

(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2016-108228

(P2016-108228A)

(43) 公開日 平成28年6月20日(2016.6.20)

(51) Int.Cl.	F 1	テーマコード (参考)		
C03C 27/12 (2006.01)	C 03 C	27/12	K	4 F 1 O O
B32B 7/02 (2006.01)	C 03 C	27/12	E	4 G O 6 1
B32B 27/06 (2006.01)	C 03 C	27/12	C	
B32B 25/00 (2006.01)	B 32 B	7/02	1 O 3	
B32B 27/32 (2006.01)	B 32 B	27/06		

審査請求 未請求 請求項の数 11 O L (全 39 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2015-220821 (P2015-220821)	(71) 出願人	000001085 株式会社クラレ 岡山県倉敷市酒津1621番地
(22) 出願日	平成27年11月10日 (2015.11.10)	(74) 代理人	110001782 特許業務法人ライトハウス国際特許事務所
(31) 優先権主張番号	特願2014-228354 (P2014-228354)	(72) 発明者	小林 卓哉 岡山県倉敷市玉島乙島7471番地 株式会社クラレ内
(32) 優先日	平成26年11月10日 (2014.11.10)	(72) 発明者	油井 太我 岡山県倉敷市玉島乙島7471番地 株式会社クラレ内
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)	(72) 発明者	磯上 宏一郎 岡山県倉敷市玉島乙島7471番地 株式会社クラレ内
(31) 優先権主張番号	特願2014-246710 (P2014-246710)		
(32) 優先日	平成26年12月5日 (2014.12.5)		
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		

最終頁に続く

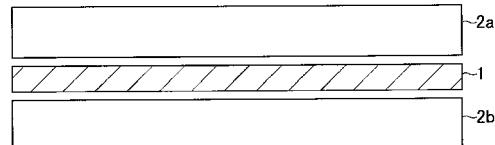
(54) 【発明の名称】 合わせガラス用中間膜および合わせガラス

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】遮音性に優れ、高温多湿の環境下で長期間使用しても、ヘイズを良好に保つことができ、端辺からの白化を抑制できる合わせガラス用中間膜を提供する。

【解決手段】遮音層（A層）1と、熱可塑性樹脂を含有する熱可塑性樹脂層（B層）2a, 2bとを有し、少なくとも2つの熱可塑性樹脂層（B層）2a, 2bの間に遮音層（A層）1が位置する合わせガラス用中間膜であって、フロートガラス2枚で前記合わせガラス用中間膜を挟んで得られる合わせガラスと、該合わせガラスを、80%、相対湿度95%で1000時間の条件下で保持して得られる合わせガラスにおいて、JIS K 7105に準じて合わせガラスの中央部のヘイズを測定した場合に、保持前の合わせガラスのヘイズに対する保持後の合わせガラスのヘイズの上昇分が2%以下であり、かつ、保持後の合わせガラスの端辺からの白化距離が4mm以下である、合わせガラス用中間膜。

【選択図】図1



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

遮音層（A層）と、熱可塑性樹脂を含有する熱可塑性樹脂層（B層）とを有し、少なくとも2つの熱可塑性樹脂層（B層）の間に遮音層（A層）が位置する合わせガラス用中間膜であって、

フロートガラス2枚で前記合わせガラス用中間膜を挟んで得られる合わせガラスと、該合わせガラスを、80、相対湿度95%で1000時間の条件下で保持して得られる合わせガラスにおいて、JIS K 7105に準じて合わせガラスの中央部のヘイズを測定した場合に、保持前の合わせガラスのヘイズに対する保持後の合わせガラスのヘイズの上昇分が2%以下であり、かつ、保持後の合わせガラスの端辺からの白化距離が4mm以下である、合わせガラス用中間膜。

【請求項 2】

フロートガラス2枚で前記合わせガラス用中間膜を挟んで得られる合わせガラスと、該合わせガラスを、80、相対湿度95%で1000時間の条件下で保持して得られる合わせガラスにおいて、中央加振法により20で3次共振周波数における損失係数を測定した場合に、保持前の合わせガラスの損失係数が0.2以上であり、かつ、保持前の合わせガラスの損失係数に対する保持後の合わせガラスの損失係数の減少分が0.05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】

遮音層（A層）が熱可塑性エラストマーを含有する層である、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】

熱可塑性エラストマーがブロック共重合体である、請求項3に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 5】

ブロック共重合体が芳香族ビニル重合体ブロックおよび脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロックを有する、請求項4に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 6】

熱可塑性樹脂がポリビニルアセタール樹脂またはアイオノマー樹脂である、請求項1～5のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 7】

可塑剤の含有量が、ポリビニルアセタール樹脂100質量部に対して50質量部以下である、請求項6に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 8】

フロートガラス2枚で合わせガラス用中間膜を挟んで合わせガラスを作製したときに、波長1500nmの近赤外光の透過率が50%以下である、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】

A層またはB層の少なくとも一方が遮熱材料を含む、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】

遮熱材料として、錫ドープ酸化インジウム、アンチモンドープ酸化錫、アルミニウムドープ酸化亜鉛、アンチモン酸亜鉛、六ホウ化ランタン、金属ドープ酸化タンゲステン、フタロシアニン化合物、およびナフタロシアニン化合物からなる群より選ばれる一種以上を含む、請求項1～9のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 11】

請求項1～10のいずれかに記載の合わせガラス用中間膜が少なくとも2枚のガラスの間に配置されてなる合わせガラス。

【発明の詳細な説明】**【技術分野】**

10

20

30

40

50

【0001】

本発明は、遮音性に優れ、高温多湿の環境下で長期間使用してもヘイズを良好に保つことができ、端辺からの白化を抑制することができる合わせガラス用中間膜および合わせガラスに関する。

【背景技術】**【0002】**

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樹脂は、さまざまな有機・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、安全ガラス中間膜として広範に利用されている。

10

【0003】

このうち、ポリビニルアセタール樹脂および可塑剤を含むフィルムはガラスとの接着性や透明性、また、力学強度および柔軟性に優れることから合わせガラス用中間膜として広範に利用されている（以下、合わせガラス用中間膜を単に「中間膜」とすることがある）。

【0004】

ところで、窓ガラスなどに使用されているガラス板は耐久性および採光性に優れているが、ダンピング性能（屈曲振動に対する $\tan \delta$ ）が非常に小さいことで知られている。このためガラスの振動と入射音波とで起こる共振状態、つまりコインシデンス効果による遮音性の低下は顕著である。

20

【0005】

従来、窓など遮音が求められる場所でガラスを施工する場合には、ガラスの厚さを厚くすることで重量により遮音効果を高めるか、2枚以上のガラス板と中間膜とを積層してなる合わせガラスを用いて遮音効果を高めるという方法が行われてきた。後者の中間膜を用いる方法では、中間膜のダンピング性能と、振動エネルギーを熱エネルギーに変換する中間膜の性能とによって、合わせガラスの遮音性を向上させている。

【0006】

遮音性を改善させる方法としては、例えば、ポリスチレンとゴム系樹脂の共重合体を可塑化されたポリビニルアセタール系樹脂で積層した中間膜が提案されている（例えば、特許文献1参照）。

30

【0007】

また、ポリビニルブチラールからなり、一定の耐衝撃性および遮音性を有する合わせガラス用中間膜および合わせガラスが提案されている（例えば、特許文献2参照）。

【0008】

一方、遮音性を改善した中間膜としては、アイオノマー／EVA／アイオノマーという3層構成からなる中間膜（例えば、特許文献3参照）や、アイオノマー／エチレン酸コポリマー／アイオノマーという3層構成からなる中間膜（例えば、特許文献4参照）なども提案されている。

【先行技術文献】**【特許文献】**

40

【0009】

【特許文献1】特開2007-91491号公報

【特許文献2】国際公開2005/018969号公報

【特許文献3】国際公開2015/013242号公報

【特許文献4】国際公開2015/085165号公報

【発明の概要】**【発明が解決しようとする課題】****【0010】**

しかし、上記従来の中間膜においては、合わせガラスの使用環境が高温多湿であると、剥き出し部分の中間膜に変色が生じたり、合わせガラスを高温多湿の環境下で長期間使用

50

していると、合わせガラスの遮音性が低下したりすることがあった。あるいは、周縁部の白化は改善されるものの、遮音性が十分でないという課題があった。

【0011】

以上のように、従来の中間膜では、高い遮音性を発揮するとともに、高温多湿の環境下で、ヘイズを良好に保つ性質と、端辺からの白化を抑える性質とを両立させることが困難であった。

【0012】

本発明は、上記課題を解決するものであり、合わせガラス用中間膜として用いた場合に、遮音性に優れ、高温多湿の環境下で長期間使用しても、ヘイズを良好に保つことができ、端辺からの白化を抑制することができる合わせガラス用中間膜を提供することを目的とする。10

