

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2018年10月4日(04.10.2018)



(10) 国際公開番号

WO 2018/181754 A1

(51) 国際特許分類:

C03C 27/12 (2006.01) **B60J 1/00** (2006.01)

B32B 17/10 (2006.01) **C08L 33/04** (2006.01)

B32B 27/30 (2006.01) **C08L 59/00** (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2018/013335

(22) 国際出願日: 2018年3月29日(29.03.2018)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:

特願 2017-072900 2017年3月31日(31.03.2017) JP

(71) 出願人: 積水化学工業株式会社 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5308565 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 河田 晋治 (KAWADA, Shinji); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP).
進藤 郁 (SHINDO, Kaoru); 〒3490198 埼玉県

蓮田市大字黒浜3535 積水化学工業株式会社内 Saitama (JP).

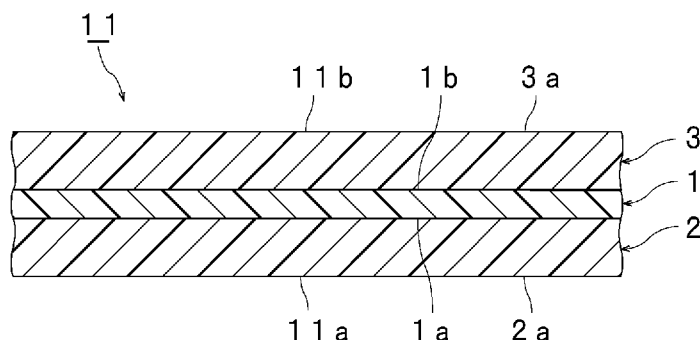
(74) 代理人: 特許業務法人 宮▲崎▼・目次特許事務所 (MIYAZAKI & METSUGI); 〒5400028 大阪府大阪市中央区常盤町1丁目3番8号 中央大通F Nビル Osaka (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS,

(54) Title: INTERLAYER FOR LAMINATED GLASS, AND LAMINATED GLASS

(54) 発明の名称: 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス



(57) Abstract: An interlayer for laminated glass is provided which is capable of improving the bending rigidity of a laminated glass over a wide range of temperatures, and which is capable of improving the penetration resistance of the laminated glass. An interlayer for laminated glass according to the present invention is provided with a phase separation structure which includes: a polyvinyl acetal resin; a polymer of a polymerizable component including a (meth)acrylate compound having two or more (meth)acryloyl groups; and a plasticizer. The content of the polymer is at least 85 but not more than 160 parts by weight per 100 parts by weight of the polyvinyl acetal resin. The content of the plasticizer is at least 3 but less than 15 parts by weight per a total of 100 parts by weight of the polyvinyl acetal resin and the polymer.

MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

- 一 国際調査報告（条約第21条(3)）

(57) 要約：合わせガラスの曲げ剛性を広い温度範囲に渡り高めることができ、かつ合わせガラスの耐貫通性を高めることができる合わせガラス用中間膜を提供する。本発明に係る合わせガラス用中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と、（メタ）アクリロイル基を2個以上有する（メタ）アクリレート化合物を含む重合性成分の重合体と、可塑剤とを含み、前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、前記重合体の含有量が85重量部以上160重量部以下であり、前記ポリビニルアセタール樹脂と前記重合体との合計100重量部に対して、前記可塑剤の含有量が3重量部以上15重量部未満であり、相分離構造を有する。

明 細 書

発明の名称： 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス

技術分野

[0001] 本発明は、合わせガラスを得るために用いられる合わせガラス用中間膜に関する。また、本発明は、上記合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスに関する。

背景技術

[0002] 合わせガラスは、外部衝撃を受けて破損してもガラスの破片の飛散量が少なく、安全性に優れている。このため、上記合わせガラスは、自動車、鉄道車両、航空機、船舶及び建築物等に広く使用されている。上記合わせガラスは、2つのガラス板の間に合わせガラス用中間膜を挟み込むことにより、製造されている。

[0003] 上記合わせガラス用中間膜の一例として、下記の特許文献1には、アセタール化度が60～85モル%のポリビニルアセタール樹脂100重量部と、アルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩の内の少なくとも一種の金属塩0.001～1.0重量部と、30重量部を超える可塑剤とを含む遮音層が開示されている。この遮音層は、単層で中間膜として用いられ得る。

[0004] さらに、下記の特許文献1には、上記遮音層と他の層とが積層された多層の中間膜も記載されている。遮音層に積層される他の層は、アセタール化度が60～85モル%のポリビニルアセタール樹脂100重量部と、アルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩の内の少なくとも一種の金属塩0.001～1.0重量部と、30重量部以下である可塑剤とを含む。

[0005] 下記の特許文献2には、33℃以上のガラス転移温度を有するポリマー層である中間膜が開示されている。特許文献2では、上記ポリマー層が、厚みが4.0mm以下であるガラス板の間に配置されることが記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：WO 2014／050746A1

特許文献2：US 2013／0236711A1

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 特許文献1，2に記載のような従来の中間膜を用いた合わせガラスでは、常温での曲げ剛性が低いことがある。このため、例えば合わせガラスが窓ガラスとして、自動車のサイドドアに使用される場合には、合わせガラスを固定する枠がなく、合わせガラスの剛性が低いことに起因する撓みが原因で、窓ガラスの開閉に支障をきたすことがある。

[0008] また、近年、合わせガラスを軽量化するために、ガラス板の厚みを薄くすることが求められている。2つのガラス板の間に中間膜が挟み込まれた合わせガラスにおいて、ガラス板の厚みを薄くすると、曲げ剛性を十分に高く維持することが極めて困難であるという問題がある。

[0009] 例えば、ガラス板の厚みが薄くても、中間膜に起因して合わせガラスの曲げ剛性を高めることができれば、合わせガラスを軽量化することができる。合わせガラスが軽量であると、合わせガラスに用いる材料の量を少なくすることができ、環境負荷を低減することができる。さらに、軽量である合わせガラスを自動車に用いると、燃費を向上させることができ、結果として環境負荷を低減することができる。

[0010] さらに、自動車等に用いられた合わせガラスは、65℃程度のかかなり高温になる場合がある。また、ガラス板の厚みが薄いと、中間膜の剛性が大きく影響して、合わせガラスの高温での曲げ剛性が低くなりやすい。従来の中間膜では、65℃程度の高温での合わせガラスの曲げ剛性を十分に高めることは困難である。

[0011] また、中間膜を用いた合わせガラスでは、曲げ剛性が高いことに加えて、耐貫通性も高いことが望まれる。

[0012] 従来の中間膜では、高い曲げ剛性と、高い耐貫通性のうち、1つではなく、双方を良好にすることは困難である。

[0013] 本発明の目的は、合わせガラスの曲げ剛性を広い温度範囲に渡り高めることができ、かつ合わせガラスの耐貫通性を高めることができる合わせガラス用中間膜を提供することである。また、本発明は、上記合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスを提供することも目的とする。

課題を解決するための手段

[0014] 本発明の広い局面によれば、ポリビニルアセタール樹脂と、（メタ）アクリロイル基を2個以上有する（メタ）アクリレート化合物を含む重合性成分の重合体と、可塑剤とを含み、前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、前記重合体の含有量が85重量部以上160重量部以下であり、前記ポリビニルアセタール樹脂と前記重合体との合計100重量部に対して、前記可塑剤の含有量が3重量部以上15重量部未満であり、相分離構造を有する、合わせガラス用中間膜（以下、中間膜と記載することがある）が提供される。

[0015] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、前記重合体を構成する重合性成分100重量%中、（メタ）アクリロイル基を2個以上有する（メタ）アクリレート化合物と、（メタ）アクリロイル基を2個以上有する（メタ）アクリレート化合物以外の（メタ）アクリロイル基を有する重合性化合物との合計の量が50重量%以上であり、前記重合体が、アクリル重合体である。

[0016] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、前記ポリビニルアセタール樹脂と前記重合体との合計100重量部に対して、前記可塑剤の含有量が5重量部以上である。

[0017] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、前記ポリビニルアセタール樹脂と前記重合体との合計100重量部に対して、前記可塑剤の含有量が8重量部以下である。

[0018] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、前記ポリビニルアセタール樹脂と前記重合体とが架橋している。

[0019] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、厚みが3mm以下である。

[0020] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、中間膜は、厚みが1.6mm

以下である第1のガラス板を用いて、前記第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられる。

[0021] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、中間膜は、第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられ、前記第1のガラス板の厚みと前記第2のガラス板の厚みとの合計が3.5 mm以下である。

[0022] 本発明の広い局面によれば、第1の合わせガラス部材と、第2の合わせガラス部材と、上述した合わせガラス用中間膜とを備え、前記第1の合わせガラス部材と前記第2の合わせガラス部材との間に、前記合わせガラス用中間膜が配置されている、合わせガラスが提供される。

[0023] 本発明に係る合わせガラスのある特定の局面では、前記第1の合わせガラス部材が第1のガラス板であり、前記第1のガラス板の厚みが1.6 mm以下である。

[0024] 本発明に係る合わせガラスのある特定の局面では、前記第1の合わせガラス部材が第1のガラス板であり、前記第2の合わせガラス部材が第2のガラス板であり、前記第1のガラス板の厚みと前記第2のガラス板の厚みとの合計が3.5 mm以下である。

発明の効果

[0025] 本発明に係る合わせガラス用中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と、（メタ）アクリロイル基を2個以上有する（メタ）アクリレート化合物を含む重合性成分の重合体と、可塑剤とを含む。本発明に係る合わせガラス用中間膜では、上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、上記重合体の含有量が85重量部以上160重量部以下であり、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体との合計100重量部に対して、上記可塑剤の含有量が3重量部以上15重量部未満である。本発明に係る合わせガラス用中間膜は、相分離構造を有する。本発明に係る合わせガラス用中間膜では、上記の構成が備えられているので、本発明に係る合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスの曲げ剛性を広い温度範囲に渡り高めることができ、かつ合わせ

ガラスの耐貫通性を高めることができる。

図面の簡単な説明

[0026] [図1]図1は、本発明の第1の実施形態に係る合わせガラス用中間膜を模式的に示す断面図である。

[図2]図2は、本発明の第2の実施形態に係る合わせガラス用中間膜を模式的に示す断面図である。

[図3]図3は、図1に示す合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスの一例を模式的に示す断面図である。

[図4]図4は、図2に示す合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスの一例を模式的に示す断面図である。

[図5]図5は、曲げ剛性の測定方法を説明するための模式図である。

発明を実施するための形態

[0027] 以下、本発明を詳細に説明する。

[0028] (合わせガラス用中間膜)

本発明に係る合わせガラス用中間膜（以下、中間膜と記載することがある）は、1層の構造又は2層以上の構造を有する。本発明に係る中間膜は、1層の構造を有していてもよく、2層以上の構造を有していてもよい。本発明に係る中間膜は、2層の構造を有していてもよく、2層以上の構造を有していてもよく、3層の構造を有していてもよく、3層以上の構造を有していてもよい。本発明に係る中間膜は、第1の層を備える。本発明に係る中間膜は、第1の層のみを備える単層の中間膜であってもよく、第1の層と他の層とを備える多層の中間膜であってもよい。

[0029] 本発明に係る中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と、（メタ）アクリロイル基を2個以上有する（メタ）アクリレート化合物を含む重合性成分の重合体（以下、重合体Xと記載することがある）と、可塑剤とを含む。上記（メタ）アクリロイル基を2個以上有する（メタ）アクリレート化合物は、重合性化合物である。上記（メタ）アクリロイル基を2個以上有する（メタ）アクリレート化合物は、上記重合体Xを構成する重合性成分の一部又は全部

として用いられている。本発明に係る中間膜では、ポリビニルアセタール樹脂以外の第2の樹脂として、上記重合体Xが用いられている。

[0030] 本発明に係る中間膜では、上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、上記重合体Xの含有量が85重量部以上160重量部以下である。

[0031] 本発明に係る中間膜では、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体との合計100重量部に対して、上記可塑剤の含有量が3重量部以上15重量部未満である。

[0032] 本発明に係る中間膜は、相分離構造を有する。

[0033] 本発明に係る中間膜では、上記の構成が備えられているので、本発明に係る中間膜を用いた合わせガラスの高温での曲げ剛性を高めることができる。特に、65℃での曲げ剛性を高めることができる。さらに、23℃での曲げ剛性を高めることができる。また、合わせガラスを得るために、中間膜は、第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されることが多い。第1のガラス板の厚みが薄くても、本発明に係る中間膜の使用により、合わせガラスの曲げ剛性を十分に高くすることができる。また、第1のガラス板と第2のガラス板との双方の厚みが薄くても、本発明に係る中間膜の使用により、合わせガラスの曲げ剛性を十分に高くすることができる。なお、第1のガラス板と第2のガラス板との双方の厚みが厚いと、合わせガラスの曲げ剛性はより一層高くなる。

[0034] 従来の中間膜では、常温及び高温を含む広い温度範囲に渡り、曲げ剛性を十分に高めることは困難である。例えば、常温での曲げ剛性が高くても、高温での曲げ剛性が低かったり、高温での曲げ剛性が高くても、常温での曲げ剛性が低かったりする。これに対して、本発明では、広い温度範囲（例えば、23℃及び65℃）に渡り、曲げ剛性を高めることができる。

[0035] さらに、本発明に係る中間膜では、上記の構成が備えられているので、本発明に係る中間膜を用いた合わせガラスの耐貫通性を高めることができる。

[0036] 広い温度範囲に渡る曲げ剛性、及び、耐貫通性を高める観点から、上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、上記重合体Xの含有量は、

85重量部以上160重量部以下である。広い温度範囲に渡る曲げ剛性、及び、耐貫通性をより一層高める観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、上記重合体Xの含有量は、好ましくは90重量部以上、好ましくは120重量部以下である。

