

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5613328号
(P5613328)

(45) 発行日 平成26年10月22日 (2014. 10. 22)

(24) 登録日 平成26年9月12日 (2014. 9. 12)

(51) Int. Cl. F I
C O 3 C 27/12 (2006.01)
 C O 3 C 27/12 N
 C O 3 C 27/12 D

請求項の数 11 (全 29 頁)

(21) 出願番号	特願2013-520907 (P2013-520907)	(73) 特許権者	000002174
(86) (22) 出願日	平成25年2月8日 (2013. 2. 8)		積水化学工業株式会社
(86) 国際出願番号	PCT/JP2013/053135		大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号
(87) 国際公開番号	W02013/118890	(74) 代理人	110001232
(87) 国際公開日	平成25年8月15日 (2013. 8. 15)		特許業務法人 宮▲崎▼・目次特許事務所
審査請求日	平成26年6月2日 (2014. 6. 2)	(72) 発明者	伊井 大三
(31) 優先権主張番号	特願2012-27769 (P2012-27769)		滋賀県甲賀市水口町泉1259 積水化学工業株式会社内
(32) 優先日	平成24年2月10日 (2012. 2. 10)	(72) 発明者	深谷 重一
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		東京都港区虎ノ門2-3-17 積水化学工業株式会社内
(31) 優先権主張番号	特願2012-286787 (P2012-286787)	(72) 発明者	中山 和彦
(32) 優先日	平成24年12月28日 (2012. 12. 28)		滋賀県甲賀市水口町泉1259 積水化学工業株式会社内
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		
早期審査対象出願			

最終頁に続く

(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) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

熱可塑性樹脂と、
 錫ドーブ酸化インジウム粒子と、
 酸化タングステン粒子と、
 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種の化合物とを含み、
前記酸化タングステン粒子が、セシウムドーブ酸化タングステン粒子である、合わせガラス用中間膜。

【請求項 2】

前記錫ドーブ酸化インジウム粒子の含有量が0.0001重量%以上、1重量%以下である、請求項1に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 3】

前記酸化タングステン粒子の含有量が0.00001重量%以上、0.1重量%以下である、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】

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種である前記化合物の含有量が0.000001重量%以上、0.05重量%以下である、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】

10

20

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種である前記化合物が、フタロシアニン化合物である、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】

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種である前記化合物が、バナジウム原子を含有するフタロシアニン化合物である、請求項５に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項７】

前記熱可塑性樹脂が、ポリビニルアセタール樹脂である、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。

10

【請求項８】

可塑剤を含む、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】

紫外線遮蔽剤を含む、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。

【請求項１０】

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１種の金属塩を含む、請求項１～９のいずれか１項に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項１１】

第１の合わせガラス部材と、

第２の合わせガラス部材と、

20

請求項１～１０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。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【０００１】

本発明は、自動車及び建築物などの合わせガラス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】

30

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、一対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。このような車両及び建築物の開口部に用いられる合わせガラスには、高い遮熱性が求められる。

【０００３】

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。従って、合わせガラスの遮熱性を高めるためには、赤外線を十分に遮断する必要がある。

40

【０００４】

上記赤外線（熱線）を効果的に遮断するために、下記の特許文献１には、錫ドープ酸化インジウム粒子（ITO粒子）又はアンチモンドープ酸化錫粒子（ATO粒子）を含む中間膜が開示されている。下記の特許文献２には、酸化タングステン粒子を含む中間膜が開示されている。また、特許文献１には、中間膜が酸化防止剤を含んでいてもよいことが記載されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【０００５】

【特許文献１】WO2001/025162A1

50

【特許文献2】WO2005/087680A1

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

ITO粒子、ATO粒子又は酸化タングステン粒子などの遮熱粒子を含む中間膜を用いた合わせガラスでは、高い遮熱性と高い可視光線透過率(Visible Transmittance)とを両立することが求められる。すなわち、合わせガラスでは、上記可視光線透過率を高く維持したままで、遮熱性を高くする必要がある。さらに、高い可視光線透過率が長期間に渡り維持されることが要求されている。

【0007】

しかし、特許文献1, 2に記載のような従来の合わせガラスでは、高い遮熱性と高い可視光線透過率とを両立できないことがある。

【0008】

また、従来の合わせガラス用中間膜では、該中間膜を用いた合わせガラスを介して太陽光が入射されたときに、合わせガラスの内側に位置する人が、太陽光によるじりじり感をかなり感じやすい。

【0009】

本発明の目的は、遮熱性を効果的に高くしかつ可視光線透過率を高くすることができる合わせガラス用中間膜、並びに該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である。

【0010】

本発明の限定的な目的は、遮熱性を効果的に高くしかつ可視光線透過率を高くし、更に中間膜を用いた合わせガラスを介して太陽光が入射されたときに、合わせガラスの内側に位置する人が太陽光の刺激によるじりじり感を感じるのを抑制できる合わせガラス用中間膜、並びに該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である。

【課題を解決するための手段】

【0011】

本発明の広い局面によれば、熱可塑性樹脂と、錫ドーブ酸化インジウム粒子と、酸化タングステン粒子と、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種の化合物とを含む、合わせガラス用中間膜が提供される。

【0012】

本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記錫ドーブ酸化インジウム粒子の含有量が0.0001重量%以上、1重量%以下である。

【0013】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の他の特定の局面では、前記酸化タングステン粒子の含有量が0.00001重量%以上、0.1重量%以下である。

【0014】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の別の特定の局面では、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種である前記化合物の含有量が0.000001重量%以上、0.05重量%以下である。

【0015】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の別の特定の局面では、上記酸化タングステン粒子は、セシウムドーブ酸化タングステン粒子である。

【0016】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の他の特定の局面では、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種である前記化合物が、フタロシアニン化合物である。

【0017】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の別の特定の局面では、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種である前記化合

10

20

30

40

50

物が、バナジウム原子を含有するフタロシアニン化合物である。

【 0 0 1 8 】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の他の特定の局面では、上記熱可塑性樹脂は、ポリビニルアセタール樹脂である。

【 0 0 1 9 】

本発明に係る合わせガラス用中間膜のさらに他の特定の局面では、可塑剤が含まれている。

【 0 0 2 0 】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の別の特定の局面では、紫外線遮蔽剤が含まれている。

10

【 0 0 2 1 】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の別の特定の局面では、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１種の金属塩が含まれている。

【 0 0 2 2 】

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、上述した合わせガラス用中間膜とを備えており、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の間に、上記合わせガラス用中間膜が配置されている。

【発明の効果】

【 0 0 2 3 】

本発明に係る合わせガラス用中間膜は、熱可塑性樹脂と、錫ドープ酸化インジウム粒子と、酸化タングステン粒子と、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種の化合物とを含むので、遮熱性を効果的に高くし、かつ可視光線透過率を高くすることができる。

20

【図面の簡単な説明】

【 0 0 2 4 】

【図１】図１は、本発明の一実施形態に係る合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスを示す部分切欠断面図である。

【図２】図２は、本発明の一実施形態に係る合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスの変形例を示す部分切欠断面図である。

【発明を実施するための形態】

30

【 0 0 2 5 】

以下、本発明の詳細を説明する。

【 0 0 2 6 】

本発明に係る合わせガラス用中間膜は、熱可塑性樹脂と、錫ドープ酸化インジウム粒子と、酸化タングステン粒子と、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種の化合物とを含む。以下、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種の化合物を、化合物Ｘと記載することがある。

【 0 0 2 7 】

本発明に係る合わせガラス用中間膜は、上述した組成を有するので、合わせガラスを構成するのに用いられた場合に、得られる合わせガラスの遮熱性を高くすることができる。

40

【 0 0 2 8 】

従来、中間膜を用いた合わせガラスの遮熱性が低いことがあり、日射透過率が高いことがあった。さらに、従来の合わせガラスでは、低い日射透過率と高い可視光線透過率（Visible Transmittance）とを両立することは困難であるという問題があった。

【 0 0 2 9 】

合わせガラスの遮熱性及び可視光線透過率を十分に高めるために、本発明では、中間膜が、熱可塑性樹脂と錫ドープ酸化インジウム粒子と酸化タングステン粒子と上記化合物Ｘとを含む。錫ドープ酸化インジウム粒子と酸化タングステン粒子と上記化合物Ｘとの併用

50

は、合わせガラスの遮熱性を効果的に高めることに大きく寄与する。さらに、錫ドーブ酸化インジウム粒子と酸化タングステン粒子と上記化合物Xとを含む中間膜の使用により、遮熱性の指標である日射透過率が低い合わせガラスを得ることができ、更に上記可視光線透過率が高い合わせガラスを得ることができる。例えば、合わせガラスの波長300～2100nmでの日射透過率(Ts2100)を65%以下にし、かつ可視光線透過率を65%以上にすることができる。さらに、日射透過率(Ts2100)を50%以下にすることもでき、また日射透過率(Ts2100)を40%以下にすることもでき、更に可視光線透過率を70%以上にすることができる。

【0030】

さらに、本発明者らが検討した結果、酸化タングステン粒子を含む中間膜や、錫ドーブ酸化インジウム粒子を含む中間膜を用いて、合わせガラスを作製しただけでは、該合わせガラスを介して太陽光が入射されたときに、合わせガラスの内側に位置する人が、太陽光によるじりじり感をかなり感じやすいことがわかった。