【課題を解決するための手段】

【0013】

本発明の目的は、

[1] 遮音層（A層）と、熱可塑性樹脂を含有する熱可塑性樹脂層（B層）とを有し、少なくとも2つの熱可塑性樹脂層（B層）の間に遮音層（A層）が位置する合わせガラス用中間膜であって、フロートガラス2枚で前記合わせガラス用中間膜を挟んで得られる合わせガラスと、該合わせガラスを、80°C、相対湿度95%で1000時間の条件下で保持して得られる合わせガラスにおいて、JIS K 7105に準じて合わせガラスの中央部のヘイズを測定した場合に、保持前の合わせガラスのヘイズに対する保持後の合わせガラスのヘイズの上昇分が2%以下であり、かつ、保持後の合わせガラスの端辺からの白化距離が4mm以下である、合わせガラス用中間膜；20

[2] フロートガラス2枚で前記合わせガラス用中間膜を挟んで得られる合わせガラスと、該合わせガラスを、80°C、相対湿度95%で1000時間の条件下で保持して得られる合わせガラスにおいて、中央加振法により20Hzで3次共振周波数における損失係数を測定した場合に、保持前の合わせガラスの損失係数が0.2以上であり、かつ、保持前の合わせガラスの損失係数に対する保持後の合わせガラスの損失係数の減少分が0.05以下である、[1]の合わせガラス用中間膜；

[3] 遮音層（A層）が熱可塑性エラストマーを含有する層である、[1]または[2]の合わせガラス用中間膜；30

[4] 热可塑性エラストマーがブロック共重合体である、[3]の合わせガラス用中間膜；

[5] ブロック共重合体が芳香族ビニル重合体ブロックおよび脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロックを有する、[4]の合わせガラス用中間膜；

[6] 热可塑性樹脂がポリビニルアセタール樹脂またはアイオノマー樹脂である、[1]～[5]のいずれかの合わせガラス用中間膜；

[7] 可塑剤の含有量が、ポリビニルアセタール樹脂100質量部に対して50質量部以下である、[6]の合わせガラス用中間膜；

[8] フロートガラス2枚で合わせガラス用中間膜を挟んで合わせガラスを作製したときに、波長1500nmの近赤外光の透過率が50%以下である、[1]～[7]のいずれかの合わせガラス用中間膜；40

[9] A層またはB層の少なくとも一方が遮熱材料を含む、[1]～[8]のいずれかの合わせガラス用中間膜；

[10] 遮熱材料として、錫ドープ酸化インジウム、アンチモンドープ酸化錫、アルミニウムドープ酸化亜鉛、アンチモン酸亜鉛、六ホウ化ランタン、金属ドープ酸化タンゲスタン、フタロシアニン化合物、およびナフタロシアニン化合物からなる群より選ばれる一種以上を含む、[1]～[9]のいずれかの合わせガラス用中間膜；

[11] [1]～[10]のいずれかの合わせガラス用中間膜が少なくとも2枚のガラスの間に配置されてなる合わせガラス；

を提供することにより達成される。

10

20

30

40

50

【発明の効果】**【0014】**

本発明によれば、遮音性に優れ、高温多湿の環境下で長期間使用しても、ヘイズを良好に保つことができ、端辺からの白化を抑制することができる合わせガラス用中間膜および合わせガラスを提供することができる。

【図面の簡単な説明】**【0015】**

【図1】本発明の合わせガラス用中間膜の構成の断面図の一例である。

【図2】耐熱クリープ性の評価に用いる合わせガラスの模式図の一例である。

【図3】耐熱クリープ性の評価に用いる合わせガラスに、鉄板を張り合わせた場合の模式図の一例である。10

【図4】耐熱クリープ性の評価のために、鉄板を張り合わせた合わせガラスをスタンドに立て掛けた場合の模式図の一例である。

【発明を実施するための形態】**【0016】**

以下、本発明の実施形態について説明するが、本発明は本実施形態に限定されるものではない。

【0017】**[A層]**

本発明の合わせガラス用中間膜は、少なくともA層と、複数のB層から構成されるものであり、遮音層（A層）と、熱可塑性樹脂を含有する熱可塑性樹脂層（B層）とを有し、少なくとも2つの熱可塑性樹脂層（B層）の間に遮音層（A層）が位置する合わせガラス用中間膜である。20

【0018】

粘弾性体に正弦波形のひずみを印加したときの応力の応答は、複素弾性率として定義される。このとき、印加するひずみの正弦波と応答として得られる応力の正弦波の間には、位相のずれが生じ、この位相差は $\tan\delta$ で表される。また、複素弾性率は、複素数を用いた等式で表され、複素弾性率の実部は貯蔵弾性率、虚部は損失弾性率と呼ばれる。特に、せん断モードで粘弾性体の動的粘弾性特性を測定する場合は、それを、複素せん断弾性率、せん断貯蔵弾性率、せん断損失弾性率と呼ぶ。損失弾性率を貯蔵弾性率で除したものは、損失正接と呼ばれ、 $\tan\delta$ で表される。30

【0019】

遮音性を向上させる観点からは、本発明で使用されるA層は、JIS K 7244-10に準じて周波数1Hzの条件で複素せん断粘度試験を行うことで測定される $\tan\delta$ が最大となるピーク（ピークトップにおける温度）を-40以上で有することが好ましく、-30以上で有することがより好ましく、-20以上で有することがさらに好ましい。また、 $\tan\delta$ が最大となるピークを30以下で有することが好ましく、10以下で有することがより好ましく、0以下で有することがさらに好ましい。上記条件下で $\tan\delta$ が最大となるピークが30以下であると、合わせガラスとして使用される温度領域において遮音性が発揮される傾向にある。 $\tan\delta$ が最大となるピークが-40以上であると、高周波数域での遮音性が向上する傾向にある。上記 $\tan\delta$ は、具体的には後述する実施例に記載の方法により測定される。40

【0020】

また、A層は、JIS K 7244-10に準じて周波数1Hzの条件で複素せん断粘度試験を行うことで測定される少なくとも一つの $\tan\delta$ のピークの高さが0.5以上であることが好ましく、0.75以上がより好ましく、0.8以上であることがさらに好ましい。また、さらに遮音性を向上させる観点からは、前記 $\tan\delta$ が最大となるピークの高さが1.0以上であることが好ましく、1.3以上であることがより好ましく、1.5以上であることがさらに好ましい。上記条件下の $\tan\delta$ のピークの高さが0.5未満であると、得られる合わせガラス用中間膜の遮音性が低くなる傾向にある。50

【0021】

遮音性を向上させる観点からは、A層を構成する遮音層は、熱可塑性エラストマーを含有する層であることが好ましい。

【0022】

本発明で使用されるA層に含有される熱可塑性エラストマーは、JIS K 7244-10に準じて周波数1Hzの条件で複素せん断粘度試験を行うことで測定されるtanが最大となるピークを-40以上で有することが好ましく、-30以上で有することがより好ましく、-20以上で有することがさらに好ましい。また、tanが最大となるピークを30以下で有することが好ましく、10以下で有することがより好ましく、0以下で有することがさらに好ましい。上記条件下でtanが最大となるピークが30より高くなると、合わせガラスとして使用される温度領域において遮音性が発揮されにくい傾向にある。tanが最大となるピークが-40より低くなると、せん断貯蔵弾性率が低下し、高周波数域での遮音性が低下する傾向にある。上記tanは、具体的には後述する実施例に記載の方法により測定される。tanが最大となるピーク温度を-40~30に調整する方法としては、例えば、後述する好適な熱可塑性エラストマー、特にブロック共重合体を用いる方法などが挙げられる。10

【0023】

遮音性をより一層向上させる観点から、熱可塑性エラストマーのガラス転移温度は10以下であることが好ましく、-5以下であることがより好ましい。熱可塑性エラストマーのガラス転移温度の下限は特に限定されないが、熱可塑性エラストマーのガラス転移温度は、-50以上であることが好ましく、-40以上であることが好ましい。ガラス転移温度の測定方法には、示差走査熱量測定(DSC)を用いてもよい。20

【0024】

熱可塑性エラストマーは、JIS K 7244-10に準じて周波数1Hzの条件で複素せん断粘度試験を行うことで測定される少なくとも一つのtanのピークの高さが0.5以上であることが好ましく、0.75以上がより好ましく、0.8以上であることがさらに好ましい。また、さらに遮音性を向上させる観点からは、前記tanが最大となるピークの高さが1.0以上であることが好ましく、1.3以上であることがより好ましく、1.5以上であることがさらに好ましい。上記条件下のtanのピークの高さが0.5未満であると、得られる合わせガラス用中間膜の遮音性が低くなる傾向にある。tanのピークの高さを0.5以上に調整する方法としては、例えば、後述する好適な熱可塑性エラストマー、特にブロック共重合体を用いる方法などが挙げられる。30

【0025】

(熱可塑性エラストマー)

本明細書において、熱可塑性エラストマーとは、加熱すると軟化して可塑性を示し、冷却すると固化してゴム弹性を示す高分子化合物を意味しており、熱可塑性樹脂とは区別される。また、熱可塑性エラストマーとは、ハードセグメントとソフトセグメントを有する高分子化合物である。内層となるA層が熱可塑性エラストマーを含有することにより、遮音性が向上する。さらに、熱可塑性エラストマーのように極性の低い疎水性の高分子化合物を合わせガラス用中間膜の内層として用いると、合わせガラスの端辺から、合わせガラス用中間膜の内部に湿気等の水分が浸入しにくくなる。そのため、湿熱環境下においても、合わせガラスの端辺が白化しにくくなる。40

