 本发明的夹层玻璃用中间膜优选在A层的至少单面具有包含热塑性树脂的B层,更优选在A层的两面具有包含热塑性树脂的B层。热塑性树脂是指,加热时发生软化而显示塑性、冷却时发生固化的高分子化合物,与热塑性弹性体相区别。通过B层含有热塑性树脂,隔音性容易提高。

[0161] 热塑性树脂的种类没有特别限定,例如可以举出:聚乙烯醇缩醛树脂、离聚物、乙烯·乙酸乙烯酯共聚物、氯乙烯树脂、聚氨酯树脂、或聚酰胺树脂等。通过将上述那样的热塑性树脂用于B层,可以提高夹层玻璃用中间膜的耐气候性、强度,或者调整与玻璃的粘接性。从与玻璃的粘接性、透明性的观点出发,热塑性树脂优选聚乙烯醇缩醛树脂、离聚物。

[0162] 构成本发明的夹层玻璃用中间膜的层叠体的B层只要满足上述条件就没有特别限定,例如,作为夹层玻璃用中间膜而实用化时,从能够制作破损时的玻璃飞散性低的安全玻璃等观点出发,优选制成由含有聚乙烯醇缩醛树脂的组合物形成的聚乙烯醇缩醛树脂层。

[0163] 将含有聚乙烯醇缩醛树脂等热塑性树脂的组合物作为B层使用时,B层优选包含聚乙烯醇缩醛树脂等热塑性树脂40质量%以上、更优选包含50质量%以上、进一步优选包含60质量%以上、特别优选包含80质量%以上、更进一步优选包含90质量%以上,也可以仅由聚乙烯醇缩醛树脂等热塑性树脂构成B层。聚乙烯醇缩醛树脂等热塑性树脂在B层中的含有率小于40质量%时,有时与玻璃的粘接性降低。

[0164] (聚乙烯醇缩醛树脂)

[0165] 作为聚乙烯醇缩醛树脂,优选平均缩醛化度40摩尔%以上的物质。聚乙烯醇缩醛树脂的平均缩醛化度低于40摩尔%时,与增塑剂等溶剂的相容性不优选。聚乙烯醇缩醛树脂的平均缩醛化度更优选为60摩尔%以上,从耐水性的观点出发,进一步优选为65摩尔%以上。

[0166] 作为聚乙烯醇缩醛树脂,优选平均缩醛化度90摩尔%以下的物质。聚乙烯醇缩醛树脂的平均缩醛化度超过90摩尔%时,用于得到聚乙烯醇缩醛树脂的反应需要长时间,在工艺上有时不优选。聚乙烯醇缩醛树脂的平均缩醛化度更优选为85摩尔%以下,从耐水性的观点出发,进一步优选为80摩尔%以下。

[0167] 聚乙烯醇缩醛树脂优选聚乙烯醇缩醛树脂中的乙酸乙烯酯单元的含量为30摩尔%以下的物质。乙酸乙烯酯单元的含量超过30摩尔%时,树脂制造时容易引起结块,故不易制造。聚乙烯醇缩醛树脂中的乙酸乙烯酯单元的含量优选为20摩尔%以下。

[0168] 聚乙烯醇缩醛树脂的乙烯醇单元的含量优选为15摩尔%以上、更优选为20摩尔%以上、进一步优选为25摩尔%以上。聚乙烯醇缩醛树脂的乙烯醇单元的含量优选为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。乙烯醇单元的含量小于15摩尔%时,有与玻璃的粘接性降低的倾向,乙烯醇单元的含量大于50摩尔%时,有耐水性降低的倾向。

[0169] 聚乙烯醇缩醛树脂通常由乙烯醇缩醛单元、乙烯醇单元和乙酸乙烯酯单元构成,这些各单元量例如可以通过JISK6728“聚乙烯醇缩丁醛试验方法”、核磁共振法(NMR)来测定。

[0170] 聚乙烯醇缩醛树脂包含除乙烯醇缩醛单元之外的单元时,测定乙烯醇的单元量和乙酸乙烯酯的单元量,从不含除乙烯醇缩醛单元之外的单元时的乙烯醇缩醛单元量中减去这两个单元量,从而可以算出剩余的乙烯醇缩醛单元量。

[0171] 上述聚乙烯醇缩醛树脂可以通过以往公知的方法来制造,代表性地可以通过对于聚乙烯醇使用醛类进行缩醛化来制造。具体而言,可以举出如下方法等:将聚乙烯醇溶解于温水,将所得水溶液预先保持为规定的温度、例如0℃以上且90℃以下、优选10℃以上且20℃以下,加入所需的酸催化剂和醛类,边搅拌边进行缩醛化反应,接着,将反应温度升高至70℃进行熟化,使反应结束,之后,进行中和、水洗和干燥,得到聚乙烯醇缩醛树脂的粉末。

[0172] 作为聚乙烯醇缩醛树脂的原料的聚乙烯醇的粘均聚合度优选为100以上、更优选为300以上、更优选为400以上、进一步优选为600以上、特别优选为700以上、最优选为750以上。聚乙烯醇的粘均聚合度过低时,有时耐贯通性、耐蠕变物性、特别是在85℃、85%RH那样的高温高湿条件下的耐蠕变物性降低。另外,聚乙烯醇的粘均聚合度优选为5000以下、更优选为3000以下、进一步优选为2500以下、特别优选为2300以下、最优选为2000以下。聚乙烯醇的粘均聚合度超过5000时,有时树脂膜的成形变难。

[0173] 进而,为了提高所得夹层玻璃用中间膜的层压适合性、得到外观更优异的夹层玻璃,聚乙烯醇的粘均聚合度优选为1500以下、更优选为1100以下、进一步优选为1000以下。

[0174] 需要说明的是,聚乙烯醇缩醛树脂的粘均聚合度与作为原料的聚乙烯醇的粘均聚合度一致,因此,上述聚乙烯醇的优选的粘均聚合度与聚乙烯醇缩醛树脂的优选的粘均聚合度一致。

[0175] 所得聚乙烯醇缩醛树脂的乙酸乙烯酯单元优选设定为30摩尔%以下,因此,优选使用皂化度为70摩尔%以上的聚乙烯醇。聚乙烯醇的皂化度低于70摩尔%时,树脂的透明性、耐热性有时降低,另外,有时与醛类的反应性也降低。皂化度更优选为95摩尔%以上。

[0176] 聚乙烯醇的粘均聚合度和皂化度例如可以基于JIS K 6726“聚乙烯醇试验方法”来测定。

[0177] 作为聚乙烯醇的缩醛化中使用的醛类,优选碳数1以上且12以下的醛。醛的碳数超过12时,缩醛化的反应性降低,而且反应中容易产生树脂的块体,树脂的合成容易变困难。

[0178] 作为醛类,没有特别限定,例如可以举出:甲醛、乙醛、丙醛、正丁醛、异丁醛、戊醛、正己醛、2-乙基丁醛、正庚醛、正辛醛、正壬醛、正癸醛、苯甲醛、肉桂醛等脂肪族、芳香族、脂环式醛。其中,优选碳数2以上且6以下的脂肪族醛,其中,特别优选丁醛。另外,上述醛类可以单独使用,也可以组合使用2种以上。进而,可以以全部醛类的20质量%以下的范围少量组合使用多官能醛类、具有其他官能团的醛类等。

[0179] (离聚物)

[0180] 作为离聚物,没有特别限定,可以举出:具有源自乙烯的结构单元和源自 $\alpha$ , $\beta$ -不饱和羧酸的结构单元、且 $\alpha$ , $\beta$ -不饱和羧酸的至少一部分被金属离子中和而得到的树脂。作为金属离子,例如可以举出钠离子。作为基础聚合物的乙烯· $\alpha$ , $\beta$ -不饱和羧酸共聚物中, $\alpha$ , $\beta$ -不饱和羧酸的结构单元的含有比例优选为2质量%以上、更优选为5质量%以上。另外, $\alpha$ , $\beta$ -不饱和羧酸的结构单元的含有比例优选为30质量%以下、更优选为20质量%以下。本发明中,从获得的容易性的方面出发,优选乙烯·丙烯酸共聚物的离聚物、和乙烯·甲基丙烯酸共聚物的离聚物。作为乙烯系离聚物的例子,可以举出乙烯·丙烯酸共聚物的钠离聚物、乙

烯·甲基丙烯酸共聚物的钠离聚物作为特别优选的例子。

[0181] 作为构成离聚物的 $\alpha, \beta$ -不饱和羧酸,例如可以举出:丙烯酸、甲基丙烯酸、马来酸、马来酸单甲酯、马来酸单乙酯、马来酸酐等,特别优选丙烯酸或甲基丙烯酸。

[0182] B层中,作为除聚乙烯醇缩醛树脂等热塑性树脂之外的成分,可以根据需要进一步添加隔热材料(例如,具有红外线吸收能力的无机隔热性微粒或有机隔热性材料)、紫外线吸收剂、增塑剂、抗氧化剂、光稳定剂、粘接力调节剂和/或调整粘接性的各种添加剂、防粘连剂、颜料、染料等。作为紫外线吸收剂、抗氧化剂、光稳定剂等,可以举出:前述A层中含有的物质。

[0183] (隔热材料)

[0184] B层中可以含有隔热材料(例如具有红外线吸收能力的无机隔热性微粒或有机隔热性材料)。作为隔热材料,可以使用与A层中能够含有的隔热材料同样的隔热材料。

[0185] B层中含有隔热材料时,隔热材料的红外线吸收能力与红外线通过B层时的光路长(m)和B层中的隔热材料的浓度( $\text{g}/\text{m}^3$ )成比例。因此,隔热材料的红外线吸收能力与B层中的隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )成比例。

[0186] B层中作为隔热材料使用金属掺杂氧化钨(铈掺杂氧化钨)时,隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为0.10以上、更优选为0.15以上、进一步优选为0.20以上。B层中的隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )低于0.10时,有不易得到充分的隔热效果的倾向。B层中作为隔热材料使用金属掺杂氧化钨(铈掺杂氧化钨)时,隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为1.00以下、更优选为0.70以下、进一步优选为0.50以下。B层中的隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )超过1.00时,形成夹层玻璃时,有可见光线透射率降低、或雾度恶化、或耐气候性降低、或色差变化增大的倾向。

[0187] B层中作为隔热材料使用锡掺杂氧化铟时,隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为0.50以上、更优选为1.00以上、进一步优选为1.50以上、特别优选为2.25以上、最优选为3.00以上。B层中作为隔热材料使用锡掺杂氧化铟时的、隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为15.00以下、更优选为10.50以下、进一步优选为7.50以下。

[0188] B层中作为隔热材料使用铋掺杂氧化锡时,隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为1.00以上、更优选为1.50以上、进一步优选为2.00以上。B层中作为隔热材料使用铋掺杂氧化锡时的、隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为10.00以下、更优选为7.00以下、进一步优选为5.00以下。

[0189] B层中作为隔热材料使用酞菁化合物时,隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为0.010以上、更优选为0.015以上、进一步优选为0.020以上。B层中作为隔热材料使用酞菁化合物时的、隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为0.100以下、更优选为0.070以下、进一步优选为0.050以下。

[0190] B层中作为隔热材料使用铝掺杂氧化锌时,隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为1.00以上、更优选为1.50以上、进一步优选为2.00以上。B层中作为隔热材料使用铝掺杂氧化锌时的、隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为10.00以下、更优选为7.00以下、进一步优选为5.00以下。

[0191] B层中作为隔热材料使用铋酸锌时,隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为1.00以上、更优选为1.50以上、进一步优选为2.00以上。B层中作为隔热材料使用铋酸锌时的、隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为10.00以下、更优选为7.00以下、进一步优选为5.00以下。

[0192] B层中作为隔热材料使用六硼化镧时,隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为0.02以上、更优选为0.03以上、进一步优选为0.04以上。B层中作为隔热材料使用六硼化镧时的、隔热材料的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为0.20以下、更优选为0.14以下、进一步优选为0.10以下。

