



(12)发明专利申请

(10)申请公布号 CN 107108350 A

(43)申请公布日 2017.08.29

(21)申请号 201580061177.5

(22)申请日 2015.11.10

(30)优先权数据

2014-228354 2014.11.10 JP

2014-246710 2014.12.05 JP

(85)PCT国际申请进入国家阶段日

2017.05.10

(86)PCT国际申请的申请数据

PCT/JP2015/081667 2015.11.10

(87)PCT国际申请的公布数据

W02016/076339 JA 2016.05.19

(71)申请人 株式会社可乐丽

地址 日本冈山县

(72)发明人 油井太我 矶上宏一郎 小林卓哉

楠藤健

(74)专利代理机构 北京林达刘知识产权代理事

务所(普通合伙) 11277

代理人 刘新宇 李茂家

(51)Int.Cl.

G03C 27/12(2006.01)

B32B 25/08(2006.01)

B60J 1/00(2006.01)

E06B 3/66(2006.01)

E06B 5/20(2006.01)

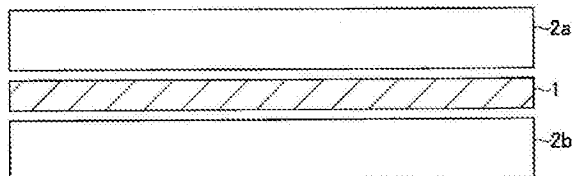
权利要求书3页 说明书51页 附图1页

(54)发明名称

层叠体以及夹层玻璃

(57)摘要

本发明的目的在于,提供隔音性以及弯曲强度优异的层叠体以及使用其的夹层玻璃。此外,本发明的目的还在于,提供可抑制由吻合现象导致的高频区域中的隔音性能的降低、制作夹层玻璃后的隔音性的经时变化少、在广泛的温度范围中隔音性优异的层叠体以及夹层玻璃。本发明涉及一种层叠体,其具有包含如下组合物的A层和多个B层,至少在2个B层之间层叠有A层,所述组合物含有基于JIS K 7244-10、在频率1Hz的条件下进行复合剪切粘度试验而测定的 $\tan \delta$ 在 $-40 \sim 30^{\circ}\text{C}$ 的范围具有最大的峰的树脂,所述层叠体的基于JIS K 7244-10、在频率1Hz的条件下进行复合剪切粘度试验而测定的温度 25°C 下的剪切储能模量为1.30MPa以上。



1. 一种层叠体,其具有包含如下组合物的A层和多个B层,至少在2个B层之间层叠有A层,所述组合物含有基于JIS K 7244-10、在频率1Hz的条件下进行复合剪切粘度试验而测定的 $\tan\delta$ 在 $-40\sim 30^{\circ}\text{C}$ 的范围具有最大的峰的树脂。

2. 根据权利要求1所述的层叠体,其中,基于JIS K 7244-10、在频率1Hz的条件下进行复合剪切粘度试验而测定的温度 25°C 下的剪切储能模量为 1.30MPa 以上。

3. 根据权利要求2所述的层叠体,其中,所述树脂为热塑性弹性体。

4. 根据权利要求1~3中任一项所述的层叠体,其中,基于JIS K 7244-10、在频率1Hz下进行复合剪切粘度试验而测定的温度 25°C 下的A层的剪切储能模量为 $0.6\sim 3.0\text{MPa}$ 。

5. 根据权利要求1~4中任一项所述的层叠体,其中,基于JIS K 7244-10、在频率1Hz的条件下进行复合剪切粘度试验而测定的温度 25°C 下的B层的剪切储能模量为 10MPa 以上。

6. 根据权利要求1~5中任一项所述的层叠体,其中,基于JIS K 7244-10、在频率1Hz的条件下进行复合剪切粘度试验而测定的温度 50°C 下的层叠体的剪切储能模量为 1.3MPa 以上。

7. 一种层叠体,其中,使用权利要求1~6中任一项所述的层叠体作为夹层玻璃用中间膜来制作夹层玻璃,对于所得到的夹层玻璃,进行利用中央激振法的阻尼试验的情况下,频率 2000Hz 且温度 $0\sim 50^{\circ}\text{C}$ 下的最大损耗系数为 0.2 以上。

8. 根据权利要求1~7中任一项所述的层叠体,其中,利用基于中央激振法的夹层玻璃的阻尼试验,对夹持在2片宽度 50mm 、长度 300mm 、厚度 3mm 的玻璃之间而得到的夹层玻璃,测定3阶模态下的损耗系数的情况下,损耗系数为 0.2 以上的温度范围的宽度为 15°C 以上。

9. 根据权利要求1~8中任一项所述的层叠体,其中,在用2片纵 300mm 、横 25mm 、厚度 1.9mm 的浮法玻璃夹持该层叠体时,在 20°C 下利用中央激振法所测定的4阶共振频率下的损耗系数为 0.2 以上,并且基于ISO16940 (2008) 而算出的该4阶共振频率下的弯曲刚度为 $150\text{N}\cdot\text{m}$ 以上。

10. 根据权利要求1~9中任一项所述的层叠体,其中,对于用厚度 2mm 的玻璃夹持层叠体,在温度 140°C 、压力 1MPa 的条件下保持60分钟,从而压接而制作的夹层玻璃,通过利用中央激振法的阻尼试验所测定的 20°C 、 2000Hz 下的损耗系数 α 为 0.2 以上,

对于将该夹层玻璃在 18°C 下保持1个月之后的夹层玻璃,通过利用中央激振法的阻尼试验所测定的 20°C 、 2000Hz 下的损耗系数 β 相对于损耗系数 α 的比率 β/α 为 0.70 以上。

11. 根据权利要求10所述的层叠体,其中,所述比率 β/α 为 0.80 以上。

12. 根据权利要求10或11所述的层叠体,其中,所述比率 β/α 为 1.20 以下。

13. 根据权利要求1~9中任一项所述的层叠体,其中,对于将包含层叠体的夹层玻璃在 18°C 下保持1个月之后的夹层玻璃,通过利用中央激振法的阻尼试验所测定的 20°C 、 2000Hz 下的损耗系数 β 为 0.2 以上,

对于将 18°C 下保持1个月之后的夹层玻璃在 100°C 下加热24小时之后的夹层玻璃,通过利用中央激振法的阻尼试验所测定的 20°C 、 2000Hz 下的损耗系数 γ 相对于损耗系数 β 的比率 γ/β 为 0.80 以上且为 1.30 以下。

14. 根据权利要求13所述的层叠体,其中,所述比率 γ/β 为 1.20 以下。

15. 根据权利要求13或14所述的层叠体,其中,所述比率 γ/β 为 0.87 以上且 1.20 以下。

16. 根据权利要求1~15中任一项所述的层叠体,其中,B层的至少一个为含有选自由聚

乙烯醇缩醛树脂、离聚物树脂以及含粘接性官能团的聚烯烃系聚合物组成的组中的至少1种热塑性树脂的层。

17. 根据权利要求1~16中任一项所述的层叠体, 其中, B层包含含有选自由聚乙烯醇缩醛树脂、离聚物树脂以及含粘接性官能团的聚烯烃系聚合物组成的组中的至少1种热塑性树脂的层。

18. 根据权利要求16或17所述的层叠体, 其中, B层中的增塑剂的含量相对于100质量份热塑性树脂为50质量份以下。

19. 根据权利要求16或17所述的层叠体, 其中, B层中的增塑剂的含量相对于100质量份热塑性树脂为30质量份以下。

20. 根据权利要求16或17所述的层叠体, 其中, B层中的增塑剂的含量相对于100质量份热塑性树脂为25质量份以下。

21. 根据权利要求16或17所述的层叠体, 其中, B层中的增塑剂的含量相对于100质量份热塑性树脂为不足20质量份。

22. 根据权利要求16或17所述的层叠体, 其中, 包含聚乙烯醇缩醛树脂的B层中的增塑剂的含量相对于100质量份聚乙烯醇缩醛树脂为25质量份以下。

23. 根据权利要求18~22中任一项所述的层叠体, 其中, 增塑剂为熔点30℃以下且羟值15~450mgKOH/g以下的酯系增塑剂或醚系增塑剂。

24. 根据权利要求18~23中任一项所述的层叠体, 其中, 增塑剂为非晶性且羟值15~450mgKOH/g以下的酯系增塑剂或醚系增塑剂。

25. 根据权利要求16~24中任一项所述的层叠体, 其中, 聚乙烯醇缩醛树脂的粘均聚合度为100~5000。

26. 根据权利要求16~25中任一项所述的层叠体, 其中, 为了合成聚乙烯醇缩醛树脂而使用的聚乙烯醇的粘均聚合度为300~1000。

27. 根据权利要求16~26中任一项所述的层叠体, 其中, 聚乙烯醇缩醛树脂的乙烯醇单元的含量为5~35摩尔%。

28. 根据权利要求16~27中任一项所述的层叠体, 其中, 聚乙烯醇缩醛树脂为聚乙烯醇缩丁醛。

29. 根据权利要求1~28中任一项所述的层叠体, 其中, 热塑性弹性体为嵌段共聚物。

30. 根据权利要求29所述的层叠体, 其中, 嵌段共聚物为具有硬链段以及软链段的嵌段共聚物或该聚合物的氢化物。

31. 根据权利要求30所述的层叠体, 其中, 嵌段共聚物中的硬链段的含量相对于嵌段共聚物的总量为5~40质量%。

32. 根据权利要求29~31中任一项所述的层叠体, 其中, 嵌段共聚物为具有芳香族乙烯基聚合物嵌段以及脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的嵌段共聚物或该聚合物的氢化物。

33. 根据权利要求29~32中任一项所述的层叠体, 其中, 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中的总单体单元为5~40质量%。

34. 根据权利要求1~33中任一项所述的层叠体, 其具有 $\tan\delta$ 成为最大的峰的高度为0.5以上的A层。

35. 根据权利要求1~34中任一项所述的层叠体, 其中, A层包含 $\tan\delta$ 的峰温度不同的2

种以上的热塑性弹性体。

36. 根据权利要求35所述的层叠体, 其中, $\tan\delta$ 的峰温度不同的至少2种的热塑性弹性体包含芳香族乙烯基单体与脂肪族不饱和单体的共聚物或该共聚物的氢化物。

37. 根据权利要求1~36中任一项所述的层叠体, 其中, A层包含 $\tan\delta$ 的峰温度差为5℃以上的2种以上的热塑性弹性体。

38. 根据权利要求1~37中任一项所述的层叠体, 其中, 具有2层以上的A层, 至少2层的A层中分别包含的热塑性弹性体的 $\tan\delta$ 的峰温度差为5℃以上。

39. 根据权利要求1~38中任一项所述的层叠体, 其中, A层的 $\tan\delta$ 的峰温度为-20℃以下, 并且, A层的膜厚为20~120 μm ;

A层的 $\tan\delta$ 的峰温度超过-20℃且在-15℃以下, 并且, A层的膜厚为50~200 μm ; 或

A层的 $\tan\delta$ 的峰温度超过-15℃, 并且, A层的膜厚为80~300 μm 。

40. 根据权利要求1~39中任一项所述的层叠体, 其中, A层的总厚度相对于B层的总厚度的比即A层的总厚度/B层的总厚度为1/30~1/1的范围。

41. 根据权利要求1~40中任一项所述的层叠体, 其中, 制作夹层玻璃时, 波长1500nm下的透射率为50%以下。

42. 根据权利要求1~41中任一项所述的层叠体, 其中, A层或者B层的至少任一层中包含隔热材料。

43. 根据权利要求1~42中任一项所述的层叠体, 其中, 作为隔热材料, 包含选自锡掺杂氧化铟、铟掺杂氧化锡、铟酸锌、六硼化镧、金属元素复合氧化钨、酞菁化合物以及酞菁化合物组成的组中的1种以上的隔热性微粒。

44. 根据权利要求1~43中任一项所述的层叠体, 其中, 在2片纵26mm×横76mm×厚度2.8mm的浮法玻璃之间夹持层叠体而得到的夹层玻璃的3点弯曲试验中的断裂强度(温度: 20℃, 支点间距离: 55mm, 试验速度: 0.25mm/分钟) 为0.5kN以上。

45. 一种夹层玻璃, 其在夹层玻璃内部具有权利要求1~44中任一项所述的层叠体的构成。

46. 根据权利要求45所述的夹层玻璃, 其为汽车用挡风玻璃、汽车用侧窗玻璃、汽车用天窗、汽车用后玻璃或者平视显示器用玻璃。

47. 根据权利要求45所述的夹层玻璃, 其中, 构成夹层玻璃的玻璃为厚度2.8mm以下的薄板玻璃。

48. 根据权利要求45~47中任一项所述的夹层玻璃, 其中, 一侧玻璃的厚度为1.8mm以上, 另一侧玻璃的厚度为1.8mm以下, 且各玻璃的厚度之差为0.2mm以上。

层叠体以及夹层玻璃

技术领域

[0001] 本发明涉及层叠体。进而,详细而言,涉及所制作的夹层玻璃的隔音性以及弯曲强度优异、使用了聚乙烯醇缩醛薄膜的层叠体。此外,本发明涉及可抑制由吻合现象导致的高频区域中的隔音性能的降低、隔音性优异的层叠体以及夹层玻璃。进而,本发明涉及在制作夹层玻璃后的隔音性能的经时变化少、隔音性能的稳定性的层叠体以及夹层玻璃。并且,本发明涉及在广泛的温度范围中隔音性优异的层叠体以及夹层玻璃。

背景技术

[0002] 以聚乙烯醇缩丁醛为代表的聚乙烯醇缩醛对各种有机/无机基材的粘接性、相容性、对有机溶剂的溶解性优异,作为各种粘接剂、陶瓷用粘合剂、各种墨、涂料等、安全玻璃中间膜而被广泛利用。

[0003] 其中,对于包含聚乙烯醇缩醛以及增塑剂的薄膜,与玻璃的粘接性、透明性、而且力学强度以及柔软性优异,因此作为夹层玻璃用中间膜而被广泛利用(以下,有时将夹层玻璃用中间膜简称为“中间膜”)。

[0004] 然而,已知用于窗户玻璃等的玻璃板的耐久性以及采光性优异,但阻尼性能(对于弯曲振动的 $\tan\delta$)非常小。因此,由玻璃的振动和入射声波引起的共振状态、即吻合效应导致的隔音性的降低显著。

[0005] 以往,窗户等要求隔音的场所中对玻璃进行施工的情况下,进行通过使玻璃的厚度变厚从而由重量提高隔音效果,或使用将2片以上的玻璃板和中间膜层叠而成的夹层玻璃来提高隔音效果的方法。后者的使用中间膜的方法中,使用具有阻尼性能的中膜,提高窗户玻璃的隔音性,中间膜兼具将振动的能量变换为热能量而吸收振动能量的能力。

[0006] 作为使隔音性改善的方法,提出了用被增塑化的聚乙烯醇缩醛系树脂对聚苯乙烯弹性体进行层叠而成的中间膜(例如,参照专利文献1)。然而,本提案中,弯曲强度并不充分,为了在建筑用玻璃建材、汽车用天窗、后玻璃之类的存在外部负载的影响的场所中应用而存在进一步改善的余地。

[0007] 此外,提出了由聚乙烯醇缩丁醛构成、具有一定的耐冲击性以及隔音性的夹层玻璃用中间膜以及夹层玻璃(例如,参照专利文献2)。然而,本提案中,弯曲强度并不充分,为了在建筑用玻璃建材、汽车用天窗、后玻璃之类的存在外部负载的影响的场所中应用而存在进一步改善的余地。

[0008] 因此,作为夹层玻璃用中间膜的性质,在透明性高、破损时玻璃不会飞散的基础上,要求对于建筑物内外的声音的优异的隔音性、进而根据窗户玻璃的施工场所而要求一定的弯曲强度。

[0009] 然而,在汽车领域中,出于使车辆轻量化、提高燃油经济性的目的,近年来,推进玻璃的薄板化。但是,玻璃薄板化时,吻合临界频率(与由质量定律所预测的情况相比,将在高频区域中产生隔音性能下降的吻合效应的频率域之中的最低频率称为吻合临界频率)移动到高频侧,在高频区域中的隔音性能降低。使用以往的具有隔音性的中间膜的夹层玻璃

容易产生上述现象,谋求改善。这其中,提出了:作为改善在高频区域中的隔音性的夹层玻璃用中间膜,调整层叠体各层的厚度与聚乙烯醇缩醛树脂的羟基量方法(例如,参照专利文献3),以构成层叠体的各层的聚乙烯醇缩醛树脂与由增塑剂得到的增塑剂溶液的浊点成为规定的关系的方式,选择各层的聚乙烯醇缩醛树脂与增塑剂的方法(例如,参照专利文献4),使隔音层交联的方法(例如,参照专利文献5),使用与聚乙烯醇缩醛树脂的SP值之差成为规定的值以上的增塑剂的方法(例如,参照专利文献6)等,任一方法之中,在高频区域中的隔音性的改善不充分。

[0010] 另一方面,在制作夹层玻璃时,利用高压釜等而进行加热处理,但通常的多层中间膜由于被加热,而在层间引起增塑剂的移动,增塑剂的分布发生变化。夹层玻璃的制作后,在常温下,经历时间从而增塑剂的分布恢复至原状,对于至此为止的期间,增塑剂向其它的层移动,从而隔音性等物性变得不稳定。因此,使用以往的多层中间膜制作夹层玻璃时,需要至隔音性能稳定化为止的一定时间地保持所制作的夹层玻璃。对于该保持时间,从生产率的观点出发成为课题,对于具有隔音功能的夹层玻璃谋求改善。

[0011] 另一方面,近年在汽车领域、建筑领域中,以轻量化为目的,谋求夹层玻璃的薄膜化。然而,将夹层玻璃薄膜化时,存在夹层玻璃的隔音性降低的问题。因此,谋求即便薄膜化也可以以高水平表现出隔音性的夹层玻璃。

[0012] 此外,即便在常温下为具有高隔音性的夹层玻璃用中间膜,也存在在夏季、冬季时隔音性大幅降低的问题。因此,还谋求在广泛的温度范围内可以以高水平表现出隔音性的夹层玻璃。

[0013] 此外,虽然已提出由3层的PVB膜构成隔音层的方案(例如,参照专利文献3)等,但均不是在广泛温度范围内可以以高水平表现出隔音性。

[0014] 现有技术文献

[0015] 专利文献

[0016] 专利文献1:日本特开2007-91491号公报

[0017] 专利文献2:国际公开第2005/018969号公报

[0018] 专利文献3:日本特开2013-107821号公报

[0019] 专利文献4:日本特开2013-032260号公报

[0020] 专利文献5:日本特开2012-214305号公报

[0021] 专利文献6:国际公开第2012/043817号公报

发明内容

[0022] 发明要解决的问题

[0023] 本发明是解决上述问题的发明。即,本发明的第一目的在于提供隔音性优异的层叠体以及使用其的夹层玻璃(laminated glass)。

[0024] 本发明是解决上述问题的发明。即,本发明的第二目的在于提供隔音性以及弯曲强度优异的层叠体以及使用其的夹层玻璃。

[0025] 此外,本发明的第三目的在于,提供可抑制由吻合现象导致的高频区域中的隔音性能的降低、隔音性优异的层叠体以及夹层玻璃。

[0026] 进而,本发明的第四目的在于,提供在制作夹层玻璃后的隔音性的经时变化少、隔

音性能的稳定性优异的层叠体以及夹层玻璃。

[0027] 并且,本发明的第五目的在于,提供在广泛温度范围内隔音性优异的层叠体以及夹层玻璃。

[0028] 用于解决问题的方案

[0029] 本发明涉及一种层叠体,其具有包含如下组合物的A层和多个B层,至少在2个B层之间层叠有A层,所述组合物含有基于JIS K 7244-10、在频率1Hz的条件下进行复合剪切粘度试验而测定的 $\tan\delta$ 在 $-40\sim 30^{\circ}\text{C}$ 的范围具有最大的峰的树脂。

[0030] 本发明的层叠体进一步优选为:基于JIS K 7244-10、在频率1Hz的条件下进行复合剪切粘度试验而测定的温度 25°C 下的剪切储能模量为 1.30MPa 以上。

[0031] 本发明的层叠体进一步优选为:前述树脂为热塑性弹性体。

[0032] 本发明的层叠体进一步优选为:基于JIS K 7244-10、在频率1Hz下进行复合剪切粘度试验而测定的温度 25°C 下的A层的剪切储能模量为 $0.6\sim 3.0\text{MPa}$ 。

[0033] 本发明的层叠体进一步优选为:基于JIS K 7244-10、在频率1Hz的条件下进行复合剪切粘度试验而测定的温度 25°C 下的B层的剪切储能模量为 10MPa 以上。

[0034] 本发明的层叠体进一步优选为:基于JIS K 7244-10、在频率1Hz的条件下进行复合剪切粘度试验而测定的温度 50°C 下的层叠体的剪切储能模量为 1.3MPa 以上。

[0035] 本发明的层叠体进一步优选为:使用上述的层叠体作为夹层玻璃用中间膜来制作夹层玻璃,对于所得到的夹层玻璃,进行利用中央激振法的阻尼试验的情况下,频率 2000Hz 且温度 $0\sim 50^{\circ}\text{C}$ 下的最大损耗系数为 0.2 以上。

[0036] 本发明的层叠体进一步优选为:利用基于中央激振法的夹层玻璃的阻尼试验(dumping test),对夹持在2片宽度 50mm 、长度 300mm 、厚度 3mm 的玻璃之间而得到的夹层玻璃,测定3阶模态下的损耗系数的情况下,损耗系数为 0.2 以上的温度范围的宽度为 15°C 以上。

[0037] 本发明的层叠体进一步优选为:在用2片纵 300mm 、横 25mm 、厚度 1.9mm 的浮法玻璃夹持该层叠体时,在 20°C 下利用中央激振法所测定的4阶共振频率下的损耗系数为 0.2 以上,并且基于ISO16940(2008)而算出的该4阶共振频率下的弯曲刚度为 $150\text{N}\cdot\text{m}$ 以上。

[0038] 本发明的层叠体进一步优选为:对于用厚度 2mm 的玻璃夹持层叠体,在温度 140°C 、压力 1MPa 的条件下保持60分钟,从而压接而制作的夹层玻璃,通过利用中央激振法的阻尼试验所测定的 20°C 、 2000Hz 下的损耗系数 α 为 0.2 以上,对于将该夹层玻璃在 18°C 下保持1个月之后的夹层玻璃,通过利用中央激振法的阻尼试验所测定的 20°C 、 2000Hz 下的损耗系数 β 相对于损耗系数 α 的比率 β/α 为 0.70 以上。

[0039] 本发明的层叠体进一步优选为:前述比率 β/α 为 0.80 以上。

[0040] 本发明进一步的层叠体,优选前述比率 β/α 为 1.20 以下。

[0041] 本发明的层叠体进一步优选为:对于将包含层叠体的夹层玻璃在 18°C 下保持1个月之后的夹层玻璃,通过利用中央激振法的阻尼试验所测定的 20°C 、 2000Hz 下的损耗系数 β 为 0.2 以上,对于将 18°C 下保持1个月之后的夹层玻璃在 100°C 下加热24小时之后的夹层玻璃,通过利用中央激振法的阻尼试验所测定的 20°C 、 2000Hz 下的损耗系数 γ 相对于损耗系数 β 的比率 γ/β 为 0.80 以上并且为 1.30 以下。