【0026】

熱可塑性エラストマーの種類としては、例えば、成形性と遮音性を両立させる観点からは、ポリスチレン系エラストマー(ソフトセグメント；ポリブタジエン、ポリイソブレンなど)／ハードセグメント；ポリスチレン)、ポリオレフィン系エラストマー(ソフトセグメント；エチレンプロピレンゴム／ハードセグメント；ポリプロピレン)、ポリ塩化ビニル系エラストマー(ソフトセグメント；ポリ塩化ビニル／ハードセグメント；ポリ塩化ビニル)、ポリウレタン系エラストマー(ソフトセグメント；ポリエーテル、ポリエステル／ハードセグメント；ポリウレタン)、ポリエステル系エラストマー(ソフトセグメント

10

20

30

40

50

; ポリエーテル / ハードセグメント ; ポリエステル) 、ポリアミド系エラストマー (ソフトセグメント ; ポリプロピレングリコール、ポリテトラメチレンエーテルグリコールもしくはポリエステル系、ポリエーテル系 / ハードセグメント ; ポリアミド < ナイロン樹脂 >) 、ポリブタジエン系エラストマー (ソフトセグメント ; 非晶性ブチルゴム / ハードセグメント ; シンジオタクチック 1 、 2 - ポリブタジエン樹脂) 、アクリル系エラストマー (ソフトセグメント ; ポリアクリル酸エステル / ハードセグメント ; ポリメタクリル酸メチル) などの熱可塑性エラストマーが挙げられる。これらの熱可塑性エラストマーは単独で用いてもよいし、 2 種以上を併用してもよい。

【 0027 】

熱可塑性エラストマー中のハードセグメントの含有量は、熱可塑性エラストマーの全量に対して 5 質量 % 以上であることが好ましく、 7 質量 % 以上であることがより好ましく、 10 質量 % 以上であることがさらに好ましく、 14 質量 % 以上であることがとりわけ好ましく、 15 質量 % 以上であることが特に好ましく、 17 質量 % 以上であることが最も好ましい。ハードセグメントの含有量は、熱可塑性エラストマーの全量に対して、 40 質量 % 以下であることが好ましく、 30 質量 % 以下であることがより好ましく、 25 質量 % 以下であることがさらに好ましく、 20 質量 % 以下であることが特に好ましい。ハードセグメントの含有量が 5 質量 % 未満になると、 A 層の成形が困難になったり、 $\tan \delta$ のピークの高さが小さくなったりする傾向にある。また、合わせガラス用中間膜の曲げ剛性が小さくなり、高周波域での遮音性が低下する傾向にある。ハードセグメントの含有量が 40 質量 % を超えると、熱可塑性エラストマーとしての特性が発揮されにくくなる傾向もある。

10

20

30

【 0028 】

熱可塑性エラストマー中のソフトセグメントの含有量は、熱可塑性エラストマーの全量に対して 60 質量 % 以上であることが好ましく、 70 質量 % 以上であることがより好ましく、 75 質量 % 以上であることがより好ましく、 80 質量 % 以上であることがさらに好ましい。ソフトセグメントの含有量は、熱可塑性エラストマーの全量に対して、 95 質量 % 以下であることが好ましく、 93 質量 % 以下であることがより好ましく、 90 質量 % 以下であることがさらに好ましく、 86 質量 % 以下であることがとりわけ好ましく、 85 質量 % 以下であることが特に好ましく、 83 質量 % 以下であることが最も好ましい。ソフトセグメントの含有量が 60 質量 % 未満になると、熱可塑性エラストマーとしての特性が発揮されにくくなる傾向にある。ソフトセグメントの含有量が 95 質量 % を超えると、 A 層の成形が困難になったり、 $\tan \delta$ のピークの高さが小さくなったりする傾向にある。また、合わせガラス用中間膜の曲げ剛性が小さくなり、高周波域での遮音性が低下する傾向もある。

【 0029 】

熱可塑性エラストマーとしては、成形性と遮音性を両立させる観点から、ハードセグメントとソフトセグメントを有するブロック共重合体を使用することがより好ましい。さらに、より一層遮音性を向上させる観点からは、ポリスチレン系エラストマーを使用することが好ましい。

【 0030 】

また、熱可塑性エラストマーとしては、天然ゴム、イソブレンゴム、ブダジエンゴム、クロロブレンゴム、ニトリルゴム、ブチルゴム、エチレンプロピレンゴム、ウレタンゴム、シリコーンゴム、クロロスルホン化ポリエチレンゴム、アクリルゴム、フッ素ゴムなどのゴムを用いてもよい。

40

【 0031 】

熱可塑性エラストマーとしては、芳香族ビニル重合体ブロック (以下、重合体ブロック (a) ということがある) および脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロック (以下、重合体ブロック (b) ということがある) を有するブロック共重合体、例えば、ポリスチレン系エラストマーであることが、遮音性を発揮するゴムとしての機能とプラスチックとしての機能を両立させるという観点から好ましい。

【 0032 】

50

熱可塑性エラストマーとして、芳香族ビニル重合体ブロックと、ビニル重合体ブロックまたは共役ジエン重合体ブロックとの共重合体、例えば、芳香族ビニル重合体ブロックおよび脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロックを有するブロック共重合体を用いる場合、これらの重合体ブロックの結合形態は特に制限されず、直鎖状、分岐状、放射状、またはこれらの2つ以上が組み合わさった結合形態のいずれであってもよいが、直鎖状の結合形態であることが好ましい。

【0033】

直鎖状の結合形態の例としては、芳香族ビニル重合体ブロックをaで、脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロックをbで表したとき、a-bで表されるジブロック共重合体、a-b-aまたはb-bで表されるトリブロック共重合体、a-b-a-bで表されるテトラブロック共重合体、a-b-a-b-aまたはb-a-b-a-bで表されるペンタブロック共重合体、(- b)ⁿX型共重合体(Xはカップリング残基を表し、nは2以上の整数を表す)、およびこれらの混合物が挙げられる。これらの中でも、ジブロック共重合体またはトリブロック共重合体が好ましく、トリブロック共重合体としては、a-b-aで表されるトリブロック共重合体であることがより好ましい。

10

【0034】

ブロック共重合体における芳香族ビニル単量体単位および脂肪族不飽和炭化水素単量体単位の合計量は、全単量体単位に対して80質量%以上であることが好ましく、95質量%以上であることがより好ましく、98質量%以上であることがさらに好ましい。なお、前記ブロック共重合体中の脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロックは、一部またはすべてが水素添加されたものでもよい。

20

【0035】

ブロック共重合体における芳香族ビニル単量体単位の含有量は、ブロック共重合体の全単量体単位に対して5質量%以上であることが好ましく、7質量%以上であることがより好ましく、10質量%以上であることがさらに好ましく、14質量%以上であることがとりわけ好ましく、15質量%以上であることが特に好ましく、17質量%以上であることが最も好ましい。芳香族ビニル単量体単位の含有量は、ブロック共重合体の全単量体単位に対して、40質量%以下であることが好ましく、30質量%以下であることがより好ましく、20質量%以下であることがさらに好ましい。ブロック共重合体における芳香族ビニル単量体単位の含有量が5質量%未満になると、A層の成形が困難になったり、tan

30

のピークの高さが小さくなったりする傾向にある。また、合わせガラス用中間膜の曲げ剛性が小さくなり、高周波域での遮音性が低下する傾向もある。ブロック共重合体における芳香族ビニル単量体単位の含有量が40質量%を超えると、熱可塑性エラストマーとしての特性が発揮されにくくなる傾向にある。ブロック共重合体における芳香族ビニル単量体単位の含有量は、ブロック共重合体を合成する際の各単量体の仕込み比、ブロック共重合体の¹H-NMR等の測定結果から求めることができる。本明細書の実施例においては、単量体種の割合を¹H-NMRの測定結果から求め、各単量体の割合を質量%として記載した。ここで、前記ブロック共重合体が複数混合されている場合には、ブロック共重合体における脂肪族不飽和炭化水素単量体単位の含有量は、混合物の平均値として考慮される。

40

【0036】

芳香族ビニル重合体ブロックに含まれる芳香族ビニル単量体単位は、80質量%以上であることが好ましく、95質量%以上であることがより好ましく、98質量%以上であることがさらに好ましい。

【0037】

芳香族ビニル重合体ブロックを構成する芳香族ビニル単量体としては、スチレン；-メチルスチレン、2-メチルスチレン、3-メチルスチレン、4-メチルスチレン、4-プロピルスチレン、4-シクロヘキシリスチレン、4-ドデシルスチレンなどのアルキルスチレン；2-エチル-4-ベンジルスチレン、4-(フェニルブチル)スチレン、1-ビニルナフタレン、2-ビニルナフタレンなどのアリールスチレン；ハロゲン化スチレン

50

; アルコキシスチレン; ビニル安息香酸エステルなどが挙げられる。これらは単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。