【0031】

そこで、本発明者らが検討した結果、太陽光によるじりじり感を抑制することが可能な合わせガラスの構成を見出した。

【0032】

すなわち、本発明者らは、熱可塑性樹脂と錫ドーブ酸化インジウム粒子と酸化タングステン粒子と上記化合物Xとを含む組成の採用によって、中間膜を用いた合わせガラスを介して太陽光が入射されたときに、合わせガラスの内側に位置する人が太陽光によるじりじり感を感じるのを抑制できることも見出した。なお、じりじり感を効果的に抑制するためには、合わせガラスの波長1550nmでの光線透過率が20%以下であることが好ましく、10%以下であることがより好ましい。

【0033】

さらに、近年の自動車の高機能化に伴い、例えば、フロントガラスにライトセンサー、レインセンサーなどのセンサーやCCDカメラ等の付帯設備が設置されることがある。また、建築物に用いられる合わせガラス用中間膜でも、各種の付帯設備が設置されることがある。特に、付帯設備として、赤外線通信波を用いて制御等を行う車載機器が広く用いられている。例えば、レインセンサーは、波長850nm付近の赤外線をフロントガラスの雨滴に反射させて雨滴の有無を検出する。このような車載機器の制御等に用いる赤外線通信波は、一般に、波長800～1000nm付近の近赤外線である。

【0034】

このような各種のセンサーの検知精度を高めるためには、中間膜の波長850nmにおける光線透過率が20%以上であることが好ましい。本発明に係る合わせガラス用中間膜は、熱可塑性樹脂と錫ドーブ酸化インジウム粒子と酸化タングステン粒子と上記化合物Xとを含むので、波長850nmでの光線透過率が高い。このため、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に各種センサーが備えられた場合に、各種センサーの検知精度を高めることができる。

【0035】

以下、本発明に係る合わせガラス用中間膜を構成する材料の詳細を説明する。

【0036】

(熱可塑性樹脂)

本発明に係る合わせガラス用中間膜に含まれている熱可塑性樹脂は特に限定されない。熱可塑性樹脂として、従来公知の熱可塑性樹脂を用いることができる。熱可塑性樹脂は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。

【0037】

上記熱可塑性樹脂としては、ポリビニルアセタール樹脂、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。

【0038】

上記熱可塑性樹脂は、ポリビニルアセタール樹脂であることが好ましい。ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤との併用により、合わせガラス部材又は他の合わせガラス用中間膜に対する本発明に係る合わせガラス用中間膜の接着力をより一層高くすることができる。

【0039】

上記ポリビニルアセタール樹脂は、例えば、ポリビニルアルコールをアルデヒドによりアセタール化することにより製造できる。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製造できる。上記ポリビニルアルコールのけん化度は、一般に70～99.8モル%の範囲内である。

【0040】

上記ポリビニルアルコールの平均重合度は、好ましくは200以上、より好ましくは500以上、好ましくは3500以下、より好ましくは3000以下、更に好ましくは2500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。

【0041】

上記ポリビニルアセタール樹脂に含まれているアセタール基の炭素数は特に限定されない。上記ポリビニルアセタール樹脂を製造する際に用いるアルデヒドは特に限定されない。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3又は4であることが好ましい。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3以上であると、中間膜のガラス転移温度が十分に低くなる。

【0042】

上記アルデヒドは特に限定されない。上記アルデヒドとして、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、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-パレルアルデヒド、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、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド及びベンズアルデヒド等が挙げられる。なかでも、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-パレルアルデヒドが好ましく、プロピオンアルデヒド、n-ブチルアルデヒド又はイソブチルアルデヒドがより好ましく、n-ブチ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。

【0043】

上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率（水酸基量）は、好ましくは15モル%以上、より好ましくは18モル%以上、好ましくは40モル%以下、より好ましくは35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、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。

【0044】

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 K6726「ポリビニルアルコール試験方法」に準拠して又はASTM D1396-92に準拠して、測定することにより求めることができる。

【0045】

上記ポリビニルアセタール樹脂のアセチル化度（アセチル基量）は、好ましくは0.1モル%以上、より好ましくは0.3モル%以上、更に好ましくは0.5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20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。

【0046】

上記アセチル化度は、主鎖の全エチレン基量から、アセタール基が結合しているエチレン基量と、水酸基が結合しているエチレン基量とを差し引いた値を、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。上記アセタール基が結合しているエチレン基量は、例えば、J I S K 6 7 2 8「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠して又は A S T M D 1 3 9 6 - 9 2 に準拠して測定できる。

【 0 0 4 7 】

上記ポリビニルアセタール樹脂のアセタール化度（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 6 0 モル % 以上、より好ましくは 6 3 モル % 以上、好ましくは 8 5 モル % 以下、より好ましくは 7 5 モル % 以下、更に好ましくは 7 0 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
10
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。

【 0 0 4 8 】

上記アセタール化度は、アセター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。

【 0 0 4 9 】

上記アセタール化度は、J I S K 6 7 2 8「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法又は A S T M D 1 3 9 6 - 9 2 に準拠した方法により、アセチル化度と水酸基の含有率とを測定し、得られた測定結果からモル分率を算出し、次いで、1 0 0 モル % からアセチル化度と水酸基の含有率とを差し引くことにより算出され得る。
20

【 0 0 5 0 】

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、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された結果から算出することが好ましい。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）、アセタール化度（ブチラール化度）及びアセチル化度は、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された結果から算出することが好ましい。

【 0 0 5 1 】

合わせガラスの遮音性をより一層高めることができることから、上記中間膜及び後述する第 2 の層（第 2 の中間膜）に含まれるポリビニルアセタール樹脂は、アセチル化度が 8
30
モル % 未満である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（A）」ともいう）、又は、アセチル化度が 8 モル % 以上である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（B）」ともいう）であることが好ましい。上記中間膜及び上記第 2 の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂は、上記ポリビニルアセタール樹脂（A）であることが好ましく、上記ポリビニルアセタール樹脂（B）であることも好ましい。

【 0 0 5 2 】

上記ポリビニルアセタール樹脂（A）のアセチル化度（a）は 8 モル % 未満であり、好ましくは 7 . 5 モル % 以下、より好ましくは 7 モル % 以下、更に好ましくは 6 モル % 以下、特に好ましくは 5 モル % 以下、好ましくは 0 . 1 モル % 以上、より好ましくは 0 . 5
40
モル % 以上、より一層好ましくは 0 . 8 モル % 以上、更に好ましくは 1 モル % 以上、更に一層好ましくは 2 モル % 以上、特に好ましくは 3 モル % 以上、最も好ましくは 4 モル % 以上である。上記アセチル化度（a）が上記上限以下及び上記下限以上であると、ポリビニルアセタール樹脂（A）と可塑剤との相溶性がより一層高くなり、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。

【 0 0 5 3 】

上記ポリビニルアセタール樹脂（A）のアセタール化度（a）は好ましくは 6 8 モル % 以上、より好ましくは 7 0 モル % 以上、更に好ましくは 7 1 モル % 以上、特に好ましくは 7 2 モル % 以上、好ましくは 8 5 モル % 以下、より好ましくは 8 3 モル % 以下、更に好ましくは 8 1 モル % 以下、特に好ましくは 7 9 モル % 以下である。上記アセタール化度（a）
50

）が上記下限以上であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。上記アセタール化度（a）が上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂（A）を製造するために必要な反応時間を短縮できる。

【0054】

上記ポリビニルアセタール樹脂（A）の水酸基の含有率（a）は好ましくは30モル％以下、より好ましくは27.5モル％以下、より一層好ましくは27モル％以下、更に好ましくは26モル％以下、更に一層好ましくは25モル％以下、特に好ましくは24モル％以下、最も好ましくは23モル％以下、好ましくは16モル％以上、より好ましくは18モル％以上、更に好ましくは19モル％以上、特に好ましくは20モル％以上である。上記水酸基の含有率（a）が上記上限以下であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。上記水酸基の含有率（a）が上記下限以上であると、中間膜の接着力がより一層高くなる。

10

【0055】

上記ポリビニルアセタール樹脂（B）のアセチル化度（b）は、8モル％以上であり、好ましくは9モル％以上、より好ましくは10モル％以上、更に好ましくは11モル％以上、特に好ましくは12モル％以上、好ましくは30モル％以下、より好ましくは28モル％以下、より一層好ましくは26モル％以下、更に好ましくは24モル％以下、特に好ましくは20モル％以下、最も好ましくは19.5モル％以下である。上記アセチル化度（b）が上記下限以上であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。上記アセチル化度（b）が上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂（B）を製造するために必要な反応時間を短縮できる。なかでも、ポリビニルアセタール樹脂（B）を製造するために必要な反応時間をより一層短縮できることから、上記ポリビニルアセタール樹脂（B）のアセチル化度（b）は20モル％未満であることが好ましい。

20

【0056】

上記ポリビニルアセタール樹脂（B）のアセタール化度（b）は好ましくは50モル％以上、より好ましくは52.5モル％以上、更に好ましくは54モル％以上、特に好ましくは60モル％以上、好ましくは80モル％以下、より好ましくは77モル％以下、更に好ましくは74モル％以下、特に好ましくは71モル％以下である。上記アセタール化度（b）が上記下限以上であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。上記アセタール化度（b）が上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂（B）を製造するために必要な反応時間を短縮できる。