[0042] 本发明进一步的层叠体,优选为前述比率 γ/β 为 1.20 以下。

[0043] 本发明的层叠体进一步优选为:前述比率 γ/β 为0.87以上且1.20以下。

[0044] 本发明的层叠体进一步优选为:B层的至少一个为含有选自聚乙醇缩醛树脂、离聚物树脂以及含粘接性官能团的聚烯烃系聚合物组成的组中的至少1种热塑性树脂的层。

[0045] 本发明的层叠体进一步优选为:B层包含含有选自聚乙醇缩醛树脂、离聚物树脂以及含粘接性官能团的聚烯烃系聚合物组成的组中的至少1种热塑性树脂的层。

[0046] 本发明的层叠体进一步优选为:B层中的增塑剂的含量相对于100质量份热塑性树脂为50质量份以下。

[0047] 本发明的层叠体进一步优选为:B层中的增塑剂的含量相对于100质量份热塑性树脂为30质量份以下。

[0048] 本发明的层叠体进一步优选为:B层中的增塑剂的含量相对于100质量份热塑性树脂为25质量份以下。

[0049] 本发明的层叠体进一步优选为:B层中的增塑剂的含量相对于100质量份热塑性树脂为不足20质量份。

[0050] 本发明的层叠体进一步优选为:包含聚乙醇缩醛树脂的B层中的增塑剂的含量相对于100质量份聚乙醇缩醛树脂为25质量份以下。

[0051] 本发明的层叠体进一步优选为:增塑剂为熔点30℃以下且羟值15~450mgKOH/g以下的酯系增塑剂或醚系增塑剂。

[0052] 本发明的层叠体进一步优选为:增塑剂为非晶性且羟值15~450mgKOH/g以下的酯系增塑剂或醚系增塑剂。

[0053] 本发明的层叠体进一步优选为:聚乙醇缩醛树脂的粘均聚合度为100~5000。

[0054] 本发明的层叠体进一步优选为:为了合成聚乙醇缩醛树脂而使用的聚乙醇的粘均聚合度为300~1000。

[0055] 本发明的层叠体进一步优选为:聚乙醇缩醛树脂的乙醇单元的含量为5~35摩尔%。

[0056] 本发明的层叠体进一步优选为:聚乙醇缩醛树脂为聚乙醇缩丁醛。

[0057] 本发明的层叠体进一步优选为:热塑性弹性体为嵌段共聚物。

[0058] 本发明的层叠体进一步优选为:嵌段共聚物为具有硬链段以及软链段的嵌段共聚物或该聚合物的氢化物。

[0059] 本发明的层叠体进一步优选为:嵌段共聚物中的硬链段的含量相对于嵌段共聚物的总量为5~40质量%。

[0060] 本发明的层叠体进一步优选为:嵌段共聚物为具有芳香族乙烯基聚合物嵌段以及脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的嵌段共聚物或该聚合物的氢化物。

[0061] 本发明的层叠体进一步优选为: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中的总单体单元为5~40质量%。

[0062] 本发明的层叠体进一步优选为:具有 $\tan\delta$ 成为最大的峰的高度为0.5以上的A层。

[0063] 本发明的层叠体进一步优选为:A层包含 $\tan\delta$ 的峰温度不同的2种以上的热塑性弹性体。

[0064] 本发明的层叠体进一步优选为: $\tan\delta$ 的峰温度不同的至少2种的热塑性弹性体包

含芳香族乙烯基单体和脂肪族不饱和单体的共聚物或该共聚物的氢化物。

[0065] 本发明的层叠体进一步优选为:A层包含 $\tan\delta$ 的峰温度差为5℃以上的2种以上的热塑性弹性体。

[0066] 本发明的层叠体进一步优选为:具有2层以上的A层,至少2层的A层中分别包含的热塑性弹性体的 $\tan\delta$ 的峰温度差为5℃以上。

[0067] 本发明的层叠体进一步优选为:A层的 $\tan\delta$ 的峰温度为-20℃以下,并且,A层的膜厚为20~120 μm ,A层的 $\tan\delta$ 的峰温度超过-20℃且为-15℃以下,并且,A层的膜厚为50~200 μm ,或A层的 $\tan\delta$ 的峰温度超过-15℃,并且,A层的膜厚为80~300 μm 。

[0068] 本发明的层叠体进一步优选为:A层的总厚度相对于B层的总厚度的比(A层的总厚度/B层的总厚度)为1/30~1/1的范围。

[0069] 本发明的层叠体进一步优选为:制作夹层玻璃时,波长1500nm下的透射率为50%以下。

[0070] 本发明的层叠体进一步优选为:A层或者B层的至少任一层中包含隔热材料。

[0071] 本发明的层叠体进一步优选为:作为隔热材料,包含选自由锡掺杂氧化铟、铟掺杂氧化锡、铟酸锌、六硼化镧、金属元素复合氧化钨、酞菁化合物以及萘酞菁化合物组成的组中的1种以上的隔热性微粒。

[0072] 本发明的层叠体进一步优选为:在2片纵26mm×横76mm×厚度2.8mm的浮法玻璃之间夹持层叠体而得到的夹层玻璃的3点弯曲试验中的断裂强度(温度:20℃,支点间距离:55mm,试验速度:0.25mm/分钟)为0.5kN以上。

[0073] 本发明涉及夹层玻璃,其在夹层玻璃内部具有层叠体的构成。

[0074] 本发明的夹层玻璃进一步优选为:其为汽车用挡风玻璃、汽车用侧窗玻璃、汽车用天窗、汽车用后玻璃或者平视显示器用玻璃。

[0075] 本发明的夹层玻璃进一步优选为:构成夹层玻璃的玻璃为厚度2.8mm以下的薄板玻璃。

[0076] 本发明的夹层玻璃进一步优选为:一侧玻璃的厚度为1.8mm以上,另一侧玻璃的厚度为1.8mm以下,且各玻璃的厚度之差为0.2mm以上。

[0077] 发明的效果

[0078] 通过使用本发明中所述的层叠体,从而作为第一效果,可以制作隔音特性以及弯曲强度优异的夹层玻璃。由此,在建筑用玻璃建材、汽车用天窗、后玻璃之类的存在外部负载的影响、并且谋求隔音性那样的情况下,可以应用夹层玻璃。另一方面,夹层玻璃的弯曲强度优异,因此也可以使夹层玻璃中使用的玻璃薄膜化,可以实现夹层玻璃轻量化而不损害夹层玻璃的强度。

[0079] 此外,根据本发明,作为第二效果,可以制作可抑制由吻合现象导致的高频区域中的隔音性能的降低、隔音性优异的层叠体以及夹层玻璃。

[0080] 进而,根据本发明,作为第三效果,可以提供制作夹层玻璃后的隔音性的经时变化变少、隔音性能的稳定性优异的层叠体以及夹层玻璃。

[0081] 并且,根据本发明,作为第四效果,可以提供在广泛温度范围内隔音性优异的层叠体以及夹层玻璃。

附图说明

[0082] 图1为层叠体的构成的截面图的一个例子。

[0083] 图2为层叠体的剪切储能模量以及 $\tan\delta$ 的测定结果的一个例子。

具体实施方式

[0084] 以下,对于本发明的实施方式进行说明,但本发明并不限于本实施方式。

[0085] 本发明的层叠体为在至少2个B层之间层叠有A层的层叠体。

[0086] [A层]

[0087] 对粘弹性体施加正弦波形的应变时的应力的应答以复数弹性模量的方式来定义。此时,在施加的应变的正弦波与以应答形式得到的应力的正弦波之间,产生位相的偏移,该位相差以 δ 表示。此外,复数弹性模量由使用复数的等式而表示,复数弹性模量的实部称为储能模量,虚部称为损耗弹性模量。特别是,由剪切模式测定粘弹性体的动态粘弹性特性的情况,分别称为复数剪切弹性模量、剪切储能模量、剪切损耗弹性模量。用储能模量除以损耗弹性模量的值称为损耗角正切,由 $\tan\delta$ 表示。 $\tan\delta$ 的值为损耗系数,某个温度下的损耗系数越高,意味着该温度下的隔音性越高。

[0088] 以每个测定温度对包含2种粘弹性体的构成物中的 $\tan\delta$ 的值绘制曲线时,通常成为如图2那样的二峰性的曲线。低温度侧的峰(极大点)为源自较软质的粘弹性体的峰,高温侧的峰(极大点)为源自较硬质的粘弹性体的峰。在本实施方式中,低温度侧的峰为源自A层的峰(峰为复数时高度最大的峰),高温侧的峰为源自B层的峰。

[0089] 本发明的层叠体中使用的A层包含含有特定的树脂的组合物。通过由含有特定的树脂的组合物构成A层,从而可以提高所得到的层叠体的隔音性。

[0090] ($\tan\delta$ 的峰温度)

[0091] 本发明中所使用的A层中含有的树脂具有基于JIS K 7244-10、在频率1Hz的条件下进行复合剪切粘度试验而测定的 $\tan\delta$ 在 -40°C 以上、更优选在 -30°C 以上、进一步优选在 -20°C 以上具有最大的峰。此外,A层中所含有的树脂的上述 $\tan\delta$ 在 30°C 以下、更优选在 10°C 以下、进一步优选在 0°C 以下具有最大的峰。A层中所含有的树脂的上述 $\tan\delta$ 的最大的峰为 30°C 以下时,在作为夹层玻璃使用的温度区域中发挥优异的隔音性。A层中所含有的树脂的上述 $\tan\delta$ 的最大的峰为 -40°C 以上时,A层的剪切储能模量成为适宜的值,在高频区域中的隔音性优异。

[0092] A层中所含有的树脂的上述 $\tan\delta$ 具体而言是通过后述的实施例中记载的方法所测定的。作为将A层中所含有的树脂的上述 $\tan\delta$ 的最大的峰调整到 $-40\sim 30^{\circ}\text{C}$ 的方法,可以列举出:例如使用相对于嵌段共聚物(例如,具有芳香族乙烯基聚合物嵌段以及脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的嵌段共聚物)的总量、硬链段(例如,芳香族乙烯基聚合物嵌段)的含量为5质量%以上且40质量%以下的热塑性弹性体的方法;控制软链段的构造的方法,例如,将共轭二烯嵌段中的分支单体的含有比率、1,4-键合、1,2-键合以及3,4-键合的比率、氢化度设为适当的范围等。

[0093] 对于分支单体的含有比率,例如,在丁二烯与异戊二烯的共聚物的情况下,共聚物中的异戊二烯单元的含有比率优选为20质量%以上,更优选为50质量%以上。对于1,4-键

合、1,2-键合以及3,4-键合的比率,相对于1,4-键合、1,2-键合以及3,4-键合的总计,1,2-键合以及3,4-键合的总计比率优选为20mol%以上,更优选为30mol%以上,进一步优选为40mol%以上,特别优选为50mol%以上。氢化度优选为60mol%以上,更优选为65mol%以上,进一步优选为70mol%,特别优选为75mol%以上。

[0094] 本发明中所使用的A层可以仅由特定的树脂组成,也可以包含树脂和其它的成分。A层基于JIS K 7244-10、在频率1Hz的条件下进行复合剪切粘度试验而测定的 $\tan\delta$ 优选在-40℃以上、更优选在-30℃以上、进一步优选在-20℃以上具有最大的峰。此外,A层的 $\tan\delta$ 优选在30℃以下、更优选在10℃以下、进一步优选在0℃以下具有最大的峰。A层的上述 $\tan\delta$ 的最大的峰在30℃以下时,在作为夹层玻璃使用的温度区域中容易发挥优异的隔音性。A层的上述 $\tan\delta$ 的最大的峰在-40℃以上时,存在A层的剪切储能模量为适宜的值,制成夹层玻璃时的高频区域中的隔音性优异的倾向。

[0095] A层的上述 $\tan\delta$ 具体而言是通过后述的实施例中记载的方法所测定的。作为将A层的上述 $\tan\delta$ 的最大的峰调整到-40~30℃的方法,例如,可以列举出作为A层中含有的树脂,使用基于JIS K 7244-10、在频率1Hz的条件下进行复合剪切粘度试验而测定的 $\tan\delta$ 在-40~30℃具有最大的峰的树脂等。

[0096] 本发明的层叠体中,如后所述,优选A层中含有热塑性弹性体。并且,含有热塑性弹性体的A层优选含有 $\tan\delta$ 的峰温度($\tan\delta$ 为最大的峰的温度)不同的2种以上的热塑性弹性体。在与 $\tan\delta$ 的峰温度关联的特定的温度附近,为了提高隔音性,含有热塑性弹性体的A层含有 $\tan\delta$ 的峰温度不同的2种以上的热塑性弹性体,从而可以在更广泛的温度范围内提高隔音性。

[0097] 此外,为了在室温附近发挥适宜的隔音特性,优选将在频率1Hz的条件下的复合剪切粘度试验中的 $\tan\delta$ 峰温度设为0℃以下,更优选设为-5℃以下,特别优选设为-10℃以下。此时,通过使用具有物理的或化学的交联部位的弹性体,从而可以抑制夹层玻璃被晒过的高温下的玻璃的偏移。此外,作为弹性体使用热塑性弹性体时,可以通过共挤出法来制膜,因此特别优选。

[0098] 此外, $\tan\delta$ 的峰温度不同的至少2种热塑性弹性体优选为包含芳香族乙烯基单体与乙烯基单体或共轭二烯单体的共聚物或者该共聚物的氢化物的热塑性弹性体。芳香族乙烯基单体与乙烯基单体或共轭二烯单体的共聚物或者该共聚物的氢化物具有适宜的粘弹性。因此,通过在层叠体中包含这些热塑性弹性体,表现出适宜的隔音性。

[0099] 进而,通过制成将含有热塑性弹性体的A层作为内层、在两最外层具有作为粘接层的B层的层叠体,从而可以制成提高与玻璃的粘接性,并且提高隔音性的夹层玻璃用中间膜。

[0100] 并且,在含有热塑性弹性体的A层中所含的 $\tan\delta$ 的峰温度不同的2种以上的热塑性弹性体中, $\tan\delta$ 的峰温度优选差为5℃以上,更优选差为10℃以上,进一步优选差为15℃以上。 $\tan\delta$ 的峰温度之差低于5℃时,存在损耗系数为0.2以上的温度范围的宽度变窄,在广泛温度范围内难以表现出隔音性的倾向。

[0101] 进而,在本发明的层叠体中,优选含有热塑性弹性体的A层包含2层以上的层,至少1个A层中所含的热塑性弹性体的 $\tan\delta$ 的峰温度与其它A层中所含的热塑性弹性体的 $\tan\delta$ 的峰温度差为5℃以上,更优选差为10℃以上,进一步优选差为15℃以上。至少2个A层中所含

的热塑性弹性体的 $\tan\delta$ 的峰温度之差低于 5°C 时,存在损耗系数为0.2以上的温度范围的宽度变狭,在广泛温度范围内难以表现出隔音性的倾向。

[0102] ($\tan\delta$ 的峰高度)

[0103] 在本发明中所使用的A层中,基于JIS K 7244-10、在频率1Hz的条件下进行复合剪切粘度试验而测定的至少1个 $\tan\delta$ 的峰的高度优选为0.5以上,更优选为0.75以上,进一步优选为0.8以上。此外,从进一步提高隔音性的观点出发,在A层中,上述 $\tan\delta$ 的最大的峰的高度优选为1.0以上,更优选为1.3以上,进一步优选为1.5以上。在A层中,上述 $\tan\delta$ 的峰的高度低于0.5时,存在所得到的夹层玻璃用中间膜的隔音性变低的倾向。

[0104] 作为得到满足上述条件的A层的方法,可以列举出在A层中使用基于JIS K 7244-10、在频率1Hz的条件下进行复合剪切粘度试验而测定的至少1个 $\tan\delta$ 的峰的高度为0.5以上的树脂。

[0105] 在本发明中所使用的A层中含有的树脂中,基于JIS K 7244-10、在频率1Hz的条件下进行复合剪切粘度试验而测定的至少1个 $\tan\delta$ 的峰的高度优选为0.5以上,更优选为0.75以上,进一步优选为0.8以上。此外,从进一步提高隔音性的观点出发,在A层中所含有的树脂中,上述 $\tan\delta$ 的最大的峰的高度优选为1.0以上,更优选为1.3以上,进一步优选为1.5以上。A层中所含有的树脂中,上述 $\tan\delta$ 的峰的高度低于0.5时,存在所得到的夹层玻璃用中间膜的隔音性变低的倾向。

[0106] 作为在A层中所含有的树脂中将 $\tan\delta$ 的峰的高度设为0.5以上的方法,例如,可以列举出使用相对于嵌段共聚物(例如,具有芳香族乙烯基聚合物嵌段以及脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的嵌段共聚物)的总量、硬链段(例如,芳香族乙烯基聚合物嵌段)的含量为40质量%以下、更优选为30质量%以下的热塑性弹性体的方法;使用具有直链二烯(例如丁二烯)与支链二烯(异戊二烯)的共聚中的支链二烯(例如异戊二烯)成分的比率为10质量%以上、更优选为30质量%以上的软链段的热塑性弹性体的方法;使用具有二烯单体中的1,2-键合的含量相对于1,4-键合和1,2-键合的总含量的比率为20mol%以上、更优选为40mol%以上的软链段的热塑性弹性体的方法;此外,调整构成硬链段、软链段的单体的种类、键合形态、各链段自身的玻璃化转变温度等的方法等。

[0107] 从更进一步提高隔音性的观点出发,A层中所含有的树脂的玻璃化转变温度优选为 10°C 以下,更优选为 -5°C 以下。A层中所含有的树脂的玻璃化转变温度的下限没有特别限定,A层中所含有的树脂的玻璃化转变温度优选为 -50°C 以上,优选为 -40°C 以上。玻璃化转变温度的测定方法中也可以使用差示扫描量热测定(DSC)。

[0108] (剪切储能模量)

[0109] 从制作隔音性的经时变化少的夹层玻璃、或者制作在广泛温度范围内隔音性优异的层叠体的观点出发,本发明中所使用的A层(或A层中所含有的树脂)的基于JIS K 7244-10、在频率1Hz下进行复合剪切粘度试验而测定的温度 25°C 下的剪切储能模量优选为0.1MPa以上,更优选为0.2MPa以上,进一步优选为0.3MPa以上。此外,从上述的观点出发,A层的上述剪切储能模量优选为5.0MPa以下,更优选为4.0MPa以下,进一步优选为3.0MPa以下,尤其优选为1.0MPa以下,特别优选为0.8MPa以下,更特别优选为0.6MPa以下。A层的上述剪切储能模量低于0.1MPa时,在制造层叠体的情况下,有时处理性变差、或者引起膜厚不均。此外,A层的上述剪切储能模量超过5.0MPa时,存在作为夹层玻璃用中间膜的阻尼性能

变低,作为隔音膜的功能降低的倾向。

[0110] 上述剪切储能模量为0.1MPa以上且5.0MPa以下的A层例如可以通过如下方法而得到:作为A层所含有的树脂选择作为嵌段共聚物由硬链段、软链段构成的树脂中硬链段的含量为5质量%以上且30质量%以下的热塑性弹性体等、对硬链段(例如,芳香族乙烯基聚合物嵌段)的含量进行调整,或者对构成硬链段、软链段的单体的种类、键合形态、各链段自身的玻璃化转变温度等进行调整的方法。

[0111] 进而,从可抑制由吻合现象导致的高频区域中的隔音性能的降低、制作隔音性优异的夹层玻璃的观点出发,本发明中所使用的A层(或A层中所含有的树脂)的基于JIS K 7244-10、在频率1Hz下进行复合剪切粘度试验而测定的温度25℃下的剪切储能模量优选为0.6MPa以上,更优选为0.8MPa以上,进一步优选为1.0MPa以上。此外,从上述的观点出发,A层的上述剪切储能模量优选为3.0MPa以下,更优选为2.0MPa以下,进一步优选为1.5MPa以下。A层的上述剪切储能模量低于0.6MPa时,存在层叠体的刚性降低的倾向。此外,A层的上述剪切储能模量超过3.0MPa时,存在成形性、处理性降低的倾向。

[0112] 上述剪切储能模量为0.6MPa以上且3.0MPa以下的A层例如可以通过如下方法而得到:作为构成A层的树脂组合物中所含有的树脂使用嵌段共聚物(例如,具有芳香族乙烯基聚合物嵌段以及脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的嵌段共聚物),使用相对于其总量,硬链段(例如,芳香族乙烯基聚合物嵌段)的含量为14质量%以上且40质量%以下的热塑性弹性体等,对硬链段的含量进行调整,或者对构成硬链段、软链段的单体的种类、键合形态、各链段自身的玻璃化转变温度等进行调整的方法。

[0113] 剪切储能模量为在由相对于物体的外力和应变而产生的能量之中被保存在物体的内部的成分的指标,可以从应变控制型动态粘弹性装置中的测定温度等速升温的原本动态弹性模量和温度的关系而求出。

[0114] 剪切储能模量的测定条件可以适宜地设定,例如,可以通过频率1Hz以及温度-40~100℃这样的设定来测定。JIS K 7244-10中的试验方式中具有应力控制方式和应变控制方式。

[0115] JIS K 7244-10中的试验装置可以使用平行平板振动流变仪。平行平板振动流变仪由2片同轴且坚硬的平行圆板构成。将试验片放置到圆板之间,固定一侧圆板,用恒定频率使另一侧圆板振动,从而可以测定剪切损耗弹性模量、剪切储能模量等动态粘弹性特性。

[0116] 圆板的直径通常为20mm以上且50mm以下,试验片的厚度以圆板间的距离的方式来定义。为了使测定误差最小,期望使用3g以上且5g以下左右的试验片,使试验片的厚度处于0.5mm以上且3mm以下的范围。此外,圆板的直径与试验片的厚度之比期望处于10以上且50以下的范围。试验片通过注射成形、压缩成形、或者从片的切取而制成圆板形状。除此以外,在圆板之间也可以填充粒料、液体或者熔融高分子。此外,用试验片完全地填充2片平板间的间隙。

[0117] 应变控制方式中,施加恒定角频率的正弦波位移,测定其结果产生的正弦波扭矩与扭矩-角度位移间的位相差。扭矩测定装置与一侧的平板连接,测定使试验片变形所需要的扭矩。角度位移测定装置与可动侧的平板连接,测定角度位移以及频率。对试验片以恒定频率施加正弦波的扭矩或者角度位移的任一者,由测定的扭矩、位移以及试验片尺寸来决定剪切损耗弹性模量以及剪切储能模量。

[0118] 此外,需要将试验装置加热至试验温度为止,使其成为热平衡状态。试验温度期望通过使温度计接触固定侧的圆板或者通过埋入来测定。加热通过强制对流、高频加热或者适当的方法来进行。直至剪切损耗弹性模量以及剪切储能模量的测定值不发生变化为止,将试验片与圆板在试验温度下充分地保持直至达到热平衡状态为止。平衡时间期望为15分钟以上且30分钟以下。

[0119] (热塑性弹性体)

[0120] A层中使用的树脂没有特别限定,例如,从兼具成形性和隔音性的观点出发,优选使用热塑性弹性体(有时简称为弹性体)。作为热塑性弹性体,例如,可以列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;乙丙橡胶/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,聚碳酸酯/硬链段;聚氨酯)、聚酯系弹性体(软链段;脂肪族聚酯/硬链段;芳香族聚酯)、聚醚酯系弹性体(软链段;聚醚/硬链段;聚酯)、聚酰胺系弹性体(软链段;聚丙二醇,聚四亚甲基醚二醇或者聚酯系,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;间同立构1,2-聚丁二烯树脂)、丙烯酸类弹性体(软链段;聚丙烯酸酯/硬链段;聚丙烯酸甲酯)等热塑性弹性体。需要说明的是,可以单独使用上述热塑性弹性体,也可以并用2种以上。

