



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I740944 B

(45)公告日：中華民國 110 (2021) 年 10 月 01 日

(21)申請案號：106116412

(22)申請日：中華民國 106 (2017) 年 05 月 18 日

(51)Int. Cl. : C08F297/04 (2006.01)

B32B17/10 (2006.01)

B32B27/30 (2006.01)

(30)優先權：2016/05/18 日本

2016-100000

2016/12/19 日本

2016-245931

(71)申請人：日商可樂麗股份有限公司(日本) KURARAY CO., LTD. (JP)

日本

(72)發明人：千田泰史 SENDA, YASUSHI (JP)；大下晉彌 OSHITA, SHINYA (JP)

(74)代理人：黃政誠；丁國隆

(56)參考文獻：

CN 103827157A

JP 2000-219781A

WO 2016/039257A1

審查人員：吳志明

申請專利範圍項數：29 項 圖式數：23 共 94 頁

(54)名稱

氫化嵌段共聚物、制振材料、隔音材料、層合玻璃用中間膜、橡皮障、鞋底材料、地板材料、積層體、及層合玻璃

(57)摘要

一種氫化嵌段共聚物，其具有：含有超過 70 莫耳%之源自於芳香族乙烯基化合物之結構單元的聚合物嵌段(A)、含有 30 莫耳%以上之源自於選自包含共軛二烯化合物及異丁烯的群組之至少 1 種之結構單元的聚合物嵌段(B)，並滿足下述條件(1)及(2)：

條件(1)：聚合物嵌段(A)在前述嵌段共聚物中之含量為 1~30 質量%。

條件(2)：就聚合物嵌段(B)而言，當判斷為氫化率 100 莫耳%之結構時，源自於選自包含共軛二烯化合物及異丁烯的群組之至少 1 種之結構單元的主鏈之亞甲基鏈長之平均值為 1.0~6.0。

公告本

I740944

發明摘要

※ 申請案號：106116412

※ 申請日：106/05/18

※IPC 分類：C08F 297/04 (2006.01)
B32B 17/10 (2006.01)
B32B 27/30 (2006.01)

【發明名稱】(中文/英文)

氫化嵌段共聚物、制振材料、隔音材料、層合玻璃用中間膜、橡皮障、鞋底材料、地板材料、積層體、及層合玻璃

【中文】

一種氫化嵌段共聚物，其具有：含有超過70莫耳%之源自於芳香族乙烯基化合物之結構單元的聚合物嵌段(A)、含有30莫耳%以上之源自於選自包含共軛二烯化合物及異丁烯的群組之至少1種之結構單元的聚合物嵌段(B)，並滿足下述條件(1)及(2)：

條件(1)：聚合物嵌段(A)在前述嵌段共聚物中之含量為1~30質量%。

條件(2)：就聚合物嵌段(B)而言，當判斷為氫化率100莫耳%之結構時，源自於選自包含共軛二烯化合物及異丁烯的群組之至少1種之結構單元的主鏈之亞甲基鏈長之平均值為1.0~6.0。

【英文】

無。

【代表圖】

【本案指定代表圖】：無。

【本代表圖之符號簡單說明】：

無。

【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】：

無。

發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動)

【發明名稱】(中文/英文)

氫化嵌段共聚物、制振材料、隔音材料、層合玻璃用中間膜、橡皮障、鞋底材料、地板材料、積層體、及層合玻璃

【技術領域】

【0001】本發明關於氫化嵌段共聚物、制振材料、隔音材料、層合玻璃用中間膜、橡皮障(dam rubber)、鞋底材料、地板材料、積層體及層合玻璃。

【先前技術】

【0002】以往，於窗戶等之要求隔音的場所將玻璃施工時，進行增厚玻璃的厚度，藉由重量提高隔音效果，或使用積層有2片以上的玻璃板與中間膜而成之層合玻璃來提高隔音效果之方法。於後者的使用中間膜之方法中，藉由中間膜的阻尼性能與將振動能轉換成熱能的中間膜之性能而提高玻璃的隔音性。

【0003】作為改善隔音性之方法，有提案：以經可塑化的聚乙烯基縮醛系樹脂積層有聚苯乙烯與橡膠系樹脂的共聚物之中間膜(例如，參照專利文獻1)。

又，有提案：由聚乙烯基縮丁醛所成之具有一定的耐衝擊性及隔音性之層合玻璃用中間膜及層合玻璃(例如，參照專利文獻2)。

【0004】再者近年來，從節能化之觀點來看，汽車等

的燃油效率提高愈來愈成為大的課題。作為提高汽車等的燃油效率用之方法，可舉出抑制空調的使用之方法、將汽車輕量化之方法等。

作為抑制空調的使用之方法，可舉出將能抑制汽車內的溫度上升之隔熱性高的層合玻璃使用於汽車的窗玻璃之方法。作為將汽車輕量化之工夫，可舉出將窗玻璃或鋼板輕量化之方法。

為了將窗玻璃輕量化，必須減薄層合玻璃。為了將鋼板輕量化，有減薄板的厚度或以鋁或樹脂代替鋼等之方法。然而，於任一情況中，皆有因變輕而隔音性降低之問題。

【0005】作為製造具有合宜的隔音性之層合玻璃之方法，有提案：將含有苯乙烯與橡膠系樹脂單體的共聚物之層，以含有熱接著性樹脂的層夾持，成為3層構成的中間膜，以2片以上的玻璃層合該中間膜而製造層合玻璃之方法(例如，參照專利文獻3)；及積層含有聚乙烯基縮醛的層與含有聚烯烴的層，使用層間接著性經提高之積層體來製作層合玻璃之方法(例如，參照專利文獻4)。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0006】

專利文獻1：日本特開2007-91491號公報

專利文獻2：國際公開第2005/018969號

專利文獻3：日本特開2009-256128號公報

專利文獻4：日本特開2012-6406號公報

【發明內容】

[發明欲解決之課題]

【0007】然而，於任一習知技術中，皆在將層合玻璃減薄時，有隔音性變不充分之問題。由於層合玻璃多在玻璃與中間膜之間設有接著輔助層(亦稱為皮層)，對於中間膜亦要求低收縮性。再者，對於中間膜要求透明性，因收縮所致的皺紋而有看起來不均勻之問題，故亦要求低收縮性。

因此，本發明之課題在於：提供對於任意厚度的層合玻璃，能提高隔音性之氫化嵌段共聚物；以及提供使用該氫化嵌段共聚物而得之制振材料、隔音材料、低收縮性的層合玻璃用中間膜、橡皮障、鞋底材料、地板材料、積層體及層合玻璃。

[解決課題之手段]

【0008】本發明者們為了解決上述課題，進行專心致力的檢討，結果在隔音性不充分之原因中，查明因為重合效應(coincidence effect)(即玻璃等的剛性材料之彎曲振動與入射音波之振動一致而發生共振狀態之現象)而聲音透過損失(STL: Sound Transmission Loss)降低的頻率與氫化嵌段共聚物之 $\tan\delta$ 的峰值頻率之關係有較大影響之可能性高。再者，查明藉由減低STL的降低程度本身，使重合效應發生的最低頻率(所謂的重合臨界頻率)高頻率化，則低頻率範圍的隔音性變更優異。

因此，藉由調整此等[(1)因重合效應而STL降低的頻率與氫化嵌段共聚物之 $\tan\delta$ 的峰值頻率之關係，(2)STL

的降低程度之減低，及(3)重合臨界頻率的高頻率化]，進行即便使用於任何厚度的層合玻璃，也能有效率地提高隔音性之材料的開發。具體而言，查明若為一種滿足特定條件之氫化嵌段共聚物，則可解決前述課題，而達成本發明，該氫化嵌段共聚物具有：含有指定量的源自於芳香族乙烯基化合物之結構單元的聚合物嵌段(A)、含有指定量的源自於選自包含共軛二烯化合物及異丁烯的群組之至少1種之結構單元的聚合物嵌段(B)。

【0009】本發明關於下述[1]～[29]。

[1]一種氫化嵌段共聚物，其具有：含有超過70莫耳%之源自於芳香族乙烯基化合物之結構單元的聚合物嵌段(A)、含有30莫耳%以上之源自於選自包含共軛二烯化合物及異丁烯的群組之至少1種之結構單元的聚合物嵌段(B)，並滿足下述條件(1)及(2)，

條件(1)：聚合物嵌段(A)在前述嵌段共聚物中之含量為1～30質量%；

條件(2)：就聚合物嵌段(B)而言，當判斷為氫化率100莫耳%之結構時，源自於選自包含共軛二烯化合物及異丁烯的群組之至少1種之結構單元的主鏈之亞甲基鏈長之平均值為1.0～6.0。

[2]如上述[1]之氫化嵌段共聚物，其中，前述聚合物嵌段(B)之氫化率為80～99莫耳%。

[3]如上述[1]或[2]之氫化嵌段共聚物，其中，就前述聚合物嵌段(B)而言，當判斷為氫化率100莫耳%之結構時，主鏈之每一個伸乙基所具有之側鏈之取代基常數(

ν)之平均值爲0.25~1.1。

[4]如上述[1]~[3]中任一項之氫化嵌段共聚物，其中，就前述聚合物嵌段(B)而言，當判斷爲氫化率100莫耳%之結構時，主鏈之每一個伸乙基所具有之側鏈之取代基常數(ν)之平均值爲0.30~0.55。

[5]如上述[1]~[4]中任一項之氫化嵌段共聚物，其中，前述共軛二烯化合物爲異戊二烯、丁二烯、或異戊二烯與丁二烯之混合物。

[6]如上述[1]~[5]中任一項之氫化嵌段共聚物，其中，前述共軛二烯化合物爲異戊二烯。

[7]如上述[1]~[6]中任一項之氫化嵌段共聚物，其中，就前述條件(1)而言，聚合物嵌段(A)在前述嵌段共聚物中之含量爲3.5~4.5質量%。

[8]如上述[1]~[7]中任一項之氫化嵌段共聚物，其中，就前述條件(2)而言，源自於共軛二烯化合物之結構單元的主鏈之亞甲基鏈長之平均值爲1.5~3.0。

[9]如上述[1]~[8]中任一項之氫化嵌段共聚物，其中，根據JIS K7244-10(2005年)，依應變量0.1%、頻率1Hz、測量溫度-70~200℃、升溫速度3℃/分鐘之條件下所測出之 $\tan\delta$ 之峰頂強度爲0.5以上。

[10]如上述[1]~[9]中任一項之氫化嵌段共聚物，其中，根據下述成形條件進行成形所得到之厚度1mm之薄膜的形態爲具有球體(球狀)或圓柱體(柱狀)之微相分離結構，

成形條件：在溫度230℃、壓力10MPa下加壓3分

鐘。

[11]如上述[1]～[10]中任一項之氫化嵌段共聚物，其中，根據下述成形條件進行成形所得到之厚度1mm之薄膜的形態為具有球體(球狀)之微相分離結構，

成形條件：在溫度230℃、壓力10MPa下加壓3分鐘。

[12]如上述[1]～[11]中任一項之氫化嵌段共聚物，其中，如下所定義之MD方向之收縮率為15%以下，

MD方向之收縮率：當將依230℃、無延伸的條件下進行壓出成形所得到之帶狀薄片(MD/TD=4.0cm/3.5cm，1mm)於230℃下靜置於滑石上1星期之後的MD方向之長度設為y，將初期MD方向之長度(4.0cm)設為x時，MD方向之收縮率= $\{(x-y)/x\} \times 100(\%)$ 。

[13]一種制振材料，其含有如上述[1]～[12]中任一項之氫化嵌段共聚物而成。

[14]一種隔音材料，其含有如上述[1]～[12]中任一項之氫化嵌段共聚物而成。

[15]一種層合玻璃用中間膜，其含有如上述[1]～[12]中任一項之氫化嵌段共聚物而成。

[16]如上述[15]記載之層合玻璃用中間膜，其係含有氫化嵌段共聚物而成者，該氫化嵌段共聚物係如上述[1]～[12]中任一項之氫化嵌段共聚物，其使用依據下述成形條件進行成形所得到之厚度1.0mm之薄片狀試驗片，根據JIS K7244-10(2005年)，依應變量0.1%、頻率1Hz、測量溫度-70～200℃、升溫速度3℃/分鐘之條件下所測

出之 $\tan\delta$ 之峰頂溫度為 $-40\sim 35^{\circ}\text{C}$ ，

成形條件：在溫度 230°C 、壓力 10MPa 下加壓 3 分鐘。

[17]一種橡皮障，其含有如上述 [1]～[12] 中任一項之氫化嵌段共聚物而成。

[18]一種鞋底材料，其含有如上述 [1]～[12] 中任一項之氫化嵌段共聚物而成。

[19]一種地板材料，其含有如上述 [1]～[12] 中任一項之氫化嵌段共聚物而成。

[20]一種積層體，其具有：含有如上述 [1]～[12] 中任一項之氫化嵌段共聚物而成之 X 層、積層在該 X 層之至少一面上之 Y 層。

[21]如上述 [20] 之積層體，其係具有前述 X 層、複數個前述 Y 層，X 層積層在至少 2 個 Y 層之間而成的積層體，滿足下述式 (I)，

$$200 \leq \tan\delta\text{之峰頂頻率} \times \sqrt{B/m} \leq 2,000,000 \quad (\text{I})$$

(式 (I) 中，B 表示積層體每單元寬度之彎曲剛性 ($\text{Pa} \cdot \text{m}^3$)，m 表示積層體之面密度 (kg/m^2)， $\tan\delta$ 之峰頂頻率 (Hz) 表示依據下述方法所求得之氫化嵌段共聚物之 $\tan\delta$ 之波峰為最大時的頻率)，

$\tan\delta$ 之峰頂頻率之測量方法：使用依據下述成形條件進行成形所得之厚度 1.0mm 之薄片狀試驗片，根據 JIS K7244-10(2005 年)，基於依應變量 0.1% 、頻率 $1\sim 100\text{Hz}$ 、測量溫度 20°C 、 10°C 、 0°C 、 -10°C 、 -30°C 之條件下所測出之實測值，製作採用 WLF 法所計算出之主曲

線，求得峰頂頻率，

成形條件：在溫度 230℃、壓力 10MPa 下加壓 3 分鐘。

[22]如上述[20]或[21]記載之積層體，其中，前述 Y 層或複數個前述 Y 層中之至少其一為玻璃層。

[23]如上述[22]之積層體，其中，前述玻璃層之厚度為 0.5～5mm。

[24]如上述[20]～[23]中任一項之積層體，其中，複數個前述 Y 層中之至少其一為含有不同於上述[1]～[12]中任一項之氫化嵌段共聚物的熱塑性樹脂(i)而成之層。

[25]如上述[24]記載之積層體，其中，前述熱塑性樹脂(i)為聚乙炔基縮醛樹脂。

[26]如上述[24]之積層體，其中，前述熱塑性樹脂(i)為離子聚合物。

[27]如上述[24]～[26]中任一項之積層體，其係依序積層為玻璃層/含有前述熱塑性樹脂(i)而成之層/前述 X 層/含有前述熱塑性樹脂(i)而成之層/玻璃層。

[28]一種層合玻璃，其係由如上述[20]～[27]中任一項之積層體所構成。

[29]如上述[28]之層合玻璃，其係汽車用擋風玻璃、汽車用側窗玻璃、汽車用天窗、汽車用後窗玻璃或抬頭顯示器用玻璃。

[發明之效果]

【0010】依照本發明，可提供對於任意厚度的層合玻璃，能提高隔音性之氫化嵌段共聚物，以及使用該氫化

嵌段共聚物而得之制振材料、隔音材料、低收縮性的層合玻璃用中間膜、橡皮障、鞋底材料、地板材料、積層體及層合玻璃。

【圖式簡單說明】

【0011】

圖 1 係球體之微相分離結構的概略圖。

圖 2 係圓柱體之微相分離結構的概略圖。

圖 3 係層狀之微相分離結構的概略圖。

圖 4(a)顯示實施例 1 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示實施例 1 中使用之氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

圖 5(a)顯示實施例 2 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示實施例 2 中使用之氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

圖 6(a)顯示實施例 3 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示實施例 3 中使用之氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

圖 7(a)顯示實施例 4 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示實施例 4 中使用之氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

圖 8(a)顯示實施例 5 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示實施例 5 中使用之氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

圖 9(a)顯示實施例 6 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示顯示實施例 6 中使用之

氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

圖 10(a)顯示實施例 7 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示實施例 7 中使用之氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

圖 11(a)顯示實施例 8 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示實施例 8 中使用之氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

圖 12(a)顯示實施例 9 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示實施例 9 中使用之氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

圖 13(a)顯示實施例 10 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示實施例 10 中使用之氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

圖 14(a)顯示實施例 11 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示實施例 11 中使用之氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

圖 15(a)顯示實施例 12 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示實施例 12 中使用之氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

圖 16(a)顯示實施例 13 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示實施例 13 中使用之氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

圖 17(a)顯示實施例 14 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示實施例 14 中使用之氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

圖 18(a)顯示實施例 15 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示實施例 15 中使用之氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

圖 19(a)顯示實施例 16 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示實施例 16 中使用之氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

圖 20(a)顯示比較例 1 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示比較例 1 中使用之氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

圖 21(a)顯示比較例 2 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示比較例 2 中使用之氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

圖 22(a)顯示比較例 3 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示比較例 3 中使用之氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

圖 23(a)顯示比較例 5 中積層體 3 及 4 的頻率與聲音透過損失之關係的曲線圖；(b)顯示比較例 5 中使用之氫化嵌段共聚物的頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。

【實施方式】

[實施發明之形態]

【0012】[氫化嵌段共聚物]

本發明係一種氫化嵌段共聚物，其具有：含有超過 70 莫耳%之源自於芳香族乙烯基化合物之結構單元的聚合物嵌段(A)、含有 30 莫耳%以上之源自於選自包含共軛二烯化合物及異丁烯的群組之至少 1 種之結構單元的聚

合物嵌段(B)，並滿足下述條件(1)及(2)，

條件(1)：聚合物嵌段(A)在該嵌段共聚物中之含量為1～30質量%；

條件(2)：就聚合物嵌段(B)而言，當判斷為氫化率100莫耳%之結構時，源自於選自包含共軛二烯化合物及異丁烯的群組之至少1種之結構單元的主鏈之亞甲基鏈長之平均值為1.0～6.0。

若為本發明之氫化嵌段共聚物，則對於任意厚度的層合玻璃，尤其是使用薄的(例如，厚度2.5mm以下)玻璃之層合玻璃，也可有效率地提高隔音性。此推測係因為可調整因重合效應而聲音透過損失(STL)降低的頻率與氫化嵌段共聚物的 $\tan\delta$ 之峰值頻率的關係，更視情況地，可減低聲音透過損失之降低程度本身，使重合效應發生的最低頻率(所謂的重合臨界頻率)高頻率化。

以下，詳細說明本發明之氫化嵌段共聚物。

【0013】本發明之氫化嵌段共聚物係前述具有聚合物嵌段(A)與聚合物嵌段(B)之嵌段共聚物的氫化物。

(聚合物嵌段(A))

聚合物嵌段(A)含有超過70莫耳%之源自於芳香族乙烯基化合物之結構單元(以下，亦簡稱「芳香族乙烯基化合物單元」)，從機械特性之觀點來看，較佳為80莫耳%以上，更佳為85莫耳%以上，尤佳為90莫耳%以上，特佳為95莫耳%以上，實質上可為100莫耳%。

【0014】作為前述芳香族乙烯基化合物，例如可舉出苯乙烯、鄰甲基苯乙烯、間甲基苯乙烯、對甲基苯乙烯

、 α -甲基苯乙烯、 β -甲基苯乙烯、2,6-二甲基苯乙烯、2,4-二甲基苯乙烯、 α -甲基鄰甲基苯乙烯、 α -甲基間甲基苯乙烯、 α -甲基對甲基苯乙烯、 β -甲基鄰甲基苯乙烯、 β -甲基間甲基苯乙烯、 β -甲基對甲基苯乙烯、2,4,6-三甲基苯乙烯、 α -甲基-2,6-二甲基苯乙烯、 α -甲基-2,4-二甲基苯乙烯、 β -甲基-2,6-二甲基苯乙烯、 β -甲基-2,4-二甲基苯乙烯、鄰氯苯乙烯、間氯苯乙烯、對氯苯乙烯、2,6-二氯苯乙烯、2,4-二氯苯乙烯、 α -氯鄰氯苯乙烯、 α -氯間氯苯乙烯、 α -氯對氯苯乙烯、 β -氯鄰氯苯乙烯、 β -氯間氯苯乙烯、 β -氯對氯苯乙烯、2,4,6-三氯苯乙烯、 α -氯-2,6-二氯苯乙烯、 α -氯-2,4-二氯苯乙烯、 β -氯-2,6-二氯苯乙烯、 β -氯-2,4-二氯苯乙烯、鄰第三丁基苯乙烯、間第三丁基苯乙烯、對第三丁基苯乙烯、鄰甲氧基苯乙烯、間甲氧基苯乙烯、對甲氧基苯乙烯、鄰氯甲基苯乙烯、間氯甲基苯乙烯、對氯甲基苯乙烯、鄰溴甲基苯乙烯、間溴甲基苯乙烯、對溴甲基苯乙烯、經矽基取代的苯乙烯衍生物、茚、乙烯基萘等。此等之芳香族乙烯基化合物係可單獨使用1種，也可使用2種以上。其中，從製造成本與物性平衡之觀點來看，較佳為苯乙烯、 α -甲基苯乙烯、對甲基苯乙烯及此等之混合物，更佳為苯乙烯。

【0015】惟，只要是不妨礙本發明之目的及效果，則聚合物嵌段(A)亦可以30莫耳%以下之比例含有源自於芳香族乙烯基化合物以外的其他不飽和單體之結構單元(以下，亦簡稱「其他不飽和單體單元」)。作為該其他不飽和單體，例如可舉出選自包含丁二烯、異戊二烯、2,3-

二甲基丁二烯、1,3-戊二烯、1,3-己二烯、異丁烯、甲基丙烯酸甲酯、甲基乙烯基醚、N-乙烯基吡啶、 β -蒎烯、8,9-對蒎烯、雙戊烯、亞甲基降萜烯、2-亞甲基四氫呋喃等的群組之至少1種。聚合物嵌段(A)含有該其他不飽和單體單元時的結合形態係沒有特別的限制，可為無規、錐狀之任一者。

聚合物嵌段(A)中之源自於前述其他不飽和單體之結構單元之含量較佳為10莫耳%以下，更佳為5莫耳%以下，尤佳為0莫耳%。

【0016】嵌段共聚物只要是具有至少1個前述聚合物嵌段(A)即可。當嵌段共聚物具有2個以上的聚合物嵌段(A)時，彼等聚合物嵌段(A)係可相同，也可相異。還有，本說明書中所謂的「聚合物嵌段相異」，就是意指於構成聚合物嵌段的單體單元、重量平均分子量、立體規則性及具有複數的單體單元之情況中各單體單元之比率及共聚合之形態(無規、梯度、嵌段)中至少1個相異。

【0017】嵌段共聚物所具有的前述聚合物嵌段(A)之重量平均分子量(M_w)係沒有特別的限制，但於嵌段共聚物所具有的前述聚合物嵌段(A)之中，至少1個聚合物嵌段(A)之重量平均分子量較佳為3,000~60,000，更佳為4,000~50,000。由於嵌段共聚物具有至少1個前述範圍內之重量平均分子量的聚合物嵌段(A)，機械強度進一步升高，薄膜成形性亦優異。

【0018】再者，本說明書及發明申請專利範圍中記載的「重量平均分子量」，皆是藉由凝膠滲透層析法(GPC)

測定而求得的標準聚苯乙烯換算之重量平均分子量。嵌段共聚物所具有的各聚合物嵌段(A)之重量平均分子量係可在製程中，每逢各聚合物嵌段的聚合結束時，測定所取樣的液而求得。又，例如當為具有A1-B-A2結構的三嵌段共聚物時，藉由上述方法求出最初的聚合物嵌段A1及聚合物嵌段B之重量平均分子量，藉由自嵌段共聚物的重量平均分子量中減去彼等，可求得第2個聚合物嵌段A2之重量平均分子量。另外，作為其他方法，當為具有A1-B-A2結構的三嵌段共聚物時，聚合物嵌段(A)的合計之重量平均分子量係可自嵌段共聚物的重量平均分子量與以 $^1\text{H-NMR}$ 測定確認的聚合物嵌段(A)之合計含量來算出，藉由GPC測定，算出已失去活性的最初之聚合物嵌段A1之重量平均分子量，藉由減去此，亦可求得第2個聚合物嵌段A2之重量平均分子量。

【0019】本發明之氫化嵌段共聚物滿足下述條件(1)。

< 條件(1) >

聚合物嵌段(A)在前述嵌段共聚物中之含量(具有複數的聚合物嵌段(A)時，為彼等之合計含量)為1~30質量%。

若聚合物嵌段(A)之含量小於1質量%，則難以形成氫化嵌段共聚物之顆粒。另一方面，若超過30質量%，則缺乏柔軟性，且 $\tan\delta$ 峰頂強度降低，缺乏低收縮性及成形性。從同樣之觀點來看，上述聚合物嵌段(A)之含量較佳為2~27質量%，更佳為2~18質量%，尤佳為3~18質量%，特佳為3.5~18質量%，最佳為3.5~15質量%。又

，若亦考慮到容易形成後述球體之微相分離結構之觀點，則較佳為3～15質量%，更佳為3.5～11質量%，尤佳為3.5～4.5質量%。若考慮到薄膜的操作性及機械物性，則較佳為6～18質量%，更佳為6～15質量%，尤佳為8～15質量%，特佳為10～15質量%。

還有，聚合物嵌段(A)在嵌段共聚物中之含量係藉由¹H-NMR測定而求得之值，更詳細而言，為依照實施例中記載之方法所測定的值。

【0020】(聚合物嵌段(B))

聚合物嵌段(B)含有30莫耳%以上之源自於選自包含共軛二烯化合物及異丁烯的群組之至少1種之結構單元，較佳為含有50莫耳%以上，更佳為65莫耳%以上，尤佳為80莫耳%以上。

聚合物嵌段(B)係可含有30莫耳%以上之源自於共軛二烯化合物之結構單元，也可含有30莫耳%以上之源自於異丁烯之結構單元，亦可含有30莫耳%以上之源自於共軛二烯化合物與異丁烯的混合物之結構單元。又，聚合物嵌段(B)係可含有30莫耳%以上之源自於共軛二烯化合物1種之結構單元，也可含有30莫耳%以上之源自於共軛二烯化合物2種以上之結構單元。

作為前述共軛二烯化合物，可舉出異戊二烯、丁二烯、己二烯、2,3-二甲基-1,3-丁二烯、1,3-戊二烯、香茅烯等。其中，較佳為異戊二烯、丁二烯、異戊二烯與丁二烯之混合物，更佳為異戊二烯。當為丁二烯與異戊二烯之混合物時，彼等之混合比率[異戊二烯/丁二烯](質量

比)係沒有特別的限制，但較佳為5/95～95/5，更佳為10/90～90/10，尤佳為40/60～70/30，特佳為45/55～65/35。還有，若以莫耳比表示該混合比率[異戊二烯/丁二烯]，則較佳為5/95～95/5，更佳為10/90～90/10，尤佳為40/60～70/30，特佳為45/55～55/45。