30

【0057】

上記ポリビニルアセタール樹脂（B）の水酸基の含有率（b）は好ましくは30モル％以下、より好ましくは27.5モル％以下、更に好ましくは27モル％以下、特に好ましくは26モル％以下、最も好ましくは25モル％以下、好ましくは18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、特に好ましくは23モル％以上である。上記水酸基の含有率（b）が上記上限以下であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。上記水酸基の含有率（b）が上記下限以上であると、中間膜の接着力がより一層高くなる。

【0058】

40

（可塑剤）

中間膜の接着力をより一層高める観点からは、本発明に係る合わせガラス用中間膜は、可塑剤を含むことが好ましい。中間膜に含まれている熱可塑性樹脂が、ポリビニルアセタール樹脂である場合に、中間膜は、可塑剤を含むことが特に好ましい。

【0059】

上記可塑剤は特に限定されない。上記可塑剤として、従来公知の可塑剤を用いることができる。上記可塑剤は、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。

【0060】

上記可塑剤としては、例えば、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

50

酸可塑剤等が挙げられる。なかでも、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。

【 0 0 6 1 】

上記一塩基性有機酸エステルとしては、特に限定されず、例えば、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、並びにトリエチレングリコール又はトリプロピレングリコールと一塩基性有機酸との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。

10

【 0 0 6 2 】

上記多塩基性有機酸エステルとしては、特に限定されず、例えば、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。

【 0 0 6 3 】

上記有機エステル可塑剤としては、特に限定されず、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、ジブチルカルピトールアジベート、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 - 2 - エチルペンタノエート、テトラ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カプリエート、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、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。

20

30

【 0 0 6 4 】

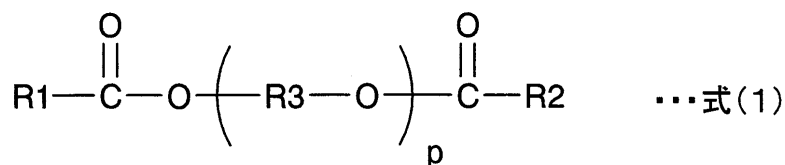
上記有機リン酸可塑剤としては、特に限定されず、例えば、トリブトキシエチルホスフェート、イソデシルフェニルホスフェート及びトリイソプロピルホスフェート等が挙げられる。

【 0 0 6 5 】

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。

【 0 0 6 6 】

【 化 1 】



40

【 0 0 6 7 】

上記式 (1) 中、R 1 及び R 2 はそれぞれ、炭素数 5 ~ 1 0 の有機基を表し、R 3 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 ~ 1 0 の整数を表す。上記式 (1) 中の R 1 及び R 2 はそれぞれ、炭素数 6 ~ 1 0 の有機基であることが好ましい。

【 0 0 6 8 】

50

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 (3 G O) 及びトリエチレングリコールジ - 2 - エチルブチレート (3 G H) の内の少なくとも 1 種を含むことが好ましく、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より好ましい。

【 0 0 6 9 】

上記中間膜が可塑剤を含む場合に、上記熱可塑性樹脂と可塑剤とを含む上記中間膜における上記可塑剤の含有量は特に限定されない。上記熱可塑性樹脂と上記可塑剤とを含む上記中間膜において、上記熱可塑性樹脂 1 0 0 重量部に対して、上記可塑剤の含有量は、好ましくは 2 5 重量部以上、より好ましくは 3 0 重量部以上、好ましくは 6 0 重量部以下、より好ましくは 5 0 重量部以下である。上記可塑剤の含有量が上記下限以上であると、合わせガラスの耐貫通性がより一層高くなる。上記可塑剤の含有量が上記上限以下であると、中間膜の透明性がより一層高くなる。

10

【 0 0 7 0 】

(化合物 X)

本発明に係る合わせガラス用中間膜は、上記化合物 (成分) X を含む。上記化合物 X 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 種である。上記化合物 X は、遮熱成分でもある。合わせガラスに用いられる中間膜全体で、上記錫ドーブ酸化インジウム粒子と上記酸化タングステン粒子と上記化合物 X とを併用することにより、赤外線 (熱線) を効果的に遮断できる。

【 0 0 7 1 】

20

上記化合物 X は特に限定されない。上記化合物 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。上記化合物 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。

【 0 0 7 2 】

上記化合物 X としては、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、ナフタロシアニンの誘導体、アントラシアニン及びアントラシアニンの誘導体等が挙げられる。上記フタロシアニン化合物及び上記フタロシアニンの誘導体はそれぞれ、フタロシアニン骨格を有することが好ましい。上記ナフタロシアニン化合物及び上記ナフタロシアニンの誘導体はそれぞれ、ナフタロシアニン骨格を有することが好ましい。上記アントラシアニン化合物及び上記アントラシアニンの誘導体はそれぞれ、アントラシアニン骨格を有することが好ましい。

30

【 0 0 7 3 】

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、上記化合物 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。

【 0 0 7 4 】

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、上記化合物 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。上記化合物 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。上記化合物 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、上記化合物 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。上記化合物 X は、フタロシアニン化合物であることが好ましく、バナジウム原子を含むフタロシアニン化合物であることがより好ましい。

40

【 0 0 7 5 】

上記化合物 X を含む上記中間膜における上記化合物 X の含有量は特に限定されない。上記化合物 X を含む上記中間膜 1 0 0 重量 % 中、上記化合物 X の含有量は、好ましくは 0 . 0 0 0 0 0 1 重量 % 以上、より好ましくは 0 . 0 0 0 0 1 重量 % 以上、更に好ましくは 0

50

． 0 0 1 重量 % 以上、特に好ましくは 0 ． 0 0 2 重量 % 以上、好ましくは 0 ． 0 5 重量 % 以下、より好ましくは 0 ． 0 3 重量 % 以下、更に好ましくは 0 ． 0 1 重量 % 以下である。上記化合物 X を含む中間膜における化合物 X の含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、遮熱性を十分に高めることができ、日射透過率 (T s 2 1 0 0) を十分に低くすることができ、かつ上記可視光線透過率を十分に高くすることができる。例えば、可視光線透過率を 7 0 % 以上にすることができる。また、色調についても、合わせガラスとして好ましい色調にすることができる。

【 0 0 7 6 】

(錫ドーブ酸化インジウム粒子)

本発明に係る合わせガラス用中間膜に含まれている錫ドーブ酸化インジウム粒子 (I T O 粒子) は、遮熱粒子である。

10

【 0 0 7 7 】

熱線の遮蔽性を十分に高めることができることから、上記 I T O 粒子の結晶の格子定数は、 1 0 ． 1 1 ~ 1 0 ． 1 6 の範囲内であることが好ましい。なお、一般的に、I T O 粒子の結晶の格子定数は 1 0 ． 1 1 ~ 1 0 ． 1 6 の範囲内に含まれ、後述する実施例にて用いた I T O 粒子の結晶の格子定数も 1 0 ． 1 1 ~ 1 0 ． 1 6 の範囲内に含まれている。

【 0 0 7 8 】

合わせガラスの透明性及び遮熱性をより一層高める観点からは、上記 I T O 粒子の平均粒子径は好ましくは 1 0 n m 以上、より好ましくは 2 0 n m 以上、好ましくは 1 0 0 n m 以下、より好ましくは 8 0 n m 以下、更に好ましくは 5 0 n m 以下である。平均粒子径が上記下限以上であると、熱線の遮蔽性が充分に高くなる。平均粒子径が上記上限以下であると、合わせガラスの透明性が高くなる。

20

【 0 0 7 9 】

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「 U P A - E X 1 5 0 」) 等を用いて測定できる。

【 0 0 8 0 】

上記 I T O 粒子を含む上記中間膜 1 0 0 重量 % 中、上記 I T O 粒子の含有量は、好ましくは 0 ． 0 0 0 1 重量 % 以上、より好ましくは 0 ． 0 0 1 重量 % 以上、特に好ましくは 0 ． 0 5 重量 % 以上、好ましくは 1 重量 % 以下、より好ましくは 0 ． 8 重量 % 以下、更に好ましくは 0 ． 7 重量 % 以下である。上記 I T O 粒子を含む上記中間膜における I T O 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、遮熱性を十分に高めることができ、日射透過率 (T s 2 1 0 0) を十分に低くすることができ、かつ太陽光によるじりじり感がより一層抑えられる。また、上記可視光線透過率を十分に高くすることができる。ヘーズについても、合わせガラスとして好ましいヘーズにすることができる。

30

【 0 0 8 1 】

(酸化タングステン粒子)

本発明に係る合わせガラス用中間膜に含まれている酸化タングステン粒子は、遮熱粒子である。

【 0 0 8 2 】

上記酸化タングステン粒子は、下記式 (X 1) 又は下記式 (X 2) で一般に表される。本発明に係る合わせガラス用中間膜では、下記式 (X 1) 又は下記式 (X 2) で表される酸化タングステン粒子が好適に用いられる。

40

【 0 0 8 3 】

$W_y O_z$ …… 式 (X 1)

【 0 0 8 4 】

上記式 (X 1) において、W はタングステン、O は酸素を表し、y 及び z は $2 . 0 < z / y < 3 . 0$ を満たす。

【 0 0 8 5 】

$M_x W_y O_z$ …… 式 (X 2)