[0193] 对于本发明的夹层玻璃用中间膜,B层中也可以含有隔热材料。上述情况下,优选的是,至少B层中含有至少1种的紫外线吸收剂。通过使夹层玻璃用中间膜为上述构成,例如,使A层为内层、使B层为外层时,可以保护A层的热塑性弹性体免受紫外线,并且可以提高夹层玻璃用中间膜的隔热性。

[0194] 本发明的夹层玻璃用中间膜为使B层为外层、B层/A层/B层之类的3层构成时,通过设为B层中含有隔热材料的方案,红外线通过B层2层量的光路长,因此,可以提高隔热性而不会破坏夹层玻璃的可见光线透射率、雾度。

[0195] B层中能够使用的紫外线吸收剂可以举出:与A层中可以含有的紫外线吸收剂同样的紫外线吸收剂。

[0196] B层中的紫外线吸收剂的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为0.2以上、更优选为0.5以上、进一步优选为0.7以上。B层中的紫外线吸收剂的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )低于0.1时,形成夹层玻璃时,有雾度恶化、或耐气候性降低、或色差变化增大的倾向。

[0197] B层中的紫外线吸收剂的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )优选为10.0以下、更优选为5.0以下、进一步优选为3.0以下。B层中的紫外线吸收剂的面密度( $\text{g}/\text{m}^2$ )超过10.0时,形成夹层玻璃时,有可见光线透射率降低、或雾度恶化、或耐气候性降低、或色差变化增大的倾向。

[0198] 紫外线吸收剂的添加量相对于B层中含有的热塑性树脂,以质量基准计,优选为10ppm以上、更优选为100ppm以上。添加量小于10ppm时,有时不易发挥充分的效果。需要说明的是,紫外线吸收剂也可以组合2种以上使用。

[0199] 紫外线吸收剂的添加量相对于B层中含有的热塑性树脂,以质量基准计,优选为50000ppm以下、更优选为10000ppm以下。即使使添加量大于50000ppm也无法期望有显著的效果。

[0200] (增塑剂)

[0201] 作为本发明的B层中使用的增塑剂,没有特别限制,除一元羧酸酯系、多元羧酸酯系等羧酸酯系增塑剂;磷酸酯系增塑剂、有机亚磷酸酯系增塑剂等之外,也可以使用:羧酸聚酯系、碳酸聚酯系、以及聚亚烷基二醇系等高分子增塑剂、蓖麻油等羟基羧酸与多元醇的酯化合物;羟基羧酸与一元醇的酯化合物等羟基羧酸酯系增塑剂。

[0202] 作为一元羧酸酯系增塑剂,为:通过丁酸、异丁酸、己酸、2-乙基丁酸、庚酸、辛酸、2-乙基己酸、月桂酸等一元羧酸与乙二醇、二乙二醇、三乙二醇、四乙二醇、聚乙二醇、聚丙二醇、甘油等多元醇的缩合反应而得到的化合物,如果示例具体的化合物,则可以举出:三乙二醇二2-乙基丁酸酯、三乙二醇二庚酸酯、三乙二醇二2-乙基己酸酯、三乙二醇二辛酸酯、四乙二醇二2-乙基丁酸酯、四乙二醇二庚酸酯、四乙二醇二2-乙基己酸酯、四乙二醇二辛酸酯、二乙二醇二2-乙基己酸酯、PEG#400二2-乙基己酸酯、三乙二醇单2-乙基己酸酯、甘油或二甘油与2-乙基己酸的完全或部分酯化物等。此处PEG#400是指,平均分子量为350~450的聚乙二醇。

[0203] 作为多元羧酸酯系增塑剂,可以举出:通过己二酸、琥珀酸、壬二酸、癸二酸、邻苯二甲酸、间苯二甲酸、对苯二甲酸、偏苯三酸等多元羧酸与甲醇、乙醇、丁醇、己醇、2-乙基丁

醇、庚醇、辛醇、2-乙基己醇、癸醇、十二醇、丁氧基乙醇、丁氧基乙氧基乙醇、苜醇等碳数1~12的醇的缩合反应而得到的化合物。如果示例具体的化合物,则可以举出:己二酸二己酯、己二酸二-2-乙基丁酯、己二酸二庚酯、己二酸二辛酯、己二酸二2-乙基己酯、己二酸二(丁氧基乙基)酯、己二酸二(丁氧基乙氧基乙基)酯、己二酸单(2-乙基己基)酯、癸二酸二丁酯、癸二酸二己酯、癸二酸二2-乙基丁酯、邻苯二甲酸二丁酯、邻苯二甲酸二己酯、邻苯二甲酸二(2-乙基丁基)酯、邻苯二甲酸二辛酯、邻苯二甲酸二(2-乙基己基)酯、邻苯二甲酸苜基丁酯、邻苯二甲酸二(十二烷基)酯等。

[0204] 作为磷酸系增塑剂或亚磷酸系增塑剂,可以举出:通过磷酸或亚磷酸与甲醇、乙醇、丁醇、己醇、2-乙基丁醇、庚醇、辛醇、2-乙基己醇、癸醇、十二醇、丁氧基乙醇、丁氧基乙氧基乙醇、或苜醇等碳数1~12的醇的缩合反应而得到的化合物。如果示例具体的化合物,则可以举出:磷酸三甲酯、磷酸三乙酯、磷酸三丙酯、磷酸三丁酯、磷酸三(2-乙基己基)酯、磷酸三(丁氧基乙基)酯、亚磷酸三(2-乙基己基)酯等。

[0205] 作为羧酸聚酯系增塑剂,可以为:使草酸、丙二酸、琥珀酸、己二酸、辛二酸、癸二酸、十二烷二酸、1,2-环己烷二羧酸、1,3-环己烷二羧酸、1,4-环己烷二羧酸等多元羧酸与乙二醇、二乙二醇、三乙二醇、四乙二醇、1,2-丙二醇、1,3-丙二醇、1,2-丁二醇、1,3-丁二醇、1,4-丁二醇、1,2-戊二醇、1,5-戊二醇、2,4-戊二醇、1,2-己二醇、1,6-己二醇、3-甲基-1,5-戊二醇、3-甲基-2,4-戊二醇、1,2-庚二醇、1,7-庚二醇、1,2-辛二醇、1,8-辛二醇、1,2-壬二醇、1,9-壬二醇、2-甲基-1,8-辛二醇、1,2-癸二醇、1,10-癸二醇、1,2-十二烷二醇、1,12-十二烷二醇、1,2-环己二醇、1,3-环己二醇、1,4-环己二醇、1,2-双(羟基甲基)环己烷、1,3-双(羟基甲基)环己烷、1,4-双(羟基甲基)环己烷等多元醇交替共聚而得到的羧酸聚酯、脂肪族羟基羧酸;乙醇酸、乳酸、2-羟基丁酸、3-羟基丁酸、4-羟基丁酸、6-羟基己酸、8-羟基己酸、10-羟基癸酸、12-羟基十二烷酸、具有芳香环的羟基羧酸;4-羟基苯甲酸、4-(2-羟基乙基)苯甲酸等羟基羧酸的聚合物(羟基羧酸聚酯)、脂肪族内酯化合物; $\gamma$ -丁内酯、 $\gamma$ -戊内酯、 $\delta$ -戊内酯、 $\beta$ -甲基- $\delta$ -戊内酯、 $\delta$ -己内酯、 $\epsilon$ -己内酯、丙交酯等具有芳香环的内酯化合物;苯酐等内酯化合物开环聚合而得到的羧酸聚酯。这些羧酸聚酯的末端结构没有特别限定,可以为羟基、羧基,另外,也可以使末端羟基、末端羧基与一元羧酸或者一元醇反应而形成酯键。

[0206] 作为碳酸聚酯系增塑剂,可以举出:通过酯交换反应使乙二醇、二乙二醇、三乙二醇、四乙二醇、1,2-丙二醇、1,3-丙二醇、1,2-丁二醇、1,3-丁二醇、1,4-丁二醇、1,2-戊二醇、1,5-戊二醇、2,4-戊二醇、1,2-己二醇、1,6-己二醇、3-甲基-1,5-戊二醇、3-甲基2,4-戊二醇、1,2-庚二醇、1,7-庚二醇、1,2-辛二醇、1,8-辛二醇、1,2-壬二醇、1,9-壬二醇、2-甲基-1,8-辛二醇、1,2-癸二醇、1,10-癸二醇、1,2-十二烷二醇、1,12-十二烷二醇、1,2-环己二醇、1,3-环己二醇、1,4-环己二醇、1,2-双(羟基甲基)环己烷、1,3-双(羟基甲基)环己烷、1,4-双(羟基甲基)环己烷等多元醇与碳酸二甲酯、碳酸二乙酯等碳酸酯进行交替共聚而得到的碳酸聚酯。这些碳酸聚酯化合物的末端结构没有特别限定,可以为碳酸酯基、或羟基等。

[0207] 作为聚亚烷基二醇系增塑剂,可以举出:使一元醇、多元醇、一元羧酸和多元羧酸为引发剂,使环氧乙烷、环氧丙烷、环氧丁烷、氧杂环丁烷等环氧烷进行开环聚合而得到的聚合物。

[0208] 作为羟基羧酸酯系增塑剂,可以使用:羟基羧酸的一元醇酯;蓖麻醇酸甲酯、蓖麻醇酸乙酯、蓖麻醇酸丁酯、6-羟基己酸甲酯、6-羟基己酸乙酯、6-羟基己酸丁酯、羟基羧酸的多元醇酯;乙二醇二(6-羟基己酸)酯、二乙二醇二(6-羟基己酸)酯、三乙二醇二(6-羟基己酸)酯、3-甲基-1,5-戊二醇二(6-羟基己酸)酯、3-甲基-1,5-戊二醇二(2-羟基丁酸)酯、3-甲基-1,5-戊二醇二(3-羟基丁酸)酯、3-甲基-1,5-戊二醇二(4-羟基丁酸)酯、三乙二醇二(2-羟基丁酸)酯、甘油三(蓖麻醇酸)酯、L-酒石酸二(1-(2-乙基己基))酯、蓖麻油,此外还可以使用:将羟基羧酸的多元醇酯的k个源自羟基羧酸的基团取代为源自不含羟基的羧酸的基团或氢原子而得到的化合物,这些羟基羧酸酯可以使用通过以往公知的方法得到的物质。

[0209] 本发明中,这些增塑剂可以单独使用,也可以组合使用2种以上。

[0210] B层中含有增塑剂时,从增塑剂与B层中使用的树脂(特别是聚乙烯醇缩醛树脂)的相容性、向其他层的低迁移性、非迁移性得到提高的观点出发,优选使用:熔点为30℃以下、羟值为15mgKOH/g以上且450mgKOH/g以下的酯系增塑剂或醚系增塑剂;或者,为非结晶性、羟值为15mgKOH/g以上且450mgKOH/g以下的酯系增塑剂或醚系增塑剂。此处非结晶性是指,在-20℃以上的温度下观测不到熔点。前述羟值优选为15mgKOH/g以上、更优选为30mgKOH/g以上、最佳为45mgKOH/g以上。另外,前述羟值优选为450mgKOH/g以下、更优选为360mgKOH/g以下、最佳为280mgKOH/g以下。作为前述酯系增塑剂,可以举出:满足上述规定的聚酯(前述羧酸聚酯系增塑剂、碳酸聚酯系增塑剂等)、羟基羧酸酯化合物(前述羟基羧酸酯系增塑剂等),作为醚系增塑剂,可以举出:满足前述规定的聚醚化合物(前述聚亚烷基二醇系增塑剂等)。

[0211] 增塑剂的含量相对于聚乙烯醇缩醛树脂100质量份优选为50质量份以下、更优选为40质量份以下、进一步优选为30质量份以下、特别优选为20质量份以下。增塑剂的含量相对于聚乙烯醇缩醛树脂100质量份超过50质量份时,有剪切储能模量变低的倾向。另外,也可以组合使用2种以上的增塑剂。

[0212] 作为增塑剂,可以使用具有羟基的化合物,具有羟基的化合物的含量相对于B层中使用的增塑剂的总量的比例优选为50质量%以上、更优选为70质量%以上、进一步优选为90质量%以上。具有羟基的化合物具有与聚乙烯醇缩醛树脂高的相容性,向其他树脂层的迁移性低,因此,可以适合使用具有羟基的化合物。