[0037] 広い温度範囲に渡る曲げ剛性、及び、耐貫通性を高める観点から、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体との合計100重量部に対して、上記可塑剤の含有量は、3重量部以上15重量部未満である。耐貫通性をより一層高める観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体との合計100重量部に対して、上記可塑剤の含有量は、好ましくは4重量部以上、より好ましくは5重量部以上である。広い温度範囲に渡る曲げ剛性をより一層高める観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体との合計100重量部に対して、上記可塑剤の含有量は、好ましくは13重量部以下、より好ましくは8重量部以下である。

[0038] 広い温度範囲に渡る曲げ剛性、及び、耐貫通性を高める観点から、上記中間膜は、相分離構造を有する。広い温度範囲に渡る曲げ剛性、及び、耐貫通性をより一層高める観点からは、上記相分離構造において、上記重合体Xが島部（ドメイン）であることが好ましい。本発明において上記の効果が奏される1つの要因として、相分離構造によって、エネルギー分配が円滑に進むためであると考えられる。

[0039] 上記ポリビニルアセタール樹脂がドメインを取り囲んでいることが好ましく、上記ポリビニルアセタール樹脂がマトリックスであることが好ましい。上記相分離構造は、共連続構造又は海島構造であることが好ましい。上記相分離構造は、共連続構造であってもよく、海島構造であってもよい。上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体Xとが異なる相に含まれることが好ましい。上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体Xとで、相分離構造が形成されていることが好ましい。海島構造の場合に、上記ポリビニルアセタール樹脂が海部であり、かつ上記重合体Xが島部であってもよく、上記重合体Xが海部であり、かつ上記ポリビニルアセタール樹脂が島部であってもよい。

。上記相分離構造において、上記ポリビニルアセタール樹脂は連なっているもよく（連続した構造を有しているもよく）、上記重合体Xは連なっているもよく（連続した構造を有しているもよく）、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体Xとが共連続構造を形成しているもよい。上記相分離構造において、上記ポリビニルアセタール樹脂が網目状に存在しているもよく、上記重合体Xが網目状に存在しているもよい。本発明の効果に優れることから、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体Xとが海島構造又は共連続構造を有することが好ましい。すなわち、上記相分離構造において、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体Xとが海島構造又は共連続構造を形成していることが好ましい。

[0040] 上記相分離構造において、島部の径の平均は、好ましくは10nm以上、より好ましくは15nm以上、更に好ましくは20nm以上、特に好ましくは30nm以上、好ましくは13μm以下、より好ましくは10μm以下、更に好ましくは2μm以下、特に好ましくは1μm以下である。1つあたりの島部の径は、最大径を示し、島部の径の平均は、複数の島部の径（最大径）を平均することにより求められる。

[0041] 上記中間膜は、2層以上の構造を有しているもよく、第1の層に加えて第2の層を備えているもよい。上記中間膜は、第2の層をさらに備えることが好ましい。上記中間膜が上記第2の層を備える場合に、上記第1の層の第1の表面側に、上記第2の層が配置される。

[0042] 上記中間膜は、3層以上の構造を有しているもよく、第1の層及び第2の層に加えて第3の層を備えているもよい。上記中間膜は、第3の層をさらに備えることが好ましい。上記中間膜が上記第2の層及び上記第3の層を備える場合に、上記第1の層の上記第1の表面とは反対の第2の表面側に、上記第3の層が配置される。

[0043] 上記第2の層の上記第1の層側とは反対の表面は、合わせガラス部材又はガラス板が積層される表面であることが好ましい。上記第2の層に積層されるガラス板の厚みは好ましくは1.6mm以下、より好ましくは1.3mm

以下である。上記第1の層の第1の表面（上記第2の層側の表面）とは反対の第2の表面は、合わせガラス部材又はガラス板が積層される表面であってもよい。上記第1の層に積層されるガラス板の厚みは好ましくは1.6 mm以下、より好ましくは1.3 mm以下である。上記第3の層の上記第1の層側とは反対の表面は、合わせガラス部材又はガラス板が積層される表面であることが好ましい。上記第3の層に積層されるガラス板の厚みは好ましくは1.6 mm以下、より好ましくは1.3 mm以下である。

[0044] 上記中間膜は、第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために好適に用いられる。中間膜に起因して曲げ剛性を十分に高くすることができるので、上記第1のガラス板の厚みと上記第2のガラス板の厚みとの合計は好ましくは3.5 mm以下、より好ましくは3 mm以下である。上記中間膜は、第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために好適に用いられる。中間膜に起因して曲げ剛性を十分に高くすることができるので、上記中間膜は、厚みが1.6 mm以下（好ましくは1.3 mm以下）である第1のガラス板を用いて、該第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために好適に用いられる。上記中間膜は、厚みが1.6 mm以下（好ましくは1.3 mm以下）である第1のガラス板と厚みが1.6 mm以下（好ましくは1.3 mm以下）である第2のガラス板とを用いて、上記第1のガラス板と上記第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るためにより好適に用いられる。この場合にも、中間膜に起因して曲げ剛性を十分に高くすることができる。

[0045] 以下、図面を参照しつつ、本発明の具体的な実施形態を説明する。

[0046] 図1は、本発明の第1の実施形態に係る合わせガラス用中間膜を模式的に示す断面図である。

[0047] 図1に示す中間膜11は、2層以上の構造を有する多層の中間膜である。中間膜11は、合わせガラスを得るために用いられる。中間膜11は、合わせガラス用中間膜である。中間膜11は、第1の層1と、第2の層2と、第

3の層3とを備える。第1の層1の第1の表面1aに、第2の層2が配置されており、積層されている。第1の層1の第1の表面1aとは反対の第2の表面1bに、第3の層3が配置されており、積層されている。第1の層1は中間層である。第2の層2及び第3の層3はそれぞれ、保護層であり、本実施形態では表面層である。第1の層1は、第2の層2と第3の層3との間に配置されており、挟み込まれている。従って、中間膜11は、第2の層2と第1の層1と第3の層3とがこの順で積層された多層構造（第2の層2／第1の層1／第3の層3）を有する。

[0048] なお、第2の層2と第1の層1との間、及び、第1の層1と第3の層3との間にはそれぞれ、他の層が配置されていてもよい。第2の層2と第1の層1、及び、第1の層1と第3の層3とはそれぞれ、直接積層されていることが好ましい。他の層として、ポリエチレンテレフタレート等を含む層が挙げられる。

[0049] 図2は、本発明の第2の実施形態に係る合わせガラス用中間膜を模式的に示す断面図である。

[0050] 図2に示す中間膜11Aは、1層の構造を有する単層の中間膜である。中間膜11Aは、第1の層である。中間膜11Aは、合わせガラスを得るために用いられる。中間膜11Aは、合わせガラス用中間膜である。

[0051] 以下、本発明に係る中間膜を構成する上記第1の層、上記第2の層及び上記第3の層の詳細、並びに上記第1の層、上記第2の層及び上記第3の層に含まれる各成分の詳細を説明する。

[0052] （樹脂）

中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と、（メタ）アクリロイル基を2個以上有する（メタ）アクリレート化合物を含む重合性成分の重合体Xとを含む。上記第1の層、上記第2の層及び上記第3の層はそれぞれ、ポリビニルアセタール樹脂を含むことが好ましい。上記第1の層、上記第2の層及び上記第3の層はそれぞれ、上記重合体Xを含むことが好ましい。上記ポリビニルアセタール樹脂は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されて

もよい。上記重合体Xは、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0053] 樹脂成分と可塑剤との親和性を効果的に高め、耐貫通性を効果的に高める観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂は、ポリビニルアセトアセタール樹脂、ポリビニルブチラール樹脂、ポリビニルベンジルアセタール樹脂又はポリビニルクミンアセタール樹脂であることが好ましい。40℃での曲げ剛性をより一層高める観点からは、ポリビニルアセトアセタール樹脂が好ましい。本明細書において、ポリビニルアセタール樹脂には、アセトアセタール化された樹脂、ベンジルアセタール化された樹脂及びクミンアセタール化された樹脂が含まれる。

[0054] 広い温度範囲に渡る曲げ剛性、及び、耐貫通性をより一層高める観点からは、中間膜は、上記重合体Xとして、ポリオレフィン樹脂、アクリル重合体、ウレタン重合体、シリコン重合体、ゴム、又は酢酸ビニル重合体を含むことが好ましく、アクリル重合体を含むことがより好ましい。上記アクリル重合体は、重合性成分として、(メタ)アクリロイル基を有する重合性化合物を50重量%以上用いて得られる重合体である。

[0055] 上記重合体Xを構成する重合性成分100重量%中、(メタ)アクリロイル基を2個以上有する(メタ)アクリレート化合物と、(メタ)アクリロイル基を2個以上有する(メタ)アクリレート化合物以外の(メタ)アクリロイル基を有する重合性化合物との合計の量を、合計量Aとする。広い温度範囲に渡る曲げ剛性、及び、遮音性をより一層高める観点からは、上記合計量Aは好ましくは50重量%以上、より好ましくは60重量%以上、更に好ましくは70重量%以上、特に好ましくは80重量%以上、最も好ましくは90重量%以上である。上記合計量Aが50重量%以上である場合に、得られる重合体Xは、アクリル重合体である。

[0056] 上記(メタ)アクリロイル基を2個以上有する(メタ)アクリレート化合物としては、ジエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ジプロピレングリコールジ(メタ)アクリレート、トリエチレングリコールジ(メタ)ア

クリレート、トリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、テトラエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、テトラプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、ポリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ポリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、3-メチル-1, 5-ペンタンジオールジ（メタ）アクリレート、1, 6-ヘキサンジオールジ（メタ）アクリレート、2-ブチル-2-エチル-1, 3-プロパンジオールジ（メタ）アクリレート、1, 9-ノナンジオールジ（メタ）アクリレート、ジメチロールトリシクロデカンジ（メタ）アクリレート、ヒドロキシピバリン酸ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート、トリテトラメチレングリコールジ（メタ）アクリレート、エトキシ化ビスフェノールAジ（メタ）アクリレート等の2官能の（メタ）アクリレート化合物；ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、トリメチロールエタントリ（メタ）アクリレートジ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、 ϵ -カプロラクトン変性トリス-（2-（メタ）アクリロキシエチル）イソシアヌレート、リン酸トリス〔2-（（メタ）アクリロイルオキシ）エチル〕等の3官能の（メタ）アクリレート化合物；ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、エトキシ化ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート等の4官能以上の（メタ）アクリレート化合物等が挙げられる。

[0057] 上記（メタ）アクリロイル基を2個以上有する（メタ）アクリレート化合物は、エポキシ（メタ）アクリレート化合物及びウレタン（メタ）アクリレート化合物であってもよい。

[0058] 上記重合体Xは、（メタ）アクリル酸エステルを含む重合性成分の重合体であることが好ましい。上記重合体Xは、ポリ（メタ）アクリル酸エステルであることが好ましい。

[0059] 上記ポリ（メタ）アクリル酸エステルは特に限定されない。上記ポリ（メタ）アクリル酸エステルとしては、例えば、ポリ（メタ）アクリル酸メチル、ポリ（メタ）アクリル酸エチル、ポリ（メタ）アクリル酸n-プロピル、ポリ（メタ）アクリル酸i-プロピル、ポリ（メタ）アクリル酸n-ブチル、ポリ（メタ）アクリル酸i-ブチル、ポリ（メタ）アクリル酸t-ブチル、ポリ（メタ）アクリル酸2-エチルヘキシル、ポリ（メタ）アクリル酸2-ヒドロキシエチル、ポリ（メタ）アクリル酸2-ヒドロキシプロピル、ポリ（メタ）アクリル酸4-ヒドロキシブチル、ポリ（メタ）アクリル酸グリシジル、ポリ（メタ）アクリル酸オクチル、ポリ（メタ）アクリル酸プロピル、ポリ（メタ）アクリル酸2-エチルオクチル、ポリ（メタ）アクリル酸ノニル、ポリ（メタ）アクリル酸イソノニル、ポリ（メタ）アクリル酸デシル、ポリ（メタ）アクリル酸イソデシル、ポリ（メタ）アクリル酸ラウリル、ポリ（メタ）アクリル酸イソテトラデシル、ポリ（メタ）アクリル酸シクロヘキシル、ポリ（メタ）アクリル酸イソボルニル、及びポリ（メタ）アクリル酸ベンジル等が挙げられる。また、極性基を有する（メタ）アクリル酸、及び、（メタ）アクリル酸エステルとしては、（メタ）アクリル酸、（メタ）アクリル酸2-ヒドロキシエチル、（メタ）アクリル酸4-ヒドロキシブチル、及び（メタ）アクリル酸グリシジル等が挙げられる。動的粘弾性スペクトルにおいて、 $\tan \delta$ の最大値を示す温度を適度な範囲内に容易に制御することができることから、ポリアクリル酸エステルが好ましく、ポリアクリル酸エチル、ポリアクリル酸n-ブチル、ポリアクリル酸2-エチルヘキシル又はポリアクリル酸オクチルがより好ましい。これらの好ましいポリ（メタ）アクリル酸エステルの使用により、中間膜の生産性と中間膜の特性のバランスとがより一層良好になる。上記ポリ（メタ）アクリル酸エステルは1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0060] 上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体Xとが架橋していることが好ましい。上記中間膜は、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体Xとを、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体Xとが架橋した架橋物として

含んでいてもよい。上記熱可塑性樹脂は架橋構造を有してもよい。上記架橋構造により、せん断貯蔵弾性率を制御でき、優れた可撓性と高い強度とを併せ持つ中間膜を作製することができる。

[0061] 樹脂を架橋させる方法としては、以下の方法等が挙げられる。樹脂のポリマー構造中に互いに反応する官能基を導入しておき、架橋を形成させる方法。樹脂のポリマー構造中に存在する官能基に対して反応する官能基を2つ以上有する架橋剤を用いて架橋させる方法。過酸化物等の水素引き抜き能を有するラジカル発生剤を用いてポリマーを架橋させる方法。電子線照射により架橋させる方法。せん断貯蔵弾性率を制御しやすく、中間膜の生産性が高くなることから、樹脂のポリマー構造中に互いに反応する官能基を導入しておき、架橋を形成させる方法が好適である。