[0121] 热塑性弹性体中的硬链段的含量相对于热塑性弹性体的总量优选为5质量%以上,更优选为7质量%以上,进一步优选为8质量%以上,进一步优选为10质量%以上,特别优选为14质量%以上,特别优选为16质量%以上,最优选为18质量%以上。硬链段的含量相对于热塑性弹性体的总量优选为40质量%以下,更优选为30质量%以下,进一步优选为20质量%以下,特别优选为15质量%以下。硬链段的含量低于5质量%时,存在A层的成形变得困难、或者 $\tan\delta$ 的峰的高度变小、或者层叠体的弯曲刚度变小、或者在高频区域中的隔音性降低的倾向。硬链段的含量超过40质量%时,存在难以发挥作为热塑性弹性体的特性、或者隔音性能的稳定性降低、或者在室温附近的隔音特性降低的倾向。

[0122] 热塑性弹性体中的软链段的含量相对于热塑性弹性体的总量优选为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85质量%以上。软链段的含量相对于热塑性弹性体的总量优选为95质量%以下,更优选为92质量%以下,进一步优选为90质量%以下,特别优选为88质量%以下,特别优选为86质量%以下,特别优选为84质量%以下,最优选为82质量%以下。软链段的含量低于60质量%时,存在难以发挥作为热塑性弹性体的特性的倾向。软链段的含量超过95质量%时,存在A层的成形变得困难、或者 $\tan\delta$ 的峰的高度变小,而且层叠体的弯曲刚度变小、在高频区域中的隔音性降低的倾向。此处,热塑性弹性体中的硬链段、软链段的含量在混合有热塑性弹性体的情况下,作为混合物的平均值考虑。

[0123] 作为热塑性弹性体,从兼具成形性和隔音性的观点出发,更优选使用具有硬链段和软链段的嵌段共聚物。进而,从更进一步提高隔音性的观点出发,优选使用聚苯乙烯系弹性体。

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

[0125] 作为热塑性弹性体,优选为芳香族乙烯基单体和乙烯基单体或共轭二烯单体的共聚物或者该共聚物的氢化物。从兼具作为发挥隔音性的橡胶的功能和作为塑料的功能的观点出发,优选作为该共聚物为具有芳香族乙烯基聚合物嵌段以及脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的嵌段共聚物、例如聚苯乙烯系弹性体。

[0126] 作为热塑性弹性体,在使用芳香族乙烯基聚合物嵌段、与乙烯基聚合物嵌段或共轭二烯聚合物嵌段的共聚物、例如具有芳香族乙烯基聚合物嵌段以及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、放射状或它们的2个以上组合而成的键合形态的任一者,优选为直链状的键合形态。

[0127] 作为直链状的键合形态的例子,以a表示芳香族乙烯基聚合物嵌段,以b表示脂肪族不饱和烃聚合物嵌段时,可以列举出由a-b表示的二嵌段共聚物、由a-b-a或b-a-b表示的三嵌段共聚物、由a-b-a-b表示的四嵌段共聚物、由a-b-a-b-a或b-a-b-a-b表示的五嵌段共聚物、(a-b)_nX型共聚物(X表示耦合残基,n表示2以上的整数)以及它们的混合物。它们之中,优选二嵌段共聚物或三嵌段共聚物,作为三嵌段共聚物,更优选由a-b-a表示的三嵌段共聚物。

[0128] 嵌段共聚物中的芳香族乙烯基单体单元以及脂肪族不饱和烃单体单元的总量相对于总单体单元优选为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可以为一部分或全部被氢化而成的物质。

[0129] 嵌段共聚物中的芳香族乙烯基单体单元的含量相当于嵌段共聚物的总单体单元优选为5质量%以上,更优选为7质量%以上,进一步优选为8质量%以上,特别优选为14质量%以上,特别优选为16质量%以上,最优选为18质量%以上。芳香族乙烯基单体单元的含量相对于嵌段共聚物的总单体单元优选为40质量%以下,更优选为30质量%以下,进一步优选为25质量%以下,特别优选为20质量%以下,最优选为15质量%以下。

[0130] 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,存在A层的成形变困难、由热导致产生夹层玻璃的偏移、tanδ的峰的高度变小、层叠体的弯曲刚度变小、在高频区域中的隔音性降低的倾向。嵌段共聚物中的芳香族乙烯基单体单元的含量超过40质量%时,存在难以发挥作为热塑性弹性体的特性、隔音性能的稳定性的降低的倾向。

[0131] 嵌段共聚物中的芳香族乙烯基单体单元的含量可以从合成嵌段共聚物时的各单体的投入比、嵌段共聚物的¹H-NMR等测定结果求出。在本说明书的实施例中,从¹H-NMR的测定结果求出单体种的比例,以质量%的方式记载各单体的比例。其中,混合多种前述嵌段共聚物时,考虑以混合物的平均值的方式取得嵌段共聚物中的芳香族乙烯基单体单元的含量。

[0132] 芳香族乙烯基聚合物嵌段中若为少量,则也可以使除芳香族乙烯基单体以外的单体共聚。芳香族乙烯基聚合物嵌段中的芳香族乙烯基单体单元的比例相对于芳香族乙烯基聚合物嵌段中的总单体单元,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。

[0133] 作为构成芳香族乙烯基聚合物嵌段的芳香族乙烯基单体,可以列举出苯乙烯;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-(苄基丁基)苯乙烯、1-乙烯

萘、2-乙烯萘等芳基苯乙烯；卤化苯乙烯；烷氧基苯乙烯；乙烯苯甲酸酯等。它们可以单独使用，也可以并用2种以上。

[0134] 嵌段共聚物中的脂肪族不饱和烃单体单元的含量相对于嵌段共聚物的总单体单元优选为60质量%以上，更优选为70质量%以上，进一步优选为75质量%以上，特别优选为80质量%以上，特别优选为85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相对于嵌段共聚物的总单体单元优选为95质量%以下，更优选为92质量%以下，进一步优选为90质量%以下，特别优选为88质量%以下，特别优选为86质量%以下，特别优选为84质量%以下，最优选为82质量%以下。

[0135] 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，存在难以发挥作为热塑性弹性体的特性、或者隔音性能的稳定性降低的倾向。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，存在A层的成形变得困难、 $\tan\delta$ 的峰的高度变小，而且层叠体的弯曲刚度变小、在高频区域中的隔音性降低的倾向。

[0136] 嵌段共聚物中的脂肪族不饱和烃单体单元的含量可以从合成嵌段共聚物时的各单体的投入比、嵌段共聚物的 $^1\text{H-NMR}$ 等测定结果而求出。在本说明书的实施例中，从 $^1\text{H-NMR}$ 的测定结果求出单体物质的比例，以质量%的方式记载各单体的比例。其中，混合多种前述嵌段共聚物时，考虑以混合物的平均值的方式取得嵌段共聚物中的脂肪族不饱和烃单体单元的含量。

[0137] 脂肪族不饱和烃聚合物嵌段中若为少量，则也可以使除脂肪族不饱和烃单体以外的单体共聚。脂肪族不饱和烃聚合物嵌段中的脂肪族不饱和烃单体单元的比例相对于脂肪族不饱和烃聚合物嵌段中的总单量单元优选为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。

[0138] 作为构成脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的脂肪族不饱和烃单体，可以列举出乙烯、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、丁二烯、异戊二烯、双环戊二烯、降冰片烯、乙炔等。它们可以单独使用，也可以并用2种以上。

[0139] 脂肪族不饱和烃单体从获得容易性、处理性的观点出发，优选碳数2以上的脂肪族不饱和烃，更优选碳数4以上的脂肪族烃，此外，优选碳数12以下的脂肪族不饱和烃，更优选碳数8以下的脂肪族烃。其中，优选丁二烯、异戊二烯以及丁二烯以及异戊二烯的并用。

[0140] 此外，脂肪族不饱和烃单体从获得容易性、处理性、合成的容易度的观点出发，优选共轭二烯。从提高热稳定性的观点出发，作为脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的构成单元使用共轭二烯时，优选其的一部或全部被氢化（以下，有时简称为“氢化”）的氢化物。此时的氢化度优选为80%以上，更优选为90%以上。其中，氢化度是指测定氢化反应前后的嵌段共聚物的碘价而得到的值。

[0141] 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。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400000以下，更优选为300000以下。嵌段共聚物的重均分子量与数均分子量的比

(Mw/Mn) 优选为1.0以上。嵌段共聚物的重均分子量与数均分子量的比 (Mw/Mn) 优选为2.0以下,更优选为1.5以下。其中,重均分子量是指通过凝胶渗透色谱法 (GPC) 测定而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测定而求出的聚苯乙烯换算的数均分子量。

[0142] 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、自由基聚合法等而制造。例如阴离子聚合的情况,具体而言,可以列举出:

[0143] (i) 使用烷基锂化合物作为引发剂,使芳香族乙烯基单体、共轭二烯单体、随后使芳香族乙烯基单体逐次聚合的方法;

[0144] (ii) 使用烷基锂化合物作为引发剂,使芳香族乙烯基单体、共轭二烯单体逐次聚合,接着添加耦合剂进行耦合的方法;

[0145] (iii) 使用二锂化合物作为引发剂,使共轭二烯单体,接着使芳香族乙烯基单体逐次聚合的方法等。

[0146] 作为脂肪族不饱和烃单体使用共轭二烯时,在阴离子聚合时,通过添加有机路易斯碱,从而可以增加热塑性弹性体的1,2-键含量以及3,4-键含量,通过该有机路易斯碱的添加量,从而可以容易地控制热塑性弹性体的1,2-键含量以及3,4-键含量。即便通过控制他们,也可以调整 $\tan\delta$ 的峰温度、高度。

[0147] 作为该有机路易斯碱,例如,可以列举出醋酸乙酯等酯;三乙胺、N,N,N',N'-四甲基乙二胺 (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;二甲基醚、二乙基醚、四氢呋喃 (THF)、二噁烷等醚;乙二醇二甲基醚、二乙二醇二甲基醚等二醇醚;二甲基亚砷等亚砷;丙酮、甲乙酮等酮等。

[0148] 将未氢化的聚苯乙烯系弹性体赋予氢化反应时,可以通过使所得到的未氢化的聚苯乙烯系弹性体溶解于对于氢化催化剂为不活性的溶剂、或使未氢化的聚苯乙烯系弹性体不从反应液分离而直接使用,在氢化催化剂的存在下,使其与氢反应来进行。氢化度优选为60%以上,优选为80%以上,更优选为90%以上。

[0149] 作为氢化催化剂,例如可以列举出:镍催化剂;使Pt、Pd、Ru、Rh、Ni等金属负载于碳、氧化铝、硅藻土等单体而成的不均匀系催化剂;包含过渡金属化合物与烷基铝化合物、烷基锂化合物等的组合的威格勒系催化剂;茂金属系催化剂等。氢化反应通常可以在氢压力为0.1MPa以上且20MPa以下,反应温度为20℃以上且250℃以下,反应时间为0.1小时以上且100小时以下的条件下进行。

[0150] (其它的添加成分)

[0151] A层中作为其它的成分,也可以根据需要添加抗氧化剂、紫外线吸收剂、光稳定剂、防粘连剂、颜料、染料、隔热材料等。作为抗氧化剂、紫外线吸收剂、光稳定剂,可以列举出后述的B层中所含有的物质。

[0152] 在A层中作为隔热材料,例如,通过含有无机隔热性微粒、或者隔热性化合物,从而对层叠体赋予隔热功能,制成夹层玻璃时,可以将波长1500nm下的透射率设为50%以下。对于隔热材料在后面详细叙述。

[0153] A层中包含除热塑性弹性体以外的成分的情况下,含有构成A层的热塑性弹性体的组合物之中,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

体为低于60质量%时,存在难以发挥作为热塑性弹性体的特性、损害光学特性的倾向。

[0154] 在本发明的层叠体中,热塑性弹性体在层叠体中优选含有5质量%以上,更优选含有10质量%以上,进一步优选含有13质量%以上。层叠体中的热塑性弹性体低于5质量%时,存在隔音性降低的倾向。

[0155] [B层]

[0156] 本发明的层叠体中所使用的B层通过基于JIS K 7244-10、在频率1Hz下进行复合剪切粘度试验而测定的温度25℃下的剪切储能模量优选为1MPa以上,更优选为2MPa以上。温度25℃下的剪切储能模量低于1MPa时,存在B层的粘性变高,在夹层玻璃的制造工序中,工序通过性降低的倾向。进而,在需要补偿伴随玻璃的薄膜化(轻量化)等的夹层玻璃的强度降低的情况下,温度25℃下的剪切储能模量优选为10.0MPa以上。例如,通过使用温度25℃下的剪切储能模量为10.0MPa以上的B层作为层叠体的最外层,可以得到处理性优异的层叠体。温度25℃下的剪切储能模量优选为12.0MPa以上,更优选为20.0MPa以上,进一步优选为40.0MPa以上,特别优选为60.0MPa以上,最优选为80.0MPa以上。上述条件下的剪切储能模量低于10.0MPa时,存在不能保持适宜的剪切储能模量以及最大损耗系数,夹层玻璃用中间膜的隔音性或弯曲刚度降低的倾向。对于剪切储能模量为10.0MPa以上的B层,例如,可以通过使增塑剂的量相对于100质量份聚乙烯醇缩醛树脂等热塑性树脂设为50质量份以下来得到。此外,前述25℃下的剪切储能模量的上限没有特别限定,从层叠体的成形性、处理性的观点出发,优选为900MPa以下。

[0157] 本发明的层叠体中,成为最外层的B层优选含有选自聚乙烯醇缩醛树脂、离聚物、乙烯·醋酸乙烯酯共聚物、以及含有粘接性官能团的聚烯烃组成的组中的至少1种热塑性树脂。成为最外层的B层通过由含有上述的热塑性树脂的组合物构成,可以提高夹层玻璃用中间膜的耐候性、强度、提高所得到的夹层玻璃的弯曲强度、耐贯通性。例如,作为夹层玻璃用中间膜使本发明的层叠体实用化时,从可以制作破损时的玻璃飞散性低的安全玻璃等观点出发,优选制成包含含有聚乙烯醇缩醛树脂的组合物B层。特别是作为最外层的B层更优选由聚乙烯醇缩丁醛构成。

[0158] 此外,本发明的B层优选以如下方式进行选择:本发明的层叠体在用2片纵300mm、横25mm、厚度1.9mm的浮法玻璃夹持该层叠体时,在20℃下利用中央激振法所测定的4阶共振频率下的损耗系数为0.2以上,并且基于ISO16940(2008)而算出的该4阶共振频率下的弯曲刚度为150N·m以上。作为满足这样的规定的树脂没有特别限定,可以列举出如上述那样的热塑性树脂等。

[0159] 进而,作为在本发明的B层中使用的树脂,优选包含对于玻璃具有粘接性的树脂。作为这样的性质的树脂没有特别限定,可以列举出如上述那样的热塑性树脂等。

[0160] 将含有聚乙烯醇缩醛树脂等热塑性树脂的组合物用作B层时,B层优选包含40质量%以上的热塑性树脂,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,也可以仅由热塑性树脂构成B层。热塑性树脂的B层中的含有率少于40质量%时,存在所得到的夹层玻璃的弯曲强度降低的倾向。

[0161] (离聚物)

[0162] 离聚物的种类没有特别限定,可以列举出:具有源自乙烯的结构单元以及源自 α ,

β -不饱和羧酸的结构单元、且 α , β -不饱和羧酸的至少一部分被金属离子中和而成的树脂。作为金属离子,例如可以列举出钠离子。在成为基础聚合物的乙烯· α , β -不饱和羧酸共聚物中, α , β -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。此外, α , β -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。在本发明中,从容易获得的观点出发,优选乙烯·丙烯酸共聚物的离聚物以及乙烯·甲基丙烯酸共聚物的离聚物。作为乙烯系离聚物的例子,可以列举出乙烯·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例子。

[0163] 作为构成离聚物的 α , β -不饱和羧酸,例如可以列举出丙烯酸、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。

[0164] (含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物)

[0165] 含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物为对聚烯烃系聚合物赋予了粘接性官能团的物质。本发明的层叠体的B层中,通过进一步包含含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物,从而可以提高形成构成B层的树脂组合物而得到的薄膜与玻璃的粘接性。此外,混合并用含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物和聚乙烯醇缩醛树脂时,含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物作为聚乙烯醇缩醛树脂和热塑性聚烯烃系树脂的增容剂而起作用,因此可以提高成形树脂组合物而得到的薄膜的透明性。

[0166] 作为含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物所具有的粘接性官能团,例如,可以列举出羧基、硼酸基、硅烷醇基、环氧基、异氰酸酯基、酸酐基、(甲基)丙烯酰氧基、羟基、酰胺基、氯原子等卤原子等。使含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物与聚乙烯醇缩醛树脂混合或者接触来使用时,羧基、硼酸基、硅烷醇基、环氧基或者异氰酸酯基从与聚乙烯醇缩醛树脂中的羟基的反应性的高度的观点出发优选。该含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物的制造方法没有特别限制,例如,通过用公知的方法将烯烃与具有粘接性官能团的单体进行无规共聚、嵌段共聚、接枝共聚或接枝反应从而得到。它们之中,优选无规共聚、接枝共聚、接枝反应,更优选由接枝反应而得到的接枝反应体。需要说明的是,其中,接枝反应体是指如马来酸酐改性那样,接枝侧链大部分不为聚合物而是一个单体加成而成的物质。对于含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物,除此以外,也可以通过用公知的方法将聚烯烃系树脂赋予到氧化或氯化等反应中而得到。此外,作为含有粘接性官能团的聚烯烃,可以使用乙烯·醋酸乙烯酯共聚物等。

[0167] 作为含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物中所使用的烯烃,优选丙烯。与丙烯一起,也可以为使除丙烯以外的 α -烯烃与具有粘接性官能团的单体共聚而成的物质。作为该 α -烯烃,可以列举出乙烯、1-丁烯、1-戊烯、1-己烯、1-辛烯、4-甲基-1-戊烯、环己烯等。该 α -烯烃可以用公知的方法与具有粘接性官能团的单体共聚,可以列举出无规共聚、嵌段共聚或接枝共聚等方法。这些源自除丙烯以外的 α -烯烃的结构单元相对于总结构单元的比例优选为0摩尔%以上,优选为45摩尔%以下,更优选为35摩尔%以下,进一步优选为25摩尔%以下。

[0168] 作为具有粘接性官能团的单体,例如,可以列举出醋酸乙烯酯、氯乙烯、氧化乙烯、氧化丙烯、丙烯酰胺、不饱和羧酸或其的酯或者酐。其中,优选不饱和羧酸或其的酯或者酐。作为不饱和羧酸或其的酯或者酐,例如,可以列举出(甲基)丙烯酸、(甲基)丙烯酸酯、马来酸、马来酸酐、富马酸、衣康酸、衣康酸酐、降冰片烯二酸、降冰片烯二酸酐等。其中,更优选

马来酸、马来酸酐。具有这些粘接性官能团的单体可以单独使用1种或组合2种以上。

[0169] 作为含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物,从薄膜与玻璃的粘接性、透明性的观点出发,优选的是作为粘接性官能团含有羧基的聚丙烯或者苯乙烯-二烯系弹性体、即羧酸(酐)改性聚丙烯系树脂或者羧酸(酐)改性苯乙烯-二烯系弹性体系树脂,特别是更优选马来酸(酐)改性聚丙烯系树脂,马来酸(酐)改性苯乙烯-二烯系弹性体系树脂。

[0170] 此外,作为可以与烯烃共聚的单体,可以列举出丙烯酸甲酯、丙烯酸乙酯、丙烯酸正丙酯、丙烯酸异丙酯、丙烯酸正丁酯、丙烯酸异丁酯、丙烯酸正己酯、丙烯酸异己酯、丙烯酸正辛酯、丙烯酸异辛酯、丙烯酸2-乙基己酯等丙烯酸烷基酯;甲基丙烯酸甲酯、甲基丙烯酸乙酯、甲基丙烯酸正丙酯、甲基丙烯酸异丙酯、甲基丙烯酸正丁酯、甲基丙烯酸异丁酯、甲基丙烯酸正己酯、甲基丙烯酸异己酯、甲基丙烯酸正辛酯、甲基丙烯酸异辛酯、甲基丙烯酸2-乙基己酯等(甲基)丙烯酸酯。这些(甲基)丙烯酸酯可以单独使用1种,也可以组合使用2种以上。

[0171] 作为粘接性官能团相对于含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物的总结构单元的比例,优选为1 μ eq/g以上,更优选为2 μ eq/g以上,为3 μ eq/g以上是最适的。粘接性官能团相对于含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物的总结构单元的比例优选为1500 μ eq/g以下,更优选为700 μ eq/g以下,为500 μ eq/g以下是最适的。粘接性官能团的比例小于1 μ eq/g时,聚烯烃系树脂的分散颗粒体系变高,剧烈浑浊,大于1500 μ eq/g时,再利用的情况下,存在容易凝胶化的倾向。

[0172] 在本发明中,含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物可以发挥作为在上面叙述的热塑性聚烯烃系树脂的作用。因此,在本发明中可以使用的热塑性树脂中,作为适宜的实施方式之一也包括如下的热塑性树脂:不包含不含有粘接性官能团的热塑性聚烯烃系树脂,仅包含含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物作为热塑性聚烯烃系树脂的热塑性树脂。

[0173] 使含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物与聚乙烯醇缩醛树脂接触来使用时,含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物的含量相对于100质量份热塑性弹性体优选为0.3质量份以上,更优选为0.6质量份以上,进一步优选为1质量份以上。含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物的含量低于0.5质量份时,存在聚乙烯醇缩醛树脂与热塑性聚烯烃系树脂的相容性变得不充分的倾向。

[0174] 将层叠体熔融混炼,作为聚乙烯醇缩醛树脂层而再利用来使用时,在混合热塑性弹性体和聚乙烯醇缩醛树脂的情况下,热塑性弹性体的含量相对于100质量份聚乙烯醇缩醛树脂优选为0.5质量份以上,更优选为1质量份以上,进一步优选为3质量份以上。此外,热塑性弹性体的含量相对于100质量份聚乙烯醇缩醛树脂优选为50重量份以下,更优选为40质量份以下。热塑性弹性体的含量低于0.5质量份时,存在调整再利用性差的倾向,超过50质量份时存在雾度恶化的倾向。

[0175] 含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物的含量相对于100质量份热塑性弹性体优选为0.3质量份以上,更优选为0.6质量份以上,进一步优选为1质量份以上。含有粘接性官能团的聚烯烃系聚合物的含量少于0.3质量份时,存在使聚乙烯醇缩醛树脂与热塑性聚烯烃系树脂相容化的效果变得不充分的倾向。

[0176] (聚乙烯醇缩醛树脂)

[0177] 聚乙烯醇缩醛树脂的平均缩醛化度优选为40摩尔%以上,优选为90摩尔%以下。

平均缩醛化度低于40摩尔%时,增塑剂等与溶剂的相容性不优选。平均缩醛化度超过90摩尔%时,在用于得到聚乙烯醇缩醛树脂的反应中需要长时间,过程上不优选。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。此外,平均缩醛化度优选为85摩尔%以下,进一步优选为80摩尔%以下。