【0021】如上述，聚合物嵌段(B)較佳為含有30莫耳%以上之源自於共軛二烯化合物之結構單元，亦較佳為含有30莫耳%以上之源自於異戊二烯之結構單元(以下，亦簡稱「異戊二烯單元」)，亦較佳為含有30莫耳%以上之源自於丁二烯之結構單元(以下，亦簡稱「丁二烯單元」)，亦較佳為含有30莫耳%以上之源自於異戊二烯及丁二烯的混合物之結構單元(以下，亦簡稱「異戊二烯及丁二烯之混合物單元」)。

當聚合物嵌段(B)具有2種以上的結構單元時，彼等之結合形態可為由無規、錐形、完全交替、一部分嵌段狀、嵌段或彼等的2種以上之組合所構成。

【0022】< 條件(2)>

(聚合物嵌段(B)之亞甲基鏈長之平均值)

於本發明中，就聚合物嵌段(B)而言，當判斷為氫化率100莫耳%之結構時，源自於選自包含共軛二烯化合物及異丁烯的群組之至少1種之結構單元的主鏈之亞甲基鏈長之平均值(以下，亦稱為平均亞甲基鏈長)為1.0～6.0。此處所謂的亞甲基鏈長，就是表示-CH₂-所示的亞甲基以怎樣程度連續而結合者。

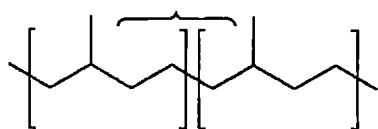
若平均亞甲基鏈長超過6.0，則容易結晶化，制振性

降低，且當用於層合玻璃時，隔音性降低。從同樣之觀點來看，該平均亞甲基鏈長較佳為 1.0~5.0，更佳為 1.0~4.0，尤佳為 1.0~3.5，尤更佳為 1.5~3.5，特佳為 1.5~3.0，最佳為 1.5~2.2。

關於平均亞甲基鏈長，以下一邊顯示結構一邊說明。

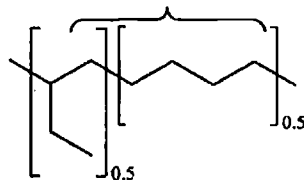
【0023】(i)異戊二烯以 1,4-鍵結連接之情況

平均亞甲基鏈長=3



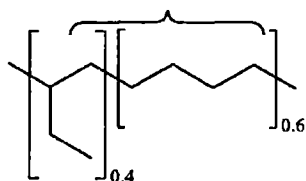
(ii)丁二烯的 1,2-鍵結與 1,4-鍵結同等地連接之情況

平均亞甲基鏈長=5



(iii)丁二烯的 1,2-鍵結與 1,4-鍵結以 (4:6)(莫耳比)連接之情況

平均亞甲基鏈長=7

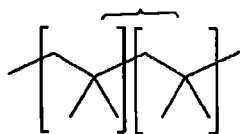


如以下，考慮對於 1,2-鍵結的丁二烯，1,4-鍵結的丁二烯幾個連接者而計算

$$1 + 4 \times \frac{0.6}{0.4} = 7$$

(iv)異丁烯之情況

平均亞甲基鏈長=1



【0024】< 條件(3)>

(聚合物嵌段(B)的主鏈之每一個伸乙基所具有之側鏈之取代基常數(ν)之平均值)

於本發明中，就聚合物嵌段(B)而言，當判斷為氫化率100莫耳%之結構時，主鏈之每一個伸乙基所具有之側鏈之取代基常數(ν)之平均值(以下，亦稱為平均取代基常數)較佳為0.25~1.1。此處，所謂主鏈之每一個伸乙基單元所具有之側鏈之平均取代基常數，就是表示成為側鏈的取代基之體密度(bulk density)之平均值，關於取代基常數(ν)，可參照「Journal of the American Chemical Society」(1975年)、第97卷、p.1552-1556。由於該平均取代基常數為0.25以上，則制振性變高，同時用於積層體(例如，層合玻璃)時隔音性變高，由於為1.1以下，則可抑制主鏈的剛直性出現，制振性變高，用於積層體(例如，層合玻璃)時隔音性變高。從同樣之觀點來看，該平均取代基常數更佳為0.30~0.55，尤佳為0.33~0.55，特佳為0.33~0.50。

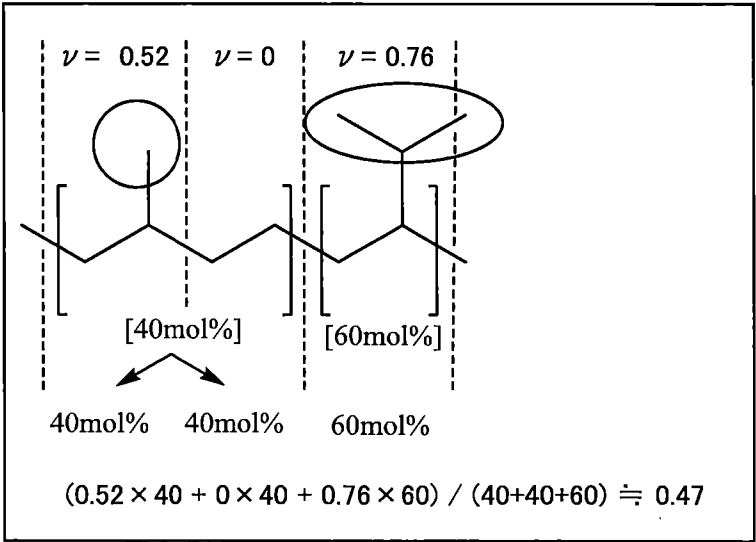
關於取代基常數(ν)，下述表1中顯示具體例，但除此以外，還可利用「Journal of the American Chemical Society」(1975年)、第97卷、p.1552-1556及「Journal of Organic Chemistry」(1976年)、第41卷、p.2217-2220中記載之值。

【0025】 [表 1]

側鏈之取代基	取代基常數(ν)
H	0
甲基	0.52
第三丁基	1.24
乙基	0.56
正丙基	0.68
異丙基	0.76
正丁基	0.68
第二丁基	1.02
苯基	0.57

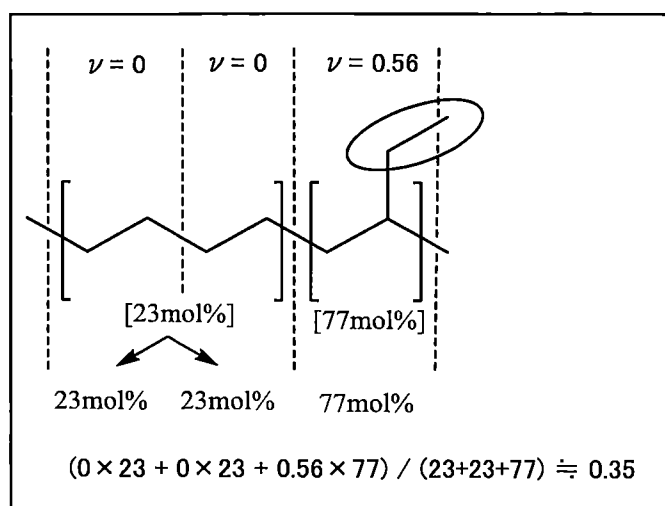
【0026】 平均取代基常數係藉由算出各側鏈的取代基常數(ν)之平均值而求得。例如，當前述共軛二烯化合物為異戊二烯，且 1,4-鍵結單元與 3,4-鍵結單元之含有比率為 40/60(莫耳比)時，平均取代基常數為 0.47，可如以下地求得。

【0027】



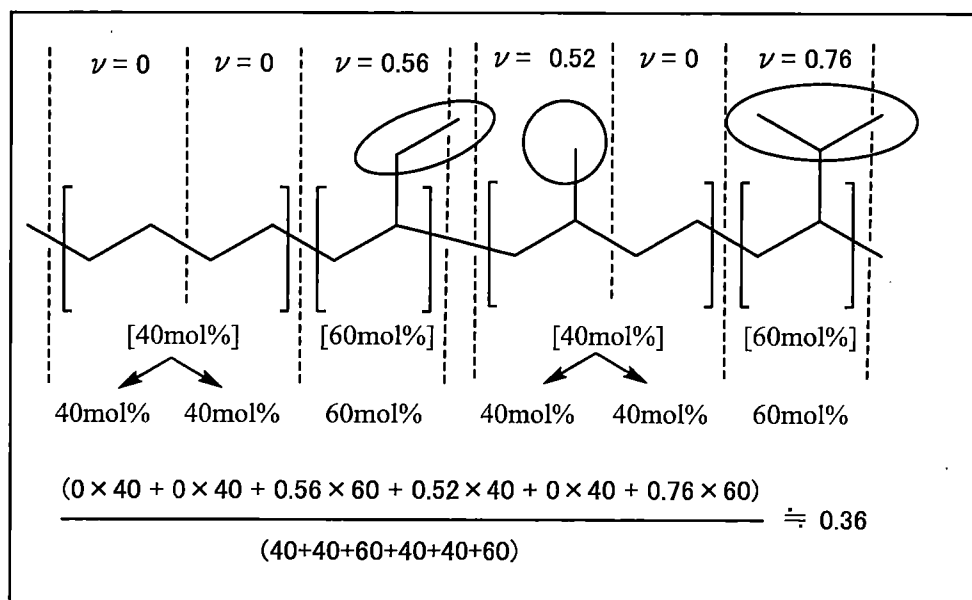
【0028】 又，當前述共軛二烯化合物為丁二烯，且 1,4-鍵結單元與 1,2-鍵結單元之含有比率為 23/77(莫耳比)時，平均取代基常數為 0.35，可如以下地求得。

【0029】



【0030】另外，當前述共軛二烯化合物為異戊二烯與丁二烯(莫耳比：50/50)之混合物，且異戊二烯中的1,4-鍵結單元與3,4-鍵結單元之含有比率為40/60(莫耳比)，丁二烯中的1,4-鍵結單元與1,2-鍵結單元之含有比率為40/60(莫耳比)時，平均取代基常數為0.36，可如以下地求得。

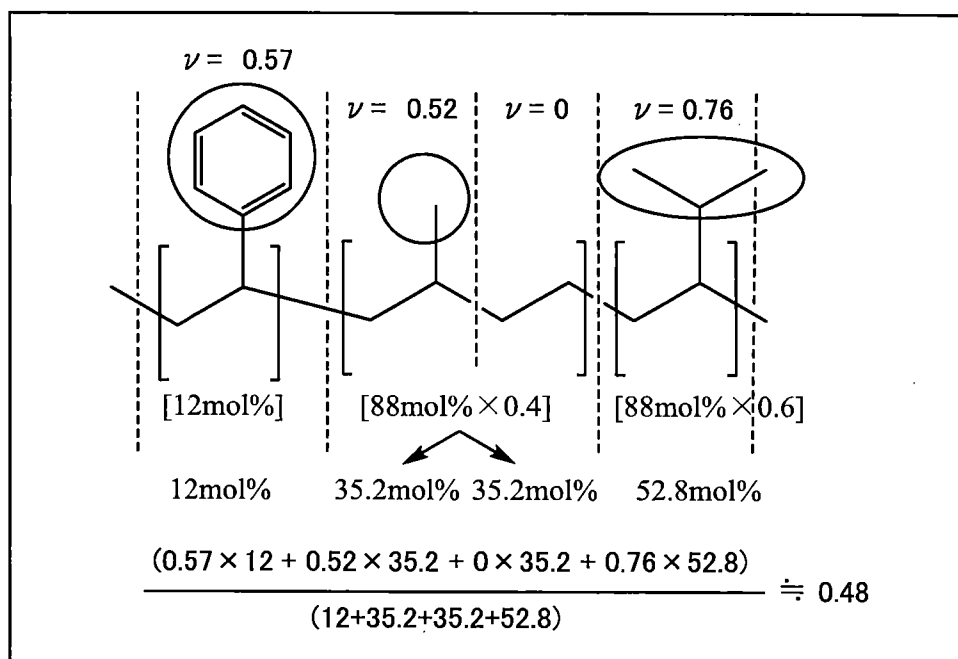
【0031】



【0032】還有，當前述共軛二烯化合物主要為異戊二烯而含有12莫耳%的苯乙烯時，且異戊二烯中的1,4-鍵結單元與3,4-鍵結單元之含有比率為40/60(莫耳比)時，平

均取代基常數為 0.48，可如以下地求得。

【0033】



【0034】< 條件 (4) >

(聚合物嵌段(B)之乙烯基鍵結量)

當構成聚合物嵌段(B)的構成單元為異戊二烯單元、丁二烯單元、異戊二烯及丁二烯之混合物單元中的任一者時，作為異戊二烯及丁二烯各自的結合形態，於丁二烯時可採取 1,2-鍵結、1,4-鍵結，於異戊二烯時可採取 1,2-鍵結、3,4-鍵結、1,4-鍵結。

於嵌段共聚物中，聚合物嵌段(B)中的 3,4-鍵結單元及 1,2-鍵結單元之含量(以下，亦稱為乙烯基鍵結量)合計較佳為 20 莫耳%以上，更佳為 40 莫耳%以上，尤佳為 50 莫耳%以上。又，雖然沒有特別的限制，但聚合物嵌段(B)中的乙烯基鍵結量較佳為 90 莫耳%以下，更佳為 85 莫耳%以下。此處，乙烯基鍵結量係依照實施例中記載之方法，藉由 $^1\text{H-NMR}$ 測定而算出之值。

還有，當聚合物嵌段(B)僅由丁二烯所構成時，前述之「3,4-鍵結單元及1,2-鍵結單元之含量」可與「1,2-鍵結單元之含量」交換使用。

【0035】又，嵌段共聚物所具有的前述聚合物嵌段(B)之合計的重量平均分子量，從制振性及成為積層體(例如，層合玻璃)時的隔音性等之觀點來看，以氫化前的狀態，較佳為15,000~800,000，更佳為50,000~700,000，尤佳為70,000~600,000，特佳為90,000~500,000，最佳為130,000~450,000。

【0036】再者，只要不妨礙本發明之目的及效果，則聚合物嵌段(B)亦可含有源自於共軛二烯化合物及異丁烯以外的其他聚合性單體之結構單元。此時，於聚合物嵌段(B)中，源自於共軛二烯化合物及異丁烯以外的其他聚合性單體之結構單元之含量，較佳為小於70莫耳%，更佳為小於50莫耳%，尤佳為小於35莫耳%，特佳為小於20莫耳%。源自於共軛二烯化合物及異丁烯以外的其他聚合性單體之結構單元之含量的下限值係沒有特別的制限，可為0莫耳%，也可為5莫耳%，亦可為10莫耳%。

作為該其他聚合性單體，例如較佳可舉出選自包含苯乙烯、 α -甲基苯乙烯、鄰甲基苯乙烯、間甲基苯乙烯、對甲基苯乙烯、對第三丁基苯乙烯、2,4-二甲基苯乙烯、乙烯基萘及乙烯基蒽等之芳香族乙烯基化合物、以及甲基丙烯酸甲酯、甲基乙烯基醚、N-乙烯基吡啶、 β -蒎烯、8,9-對蒎烯、雙戊烯、亞甲基降萘烯、2-亞甲基四氫呋喃、1,3-環戊二烯、1,3-環己二烯、1,3-環庚二烯、

1,3-環辛二烯等的群組之至少1種的化合物。其中，較佳為苯乙烯、 α -甲基苯乙烯、對甲基苯乙烯，更佳為苯乙烯。

當聚合物嵌段(B)含有源自於共軛二烯化合物及異丁烯以外的其他聚合性單體之結構單元時，作為其具體的組合，較佳為異戊二烯與苯乙烯、丁二烯與苯乙烯，更佳為異戊二烯與苯乙烯。

當聚合物嵌段(B)含有源自於共軛二烯化合物及異丁烯以外的其他聚合性單體之結構單元時，其結合形態係沒有特別限制，可為無規、錐狀之任一者，較佳為無規。

【0037】嵌段共聚物只要是具有至少1個上述聚合物嵌段(B)即可。當嵌段共聚物具有2個以上的聚合物嵌段(B)時，彼等聚合物嵌段(B)係可相同，也可相異。

【0038】(聚合物嵌段(A)與聚合物嵌段(B)之結合樣式)

嵌段共聚物只要是聚合物嵌段(A)與聚合物嵌段(B)結合，則不限定其結合形式，可為直鏈狀、分枝狀、放射狀或組合有此等的2個以上之結合樣式的任一者。其中，聚合物嵌段(A)與聚合物嵌段(B)之結合形式較佳為直鏈狀，作為其例，當以A表示聚合物嵌段(A)，且以B表示聚合物嵌段(B)時，可舉出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)_nX型共聚物(X表示偶合劑殘基，n表示3以上之

整數)等。其中，較佳為直鏈狀的三嵌段共聚物或二嵌段共聚物，從柔軟性、製造的容易性等之觀點來看，較宜使用A-B-A型的三嵌段共聚物。

此處，於本說明書中，當同種的聚合物嵌段隔著二官能的偶合劑等結合成直線狀時，結合的聚合物嵌段全體係當作一個聚合物嵌段來處理。據此，亦包含上述例示，本來應嚴密地記載為Y-X-Y(X表示偶合殘基)的聚合物嵌段，尤其在不包括有與單獨的聚合物嵌段Y區別之必要的情況，可將全體視為Y來表示。於本說明書中，由於將包含偶合劑殘基的此種聚合物嵌段予以如上述般地對待，例如包含偶合劑殘基，嚴格來說應記載為A-B-X-B-A(X表示偶合劑殘基)的嵌段共聚物係被記載為A-B-A，當作三嵌段共聚物之一例來處理。

【0039】本發明係上述嵌段共聚物之氫化物(亦稱為氫化嵌段共聚物)。

從耐熱性、耐候性、制振性及成為積層體(例如，層合玻璃)時的隔音性之觀點來看，聚合物嵌段(B)所具有的碳-碳雙鍵之80莫耳%以上較佳為被氫化(以下，亦簡稱氫化)，更佳為85莫耳%以上被氫化，尤佳為89莫耳%以上被氫化，尤更佳為90莫耳%以上被氫化，特佳為93莫耳%以上被氫化。還有，有將該值稱為氫化率(加氫率)的情形。氫化率之上限值係沒有特別的限制，但上限值可為99莫耳%，也可為98莫耳%。

還有，上述之氫化率係藉由氫化後的 ^1H -NMR測定而求得聚合物嵌段(B)中之源自於共軛二烯化合物之結構

單元中的碳-碳雙鍵之含量的值，更詳細而言，為依照實施例中記載之方法所測定的值。

【0040】(氫化嵌段共聚物之重量平均分子量(Mw))

氫化嵌段共聚物之藉由凝膠滲透層析法的以標準聚苯乙烯換算所求得之重量平均分子量(Mw)，較佳為15,000~800,000，更佳為50,000~700,000，尤佳為70,000~600,000，特佳為90,000~500,000，最佳為130,000~450,000。若嵌段共聚物之重量平均分子量為15,000以上，則耐熱性變高，若為800,000以下，則成形性變良好。

【0041】只要不損害本發明之目的及效果，則本發明之氫化嵌段共聚物係可在分子鏈中及/或分子末端具有1種或2種以上的羧基、羥基、酸酐基、胺基、環氧基等之官能基，也可不具有官能基。

【0042】(tan δ 之峰頂強度及tan δ 之峰頂溫度)

本發明之氫化嵌段共聚物係藉由在溫度230℃、壓力10MPa下加壓3分鐘，而製作厚度1.0mm的單層薄片，將該單層薄片切成圓板形狀，當作試驗片，使用該試驗片，根據JIS K7244-10(2005年)，依應變量0.1%、頻率1Hz、測量溫度-70~200℃、升溫速度3℃/分鐘之條件下所測出之tan δ 之峰頂強度可成為0.5以上。於更高者中，亦有成為1.0以上，甚至是1.5以上，進而達到2.0以上者。由於tan δ 之峰頂強度高，本發明之氫化嵌段共聚物係制振性及隔音性優異。

還有，所謂的tan δ 之峰頂強度，就是tan δ 之波峰成為最大時的tan δ 之值。tan δ 之峰頂強度的測量方法係更詳細

地如實施例中記載。

【0043】又，將本發明之氫化嵌段共聚物使用於後述的層合玻璃用中間膜時，上述條件下所測出之 $\tan\delta$ 之峰頂溫度($\tan\delta$ 之波峰成為最大時的溫度)較佳為 $-40\sim 35^{\circ}\text{C}$ ，更佳為 $-25\sim 15^{\circ}\text{C}$ ，尤佳為 $-15\sim 5^{\circ}\text{C}$ 。又，將本發明之氫化嵌段共聚物使用於後述的隔音材料或制振材料用途，尤其是汽車的隔音材料或制振材料用途時，上述 $\tan\delta$ 之峰頂溫度較佳為 $-10\sim 50^{\circ}\text{C}$ ，更佳為 $0\sim 40^{\circ}\text{C}$ ，尤佳為 $10\sim 35^{\circ}\text{C}$ 。

【0044】另外，由於氫化嵌段共聚物在 $\tan\delta$ 峰頂溫度 $+30^{\circ}\text{C}$ 的儲存彈性模數(G')之值愈低，則玻璃轉移時的能量吸收愈大，故制振性變高，使用於積層體(例如，層合玻璃)時隔音性變高。在 $\tan\delta$ 峰頂溫度 $+30^{\circ}\text{C}$ 的儲存彈性模數(G')較佳為 $0.01\sim 3\text{MPa}$ ，更佳為 $0.03\sim 1\text{MPa}$ ，尤佳為 $0.05\sim 0.7\text{MPa}$ ，特佳為 $0.1\sim 0.5\text{MPa}$ 。

【0045】又，將氫化嵌段共聚物的儲存彈性模數(G')經溫度所微分之值的最小值當作「 $d(G')/d\text{Temp.}$ 」，此值愈小則氫化嵌段共聚物的 $\tan\delta$ 之峰頂強度愈高，制振性及隔音性愈優異。 $d(G')/d\text{Temp.}$ 較佳為 $-20\text{MPa}/^{\circ}\text{C}$ 以下，更佳為 $-30\text{MPa}/^{\circ}\text{C}$ 以下，尤佳為 $-40\text{MPa}/^{\circ}\text{C}$ 以下，特佳為 $-43\text{MPa}/^{\circ}\text{C}$ 以下。

【0046】(形態)

本發明之氫化嵌段共聚物在溫度 230°C 、壓力 10MPa 下3分鐘加壓之條件下成形而得到的厚度 1mm 之薄膜的形態，係具有圖1中所示的球體(球狀)或圖2中所示的圓

柱體(柱狀)之微相分離結構。當具有球體之微相分離結構時，聚合物嵌段(A)成為球狀而存在於聚合物嵌段(B)中，另一方面，當具有圓柱體(柱狀)之微相分離結構時，聚合物嵌段(A)成為柱狀而存在於聚合物嵌段(B)中。如前述，前述聚合物嵌段(A)之含量愈少，愈具有球體之微相分離結構之傾向。

藉由如上述所成形而得到之薄膜的形態具有球體(球狀)或圓柱體(柱狀)之微相分離結構，則制振性及成為積層體(例如，層合玻璃)時的隔音性進一步升高。從同樣之觀點來看，該薄膜的形態更佳為具有球體(球狀)之微相分離結構。

還有，如圖3中所示，當該薄膜具有聚合物嵌段(A)之層與聚合物嵌段(B)之層交替重疊成的層狀結構之微相分離結構時，成形性、制振性及成為積層體(例如，層合玻璃)時的隔音性不足。

【0047】(MD方向之收縮率)

本發明之氫化嵌段共聚物係如下述所定義之MD方向(Machine Direction: 流動方向)之收縮率可達成20%以下，亦可達成15%以下。若該收縮率為15%以下，則可說是低收縮性優異。

MD方向之收縮率：當將依230℃、無延伸的條件下進行壓出成形所得到之帶狀薄片(MD/TD=4.0cm/3.5cm，厚度1mm)於230℃下靜置於滑石上1星期之後的MD方向之長度設為y，將初期MD方向之長度(4.0cm)設為x時，MD方向之收縮率= $\{(x-y)/x\} \times 100(\%)$ 。

該收縮率亦可設為10%以下，也有設為6%以下，亦有設為3%以下。再者，TD意指垂直方向(Transverse Direction)。

【0048】(氫化嵌段共聚物之製造方法)

本發明之氫化嵌段共聚物係可藉由溶液聚合法、乳化聚合法或固相聚合法等製造。其中，較佳為溶液聚合法，例如可採用陰離子聚合、陽離子聚合等之離子聚合法、自由基聚合法等之眾所周知的方法。其中，較佳為陰離子聚合法。於陰離子聚合法中，在溶劑、陰離子聚合起始劑及視需要的路易斯鹼之存在下，逐次添加芳香族乙烯基化合物與選自包含共軛二烯化合物及異丁烯的群組之至少1種，而得到嵌段共聚物，視需要添加偶合劑而使其反應，接著藉由將嵌段共聚物予以氫化，可得到氫化嵌段共聚物。

【0049】作為上述方法中可當作陰離子聚合的聚合起始劑使用之有機鋰化合物，例如可舉出甲基鋰、乙基鋰、正丁基鋰、第二丁基鋰、第三丁基鋰、戊基鋰等。又，作為可當作聚合起始劑使用之二鋰化合物，例如可舉出萘二鋰、二鋰己基苯等。

作為前述偶合劑，例如可舉出二氯甲烷、二溴甲烷、二氯乙烷、二溴乙烷、二溴苯、苯甲酸苯酯等。

此等的聚合起始劑及偶合劑之使用量係可依照目的之氫化嵌段共聚物的所欲重量平均分子量來適宜決定。通常烷基鋰化合物、二鋰化合物等之起始劑較佳為相對於用於聚合的芳香族乙烯基化合物、丁二烯、異戊二烯

等之單體的合計每100質量份，以0.01～0.2質量份之比例使用，使用偶合劑時，較佳為相對於前述單體之合計每100質量份，以0.001～0.8質量份之比例使用。

【0050】作為溶劑，只要不會對於陰離子聚合反應造成不利影響，則沒有特別的限制，例如可舉出環己烷、甲基環己烷、正己烷、正戊烷等之脂肪族烴；苯、甲苯、二甲苯等之芳香族烴等。又，聚合反應通常在0～100℃，較佳在10～70℃之溫度，進行0.5～50小時，較佳進行1～30小時。

【0051】又，當嵌段共聚物之聚合物嵌段(B)為源自於共軛二烯之結構單元時，藉由在聚合時添加路易斯鹼作為輔觸媒(co-catalyst)之方法，可提高聚合物嵌段(B)的3,4-鍵結及1,2-鍵結之含量。

作為可用的路易斯鹼，例如可舉出二甲基醚、二乙基醚、四氫呋喃等之醚類、乙二醇二甲基醚、二乙二醇二甲基醚等之二醇醚類、三乙胺、N,N,N',N'-四亞甲基二胺、N-甲基咪啉等之胺類等。此等的路易斯鹼係可單獨1種或組合2種以上使用。

當前述聚合物嵌段(B)包含源自於共軛二烯化合物，尤其是異戊二烯及/或丁二烯之結構單元時，可按照要將構成聚合物嵌段(B)的異戊二烯單元及/或丁二烯單元之乙烯基鍵結量控制在何種程度來決定路易斯鹼之添加量。因此，路易斯鹼的添加量係沒有嚴密的意義之限制，但相對於作為聚合起始劑使用的烷基鋰化合物或二鋰化合物中所含有的鋰每1克原子，通常以0.1～1,000莫耳

