(19)日本国特許庁(JP)　(12)公開特許公報(A)　(11)特許出願公開番号
特開2015-196611
(P2015-196611A)
(43)公開日　平成27年11月9日(2015.11.9)

(51)Int.Cl.		F I			テーマコード（参考）
C03C 27/12	(2006.01)	C03C	27/12	D	4F100
B32B 17/10	(2006.01)	B32B	17/10		4G061
B32B 27/30	(2006.01)	B32B	27/30	102	
B60J 1/00	(2006.01)	B60J	1/00	J	

審査請求 未請求　請求項の数 12　ＯＬ　（全 27 頁）

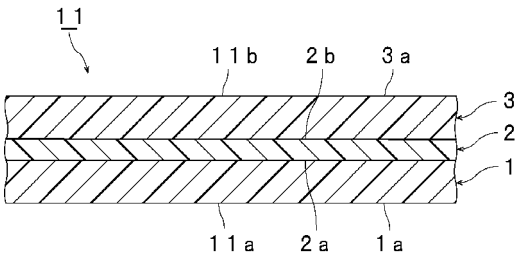
(21)出願番号　特願2014-74229(P2014-74229)
(22)出願日　平成26年3月31日(2014.3.31)

(71)出願人　000002174
積水化学工業株式会社
大阪府大阪市北区西天満２丁目４番４号
(74)代理人　110001232
特許業務法人　宮▲崎▼・目次特許事務所
(72)発明者　岩本　達矢
滋賀県甲賀市水口町泉１２５９　積水化学工業株式会社内
(72)発明者　水口　奈美
滋賀県甲賀市水口町泉１２５９　積水化学工業株式会社内

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)【要約】　（修正有）
【課題】ガラス板の厚みが薄くても合わせガラスの曲げ剛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。
【解決手段】１層の構造又は２層以上の構造を有する合わせガラス用中間膜１１であって、中間膜１１における表面層として、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第１の層１を備え、第１の層１に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂が、ポリビニルアルコールを炭素数が３以下であるアルデヒドでアセタール化することにより得られる合わせガラス用中間膜１１。第１の層１に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率が３０モル%以下であり、前記ポリビニルアセタール樹脂１００重量部に対して、前記可塑剤の含有量が２０重量部以上である合わせガラス用中間膜１１。
【選択図】図１



【特許請求の範囲】
【請求項１】
１層の構造又は２層以上の構造を有する合わせガラス用中間膜であって、
中間膜における表面層として、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第１の層を備え、
前記第１の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂が、ポリビニルアルコールを炭素数が３以下であるアルデヒドでアセタール化することにより得られる、合わせガラス用中間膜。
【請求項２】
前記第１の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率が３０モル％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】
前記第１の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率が３０モル％以下であり、
前記第１の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂１００重量部に対して、前記第１の層に含まれる前記可塑剤の含有量が２０重量部以上である、請求項１に記載の合わせガラス用中間膜。
【請求項４】
前記第１の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率が３０モル％以下であり、
前記第１の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂１００重量部に対して、前記第１の層に含まれる前記可塑剤の含有量が４０重量部以下である、請求項１又は３に記載の合わせガラス用中間膜。
【請求項５】
２層以上の構造を有する合わせガラス用中間膜であって、
ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第２の層をさらに備え、
前記第２の層の第１の表面側に、前記第１の層が配置されている、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】
３層以上の構造を有する合わせガラス用中間膜であって、
中間膜における表面層として、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第３の層をさらに備え、
前記第２の層の前記第１の表面側とは反対の第２の表面側に、前記第３の層が配置されており、
前記第３の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂が、ポリビニルアルコールを炭素数が３以下であるアルデヒドでアセタール化することにより得られる、請求項５に記載の合わせガラス用中間膜。
【請求項７】
１層の構造を有する合わせガラス用中間膜であって、
前記第１の層のみ備える、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８】
厚みが１ｍｍ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１～７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】
厚みが１ｍｍ以下である第１のガラス板と厚みが１ｍｍ以下である第２のガラス板とを用いて、前記第１のガラス板と前記第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用いられる、請求項８に記載の合わせガラス用中間膜。
【請求項１０】

第１のガラス板と、
第２のガラス板と、
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とを備え、
前記第１のガラス板と前記第２のガラス板との間に、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１１】
前記第１のガラス板の厚みが１ｍｍ以下である、請求項１０に記載の合わせガラス。
【請求項１２】
前記第２のガラス板の厚みが１ｍｍ以下である、請求項１１に記載の合わせガラス。
【発明の詳細な説明】
【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としては、１層の構造を有する単層の中間膜と、２層以上の構造を有する多層の中間膜とがある。
【０００４】
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。
【０００５】
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。
【０００６】
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】
【０００７】
【特許文献１】特開２００７－０７０２００号公報
【特許文献２】ＵＳ２０１３／０２３６７１１Ａ１
【発明の概要】
【発明が解決しようとする課題】
【０００８】
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、曲げ剛性が低いことがある。このため、例えば自動車のサイドドアに使用される場合、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、ガラスの開

閉に支障をきたすことがある。

【０００９】

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、曲げ剛性を充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。

