

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6185214号
(P6185214)

(45) 発行日 平成29年8月23日 (2017. 8. 23)

(24) 登録日 平成29年8月4日 (2017. 8. 4)

(51) Int. Cl. F I
C O 8 L 29/14 (2006. 01) C O 8 L 29/14
B 3 2 B 17/10 (2006. 01) B 3 2 B 17/10
B 3 2 B 27/30 (2006. 01) B 3 2 B 27/30
C O 3 C 27/12 (2006. 01) C O 3 C 27/12
C O 8 K 5/06 (2006. 01) C O 8 K 5/06

請求項の数 16 (全 33 頁)

(21) 出願番号 特願2017-509990 (P2017-509990)
(86) (22) 出願日 平成28年3月28日 (2016. 3. 28)
(86) 国際出願番号 PCT/JP2016/059981
(87) 国際公開番号 W02016/158882
(87) 国際公開日 平成28年10月6日 (2016. 10. 6)
審査請求日 平成29年3月14日 (2017. 3. 14)
(31) 優先権主張番号 特願2015-67225 (P2015-67225)
(32) 優先日 平成27年3月27日 (2015. 3. 27)
(33) 優先権主張国 日本国 (JP)

早期審査対象出願

(73) 特許権者 000001085
株式会社クラレ
岡山県倉敷市酒津1621番地
(74) 代理人 100081422
弁理士 田中 光雄
(74) 代理人 100101454
弁理士 山田 卓二
(74) 代理人 100104592
弁理士 森住 憲一
(72) 発明者 浅沼 芳聡
岡山県倉敷市玉島乙島7471番地 株式
会社クラレ内
(72) 発明者 楠藤 健
岡山県倉敷市玉島乙島7471番地 株式
会社クラレ内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 合わせガラス用中間膜

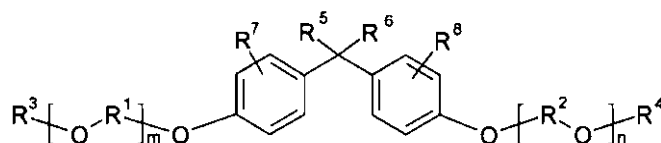
(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

ポリビニルアセタール、ポリカルボン酸ビニル及びオレフィン-カルボン酸ビニル共重合体からなる群から選ばれる少なくとも1種類の熱可塑性樹脂 (a1) 100質量部、並びに化合物1～化合物4からなる群から選ばれる少なくとも1種類の化合物 (a2) を10～1000質量部含む組成物 (A) からなる合わせガラス用中間膜であって、

化合物1は、化学式 (1) :

【化1】



化学式 (1)

[式中、R¹ 及び R² は、それぞれ互いに独立して、アルキル置換基を有していてもよいジメチレン基、アルキル置換基を有していてもよいトリメチレン基及びアルキル置換基を有していてもよいテトラメチレン基からなる群から選ばれる基を表し、R³ 及び R⁴ は、それぞれ互いに独立して、水素原子、アシル基及びアルキル基からなる群から選ばれる基

であり、 R^5 及び R^6 は、それぞれ互いに独立して、水素原子及び有機基からなる群から選ばれる基であり、 R^7 及び R^8 は、それぞれ互いに独立して、有していても有していなくてもよい任意の置換基であり、 m 及び n は任意の自然数であり、化合物 1 分子あたりの $(m+n)$ の平均は 2 ～ 10 である]

で表される化合物であり、

化合物 2 は、化合物 1 以外の、いずれも水素原子でない 4 つの原子に結合した炭素原子を少なくとも 1 つ有する化合物であって、該炭素原子のうち少なくとも 1 つは、少なくとも 3 つの環構造に直接結合している化合物であり、

化合物 3 は、化合物 1 及び化合物 2 以外の、縮合環骨格中にいずれも水素原子でない 4 つの原子に結合した炭素原子を 1 つ有する化合物であって、該炭素原子に結合している基のうち少なくとも 1 つは水酸基、及び直鎖又は分岐鎖を有する有機基からなる群から選ばれる基である化合物であり、

化合物 4 は、化合物 1 ～ 3 以外の、ベンゼン環が 3 つ以上縮環した骨格を有し、150 ～ 1000 の分子量を有するアセン系化合物である、

合わせガラス用中間膜。

【請求項 2】

前記熱可塑性樹脂のエステル価は $5 \text{ mg KOH/g} \sim 800 \text{ mg KOH/g}$ 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の平均残存水酸基量は 15 モル% ～ 50 モル% である、請求項 1 または 2 に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 4】

前記化学式 (1) において、 $m+n=2 \sim 3$ である化合物の割合は 10 ～ 100 質量% である、請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 5】

前記化学式 (1) において、 R^5 及び R^6 はいずれもメチル基である、請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 6】

前記化学式 (1) において R^5 及び R^6 は直接結合し、環状の構造を形成している、請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 7】

前記化合物 2 において、前記いずれも水素原子でない 4 つの原子に結合した炭素原子は 4 つの環構造に直接結合している、請求項 1 ～ 6 のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 8】

前記化合物 3 において、前記いずれも水素原子でない 4 つの原子に結合した炭素原子に結合している基のうち 2 つは、水酸基及び直鎖又は分岐鎖を有する有機基からなる群から選ばれる基である、請求項 1 ～ 7 のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 9】

化合物 (a2) の水酸基価は 500 mg KOH/g 以下である、請求項 1 ～ 8 のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 10】

樹脂 (a1) 100 質量部に対して可塑剤 (a3) を 1 ～ 100 質量部含む、請求項 1 ～ 9 のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜であって、可塑剤 (a3) は化合物 1 ～ 4 ではない合わせガラス用中間膜。

【請求項 11】

可塑剤 (a3) は、 j 価カルボン酸 1 分子と 1 価アルコール j 分子とのエステル化反応で得られる化合物 ($j=1 \sim 4$)、及び 1 価カルボン酸 k 分子と k 価アルコール 1 分子とのエステル化反応で得られる化合物 ($k=1 \sim 4$) からなる群から選ばれる 1 種類以上の化合物を含む、請求項 10 に記載の合わせガラス用中間膜。

10

20

30

40

50

【請求項 1 2】

化合物 (a 2) と可塑剤 (a 3) は、前記組成物 (A) に含まれる比率で 2 3℃において相溶するものである、請求項 1 0 又は 1 1 に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 1 3】

前記組成物 (A) のガラス転移温度は - 3 0 ~ 5 0℃である、請求項 1 ~ 1 2 のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 1 4】

前記組成物 (A) はそのガラス転移温度において 1 . 5 以上の $\tan \delta$ を有する、請求項 1 ~ 1 3 のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜であって、 $\tan \delta$ は周波数 0 . 3 Hz 及び引っぱりモードで測定される合わせガラス用中間膜。

10

【請求項 1 5】

請求項 1 ~ 1 4 のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜を少なくとも一層含む、合わせガラス用多層中間膜。

【請求項 1 6】

二枚のガラス板の間に、請求項 1 ~ 1 4 のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜又は請求項 1 5 に記載の合わせガラス用多層中間膜が挟持されてなる合わせガラス。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0 0 0 1】

本発明は、合わせガラス用中間膜に関する。

20

【背景技術】

【0 0 0 2】

高強度かつ高透明性を有し、柔軟性及びガラスとの接着性に優れる合わせガラス用中間膜を 2 枚のガラスで挟んで得られる合わせガラスは、自動車フロントガラス等の各種安全ガラスに使用されている。

【0 0 0 3】

一方、熱可塑性樹脂や熱硬化性樹脂、例えばポリビニルブチラールに代表されるポリビニルアセタールは、有機・無機基材に対する接着性や相溶性、有機溶剤への溶解性に優れており、種々の接着剤やセラミック用バインダー、各種インク、塗料等や、安全ガラス用中間膜として広範に利用されている。

30

【0 0 0 4】

合わせガラス用中間膜にはある程度の柔軟性が要求されるため、通常、ポリビニルブチラールと可塑剤とを混合した組成物が使用される。特に遮音性能を有する合わせガラス用中間膜においては、通常の合わせガラスに比べて多量の可塑剤を含む組成物を使用することで、室温付近における遮音性能を向上させている（例えば特許文献 1）。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0 0 0 5】

【特許文献 1】特開 2 0 0 7 - 0 0 8 7 9 8 号公報

【発明の概要】

40

【発明が解決しようとする課題】

【0 0 0 6】

ところで、熱可塑性樹脂や熱硬化性樹脂、例えばポリビニルブチラールと可塑剤とを混合する場合、可塑剤の添加量を増やして組成物のガラス転移温度を低下させるほど、ガラス転移温度付近における $\tan \delta$ の大きさも低下する。遮音性合わせガラス用中間膜においてはその $\tan \delta$ が大きいほど、合わせガラスのコインシデンス効果を低下させる効果が大きいことが知られているが、現在までに知られている組成物ではガラス転移温度付近における $\tan \delta$ の大きさを保持しつつ、ガラス転移温度を低下させることは困難であった。

【0 0 0 7】

50

そこで、本発明の目的は、熱可塑性樹脂や熱硬化性樹脂、例えばポリビニルアセタールと可塑剤とを含む組成物であって、当該組成物に含まれる樹脂に比べて十分に低下したガラス転移温度と、十分に大きい $\tan \delta$ を両立する組成物を提供することである。また、本発明の別の目的は、コインシデンス領域のみならず質量支配領域においても遮音性が向上した遮音性合わせガラス用中間膜を提供することである。

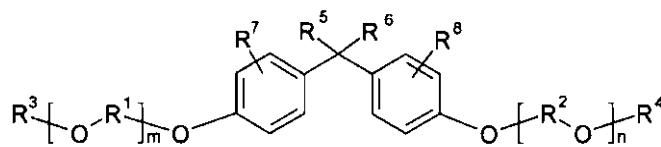
【課題を解決するための手段】

【0008】

本発明によれば、上記目的は、

[1] 熱可塑性樹脂及び熱硬化性樹脂からなる群から選ばれる少なくとも1種類の樹脂(a1) 100質量部、並びに化合物1～化合物4からなる群から選ばれる少なくとも1種類の化合物(a2)を10～1000質量部含む組成物(A)からなる合わせガラス用中間膜であって、

化合物1は、化学式(1)：



化学式(1)

[式中、 R^1 及び R^2 は、それぞれ互いに独立して、アルキル置換基を有していてもよいジメチレン基、アルキル置換基を有していてもよいトリメチレン基及びアルキル置換基を有していてもよいテトラメチレン基からなる群から選ばれる基を表し、 R^3 及び R^4 は、それぞれ互いに独立して、水素原子、アシル基及びアルキル基からなる群から選ばれる基であり、 R^5 及び R^6 は、それぞれ互いに独立して、水素原子及び有機基からなる群から選ばれる基であり、 R^7 及び R^8 は、それぞれ互いに独立して、有していても有していなくてもよい任意の置換基であり、 m 及び n は任意の自然数であり、化合物1分子あたりの $(m+n)$ の平均は2～10である]

で表される化合物であり、

化合物2は、化合物1以外の、いずれも水素原子でない4つの原子に結合した炭素原子を少なくとも1つ有する化合物であって、該炭素原子のうち少なくとも1つは、少なくとも3つの環構造に直接結合している化合物であり、

化合物3は、化合物1及び化合物2以外の、縮合環骨格中にいずれも水素原子でない4つの原子に結合した炭素原子を1つ有する化合物であって、該炭素原子に結合している基のうち少なくとも1つは水酸基、及び直鎖又は分岐鎖を有する有機基からなる群から選ばれる基である化合物であり、

化合物4は、化合物1～3以外の、ベンゼン環が3つ以上縮環した骨格を有し、150～10000の分子量を有するアセン系化合物である、

合わせガラス用中間膜；

[2] 樹脂(a1)は熱可塑性樹脂である、上記[1]に記載の合わせガラス用中間膜；

[3] 前記熱可塑性樹脂のエステル価は5mg KOH/g～800mg KOH/gである、上記[2]に記載の合わせガラス用中間膜；

[4] 前記熱可塑性樹脂はポリビニルアセタール、ポリカルボン酸ビニル及びオレフィン-カルボン酸ビニル共重合体からなる群から選ばれる少なくとも1種類の樹脂である、上記[2]又は[3]に記載の合わせガラス用中間膜；

[5] 前記ポリビニルアセタールの平均残存水酸基量は15モル%～50モル%である、上記[4]に記載の合わせガラス用中間膜；

[6] 前記化学式(1)において、 $m+n=2\sim3$ である化合物の割合は10～100質量%である、上記[1]～[5]のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜；

〔7〕前記化学式（1）において、 R^5 及び R^6 はいずれもメチル基である、上記〔1〕～〔6〕のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜；

〔8〕前記化学式（1）において R^5 及び R^6 は直接結合し、環状の構造を形成している、上記〔1〕～〔6〕のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜；

〔9〕前記化合物 2 において、前記いずれも水素原子でない 4 つの原子に結合した炭素原子は 4 つの環構造に直接結合している、上記〔1〕～〔8〕のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜；