50

【0086】

上記式(X 2)において、Mは、H、He、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類元素、Mg、Zr、Cr、Mn、Fe、Ru、Co、Rh、Ir、Ni、Pd、Pt、Cu、Ag、Au、Zn、Cd、Al、Ga、In、Tl、Si、Ge、Sn、Pb、Sb、B、F、P、S、Se、Br、Te、Ti、Nb、V、Mo、Ta及びReからなる群から選択される少なくとも1種の元素、Wはタングステン、Oは酸素を表し、x、y及びzは、 $0.001 \leq x/y \leq 1$ 、及び $2.0 < z/y \leq 3.0$ を満たす。

【0087】

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、金属ドーパ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、金属ドーパ酸化タングステン粒子が含まれる。上記金属ドーパ酸化タングステン粒子としては、具体的には、ナトリウムドーパ酸化タングステン粒子、セシウムドーパ酸化タングステン粒子、タリウムドーパ酸化タングステン粒子及びルビジウムドーパ酸化タングステン粒子等が挙げられる。

10

【0088】

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、セシウムドーパ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、上記セシウムドーパ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。

【0089】

20

上記酸化タングステン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、熱線の遮蔽性が充分に高くなる。平均粒子径が上記上限以下であると、酸化タングステン粒子の分散性が高くなる。

【0090】

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。

【0091】

上記酸化タングステン粒子を含む中間膜における上記酸化タングステン粒子の含有量は特に限定されない。本発明に係る合わせガラス用中間膜では、上記酸化タングステン粒子を含む上記中間膜100重量%中、上記酸化タングステン粒子の含有量は、好ましくは 0.00001 重量%以上、好ましくは 0.1 重量%以下である。上記酸化タングステン粒子を含む上記中間膜100重量%中、上記酸化タングステン粒子の含有量は、より好ましくは 0.0001 重量%以上、更に好ましくは 0.0005 重量%以上、特に好ましくは 0.001 重量%以上、より好ましくは 0.06 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。上記酸化タングステン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、遮熱性を充分に高めることができ、かつ可視光線透過率を充分に高くすることができる。例えば、合わせガラスの可視光線透過率を70%以上にすることができる。また、上記酸化タングステン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、太陽光によるじりじり感がより一層抑えられ、合わせガラスに備えられた各種センサーの検知精度がより一層高くなる。

30

40

【0092】

(紫外線遮蔽剤)

本発明に係る合わせガラス用中間膜は、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。

【0093】

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。

50

【0094】

従来広く知られている一般的な紫外線遮蔽剤としては、例えば、金属系紫外線遮蔽剤、金属酸化物系紫外線遮蔽剤、ベンゾトリアゾール系紫外線遮蔽剤、ベンゾフェノン系紫外線遮蔽剤、トリアジン系紫外線遮蔽剤及びベンゾエート系紫外線遮蔽剤等が挙げられる。

【0095】

上記金属系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がシリカで被覆され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。紫外線遮蔽剤は、好ましくはベンゾトリアゾール系紫外線遮蔽剤、ベンゾフェノン系紫外線遮蔽剤、トリアジン系紫外線遮蔽剤又はベンゾエート系紫外線遮蔽剤であり、より好ましくはベンゾトリアゾール系紫外線遮蔽剤又はベンゾフェノン系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系紫外線遮蔽剤である。また、ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤が好ましい。

10

【0096】

上記金属酸化物系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、上記金属酸化物系紫外線遮蔽剤では、表面が被覆材料により被覆されていてもよい。上記金属酸化物系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。

【0097】

上記絶縁性金属酸化物としては、シリカ、アルミナ及びジルコニア等が挙げられる。上記絶縁性金属酸化物は、例えば5.0 eV以上のバンドギャップエネルギーを有する。

20

【0098】

上記ベンゾトリアゾール系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」)等のベンゾトリアゾール系紫外線遮蔽剤が挙げられる。紫外線を遮蔽吸収する性能(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有するベンゾトリアゾール系紫外線遮蔽剤であることが好ましく、塩素原子を含有するベンゾトリアゾール系紫外線遮蔽剤であることがより好ましい。

30

【0099】

上記ベンゾフェノン系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。

【0100】

上記トリアジン系紫外線遮蔽剤としては、例えば、ADEKA社製「LA-F70」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、「Tinuvin 1577FF」)等が挙げられる。

40

【0101】

上記ベンゾエート系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、「Tinuvin 120」)等が挙げられる。

【0102】

上記中間膜は、最も長波長側の極大吸収波長を波長350nm未満に有する紫外線遮蔽剤(以下、紫外線遮蔽剤Yと記載することがある)を含むことが好ましい。上記紫外線遮蔽剤Yが最も長波長側の極大吸収波長を波長350nm未満に有することによって、紫外線の遮蔽性を効果的に高め、かつ酸化タンゲステン粒子の劣化を効果的に抑制することができる。上記紫外線遮蔽剤Yの最も長波長側の極大吸収波長の下限は紫外線を遮蔽する機

50

能が発揮されれば特に限定されない。上記紫外線遮蔽剤 Y の最も長波長側の極大吸収波長は、好ましくは 250 nm 以上、より好ましくは 290 nm 以上である。上記紫外線遮蔽剤 Y 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。

【0103】

上記極大吸収波長は、紫外線遮蔽剤 0.01 重量%とトリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート 99.9 重量%とを含む液を用いて、例えば石英セル（セル長 1 mm）を使用して測定することができる。

【0104】

紫外線の遮蔽性を高め、更に経時後の可視光線透過率の低下をより一層抑制する観点からは、上記紫外線遮蔽剤 Y は、ベンゾトリアゾール化合物、ベンゾフェノン化合物、トリアジン化合物、マロン酸エステル化合物又はシュウ酸アニリド化合物を含むことが好ましく、トリアジン化合物又はマロン酸エステル化合物を含むことがより好ましい。上記紫外線遮蔽剤 Y は、ベンゾトリアゾール化合物を含むことが好ましく、ベンゾフェノン化合物を含むことが好ましく、トリアジン化合物を含むことが好ましく、マロン酸エステル化合物を含むことが好ましく、シュウ酸アニリド化合物を含むことが好ましい。

【0105】

中間膜及び合わせガラスの経時後の可視光線透過率の低下をより一層抑制する観点からは、上記紫外線遮蔽剤 Y は、ADEKA 社製「LA-F70」、2-エチル-2'-エトキシ-オキシアニリド（クラリアント社製「Sanduvor VSU」）、マロン酸〔（4-メトキシフェニル）-メチレン〕-ジメチルエステル（Clariant 社製「Hostavin PR-25」）、又は 2-〔2-ヒドロキシ-4-〔（オクチルオキシカルボニル）エチリデンオキシ〕フェニル-4,6-ジ（4-フェニル）フェニル-1,3,5-トリアジン（BASF 社製「Tinuvin 479」）を含むことがより好ましく、ADEKA 社製「LA-F70」又はマロン酸〔（4-メトキシフェニル）-メチレン〕-ジメチルエステルを含むことがより好ましい。上記紫外線遮蔽剤 Y は、ADEKA 社製「LA-F70」を含むことが好ましく、2-エチル-2'-エトキシ-オキシアニリドを含むことが好ましく、マロン酸〔（4-メトキシフェニル）-メチレン〕-ジメチルエステルを含むことが好ましく、2-〔2-ヒドロキシ-4-〔（オクチルオキシカルボニル）エチリデンオキシ〕フェニル-4,6-ジ（4-フェニル）フェニル-1,3,5-トリアジンを含むことが好ましい。

【0106】

紫外線の遮蔽性を高め、更に経時後の可視光線透過率の低下をより一層抑制する観点からは、上記中間膜は、トリアジン化合物とマロン酸エステル化合物とを含むことが好ましく、ADEKA 社製「LA-F70」とマロン酸エステル化合物とを含むことがより好ましく、ADEKA 社製「LA-F70」とマロン酸〔（4-メトキシフェニル）-メチレン〕-ジメチルエステルとを含むことが更に好ましい。

【0107】

上記中間膜が上記紫外線遮蔽剤を含む場合に、上記紫外線遮蔽剤を含む中間膜における紫外線遮蔽剤の含有量は特に限定されない。経時後の可視光線透過率の低下をより一層抑制する観点からは、上記紫外線遮蔽剤を含む上記中間膜 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、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。特に、上記紫外線遮蔽剤を含む上記中間膜 100 重量%中、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経時後の可視光線透過率の低下を顕著に抑制できる。

【0108】

経時後の可視光線透過率の低下をより一層抑制する観点からは、上記紫外線遮蔽剤を含む上記中間膜 100 重量%中、上記紫外線遮蔽剤 Y 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、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。

【0109】

(酸化防止剤)

本発明に係る合わせガラス用中間膜は酸化防止剤を含むことが好ましい。該酸化防止剤は、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。

【0110】

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。

10

【0111】

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。

【0112】

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)、ブチル化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-(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-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)ブチリックアッシ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。

20

【0113】

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、トリス(2,4-ジ-*t*-ブチルフェニル)ホスファイト、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。

30

【0114】

上記酸化防止剤の市販品としては、例えば住友化学工業社製「スミライザーBHT」、チバガイギー社製「イルガノックス1010」等が挙げられる。

40

【0115】

上記中間膜が上記酸化防止剤を含む場合には、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、上記酸化防止剤を含む上記中間膜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、上記酸化防止剤を含む上記中間膜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。