，較佳以 1～100 莫耳之範圍內使用。

【0052】藉由上述方法進行聚合後，添加醇類、羧酸類、水等的活性氫化合物而使聚合反應停止。然後，於非活性有機溶劑中，在氫化觸媒之存在下進行氫化反應（加氫反應）。氫化反應係可將氫壓力設為 0.1～20MPa，較佳為 0.5～15MPa，更佳為 0.5～5MPa，將反應溫度設為 20～250℃，較佳為 50～180℃，更佳為 70～180℃，反應時間通常設為 0.1～100 小時，較佳為 1～50 小時而實施。

作為氫化觸媒，例如可舉出雷氏鎳；在碳、氧化鋁、矽藻土等的單質上擔持有 Pt、Pd、Ru、Rh、Ni 等的金屬之非均相觸媒；由過渡金屬化合物與烷基鋁化合物、烷基鋰化合物等之組合所成的齊格勒系觸媒；茂金屬系觸媒等。

【0053】如此所得之氫化嵌段共聚物係可藉由將聚合反應液注入甲醇等中而使其凝固後，進行加熱或減壓乾燥，或將聚合反應液與蒸汽一起注入熱水中，使溶劑共沸而去除之施予所謂的蒸汽汽提後，藉由加熱或減壓乾燥而取得。

【0054】[用途]

本發明之氫化嵌段共聚物係制振性及成為積層體（例如層合玻璃）時的隔音性優異。因此，本發明亦提供一種層合玻璃用中間膜，其係含有本發明之氫化嵌段共聚物而成。又另外，亦提供含有本發明之氫化嵌段共聚物而成的橡皮障、鞋底材料及地板材料等。再者，亦適用作為隔音材料、制振材料。也可用於擋風雨條、踏墊

等。

特別是當作爲層合玻璃用中間膜使用時，由於該中間膜係低收縮性優異，可在該中間膜與玻璃之間設置接著層。

【0055】又，可在家電領域的電視、藍光記錄器或HDD記錄器等之各種記錄器類、投影機、遊戲機、數位相機、家用視頻、天線、揚聲器、電子辭典、IC記錄器、FAX、影印機、電話機、對講機、電鍋、微波爐、微波烤箱、冰箱、洗碗機、烘碗機、IH烹調爐、熱板、吸塵器、洗衣機、充電器、縫紉機、電熨斗、乾燥機、電動自行車、空氣清淨機、淨水器、電動牙刷、照明器具、空調、空調的室外機、除濕機、加濕機等之各種電氣製品中，利用於密封材料、接著劑、黏著劑、墊圈、O型環、皮帶、防音材料等。

【0056】[積層體]

本發明亦提供一種積層體，其具有：含有本發明之氫化嵌段共聚物而成的X層、積層在該X層之至少一面上之Y層。本發明之積層體係制振性及隔音性優異。

可爲由X層及Y層的各1層所構成之積層體，也可爲由1層的X層與2層以上的Y層所構成之積層體，亦可爲由2層以上的X層與1層的Y層所構成之積層體，亦可爲由2層以上的X層與2層以上的Y層所構成之積層體。

作爲本發明之積層體的構成，若以「X」表示X層，以「Y」表示Y層，雖然沒有特別的限制，但可舉出Y/X/Y、Y/X、Y/X/Y/X/Y等。

複數個Y層可為相同的材料，也可為相異的材料。因此，當為相異的材料時，若以「Y1」、「Y2」、「Y3」．．．之順序表示由相異的材料所成之Y層，則作為本發明之積層體的構成，雖然沒有特別限制，但可舉出Y1/X/Y1、Y2/Y1/X/Y1/Y2、Y1/X/Y2、X/Y1/Y2、Y1/X/Y2/Y3、Y1/X/Y2/X/Y3等。其中，較佳為Y1/X/Y1、Y2/Y1/X/Y1/Y2、Y1/X/Y2的構成之積層體，更佳為Y1/X/Y1、Y2/Y1/X/Y1/Y2的構成之積層體。

【0057】其中，具有X層與複數個Y層，在至少2個Y層之間積層X層而成之積層體，較佳為滿足下述式(I)之積層體。以下，亦將式(I)之中央值，即「 $\tan\delta$ 之峰頂頻率 $\times(B/m)^{0.5}$ 」，稱為I值。

本發明者們由各種檢討發現B、m及 $\tan\delta$ 之峰頂頻率與隔音性相關，表示其關係者為式(I)。滿足式(I)的積層體由於氫化嵌段共聚物的 $\tan\delta$ 之峰頂頻率與積層體之重合臨界頻率成為接近之值，於可有效果地抑制因重合效應所造成的STL之降低而隔音性降低之點上較宜。

【0058】

$$200 \leq \tan\delta\text{之峰頂頻率} \times \sqrt{B/m} \leq 2,000,000 \quad (I)$$

【0059】(式(I)中，B表示積層體每單位寬度之彎曲剛性(Pa $\cdot$ m³)，m表示積層體之面密度(kg/m²)， $\tan\delta$ 之峰頂頻率(Hz)表示依據下述方法所求得之氫化嵌段共聚物之 $\tan\delta$ 之波峰成為最大時的頻率)。

【0060】($\tan\delta$ 之峰頂頻率之測量方法)

根據JIS K7244-10(2005年)，將氫化嵌段共聚物在溫

度 230℃、壓力 10MPa 下加壓 3 分鐘而製作厚度 1.0mm 的試驗片，基於依應變量 0.1%、頻率 1～100Hz、測量溫度 20℃、10℃、0℃、-10℃、-30℃ 之條件下所測出之實測值，製作採用 WLF 法 (Williams-Landel-Ferry 法) 所計算出的主曲線，算出氫化嵌段共聚物之峰頂頻率。

【0061】作為前述式 (I) 中，B 所表示的每單位寬度之彎曲剛性之測量方法及 m 所表示的面密度之求法，可採用以下之方法。

【0062】(每單位寬度之彎曲剛性 (B) 之測量方法)

在機械阻抗裝置 (小野測器股份有限公司製，曼斯堪舍放大器：masscancelamplifier MA-5500，channel data station：DS-2100) 的振盪器 (poweramplifier/model371-A) 之阻抗頭中內建的振盪力檢測器之前端部上，固定積層體的中央部。以頻率 0～8,000Hz 之範圍將振動給予積層體的中央部，檢測此點的振盪力與加速度波形，進行中央振盪法的積層體之阻尼試驗。以將所得之振盪力與加速度信號積分而得的速度信號為基礎，求得振盪點 (加以振動後的前述積層體之中央部) 之機械阻抗，將橫軸當作頻率，將縱軸當作機械阻抗，於所得之阻抗曲線中，自表示波峰的頻率來算出積層體每單位寬度之彎曲剛性 ($\text{Pa} \cdot \text{m}^3$) (參照 ISO 16940：2008)。

【0063】

$$B_{\text{eq},i} = m_s \left(f_{\text{res},i} \frac{2\pi L^2}{\lambda_i^2} \right)^2$$

(上述式中， B_{eq} 為每單位寬度之彎曲剛性， m_s 為面密度， f_{res} 為阻抗試驗之峰值頻率， L 為所測定的層合玻璃之長度， λ 為常數($=7.85476$))。

【0064】(面密度(m)之求法)

測量積層體之質量，藉由除以表面積，可得到積層體每單位面積之質量，即面密度。再者，積層體之表面積係可藉由成為長方形或正方形的積層體，自縱向長度×橫向長度求得。

【0065】由於滿足前述式(I)，隔音性非常高。從同樣之觀點來看， I 值之下限值較佳為400，更佳為1,000，尤佳為2,000，特佳為4,000。又，從同樣之觀點來看， I 值之上限值較佳為1,000,000，更佳為400,000，尤佳為200,000，特佳為100,000。此等之下限值及上限值係可各自獨立或以任意之組合採用於式(I)。

【0066】[X層]

X層係含有本發明之氫化嵌段共聚物而成之層，可為僅含有本發明之氫化嵌段共聚物而成之層，也可為由含有本發明之氫化嵌段共聚物以外的成分之組成物所成之層。

例如，即使於使用X層作為層合玻璃用中間膜之情況中，X層可為含有本發明之氫化嵌段共聚物而成之層，也可為僅含有本發明之氫化嵌段共聚物而成之層，亦可為含有本發明之氫化嵌段共聚物以外的成分之組成物所成之層。於使用X層作為層合玻璃用中間膜之情況中，作為本發明之氫化嵌段共聚物以外的成分，例如可舉出抗氧

化劑、紫外線吸收劑、光安定劑、隔熱材料、防黏連劑等，惟不受此等所特別限制。此等係可單獨1種或組合2種以上使用。

【0067】作為抗氧化劑，例如可舉出酚系抗氧化劑、磷系抗氧化劑、硫系抗氧化劑等。

作為紫外線吸收劑，亦可使用苯并三唑系紫外線吸收劑、受阻胺系紫外線吸收劑、苯甲酸酯系紫外線吸收劑等，以及三吡系化合物、二苯基酮系化合物、丙二酸酯化合物、草酸苯胺化合物等。

作為光安定劑，例如可舉出受阻胺系光安定劑等。

作為隔熱材料，例如可舉出在樹脂或玻璃中含有具有熱線遮蔽機能的熱線遮蔽粒子、具有熱線遮蔽機能的有機色素化合物之材料等。作為具有熱線遮蔽機能的粒子，例如可舉出錫摻雜氧化銦、銻摻雜氧化錫、鋁摻雜氧化鋅、錫摻雜氧化鋅、矽摻雜氧化鋅等的氧化物之粒子、 LaB_6 (六硼化鏷)粒子等之具有熱線遮蔽機能的無機材料之粒子等。又，作為具有熱線遮蔽機能的有機色素化合物，例如可舉出二亞鉍系色素、鉍系色素、酞菁系色素、蒽醌系色素、聚甲炔系色素、苯二硫醇型鉍系化合物、硫脲衍生物、硫醇金屬錯合物等。

作為防黏連劑，可舉出無機粒子、有機粒子。作為無機粒子，可舉出IA族、IIA族、IVA族、VIA族、VIIA族、VIII族、IB族、IIB族、IIIB族、IVB族元素之氧化物、氫氧化物、硫化物、氮化物、鹵化物、碳酸鹽、硫酸鹽、醋酸鹽、磷酸鹽、亞磷酸鹽、有機羧酸鹽、矽酸

鹽、鈦酸鹽、硼酸鹽及彼等之含水化合物、以及以彼等作為中心的複合化合物及天然礦物粒子。作為有機粒子，可舉出氟樹脂、三聚氰胺系樹脂、苯乙烯-二乙烯基苯共聚物、丙烯酸系樹脂聚矽氧及彼等之交聯體。

【0068】又，例如即使於將X層使用於隔音材料或制振材料用途，尤其是汽車的隔音材料或制振材料用途之情況中，X層可為含有本發明之氫化嵌段共聚物而成之層，也可為僅含有本發明之氫化嵌段共聚物而成之層，亦可為含有本發明之氫化嵌段共聚物以外的成分之組成物所成之層。於將X層使用於隔音材料或制振材料用途，尤其是汽車的隔音材料或制振材料用途之情況中，作為本發明之氫化嵌段共聚物以外之成分，例如可舉出抗氧化劑、紫外線吸收劑、光安定劑、隔熱材料、防黏連劑、顏料、染料、軟化劑、交聯劑、交聯助劑、交聯促進劑等，惟不受此等所特別限制。此等係可單獨1種或組合2種以上使用。

【0069】關於抗氧化劑、紫外線吸收劑、光安定劑、隔熱材料、防黏連劑，可舉出與前述使用X層作為層合玻璃用中間膜時之說明者同樣。

作為顏料，可舉出有機系顏料、無機系顏料。作為有機系顏料，例如可舉出偶氮系顏料、喹吖啶酮系顏料、酞菁系顏料等。作為無機系顏料，例如可舉出氧化鈦、氧化鋅、硫化鋅、碳黑、鉛系顏料、鎘系顏料、鈷系顏料、鐵系顏料、鉻系顏料、群青、普魯士藍等。

作為染料，例如可舉出偶氮系、蔥醌系、酞菁系、

喹吡啶酮系、茈系、二噁吡系、蔥醌系、吡啶酮系、異吡啶酮系、醌亞胺系、三苯基甲烷系、噻唑系、硝基系、亞硝基系等之染料。

作為軟化劑，例如可使用石蠟系、環烷系、芳香族系等之烴系油；落花生油、松香等之植物油；磷酸酯；低分子量聚乙二醇；流動石蠟；低分子量聚乙烯、乙烯- α -烯烴共聚合寡聚物、液狀聚丁烯、液狀聚異戊二烯或其氫化物、液狀聚丁二烯或其氫化物等之烴系合成油等眾所周知的軟化劑。此等係可單獨1種或合併使用2種以上。

【0070】作為交聯劑，例如可舉出自由基產生劑、硫及硫化合物等。

作為自由基產生劑，例如可舉出二異丙苯基過氧化物、二第三丁基過氧化物、第三丁基異丙苯基過氧化物等之二烷基單過氧化物；2,5-二甲基-2,5-二(第三丁基過氧)己烷、2,5-二甲基-2,5-二(第三丁基過氧)己炔-3、雙(第三丁基二氧基異丙基)苯、1,1-雙(第三丁基過氧)-3,3,5-三甲基環己烷、正丁基-4,4-雙(第三丁基過氧)戊酸酯等之二過氧化物；苯甲醯基過氧化物、對氯苯甲醯基過氧化物、2,4-二氯苯甲醯基過氧化物等之二醯基過氧化物；第三丁基過氧苯甲酸酯等之單醯基烷基過氧化物；第三丁基過氧異丙基碳酸酯等之過碳酸；二乙醯基過氧化物、月桂醯基過氧化物等之二醯基過氧化物等的有機過氧化物。此等係可單獨使用1種，也可合併使用2種以上。其中，從反應性之觀點來看，較佳為2,5-二甲

基-2,5-二(第三丁基過氧)己烷、二異丙苯基過氧化物。

作為硫化化合物，例如可舉出一氯化硫、二氯化硫等。

作為交聯劑，另外亦可使用烷基苯酚樹脂、溴化烷基苯酚樹脂等之酚系樹脂；對醌二肟與二氧化鉛、p,p'-二苯甲醯基醌二肟與四氧化三鉛之組合等。

【0071】作為交聯助劑，可使用眾所周知之交聯助劑，例如可舉出三羥甲基丙烷三甲基丙烯酸酯、三羥甲基丙烷三丙烯酸酯、偏苯三酸三烯丙酯、1,2,4-苯三羧酸三烯丙酯、異三聚氰酸三烯丙酯、1,6-己二醇二甲基丙烯酸酯、1,9-壬二醇二甲基丙烯酸酯、1,10-癸二醇二甲基丙烯酸酯、聚乙二醇二甲基丙烯酸酯、乙二醇二甲基丙烯酸酯、二乙二醇二甲基丙烯酸酯、三乙二醇二甲基丙烯酸酯、二乙烯基苯、甘油二甲基丙烯酸酯、2-羥基-3-丙烯醯氧基丙基甲基丙烯酸酯等之多官能性單體；氯化亞錫、氯化鐵、有機磺酸、聚氯丁二烯、氯磺化聚乙烯等。交聯助劑係可單獨使用1種，也可合併使用2種以上。

【0072】作為交聯促進劑，例如可舉出N,N-二異丙基-2-苯并噻唑-亞磺醯胺、2-巰基苯并噻唑、2-(4-N-咪啉代二硫基)苯并噻唑等之噻唑類；二苯基胍、三苯基胍等之胍類；丁醛-苯胺反應物、六亞甲基四胺-乙醛反應物等之醛-胺系反應物或醛-氨系反應物；2-巰基咪唑啉等之咪唑啉類；均二苯硫脲、二乙基脲、二丁基硫脲、三甲基硫脲、二鄰甲苯基硫脲等之硫脲類；二苯并噻唑基二

硫化物；四甲基秋蘭姆單硫化物、四甲基秋蘭姆二硫化物、六亞甲基秋蘭姆四硫化物等之秋蘭姆單硫化物類或秋蘭姆多硫化物類；二甲基二硫胺甲酸鋅、乙基苯基二硫胺甲酸鋅、二甲基二硫胺甲酸鈉、二甲基二硫胺甲酸硒、二乙基二硫胺甲酸碲等之硫胺甲酸鹽類；二丁基黃原酸鋅等之黃原酸鹽類；鋅華等。交聯促進劑係可單獨使用1種，也可合併使用2種以上。

【0073】又，本發明之氫化嵌段共聚物係在用途沒有特別的限制，於不損害本發明效果之範圍內，亦可與結晶核劑等之添加劑；氫化香豆酮・茛樹脂、氫化松香系樹脂、氫化萜烯樹脂、脂環族系氫化石油樹脂等之氫化系樹脂；由烯烴及二烯烴聚合物所成的脂肪族系樹脂等之增黏樹脂；氫化聚異戊二烯、氫化聚丁二烯、丁基橡膠、聚異丁烯、聚丁烯、聚烯烴系彈性體、具體而言，乙烯-丙烯共聚物、乙烯-丁烯共聚物、丙烯-丁烯共聚物、聚烯烴系樹脂、烯烴系聚合物、聚乙烯系樹脂等其他聚合物混合而使用。

此處，作為構成前述聚烯烴系樹脂的烯烴，例如可舉出乙烯、丙烯、1-丁烯、1-戊烯、1-己烯、1-辛烯、4-甲基-1-戊烯、環己烯等。構成聚烯烴系樹脂的烯烴係可為單獨1種，也可為2種以上。特別是作為聚烯烴系樹脂之1個的聚丙烯系樹脂，例如可舉出均聚丙烯、丙烯-乙烯無規共聚物、丙烯-乙烯嵌段共聚物、丙烯-丁烯無規共聚物、丙烯-乙烯-丁烯無規共聚物、丙烯-戊烯無規共聚物、丙烯-己烯無規共聚物、丙烯-辛烯無規共聚物、

丙烯-乙烯-戊烯無規共聚物、丙烯-乙烯-己烯無規共聚物等。又，亦可使用在此等的聚丙烯系樹脂中接枝共聚合有丙烯酸、甲基丙烯酸、巴豆酸等之不飽和單羧酸；馬來酸、檸康酸、伊康酸等之不飽和二羧酸；彼等不飽和單羧酸或不飽和二羧酸之酯、醯胺或醯亞胺；馬來酸酐、檸康酸酐、伊康酸酐等之不飽和二羧酸酐等之改性劑的改性聚丙烯系樹脂。

烴系聚合物係選自包含乙烯-丙烯-二烯共聚物(EPDM)橡膠、乙烯-醋酸乙烯酯共聚物(EVA)及聚乙烯系樹脂的群組之至少1種的烯烴系聚合物。

可作為乙烯-丙烯-二烯共聚物橡膠之原料使用的二烯，可舉出1,4-己二烯、1,6-辛二烯、2-甲基-1,5-己二烯、6-甲基-1,6-庚二烯、7-甲基-1,6-辛二烯等之鏈狀非共軛二烯；環己二烯、二氯戊二烯、甲基四氫茚、5-乙烯基降萘烯、5-亞乙基-2-降萘烯、5-亞甲基-2-降萘烯、5-亞異丙基-2-降萘烯、6-氯甲基-5-異丙烯基-2-降萘烯等之環狀非共軛二烯；2,3-二亞異丙基-5-降萘烯、2-亞乙基-3-亞異丙基-5-降萘烯、2-丙烯基-2,2-降萘二烯、1,3,7-辛三烯、1,4,9-癸三烯等之三烯等。

作為聚乙烯系樹脂，例如可舉出高密度聚乙烯、中密度聚乙烯、低密度聚乙烯等之乙烯的均聚物；乙烯/丁烯-1共聚物、乙烯/己烯共聚物、乙烯/庚烯共聚物、乙烯/辛烯共聚物、乙烯/4-甲基戊烯-1共聚物、乙烯/醋酸乙烯酯共聚物、乙烯/丙烯酸共聚物、乙烯/丙烯酸酯共聚物、乙烯/甲基丙烯酸共聚物、乙烯/甲基丙烯酸酯共聚

物等之乙烯系共聚物。

【0074】本發明之氫化嵌段共聚物係在用途沒有特別的限制，於不損害本發明的效果之範圍內，亦可與上述以外的聚合物混合而使用。

作為如此的聚合物，例如可舉出聚伸苯基醚系樹脂；聚醯胺 6、聚醯胺 6-6、聚醯胺 6-10、聚醯胺 11、聚醯胺 12、聚醯胺 6-12、聚六亞甲基二胺對苯二甲醯胺、聚六亞甲基二胺間苯二甲醯胺、含有二甲苯基的聚醯胺等之聚醯胺系樹脂；聚對苯二甲酸乙二酯、聚對苯二甲酸丁二酯等之聚酯系樹脂；聚丙烯酸甲基、聚甲基丙烯酸甲酯等之丙烯酸系樹脂；聚甲醛均聚物、聚甲醛共聚物等之聚甲醛系樹脂；苯乙烯均聚物、 α -甲基苯乙烯均聚物、丙烯腈-苯乙烯樹脂、丙烯腈-丁二烯-苯乙烯樹脂等之苯乙烯系樹脂；聚碳酸酯樹脂；乙烯-丙烯共聚物橡膠 (EPM)；苯乙烯-丁二烯共聚物橡膠、苯乙烯-異戊二烯共聚物橡膠或其氫化物或其改性物；天然橡膠；合成異戊二烯橡膠、液狀聚異戊二烯橡膠及其氫化物或改性物；氯丁二烯橡膠；丙烯酸橡膠；丁基橡膠；丙烯腈-丁二烯橡膠；環氧氯丙烷橡膠；聚矽氧橡膠；氟橡膠；氯磺化聚乙烯；胺甲酸酯橡膠；聚胺甲酸酯系彈性體；聚醯胺系彈性體；苯乙烯系彈性體；聚酯系彈性體；軟質氯乙烯樹脂等。

【0075】再者，本發明之氫化嵌段共聚物係在用途沒有特別的限制，可與各種添加劑混合而使用。作為該添加劑，例如可舉出滑石、黏土、雲母、矽酸鈣、玻璃、

玻璃中空球、玻璃纖維、碳酸鈣、碳酸鎂、鹼性碳酸鎂、氫氧化鋁、氫氧化鎂、氫氧化鈣、硼酸鋅、碳鈉鋁石、聚磷酸銨、鋁酸鈣、水滑石、矽石、矽藻土、氧化鋁、氧化鈦、氧化鐵、氧化鋅、氧化鎂、氧化錫、氧化銻、亞鐵酸鋇、亞鐵酸鋇、碳黑、石墨、碳纖維、活性碳、碳中空球、鈦酸鈣、鈦酸鋯酸鉛、碳化矽、雲母等之無機填料；木粉、澱粉等之有機填料；有機顏料、無機中空粒子等。

作為無機中空粒子，只要是由陶瓷等的無機物所形成之中空粒子，則沒有特別的限定。作為無機中空粒子，較佳為選自玻璃氣球、矽石氣球、白砂氣球、氧化鋁氣球、氧化鋯氣球及飛灰氣球的至少1種。無機中空粒子的平均粒徑例如宜為 $30 \sim 150 \mu\text{m}$ 之範圍。另外，無機中空粒子的平均粒徑係以雷射光散射法所求得的粒度之累計分布中50%重量平均粒徑(D50值)。

又，本發明之氫化嵌段共聚物視需要亦可與滑劑、抗靜電劑、難燃劑、發泡劑、撥水劑、防水劑、導電性賦予劑、熱傳導性賦予劑、電磁波屏蔽性賦予劑、螢光劑、防菌劑混合而使用。

【0076】即使於橡皮障、鞋底材料及地板材料等之情況中，也可使用含有本發明之氫化嵌段共聚物連同其他的材料而成之樹脂組成物。可含有橡皮障、鞋底材料及地板材料中使用之眾所周知的材料，並沒有特別的限制。例如，亦可含有烯烴系聚合物、交聯劑、交聯助劑、交聯促進劑、發泡劑、發泡助劑、加工助劑、各種樹脂

、各種添加劑等而成。

【0077】該樹脂組成物之製造方法係沒有特別的制限，可採用眾所周知之方法。例如，可藉由使用漢歇爾(Henschel)混合機、V型摻合機、螺帶式摻合機、轉鼓式摻合機、錐形摻合機等之混合機，混合本發明之氫化嵌段共聚物與其他材料而製造，或在其混合後，藉由單軸擠壓機、雙軸擠壓機、捏合機等進行熔融混練而製造。又，使其發泡時，例如可藉由將乾式摻合有發泡劑的樹脂組成物在具備有已作成爲所欲形狀的空腔之模具內射出發泡成形而得。

【0078】當X層爲由含有本發明之氫化嵌段共聚物以外的成分之組成物所成的層時，本發明之氫化嵌段共聚物在該組成物中之含量係沒有特別的制限，但從制振性及隔音性之觀點來看，較佳爲50質量%以上，更佳爲60質量%以上，尤佳爲80質量%以上，特佳爲90質量%以上，最佳爲95質量%以上。

X層之厚度係沒有特別的制限，但較佳爲10～800 μm 、更佳爲30～500 μm ，尤佳爲50～500 μm ，特佳爲70～350 μm 。特別是X層可爲50～150 μm ，也可爲200～350 μm 。

【0079】[Y層]

於本發明之積層體中，雖然沒有特別的制限，但前述Y層或複數個前述Y層中之至少其一較佳爲玻璃層。此時，X層係成爲層合玻璃用中間膜。玻璃層之厚度(玻璃層爲複數時係1層之厚度)較佳爲0.5～5mm，更佳爲0.5～

3.0mm，尤佳為1.0～2.5mm，特佳為1.2～1.8mm。從輕量化之觀點來看，若玻璃層之厚度設為5mm以下，則由於成為比以往更薄的設定，雖然本來隔音性容易降低，但若為使用本發明之氫化嵌段共聚物的積層體，則展現充分的隔音性。若玻璃層之厚度為0.5mm以上，則可得到充分的隔音性。

用於玻璃層的玻璃係沒有特別的限制，例如可舉出浮板玻璃、磨光板玻璃、型板玻璃、烙網板玻璃、熱線吸收板玻璃等之無機玻璃、眾所周知的有機玻璃等。玻璃係可為無色、有色、透明、半透明、非透明之任一者。

【0080】本發明之積層體係可複數個前述Y層中之至少其一為含有不同於本發明之氫化嵌段共聚物的熱塑性樹脂(i)而成之層(接著輔助層或皮層)，該熱塑性樹脂(i)係根據JIS K7244-10(2005年)於頻率1Hz之條件進行複數剪切黏度試驗(complex number shear viscosity test)所測定的在溫度25℃之剪切儲存彈性模數(G')較佳為10MPa以上，更佳為15MPa以上，尤佳為20MPa以上，特佳為20～70MPa，最佳為35～55MPa。此時，可補強X層的耐候性及強度，或調整與前述玻璃層的接著性。

當複數個前述Y層中之至少其一為含有前述熱塑性樹脂(i)而成之層(接著輔助層或皮層)時，從隔音性之觀點來看，前述X層較佳為該接著輔助層之厚度的10%以上，更佳為20%以上，尤佳為60%以上，雖然在上限值沒有特別的限制，但較佳為200%以下，更佳為160%以下，尤