【0038】

また、芳香族ビニル重合体ブロック中には、芳香族ビニル単量体以外の単量体が共重合されていてもよい。芳香族ビニル単量体以外の単量体の例としては、エチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、4-フェニル-1-ブテン、6-フェニル-1-ヘキセン、3-メチル-1-ブテン、4-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ヘキセン、4-メチル-1-ヘキセン、5-メチル-1-ヘキセン、3,3-ジメチル-1-ペンテン、3,4-ジメチル-1-ペンテン、4,4-ジメチル-1-ペンテン、ビニルシクロヘキサン、ヘキサフルオロプロパン、テトラフルオロエチレン、2-フルオロプロパン、フルオロエチレン、1,1-ジフルオロエチレン、3-フルオロプロパン、トリフルオロエチレン、3,4-ジクロロ-1-ブテン、ノルボルネン、アセチレン等の不飽和単量体、メチルアクリレート、メチルメタクリレート等の(メタ)アクリレート系単量体、ブタジエン、1,3-ペンタジエン、1,3-ヘキサジエン、イソブレン、シクロペンタジエン、1,3-シクロヘキサジエン、1,3-オクタジエン、1,3-シクロオクタジエン等の共役ジエン単量体などが挙げられる。芳香族ビニル単量体以外の単量体の含有量は、芳香族ビニル重合体ブロック中の全単量単位に対して20質量%以下であることが好ましく、5質量%以下であることがより好ましく、2質量%以下であることがさらに好ましい。

10

20

30

【0039】

ブロック共重合体における脂肪族不飽和炭化水素単量体単位の含有量は、ブロック共重合体の全単量体単位に対して60質量%以上であることが好ましく、70質量%以上であることがより好ましく、80質量%以上であることがさらに好ましい。ブロック共重合体における脂肪族不飽和炭化水素単量体単位の含有量は、ブロック共重合体の全単量体単位に対して95質量%以下であることが好ましく、93質量%以下であることがより好ましく、90質量%以下であることがさらに好ましく、86質量%以下であることがとりわけ好ましく、84質量%以下であることが特に好ましく、82質量%以下であることが最も好ましい。ブロック共重合体における脂肪族不飽和炭化水素単量体単位の含有量が60質量%未満になると、熱可塑性エラストマーとしての特性が発揮されにくくなる傾向にある。ブロック共重合体における脂肪族不飽和炭化水素単量体単位の含有量が95質量%を超えると、A層の成形が困難になったり、tan δ のピークの高さが小さくなったりする傾向にある。また、合わせガラス用中間膜の曲げ剛性が小さくなり、高周波域での遮音性が低下する傾向にある。ブロック共重合体における脂肪族不飽和炭化水素単量体単位の含有量は、ブロック共重合体を合成する際の各単量体の仕込み比や、ブロック共重合体の¹H-NMR等の測定結果から求めることができる。本明細書の実施例においては、単量体種の割合を¹H-NMRの測定結果から求め、各単量体の割合を質量%として記載した。ここで、前記ブロック共重合体が複数混合されている場合には、ブロック共重合体における脂肪族不飽和炭化水素単量体単位の含有量は、混合物の平均値として考慮される。

40

【0040】

脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロック中には、少量であれば、脂肪族不飽和炭化水素単量体以外の単量体が共重合されていてもよい。脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロック中の脂肪族不飽和炭化水素単量体単位の割合は、脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロック中の全単量単位に対して、80質量%以上であることが好ましく、95質量%以上であることがより好ましく、98質量%以上であることがさらに好ましい。

40

【0041】

脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロックを構成する脂肪族不飽和炭化水素単量体としては、エチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、4-フェニル-1-ブテン、6-フェニル-1-ヘキセン、3-メチル-1-ブテン、4-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテ

50

ン、4-メチル-1-ペンテン、3-メチル-1-ヘキセン、4-メチル-1-ヘキセン、5-メチル-1-ヘキセン、3,3-ジメチル-1-ペンテン、3,4-ジメチル-1-ペンテン、4,4-ジメチル-1-ペンテン、ビニルシクロヘキサン、ヘキサフルオロプロペニ、テトラフルオロエチレン、2-フルオロプロペニ、フルオロエチレン、1,1-ジフルオロエチレン、3-フルオロプロペニ、トリフルオロエチレン、3,4-ジクロロ-1-ブテン、ブタジエン、イソプレン、ジシクロペントジエン、ノルボルネン、アセチレン等が挙げられる。これらは単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。

【0042】

脂肪族不飽和炭化水素単量体は、入手容易性や取り扱い性の観点から、炭素数2以上の脂肪族不飽和炭化水素が好ましく、炭素数4以上の脂肪族炭化水素がより好ましく、また、炭素数12以下の脂肪族不飽和炭化水素が好ましく、炭素数8以下の脂肪族炭化水素がより好ましい。中でも、共役ジエンを用いることが好ましく、ブタジエン、イソプレンならびにブタジエンおよびイソプレンの併用がより好ましい。

10

【0043】

また、脂肪族不飽和炭化水素単量体は、入手容易性や取り扱い性、合成のしやすさの観点からも、共役ジエンが好ましい。脂肪族飽和炭化水素重合体ブロック中の共役ジエン単位の割合は、80質量%以上であることが好ましく、95質量%以上であることがより好ましく、98質量%以上であることがさらに好ましい。熱安定性を向上させる観点から、脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロックの構成単位として共役ジエンを用いる場合は、その一部または全部が水素添加（以下、「水添」と略称することがある）された水添物であることが好ましい。その際の水添率は、好ましくは60モル%以上、より好ましくは70モル%以上、さらに好ましくは75モル%以上、特に好ましくは80モル%以上である。ここで、水添率とは、水素添加反応前後のブロック共重合体のヨウ素価を測定して得られる値である。

20

【0044】

脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロック中の共役ジエンの結合形態は複数あり、例えば、イソプレン単位には、1,4-結合、1,2-結合、3,4-結合があり、ブタジエン単位については、1,4-結合と1,2-結合がある。脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロック中の共役ジエン単位の合計量（例えば、イソプレン単位およびブタジエン単位の合計量）に対する、イソプレン単位の1,2-結合および3,4-結合の含有量ならびにブタジエン単位の1,2-結合の含有量の合計は、20モル%以上が好ましく、30モル%以上がより好ましく、40モル%以上がさらに好ましい。また、上記合計は、100モル%以下であることが好ましく、95モル%以下であることがより好ましく、90モル%以下であることがさらに好ましい。重合体ブロック（b）中にイソプレン単位が含まれている場合は、上記合計は、85モル%以下であることが好ましく、75モル%以下であることがさらに好ましい。上記範囲内であると、tan のピーク温度が好適化され、tan の最大値が高くなる傾向にある。

30

【0045】

脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロック中に共役ジエンが含まれ、かつ、共役ジエン単位中イソプレン単位が90モル%以上含まれる場合、共役ジエン単量体以外の単量体が含まれておらず、イソプレン単位が90モル%以上含まれる場合、イソプレン単位の1,2-結合および3,4-結合の含有量の合計は、30モル%以上であることが好ましく、40モル%以上であることがより好ましい。また、上記合計は75モル%以下であることが好ましく、60モル%以下であることがより好ましい。上記範囲内であると、tan のピーク温度が好適化され、tan の最大値が高くなる傾向にある。

40

【0046】

脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロック中に共役ジエンが含まれ、かつ、共役ジエン単位中ブタジエン単位が90モル%以上含まれる場合、ブタジエン単位の1,2-結合の含有量は、65モル%以上であることが好ましく、80モル%以上であることがより好ましい。また、上記含有量は100モル%以下であることが好ましい。上記範囲内であると、t

50

$\tan \theta$ のピーク温度が好適化され、 $\tan \theta$ の最大値が高くなる傾向にある。

【 0 0 4 7 】

脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロック中に共役ジエンが含まれ、かつ、共役ジエン単位中ブタジエン単位が90モル%以上含まれる場合、ブタジエン単位の1,2-結合の含有量は、20モル%以上であることが好ましく、65モル%以上であることがより好ましい。また、上記含有量は、100モル%以下であることが好ましい。上記範囲内であると、 $\tan\delta$ のピーク温度が好適化され、 $\tan\delta$ の最大値が高くなる傾向にある。

【 0 0 4 8 】

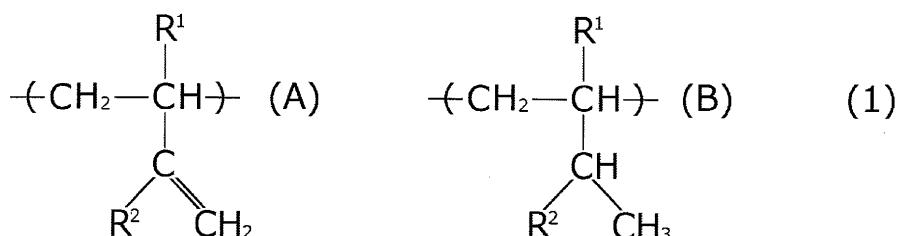
脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロック中に共役ジエンが含まれ、かつ、共役ジエン単位中イソブレン単位およびブタジエン単位の合計含有量が90モル%以上であり、イソブレン単位とブタジエン単位の質量比が10/90~90/10である場合、イソブレン単位およびブタジエン単位の1,2-結合および3,4-結合の含有量の合計は、20モル%以上であることが好ましく、40モル%以上であることがより好ましく、50モル%以上であることがさらに好ましい。また、上記合計は、95モル%以下であることが好ましく、85モル%以下であることがより好ましい。上記範囲内であると、tan のピーク温度が好適化され、tan の最大値が高くなる傾向にある。