【0116】

中間膜及び合わせガラスの遮熱性及び可視光線透過率、並びに中間膜及び合わせガラスの経時後の可視光線透過率をより一層高める観点からは、上記酸化防止剤を含む上記中間

50

膜 100 重量 % 中、上記酸化防止剤の含有量は好ましくは 0.1 重量 % 以上である。また、酸化防止剤の影響による周辺部の色変化を抑制するために、上記酸化防止剤を含む上記中間膜 100 重量 % 中、上記酸化防止剤の含有量は好ましくは 2 重量 % 以下、より好ましくは 1.8 重量 % 以下である。

【0117】

(金属塩)

本発明に係る合わせガラス用中間膜は、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 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。上記金属塩 M の使用により、合わせガラス部材と中間膜との接着性及び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。さらに、中間膜が上記金属塩 M を含むこと
10
で、酸化タングステン粒子の分散性がより一層良好になり、この結果、中間膜の耐光性がより一層高くなり、高い可視光線透過率をより一層長期間に渡り維持できる。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。

【0118】

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。該金属塩 M は、金属イオン、水和金属イオン、錯化金属イオン、金属の無機塩、又は、金属の有機酸エステル状態で、中間膜中に含まれていることが好ましい。金属イオン、水和金属イオン、又は、錯化金属イオンの状態で存在している場合、合わせガラス部材と中間膜との接着性及び中間膜における各層間の接着性を制御することが容易である。中間膜中に含まれている金属塩は
20
、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。

【0119】

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又は炭素数 2 ~ 16 の有機酸のアルカリ土類金属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。

【0120】

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特に限定されないが、例えば、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 - エチルブタン酸マグネシウム、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。
30

【0121】

上記中間膜が金属塩 M を含む場合に、上記金属塩 M を含む中間膜において、金属塩 M の含有量は、金属イオンの含有量（例えばマグネシウムイオンの場合にはマグネシウム濃度、カリウムイオンの場合にはカリウム濃度）として、好ましくは 5 ppm 以上、より好ましくは 10 ppm 以上、更に好ましくは 20 ppm 以上、好ましくは 300 ppm 以下、より好ましくは 250 ppm 以下、更に好ましくは 200 ppm 以下である。金属塩 M の含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、合わせガラス部材と中間膜との接着性及び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。さらに、上記金属塩 M の含有量が上記下限以上であると、中間膜の耐光性が更に一層高くなり、高い可視光線透過率を更に一層長期間に渡り維持できる。
40

【0122】

(他の成分)

本発明に係る合わせガラス用中間膜は、必要に応じて、光安定剤、難燃剤、帯電防止剤、顔料、染料、接着剤調整剤、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。

【0123】

(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の厚みは特に限定されない。実用面の観点、並びに
50

遮熱性を十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が高くなる。

【0124】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の製造方法は特に限定されない。該中間膜の製造方法として、従来公知の方法を用いることができる。例えば、熱可塑性樹脂と錫ドープ酸化インジウム粒子と酸化タングステン粒子と上記化合物Xと必要に応じて配合される他の成分とを混練し、中間膜を成形する製造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。

【0125】

上記混練の方法は特に限定されない。この方法として、例えば、押出機、プラストグラフ、ニーダー、パンバリーミキサー又はカレンダーロール等を用いる方法が挙げられる。なかでも、連続的な生産に適しているため、押出機を用いる方法が好適であり、二軸押出機を用いる方法がより好適である。

【0126】

(合わせガラス)

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、該第1，第2の合わせガラス部材の間に挟み込まれた中間膜とを備える。上記合わせガラスは、1層の構造を有する単層の中間膜を備えていてもよく、2層以上の積層構造を有する多層の中間膜を備えていてもよい。上記合わせガラスは、単層又は多層の中間膜を備える。上記合わせガラスにおける上記中間膜が、本発明に係る合わせガラス用中間膜を含む。従って、上記合わせガラスにおける上記中間膜が全体で、熱可塑性樹脂と錫ドープ酸化インジウム粒子と酸化タングステン粒子と上記化合物Xとを含む。

【0127】

別の見方をすれば、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、本発明に係る合わせガラス用中間膜とを備えており、上記第1，第2の合わせガラス部材の間に、本発明に係る合わせガラス用中間膜が配置されている。

【0128】

従って、本発明に係る合わせガラス用中間膜は、単独で単層の中間膜として用いることができ、他の中間膜と積層されて多層の中間膜として用いることもできる。多層の中間膜の場合に、複数の中間膜(層)を有する多層の中間膜において、熱可塑性樹脂と錫ドープ酸化インジウム粒子と酸化タングステン粒子と上記化合物Xとを含む中間膜(層)が、本発明に係る合わせガラス用中間膜に相当する。

【0129】

図1に、本発明の一実施形態に係る合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスの一例を断面図で示す。

【0130】

図1に示す合わせガラス1は、中間膜2と、第1，第2の合わせガラス部材21，22とを備える。中間膜2は単層の中間膜である。中間膜2は、熱可塑性樹脂と錫ドープ酸化インジウム粒子と酸化タングステン粒子と上記化合物Xとを含む。中間膜2は、合わせガラスを得るために用いられる。中間膜2は、合わせガラス用中間膜である。

【0131】

中間膜2は、第1，第2の合わせガラス部材21，22の間に挟み込まれている。中間膜2の第1の表面2a(一方の表面)に、第1の合わせガラス部材21が積層されている。中間膜2の第1の表面2aとは反対の第2の表面2b(他方の表面)に、第2の合わせガラス部材22が積層されている。

【0132】

図2に、本発明の他の実施形態に係る合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスの他の例を断面図で示す。

【0133】

図 2 に示す合わせガラス 11 は、中間膜 12 と、第 1、第 2 の合わせガラス部材 21、22 とを備える。中間膜 12 は、多層の中間膜である。中間膜 12 は、第 1 の層 13 (第 1 の中間膜)、第 2 の層 14 (第 2 の中間膜) 及び第 3 の層 15 (第 3 の中間膜) の 3 つの中間膜がこの順で積層された構造を有する。中間膜 12 は全体で、熱可塑性樹脂と錫ドープ酸化インジウム粒子と酸化タングステン粒子と上記化合物 X とを含む。本実施形態では、第 2 の層 14 は、遮熱層であり、熱可塑性樹脂と錫ドープ酸化インジウム粒子と酸化タングステン粒子と上記化合物 X とを含む。第 2 の層 14 は、熱可塑性樹脂を含むことが好ましい。第 2 の層 14 は、錫ドープ酸化インジウム粒子を含んでいなくてもよく、酸化タングステン粒子を含んでいなくてもよく、上記化合物 X を含んでいなくてもよい。第 1、第 3 の層 13、15 は、保護層である。第 1、第 3 の層 13、15 は、熱可塑性樹脂を含むことが好ましい。第 1、第 3 の層 13、15 は、錫ドープ酸化インジウム粒子を含んでいてもよく、酸化タングステン粒子を含んでいてもよく、上記化合物 X を含んでいてもよい。中間膜 12 は、合わせガラスを得るために用いられる。中間膜 12 は、合わせガラス用中間膜である。なお、第 1 の層 13 又は第 3 の層 14 が、熱可塑性樹脂と錫ドープ酸化インジウム粒子と酸化タングステン粒子と上記化合物 X とを含む場合には、第 2 の層 14 は、錫ドープ酸化インジウム粒子を含んでいなくてもよく、酸化タングステン粒子を含んでいなくてもよく、上記化合物 X を含んでいなくてもよい。

【0134】

第 1、第 2、第 3 の層 13、14、15 はそれぞれ、第 1、第 2 の合わせガラス部材 21、22 の間に配置されている。中間膜 12 は、第 1、第 2 の合わせガラス部材 21、22 の間に挟み込まれている。第 1 の層 13 の外側の表面 13a に第 1 の合わせガラス部材 21 が積層されている。第 2 の層 15 の外側の表面 15a に第 2 の合わせガラス部材 22 が積層されている。

【0135】

上記第 1、第 2 の合わせガラス部材 (合わせガラス構成部材) 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。上記合わせガラスには、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。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。

【0136】

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、網入り板ガラス、線入り板ガラス、クリアガラス及びクリアガラス等が挙げられる。上記有機ガラスは、無機ガラスに代用され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。

【0137】

上記合わせガラス部材の厚みは、特に限定されないが、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、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 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。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 0.03 mm 以上、好ましくは 0.5 mm 以下である。

【0138】

上記合わせガラスの製造方法は特に限定されない。例えば、第 1、第 2 の合わせガラス部材の間に、中間膜を挟んで、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して、第 1、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 °C で予備接着して積層体を得る。次に、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 °C 及び 1 ~ 1.5 MPa 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。

【 0 1 3 9 】

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。上記中間膜は、建築用又は車両用の中間膜であることが好ましく、車両用の中間膜であることがより好ましい。上記合わせガラスは、建築用又は車両用の合わせガラスであることが好ましく、車両用の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、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、自動車のフロントガラス、サイドガラス、クリアガラス又はルーフガラス等に使用できる。遮熱性が高くかつ可視光線透過率が高いので、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。また、上記中間膜を用いた合わせガラスは、波長 1 5 5 0 n m での光線透過率が高く、合わせガラスを介して入射された太陽光によるじりじり感を抑制することができるので、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。また、上記中間膜を用いた合わせガラスは、波長 8 5 0 n m での光線透過率が高く、合わせガラスに取り付けられた各種センサーの検知精度を高めることができるので、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。