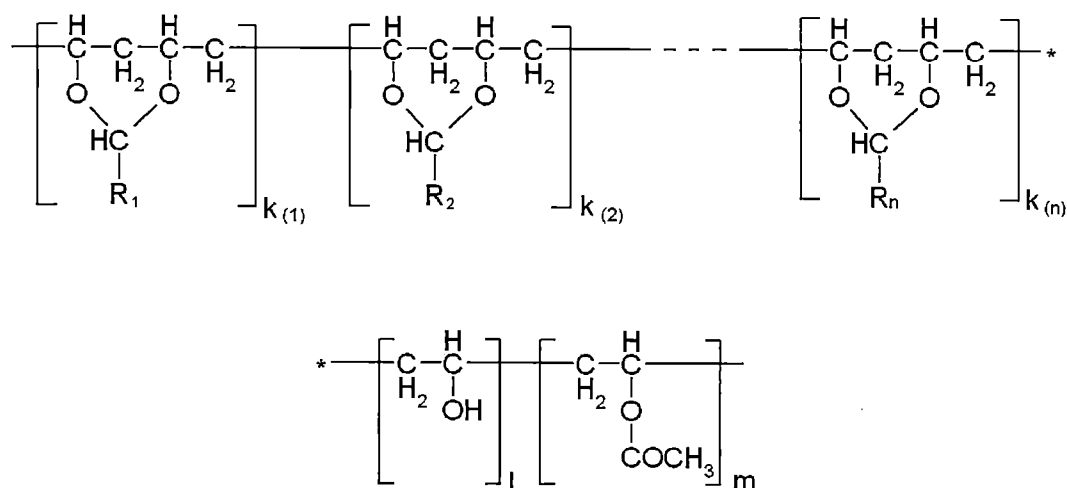
佳為130%以下。

含有熱塑性樹脂(i)而成之層(接著輔助層或皮層)亦可在表面上具有凹凸形狀。

作為熱塑性樹脂(i)，例如可舉出聚乙炔基縮醛樹脂、離子聚合物、乙烯-醋酸乙烯酯共聚物、胺甲酸酯樹脂、聚醯胺樹脂等。其中，從接著性及透明性之觀點來看，較佳為聚乙炔基縮醛樹脂、離子聚合物。

【0081】(聚乙炔基縮醛樹脂)

聚乙炔基縮醛樹脂係具有下述式所示的重複單元之樹脂。



【0082】上述式中，n表示用於縮醛化反應的醛之種類之數。R₁、R₂、．．．、R_n表示用於縮醛化反應的醛之烷基殘基或氫原子，k₍₁₎、k₍₂₎、．．．、k_(n)各自表示[]所示的構成單元之比例(莫耳比)。又，1表示乙烯醇單元之比例(莫耳比)，m表示醋酸乙烯酯單元之比例(莫耳比)。

惟，k₍₁₎+k₍₂₎+．．．+k_(n)+1+m=1，k₍₁₎、k₍₂₎、．．．、k_(n)、1及m係可任一者為零。

各重複單元係不受上述排列順序所特別限制，可為無規排列，也可為嵌段狀排列，亦可為錐狀排列。

【0083】聚乙炔基縮醛樹脂之製造方法係沒有特別的限制，可採用眾所周知之方法，例如國際公開第2012/026501號中記載之方法。

作為聚乙炔基縮醛樹脂，可使用國際公開第2012/026501號中記載之聚乙炔基縮醛樹脂，其中較佳為聚乙炔基縮丁醛(PVB)。

【0084】(離子聚合物)

作為離子聚合物，並沒有特別的限制，可舉出具有源自於乙炔之構成單元及源自於 α,β -不飽和羧酸之構成單元， α,β -不飽和羧酸的至少一部分經金屬離子所中和之樹脂。作為金屬離子，例如可舉出鈉離子。於成為基礎聚合物的乙炔- α,β -不飽和羧酸共聚物中， α,β -不飽和羧酸的構成單元之含有比例係沒有特別的限制，但較佳為2質量%以上，更佳為5質量%以上。又， α,β -不飽和羧酸的構成單元之含有比例係沒有特別的限制，但較佳為30質量%以下，更佳為20質量%以下。

作為構成離子聚合物的 α,β -不飽和羧酸，例如可舉出丙烯酸、甲基丙烯酸、馬來酸、馬來酸單甲酯、馬來酸單乙酯、馬來酸酐等。其中，較佳為丙烯酸、甲基丙烯酸。

於本發明中，從取得容易性之觀點來看，較佳為乙炔-丙烯酸共聚物之離子聚合物、乙炔-甲基丙烯酸共聚物之離子聚合物，更佳為乙炔-丙烯酸共聚物之鈉離子聚

合物、乙烯-甲基丙烯酸共聚物之鈉離子聚合物。

【0085】當 Y 層為含有前述熱塑性樹脂 (i) 而成之層時，可為僅含有前述熱塑性樹脂 (i) 而成之層，也可為由含有前述熱塑性樹脂 (i) 以外之成分的組成物所成之層。

作為熱塑性樹脂 (i) 以外之成分，例如可舉出接著力調整劑、可塑劑、抗氧化劑、紫外線吸收劑、光安定劑、防黏連劑、顏料、染料、隔熱材料等，但不受此等所特別限制。此等係可單獨 1 種或組合 2 種以上使用。

【0086】作為接著力調整劑，亦可使用國際公開第 03/033583 號中揭示者。例如，可舉出鹼金屬鹽、鹼土類金屬鹽等，更具體地可舉出鉀、鈉、鎂等之鹽。作為上述鹽，例如可舉出辛酸、己酸、丁酸、乙酸、甲酸等之羧酸等的有機酸；鹽酸、硝酸等之無機酸的鹽等。

作為可塑劑，並沒有特別的限制，但例如亦可使用一元羧酸酯系、多元羧酸酯系等之羧酸酯系可塑劑；磷酸酯系可塑劑；有機亞磷酸酯系可塑劑；羧酸聚酯系、碳酸聚酯系、以及聚烷二醇系等之高分子可塑劑；蓖麻油等之羥基羧酸與多元醇的酯化合物；羥基羧酸與一元醇的酯化合物等之羥基羧酸酯系可塑劑。

關於抗氧化劑、紫外線吸收劑、光安定劑、防黏連劑、顏料、染料及隔熱材料，係與前述 X 層中的彼等之說明同樣地說明。

【0087】當 Y 層為含有前述熱塑性樹脂 (i) 的組成物而成之層時，前述熱塑性樹脂 (i) 在該組成物中之含量係沒有特別的限制，但從接著性等之觀點來看，較佳為 50 質

量%以上，更佳為60質量%以上，尤佳為80質量%以上，特佳為90質量%以上，最佳為95質量%以上。

【0088】作為本發明之積層體的更具體之較佳態樣，可舉出依玻璃層/含有熱塑性樹脂(i)而成之層/X層/含有熱塑性樹脂(i)而成之層/玻璃層之順序所積層之積層體[Y2/Y1/X/Y1/Y2]，從剛性之觀點來看，作為更佳的態樣，可舉出依玻璃層/含有離子聚合物而成之/X層/含有離子聚合物而成之層/玻璃層之順序所積層之積層體。從與玻璃的接著控制之觀點來看，作為更佳的樣態，可舉出依玻璃層/含有PVB而成之層/X層/含有PVB而成之層/玻璃層之順序所積層之積層體。

【0089】本發明之積層體之製造方法係沒有特別的限制，例如可舉出真空層合機之方法、使用真空袋之方法、使用真空環之方法、使用夾輥之方法等。例如，於含有熱塑性樹脂(i)而成之層/X層/含有熱塑性樹脂(i)而成之層的3層構成之積層體[Y1/X/Y1]之製造中，較宜使用夾輥。又，例如於積層依玻璃層/含有熱塑性樹脂(i)而成之層/X層/含有熱塑性樹脂(i)而成之層/玻璃層之順序所積層的5層構成之積層體[Y2/Y1/X/Y1/Y2]的Y2層時，較佳為採用真空層合機。

以夾輥進行時的條件係沒有特別的限制，可將使用擠壓機在180～230℃左右共壓出而得之成形物，藉由金屬鏡面輥等之2個輥予以夾入，以指定的牽引速度來牽引。又，使用真空層合機時，熱板溫度較佳為140～190℃，抽真空時間較佳為6～20分鐘，加壓壓力較佳為35～

65MPa，加壓時間較佳為10～30分鐘。

【0090】再者，具體地說明本發明之一態樣的層合玻璃，其製造方法係沒有特別的限制，可用以往眾所周知的方法來製造。例如，可舉出使用真空層合機之方法、使用真空袋之方法、使用真空環之方法、使用夾輥之方法等。又，亦可採用：於初步壓接後，投入高壓釜中，進行正式壓接之方法。

使用真空層合機裝置時，例如可在 $1 \times 10^{-6} \sim 3 \times 10^{-2}$ MPa之減壓下，於 $100 \sim 200^{\circ}\text{C}$ ，尤其是 $130 \sim 170^{\circ}\text{C}$ ，進行層合。使用真空袋或真空環之方法，例如係記載於歐洲專利第1235683號說明書中，例如可在約 2×10^{-2} MPa之壓力下，於 $130 \sim 145^{\circ}\text{C}$ 進行層合。

使用夾輥時，例如可舉出於離子聚合物及聚乙烯基縮醛樹脂等之接著輔助層的材料之流動開始溫度以下的溫度，進行第1次的初步壓接後，再於接近流動開始溫度之條件下，進行初步壓接之方法。

又，高壓釜的正式壓接，雖然亦取決於模組之厚度及構成，但例如較佳為在約 $1 \sim 15$ MPa之壓力下，於 $130 \sim 155^{\circ}\text{C}$ 實施約0.5～2小時。

【0091】另外，亦能以在層合玻璃內部具有本發明之層合玻璃用中間膜之方式，在X層之兩面上合併塗布有Y層的玻璃並予以積層，成為層合玻璃。

【0092】作為本發明之隔音性優異的積層體之較佳用途之1個，如前述可舉出層合玻璃。該層合玻璃雖然沒有特別的限制，但例如可有效地利用於汽車用擋風玻璃、

汽車用側窗玻璃、汽車用天窗、汽車用後窗玻璃、抬頭顯示器用玻璃等。

[實施例]

【0093】以下，藉由實施例更詳細地說明本發明，惟本發明完全不受此等的實施例所限定。

【0094】[實施例所使用之各成分]

以下，顯示實施例及比較例所用的各成分之製造方法。

【0095】[製造例 1] 氫化嵌段共聚物之製造

於經氮氣置換、乾燥的耐壓容器中，加入 50kg 作為溶劑的環己烷、20g(第二丁基鋰的實質添加量：2.1g)作為陰離子聚合起始劑的濃度 10.5 質量%之第二丁基鋰的環己烷溶液，加入 260g 作為路易斯鹼的四氫呋喃。

將耐壓容器內升溫至 50℃ 後，添加 0.16kg 的苯乙烯(1)，聚合 1 小時，接著添加 7.8kg 的異戊二烯，聚合 2 小時，更添加 0.16kg 的苯乙烯(2)，聚合 1 小時，而得到含有聚苯乙烯-聚異戊二烯-聚苯乙烯三嵌段共聚物的反應液。

於該反應液中，在氫氣環境下添加由辛酸鎳及三甲基鋁所形成之齊格勒系氫化觸媒，於氫壓力 1MPa、80℃ 之條件下反應 5 小時。將該反應液放置冷卻及釋壓後，藉由水洗而去除上述觸媒，藉由真空乾燥，得到聚苯乙烯-聚異戊二烯-聚苯乙烯三嵌段共聚物之氫化物(以下，亦稱為 TPE-1)。

表 2-1 中彙總各原料及其使用量。

【0096】[製造例 2～11 及 13～16、比較製造例 1～5] 氫

化嵌段共聚物之製造

除了如表 2-1 或表 2-2 中記載，變更各成分及彼等之使用量以外，與製造例 1 同樣地進行操作，製造氫化嵌段共聚物 (TPE-2) ~ (TPE-11)、(TPE-13) ~ (TPE-16) 及 (TPE-1') ~ (TPE-5')。

【0097】[製造例 12] 苯乙烯-異丁烯-苯乙烯三嵌段共聚物之製造

於附攪拌機的反應器中，加入 800mL 的經分子篩 4A 脫水純化的二氯甲烷及 1,200mL 的同樣經脫水純化的甲基環己烷，分別添加 1.3g(5.4mmol) 的 1,4-雙(1-氯-1-甲基乙基)苯、2.4g(23mmol) 的 2,6-二甲基吡啶、0.84g(10.6mmol) 的吡啶及 210g 的異丁烯，更藉由在 -78℃ 添加 7.7g(41mmol) 的四氯化鈦而開始聚合。在 -78℃ 於攪拌下聚合 3 小時後，藉由添加 0.6g(5.9mmol) 的 2,6-二甲基吡啶及 60g 的苯乙烯，在攪拌下於同溫度更聚合 4 小時。

於所得之反應混合液中，藉由添加 200mL 的甲醇而停止聚合反應。水洗所得之混合液，接著藉由在大量的甲醇中再沈澱，得到苯乙烯-異丁烯-苯乙烯三嵌段共聚物 (TPE-12)。

【0098】 [表 2]

表 2-1：氫化嵌段共聚物之製造

		製造例								
		1	2	3	4	5	6	7	8	9
氫化嵌段共聚物		TPE-1	TPE-2	TPE-3	TPE-4	TPE-5	TPE-6	TPE-7	TPE-8	TPE-9
使用量 (kg)	環己烷	50	50	50	50	50	50	50	50	50
	第二丁基鋰 (10.5 質量%環己烷溶液)	0.020	0.020	0.020	0.028	0.054	0.076	0.111	0.082	0.130
	(A)	苯乙烯(1)	0.16	0.16	0.16	0.38	0.75	0.50	1.00	0.50
		苯乙烯(2)	0.16	0.16	0.16	0.38	0.75	1.50	1.00	1.50
	(B)	異戊二烯	7.80	6.40	7.80	8.75	11.00	8.20	8.20	13.31
		丁二烯					6.50	14.60	6.50	
		苯乙烯(3)		1.40						
	路易斯鹼	四氫呋喃	0.26	0.26	0.17	0.27	0.28	0.31	0.11	0.29
		N,N,N',N'-四甲基乙二胺						0.030		

聚合物嵌段(B)之成分係作為混合物使用。

表 2-2：氫化嵌段共聚物之製造

		製造例						比較製造例				
		10	11	13	14	15	16	1	2	3	4	5
氫化嵌段共聚物		TPE-10	TPE-11	TPE-13	TPE-14	TPE-15	TPE-16	TPE-1'	TPE-2'	TPE-3'	TPE-4'	TPE-5'
使用量 (kg)	環己烷	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50
	第二丁基鋰 (10.5 質量% 環己烷溶液)	0.125	0.101	0.060	0.075	0.020	0.020	0.186	0.217	0.075	0.020	0.020
	(A)	苯乙烯(1)	1.70	1.70	0.67	1.00	0.32	0.16	2.50	2.50	1.00	0.02
		苯乙烯(2)	1.70	1.70	0.33	1.00		0.16	2.50	2.50	1.00	0.02
	(B)	異戊二烯	11.00	13.30			7.80	5.85	6.49		8.10	5.44
		丁二烯			15.00	3.24		5.16	11.70	1.16		
		苯乙烯(3)	2.30		0.67	7.24		1.95		9.34		
	路易斯鹼	四氫呋喃	0.29			0.11	0.26	0.26		0.11	0.11	0.26
		N,N,N',N'- 四甲基乙 二胺		0.065	0.020							

聚合物嵌段(B)之成分係作為混合物使用。

【0099】 (實施例 1～16 及比較例 1～5)

對於各製造例及比較製造例所得之氫化嵌段共聚物，依照後述之測量方法，進行各物性評價。表 3 及表 4 中

顯示其結果。

惟，於比較例 4 中，由於成形性低，無法作成各物性評價用試驗片，故不能進行各物性評價。

【0100】又，依照以下之方法，製造以 Y1 層作為離子聚合物之積層體(層合玻璃用中間膜)[Y1 層/X 層/Y1 層]，更製造在 Y2 層使用玻璃之積層體(層合玻璃)[Y2 層/Y1 層/X 層/Y1 層/Y2 層]，依照下述方法，進行物性評價。表 3 及表 4 中亦一併顯示其結果。

【0101】(1.層合玻璃用中間膜之製作)

使用螺桿直徑 50mm 的排氣式單軸擠壓機，於溫度 210℃、吐出量 4kg/時之條件下，將 X 層用的氫化嵌段共聚物導入至 205℃ 的 T 字模(多歧管型：寬度 500mm)，使用螺桿直徑 65mm 的排氣式單軸擠壓機，於溫度 205℃、吐出量 24kg/時之條件下，將 Y1 層用的離子聚合物(杜邦公司製，SentryGlas(註冊商標)Interlayer)導入至該 T 字模。

藉由一個為 50℃ 且另一個為 60℃ 的 2 個金屬鏡面輥，夾持自該 T 字模所共壓出的成形物，以牽引速度 1.2m/分鐘，將 Y1 層/X 層/Y1 層(330 μ m/100 μ m/330 μ m)之 3 層構成的層合玻璃用中間膜(760 μ m)[積層體 1]予以成形。

又，同樣地將 Y1 層/X 層/Y1 層(253 μ m/253 μ m/253 μ m)之 3 層構成的層合玻璃用中間膜(760 μ m)[積層體 2]予以成形。

【0102】(2.層合玻璃之製作)

於作為 Y2 層的市售之透明玻璃[FL2(4 側系面加工)]

，縱300mm×橫25mm×厚度2.0mm，三芝硝材股份有限公司製]2片中，夾住前述層合玻璃用中間膜[積層體1]，使用真空層合機(日清紡MECHATRONICS股份有限公司製「1522N」)，藉由於熱板溫度165℃、抽真空時間12分鐘、加壓壓力50kPa、加壓時間17分鐘之條件下處理，製作Y2層/Y1層/X層/Y1層/Y2層的5層構成之層合玻璃[積層體3]。

又，除了使用積層體2代替前述積層體1以外，同樣地進行操作，製作Y2層/Y1層/X層/Y1層/Y2層的5層構成之層合玻璃[積層體4]。

【0103】< 氫化嵌段共聚物之物性 >

(1) 聚合物嵌段(A)之含量

將氫化嵌段共聚物溶解於CDCl₃中，進行¹H-NMR測定[裝置：「ADVANCE 400 Nano bay」(Bruker公司製)，測量溫度：50℃]，自源自於苯乙烯的波峰強度來算出聚合物嵌段(A)之含量。

【0104】(2) 形態

將氫化嵌段共聚物於溫度230℃、壓力10MPa下加壓3分鐘，製作厚度1mm之薄膜。將該薄膜切割成所欲的大小而成為試驗片後，於面露出溫度-110℃下，使用鑽石割刀進行面露出。使用掃描型探針顯微鏡(SPM)(SII奈米科技股份有限公司製)，在測量溫度25℃下觀察試驗片之剖面(1μm見方)，評價形態。再者，當具有球體(圖1)、圓柱體(圖2)、層狀(圖3)中任一者之微相分離結構時，表3及表4中顯示其要點。

【0105】(3)重量平均分子量(Mw)

藉由下述條件之凝膠滲透層析法(GPC)測定，求得氫化嵌段共聚物的聚苯乙烯換算之重量平均分子量(M_w)。

(GPC測定装置及測定条件)

- 裝置 : GPC裝置「HLC-8020」(東曹股份有限公司製)
- 分離管柱 : 串聯連接東曹股份有限公司製之「TSKgel GMHXL」、「G4000HXL」及「G5000HXL」。
- 洗提液 : 四氫呋喃
- 洗提液流量 : 1.0mL/分鐘
- 樣品濃度 : 5mg/10mL
- 管柱溫度 : 40℃
- 檢測器 : 示差折光率(RI)檢測器
- 校正曲線 : 使用標準聚苯乙烯作成

【0106】(4) 氫化嵌段共聚物之氫化率

藉由 $^1\text{H-NMR}$ 測定求得。

- ・ 裝置：核磁共振裝置「ADVANCE 400 Nano bay」(Bruker公司製)
- ・ 溶劑：重氫化氯仿

【0107】(5)平均亞甲基鏈長

根據前述說明，自單體種類以及 1,2-鍵結及 3,4-鍵結之含量的合計值(乙烯基鍵結量)，算出平均亞甲基鏈長。

【0108】(6)側鏈之平均取代基常數

根據前述說明，自單體種類以及1,2-鍵結及3,4-鍵結之含量的合計值(乙烯基鍵結量)，算出側鏈之平均取代基常數。

【0109】(7)聚合物嵌段(B)之乙烯基鍵結量

將氫化前的嵌段共聚物溶解於 CDCl_3 中，進行 $^1\text{H-NMR}$ 測定[裝置：「ADVANCE 400 Nano bay」(Bruker公司製)，測量溫度： 50°C]。自源自於異戊二烯及/或丁二烯之結構單元的全部波峰面積，與異戊二烯結構單元中的3,4-鍵結單元及1,2-鍵結單元，丁二烯結構單元中的1,2-鍵結單元，或源自於異戊二烯與丁二烯之混合物之結構單元時對應於各自的前述鍵結單元之波峰面積之比，算出乙烯基鍵結量(3,4-鍵結單元與1,2-鍵結單元之含量合計)。

【0110】(8-1) $\tan\delta$ 之峰頂溫度、峰頂強度及在 $\tan\delta$ 峰頂溫度 $+30^\circ\text{C}$ 的儲存彈性模數(G')

爲了以下之測定，將氫化嵌段共聚物在溫度 230°C 、壓力 10MPa 下加壓3分鐘，而製作厚度 1.0mm 之單層薄片。將該單層薄片切成圓板形狀，將此當作試驗片。

於測定中，根據JIS K7244-10(2005年)，作爲平行平板振動流變計，使用圓板的直徑爲 8mm 的畸變控制型動態黏彈性裝置「ARES-G2」(TA儀器日本公司製)。

藉由上述試驗片，完全填充2片平板間之間隙，以應變量 0.1% 、 1Hz 之頻率，將振動給予上述試驗片，以 $3^\circ\text{C}/\text{分鐘}$ 的恆速從 -70°C 升溫到 200°C 爲止。保持上述試驗片與圓板之溫度，直到在剪切損失彈性模數及剪切儲存彈

性模數之測定值沒有變化為止，求得氫化嵌段共聚物之儲存彈性模數(G')、 $\tan\delta$ 之波峰強度的最大值(峰頂強度)及得到該最大值的溫度(峰頂溫度)。又，求得在 $\tan\delta$ 峰頂溫度+30℃的儲存彈性模數(G')。

【0111】 (8-2) $d(G')/dT$ 之最小值

使用上述(8-1)中所測定的儲存彈性模數(G')，某溫度(T)的儲存彈性模數為 $G'(T)$ 及微小量(dT)上升溫度之點的儲存彈性模數為 $G'(T+dT)$ ，自此等之值計算 $d(G')/dT = (G'(T+dT) - G'(T))/dT$ ，求得從 $T = -70^\circ\text{C}$ 到 200°C 為止的 $d(G')/dT$ 之最小值。

【0112】 (9)MD方向之收縮率

將各製造例所得之氫化嵌段共聚物在 230°C 、無延伸的條件下進行壓出成形而得之帶狀薄片(MD/TD=4.0cm/3.5cm，厚度1mm)，在 230°C 靜置於滑石上1星期之後，將MD方向之長度設為 y ，將初期MD方向之長度(4.0cm)設為 x ，自MD方向之收縮率 $= \{(x-y)/x\} \times 100(\%)$ 之式求得。

【0113】 (10)Y層之剪切儲存彈性模數(G')

將離子聚合物在溫度 230°C 、壓力10MPa下加壓3分鐘，製作厚度1.0mm之單層薄片。將該單層薄片切成圓板形狀，將此當作試驗片。

根據JIS K7244-10，作為平行平板振動流變計，使用圓板的直徑為8mm的畸變控制型動態黏彈性裝置「ARES-G2」(TA儀器日本公司製)。

藉由上述試驗片，完全填充2片平板間之間隙，以應

變量 0.1%、1Hz 之頻率，將振動給予上述試驗片，以 3℃ / 分鐘的恆速從 -40℃ 升溫到 100℃ 為止。保持上述試驗片與圓板之溫度，直到在剪切損失彈性模數及剪切儲存彈性模數之測定值沒有變化為止，測定 Y 層的剪切儲存彈性模數。

【0114】< I 值之求法 >

[1] 依照下述測量方法，測定氫化嵌段共聚物的 $\tan\delta$ 之峰頂頻率以及積層體每單位寬度之彎曲剛性及面密度，自彼等算出 I 值。

[1-1] 氫化嵌段共聚物的 $\tan\delta$ 之峰頂頻率

根據 JIS K7244-10(2005 年)，使用與前述「(8) $\tan\delta$ 之峰頂溫度及峰頂強度」之測定同樣製作的試驗片(厚度 1.0mm)，基於以應變量 0.1%、頻率 1~100Hz、測量溫度 20℃、10℃、0℃、-10℃、-30℃ 所測定的實測值，製作採用 WLF 法所計算出之主曲線，算出氫化嵌段共聚物之峰頂頻率。

再者，除了於上述方法中，將測量溫度設為 20℃，將頻率設為 1~1,000,000Hz 以外，同樣地進行測定，作成表示頻率與 $\tan\delta$ 之關係的曲線圖。圖 4~圖 23 中顯示所作成的曲線圖於 (b)。

[1-2] 積層體(層合玻璃)每單位寬度之彎曲剛性(B: Pa · m³)

在機械阻抗裝置(小野測器股份有限公司製，曼斯堪舍放大器：masscancelamplifier MA-5500，channel data station：DS-2100)的振盪器(poweramplifier/model371-A)

之阻抗頭中內建的振盪力檢測器之前端部，固定各例所得之積層體(層合玻璃)3或4的中央部。以頻率0～8,000Hz之範圍將振動給予前述積層體的中央部，檢測此點的振盪力與加速度波形，進行中央振盪法的積層體(層合玻璃)3或4之阻尼試驗。

以將所得之振盪力與加速度信號積分而得的速度信號為基礎，求得振盪點(加以振動後的前述積層體之中央部)之機械阻抗，將橫軸當作頻率，將縱軸當作機械阻抗，於所得之阻抗曲線中，自表示波峰的頻率來算出積層體(層合玻璃)3或4每單位寬度之彎曲剛性($\text{Pa} \cdot \text{m}^3$)。

[1-3]積層體(層合玻璃)之面密度($\text{m} : \text{kg}/\text{m}^2$)

藉由測量各例所得的積層體(層合玻璃)3或4之質量，除以表面積(縱 $300 \times 10^{-3} \text{m}$ ，橫 $25 \times 10^{-3} \text{m}$)，而求得積層體(層合玻璃)3或4每單位面積之質量，即面密度。

【0115】[2]積層體(層合玻璃)之聲音透過損失(STL)

在機械阻抗裝置(小野測器股份有限公司製；曼斯堪舍放大器：masscancelamplifierMA-5500；channel data station：DS-2100)的振盪器(poweramplifier/model371-A)之阻抗頭中內建的振盪力檢測器之前端部上，固定各例所得的積層體(層合玻璃)3或4之中央部。以頻率0～8,000Hz之範圍將振動給予前述積層體的中央部，檢測此點的振盪力與加速度波形，進行中央振盪法的積層體(層合玻璃)3或4之阻尼試驗。