【００１０】

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。

【００１１】

本発明の目的は、合わせガラスの曲げ剛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】

【００１２】

本発明の広い局面によれば、１層の構造又は２層以上の構造を有する合わせガラス用中間膜であって、中間膜における表面層として、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第１の層を備え、前記第１の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂が、ポリビニルアルコールを炭素数が３以下であるアルデヒドでアセタール化することにより得られる、合わせガラス用中間膜が提供される。

【００１３】

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、前記第１の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率が３０モル％以下である。

【００１４】

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、前記第１の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂１００重量部に対して、前記第１の層に含まれる前記可塑剤の含有量が２０重量部以上であり、他の特定の局面では、前記第１の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂１００重量部に対して、前記第１の層に含まれる前記可塑剤の含有量が４０重量部以下である。

【００１５】

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、前記中間膜は、２層以上の構造を有し、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第２の層をさらに備え、前記第２の層の第１の表面側に、前記第１の層が配置されている。

【００１６】

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、前記中間膜は、３層以上の構造を有し、中間膜における表面層として、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第３の層をさらに備え、前記第２の層の前記第１の表面側とは反対の第２の表面側に、前記第３の層が配置されており、前記第３の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂が、ポリビニルアルコールを炭素数が３以下であるアルデヒドでアセタール化することにより得られる。

【００１７】

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、前記中間膜は、１層の構造を有し、前記第１の層のみ備える。

【００１８】

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、前記中間膜は、厚みが１ｍｍ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。

【００１９】
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、前記中間膜は、厚みが１ｍｍ以下である第１のガラス板と厚みが１ｍｍ以下である第２のガラス板とを用いて、前記第１のガラス板と前記第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用いられる。
【００２０】
本発明の広い局面によれば、第１のガラス板と、第２のガラス板と、上述した合わせガラス用中間膜とを備え、前記第１のガラス板と前記第２のガラス板との間に、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。
【００２１】
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のガラス板の厚みが１ｍｍ以下である。
【００２２】
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２のガラス板の厚みが１ｍｍ以下である。
【発明の効果】
【００２３】
本発明に係る合わせガラス用中間膜は、１層の構造又は２層以上の構造を有し、中間膜における表面層として、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第１の層を備え、上記第１の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂が、ポリビニルアルコールを炭素数が３以下であるアルデヒドでアセタール化することにより得られるので、中間膜を用いた合わせガラスの曲げ剛性を高めることができる。
【図面の簡単な説明】
【００２４】
【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】
【００２５】
以下、本発明を詳細に説明する。
【００２６】
本発明に係る合わせガラス用中間膜（本明細書において、「中間膜」と略記することがある）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、中間膜における表面層として、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第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。
【００２７】
本発明に係る中間膜では、上記第１の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂が、ポリビニルアルコールを炭素数が３以下であるアルデヒドでアセタール化することにより得られる。上記第１の層に含まれる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以下である。
【００２８】
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、中間膜を用いた合わせガ

ラス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。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充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充分に高くすることができる。

【００２９】

本発明者らは、表面層である上記第１の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂が、ポリビニルアルコールを炭素数が３以下であるアルデヒドでアセタール化することにより得られる場合に、表面層である上記第１の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂が、ポリビニルアルコールを炭素数３を超えるアルデヒドでアセタール化することにより得られる場合と比べて、中間膜を用いた合わせガラスの曲げ剛性を高めることができることを見出した。

【００３０】

上記中間膜は、２層以上の構造を有していてもよく、第１の層に加えて第２の層を備えていてもよい。上記中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第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２の層の第１の表面側に、上記第１の層が配置される。

【００３１】

上記中間膜は、３層以上の構造を有していてもよく、第１の層及び第２の層に加えて第３の層を備えていてもよい。上記中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第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２の層の上記第１の表面側とは反対の第２の表面側に、上記第３の層が配置される。

【００３２】

合わせガラスの曲げ剛性をより一層高める観点から、上記中間膜は、上記第１の層を、中間膜における表面層として備える。上記中間膜は、上記第２の層を、中間膜における表面層として備えていてもよい。上記第２の層が表面層である場合に、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、ポリビニルアルコールを炭素数が３以下であるアルデヒドでアセタール化することにより得られることが好ましい。合わせガラスの曲げ剛性をより一層高める観点からは、上記中間膜は、上記第３の層を、中間膜における表面層として備えることが好ましい。上記中間膜は、上記第１の層と上記第３の層とをそれぞれ、中間膜における表面層として備えることが好ましい。上記第３の層が表面層である場合に、上記第３の層に含まれる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を炭素数が３以下であるアルデヒドでアセタール化することにより得られることが好ましい。

【００３３】

合わせガラスの曲げ剛性をより一層高める観点からは、上記第１の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率が３０モル％以下であることが好ましい。上記第２の層が表面層である場合に、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の水酸基の含有率が３０モル％以下であることが好ましい。上記第３の層が表面層である場合に、上記第３の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率が３０モル％以下であることが好ましい。