[0 0 4 9]

なお、イソプレン単位における 1, 2 - 結合および 3, 4 - 結合の含有量の合計、ならびにブタジエン単位における 1, 2 - 結合の含有量は、水添の前後で変化しない。すなわち、イソプレン単位における 1, 2 - 結合とは、下記化学式(1)の構造単位(A)および構造単位(B)において、 $(R^1, R^2) = (CH_3, H)$ となる構造である。また、イソプレン単位における 3, 4 - 結合とは、下記化学式(1)の構造単位(A)および構造単位(B)において、 $(R^1, R^2) = (H, CH_3)$ となる構造である。さらに、ブタジエン単位における 1, 2 - 結合とは、下記化学式(1)の構造単位(A)および構造単位(B)において、 $(R^1, R^2) = (H, H)$ となる構造である。

[0 0 5 0]

【化 1】



〔 0 0 5 1 〕

本発明においては、上述の通り、入手容易性や取り扱い性、合成のしやすさの観点から、共役ジエン単量体を用いる。そして、本発明においては、熱安定性などの耐熱クリープ性や色差変化などの耐候性を向上させる観点から、共役ジエン単量体単位を含む脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロックの一部を水素添加（以下、「水添」と略称することがある）した水素添加物を用いる。脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロックを水添することにより、共役ジエン単量体単位由来の炭素間二重結合の残存量を調整することができる。

(0 0 5 2)

共役ジエン単量体単位由来の炭素間二重結合の残存量は、2モル%以上であることが好ましく、3モル%以上であることがより好ましく、4モル%以上であることがさらに好ましく、5モル%以上であることが特に好ましい。共役ジエン単量体単位由来の炭素間二重結合の残存量が2モル%以上であると、合わせガラス用中間膜の耐熱クリープ性が高くなる傾向にある。

【 0 0 5 3 】

共役ジエン単量体由来の炭素間二重結合の残存量は、40モル%以下であることが好み

しく、35モル%以下であることがより好ましく、30モル%以下であることがさらに好ましく、25モル%以下であることが特に好ましい。共役ジエン単量体単位由来の炭素間二重結合の残存量が40モル%以下であると、合わせガラスを長期間使用した場合でも、色差変化が抑制され、耐候性が低下しない傾向にある。

【0054】

ブロック共重合体の重量平均分子量は、その力学特性、成形加工性の観点から、30,000以上であることが好ましく、50,000以上であることがより好ましい。ブロック共重合体の重量平均分子量は、その力学特性、成形加工性の観点から、400,000以下であることが好ましく、300,000以下であることがより好ましい。ブロック共重合体の重量平均分子量と数平均分子量の比(M_w/M_n)は、1.0以上であることが好ましい。ブロック共重合体の重量平均分子量と数平均分子量の比(M_w/M_n)は、2.0以下であることが好ましく、1.5以下であることがより好ましい。ここで、重量平均分子量とは、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)測定によって求めたポリスチレン換算の重量平均分子量であり、数平均分子量とは、GPC測定によって求めたポリスチレン換算の数平均分子量である。

10

【0055】

ブロック共重合体の製造方法は、特に限定されないが、例えばアニオン重合法、カチオン重合法、ラジカル重合法などにより製造することができる。例えばアニオン重合の場合、具体的には、

20

- (i) アルキルリチウム化合物を開始剤として用い、芳香族ビニル単量体、共役ジエン単量体、次いで芳香族ビニル単量体を逐次重合させる方法；
- (ii) アルキルリチウム化合物を開始剤として用い、芳香族ビニル単量体、共役ジエン単量体を逐次重合させ、次いでカップリング剤を加えてカップリングする方法；
- (iii) ジリチウム化合物を開始剤として用い、共役ジエン単量体、次いで芳香族ビニル単量体を逐次重合させる方法などが挙げられる。

【0056】

脂肪族不飽和炭化水素単量体として共役ジエンを用いる場合、アニオン重合の際に有機ルイス塩基を添加することによって、熱可塑性エラストマーの1,2-結合量および3,4-結合量を増やすことができ、該有機ルイス塩基の添加量によって、熱可塑性エラストマーの1,2-結合量および3,4-結合量を容易に制御することができる。これらを制御することによっても、 $\tan\delta$ のピーク温度や高さを調整できる。

30

【0057】

該有機ルイス塩基としては、例えば、酢酸エチルなどのエステル；トリエチルアミン、N,N,N',N'-テトラメチルエチレンジアミン(TMEDA)、N-メチルモルホリンなどのアミン；ピリジンなどの含窒素複素環式芳香族化合物；ジメチルアセトアミドなどのアミド；ジメチルエーテル、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン(THF)、ジオキサンなどのエーテル；エチレングリコールジメチルエーテル、ジエチレングリコールジメチルエーテルなどのグリコールエーテル；ジメチルスルホキシドなどのスルホキシド；アセトン、メチルエチルケトンなどのケトンなどが挙げられる。

40

【0058】

未水添のポリスチレン系エラストマーを水素添加反応に付す場合、水素添加触媒に対して不活性な溶媒に得られた未水添のポリスチレン系エラストマーを溶解させるか、または、未水添のポリスチレン系エラストマーを反応液から単離せずにそのまま用い、水素添加触媒の存在下、水素と反応させることにより行うことができる。

【0059】

水素添加触媒としては、例えばラネーニッケル；Pt、Pd、Ru、Rh、Niなどの金属をカーボン、アルミナ、珪藻土などの単体に担持させた不均一系触媒；遷移金属化合物とアルキルアルミニウム化合物、アルキルリチウム化合物などとの組み合わせからなるチーグラー系触媒；メタロセン系触媒などが挙げられる。水素添加反応は、通常、水素圧力0.1MPa以上、20MPa以下で、反応温度20以上、250以下で、反応時

50

間0.1時間以上、100時間以下の条件で行なうことができる。

【0060】

(その他の添加成分)

A層には、その他の成分として、遮熱材料、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、染料等が、必要に応じて添加されていてもよい。

【0061】

(遮熱材料)

A層に、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）を含有させることで、合わせガラス用中間膜に遮熱機能を付与し、合わせガラスとしたときに、波長1500nmの近赤外光の透過率を50%以下とすることができる。無機遮熱性微粒子としては、錫ドープ酸化インジウム(ITO)、アンチモンドープ酸化錫(ATO)、アルミニウムドープ酸化亜鉛(AZO)、一般式M_mWO_n（Mは金属元素を表し、mは0.01以上、1.0以下、nは2.2以上、3.0以下である）で表される金属ドープ酸化タンゲスタン、アンチモン酸亜鉛(ZnSb₂O₅)、六ホウ化ランタンなどが挙げられる。中でも、ITOやATO、金属ドープ酸化タンゲスタンがより好ましい。前記金属ドープ酸化タンゲスタン中のMで表される金属元素としては、例えばCs、Tl、Rb、Na、Kなどが挙げられ、特にCsが好ましい。遮熱性の観点から上記mは、0.2以上であることが好ましく、0.3以上であることがより好ましく、また、0.5以下であることが好ましく、0.4以下であることがより好ましい。

10

【0062】

無機遮熱性微粒子が含まれる場合、その含有量は、合わせガラス用中間膜を構成する層に用いた樹脂（層ごとの熱可塑性エラストマーおよび熱可塑性樹脂等。以下同じ）に対して0.01質量%以上であることが好ましく、0.05質量%以上であることがより好ましく、0.1質量%以上であることがさらに好ましく、0.2質量%以上であることが特に好ましい。また、5質量%以下であることが好ましく、3質量%以下であることがより好ましい。無機遮熱性微粒子の含有量が5質量%より多くなると、可視光線の透過率に影響があることがある。無機遮熱性微粒子の平均粒子径は、100nm以下であることが好ましく、50nm以下であることが透明性の観点からより好ましい。なお、ここでいう無機遮熱性微粒子の平均粒子径は、レーザー回折装置で測定されるものをいう。

20

【0063】

有機遮熱性材料としては、フタロシアニン化合物、ナフタロシアニン化合物などが挙げられる。前記有機遮熱性材料はさらに遮熱性を向上させる観点から、金属を含有することが好ましい。前記金属としては、例えばNa、K、Li、Cu、Zn、Fe、Co、Ni、Ru、Rh、Pd、Pt、Mn、Sn、V、Ca、Alなどが挙げられ、特にNiが好ましい。