[0178] 聚乙烯醇缩醛树脂的醋酸乙烯酯单元的含量优选为30摩尔%以下。醋酸乙烯酯单元的含量超过30摩尔%时,在聚乙烯醇缩醛树脂的制造时容易引起粘连,因此难以进行制造。醋酸乙烯酯单元的含量优选为20摩尔%以下。

[0179] 聚乙烯醇缩醛树脂的乙烯醇单元的含量优选为5摩尔%以上,更优选为10摩尔%以上,优选为15摩尔%以上,优选为18摩尔%以上,更优选为20摩尔%以上,更优选为22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,优选为35摩尔%以下,更优选为30摩尔%以下,进一步优选为25摩尔%以下,特别优选为20摩尔%以下。

[0180] 乙烯醇单元的含量少于5摩尔%时,存在与玻璃的粘接性降低、B层的强度降低的倾向。此外,作为增塑剂使用如后述那样具有羟基的化合物的情况下,使增塑剂所具有的羟基与聚乙烯醇缩醛树脂不具有充分的相互作用(氢键),其结果,存在聚乙烯醇缩醛树脂与增塑剂的相容性变得不优选,增塑剂容易向其它的树脂层移动的倾向。乙烯醇单元的含量多于50摩尔%时,存在耐水性降低、作为安全玻璃中间膜所要求的耐贯通性、耐冲击性功能的控制变得困难的倾向。此外,存在增塑剂等与溶剂的相容性变低、增塑剂渗出、层叠体的吸湿性变高而耐湿性降低、或容易白化的倾向。

[0181] 对于聚乙烯醇缩醛树脂,通常由乙烯缩醛单元、乙烯醇单元以及醋酸乙烯酯单元构成,这些各单元量例如可以基于JIS K 6728“聚乙烯醇缩丁醛试验方法”、核磁共振(NMR)而测定。

[0182] 聚乙烯醇缩醛树脂包含除乙烯缩醛单元以外的单元时,测定乙烯醇的单元量与醋酸乙烯酯的单元量,将它们两单元量从不包含除乙烯缩醛单元以外的单元时的乙烯缩醛单元量减去,从而可以算出残留的乙烯缩醛单元量。

[0183] 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,可以在聚乙烯醇中使用醛类来缩醛化,从而制造。具体而言,可以列举出如下方法等:将聚乙烯醇溶解于温水中,将所得到的水溶液保持到规定的温度,例如,0℃以上、优选为10℃以上且90℃以下、优选为20℃以下,加入需要的酸催化剂以及醛类,边搅拌边进行缩醛化反应,接着,将反应温度提高到70℃来进行熟化,使反应终止,之后,进行中和、水洗以及干燥,从而得到聚乙烯醇缩醛树脂的粉末。

[0184] 成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,特别优选为750以上,特别优选为900以上,最优选为1200以上。聚乙烯醇的粘均聚合度过低时,存在耐贯通性、耐蠕变物性、特别是85℃、85%RH那样的高温高湿条件下的耐蠕变物性降低的情况。此外,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,存在树脂膜的成形变得困难的情况。

[0185] 进而,为了提高所得到的夹层玻璃用中间膜的层压适应性、在外观上得到更优异

的夹层玻璃,聚乙烯醇的粘均聚合度优选为1800以下,更优选为1500以下,进一步优选为1100以下,特别优选为1000以下。此外,作为夹层玻璃用中间膜将本发明的层叠体夹持在薄膜玻璃中而用作夹层玻璃的情况,为了提高所得到的夹层玻璃的弯曲强度,优选减少增塑剂量。其中,减少增塑剂量时,存在成形性降低的倾向,因此从确保优选的成形性的观点出发,优选将聚乙烯醇的粘均聚合度设为上述范围。

[0186] 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,因此上述的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。

[0187] 所得到的聚乙烯醇缩醛树脂的醋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,有时聚乙烯醇缩醛树脂的透明性、耐热性降低,此外,有时与醛类的反应性也降低。皂化度更优选为95摩尔%以上。

[0188] 聚乙烯醇的粘均聚合度以及皂化度例如可以基于JIS K 6726“聚乙烯醇试验方法”来测定。

[0189] 作为聚乙烯醇的缩醛化中使用的醛类,优选碳数为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,并且,在反应中容易发生树脂的嵌段,容易在聚乙烯醇缩醛树脂的合成上伴随困难。

[0190] 作为醛类没有特别限定,例如,可以列举出甲醛、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、肉桂醛等脂肪族醛、芳香族醛、脂环式醛。它们之中,优选碳数2以上且6以下的脂肪族醛,其中,特别优选丁醛。此外,上述醛类可以单独使用或并用2种以上。进而,也可以在总醛类的20质量%以下的范围少量并用多官能醛类、具有其它的官能团的醛类等。

[0191] 作为聚乙烯醇缩醛树脂,最优选聚乙烯醇缩丁醛,作为聚乙烯醇缩丁醛,可以使用如下的改性聚乙烯醇缩丁醛:使用丁醛对将乙烯酯与其它的单体的共聚物皂化而得到的聚乙烯醇系聚合物丁缩醛化而成的改性聚乙烯醇缩丁醛。其中,作为其它的单体,例如,可以列举出乙烯、丙烯、正丁烯、异丁烯等 α -烯烃;丙烯酸甲酯、丙烯酸乙酯、丙烯酸正丁酯,丙烯酸异丁酯、丙烯酸叔丁酯、丙烯酸2-乙基己酯、丙烯酸十二烷基酯、丙烯酸十八烷基酯等丙烯酸酯;甲基丙烯酸甲酯、甲基丙烯酸乙酯、甲基丙烯酸正丁酯、甲基丙烯酸异丁酯、甲基丙烯酸叔丁酯、甲基丙烯酸2-乙基己酯、甲基丙烯酸十二烷基酯、甲基丙烯酸十八烷基酯等甲基丙烯酸酯;丙烯酰胺、N-甲基丙烯酰胺、N-乙基丙烯酰胺、N,N-二甲基丙烯酰胺、二丙酮丙烯酰胺,丙烯酰胺丙磺酸以及其的盐、丙烯酰胺丙基二甲基胺、其的盐以及其的季盐、N-羟甲基丙烯酰胺以及其的衍生物等丙烯酰胺以及其的衍生物;甲基丙烯酰胺、N-甲基甲基丙烯酰胺、N-乙基甲基丙烯酰胺、甲基丙烯酰胺丙磺酸以及其的盐、甲基丙烯酰胺丙基二甲基胺、其的盐以及其的季盐、N-羟甲基甲基丙烯酰胺以及其的衍生物等甲基丙烯酰胺以及其的衍生物;甲基乙烯基醚、乙基乙烯基醚、正丁基乙烯基醚、异丁基乙烯基醚、叔丁基乙烯基醚、十二烷基乙烯基醚、十八烷基乙烯基醚等乙烯基醚;丙烯腈、甲基丙烯腈等腈;氯乙烯、氟化乙烯等卤化乙烯;偏二氯乙烯、偏二氟乙烯等偏二卤乙烯;醋酸丙烯酯、烯丙基氯等烯丙基化合物;马来酸酯或马来酸酐、乙烯基三甲氧基硅烷等乙烯基甲硅烷基化合物;醋酸异丙烯酯等,但并不限于它们。使这些其它的单体共聚的情况下,通常,这些其它的单体相

对于羧酸乙烯酯化合物以低于10摩尔%的比例来使用。此外,作为该其它的单体,可以使用苯乙烯以及苯乙烯的衍生物、以及具有羟基、羧基、羧酸酯基的单体等。

[0192] B层中作为除聚乙烯醇缩醛树脂等热塑性树脂以外的成分,进而,可以根据需要添加增塑剂、抗氧化剂、紫外线吸收剂、光稳定剂、粘接性调节剂、防粘连剂、颜料、染料、隔热材料(例如,具有红外线吸收功能的无机隔热性微粒或有机隔热性材料)等。

[0193] (增塑剂)

[0194] 作为本发明的B层中所使用的增塑剂没有特别限制,可以使用一元羧酸酯系、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,除此以外,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。

[0195] 作为一元羧酸酯系增塑剂,为丁酸、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、甘油等多元醇通过缩合反应而得到的化合物,例示出具体的化合物时,可以列举出: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,甘油或二甘油的与2-乙基己酸的完全或部分酯化物等。其中,PEG#400表示平均分子量为350~450的聚乙二醇。

[0196] 作为多元羧酸酯系增塑剂,可以列举出: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、苯三甲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、十二烷醇、丁氧基乙醇、丁氧基乙氧基乙醇、苄醇等碳数1~12的醇通过缩合反应而得到的化合物。例示出具体的化合物时,可以列举出己二酸二己酯、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、邻苯二甲酸苄基丁酯、邻苯二甲酸二(十二烷基)酯等。

[0197] 作为磷酸系增塑剂或亚磷酸系增塑剂,可以列举出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、十二烷醇、丁氧基乙醇、丁氧基乙氧基乙醇、或苄醇等碳数1~12的醇通过缩合反应而得到的化合物。例示出具体的化合物时,可以列举出磷酸三甲酯、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。

[0198] 作为羧酸聚酯系增塑剂,可以为将草酸、丙二酸、琥珀酸、己二酸、辛二酸、癸二酸、十二烷基二酸、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、1,2-十二烷基二醇、1,12-十二烷基二醇、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,二醇酸、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-羟基十二烷基酸、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);将脂肪族内酯化合物, γ -丁内酯、 γ -戊内酯、 δ -戊内酯、 β -甲基- δ -戊内酯、 δ -己醇内酯(δ -Hexanolactone)、 ϵ -己内酯(ϵ -caprolactone)、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,此外,也可以为使末端羟基、末端羧基与1元羧酸或者1元醇反应而进行酯键合得到的物质。

[0199] 作为碳酸聚酯系增塑剂,可以列举出将乙二醇、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、1,2-十二烷基二醇、1,12-十二烷基二醇、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通过酯交换反应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。

[0200] 作为聚亚烷基二醇系增塑剂,可以列举出将一元醇、多元醇、一元羧酸以及多元羧酸作为引发剂使环氧乙烷、环氧丙烷、环氧丁烷、氧杂环丁烷等环氧化物开环聚合而得到的聚合物。

[0201] 作为羟基羧酸酯系增塑剂,也可以使用羟基羧酸的1元醇酯;蓖麻油酸甲酯、蓖麻油酸乙酯、蓖麻油酸丁酯、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(蓖麻油酸)酯、L-酒石酸二(1-(2-乙基己基)),将除蓖麻油之外的羟基羧酸的多元醇酯的k个源自羟基羧酸的基团置换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由以往公知的方法得到的物质。

[0202] 在本发明中,这些增塑剂可以单独使用,也可以并用2种以上。

[0203] 在B层中含有增塑剂时,从提高增塑剂与B层中所使用的树脂(特别是聚乙烯醇缩醛树脂)的相容性、向其它层的低移动性、非移动性的观点出发,优选使用熔点为30℃以下且羟值为15mgKOH/g以上且450mgKOH/g以下的酯系增塑剂或醚系增塑剂,或者,优选使用为非晶性且羟值为15mgKOH/g以上且450mgKOH/g以下的酯系增塑剂或醚系增塑剂。其中,非晶性是指在-20℃以上的温度下未观测到熔点。前述羟值优选为15mgKOH/g以上,更优选为30mgKOH/g以上,为45mgKOH/g以上是最适的。此外,前述羟值优选为450mgKOH/g以下,更优选为360mgKOH/g以下,为280mgKOH/g以下是最适的。作为前述酯系增塑剂,可以列举出满足上述规定的聚酯(前述的羧酸聚酯系增塑剂、碳酸聚酯系增塑剂等),羟基羧酸酯化合物(前述的羟基羧酸酯系增塑剂等),作为醚系增塑剂,可以列举出满足前述规定的聚醚化合物(前述的聚亚烷基二醇系增塑剂等)。

[0204] 增塑剂的含量相对于100质量份聚乙烯醇缩醛树脂等热塑性树脂优选为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,特别优选为10质量份以下,更特别优选为6质量份以下,最优选为0质量份(即,不含增塑剂)。增塑剂的含量相对于100质量份聚乙烯醇缩醛树脂等热塑性树脂超过50质量份时,存在层叠体的处理性变差、B层以及层叠体的剪切储能模量变低的倾向。此外,还存在在夹层玻璃制作后的隔音性的经时变化变大,隔音性能的稳定性的降低的倾向。需要说明的是,可以并用2种以上的增塑剂。

[0205] 作为增塑剂,可以使用含有羟基的化合物,具有羟基的化合物的含量相对于B层中所使用的增塑剂的总量的比例优选为10质量%以上,更优选为15质量%以上,进一步优选为20质量%以上,特别优选为50质量%以上,特别优选为70质量%以上,特别优选为80质量%以上。最优选为90质量%以上。具有羟基的化合物的含量相对于B层中所使用的增塑剂的总量的比例优选为100质量%以下,更优选为90质量%以下,进一步优选为80质量%以下。具有羟基的化合物与树脂、特别是聚乙烯醇缩醛树脂、离聚物具有高相容性,向其它的树脂层的移动性低,因此可以得到隔音性能的稳定性的优异的层叠体。

[0206] (其它的添加成分)

[0207] 作为抗氧化剂,例如,可以列举出酚系抗氧化剂、磷系抗氧化剂、硫系抗氧化剂等,它们之中优选酚系抗氧化剂,特别优选烷基取代酚系抗氧化剂。

[0208] 作为酚系抗氧化剂的例子,可以列举出2-叔丁基-6-(3-叔丁基-2-羟基-5-甲基苄基)-4-甲基苄基丙烯酸酯、2,4-二叔戊基-6-(1-(3,5-二叔戊基-2-羟基苄基)乙基)苄基丙烯酸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、或者三乙二醇双(3-(3-叔丁基-4-羟基-5-甲基苄基)丙酸酯)等烷基取代酚系化合物、1,3,5-三(2,6-二甲基-3-羟基-4-叔丁基苄基)-1,3,5-三嗪-2,4,6(1H,3H,5H)-三酮、6-(4-羟基-3,5-二叔丁基苯胺基)-2,4-双-辛基硫代-1,3,5-三嗪、6-(4-羟基-3,5-二甲基苯胺基)-2,4-双-辛基硫代-1,3,5-三嗪、6-(4-羟基-3-甲基-5-叔丁基苯胺基)-2,4-双-辛基硫代-1,3,5-三嗪、或者2-辛基硫代-4,6-双-(3,5-二叔丁基-4-氧基苯胺基)-1,3,5-三嗪等含三嗪基的苯酚系化合物等。

[0209] 作为磷系抗氧化剂,例如,可以列举出三苄基亚磷酸酯、二苄基异癸基亚磷酸酯、苄基二异癸基亚磷酸酯、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(2,4-二叔丁基)亚磷酸酯、三(环己基苄基)亚磷酸酯、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、或者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~C15)亚磷酸酯)4,

4'-异丙叉基-双(二苯基单烷基(C12~C15)亚磷酸酯)、1,1,3-三(2-甲基-4-二-十三烷基亚磷酸酯-5-叔丁基苯基)丁烷、或者四(2,4-二-叔丁基苯基)-4,4'-联亚苯基亚磷酸酯等二亚磷酸酯系化合物等。它们之中优选为单亚磷酸酯系化合物。

[0210] 作为硫系抗氧化剂,例如,可以列举出3,3'-硫代二丙酸二月桂基酯、3,3'-硫代二丙酸二硬脂基酯、3,3'-硫代二丙酸月桂基硬脂基酯、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。

[0211] 这些抗氧化剂可以单独或组合使用2种以上。抗氧化剂的配合量相对于100质量份热塑性树脂优选为0.001质量份以上,更优选为0.01质量份以上。此外,抗氧化剂的配合量相对于100质量份热塑性树脂优选为5质量份以下,更优选为1质量份以下。抗氧化剂的量少于0.001质量份时,有时难以发挥充分的效果,此外,即便多于5质量份,也不能期望格外的效果。

[0212] 此外,作为紫外线吸收剂,可以列举出2-(5-甲基-2-羟基苯基)苯并三唑、2-[2-羟基-3,5-双(α,α'-二甲基苄基)苯基]-2H-苯并三唑、2-(3,5-二叔丁基-2-羟基苯基)苯并三唑、2-(3-叔丁基-5-甲基-2-羟基苯基)-5-氯代苯并三唑、2-(3,5-二叔丁基-5-甲基-2-羟基苯基)-5-氯代苯并三唑、2-(3,5-二叔戊基-2-羟基苯基)苯并三唑或者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、或者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、或者十六烷基-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。这些紫外线吸收剂的添加量相对于热塑性树脂以质量基准计优选为10ppm以上,更优选为100ppm以上。此外,紫外线吸收剂的添加量相对于热塑性树脂以质量基准计优选为50000ppm以下,更优选为10000ppm以下。紫外线吸收剂的添加量少于10ppm时,有时难以发挥充分的效果,此外,即便使紫外线吸收剂的添加量多于50000ppm也不能期望格外的效果。这些紫外线吸收剂也可以组合使用2种以上。

[0213] 作为光稳定剂,可以列举出受阻胺系的物质,例如,株式会社ADEKA制“Adekastab LA-57(商品名)”,Ciba Specialty Chemicals Co.,Ltd.制“Tinuvin622(商品名)”。

[0214] 此外,根据需要,也可以控制所得到的层叠体对玻璃等的粘接性。作为控制粘接性的方法,通常,可以列举出添加作为夹层玻璃的粘接性调节剂所使用的添加剂的方法,添加用于调整粘接性的各种添加剂的方法等。通过这样的方法,可以得到包含粘接性调节剂和/或用于调整粘接性的各种添加剂的夹层玻璃用中间膜。

[0215] 作为粘接性调节剂,例如,可以使用国际公开第03/033583号中所公开的物质,优选使用碱金属盐、碱土金属盐,例如,可以列举出钾、钠、镁等的盐。作为上述盐,可以列举出辛酸、己酸、丁酸、醋酸、甲酸等羧酸等有机酸;盐酸、硝酸等无机酸的盐等。

[0216] 粘接性调节剂的最适的添加量根据使用的添加剂而不同,所得到的层叠体向玻璃的粘接力在Pummel试验(Pummel test;国际公开第03/033583号等中记载)中,通常优选以成为3以上且10以下的方式来调整,特别是要求高耐贯通性的情况下更优选以成为3以上且6以下的方式调整,需要高防止玻璃飞散性的情况下更优选以成为7以上且10以下的方式调

整。要求高防止玻璃飞散性的情况下,不添加粘接性调节剂也是有用的方法。

[0217] [层叠体(夹层玻璃用中间膜)]

[0218] 本发明的层叠体包含具有上述的性质的至少在2个B层之间层叠有具有上述性质的A层的层叠体。通过这样的构成,可以得到隔音性以及弯曲强度优异的层叠体。本发明的层叠体可以适宜地用作夹层玻璃用中间膜。

[0219] 本发明的层叠体的制造方法没有特别限定,均匀地混炼构成B层的树脂组合物之后,利用挤出法、压延法、压制法、流延法、吹塑法等公知制膜方法制作B层,此外,用同样的方法,利用树脂制作A层,使它们由压制成形等层叠,也可以通过共挤出法使B层、A层以及其它必要的层成形。

[0220] 在公知的制膜方法之中特别适宜地采用使用挤出机制造层叠体的方法。挤出时的树脂温度优选为150℃以上,更优选为170℃以上。此外,挤出时的树脂温度优选为250℃以下,更优选为230℃以下。树脂温度变得过高时,引起所使用的树脂分解,担心树脂的劣化。相反温度过低时,从挤出机的喷出不稳定,成为机械故障的主要因素。为了高效地去除挥发性物质,优选从挤出机的通气口通过减压去除挥发性物质。

[0221] 在本发明的层叠体中,基于JIS K 7244-10、在频率1Hz的条件下进行复合剪切粘度试验而测定的温度25℃下的剪切储能模量优选为1.30MPa以上,更优选为2.00MPa以上,进一步优选为3.00MPa以上。上述条件下的剪切储能模量为1.30MPa以上的情况下,将层叠体用于夹层玻璃时,弯曲强度上升。另一方面,从使夹层玻璃用中间膜的外观更良好、容易制造夹层玻璃的观点出发,在层叠体中,上述条件下的剪切储能模量优选为10.0MPa以下,更优选为8.00MPa以下,进一步优选为6.00MPa以下。在上述条件下所测定的在温度25℃下的剪切储能模量为1.30MPa以上的层叠体可以如下得到:例如将包含含有在-40~30℃的范围具有 $\tan\delta$ 成为最大的峰的弹性体的组合物的A层、和在温度25℃下的剪切储能模量为10.0MPa以上的多个B层,至少在2个B层之间层叠A层,从而得到。

[0222] 在本发明的层叠体(夹层玻璃用中间膜)中,基于JIS K 7244-10而在频率1Hz的条件下进行复合剪切粘度试验而测定的温度50℃下的剪切储能模量优选为1.30MPa以上,更优选为1.50MPa以上,进一步优选为2.00MPa以上。上述的剪切储能模量为1.30MPa以上的情况下,特别是在层叠体的温度升至50℃以上时,将层叠体用于夹层玻璃时的弯曲强度提高。另一方面,从使外观更良好、容易制造夹层玻璃的观点出发,在层叠体中,上述条件下的剪切储能模量优选为6.00MPa以下,更优选为4.00MPa以下,进一步优选为3.00MPa以下。在上述条件下所测定的在温度50℃下的剪切储能模量为1.30MPa以上的层叠体可以如下得到:将包含含有在-40~30℃的范围具有 $\tan\delta$ 成为最大的峰的弹性体的组合物的A层、和在温度25℃下的剪切储能模量为10.0MPa以上的多个B层,至少在2个B层之间层叠A层,从而得到。

[0223] A层的膜厚优选为20 μm 以上,更优选为25 μm 以上,进一步优选为30 μm 以上,特别优选为50 μm 以上,最优选为100 μm 以上。此外,A层的膜厚优选为500 μm 以下,更优选为400 μm 以下,进一步优选为300 μm 以下。A层的膜厚低于20 μm 时,存在隔音性降低的倾向,A层的膜厚超过400 μm 时,存在在制作夹层玻璃时耐贯通性等机械特性恶化,有损作为夹层玻璃的安全性能的倾向。本发明的层叠体中包含多个A层时,A层总体的总厚度优选满足上述范围。

[0224] B层的膜厚优选为100 μm 以上,更优选为150 μm 以上,进一步优选为200 μm 以上。B层的膜厚优选为650 μm 以下,更优选为500 μm 以下,进一步优选为350 μm 以下,进一步优选为300

μm 以下。B层的膜厚低于 $100\mu\text{m}$ 时,存在层叠体的弯曲刚度变小、在高频区域中的隔音性降低的倾向,B层的膜厚超过 $650\mu\text{m}$ 时,存在无论频率域均隔音性降低、容易引起隔音性能的经时变化而隔音性能的稳定性的降低的倾向。

[0225] B层总体的总厚度优选为 $300\mu\text{m}$ 以上,更优选为 $400\mu\text{m}$ 以上,进一步优选为 $500\mu\text{m}$ 以上,特别优选为 $600\mu\text{m}$ 以上。B层总体的总厚度优选为 $750\mu\text{m}$ 以下,更优选为 $720\mu\text{m}$ 以下,进一步优选为 $700\mu\text{m}$ 以下。B层总体的总厚度为 $300\mu\text{m}$ 以上时,存在层叠体的弯曲强度变大的倾向,B层总体的总厚度为 $750\mu\text{m}$ 以下时,成形性提高,使用辊的卷取变得容易。