[0213] 作为B层中可以含有的抗氧化剂,可以使用与A层中含有的抗氧化剂同样的抗氧化剂。

[0214] 抗氧化剂可以单独使用,或者组合2种以上使用。B层中的抗氧化剂的面密度优选为0.1g/m<sup>2</sup>以上、更优选为0.2g/m<sup>2</sup>以上、进一步优选为0.5g/m<sup>2</sup>以上。B层中的抗氧化剂的面密度低于0.1g/m<sup>2</sup>时,B层容易被氧化,长时间使用夹层玻璃时,有色差变化变大等耐气候性降低的倾向。

[0215] B层中的抗氧化剂的面密度优选为2.5g/m<sup>2</sup>以下、更优选为1.5g/m<sup>2</sup>以下、进一步优选为2.0g/m<sup>2</sup>以下。B层中的抗氧化剂的面密度超过2.5g/m<sup>2</sup>时,有B层的色调受损、或夹层玻璃的雾度降低的倾向。

[0216] 抗氧化剂的配混量相对于聚乙烯醇缩醛树脂等热塑性树脂100质量份优选为0.001质量份以上、更优选为0.01质量份以上。抗氧化剂的量小于0.001质量份时,有时难以

发挥充分的效果。

[0217] 抗氧化剂的配混量相对于聚乙烯醇缩醛树脂等热塑性树脂100质量份优选为5质量份以下、更优选为4质量份以下、最优选为3质量份以下。即使使抗氧化剂的量大于5质量份也无法期望有显著的效果。

[0218] 作为光稳定剂,可以举出:受阻胺系光稳定剂,例如株式会社ADEKA制“ADK STAB LA-57(商品名)”、Ciba Specialty Chemicals株式会社制“Tinuvin-622SF(商品名)”等。光稳定剂可以单独使用,或者组合2种以上使用。光稳定剂的配混量相对于聚乙烯醇缩醛树脂等热塑性树脂100质量份优选为0.01质量份以上、更优选为0.05质量份以上。光稳定剂的量小于0.01质量份时,有时不易发挥充分的效果。另外,光稳定剂的含量优选10质量份以下、更优选5质量份以下。即使使光稳定剂的量大于10质量份也无法期望有显著的效果。B层中光稳定剂的面密度优选为0.05g/m<sup>2</sup>以上、更优选为0.5g/m<sup>2</sup>以上。另外,该面密度优选为70g/m<sup>2</sup>以下、更优选为30g/m<sup>2</sup>以下。

[0219] 另外,B层中,为了控制夹层玻璃用中间膜对玻璃等的粘接性,可以根据需要,含有粘接力调节剂和/或用于调整粘接性的各种添加剂。

[0220] 作为用于调整粘接性的各种添加剂,可以使用国际公开第03/033583号中公开的物质,优选使用碱金属盐、碱土金属盐,例如可以举出:钾、钠、镁等的盐。作为上述盐,可以举出:辛酸、己酸、丁酸、乙酸、甲酸等羧酸等有机酸;盐酸、硝酸等无机酸的盐等。

[0221] 粘接力调节剂和/或用于调整粘接性的各种添加剂的最佳添加量根据使用的添加剂而不同,优选的是,以所得夹层玻璃用中间膜对玻璃的粘接力在Pummel试验(Pummeltest;国际公开第03/033583号等中记载)中一般成为3以上且10以下的方式进行调整,特别优选的是,需要高的耐贯通性时,以成为3以上且6以下的方式进行调整,需要高的防玻璃飞散性时,以成为7以上且10以下的方式进行调整。要求高的防玻璃飞散性时,不添加粘接力调节剂也是有用的方法。

[0222] [夹层玻璃用中间膜]

[0223] 本发明的夹层玻璃用中间膜可以适合作为隔音性和隔热性优异的夹层玻璃用中间膜使用。夹层玻璃用中间膜具有至少一个A层。另外,优选为在至少2个上述B层之间层叠有上述A层的层叠体。

[0224] 对于本发明的夹层玻璃用中间膜,从形成夹层玻璃时兼顾隔音性与隔热性、且提高色调的观点出发,至少1层中含有隔热材料,在透明玻璃的厚度总计为4mm以下的2张透明玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃中,可见光透射率为70%以上,波长800~1100nm的红外线平均透射率为72%以下。

[0225] 从确保使用透明玻璃形成夹层玻璃时的可视性的观点出发,可见光透射率为70%以上、更优选为72%以上、进一步优选为73%以上。形成夹层玻璃时的可见光透射率低于70%时,夹层玻璃的可视性受损。

[0226] 同样地,从进一步提高使用透明玻璃形成夹层玻璃时的隔热性的观点出发,波长800~1100nm的红外线平均透射率为72%以下、优选为70%以下、更优选为69%以下、进一步优选为68%以下、特别优选为65%以下、最优选为60%以下。形成夹层玻璃时的波长800~1100nm的红外线平均透射率超过72%时,隔热性降低。

[0227] 作为在透明玻璃的厚度总计为4mm以下的2张透明玻璃之间配置夹层玻璃用中间

膜而成的夹层玻璃中、使可见光透射率为70%以上的方法,例如可以举出:使A层或B层中的隔热材料的面密度为 $10\text{g}/\text{m}^2$ 以下的方法;或者,使A层或B层中的紫外线吸收剂的面密度为 $10\text{g}/\text{m}^2$ 以下的方法等。

[0228] 作为在透明玻璃的厚度总计为4mm以下的2张透明玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃中、使波长800~1100nm的红外线平均透射率为72%以下的方法,例如可以举出:使A层或B层中的隔热材料的面密度为 $0.10\text{g}/\text{m}^2$ 以上的方法等。

[0229] 对于本发明的夹层玻璃用中间膜,从形成夹层玻璃时兼顾隔音性与隔热性、且提高色调的观点出发,优选的是,至少1层中含有隔热材料,在绿色玻璃的厚度总计为4mm以下的2张绿色玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃中,可见光透射率为70%以上,波长800~1100nm的红外线平均透射率为32%以下。

[0230] 从确保使用绿色玻璃形成夹层玻璃时的可视性的观点出发,可见光透射率优选为70%以上、更优选为72%以上、进一步优选为73%以上。形成夹层玻璃时的可见光透射率低于70%时,有夹层玻璃的可视性受损的倾向。

[0231] 同样地,从进一步提高使用绿色玻璃形成夹层玻璃时的隔热性的观点出发,波长800~1100nm的红外线平均透射率优选为32%以下、更优选为31%以下、进一步优选为30%以下。形成夹层玻璃时的波长800~1100nm的红外线平均透射率超过32%时,有隔热性降低的倾向。

[0232] 作为在绿色玻璃的厚度总计为4mm以下的2张绿色玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃中、使可见光透射率为70%以上的方法,例如可以举出:使A层或B层中的隔热材料的面密度为 $10\text{g}/\text{m}^2$ 以下的方法;或者使A层或B层中的紫外线吸收剂的面密度为 $10\text{g}/\text{m}^2$ 以下的方法等。

[0233] 作为在绿色玻璃的厚度总计为4mm以下的2张绿色玻璃之间配置夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃中、使波长800~1100nm的红外线平均透射率为32%以下的方法,例如可以举出:使A层或B层中的隔热材料的面密度为 $0.10\text{g}/\text{m}^2$ 以上的方法等。

[0234] 从进一步提高形成夹层玻璃时的耐气候性、进一步抑制色差变化的观点出发,形成夹层玻璃时,在照度 $180\text{W}/\text{m}^2$ 、黑板温度 $60^\circ\text{C}$ 、相对湿度50%的条件下进行曝露200小时的耐气候性试验前后的色差变化 $\Delta E^*ab$ (也简单称为色差变化)优选为2.0以下、更优选为1.8以下、进一步优选为1.5以下。上述条件下的色差变化 $\Delta E^*ab$ 超过2.0时,由于夹层玻璃的长期使用而有容易发生色调变化的倾向。测定上述色差变化时,夹层玻璃中使用的玻璃可以为透明玻璃也可以为绿色玻璃。另外,为了制作满足上述构成的夹层玻璃用中间膜,优选的是形成包含至少1层含有热塑性弹性体的A层、且至少1层中含有隔热材料的夹层玻璃用中间膜。

[0235] 制作在玻璃的厚度总计为4mm以下的2张玻璃(例如厚度1.6mm的2张玻璃等)之间配置本发明的夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃时,雾度优选为5以下。测定上述雾度时,夹层玻璃中使用的玻璃可以为透明玻璃也可以为绿色玻璃。另外,为了制作满足上述构成的夹层玻璃用中间膜,优选的是形成包含至少1层含有热塑性弹性体的A层、且至少1层中含有隔热材料的夹层玻璃用中间膜。

[0236] 从制作透明度更高的夹层玻璃的观点出发,雾度更优选为4以下、进一步优选为3以下。形成夹层玻璃时雾度超过5时,透明度降低,有不适于汽车等的夹层玻璃的倾向。

[0237] 制作在玻璃的厚度总计为4mm以下的2张玻璃(例如厚度1.6mm的2张玻璃等)之间配置本发明的夹层玻璃用中间膜而成的夹层玻璃时,以ASTM E90-09(用于实验室测定建筑物的间壁和要素的空气传播声音透过损失的标准试验方法)的条件测定的4000Hz下的声音透过损失优选为37dB以上。为了制作满足上述构成的夹层玻璃用中间膜,优选的是形成包含至少1层含有热塑性弹性体的A层、且至少1层中含有隔热材料的夹层玻璃用中间膜。

[0238] 从使在玻璃的厚度总计为4mm以下的2张玻璃(例如厚度1.6mm的2张玻璃等)之间配置而成的夹层玻璃为隔音性更高的夹层玻璃的观点出发,以ASTM E90-09的条件测定的4000Hz下的声音透过损失更优选为38dB以上。形成夹层玻璃时,以ASTM E90-09的条件测定的4000Hz下的声音透过损失低于37dB时,有夹层玻璃的隔音性变低的倾向。

[0239] A层的厚度总计相对于B层的厚度总计的比(A层的厚度总计/B层的厚度总计)优选为1/30以上、更优选为1/15以上、进一步优选为1/5以上。上述比率小于1/30时,有夹层玻璃用中间膜的隔音效果变小的倾向。

[0240] A层的厚度总计相对于B层的厚度总计的比(A层的厚度总计/B层的厚度总计)优选为1/1以下、更优选为1/2以下、进一步优选为1/3以下。上述比率大于1/1时,有时夹层玻璃用中间膜的耐热蠕变性降低。

[0241] 本发明的夹层玻璃用中间膜可以仅由A层形成,也可以为A层/B层之类的2层构成,如图1所示那样,也可以形成A层1被B层2a和B层2b所夹持的层叠构成。层叠体中的层叠构成根据目的而确定,除B层/A层/B层之类的层叠构成之外,还可以为B层/A层/B层/A层、B层/A层/B层/A层/B层/A层/B层之类的层叠构成。上述中,优选为至少2个B层之间层叠有A层的层叠构成。另外,优选B层构成最外层的至少一层。

[0242] 另外,也可以包含1层以上除A层、B层之外的层(设为C层),例如可以为B层/A层/C层/B层、B层/A层/B层/C层、B层/C层/A层/C层/B层、B层/C层/A层/B层/C层、B层/A层/C层/B层/C层、C层/B层/A层/B层/C层、C层/B层/A层/C层/B层/C层、C层/B层/C层/A层/C层/B层/C层等层叠构成。另外,上述层叠构成中,C层中的成分可以相同也可以不同。其对于A层或B层中的成分也是同样的。上述中,优选为至少2个B层之间层叠有A层的层叠构成。另外,优选B层构成最外层的至少一层。