10

【 0 1 4 0 】

透明性により一層優れた合わせガラスを得る観点からは、合わせガラスの上記可視光線透過率は、好ましくは 6 5 % 以上、より好ましくは 7 0 % 以上である。合わせガラスの可視光線透過率は、J I S R 3 2 1 1 (1 9 9 8) に準拠して測定できる。本発明の合わせガラス用中間膜を、J I S R 3 2 0 8 に準拠した、厚さ 2 m m の 2 枚のグリーンガラス (熱線吸収板ガラス) の間に挟み込むことにより得られた合わせガラスの可視光線透過率は 7 0 % 以上であることが好ましい。

20

【 0 1 4 1 】

合わせガラスの日射透過率 (T s 2 1 0 0) は、好ましくは 6 5 % 以下、より好ましくは 6 5 % 以下、更に好ましくは 5 0 % 以下、特に好ましくは 4 0 % 以下である。合わせガラスの日射透過率 (T s 2 1 0 0) は、J I S R 3 1 0 6 (1 9 9 8) に準拠して測定できる。本発明の合わせガラス用中間膜を、J I S R 3 2 0 8 に準拠した、厚さ 2 m m の 2 枚のグリーンガラスの間に挟み込むことにより得られた合わせガラスの日射透過率 (T s 2 1 0 0) は 6 5 % 以下であることが好ましく、6 0 % 以下であることがより好ましく、5 0 % 以下であることが更に好ましく、4 0 % 以下であることが特に好ましい。

30

【 0 1 4 2 】

じりじり感を効果的に抑制する観点からは、合わせガラスの波長 1 5 5 0 n m での光線透過率 (T 1 5 5 0) は、好ましくは 2 0 % 以下、より好ましくは 1 0 % 以下である。本発明の合わせガラス用中間膜を、J I S R 3 2 0 8 に準拠した、厚さ 2 m m の 2 枚のグリーンガラスの間に挟み込むことにより得られた合わせガラスの波長 1 5 5 0 n m での光線透過率 (T 1 5 5 0) は、好ましくは 2 0 % 以下、より好ましくは 1 0 % 以下である。上記光線透過率 (T 1 5 5 0) は、J I S R 3 1 0 6 (1 9 9 8) に準拠して測定できる。

【 0 1 4 3 】

合わせガラスの波長 8 0 0 n m での光線透過率 (T 8 0 0) は、好ましくは 2 0 % 以上である。本発明の合わせガラス用中間膜を、J I S R 3 2 0 8 に準拠した、厚さ 2 m m の 2 枚のグリーンガラスの間に挟み込むことにより得られた合わせガラスの波長 8 0 0 n m での光線透過率 (T 8 0 0) は、好ましくは 2 0 % 以上である。上記光線透過率 (T 8 0 0) は、J I S R 3 1 0 6 (1 9 9 8) に準拠して測定できる。

40

【 0 1 4 4 】

合わせガラスのヘーズ値は、好ましくは 2 % 以下、より好ましくは 1 % 以下、更に好ましくは 0 . 5 % 以下、特に好ましくは 0 . 4 % 以下である。合わせガラスのヘーズ値は、J I S K 6 7 1 4 に準拠して測定できる。

【 0 1 4 5 】

以下、実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明する。本発明は以下の実施例のみに限定

50

されない。

【0146】

実施例及び比較例では、以下の材料を用いた。

【0147】

熱可塑性樹脂：

「PVB1」（n-ブチルアルデヒドによりアセタール化されているポリビニルブチラール樹脂、平均重合度1700、水酸基の含有率30.5モル%、アセチル化度1モル%、ブチラール化度68.5モル%）

「PVB2」（n-ブチルアルデヒドによりアセタール化されているポリビニルブチラール樹脂、平均重合度2400、水酸基の含有率22モル%、アセチル化度13モル%、ブチラール化度65モル%）

10

【0148】

なお、上記ポリビニルブチラール樹脂の水酸基の含有率、アセチル化度及びブチラール化度（アセタール化度）はASTM D1396-92に準拠した方法により測定した。なお、JIS K6728「ポリビニルブチラール試験方法」により測定した場合も、ASTM D1396-92に準拠した方法と同様の数値を示した。

【0149】

可塑剤：

3GO（トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート）

【0150】

20

錫ドーブ酸化インジウム粒子：

ITO粒子（錫ドーブ酸化インジウム粒子）

【0151】

酸化タングステン粒子（遮熱粒子）：

CWO粒子（セシウムドーブ酸化タングステン粒子（ $\text{Cs}_{0.33}\text{WO}_3$ ））

【0152】

化合物X：

フタロシアニン化合物（中心金属としてバナジウム原子を含有する、山田化学社製「NIR-43V」）

【0153】

30

他の成分：

6ホウ化ランタン粒子

ガリウムドーブ酸化亜鉛粒子

インモニウム化合物（日本カーリット社製「CIR-RL」）

【0154】

金属塩：

金属塩A（ビス（2-エチル酪酸）マグネシウム）

【0155】

紫外線遮蔽剤：

紫外線遮蔽剤1（2-（2'-ヒドロキシ-3'-t-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「Tinuvin326」、最も長波長側の極大吸収波長352nm）

40

紫外線遮蔽剤2（トリアジン系紫外線遮蔽剤、ADEKA社製「LA-F70」、最も長波長側の極大吸収波長344nm）

紫外線遮蔽剤3（2,4-ビス「2-ヒドロキシ-4-ブトキシフェニル」-6-（2,4-ジブトキシフェニル）-1,3,5-トリアジン、BASF社製「T460」、最も長波長側の極大吸収波長346nm）

紫外線遮蔽剤4（2-エチル-2'-エトキシ-オキシアニリド、クラリアントジャパン社製「Sanduvor VSU」、最も長波長側の極大吸収波長276nm）

紫外線遮蔽剤5（マロン酸〔（4-メトキシフェニル）-メチレン〕-ジメチルエステ

50

ル、クラリアントジャパン社製「Hostavin PR-25」、最も長波長側の極大吸収波長312nm)

【0156】

酸化防止剤：

酸化防止剤(2,6-ジ-*t*-ブチル-*p*-クレゾール(BHT))

【0157】

(実施例1)

(1)中間膜の作製

金属塩であるビス(2-エチル酪酸)マグネシウムを得られる中間膜100重量%中で0.067重量%となる量で含む0.19重量%のエタノール溶液を用意した。

10

【0158】

トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(3GO)40重量部と、CWO粒子を得られる中間膜100重量%中で0.035重量%となる量と、ITO粒子を得られる中間膜100重量%中で0.14重量%となる量と、フタロシアニン化合物を得られる中間膜中で0.004重量%となる量と、得られた上記エタノール溶液全量とを混合し、さらに、分散剤であるリン酸エステル化合物を添加した後、水平型のマイクロビーズミルにて混合し、分散液を得た。なお、リン酸エステル化合物の含有量はCWO粒子とITO粒子との合計の含有量の1/10となるように調整した。

【0159】

ポリビニルブチラル樹脂(PVB1)100重量部に対し、得られた分散液全量と、酸化防止剤(2,6-ジ-*t*-ブチル-*p*-クレゾール(BHT))を得られる中間膜100重量%中で0.14重量%となる量と、紫外線遮蔽剤4(2-エチル-2'-エトキシ-オキシアニリド、クラリアントジャパン社製「Sanduvor VSU」、極大吸収波長276nm)を得られる中間膜中で0.28重量%となる量と、紫外線遮蔽剤5(マロン酸[(4-メトキシフェニル)-メチレン]-ジメチルエステル、クラリアントジャパン社製「Hostavin PR-25」、最も長波長側の極大吸収波長312nm)を得られる中間膜100重量%中で0.28重量%となる量と、紫外線遮蔽剤2(トリアジン系紫外線遮蔽剤、ADEKA社製「LA-F70」、最も長波長側の極大吸収波長352nm)を得られる中間膜100重量%中で0.43重量%とを添加し、ミキシングロールで十分に混練し、組成物を得た。

20

30

【0160】

得られた組成物を押出機により押出して、厚み760μmの単層の中間膜を得た。

【0161】

(2)合わせガラスAの作製

得られた中間膜を、縦30cm×横30cmの大きさに切断した。次に、JIS R3208に準拠した2枚のグリーンガラス(縦30cm×横30cm×厚み2mm)を用意した。この2枚のグリーンガラスの間に、得られた中間膜を挟み込み、真空ラミネーターにて90で30分間保持し、真空プレスし、積層体を得た。積層体において、ガラス板からはみ出た中間膜部分を切り落とし、合わせガラスAを得た。

【0162】

(3)合わせガラスBの作製(パンメル値測定用)

合わせガラスAと大きさのみが異なる合わせガラスBを作製した。すなわち、得られた中間膜を、縦100cm×横100cmの大きさに切断した。次に、JIS R3208に準拠した2枚のグリーンガラス(縦100cm×横100cm×厚み2mm)を用意した。この2枚のグリーンガラスの間に、得られた中間膜を挟み込み、真空ラミネーターにて90で30分間保持し、真空プレスし、積層体を得た。積層体において、ガラス板からはみ出た中間膜部分を切り落とし、合わせガラスBを得た。

40

【0163】

(実施例2~10及び比較例1~9)

配合成分の種類及び含有量を下記の表1,2に示すように設定したこと以外は実施例1

50

と同様にして、単層の中間膜を作製した。ポリビニルブチラル樹脂と可塑剤との種類及び配合量は実施例 1 と同じに設定した。得られた中間膜を用いて、実施例 1 と同様にして、中間膜を備えた合わせガラス A , B を作製した。