以所得之振盪力與將加速度信號積分而得的速度信號為基礎，求得振盪點(加以振動後的前述積層體之中央

部)之機械阻抗，將橫軸當作頻率，將縱軸當作機械阻抗，於所得之阻抗曲線中，自表示波峰的頻率與半值半寬度，求得上述積層體(層合玻璃)3或4之損失係數。

再者，使用3次共振頻率中的損失係數及每單位寬度之彎曲剛性，根據ISO16940(2008)，作成表示在20℃的頻率與聲音透過損失(STL)之關係的曲線圖。圖4～圖23中顯示所作成的曲線圖於(a)。圖中之「330 μm /100 μm /330 μm 」為積層體3的曲線圖，「253 μm /253 μm /253 μm 」為積層體4的曲線圖。

自所得之STL的曲線圖，求得重合臨界頻率(重合效應所致的STL降低開始發生之頻率)。

又，將「因重合效應而STL最有降低的頻率(重合頻率)之由質量定律所計算的STL(若重合效應不存在，則為假設時的STL)-實際的STL」定義為 ΔSTL 。 ΔSTL 愈小愈可抑制起因於重合效應所造成的STL降低，可說是能有效果地抑制隔音性的降低。再者，由質量定律所計算的STL係在ISO16940(2008)中相當於損失係數=1時之STL。

【0116】 [表 3]

		實施例								
		1	2	3	4	5	6	7	8	9
X層中所使用的氮化嵌段共聚物之物理性質	所使用的氮化嵌段共聚物	TPE-1	TPE-2	TPE-3	TPE-4	TPE-5	TPE-6	TPE-7	TPE-8	TPE-9
	聚物嵌段(A)之結構單元	St	St	St	St	St	St	St	St	St
	構成聚物嵌段(B)的成分	Ip	Ip/St	Ip	Ip	Ip	Ip/Bd	Bd	Ip/Bd	Ip
	構成聚物嵌段(B)的成分之質量比	100	82.5/17.5	100	100	100	56/44	100	56/44	100
	構成聚物嵌段(B)的成分之莫耳比	100	88/12	100	100	100	50/50	100	50/50	100
	聚物結構	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A
	聚物嵌段(A)之含量(質量%)	4	4	4	8	12	12	12	12	20
	氮化嵌段共聚物的形態	球體	球體	球體	球體	球體	球體	球體	球體	圓柱體
	氮化嵌段共聚物之重量平均分子量	373,000	385,000	368,000	210,000	175,000	163,000	172,000	160,000	103,000
	聚物嵌段(B)之氮化率(mol%)	92	90	90	91	91	92	99	95	88
	聚物嵌段(B)的平均亞甲基鏈長	1.9	1.7	2	1.8	1.8	2.3	2.2	3.2	1.8
	聚物嵌段(B)的側鏈之平均取代基常數	0.46	0.48	0.43	0.46	0.46	0.37	0.35	0.29	0.47
	聚物嵌段(B)之乙烯基鍵結量(mol%)	57	60	50	58	58	64	77	47	60
	tanδ之峰頂溫度(°C)	-11.1	3	-20	-10	-8.5	-21	-34.3	-38.3	-4.5
	tanδ之峰頂強度	2.7	2.4	2.4	2.6	2.5	2.2	2.1	1.9	2.2
	在tanδ峰頂溫度+30°C的G'(Mpa)	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.7	0.6	0.9	0.6
	d(G)/dT _{emp.} 之最小值(Mpa/°C)	-46	-41	-40	-45	-44	-39	-31	-32	-36
	MD方向之收縮率(%)	2.4	2.5	2.3	2.6	5.1	5.1	5.3	5.2	17.6
積層體3之物理性質	Y層之剪切儲存彈性模數 G'(MPa)	43.2	43.2	43.2	43.2	43.2	43.2	43.2	43.2	43.2
	I值(330μm/100μm/330μm)	37,100	2,430	113,000	32,400	28,500	138,000	649,000	1,470,000	10,200
	氮化嵌段共聚物的tanδ之峰頂頻率(Hz)	8,300	450	32,400	7,500	6,760	40,000	180,000	430,000	1,780
	每單位寬度之彎曲剛性 B(Pa·m ³) (330μm/100μm/330μm)	198	287	120	185	173	117	126	114	331
	面密度 m(kg/m ²) (330μm/100μm/330μm)	9.9	9.8	9.8	9.9	9.7	9.8	9.7	9.8	10.0
	重合臨界頻率(330μm/100μm/330μm)	4100	3400	5300	4300	4400	5300	5100	5400	3200
	STL(dB)(4,000Hz,330μm/100μm/330μm)	38.6	33.5	40.3	38.1	40.3	41.7	41.2	41.7	28.8
	STL(dB)(6,300Hz,330μm/100μm/330μm)	42.7	42.5	42.5	44.9	45.3	40.1	38.0	35.9	46.0
	ΔSTL(330μm/100μm/330μm)	9.4	9.1	7.3	5.3	5.2	9.7	11.7	13.9	13.8
	I值(253μm/253μm/253μm)	33,500	2,300	101,000	30,700	28,100	121,000	545,000	1,330,000	8,240
積層體4之物理性質	氮化嵌段共聚物的tanδ之峰頂頻率(Hz)	8,300	450	32,400	7,500	6,760	40,000	180,000	430,000	1,780
	每單位寬度之彎曲剛性 B(Pa·m ³) (253μm/253μm/253μm)	158	256	95	165	171	90	90	95	211
	面密度 m(kg/m ²) (253μm/253μm/253μm)	9.7	9.8	9.8	9.9	9.9	9.9	9.8	9.9	9.9
	重合臨界頻率(253μm/253μm/253μm)	4600	3600	5900	4500	4400	6100	6100	5900	4000
	STL(dB)(4,000Hz,253μm/253μm/253μm)	39.9	34.3	38.7	38.6	40.0	42.4	42.1	42.2	39.2
	STL(dB)(6,300Hz,253μm/253μm/253μm)	41.2	43.3	41.3	44.4	44.4	40.6	39.8	39.1	46.3
	ΔSTL(253μm/253μm/253μm)	8.6	8.3	11.1	5.8	5.9	15.1	15.7	18.6	5.7

【0117】 [表 4]

實施例													比較例				
	10	11	12	13	14	15	16	1	2	3	4	5					
X層中所使用的 聚胺物之特性	所使用的氯化嵌段共聚物	TPE-10	TPE-11	TPE-12	TPE-13	TPE-14	TPE-15	TPE-16	TPE-1'	TPE-2'	TPE-3'	TPE-4'	TPE-5'				
	聚胺物嵌段(A)之結構單元	St	St	St	St	St	St	St	St	St	St	St	St				
	構成聚胺物嵌段(B)的成分	Ip/St	Ip	IB	Bd/St	Bd/St	Ip	Ip/St	Ip/Bd	Bd	Bd/St	Ip	Ip				
	構成聚胺物嵌段(B)的成分之質量比	82.5/17.5	100	100	96/4	69/31	100	75/25	56/44	100	11/89	100	100				
	構成聚胺物嵌段(B)的成分之莫耳比	88/12	100	100	98/2	81/19	100	82/18	50/50	100	20/80	100	100				
	聚胺物結構	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A				
	聚胺物嵌段(A)之含量(質量%)	20	20	20	6	16	4	4	30	30	30	0.5	33				
	氯化嵌段共聚物的形態	圓柱體	圓柱體	圓柱體	球體	圓柱體	球體	球體	圓柱體	圓柱體	圓柱體	—	圓柱體				
	氯化嵌段共聚物之重量平均分子量	121,000	135,000	80,000	269,000	127,000	375,000	390,000	92,000	77,000	100,000	380,000	310,000				
	聚胺物嵌段(B)之氯化率(mol%)	90	85	—	98	98	92	90	98	98	98	90	90				
	聚胺物嵌段(B)的平均亞甲基鏈長	1.7	1.5	1	2.5	4.8	1.9	1.7	6.4	7	1.5	1.8	1.8				
	聚胺物嵌段(B)的側鏈之平均取代基常數	0.48	0.55	1.04	0.32	0.19	0.46	0.48	0.15	0.13	0.55	0.47	0.46				
	聚胺物嵌段(B)之乙烯基鍵結量(mol%)	57	74	—	72	40	57	58	6	38	40	60	58				
	tanδ之峰頂溫度(°C)	3.1	22.4	-34.9	-27.6	-30.2	-10.4	8.4	-49.5	-47	60	—	-8.9				
積層體3之特性	tanδ之峰頂強度	2.1	1.6	1.39	1.39	1.29	2.6	2.4	0.4	0.4	0.2	—	0.98				
	在tanδ峰頂溫度+30°C的G'(Mpa)	1.0	0.6	1.0	0.6	1.3	0.4	0.6	9.4	14	20	—	14				
	d(G')/dTTemp.之最小值(Mpa/°C)	-45	-25	-25	-15	-25	-44	-45	-22	-16	-10	—	-7				
	MD方向之收縮率(%)	19.5	18.5	18.8	2.6	15.8	2.4	2.7	16.8	17.2	19.5	—	20.3				
	Y層之剪切儲存彈性模數G'(MPa)	43.2	43.2	43.2	43.2	43.2	43.2	43.3	43.2	43.2	43.2	—	43.2				
	I值(330μm/100μm/330μm)	2,280	5	51,140	234,680	1,439,610	45,380	180	28,900,000,000	540,000,000	0.0896	—	15,700				
	氯化嵌段共聚物的tanδ之峰頂頻率(Hz)	380	0.9	15,670	62,220	400,000	9,000	30	7,830,000,000	142,000,000	0.0150	—	2,600				
	每單位寬度之彎曲剛性B(Pa・m ³)	352	360	104	139	127	239	323	135	140	350	—	350				
	面密度 m(kg/m ²)(330μm/100μm/330μm)	9.8	9.8	9.8	9.8	9.8	9.4	9.5	9.9	9.7	9.8	—	9.6				
	重合臨界頻率(330μm/100μm/330μm)	3100	3000	5600	4900	5100	3600	3200	5000	4800	3100	—	3000				
	STL(dB)(4,000Hz,330μm/100μm/330μm)	24.9	30.5	40.7	38.5	39.3	35.5	26.3	38.7	38.3	26.8	—	31.0				
	STL(dB)(6,300Hz,330μm/100μm/330μm)	44.0	38.7	36.6	36.8	35.2	45.2	36.0	31.6	31.9	36.4	—	39.5				
	ΔSTL(330μm/100μm/330μm)	17.7	15.3	13.2	14.0	14.6	8.8	16.3	19.3	20.1	18.8	—	14.4				
	I值(253μm/253μm/253μm)	2,240	5	42,000	204,760	1,234,940	42,010	180	25,000,000,000	462,000,000	0.09	—	14,110				
積層體4之特性	氯化嵌段共聚物的tanδ之峰頂頻率(Hz)	380	0.9	15,670	62,220	400,000	9,000	30	7,830,000,000	142,000,000	0.015	—	2,600				
	每單位寬度之彎曲剛性B(Pa・m ³)	340	332	100	106	93	207	330	100	105	340	—	280				
	面密度 m(kg/m ²)(253μm/253μm/253μm)	9.8	9.8	9.8	9.8	9.8	9.5	9.7	9.8	9.9	9.8	—	9.5				
	重合臨界頻率(253μm/253μm/253μm)	3100	3200	5800	5600	6000	3900	3200	5800	5600	3100	—	3400				
	STL(dB)(4,000Hz,253μm/253μm/253μm)	31.4	30.3	42.2	40.6	41.2	37.7	31.7	40.9	40.6	26.8	—	30.4				
	STL(dB)(6,300Hz,253μm/253μm/253μm)	47.9	37.5	39.2	33.6	31.1	44.3	40.4	28.9	29.4	34.4	—	39.8				
	ΔSTL(253μm/253μm/253μm)	11.2	15.3	15.5	16.1	18.7	8.5	12.0	20.9	20.4	18.5	—	12.2				

【0118】<表3及表4中的縮寫符號之說明>

St : 苯乙烯

Bd : 丁二烯

Ip : 異戊二烯

IB : 異丁烯

【0119】如表3、表4及圖4～圖23之結果，於實施例1～16中，層合玻璃用中間膜的MD方向之收縮率小(低收縮性)者多， $\tan\delta$ 之峰頂強度大於比較例1～3及5。再者，於積層體3及4中，由於在多數的實施例中I值為200～2,000,000之範圍內，故表示重合臨界頻率與 $\tan\delta$ 峰頂頻率為接近之值，可知能有效果地抑制起因於重合效應的STL降低所造成的隔音性降低。特別是於實施例1～5、9及15中，有效果地抑制起因於重合效應的STL降低所造成的隔音性降低。

又，於實施例3、6～8及12～14中，重合臨界頻率係被高頻率化，可說是低頻率範圍(例如4,000Hz以下)的隔音性更優異。

[產業上之可利用性]

【0120】本發明之氫化嵌段共聚物由於對於任意厚度的層合玻璃，能提高隔音性，亦可適用作為制振材料、隔音材料、層合玻璃用中間膜、橡皮障、鞋底材料、地板材料等。再者，也可使用於擋風雨條、踏墊等。

又，亦適用作為家電領域的電視、藍光記錄器或HDD記錄器等之各種記錄器類、投影機、遊戲機、數位相機、家用視頻、天線、揚聲器、電子辭典、IC記錄器、FAX

、影印機、電話機、對講機、電鍋、微波爐、微波烤箱、冰箱、洗碗機、烘碗機、IH烹調爐、熱板、吸塵器、洗衣機、充電器、縫紉機、電熨斗、乾燥機、電動自行車、空氣清淨機、淨水器、電動牙刷、照明器具、空調、空調的室外機、除濕機、加濕機等之各種電氣製品中的密封材料、接著劑、黏著劑、墊圈、O型環、皮帶、防音材料等。

【符號說明】

【0121】

- 1 聚合物嵌段(A)
- 2 聚合物嵌段(B)

2021 年 1 月 22 日修正本

申請專利範圍

1. 一種氫化嵌段共聚物，其係具有下述嵌段之嵌段共聚物的氫化物：含有超過 70 莫耳%之源自於芳香族乙烯基化合物之結構單元的聚合物嵌段(A)、含有 30 莫耳%以上之源自於選自包含共軛二烯化合物及異丁烯的群組之至少 1 種之結構單元的聚合物嵌段(B)，並滿足下述條件(1)及(2)，

條件(1)：聚合物嵌段(A)在該嵌段共聚物中之含量為 1~4.5 質量%；

條件(2)：就聚合物嵌段(B)而言，當判斷為氫化率 100 莫耳%之結構時，源自於選自包含共軛二烯化合物及異丁烯的群組之至少 1 種之結構單元的主鏈之亞甲基鏈長之平均值為 1.0~6.0。

2. 如請求項 1 之氫化嵌段共聚物，其中，該聚合物嵌段(B)之氫化率為 80~99 莫耳%。
3. 如請求項 1 或 2 之氫化嵌段共聚物，其中，就該聚合物嵌段(B)而言，當判斷為氫化率 100 莫耳%之結構時，主鏈之每一個伸乙基單元所具有之側鏈之取代基常數(ν)之平均值為 0.25~1.1。
4. 如請求項 1 或 2 之氫化嵌段共聚物，其中，就該聚合物嵌段(B)而言，當判斷為氫化率 100 莫耳%之結構時，主鏈之每一個伸乙基單元所具有之側鏈之取代基常數(ν)之平均值為 0.30~0.55。
5. 如請求項 1 或 2 之氫化嵌段共聚物，其中，該共軛二烯化合物為異戊二烯、丁二烯、或異戊二烯與丁二烯

之混合物。

- 6.如請求項 1 或 2 之氫化嵌段共聚物，其中，該共軛二烯為異戊二烯。
- 7.如請求項 1 或 2 之氫化嵌段共聚物，其中，就該條件(1)而言，聚合物嵌段(A)在該嵌段共聚物中之含量為 3.5～4.5 質量%。
- 8.如請求項 1 或 2 之氫化嵌段共聚物，其中，就該條件(2)而言，源自於共軛二烯化合物之結構單元的主鏈之亞甲基鏈長之平均值為 1.5～3.0。
- 9.如請求項 1 或 2 之氫化嵌段共聚物，其中，根據 JIS K7244-10(2005 年)，依應變量 0.1%、頻率 1Hz、測量溫度 -70～200℃、升溫速度 3℃/分鐘之條件下所測出之 $\tan\delta$ 之峰頂強度為 0.5 以上。
- 10.如請求項 1 或 2 之氫化嵌段共聚物，其中，根據下述成形條件進行成形所得之厚度 1mm 之薄膜的形態為具有球體(球狀)或圓柱體(柱狀)之微相分離結構，
成形條件：在溫度 230℃、壓力 10MPa 下加壓 3 分鐘。
- 11.如請求項 1 或 2 之氫化嵌段共聚物，其中，根據下述成形條件進行成形所得之厚度 1mm 之薄膜的形態為具有球體(球狀)之微相分離結構，
成形條件：在溫度 230℃、壓力 10MPa 下加壓 3 分鐘。
- 12.如請求項 1 或 2 之氫化嵌段共聚物，其中，如下所定義之 MD 方向之收縮率為 15%以下，

2021 年 1 月 22 日修正本

MD 方向之收縮率：當將依 230℃、無延伸的條件下進行壓出成形所得到之帶狀薄片(MD/TD=4.0cm/3.5cm, 1mm)於 230℃下靜置於滑石上 1 星期之後的 MD 方向之長度設為 y，將初期 MD 方向之長度 (4.0cm) 設為 x 時，MD 方向之收縮率 = $\{(x-y)/x\} \times 100(\%)$ 。

- 13.如請求項 1 或 2 之氫化嵌段共聚物，其中，該聚合物嵌段(B)含有源自於異戊二烯與苯乙烯之結構單元或源自於丁二烯與苯乙烯之結構單元。
- 14.一種制振材料，其含有如請求項 1 至 13 中任一項之氫化嵌段共聚物而成。
- 15.一種隔音材料，其含有如請求項 1 至 13 中任一項之氫化嵌段共聚物而成。
- 16.一種橡皮障，其含有如請求項 1 至 13 中任一項之氫化嵌段共聚物而成。
- 17.一種鞋底材料，其含有如請求項 1 至 13 中任一項之氫化嵌段共聚物而成。
- 18.一種地板材料，其含有如請求項 1 至 13 中任一項之氫化嵌段共聚物而成。
- 19.一種積層體，其具有：含有如請求項 1 至 13 中任一項之氫化嵌段共聚物而成之 X 層、積層在該 X 層之至少一面上之 Y 層。
- 20.如請求項 19 之積層體，其係具有該 X 層、複數個該 Y 層，X 層積層在至少 2 個 Y 層之間而成的積層體，滿足下述式(I)，

2021 年 1 月 22 日修正本

$$200 \leq \tan\delta \text{ 之峰頂頻率} \times \sqrt{B/m} \leq 2,000,000 \quad (I)$$

(式(I)中，B 表示積層體每單位寬度之彎曲剛性($\text{Pa} \cdot \text{m}^3$)，m 表示積層體之面密度(kg/m^2)， $\tan\delta$ 之峰頂頻率(Hz)表示依據下述方法所求得之氫化嵌段共聚物之 $\tan\delta$ 之波峰為最大時的頻率)，

$\tan\delta$ 之峰頂頻率之測量方法：使用依據下述成形條件進行成形所得到之厚度 1.0mm 之薄片狀試驗片，基於根據 JIS K7244-10(2005 年)，依應變量 0.1%、頻率 1~100Hz、測量溫度 20℃、10℃、0℃、-10℃、-30℃之條件下所測出之實測值，製作採用 WLF 法所計算出之主曲線，求得峰頂頻率，

成形條件：在溫度 230℃、壓力 10MPa 下加壓 3 分鐘。

- 21.如請求項 19 或 20 之積層體，其中，該 Y 層或複數個該 Y 層中之至少其一為玻璃層。
- 22.如請求項 21 之積層體，其中，該玻璃層之厚度為 0.5~5mm。
- 23.如請求項 20 之積層體，其中，複數個該 Y 層中之至少其一為含有不同於如請求項 1 至 13 中任一項之氫化嵌段共聚物的熱塑性樹脂(i)而成之層。
- 24.如請求項 23 之積層體，其係依序積層為玻璃層/含有該熱塑性樹脂(i)而成之層/該 X 層/含有該熱塑性樹脂(i)而成之層/玻璃層。
- 25.一種層合玻璃，其係由如請求項 19 至 24 中任一項之積層體所構成。

2021 年 1 月 22 日修正本

26.如請求項 25 之層合玻璃，其係汽車用擋風玻璃、汽車用側窗玻璃、汽車用天窗、汽車用後窗玻璃或抬頭顯示器用玻璃。

27.一種層合玻璃用中間膜，其係含有氫化嵌段共聚物而成，該氫化嵌段共聚物係具有下述嵌段之嵌段共聚物的氫化物：含有超過 70 莫耳%之源自於芳香族乙烯基化合物之結構單元的聚合物嵌段(A)、含有 30 莫耳%以上之源自於選自包含共軛二烯化合物及異丁烯的群組之至少 1 種之結構單元的聚合物嵌段(B)，並滿足下述條件(1)及(2)，

條件(1)：聚合物嵌段(A)在該嵌段共聚物中之含量為 1~30 質量%；

條件(2)：就聚合物嵌段(B)而言，當判斷為氫化率 100 莫耳%之結構時，源自於選自包含共軛二烯化合物及異丁烯的群組之至少 1 種之結構單元的主鏈之亞甲基鏈長之平均值為 1.0~6.0。

28.如請求項 27 之層合玻璃用中間膜，其中，當將該氫化嵌段共聚物作成爲依據下述成形條件進行成形所得之厚度 1.0mm 之薄片狀試驗片時，使用該試驗片，根據 JIS K7244-10(2005 年)，依應變量 0.1%、頻率 1Hz、測量溫度 -70~200℃、升溫速度 3℃/分鐘之條件下所測出之 $\tan\delta$ 之峰頂溫度為 -40~35℃，

成形條件：在溫度 230℃、壓力 10MPa 下加壓 3 分鐘。

29.一種積層體，其具有：含有氫化嵌段共聚物而成之 X

2021 年 1 月 22 日修正本

層、複數個 Y 層，

該 Y 層中之至少其一積層在該 X 層之至少一面上，

複數個該 Y 層中之至少其一為含有聚乙烷基縮醛樹脂或離子聚合物而成之層，

該氫化嵌段共聚物係具有下述嵌段之嵌段共聚物的氫化物：含有超過 70 莫耳%之源自於芳香族乙烯基化合物之結構單元的聚合物嵌段(A)、含有 30 莫耳%以上之源自於選自包含共軛二烯化合物及異丁烯的群組之至少 1 種之結構單元的聚合物嵌段(B)，並滿足下述條件(1)及(2)，

條件(1)：聚合物嵌段(A)在該嵌段共聚物中之含量為 1~30 質量%；

條件(2)：就聚合物嵌段(B)而言，當判斷為氫化率 100 莫耳%之結構時，源自於選自包含共軛二烯化合物及異丁烯的群組之至少 1 種之結構單元的主鏈之亞甲基鏈長之平均值為 1.0~6.0。

圖式

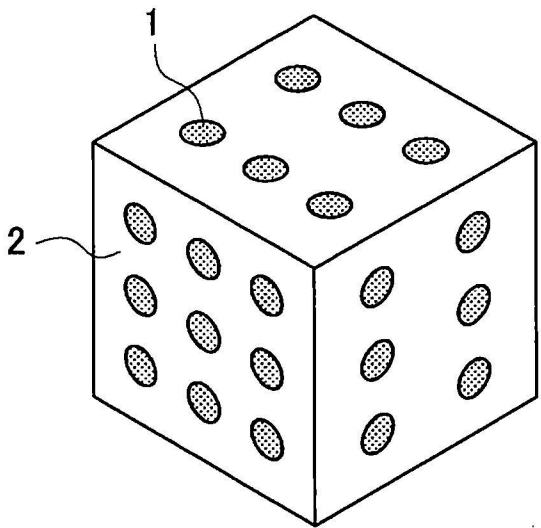


圖1

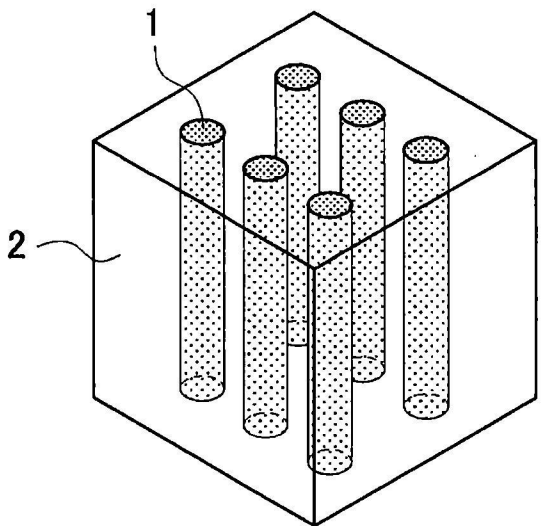


圖2

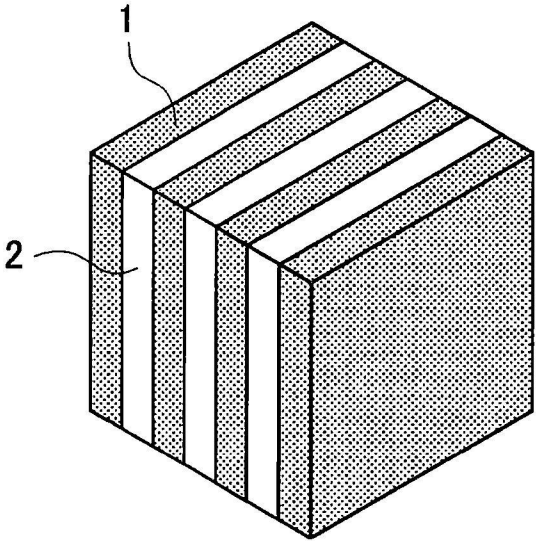


圖3

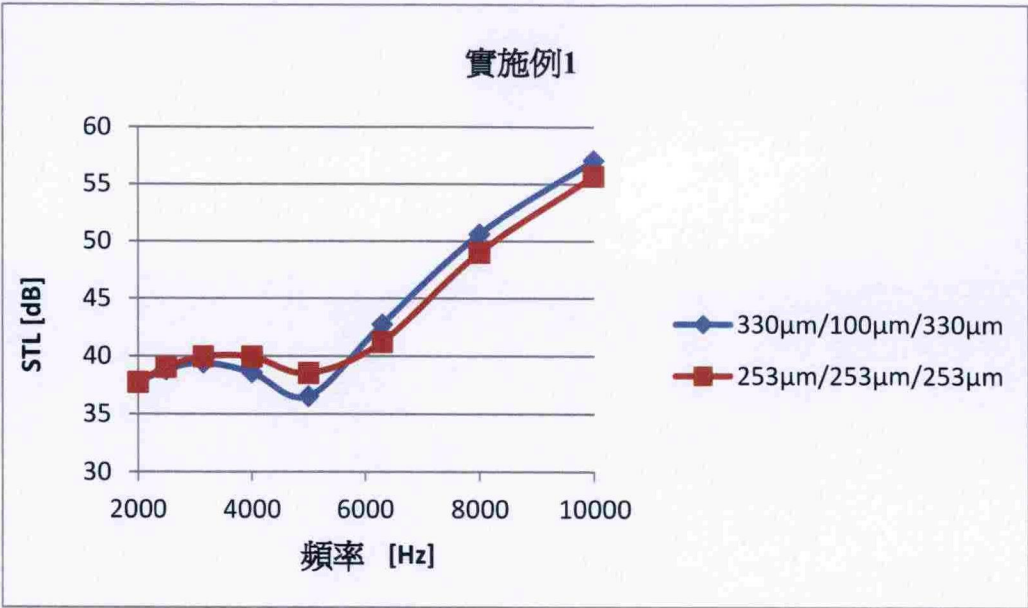


圖4(a)