【００３４】

上記第１の層の上記第２の層側とは反対の表面は、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１の層に積層されるガラス板の厚みは１ｍｍ以下であることが好ましい。上記第２の層の上記第１の層側とは反対の表面（第２の表面）は、ガラス板が積層される表面であってもよい。上記第２の層に積層されるガラス板の厚みは１ｍｍ以下であることが好ましい。上記第３の層の上記第２の層側とは反対の表面は、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１ｍｍ以下であることが好ましい。

【００３５】
中間膜に起因して曲げ剛性を充分に高くすることができるので、上記中間膜は、厚みが１ｍｍ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。中間膜に起因して曲げ剛性を充分に高くすることができるので、上記中間膜は、厚みが１ｍｍ以下である第１のガラス板と厚みが１ｍｍ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。
【００３６】
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。
【００３７】
図１に、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断面図で示す。
【００３８】
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２の層２の第１の表面２ａに、第１の層１が配置されており、積層されている。第２の層２の第１の表面２ａとは反対の第２の表面２ｂに、第３の層３が配置されており、積層されている。第２の層２は中間層である。第１の層１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２の層２は、第１の層１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１の層１と第２の層２と第３の層３とがこの順で積層された多層構造（第１の層１／第２の層２／第３の層３）を有する。
【００３９】
なお、第１の層１と第２の層２との間、及び、第２の層２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１の層１と第２の層２、及び、第２の層２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。
【００４０】
第１の層１は、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む。第１の層１に含まれる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を炭素数が３以下であるアルデヒドでアセタール化することにより得られる。第２の層２は、ポリビニルアセタール樹脂を含むことが好ましく、可塑剤を含むことが好ましい。第３の層３は、ポリビニルアセタール樹脂を含むことが好ましく、可塑剤を含むことが好ましい。
【００４１】
図２に、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断面図で示す。
【００４２】
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。
【００４３】
中間膜１１Ａ（第１の層）は、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む。中間膜１１Ａに含まれる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を炭素数が３以下であるアルデヒドでアセタール化することにより得られる。
【００４４】
以下、本発明に係る中間膜を構成する上記第１の層（単層の中間膜を含む）、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。
【００４５】
（ポリビニルアセタール樹脂又は熱可塑性樹脂）

上記第１の層（単層の中間膜を含む）は、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。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く、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く、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、異なっていてもよい。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（２）と上記熱可塑性樹脂（３）とは、同一であってもよく、異なっていてもよい。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。

【００４６】

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。

【００４７】

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。

【００４８】

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、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。

【００４９】

上記ポリビニルアルコールの平均重合度は、ＪＩＳ　Ｋ６７２６「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。

【００５０】

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３～５であることが好ましく、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充分に低くなる。本発明では、上記第１の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂に関しては、アセタール基の炭素数は３以下である。

【００５１】

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、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、及びベンズアルデヒド等が挙げられる。なかでも、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く、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、ｎ－ブチルアルデヒド又はイソブチルアルデヒドがより好ましく、アセトアルデヒド又はプロピオンアルデヒドがより好ましい。

但し、本発明では、上記第１の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂に関しては、炭素数３以下のアルデヒドが用いられる。表面層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂に用いるアルデヒドに関しては、炭素数が３以下であり、２以下であってもよい。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。

【００５２】

上記ポリビニルアセタール樹脂（２）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３０モル％以下、より好ましくは２７モル％未満、更に好ましくは２５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。特に、上記ポリビニルアセタール樹脂（２）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２７モル％未満であると、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。

【００５３】

上記ポリビニルアセタール樹脂（１）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、好ましくは３５モル％以下、より好ましくは３２モル％以下、更に好ましくは３０モル％以下、特に好ましくは２７．５モル％以下、最も好ましくは２５モル％以下ある。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。また、上記水酸基の含有率が上記上限以下であると、曲げ剛性が効果的に高くなる。

【００５４】

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、測定することにより求めることができる。

【００５５】

上記ポリビニルアセタール樹脂（２）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１５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。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、耐貫通性に優れる。

【００５６】

上記ポリビニルアセタール樹脂（１）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。

【００５７】

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、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。

【００５８】

上記ポリビニルアセタール樹脂（２）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、好ましくは８０モル％以下、より好ましくは７０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。

【００５９】

上記ポリビニルアセタール樹脂（１）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６７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。

【００６０】

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。上記アセタール化度は、ＪＩＳ　Ｋ６７２８「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により、算出され得る。

【００６１】

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　Ｋ６７２８「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　Ｄ１３９６－９２ＪＩＳ　Ｋ６７２８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　Ｋ６７２８「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。

【００６２】

合わせガラスの耐貫通性をより一層良好にする観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂（２）は、アセチル化度（ａ）が８モル％以下であり、かつアセタール化度（ａ）が７０モル％以上であるポリビニルアセタール樹脂（Ａ）であるか、又はアセチル化度（ｂ）が８モル％を超えるポリビニルアセタール樹脂（Ｂ）であることが好ましい。上記ポリビニルアセタール樹脂（１）及び上記ポリビニルアセタール樹脂（３）は、上記ポリビニルアセタール樹脂（Ａ）であってもよく、上記ポリビニルアセタール樹脂（Ｂ）であってもよい。

【００６３】

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％以下、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６．５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モル％以上、更に好ましくは０．８モル％以上、特に好ましくは１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、可塑剤の移行を容易に制御でき、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。