[0062] 中間膜が上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体Xとの架橋物を含む場合に、ポリビニルアセタール樹脂の存在下で、(メタ)アクリロイル基を2個以上有する(メタ)アクリレート化合物を含む重合性成分を重合させることにより重合体Xを形成し、中間膜を得る工程が行われることが好ましい。この工程により、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体Xとが架橋している構造が形成される。

[0063] 上記第1の層(単層の中間膜を含む)は、熱可塑性樹脂(以下、熱可塑性樹脂(1)と記載することがある)を含むことが好ましい。上記第1の層は、熱可塑性樹脂(1)として、ポリビニルアセタール樹脂(以下、ポリビニルアセタール樹脂(1)と記載することがある)を含むことが好ましい。上記第1の層のみの単層の中間膜である場合に、中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂(1)を含む。上記第2の層は、熱可塑性樹脂(以下、熱可塑性樹脂(2)と記載することがある)を含むことが好ましい。上記第2の層は、熱可塑性樹脂(2)として、ポリビニルアセタール樹脂(以下、ポリビニルアセタール樹脂(2)と記載することがある)を含むことが好ましい。上記第3の層は、熱可塑性樹脂(以下、熱可塑性樹脂(3)と記載することがある)を含むことが好ましい。上記第3の層は、熱可塑性樹脂(3)として、

ポリビニルアセタール樹脂（以下、ポリビニルアセタール樹脂（３）と記載することがある）を含むことが好ましい。上記ポリビニルアセタール樹脂（１）と上記ポリビニルアセタール樹脂（２）と上記ポリビニルアセタール樹脂（３）とは、同一であってもよく、異なってもよい。遮音性がより一層高くなることから、上記ポリビニルアセタール樹脂（１）は、上記ポリビニルアセタール樹脂（２）及び上記ポリビニルアセタール樹脂（３）と異なっていることが好ましい。上記熱可塑性樹脂（１）と上記熱可塑性樹脂（２）と上記熱可塑性樹脂（３）とは、同一であってもよく、異なってもよい。上記ポリビニルアセタール樹脂（１）、上記ポリビニルアセタール樹脂（２）及び上記ポリビニルアセタール樹脂（３）はそれぞれ、１種のみが用いられてもよく、２種以上が併用されてもよい。上記熱可塑性樹脂（１）、上記熱可塑性樹脂（２）及び上記熱可塑性樹脂（３）はそれぞれ、１種のみが用いられてもよく、２種以上が併用されてもよい。

[0064] 上記熱可塑性樹脂としては、ポリビニルアセタール樹脂、ポリアクリル樹脂、エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂、エチレン-アクリル酸共重合体樹脂、ポリウレタン樹脂及びポリビニルアルコール樹脂等が挙げられる。これら以外の熱可塑性樹脂を用いてもよい。

[0065] 上記ポリビニルアセタール樹脂は、ポリビニルアルコールのアセタール化合物であることが好ましい。上記ポリビニルアルコールは、例えば、ポリ酢酸ビニルをけん化することにより得られる。上記ポリビニルアルコールのけん化度は、一般に７０～９９．９モル％である。

[0066] 上記ポリビニルアルコール（ＰＶＡ）の平均重合度は、好ましくは２００以上、より好ましくは５００以上、より一層好ましくは１５００以上、更に好ましくは１６００以上、特に好ましくは２６００以上、最も好ましくは２７００以上、好ましくは５０００以下、より好ましくは４０００以下、更に好ましくは３５００以下である。上記平均重合度が上記下限以上であると、合わせガラスの耐貫通性と曲げ剛性とがより一層高くなる。上記平均重合度が上記上限以下であると、中間膜の成形が容易になる。

- [0067] 上記ポリビニルアルコールの平均重合度は、J I S K 6 7 2 6「ポリビニルアルコール試験方法」に準拠した方法により求められる。
- [0068] 上記ポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール基の炭素数は2～10であることが好ましく、2～5であることがより好ましく、2、3又は4であることが更に好ましい。また、上記ポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール基の炭素数が2又は4であることが好ましく、この場合には、ポリビニルアセタール樹脂の生産が効率的である。
- [0069] アルデヒドとして、一般には、炭素数が1～10のアルデヒドが好適に用いられる。上記炭素数が1～10のアルデヒドとしては、例えば、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、*n*-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、*n*-バレルアルデヒド、2-エチルブチルアルデヒド、*n*-ヘキシルアルデヒド、*n*-オクチルアルデヒド、*n*-ノニルアルデヒド、*n*-デシルアルデヒド、クミンアルデヒド、及びベンズアルデヒド等が挙げられる。アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、*n*-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、*n*-ヘキシルアルデヒド又は*n*-バレルアルデヒドが好ましい。アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、*n*-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド又は*n*-バレルアルデヒドがより好ましく、アセトアルデヒド、*n*-ブチルアルデヒド又は*n*-バレルアルデヒドが更に好ましい。上記アルデヒドは、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。
- [0070] 上記ポリビニルアセタール樹脂(1)を単層の中間膜の一部として用いる場合には、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率(水酸基量)は、以下の範囲が好ましい。上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率(水酸基量)は、好ましくは25モル%以上、より好ましくは28モル%以上、より好ましくは30モル%以上、より一層好ましくは31.5モル%以上、更に好ましくは32モル%以上、特に好ましくは33モル%以上、である。上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率(水酸基量)は、好ましくは37モル%以下、より好ましくは36.5モル%

以下、更に好ましくは36モル%以下である。上記水酸基の含有率が上記下限以上であると、曲げ剛性がより一層高くなり、中間膜の接着力がより一層高くなる。また、上記水酸基の含有率が上記上限以下であると、中間膜の柔軟性が高くなり、中間膜の取扱いが容易になる。

[0071] 上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率(水酸基量)は、好ましくは17モル%以上、より好ましくは20モル%以上、更に好ましくは22モル%以上、好ましくは28モル%以下、より好ましくは27モル%以下、更に好ましくは25モル%以下、特に好ましくは24モル%以下である。上記ポリビニルアセタール樹脂(1)を多層の中間膜の一部として用いる場合には特に、この水酸基の含有率の下限及び上限を満足することが好ましい。上記水酸基の含有率が上記下限以上であると、中間膜の機械強度がより一層高くなる。特に、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率が20モル%以上であると反応効率が高く生産性に優れ、また28モル%以下であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。また、上記水酸基の含有率が上記上限以下であると、中間膜の柔軟性が高くなり、中間膜の取扱いが容易になる。特に、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率が28モル%以下である中間膜を用いた合わせガラスは曲げ剛性が低くなる傾向にあるが、本発明の構成によって、曲げ剛性を顕著に改善できる。

[0072] 上記ポリビニルアセタール樹脂(2)及び上記ポリビニルアセタール樹脂(3)の水酸基の各含有率は、好ましくは25モル%以上、より好ましくは28モル%以上、より好ましくは30モル%以上、より一層好ましくは31.5モル%以上、更に好ましくは32モル%以上、特に好ましくは33モル%以上である。上記ポリビニルアセタール樹脂(2)及び上記ポリビニルアセタール樹脂(3)の水酸基の各含有率は、好ましくは37モル%以下、より好ましくは36.5モル%以下、更に好ましくは36モル%以下である。上記水酸基の含有率が上記下限以上であると、曲げ剛性がより一層高くなり、中間膜の接着力がより一層高くなる。また、上記水酸基の含有率が上記上

限以下であると、中間膜の柔軟性が高くなり、中間膜の取扱いが容易になる。

[0073] 遮音性をより一層高める観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂（１）の水酸基の含有率は、上記ポリビニルアセタール樹脂（２）の水酸基の含有率よりも低いことが好ましい。遮音性をより一層高める観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂（１）の水酸基の含有率は、上記ポリビニルアセタール樹脂（３）の水酸基の含有率よりも低いことが好ましい。遮音性を更に一層高める観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂（１）の水酸基の含有率と、上記ポリビニルアセタール樹脂（２）の水酸基の含有率との差の絶対値は、好ましくは１モル％以上、より好ましくは５モル％以上、更に好ましくは９モル％以上、特に好ましくは１０モル％以上、最も好ましくは１２モル％以上である。遮音性を更に一層高める観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂（１）の水酸基の含有率と、上記ポリビニルアセタール樹脂（３）の水酸基の含有率との差の絶対値は、好ましくは１モル％以上、より好ましくは５モル％以上、更に好ましくは９モル％以上、特に好ましくは１０モル％以上、最も好ましくは１２モル％以上である。上記ポリビニルアセタール樹脂（１）の水酸基の含有率と、上記ポリビニルアセタール樹脂（２）の水酸基の含有率との差の絶対値は、好ましくは２０モル％以下である。上記ポリビニルアセタール樹脂（１）の水酸基の含有率と、上記ポリビニルアセタール樹脂（３）の水酸基の含有率との差の絶対値は、好ましくは２０モル％以下である。

[0074] 上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率は、水酸基が結合しているエチレン基量を、主鎖の全エチレン基量で除算して求めたモル分率を百分率で示した値である。上記水酸基が結合しているエチレン基量は、例えば、ＪＩＳ Ｋ ６ ７ ２ ８「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠して測定できる。

[0075] 上記ポリビニルアセタール樹脂（１）のアセチル化度（アセチル基量）は、好ましくは０．０１モル％以上、より好ましくは０．１モル％以上、より

一層好ましくは7モル%以上、更に好ましくは9モル%以上、好ましくは30モル%以下、より好ましくは25モル%以下、更に好ましくは24モル%以下である。上記アセチル化度が上記下限以上であると、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤や他の熱可塑性樹脂との相溶性が高くなり、遮音性や耐貫通性により一層優れ、長期間に渡り性能がより一層安定する。上記アセチル化度が上記上限以下であると、中間膜及び合わせガラスの耐湿性が高くなる。特に、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)のアセチル化度が0.1モル%以上、25モル%以下であると、耐貫通性により一層優れる。

[0076] 上記ポリビニルアセタール樹脂(2)及び上記ポリビニルアセタール樹脂(3)の各アセチル化度は、好ましくは0.01モル%以上、より好ましくは0.5モル%以上、好ましくは10モル%以下、より好ましくは2モル%以下である。上記アセチル化度が上記下限以上であると、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤との相溶性が高くなる。上記アセチル化度が上記上限以下であると、中間膜及び合わせガラスの耐湿性が高くなる。

[0077] 上記アセチル化度は、アセチル基が結合しているエチレン基量を、主鎖の全エチレン基量で除算して求めたモル分率を百分率で示した値である。上記アセチル基が結合しているエチレン基量は、例えば、JIS K6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠して測定できる。

[0078] 上記ポリビニルアセタール樹脂(1)のアセタール化度(ポリビニルブチラール樹脂の場合にはブチラール化度)は、好ましくは47モル%以上、より好ましくは60モル%以上、更に好ましくは68モル%以上、好ましくは85モル%以下、より好ましくは80モル%以下、更に好ましくは75モル%以下である。上記アセタール化度が上記下限以上であると、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤との相溶性が高くなる。上記アセタール化度が上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂を製造するために必要な反応時間が短くなる。

[0079] 上記ポリビニルアセタール樹脂(2)及び上記ポリビニルアセタール樹脂(3)の各アセタール化度(ポリビニルブチラール樹脂の場合にはブチラー

ル化度)は、好ましくは55モル%以上、より好ましくは60モル%以上、好ましくは75モル%以下、より好ましくは71モル%以下である。上記アセタール化度が上記下限以上であると、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤との相溶性が高くなる。上記アセタール化度が上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂を製造するために必要な反応時間が短くなる。

[0080] 上記アセタール化度は、以下のようにして求める。まず、主鎖の全エチレン基量から、水酸基が結合しているエチレン基量と、アセチル基が結合しているエチレン基量とを差し引いた値を求める。得られた値を、主鎖の全エチレン基量で除算してモル分率を求める。このモル分率を百分率で示した値がアセタール化度である。

[0081] なお、上記水酸基の含有率(水酸基量)、アセタール化度(ブチラール化度)及びアセチル化度は、JIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により測定された結果から算出することが好ましい。但し、ASTM D 1396-92による測定を用いてもよい。ポリビニルアセタール樹脂がポリビニルブチラール樹脂である場合は、上記水酸基の含有率(水酸基量)、上記アセタール化度(ブチラール化度)及び上記アセチル化度は、JIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により測定された結果から算出され得る。

[0082] (可塑剤)

上記中間膜は、可塑剤を含む。上記第1の層(単層の中間膜を含む)は、可塑剤(以下、可塑剤(1))と記載することがある)を含むことが好ましい。上記第2の層は、可塑剤(以下、可塑剤(2))と記載することがある)を含むことが好ましい。上記第3の層は、可塑剤(以下、可塑剤(3))と記載することがある)を含むことが好ましい。可塑剤の使用により、またポリビニルアセタール樹脂と可塑剤との併用により、耐貫通性により一層優れ、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む層の合わせガラス部材又は他の層に対する接着力が適度に高くなる。上記可塑剤は特に限定されない。上記可塑剤(1)と上記可塑剤(2)と上記可塑剤(3)とは同一であってもよく

、異なってもよい。上記可塑剤（１）、上記可塑剤（２）及び上記可塑剤（３）はそれぞれ、１種のみが用いられてもよく、２種以上が併用されてもよい。

[0083] 上記可塑剤としては、一塩基性有機酸エステル及び多塩基性有機酸エステル等の有機エステル可塑剤、並びに有機リン酸可塑剤及び有機亜リン酸可塑剤などの有機リン酸可塑剤等が挙げられる。有機エステル可塑剤が好ましい。上記可塑剤は液状可塑剤であることが好ましい。

[0084] 上記一塩基性有機酸エステルとしては、グリコールと一塩基性有機酸との反応によって得られたグリコールエステル等が挙げられる。上記グリコールとしては、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール及びトリプロピレングリコール等が挙げられる。上記一塩基性有機酸としては、酪酸、イソ酪酸、カプロン酸、２－エチル酪酸、ヘプチル酸、*n*－オクチル酸、２－エチルヘキシル酸、*n*－ノニル酸及びデシル酸等が挙げられる。