[0243] 需要说明的是,作为C层,可以使用由公知的树脂形成的层,例如可以使用:聚乙烯、聚丙烯、聚氯乙烯、聚苯乙烯、聚乙酸乙烯酯、聚氨酯、聚四氟乙烯、丙烯酸类树脂、聚酰胺、聚缩醛、聚碳酸酯、聚酯中的聚对苯二甲酸乙二醇酯、聚对苯二甲酸丁二醇酯、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、聚酰亚胺等。另外,C层中,根据需要也可以添加增塑剂、抗氧化剂、紫外线吸收剂、光稳定剂、粘接力调节剂和/或用于调整粘接性的各种添加剂、防粘连剂、颜料、染料、隔热材料(例如具有红外线吸收能力的无机隔热性微粒或有机隔热性材料)等添加剂。这些添加剂可以使用与A层、B层中含有的添加剂同样的添加剂。

[0244] [夹层玻璃用中间膜的制造方法]

[0245] 本发明的夹层玻璃用中间膜的制造方法没有特别限定,将构成B层的热塑性树脂中根据需要配混有其他添加剂的B层用组合物混炼至均匀,然后利用挤出法、压延法、加压法、铸造法、吹胀法等公知的制膜方法来制作B层,另外,利用同样的方法,由热塑性弹性体制作A层,可以利用加压成形等使它们层叠,也可以利用共挤出法将A层、B层和其他所需的

层进行成形。

[0246] 公知的制膜方法中,特别适合采用使用挤出机制造薄膜(片)的方法。挤出时的树脂温度优选150℃以上、更优选170℃以上。另外,挤出时的树脂温度优选250℃以下、更优选230℃以下。树脂温度过高时,聚乙烯醇缩醛树脂和热塑性弹性体引起分解,担心树脂劣化。相反地,温度过低时,自挤出机的排出不稳定,成为机械故障的因素。为了有效地去除挥发性物质,优选的是,通过自挤出机的排气口减压来去除挥发性物质。

[0247] 另外,构成本发明的夹层玻璃用中间膜的层叠体优选的是,利用熔体破裂、压花等以往公知的方法在表面形成凹凸结构。熔体破裂、压花的形状没有特别限定,可以采用以往公知的形状。

[0248] 层叠体的膜厚优选20μm以上、更优选100μm以上。层叠体的膜厚过薄时,制作夹层玻璃时有时无法良好地进行层压。另外,层叠体的膜厚优选10000μm以下、更优选3000μm以下。层叠体的膜厚过厚时,导致成本升高,故不优选。

[0249] [夹层玻璃]

[0250] 通过夹层玻璃内部中具有本发明的夹层玻璃用中间膜的构成,可以得到隔音性和隔热性优异的夹层玻璃。另外,也可以得到耐气候性和耐热蠕变性优异的夹层玻璃。因此,本发明的夹层玻璃可以适合用于:汽车用前面玻璃、汽车用侧面玻璃、汽车用可开式车顶、平视显示器用玻璃等。内部中具有本发明的夹层玻璃用中间膜的构成的夹层玻璃用于平视显示器用玻璃时,所使用的该夹层玻璃用中间膜的截面形状优选为一个端面侧厚、且另一个端面侧薄的形状。上述情况下,截面形状可以为从一个端面侧至另一个端面侧依次变薄那样的、整体为楔形的形状,也可以为从一个端面至该端面与另一个端面之间的任意位置、以相同的厚度、从该任意的的位置至另一个端面依次变薄那样的、截面的一部分为楔形的形状。

[0251] 本发明的夹层玻璃中通常使用2张玻璃。构成本发明的夹层玻璃的玻璃的厚度没有特别限定,优选为100mm以下。另外,本发明的夹层玻璃用中间膜由于隔音性和隔热性以及耐气候性和耐热蠕变性优异,因此,即使使用玻璃的厚度总计为4mm以下的2张薄板玻璃制作夹层玻璃,也不会破坏夹层玻璃的隔音性和隔热性以及耐气候性和耐热蠕变性,可以实现夹层玻璃的轻量化。从轻量化的观点出发,玻璃的厚度总计优选为3.8mm以下、进一步优选为3.6mm以下。

[0252] 需要说明的是,2张玻璃的厚度可以相同也可以不同。例如,即使使一个玻璃的厚度为1.8mm以上、另一个玻璃的厚度为1.8mm以下、各玻璃的厚度的差为0.2mm以上,也不会破坏夹层玻璃的隔音性、隔热性、耐气候性、耐热蠕变性,可以制作实现了薄膜化和轻量化的夹层玻璃。

[0253] [夹层玻璃的制造方法]

[0254] 本发明的夹层玻璃可以利用以往公知的方法来制造,例如可以举出:使用真空层压机装置的方法、使用真空袋的方法、使用真空环的方法、使用轧辊的方法等。另外,也可以在临时压接后附加地进行投入至高压釜工序的方法。

[0255] 使用真空层压机装置时,例如,使用太阳能电池的制造中使用的公知的装置,在 $1 \times 10^{-6}$ 以上且 $3 \times 10^{-2}$ MPa以下的减压下,以100℃以上且200℃以下、特别是130℃以上且170℃以下的温度进行层压。使用真空袋或真空环的方法例如记载于欧洲专利第1235683号说

说明书,例如在约 $2 \times 10^{-2}$ MPa的压力下,以130°C以上且145°C以下进行层压。

[0256] 对于夹层玻璃的制作方法,使用轧辊时,例如可以举出:在聚乙烯醇缩醛树脂的流动开始温度以下的温度下进行第1次临时压接,然后进一步在接近流动开始温度的条件下进行临时压接的方法。具体而言,例如可以举出如下方法:用红外线加热器等加热至30°C以上且100°C以下,然后用辊进行脱气,进一步加热至50°C以上且150°C以下后用辊进行压接,使其粘接或临时粘接。

[0257] 另外,也可以在夹层玻璃内部具有本发明的夹层玻璃用中间膜的方式,夹着在A层的两面涂布有B层的玻璃进行层叠而形成夹层玻璃。

[0258] 临时压接后附加地进行的高压釜工序还取决于组件的厚度、构成,例如在约1MPa以上且15MPa以下的压力下、以130°C以上且155°C以下的温度实施约0.5小时以上且2小时以下。

[0259] 由本发明的夹层玻璃用中间膜制作夹层玻璃时使用的玻璃没有特别限定,除浮法平板玻璃、磨光平板玻璃、压花玻璃、夹丝玻璃、热线吸收板玻璃等无机玻璃之外,还可以使用聚甲基丙烯酸甲酯、聚碳酸酯等以往公知的有机玻璃等,它们可以为无色、有色、或者透明、非透明,均可。它们可以单独使用,也可以组合使用2种以上。另外,玻璃的厚度没有特别限定,优选为100mm以下。

[0260] 实施例

[0261] 以下,根据实施例和比较例对本发明进行具体说明,但本发明不限于这些实施例。

[0262] 需要说明的是,以下的实施例和比较例中,作为使用的聚乙烯醇缩丁醛(PVB),使用的是,在盐酸催化剂下,将具有与目标粘均聚合度相同的粘均聚合度(基于JIS K 6726“聚乙烯醇试验方法”测定的粘均聚合度)的聚乙烯醇用正丁醛进行缩醛化而得到的物质。

[0263] (实施例1)

[0264] (A层用组合物的制作)

[0265] 在经过氮气置换并干燥的耐压容器中投入作为溶剂的环己烷50kg、作为阴离子聚合引发剂的仲丁基锂76g,投入作为路易斯碱的四氢呋喃313g(仲丁基锂包含10.5质量%的环己烷溶液,因此,仲丁基锂的实质添加量为8.0g)。将耐压容器内升温至50°C后,加入苯乙烯0.5kg使其聚合1小时,接着加入由异戊二烯8.2kg和丁二烯6.5kg形成的混合液使其聚合2小时,进一步加入苯乙烯1.5kg使其聚合1小时,从而得到包含聚苯乙烯-聚(异戊二烯/丁二烯)-聚苯乙烯三嵌段共聚物的反应液。

[0266] 在氢气气氛下,向该反应液中添加由辛酸镍和三甲基铝形成的齐格勒系氢化催化剂,在氢气压力1MPa、80°C的条件下使其反应5小时。使该反应液自然冷却和放压后,通过水洗去除上述催化剂,使其真空干燥,从而得到聚苯乙烯-聚(异戊二烯/丁二烯)-聚苯乙烯三嵌段共聚物的氢化物(以下,记作TPE-1)。

[0267] 在上述TPE-1中,将作为隔热材料的铯钨氧化物(住友金属矿山株式会社制、以下记作CW0)、作为紫外线吸收剂的Tinuvin326、作为抗氧化剂的Cyanox2777、和作为光稳定剂的Tinuvin622SF混合,制作构成A层的组合物。以隔热材料在A层中的面密度成为 $0.25\text{g}/\text{m}^2$ 的方式、紫外线吸收剂在A层中的面密度成为 $1.0\text{g}/\text{m}^2$ 的方式、抗氧化剂在A层中的面密度成为 $0.20\text{g}/\text{m}^2$ 的方式,光稳定剂在A层中的面密度成为 $1.6\text{g}/\text{m}^2$ 的方式,调节配混量。

[0268] 需要说明的是,作为紫外线吸收剂使用的Tinuvin326为2-(5-氯-2-苯并三唑基)-6-叔丁基-对甲酚(Ciba Specialty Chemicals株式会社制)。作为抗氧化剂使用的Cyanox2777为1,3,5-三(4-叔丁基-3-羟基-2,6-二甲基苯基)-1,3,5-三嗪-2,4,6-(1H,3H,5H)-三酮与三(2,4-二叔丁基苯基)磷酸酯的混合物(Cytec Industries Inc.制)。作为光稳定剂使用的Tinuvin622SF为琥珀酸二甲酯与4-羟基-2,2,6,6-四甲基-1-哌啶乙醇的聚合物(Ciba Specialty Chemicals株式会社制)。

[0269] 进而,对于100质量份的TPE-1,添加作为与B层的粘接力调节剂的5质量份的马来酸酐改性聚丙烯(三洋化成工业株式会社制、Youmex 1010),制作以TPE-1为主成分的A层用组合物。需要说明的是,主成分是指,组合物中质量最多的成分。

[0270] (B层的制作)

[0271] B层的主成分使用粘均聚合度约1100、缩醛化度68.7摩尔%、乙酸乙烯酯单元的含量为0.8摩尔%、乙烯醇单元的含量为30.5摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛(PVB-1)。

[0272] 在上述PVB-1中混合作为紫外线吸收剂的Tinuvin326,制作构成B层的组合物。紫外线吸收剂以B层中的面密度成为 $5.1\text{g}/\text{m}^2$ 的方式调节配混量,制作组合物。

[0273] (夹层玻璃用中间膜的制作)

[0274] 使用 $50\text{mm}\phi$ 排气式单螺杆挤出机,在温度 $210^\circ\text{C}$ 、排出量 $4\text{kg}/\text{h}$ 的条件下,将A层用组合物导入至 $205^\circ\text{C}$ 的T模头(多歧管模具:宽度 $500\text{mm}$ ),使用 $65\text{mm}\phi$ 排气式单螺杆挤出机,在温度 $205^\circ\text{C}$ 、排出量 $24\text{kg}/\text{h}$ 的条件下,将B层用组合物导入至该T模头。将从该T模头共挤出的成形物由一个辊设为 $50^\circ\text{C}$ 、另一个辊设为 $60^\circ\text{C}$ 的2个金属镜面辊夹持,以收取速度 $1.2\text{m}/\text{分钟}$ ,成形为成为B层/A层/B层( $330\mu\text{m}/100\mu\text{m}/330\mu\text{m}$ )这样的3层构成的夹层玻璃用中间膜( $760\mu\text{m}$ )。

[0275] (夹层玻璃的制作)

[0276] 将实施例1中得到的夹层玻璃用中间膜夹持于市售的透明玻璃(长度 $50\text{mm}\times$ 宽度 $50\text{mm}\times$ 厚度 $1.6\text{mm}$ )2张,使用真空层压机(Nisshinbo Mechatronics Inc.制1522N),在热板温度 $165^\circ\text{C}$ 、抽真空时间12分钟、加压压力 $50\text{kPa}$ 、加压时间17分钟的条件下来制作夹层玻璃。可见光透射率和红外线平均透射率的测定中分别使用所得夹层玻璃。