【００６４】

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７０モル％以上、好ましくは７０．５モル％以上、より好ましくは７１モル％以上、更に好ましくは７１．５モル％以上、特に好ましくは７２モル％以上、好ましくは８５モル％以下、より好ましくは８３モル％以下、更に好ましくは８１モル％以下、特に好ましくは７９モル％以下である。上記アセタール化度（ａ）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。

【００６５】

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１８モル％以上、より好ましくは１９モル％以上、更に好ましくは２０モル％以上、特に好ましくは

２１モル％以上、好ましくは３１モル％以下、より好ましくは３０モル％以下、更に好ましくは２９モル％以下、特に好ましくは２８モル％以下である。上記水酸基の含有率（ａ）が上記下限以上であると、上記第２の層の接着力がより一層高くなる。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。

【００６６】

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％を超え、好ましくは９モル％以上、より好ましくは９．５モル％以上、更に好ましくは１０モル％以上、特に好ましくは１０．５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、更に好ましくは２６モル％以下、特に好ましくは２４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。

【００６７】

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５３モル％以上、更に好ましくは５５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７８モル％以下、更に好ましくは７６モル％以下、特に好ましくは７４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。

【００６８】

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１８モル％以上、より好ましくは１９モル％以上、更に好ましくは２０モル％以上、特に好ましくは２１モル％以上、好ましくは３１モル％以下、より好ましくは３０モル％以下、更に好ましくは２９モル％以下、特に好ましくは２８モル％以下である。上記水酸基の含有率（ｂ）が上記下限以上であると、上記第２の層の接着力がより一層高くなる。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。

【００６９】

上記ポリビニルアセタール樹脂（Ａ）及び上記ポリビニルアセタール樹脂（Ｂ）はそれぞれ、ポリビニルブチラール樹脂であることが好ましい。

【００７０】

（可塑剤）

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。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。ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤との併用により、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、異なっていてもよい。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。

【００７１】

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。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。

【００７２】

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。

【００７３】

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。

【００７４】

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－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レート、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。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。

【００７５】

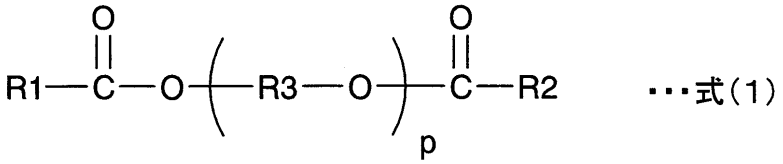
上記有機リン酸可塑剤としては、トリブトキシエチルホスフェート、イソデシルフェニルホスフェート及びトリイソプロピルホスフェート等が挙げられる。

【００７６】

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。

【００７７】

【化１】



【００７８】

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。

【００７９】

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であることが好ましく、トリエチレングリコールジ－２－エチルヘキサノエート又はトリエチレングリコールジ－２－エチルブチレートである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であることが更に好ましい。

【００８０】

表面層におけるポリビニルアセタール樹脂１００重量部に対する可塑剤の含有量（以下、含有量（０）と記載することがある）、上記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（以下、含有量（１）と記載することがある）、並びに上記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（以下、含有量（３）と記載することがある）はそれぞれ、好ましくは２０重量部以上、より好ましくは２５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（０）、上記含有量（１）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。特に、上記含有量（０）、上記含有量（１）及び上記含有量（３）が２０重量部以上であると、曲げ剛性が効果的に高くなる。上記含有量（０）、上記含有量（１）及び上記含有量（３）が上記上限以下であると、中間膜の機械的強度がより一層高くなり、合わせガラスの耐貫通性がより一層高くなる。特に、上記含有量（０）、上記含有量（１）及び上記含有量（３）が３５重量部以下であると、合わせガラスの耐貫通性が効果的に高くなる。

【００８１】

上記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（以下、含有量（２）と記載することがある）は、好ましくは３７重量部以上、より好ましくは３８重量部以上、好ましくは５０重量部以下、より好ましくは４５重量部以下、更に好ましくは４２重量部以下、特に好ましくは４１重量部以下である。上記含有量（２）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）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。

【００８２】

合わせガラスの耐貫通性を高めるために、上記含有量（１）は上記含有量（２）よりも少ないことが好ましく、上記含有量（３）は上記含有量（２）よりも少ないことが好ましい。

【００８３】

合わせガラスの耐貫通性をより一層高める観点からは、上記含有量（１）と上記含有量（２）との差の絶対値、並びに上記含有量（３）と上記含有量（２）との差の絶対値はそれぞれ、好ましくは２重量部以上、より好ましくは５重量部以上、更に好ましくは８重量部以上である。上記含有量（１）と上記含有量（２）との差の絶対値、並びに上記含有量（３）と上記含有量（２）との差の絶対値はそれぞれ、好ましくは２２重量部以下、より好ましくは２０重量部以下、更に好ましくは１５重量部以下である。

【００８４】

（遮熱性化合物）

上記中間膜は、遮熱性化合物を含むことが好ましい。上記第１の層は、遮熱性化合物を含むことが好ましい。上記第２の層は、遮熱性化合物を含むことが好ましい。上記第３の層は、遮熱性化合物を含むことが好ましい。上記遮熱性化合物は、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。