[0085] 上記多塩基性有機酸エステルとしては、多塩基性有機酸と、炭素数４～８の直鎖又は分岐構造を有するアルコールとのエステル化合物等が挙げられる。上記多塩基性有機酸としては、アジピン酸、セバシン酸及びアゼライン酸等が挙げられる。

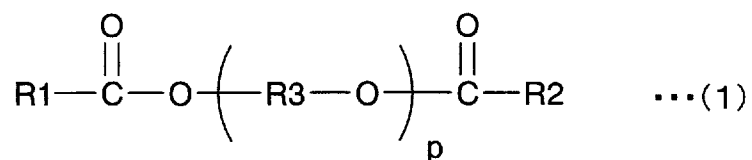
[0086] 上記有機エステル可塑剤としては、トリエチレングリコールジ－２－エチルプロパノエート、トリエチレングリコールジ－２－エチルブチレート、トリエチレングリコールジ－２－エチルヘキサノエート、トリエチレングリコールジカプリレート、トリエチレングリコールジ－*n*－オクタノエート、トリエチレングリコールジ－*n*－ヘプタノエート、テトラエチレングリコールジ－*n*－ヘプタノエート、ジブチルセバケート、ジオクチルアゼレート、ジブチルカルビトールアジペート、エチレングリコールジ－２－エチルブチレート、１，３－プロピレングリコールジ－２－エチルブチレート、１，４－ブチレングリコールジ－２－エチルブチレート、ジエチレングリコールジ－２－エチルブチレート、ジエチレングリコールジ－２－エチルヘキサノエート、ジプロピレングリコールジ－２－エチルブチレート、トリエチレングリ

コールジー 2-エチルペンタノエート、テトラエチレングリコールジー 2-エチルブチレート、ジエチレングリコールジカプリレート、ジエチレングリコールジベンゾエート、ジプロピレングリコールジベンゾエート、マレイン酸ジブチル、アジピン酸ビス(2-ブトキシエチル)、アジピン酸ジブチル、アジピン酸ジイソブチル、アジピン酸 2, 2-ブトキシエトキシエチル、安息香酸グリコールエステル、アジピン酸 1, 3-ブチレングリコールポリエステル、アジピン酸ジヘキシル、アジピン酸ジオクチル、アジピン酸ヘキシルシクロヘキシル、アジピン酸ヘプチルとアジピン酸ノニルとの混合物、アジピン酸ジイソノニル、アジピン酸ジイソデシル、アジピン酸ヘプチルノニル、クエン酸トリブチル、アセチルクエン酸トリブチル、炭酸ジエチル、セバシン酸ジブチル、油変性セバシン酸アルキド、及びリン酸エステルとアジピン酸エステルとの混合物等が挙げられる。これら以外の有機エステル可塑剤を用いてもよい。上述のアジピン酸エステル以外の他のアジピン酸エステルを用いてもよい。

[0087] 上記有機リン酸可塑剤としては、トリブトキシエチルホスフェート、イソデシルフェニルホスフェート、トリクレジルホスフェート及びトリイソプロピルホスフェート等が挙げられる。

[0088] 上記可塑剤は、下記式(1)で表されるジエステル可塑剤であることが好ましい。

[0089] [化1]



[0090] 上記式(1)中、R1及びR2はそれぞれ、炭素数2～10の有機基を表し、R3は、エチレン基、イソプロピレン基又はn-プロピレン基を表し、pは3～10の整数を表す。上記式(1)中のR1及びR2はそれぞれ、炭素数5～10の有機基であることが好ましく、炭素数6～10の有機基であることがより好ましい。

[0091] 上記可塑剤は、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（3GO）、トリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート（3GH）又はトリエチレングリコールジ-2-エチルプロパノエートを含むことが好ましい。上記可塑剤は、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート又はトリエチレングリコールジ-2-エチルブチレートを含むことがより好ましく、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエートを含むことが更に好ましい。

[0092] 上記第2の層において、上記熱可塑性樹脂（2）100重量部（熱可塑性樹脂（2）がポリビニルアセタール樹脂（2）である場合には、ポリビニルアセタール樹脂（2）100重量部）に対する上記可塑剤（2）の含有量を、含有量（2）とする。上記第3の層において、上記熱可塑性樹脂（3）100重量部（熱可塑性樹脂（3）がポリビニルアセタール樹脂（3）である場合には、ポリビニルアセタール樹脂（3）100重量部）に対する上記可塑剤（3）の含有量を、含有量（3）とする。上記含有量（2）及び上記含有量（3）はそれぞれ、好ましくは10重量部以上、より好ましくは15重量部以上、好ましくは40重量部以下、より好ましくは35重量部以下、更に好ましくは32重量部以下、特に好ましくは30重量部以下である。上記含有量（2）及び上記含有量（3）が上記下限以上であると、中間膜の柔軟性が高くなり、中間膜の取扱いが容易になる。上記含有量（2）及び上記含有量（3）が上記上限以下であると、曲げ剛性がより一層高くなる。

[0093] 上記第1の層において、上記熱可塑性樹脂（1）100重量部（熱可塑性樹脂（1）がポリビニルアセタール樹脂（1）である場合には、ポリビニルアセタール樹脂（1）100重量部）に対する上記可塑剤（1）の含有量を、含有量（1）とする。上記含有量（1）は、好ましくは1重量部以上、より好ましくは2重量部以上、より一層好ましくは3重量部以上、更に好ましくは5重量部以上、好ましくは90重量部以下、より好ましくは85重量部以下、更に好ましくは80重量部以下である。上記含有量（1）が上記下限以上であると、中間膜の柔軟性が高くなり、中間膜の取扱いが容易になる。

上記含有量（１）が上記上限以下であると、合わせガラスの耐貫通性がより一層高くなる。上記含有量（１）は、５０重量部以上であってもよく、５５重量部以上であってもよく、６０重量部以上であってもよい。上記含有量（１）は、３０重量部以下であってもよく、２０重量部以下であってもよく、１０重量部以下であってもよい。

[0094] 上記中間膜が２層以上である場合には、合わせガラスの遮音性を高めるために、上記含有量（１）は上記含有量（２）よりも多いことが好ましく、上記含有量（１）は上記含有量（３）よりも多いことが好ましい。特に、上記含有量（１）が５５重量部以上である中間膜を用いた合わせガラスは曲げ剛性が低くなる傾向にあるが、本発明の構成により、曲げ剛性を顕著に改善できる。

[0095] 合わせガラスの遮音性をより一層高める観点からは、上記含有量（２）と上記含有量（１）との差の絶対値、並びに上記含有量（３）と上記含有量（１）との差の絶対値はそれぞれ、好ましくは１０重量部以上、より好ましくは１５重量部以上、更に好ましくは２０重量部以上である。上記含有量（２）と上記含有量（１）との差の絶対値、並びに上記含有量（３）と上記含有量（１）との差の絶対値はそれぞれ、好ましくは８０重量部以下、より好ましくは７５重量部以下、更に好ましくは７０重量部以下である。

[0096] （遮熱性物質）

上記中間膜は、遮熱性物質（遮熱性化合物）を含むことが好ましい。上記第１の層は、遮熱性物質を含むことが好ましい。上記第２の層は、遮熱性物質を含むことが好ましい。上記第３の層は、遮熱性物質を含むことが好ましい。上記遮熱性物質は、１種のみが用いられてもよく、２種以上が併用されてもよい。

[0097] 上記遮熱性物質は、フタロシアニン化合物、ナフタロシアニン化合物及びアントラシアニン化合物の内の少なくとも１種の成分Ｘを含むか、又は遮熱粒子を含むことが好ましい。この場合に、上記成分Ｘと上記遮熱粒子との双方を含んでいてもよい。

[0098] 成分X：

上記中間膜は、フタロシアニン化合物、ナフタロシアニン化合物及びアントラシアニン化合物の内の少なくとも1種の成分Xを含むことが好ましい。上記第1の層は、上記成分Xを含むことが好ましい。上記第2の層は、上記成分Xを含むことが好ましい。上記第3の層は、上記成分Xを含むことが好ましい。上記成分Xは遮熱性物質である。上記成分Xは、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0099] 上記成分Xは特に限定されない。成分Xとして、従来公知のフタロシアニン化合物、ナフタロシアニン化合物及びアントラシアニン化合物を用いることができる。

[0100] 中間膜及び合わせガラスの遮熱性をより一層高くする観点からは、上記成分Xは、フタロシアニン、フタロシアニンの誘導体、ナフタロシアニン及びナフタロシアニンの誘導体からなる群から選択される少なくとも1種であることが好ましく、フタロシアニン及びフタロシアニンの誘導体の内の少なくとも1種であることがより好ましい。

[0101] 遮熱性を効果的に高め、かつ長期間にわたり可視光線透過率をより一層高いレベルで維持する観点からは、上記成分Xは、バナジウム原子又は銅原子を含有することが好ましい。上記成分Xは、バナジウム原子を含有することが好ましく、銅原子を含有することも好ましい。上記成分Xは、バナジウム原子又は銅原子を含有するフタロシアニン及びバナジウム原子又は銅原子を含有するフタロシアニンの誘導体の内の少なくとも1種であることがより好ましい。中間膜及び合わせガラスの遮熱性を更に一層高くする観点からは、上記成分Xは、バナジウム原子に酸素原子が結合した構造単位を有することが好ましい。

[0102] 上記成分Xを含む層（第1の層、第2の層又は第3の層）100重量%中、上記成分Xの含有量は、好ましくは0.001重量%以上、より好ましくは0.005重量%以上、更に好ましくは0.01重量%以上、特に好ましくは0.02重量%以上である。上記成分Xを含む層（第1の層、第2の層

又は第3の層) 100重量%中、上記成分Xの含有量は、好ましくは0.2重量%以下、より好ましくは0.1重量%以下、更に好ましくは0.05重量%以下、特に好ましくは0.04重量%以下である。上記成分Xの含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、遮熱性が十分に高くなり、かつ可視光線透過率が十分に高くなる。例えば、可視光線透過率を70%以上にすることが可能である。

[0103] 遮熱粒子：

上記中間膜は、遮熱粒子を含むことが好ましい。上記第1の層(単層の中間膜を含む)は、上記遮熱粒子を含むことが好ましい。上記第2の層は、上記遮熱粒子を含むことが好ましい。上記第3の層は、上記遮熱粒子を含むことが好ましい。上記遮熱粒子は遮熱性物質である。遮熱粒子の使用により、赤外線(熱線)を効果的に遮断できる。上記遮熱粒子は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0104] 合わせガラスの遮熱性をより一層高める観点からは、上記遮熱粒子は、金属酸化物粒子であることがより好ましい。上記遮熱粒子は、金属の酸化物により形成された粒子(金属酸化物粒子)であることが好ましい。

[0105] 可視光よりも長い波長780nm以上の赤外線は、紫外線と比較して、エネルギー量が小さい。しかしながら、赤外線は熱的作用が大きく、赤外線が物質に吸収されると熱として放出される。このため、赤外線は一般に熱線と呼ばれている。上記遮熱粒子の使用により、赤外線(熱線)を効果的に遮断できる。なお、遮熱粒子とは、赤外線を吸収可能な粒子を意味する。

[0106] 上記遮熱粒子の具体例としては、アルミニウムドープ酸化錫粒子、インジウムドープ酸化錫粒子、アンチモンドープ酸化錫粒子(ATO粒子)、ガリウムドープ酸化亜鉛粒子(GZO粒子)、インジウムドープ酸化亜鉛粒子(IZO粒子)、アルミニウムドープ酸化亜鉛粒子(AZO粒子)、ニオブドープ酸化チタン粒子、ナトリウムドープ酸化タングステン粒子、セシウムドープ酸化タングステン粒子、タリウムドープ酸化タングステン粒子、ルビジウムドープ酸化タングステン粒子、錫ドープ酸化インジウム粒子(ITO粒

子)、錫ドーブ酸化亜鉛粒子、珪素ドーブ酸化亜鉛粒子等の金属酸化物粒子や、六ホウ化ランタン (LaB_6) 粒子等が挙げられる。これら以外の遮熱粒子を用いてもよい。熱線の遮蔽機能が高いため、金属酸化物粒子が好ましく、ATO粒子、GZO粒子、IZO粒子、ITO粒子又は酸化タングステン粒子がより好ましく、ITO粒子又は酸化タングステン粒子が特に好ましい。特に、熱線の遮蔽機能が高く、かつ入手が容易であるので、錫ドーブ酸化インジウム粒子 (ITO粒子) が好ましく、酸化タングステン粒子も好ましい。

[0107] 中間膜及び合わせガラスの遮熱性をより一層高くする観点からは、酸化タングステン粒子は、金属ドーブ酸化タングステン粒子であることが好ましい。上記「酸化タングステン粒子」には、金属ドーブ酸化タングステン粒子が含まれる。上記金属ドーブ酸化タングステン粒子としては、具体的には、ナトリウムドーブ酸化タングステン粒子、セシウムドーブ酸化タングステン粒子、タリウムドーブ酸化タングステン粒子及びルビジウムドーブ酸化タングステン粒子等が挙げられる。

[0108] 中間膜及び合わせガラスの遮熱性をより一層高くする観点からは、セシウムドーブ酸化タングステン粒子が特に好ましい。中間膜及び合わせガラスの遮熱性を更に一層高くする観点からは、該セシウムドーブ酸化タングステン粒子は、式： $\text{Cs}_{0.33}\text{WO}_3$ で表される酸化タングステン粒子であることが好ましい。

[0109] 上記遮熱粒子の平均粒子径は好ましくは $0.01\mu\text{m}$ 以上、より好ましくは $0.02\mu\text{m}$ 以上、好ましくは $0.1\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $0.05\mu\text{m}$ 以下である。平均粒子径が上記下限以上であると、熱線の遮蔽性が十分に高くなる。平均粒子径が上記上限以下であると、遮熱粒子の分散性が高くなる。