[0277] 另外,使用市售的绿色玻璃(长度 $50\text{mm}\times$ 宽度 $50\text{mm}\times$ 厚度 $1.6\text{mm}$ )代替使用透明玻璃,除此之外,在与上述同样的条件下制作夹层玻璃。可见光透射率、红外线平均透射率、耐气候性试验(色差变化)、声音透过损失和雾度的测定中分别使用所得夹层玻璃。

[0278] 1.物性评价(源自共轭二烯单体单元的双键残留量的算出)

[0279] 测定实施例1中得到嵌段共聚物的氢化前后的碘值,根据其测定值算出。将双键残留量的算出结果示于表2。

[0280] 2.物性评价(异戊二烯单元中的1,2-键合和3,4-键合的含量以及丁二烯单元中的1,2-键合的含量的总计值的算出)

[0281] 对于实施例1中得到的TPE-1~4,将各 $50\text{mg}$ 溶解于氘代氯仿,进行 $^1\text{H-NMR}$ 的测定。根据所得光谱中的异戊二烯单元中的源自1,2-键合和3,4-键合的峰、以及丁二烯单元的源自1,2-键合的峰,分别测定异戊二烯单元中的1,2-键合和3,4-键合的含量以及丁二烯单元中的1,2-键合的含量。

[0282] 将所得异戊二烯单元中的1,2-键合和3,4-键合的含量和丁二烯单元中的1,2-键合的含量加合,算出1,2-键合和3,4-键合的含量的总计值。将算出结果示于表1或表2。

[0283] 3. 物性评价 (A层用组合物、A层主成分、B层用组合物和B层主成分的频率1000Hz下的 $\tan\delta$ 的峰高和峰温度的测定)

[0284] 基于ASTM D4065-06,为了测定夹层玻璃用中间膜的动态粘弹性,使用机械光谱仪(Mettler-Toledo International Inc.制DMA/SDTA861e模型)。将实施例1中得到的A层用组合物、A层主成分(TPE-1)、B层用组合物和B层主成分(PVB-1)另行以210℃、5MPa进行5分钟热加压,制作评价用的样品,分别切成厚度1mm(且直径3~10mm:根据样品的状态来确定)的圆柱状,作为试验样品使用。需要说明的是,A层主成分是指,A层中含有的热塑性弹性体等高分子化合物,A层中含有增塑剂时,是指,由A层中含有的热塑性弹性体等高分子化合物和增塑剂形成的组合物。另外,B层主成分是指,B层中含有的聚乙烯醇缩丁醛、离聚物等热塑性树脂,B层中含有增塑剂时,是指,由B层中含有的热塑性树脂和增塑剂形成的组合物。

[0285] 以最大振幅0.1%的剪切应变,对上述试验样品分别赋予频率1000Hz的固定正弦波的剪切振动,以1℃/分钟的恒定速度将测定温度从-20升温至60℃。根据ASTM D4092-07的定义,求出A层用组合物、A层主成分、B层用组合物和B层主成分的 $\tan\delta$ 达到最大的峰的高度和峰温度(峰顶的温度)。将它们的测定结果示于表3。

[0286] 4. 物性评价 (A层用组合物和A层主成分的频率1Hz下的 $\tan\delta$ 的峰高和峰温度的测定)

[0287] 基于JIS K7244-10,作为平行平板振动流变仪,使用圆板的直径为8mm的变形控制型动态粘弹性装置(レオシックス社制、ARES)。将实施例1中使用的A层主成分和A层用组合物通过挤出成形法制成单层片(厚度0.76mm)。将上述单层片切成圆板形状,作为试验片使用。以上述试验片完全填充2张平板间的间隙。以应变量1.0%,以1Hz的频率,对上述试验片施加振动,将测定温度以1℃/分钟的恒定速度从-40升温至100℃。保持上述试验片与圆板的温度,直至剪切损耗模量和剪切储能模量的测定值不再变化为止。将测定的A层主成分和A层用组合物的 $\tan\delta$ 的峰高和峰温度的测定结果示于表3。

[0288] 5. 物性评价 (夹层玻璃的耐热蠕变性的评价)

[0289] 如图3所示那样,将实施例1中得到的夹层玻璃用中间膜73夹持于长度300mm×宽度100mm、厚度3mm的浮法玻璃71和72,使用真空层压机(Nisshinbo Mechatronics Inc.制1522N),在热板温度165℃、抽真空时间12分钟、加压压力50kPa、加压时间17分钟的条件制作夹层玻璃70。

[0290] 如图4所示那样,使用瞬间粘接剂,使重1kg的铁板81胶合于玻璃72的单侧,制作胶合有铁板的夹层玻璃80。

[0291] 如图5所示那样,将夹层玻璃80靠于支架91,在100℃的容器内放置1周。放置后,测定玻璃72滑落的距离,基于以下的基准评价前述距离,将该评价作为耐热蠕变性的评价。将评价结果示于表3。

[0292] <评价基准>

[0293] ○:玻璃72滑落的距离为1mm以下。

[0294] ×:玻璃72滑落的距离超过1mm。

[0295] 6. 物性评价 (夹层玻璃中的可见光透射率的测定)

[0296] 基于JIS R3106,使用分光光度计U-4100(Hitachi High-Tech Science Corporation制),测定可见光透射率。需要说明的是,在测定温度20℃下进行。将可见光透射率的测定结果示于表3。

[0297] 7.物性评价(夹层玻璃中的波长800~1100nm的红外线平均透射率的测定)

[0298] 使用分光光度计U-4100,测定波长800~1100nm的红外线平均透射率。需要说明的是,在测定温度20℃下进行。将波长800~1100nm的红外线平均透射率的测定结果示于表3。

[0299] 8.物性评价(夹层玻璃的色差变化 $\Delta E^*ab$ 的评价)

[0300] [耐气候性试验]

[0301] 对于所制作的夹层玻璃,使用耐气候性试验机(SUGA试验机株式会社制Super xenon weather meter SX75),在辐射照度180W/m<sup>2</sup>、黑板温度60℃、相对湿度50%的条件下进行曝露200小时的耐气候性试验。

[0302] [色差变化 $\Delta E^*ab$ 的测定]

[0303] 基于JIS Z8781-4:2013,在耐气候性试验的前后,使用色差计(SUGA试验机株式会社制、SM-T)测定夹层玻璃的色差。将从耐气候性试验前的夹层玻璃的色差减去耐气候性试验后的夹层玻璃的色差而得到的值作为色差变化 $\Delta E^*ab$ 。将色差变化 $\Delta E^*ab$ 的测定结果示于表3。

[0304] 9.物性评价(夹层玻璃的声音透过损失的评价)

[0305] 将实施例1中得到的夹层玻璃用中间膜夹持于市售的绿色玻璃(长度610mm×宽度610mm×厚度1.6mm)2张,使用真空层压机(Nisshinbo Mechatronics Inc.制1522N),在热板温度165℃、抽真空时间12分钟、加压压力50kPa、加压时间17分钟的条件制作夹层玻璃。夹层玻璃的声音透过损失通过ASTM E90-09(用于实验室测定建筑物的间壁和要素的空气传播声音透过损失的标准试验方法)中限定的方法来测定。将声音透过损失的测定结果示于表3。

[0306] 10.物性评价(夹层玻璃的雾度的评价)

[0307] 夹层玻璃的雾度基于JIS K 7105测定。将夹层玻璃的雾度的测定结果示于表3。

[0308] (实施例2)

[0309] B层中配混CW0代替A层中配混CW0,使B层中的面密度成为0.28g/m<sup>2</sup>,除此之外,利用与实施例1同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表2或表3。

[0310] (实施例3)

[0311] B层中,使用100质量份的PVB-2(表1中记载)与15质量份的聚酯多元醇(KURARAY CO.,LTD制、KURARAY poly alcohol P-510;聚[(3-甲基-1,5-戊二醇)-alt-(己二酸)])的组合物代替使用100质量份的PVB-1,除此之外,利用与实施例1同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表2或表3。

[0312] (实施例4)

[0313] B层中,使用100质量份的PVB-2与37质量份的聚酯多元醇的组合物代替使用100质量份的PVB-1,除此之外,利用与实施例1同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表2或表3。

[0314] (比较例1)

[0315] A层中不使用CW0,除此之外,利用与实施例1同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表2或表3。

[0316] (实施例5)

[0317] 在经过氮气置换并干燥的耐压容器中投入作为溶剂的环己烷50kg、作为阴离子聚合引发剂的仲丁基锂130g,投入作为路易斯碱的四氢呋喃290g(仲丁基锂包含10.5质量%的环己烷溶液,因此仲丁基锂的实质添加量为13.9g)。将耐压容器内升温至50℃后,加入苯乙烯1.8kg,使其聚合1小时,接着加入异戊二烯13.2kg使其聚合2小时,进一步加入苯乙烯1.8kg,使其聚合1小时,从而得到包含聚苯乙烯-聚异戊二烯-聚苯乙烯三嵌段共聚物的反应液。

[0318] 在氢气气氛下,向该反应液中添加由辛酸镍和三甲基铝形成的齐格勒系氢化催化剂,在氢气压力1MPa、80℃的条件下使其反应5小时。将该反应液自然冷却和放压后,通过水洗去除上述催化剂,使其真空干燥,从而得到聚苯乙烯-聚异戊二烯-聚苯乙烯三嵌段共聚物的氢化物(以下,记作TPE-2)。接着,在200℃下将TPE-2与TPE-1以质量比1:1进行熔融混炼,得到TPE-3。

[0319] A层中,使用TPE-3代替TPE-1,使CW0的面密度为0.26g/m<sup>2</sup>,使A层的厚度为160μm,使B层的厚度为300μm,除此之外,利用与实施例1同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表2或表3。

[0320] [表1]

PVB	缩醛化度 (摩尔%)	乙酸乙烯酯 单元(摩尔%)	乙烯醇 单元(摩尔%)	聚合度
PVB-1	68.7	0.8	30.5	1100
PVB-2	68.9	0.8	30.3	1700

[0322] [表2]

[0323]

		实施例 1	实施例 2	实施例 3	实施例 4	比较例 1	实施例 5	
		TPE-1	TPE-1	TPE-1	TPE-1	TPE-1	TPE-3	
A层	主成分	种类	12	12	12	12	16	
		聚合物嵌段 (a) 的含量 (质量%)	88	88	88	88	88	84
		聚合物嵌段 (b) 的含量 (质量%)	Ip:Bd =55:45	Ip:Bd =77.5:22.5				
		聚合物嵌段 (b) 的单体质量比	60	60	60	60	60	57.5
		1,2-键合与3,4-键合的总计 (摩尔%)	8.5	8.5	8.5	8.5	8.5	10.3
		双键残留量 (摩尔%)	100	100	100	100	100	100
		含量 (质量份)	CWO	-	CWO	CWO	-	CWO
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	0.25	-	0.25	0.25	-	0.26
		种类	Tinuvin326	Tinuvin326	Tinuvin326	Tinuvin326	Tinuvin326	Tinuvin326
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
B层	主成分	种类	Cyanox2777	Cyanox2777	Cyanox2777	Cyanox2777	Cyanox2777	
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20
		种类	Tinuvin622SF	Tinuvin622SF	Tinuvin622SF	Tinuvin622SF	Tinuvin622SF	Tinuvin622SF
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	1.6	1.6	1.6	1.6	1.6	1.6
		种类	5	5	5	5	5	5
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	PVB-1	PVB-1	PVB-2	PVB-2	PVB-1	PVB-1
		含量 (质量份)	100	100	100	100	100	100
		种类	-	-	P-510	P-510	-	-
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	-	-	15	37	-	-
		种类	-	CWO	-	-	-	-
各层的厚度	添加剂	面密度 (g/m <sup>2</sup> )	0.28	-	-	-	-	
		种类	Tinuvin326	Tinuvin326	Tinuvin326	Tinuvin326	Tinuvin326	Tinuvin326
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	5.1	5.1	5.1	5.1	5.1	5.1
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	330/100/330	330/100/330	330/100/330	330/100/330	330/100/330	300/160/300
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	330/100/330	330/100/330	330/100/330	330/100/330	330/100/330	300/160/300
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	330/100/330	330/100/330	330/100/330	330/100/330	330/100/330	300/160/300
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	330/100/330	330/100/330	330/100/330	330/100/330	330/100/330	300/160/300
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	330/100/330	330/100/330	330/100/330	330/100/330	330/100/330	300/160/300
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	330/100/330	330/100/330	330/100/330	330/100/330	330/100/330	300/160/300
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	330/100/330	330/100/330	330/100/330	330/100/330	330/100/330	300/160/300