【 0 1 6 4 】

なお、比較例 7 では、熱線遮蔽剤の配合時に、6 ホウ化ランタン粒子を得られる中間膜中で 0 . 0 0 7 重量%となる量で配合した。比較例 8 では、熱線遮蔽剤の配合時に、ガリウムドープ酸化亜鉛粒子を得られる中間膜中で 0 . 1 2 0 重量%となる量で配合した。比較例 9 では、熱線遮蔽剤の配合時に、インモニウム化合物（日本カーリット社製「C I R - R L」）を得られる中間膜中で 0 . 0 2 6 重量%となる量で配合した。

【 0 1 6 5 】

10

（実施例 1 1）

（1）中間層を形成するための第 1 の組成物の調製

ポリビニルブチラル樹脂（P V B 2）1 0 0 重量部に対し、可塑剤であるトリエチレングリコールジ - 2 - エチルヘキサノエート 6 0 重量部を添加し、ミキシングロールで十分に混練し、中間層を形成するための第 1 の組成物を得た。

【 0 1 6 6 】

（2）表面層を形成するための第 2 の組成物の調製

金属塩であるビス（2 - エチル酪酸）マグネシウムを得られる中間膜 1 0 0 重量%中で 0 . 0 6 7 重量%となる量で含む 0 . 1 9 重量%のエタノール溶液を用意した。

【 0 1 6 7 】

20

トリエチレングリコールジ - 2 - エチルヘキサノエート（3 G O）4 0 重量部と、C W O 粒子を得られる中間膜 1 0 0 重量%中で 0 . 0 2 6 重量%となる量と、I T O 粒子を得られる中間膜 1 0 0 重量%中で 0 . 1 2 7 重量%となる量と、フタロシアニン化合物を得られる中間膜中で 0 . 0 0 7 重量%となる量と、得られた上記エタノール溶液全量とを混合し、さらに、分散剤であるリン酸エステル化合物を添加した後、水平型のマイクロビーズミルにて混合し、分散液を得た。なお、リン酸エステル化合物の含有量は C W O 粒子と I T O 粒子との合計の含有量の 1 / 1 0 となるように調整した。

【 0 1 6 8 】

ポリビニルブチラル樹脂（P V B 1）1 0 0 重量部に対し、得られた分散液全量と、酸化防止剤（2 , 6 - ジ - t - ブチル - p - クレゾール（B H T））を得られる中間膜 1 0 0 重量%中で 0 . 2 9 重量%となる量と、紫外線遮蔽剤 1（2 -（2' - ヒドロキシ - 3' - t - ブチル - 5 - メチルフェニル） - 5 - クロロベンゾトリアゾール、B A S F 社製「T i n u v i n 3 2 6」、最も長波長側の極大吸収波長 3 5 2 n m）を得られる中間膜中で 0 . 5 7 重量%となる量とを添加し、ミキシングロールで十分に混練し、表面層を形成するための第 2 の組成物を得た。

30

【 0 1 6 9 】

（3）多層の中間膜の作製

得られた第 1 の組成物及び得られた第 2 の組成物を、共押出機を用いて成形し、表面層（3 5 0 μ m）/ 中間層（厚み 1 0 0 μ m）/ 表面層（厚み 3 5 0 μ m）の 3 層の積層構造を有する多層の中間膜（厚み 8 0 0 μ m）を作製した。

40

【 0 1 7 0 】

（4）合わせガラス A 及び合わせガラス B の作製

得られた中間膜を用いて、実施例 1 と同様にして、中間膜を備えた合わせガラス A , B を作製した。

【 0 1 7 1 】

（実施例 1 2）

（1）中間層を形成するための第 1 の組成物の調製

トリエチレングリコールジ - 2 - エチルヘキサノエート（3 G O）6 0 重量部と、C W O 粒子を得られる中間膜 1 0 0 重量%中で 0 . 0 9 1 重量%となる量と、I T O 粒子を得られる中間膜 1 0 0 重量%中で 0 . 8 8 9 重量%となる量と、フタロシアニン化合物を得

50

られる中間膜中で0.046重量%となる量とを混合し、さらに、分散剤であるリン酸エステル化合物を添加した後、水平型のマイクロビーズミルにて混合し、分散液を得た。なお、リン酸エステル化合物の含有量はCWO粒子とITO粒子との合計の含有量の1/10となるように調整した。

【0172】

ポリビニルブチラル樹脂(PVB2)100重量部に対し、得られた分散液全量と、酸化防止剤(2,6-ジ-*t*-ブチル-*p*-クレゾール(BHT))を得られる中間膜100重量%中で0.29重量%となる量と、紫外線遮蔽剤1(2-(2'-ヒドロキシ-3'-*t*-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「Tinuvin326」、最も長波長側の極大吸収波長352nm)を得られる中間膜中で0.57重量%となる量とを添加し、ミキシングロールで十分に混練し、中間層を形成するための第1の組成物を得た。

10

【0173】

(2) 表面層を形成するための第2の組成物の調製

ポリビニルブチラル樹脂(PVB1)100重量部に対し、可塑剤であるトリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート40重量部と、紫外線遮蔽剤1(2-(2'-ヒドロキシ-3'-*t*-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「Tinuvin326」、最も長波長側の極大吸収波長352nm)0.2重量部とを添加し、ミキシングロールで十分に混練し、表面層を形成するための第2の組成物を得た。

20

【0174】

(3) 多層の中間膜の作製

得られた第1の組成物及び得られた第2の組成物を、共押出機を用いて成形し、表面層(350μm)/中間層(厚み100μm)/表面層(厚み350μm)の3層の積層構造を有する多層中間膜(厚み800μm)を作製した。

【0175】

(4) 合わせガラスA及び合わせガラスBの作製

得られた中間膜を用いて、実施例1と同様にして、中間膜を備えた合わせガラスA、Bを作製した。

【0176】

30

(評価)

(1) 可視光線透過率(A光Y値、初期A-Y(380~780nm))の測定

分光光度計(日立ハイテク社製「U-4100」)を用いて、JIS R3211(1998)に準拠して、得られた合わせガラスAの波長380~780nmにおける上記可視光線透過率を測定した。

【0177】

(2) 光線透過率(初期T850(850nm))の測定

分光光度計(日立ハイテク社製「U-4100」)を用いて、JIS R3106(1998)に準拠した方法により、得られた合わせガラスAの波長850nmでの光線透過率(T850(850nm))を測定した。

40

【0178】

(3) 日射透過率(初期Ts2100(300~2100nm))の測定

分光光度計(日立ハイテク社製「U-4100」)を用いて、JIS R3106(1998)に準拠して、得られた合わせガラスの波長300~2100nmでの日射透過率Ts(Ts2100)を求めた。

【0179】

(4) 耐光性(A-Y、T850、Ts2100)

紫外線照射装置(Atlas社製「Ci65A」)を用いて、JIS R3205に準拠して、紫外線(石英ガラス水銀灯(750W))を、合わせガラスに500時間照射した。500時間照射後の合わせガラスのA-Y、T850及びTs2100を上記の方法

50

により測定した。

【 0 1 8 0 】

得られた測定値から、 $A - Y$ (初期の $A - Y$ - 紫外線の照射後の $A - Y$)、 $T 8 5 0$ (初期の $T 8 5 0$ - 紫外線の照射後の $T 8 5 0$)、及び $T s 2 1 0 0$ (初期の $T s 2 1 0 0$ - 紫外線の照射後の $T s 2 1 0 0$) を求めた。

【 0 1 8 1 】

結果を下記の表 1 ~ 3 に示す。なお、下記の表 2 , 3 の評価欄において、「 - 」は評価していないことを示す。また、下記の表 1 ~ 3 において、ITO 粒子、CWO 粒子、フタロシアニン化合物、金属塩 A、酸化防止剤及び紫外線遮蔽剤の含有量は、これらの成分を含む中間膜 1 0 0 重量 % 中 (表 1 , 2)、表面層 1 0 0 重量 % 中 (表 3)、又は中間層 1 0 0 重量 % 中 (表 3) での含有量 (重量 %) を示す。なお、実施例 1 ~ 1 0 では、中間膜における上記金属塩 A に由来するマグネシウム濃度は、6 0 p p m であった。実施例 1 1 では、表面層における上記金属塩 A に由来するマグネシウム濃度は、6 0 p p m であった。また、下記の表 1 ~ 3 では、ポリビニルブチラル樹脂と可塑剤との含有量の記載は省略した。

10

【 0 1 8 2 】

なお、実施例 1 ~ 1 2 の合わせガラスの波長 1 5 5 0 n m での光線透過率 ($T 1 5 5 0$) を測定したところ、実施例 1 ~ 1 2 の全てで、光線透過率 ($T 1 5 5 0$) は 2 0 % 以下であった。また、実施例 1 ~ 1 2 にて用いた可塑剤をトリエチレングリコールジ - 2 - エチルヘキサノエートを、テトラエチレングリコールジ - n - ヘプタノエートに変更しても同様の効果が得られることを確認した。