[0110] 上記「平均粒子径」は、体積平均粒子径を示す。平均粒子径は、粒度分布測定装置 (日機装社製「UPA-EX150」) 等を用いて測定できる。

[0111] 上記遮熱粒子を含む層 (第1の層、第2の層又は第3の層) 100重量%

中、上記遮熱粒子の含有量は、好ましくは0.01重量%以上、より好ましくは0.1重量%以上、更に好ましくは1重量%以上、特に好ましくは1.5重量%以上である。上記遮熱粒子を含む層（第1の層、第2の層又は第3の層）100重量%中、上記遮熱粒子の含有量は、好ましくは6重量%以下、より好ましくは5.5重量%以下、更に好ましくは4重量%以下、特に好ましくは3.5重量%以下、最も好ましくは3重量%以下である。上記遮熱粒子の含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、遮熱性が十分に高くなり、かつ可視光線透過率が十分に高くなる。

[0112] （金属塩）

上記中間膜は、アルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩及びマグネシウム塩の内の少なくとも1種の金属塩（以下、金属塩Mと記載することがある）を含むことが好ましい。上記第1の層は、上記金属塩Mを含むことが好ましい。上記第2の層は、上記金属塩Mを含むことが好ましい。上記第3の層は、上記金属塩Mを含むことが好ましい。上記金属塩Mの使用により、中間膜と合わせガラス部材との接着性又は中間膜における各層間の接着性を制御することが容易になる。上記金属塩Mは、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0113] 上記金属塩Mは、Li、Na、K、Rb、Cs、Mg、Ca、Sr及びBaからなる群から選択された少なくとも1種の金属を含むことが好ましい。中間膜中に含まれている金属塩は、K及びMgの内の少なくとも1種の金属を含むことが好ましい。

[0114] また、上記金属塩Mは、炭素数2～16の有機酸のアルカリ金属塩、炭素数2～16の有機酸のアルカリ土類金属塩又は炭素数2～16の有機酸のマグネシウム塩であることがより好ましく、炭素数2～16のカルボン酸マグネシウム塩又は炭素数2～16のカルボン酸カリウム塩であることが更に好ましい。

[0115] 上記炭素数2～16のカルボン酸マグネシウム塩及び上記炭素数2～16のカルボン酸カリウム塩としては、酢酸マグネシウム、酢酸カリウム、プロ

ピオン酸マグネシウム、プロピオン酸カリウム、2-エチル酪酸マグネシウム、2-エチルブタン酸カリウム、2-エチルヘキサン酸マグネシウム及び2-エチルヘキサン酸カリウム等が挙げられる。

[0116] 上記金属塩Mを含む層（第1の層、第2の層又は第3の層）におけるMg及びKの含有量の合計は、好ましくは5ppm以上、より好ましくは10ppm以上、更に好ましくは20ppm以上、好ましくは300ppm以下、より好ましくは250ppm以下、更に好ましくは200ppm以下である。Mg及びKの含有量の合計が上記下限以上及び上記上限以下であると、中間膜と合わせガラス部材との接着性又は中間膜における各層間の接着性をより一層良好に制御できる。

[0117] （紫外線遮蔽剤）

上記中間膜は、紫外線遮蔽剤を含むことが好ましい。上記第1の層は、紫外線遮蔽剤を含むことが好ましい。上記第2の層は、紫外線遮蔽剤を含むことが好ましい。上記第3の層は、紫外線遮蔽剤を含むことが好ましい。紫外線遮蔽剤の使用により、中間膜及び合わせガラスが長期間使用されても、可視光線透過率がより一層低下し難くなる。上記紫外線遮蔽剤は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0118] 上記紫外線遮蔽剤には、紫外線吸収剤が含まれる。上記紫外線遮蔽剤は、紫外線吸収剤であることが好ましい。

[0119] 上記紫外線遮蔽剤としては、例えば、金属原子を含む紫外線遮蔽剤、金属酸化物を含む紫外線遮蔽剤、ベンゾトリアゾール構造を有する紫外線遮蔽剤（ベンゾトリアゾール化合物）、ベンゾフェノン構造を有する紫外線遮蔽剤（ベンゾフェノン化合物）、トリアジン構造を有する紫外線遮蔽剤（トリアジン化合物）、マロン酸エステル構造を有する紫外線遮蔽剤（マロン酸エステル化合物）、シュウ酸アニリド構造を有する紫外線遮蔽剤（シュウ酸アニリド化合物）及びベンゾエート構造を有する紫外線遮蔽剤（ベンゾエート化合物）等が挙げられる。

[0120] 上記金属原子を含む紫外線遮蔽剤としては、例えば、白金粒子、白金粒子

の表面をシリカで被覆した粒子、パラジウム粒子及びパラジウム粒子の表面をシリカで被覆した粒子等が挙げられる。紫外線遮蔽剤は、遮熱粒子ではないことが好ましい。

[0121] 上記紫外線遮蔽剤は、好ましくはベンゾトリアゾール構造を有する紫外線遮蔽剤、ベンゾフェノン構造を有する紫外線遮蔽剤、トリアジン構造を有する紫外線遮蔽剤又はベンゾエート構造を有する紫外線遮蔽剤である。上記紫外線遮蔽剤は、より好ましくはベンゾトリアゾール構造を有する紫外線遮蔽剤又はベンゾフェノン構造を有する紫外線遮蔽剤であり、更に好ましくはベンゾトリアゾール構造を有する紫外線遮蔽剤である。

[0122] 上記金属酸化物を含む紫外線遮蔽剤としては、例えば、酸化亜鉛、酸化チタン及び酸化セリウム等が挙げられる。さらに、上記金属酸化物を含む紫外線遮蔽剤に関して、表面が被覆されていてもよい。上記金属酸化物を含む紫外線遮蔽剤の表面の被覆材料としては、絶縁性金属酸化物、加水分解性有機ケイ素化合物及びシリコン化合物等が挙げられる。

[0123] 上記ベンゾトリアゾール構造を有する紫外線遮蔽剤としては、例えば、2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール(BASF社製「Tinuvin P」)、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-tert-ブチルフェニル)ベンゾトリアゾール(BASF社製「Tinuvin 320」)、2-(2'-ヒドロキシ-3'-tert-ブチル-5-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール(BASF社製「Tinuvin 326」)、及び2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-アミルフェニル)ベンゾトリアゾール(BASF社製「Tinuvin 328」)等が挙げられる。紫外線を吸収する性能に優れることから、上記紫外線遮蔽剤は、ハロゲン原子を含むベンゾトリアゾール構造を有する紫外線遮蔽剤であることが好ましく、塩素原子を含むベンゾトリアゾール構造を有する紫外線遮蔽剤であることがより好ましい。

[0124] 上記ベンゾフェノン構造を有する紫外線遮蔽剤としては、例えば、オクタベンゾン(BASF社製「Chimassorb 81」)等が挙げられる。

- [0125] 上記トリアジン構造を有する紫外線遮蔽剤としては、例えば、ADEKA社製「L A - F 7 0」及び2-（4，6-ジフェニル-1，3，5-トリアジン-2-イル）-5-〔（ヘキシル）オキシ〕-フェノール（BASF社製「T i n u v i n 1 5 7 7 F F」）等が挙げられる。
- [0126] 上記マロン酸エステル構造を有する紫外線遮蔽剤としては、2-（p-メトキシベンジリデン）マロン酸ジメチル、テトラエチル-2，2-（1，4-フェニレンジメチリデン）ビスマロネート、2-（p-メトキシベンジリデン）-ビス（1，2，2，6，6-ペンタメチル4-ピペリジニル）マロネート等が挙げられる。
- [0127] 上記マロン酸エステル構造を有する紫外線遮蔽剤の市販品としては、H o s t a v i n B - C A P、H o s t a v i n P R - 2 5、H o s t a v i n P R - 3 1（いずれもクラリアント社製）が挙げられる。
- [0128] 上記シュウ酸アニリド構造を有する紫外線遮蔽剤としては、N-（2-エチルフェニル）-N'-（2-エトキシ-5-tert-ブチルフェニル）シュウ酸ジアミド、N-（2-エチルフェニル）-N'-（2-エトキシフェニル）シュウ酸ジアミド、2-エチル-2'-エトキシオキシアニリド（クラリアント社製「S a n d u v o r V S U」）などの窒素原子上に置換されたアリール基などを有するシュウ酸ジアミド類が挙げられる。
- [0129] 上記ベンゾエート構造を有する紫外線遮蔽剤としては、例えば、2，4-ジ-tert-ブチルフェニル-3，5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート（BASF社製「T i n u v i n 1 2 0」）等が挙げられる。
- [0130] 上記紫外線遮蔽剤を含む層（第1の層、第2の層又は第3の層）100重量%中、上記紫外線遮蔽剤の含有量は、好ましくは0.1重量%以上、より好ましくは0.2重量%以上、更に好ましくは0.3重量%以上、特に好ましくは0.5重量%以上である。上記紫外線遮蔽剤を含む層（第1の層、第2の層又は第3の層）100重量%中、上記紫外線遮蔽剤の含有量は、好ましくは2.5重量%以下、より好ましくは2重量%以下、更に好ましくは1

重量%以下、特に好ましくは0.8重量%以下である。上記紫外線遮蔽剤の含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、期間経過後の可視光線透過率の低下をより一層抑制することができる。特に、上記紫外線遮蔽剤を含む層100重量%中、上記紫外線遮蔽剤の含有量が0.2重量%以上であることにより、中間膜及び合わせガラスの期間経過後の可視光線透過率の低下を顕著に抑制できる。

[0131] (酸化防止剤)

上記中間膜は、酸化防止剤を含むことが好ましい。上記第1の層は、酸化防止剤を含むことが好ましい。上記第2の層は、酸化防止剤を含むことが好ましい。上記第3の層は、酸化防止剤を含むことが好ましい。上記酸化防止剤は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0132] 上記酸化防止剤としては、フェノール系酸化防止剤、硫黄系酸化防止剤及びリン系酸化防止剤等が挙げられる。上記フェノール系酸化防止剤はフェノール骨格を有する酸化防止剤である。上記硫黄系酸化防止剤は硫黄原子を含有する酸化防止剤である。上記リン系酸化防止剤はリン原子を含有する酸化防止剤である。

[0133] 上記酸化防止剤は、フェノール系酸化防止剤又はリン系酸化防止剤であることが好ましい。

[0134] 上記フェノール系酸化防止剤としては、2,6-ジ-*t*-ブチル-*p*-クレゾール(BHT)、ブチルヒドロキシアニソール(BHA)、2,6-ジ-*t*-ブチル-4-エチルフェノール、ステアリル- β -(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、2,2'-メチレンビス-(4-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、2,2'-メチレンビス-(4-エチル-6-*t*-ブチルフェノール)、4,4'-ブチリデン-ビス-(3-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、1,1,3-トリス-(2-メチル-ヒドロキシ-5-*t*-ブチルフェニル)ブタン、テトラキス[メチレン-3-(3',5'-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]メタン、1,3,3-トリス-(2-メチル-4-ヒドロキシ-5-

t-ブチルフェノール)ブタン、1, 3, 5-トリメチル-2, 4, 6-トリス(3, 5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン、ビス(3, 3'-t-ブチルフェノール)ブチリックアシッドグリコールエステル及びビス(3-t-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルベンゼンプロパン酸)エチレンビス(オキシエチレン)等が挙げられる。これらの酸化防止剤の内の1種又は2種以上が好適に用いられる。

[0135] 上記リン系酸化防止剤としては、トリデシルホスファイト、トリス(トリデシル)ホスファイト、トリフェニルホスファイト、トリノニルフェニルホスファイト、ビス(トリデシル)ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス(デシル)ペンタエリスリトールジホスファイト、トリス(2, 4-ジ-t-ブチルフェニル)ホスファイト、ビス(2, 4-ジ-t-ブチル-6-メチルフェニル)エチルエステル亜リン酸、及び2, 2'-メチレンビス(4, 6-ジ-t-ブチル-1-フェニルオキシ)(2-エチルヘキシルオキシ)ホスホラス等が挙げられる。これらの酸化防止剤の内の1種又は2種以上が好適に用いられる。

[0136] 上記酸化防止剤の市販品としては、例えばBASF社製「IRGANOX 245」、BASF社製「IRGAFOS 168」、BASF社製「IRGAFOS 38」、住友化学工業社製「スミライザーBHT」、堺化学工業社製「H-BHT」、並びにBASF社製「IRGANOX 1010」等が挙げられる。

[0137] 中間膜及び合わせガラスの高い可視光線透過率を長期間に渡り維持するために、上記中間膜100重量%中又は酸化防止剤を含む層(第1の層、第2の層又は第3の層)100重量%中、上記酸化防止剤の含有量は0.1重量%以上であることが好ましい。また、酸化防止剤の添加効果が飽和するので、上記中間膜100重量%中又は上記酸化防止剤を含む層100重量%中、上記酸化防止剤の含有量は2重量%以下であることが好ましい。

[0138] (他の成分)

上記中間膜、上記第1の層、上記第2の層及び上記第3の層はそれぞれ、

必要に応じて、ケイ素、アルミニウム又はチタンを含むカップリング剤、分散剤、界面活性剤、難燃剤、帯電防止剤、フィラー、顔料、染料、接着力調整剤、耐湿剤、蛍光増白剤及び赤外線吸収剤等の添加剤を含んでいてもよい。これらの添加剤は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0139] セン断貯蔵弾性率を好適な範囲に制御するために、中間膜、第1の層、第2の層及び第3の層は、フィラーを含んでいてもよい。上記フィラーとしては、炭酸カルシウム粒子、及びシリカ粒子等が挙げられる。曲げ剛性及を効果的に高め、透明性の低下を効果的に抑える観点からは、シリカ粒子が好ましい。