[0226] A层的总厚度相对于B层的总厚度的比(A层的总厚度/B层的总厚度)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。A层的总厚度相对于B层的总厚度的比优选为 $1/30$ 以上,更优选为 $1/15$ 以上,进一步优选为 $1/6.5$ 以上,特别优选为 $1/5$ 以上。上述比率小于 $1/30$ 时,存在层叠体的隔音效果变小的倾向。另一方面,上述比率大于 $1/1$ 时,存在层叠体的弯曲刚度变小、高频区域中的隔音性降低、容易引起隔音性能的经时变化而使隔音性能的稳定性的降低、层叠体的剪切储能模量降低而使层叠体的弯曲强度降低的倾向。

[0227] 例如,A层中所含的热塑性弹性体仅为1种时(或者,即便A层中包含2种以上热塑性弹性体时,也使用 $\tan\delta$ 的峰温度之差低于 5°C 的热塑性弹性体的情况下),热塑性弹性体层的 $\tan\delta$ 的峰温度为 -20°C 以下时,热塑性弹性体层的膜厚优选为 $20\mu\text{m}$ 以上,更优选为 $30\mu\text{m}$ 以上,此外,优选为 $120\mu\text{m}$ 以下,更优选为 $100\mu\text{m}$ 以下。含有热塑性弹性体的A层的 $\tan\delta$ 的峰温度超过 -20°C 且 -15°C 以下时,含有热塑性弹性体的A层的膜厚优选为 $50\mu\text{m}$ 以上,更优选为 $70\mu\text{m}$ 以上,此外,优选为 $200\mu\text{m}$ 以下,更优选为 $160\mu\text{m}$ 以下。含有热塑性弹性体的A层的 $\tan\delta$ 的峰温度超过 -15°C 时,含有热塑性弹性体的A层的膜厚优选为 $80\mu\text{m}$ 以上,更优选为 $100\mu\text{m}$ 以上,此外,优选为 $300\mu\text{m}$ 以下,更优选为 $260\mu\text{m}$ 以下。含有热塑性弹性体的A层的膜厚处于优选范围之外时,存在在室温下的隔音性降低、所得到的夹层玻璃的弯曲强度降低的倾向。

[0228] B层的膜厚优选为 $50\mu\text{m}$ 以上,更优选为 $100\mu\text{m}$ 以上。B层的膜厚优选为 $1000\mu\text{m}$ 以下,更优选为 $500\mu\text{m}$ 以下。B层的膜厚低于 $50\mu\text{m}$ 时,存在层叠体的弯曲强度变小、在高频区域中的隔音性降低的倾向。

[0229] 对于本实施方式中的层叠体,如图1所示,成为A层1被B层2a以及B层2b所夹持的层叠结构。层叠体中的层叠结构根据目的而决定,除了B层/A层/B层的层叠结构之外,也可以为B层/A层/B层/A层, B层/A层/B层/A层/B层的层叠结构。为A层/B层的二层结构时,存在夹层玻璃用中间膜的隔音性或弯曲强度降低的倾向。

[0230] 此外,也可以包含1层以上的除A层、B层以外的层(设为C层),例如,也可以为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层等层叠结构。此外,在上述层叠结构中,C层中的成分可以相同也可以不同。这即便对于A层或B层中的成分也是同样的。

[0231] 需要说明的是,作为C层,可以使用包含公知的树脂的层,例如,可以使用聚乙烯、聚丙烯、聚氯乙烯、聚苯乙烯、聚醋酸乙烯酯、聚氨酯、聚四氟乙烯、丙烯酸(酯)类树脂、聚酰胺、聚缩醛、聚碳酸酯、聚酯之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。此外,C层中可以根据需要添加增塑剂、抗氧化剂、紫外线吸收剂、光稳定剂、防粘连剂、颜料、染料、隔热

材料(例如,具有红外线吸收功能的、无机隔热性微粒或有机隔热性材料)等添加剂。

[0232] 本发明的层叠体中作为隔热材料例如含有隔热性微粒或者隔热性化合物,从而对层叠体赋予隔热功能,制成夹层玻璃时,可以将波长1500nm下的透射率设为50%以下。隔热性微粒可以包含在A层、B层、根据需要含有的C层的任一者中。可以仅包含在任一层中,也可以包含在多层中。含有隔热性微粒的情况下,从抑制光学不均的观点出发,优选在至少一个A层中含有。作为隔热性微粒,可以列举出锡掺杂氧化铟(ITO)等金属掺杂氧化铟、铟掺杂氧化锡(ATO)等金属掺杂氧化锡、铝掺杂氧化锌(AZO)等金属掺杂氧化锌、由通式 M_mWO_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)表示的金属元素复合氧化钨、铈酸锌($ZnSb_2O_5$)、六硼化钨等。其中,优选ITO、ATO、金属元素复合氧化钨,更优选金属元素复合氧化钨。作为前述金属元素复合氧化钨中的由M表示的金属元素,例如,可以列举出Cs、Tl、Rb、Na、K等,特别优选Cs。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,此外,优选为0.5以下,更优选为0.4以下。

[0233] 隔热性微粒的含量相对于构成层叠体的层中使用的树脂总体优选为0.01质量%以上,更优选为0.05质量%以上,进一步优选为0.1质量%以上,特别优选为0.2质量%以上。此外,优选为5质量%以下,更优选为3质量%以下。隔热性微粒的含量多于5质量%时,会对可见光线的透射率表现出影响。从层叠体的透明性的观点出发,隔热性微粒的平均粒径优选为100nm以下,更优选为50nm以下。需要说明的是,其中,所谓隔热性微粒的平均粒径是指用激光衍射装置所测定的粒径。

[0234] 作为隔热性化合物,可以列举出酞菁化合物、萘酞菁化合物等。前述隔热性化合物从进一步提高隔热性的观点出发,优选含有金属。作为前述金属,例如,可以列举出Na、K、Li、Cu、Zn、Fe、Co、Ni、Ru、Rh、Pd、Pt、Mn、Sn、V、Ca、Al等,特别优选Ni。

[0235] 隔热性化合物的含量相对于构成层叠体的层中使用的树脂总体优选为0.001质量%以上,更优选为0.005质量%以上,进一步优选为0.01质量%以上。此外,优选为1质量%以下,更优选为0.5质量%以下。隔热性化合物的含量多于1质量%时,会对可见光线的透射率表现出影响。

[0236] 此外,本发明的层叠体优选在表面用熔裂、压花等以往公知的方法形成凹凸结构。熔裂、压花的形状没有特别限定,可以采用以往公知的形状。

[0237] 此外,层叠体的膜厚的总计优选为20 μ m以上,更优选为100 μ m以上。此外,层叠体的膜厚的总计优选为10000 μ m以下,更优选为3000 μ m以下。层叠体的膜厚过薄时,制作夹层玻璃时,有时不能很好地层压,层叠体的膜厚过厚时,带来成本上升,因此不优选。

[0238] [夹层玻璃]

[0239] 在夹层玻璃内部具有本发明的层叠体的构成,从而可以得到弯曲强度优异的夹层玻璃,隔音性、特别是高频区域中的隔音性优异的夹层玻璃,隔音性以及隔音性能的稳定性优异的夹层玻璃,以及在广泛温度范围下隔音性优异的夹层玻璃。

[0240] 因此,本发明的夹层玻璃可以适宜地用作汽车用挡风玻璃、汽车用侧窗玻璃、汽车用天窗、汽车用后玻璃、或者平视显示器用玻璃、建筑用的窗户、墙、屋顶、日光室、隔音墙、橱窗、阳台、扶手墙等的部件,或适宜地用于会议室等间隔玻璃部件等。在内部具有本发明的层叠体的构成的夹层玻璃应用于平视显示器用玻璃的情况下,所使用的该层叠体的截面形状优选一个端面侧厚,另一个端面侧薄的形状。此时,截面形状也可以为从一个端面侧向

另一个端面侧逐渐变薄那样的、总体为楔形的形状,也可以为从一个端面至该端面与另一端面之间的任意位置为同一厚度、且从该任意的位置至另一端面逐渐变薄那样的、截面的一部分为楔形的形状。

[0241] 本发明的夹层玻璃中通常使用2片玻璃。构成本发明的夹层玻璃的玻璃厚度没有特别限定,优选为100mm以下。此外,本发明的层叠体由于弯曲强度优异,因此即便使用厚度2.8mm以下的薄板玻璃制作夹层玻璃,也可以实现夹层玻璃的轻量化而不损害夹层玻璃的强度。玻璃的厚度从轻量化的观点出发,至少一片优选为2.8mm以下,更优选为2.5mm以下,进一步优选为2.0mm以下,特别优选为1.8mm以下。特别是,通过将一个玻璃的厚度设为1.8mm以上,另一个玻璃的厚度设为1.8mm以下,将各玻璃的厚度之差设为0.2mm以上,从而可以制作实现薄膜化和轻量化的夹层玻璃而不损害弯曲强度。上述各玻璃的厚度之差优选为0.5mm以上。

[0242] (隔音性)

[0243] 夹层玻璃的隔音性可以由通过基于中央激振法的阻尼试验而得到的损耗系数来评价。阻尼试验是评价损耗系数根据频率、温度而变为何值的试验。将设频率为一定时在某种温度范围内成为最大的损耗系数称为最大损耗系数。基于中央激振法的阻尼测定中,得到相对于在一定温度下的频率的损耗系数的值。为了得到最大损耗系数,实施温度为0、10、20、30、40、50℃下振动的测定,可以从所得到的值得到损耗系数相对于在频率一定下的温度的线形。最大损耗系数为表示阻尼的好坏的指标,具体而言,为表示板状的物体中发生的弯曲振动以何种程度的速度衰减的指标。即,最大损耗系数成为隔音性的指标,夹层玻璃的最大损耗系数越高,夹层玻璃的隔音性越高。

[0244] 在本实施方式中,将层叠体用作夹层玻璃用中间膜来制作夹层玻璃,对于所得到的夹层玻璃进行基于中央激振法的阻尼试验的情况下,频率2000Hz且温度0~50℃下的最大损耗系数优选为0.20以上,更优选为0.25以上,进一步优选为0.28以上。上述条件下的最大损耗系数低于0.20时,夹层玻璃的隔音性缺乏,不适于以隔音为目的的用途。在上述条件下所测定的最大损耗系数为0.20以上的夹层玻璃可以如下得到:将包含含有在-40~30℃的范围具有 $\tan\delta$ 成为最大的峰的弹性体的组合物的A层、和由进行复合剪切粘度试验而测定的温度25℃下的剪切储能模量为10.0MPa以上的多个B层,至少在2个B层之间层叠A层,从而得到。

[0245] (高频区域中的隔音性)

[0246] 在此,从制作可以抑制由吻合现象导致的高频区域中的隔音性能降低的夹层玻璃的观点出发,对于本发明的层叠体,在用2片纵300mm、横25mm、厚度1.9mm的浮法玻璃夹持该层叠体而制作夹层玻璃时,在20℃下利用中央激振法所测定的4阶共振频率下的损耗系数优选为0.2以上,更优选为0.4以上,进一步优选为0.6以上。4阶共振频率下的损耗系数低于0.2时,存在隔音性变得不充分的倾向。为了将4阶共振频率下的损耗系数设为0.2以上,例如,可以用使用硬链段相对于构成A层的热塑性弹性体的含量为规定的比例以上(例如,14质量%以上)的物质,将A层的总厚度相对于成为层叠体的保护层的B层的总厚度的比设为规定的比例以上(例如,1/6.5以上)的方法等而达成。

[0247] 4阶共振频率下的损耗系数例如可以用以下的方法测定。在2片市售的浮法玻璃(纵300mm×横25mm×厚度1.9mm)中夹持层叠体,通过真空袋法(条件:从30℃经过60分钟升

温至160℃,之后在160℃下保持30分钟)制作夹层玻璃。之后,将夹层玻璃的中央部固定在被内置于机械阻抗装置中的励振器的阻抗头中的励振力检测器的前端部,在20℃下、在频率0~10000Hz的范围对夹层玻璃的中央部施加振动,检测该点的励振力和加速度波形,从而进行基于中央激振法的夹层玻璃的阻尼试验。以将所得到的励振力和加速度信号积分而得到的速度信号为基础,求出起振点(施加振动的夹层玻璃的中央部)的机械阻抗,在将横轴设为频率、纵轴设为机械阻抗而得到的阻抗曲线中,从表示4阶模态的峰的频率和半值宽度,可以求出夹层玻璃的4阶共振频率下的损耗系数。

[0248] 此外,从制作可以抑制由吻合现象导致的高频区域中的隔音性能的降低的夹层玻璃的观点出发,对于本发明的层叠体,在用2片纵300mm、横25mm、厚度1.9mm的浮法玻璃夹持该层叠体而制作夹层玻璃时,基于ISO16940(2008)而算出的该4阶共振频率下的弯曲刚度优选为150N·m以上,更优选为200N·m以上。4阶共振频率下的弯曲刚度低于150N·m时,存在容易发生吻合现象、高频区域中的隔音性降低的倾向。为了将4阶共振频率下的弯曲刚度设为150N·m以上,例如,可以使用硬链段相对于构成A层的热塑性弹性体的含量为规定的比例以上(例如,14质量%以上)的物质,将A层的总厚度相对于作为层叠体的保护的B层的总厚度的比设为规定的比例以下(例如,1/1以下)的方法等而达成。

[0249] 此外,使用4阶共振频率下的损耗系数以及弯曲刚度,基于ISO16940(2008)而算出的、6300Hz下的传声损失(Transmission loss)优选为43dB以上,更优选为45dB以上。8000Hz下的传声损失优选为50dB以上,更优选为53dB以上。10000Hz下的传声损失优选为56dB以上,更优选为60dB以上。

[0250] (隔音性能的稳定性)

[0251] 在此,从制作夹层玻璃制作后的隔音性的经时变化少、隔音性能的稳定性优异的夹层玻璃的观点出发,本发明的层叠体优选为如下的层叠体:其为A层位于至少2个B层之间的层叠体,并且对于用厚度2mm的玻璃夹持该层叠体、在温度140℃、压力1MPa的条件下保持60分钟从而压接来制作的夹层玻璃,通过利用中央激振法的阻尼试验而测定的20℃、2000Hz下的损耗系数 α 为0.2以上,对于将该夹层玻璃在18℃下保持1个月之后的夹层玻璃,通过利用中央激振法的阻尼试验而测定的20℃、2000Hz下的损耗系数 β 相对于损耗系数 α 的比率 β/α 为0.70以上;或者,其为A层位于至少2个B层之间的层叠体,并且对于将包含该层叠体的夹层玻璃在18℃下、保持1个月之后的夹层玻璃,通过利用中央激振法的阻尼试验而测定的20℃、2000Hz下的损耗系数 β 为0.2以上,对于将在18℃下保持1个月之后的夹层玻璃在100℃下加热24小时之后的夹层玻璃,通过利用中央激振法的阻尼试验而测定的20℃、2000Hz下的损耗系数 γ 相对于损耗系数 β 的比率 γ/β 为0.80以上且低于1.30以下。

[0252] 作为可以得到满足对于后述的夹层玻璃的通过利用中央激振法的阻尼试验所测定的损耗系数 α 、 β 、 γ 中涉及的规定条件的层叠体的方法,例如,可以列举出将层叠体设为以下结构的方法。

[0253] 作为第1结构,为如下的构成:A层为包含具有至少一个芳香族乙烯基聚合物嵌段以及至少一个脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的嵌段共聚物或者该共聚物的氯化物的层,B层为含有离聚物树脂或者聚乙烯醇缩醛树脂,并且不含增塑剂、或者含有增塑剂的层,含有增塑剂的情况下,该增塑剂的含量相对于100质量份树脂为超过0且为30质量份以下(优选为25质量份以下,更优选为20质量份以下,进一步优选为15质量份以下,特别优选为10质量份

以下),A层的总厚度相对于B层的总厚度的比((A层的总厚度)/(B层的总厚度))为 $1/30 \sim 1/3$ 的范围。

[0254] 此外,作为第2结构,为如下的构成:为A层位于至少2个B层之间的层叠体,A层为含有具有至少一个芳香族乙烯基聚合物嵌段以及至少一个脂肪族不饱和烃聚合物嵌段的嵌段共聚物或者该共聚物的氢化物的层,B层为含有离聚物树脂或聚乙烯醇缩醛树脂,并且不含增塑剂、或者含有增塑剂的层,该增塑剂的含量相对于100质量份树脂为超过0且为25质量份以下(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,特别优选为3质量份以下)。此时,A层的总厚度相对于B层的总厚度的比优选为 $1/30 \sim 1/1$ 的范围。此外,作为前述嵌段共聚物,优选使用A层的项目中说明的嵌段共聚物。

[0255] 需要说明的是,采用这些结构时,离聚物树脂、聚乙烯醇缩醛树脂优选使用在B层的项目中说明的离聚物树脂、聚乙烯醇缩醛树脂。这些结构始终只不过是例示出本发明的层叠体的构成的例子,本发明的层叠体并不限于这些结构。此外,这些结构中所使用的B层中可以含有的增塑剂优选的是,在所述的增塑剂的项目中列举的、为熔点 30°C 以下或非晶性且羟值 $15 \sim 450\text{mgKOH/g}$ 以下的酯系增塑剂或醚系增塑剂。

[0256] 由本发明的层叠体而得到的夹层玻璃优选的是,对于用2片厚度2mm的玻璃夹持该层叠体,在温度 140°C 、压力1MPa、60分钟的条件下进行压接而制作夹层玻璃,制作后(例如,刚制作之后)的该夹层玻璃的通过利用中央激振法的阻尼试验而测定的 20°C 、2000Hz下的损耗系数 α 为0.2以上,优选为0.25以上,更优选为0.30以上。上述条件下的损耗系数 α 为0.20以上时,夹层玻璃的隔音性变得足够高。需要说明的是,刚制作夹层玻璃之后是指,制作夹层玻璃,从完成冷却至常温起的2时间以内。

[0257] 此外,对于将制作的夹层玻璃在 18°C 下保持1个月之后的夹层玻璃,通过利用中央激振法的阻尼试验而测定的 20°C 、2000Hz下的损耗系数 β 相对于损耗系数 α 的比率 β/α 优选为0.70以上,更优选为0.80以上,进一步优选为0.87以上。此外, β/α 优选为1.20以下,更优选为1.10以下。 β/α 为0.70以上时,隔音性能的稳定性提高。另一方面, β/α 为1.20以下时,可以缩短保持时间。

[0258] 此外,对于将在 18°C 下保持1个月之后的夹层玻璃在 100°C 下进行24小时加热之后的夹层玻璃,通过利用中央激振法的阻尼试验而测定的 20°C 、2000Hz下的损耗系数 γ 相对于损耗系数 β 的比率 γ/β 优选为0.80以上,更优选为0.87以上,进一步优选为0.90以上。此外, γ/β 为1.30以下,优选为1.20以下,更优选为1.10%以下。 γ/β 为0.80以上时、或者为1.30以下时,可以使隔音性能的稳定性提高、缩短保持时间。

[0259] (在广泛温度范围内的隔音性)

[0260] 在此,从得到在广泛温度范围内隔音性优异的夹层玻璃的观点出发,基于中央激振法所测定的3阶模态下的最大损耗系数优选为0.2以上,更优选为0.23以上,进一步优选为0.25以上。3阶模态下的损耗系数低于0.2时,存在隔音性变得不充分的倾向。为了使3阶模态下的损耗系数为0.2以上,例如可以如下达成:作为成为隔音层的内层(A层),使用基于JIS K 7244-10、在频率1Hz的条件下进行复合剪切粘度试验而测定的 $\tan\delta$ 在 -40°C 以上且 30°C 以下的范围具有最大的峰(有时简称为“ $\tan\delta$ 的峰温度”)的层、作为构成A层的热塑性弹性体使用硬链段的含量为规定的比例以下(例如,50质量%以下)的层;将成为隔音层的内层(A层)的厚度设为 $20\mu\text{m}$ 以上的方法等。此外, 20°C 下的损耗系数优选为0.2以上,更优选为

0.25以上。20℃下的损耗系数低于0.2时,存在室温下的隔音性变得不充分的倾向。为了将20℃下的损耗系数设为0.2以上,例如,可以列举出将A层的 $\tan\delta$ 峰温度与A层的厚度的平衡设为适当范围的方法。

[0261] 3阶模态下的损耗系数例如可以通过以下的方法来测定。在2片市售的浮法玻璃(宽度50mm×长度300mm×厚度3mm)中夹持层叠体,通过真空袋法(条件:从30℃经过60分钟升温至160℃,之后在160℃下保持30分钟)制作夹层玻璃。之后,将夹层玻璃的中央部固定在被内置于机械阻抗装置中的励振器的阻抗头中的励振力检测器的前端部,在频率0~8000Hz的范围对夹层玻璃的中央部施加振动,检测该点的励振力和加速度波形,从而进行基于中央激振法的夹层玻璃的阻尼试验。以将所得到的励振力和加速度信号积分而得到的速度信号为基础,求出起振点(施加振动的夹层玻璃的中央部)的机械阻抗,从表示3阶模态的峰的频率和半值宽度,可以求出夹层玻璃的损耗系数。

[0262] 可以根据由上述的方法求出的损耗系数,求出损耗系数为0.2以上的温度范围的宽度。损耗系数为0.2以上的温度范围的宽度优选为15℃以上,更优选为20℃以上,进一步优选为23℃以上,特别优选为25℃以上。损耗系数为0.2以上的温度范围的宽度低于15℃时,不能在广泛温度范围内表现出隔音性,在低温区域和/或高温区域存在夹层玻璃的隔音性降低的倾向。

[0263] 作为用于增加损耗系数为0.2以上的温度范围的宽度的方法,可以列举出根据热塑性弹性体的种类,将内层(A层)的厚度最适化的方法,作为内层(A层)使用 $\tan\delta$ 的峰温度不同的2种以上的热塑性弹性体的混合物的方法,或,将内层(A层)设为2层以上,将具有与至少1个层中使用的热塑性弹性体的 $\tan\delta$ 的峰温度不同的 $\tan\delta$ 的峰温度的热塑性弹性体用于与该层不同的层的方法,进而,作为 $\tan\delta$ 的峰温度不同的2种以上热塑性弹性体,使用 $\tan\delta$ 的峰温度之差大的物质的方法等。通常混合使用2种弹性体的情况下,相容时 $\tan\delta$ 表现出一个峰,观察到2个峰的情况下,任一者的 $\tan\delta$ 的峰温度若包含在本发明规定的范围内即可。

[0264] (隔热性)

[0265] 本发明的夹层玻璃包含隔热材料的情况下,波长1500nm下的透射率优选为50%以下,更优选为20%以下。波长1500nm下的透射率为50%以下时,存在红外光线的遮蔽率变高,夹层玻璃的隔热性能提高的倾向。

[0266] (雾度)

[0267] 对于本发明的夹层玻璃,使厚度0.75mm的层叠体层叠在厚度2mm的2片浮法玻璃之间时的雾度优选低于5,更优选低于3,进一步优选低于2,特别优选低于1,最优选低于0.5。雾度为5以上时,存在夹层玻璃的透明性降低的倾向。夹层玻璃的雾度例如可以基于JIS K 7136而测定。

[0268] (断裂强度)