20

【 0 1 8 3 】

【表 1】

中間膜の構成														
中間膜の構造	中間膜の厚み	熱線遮蔽剤			酸化防止剤	金属塩A	紫外線遮蔽剤						紫外吸収波長※1	
		ITO粒子	CWO粒子	フタロシアニン化合物			1種類目		2種類目		3種類目			
							配合量重量%	配合量重量%	種類	配合量重量%	種類	配合量重量%		種類
実施例1	単層	760	0.14	0.035	0.004	0.14	0.067	2	0.43	4	0.28	5	0.28	306
実施例2	単層	760	0.14	0.035	0.004	0.14	0.067	3	0.18	4	0.28	5	0.28	306
実施例3	単層	760	0.117	0.024	0.006	0.14	0.067	1	0.80	—	—	—	—	352
実施例4	単層	760	0.117	0.024	0.006	0.14	0.067	2	0.13	5	0.20	—	—	316
比較例1	単層	760	—	0.05	—	0.14	0.067	—	—	—	—	—	—	—
比較例2	単層	760	—	0.05	—	0.14	0.067	1	0.07	—	—	—	—	352
比較例3	単層	760	—	0.05	—	0.14	0.067	1	0.18	—	—	—	—	352

評価													
初期				紫外線の照射後 (500時間)									
A-Y	T850	Ts2100	ΔA-Y	ΔT850	ΔTs2100								
%	%	%	%	%	%								
実施例1	73.17	28.86	37.82	-1.24	-0.65								
実施例2	73.28	27.20	37.79	-0.96	-1.61								
実施例3	73.42	27.71	36.88	-0.80	-0.34								
実施例4	73.00	26.95	36.60	-0.68	-1.17								
比較例1	74.79	23.10	43.31	-1.90	-3.29								
比較例2	74.70	23.21	42.52	-1.40	-2.53								
比較例3	74.76	23.16	42.22	-1.10	-1.86								

【 0 1 8 4 】

10

20

30

40

【表 2】

中間膜の構成															
中間膜の構造	中間膜の厚み	熱線遮蔽剤				酸化防止剤	金属塩A	紫外線遮蔽剤						極大吸収重量% ※1	
		ITO 粒子	CWO 粒子	フタロシアニン化合物	その他			1種類目		2種類目		3種類目			
								配合量重量%	配合量重量%	配合量重量%	配合量重量%	種類	配合量重量%		種類
実施例5	単層	760	0.14	0.035	0.004	—	0.29	0.067	2	0.43	4	0.29	5	0.29	306
実施例6	単層	760	0.14	0.035	0.004	—	0.29	0.067	3	0.18	4	0.29	5	0.29	306
実施例7	単層	760	0.117	0.024	0.006	—	0.29	0.067	1	0.57	—	—	—	—	352
実施例8	単層	760	0.117	0.024	0.006	—	0.29	0.067	2	0.09	5	0.14	—	—	316
実施例9	単層	760	0.14	0.035	0.004	—	0.29	0.067	1	0.57	—	—	—	—	352
実施例10	単層	760	0.14	0.035	0.004	—	0.29	0.067	2	0.09	5	0.14	—	—	316
比較例4	単層	760	—	0.05	—	—	0.29	0.067	—	—	—	—	—	—	—
比較例5	単層	760	—	0.05	—	—	0.29	0.067	1	0.07	—	—	—	—	352
比較例6	単層	760	—	0.05	—	—	0.29	0.067	1	0.18	—	—	—	—	352
比較例7	単層	760	0.117	—	0.006	0.007 ※2	0.29	0.067	1	0.57	—	—	—	—	352
比較例8	単層	760	—	0.024	0.006	0.120 ※3	0.29	0.067	1	0.57	—	—	—	—	352
比較例9	単層	760	0.117	0.024	—	0.026 ※4	0.29	0.067	1	0.57	—	—	—	—	352

評価														
	紫外線の照射後 (500時間)													
	初期		A-Y											
	%	T850	%	Ts2100	%	ΔA-Y	%	ΔT850	%	ΔTs2100	%	ΔTs2100	%	ΔTs2100
実施例5	73.2	28.9	37.8	—1.2	—1.2	—0.7	—0.7	—	—	—	—	—	—	—
実施例6	73.3	27.2	37.8	—1.0	—1.6	—0.7	—0.7	—	—	—	—	—	—	—
実施例7	73.4	27.7	36.9	—0.8	—0.3	—0.5	—0.5	—	—	—	—	—	—	—
実施例8	73.0	27.0	36.6	—0.7	—1.2	—0.2	—0.2	—	—	—	—	—	—	—
実施例9	73.0	28.9	37.7	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
実施例10	73.4	27.2	37.8	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
比較例4	74.8	23.1	43.3	—1.9	—3.3	—2.6	—2.6	—	—	—	—	—	—	—
比較例5	74.7	23.2	42.5	—1.4	—2.5	—1.9	—1.9	—	—	—	—	—	—	—
比較例6	74.8	23.2	42.2	—1.1	—1.9	—1.5	—1.5	—	—	—	—	—	—	—
比較例7	73.3	29.8	38.8	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
比較例8	73.4	27.1	39.4	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
比較例9	73.5	18.0	35.8	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—

【 0 1 8 5 】

10

20

30

40

【表 3】

表面層（多層の中間膜における表面層である中間膜）の構成													
中間膜の構造	中間膜の厚み μm	熱線遮光剤			酸化防止剤 配合量 重量%	金属塩A 配合量 重量%	紫外線遮光剤						極大吸収波長 ※1
		ITO 粒子 配合量 重量%	CWO 粒子 配合量 重量%	フタロシアニン 化合物 配合量 重量%			1種類目		2種類目		3種類目		
							種類	配合量 重量%	種類	配合量 重量%	種類	配合量 重量%	
実施例11	多層	800 (350/100/350)	0.127	0.026	0.007	0.29	0.067	1	0.57	-	-	-	352
中間層（多層の中間膜における中間層である中間膜）の構成													
中間膜の構造	中間膜の厚み μm	熱線遮光剤			酸化防止剤 配合量 重量%	金属塩A 配合量 重量%	紫外線遮光剤						極大吸収波長 ※1
		ITO 粒子 配合量 重量%	CWO 粒子 配合量 重量%	フタロシアニン 化合物 配合量 重量%			1種類目		2種類目		3種類目		
							種類	配合量 重量%	種類	配合量 重量%	種類	配合量 重量%	
実施例12	多層	800 (350/100/350)	0.889	0.091	0.046	0.29	-	1	0.57	-	-	-	352
評価													
初期			紫外線の照射後 (500時間)										
A-Y	T850	Ts2100	ΔA-Y	ΔTs2100	ΔTs2100								
%	%	%	%	%	%								
73.4	27.6	36.9	-	-	-								
74.7	31.4	38.9	-	-	-								

【 0 1 8 6 】

表 1 ～ 3 の「 1 」は中間膜（表 1 ， 2 ）、表面層（表 3 ）及び中間層（表 3 ）での最も吸光度の高い極大吸収波長を示す。表 2 において、 2 は、6 ホウ化ランタン粒子の配合量を示し、 3 はガリウムドープ酸化亜鉛粒子の配合量を示し、 4 はインモニウム化合物（日本カーリット社製「C I R - R L」）の配合量を示す。

【符号の説明】

10

20

30

40

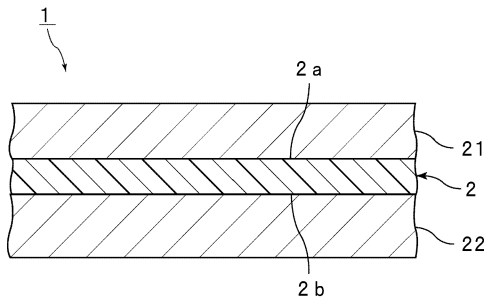
50

【 0 1 8 7 】

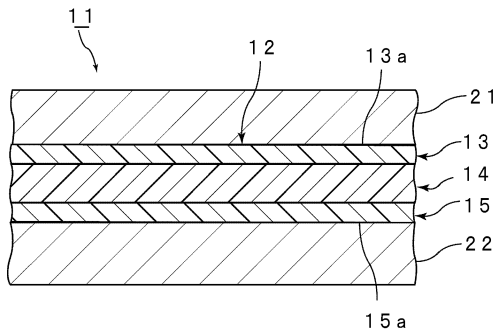
- 1 ... 合わせガラス
- 2 ... 中間膜
- 2 a ... 第 1 の表面
- 2 b ... 第 2 の表面
- 1 1 ... 合わせガラス
- 1 2 ... 中間膜
- 1 3 ... 第 1 の層 (第 1 の中間膜)
- 1 4 ... 第 2 の層 (第 2 の中間膜)
- 1 5 ... 第 3 の層 (第 3 の中間膜)
- 1 3 a ... 外側の表面
- 1 5 a ... 外側の表面
- 2 1 ... 第 1 の合わせガラス部材
- 2 2 ... 第 2 の合わせガラス部材

10

【 図 1 】



【 図 2 】



フロントページの続き

(72)発明者 角田 竜太
滋賀県甲賀市水口町泉 1 2 5 9 積水化学工業株式会社内

審査官 山崎 直也

(56)参考文献 国際公開第 2 0 1 1 / 0 2 4 7 8 7 (W O , A 1)
国際公開第 2 0 1 1 / 0 4 0 4 4 4 (W O , A 1)
国際公開第 2 0 0 9 / 0 5 4 0 5 1 (W O , A 1)
特開 2 0 0 8 - 1 9 4 5 6 3 (J P , A)
国際公開第 2 0 1 2 / 0 2 6 4 8 7 (W O , A 1)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)
C 0 3 C 2 7 / 1 2