〔10〕前記化合物 3 において、前記いずれも水素原子でない 4 つの原子に結合した炭素原子に結合している基のうち 2 つは、水酸基及び直鎖又は分岐鎖を有する有機基からなる群から選ばれる基である、上記〔1〕～〔9〕のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜；

10

〔11〕化合物（a 2）の水酸基価は 500 mg KOH/g 以下である、上記〔1〕～〔10〕のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜；

〔12〕樹脂（a 1）100 質量部に対して可塑剤（a 3）を 1～100 質量部含む、上記〔1〕～〔11〕のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜であって、可塑剤（a 3）は化合物 1～4 ではない合わせガラス用中間膜；

〔13〕可塑剤（a 3）は、 j 価カルボン酸 1 分子と 1 価アルコール j 分子とのエステル化反応で得られる化合物（ $j = 1 \sim 4$ ）、及び 1 価カルボン酸 k 分子と k 価アルコール 1 分子とのエステル化反応で得られる化合物（ $k = 1 \sim 4$ ）からなる群から選ばれる 1 種類以上の化合物を含む、上記〔12〕に記載の合わせガラス用中間膜；

20

〔14〕化合物（a 2）と可塑剤（a 3）は、前記組成物（A）に含まれる比率で 23°C において相溶するものである、上記〔12〕又は〔13〕に記載の合わせガラス用中間膜；

〔15〕前記組成物（A）のガラス転移温度は $-30 \sim 50^\circ\text{C}$ である、上記〔1〕～〔14〕のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜；

〔16〕前記組成物（A）はそのガラス転移温度において 1.5 以上の $\tan \delta$ を有する、上記〔1〕～〔15〕のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜であって、 $\tan \delta$ は周波数 0.3 Hz 及び引っぱりモードで測定される合わせガラス用中間膜；

〔17〕上記〔1〕～〔16〕のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜を少なくとも一層含む、合わせガラス用多層中間膜；

30

〔18〕二枚のガラス板の間に、上記〔1〕～〔16〕のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜又は上記〔17〕に記載の合わせガラス用多層中間膜が挟持されてなる合わせガラス；

を提供することで達成される。

【発明の効果】

【0009】

本発明によれば、十分に低下したガラス転移温度と、十分に大きい $\tan \delta$ とを併せ持つ組成物からなり、コインシデンス領域のみならず質量支配領域においても遮音性が向上した合わせガラス用中間膜を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

40

【0010】

【図1】合わせガラス用中間膜の断面図の一例である。

【発明を実施するための形態】

【0011】

本発明の合わせガラス用中間膜は、熱可塑性樹脂及び熱硬化性樹脂からなる群から選ばれる少なくとも 1 種類の樹脂（a 1）と、後述する化合物 1～化合物 4 からなる群から選ばれる少なくとも 1 種類の化合物（a 2）を含む組成物（A）からなる。

【0012】

樹脂（a 1）の水酸基価は、優れた遮音性能を発現させる観点、特に後述する化合物（a 2）との相溶性を良くする観点から、 300 mg KOH/g 以下であることが好ましく

50

、200mg KOH/g以下であることがより好ましく、100mg KOH/g以下であることがより好ましく、80mg KOH/g以下であることがより好ましく、60mg KOH/g以下であることがより好ましく、40mg KOH/g以下であることがさらに好ましく、20mg KOH/g以下であることが特に好ましい。この場合の水酸基価の下限値は、通常は、0mg KOH/gである。

【0013】

一方、遮音層に十分な力学強度を発現させる観点では、樹脂(a1)の水酸基価は20mg KOH/g以上であることが好ましく、50mg KOH/g以上であることがより好ましく、100mg KOH/g以上であることがより好ましく、120mg KOH/g以上であることがより好ましく、140mg KOH/g以上であることがさらに好ましい。また、樹脂(a1)の水酸基価は1000mg KOH/g以下であることが好ましく、800mg KOH/g以下であることがより好ましく、500mg KOH/g以下であることがさらに好ましく、300mg KOH/g以下であることが特に好ましい。

10

【0014】

樹脂(a1)のエステル価は5mg KOH/g以上であることが好ましく、20mg KOH/g以上であることがより好ましく、50mg KOH/g以上であることがより好ましく、100mg KOH/g以上であることがより好ましく、200mg KOH/g以上であることがさらに好ましく、300mg KOH/g以上であることが特に好ましい。また樹脂(a1)のエステル価は800mg KOH/g以下であることが好ましく、700mg KOH/g以下であることがより好ましく、600mg KOH/g以下であることがさらに好ましい。エステル価が上記範囲を満たすと、特に本発明の合わせガラス用中間膜が後述する化合物(a2)を含む場合に適切な温度で優れた遮音性能を発現できるため、好適である。

20

【0015】

組成物(A)中の樹脂(a1)の含有量は、組成物(A)の総重量に基づいて、20質量%以上であることが好ましく、25質量%以上であることがより好ましく、30質量%以上であることがさらに好ましく、35質量%以上であることが特に好ましい。組成物(A)中の樹脂(a1)の含有量は、組成物(A)の総重量に基づいて、100質量%以下であることが好ましく、90質量%以下であることがより好ましく、80質量%以下であることがさらに好ましく、75質量%以下であることが特に好ましい。組成物(A)中の熱可塑性樹脂の含有量が上記範囲外であると、本発明の合わせガラス用中間膜の遮音性能が不十分となったり、強度が不十分となったりする傾向がある。

30

【0016】

樹脂(a1)は、より高い遮音性能を発現させる観点から、熱可塑性樹脂であることが好ましい。なお本発明で使用する熱可塑性樹脂は、取扱い性や成形性を改善するために、熱可塑性樹脂としての特性を損なわない範囲で部分的に又は少量の架橋構造を含むものであってもよい。

【0017】

<熱可塑性樹脂>

樹脂(a1)が熱可塑性樹脂である場合、例えばポリビニルアセタール、ポリビニルアルコール、ポリウレタン、ポリカルボン酸ビニル、オレフィン-カルボン酸ビニル共重合体、ポリウレタンエラストマー、ポリエステルエラストマー、スチレン-ジエンブロック共重合体及び塩素化ポリオレフィン等の従来公知の熱可塑性樹脂を使用することができる。これらの中でも、本発明の合わせガラス用中間膜が優れた遮音性能を発現し、長期間使用した場合の耐候性に優れる観点から、樹脂(a1)がポリビニルアセタールであることが好ましい。また、樹脂(a1)は、本発明の合わせガラス用中間膜がより遮音性能に優れる観点から、ポリカルボン酸ビニル及び/又はオレフィン-カルボン酸ビニル共重合体であることが好ましい。

40

【0018】

本発明に用いることができるポリビニルアセタールは、通常、ポリビニルアルコールを

50

原料として製造される。上記ポリビニルアルコールは従来公知の手法、例えば、酢酸ビニル等のカルボン酸ビニルエステル化合物を重合し、得られた重合体をけん化することによって得ることができる。カルボン酸ビニルエステル化合物を重合する方法としては、溶液重合法、塊状重合法、懸濁重合法及び乳化重合法等の従来公知の方法を適用することができる。重合開始剤としては、重合方法に応じて、アゾ系開始剤、過氧化物系開始剤及びレドックス系開始剤等を適宜選択できる。けん化反応は、従来公知のアルカリ触媒又は酸触媒を用いた加水分解反応及び加水分解反応等を適用できる。

【0019】

また、前記ポリビニルアルコールは本発明の趣旨に反しない限り、カルボン酸ビニルエステル化合物と他の単量体とを共重合させた共重合体をけん化したものであってもよい。他の単量体としては、例えば、エチレン、プロピレン、*n*-ブテン及びイソブチレン等の α -オレフィン；アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸*n*-ブチル、アクリル酸*i*-ブチル、アクリル酸*t*-ブチル、アクリル酸2-エチルヘキシル、アクリル酸ドデシル及びアクリル酸オクタデシル等のアクリル酸エステル；メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸*n*-ブチル、メタクリル酸*i*-ブチル、メタクリル酸*t*-ブチル、メタクリル酸2-エチルヘキシル、メタクリル酸ドデシル及びメタクリル酸オクタデシル等のメタクリル酸エステル；アクリルアミド、*N*-メチルアクリルアミド、*N*-エチルアクリルアミド、*N*, *N*-ジメチルアクリルアミド、ジアセトンアクリルアミド、アクリルアミドプロパンスルホン酸及びその塩、アクリルアミドプロピルジメチルアミン、その塩及びその4級塩、並びに*N*-メチロールアクリルアミド及びその誘導体等の、アクリルアミド及びその誘導体；メタクリルアミド、*N*-メチルメタクリルアミド、*N*-エチルメタクリルアミド、メタクリルアミドプロパンスルホン酸及びその塩、メタクリルアミドプロピルジメチルアミン、その塩及びその4級塩、並びに*N*-メチロールメタクリルアミド及びその誘導体等の、メタクリルアミド及びその誘導体；メチルビニルエーテル、エチルビニルエーテル、*n*-ブチルビニルエーテル、*i*-ブチルビニルエーテル、*t*-ブチルビニルエーテル、ドデシルビニルエーテル及びステアリルビニルエーテル等のビニルエーテル；アクリロニトリル及びメタクリロニトリル等のニトリル；塩化ビニル及びフッ化ビニル等のハロゲン化ビニル；塩化ビニリデン及びフッ化ビニリデン等のハロゲン化ビニリデン；酢酸アリル及び塩化アリル等のアリル化合物；マレイン酸エステル、マレイン酸無水物、ビニルトリメトキシシラン等のビニルシリル化合物、並びに酢酸イソプロペニル等が挙げられる。これらの他の単量体を共重合させる場合には、通常、カルボン酸ビニルエステル化合物に対して10モル%未満の割合で用いられる。

【0020】

前記ポリビニルアルコールの粘度平均重合度は150～3500のものが好ましく、200～2500のものがより好ましく、1500～2500であるものがさらに好ましい。粘度平均重合度が150未満であると、本発明の組成物の力学強度が不十分となることがあり、3500を超えると、溶剤への溶解性や、熔融加工時の加工性が低下することがある。なお、ポリビニルアルコールの粘度平均重合度は例えばJIS K6724:1994に準拠して測定することができる。

【0021】

本発明に用いることができるポリビニルアセタールは、例えば次のような方法によって得ることができる。まず、濃度3～30質量%のポリビニルアルコール水溶液を、80～100℃の温度範囲で保持した後、10～60分かけて徐々に冷却する。温度が-10～30℃まで低下したところで、アルデヒド及び酸触媒を添加し、温度を一定に保ちながら、30～300分間アセタール化反応を行う。その後、反応液を30～200分かけて20～80℃の温度まで昇温し、30～300分保持する。次に反応液を必要に応じてアルカリ等の中和剤を添加して中和し、樹脂を水洗し、乾燥することにより、ポリビニルアセタールを得ることができる。

【0022】

アセタール化反応に用いる酸触媒は、例えば有機酸及び無機酸のいずれも使用すること

10

20

30

40

50

ができる。例えば、酢酸、パラトルエンスルホン酸、硝酸、硫酸及び塩酸等が挙げられる。これらの中でも、十分な反応速度が得られ、反応後の洗浄が容易である観点から、塩酸、硫酸及び硝酸が好ましく用いられる。

【0023】

アセタール化反応に用いるアルデヒドは、炭素数1～8のアルデヒドを用いることが好ましい。炭素数1～8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-ペンチルアルデヒド、n-ヘキシルアルデヒド、2-エチルブチルアルデヒド、n-ヘプチルアルデヒド、n-オクチルアルデヒド、2-エチルヘキシルアルデヒド及びベンズアルデヒド等が挙げられる。これらは単独で使用されてもよく、二種以上が併用されてもよい。これらの中でも、炭素数2～5のアルデヒドを用いることが好ましく、炭素数4のアルデヒドを用いることがより好ましい。特にn-ブチルアルデヒドが入手容易であり、アセタール化反応後に残存するアルデヒドの水洗や乾燥による除去が容易で、得られるポリビニルアセタールの力学特性に優れ、さらに組成物(A)のガラス転移温度を低下させつつtanδの高いものが得られるため、好ましく用いられる。

10

【0024】

本発明に用いることができるポリビニルアセタールの平均残存水酸基量は、15～50モル%であることが好ましく、17～42モル%であることがより好ましく、23～35モル%であることがさらに好ましく、26～33モル%であることが特に好ましい。平均残存水酸基量が15モル%未満であると、組成物(A)の力学強度が不十分となったり、後述する化合物(a2)及び可塑剤(a3)との相溶性が低下したりする傾向がある。また、平均残存水酸基量が50モル%を超えると、組成物(A)が吸水しやすくなったり、後述する化合物(a2)及び可塑剤(a3)との相溶性が低下したりする傾向がある。