[0140] フィラーを含む層（第1の層、第2の層又は第3の層）100重量%中、上記フィラーの含有量は、好ましくは1重量%以上、より好ましくは5重量%以上、更に好ましくは10重量部以上、好ましくは60重量%以下、より好ましくは50重量%以下である。

[0141] （合わせガラス用中間膜の他の詳細）

上記中間膜の厚みは特に限定されない。実用面の観点、並びに合わせガラスの耐貫通性及び曲げ剛性を充分に高める観点からは、中間膜の厚みは、好ましくは0.1mm以上、より好ましくは0.25mm以上、好ましくは3mm以下、より好ましくは1.5mm以下である。中間膜の厚みが上記下限以上であると、合わせガラスの耐貫通性及び曲げ剛性がより一層高くなる。中間膜の厚みが上記上限以下であると、中間膜の透明性がより一層良好になる。

[0142] 中間膜の厚みをTとする。上記第1の層の厚みは、好ましくは0.035T以上、より好ましくは0.0625T以上、更に好ましくは0.1T以上、好ましくは0.4T以下、より好ましくは0.375T以下、更に好ましくは0.25T以下、特に好ましくは0.15T以下である。上記第1の層の厚みが0.4T以下であると、曲げ剛性がより一層良好になる。

[0143] 上記第2の層及び上記第3の層の各厚みは、好ましくは0.3T以上、よ

り好ましくは0.3125 T以上、更に好ましくは0.375 T以上、好ましくは0.97 T以下、より好ましくは0.9375 T以下、更に好ましくは0.9 T以下である。上記第2の層及び上記第3の層の各厚みは、0.46875 T以下であってもよく、0.45 T以下であってもよい。また、上記第2の層及び上記第3の層の各厚みが上記下限以上及び上記上限以下であると、合わせガラスの剛性と遮音性がより一層高くなる。

[0144] 上記第2の層及び上記第3の層の合計の厚みは、好ましくは0.625 T以上、より好ましくは0.75 T以上、更に好ましくは0.85 T以上、好ましくは0.97 T以下、より好ましくは0.9375 T以下、更に好ましくは0.9 T以下である。また、上記第2の層及び上記第3の層の合計の厚みが上記下限以上及び上記上限以下であると、合わせガラスの剛性と遮音性がより一層高くなる。

[0145] 上記中間膜は、厚みが均一な中間膜であってもよく、厚みが増えている中間膜であってもよい。上記中間膜の断面形状は矩形であってもよく、楔形であってもよい。

[0146] 本発明に係る中間膜の製造方法は特に限定されない。本発明に係る中間膜の製造方法としては、単層の中間膜の場合に、樹脂組成物を押出機を用いて押出する方法が挙げられる。本発明に係る中間膜の製造方法としては、多層の中間膜の場合に、例えば、各層を形成するための各樹脂組成物を用いて各層をそれぞれ形成した後に、得られた各層を積層する方法、並びに各層を形成するための各樹脂組成物を押出機を用いて共押出することにより、各層を積層する方法等が挙げられる。連続的な生産に適しているため、押出成形する製造方法が好ましい。

[0147] 中間膜の製造効率が優れることから、上記第2の層と上記第3の層とに、同一のポリビニルアセタール樹脂が含まれていることが好ましい。中間膜の製造効率が優れることから、上記第2の層と上記第3の層とに、同一のポリビニルアセタール樹脂及び同一の可塑剤が含まれていることがより好ましい。中間膜の製造効率が優れることから、上記第2の層と上記第3の層とが同

一の樹脂組成物により形成されていることが更に好ましい。

[0148] 上記中間膜は、両側の表面の内の少なくとも一方の表面に凹凸形状を有することが好ましい。上記中間膜は、両側の表面に凹凸形状を有することがより好ましい。上記の凹凸形状を形成する方法としては特に限定されず、例えば、リップエンボス法、エンボスロール法、カレンダーロール法、及び異形押出法等が挙げられる。定量的に一定の凹凸模様である多数の凹凸形状のエンボスを形成することができることから、エンボスロール法が好ましい。

[0149] (合わせガラス)

図3は、図1に示す合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスの一例を模式的に示す断面図である。

[0150] 図3に示す合わせガラス31は、第1の合わせガラス部材21と、第2の合わせガラス部材22と、中間膜11とを備える。中間膜11は、第1の合わせガラス部材21と第2の合わせガラス部材22との間に配置されており、挟み込まれている。

[0151] 中間膜11の第1の表面11aに、第1の合わせガラス部材21が積層されている。中間膜11の第1の表面11aとは反対の第2の表面11bに、第2の合わせガラス部材22が積層されている。第2の層2の外側の表面2aに第1の合わせガラス部材21が積層されている。第3の層3の外側の表面3aに第2の合わせガラス部材22が積層されている。

[0152] 図4は、図2に示す合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスの一例を模式的に示す断面図である。

[0153] 図4に示す合わせガラス31Aは、第1の合わせガラス部材21と、第2の合わせガラス部材22と、中間膜11Aとを備える。中間膜11Aは、第1の合わせガラス部材21と第2の合わせガラス部材22との間に配置されており、挟み込まれている。

[0154] 中間膜11Aの第1の表面11aに、第1の合わせガラス部材21が積層されている。中間膜11Aの第1の表面11aとは反対の第2の表面11bに、第2の合わせガラス部材22が積層されている。

- [0155] このように、本発明に係る合わせガラスは、第1の合わせガラス部材と、第2の合わせガラス部材と、中間膜とを備えており、該中間膜が、本発明に係る合わせガラス用中間膜である。本発明に係る合わせガラスでは、上記第1の合わせガラス部材と上記第2の合わせガラス部材との間に、上記中間膜が配置されている。
- [0156] 上記第1の合わせガラス部材は、第1のガラス板であることが好ましい。上記第2の合わせガラス部材は、第2のガラス板であることが好ましい。
- [0157] 上記合わせガラス部材としては、ガラス板及びPET（ポリエチレンテレフタレート）フィルム等が挙げられる。合わせガラスには、2枚のガラス板の間に中間膜が挟み込まれている合わせガラスだけでなく、ガラス板とPETフィルム等との間に中間膜が挟み込まれている合わせガラスも含まれる。上記合わせガラスは、ガラス板を備えた積層体であり、少なくとも1枚のガラス板が用いられていることが好ましい。上記第1の合わせガラス部材及び上記第2の合わせガラス部材がそれぞれ、ガラス板又はPETフィルムであり、かつ上記合わせガラスは、上記第1の合わせガラス部材及び上記第2の合わせガラス部材の内の少なくとも一方として、ガラス板を備えることが好ましい。
- [0158] 上記ガラス板としては、無機ガラス及び有機ガラスが挙げられる。上記無機ガラスとしては、フロート板ガラス、熱線吸収板ガラス、熱線反射板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス、及び線入り板ガラス等が挙げられる。上記有機ガラスは、無機ガラスに代わる合成樹脂ガラスである。上記有機ガラスとしては、ポリカーボネート板及びポリ（メタ）アクリル樹脂板等が挙げられる。上記ポリ（メタ）アクリル樹脂板としては、ポリメチル（メタ）アクリレート板等が挙げられる。
- [0159] 上記合わせガラス部材の厚みは、好ましくは1 mm以上、好ましくは5 mm以下、より好ましくは3 mm以下である。また、上記合わせガラス部材がガラス板である場合に、該ガラス板の厚みは、好ましくは0.5 mm以上、より好ましくは0.7 mm以上、好ましくは5 mm以下、より好ましくは3

mm以下である。上記合わせガラス部材がPETフィルムである場合に、該PETフィルムの厚みは、好ましくは0.03mm以上、好ましくは0.5mm以下である。

[0160] 本発明に係る中間膜の使用により、合わせガラスの厚みが薄くても、合わせガラスの曲げ剛性を高く維持することができる。上記ガラス板の厚みは、好ましくは2mm以下、より好ましくは1.8mm以下、より一層好ましくは1.6mm以下、より一層好ましくは1.5mm以下、更に好ましくは1.4mm以下、更に好ましくは1.3mm以下、更に一層好ましくは1.0mm以下、特に好ましくは0.7mm以下である。この場合には、合わせガラスを軽量化したり、合わせガラスの材料を少なくして環境負荷を低減したり、合わせガラスの軽量化によって自動車の燃費を向上させて環境負荷を低減したりすることができる。上記第1のガラス板の厚みと上記第2のガラス板の厚みとの合計は、好ましくは3.5mm以下、より好ましくは3.2mm以下、更に好ましくは3mm以下、特に好ましくは2.8mm以下である。この場合には、合わせガラスを軽量化したり、合わせガラスの材料を少なくして環境負荷を低減したり、合わせガラスの軽量化によって自動車の燃費を向上させて環境負荷を低減したりすることができる。

[0161] 上記合わせガラスの製造方法は特に限定されない。先ず、上記第1の合わせガラス部材と上記第2の合わせガラス部材との間に、中間膜を挟んで、積層体を得る。次に、例えば、得られた積層体を押圧ロールに通したり又はゴムバッグに入れて減圧吸引したりすることにより、上記第1の合わせガラス部材と上記第2の合わせガラス部材と中間膜との間に残留する空気を脱気する。その後、約70～110℃で予備接着して予備圧着された積層体を得る。次に、予備圧着された積層体をオートクレーブに入れたり、又はプレスしたりして、約120～150℃及び1～1.5MPaの圧力で圧着する。このようにして、合わせガラスを得ることができる。上記合わせガラスの製造時に、第1の層と第2の層と第3の層とを積層してもよい。

[0162] 上記中間膜及び上記合わせガラスは、自動車、鉄道車両、航空機、船舶及

び建築物等に使用できる。上記中間膜及び上記合わせガラスは、これらの用途以外にも使用できる。上記中間膜及び上記合わせガラスは、車両用又は建築用の中間膜及び合わせガラスであることが好ましく、車両用の中間膜及び合わせガラスであることがより好ましい。上記中間膜及び上記合わせガラスは、自動車のフロントガラス、サイドガラス、リアガラス又はルーフガラス等に使用できる。上記中間膜及び上記合わせガラスは、自動車に好適に用いられる。上記中間膜は、自動車の合わせガラスを得るために用いられる。

[0163] 以下に実施例及び比較例を掲げて本発明を更に詳しく説明する。本発明はこれら実施例のみに限定されない。

[0164] 以下の材料を用意した。

[0165] (ポリビニルアセタール樹脂)

下記の表 1 ～ 3 に示すポリビニルアセタール樹脂を適宜用いた。

[0166] ポリビニルアセタール樹脂に関しては、アセタール化度、アセチル化度及び水酸基の含有率は J I S K 6 7 2 8 「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により測定した。なお、A S T M D 1 3 9 6 - 9 2 により測定した場合も、J I S K 6 7 2 8 「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法と同様の数値を示した。また、アセタールの種類がアセトアセタール、ベンジルアセタール又はクミンアセタールである場合には、アセタール化度は、同様に、アセチル化度、水酸基の含有率を測定し、得られた測定結果からモル分率を算出し、次いで、100モル%からアセチル化度及び水酸基の含有率を引くことにより、算出される。

[0167] (第 2 の樹脂)

下記の表 1 ～ 3 に示すアクリル重合体を適宜用いた。

[0168] 下記の表 1 ～ 3 に示すアクリル重合体は、以下の化合物を下記の表 1 ～ 3 に示す含有量で含む重合性成分を重合させたアクリル重合体である。

[0169] アクリル酸エチル

アクリル酸ブチル

アクリル酸ベンジル

アクリル酸 2-ヒドロキシエチル

トリプロピレングリコールジアクリレート（新中村化学社製「APG-200」）

ポリプロピレングリコール（#700）ジアクリレート（新中村化学社製「APG-700」）

エトキシ化ビスフェノール A ジアクリレート（新中村化学社製「A-BPE-20」）

ϵ -カプロラクトン変性トリス-（2-アクリロキシエチル）イソシアヌレート（新中村化学社製「A-9300-1CL」）

リン酸トリス [2-（アクリロイルオキシ）エチル]

エトキシ化ペンタエリスリトールテトラアクリレート（新中村化学社製「ATM-35E」）

[0170] （可塑剤）

トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（3GO）

[0171] （実施例 1）

ポリビニルアセタール樹脂（平均重合度 560、アセタール化度 74.0 モル%、水酸基の含有率 25.0 モル%、アセチル化度 0.9 モル%）を用意した。重合性成分 100 重量部（アクリル酸エチル 60 重量部、アクリル酸ブチル 14.4 重量部、アクリル酸ベンジル 25 重量部、トリプロピレングリコールジアクリレート 0.6 重量部）を用意した。温度計、攪拌機、窒素導入管、冷却管を備えた反応容器内に、原料となる上記ポリビニルアセタール樹脂 100 重量部と、上記重合性成分 100 重量部と、重合溶媒として酢酸エチル 300 重量部とを加え、攪拌しながらポリビニルアセタール樹脂を溶解させた。次に、窒素ガスを 30 分間吹き込んで反応容器内を窒素置換した後、反応容器内を攪拌しながら 80℃ に加熱した。30 分後、重合開始剤としての t -ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート（1 時間半減期温度：92.1℃、10 時間半減期温度：72.1℃）0.5 重量部を酢酸エチル 5 重量部で希釈して得られた重合開始剤溶液を、反応容器内に 6 時

間かけて滴下した。その後、更に80℃にて6時間反応させた後、反応液を冷却することにより、変性ポリビニルアセタール樹脂を含有する溶液を得た。

[0172] 得られた溶液にポリビニルアセタール樹脂及び重合体（第2の樹脂）の合計100重量部に対し、可塑剤として3GOを5重量部加え、希釈溶剤（メタノールとトルエンとの混合溶剤、メタノールとトルエンとの重量比率は1：2）により希釈し、固形分20重量%の溶液を得た。次に、この溶液をコーターを用いて乾燥後の厚みが50μmとなるように離型処理したPETフィルム上に塗布し、80℃で1時間乾燥させ、樹脂フィルムを得た。得られた厚み50μmの樹脂フィルムを重ね合わせ、150℃、20MPaで加熱圧着させることで、厚み780μmの中間膜を得た。