【００８５】

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は遮熱性化合物である。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。

【００８６】

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。

【００８７】

上記成分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。

【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、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。

【００８９】

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。

【００９０】

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、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、遮熱性が充分に高くなり、かつ可視光線透過率が充分に高くなる。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。

【００９１】

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化合物である。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。

【００９２】

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。

【００９３】

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。

【００９４】

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）、錫ドープ酸化亜鉛粒子、珪素ドープ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。なかでも、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、錫ドープ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。

【００９５】

上記酸化タングステン粒子は、下記式（Ｘ１）又は下記式（Ｘ２）で一般に表される。上記中間膜では、下記式（Ｘ１）又は下記式（Ｘ２）で表される酸化タングステン粒子が好適に用いられる。

【００９６】

W_yO_z　　・・・式（Ｘ１）

上記式（Ｘ１）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。

【００９７】

$M_xW_yO_z$　　・・・式（Ｘ２）

上記式（Ｘ２）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≦ｘ／ｙ≦１、及び２．０＜ｚ／ｙ≦３．０を満たす。

【００９８】

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、金属ドープ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、金属ドープ酸化タングステン粒子が含まれる。上記金属ドープ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及びルビジウムドープ酸化タングステン粒子等が挙げられる。

【００９９】

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、セシウムドープ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、該セシウムドープ酸化タングステン粒子は、式：$Cs_{0.33}WO_3$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。

【０１００】

上記遮熱粒子の平均粒子径は好ましくは０．０１μｍ以上、より好ましくは０．０２μｍ以上、好ましくは０．１μｍ以下、より好ましくは０．０５μｍ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、遮熱粒子の分散性が高くなる。

【０１０１】

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。

【０１０２】

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、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３．０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、遮熱性が充分に高くなり、かつ可視光線透過率が充分に高くなる。

【０１０３】
上記遮熱粒子を含む層（第１の層、第２の層又は第３の層）は、上記遮熱粒子を０．１ｇ／ｍ^{2}以上、１２ｇ／ｍ^{2}以下の割合で含有することが好ましい。上記遮熱粒子の割合が上記範囲内である場合には、遮熱性が充分に高くなり、かつ可視光線透過率が充分に高くなる。上記遮熱粒子の割合は、好ましくは０．５ｇ／ｍ^{2}以上、より好ましくは０．８ｇ／ｍ^{2}以上、更に好ましくは１．５ｇ／ｍ^{2}以上、特に好ましくは３ｇ／ｍ^{2}以上、好ましくは１１ｇ／ｍ^{2}以下、より好ましくは１０ｇ／ｍ^{2}以下、更に好ましくは９ｇ／ｍ^{2}以下、特に好ましくは７ｇ／ｍ^{2}以下である。上記割合が上記下限以上であると、遮熱性がより一層高くなる。上記割合が上記上限以下であると、可視光線透過率がより一層高くなる。

【０１０４】
（金属塩）
上記中間膜は、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、中間膜とガラス板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。

【０１０５】
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。

【０１０６】
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。

【０１０７】
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。

【０１０８】
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、中間膜とガラス板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。

【０１０９】
（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。

【０１１０】
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。

【０１１１】

上記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、マロン酸エステル系紫外線遮蔽剤、シュウ酸アニリド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。

【０１１２】

上記金属系紫外線吸収剤としては、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。

【０１１３】

上記紫外線遮蔽剤は、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吸収剤である。

【０１１４】

上記金属酸化物系紫外線吸収剤としては、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吸収剤として、表面が被覆されていてもよい。上記金属酸化物系紫外線吸収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ーン化合物等が挙げられる。

【０１１５】

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５．０ｅＶ以上のバンドギャップエネルギーを有する。

【０１１６】

上記ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤としては、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「ＴｉｎｕｖｉｎＰ」）、２－（２’－ヒドロキシ－３’、５’－ジ－ｔ－ブチルフェニル）ベンゾトリアゾール（ＢＡＳＦ社製「Ｔｉｎｕｖｉｎ３２０」）、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」）、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「Ｔｉｎｕｖｉｎ３２８」）等のベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤が挙げられる。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系紫外線吸収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系紫外線吸収剤であることがより好ましい。

【０１１７】

上記ベンゾフェノン系紫外線吸収剤としては、例えば、オクタベンゾン（ＢＡＳＦ社製「Ｃｈｉｍａｓｓｏｒｂ８１」）等が挙げられる。

【０１１８】

上記トリアジン系紫外線吸収剤としては、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「Ｔｉｎｕｖｉｎ１５７７ＦＦ」）等が挙げられる。

【０１１９】

上記マロン酸エステル系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。

【０１２０】

上記マロン酸エステル系紫外線遮蔽剤の市販品としては、Ｈｏｓｔａｖｉｎ　Ｂ－ＣＡＰ、Ｈｏｓｔａｖｉｎ　ＰＲ－２５、Ｈｏｓｔａｖｉｎ　ＰＲ－３１（いずれもクラリアント社製）が挙げられる。