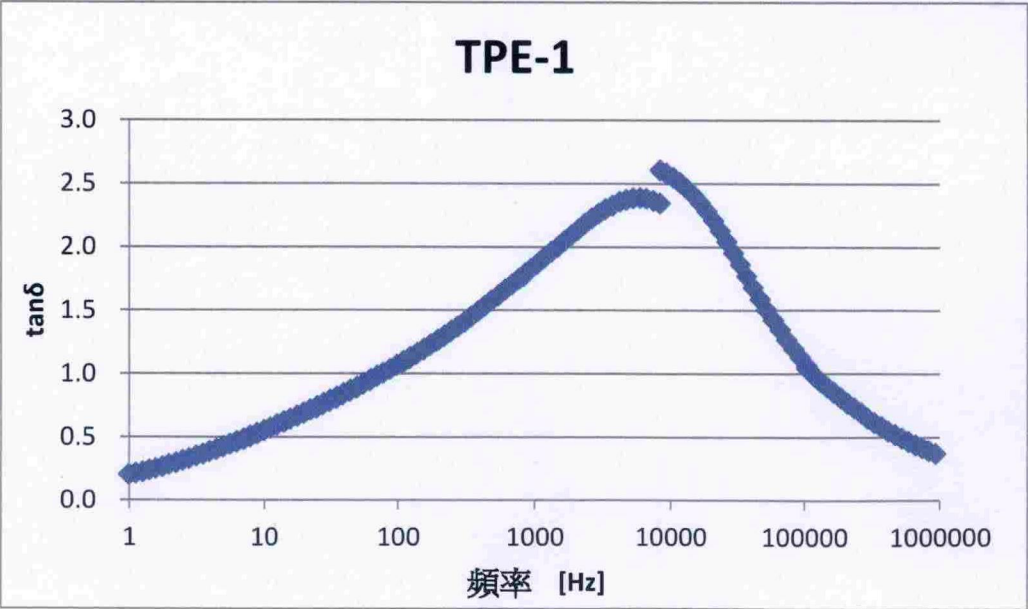


圖4(b)

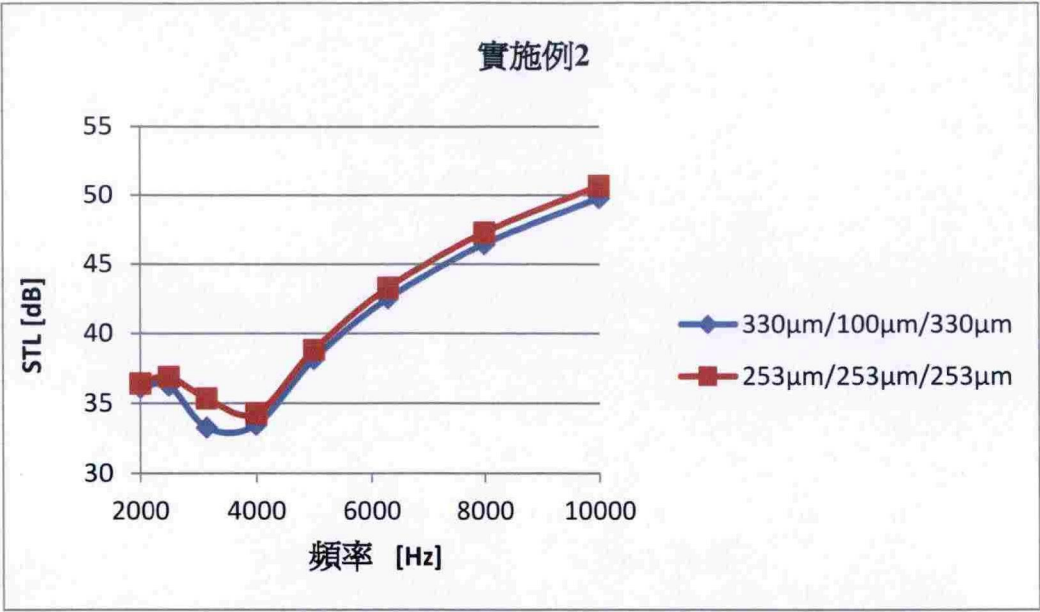


圖5(a)

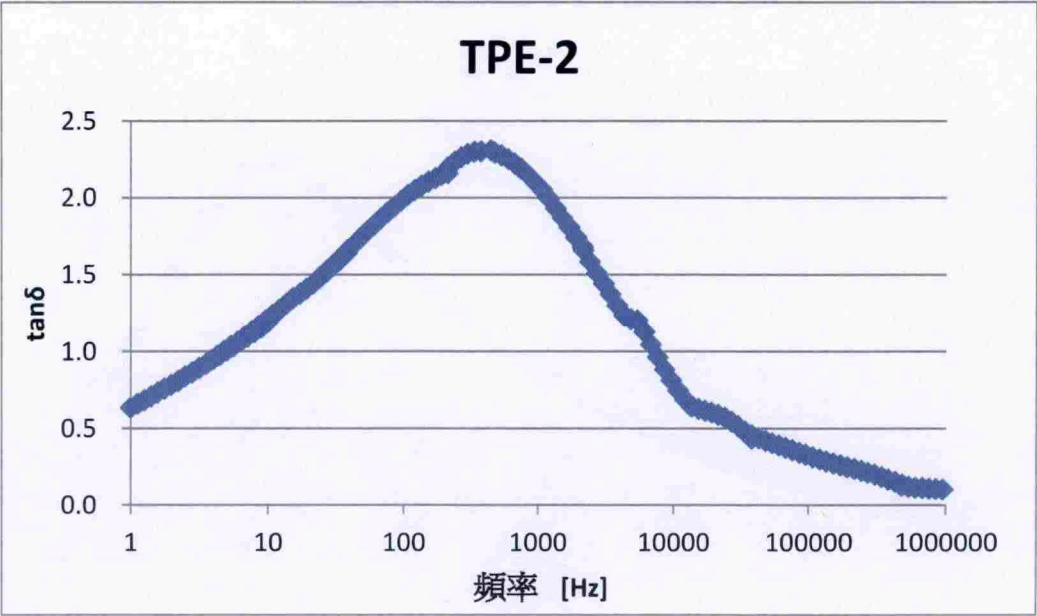


圖5(b)

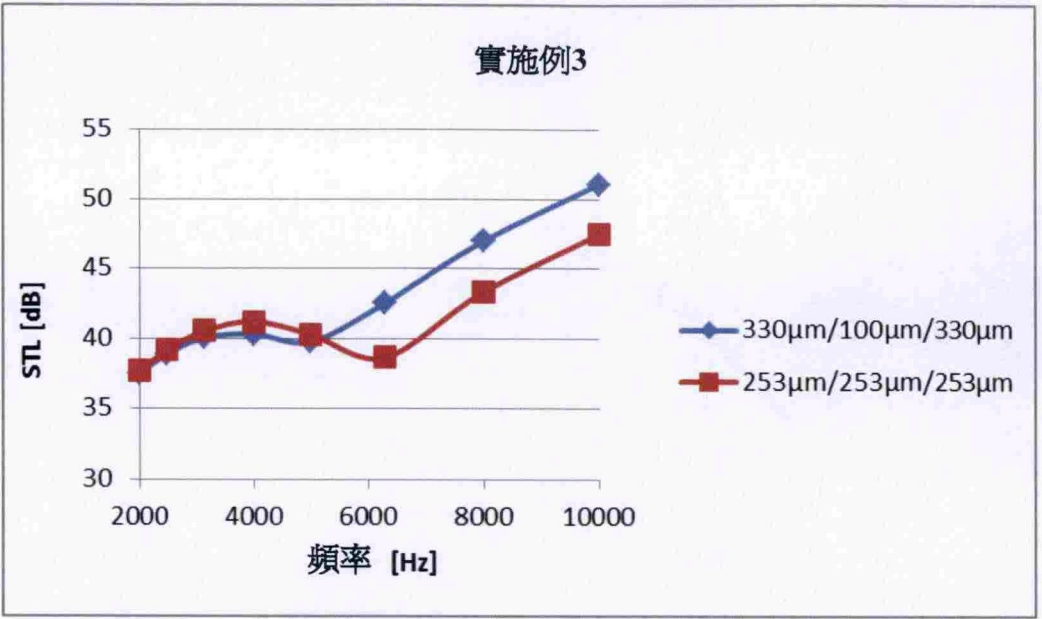


圖6(a)

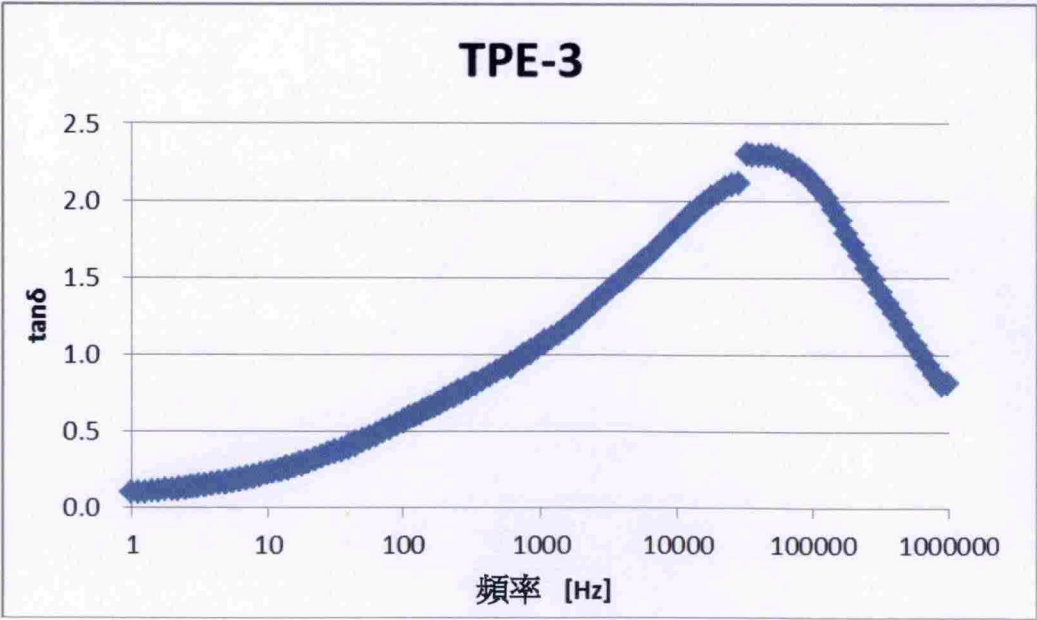


圖6(b)

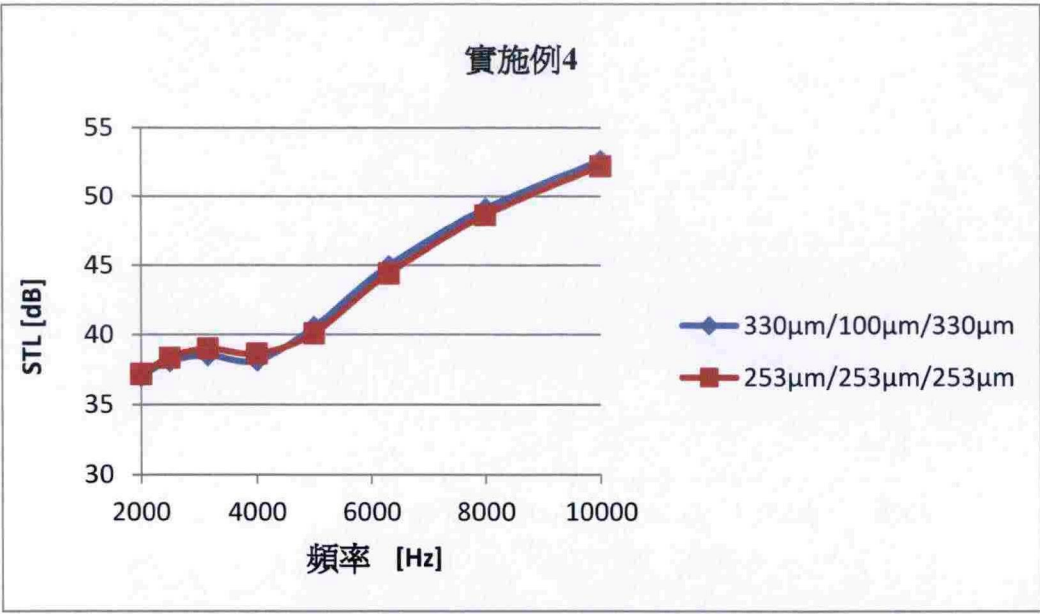


圖7(a)

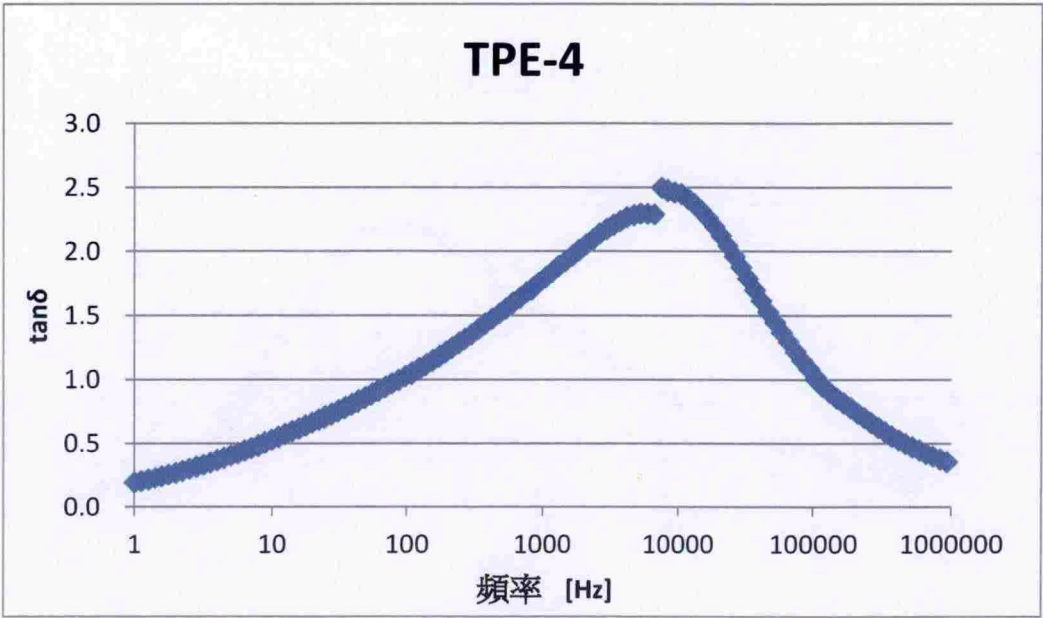


圖7(b)

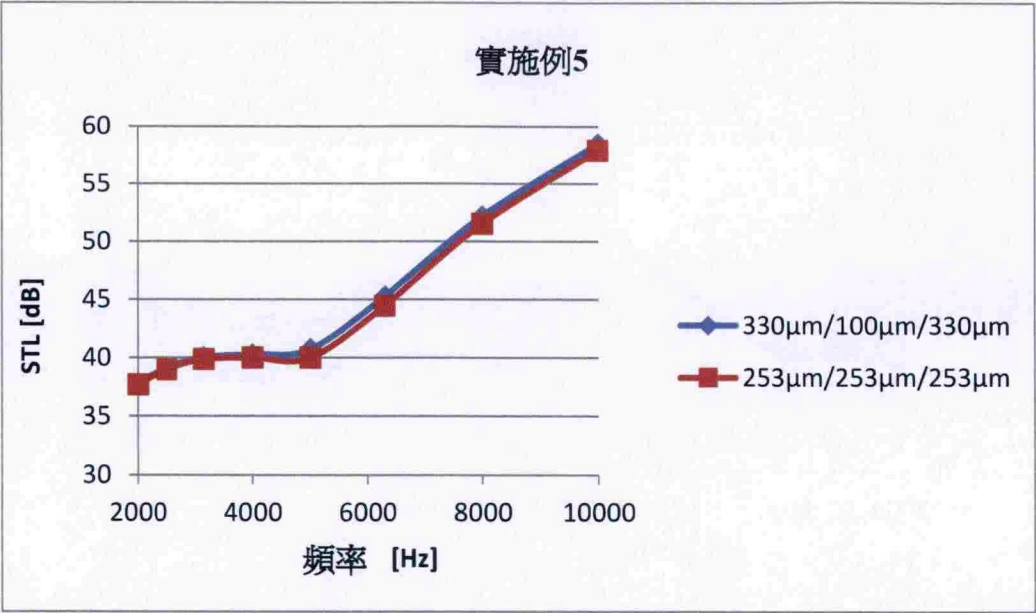


圖8(a)

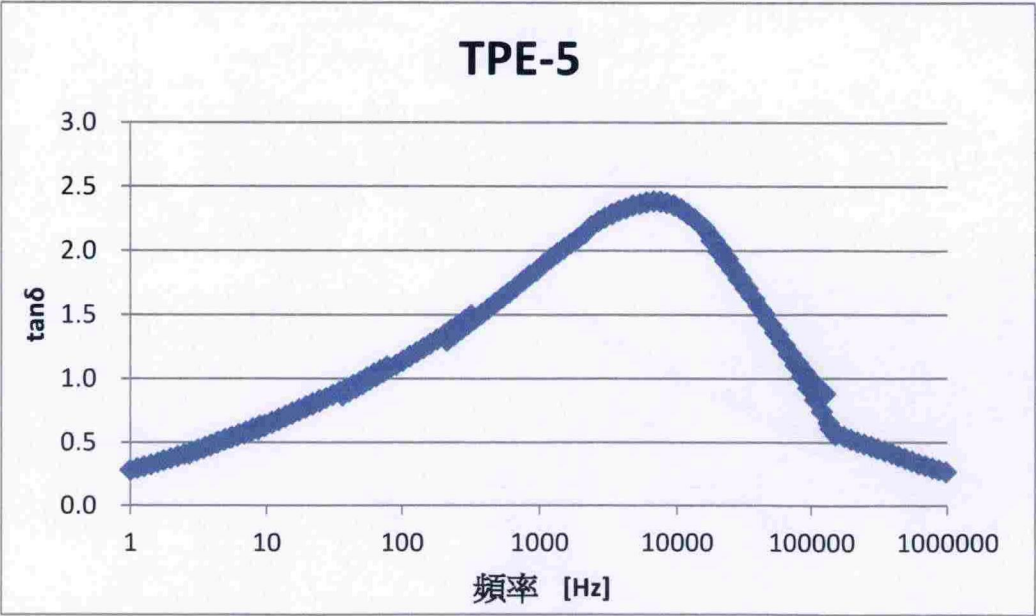


圖8(b)

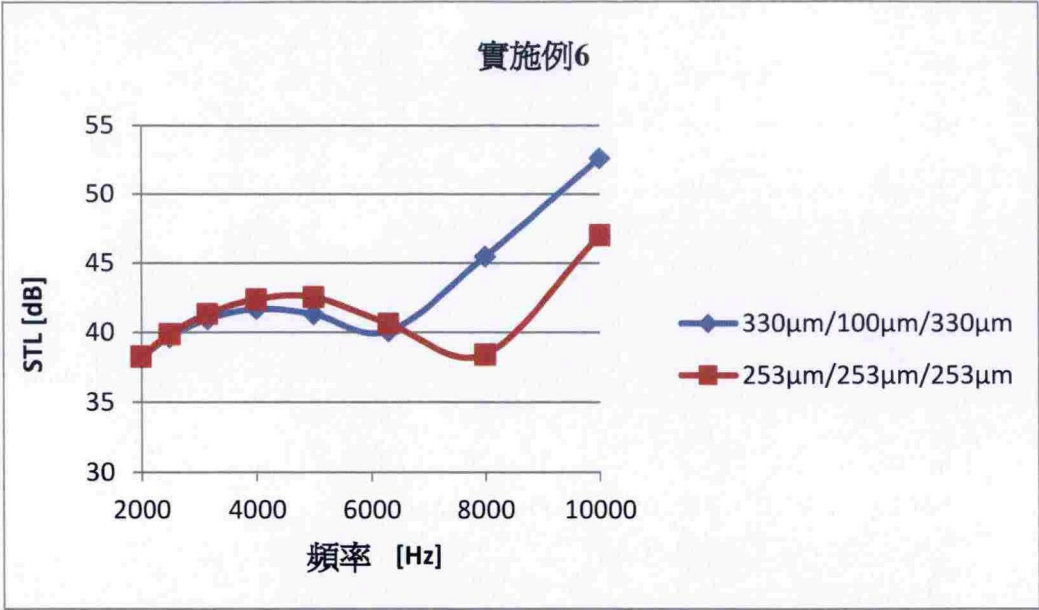


圖9(a)

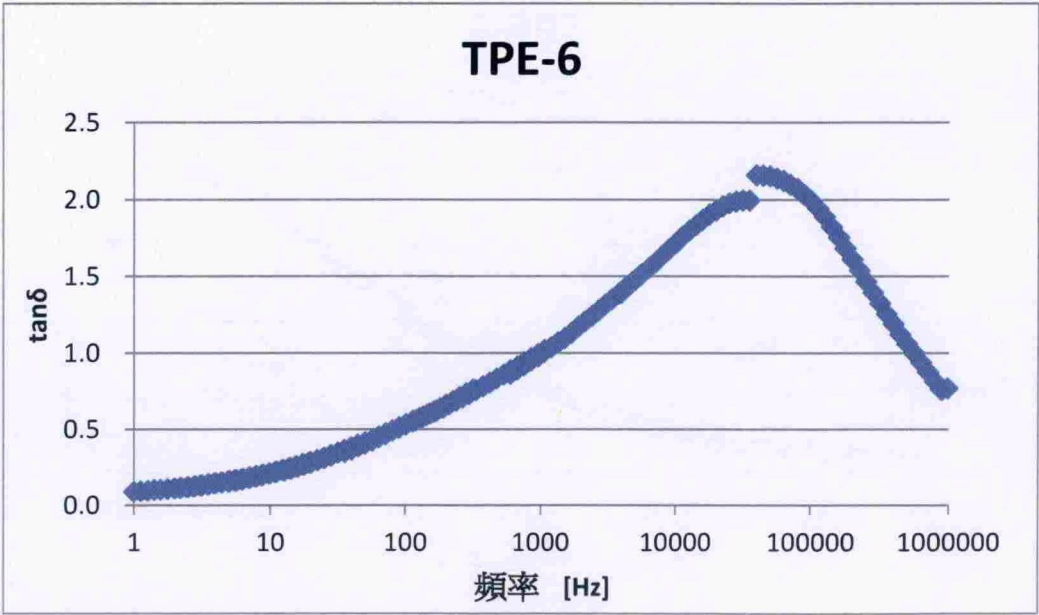


圖9(b)

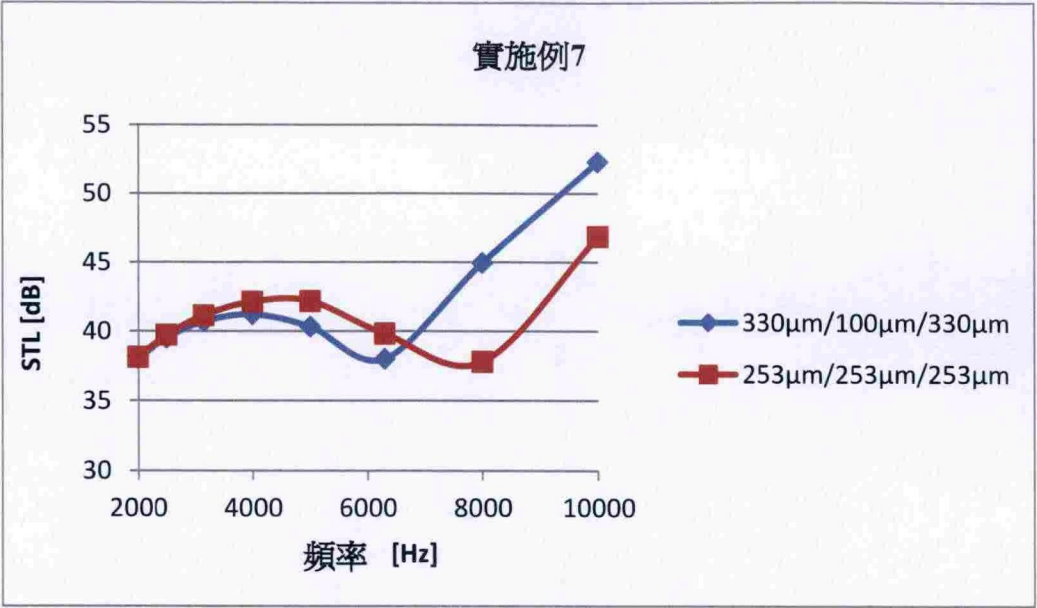


圖10(a)

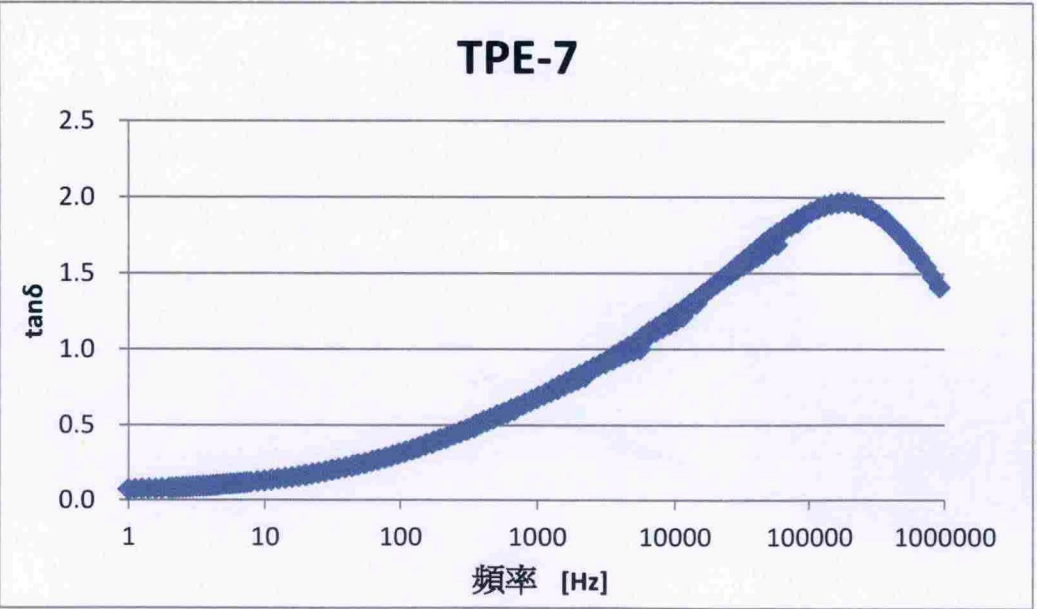


圖10(b)