20

【0025】

本発明に用いることができるポリビニルアセタールの平均残存ビニルエステル基量は、0.1～15モル%であることが好ましく、0.1～10モル%であることがより好ましく、0.1～5モル%であることがさらに好ましい。平均残存ビニルエステル基量が0.1モル%未満のものは工業的に安価に生産することが困難であり、15モル%を越えるものは、長期間使用した場合に変色して外観が損なわれる可能性がある。

【0026】

本発明に用いることができるポリビニルアセタールの平均アセタール化度は、40～84モル%であることが好ましく、45～80モル%であることがより好ましく、50～75モル%であることがより好ましく、50～73モル%であることがさらに好ましく、70～73モル%であることが特に好ましい。ポリビニルアセタールの平均アセタール化度が40モル%未満となると、後述する化合物(a2)及び可塑剤(a3)との相溶性が低下する傾向がある。また、平均アセタール化度が84モル%を超えるものは工業的に安価に生産することが困難であり、また得られる組成物の力学強度が低下する傾向がある。

30

【0027】

本発明で用いることができるポリカルボン酸ビニルは、カルボン酸ビニル化合物を従来公知の方法、例えば溶液重合法、塊状重合法、懸濁重合法又は乳化重合法等の方法により重合したものをを用いることができる。重合開始剤としては、重合方法に応じて、アゾ系開始剤、過酸化物系開始剤又はレドックス系開始剤等が適宜選択される。カルボン酸ビニル化合物は、炭素数4～20のカルボン酸ビニル化合物が好ましく、炭素数4～10のカルボン酸ビニル化合物がより好ましく、炭素数4～6のカルボン酸ビニル化合物がさらに好ましい。カルボン酸ビニル化合物の炭素数が4より小さくなると、目的の重合体の製造が困難となり、炭素数が20より大きくなると、本発明の合わせガラス用中間膜の力学特性が低下したり、遮音性能が低下したりする傾向がある。このようなカルボン酸ビニル化合物としては、酢酸ビニル、酢酸n-プロペニル、酢酸イソプロペニル、酢酸n-ブテニル、酢酸イソブテニル、プロピオン酸ビニル、ブタン酸ビニル、ペンタン酸ビニル、ヘキサノ酸ビニル、オクタン酸ビニル、デカン酸ビニル、ドデカン酸ビニル及びヘキサデカン酸

40

50

ビニル等が挙げられる。これらの中でも特に、酢酸ビニル、プロピオン酸ビニル及びブタン酸ビニルが好適に用いられ、酢酸ビニルがより好適に用いられる。

【0028】

本発明で用いることができるポリカルボン酸ビニルとしては、本発明の趣旨に反しない限り、カルボン酸ビニル化合物をオレフィン以外の他の単量体と共重合したものをを用いることができる。単量体としては、例えば、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸*n*-ブチル、アクリル酸*i*-ブチル、アクリル酸*t*-ブチル、アクリル酸2-エチルヘキシル、アクリル酸ドデシル及びアクリル酸オクタデシル等のアクリル酸エステル；メタクリル酸メチル、メタクリル酸エチル、メタクリル酸*n*-ブチル、メタクリル酸*i*-ブチル、メタクリル酸*t*-ブチル、メタクリル酸2-エチルヘキシル、メタクリル酸ドデシル及びメタクリル酸オクタデシル等のメタクリル酸エステル；アクリルアミド、*N*-メチルアクリルアミド、*N*-エチルアクリルアミド、*N*，*N*-ジメチルアクリルアミド、ジアセトンアクリルアミド、アクリルアミドプロパンスルホン酸及びその塩、アクリルアミドプロピルジメチルアミン、その塩及びその4級塩、並びに*N*-メチロールアクリルアミド及びその誘導体等のアクリルアミド及びその誘導体；メタクリルアミド、*N*-メチルメタクリルアミド、*N*-エチルメタクリルアミド、メタクリルアミドプロパンスルホン酸及びその塩、メタクリルアミドプロピルジメチルアミン、その塩及びその4級塩、並びに*N*-メチロールメタクリルアミド及びその誘導体等のメタクリルアミド及びその誘導体；メチルビニルエーテル、エチルビニルエーテル、*n*-ブチルビニルエーテル、*i*-ブチルビニルエーテル、*t*-ブチルビニルエーテル、ドデシルビニルエーテル及びステアシルビニルエーテル等のビニルエーテル；アクリロニトリル及びメタクリロニトリル等のニトリル；塩化ビニル及びフッ化ビニル等のハロゲン化ビニル；塩化ビニリデン及びフッ化ビニリデン等のハロゲン化ビニリデン；酢酸アリル及び塩化アリル等のアリル化合物；マレイン酸エステル又はマレイン酸無水物、ビニルトリメトキシシラン等のビニルシリル化合物等が挙げられる。これらの他の単量体を共重合させる場合には、通常、これらの他の単量体を、カルボン酸ビニル化合物に対して10モル%未満の割合で用いられることが好ましい。

【0029】

本発明で用いることができるポリカルボン酸ビニルの重合度は500以上であることが好ましく、1000以上であることがより好ましく、1500以上であることがさらに好ましい。また、ポリカルボン酸ビニルの重合度は10000以下であることが好ましく、5000以下であることがより好ましく、3500以下であることがさらに好ましい。重合度が上記範囲を満たすと、本発明の合わせガラス用中間膜が優れた遮音性能と十分な力学強度を発現するため好適である。

【0030】

本発明で用いることができるオレフィン-カルボン酸ビニル共重合体としては、従来公知のオレフィン-カルボン酸ビニル共重合体を使用することができる。オレフィンとしては、エチレン、プロピレン、*n*-ブテン、イソブチレン、ブタジエン及びイソプレン等の従来公知の化合物を使用することができる。また、カルボン酸ビニル化合物としては、酢酸ビニル、酢酸*n*-プロペニル、酢酸イソプロペニル、酢酸*n*-ブテニル、酢酸イソブテニル、プロピオン酸ビニル、ブタン酸ビニル、ペンタン酸ビニル、ヘキサン酸ビニル、ヘプタン酸ビニル、オクタン酸ビニル、ノナン酸ビニル、デカン酸ビニル、ドデカン酸ビニル及びヘキサデカン酸ビニルが挙げられる。これらの中でも、エチレン-酢酸ビニル共重合体を用いることが、本発明の合わせガラス用中間膜が優れた遮音性能と十分な力学強度を発現する観点で好ましい。

【0031】

前記オレフィン-カルボン酸ビニル共重合体において、オレフィン部分とカルボン酸ビニル部分との合計量に対するカルボン酸ビニル部分の量の比率は10モル%以上であることが好ましく、20モル%以上であることがより好ましく、30モル%以上であることがさらに好ましく、40モル%以上であることが特に好ましい。また、オレフィン部分とカルボン酸ビニル部分との合計量に対するカルボン酸ビニル部分の量の比率は90モル%以

下であることが好ましく、85モル%以下であることがより好ましく、80モル%以下であることがさらに好ましく、75モル%以下であることが特に好ましい。カルボン酸ビニル部分の量が上記範囲を満たすと、本発明の合わせガラス用中間膜が十分な力学強度と好適な温度で優れた遮音性能を発現することが可能である。

【0032】

<熱硬化性樹脂>

本発明で用いることができる熱硬化性樹脂としては、例えばエポキシ系樹脂、フェノール系樹脂、ウレタン系樹脂、メラミン系樹脂及び不飽和ポリエステル系樹脂等が挙げられる。

【0033】

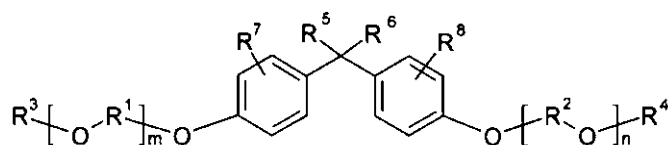
<化合物(a2)>

本発明の合わせガラス用中間膜は、化合物1～化合物4からなる群から選ばれる少なくとも1種類の化合物(a2)を含む。

【0034】

<化合物1(第一の可塑剤)>

化合物1は、化学式(1)：



化学式(1)

で表される化合物である。以下において、化学式(1)で表される化合物を「第一の可塑剤」と称することもある。なお本願における可塑剤とは、樹脂に添加した際にいずれかの温度で組成物の粘度を下げる効果を示すものを指す。

【0035】

化学式(1)において、 R^1 及び R^2 は、それぞれ互いに独立して、アルキル置換基を有していてもよいジメチレン基、アルキル置換基を有していてもよいトリメチレン基及びアルキル置換基を有していてもよいテトラメチレン基からなる群から選ばれる基を表す。ジメチレン基とは $-CH_2-CH_2-$ で表される基であり、アルキル置換基を有するジメチレン基とは、ジメチレン基に含まれる任意の水素原子1個以上、好ましくは1個をアルキル基、より好ましくは炭素数1～20のアルキル基で置換したジメチレン基を表す。トリメチレン基とは $-CH_2-CH_2-CH_2-$ で表される基であり、アルキル置換基を有するトリメチレン基とは、トリメチレン基に含まれる任意の水素原子1個以上、好ましくは1個をアルキル基、より好ましくは炭素数1～20のアルキル基で置換したトリメチレン基を表す。テトラメチレン基とは $-CH_2-CH_2-CH_2-CH_2-$ で表される基であり、アルキル置換基を有するテトラメチレン基とは、テトラメチレン基に含まれる任意の水素原子1個以上、好ましくは1個をアルキル基、より好ましくは炭素数1～20のアルキル基で置換したテトラメチレン基を表す。これらの中でも特に、アルキル置換基を有していてもよいジメチレン基が好ましい。化学式(1)において、 R^1 と R^2 の合計量の50～100モル%がジメチレン基、及びメチル置換基を1個有するジメチレン基すなわち $-CH_2-CH(CH_3)-$ からなる群から選ばれる基であることが、化合物1と樹脂(a1)との相溶性、化合物1の樹脂(a1)への可塑化効果、組成物(A)においてガラス転移温度を低下させつつ $\tan \delta$ の値を高くする観点、及び化合物1を安価に入手する観点から好ましい。後述する可塑剤(a3)(以下、「第二の可塑剤」と称することもある)を使用する場合には、化合物(a2)と後述する可塑剤(a3)が、組成物(A)に含まれる比率で23℃において相溶するものとするのが容易である観点から、メチル置換基を1個有するジメチレン基が好適である。ここで、化合物(a2)と可塑剤(a

3) が「相溶する」とは、目視で確認した際に、化合物 (a 2) 及び／又は可塑剤 (a 3) が析出しておらず、混合物が相分離を起こしておらず、濁っていない場合を指す。

【0036】

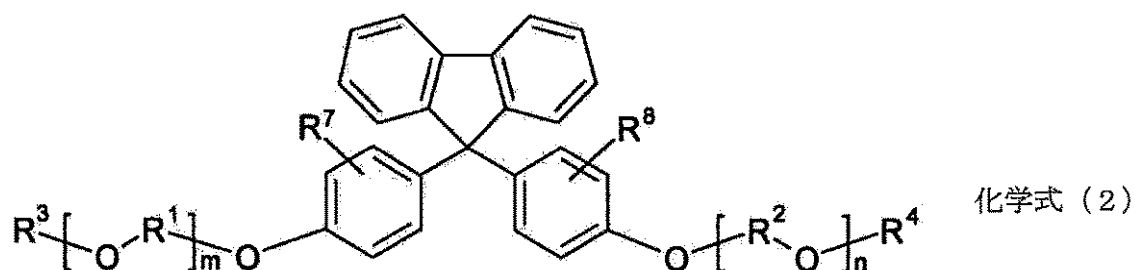
化学式 (1) において、 R^1 及び R^2 は化学式 (1) における R^1 と R^2 の合計量の 50～100モル%、好ましくは70～100モル%、より好ましくは90～100モル%がジメチレン基、メチル置換基を1個有するジメチレン基から選ばれる基であることが、化合物1と樹脂 (a 1) との相溶性、化合物1の樹脂 (a 1) への可塑化効果、組成物 (A) においてガラス転移温度を低下させつつ $\tan \delta$ の値を高くする観点、及び化合物1を安価に入手する観点から好ましい。

【0037】

R^3 及び R^4 は、それぞれ互いに独立して、水素原子、アシル基及びアルキル基からなる群から選ばれる基である。アシル基としては炭素数2～20のアシル基が好ましく、炭素数2～8のアシル基がより好ましい。好ましいアシル基の例としては、例えば、アセチル基、エチルカルボニル基、プロピルカルボニル基、ブチルカルボニル基、ペンチルカルボニル基、3-ペンチルカルボニル基、ヘキシルカルボニル基及び3-ヘプチルカルボニル基等が挙げられる。アルキル基としては、炭素数1～20のアルキル基が好ましく、炭素数1～8のアルキル基がより好ましい。好ましいアルキル基の例としては、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基 (2-エチルヘキシル基等分岐状のものも含む) 等が挙げられ、これらは直鎖状であっても、分岐状であってもよい。 R^3 及び R^4 は、これらの中から任意に選択可能であるが、組成物 (A) において化合物1と樹脂 (a 1) との相溶性をより高くする観点から、 R^3 と R^4 の合計量の5～100モル%が水素原子であることが好ましく、10～100質量%が水素原子であることがより好ましく、30～100質量%が水素原子であることがより好ましく、50～100質量%が水素原子であることがより好ましく、80～100質量%が水素原子であることがさらに好ましく、90～100質量%が水素原子であることが特に好ましい。