[0324]

[表3]

※Ip:异戊二烯单元、Bd:丁二烯单元

※P-510: 聚酯多元醇

[0325]

	实施例 1	实施例 2	实施例 3	实施例 4	比较例 1	实施例 5	
A层	频率 1000Hz	3.0	3.0	3.1	3.0	11.3	
	A层用组合物 频率 1Hz	-21.9	-22.0	-21.9	-21.9	-	
	A层主成分 频率 1000Hz	2.0	2.0	2.0	2.0	10.1	
	频率 1Hz	-22.6	-22.6	-22.6	-22.6	-	
	A层用组合物 频率 1000Hz	1.52	1.53	1.52	1.52	1.45	
	A层主成分 频率 1Hz	1.67	1.68	1.67	1.67	-	
	频率 1000Hz	1.75	1.75	1.75	1.75	1.68	
	A层主成分 频率 1Hz	1.92	1.92	1.92	1.92	-	
	B层用组合物 频率 1000Hz	88.9	89.2	70.7	49.9	88.9	
	B层主成分 频率 1000Hz	90.0	90.0	70.8	50.0	90.0	
B层	频率 1000Hz	1.67	1.68	1.56	1.67	1.67	
	频率 1000Hz	1.69	1.69	1.57	1.43	1.69	
夹层玻璃	耐热蠕变性	○	○	○	○	○	
	可见光透射率 (%) (透明玻璃)	84.7	84.3	84.6	84.5	86.5	84.4
	红外线平均透射率 (%) (透明玻璃)	64.8	63.7	64.7	64.6	73.8	63.7
	可见光透射率 (%) (绿玻璃)	78.3	77.9	78.2	78.4	80.1	78.2
	红外线平均透射率 (%) (绿玻璃)	28.0	26.9	27.9	28.1	37.0	27.6
	色差变化 ( $\Delta E^*_{ab}$ )	0.8	1.0	0.9	0.8	0.4	1.1
	雾度	0.9	0.8	0.9	0.9	0.2	0.9
	声音透过损失 [4000Hz](dB)	41.5	41.5	41.6	41.5	41.5	40.8

[0326] (实施例6)

[0327] A层中,使CWO的面密度为0.16g/m<sup>2</sup>代替使CWO的面密度为0.25g/m<sup>2</sup>,进一步添加ITO (Mitsubishi Materials Electronic Chemicals Co.,Ltd.制:锡掺杂氧化铟),使ITO的面

密度为0.75g/m<sup>2</sup>,除此之外,利用与实施例1同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表4或表5。

[0328] (实施例7)

[0329] A层中,使用ITO代替CWO,使ITO的面密度为1.50g/m<sup>2</sup>,除此之外,利用与实施例1同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表4或表5。

[0330] (实施例8)

[0331] A层中,使ITO的面密度为4.70g/m<sup>2</sup>,除此之外,利用与实施例1同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表4或表5。

[0332] [表4]

[0333]

		实施例 6	实施例 7	实施例 8
		TPE-1	TPE-1	TPE-1
A层	主成分	种类		
		聚合物嵌段 (a) 的含量 (质量%)	12	12
		聚合物嵌段 (b) 的含量 (质量%)	88	88
		聚合物嵌段 (b) 的单体质量比	Ip:Bd =55:45	Ip:Bd =55:45
		1,2-键合与3,4-键合的总计 (摩尔%)	60	60
	添加剂	双键残留量 (摩尔%)	8.5	8.5
		双键残留量 (质量份)	100	100
		隔热材料	CWO/ITO	ITO
		紫外线吸收剂	0.16/0.75	1.50
		抗氧化剂	Tinuvin326	Tinuvin326
B层	主成分	种类		
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	1.0	1.0
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	Cyanox2777	Cyanox2777
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	0.20	0.20
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	Tinuvin622SF	Tinuvin622SF
	添加剂	光稳定剂	1.6	1.6
		粘接剂	5	5
		粘接剂	PVB-1	PVB-1
		粘接剂	100	100
		粘接剂	-	-
各层的厚度	种类			
	含量 (质量份)	-	-	
	含量 (质量份)	-	-	
	面密度 (g/m <sup>2</sup> )	-	-	
	面密度 (g/m <sup>2</sup> )	Tinuvin326	Tinuvin326	
B层/A层/B层 (μm)		330/100/330	330/100/330	330/100/330

※Ip: 异戊二烯单元、Bd: 丁二烯单元

[0334] [表5]

[0335]

		实施例 6	实施例 7	实施例 8	
A层	A层用组合物	频率1000Hz	3.3	3.4	3.5
		频率1Hz	-21.8	-21.7	-21.6
	A层主成分	频率1000Hz	2.0	2.0	2.0
		频率1Hz	-22.6	-22.6	-22.6
B层	A层用组合物	频率1000Hz	1.51	1.53	1.54
		频率1Hz	1.66	1.67	1.68
	A层主成分	频率1000Hz	1.75	1.75	1.75
		频率1Hz	1.92	1.92	1.92
夹层玻璃	B层用组合物	频率1000Hz	88.9	88.9	88.9
		频率1000Hz	90.0	90.0	90.0
	B层主成分	频率1000Hz	1.67	1.67	1.67
		频率1000Hz	1.69	1.69	1.69
		耐热蠕变性			
		可见光透射率(%) (透明玻璃)	84.7	84.9	81.6
		红外线平均透射率(%) (透明玻璃)	67.8	71.6	69.9
		可见光透射率(%) (绿玻璃)	78.4	78.6	75.2
		红外线平均透射率(%) (绿玻璃)	31.0	34.9	33.1
		色差变化( $\Delta E^*_{ab}$ )	0.6	0.7	1.4
		雾度	0.7	0.8	1.1
		声音透过损失[4000Hz](dB)	41.5	41.5	41.5

[0336] (比较例2)

[0337] A层中,不使用CWO,除此之外,利用与实施例4同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表6或表7。

[0338] (比较例3)

[0339] A层中,将隔热材料的面密度改变为1.20g/m<sup>2</sup>、紫外线吸收剂的面密度改变为5.9g/m<sup>2</sup>、抗氧化剂的面密度改变为0.30g/m<sup>2</sup>、光稳定剂的面密度改变为2.4g/m<sup>2</sup>,B层中,将紫外线吸收剂的面密度改变为8.2g/m<sup>2</sup>,除此之外,利用与实施例1同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价

的结果示于表6或表7。

[0340] (参考例1)

[0341] 对A层中使用的嵌段共聚物的氢化处理中,使氢气供给量相对于嵌段共聚物的双键量为50摩尔%,形成双键残留量为50摩尔%的氢化物(以下,记作TPE-1'),除此之外,利用与实施例1同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表6或表7。

[0342] (参考例2)

[0343] 对A层中使用的嵌段共聚物的氢化处理中,使氢气压力为10MPa代替使氢气压力为1MPa,形成双键残留量为1摩尔%的氢化物(以下,记作TPE-1"),除此之外,利用与实施例1同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表6或表7。

[0344] [表6]

[0345]

		比较例 2	比较例 3	参考例 1	参考例 2
		TPE-1	TPE-1	TPE-1'	TPE-1'
A层	主成分	聚合物嵌段 (a) 的含量 (质量%)	12	12	12
		聚合物嵌段 (b) 的含量 (质量%)	88	88	88
		聚合物嵌段 (b) 的单体质量比	Ip:Bd =55:45	Ip:Bd =55:45	Ip:Bd =55:45
		1,2-键合与3,4-键合的总计 (摩尔%)	60	60	60
		双键残留量 (摩尔%)	8.5	8.5	50
	添加剂	隔热材料	100	100	100
		紫外线吸收剂	-	CWO	CWO
		抗氧化剂	Tinuvin326	Tinuvin326	Tinuvin326
		光稳定剂	1.0	5.9	1.0
		粘接剂	Cyanox2777	Cyanox2777	Cyanox2777
B层	主成分	面密度 (g/m <sup>2</sup> )	0.20	0.30	0.20
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	Tinuvin622SF	Tinuvin622SF	Tinuvin622SF
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	1.6	2.4	1.6
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	5	5	5
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	PVB-2	PVB-1	PVB-1
	添加剂	增塑剂	100	100	100
		隔热材料	P-510	-	-
		紫外线吸收剂	37	-	-
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	-	-	-
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	Tinuvin326	Tinuvin326	Tinuvin326
各层的厚度		5.1	8.2	5.1	
B层/A层/B层(μm)		330/100/330	330/100/330	330/100/330	

※Ip: 异戊二烯单元、Bd: 丁二烯单元

[0346]

[表7]

[0347]

		比较例 2	比较例 3	参考例 1	参考例 2
A 层	A 层用组合物	频率 1000Hz	3.1	3.1	3.1
		频率 1Hz	-	-21.9	-21.9
	A 层主成分	频率 1000Hz	2.0	2.0	2.0
		频率 1Hz	-	-22.6	-22.6
	A 层用组合物	频率 1000Hz	1.53	1.50	1.52
		频率 1Hz	-	-	1.67
	A 层主成分	频率 1000Hz	1.75	1.75	1.75
		频率 1Hz	-	-	1.92
	B 层	B 层用组合物	49.9	88.9	88.9
		B 层主成分	50.0	90.0	90.0
B 层用组合物		1.42	1.67	1.67	
B 层主成分		1.43	1.69	1.69	
耐热蠕变性		○	○	○	×
可见光透射率 (%) (透明玻璃)		86.5	54.8	84.7	84.7
红外线平均透射率 (%) (透明玻璃)		73.8	30.1	64.8	64.8
可见光透射率 (%) (绿玻璃)		80.1	48.4	78.3	78.3
红外线平均透射率 (%) (绿玻璃)		137.0	4.8	28.0	28.0
色差变化( $\Delta E^*_{ab}$ )		0.8	3.9	5.8	0.4
雾度		0.9	5.2	0.2	0.2
声音透过损失 [4000Hz](dB)		41.5	41.5	41.5	41.5

[0348] (实施例9)

[0349] B层中,使用离聚物(Du Pont株式会社制、SentryGlas(R) Interlayer)代替使用PVB-1,不使用粘接力调节剂,除此之外,利用与实施例1同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表8或表9。

[0350] (实施例10)

[0351] B层中,使用离聚物代替使用PVB-1,不使用粘接力调节剂,除此之外,利用与实施例5同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表8或表9。

[0352] (实施例11)

[0353] 在200℃下将TPE-2与TPE-1与质量比3:1进行熔融混炼,得到TPE-4。

[0354] 作为A层的主成分,使用TPE-4代替TPE-1,作为B层的主成分,使用离聚物(Du Pont株式会社制、SentryGlas(R) Interlayer)代替PVB-1,使A层的厚度为220μm,使B层的厚度为270μm,不使用粘接力调节剂,除此之外,利用与实施例1同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表8或表9。

[0355] (实施例12)

[0356] A层中,使用TPE-2代替TPE-4,将隔热材料的面密度改变为0.40g/m<sup>2</sup>、紫外线吸收剂的面密度改变为5.9g/m<sup>2</sup>、抗氧化剂的面密度改变为0.3g/m<sup>2</sup>、光稳定剂的面密度改变为2.4g/m<sup>2</sup>,B层中,将紫外线吸收剂的面密度改变为8.2g/m<sup>2</sup>,使A层的厚度为330μm,使B层的厚度为215μm,除此之外,利用与实施例11同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表8或表9。

[0357] (实施例13)

[0358] B层中配混CW0代替A层中配混CW0,使B层中的面密度为0.28g/m<sup>2</sup>,除此之外,利用与实施例11同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表8或表9。

[0359] (比较例4)