30

【0064】

有機遮熱性材料の含有量は、合わせガラス用中間膜を構成する層に用いた樹脂（層ごとの熱可塑性エラストマーおよび熱可塑性樹脂等。以下同じ）に対して0.001質量%以上であることが好ましく、0.005質量%以上であることがより好ましく、0.01質量%以上であることがさらに好ましい。また、1質量%以下であることが好ましく、0.5質量%以下であることがより好ましい。遮熱性化合物の含有量が1質量%より多くなると、可視光線の透過率に影響があることがある。

40

【0065】

(紫外線吸収剤)

また、紫外線吸収剤としては、2-(5-メチル-2-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-[2-ヒドロキシ-3,5-ビス(, -ジメチルベンジル)フェニル]-2H-ベンゾトリアゾール、2-(3,5-ジ-t-ブチル-2-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(5-クロロ-2-ベンゾトリアゾリル)-6-te-r t-ブチル-p-クレゾール、2-(3-t-ブチル-5-メチル-2-ヒドロキシフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(3,5-ジ-t-ブチル-5-メチル

50

- 2 - ヒドロキシフェニル) - 5 - クロロベンゾトリアゾール、2 - (3, 5 - ジ - t - アミル - 2 - ヒドロキシフェニル) ベンゾトリアゾールまたは2 - (2' - ヒドロキシ - 5' - t - オクチルフェニル) ベンゾトリアゾール等のベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤、2, 2, 6, 6 - テトラメチル - 4 - ピペリジルベンゾエート、ビス(2, 2, 6, 6 - テトラメチル - 4 - ピペリジル) セバケート、ビス(1, 2, 2, 6, 6 - ペンタメチル - 4 - ピペリジル) - 2 - (3, 5 - ジ - t - ブチル - 4 - ヒドロキシベンジル) - 2 - n - ブチルマロネート、または4 - (3 - (3, 5 - ジ - t - ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル) プロピオニルオキシ) - 1 - (2 - (3 - (3, 5 - ジ - t - ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル) プロピオニルオキシ) エチル) - 2, 2, 6, 6 - テトラメチルピペリジンなどのヒンダードアミン系紫外線吸収剤、2, 4 - ジ - t - ブチルフェニル - 3, 5 - ジ - t - ブチル - 4 - ヒドロキシベンゾエート、またはヘキサデシル - 3, 5 - ジ - t - ブチル - 4 - ヒドロキシベンゾエートなどのベンゾエート系紫外線吸収剤などが挙げられる。これらの紫外線吸収剤の添加量は、合わせガラス用中間膜を構成する層に用いた樹脂に対して質量基準で10 ppm以上であることが好ましく、100 ppm以上であることがより好ましい。また、紫外線吸収剤の添加量は、合わせガラス用中間膜を構成する層に用いた樹脂に対して質量基準で50, 000 ppm以下であることが好ましく、10, 000 ppm以下であることがより好ましい。紫外線吸収剤の添加量が10 ppmより少ないと充分な効果が発揮されにくくなることがあり、また、紫外線吸収剤の添加量を50, 000 ppmより多くしても格段の効果は望めない。これら紫外線吸収剤は2種以上組み合わせて用いることもできる。

10

20

30

40

50

【0066】

(酸化防止剤)

酸化防止剤としては、例えば、フェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤、硫黄系酸化防止剤などが挙げられ、これらの中でもフェノール系酸化防止剤が好ましく、アルキル置換フェノール系酸化防止剤が特に好ましい。

【0067】

フェノール系酸化防止剤の例としては、2 - t - ブチル - 6 - (3 - t - ブチル - 2 - ヒドロキシ - 5 - メチルベンジル) - 4 - メチルフェニルアクリレート、2, 4 - ジ - t - アミル - 6 - (1 - (3, 5 - ジ - t - アミル - 2 - ヒドロキシフェニル) エチル) フェニルアクリレートなどのアクリレート系化合物、2, 6 - ジ - t - ブチル - 4 - メチルフェノール、2, 6 - ジ - t - ブチル - 4 - エチルフェノール、オクタデシル - 3 - (3, 5 -) ジ - t - ブチル - 4 - ヒドロキシフェニル) プロピオネート、2, 2' - メチレン - ビス(4 - メチル - 6 - t - ブチルフェノール)、4, 4' - ブチリデン - ビス(4 - メチル - 6 - t - ブチルフェノール)、4, 4' - ブチリデン - ビス(6 - t - ブチル - m - クレゾール)、4, 4' - チオビス(3 - メチル - 6 - t - ブチルフェノール)、ビス(3 - シクロヘキシル - 2 - ヒドロキシ - 5 - メチルフェニル) メタン、3, 9 - ビス(2 - (3 - (3 - t - ブチル - 4 - ヒドロキシ - 5 - メチルフェニル) プロピオニルオキシ) - 1, 1 - ジメチルエチル) - 2, 4, 8, 10 - テトラオキサスピロ[5.5]ウンデカン、1, 1, 3 - トリス(2 - メチル - 4 - ヒドロキシ - 5 - t - ブチルフェニル) ブタン、1, 3, 5 - トリス(4 - tert - ブチル - 3 - ヒドロキシ - 2, 6 - ジメチルベンジル) - 1, 3, 5 - トリアジン - 2, 4, 6 - (1H, 3H, 5H) - トリオン、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、テトラキス(メチレン - 3 - (3', 5' - ジ - t - ブチル - 4' - ヒドロキシフェニル) プロピオネート) メタン、またはトリエチレングリコールビス(3 - (3 - t - ブチル - 4 - ヒドロキシ - 5 - メチルフェニル) プロピオネート)などのアルキル置換フェノール系化合物、1, 3, 5 - トリス(2, 6 - ジメチル - 3 - ヒドロキシ - 4 - t - ブチルベンジル) - 1, 3, 5 - トリアジン - 2, 4, 6 (1H, 3H, 5H) - トリオン、6 - (4 - ヒドロキシ - 3, 5 - ジ - t - ブチルアニリノ) - 2, 4 - ビス - オクチルチオ - 1, 3, 5 - トリアジン、6 - (4 - ヒドロキシ - 3, 5 - ジメチルアニリノ) - 2, 4 - ビス - オクチルチオ - 1, 3, 5 - トリアジン、6 -

(4-ヒドロキシ-3-メチル-5-t-ブチルアニリノ)-2,4-ビス-オクチルチオ-1,3,5-トリアジン、または2-オクチルチオ-4,6-ビス-(3,5-ジ-t-ブチル-4-オキシアニリノ)-1,3,5-トリアジンなどのトリアジン基含有フェノール系化合物などが挙げられる。

【0068】

リン系酸化防止剤としては、例えば、トリフェニルホスファイト、ジフェニルイソデシルホスファイト、フェニルジイソデシルホスファイト、トリス(ノニルフェニル)ホスファイト、トリス(ジノニルフェニル)ホスファイト、トリス(2-t-ブチル-4-メチルフェニル)ホスファイト、トリス(2,4-ジ-t-ブチル)ホスファイト、トリス(シクロヘキシルフェニル)ホスファイト、トリス(2,4-ジ-t-ブチルフェニル)ホスフェイト、2,2-メチレンビス(4,6-ジ-t-ブチルフェニル)オクチルホスファイト、9,10-ジヒドロ-9-オキサ-10-ホスファフェナントレン-10-オキサイド、10-(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-9,10-ジヒドロ-9-オキサ-10-ホスファフェナントレン-10-オキサイド、または10-デシロキシ-9,10-ジヒドロ-9-オキサ-10-ホスファフェナントレンなどのモノホスファイト系化合物、4,4'-ブチリデン-ビス(3-メチル-6-t-ブチルフェニル-ジ-トリデシルホスファイト)、4,4'-イソプロピリデン-ビス(フェニル-ジ-アルキル(C12~C15)ホスファイト)4,4'-イソプロピリデン-ビス(ジフェニルモノアルキル(C12~C15)ホスファイト)、1,1,3-トリス(2-メチル-4-ジ-トリデシルホスファイト-5-t-ブチルフェニル)ブタン、またはテトラキス(2,4-ジ-t-ブチルフェニル)-4,4'-ビフェニレンホスファイトなどのジホスファイト系化合物などが挙げられる。これらの中でもモノホスファイト系化合物が好ましい。

10

20

30

30

【0069】

硫黄系酸化防止剤としては、例えば、ジラウリル3,3'-チオジプロピオネート、ジステアリル3,3-チオジプロピオネート、ラウリルステアリル3,3'-チオジプロピオネート、ペンタエリスリトール-テトラキス(-(ラウリル-チオプロピオネート)、3,9-ビス(2-ドデシルチオエチル)-2,4,8,10-テトラオキサスピロ[5.5]ウンデカンなどが挙げられる。

【0070】

これらの酸化防止剤は単独で、あるいは2種以上を組み合わせて用いることができる。酸化防止剤の配合量は、合わせガラス用中間膜を構成する層に用いた樹脂100質量部に対して0.001質量部以上であることが好ましく、0.01質量部以上であることがより好ましい。また、酸化防止剤の配合量は、合わせガラス用中間膜を構成する層に用いた樹脂100質量部に対して5質量部以下であることが好ましく、4質量部以下であることがより好ましく、3質量部以下であることがより好ましい。酸化防止剤の量が0.001質量部より少ないと充分な効果が発揮されにくくなることがあり、また5質量部よりも格段の効果は望めない。