【0038】

R^5 及び R^6 は、それぞれ互いに独立して、水素原子及び任意の有機基からなる群から選ばれる基である。 R^5 及び R^6 が直接結合し、環状の構造を形成していてもよい。可塑化効果の観点からは環状の構造を形成していないものであることが好ましい。 R^5 及び R^6 としては、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基及びトリフルオロメチル基等の脂肪族基、フェニル基等の芳香族基等が挙げられる。 R^5 及び R^6 が直接結合し、環状の構造を形成しているものとしては、フルオレン基等が挙げられる。参考までに、化学式 (2) :



により、 R^5 及び R^6 としてフルオレン基を有する化合物1の化学構造を示す。

R^5 及び R^6 がメチル基である場合が化合物1と樹脂 (a 1) との相溶性、及び化合物1の樹脂 (a 1) への可塑化効果に優れ、組成物 (A) のガラス転移温度を低下させつつ、 $\tan \delta$ の値が高くなるので好適である。また、 R^5 及び R^6 がフルオレン基を形成している場合は、組成物 (A) の $\tan \delta$ の極大値 (ガラス転移温度付近における $\tan \delta$ の値) を樹脂 (a 1) よりも上昇させるので好ましい。

【0039】

化学式 (1) において、 R^7 及び R^8 は、それぞれ互いに独立して、有していても有し

ていなくてもよい任意の置換基である。R⁷及びR⁸を有している場合、芳香環上におけるその結合位置や数は限定されず、2つ以上の基を有している場合にはそれらは同一であっても異なってもよい。R⁷及びR⁸を具体的に例示すると、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソブチル基及びtert-ブチル基等の脂肪族基、フェニル基等の芳香族基、フッ素原子、塩素原子及び臭素原子等のハロゲン原子が挙げられる。

【0040】

m及びnは任意の自然数であり、化合物1と樹脂(a1)との相溶性、及び化合物1の樹脂(a1)への可塑化効果の観点、並びに組成物(A)のガラス転移温度を低下させつつtanδの値を高いものとする観点から、化合物1分子あたりの(m+n)の平均は2~10であり、2~8であることが好ましく、2~6であることがより好ましく、2~4であることがさらに好ましい。

10

【0041】

また、化学式(1)で表される化合物のうち、m+n=2~3である化合物の割合は10~100質量%が好ましく、30~100質量%であることがより好ましく、50~100質量%であることがさらに好ましい。m+n=2~3である化合物の割合が前記範囲を満たすことにより、化合物1と樹脂(a1)との相溶性、及び化合物1の樹脂(a1)への可塑化効果がさらに優れ、また組成物(A)のガラス転移温度を低下させつつ、tanδの値を高いものとするので好適である。

【0042】

さらに、化合物1の取り扱い性の観点、及び化合物1の樹脂(a1)に対する可塑化効果の観点から、化合物1のうちm+n=2であるものの割合は0~80質量%であることが好ましく、0~70質量%であることがより好ましく、0~60質量%であることがさらに好ましく、0~50質量%であることが特に好ましい。

20

【0043】

化合物1としては、例えば、2, 2-ビス[4-(2-アセトキシエトキシ)フェニル]プロパン、2, 2-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]プロパン、2, 2-ビス[4-(2-(2-ヒドロキシエトキシ)エトキシ)フェニル]プロパン、2, 2-ビス[4-(2-メトキシエトキシ)フェニル]プロパン、1, 1-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]エタン、9, 9-ビス[4-(2-アセトキシエトキシ)フェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]フルオレン、9, 9-ビス[4-(2-(2-ヒドロキシエトキシ)エトキシ)フェニル]フルオレン、及び9, 9-ビス[4-(2-メトキシエトキシ)フェニル]フルオレンが挙げられる。これらの中でも、フルオレン骨格を有する化合物が、より高い遮音性能を得る観点から好ましく、また得られる合わせガラス用中間膜の耐候性の観点で好ましい。

30

【0044】

<化合物2>

化合物2は、化合物1以外の、いずれも水素原子でない4つの原子に結合した炭素原子を少なくとも1つ有する化合物であって、該炭素原子のうち少なくとも1つは、少なくとも3つの環構造に直接結合している化合物である。

【0045】

本発明の合わせガラス用中間膜の遮音性能をより高める観点から、化合物2は前記いずれも水素原子でない4つの原子すべてが炭素原子であることが好ましい。また同様の観点から、前記いずれも水素原子でない4つの原子に結合した炭素原子が4つの環構造に直接結合していることが好ましい。さらに同様の観点から、化合物2が縮合環構造を有していることが好ましく、前記縮合環構造が前記いずれも水素原子でない4つの原子に結合した炭素原子に直接結合していることがより好ましい。すなわち化合物2は、4つの炭素原子に結合した炭素原子を少なくとも1つ有し、該炭素原子のうち少なくとも1つは4つの環構造に直接結合しており、前記直接結合した環構造のうち少なくとも1つが縮合環構造を有している化合物であることが特に好ましい。

40

【0046】

50

化合物 2 としては、例えば 9, 9-ビス (4-ヒドロキシフェニル) フルオレン、9, 9-ビス (4-ヒドロキシ-3-メチルフェニル) フルオレン、9, 9-ジフェニルフルオレン及び 9, 9-ビス (4-ブロモフェニル) フルオレン等のフルオレン骨格を有する化合物、ジフェニルビス (4-ヒドロキシフェニル) メタン、ジフェニルビス (4-(2-ヒドロキシエトキシ) フェニル) メタン、テトラフェニルメタン等のテトラフェニルメタン骨格を有する化合物が挙げられる。これらの中でも、フルオレン骨格を有する化合物が、樹脂 (a 1) との相溶性に優れ、組成物 (A) の $\tan \delta$ の極大値を樹脂 (a 1) よりも上昇させ、本発明の合わせガラス用中間膜の遮音性を向上させる効果が高い点で好ましく、また得られる合わせガラス用中間膜の耐候性の観点で好ましい。

【0047】

10

<化合物 3>

化合物 3 は、化合物 1 及び化合物 2 以外の、縮合環骨格中にいずれも水素原子でない 4 つの原子に結合した炭素原子を 1 つ有する化合物であって、該炭素原子に結合している基のうち少なくとも 1 つが、水酸基、及び直鎖又は分岐鎖を有する有機基からなる群から選ばれる基である化合物である。

【0048】

化合物 3 としては、例えばジメタノールフルオレン、ジメチルフルオレン及びジエチルフルオレン等のフルオレン骨格を有する化合物、並びに 1, 3-ジメチルアダマンタン、1, 3-ジメタノールアダマンタン、1-エチルアダマンタン及び 3, 5-ジメチル-1-アダマンタノール等のアダマンタン骨格を有する化合物が挙げられる。これらの中でも、フルオレン骨格を有する化合物が、組成物 (A) の $\tan \delta$ の極大値を樹脂 (a 1) よりも上昇させる観点から好ましく、また得られる合わせガラス用中間膜の耐候性の観点で好ましい。

20

【0049】

<化合物 4>

化合物 4 は、化合物 1 ~ 3 以外の、ベンゼン環が 3 つ以上縮環した骨格を有し、150 ~ 1000 の分子量を有するアセン系化合物である。

【0050】

化合物 4 としては、例えば 9-(ヒドロキシメチル) アントラセン、9-(2-ヒドロキシエチル) アントラセン、2-クロロアントラセン、2-ブロモアントラセン、1, 8-ビスヒドロキシメチルアントラセン及び 9-ブロモアントラセン等のアセン系化合物 (アントラセン化合物) 等が挙げられる。

30

【0051】

化合物 (a 2) の分子量は 150 以上であることが好ましく、250 以上であることがより好ましく、300 以上であることがより好ましく、350 以上であることがさらに好ましく、400 以上であることが特に好ましい。また、化合物 (a 2) の分子量は、1000 以下であることが好ましく、2000 以下であることがより好ましく、1200 以下であることがより好ましく、1000 以下であることがさらに好ましく、800 以下であることが特に好ましい。化合物 (a 2) の分子量が 150 未満の場合は、長期間使用した場合に化合物 (a 2) が揮発してしまう傾向にあり、1000 を超える場合は、熱可塑性樹脂及び熱硬化性樹脂との相溶性が低下したり、十分な遮音性能が発現しなかったりすることがある。

40

【0052】

本発明で用いられる化合物 (a 2) の水酸基価は、150 ~ 400 mg KOH/g とすることが好ましく、200 ~ 350 mg KOH/g とすることがより好ましく、230 ~ 320 mg KOH/g とすることがさらに好ましい。化合物 (a 2) の水酸基価を前記範囲とすることにより、化合物 (a 2) と樹脂 (a 1) との相溶性、及び化合物 (a 2) の樹脂 (a 1) に対する可塑化効果に優れ、また得られる組成物 (A) の $\tan \delta$ の値を高いものとすることができるため、好適である。また、化合物 (a 2) の水酸基価は、長期間使用時にも本発明の合わせガラス用中間膜の遮音性能を保持するという観点からは、5

50

00 mg KOH/g 以下であることが好ましく、300 mg KOH/g 以下であることがより好ましく、200 mg KOH/g 以下であることがより好ましく、100 mg KOH/g 以下であることがより好ましく、50 mg KOH/g 以下であることがさらに好ましく、20 mg KOH/g 以下であることが特に好ましい。この場合の水酸基価の下限値は、通常は、0 mg KOH/g である。

【0053】

化合物(a2)のエステル価は、前記樹脂(a1)との相溶性や長期間使用時にも本発明の合わせガラス用中間膜の遮音性能を保持するという観点から、300 mg KOH/g 以下であることが好ましく、200 mg KOH/g 以下であることがより好ましく、100 mg KOH/g 以下であることがさらに好ましく、50 mg KOH/g 以下であることがいっそう好ましく、20 mg KOH/g 以下であることが特に好ましい。この場合のエステル価の下限値は、通常は、0 mg KOH/g である。

10

【0054】

組成物(A)に含まれる化合物(a2)の量は、組成物(A)に含まれる樹脂(a1)100質量部に対して10~1000質量部である。化合物(a2)は15質量部以上であることが好ましく、20質量部以上であることがより好ましく、35質量部以上であることがより好ましく、55質量部以上であることがさらに好ましく、75質量部以上であることが特に好ましい。また、化合物(a2)は300質量部以下であることが好ましく、200質量部以下であることがより好ましく、170質量部以下であることがより好ましく、150質量部以下であることがさらに好ましく、130質量部以下であることが特に好ましい。化合物(a2)が10質量部未満であると、前記化合物(a2)を添加する効果が発現しないことがあり、1000質量部を超えると、組成物(A)から前記化合物(a2)がブリードしたり、樹脂(a1)と化合物(a2)が相分離したりすることがある。なお化合物(a2)のブリードをより抑制する観点から、必要に応じて化合物(a2)を100質量部以下又は90質量部以下としてもよい。

20

【0055】

<可塑剤(a3)(第二の可塑剤)>

組成物(A)は、可塑剤(a3)を含んでいてもよい。可塑剤(a3)は、化合物1~4ではない。特に本発明の合わせガラス用中間膜に高い耐衝撃性を発現させる観点から、可塑剤(a3)を含んでいることが好ましい。

30

【0056】

本発明で用いることができる可塑剤(a3)は、樹脂(a1)との相溶性、及び樹脂(a1)への可塑化効果に優れるものであって、例えば樹脂(a1)がポリビニルアセタールである場合は、従来公知のポリビニルアセタール用可塑剤を使用することができる。また、可塑剤(a3)を用いる場合、化合物(a2)と可塑剤(a3)が、組成物(A)に含まれる比率で23℃において相溶していることが、組成物(A)を製造する際の作業性に優れ、得られる組成物(A)が透明性を有する観点から好ましい。ここで「相溶している」とは、目視で確認した際に、化合物(a2)及び/又は可塑剤(a3)が析出しておらず、混合物が相分離を起こしておらず、濁っていない場合を指す。

【0057】

40

可塑剤(a3)は、樹脂(a1)との相溶性、及び樹脂(a1)への可塑化効果に優れるものであり、例えばj価カルボン酸1分子と1価アルコールj分子とのエステル化反応で得られる化合物(j=1~4)、及び1価カルボン酸k分子とk価アルコール1分子とのエステル化反応で得られる化合物(k=1~4)からなる群から選ばれる1種類以上の化合物が好適に使用される。可塑剤(a3)と樹脂(a1)との相溶性、及び可塑剤(a3)の樹脂(a1)への可塑化効果の観点から、jは1~3であることがより好ましく、1~2であることがさらに好ましく、2であることが特に好ましい。また、可塑剤(a3)と樹脂(a1)との相溶性、及び可塑剤(a3)の樹脂(a1)への可塑化効果の観点から、kは1~3であることがより好ましく、1~2であることがさらに好ましく、2であることが特に好ましい。