【０１２１】

上記シュウ酸アニリド系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－ｔ－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「ＳａｎｄｕｖｏｒＶＳＵ」）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。

【０１２２】

上記ベンゾエート系紫外線吸収剤としては、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「Ｔｉｎｕｖｉｎ１２０」）等が挙げられる。

【０１２３】

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観点からは、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、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。

【０１２４】

（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。

【０１２５】

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。

【０１２６】

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。

【０１２７】

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－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－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。

【０１２８】

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。

【０１２９】

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。

【０１３０】

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。

【０１３１】

（他の成分）

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、難燃剤、帯電防止剤、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。

【０１３２】

（合わせガラス用中間膜の他の詳細）

合わせガラスの曲げ剛性をより一層高める観点からは、上記第１の層及び上記第３の層のガラス転移温度はそれぞれ、好ましくは３１℃以上、より好ましくは３３℃以上、より一層好ましくは３５℃以上である。上記第１の層及び上記第３の層のガラス転移温度の上限は特に限定されない。中間膜の遮音性をより一層高める観点から、上記第１の層及び上記第３の層のガラス転移温度は６０℃以下であってもよい。

【０１３３】

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。

【０１３４】

中間膜の厚みをＴとする。多層の中間膜の場合に、上記第２の層の厚みは、好ましくは０．０６２５Ｔ以上、より好ましくは０．１Ｔ以上、好ましくは０．３７５Ｔ以下、より好ましくは０．２５Ｔ以下である。

【０１３５】

上記第１の層及び上記第３の層の各厚みは、好ましくは０．３１２５Ｔ以上、より好ましくは０．３７５Ｔ以上、好ましくは０．９３７５Ｔ以下、より好ましくは０．９Ｔ以下である。上記第１の層及び上記第３の層の各厚みは、０．４６８７５Ｔ以下であってもよく、０．４５Ｔ以下であってもよい。また、上記第１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、合わせガラスの曲げ剛性がより一層高くなり、可塑剤のブリードアウトを抑制できる。

【０１３６】

上記第１の層及び上記第３の層の合計の厚みは、好ましくは０．６２５Ｔ以上、より好ましくは０．７５Ｔ以上、好ましくは０．９３７５Ｔ以下、より好ましくは０．９Ｔ以下である。また、上記第１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、合わせガラスの曲げ剛性がより一層高くなり、可塑剤のブリードアウトを抑制できる。

【０１３７】

本発明に係る中間膜の製造方法として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資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、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、例えば、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。

【０１３８】

中間膜の製造効率が優れることから、上記第１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く、上記第１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く、上記第１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。

【０１３９】

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、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。中でも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。

【０１４０】

（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。

【０１４１】

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

【０１４２】

中間膜１１の第１の表面１１ａに、第１のガラス板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のガラス板２２が積層されている。第１の層１の外側の表面１ａに第１のガラス板２１が積層されている。第３の層３の外側の表面３ａに第２のガラス板２２が積層されている。

【０１４３】

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。

【０１４４】

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

【０１４５】

中間膜１１Ａの第１の表面１１ａに、第１のガラス板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のガラス板２２が積層されている。

【０１４６】

このように、本発明に係る合わせガラスは、第１のガラス板と、第２のガラス板と、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のガラス板と上記第２のガラス板との間に、上記中間膜

が配置されている。

【０１４７】

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、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。

【０１４８】

上記ガラス板の厚みは、好ましくは０．５ｍｍ以上、より好ましくは０．７ｍｍ以上、好ましくは５ｍｍ以下、より好ましくは３ｍｍ以下である。

【０１４９】

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。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観点からは、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１．５ｍｍ以下、更に好ましくは１ｍｍ以下、更に一層好ましくは０．８ｍｍ以下、特に好ましくは０．７ｍｍ以下である。

【０１５０】

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、上記第１のガラス板と上記第２のガラス板との間に、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、上記第１のガラス板と上記第２のガラス板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℃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。

【０１５１】

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。

【０１５２】

以下に実施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。

【０１５３】

以下の材料を用意した。

【０１５４】

（ポリビニルアセタール樹脂）

ポリビニルアセタール樹脂Ａ（炭素数２のアセトアルデヒドを使用、ポリビニルアルコール（ＰＶＡ）の平均重合度２０００、水酸基の含有率２４．５モル％、アセチル化度１．５モル％、アセタール化度７４．０モル％）

ポリビニルアセタール樹脂Ｘ（炭素数４のｎ－ブチルアルデヒドを使用、ポリビニルアルコール（ＰＶＡ）の平均重合度３０００、水酸基の含有率３４．５モル％、アセチル化度０．７モル％、アセタール化度６４．８モル％）

【０１５５】

ポリビニルアセタール（ＰＶＡ）樹脂に関しては、アセタール化度（ブチラール化度）

、アセチル化度及び水酸基の含有率はＪＩＳ　Ｋ６７２８「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、ＡＳＴＭ　Ｄ１３９６－９２により測定した場合も、ＪＩＳ　Ｋ６７２８「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。