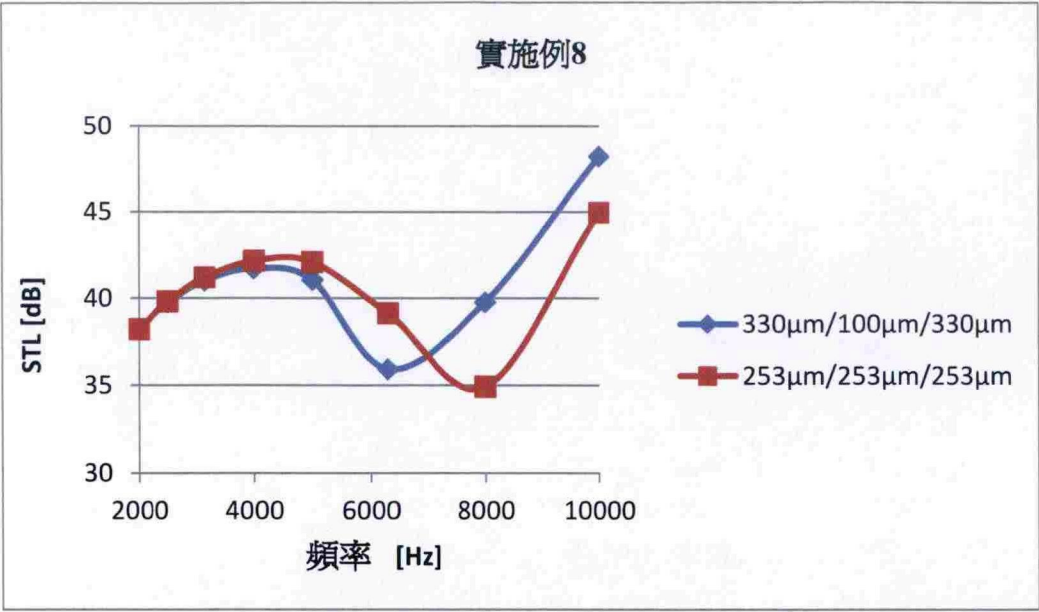


圖11(a)

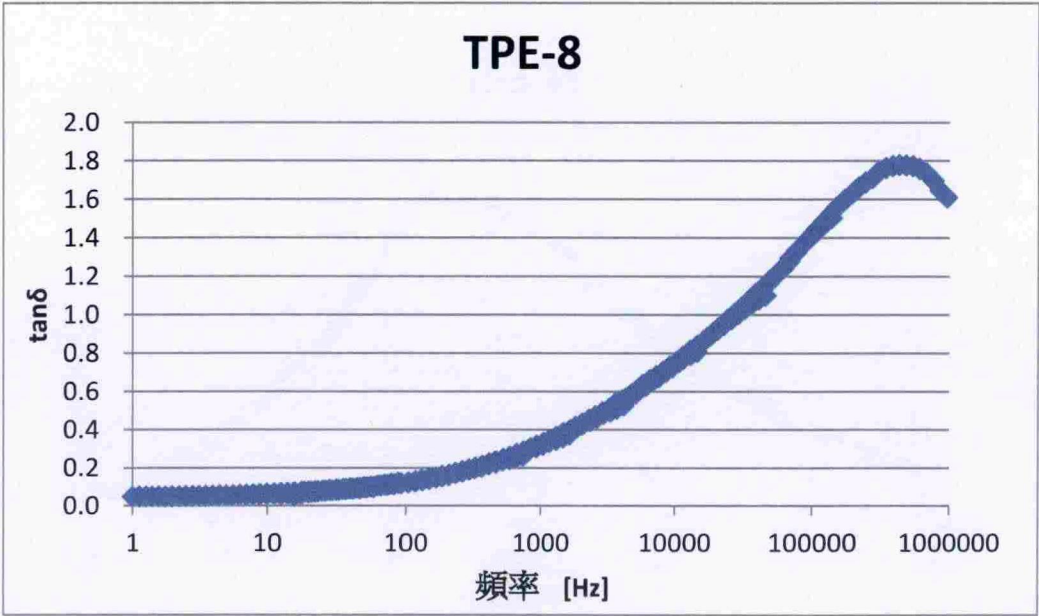


圖11(b)

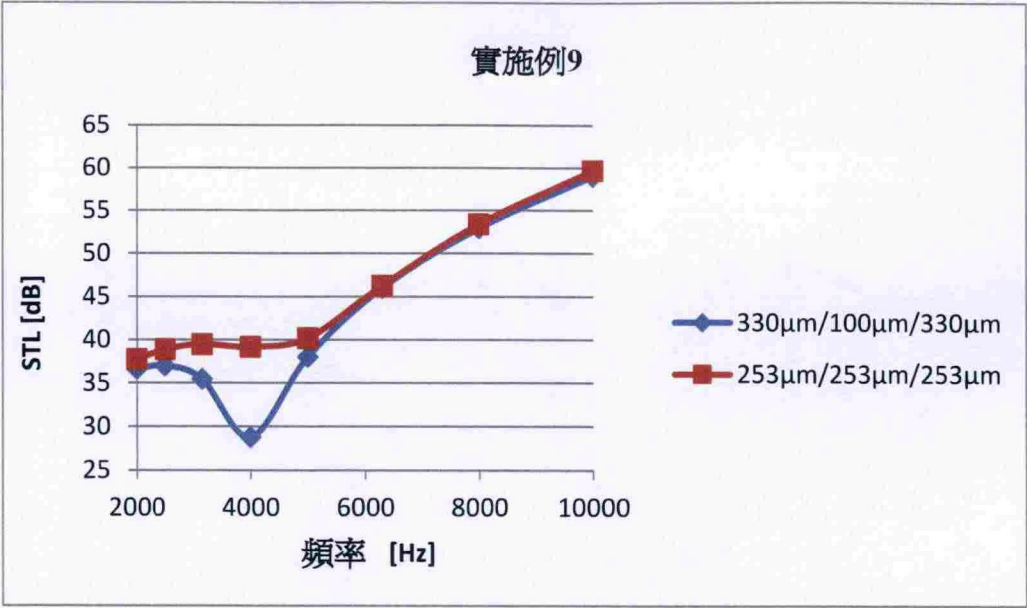


圖12(a)

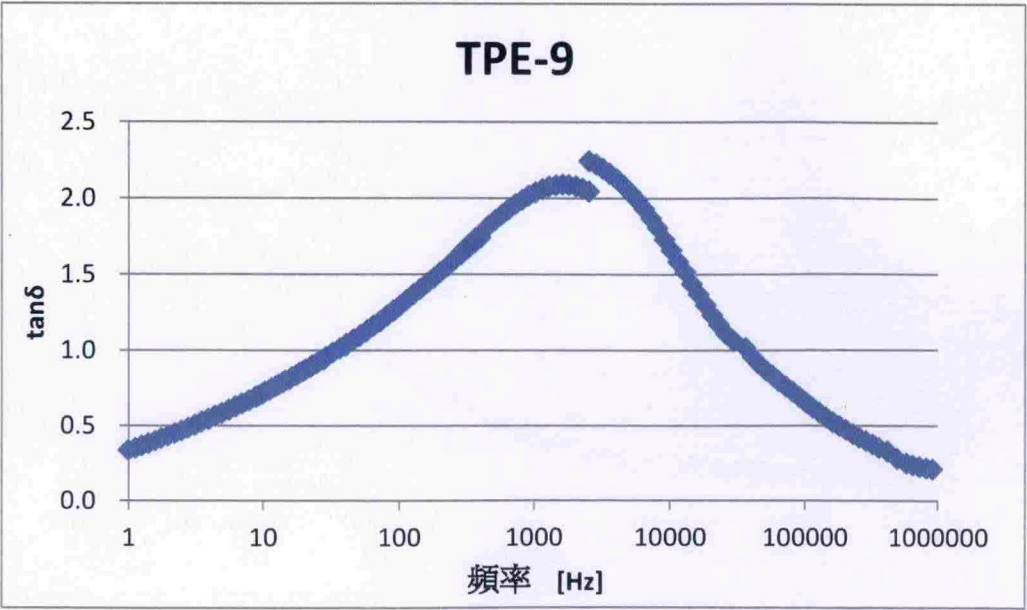


圖12(b)

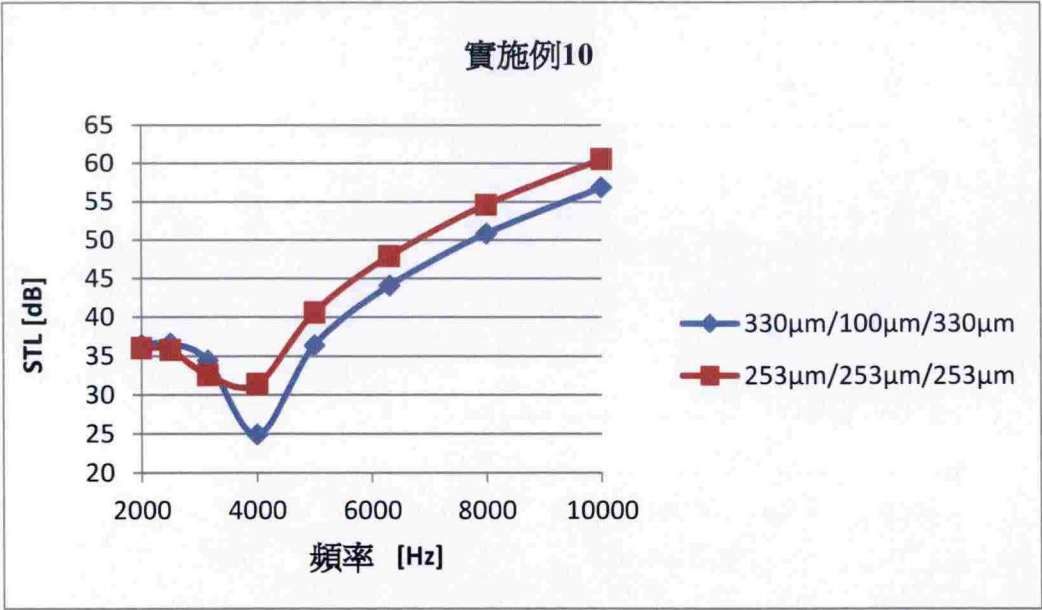


圖13(a)

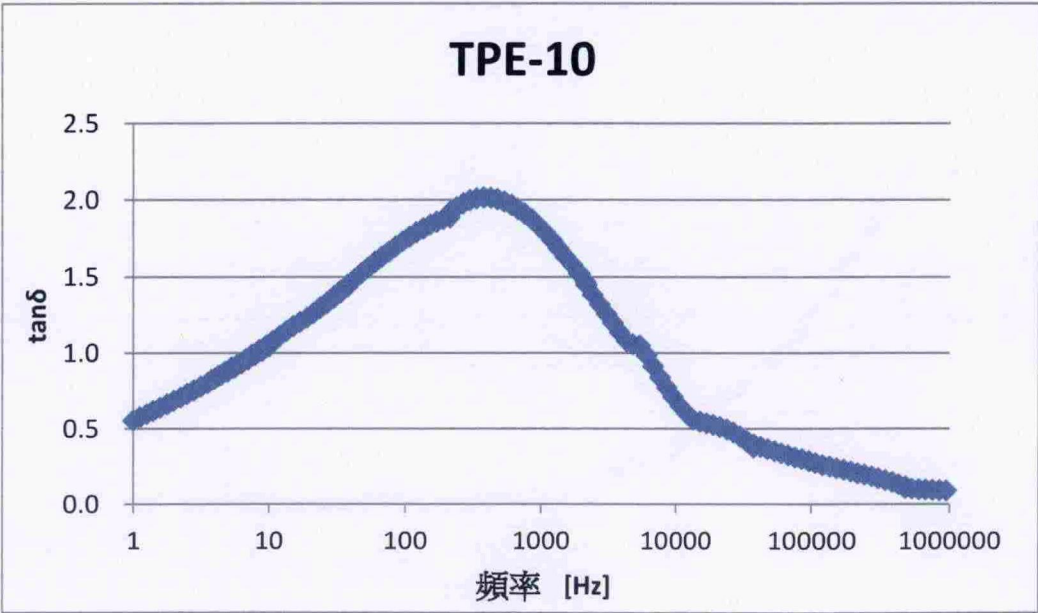


圖13(b)

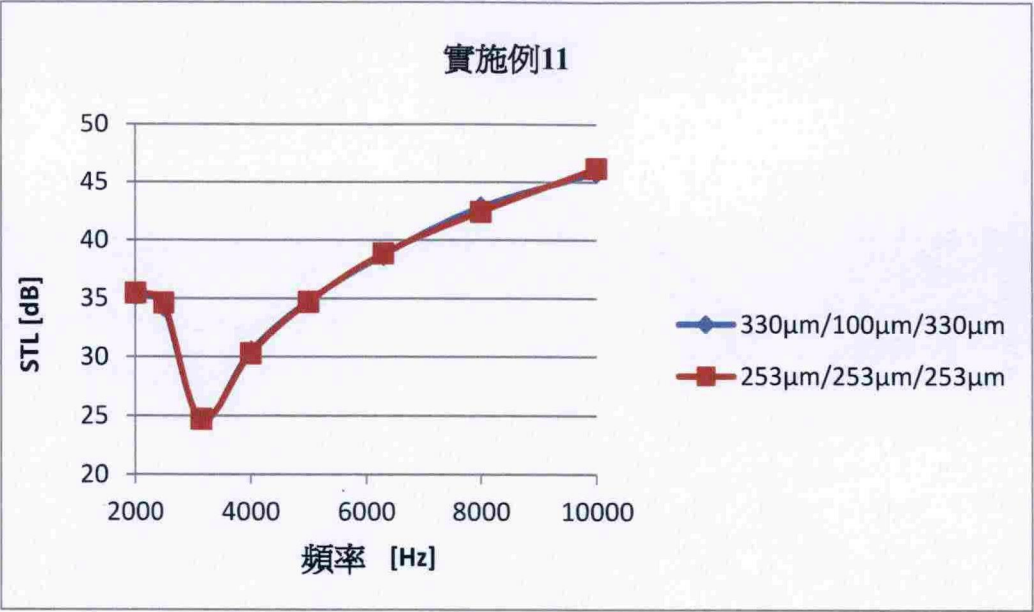


圖14(a)

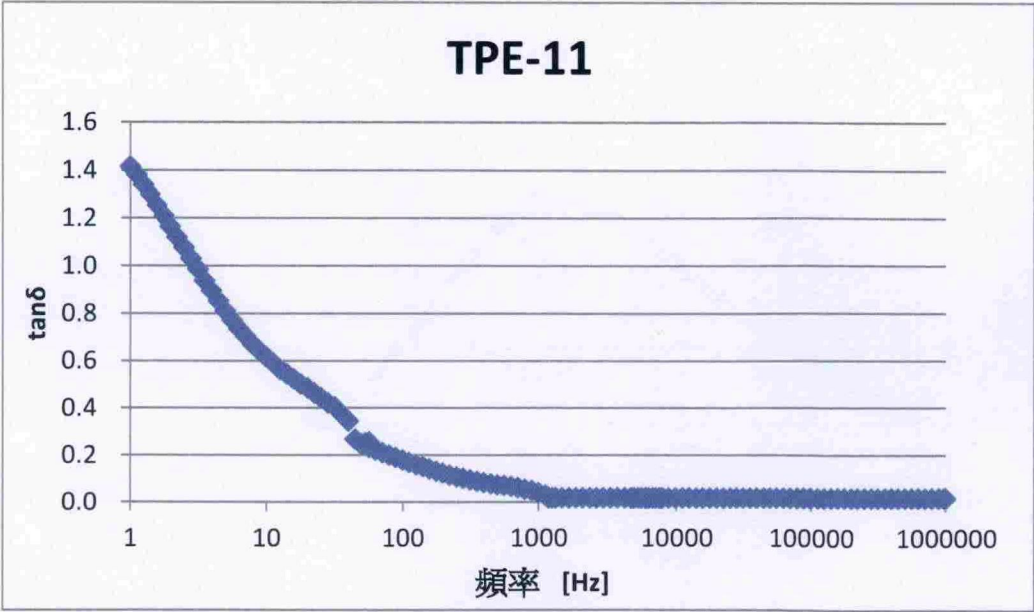


圖14(b)

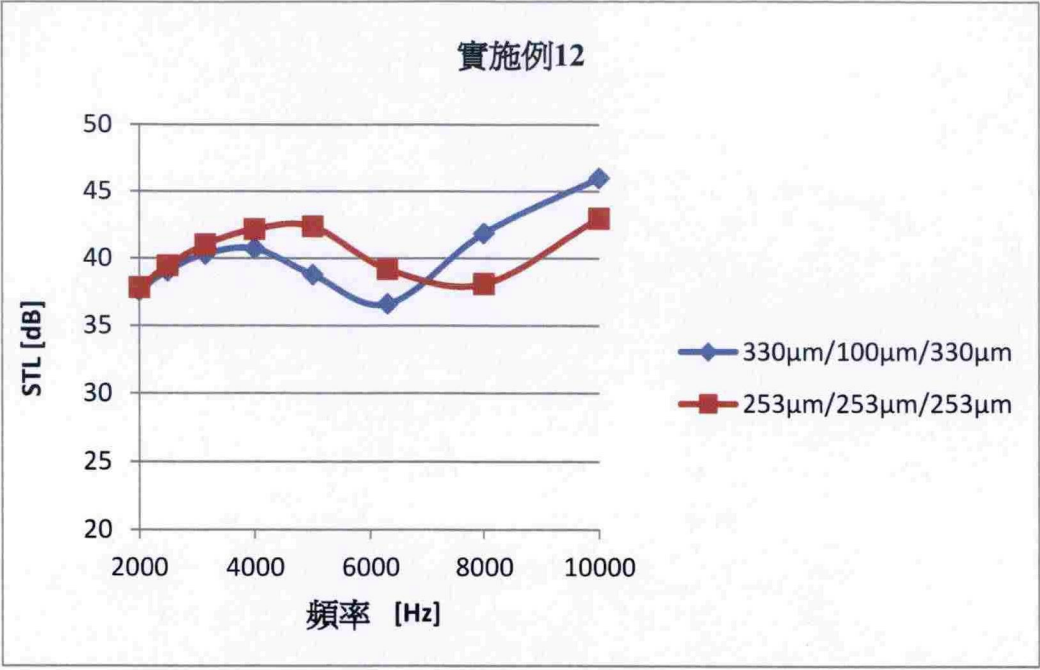


圖15(a)

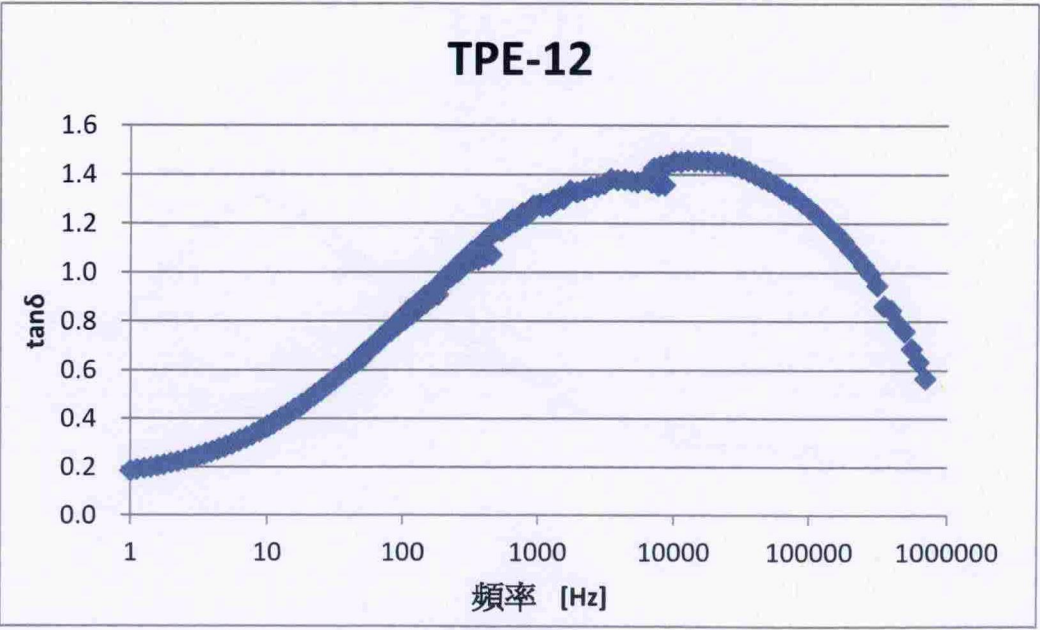


圖15(b)

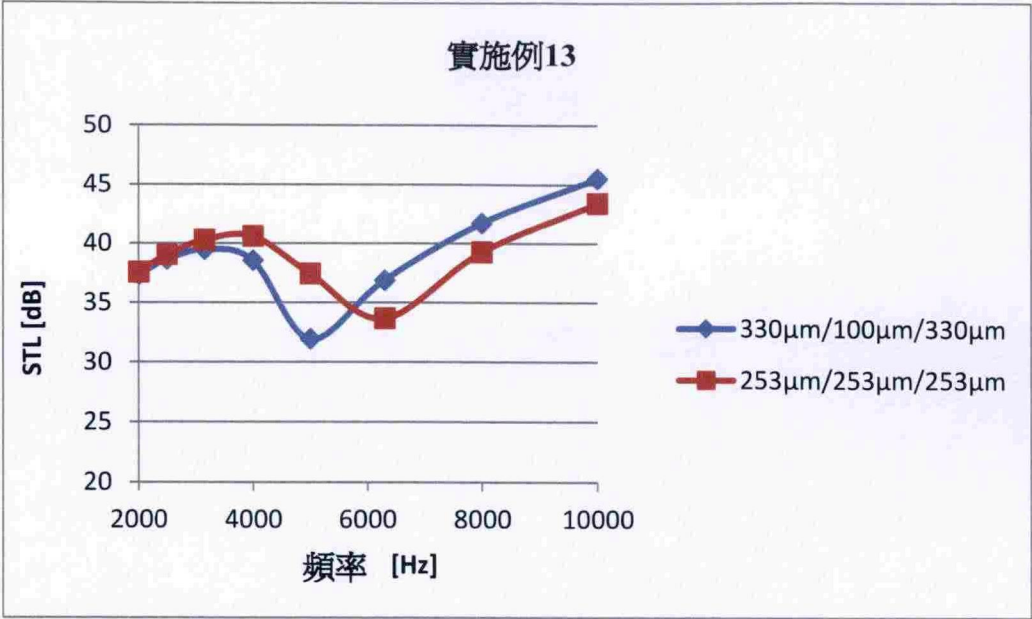


圖16(a)

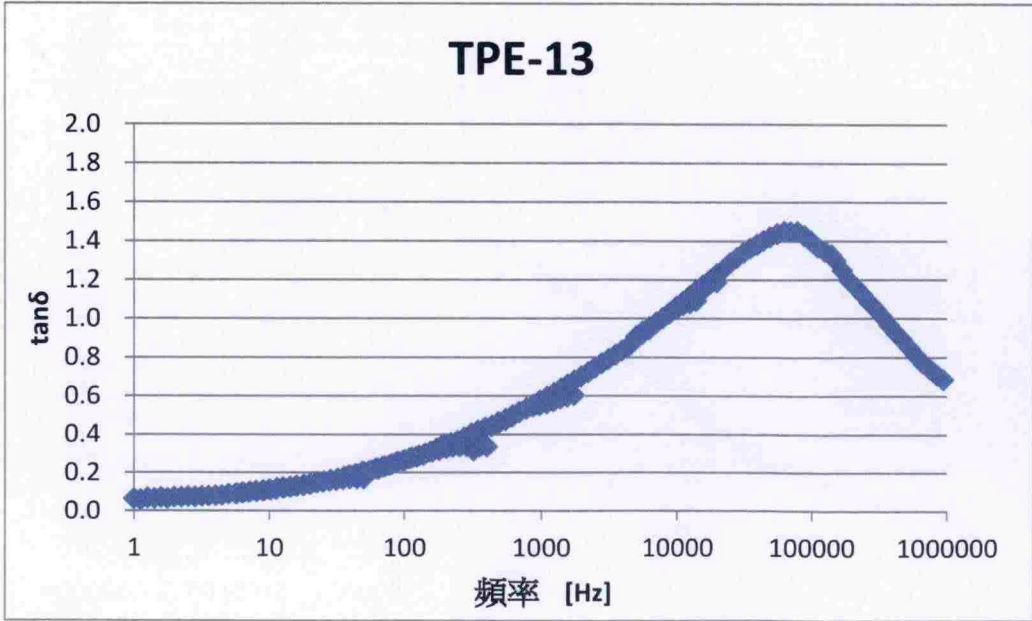


圖16(b)

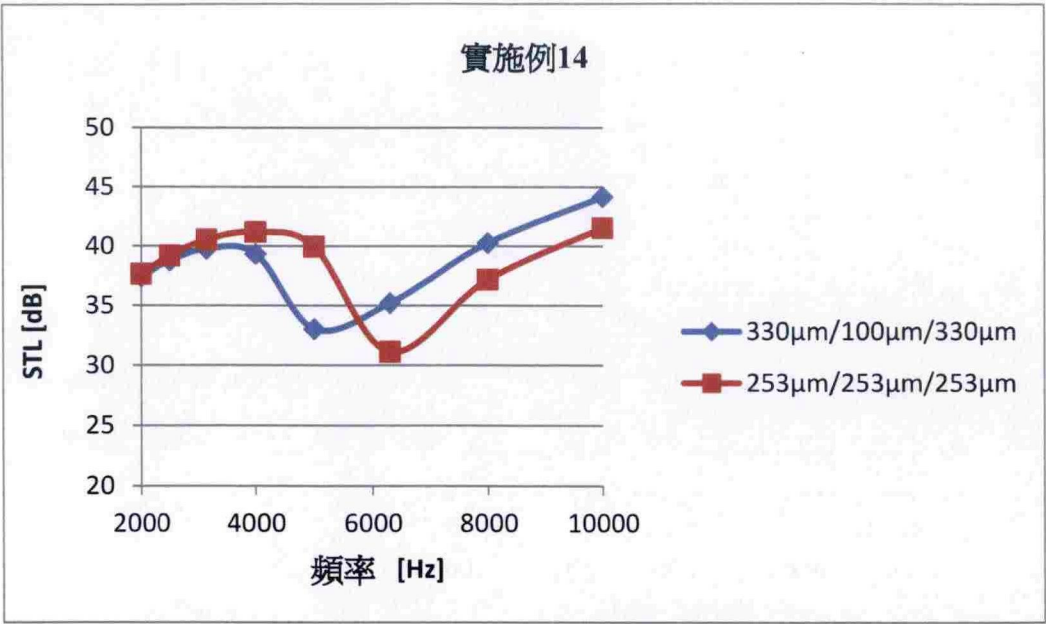


圖17(a)