50

【0058】

j 価カルボン酸 1 分子と 1 価アルコール j 分子とのエステル化反応で得られる化合物 (j = 1 ~ 4) を具体的に例示すると、アジピン酸ジヘキシル、アジピン酸ジ 2-エチルヘキシル、アジピン酸ジ (ブトキシエチル)、アジピン酸ジ (ブトキシエトキシエチル)、アジピン酸ジノニル、セバシン酸ブチル、セバシン酸ヘキシル、セバシン酸ジ (ブトキシエチル)、シクロヘキサンジカルボン酸ジイソノニルエステル、フタル酸ジオクチル、フタル酸ジ 2-エチルヘキシル、トリメット酸トリ 2-エチルヘキシル等が挙げられる。また、1 価カルボン酸 k 分子と k 価アルコール 1 分子とのエステル化反応で得られる化合物 (k = 1 ~ 4) を具体的に例示すると、トリエチレングリコールジ 2-エチルブタノエート、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ノネート、テトラエチレングリコールジ 2-エチルブチレート、テトラエチレングリコールジ 2-エチルヘキサノエート、グリセリントリブチル、グリセリントリヘキシル、グリセリントリ (ブトキシエチル)、グリセリントリ 2-エチルヘキシル等が挙げられる。樹脂 (a 1) がポリビニルアセタールの場合は、これらの中でも特にトリエチレングリコールジ 2-エチルヘキサノエートが、ポリビニルアセタールとの相溶性に特に優れ、得られる組成物 (A) の良好な耐衝撃性が発現する観点から好適である。

10

【0059】

可塑剤 (a 3) の使用量は、樹脂 (a 1) 100 質量部に対して 1 ~ 100 質量部含むことが好ましく、3 ~ 90 質量部含むことがより好ましく、5 ~ 80 質量部含むことがより好ましく、10 ~ 75 質量部含むことがさらに好ましく、15 ~ 70 質量部含むことが特に好ましい。可塑剤 (a 3) の量が 1 質量部未満であると、可塑剤 (a 3) を含むことによる効果が発現せず、可塑剤 (a 3) の量が 100 質量部を超えると、組成物 (A) から化合物 (a 2) 及び／又は可塑剤 (a 3) がブリードすることがあり、組成物 (A) の強度が著しく低下することがあり、好ましくない。

20

【0060】

組成物 (A) に可塑剤 (a 3) を添加する場合、化合物 (a 2) は樹脂 (a 1) と可塑剤 (a 3) の相溶性を向上させる作用も示す。とりわけ組成物 (A) を、例えば 5℃ のような低温下で保管もしくは使用する場合の相溶性を向上させる。そのような作用を効果的に発現させるためには、化合物 (a 2) の含有量に対する、可塑剤 (a 3) の含有量の割合は 0.03 ~ 4.0 質量倍であることが好ましく、0.05 ~ 2.0 質量倍であることがより好ましく、0.08 ~ 1.5 質量倍であることがより好ましく、0.1 ~ 1.0 質量倍であることがさらに好ましく、0.15 ~ 6 質量倍であることが特に好ましい。

30

【0061】

組成物 (A) は、本発明の効果を損なわない範囲で、接着性改良剤 (接着性調整剤)、酸化防止剤、紫外線吸収剤及びその他の添加剤を含んでいてもよい。

【0062】

接着性改良剤としては、例えば酢酸ナトリウム、酢酸カリウム、酢酸マグネシウム及び酪酸マグネシウム等の、アルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩等が挙げられる。その添加量は、例えばパンメル試験により得られるパンメル値が目的に応じた値になるように添加量を調節することができる。

40

【0063】

組成物 (A) はナトリウムを含んでいてもよいが、その含有量は 1 ~ 200 ppm であることが好ましく、3 ~ 100 ppm であることがより好ましく、5 ~ 70 ppm であることがさらに好ましく、10 ~ 50 ppm であることが特に好ましい。ナトリウム含有量が 1 ppm 未満であるものは工業的に安価に製造することが困難であり、また本発明の合わせガラス用中間膜を長期間使用した場合にポリビニルアセタールの脱アセタール化反応が進行しやすくなるため、好ましくない。また、ナトリウムの含有量が 200 ppm を越えると、本発明の合わせガラス用中間膜が吸水時に特に白濁しやすくなるため、好ましくない。

【0064】

50

組成物(A)は、樹脂(a1)、化合物(a2)、並びに必要なに応じて、可塑剤(a3)、酸化防止剤、紫外線吸収剤、接着力調整剤及びその他の成分を従来公知の方法で混合することにより得られる。混合方法としては、例えばミキシングロール、プラストミル又は押し出し機等を用いた溶融混練、あるいは各成分を適当な有機溶剤に溶解した後、溶剤を留去する方法等が挙げられる。

【0065】

組成物(A)のガラス転移温度は、例えば $-30\sim 50^{\circ}\text{C}$ であることが好ましく、 $-20\sim 40^{\circ}\text{C}$ であることがより好ましく、 $-10\sim 35^{\circ}\text{C}$ であることがより好ましく、 $0\sim 30^{\circ}\text{C}$ であることが特に好ましい。ガラス転移温度が上記範囲内であると、力学強度及び成形性に優れるため好ましい。遮音性発現の観点からは、ガラス転移温度は、好ましくは $-30\sim 25^{\circ}\text{C}$ 、より好ましくは $-20\sim 20^{\circ}\text{C}$ 、特に好ましくは $-10\sim 15^{\circ}\text{C}$ である。

10

【0066】

組成物(A)がそのガラス転移温度(温度 $T_A(^{\circ}\text{C})$)において1.5以上の $\tan\delta$ を有することが、遮音性能を良好にする観点から好ましい。 $\tan\delta$ は、周波数0.3Hz及び引張モードで測定される。また、 $T_A(^{\circ}\text{C})$ における $\tan\delta$ は、1.7以上であることがより好ましく、2.0以上であることがより好ましく、2.5以上であることがより好ましく、3.0以上であることがより好ましく、3.3以上であることがより好ましく、3.6以上であることがさらに好ましく、4.0以上であることが特に好ましい。また、 $T_A(^{\circ}\text{C})$ における $\tan\delta$ は、通常は10以下である。

20

【0067】

上記 T_A 及び $\tan\delta$ は、例えば以下の方法を用いて、測定することができる。組成物(A)を、熱プレス機で成形し、厚さ0.8mmのシートを得る。前記シートを幅3mmに切断し、動的粘弾性装置(株式会社ユービーエム製、Rheogel-E4000)を使用し、 -50°C から 120°C まで、 $3^{\circ}\text{C}/\text{分}$ で昇温しながら、チャック間距離20mm、周波数0.3Hz、変位75.9 μm 、自動静荷重26g、引張モードで分析し、温度 $T_A(^{\circ}\text{C})$ を確認し、また $T_A(^{\circ}\text{C})$ における正接損失($\tan\delta$)の値を求める。 $\tan\delta$ は、温度 $T_A(^{\circ}\text{C})$ 付近で極大値を示す。

【0068】

組成物(A)を成形(例えば、押出成形及びプレス成形等)することにより、合わせガラス用中間膜を得ることができる。本発明の合わせガラス用中間膜は、良好な遮音性を有する。

30

【0069】

<保護層>

本発明はまた、上記の合わせガラス用中間膜を少なくとも一層と、樹脂(b1)を含有する組成物(B)からなる保護層を少なくとも一層含む合わせガラス用多層中間膜にも関する。組成物(B)に含まれる樹脂(b1)としては、例えばポリビニルアセタール、エチレン-酢酸ビニル共重合体及びアイオノマー等の熱可塑性樹脂が挙げられる。これらは力学強度、透明性、ガラスとの接着性に優れているため好適である。

【0070】

組成物(B)からなる保護層を用いる場合には、組成物(B)がこれらの樹脂(b1)を40質量%以上含むことが好ましく、50質量%以上含むことがより好ましく、60質量%以上含むことがより好ましく、80質量%以上含むことがさらに好ましく、90質量%以上含むことが特に好ましい。また、組成物(B)がこれら樹脂(b1)を100質量%含むものであってもよい。これら樹脂(b1)の含有量が40質量%より少なくなると、保護層とガラスとの接着性が低下したり、保護層の力学強度が不十分になったりすることがある。

40

【0071】

組成物(B)にポリビニルアセタールが含まれる場合、その平均残存水酸基量は、10モル%以上であることが好ましく、15モル%以上であることがより好ましく、20モル

50

%以上であることがさらに好ましく、25モル%以上であることが特に好ましい。ポリビニルアセタールの平均残存水酸基量は、50モル%以下であることが好ましく、45モル%以下であることがより好ましく、40モル%以下であることがさらに好ましい。平均残存水酸基量が15モル%より少なくなると、ガラスとの接着性が低下する傾向にあり、平均残存水酸基量が50モル%より多くなると、耐水性が低下する傾向にある。

【0072】

組成物(B)にポリビニルアセタールが含まれる場合、その平均残存ビニルエステル基量は30モル%以下であることが好ましく、20モル%以下であることがより好ましい。平均残存ビニルエステル基量が30モル%を超えると、ポリビニルアセタールの製造時にブロッキングを起こしやすくなるため、製造しにくくなる。平均残存ビニルエステル基量

10

【0073】

組成物(B)にポリビニルアセタールが含まれる場合、その平均アセタール化度は40モル%以上であることが好ましく、90モル%以下であることが好ましい。平均アセタール化度が40モル%未満であると可塑剤等との相溶性が低下する傾向にある。平均アセタール化度が90モル%を超えると、ポリビニルアセタール樹脂を得るための反応に長時間を要し、プロセス上好ましくないことがあり、また十分な力学強度を発現しないことがある。平均アセタール化度は60モル%以上であることがより好ましく、耐水性や可塑剤との相溶性の観点から、65モル%以上であることがさらに好ましく、70モル%以上であることが特に好ましい。また、平均アセタール化度は85モル%以下であることが好ましく、80モル%以下であることがさらに好ましく、75モル%以下であることが特に好ましい。

20

【0074】

組成物(B)にポリビニルアセタールが含まれる場合、その重合度は、100以上であることが好ましく、300以上であることがより好ましく、1000以上であることがより好ましく、1400以上であることがさらに好ましく、1600以上であることが特に好ましい。ポリビニルアセタールの重合度が低すぎると、耐貫通性、耐クリープ物性、特に85℃/85%RHのような高温高湿条件下での耐クリープ物性が低下することがある。また、ポリビニルアセタールの重合度は、5000以下であることが好ましく、3000以下であることがより好ましく、2500以下であることがより好ましく、2300以下であることがさらに好ましく、2000以下であることが特に好ましい。ポリビニルアセタールの重合度が5000を超えると樹脂膜の成形が難しくなることがある。さらに、得られる合わせガラス用中間膜のラミネート適性を向上させ、外観に一層優れた合わせガラスを得るためには、ポリビニルアセタールの重合度が1800以下であることが好ましい。

30

【0075】

組成物(B)にポリビニルアセタールが含まれる場合、その平均残存ビニルエステル基量は30モル%以下に設定することが好ましいため、原料としてけん化度が70モル%以上のポリビニルアルコールのけん化物を使用することが好ましい。ポリビニルアルコールのけん化度が70モル%未満となると、樹脂の透明性や耐熱性が低下することがあり、またアルデヒド類との反応性も低下することがある。けん化度は、より好ましくは95モル%以上である。けん化度の上限値は、通常は99.9モル%である。

40

【0076】

ポリビニルアルコールのけん化度は、例えば、JIS K6726:1944に準拠して測定することができる。

【0077】

ポリビニルアルコールのアセタール化に用いるアルデヒド類及びポリビニルアセタール樹脂としては、上記合わせガラス用中間膜におけるものをいずれも採用することができる。

【0078】

50

組成物（Ｂ）にエチレン－酢酸ビニル共重合体が含まれる場合、エチレン部分、酢酸ビニル部分の合計に対する酢酸ビニル部分の割合は、５０モル％未満であることが好ましく、３０モル％未満であることがより好ましく、２０モル％未満であることがさらに好ましく、１５モル％未満であることが、合わせガラス用中間膜に必要な力学強度と柔軟性を発現する観点で特に好ましい。