[0269] 将本发明的层叠体夹持在2片纵26mm×横76mm×厚度2.8mm的浮法玻璃之间而得到的夹层玻璃的3点弯曲试验中的断裂强度(温度:20℃,支点间距离:55mm,试验速度:0.25mm/分钟)优选为0.3kN以上,更优选为0.5kN以上,进一步优选为0.6kN以上。根据前述条件而测定的断裂强度低于0.3kN时,存在夹层玻璃的强度降低的倾向。

[0270] (夹层玻璃的制造方法)

[0271] 本发明的夹层玻璃可以由迄今公知的方法制造,例如,可以列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、使用夹辊的方法等。此外,也可以在预压接后附加地进行投入到高压釜工序的方法。

[0272] 使用真空层压机装置的情况下、例如使用太阳能电池的制造中所使用的公知的装置,在 1×10^{-6} MPa以上且 3×10^{-2} MPa以下的减压下,在100℃以上且200℃以下,特别是130℃以上且170℃以下的温度下层压。使用真空袋或真空环的方法例如记载在欧洲专利第1235683号说明书中,例如约 2×10^{-2} MPa的压力下、在130℃以上且145℃以下层压。

[0273] 对于夹层玻璃的制作方法,使用夹辊时,例如,可以列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次的预压接之后,进一步在接近流动开始温度的条件下进行预压接的方法。具体而言,例如,可以列举出用红外线加热器等加热到30℃以上且100℃以下之后,用辊进行脱气,进而,在加热到50℃以上且150℃以下之后用辊进行压接而粘接或者使其预粘接的方法。

[0274] 此外,为了在夹层玻璃内部具有本发明的层叠体的构成,可以将涂布有B层的玻璃对至A层的两面并层叠,制成夹层玻璃。

[0275] 对于在预压接后附加地进行的高压釜工序,根据模块的厚度、结构,例如,在1MPa以上且15MPa以下的压力下,在120℃以上且160℃以下的温度下实施0.5小时以上且2小时以下。

[0276] 在制作夹层玻璃时使用的玻璃没有特别限定,可以使用浮法平板玻璃、磨光平板玻璃、花纹玻璃、夹网玻璃、热射线吸收平板玻璃等无机玻璃,以及聚甲基丙烯酸甲酯、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、非透明的任一者。它们可以单独使用也可以并用2种以上。

[0277] 实施例

[0278] 以下,利用实施例以及比较例具体地说明本发明,但本发明并不限于这些实施例。

[0279] 需要说明的是,在以下的实施例以及比较例中,作为所使用的聚乙烯醇缩丁醛树脂(PVB),使用的是:将与作为目标的粘均聚合度具有相同粘均聚合度(基于JIS K 6726“聚乙烯醇试验方法”而测定的粘均聚合度)的聚乙烯醇在盐酸催化剂下用正丁醛进行缩醛化而成的聚乙烯醇缩丁醛树脂。

[0280] 对于在下述的实施例1~14或比较例1~7中得到的A层、B层、层叠体或夹层玻璃进行下述的物性评价(1~5)。

[0281] 1. 物性评价(层叠体的剪切储能模量,B层的剪切储能模量,A层中的弹性体的 $\tan\delta$ 的峰高度以及峰温度)

[0282] 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的应变控制型动态粘弹性装置(Leomix Corporation制、ARES)。将下述的实施例・比较例中得到的层叠体(厚度0.76mm)以及A层的单层片(厚度0.76mm)以及B层的单层片(厚度0.76mm)分别作为圆板形状的试验片使用。需要说明的是,上述试验片使用在温度20℃、湿度60%RH下保管24小时以上的试验片。用上述试验片将2片的平板间的间隙完全填充。以应变量1.0%、在1Hz的频率下对上述试验片施加振动,将测定温度以1℃/分钟的恒定速度升温至-40~100℃为止。保持上述试验片和圆板的温度,直至剪切损耗弹性模量以及剪切储能模量的测定值不发生变化为止。在表1、表2以及表3中示出测定的层叠体的剪切储能模量、B层的剪切储

能模量、A层中的弹性体的 $\tan\delta$ 的峰高度以及峰温度的结果。

[0283] 2.物性评价(层叠体的层压适应性)

[0284] 在2片市售的浮法玻璃(纵1100mm×横1300mm×厚度3.2mm)中夹持实施例·比较例中得到的各层叠体,使用真空层压机(Nisshinbo Mechatronics Co.,Ltd.制1522N),在以下的条件下制作夹层玻璃。基于以下的基准判定使用的层叠体的层压适应性。在表1、表2以及表3中示出层压适应性的评价结果。

[0285] <条件>热板温度:165℃抽真空时间:12分钟压制压力:50kPa压制时间:17分钟

[0286] <判断基准>

[0287] A:没有气泡等外观上的缺点,密合良好

[0288] B:稍微可见气泡等外观上的缺点,但密合性上没有问题

[0289] C:观察到气泡等外观上的缺点,但密合性上没有问题

[0290] D:观察到气泡等外观上的缺点,密合不良

[0291] E:在夹层玻璃整体观察到气泡等外观上的缺点,密合不良

[0292] 3.物性评价(夹层玻璃的最大损耗系数)

[0293] 在2片市售的浮法玻璃(纵50mm×横300mm×厚度2.8mm)中夹持实施例·比较例中得到的各层叠体,根据真空袋法(条件:从30℃经过60分钟升温至160℃,之后在160℃下保持30分钟)制作夹层玻璃。之后,将上述夹层玻璃的中央部固定在被内置于机械阻抗装置(Ono Sokki Co.,Ltd.制;Mass cancel amplifierMA-5500;Channel data station:DS-2100)中的励振器(poweramplifier/model371-A)的阻抗头中的励振力检测器的前端部。在频率0~8000Hz的范围对上述夹层玻璃的中央部施加振动,检测该点的励振力和加速度波形,从而进行基于中央激振法的夹层玻璃的阻尼试验。以将所得到的励振力和加速度信号积分而得到的速度信号为基础,求出起振点(施加振动的夹层玻璃的中央部)的机械阻抗,在将横轴设为频率、纵轴设为机械阻抗而得到的阻抗曲线中,根据示出峰的频率和半值宽度,求出夹层玻璃的损耗系数。在基于中央激振法的阻尼测定中,得到损耗系数相对于在一定温度下的频率的值。为了得到最大损耗系数,实施温度为0、10、20、30、40、50℃下振动的测定,从所得到的值得到损耗系数相对于在频率一定下的温度的线形。在表1、表2以及表3中示出最大损耗系数的测定结果。

[0294] 4.物性评价(夹层玻璃的断裂强度)

[0295] 在2片市售的浮法玻璃(纵26mm×横76mm×厚度2.8mm)中夹持实施例·比较例中得到的各层叠体,根据真空袋法(条件:从30℃经过60分钟升温至160℃,之后在160℃下保持30分钟)制作夹层玻璃。之后,使用Autograph AG-5000B实施夹层玻璃的3点弯曲试验,测定在温度20℃、薄膜支点间距离55mm下的夹层玻璃的断裂强度。需要说明的是,试验速度在0.25mm/分钟下进行。在表1、表2以及表3中示出断裂强度的测定结果。

[0296] 5.物性评价(夹层玻璃的隔热性能评价)

[0297] 在2片市售的浮法玻璃(纵26mm×横76mm×厚度2.8mm)中夹持实施例·比较例中得到的各层叠体,根据真空袋法(条件:从30℃经过60分钟升温至160℃,之后在160℃下保持30分钟)制作夹层玻璃。之后,使用分光光度计U-4100(Hitachi High-Tech Science Co.,Ltd.制),测定紫外可见近红外区域的波长透射率。需要说明的是,测定温度在20℃下进行。在表1、表2以及表3中示出波长1500nm下的透射率的测定结果。

[0298] (实施例1)

[0299] A层中使用设定为苯乙烯单元12质量%、异戊二烯单元88质量%的、 $\tan\delta$ 的峰高度成为最大的峰的温度为 -22.6°C (在1Hz的频率下施加振动,将测定温度以 $1^{\circ}\text{C}/\text{分钟}$ 的恒定速度升温至 $-40\sim 100^{\circ}\text{C}$ 为止时的值)的直链状氢化苯乙烯·异戊二烯·苯乙烯三嵌段共聚物(完全氢化品);B层中使用粘均聚合度约1000、缩醛化度70摩尔%、醋酸乙烯酯单元的量为0.9摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛。将这些树脂分别利用挤出成形法成形为厚度 $300\mu\text{m}$ 的B层、厚度 $160\mu\text{m}$ 的A层。在2层B层之间夹持A层,在 150°C 下进行压制成形,制作3层结构的复合膜的厚度 0.76mm 的层叠体。在表1中示出上述物性评价的结果。此外,在图2中示出所得到的层叠体的剪切储能模量10以及 $\tan\delta$ 11的温度推移。需要说明的是,左侧的纵轴的刻度表示层叠体的剪切储能模量,右侧的纵轴的刻度表示损耗角正切($\tan\delta$)。

[0300] (实施例2~5)

[0301] B层中,使用相对于粘均聚合度约1000、缩醛化度70摩尔%、醋酸乙烯酯单元的量为0.9摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛树脂100质量份,作为增塑剂为表1中示出的量的3G0(三乙二醇-二(2-乙基己酸酯)),除此以外使用与实施例1同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表1中示出物性评价的结果。

[0302] (实施例6)

[0303] 将A层的膜厚设为 $50\mu\text{m}$,将B层的膜厚设为 $355\mu\text{m}$,除此以外使用与实施例1同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表1中示出物性评价的结果。

[0304] (实施例7)

[0305] 将A层的膜厚设为 $300\mu\text{m}$,将B层的膜厚设为 $230\mu\text{m}$,除此以外使用与实施例1同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表1中示出物性评价的结果。

[0306] (实施例8)

[0307] 作为A层,使用将苯乙烯单元设为20质量%、将异戊二烯单元设为80质量%的 $\tan\delta$ 的峰高度成为最大的峰的温度为 -5.2°C (在1Hz的频率下施加振动,将测定温度以 $1^{\circ}\text{C}/\text{分钟}$ 的恒定速度升温至 $-40\sim 100^{\circ}\text{C}$ 为止时的值)的直链状氢化苯乙烯·异戊二烯·苯乙烯三嵌段共聚物作为弹性体,除此以外使用与实施例1同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表1中示出物性评价的结果。

[0308] (实施例9)

[0309] B层中使用粘均聚合度600、缩醛化度70摩尔%、醋酸乙烯酯单元的量为0.9摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛树脂代替粘均聚合度约1000的聚乙烯醇缩丁醛树脂,除此以外使用与实施例1同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表1中示出物性评价的结果。

[0310] (实施例10)

[0311] B层中使用粘均聚合度约1700、缩醛化度70摩尔%、醋酸乙烯酯单元的量为0.9摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛树脂代替粘均聚合度约1000的聚乙烯醇缩丁醛树脂,除此以外使用与实施例1同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表1中示出物性评价的结果。

[0312] (实施例11)

[0313] B层中使用离聚物薄膜(杜邦公司制,SentryGlas(R) Interlayer;厚度 $300\mu\text{m}$),除此以外使用与实施例1同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表1中示出物性评价的结果。

[0314] (实施例12)

[0315] 在A层中以相对于A层中的直链状氢化苯乙烯·异戊二烯·苯乙烯三嵌段共聚物(完全氢化品)为1.2重量%的方式添加含铈复合氧化钨,除此以外使用与实施例1同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表1中示出物性评价的结果。需要说明的是,含铈复合氧化钨使用住友金属矿山株式会社制的YMDS-874。

[0316] (实施例13)

[0317] 使用2片市售的浮法玻璃(纵26mm×横76mm×厚度1.6mm)代替2片厚度2.8mm的市售浮法玻璃,除此以外使用与实施例1同样的方法,制作夹层玻璃,进行物性评价。在表3中示出物性评价的结果。

[0318] (实施例14)

[0319] 使用1片市售的浮法玻璃(纵26mm×横76mm×厚度2.1mm)和1片市售的浮法玻璃(纵26mm×横76mm×厚度1.3mm)代替2片厚度2.8mm的市售的浮法玻璃,除此以外使用与实施例1同样的方法,制作夹层玻璃,进行物性评价。在表3中示出物性评价的结果。

[0320] (比较例1)

[0321] 相对于100质量份B层的聚乙烯醇缩醛树脂添加30质量份的3G0,除此以外使用与实施例1同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表2中示出物性评价的结果。

[0322] (比较例2)

[0323] A层中使用聚氨酯树脂(Kuraray Co.,Ltd.制/Kramilon U1780)代替直链状氢化苯乙烯·异戊二烯·苯乙烯三嵌段共聚物,除此以外使用与实施例1同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表2中示出物性评价的结果。

[0324] (比较例3)

[0325] A层中使用苯乙烯系弹性体(Kuraray Co.,Ltd.制/Septon 8007)代替直链状氢化苯乙烯·异戊二烯·苯乙烯三嵌段共聚物,除此以外使用与实施例1同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表2中示出物性评价的结果。

[0326] (比较例4)

[0327] 将A层的膜厚制成500 μm ,将B层的膜厚制成130 μm ,除此以外使用与实施例1同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表2中示出物性评价的结果。

[0328] (比较例5)

[0329] 代替直链状氢化苯乙烯·异戊二烯嵌段共聚物,作为A层,使用包含相对于粘均聚合度1700、缩醛化度75摩尔%、醋酸乙烯酯单元的含量为0.9摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛100质量份含有60质量份的3G0的组合物的层,代替粘均聚合度约1000的聚乙烯醇缩丁醛树脂,作为B层,使用相对于粘均聚合度1700的聚乙烯醇缩丁醛100质量份为37.9质量份的3G0,除此以外使用与实施例1同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表2中示出物性评价的结果。

[0330] (比较例6)

[0331] 将A层的膜厚设为600 μm ,将B层的膜厚设为160 μm ,使A和B重合,制成一对2层膜,除此以外使用与实施例1同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表2中示出物性评价的结果。

[0332] (比较例7)

[0333] 用2片市售的浮法玻璃(纵26mm×横76mm×厚度2.1mm)代替厚度2.8mm的市售的浮法玻璃,除此以外使用与比较例5同样的方法,制作夹层玻璃,进行物性评价。在表3中示出物性评价的结果。

[0334] [表1]

[0335]

	实施例1	实施例2	实施例3	实施例4	实施例5	实施例6	实施例7	实施例8	实施例9	实施例10	实施例11	实施例12
粘均聚合度	1000	1000	1000	1000	1000	1000	1000	1000	600	1700	-	1000
凝胶化度(摩尔%)	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	-	70
增塑剂含量 (质量份) %	0	2	5	10	20	0	0	0	0	0	0	0
剪切储能模量 [25℃](MPa)	97.9	86.8	84.9	70.1	57.2	97.9	97.9	97.9	77.3	127.4	43.2	97.9
苯乙烯含量 (质量%) %	12	12	12	12	12	12	12	20	12	12	12	12
tan δ 峰温度(℃)	-22.6	-22.6	-22.6	-22.6	-22.6	-22.6	-22.6	-5.2	-22.6	-22.6	-22.6	-22.6
tan δ 峰高度	1.92	1.92	1.92	1.92	1.92	1.92	1.92	1.89	1.92	1.92	1.92	1.92
剪切储能模量 [25℃](MPa)	478	453	417	357	236	578	345	355	359	61	15.8	478
剪切储能模量 [50℃](MPa)	284	284	24	198	115	382	201	289	248	321	39	234
最大损耗系数 [2000Hz, 1~50℃]	0.32	0.31	0.31	0.32	0.33	0.32	0.39	0.33	0.33	0.32	0.25	0.32
A层的厚度/B层的厚度 的总计	1/3.75	1/3.75	1/3.75	1/3.75	1/3.75	1/14	1/1.53	1/3.75	1/3.75	1/3.75	1/3.75	1/3.75
断裂强度 [25℃](kN)	0.65	0.64	0.56	0.57	0.34	0.63	0.36	0.57	0.49	0.52	0.75	0.85
耐压适性	A	A	A	B	C	A	A	B	C	C	C	A
透射率(1500nm)	76	76	76	76	76	78	74	71	76	76	79	39

冷 表示相对于100质量份B层中使用的聚乙氧基丁烯的质量份。
※ 表示弹性体中的质量%。

[0336] [表2]

[0337]

	比较例 1	比较例 2	比较例 3	比较例 4	比较例 5	比较例 6
粘均聚合度	1000	1000	1000	1000	1700	1000
缩醛化度 (摩尔%)	70	70	70	70	70	70
增塑剂含量 (质量份)※	30	0	0	0	38	0
剪切储能模量 [25℃] (MPa)	0.70	97.9	97.9	97.9	2.83	97.9
苯乙烯含量 (质量%)※※	12	-	33	12	-	12
tan δ 峰温度 (°C)	-22.6	< -40	< -40	-22.6	-16.1	-22.6
tan δ 峰高度	1.92	未测出	未测出	1.92	0.80	1.92
剪切储能模量 [25℃] (MPa)	0.63	37.3	27.9	1.28	2.19	4.78
剪切储能模量 [50℃] (MPa)	0.21	33.0	22.8	1.13	0.32	2.74
最大损耗系数 [2000Hz, 1-50℃]	0.32	0.18	0.15	0.38	0.34	0.32
A层的厚度/B层 的厚度的总计	1/3.75	1/3.75	1/3.75	1/0.52	1/3.75	1/3.75
断裂强度 [25℃] (kN)	0.23	0.66	0.66	0.29	0.28	0.36
层压适应性	C	B	B	E	A	E
透射率 (1500nm)	76	76	76	74	76	76

※表示相对于100质量份B层中使用的聚乙烯缩丁醛的质量份。
※※表示弹性体中的质量%。

[0338] [表3]

		实施例 13	实施例 14	比较例 7
B 层	粘均聚合度	1000	1000	1700
	缩醛化度 (摩尔%)	70	70	70
	增塑剂含量 (质量份)※	0	0	38
	剪切储能模量 [25°C](MPa)	97.9	97.9	2.83
A 层	苯乙烯含量 (质量%)※※	12	12	—
	tan δ 峰温度 (°C)	-22.6	-22.6	-16.1
	tan δ 峰高度	1.92	1.92	0.80
层叠体	剪切储能模量 [25°C](MPa)	4.78	4.78	2.19
	剪切储能模量 [50°C](MPa)	2.84	2.84	0.32
	最大损失系数 [2000Hz、1-50°C]	0.32	0.32	0.34
	A层的厚度/B层的厚度的 总计	1/3.75	1/3.75	1/3.75
	断裂强度 [25°C](kN)	0.22	0.23	0.19
	层压适应性	A	A	A
	透射率(1500nm)	76	76	76
	玻璃厚度(上/下) (mm)	1.6 / 1.6	2.1 / 1.3	2.1 / 2.1

[0340] ※表示相对于100质量份B层中使用的聚乙烯醇缩丁醛的质量份。

[0341] ※※表示弹性体中的质量%。

[0342] 对于在下述的实施例15~25或比较例8~11中得到的A层、B层、层叠体、或夹层玻璃进行下述的物性评价(6~11)。

[0343] 6. 物性评价(B层的剪切储能模量、A层(构成A层的树脂组合物)的剪切储能模量以及tanδ的峰高度以及峰温度、层叠体的剪切储能模量)

[0344] 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的应变控制型动态粘弹性装置(Leomix Corporation制、ARES)。将在下述的实施例・比较例中得到的层叠体、A层的单层片(厚度0.76mm)以及B层的单层片(厚度0.76mm)分别作为圆板形状的试验片使用。需要说明的是,上述试验片使用在温度20°C、湿度60%RH下保管24小时以上的试验片。用上述试验片将2片的平板间的间隙完全填充。以应变1.0%、在1Hz的频率下对上述试验片施加振动,将测定温度以1°C/分钟的恒定速度升温至-40~100°C为止。保持上述试验片和圆板的温度,直至剪切损耗弹性模量以及剪切储能模量的测定值不发生变化为止。在表4以及表5中示出测定的层叠体、A层以及B层的剪切储能模量、构成A层的树脂组合

物(A层中的弹性体)的 $\tan\delta$ 的峰高度以及峰温度的结果。

[0345] 7.物性评价(夹层玻璃的4阶共振频率,4阶共振频率下的损耗系数以及弯曲刚度、6300Hz、8000Hz、10000Hz下的传声损失)

[0346] 在2片市售的浮法玻璃(纵300mm×横25mm×厚度1.9mm)中夹持实施例·比较例中得到的各层叠体,根据真空袋法(条件:从30℃经过60分钟升温至160℃,之后在160℃下保持30分钟)制作夹层玻璃。之后,将上述夹层玻璃的中央部固定在被内置于机械阻抗装置(Ono Sokki Co.,Ltd.制;Mass cancel amplifierMA-5500;Channel data station:DS-2100)中的励振器(poweramplifier/model371-A)的阻抗头中的励振力检测器的前端部。在20℃下、在频率0~10000Hz的范围对上述夹层玻璃的中央部施加振动,检测该点的励振力和加速度波形,从而进行基于中央激振法的夹层玻璃的阻尼试验。以将所得到的励振力和加速度信号积分而得到的速度信号为基础,求出起振点(施加振动的夹层玻璃的中央部)的机械阻抗,在将横轴设为频率、纵轴设为机械阻抗而得到的阻抗曲线中,根据示出峰的频率和半值宽度,求出夹层玻璃的损耗系数。进而,使用4阶共振频率以及该4阶共振频率下的损耗系数,基于ISO16940(2008)而算出该4阶共振频率下的弯曲刚度。此外,使用4阶共振频率下的损耗系数以及弯曲刚度,基于ISO16940(2008),算出6300Hz、8000Hz、10000Hz下的传声损失。在表4中示出4阶共振频率以及4阶共振频率下的损耗系数的测定结果、4阶共振频率下的弯曲刚度以及6300Hz、8000Hz、10000Hz下的传声损失的计算结果。

[0347] 8.物性评价(夹层玻璃的隔热性能评价)

[0348] 在2片市售的浮法玻璃(纵26mm×横76mm×厚度2.8mm)中夹持实施例·比较例中得到的各层叠体,根据真空袋法(条件:从30℃经过60分钟升温至160℃,之后在160℃下保持30分钟)制作夹层玻璃。之后,使用分光光度计U-4100(Hitachi High-Tech Science Co.,Ltd.制),测定紫外可见近红外区域的波长透射率。需要说明的是,在测定温度为20℃下进行。在表4以及表5中示出波长1500nm下的透射率的测定结果。

[0349] 9.物性评价(层叠体的层压适应性)

[0350] 在2片市售的浮法玻璃(纵1100mm×横1300mm×厚度3.2mm)中夹持实施例·比较例中得到的各层叠体,使用真空层压机(Nisshinbo Mechatronics Co.,Ltd.制1522N),在以下的条件下制作夹层玻璃。通过以下的基准判定使用的层叠体的层压适应性。在表4以及表5中示出层压适应性的评价结果。

[0351] <条件>热板温度:165℃抽真空时间:12分钟压制压力:50kPa压制时间:17分钟

[0352] <判断基准>

[0353] A:没有气泡等外观上的缺点,密合良好

[0354] B:稍微可见气泡等外观上的缺点,但密合性上没有问题

[0355] C:观察到气泡等外观上的缺点,但密合性上没有问题

[0356] D:观察到气泡等外观上的缺点,密合不良

[0357] E:在夹层玻璃整体观察到气泡等外观上的缺点,密合不良

[0358] 10.物性评价(夹层玻璃的最大损耗系数)