【0071】

(光安定剤)

40

光安定剤としてはヒンダードアミン系のもの、例えば、株式会社ADEKA製「アデカスタブルA-57(商品名)」、チバ・スペシャルティ・ケミカルズ株式会社製「チヌビン622(商品名)」が挙げられる。

【0072】

(接着力調整剤)

A層と後述するB層との接着力を調整するため、A層またはB層に接着力調整剤を添加しても良い。接着力調整剤としては、カルボキシル基、カルボキシル基の誘導体基、エポキシ基、ボロン酸基、ボロン酸基の誘導体基、アルコキシル基、またはアルコキシル基の誘導体基などの接着性官能基を有するポリオレフィン類が挙げられる。

【0073】

50

特に、B層にポリビニルアセタール樹脂を用いる場合には、接着性官能基を有するポリオレフィン類をA層に添加し、A層とB層との共押出成形を行うことで、A層とB層との接着力を好適に調整することができる。接着性官能基を有するポリオレフィン類の添加量は、A層の熱可塑性エラストマー100質量部に対して、20質量部以下であることが好ましく、15質量部以下であることがより好ましく、10質量部以下であることがさらに好ましい。接着性官能基を有するポリオレフィン類の添加量が20質量部を超えると、合わせガラスを作製した際に、ヘイズが悪化することがある。接着性官能基を有するポリオレフィン類としては、上記ポリオレフィン類の中でもカルボキシル基を含有するポリプロピレンが、入手の容易さ、接着性の調整のしやすさ、およびヘイズの調整のしやすさの観点から好適である。

10

【0074】

[B層]

本発明の合わせガラス用中間膜は、上述の通り、遮音層(A層)と、熱可塑性樹脂を含有する熱可塑性樹脂層(B層)とを有し、少なくとも2つの熱可塑性樹脂層(B層)の間に遮音層(A層)が位置する合わせガラス用中間膜である。

【0075】

合わせガラス用中間膜の強度を向上させたり、ガラスとの接着性を向上させたりする観点からは、外層に用いる熱可塑性樹脂は、ポリビニルアセタール樹脂、またはアイオノマー樹脂であることが好ましい。以下、B層の構成について、詳細に説明する。

20

【0076】

本発明のB層で用いられる熱可塑性樹脂は、JIS K 7244-10に準じて周波数1Hzで複素せん断粘度試験を行うことで測定される温度25におけるせん断貯蔵弾性率が、10.0MPa以上であることが好ましく、12.0MPa以上であることが好ましく、20.0MPa以上であることがより好ましく、40.0MPa以上であることがさらに好ましく、60.0MPa以上であることが特に好ましく、80.0MPa以上であることが最も好ましい。上記条件下のせん断貯蔵弾性率が10.0MPa未満であると、好適なせん断貯蔵弾性率および最大損失係数を保持することができず、合わせガラス用中間膜の遮音性または曲げ剛性が低下する傾向にある。せん断貯蔵弾性率が10.0MPa以上のB層は、例えば、ポリビニルアセタール樹脂100質量部に対して、可塑剤の量を40質量部以下とすることで得ることができる。また、前記25におけるせん断貯蔵弾性率の上限は特に限定されないが、合わせガラス用中間膜の成形性、取り扱い性の観点から、900MPa以下であることが好ましい。

30

【0077】

(熱可塑性樹脂)

本明細書において、熱可塑性樹脂とは、加熱すると軟化して可塑性を示し、冷却すると固化する高分子化合物を意味しており、熱可塑性エラストマーとは区別される。外層となるB層が熱可塑性樹脂を含有することにより、合わせガラス用中間膜の耐湿熱性や強度が向上したりする。

【0078】

一般に、合わせガラス用中間膜となる合わせガラス用中間膜において層間分離が起こると、分離した層の間に湿気等の水分が浸入し、合わせガラスの端辺が白化しやすくなる。また、合わせガラス用中間膜とガラスとの接着性が十分でない場合も、合わせガラス用中間膜とガラスとの間に湿気等の水分が浸入し、合わせガラスの端辺が白化しやすくなる。加えて、合わせガラス用中間膜中の可塑剤の含有量が多い場合や、熱可塑性樹脂との相溶性の低い可塑剤を用いた場合は、水分を吸収した際に、合わせガラスの端辺が白化しやすくなる。

40

【0079】

一方、可塑剤が含有されていない、または可塑剤の含有量が少ない熱可塑性樹脂層を外層として用いると、水分を吸収しても端辺が白化しにくくなるとともに、水分を吸収しても可塑剤の移行が起こりにくいため、遮音性が変化しにくくなる傾向にある。また、熱可

50

塑性樹脂との相溶性の高い可塑剤を用いると、水分が吸収されても、端辺からの白化が抑制される傾向にある。

【0080】

熱可塑性樹脂の種類は、特に限定されないが、例えば、ポリビニルアセタール樹脂、アイオノマー樹脂、塩化ビニル樹脂、ウレタン樹脂、またはポリアミド樹脂などが挙げられる。

【0081】

ポリビニルアセタール樹脂等の熱可塑性樹脂を含有する組成物をB層として用いる場合には、B層がポリビニルアセタール樹脂等の熱可塑性樹脂を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%以上含むことがさらに好ましく、80質量%以上含むことが特に好ましく、90質量%以上含むことがより一層好ましく、ポリビニルアセタール樹脂等の熱可塑性樹脂のみからB層が構成されていても良い。ポリビニルアセタール樹脂等の熱可塑性樹脂のB層中の含有率が40質量%より少なくなると、所望のせん断貯蔵弾性率を得ることが困難となる。

10

【0082】

(ポリビニルアセタール樹脂)

ポリビニルアセタール樹脂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などの溶剤との相溶性が好ましくない。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、耐水性の観点から、65モル%以上であることがさらに好ましい。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い。

20

【0083】

ポリビニルアセタール樹脂のビニルアセテート単位の平均含有量は30モル%以下であることが好ましい。ビニルアセテート単位の平均含有量が30モル%を超えると、ポリビニルアセタール樹脂の製造時にプロッキングを起こしやすくなるため、製造しにくくなる。ビニルアセテート単位の平均含有量は、20モル%以下であることが好ましい。

【0084】

ポリビニルアセタール樹脂のビニルアルコール単位の平均含有量は、15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、25モル%以上であることがさらに好ましい。ポリビニルアセタール樹脂のビニルアルコール単位の平均含有量は、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。ビニルアルコール単位の平均含有量が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、ビニルアルコール単位の平均含有量が50モル%より多くなると、耐水性が低下する傾向にある。

30

【0085】

ポリビニルアセタール樹脂は、通常、ビニルアセタール単位、ビニルアルコール単位およびビニルアセテート単位から構成されており、これらの各単位量は、例えば、JIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」や核磁気共鳴法(NMR)によって測定することができる。

40

【0086】

ポリビニルアセタール樹脂が、ビニルアセタール単位以外の単位を含む場合は、ビニルアルコールの単位量とビニルアセテートの単位量を測定し、これらの両単位量をビニルアセタール単位以外の単位を含まない場合のビニルアセタール単位量から差し引くことで、残りのビニルアセタール単位量を算出することができる。

【0087】

ポリビニルアセタール樹脂は、従来公知の方法により製造することができ、代表的には、ポリビニルアルコールにアルデヒド類を用いてアセタール化することにより製造することができる。具体的には、ポリビニルアルコールを温水に溶解し、得られた水溶液を所定

50

の温度、例えば、0以上、好ましくは10以上、90以下、好ましくは20以下に保持しておいて、所要の酸触媒およびアルデヒド類を加え、攪拌しながらアセタール化反応を進行させ、次いで、反応温度を70に上げて熟成して、反応を完結させ、その後、中和、水洗および乾燥を行って、ポリビニルアセタール樹脂の粉末を得る方法等が挙げられる。

【0088】

ポリビニルアセタール樹脂の原料となるポリビニルアルコールの粘度平均重合度は、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、400以上であることがより好ましく、600以上であることがさらに好ましく、700以上であることが特に好ましく、750以上であることが最も好ましい。ポリビニルアルコールの粘度平均重合度が低すぎると、耐貫通性、耐クリープ物性、特に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、ポリビニルアルコールの粘度平均重合度は、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以下であることがさらに好ましく、2300以下であることが特に好ましく、2000以下であることが最も好ましい。ポリビニルアルコールの粘度平均重合度が5000を超えるとB層の成形が難しくなることがある。

10

【0089】

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、ポリビニルアルコールの粘度平均重合度が1800以下であることが好ましい。

20

【0090】

なお、ポリビニルアセタール樹脂の粘度平均重合度は、原料となるポリビニルアルコールの粘度平均重合度と一致するため、上記したポリビニルアルコールの好ましい粘度平均重合度はポリビニルアセタール樹脂の好ましい粘度平均重合度と一致する。

30

【0091】

得られるポリビニルアセタール樹脂のビニルアセテート単位の平均含有量は30モル%以下に設定することが好ましいため、ケン化度が70モル%以上のポリビニルアルコールを使用することが好ましい。ポリビニルアルコールのケン化度が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できる。ケン化度は、より好ましくは95モル%以上のものである。