[0173] 合わせガラスの作製：

洗浄及び乾燥した2つのガラス板（第1の合わせガラス部材及び第2の合わせガラス部材、クリアフロートガラス、曲げ剛性評価：縦25mm×横200mm×厚み1mm、落球評価：縦300mm×横300mm×厚み1mm）を用意した。この2つのガラス板の間に、得られた中間膜を挟み込み、積層体を得た。得られた積層体をゴムバック内に入れ、2660Pa（20torr）の真空度で20分間脱気した。その後、脱気したままで積層体をオートクレーブ中で更に90℃で30分間保持しつつ、真空プレスした。このようにして予備圧着された積層体を、オートクレーブ中で135℃、圧力1.2MPa（12kg/cm²）の条件で20分間圧着を行い、合わせガラスを得た。

[0174] （実施例2～15及び比較例1～10）

中間膜を形成するための組成物の組成を下記の表1～3に示すように設定したこと以外は実施例1と同様にして、中間膜及び合わせガラスを得た。

[0175] （評価）

（1）相構造観察

得られた中間膜をマイクロトームで処理することにより、厚さ100nm

の切片を作製した。得られた切片を四酸化オスミウムにて染色し、透過型電子顕微鏡で観察した。相分離構造の有無を判断した。

[0176] [相分離構造の有無の判定基準]

○：相分離構造あり

×：相分離構造なし

[0177] さらに、相分離構造がありかつマトリックスがある場合に、マトリックス及び島部（ドメイン）を構成する樹脂成分が、ポリビニルアセタール樹脂であるか、第2の樹脂であるかを確認した。

[0178] [マトリックス及び島部を構成する樹脂成分の判定基準]

A：マトリックスを構成する成分がポリビニルアセタール樹脂かつ島部を構成する成分が第2の樹脂

B：マトリックスを構成する成分が第2の樹脂かつ島部を構成する成分がポリビニルアセタール樹脂

[0179] さらに、相分離構造がありかつ島部（ドメイン）がある場合に、島部の径（最大径）を3000倍又は5000倍で観察し、平均値を求めた。島部の径の平均を以下の基準で判定した。

[0180] [島部の径の平均の判定基準]

A：島部の径の平均が、10nm以上1μm以下

B：Aの基準に相当しない

[0181] (2) 曲げ剛性

図5に模式的に示す試験方法で、曲げ剛性を評価した。測定装置としては、3点曲げ試験治具を備えたオリエンテック社製のUTA-500を使用した。測定条件としては、測定温度23℃（23℃±3℃）又は65℃（65℃±3℃）、距離D1は12cm、距離D2は20cmとし、変位速度1mm/分でFの方向に合わせガラスに変形を加え、1.5mmの変位を加えたときの応力を測定し、曲げ剛性を算出した。曲げ剛性を以下の基準で判定した。曲げ剛性の数値が高いほど、曲げ剛性に優れる。

[0182] [曲げ剛性の判定基準]

〇〇：曲げ剛性が60 N/mm以上

○：曲げ剛性が50 N/mm以上60 N/mm未満

△：曲げ剛性が40 N/mm以上50 N/mm未満

×：曲げ剛性が40 N/mm未満

[0183] (3) 耐貫通性

得られた合わせガラスを、表面温度が20℃となるように調整した。次いで、2.0 mの高さから、6枚の合わせガラスに対してそれぞれ、質量2260 g及び直径82 mmの剛球を、合わせガラスの中心部分に落下させた。6枚の合わせガラス全てについて、剛球が衝突した後5秒以内に剛球が貫通しなかった場合を合格とした。剛球が衝突した後5秒以内に剛球が貫通しなかった合わせガラスが3枚以下であった場合は不合格とした。4枚の場合には、新しく6枚の合わせガラスの耐貫通性を評価した。5枚の場合には、新しく1枚の合わせガラスを追加試験し、剛球が衝突した後5秒以内に剛球が貫通しなかった場合を合格とした。同様の方法で、25 cmずつ高くし、6枚の合わせガラスに対してそれぞれ、質量2260 g及び直径82 mmの剛球を、合わせガラスの中心部分に落下させ、合わせガラスの耐貫通性（最大高さ）を評価した。耐貫通性を以下の基準で判定した。

[0184] [耐貫通性の判定基準]

〇〇：最大高さが6 m以上

○：最大高さが5 m以上5.75 m以下

○：最大高さが4 m以上4.75 m以下

×：最大高さが3.75 m以下

[0185] 詳細及び結果を下記の表1～3に示す。

[0186]

[表1]

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 10
第2の樹脂中 の含有量	含有量(重量部)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	平均重合度	560	2410	1700	560	560	2410	2410	2410	560	560
	水酸基の含有率(mol%)	25	25	30.6	25	25	25	25	25	25	25
	アセタール化度(mol%)	74	74	68.5	74	74	74	74	74	74	74
	アセタールの種類	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール
	アセタール化度(mol%)	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
	含有量(重量部)	100	100	100	100	100	100	100	85	85	115
	アクリル酸エチル(重量%)	60	60	60	59	59	55	55	55	60	60
	アクリル酸ブチル(重量%)	14.4	13	13	15.4	15.4	15.4	15.4	15.4	13	13
	アクリル酸ベンジル(重量%)	25	25	25	24.6	24.6	24.6	24.6	24.6	25	25
第2の樹脂 単官能 多官能	アクリル酸2-ヒドロキシエチル(重量%)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	トリプロピレングリコールアクリレート(重量%)	0.6	2	2	1	1	0	0	0	2	2
	ポリプロピレングリコール(#700)ジアクリレート(重量%)	0	0	0	0	0	3	3	3	0	0
	エトキシ化ビスフェノールAジアクリレート(重量%)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	ε-カプロラクトン変性トリリス-(2-アクリロキシエチル)イソシアズレート(重量%)	0	0	0	0	0	2	2	2	0	0
	リン酸トリリス[2-(アクリロイルオキシ)エチル](重量%)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	エトキシ化ペンタエリスリトールテトラアクリレート(重量%)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
	可塑剤	5	5	5	3	7	5	7	13	10	5
	ポリビニルアセタール樹脂と第2の樹脂との合計100重量部に対する含有量(重量部)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
第1の樹脂	相分離構造の有無	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A
	マトリックス及び島部を構成する樹脂成分	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A
	島部の径の平均	00	00	00	00	00	00	00	00	00	00
	23℃	00	0	0	00	0	00	0	0	0	00
	65℃	00	0	0	0	00	0	00	00	00	0
耐貫通性		00	0	0	0	00	0	00	00	00	0

[0187]

[表2]

中間体の構造														
ポリビニル アセタール樹脂	含有量 (重量部)		実施例 11	実施例 12	実施例 13	実施例 14	実施例 15							
	平均重合度		100	100	100	100	100							
	水酸基の含有率 (mol%)		560	560	560	560	560							
	アセタール化度 (mol%)		25	25	25	25	25							
	アセタールの種類		74	74	74	74	74							
	アセタールの種類		アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール							
	アセタール化度 (mol%)		1	1	1	1	1							
	含有量 (重量部)		135	160	100	100	100							
	アクリル酸エチル (重量%)		60	60	55	54	55							
	アクリル酸ブチル (重量%)		13	13	18.4	18.4	18.4							
第2の樹脂	アクリル酸ベンジル (重量%)		25	25	24.6	24.6	24.6							
	アクリル酸2-ヒドロキシエチル (重量%)		0	0	0	0	0							
	トリプロピレングリコール (重量%)		2	2	0	0	0							
	ポリプロピレングリコール (#700) ジアクリレート (重量%)		0	0	0	0	0							
	エトキシ化ビスフェノールAジアクリレート (重量%)		0	0	0	0	0							
	ε-カプロラク톤変性トリス- (2-アクリロキシエチル) インシシアスレート (重量%)		0	0	0	2	0							
	リン酸トリス[2-(アクリロイルオキシ)エチル] (重量%)		0	0	0	0	1							
	エトキシ化ペンタエリスリトールテトラアクリレート (重量%)		0	0	0	0	0							
	種類		3GO	3GO	3GO	3GO	3GO							
	ポリビニルアセタール樹脂と第2の樹脂との合計100重量部に對する含有量 (重量部)		3	3	3	5	5							
特性	可塑剤		0	0	0	0	0							
	相分離構造の有無		A	A	A	A	A							
	マトリックス及び島部を構成する樹脂成分		A	A	A	A	A							
	島部の径の平均		0	0	0	0	0							
	曲げ剛性		23℃	0	△	0	0							
耐貫通性		65℃	0	0	0	0	0							

[0188]

[表3]

		比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6	比較例 7	比較例 8	比較例 9	比較例 10
樹脂の種類中	含有量(重量部)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	0
	平均重合度	560	560	560	560	560	1700	1700	560	560	—
	水酸基の含有率(mol%)	25	25	25	25	25	30.6	30.6	25	25	—
	アセタール化度(mol%)	74	74	74	74	74	68.5	68.5	74	74	—
	アセタールの種類	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール	ブタール	ブタール	アセト アセタール	アセト アセタール	—
	アセタール化度(mol%)	1	1	1	1	1	1	1	1	1	—
	含有量(重量部)	100	100	60	200	0	0	0	100	100	100
	アクリル酸エチル(重量%)	55	55	60	60	—	—	—	60	60	60
	アクリル酸ブチル(重量%)	19.8	19.8	9.7	9.7	—	—	—	13	13	13
	アクリル酸ベンジル(重量%)	25.2	25.2	25.4	25.4	—	—	—	25	25	25
第2の樹脂	アクリル酸2-ヒドロキシエチル(重量%)	0	0	0	0	—	—	—	0	0	0
	トリブロペンチングリコールジアクリレート(重量%)	0	0	0	0	—	—	—	2	2	2
	ポリプロピレングリコール(#700)ジアクリレート(重量%)	0	0	0	0	—	—	—	0	0	0
	エトキシ化ビスフェノールAジアクリレート(重量%)	0	0	0	0	—	—	—	0	0	0
	ε-カプロラクトン変性トリリス-(2-アクリロキシエチル)イソシアヌレート(重量%)	0	0	4.9	4.9	—	—	—	0	0	0
	リン酸トリリス[2-(アクリロイルオキシ)エチル](重量%)	0	0	0	0	—	—	—	0	0	0
	エトキシ化ベンタエリスリトールトラアクリレート(重量%)	0	0	0	0	—	—	—	0	0	0
	種類	—	3GO	3GO	3GO	—	—	3GO	—	3GO	—
	ポリビニルアセタール樹脂と第2の樹脂との合計100重量部に対する含有量(重量部)	—	13	5	5	—	—	13	—	18	—
	相分離構造の有無	○	○	○	○	×	×	×	○	○	×
相構造観察	マトリックス及び島部を構成する樹脂成分	A	A	A	B	—	—	—	A	A	—
	島部の径の平均	A	A	A	A	0	—	—	A	A	—
	23℃	○○	○○	○○	×	○○	○○	○	○○	○○	×
曲げ剛性	65℃	×	×	○○	×	○○	○○	×	○○	×	×
	耐貫通性	×	○	×	△	×	×	○○	×	○○	×

符号の説明

[0189] 1…第1の層

1 a…第1の表面

1 b …第2の表面

2 …第2の層

2 a …外側の表面

3 …第3の層

3 a …外側の表面

1 1 …中間膜

1 1 A …中間膜（第1の層）

1 1 a …第1の表面

1 1 b …第2の表面

2 1 …第1の合わせガラス部材

2 2 …第2の合わせガラス部材

3 1 …合わせガラス

3 1 A …合わせガラス

請求の範囲

- [請求項1] ポリビニルアセタール樹脂と、（メタ）アクリロイル基を2個以上有する（メタ）アクリレート化合物を含む重合性成分の重合体と、可塑剤とを含み、
- 前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、前記重合体の含有量が85重量部以上160重量部以下であり、
- 前記ポリビニルアセタール樹脂と前記重合体との合計100重量部に対して、前記可塑剤の含有量が3重量部以上15重量部未満であり、
- 、
- 相分離構造を有する、合わせガラス用中間膜。
- [請求項2] 前記重合体を構成する重合性成分100重量%中、（メタ）アクリロイル基を2個以上有する（メタ）アクリレート化合物と、（メタ）アクリロイル基を2個以上有する（メタ）アクリレート化合物以外の（メタ）アクリロイル基を有する重合性化合物との合計の量が50重量%以上であり、
- 前記重合体が、アクリル重合体である、請求項1に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項3] 前記ポリビニルアセタール樹脂と前記重合体との合計100重量部に対して、前記可塑剤の含有量が5重量部以上である、請求項1又は2に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項4] 前記ポリビニルアセタール樹脂と前記重合体との合計100重量部に対して、前記可塑剤の含有量が8重量部以下である、請求項1～3のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項5] 前記ポリビニルアセタール樹脂と前記重合体とが架橋している、請求項1～4のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項6] 厚みが3mm以下である、請求項1～5のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項7] 厚みが1.6mm以下である第1のガラス板を用いて、前記第1の

ガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられる、請求項1～6のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。

[請求項8] 第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられ、

前記第1のガラス板の厚みと前記第2のガラス板の厚みとの合計が3.5mm以下である、請求項1～7のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。