【０１５６】

（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）

【０１５７】

（紫外線遮蔽剤）

Ｔｉｎｕｖｉｎ３２６（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」）

【０１５８】

（酸化防止剤）

ＢＨＴ（２，６－ジ－ｔ－ブチル－ｐ－クレゾール）

【０１５９】

（実施例１）

第１の層を形成するための組成物の作製：

ポリビニルアセタール樹脂Ａ１００重量部と、可塑剤（３ＧＯ）３５重量部と、紫外線遮蔽剤（Ｔｉｎｕｖｉｎ３２６）０．２重量部と、酸化防止剤（ＢＨＴ）０．２重量部とを混合し、第１の層を形成するための組成物を得た。

【０１６０】

中間膜の作製：

第１の層を形成するための組成物を、押出機を用いて押出しすることにより、第１の層（厚み７６０μｍ）のみの単層の中間膜（厚み７６０μｍ）を作製した。

【０１６１】

合わせガラスＡの作製：

洗浄及び乾燥した２つのガラス板（クリアフロートガラス、縦２５ｃｍ×横１０ｃｍ×厚み２．５ｍｍ）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／ｃｍ^2）の条件で２０分間圧着を行い、合わせガラスＡを得た。

【０１６２】

合わせガラスＢの作製：

洗浄及び乾燥した１つのガラス板（クリアフロートガラス、縦２５ｃｍ×横１０ｃｍ×厚み２．５ｍｍ）を用意した。洗浄及び乾燥した１つのガラス板（ゴリラガラス、縦２５ｃｍ×横１０ｃｍ×厚み０．７ｍｍ）を用意した。この２つのガラス板を用いたこと以外は合わせガラスＡと同様にして、合わせガラスＢを得た。

【０１６３】

合わせガラスＣの作製：

洗浄及び乾燥した２つのガラス板（ゴリラガラス、縦２５ｃｍ×横１０ｃｍ×厚み０．７ｍｍ）を用意した。この２つのガラス板を用いたこと以外は合わせガラスＡと同様にして、合わせガラスＣを得た。

【０１６４】

（実施例２～３及び比較例１）

第１の層を形成するための組成物に用いるポリビニルアセタール樹脂及び可塑剤の種類と、ポリビニルアセタール樹脂１００重量部に対する可塑剤の配合量とを下記の表１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、合わせガラスＡ、合わせガラスＢ及び合わせガラスＣを得た。

【０１６５】
（評価）
（１）ガラス転移温度
実施例及び比較例における第１の層の組成を有する混練物を用意した。得られた混練物をプレス成型機でプレス成型して、厚みが０．３５ｍｍである樹脂膜Ａを得た。得られた樹脂膜Ａを２５℃及び相対湿度３０％の条件で２時間放置した。２時間放置した後に、ＴＡＩＮＳＴＲＵＭＥＮＴＳ社製「ＡＲＥＳ－Ｇ２」を用いて、粘弾性を測定した。治具として、直径８ｍｍのパラレルプレートを用いた。３℃／分の降温速度で１００℃から－１０℃まで温度を低下させる条件、及び周波数１Ｈｚ及び歪１％の条件で測定を行った。得られた測定結果において、損失正接のピーク温度をガラス転移温度Ｔｇ（℃）とした。
【０１６６】
（２）曲げ剛性
得られた合わせガラスＡ、合わせガラスＢ及び合わせガラスＣを用意した。合わせガラスＡ、合わせガラスＢ及び合わせガラスＣでは、以下のガラス板を用いている。
【０１６７】
合わせガラスＡ：２つのガラス板（クリアフロートガラス、縦２５ｃｍ×横１０ｃｍ×厚み２．５ｍｍ）
合わせガラスＢ：１つのガラス板（クリアフロートガラス、縦２５ｃｍ×横１０ｃｍ×厚み２．５ｍｍ）と１つのガラス板（ゴリラガラス、縦２５ｃｍ×横１０ｃｍ×厚み０．７ｍｍ）
合わせガラスＣ：２つのガラス板（ゴリラガラス、縦２５ｃｍ×横１０ｃｍ×厚み０．７ｍｍ）
【０１６８】
図５に模式的に示す試験方法で、曲げ弾性を評価した。測定装置としては、静的３点曲げ試験治具２８１０を備えたインストロンジャパンカンパニイリミテッド社製の万能材料試験機５９６６を使用した。測定条件としては、測定温度２０±３℃、距離Ｄ１は１８ｃｍ、距離Ｄ２は２５ｃｍ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。曲げ剛性を下記の基準で判定した。
【０１６９】
［曲げ剛性の判定基準］
１：合わせガラスＣでの測定値が０．００２ｍｍ／Ｎ未満
２：合わせガラスＣでの測定値が０．００２ｍｍ／Ｎ以上、０．００５ｍｍ／Ｎ未満
３：１，２の判定基準に相当せず、合わせガラスＢでの測定値が０．００５ｍｍ／Ｎ未満
４：１～３の判定基準に相当せず、合わせガラスＣでの測定値が０．１１ｍｍ／Ｎ未満
５：１～３の判定基準に相当せず、合わせガラスＣでの測定値が０．１１ｍｍ／Ｎ以上
【０１７０】
詳細及び結果を下記の表１に示す。なお、下記の表１では、ポリビニルアセタール樹脂及び可塑剤以外の配合成分の記載は省略した。
【０１７１】