[0360] A层中不使用CW0,除此之外,利用与实施例11同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表8或表9。

[0361] [表8]

[0362]

		实施例 9	实施例 10	实施例 11	实施例 12	实施例 13	实施例 4		
A层	主成分	种类	TPE-1	TPE-3	TPE-4	TPE-2	TPE-4	比较例 4	
		聚合物嵌段 (a) 的含量 (质量%)	12	16	18	20	18	18	
		聚合物嵌段 (b) 的含量 (质量%)	88	84	82	80	82	82	
		聚合物嵌段 (b) 的单体质量比	Ip:Bd =55:45	Ip:Bd =77.5:22.5	Ip:Bd =88.7:11.3	Ip=100	Ip:Bd =88.7:11.3	Ip:Bd =88.7:11.3	
		1,2-键合与3,4-键合的总计 (摩尔%)	60	57.5	56.3	55	56.3	56.3	
		双键残留量 (摩尔%)	8.5	10.3	11.1	12.0	11.1	11.1	
		含量 (质量份)	100	100	100	100	100	100	
		隔热材料	CWO	CWO	CWO	CWO	-	-	
		紫外线吸收剂	0.25	0.26	0.25	0.40	-	-	
	添加剂	种类	Tinuvin326	Tinuvin326	Tinuvin326	Tinuvin326	Tinuvin326	Tinuvin326	
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	1.0	1.0	1.0	5.9	1.0	1.0	
		种类	Cyanox2777	Cyanox2777	Cyanox2777	Cyanox2777	Cyanox2777	Cyanox2777	
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	0.20	0.20	0.20	0.30	0.20	0.20	
B层	主成分	种类	Tinuvin622SF	Tinuvin622SF	Tinuvin622SF	Tinuvin622SF	Tinuvin622SF		
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	1.6	1.6	1.6	2.4	1.6		
		含量 (质量份)	-	-	-	-	-		
	添加剂	种类	高聚物	高聚物	高聚物	高聚物	高聚物	高聚物	
		含量 (质量份)	100	100	100	100	100		
		种类	-	-	-	-	-		
		面密度 (g/m <sup>2</sup> )	-	-	-	-	-		
各层的厚度	种类	Tinuvin326	Tinuvin326	Tinuvin326	Tinuvin326	Tinuvin326	Tinuvin326		
	面密度 (g/m <sup>2</sup> )	5.1	5.1	5.1	8.2	5.1	5.1		
		B层/A层/B层 (μm)		330/100/330	300/160/300	270/220/270	215/330/215	270/220/270	270/220/270

※Ip: 异戊二烯单元、Bd: 丁二烯单元

[0363]

[表9]

[0364]

		实施例 9	实施例 10	实施例 11	实施例 12	实施例 13	比较例 4
A 层	频率 1000Hz	3.0	11.2	17.1	19.8	17.3	17.3
	A层用组合物	-	-	-3.9	-3.0	-3.7	-3.7
	tan δ 峰温度 (°C)	2.0	10.1	12.4	18.3	12.4	12.4
	A层主成分	-	-	-8.6	-5.2	-8.6	-8.6
	频率 1Hz	1.60	1.53	1.49	1.36	1.50	1.50
	A层用组合物	-	-	1.50	1.61	1.65	1.65
	tan δ 峰值	1.75	1.68	1.64	1.60	1.64	1.64
	A层主成分	-	-	1.90	1.89	1.90	1.90
	频率 1Hz	82.8	82.8	82.8	82.4	82.9	82.8
	B层用组合物	83.0	83.0	83.0	83.0	83.0	83.0
B 层	tan δ 峰温度 (°C)	0.58	0.58	0.58	0.58	0.59	0.58
	B层主成分	0.60	0.60	0.60	0.60	0.60	0.60
	B层用组合物	○	○	○	○	○	○
	B层主成分	○	○	○	○	○	○
夹层玻璃	耐热蠕变性	84.7	84.5	84.7	82.4	84.3	86.5
	可见光透射率 (%) (透明玻璃)	64.7	64.4	64.8	59.3	63.7	73.8
	红外线平均透射率 (%) (透明玻璃)	78.3	78.2	78.2	76.0	77.9	80.1
	可见光透射率 (%) (绿玻璃)	28.0	27.6	27.9	22.5	26.9	37.1
	红外线平均透射率 (%) (绿玻璃)	0.8	1.1	0.9	1.1	1.1	0.9
	色差变化 (ΔE*ab)	0.9	0.9	1.1	2.0	0.5	1.1
	雾度	41.5	40.8	39.2	38.3	39.1	39.2
声音透过损失 [4000Hz](dB)							

[0365] (实施例14)

[0366] 在经过氮气置换并干燥的耐压容器中投入作为溶剂的环己烷50kg、作为阴离子聚合引发剂的仲丁基锂90g,投入作为路易斯碱的N,N,N',N'-四甲基乙二胺(以下,称为TMEDA)30g(仲丁基锂包含10.5质量%的环己烷溶液,因此仲丁基锂的实质添加量为9.5g)。将耐压容器内升温至50℃后,加入苯乙烯1.0kg,使其聚合1小时,接着加入丁二烯14.6kg使其聚合2小时,进一步加入苯乙烯1.0kg,使其聚合1小时,从而得到包含聚苯乙烯-聚丁二烯-聚苯乙烯三嵌段共聚物的反应液。

[0367] 在氢气气氛下,向该反应液中添加由辛酸镍和三甲基铝形成的齐格勒系氢化催化剂,在氢气压力1MPa、80℃的条件下使其反应5小时。将该反应液自然冷却和放压后,通过水洗去除上述催化剂,使其真空干燥,从而得到聚苯乙烯-聚丁二烯-聚苯乙烯三嵌段共聚物的氢化物(以下,记作TPE-5)。

[0368] A层中,使用TPE-5代替TPE-1,不使用粘接力调节剂,B层中,使用离聚物代替PVB-1,除此之外,利用与实施例1同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表10或表11。

[0369] (实施例15)

[0370] 在经过氮气置换并干燥的耐压容器中投入作为溶剂的环己烷50kg、作为阴离子聚合引发剂的仲丁基锂82g,投入作为路易斯碱的四氢呋喃110g(仲丁基锂包含10.5质量%的环己烷溶液,因此仲丁基锂的实质添加量为8.6g)。将耐压容器内升温至50℃后,加入苯乙烯0.5kg使其聚合1小时,接着加入异戊二烯8.2kg和丁二烯6.5kg,使其聚合2小时,进一步加入苯乙烯1.5kg,使其聚合1小时,从而得到包含聚苯乙烯-聚(异戊二烯/丁二烯)-聚苯乙烯三嵌段共聚物的反应液。

[0371] 在氢气气氛下,向该反应液中添加由辛酸镍和三甲基铝形成的齐格勒系氢化催化剂,在氢气压力1MPa、80℃的条件下使其反应5小时。将该反应液自然冷却和放压后,通过水洗去除上述催化剂,使其真空干燥,从而得到聚苯乙烯-聚(异戊二烯/丁二烯)-聚苯乙烯三嵌段共聚物的氢化物(以下,记作TPE-6)。

[0372] A层中,使用TPE-6代替TPE-5,除此之外,利用与实施例14同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表10或表11。

[0373] [表10]

[0374]

			实施例 14	实施例 15	
A 层	主成分	聚合物	种类	TPE-5	TPE-6
			聚合物嵌段 (a) 的含量 (质量%)	12	12
			聚合物嵌段 (b) 的含量 (质量%)	88	88
			聚合物嵌段 (b) 的 单体的质量比	Bd=100	Ip:Bd =55:45
			1,2-键合与3,4-键合的 总计 (摩尔%)	77.0	47
			双键残留量 (摩尔%)	3.0	8.5
			含量 (质量份)	100	100
	添加剂	隔热材料	种类	CWO	CWO
			面密度 (g/m <sup>2</sup> )	0.25	0.25
		紫外线 吸收剂	种类	Tinuvin326	Tinuvin326
			面密度 (g/m <sup>2</sup> )	1.0	1.0
		抗氧化 剂	种类	Cyanox2777	Cyanox2777
			面密度 (g/m <sup>2</sup> )	0.20	0.20
		光稳定剂	种类	Tinuvin622SF	Tinuvin622SF
面密度 (g/m <sup>2</sup> )	1.6		1.6		
粘接力 调节剂	含量 (质量份)	-	-		
B 层	主成分	聚合物	种类	离聚物	离聚物
			含量 (质量份)	100	100
	增塑剂	种类	-	-	
		含量 (质量份)	-	-	
	添加剂	隔热 材料	种类	-	-
			面密度 (g/m <sup>2</sup> )	-	-
		紫外线 吸收剂	种类	Tinuvin326	Tinuvin326
面密度 (g/m <sup>2</sup> )	5.1		5.1		
各层的厚度			B层/A层/B层 (μm)	330/100/330	330/100/330

[0375] ※Ip: 异戊二烯单元、Bd: 丁二烯单元

[0376] [表11]

[0377]

		实施例 14	实施例 15
A 层	A层用组合物	频率 1000Hz	-5.5
		频率 1Hz	-32.2
	A层主成分	频率 1000Hz	-6.0
		频率 1Hz	-34.3
	A层用组合物	频率 1000Hz	1.40
		频率 1Hz	1.51
	A层主成分	频率 1000Hz	1.53
		频率 1Hz	1.67
B 层	B层用组合物	82.8	
	B层主成分	83	
	B层用组合物	0.58	
	B层主成分	0.60	
夹层玻璃	耐热蠕变性	○	○
		可见光透射率 (%) (透明玻璃)	84.6
	红外线平均透射率 (%) (透明玻璃)	64.7	
	可见光透射率 (%) (绿玻璃)	78.2	
	红外线平均透射率 (%) (绿玻璃)	27.9	
	色差变化( $\Delta E^*ab$ ) 雾度	0.8	1.1
声音透过损失[4000Hz](dB)	37.5	37.0	

[0378] (参考例3)

[0379] A层中使用:不使实施例11中得到的聚苯乙烯-聚异戊二烯-聚苯乙烯三嵌段共聚物氢化,而在200℃下将该嵌段共聚物与TPE-1'以质量比3:1进行熔融混炼而得到的物质(以下,记作TPE-4')来代替TPE-4,除此之外,利用与实施例11同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表12或表13。

[0380] (参考例4)

[0381] 对嵌段共聚物的氢化处理中,使氢气压力为10MPa代替使氢气压力为1MPa,A层中,使用在200℃下将使双键残留量为1摩尔%的氢化物与TPE-1'以质量比3:1进行熔融混炼而

得到的物质(以下,记作TPE-4'')代替TPE-4,除此之外,利用与实施例11同样的方法制作夹层玻璃用中间膜和夹层玻璃,进行各种物性评价。将夹层玻璃用中间膜的构成和各种物性评价的结果示于表12或表13。

[0382] [表12]

[0383]

			参考例 3	参考例 4	
A层	主成分	聚合物	种类	TPE-4'	TPE-4''
			聚合物嵌段(a)的含量(质量%)	18	18
			聚合物嵌段(b)的含量(质量%)	82	82
			聚合物嵌段(b)的单体的质量比	Ip:Bd =88.7:11.3	Ip:Bd =88.7:11.3
			1,2-键合与3,4-键合的总计(摩尔%)	56.3	56.3
			双键残留量(摩尔%)	87.5	1
			含量(质量份)	100	100
	添加剂	隔热材料	种类	CWO	CWO
			面密度(g/m <sup>2</sup> )	0.25	0.25
		紫外线吸收剂	种类	Tinuvin326	Tinuvin326
			面密度(g/m <sup>2</sup> )	1.0	1.0
		抗氧化剂	种类	Cyanox2777	Cyanox2777
			面密度(g/m <sup>2</sup> )	0.20	0.20
		光稳定剂	种类	Tinuvin622SF	Tinuvin622SF
面密度(g/m <sup>2</sup> )	1.6		1.6		
B层	主成分	聚合物	种类	离聚物	离聚物
			含量(质量份)	100	100
	增塑剂	种类	-	-	
		含量(质量份)	-	-	
	添加剂	隔热材料	种类	-	-
			面密度(g/m <sup>2</sup> )	-	-
		紫外线吸收剂	种类	Tinuvin326	Tinuvin326
面密度(g/m <sup>2</sup> )	5.1		5.1		
各层的厚度			B层/A层/B层(μm)	270/220/270	270/220/270