【００７９】

組成物（Ｂ）にアイオノマーが含まれる場合、エチレン由来の構成単位、及び α 、 β －不飽和カルボン酸に由来の構成単位を有し、 α 、 β －不飽和カルボン酸の少なくとも一部が金属イオンによって中和された樹脂が挙げられる。ベースポリマーとなるエチレン－ α 、 β －不飽和カルボン酸共重合体において、 α 、 β －不飽和カルボン酸の構成単位の含有割合は、２質量％以上であることが好ましく、５質量％以上であることがより好ましい。また、 α 、 β －不飽和カルボン酸の構成単位の含有割合は、３０質量％以下であることが好ましく、２０質量％以下であることがより好ましい。本発明においては、入手のしやすさの点から、エチレン－アクリル酸共重合体のアイオノマー、及びエチレン－メタクリル酸共重合体のアイオノマーが好ましい。アイオノマーを構成する α 、 β －不飽和カルボン酸としては、例えばアクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、マレイン酸モノメチル、マレイン酸モノエチル及び無水マレイン酸等が挙げられる。アクリル酸又はメタクリル酸が特に好ましい。また、前記金属イオンとしてはナトリウムイオン等が挙げられる。

【００８０】

組成物（Ｂ）には、樹脂（ｂ１）以外の成分として、さらに可塑剤（ｂ２）、酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤、ブロッキング防止剤、顔料、染料、機能性無機化合物、遮熱材料（例えば、赤外線吸収能を有する、無機遮熱性微粒子又は有機遮熱性材料）等が、必要に応じて添加されていてもよい。特に組成物（Ｂ）にポリビニルアセタールを使用する場合には、得られる合わせガラス用中間膜の力学強度及び遮音性の観点から、可塑剤（ｂ２）を含むことが好ましい。

【００８１】

可塑剤（ｂ２）としては、例えば従来公知のポリビニルアセタール用可塑剤を用いることができ、前記可塑剤（ａ３）で例示されるものが好適に使用される。

【００８２】

組成物（Ｂ）が可塑剤（ｂ２）を含む場合、その含有量は樹脂（ｂ１）１００質量部に対して、２０質量部以上であることが好ましく、２５質量部以上であることがより好ましく、３０質量部以上であることがさらに好ましい。また、保護層における可塑剤の含有量は、樹脂（ｂ１）１００質量部に対して、６０質量部以下であることが好ましく、５５質量部以下であることがより好ましく、５０質量部以下であることがさらに好ましい。可塑剤の含有量が、樹脂（ｂ１）１００質量部に対して２０質量部より少ないと、得られる積層体の柔軟性が不十分となる傾向にあり、合わせガラス用中間膜としての衝撃吸収性が問題になる場合がある。また、可塑剤の含有量が、樹脂（ｂ１）１００質量部に対して６０質量部より多いと、得られる積層体の力学強度が不十分となる傾向にある。特にポリビニルアセタールを用いる場合には、優れた遮音性能を発現する観点で、可塑剤の含有量は３５～６０質量部であることが好適である。

【００８３】

本発明の合わせガラス用中間膜の厚さの下限値は、通常は０．００５mm、好ましくは０．０１mm、より好ましくは０．０２mm、より好ましくは０．０４mm、より好ましくは０．０７mm、より好ましくは０．１mm、さらに好ましくは０．１５mm、特に好ましくは０．２mmである。また、その上限値は、通常５mm、好ましくは４mm、より好ましくは２mm、より好ましくは１．６mm、より好ましくは１．２mm、より好ましくは１．１mm、さらに好ましくは１mm、特に好ましくは０．７９mmである。

【００８４】

本発明における保護層の厚さは、０．０１mm以上であることが好ましく、０．１mm以上であることがより好ましく、０．１５mm以上であることがより好ましく、０．２０

10

20

30

40

50

mm以上であることがさらに好ましく、0.25mm以上であることが特に好ましい。また保護層の厚さは1.00mm以下であることが好ましく、0.70mm以下であることがより好ましく、0.60mm以下であることがより好ましく、0.50mm以下であることがより好ましく、0.45mm以下であることがさらに好ましく、0.4mm以下であることが特に好ましい。

【0085】

本発明の合わせガラス用多層中間膜の厚さの下限値は、通常0.1mm、好ましくは0.2mm、より好ましくは0.3mm、より好ましくは0.4mm、より好ましくは0.5mm、より好ましくは0.6mm、さらに好ましくは0.7mm、特に好ましくは0.75mmである。また、その上限値は、通常5mm、好ましくは4mm、より好ましくは2mm、より好ましくは1.6mm、より好ましくは1.2mm、より好ましくは1.1mm、さらに好ましくは1mm、特に好ましくは0.79mmである。

10

【0086】

本発明はまた、二枚のガラス板の間に、合わせガラス用中間膜又は合わせガラス用多層中間膜が挟持されてなる合わせガラスにも関する。かかる合わせガラスは従来公知の方法で製造できる。例えば、真空ラミネーター装置を用いる方法、真空バッグを用いる方法、真空リングを用いる方法及びニップロールを用いる方法等が挙げられる。また、上記方法により仮圧着した後に、オートクレーブに投入して本接着する方法も挙げられる。

【0087】

本発明の合わせガラス用中間膜又は合わせガラス用多層中間膜と積層させるガラスは、例えばフロート板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス、網入り板ガラス及び熱線吸収板ガラス等の無機ガラス、並びにポリメタクリル酸メチル及びポリカーボネート等の従来公知の有機ガラス等を制限なく使用することができる。これらは、無色又は有色のいずれであってもよい。これらは単独で使用してもよく、2種以上を併用してもよい。また、ガラスの厚みは、通常100mm以下であることが好ましい。

20

【0088】

本発明の合わせガラス用中間膜又は合わせガラス用多層中間膜の表面の形状は、凹凸構造を付与したものであることがガラスと熱圧着する際の泡抜け性に優れるため好ましい。

【実施例】

【0089】

以下に、実施例等により本発明をさらに詳しく説明するが、本発明はこれらの実施例によって何ら限定されない。

30

【0090】

[評価方法]

(ヘイズ測定)

後述する実施例及び比較例で得られる合わせガラスを5cm×5cmの大きさに切断し、スガ試験機社製、ヘイズメーター(HZ-1)を使用し、ヘイズを測定した。結果を表6に示す。

【0091】

(動的粘弾性の測定)

40

後述する実施例及び比較例で得られる組成物からなる合わせガラス用中間膜(遮音層、実施例においては樹脂(a1)及び化合物(a2)を含有する組成物からなる合わせガラス用中間膜)について、下記の動的粘弾性の測定-1又は動的粘弾性の測定-2の方法により、動的粘弾性を測定した。

【0092】

(動的粘弾性の測定-1)

後述する実施例で得られるシートを幅3mmに切断して、周波数0.3Hz及び引っ張りモードで動的粘弾性を測定し(装置:レオロジー社製 DVE-V4)、tanδのピーク温度(ガラス転移温度)及び当該温度におけるtanδの値(tanδのピーク値)を測定した。結果を表6に示す。

50

【0093】

(動的粘弾性の測定－2：遮音層を構成する組成物の動的粘弾性による評価)

各実施例及び比較例で用いられる遮音層を構成する組成物を、熱プレス機を使用して180℃及び100kg/cm²で30分間プレスして、厚さ0.8mmのシートを得た。幅3mmに切断して、動的粘弾性測定用サンプルとした。この測定用サンプルについて、動的粘弾性装置(株式会社ユービーエム製、Rheogel-E4000)を使用し、-50℃から120℃まで、3℃/分で昇温しながら、チャック間距離20mm、周波数0.3Hz、変位75.9μm、自動静荷重26g及び引張モードで分析した。得られた結果から正接損失tanδ(=損失弾性率/貯蔵弾性率)が極大になる温度T_A(℃)を求めた。温度T_Aと、温度T_Aでのtanδ(T_A)を表7に示す。

10

【0094】

(低温ブリード試験)

後述する実施例及び比較例で得られるシートを含水率0.5%に調湿後、5℃で1週間保管した。保管後のシート表面をティッシュペーパーで軽く拭き、ティッシュペーパーへの可塑剤の付着有無を目視で評価した。可塑剤が付着していたものを可塑剤ブリード「有り」とし、付着していなかったものを可塑剤ブリード「無し」として評価した。結果を表6に示す。

【0095】

(化合物1と可塑剤(a3)との相溶性)

表5に記載した質量比で化合物1(第一の可塑剤)及び可塑剤(a3)(第二の可塑剤)をビーカーに入れ、23℃で24時間攪拌した。得られた溶液を目視で確認して「相溶」又は「非相溶」を判断した。結果を表6に示す。ここで、化合物1と可塑剤(a3)が「相溶する」とは、目視で確認した際に、化合物1及び/又は可塑剤(a3)が析出しておらず、混合物が相分離を起こしておらず、濁っていない場合を指す。

20

【0096】

(合わせガラスの損失係数測定)

各実施例及び比較例で用いる合わせガラス用中間膜及び合わせガラス用多層中間膜を、300mm×300mm×2mmのフロートガラス2枚に挟み、バキュームバックで仮装着し、オートクレーブで135℃及び1.2MPaの条件で30分間処理して、気泡の無い合わせガラスを得た。得られた合わせガラスを25mm×300mmの大きさに切断し、加振機(エミック株式会社製、小型振動発生機512-A)により加振し、その際の周波数応答関数をFFTアナライザー(株式会社小野測器製、DS-2100)にて検出し、サーボ解析ソフト(株式会社小野測器製、DS-0242)を使用して0℃、5℃、10℃、15℃、20℃、25℃、30℃、35℃および40℃のそれぞれの温度について、3次の反共振モードにおける損失係数を求めた。また、損失係数と前記試験で求められる3次の反共振周波数の値から0℃、5℃、10℃、15℃、20℃、25℃、30℃、35℃および40℃における2000Hz、2500Hz、3150Hz、4000Hz、5000Hzおよび6300Hzの音響透過損失を計算し、これらの平均値を求めた。表7に、音響透過損失の平均値が最も大きい温度(表7では、単に「温度」と記載)と、その温度における前記平均値(表7では、単に「平均値」と記載)および5000Hzにおける音響透過損失値(表7では、単に「5000Hz」と記載)を示す。平均値が大きいものほど、いわゆる質量支配領域を含む広い周波数において音響透過損失が優れることを示し、5000Hzにおける音響透過損失に優れるものは、コインシデンス領域における遮音性能に優れることを示す。

30

40

【0097】

[樹脂]

(製造例1)

還流冷却器、温度計、イカリ型攪拌翼を備えた5リットルガラス容器に、イオン交換水4000g、ポリビニルアルコール1(粘度平均重合度1700、けん化度99モル%)400gを仕込み、95℃に昇温してポリビニルアルコールを完全に溶解させた。得ら

50

れた溶液を120rpmで攪拌下、10℃まで約30分かけて徐々に冷却後、n-ブチルアルデヒド229g及び20%塩酸水溶液200mLを添加した。その後、60分かけて65℃まで昇温し、65℃にて120分間保持した後、室温まで冷却した。得られた樹脂をイオン交換水で洗浄後、水酸化ナトリウム水溶液を添加して残存する酸を中和し、さらに過剰のイオン交換水で洗浄、乾燥してポリビニルブチラール(PVB-1)を得た。PVB-1をJIS K6728:1977に準拠して分析したところ、平均ブチラール化度(平均アセタール化度)は69モル%、平均残存ビニルエステル基量は1モル%であり、平均残存水酸基量は30モル%であった。結果を表1に示す。

【0098】

(製造例2)

製造例1において、n-ブチルアルデヒドの使用量を236gにした以外は同様にしてポリビニルブチラール(PVB-2)を得た。PVB-2をJIS K6728:1977に準拠して分析したところ、平均ブチラール化度は71モル%、平均残存ビニルエステル基量は1モル%であり、平均残存水酸基量は28モル%であった。結果を表1に示す。

【0099】

(製造例3)

製造例1において、n-ブチルアルデヒドの使用量を265gにした以外は同様にしてポリビニルブチラール(PVB-3)を得た。PVB-3をJIS K6728:1977に準拠して分析したところ、平均ブチラール化度は78モル%、平均残存ビニルエステル基量は1モル%であり、平均残存水酸基量は21モル%であった。結果を表1に示す。

【0100】

(製造例4)

製造例1において使用したポリビニルアルコール-1を400gのポリビニルアルコール-2(粘度平均重合度1700、けん化度92モル%)とし、またn-ブチルアルデヒドの使用量を231gに変更した以外は同様にしてポリビニルブチラール(PVB-4)を得た。PVB-4をJIS K6728:1977に準拠して分析したところ、平均ブチラール化度は74モル%、平均残存ビニルエステル基量は7モル%であり、平均残存水酸基量は19モル%であった。結果を表1に示す。

【0101】

(製造例5)

還流冷却器、温度計、イカリ型攪拌翼を備えた5リットルガラス容器に、イオン交換水4050g、ポリビニルアルコール-2(粘度平均重合度1700、けん化度92モル%)330gを仕込み、95℃に昇温してポリビニルアルコールを完全に溶解させた。得られた溶液を160rpmで攪拌下、10℃まで約30分かけて徐々に冷却後、n-ブチルアルデヒド197g及び20%塩酸水溶液200mLを添加し、ブチラール化反応を50分間行った。その後、60分かけて65℃まで昇温し、65℃にて120分間保持した後、室温まで冷却した。得られた樹脂をイオン交換水で洗浄後、水酸化ナトリウム水溶液を添加して残存する酸を中和し、さらに過剰のイオン交換水で洗浄、乾燥してポリビニルブチラール(PVB-5)を得た。PVB-5をJIS K6728:1977に準拠して測定したところ、平均ブチラール化度(平均アセタール化度)は74モル%、ビニルエステル単位の含有量は8モル%であり、残存水酸基量は18モル%であった。またJIS K0070:1992に準拠して測定したところ、PVB-5の水酸基価は162mg KOH/g、エステル価は73mg KOH/gであった。結果を表2に示す。