【表１】

					実施例1	実施例2	実施例3	比較例1
中間膜（第1の層）	厚み			μm	760	760	760	760
	ポリビニルアセタール樹脂	種類			A	A	A	X
		PVAの平均重合度		–	2000	2000	2000	3000
		水酸基の含有率		モル%	24.5	24.5	24.5	34.5
		アセチル化度		モル%	1.5	1.5	1.5	0.7
		アセタール化度		モル%	74.0	74.0	74.0	64.8
		アルデヒドの炭素数		–	2	2	2	4
		含有量		重量部	100	100	100	100
	可塑剤	種類			3GO	3GO	3GO	3GO
		含有量		重量部	35	30	25	30
評価	第1の層のガラス転移温度			℃	56.4	64.9	67.6	38.6
	曲げ剛性	合わせガラスA		mm/N	0.0005	0.0004	0.0003	0.0041
		合わせガラスB		mm/N	0.0010	0.0008	0.0005	0.0066
		合わせガラスC		mm/N	0.0015	0.0012	0.0008	0.0619
	評価				1	1	1	4

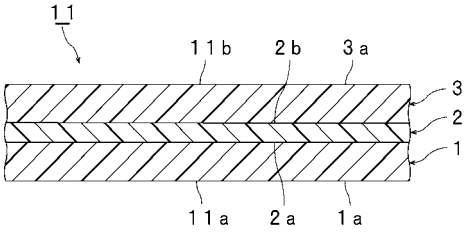
【符号の説明】

【０１７２】

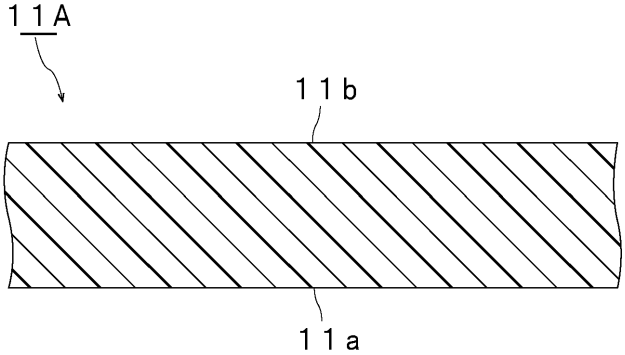
１…第１の層
１ａ…外側の表面
２…第２の層
２ａ…第１の表面
２ｂ…第２の表面
３…第３の層
３ａ…外側の表面
１１…中間膜
１１Ａ…中間膜（第１の層）

１１ａ…第１の表面
１１ｂ…第２の表面
２１…第１のガラス板
２２…第２のガラス板
３１…合わせガラス
３１Ａ…合わせガラス

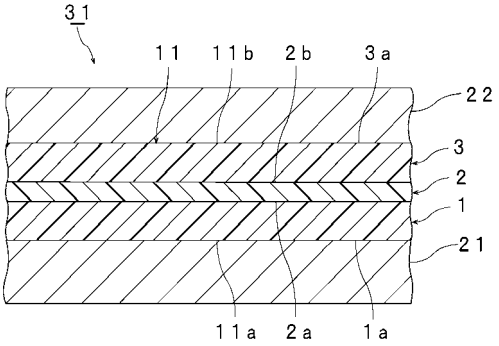
【図１】



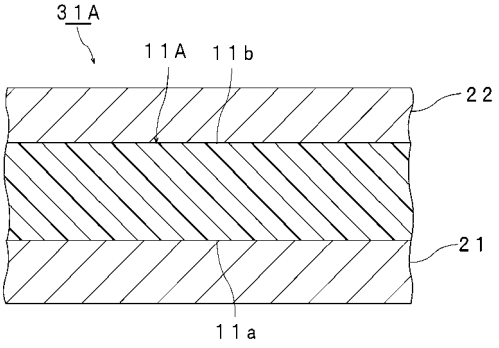
【図２】



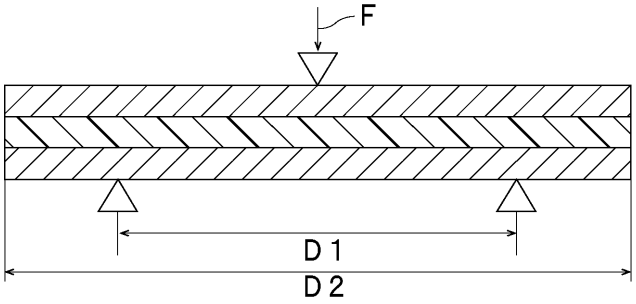
【図３】



【図４】



【図５】



フロントページの続き

Ｆターム(参考) 4F100 AG00D AG00E AK23A AK23B AK23C AK23K BA02 BA03 BA05 BA06
BA10D BA10E CA04A CA04B CA04C GB07 GB31 JK04 YY00A YY00C
YY00D YY00E
4G061 AA02 AA03 AA04 AA11 AA20 AA27 AA28 BA01 BA02 CA02
CB03 CB18 CD02 CD03 CD18 DA10 DA23 DA32 DA46