[0384] ※Ip:异戊二烯单元、Bd:丁二烯单元

[0385] [表13]

[0386]

		参考例 3	参考例 4
A 层	A层用组合物	频率1000Hz	17.1
		频率1Hz	-3.9
	A层主成分	频率1000Hz	12.4
		频率1Hz	-8.6
	A层用组合物	频率1000Hz	1.49
		频率1Hz	1.50
	A层主成分	频率1000Hz	1.64
		频率1Hz	1.90
B 层	B层用组合物	频率1000Hz	82.8
		频率1000Hz	83
	B层用组合物	频率1000Hz	0.58
		频率1000Hz	0.60
	B层主成分	频率1000Hz	82.8
		频率1000Hz	83
	B层主成分	频率1000Hz	0.58
		频率1000Hz	0.60
夹层玻璃	耐热蠕变性		○
	可见光透射率 (%) (透明玻璃)		84.5
	红外线平均透射率 (%) (透明玻璃)		64.6
	可见光透射率 (%) (绿玻璃)		78.0
	红外线平均透射率 (%) (绿玻璃)		27.6
	色差变化( $\Delta E^*_{ab}$ )		6.4
	雾度		1.1
	声音透过损失 [4000Hz](dB)		39.2

- [0387] 附图标记说明
- [0388] 1 A层
- [0389] 2a B层
- [0390] 2b B层
- [0391] 11 A层的tan $\delta$
- [0392] 70 夹层玻璃
- [0393] 71 玻璃
- [0394] 72 玻璃
- [0395] 73 夹层玻璃用中间膜

- [0396] 80 夹层玻璃
- [0397] 81 铁板
- [0398] 91 支架

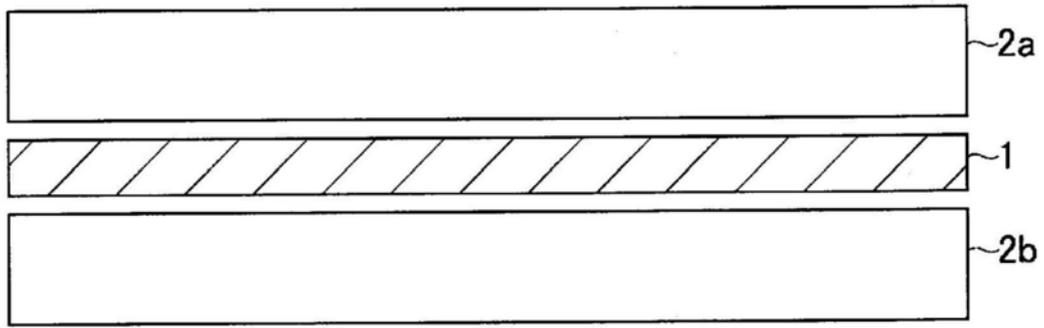


图1

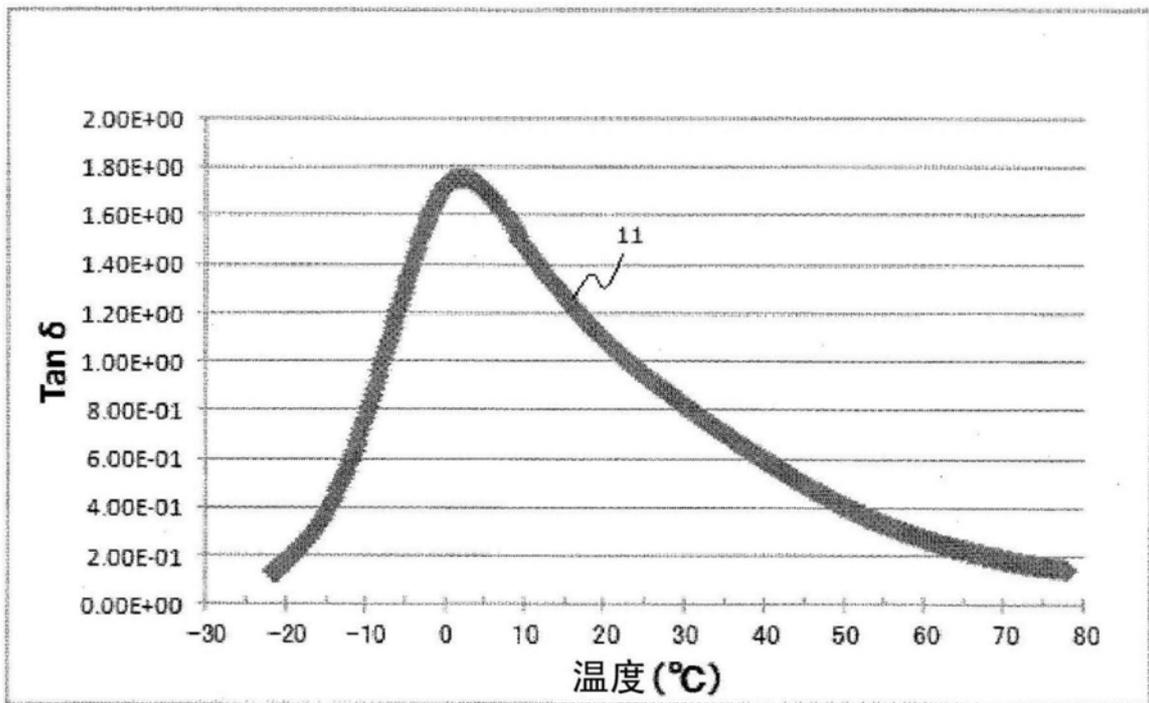


图2

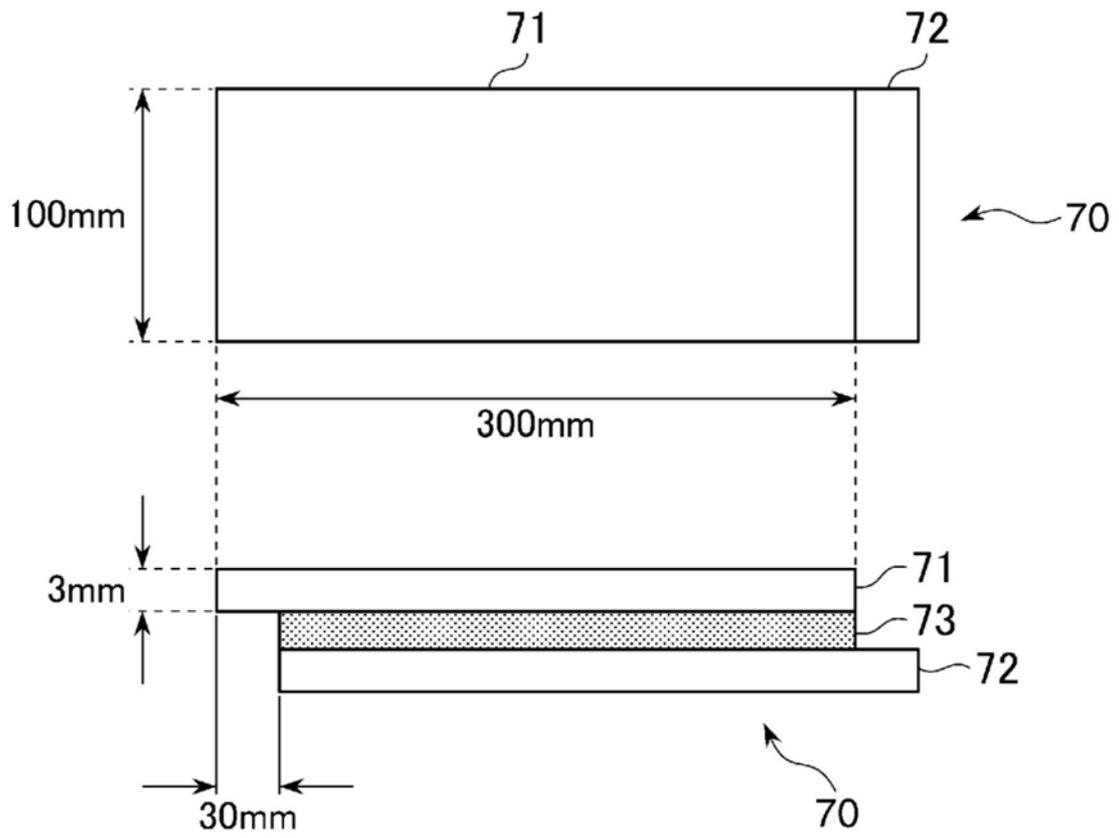


图3

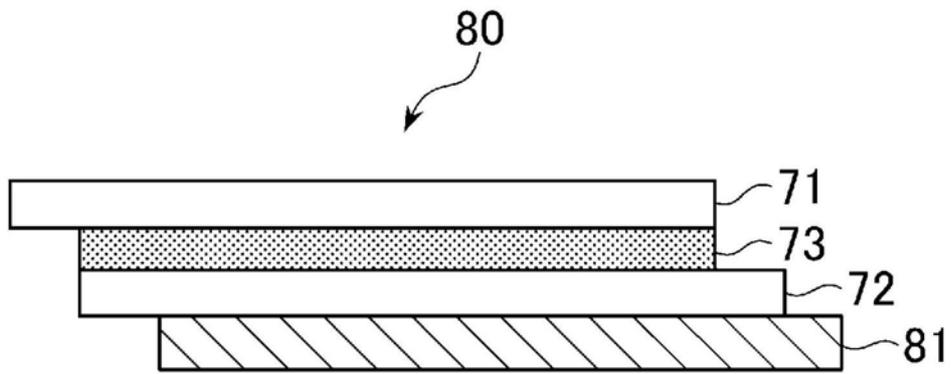


图4

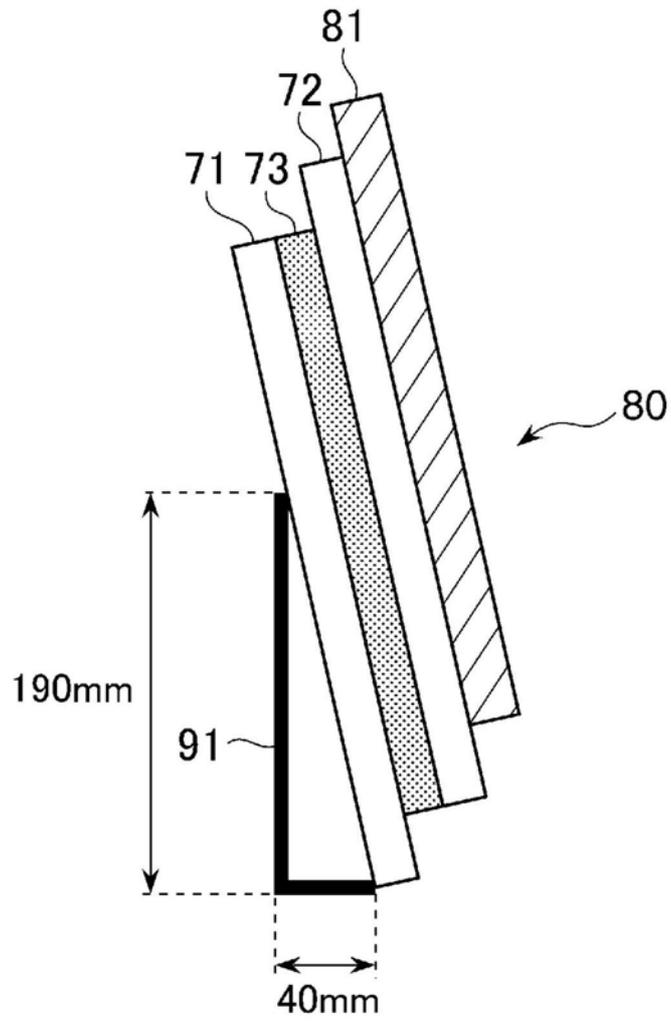


图5