[0359] 在2片市售的浮法玻璃(纵50mm×横300mm×厚度2.8mm)中夹持实施例·比较例中得到的各层叠体,根据真空袋法(条件:从30℃经过60分钟升温至160℃,之后在160℃下保持30分钟)制作夹层玻璃。之后,将上述夹层玻璃的中央部固定在被内置于机械阻抗装置

(Ono Sokki Co., Ltd. 制; Mass cancel amplifier MA-5500; Channel data station: DS-2100) 中的励振器 (power amplifier/model 371-A) 的阻抗头中的励振力检测器的前端部。在频率 0~8000Hz 的范围对上述夹层玻璃的中央部施加振动, 检测该点的励振力和加速度波形, 从而进行基于中央激振法的夹层玻璃的阻尼试验。以将所得到的励振力和加速度信号积分而得到的速度信号为基础, 求出起振点 (施加振动的夹层玻璃的中央部) 的机械阻抗, 在将横轴设为频率、纵轴设为机械阻抗而得到的阻抗曲线中, 根据示出峰的频率和半值宽度, 求出夹层玻璃的损耗系数。在基于中央激振法的阻尼测定中, 得到损耗系数相对于在一定温度下的频率的值。为了得到最大损耗系数, 实施温度为 0℃、10℃、20℃、30℃、40℃、50℃ 下振动的测定, 从所得到的值得到损耗系数相对于在频率一定下的温度的线形, 在该线形之中, 将最大的点作为最大损耗系数。在表 4 以及表 5 中示出最大损耗系数的测定结果。

[0360] 11. 物性评价 (夹层玻璃的断裂强度)

[0361] 在 2 片市售的浮法玻璃 (纵 26mm×横 76mm×厚度 2.8mm) 中夹持实施例·比较例中得到的各层叠体, 根据真空袋法 (条件: 从 30℃ 经过 60 分钟升温至 160℃, 之后在 160℃ 下保持 30 分钟) 制作夹层玻璃。之后, 使用 Autograph AG-5000B 实施夹层玻璃的 3 点弯曲试验, 测定在温度 20℃、薄膜支点间距离 55mm 下的夹层玻璃的断裂强度。需要说明的是, 试验速度在 0.25mm/分钟下进行。在表 4 以及表 5 中示出断裂强度的测定结果。

[0362] (实施例 15)

[0363] 在 A 层中使用含有苯乙烯单元 20 质量%、异戊二烯单元 80 质量% 的、 $\tan\delta$ 的峰高度成为最大的峰的温度为 -5.2℃ (在 1Hz 的频率下施加振动, 将测定温度以 1℃/分钟的恒定速度升温至 -40~100℃ 为止时的值) 的直链状氢化苯乙烯·异戊二烯·苯乙烯三嵌段共聚物 (氢化度 88%, 重均分子量 112000), 在 B 层中使用包含相对于粘均聚合度约 1700、缩醛化度 70 摩尔%、醋酸乙烯酯单元的含量 0.9 摩尔% 的聚乙烯醇缩丁醛树脂 100 质量份, 作为增塑剂为 15 质量份的 Kuraray Co., Ltd. 制的聚酯多元醇 “Kuraray polyol P-510” 的组合物。

[0364] 这些树脂 (或树脂组合物) 分别利用挤出成形法成形为厚度 0.76mm 的 B 层, 以及厚度 0.76mm 的 A 层。使用所得到的 A 层以及 B 层的单层片, 基于上述的评价方法, 测定 B 层的剪切储能模量、A 层的剪切储能模量、 $\tan\delta$ 的峰高度以及峰温度。

[0365] 此外, 这些树脂 (或树脂组合物) 分别利用挤出成形法而成形为厚度 250 μm 的 B 层、厚度 250 μm 的 A 层。在 2 层 B 层之间夹持 A 层, 在 150℃ 下进行压制成形, 制作 3 层结构的复合膜的厚度 0.75mm 的层叠体。使用所得到的层叠体, 基于上述的评价方法, 算出夹层玻璃的 4 阶共振频率、4 阶共振频率下的损耗系数以及弯曲刚度、以及 6300Hz、8000Hz、10000Hz 下的传声损失。此外, 使用所得到的层叠体, 进行夹层玻璃的隔热性能评价。在表 4 中示出上述物性评价的结果。需要说明的是, 表 4~表 5 中的 B 层的增塑剂含量表示相对于 B 层中的树脂 100 质量份的量。

[0366] (实施例 16、17)

[0367] 将 B 层的增塑剂 “Kuraray polyol P-510” 的含量变更为表 4 中所示的量, 除此以外使用与实施例 15 同样的方法, 制作单层片以及层叠体, 进行物性评价。在表 4 中示出物性评价的结果。

[0368] (实施例 18)

[0369] 将 A 层的膜厚设为 100 μm , 将 B 层的膜厚设为 325 μm , 除此以外使用与实施例 15 同样

的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表4中示出物性评价的结果。

[0370] (实施例19)

[0371] 将A层的膜厚设为380 μm ,将B层的膜厚设为190 μm ,除此以外使用与实施例15同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表4中示出物性评价的结果。

[0372] (实施例20)

[0373] 在A层中,使用含有苯乙烯单元18质量%、异戊二烯单元以及丁二烯单元(异戊二烯:丁二烯(质量比)=89:11)82质量%的、 $\tan\delta$ 的峰高度成为最大的峰的温度为 -10.3°C (在1Hz的频率下施加振动,将测定温度以 $1^{\circ}\text{C}/\text{分钟}$ 的恒定速度升温至 $-40\sim 100^{\circ}\text{C}$ 为止时的值)的直链状氢化苯乙烯·异戊二烯/丁二烯·苯乙烯三嵌段共聚物(氢化度89%,重均分子量121500)作为弹性体,代替实施例15中使用的直链状氢化苯乙烯·异戊二烯·苯乙烯三嵌段共聚物,除此以外使用与实施例15同样的方法,,制作单层片以及层叠体,进行物性评价。在表4中示出物性评价的结果。

[0374] (实施例21)

[0375] 在A层中,使用含有苯乙烯单元16质量%、异戊二烯单元以及丁二烯单元(异戊二烯:丁二烯(质量比)=78:22)的、 $\tan\delta$ 的峰高度成为最大的峰的温度为 -15.2°C (在1Hz的频率下施加振动,将测定温度以 $1^{\circ}\text{C}/\text{分钟}$ 的恒定速度升温至 $-40\sim 100^{\circ}\text{C}$ 为止时的值)的直链状氢化苯乙烯·异戊二烯·苯乙烯三嵌段共聚物(氢化度90%,重均分子量131000)作为弹性体,代替实施例15中使用的直链状氢化苯乙烯·异戊二烯·苯乙烯三嵌段共聚物,除此以外使用与实施例15同样的方法,制作单层片以及层叠体,进行物性评价。在表4中示出物性评价的结果。

[0376] (实施例22、23)

[0377] 将B层的增塑剂“Kuraray polyol P-510”的含量变更为表4中示出的量,将A层的膜厚设为100 μm ,将B层的膜厚设为325 μm ,除此以外使用与实施例15同样的方法,制作单层片以及层叠体,进行物性评价。在表4中示出物性评价的结果。

[0378] (实施例24)

[0379] 作为B层,使用离聚物薄膜(杜邦公司制,SentryGlas(R) Interlayer),将A层的膜厚设为100 μm ,将B层的膜厚设为325 μm ,除此以外使用与实施例15同样的方法,制作单层片以及层叠体,进行物性评价。在表4中示出物性评价的结果。

[0380] (实施例25)

[0381] 相对于直链状氢化苯乙烯·异戊二烯·苯乙烯三嵌段共聚物100质量份添加含铯复合氧化钨0.75质量份而形成A层,除此以外使用与实施例15同样的方法,制作单层片以及层叠体,进行物性评价。在表4中示出物性评价的结果。需要说明的是,含铯复合氧化钨使用住友金属矿山株式会社制的YMDS-874。

[0382] [表4]

[0383]

	实施例 15	实施例 16	实施例 17	实施例 18	实施例 19	实施例 20	实施例 21	实施例 22	实施例 23	实施例 24	实施例 25
厚度 (μm)	250	250	250	325	325	190	250	325	325	325	250
树脂种类	PVB	PVB	PVB	PVB	PVB	PVB	PVB	PVB	PVB	聚碳酸酯	PVB
粘均聚合度	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	—	1700
凝胶化度 (摩尔%)	70	70	70	70	70	70	70	70	70	—	70
增塑剂含量 (质量份)	15	5	25	15	15	15	15	25	40	—	15
剪切储能模量 [25℃] (MPa)	82.0	120.3	62.1	62.0	62.0	62.0	82.0	62.1	13.6	43.2	82.0
厚度 (μm)	250	250	250	100	360	250	250	100	100	100	250
苯乙烯含量 (质量%)	20	20	20	20	20	18	16	20	20	20	20
tan δ 峰高度	-5.2	-5.2	-5.2	-5.2	-5.2	-10.3	-15.2	-5.2	-5.2	-5.2	-5.5
tan δ 峰位置	1.89	1.89	1.89	1.89	1.89	1.90	1.91	1.89	1.89	1.89	1.88
剪切储能模量 [25℃] (MPa)	1.31	1.31	1.31	1.31	1.31	1.13	0.95	1.31	1.31	1.31	1.31
4倍共振频率 (Hz)	3916	4020	3784	4867	3627	3697	3951	4625	4377	4487	3903
4倍共振频率下的损耗系数	0.63	0.56	0.64	0.22	0.69	0.51	0.31	0.25	0.23	0.23	0.62
4倍共振频率下的弯曲刚度 (N·m)	206	218	195	322	181	182	208	240	259	272	205
6300Hz下的传声损失 (dB)	48.1	47.8	47.8	47.6	47.5	45.4	44.9	47.0	45.3	45.9	47.9
8000Hz下的传声损失 (dB)	54.8	54.7	54.3	54.5	54.1	52.4	52.3	54.1	52.6	53.1	54.7
10000Hz下的传声损失 (dB)	60.9	60.8	60.4	60.6	60.1	58.7	58.6	60.2	58.9	59.3	60.8
A层的厚度/B层的厚度的总计	1/2	1/2	1/2	1/6.5	1/1	1/2	1/6.5	1/6.5	1/6.5	1/6.5	1/2
透射率 [1500nm] (%)	75	77	76	75	74	75	76	76	75	78	40
剪切储能模量 [25℃] (MPa)	2.61	3.85	1.85	7.03	1.52	1.55	3.35	6.71	5.82	6.16	2.59
夹层玻璃的总最大损耗系数	0.38	0.36	0.43	0.35	0.39	0.36	0.35	0.36	0.40	0.38	0.38
夹层玻璃的断裂强度 [25℃] (kN)	0.44	0.48	0.31	0.92	0.27	0.29	0.40	0.78	0.61	0.69	0.42
层压适应性	A	A	B	A	B	A	A	B	C	A	A

[0384] (比较例8)

[0385] 在A层中,使用含有苯乙烯单元12质量%、异戊二烯单元以及丁二烯单元(异戊二烯:丁二烯(摩尔比)=55:45)88质量%的、 $\tan\delta$ 的峰高度成为最大的峰的温度为 -22.6°C (在1Hz的频率下施加振动,将测定温度以 $1^{\circ}\text{C}/\text{分钟}$ 的恒定速度升温至 $-40\sim 100^{\circ}\text{C}$ 为止时的值)的直链状氢化苯乙烯·异戊二烯/丁二烯·苯乙烯三嵌段共聚物(氢化度92%,重均分

子量150000)作为弹性体,代替实施例15中使用的直链状氢化苯乙烯·异戊二烯·苯乙烯三嵌段共聚物,除此以外使用与实施例15同样的方法,制作单层片以及层叠体,进行物性评价。在表5中示出物性评价的结果。

[0386] (比较例9)

[0387] 在A层中,使用含有苯乙烯单元12质量%、异戊二烯单元以及丁二烯单元(异戊二烯:丁二烯(摩尔比)=55:45)88质量%的、 $\tan\delta$ 的峰高度成为最大的峰的温度为 -22.6°C (在1Hz的频率下施加振动,将测定温度以 $1^{\circ}\text{C}/\text{分钟}$ 的恒定速度升温至 $-40\sim 100^{\circ}\text{C}$ 为止时的值)的直链状氢化苯乙烯·异戊二烯·苯乙烯三嵌段共聚物(氢化度92%、重均分子量150000)作为弹性体,代替实施例15中使用的直链状氢化苯乙烯·异戊二烯·苯乙烯三嵌段共聚物,此外,将A层的膜厚设为 $100\mu\text{m}$,将B层的膜厚设为 $325\mu\text{m}$,除此以外使用与实施例15同样的方法,制作单层片以及层叠体,进行物性评价。在表5中示出物性评价的结果。

[0388] (比较例10)

[0389] 作为A层,代替直链状氢化苯乙烯·异戊二烯嵌段共聚物,使用包含粘均聚合度1700、缩醛化度70摩尔%、醋酸乙烯酯单元的含量0.9摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛树脂和相对于该聚乙烯醇缩丁醛树脂100质量份含有60质量份的“Kuraray polyol P-510”的组合物的层,作为B层,使用包含粘均聚合度1700、缩醛化度70摩尔%、醋酸乙烯酯单元的含量0.9摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛树脂和相对于该聚乙烯醇缩丁醛树脂100质量份含有60质量份的“Kuraray polyol P-510”的组合物的层,除此以外使用与实施例15同样的方法,制作单层片以及层叠体,进行物性评价。在表5中示出物性评价的结果。

[0390] (比较例11)

[0391] 作为A层,代替直链状氢化苯乙烯·异戊二烯嵌段共聚物,使用包含粘均聚合度1700、缩醛化度70摩尔%、醋酸乙烯酯单元的含量0.9摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛树脂和相对于该聚乙烯醇缩丁醛树脂100质量份含有15质量份的“Kuraray polyol P-510”的组合物的层,作为B层,使用包含粘均聚合度1700、缩醛化度70摩尔%、醋酸乙烯酯单元的含量0.9摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛树脂和相对于该聚乙烯醇缩丁醛树脂100质量份含有15质量份的“Kuraray polyol P-510”的组合物的层,除此以外使用与实施例15同样的方法,制作单层片以及层叠体,进行物性评价。在表5中示出物性评价的结果。

[0392] [表5]

[0393]

		比较例 8	比较例 9	比较例 10	比较例 11
B层	厚度 (μm)	250	325	250	250
	树脂种类	PVB	PVB	PVB	PVB
	粘均聚合度	1700	1700	1700	1700
	缩醛化度 (摩尔%)	70	70	70	70
	增塑剂含量 (质量份)	15	15	60	15
	剪切储能模量 [25℃] (MPa)	82.0	82.0	6.2	82.0
A层	厚度 (μm)	250	100	250	250
	苯乙烯含量 (质量%)	12	12	—	—
	tan δ 峰温度 (℃)	-22.6	-22.6	0.7	35.2
	tan δ 峰高度	1.92	1.92	0.79	0.76
	剪切储能模量 [25℃] (MPa)	0.51	0.51	0.37	82.0
评价结果	4阶共振频率 (Hz)	2544	3063	2827	4990
	4阶共振频率下的损耗系数	0.23	0.36	0.44	0.037
	4阶共振频率下的弯曲刚度 (N·m)	88	128	109	339
	6300Hz下的传声损失 (dB)	41.4	40.0	42.6	41.7
	8000Hz下的传声损失 (dB)	38.2	48.5	48.5	48.4
	10000Hz下的传声损失 (dB)	47.3	53.5	55.1	54.4
	A层的厚度/B层的厚度的总计	1/2	1/6.5	1/2	1/2
	透射率 [1500nm] (%)	74	75	78	77
	剪切储能模量 [25℃] (MPa)	0.31	0.77	0.55	7.71
	夹层玻璃的最大损耗系数	0.37	0.40	0.35	0.09
	夹层玻璃的断裂强度 [25℃] (kN)	0.15	0.17	0.15	1.04
	层压适应性	B	A	D	B

[0394] 对于在下述的实施例26~37或参考例12~13中得到的A层、B层、层叠体、或夹层玻璃进行下述的物性评价(12~15)。

[0395] 12. 物性评价(层叠体的剪切储能模量、B层(粘接层)的剪切储能模量、A层(隔音层)的剪切储能模量、tanδ的峰高度以及峰温度)

[0396] 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的应变控制型动态粘弹性装置(Leomix Corporation制、ARES)。将下述的实施例·比较例中得到层叠体(厚度0.76mm)、A层的单层片(厚度0.76mm)以及B层的单层片(厚度0.76mm)分别作为圆板形状的试验片使用。需要说明的是,上述试验片使用在温度20℃、湿度60%RH下保管24小时以上的试验片。用上述试验片将2片的平板间的间隙完全填充。以应变量1.0%、在1Hz的频率下对上述试验片施加振动,将测定温度以1℃/分钟的恒定速度升温至-40~100℃为止。保持上述试验片和圆板的温度,直至剪切损耗弹性模量以及剪切储能模量的测定值不发生变化为止。在表6以及表8中示出所测定的层叠体、以及B层的25℃下的剪切储能模量、A层(A层中的弹性体)的tanδ的峰高度以及峰温度的结果。

[0397] 13. 物性评价(夹层玻璃的损耗系数、最大损耗系数)

[0398] 在2片市售的浮法玻璃(纵26mm×横76mm×厚度2.8mm)中夹持实施例·比较例中得到的各层叠体,根据真空袋法(条件:从20℃经过30分钟升温至140℃,之后在140℃、压力

1MPa下保持60分钟)制作夹层玻璃。之后,将上述夹层玻璃的中央部固定在被内置于机械阻抗装置(Ono Sokki Co.,Ltd.制;Mass cancel amplifierMA-5500;Channel data station:DS-2100)中的励振器(poweramplifier/model371-A)的阻抗头中的励振力检测器的前端部。在20℃下、在频率0~10000Hz的范围对上述夹层玻璃的中央部施加振动,检测该点的励振力和加速度波形,从而进行基于中央激振法的夹层玻璃的阻尼试验。以将所得到的励振力和加速度信号积分而得到的速度信号为基础,求出起振点(施加振动的夹层玻璃的中央部)的机械阻抗,在将横轴设为频率、纵轴设为机械阻抗而得到的阻抗曲线中,根据示出峰的频率和半值宽度,求出各共振点频率下的损耗系数,根据2000Hz前后的共振点频率以及该共振点频率下的损耗系数的值、以比例计算,求出20℃、2000Hz下的夹层玻璃的损耗系数 α 。进而,在18℃下将上述测定后的夹层玻璃保持1个月。对于经过1个月时的夹层玻璃与上述 α 同样的条件求出损耗系数 β 。此外,对于经过1个月后的夹层玻璃,求出将在温度20℃下的1阶~5阶模态下的损耗系数内的最高值作为最大损耗系数。对于将18℃下保持1个月的夹层玻璃进一步以100℃进行加热处理24小时之后的夹层玻璃,与上述 α 同样的条件求出损耗系数 γ 。在表6以及表8中示出刚夹层玻璃制作之后的损耗系数、夹层玻璃制作后经过1个月时的损耗系数、加热处理后的损耗系数、20℃下的最大损耗系数。

[0399] 14.物性评价(夹层玻璃的雾度)

[0400] 对于制作后经过1个月时的夹层玻璃,使用雾度仪(Suga Test Machine Co.,Ltd.制)测定雾度。在表6以及表8中示出结果。

[0401] 15.物性评价(层叠体的层压适应性)

[0402] 在2片市售的浮法玻璃(纵1100mm×横1300mm×厚度3.2mm)中夹持实施例·比较例中得到的各层叠体,使用真空层压机(Nisshinbo Mechatronics Co.,Ltd.制1522N),在以下的条件下制作夹层玻璃。通过以下的基准判定使用的层叠体的层压适应性。在表6以及表8中示出层压适应性的评价结果。

[0403] <条件>热板温度:165℃,抽真空时间:12分钟,压制压力:50kPa,压制时间:17分钟

[0404] <判断基准>

[0405] A:没有气泡等外观上的缺点,密合良好

[0406] B:稍微可见气泡等外观上的缺点,但密合性上没有问题

[0407] C:观察到气泡等外观上的缺点,但密合性上没有问题

[0408] D:观察到气泡等外观上的缺点,密合不良

[0409] E:在夹层玻璃整体观察到气泡等外观上的缺点,密合不良

[0410] (实施例26)

[0411] 在A层中,使用含有苯乙烯单元12质量%、异戊二烯单元以及丁二烯单元(异戊二烯:丁二烯(摩尔比)=89:11)88质量%的、 $\tan\delta$ 的峰高度成为最大的峰的温度为-22.6℃(在1Hz的频率下施加振动,将测定温度以1℃/分钟的恒定速度升温至-40~100℃为止时的值)的直链状氢化苯乙烯·异戊二烯/丁二烯·苯乙烯三嵌段共聚物(重均分子量10万)。在B层中,使用粘均聚合度约1700、缩醛化度70摩尔%、醋酸乙烯酯单元的含量0.9摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛树脂。

[0412] 这些树脂分别通过挤出成形法成形为厚度330 μm 的B层、以及厚度100 μm 的A层。使

用所得到的A层以及B层的单层片,根据上述的评价方法,测定B层的剪切储能模量、A层的 $\tan\delta$ 的峰高度以及峰温度。

[0413] 接着,在2层的B层之间夹持A层、在150℃下进行压制成形而制作由3层结构的复合膜形成的厚度0.76mm的层叠体。使用所得到的层叠体,根据上述的评价方法,测定层叠体的剪切储能模量、夹层玻璃制作后的损耗系数、夹层玻璃制作1个月后的损耗系数、夹层玻璃的最大损耗系数、层压适应性以及夹层玻璃的雾度。在表6中示出上述物性评价的结果。

[0414] (实施例27~30)

[0415] 由相对于粘均聚合度约1700、缩醛化度70摩尔%、醋酸乙烯酯单元的含量0.9摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛树脂100质量份,作为增塑剂添加表6中示出的量的Kuraray polyol P-510 (Kuraray Co., Ltd. 制,凝固点-20℃以下,羟值213mgKOH/g,每2个羟基的数均分子量为500的聚酯多元醇:由3-甲基-1,5-戊二醇和己二酸形成的聚酯二醇)的聚乙烯醇缩丁醛树脂组合物而制成B层,除此以外使用与实施例26同样的方法,制作A层、B层以及层叠体,进行物性评价。在表6中示出物性评价的结果。

[0416] 此外,对于使用实施例27的层叠体而制作的夹层玻璃中的、刚制作夹层玻璃之后的损耗系数、以及夹层玻璃制作后经过1个月时的损耗系数,在表7中示出根据在20℃、频率0~10000Hz的范围下实施的上述阻尼试验的结果而得到的各频率下的损耗系数。同样地,对于使用实施例27的层叠体而制作的夹层玻璃中的、刚制作夹层玻璃之后的损耗系数、以及夹层玻璃制作后经过1个月时的损耗系数,在表7中示出根据在30℃、频率0~10000Hz的范围下实施的上述阻尼试验的结果而得到的各频率下的损耗系数。在图2中示出将表7中示出的20℃下测定的情况下的频率和损耗系数的关系制成曲线图而成的图。在图2中,实线的曲线图表示刚制作夹层玻璃之后的各频率下的损耗系数,虚线的曲线图表示制作夹层玻璃之后经过1个月时的各频率下的损耗系数。

[0417] (实施例31)

[0418] 在B层中,使用粘均聚合度约1000的聚乙烯醇缩丁醛树脂,代替粘均聚合度约1700的聚乙烯醇缩丁醛树脂,除此以外使用与实施例27同样的方法,制作A层、B层以及层叠体,进行物性评价。在表6中示出物性评价的结果。

[0419] (实施例32)

[0420] 将B层成形为厚度253 μm ,将A层成形为厚度253 μm ,除此以外使用与实施例26同样的方法,制作A层、B层以及层叠体,进行物性评价。在表6中示出物性评价的结果。

[0421] [表6]

[0422]

	实施例 26	实施例 27	实施例 28	实施例 29	实施例 30	实施例 31	实施例 32
粘接层厚度	1700	1700	1700	1700	1700	1000	1700
树脂厚度 (摩尔%)	70	70	70	70	70	70	70
树脂剂	~	A	A	A	A	A	~
树脂剂含量 (质量%)	0	5	15	25	40	5	0
剪切储能模量 [25℃] (MPa)	127.4	100.6	71.3	50.2	34.7	84.9	127.4
交联含量 (质量%)	12	12	12	12	12	12	12
tan δ 峰温度 (℃)	-22.6	-22.6	-22.6	-22.6	-22.6	-22.6	-22.6
tan δ 峰高度	1.92	1.92	1.92	1.92	1.92	1.92	1.92
厚度 [B 层 / A 层 / B 层] (μm)	330/100 /330	330/100 /330	330/100 /330	330/100 /330	330/100 /330	330/100 /330	253/253 /253
经制作完成后的损耗系数 α [2000Hz、20℃]	0.33	0.34	0.30	0.30	0.33	0.27	0.28
经制作完成后的损耗系数 β [2000Hz、20℃]	0.33	0.32	0.26	0.32	0.35	0.25	0.28
经制作完成后的损耗系数 γ [2000Hz、20℃]	1	0.94	0.93	1.06	1.07	0.93	1
经加热处理后的损耗系数 α [2000Hz、20℃]	0.31	0.3	0.27	0.29	0.31	0.24	0.25
经加热处理后的损耗系数 β [2000Hz、20℃]	0.93	0.93	0.96	0.90	0.89	0.96	0.89
经加热处理后的损耗系数 γ [2000Hz、20℃]	6.1	5.5	4.8	3.6	3	3.55	5
最大损耗系数 [25℃] (MPa)	0.35	0.34	0.31	0.32	0.30	0.33	0.29
最大损耗系数 [20℃]	0.5	0.4	0.3	0.3	0.2	0.5	0.5
厚度	C	B	B	A	A	A	C
层压适应性							

[0423]

[表7]

* 表中的损耗系数表示相对于100质量份聚乙炔树脂的树脂含量。
* 树脂剂A: Kuraray polyol P-510 (Kuraray Co., Ltd.)