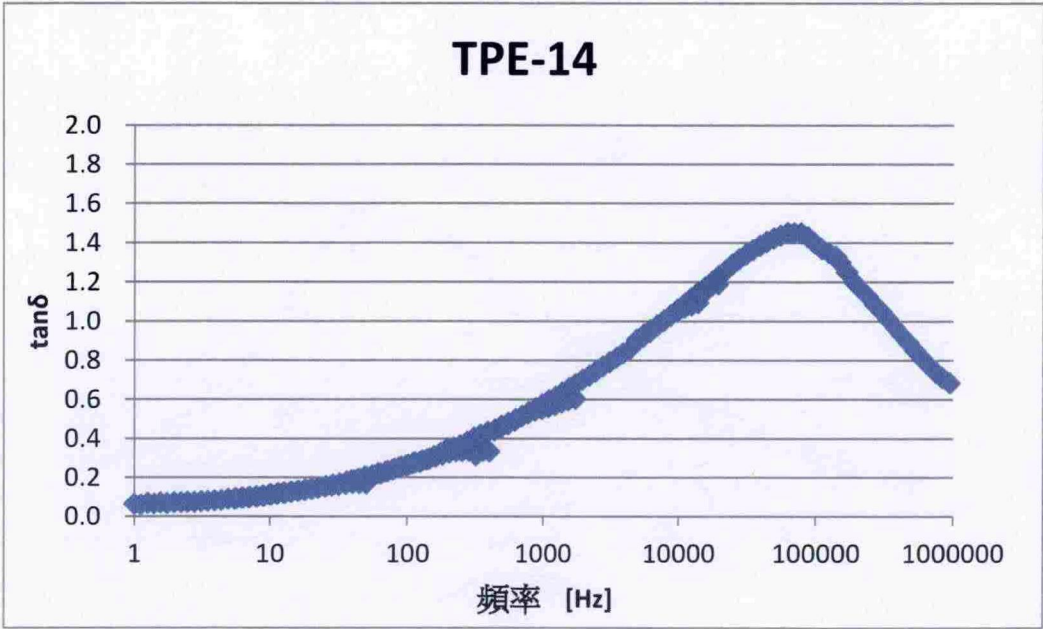


圖17(b)

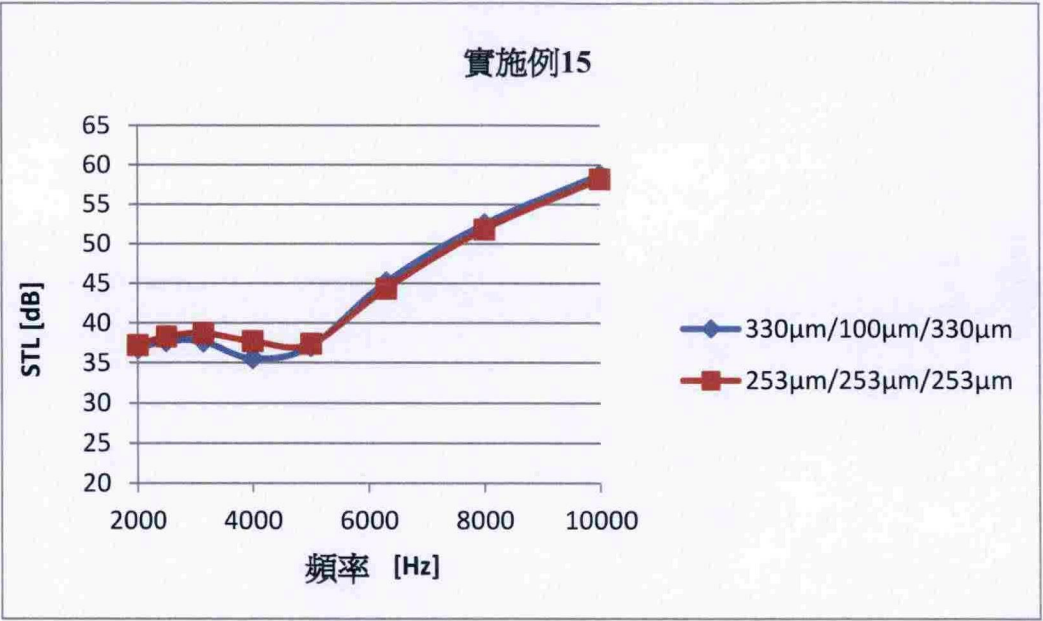


圖18(a)

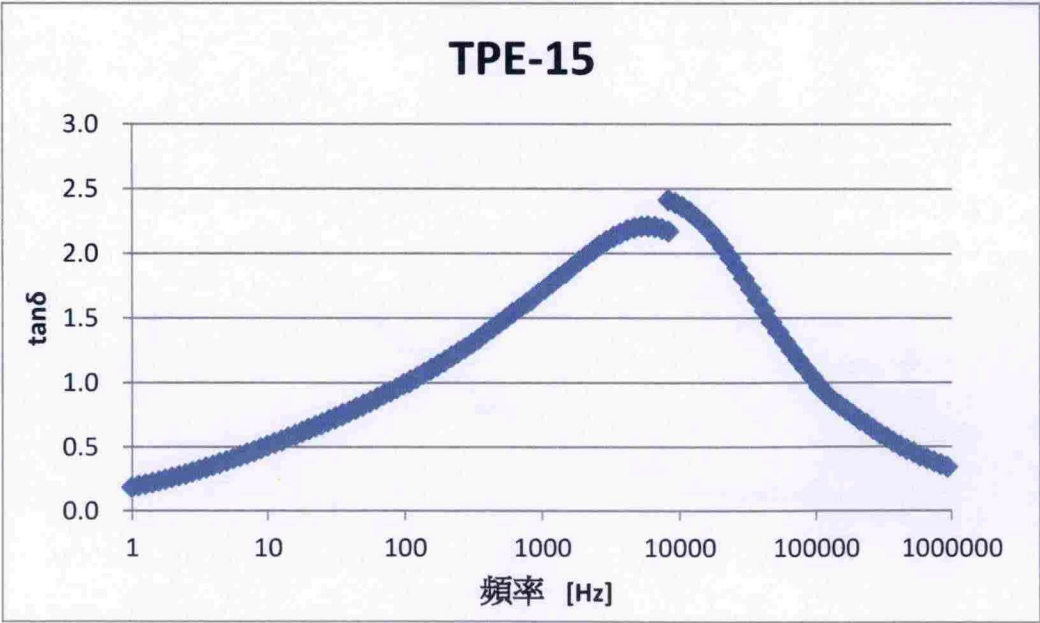


圖18(b)

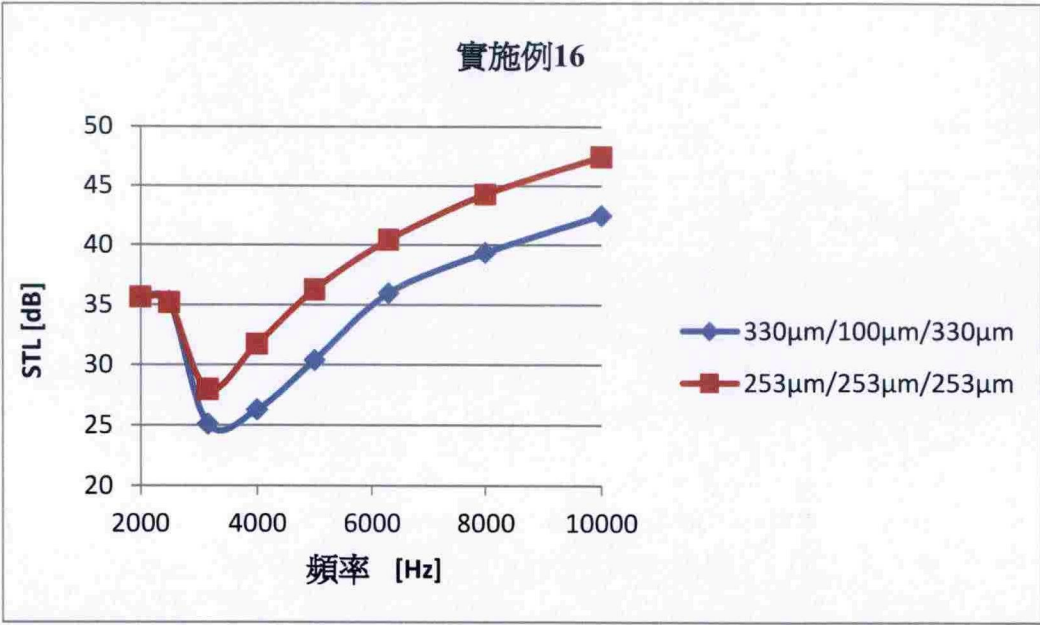


圖19(a)

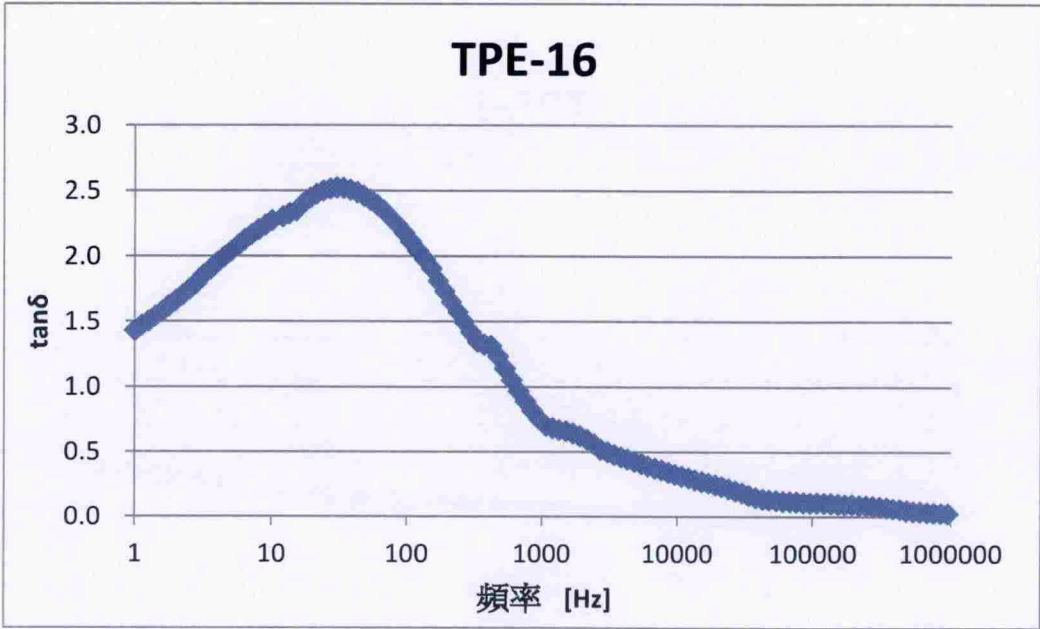


圖19(b)

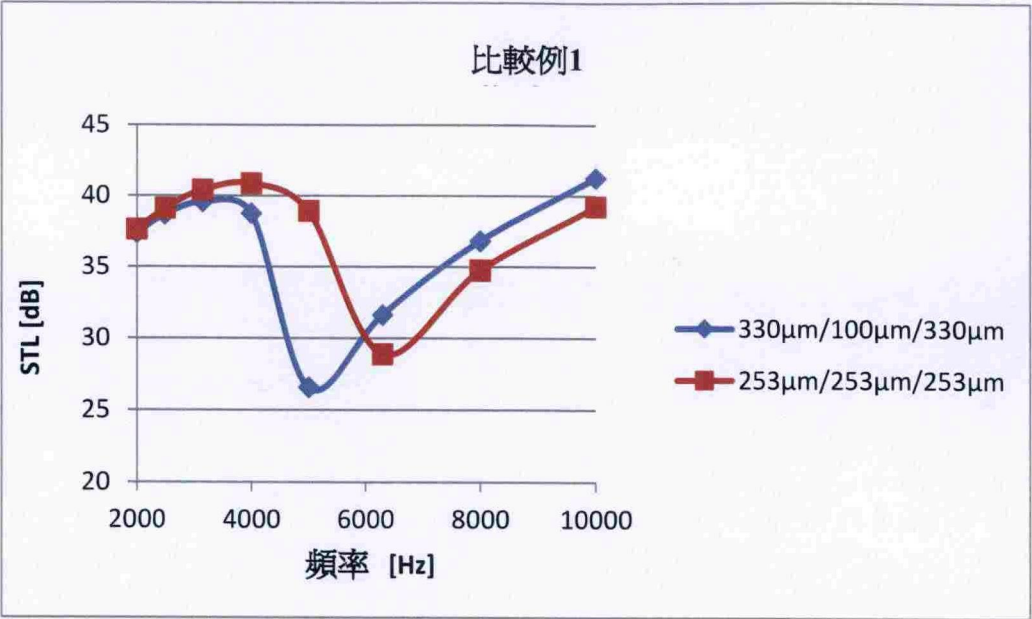


圖20(a)

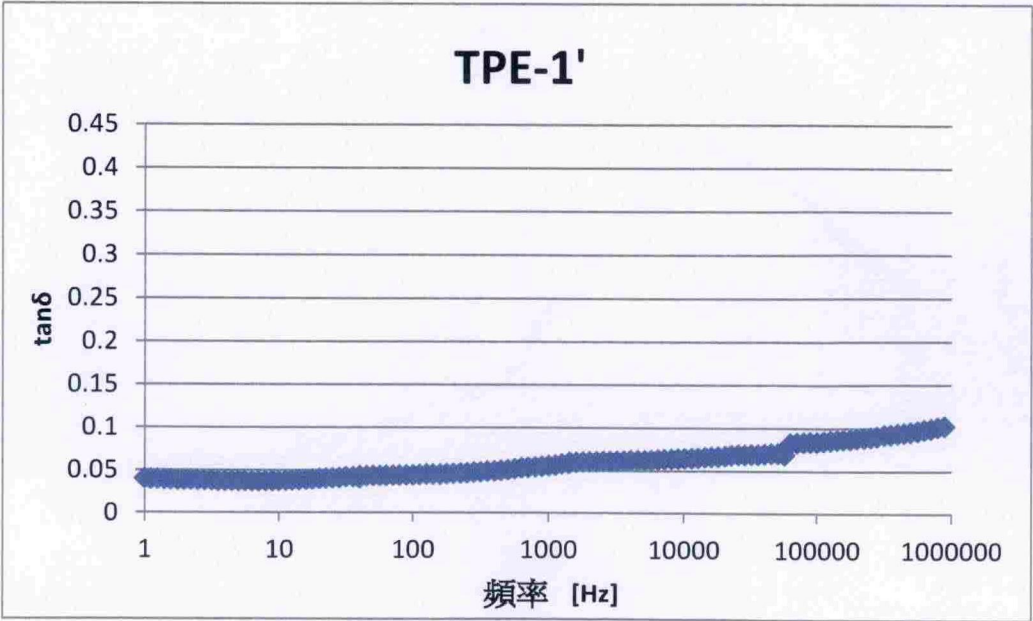


圖20(b)

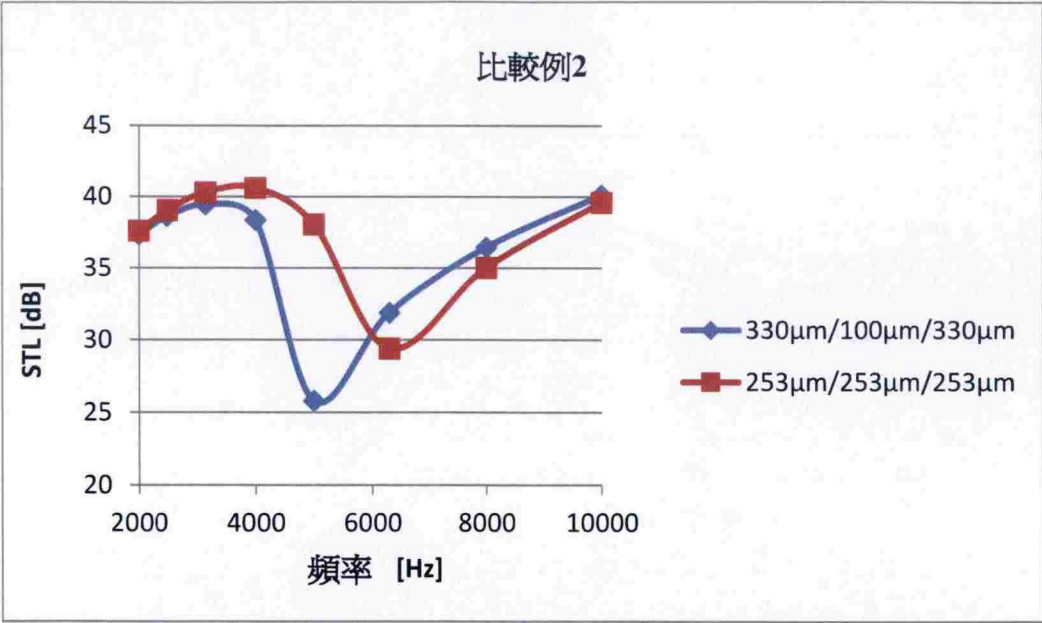


圖21(a)

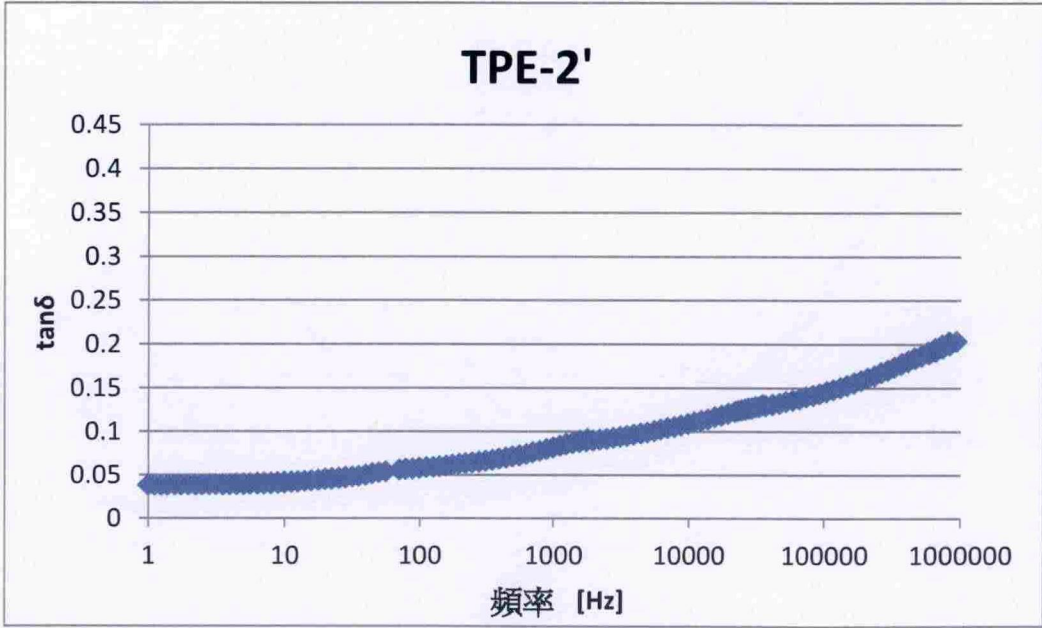


圖21(b)

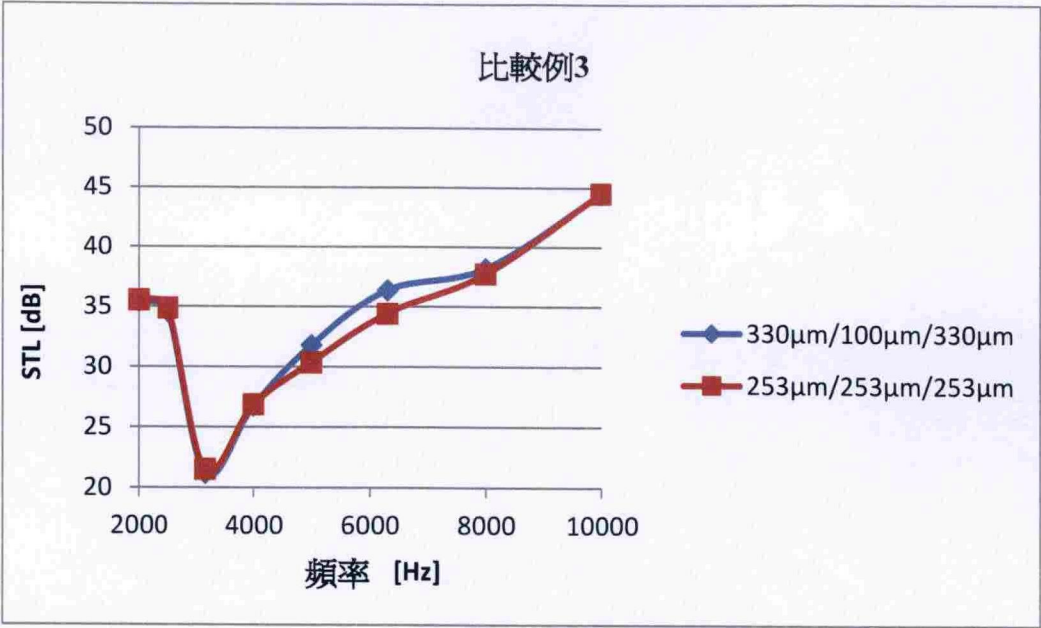


圖22(a)

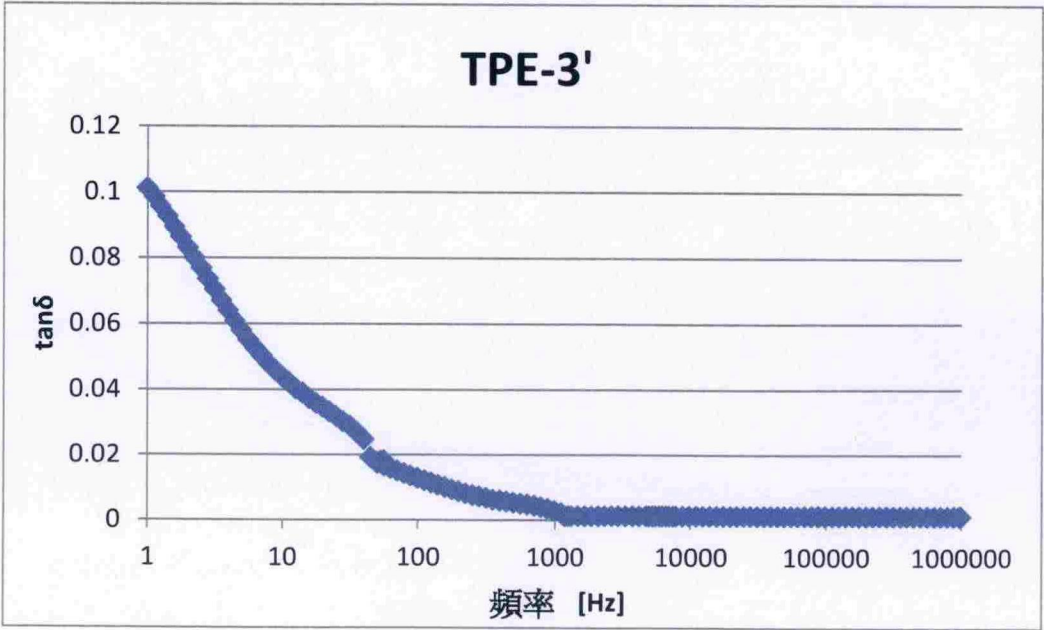


圖22(b)

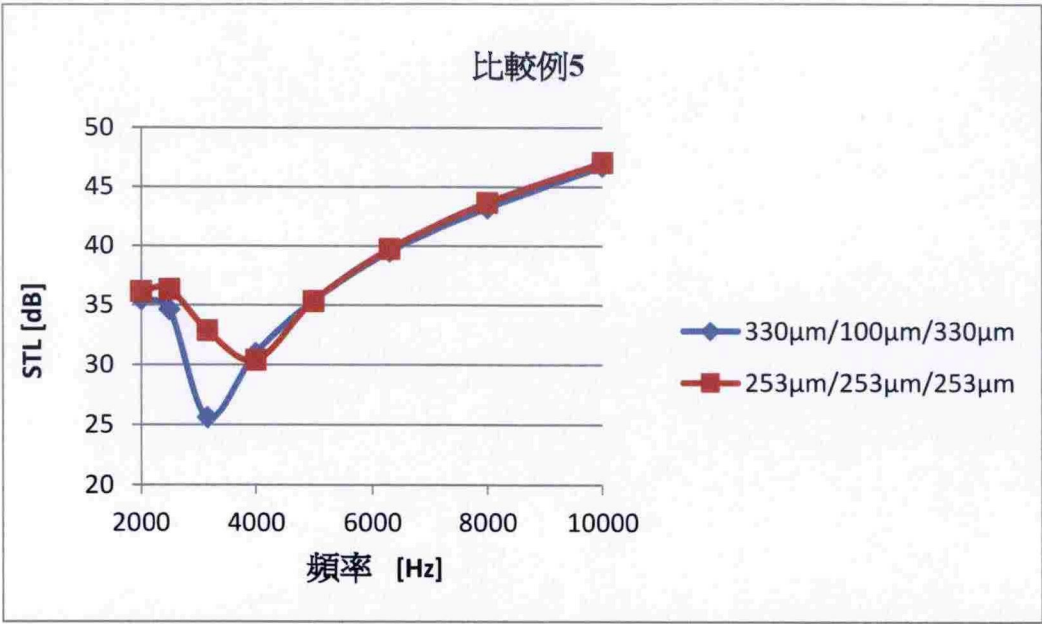


圖23(a)

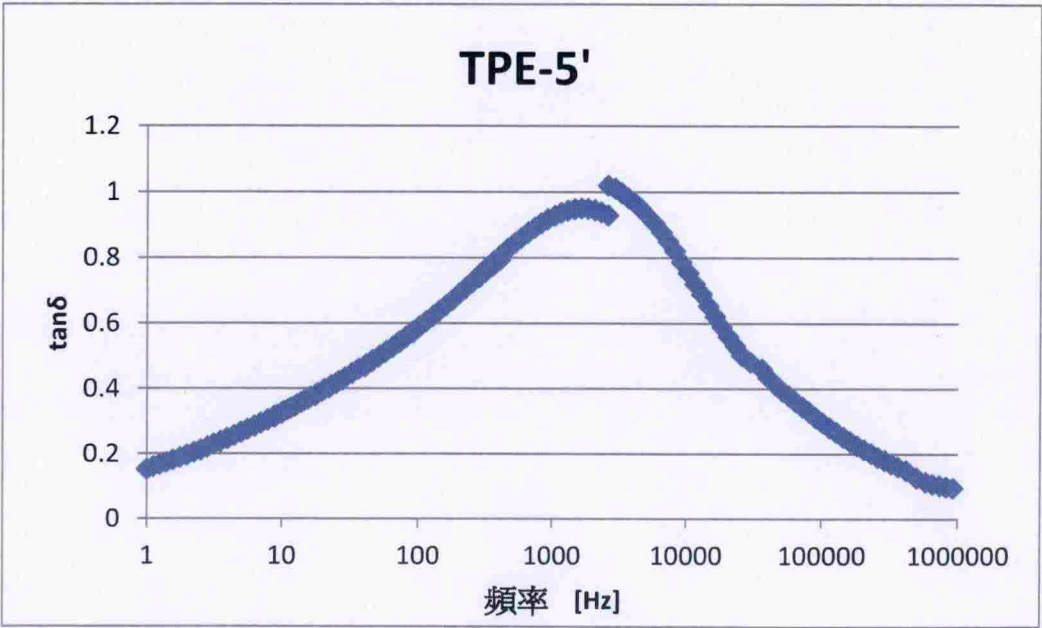


圖23(b)