【0102】

(製造例6)

還流冷却器、温度計、イカリ型攪拌翼を備えた5リットルガラス容器に、イオン交換水4050g、ポリビニルアルコール-1(粘度平均重合度1700、けん化度99モル%)330gを仕込み、95℃に昇温してポリビニルアルコールを完全に溶解させた。得られた溶液を160rpmで攪拌下、10℃まで約30分かけて徐々に冷却後、n-ブチルアルデヒド188.5g及び20%塩酸水溶液200mLを添加し、ブチラール化反応を

10

20

30

40

50

50分間行った。その後、60分かけて65℃まで昇温し、65℃にて120分間保持した後、室温まで冷却した。得られた樹脂をイオン交換水で洗浄後、水酸化ナトリウム水溶液を添加して残存する酸を中和し、さらに過剰のイオン交換水で洗浄、乾燥してポリビニルブチラル（PVB-6）を得た。PVB-6をJIS K6728：1977に準拠して分析したところ、平均ブチラル化度（平均アセタール化度）は69モル%、ビニルエステル単位の含有量は1モル%であり、平均残存水酸基量は30モル%であった。またJIS K0070：1992に準拠して測定したところ、PVB-6の水酸基価は264mg KOH/g、エステル価は9mg KOH/gであった。結果を表2に示す。

【0103】

（製造例7）

還流冷却器、温度計、イカリ型攪拌翼を備えた2リットルガラス容器に、ポリビニルアルコール-3（粘度平均重合度2400、けん化度88モル%）100g、無水プロピオン酸270g、ピリジン300gを添加して攪拌しながら80℃で360分保持した。反応溶液を水に投入し、得られた沈殿を十分に水洗した後、乾燥した。得られた樹脂（PVOPr）を重クロロホルムに溶解し¹H-NMRで分析したところ、酢酸ビニルユニットの含有量は12モル%、プロピオン酸ビニルユニットの含有量は88モル%であった。またJIS K0070：1992に準拠して測定したところ、PVOPrの水酸基価は0mg KOH/g、エステル価は570mg KOH/gであった。結果を表2に示す。

【0104】

上記製造例の熱可塑性樹脂以外の熱可塑性樹脂として、下記熱可塑性樹脂を使用した。物性の詳細は表2に記す。

エチレン-酢酸ビニル共重合体-1：酢酸ビニル含有量12モル%

エチレン-酢酸ビニル共重合体-2：酢酸ビニル含有量53モル%

エチレン-酢酸ビニル共重合体-3：酢酸ビニル含有量70モル%

ポリ酢酸ビニル：酢酸ビニル含有量100モル%

【0105】

[表1]

	平均アセタール化度 (モル%)	平均残存ビニル エステル基 (モル%)	平均残存水酸基 (モル%)
PVB-1	69	1	30
PVB-2	71	1	28
PVB-3	78	1	21
PVB-4	74	7	19

【0106】

[表2]

10

20

30

	重合度	平均 アセタール化度 (モル%)	ビニルエステル 単位の含有量 (モル%)	平均残存 水酸基量 (モル%)	エチレン (モル%)	水酸基価 (mgKOH/g)	エステル価 (mgKOH/g)
PVB-5	1700	74	8	18	0	162	73
PVB-6	1700	69	1	30	0	264	9
PVOPr	2400	0	100	0	0	0	570
エチレン酢酸ビニル共重合体-1	1100	0	12	0	88	0	192
エチレン酢酸ビニル共重合体-2	1100	0	53	0	47	0	505
エチレン酢酸ビニル共重合体-3	1100	0	70	0	30	0	571
ポリ酢酸ビニル	2400	0	100	0	0	0	651

【0107】

〔化合物（a2）及び比較例で用いた化合物〕

各実施例で用いた化合物1（第一の可塑剤）及び比較例で用いた化合物（a2）の要件を満たさない化合物について表3に示す。そのほか、実施例及び比較例で用いた化合物1～4について表4に示す。

【0108】

〔表3〕

10

20

30

40

	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷	R ⁸	化学式1で表される化合物に含まれる化合物の割合(%)					(m+n) の平均	水酸基価 (mgKOH/g)
									m+n=2	m+n=3	m+n=4	m+n=5	m+n=6 以上		
第一の可塑剤-1	-CH ₂ -CH(-CH ₃)-	-CH ₂ -CH(-CH ₃)-	H	H	メチル基	メチル基	無し	無し	41	39	15	5	0	2.8	287
第一の可塑剤-2	-CH ₂ -CH(-CH ₃)-	-CH ₂ -CH(-CH ₃)-	H	H	メチル基	メチル基	無し	無し	97	2	1	0	0	2.0	325
第一の可塑剤-3	-CH ₂ -CH(-CH ₃)-	-CH ₂ -CH(-CH ₃)-	H	H	メチル基	メチル基	無し	無し	4	16	56	18	6	4.1	240
第一の可塑剤-4	-CH ₂ -CH(-CH ₃)-	-CH ₂ -CH(-CH ₃)-	H	H	メチル基	メチル基	無し	無し	0	0	2	4	96	7.3	172
第一の可塑剤-5	-CH ₂ -CH ₂ -	-CH ₂ -CH ₂ -	H	H	メチル基	メチル基	無し	無し	80	17	3	0	0	2.2	345
第一の可塑剤-6	-CH ₂ -CH ₂ -	-CH ₂ -CH ₂ -	H	H	メチル基	メチル基	無し	無し	45	32	18	5	0	2.8	319
第一の可塑剤-7	-CH ₂ -CH(-CH ₂ -CH ₃)-	-CH ₂ -CH(-CH ₂ -CH ₃)-	H	H	メチル基	メチル基	無し	無し	45	35	8	2	1	2.4	279
第一の可塑剤-8	-CH ₂ -CH ₂ -および-CH ₂ -CH(-CH ₃)-	-CH ₂ -CH ₂ -および-CH ₂ -CH(-CH ₃)-	H	H	メチル基	メチル基	無し	無し	34	45	14	7	0	2.9	298
第一の可塑剤-9	-CH ₂ -CH ₂ -CH ₂ -CH ₂ -	-CH ₂ -CH ₂ -CH ₂ -CH ₂ -	H	H	メチル基	メチル基	無し	無し	33	48	16	3	0	2.9	256
第一の可塑剤-10	-CH ₂ -CH(-CH ₃)-	-CH ₂ -CH(-CH ₃)-	H	H	H	H	無し	無し	45	37	15	3	0	2.8	309
第一の可塑剤-11	-CH ₂ -CH(-CH ₃)-	-CH ₂ -CH(-CH ₃)-	アセチル基	アセチル基	メチル基	メチル基	無し	無し	41	39	15	5	0	2.8	<5
第一の可塑剤-12	-CH ₂ -CH(-CH ₃)-	-CH ₂ -CH(-CH ₃)-	H	H	メチル基	メチル基	メチル基	メチル基	40	40	15	5	0	2.9	264
比較例可塑剤-1	-CH ₂ -CH(-CH ₃)-	-CH ₂ -CH(-CH ₃)-	H	H	メチル基	メチル基	無し	無し	0	0	0	0	100	12	121
比較例可塑剤-2	-CH ₂ -CH ₂ -	-CH ₂ -CH ₂ -	H	H	メチル基	メチル基	無し	無し	0	0	0	0	100	12	148

【0109】

[表4]

10

20

30

40

	環構造数	縮合環数	水酸基価 (mgKOH/g)	エステル価 (mgKOH/g)	4つの原子と 結合している 原子	分子量	エーテル 結合の数	エステル 結合の数	水酸基の 数
フルオレン化合物-1	5	有	0	215	1	522	2	2	0
フルオレン化合物-2	5	有	256	0	1	438	2	0	2
フルオレン化合物-3	5	有	0	0	1	318	0	0	0
フルオレン化合物-4	5	有	320	0	1	350	0	0	2
フルオレン化合物-5	5	有	0	0	1	477.8	0	0	0
フルオレン化合物-6	3	有	496	0	1	226	0	0	2
ジフェニルビス(4-ヒドロキシフェニル)メタン	4	無	318	0	1	352	0	0	2
9-ヒドロキシメチルアントラセン	3	有	250	0	0	224	0	0	1

フルオレン化合物-1:9,9-ビス[4-(2-アセトキシエトキシ)フェニル]フルオレン
 フルオレン化合物-2:9,9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]フルオレン
 フルオレン化合物-3:9,9-ジフェニルフルオレン
 フルオレン化合物-4:9,9-ビス(4-ヒドロキシフェニル)フルオレン
 フルオレン化合物-5:9,9-ビス(4-ブROMフェニル)フルオレン
 フルオレン化合物-6:9,9-ジメタノールフルオレン

【0110】

(実施例1)

PVB-1を100質量部、第一の可塑剤-1を40質量部、酸化防止剤としてBHT
 (2,6-ジターシャリーブチル-4-ヒドロキソトルエン)を0.08質量部、紫外線
 吸収剤としてチヌビン328を0.15質量部ビーカー内で攪拌して粗混合した後、ラボ
 プラストミルで熔融混練(150℃、5分)して、組成物-1を得た。組成物-1を13

10

20

30

40

50

0℃、50 kg/cm²、30分プレスして厚さ0.8 mmのシート－1を作成した。シート－1を300 mm×300 mm×3 mmのフロートガラス2枚に挟み、ニップロールで仮接着後、オートクレーブ中で140℃、1.2 MPa、30分処理して合わせガラス－1を得た。組成物－1の組成を表5に示す。なお、表5中の第一の可塑剤及び第二の可塑剤の量は、PVB100質量部に対する質量部を意味する。また、前述した〔評価方法〕に記載にしたがって、合わせガラス－1のヘイズの測定、シート－1の動的粘弾性の測定－1及び低温ブリード試験を行った。結果を表6に示す。

【0111】

(実施例2～29、比較例1～10、参考例)

表5に記載の組成とした以外は実施例1と同様に組成物－2～40、シート－2～40及び合わせガラス－2～40を作製し評価を行った。また実施例4～9、11、12、16、25、26、28について、前述した〔評価方法〕に記載の通り第一の可塑剤と第二の可塑剤の相溶性を評価した。結果を表6に示す。

【0112】

〔表5〕

	PVB	化学式1で表される化合物		可塑剤(a3)(第二の可塑剤)	
		種類	含有量	種類	含有量
実施例1	PVB-1	第一の可塑剤-1	40	-	-
実施例2	PVB-1	第一の可塑剤-1	60	-	-
実施例3	PVB-1	第一の可塑剤-1	100	-	-
実施例4	PVB-1	第一の可塑剤-1	60	3GO	22
実施例5	PVB-1	第一の可塑剤-1	60	3GO	30
実施例6	PVB-1	第一の可塑剤-1	30	3GO	30
実施例7	PVB-1	第一の可塑剤-1	15	3GO	40
実施例8	PVB-1	第一の可塑剤-1	30	3GO	22
実施例9	PVB-1	第一の可塑剤-1	30	3GO	10
実施例10	PVB-1	第一の可塑剤-2	60	-	-
実施例11	PVB-1	第一の可塑剤-3	60	3GO	22
実施例12	PVB-1	第一の可塑剤-3	60	3GO	30
実施例13	PVB-1	第一の可塑剤-4	60	-	-
実施例14	PVB-1	第一の可塑剤-5	60	-	-
実施例15	PVB-1	第一の可塑剤-6	60	-	-
実施例16	PVB-1	第一の可塑剤-6	60	3GO	22
実施例17	PVB-1	第一の可塑剤-7	60	-	-
実施例18	PVB-1	第一の可塑剤-8	60	-	-
実施例19	PVB-1	第一の可塑剤-9	60	-	-
実施例20	PVB-1	第一の可塑剤-10	60	-	-
実施例21	PVB-1	第一の可塑剤-11	60	-	-
実施例22	PVB-1	第一の可塑剤-1 第一の可塑剤-11	30 30	-	-
実施例23	PVB-1	第一の可塑剤-12	60	-	-
実施例24	PVB-2	第一の可塑剤-1	60	-	-
実施例25	PVB-2	第一の可塑剤-1	60	3GO	22
実施例26	PVB-3	第一の可塑剤-1	60	3GO	22
実施例27	PVB-3	第一の可塑剤-1	100	-	-
実施例28	PVB-4	第一の可塑剤-1	60	3GO	22
実施例29	PVB-4	第一の可塑剤-1	100	-	-
比較例1	PVB-1	-	-	3GO	40
比較例2	PVB-1	-	-	3GO	50
比較例3	PVB-1	-	-	3GO	60
比較例4	PVB-1	-	-	DBEA	40
比較例5	PVB-1	-	-	ひまし油	40
比較例6	PVB-1	-	-	ポリエステルポリオール	40
比較例7	PVB-1	-	-	3G6	40
比較例8	PVB-1	-	-	ポリプロピレングリコール	40
比較例9	PVB-1	比較例可塑剤-1	60	-	-
比較例10	PVB-1	比較例可塑剤-2	60	-	-
参考例	PVB-1	-	-	-	-