[0424]

	测定温度20℃		测定温度30℃	
	Hz	损耗系数	Hz	损耗系数
实施例27 [刚制作夹层玻璃后]	146.541	0.12343021	140.938	0.10514855
	880.781	0.22666087	880.547	0.18530056
	1660.469	0.32214686	1592.656	0.24094295
	2850.781	0.37720704	2833.594	0.25291634
	4592.989	0.36264682	4464.063	0.2206839
	6538.719	0.34909866	6285.625	0.2012313
	8953.908	0.3031235	8694.922	0.16430253
实施例27 [制作夹层玻璃1个月后]	146.25	0.13214622	139.531	0.10234539
	887.109	0.24197893	850.547	0.16478501
	1680.391	0.3064762	1578.984	0.25061136
	2977.734	0.33963957	2818.75	0.25594711
	4841.737	0.3192904	4448.047	0.21662783
	6892.579	0.3153483	6232.734	0.19007754
	~	~	8702.344	0.16414237

[0425] (实施例33~35)

[0426] 由相对于粘均聚合度约1700、缩醛化度70摩尔%、醋酸乙烯酯单元的含量0.9摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛树脂100质量份,作为增塑剂添加表8中示出的量的Kuraray polyol P-510 (Kuraray Co.,Ltd.制)的聚乙烯醇缩丁醛树脂组合物成形B层,将B层成形为厚度253 μm ,将A层成形为厚度253 μm ,除此以外使用与实施例26同样的方法,制作A层、B层以及层叠体,进行物性评价。在表8中示出物性评价的结果。

[0427] (实施例36)

[0428] 由含有苯乙烯单元20质量%、异戊二烯单元80质量%的、 $\tan\delta$ 的峰高度成为最大的峰的温度为-5.2℃(在1Hz的频率下施加振动,将测定温度以1℃/分钟的恒定速度升温至-40~100℃为止时的值)的直链状氢化苯乙烯·异戊二烯·苯乙烯三嵌段共聚物(重均分子量10万)成形A层,除此以外使用与实施例27同样的方法,制作A层、B层以及层叠体,进行物性评价。在表8中示出物性评价的结果。

[0429] (实施例37)

[0430] 由含有苯乙烯单元20质量%、异戊二烯单元80质量%的、 $\tan\delta$ 的峰高度成为最大的峰的温度为-5.2℃(在1Hz的频率下施加振动,将测定温度以1℃/分钟的恒定速度升温至-40~100℃为止时的值)的直链状氢化苯乙烯·异戊二烯·苯乙烯三嵌段共聚物(重均分子量约10万)成形A层,除此以外使用与实施例30同样的方法,制作A层、B层以及层叠体,进行物性评价。在表8中示出物性评价的结果。

[0431] (参考例12)

[0432] 由相对于粘均聚合度约1700、缩醛化度70摩尔%、醋酸乙烯酯单元的含量0.9摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛树脂100质量份,作为增塑剂添加表8中示出的量的Kuraray polyol P-510 (Kuraray Co.,Ltd.制)的聚乙烯醇缩丁醛树脂组合物成形B层,将B层成形为厚度253 μm ,将A层成形为厚度253 μm ,除此以外使用与实施例26同样的方法,制作A层、B层以及层叠体,进行物性评价。在表8中示出物性评价的结果。

[0433] (参考例13)

[0434] 作为B层中使用的增塑剂,使用表8中示出的量的3G0(三乙二醇二-2-乙基己酸酯)代替Kuraray polyol P-510,除此以外使用与实施例27同样的方法,制作A层、B层以及层叠体,进行物性评价。在表8中示出物性评价的结果。

[0435] 此外,对于使用参考例12的层叠体而制作的夹层玻璃中的、刚制作夹层玻璃之后的损耗系数、以及夹层玻璃制作后经过1个月时的损耗系数,在表9中示出根据在20℃、频率0~10000Hz的范围下实施的上述阻尼试验的结果而得到的各频率下的损耗系数。对于同样地使用参考例12的层叠体而制作的夹层玻璃中的、刚制作夹层玻璃之后的损耗系数、以及夹层玻璃制作后经过1个月时的损耗系数,在表9中示出根据在30℃、频率0~10000Hz的范围下实施的上述阻尼试验的结果而得到的各频率下的损耗系数。在图3中示出将表9中示出的在20℃下测定的情况下的频率和损耗系数的关系而制成的曲线图。在图3中,实线的曲线图表示刚制作夹层玻璃之后的各频率下的损耗系数,虚线的曲线图表示制作夹层玻璃之后经过1个月时的各频率下的损耗系数。

[0436] [表8]

	实例例	实例例	实例例	实例例	参考例
	33	70	A	36	1
粘均聚合度	1700	1700	1700	1700	1700
磺基化率(摩尔%)	70	70	70	70	70
增塑剂	A	A	A	A	B
增塑剂含量(质量份)	5	15	25	8	E
剪切储能模量 [25℃] (MPa)	100.6	71.3	50.2	100.8	25.2
苯乙烯含量(质量%)	12	12	12	20	12
tan δ峰温度(°C)	-22.8	-22.8	-22.6	-5.2	-22.6
tari δ峰高度	1.95	1.92	1.92	1.88	1.92
硬度(8mm A型, 8mm) [200Hz, 20°C]	253/253 /253	253/253 /253	253/283 /253	330/100 /330	330/100 /330
制作为室温成型后的物理系数 α [200Hz, 20°C]	0.28	0.26	0.23	0.22	0.22
制作为室温成型后一个月的物理系数 β [200Hz, 20°C]	0.20	0.19	0.16	0.25	0.1
损耗系数 B / 损耗系数 α	0.71	0.73	0.70	1.32	0.38
加热处理后的物理系数 γ [200Hz, 20°C]	0.24	0.23	0.21	0.25	0.12
损耗系数 Y / 损耗系数 β	1.2	1.21	1.31	0.88	1.6
剪切储能模量 [25℃] (MPa)	4.6	3.9	2.3	5.5	4.3
热膨胀系数 [20°C]	0.23	0.23	0.23	0.22	0.23
密度	0.4	0.4	0.3	0.4	0.3
冲击强度 J/m ²	B	B	A	B	C

★ 表示的期限包含表示100%的聚缩乙炔纤维丁基树脂的成份。

◆ 纤维名称: Kuraray polyeth P-510 (Kuraray Co., Ltd.) 纤维规格: 300 (3Z) 纤维已规格

[0438] [表9]

[0439]

	測定温度 20℃		測定温度 30℃	
	Hz	损耗系数	Hz	损耗系数
参考例12 [制作夹层玻璃 层]	111.172	0.2379556	105.469	0.1577949
	531.563	0.2554719	506.797	0.1650353
	1329.297	0.2781577	1294.844	0.14923
	2510.547	0.207985	2480.158	0.1155404
	4066.641	0.1733666	3991.797	0.0935679
	5973.438	0.1440492	5891.016	0.0800329
	8241.016	0.1310947	8138.719	0.0746555
参考例12 [制作夹层玻璃1个 月后]	89.844	0.2198277	84.698	0.1277868
	462.344	0.1223238	447.422	0.0760299
	1214.531	0.0746864	1187.969	0.0534276
	2327.734	0.0562531	2266.797	0.0752894
	3889.453	0.0925322	3597.891	0.11532
	5181.641	0.1041798	4994.588	0.1265927

[0440] 对于在下述的实施例38~44或比较例14~15中得到的A层、B层、层叠体、或夹层玻璃进行下述的物性评价(16~18)。

[0441] 16. 物性评价(A层中的弹性体以及A层整体的 $\tan\delta$ 的峰温度)

[0442] 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的应变控制型动态粘弹性装置(Leomix Corporation制、ARES)。将下述的实施例・比较例中得到的A层(A1层或A2层)的单层片(厚度0.76mm)作为圆板形状的试验片使用。需要说明的是,上述试验片使用在温度20℃、湿度60%RH下保管24小时以上的试验片。用上述试验片将2片的平板间的间隙完全填充。以应变1.0%、在1Hz的频率下对上述试验片施加振动,将测定温度以1℃/分钟的恒定速度升温至-40~100℃为止。保持上述试验片和圆板的温度,直至剪切损耗弹性模量以及剪切储能模量的测定值不发生变化为止。根据所测定的A层(A1层或A2层)的剪切储能模量,求出 $\tan\delta$ 的峰温度。在表10中示出结果。

[0443] 17. 物性评价(夹层玻璃的损耗系数)

[0444] 在2片市售的浮法玻璃(宽度50mm×长度300mm×厚度3mm)中夹持实施例・比较例中得到的各层叠体,通过真空袋法(条件:从30℃以60分钟升温至160℃,之后在160℃下保持30分钟)而制作夹层玻璃。之后,将上述夹层玻璃的中央部固定在被内置于机械阻抗装置(Ono Sokki Co.,Ltd.制;Mass cancel amplifierMA-5500;Channel data station:DS-2100)中的励振器(poweramplifier/model371-A)的阻抗头中的励振力检测器的前端部。在频率0~8000Hz的范围对上述夹层玻璃的中央部施加振动,检测该点的励振力和加速度波形,从而进行基于中央激振法的夹层玻璃的阻尼试验。以将所得到的励振力和加速度信号积分而得到的速度信号为基础,求出起振点(施加振动的夹层玻璃的中央部)的机械阻抗,在将横轴设为频率、纵轴设为机械阻抗而得到的阻抗曲线中,根据表示出3阶模态的峰的频率和半值宽度,求出夹层玻璃的损耗系数,求出损耗系数为0.2以上的温度范围的宽度。在表10中示出损耗系数为0.2以上的温度范围的宽度的算出结果。

[0445] 18. 物性评价(夹层玻璃的断裂强度)

[0446] 在2片市售的浮法玻璃(纵26mm×横76mm×厚度2.8mm)中夹持实施例・比较例中得到的各层叠体,根据真空袋法(条件:从30℃经过60分钟升温至160℃,之后在160℃下保

持30分钟)制作夹层玻璃。之后,使用Autograph AG-5000B而实施夹层玻璃的3点弯曲试验(温度:20℃,支点间距离:55mm,试验速度:0.25mm/分钟),测定夹层玻璃的断裂强度。在表10中示出断裂强度的测定结果。

[0447] (比较例14)

[0448] 以质量比95/5使用粘均聚合度600、平均缩醛化度70摩尔%、醋酸乙烯酯单元的含量2摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛树脂和粘均聚合度1700、平均缩醛化度70摩尔%、醋酸乙烯酯单元的含量1摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛树脂(称为PVB-1),通过挤出成形法得到厚度250μm的薄膜(PVB-1薄膜:用作B层)。

[0449] 接着,在PVB-1薄膜的一个面上使用包含弹性体X的涂覆液(溶剂:环己烷,固体成分20质量%),以包含弹性体X的A1层干燥后的膜厚成为10μm的方式涂布,在50~60℃的暖风下进行约10分钟干燥。作为弹性体X,使用含有苯乙烯单元12质量%、异戊二烯单元88质量%的、tanδ的高度成为最大的峰的温度为-22.6℃(在1Hz的频率下施加振动,将测定温度以1℃/分钟的恒定速度升温至-40~100℃为止时的值)的直链状氢化苯乙烯·异戊二烯·苯乙烯三嵌段共聚物(氢化度90%)。需要说明的是,在温度190℃、负载2.16kg下测定的弹性体X的MFR为0.5g/10分钟。此外,在涂布有弹性体X的面上作为掩蔽膜使用与基材相同的PVB-1薄膜,在卷取后制成3层薄膜。在50℃的真空干燥机中对其进行48小时干燥,得到包含3层的层叠体(夹层玻璃用中间膜)。

[0450] 使用所得到的层叠体,制作夹层玻璃,通过利用中央激振法的阻尼试验,求出损耗系数为0.2以上的温度范围的宽度。此外,实施夹层玻璃的3点弯曲试验,测定夹层玻璃的断裂强度。在表10中示出损耗系数为0.2以上的温度范围的宽度和断裂强度的测定结果。

[0451] (实施例38)

[0452] 在PVB-1薄膜的一个面上,使用包含弹性体X的涂覆液(溶剂:环己烷,固体成分20质量%),以包含弹性体X的A1层干燥后的膜厚为50μm的方式涂布,除此以外使用与比较例14同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表10中示出损耗系数为0.2以上的温度范围的宽度和断裂强度的评价结果。

[0453] (比较例15)

[0454] 在PVB-1薄膜的一个面上,使用包含弹性体X的涂覆液(溶剂:环己烷,固体成分20质量%),以包含弹性体X的A1层干燥后的膜厚为150μm的方式涂布,除此以外使用与比较例14同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表10中示出损耗系数为0.2以上的温度范围的宽度和断裂强度的评价结果。

[0455] (实施例39)

[0456] 在PVB-1薄膜的一个面上,使用包含弹性体X以及弹性体Y的涂覆液(溶剂:环己烷,固体成分20质量%,弹性体X/弹性体Y的质量比1:1),以包含弹性体X以及弹性体Y的A1层干燥后的膜厚成为100μm的方式涂布,除此以外使用与比较例14同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表10中示出损耗系数为0.2以上的温度范围的宽度和断裂强度的评价结果。需要说明的是,作为弹性体Y,使用含有苯乙烯单元20质量%、异戊二烯单元80质量%的、tanδ的峰高度成为最大的峰的温度为-5.2℃(在1Hz的频率下施加振动,将测定温度以1℃/分钟的恒定速度升温至-40~100℃为止时的值)的直链状氢化苯乙烯·异戊二烯·苯乙烯三嵌段共聚物(氢化度88%)。需要说明的是,在温度190℃、负载2.16kg下测定的弹性体Y的

MFR为0.7g/10分钟。

[0457] (实施例40)

[0458] 在PVB-1薄膜的一个面上,使用包含弹性体X的涂覆液(溶剂:环己烷,固体成分20质量%),以包含弹性体X的A1层干燥后的膜厚成为50 μ m的方式涂布,在50~60℃的暖风下进行约10分钟干燥,进而,使用包含弹性体Y的涂覆液(溶剂:环己烷,固体成分20质量%),以包含弹性体Y的A2层干燥后的膜厚成为50 μ m的方式涂布,在50~60℃的暖风下进行约10分钟干燥,除此以外使用与比较例14同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表10中示出损耗系数为0.2以上的温度范围的宽度和断裂强度的评价结果。

[0459] (实施例41)

[0460] 作为B层,利用使用粘均聚合度600、平均缩醛化度70摩尔%、醋酸乙烯酯单元的含量2摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛树脂95质量份,粘均聚合度1700、平均缩醛化度70摩尔%、醋酸乙烯酯单元的含量1摩尔%的聚乙烯醇缩丁醛树脂5质量份以及10质量份的Kuraray polyol P-510(Kuraray Co.,Ltd.制,聚酯多元醇;由3-甲基-1,5-戊二醇和己二酸形成的聚酯二醇,每2个羟基的数均分子量为500),通过挤出成形法而制膜成厚度250 μ m的薄膜的膜,除此以外使用与实施例38同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表10中示出损耗系数为0.2以上的温度范围的宽度和断裂强度的评价结果。

[0461] (实施例42)

[0462] 使用包含弹性体Y的涂覆液,代替包含弹性体X的涂覆液,除此以外使用与比较例15同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表10中示出损耗系数为0.2以上的温度范围的宽度和断裂强度的评价结果。

[0463] (实施例43)

[0464] 使B层干燥后的膜厚为100 μ m,A1层干燥后的膜厚为300 μ m,除此以外使用与实施例39同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表10中示出损耗系数为0.2以上的温度范围的宽度和断裂强度的评价结果。

[0465] (实施例44)

[0466] 使用包含弹性体Y的涂覆液,代替包含弹性体X的涂覆液,除此以外使用与实施例38同样的方法,制作层叠体,进行物性评价。在表10中示出损耗系数为0.2以上的温度范围的宽度和断裂强度的评价结果。

[0467] [表10]

[0468]

	实施例 14	实施例 38	比较例 15	实施例 39	实施例 40	实施例 41	实施例 42	实施例 43	实施例 44
热塑性树脂	PVB-I	PVB-I	PVB-I	PVB-I	PVB-I	PVB-I	PVB-I	PVB-I	PVB-I
增塑剂	—	—	—	—	—	—	—	—	—
厚度 (μm)	250	250	250	250	250	250	250	100	250
热塑性弹性体	弹性体 X	弹性体 X	弹性体 X	弹性体 X 弹性体 Y (质量比 1:1)	弹性体 X	弹性体 X	弹性体 Y	弹性体 X 弹性体 Y (质量比 1:1)	弹性体 Y
厚度 (μm)	10	50	150	100	50	50	150	300	50
热塑性弹性体	—	—	—	—	弹性体 Y	—	—	—	—
厚度 (μm)	—	—	—	—	50	—	—	—	—
层结构	B/A1/B	B/A1/B	B/A1/B	B/A1/B	B/A1/A2/B	B/A1/B	B/A1/B	B/A1/B	B/A1/B
粘粒系数成为0.2以上时 温度范围的下限	—	8	4	13	8	7	13	11	22
粘粒系数成为0.2以上时 温度范围的上限	—	34	18	37	41	35	42	41	41
粘粒系数成为0.2以上时 温度范围(°C)	0	26	14	24	32	28	24	30	19
20°C下的模率系数	0.09	0.28	0.21	0.27	0.25	0.27	0.21	0.3	0.18
最大粘粒系数	0.13	0.28	0.32	0.27	0.29	0.27	0.34	0.31	0.29
表面部的耐刮强度 (mN/cm^2)	0.90	0.72	0.52	0.93	0.62	0.64	0.54	0.34	0.74

種含氮性(多)的溫度 $\tan\delta$ 的溫度: -52°C 、峰頂的高度: 1.92
包含含氮性 $\tan\delta$ 的溫度 $\tan\delta$ 的溫度: -5°C 、峰頂的高度: 1.49
以 1:1 的質量比包含含氮性 $\tan\delta$ 的溫度 $\tan\delta$ 的溫度: -12°C 、峰頂的高度: 0.8

[0469] 附图标记说明

[0470] 1 A层

[0471] 2a B层

[0472] 2b B层

[0473] 10 剪切储能模量

[0474] 11 损耗角正切 ($\tan\delta$)

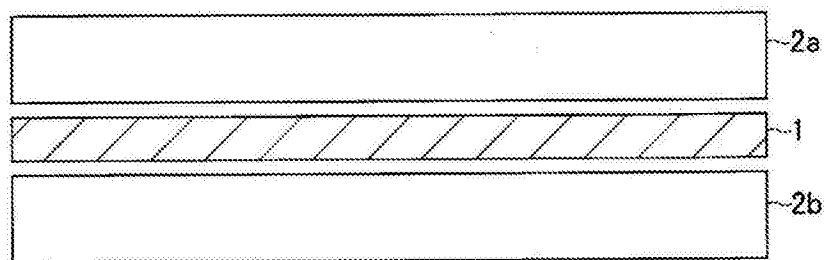


图1

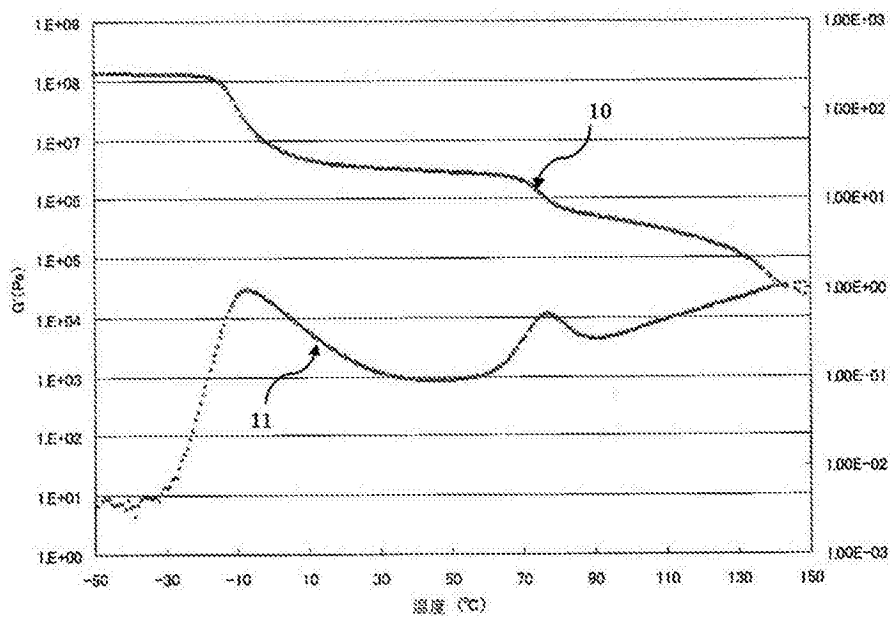


图2