[請求項9] 第1の合わせガラス部材と、

第2の合わせガラス部材と、

請求項1～8のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜とを備え、

前記第1の合わせガラス部材と前記第2の合わせガラス部材との間に、前記合わせガラス用中間膜が配置されている、合わせガラス。

[請求項10] 前記第1の合わせガラス部材が第1のガラス板であり、

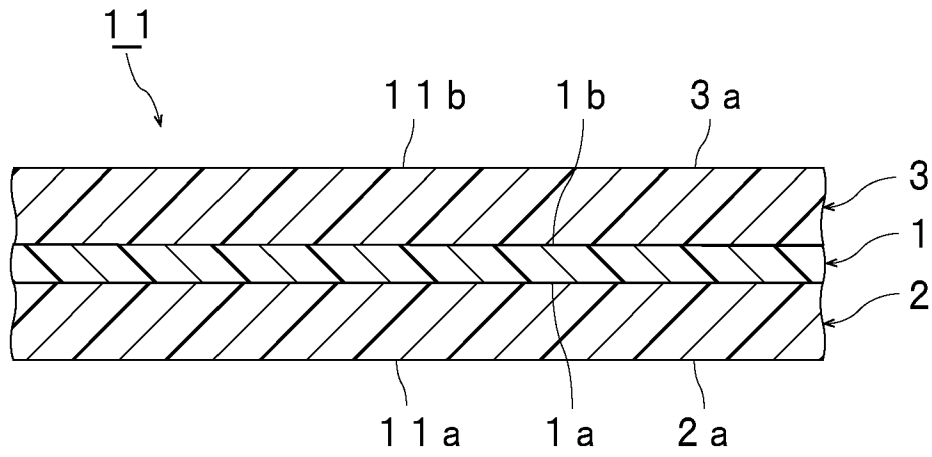
前記第1のガラス板の厚みが1.6mm以下である、請求項9に記載の合わせガラス。

[請求項11] 前記第1の合わせガラス部材が第1のガラス板であり、

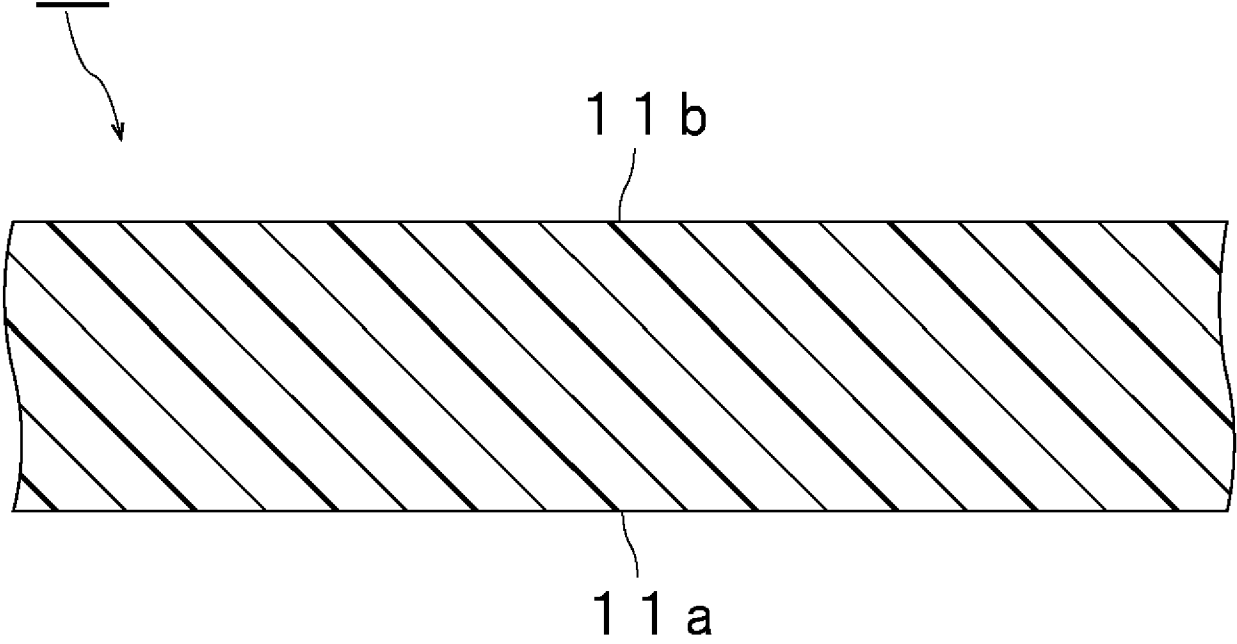
前記第2の合わせガラス部材が第2のガラス板であり、

前記第1のガラス板の厚みと前記第2のガラス板の厚みとの合計が3.5mm以下である、請求項9又は10に記載の合わせガラス。

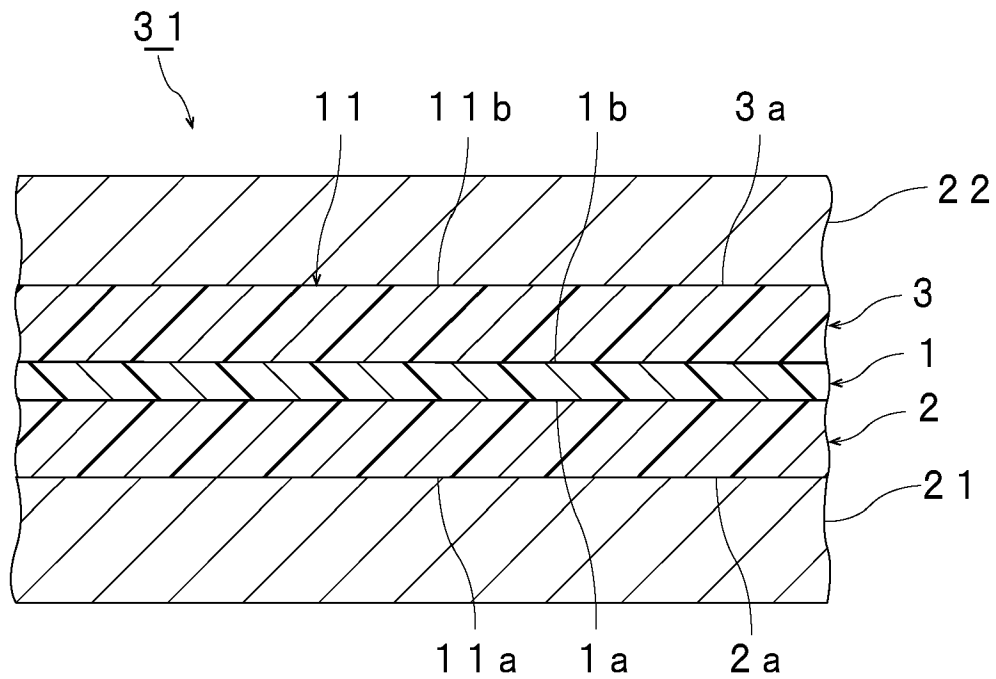
[図1]



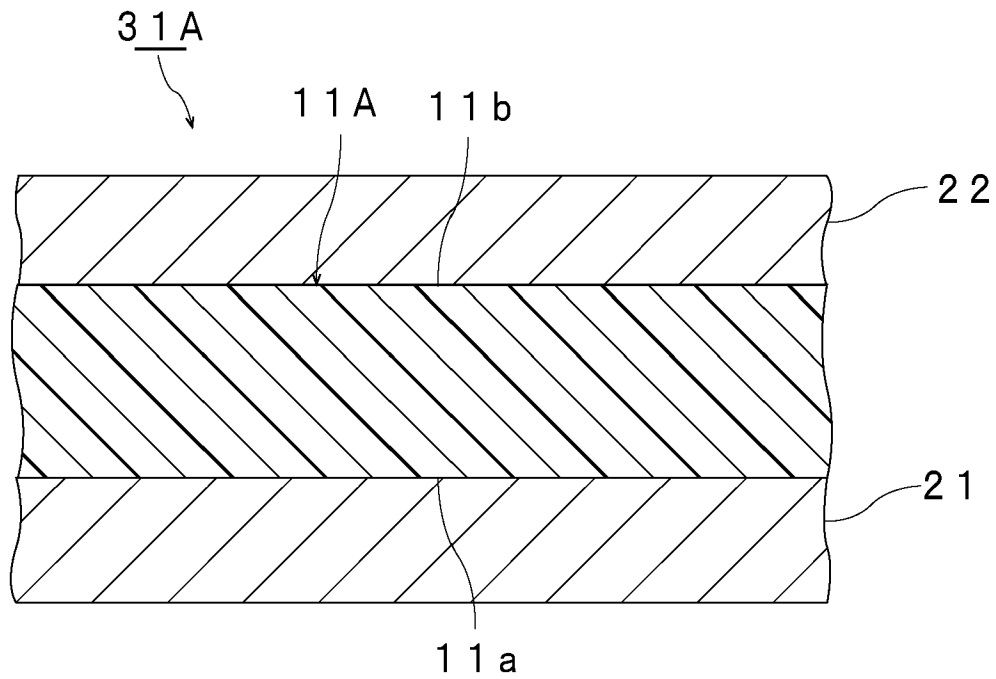
[図2]

11A

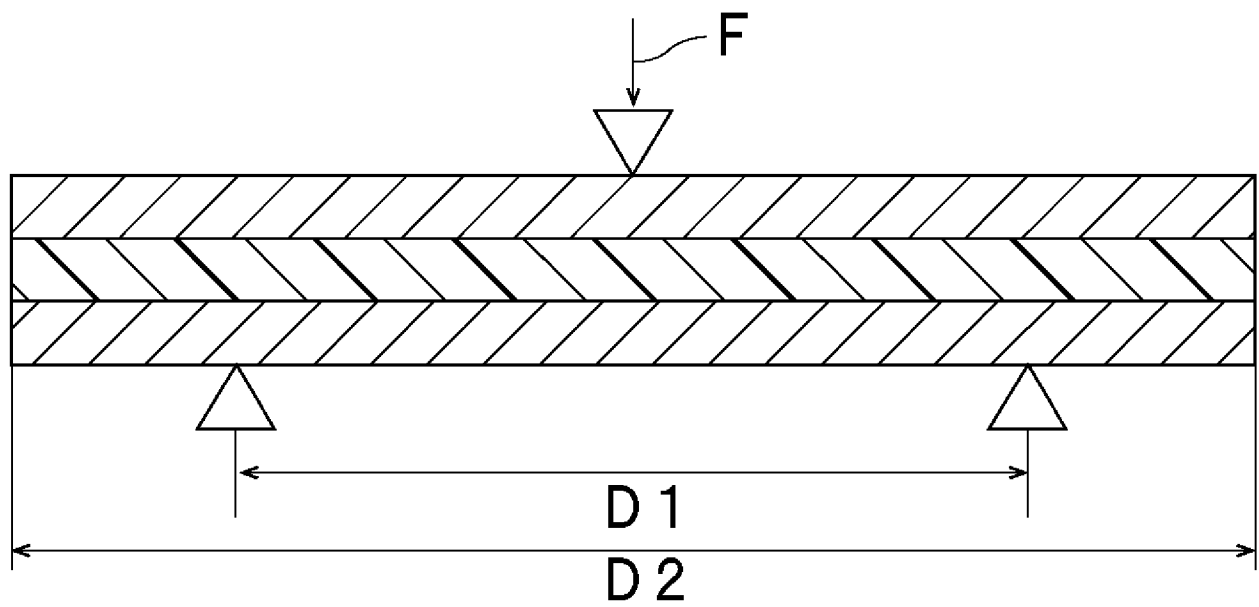
[図3]



[図4]



[図5]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/013335

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. C03C27/12 (2006.01) i, B32B17/10 (2006.01) i, B32B27/30 (2006.01) i, B60J1/00 (2006.01) i, C08L33/04 (2006.01) i, C08L59/00 (2006.01) i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl. C03C27/12, B32B17/10, B32B27/30, B60J1/00, C08F2/44, C08F261/12, C08L29/04, C08L33/04, C08L59/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2018
Registered utility model specifications of Japan	1996-2018
Published registered utility model applications of Japan	1994-2018

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	WO 2015/046583 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 02 April 2015, paragraphs [0001]-[0002], [0022], [0025]-[0034], [0050]-[0056], [0059], [0065]-[0078], [0082]-[0083], [0186]-[0192], claims, tables 1-3, fig. 1-2 & US 2016/0214355 A1, paragraphs [0001]-[0002], [0022], [0026]-[0035], [0052]-[0059], [0063]-[0064], [0070]-[0085], [0089]-[0092], [0254]-[0266], claims, tables 1-3, fig. 1-2 & JP 2015-187075 A & EP 3053890 A1 & CN 105324345 A & KR 10-2016-0065045 A & MX 2016003514 A & RU 2016116969 A	1, 3-11 2
Y A	JP 2010-265170 A (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 25 November 2010, paragraphs [0001], [0009], [0034], [0048]-[0049], [0061], [0072]-[0073] & US 2012/0021230 A1, paragraphs [0001], [0012], [0047], [0072]-[0073], [0091], [0105]-[0106] & WO 2010/074046 A1 & EP 2380859 A1 & TW 201033151 A & CN 102256910 A & KR 10-2011-0097962 A & RU 2011130561 A	1, 3-11 2

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
19 June 2018 (19.06.2018)

Date of mailing of the international search report
03 July 2018 (03.07.2018)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C03C27/12(2006.01)i, B32B17/10(2006.01)i, B32B27/30(2006.01)i, B60J1/00(2006.01)i, C08L33/04(2006.01)i, C08L59/00(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C03C27/12, B32B17/10, B32B27/30, B60J1/00, C08F2/44, C08F261/12, C08L29/04, C08L33/04, C08L59/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2018年
日本国実用新案登録公報	1996-2018年
日本国登録実用新案公報	1994-2018年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y A	WO 2015/046583 A1 (積水化学工業株式会社) 2015.04.02, [0001] - [0002], [0022], [0025] - [0034], [0050] - [0056], [0059], [0065] - [0078], [0082] - [0083], [0186] - [0192], 請求の範囲, [表 1] - [表 3], [図 1] - [図 2] & US 2016/0214355 A1 [0001] - [0002], [0022], [0026] - [0035], [0052] - [0059], [0063] - [0064], [0070] - [0085], [0089] - [0092], [0254] - [0266], Claims, TABLE 1 - 3, FIG.1 - 2 & JP 2015-187075 A & EP 3053890 A1 & CN 105324345 A	1, 3 - 11 2

☑ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

19.06.2018

国際調査報告の発送日

03.07.2018

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

吉川 潤

4 T

9651

電話番号 03-3581-1101 内線 3465

C (続き). 関連すると認められる文献