* 3GO : トリエチレングリコールジ2-エチルヘキサノエート

* 3G6 : トリエチレングリコールジ2-エチルブタノエート

【0113】

[表6]

10

20

30

40

	ヘイズ	動的粘弾性		低温 ブリード 試験	第一の可塑剤と 第二の可塑剤の 相溶性
		ガラス 転移温度 (°C)	$\tan \delta$ ピーク値		
実施例1	0.5	44	2.3	無し	-
実施例2	0.4	35	2.2	無し	-
実施例3	0.4	26	2.2	無し	-
実施例4	0.4	18	1.7	無し	相溶
実施例5	0.4	13	1.6	無し	相溶
実施例6	0.5	26	1.8	無し	相溶
実施例7	0.6	15	1.5	無し	相溶
実施例8	0.4	32	1.9	無し	相溶
実施例9	0.5	38	2	無し	相溶
実施例10	0.4	56	2.3	無し	-
実施例11	0.4	14	1.6	無し	相溶
実施例12	0.4	8	1.5	無し	相溶
実施例13	0.4	32	1.7	無し	-
実施例14	0.4	57	2.3	無し	-
実施例15	0.5	47	2.2	無し	-
実施例16	0.6	15	1.7	無し	非相溶
実施例17	0.5	36	1.9	無し	-
実施例18	0.5	43	2.1	無し	-
実施例19	0.5	32	1.8	無し	-
実施例20	0.5	38	1.9	無し	-
実施例21	0.8	40	1.8	有り	-
実施例22	0.5	37	2	無し	-
実施例23	0.4	36	2.2	無し	-
実施例24	0.4	46	2.3	無し	-
実施例25	0.5	19	1.7	無し	相溶
実施例26	0.5	19	1.8	無し	相溶
実施例27	0.5	27	2.2	無し	-
実施例28	0.4	18	1.8	無し	相溶
実施例29	0.5	26	2.2	無し	-
比較例1	0.4	25	1.2	有り	-
比較例2	0.5	17	1	有り	-
比較例3	0.6	11	0.9	有り	-
比較例4	0.5	20	1.1	有り	-
比較例5	0.5	38	1.3	無し	-
比較例6	0.5	28	1.2	無し	-
比較例7	0.5	22	1	有り	-
比較例8	0.5	21	1	無し	-
比較例9	0.5	21	1.1	無し	-
比較例10	0.5	29	1.2	無し	-
参考例	0.5	71	2.5	-	-

【0114】

本発明の規定を満たす実施例1～29の組成物はポリビニルアセタール（参考例）よりもガラス転移温度を十分に低下させた状態であってもガラス転移温度における $\tan \delta$ ピーク値が大きいのに対し、本発明の規定を満たさない比較例1～8は、組成物のガラス転移温度における $\tan \delta$ が、ポリビニルアセタールのみの場合（参考例）のガラス転移温度における $\tan \delta$ （2.5）と比較して著しく低下した。

【0115】

（実施例30）

エチレン-酢酸ビニル共重合体-1を100質量部、化合物(a2)として表4に示すフルオレン化合物-1を100質量部、可塑剤(a3)としてトリエチレングリコールジ2-エチルヘキサノエートを50質量部用意し、ラボプラストミルで溶融混練して(150℃、60rpm、5分)組成物-41を得た。組成物-41を150℃及び100kgf/cm²で30分間熱プレスして厚さ0.8mmのシート-41とした。組成物-41の組成を表7に示す。またシート-41について、前述した〔評価方法〕に記載の動的粘弾性の測定-2の通り、T_A、tanδ(T_A)の評価を行った。結果を表7に示す。

【0116】

組成物-41を熱プレスで150℃及び100kg/cm²で30分間プレスして厚さ0.15mmの遮音層-1とした。また、100質量部のPVB-6とトリエチレングリコールジ2-エチルヘキサノエート36質量部を、ラボプラストミルで溶融混練し(150℃、60rpm、5分)、得られた混練物を150℃及び100kg/cm²で30分間プレスして、厚さ0.33mmの保護層-1とした。得られた遮音層-1と保護層-1を、保護層-1/遮音層-1/保護層-1の順に重ね、30℃及び100kg/cm²で10分間プレスして積層し、合わせガラス用多層中間膜-1を得た。合わせガラス用多層中間膜-1について、前述した〔評価方法〕に記載の通り、音響透過損失の評価を行った。結果を表7に示す。

【0117】

(実施例31~46)

表7に示す組成とした以外は実施例30と同様の方法でシート-42~57を作製し、評価を行った。また表7に示す組成及び厚さで遮音層-2~17及び保護層を製造し、これらを用いたこと以外は、実施例30と同様にして合わせガラス用多層中間膜2~17を製造し、評価を行った。結果を表7に示す。

【0118】

(実施例47)

表7に示す組成とした以外は実施例30と同様の方法でシート-58を作製し、評価を行った。表7に示す組成及び厚さで遮音層-18を製造し、遮音層-18のみを合わせガラス用中間膜としたこと以外は、実施例30と同様にして合わせガラス用中間膜を製造し、評価を行った。結果を表7に示す。

【0119】

[表7]

10

20

30

		樹脂	化合物(a2)		可塑剤(a3)		厚さ (mm)	T _A (°C)	tan δ (T _A)	音響透過損失(dB)		
			種類	含有量*2 (質量部)	種類	含有量*2 (質量部)				温度 (°C)	平均値 [dB]	5000Hz [dB]
実施例30	遮音層	エチレン酢酸ビニル 共重合体-1	フルオレン化合物-1	100	3G8*1	50	0.15	-5.7	3.7	20	42.3	42.6
	保護層	PVB-6	—	—	3G8*1	36	0.33					
実施例31	遮音層	エチレン酢酸ビニル 共重合体-2	フルオレン化合物-1	100	3G8*1	50	0.15	-10.3	3.4	15	42	42
	保護層	PVB-6	—	—	3G8*1	36	0.33					
実施例32	遮音層	エチレン酢酸ビニル 共重合体-3	フルオレン化合物-1	100	3G8*1	50	0.15	-21.2	2.9	5	41.3	41.5
	保護層	PVB-6	—	—	3G8*1	36	0.33					
実施例33	遮音層	エチレン酢酸ビニル 共重合体-1	フルオレン化合物-2	100	3G8*1	60	0.15	-2.5	4	20	42.4	42.8
	保護層	PVB-6	—	—	3G8*1	36	0.33					
実施例34	遮音層	PVB-5	フルオレン化合物-2	150	3G8*1	60	0.15	18.1	4.5	40	42.5	43.1
	保護層	PVB-6	—	—	3G8*1	36	0.33					
実施例35	遮音層	PVB-5	フルオレン化合物-2	100	3G8*1	60	0.15	12.1	3.5	35	42	42.1
	保護層	PVB-6	—	—	3G8*1	36	0.33					
実施例36	遮音層	PVB-5	フルオレン化合物-2	100	3G8*1	75	0.15	5.8	3.2	30	41.6	42
	保護層	PVB-6	—	—	3G8*1	36	0.33					
実施例37	遮音層	PVB-5	フルオレン化合物-2	75	3G8*1	75	0.15	-3.2	2.9	20	41.4	41.2
	保護層	PVB-6	—	—	3G8*1	36	0.33					
実施例38	遮音層	PVB-5	フルオレン化合物-3	70	3G8*1	60	0.15	4.3	2.8	30	41	41.3
	保護層	PVB-6	—	—	3G8*1	36	0.33					
実施例39	遮音層	PVB-5	フルオレン化合物-4	70	3G8*1	60	0.15	0.4	3	25	41.4	41.6
	保護層	PVB-6	—	—	3G8*1	36	0.33					
実施例40	遮音層	PVB-5	フルオレン化合物-5	70	3G8*1	60	0.15	2.3	3.1	25	41.4	41.5
	保護層	PVB-6	—	—	3G8*1	36	0.33					
実施例41	遮音層	PVB-5	フルオレン化合物-6	70	3G8*1	60	0.15	1.7	3	25	41.3	41.2
	保護層	PVB-6	—	—	3G8*1	36	0.33					
実施例42	遮音層	PVOPr	フルオレン化合物-1	100	3G8*1	60	0.15	3.2	3.5	30	41.7	42
	保護層	PVB-6	—	—	3G8*1	36	0.33					
実施例43	遮音層	ポリ酢酸ビニル	フルオレン化合物-1	100	3G8*1	60	0.15	2.4	3.4	25	41.8	42.1
	保護層	PVB-6	—	—	3G8*1	36	0.33					
実施例44	遮音層	ポリ酢酸ビニル	フルオレン化合物-2	150	3G8*1	60	0.15	17.8	6	40	42.8	44
	保護層	PVB-6	—	—	3G8*1	36	0.33					
実施例45	遮音層	PVB-5	ジフェニルビス(4- ヒドロキシフェニル)メタン	70	3G8*1	60	0.15	3.4	3.2	25	41.1	41.9
	保護層	PVB-6	—	—	3G8*1	36	0.33					
実施例46	遮音層	PVB-5	9-ヒドロキシメチ ルアントラセン	70	3G8*1	60	0.15	7.8	3.1	30	41.1	40.7
	保護層	PVB-6	—	—	3G8*1	36	0.33					
実施例47	遮音層	PVB-5	フルオレン化合物-2	75	3G8*1	75	0.81	-3.2	2.9	15	41.8	41.5
	保護層	—	—	—	—	—	—					

*1: 3G8(トリエチレングリコールジ-エチルヘキサノエート)

*2: 樹脂100質量部に対する含有量

【0120】

(比較例11)

9, 9-ビス[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]フルオレンを添加しないこと以外は、実施例30と同様の方法でシート-59、遮音層-19、保護層及び合わせガラス用多層中間膜-18を製造し、評価を行った。結果を表8に示す。

【0121】

(比較例12~17)

実施例30と同様の方法で表8に示す組成でシート-60~65を作製し評価を行った。また表7に示す組成及び厚さで遮音層-20~25、及び保護層を製造し、これらを用いたこと以外は、実施例30と同様にして合わせガラス用多層中間膜-19~24を作製し評価を行った。結果を表8に示す。

10

20

30

40

50

【0122】

[表8]

	樹脂	右記可塑剤の他に添加した化合物		可塑剤		T _A (°C)	tan δ (T _A)	音響透過損失(dB)		
		種類	含有量*2 (質量部)	種類	含有量*2 (質量部)			温度(°C)	3150Hz	5000Hz
比較例 11	遮音層	—	—	3G8*1	60	-7	1.2	20	39.5	37.4
	保護層	—	—	3G8*1	36					
比較例 12	遮音層	フタル酸ジオキテル	60	—	—	-5	1.2	20	39.5	37.2
	保護層	—	—	3G8*1	36					
比較例 13	遮音層	シクロヘキサジカルボン酸ジニル	60	—	—	-5	1.1	20	39.4	37.1
	保護層	—	—	3G8*1	36					
比較例 14	遮音層	トリクレジルホスフェート	60	—	—	12	1.2	30	39.6	37.1
	保護層	—	—	3G8*1	36					
比較例 15	遮音層	ポリプロピレングリコール	60	—	—	-9	1.2	10	39.6	37.4
	保護層	—	—	3G8*1	36					
比較例 16	遮音層	ひまし油	60	—	—	11	1.1	30	39.5	37
	保護層	—	—	3G8*1	36					
比較例 17	遮音層	ポリエステルジオール	60	—	—	-3	1.2	20	39.6	37.5
	保護層	—	—	3G8*1	36					

*1: 3G8 (トリエチレングリコールジ 2-エチルヘキサノエート)

*2: 樹脂100質量部に対する含有量

【符号の説明】

【0123】

- 1 合わせガラス用中間膜
 2 a 保護層
 2 b 保護層

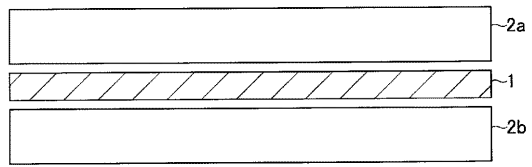
10

20

30

40

【図 1】



フロントページの続き

審査官 小森 勇

(56)参考文献 特開平5-294681 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C 0 8 L	2 9 / 1 4
B 3 2 B	1 7 / 1 0
B 3 2 B	2 7 / 3 0
C 0 3 C	2 7 / 1 2
C 0 8 K	5 / 0 6