【0092】

ポリビニルアルコールの粘度平均重合度およびケン化度は、例えば、JIS K 6726「ポリビニルアルコール試験方法」に基づいて測定することができる。

【0093】

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としては、炭素数1以上で、12以下のアルデヒドが好ましい。アルデヒドの炭素数が12を超えるとアセタール化の反応性が低下し、しかも反応中に樹脂のブロックが発生しやすくなり、ポリビニルアセタール樹脂の合成に困難を伴い易くなる。

【0094】

アルデヒド類としては特に限定されず、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、バレルアルデヒド、n-ヘキシリアルデヒド、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、n-ノニルアルデヒド、n-デシルアルデヒド、ベンズアルデヒド、シンナムアルデヒド等の脂肪族、芳香族、脂環式アルデヒドが挙げられる。これらのうちでも炭素数2以上で、6以下の脂肪族アルデヒドが好ましく、中でもブチルアルデヒドが特に好ましい。また、上記アルデヒド類は単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。更に、多官能アルデヒド類やその他の官能基を有するアルデヒド類などを全アルデヒド類の20質量%以下の範囲で少量併用してもよい。

40

【0095】

ポリビニルアセタール樹脂としては、ポリビニルブチラール樹脂が最も好ましいが、ポ

50

リビニルブチラール樹脂としては、ビニルエステルと他の単量体との共重合体をケン化して得られるポリビニルアルコール系重合体を、ブチルアルデヒドを用いてブチラール化した変性ポリビニルブチラール樹脂を用いることができる。ここで、該他の単量体とは、例えば、エチレン、プロピレン、1-ブテン、イソブテン、1-ヘキセン等の-オレフィン；フマール酸、マレイン酸、イタコン酸、無水マレイン酸、無水イタコン酸等のカルボン酸またはその誘導体；アクリル酸またはその塩；アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸n-プロピル、アクリル酸イソプロピル等のアクリル酸エステル類；メタクリル酸またはその塩；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-プロピル、メタクリル酸イソプロピ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等のアクリルアミド誘導体；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等のメタクリルアミド誘導体；メチルビニルエーテル、エチルビニルエーテル、n-プロピルビニルエーテル、イソプロピルビニルエーテル、n-ブチルビニルエーテル等のビニルエーテル類；エチレングリコールビニルエーテル、1,3-プロパンジオールビニルエーテル、1,4-ブタンジオールビニルエーテル等のヒドロキシ基含有ビニルエーテル；アリルアセテート、プロピルアリルエーテル、ブチルアリルエーテル、ヘキシリアルエーテル等のアリルエーテル；オキシアルキレン基を有する単量体；酢酸イソプロペニル、3-ブテン-1-オール、4-ペンテン-1-オール、5-ヘキセン-1-オール、7-オクテン-1-オール、9-デセン-1-オール、3-メチル-3-ブテン-1-オール等のヒドロキシ基含有-オレフィン；エチレンスルホン酸、アリルスルホン酸、メタリルスルホン酸、2-アクリルアミド-2-メチルプロパンスルホン酸等のスルホン酸基を有する単量体；ビニロキシエチルトリメチルアンモニウムクロライド、ビニロキシブチルトリメチルアンモニウムクロライド、ビニロキシエチルジメチルアミン、ビニロキシメチルジエチルアミン、N-アクリルアミドメチルトリメチルアンモニウムクロライド、N-アクリルアミドエチルトリメチルアンモニウムクロライド、N-アクリルアミドジメチルアミン、アリルトリメチルアンモニウムクロライド、メタリルトリメチルアンモニウムクロライド、ジメチルアリルアミン、アリルエチルアミン等のカチオン基を有する単量体；ビニルトリメトキシラン、ビニルメチルジメトキシラン、ビニルジメチルメトキシラン、ビニルトリエトキシラン、ビニルメチルジエトキシラン、ビニルジメチルエトキシラン、3-(メタ)アクリルアミド-プロピルトリメトキシラン、3-(メタ)アクリルアミド-プロピルトリエトキシラン等のシリル基を有する単量体などが挙げられる。ビニルエステルと他の単量体とを共重合する際の他の単量体の使用量は、その使用される目的および用途等によっても異なるが、通常、共重合に用いられる全ての単量体を基準にした割合で、20モル%以下であることが好ましく、10モル%以下がより好ましい。

【0096】

(アイオノマー)

アイオノマーとしては、特に限定されないが、エチレン由来の構成単位、及び、-不飽和カルボン酸に由来の構成単位を有し、-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。金属イオンとしては、例えばナトリウムイオンが挙げられる。ベースポリマーとなるエチレン・-不飽和カルボン酸共重合体において、-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、-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。エチレン系アイオノマーの例としては、エチレン・アクリル酸共重合体のナトリウムアイオノマー、エチレン・メタクリル酸共重合体のナトリウムアイオノマーを、特に好ましい例として挙げることができる。

【0097】

アイオノマーを構成する、不飽和カルボン酸としては、例えばアクリル酸、メタ

10

20

30

40

50

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、無水マレイン酸などが挙げられるが、アクリル酸またはメタクリル酸が特に好ましい。

【0098】

B層には、ポリビニルアセタール樹脂等の熱可塑性樹脂以外の成分として、さらに可塑剤、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、遮熱材料（例えば、赤外線吸収能を有する、無機遮熱性微粒子または有機遮熱性材料）、接着力調整剤および／または接着性を調整するための各種添加剤等が、必要に応じて添加されてもよい。紫外線吸収剤、酸化防止剤、光安定剤等としては、前述したA層において含有されるものが挙げられる。

【0099】

(可塑剤)

本発明のB層で用いられる可塑剤としては、特に制限はないが、一価カルボン酸エステル系、多価カルボン酸エステル系などのカルボン酸エステル系可塑剤；リン酸エステル系可塑剤、有機亜リン酸エステル系可塑剤などのほか、カルボン酸ポリエステル系、炭酸ポリエステル系、また、ポリアルキレングリコール系などの高分子可塑剤や、ひまし油などのヒドロキシカルボン酸と多価アルコールのエステル化合物；ヒドロキシカルボン酸と一価アルコールのエステル化合物などのヒドロキシカルボン酸エステル系可塑剤も使用することができる。

【0100】

一価カルボン酸エステル系可塑剤としては、ブタン酸、イソブタン酸、ヘキサン酸、2-エチルブタン酸、ヘプタン酸、オクチル酸、2-エチルヘキサン酸、ラウリル酸などの一価カルボン酸と、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、グリセリンなどの多価アルコールとの縮合反応により得られる化合物であり、具体的な化合物を例示すると、トリエチレングリコールジ2-ジエチルブタノエート、トリエチレングリコールジヘプタノエート、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オクタノエート、テトラエチレングリコールジ2-エチルブタノエート、テトラエチレングリコールジヘプタノエート、テトラエチレングリコールジ2-エチルヘキサノエート、テトラエチレングリコールジオクタノエート、ジエチレングリコールジ2-エチルヘキサノエート、PEG # 400ジ2-エチルヘキサノエート、トリエチレングリコールモノ2-エチルヘキサノエート、グリセリンまたはジグリセリンの2-エチルヘキサン酸との完全または部分エステル化物などが挙げられる。ここでPEG # 400とは、平均分子量が350～450であるポリエチレングリコールを表す。

【0101】

多価カルボン酸エステル系可塑剤としては、アジピン酸、コハク酸、アゼライン酸、セバシン酸、フタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸、トリメット酸などの多価カルボン酸と、メタノール、エタノール、ブタノール、ヘキサノール、2-エチルブタノール、ヘプタノール、オクタノール、2-エチルヘキサノール、デカノール、ドデカノール、ブトキシエタノール、ブトキシエトキシエタノール、ベンジルアルコールなどの炭素数1～12のアルコールとの縮合反応により得られる化合物が挙げられる。具体的な化合物を例示すると、アジピン酸ジヘキシル、アジピン酸ジ-2-エチルブチル、アジピン酸ジヘプチル、アジピン酸ジオクチル、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)、アジピン酸モノ(2-エチルヘキシル)、セバシン酸ジブチル、セバシン酸ジヘキシル、セバシン酸ジ2-エチルブチル、フタル酸ジブチル、フタル酸ジヘキシル、フタル酸ジ(2-エチルブチル)、フタル酸ジオクチル、フタル酸ジ(2-エチルヘキシル)、フタル酸ベンジルブチル、フタル酸ジデシルなどが挙げられる。

【0102】

リン酸系可塑剤、または、亜リン酸系可塑剤としては、リン酸または亜リン酸と、メタノール、エタノール、ブタノール、ヘキサノール、2-エチルブタノール、ヘプタノール

10

20

30

40

50

、オクタノール、2-エチルヘキサノール、デカノール、ドデカノール、ブトキシエタノール、ブトキシエトキシエタノール、またはベンジルアルコールなどの炭素数1~12のアルコールとの縮合反応により得られる化合物が挙げられる。具体的な化合物を例示すると、リン酸トリメチル、リン酸トリエチル、リン酸トリプロピル、リン酸トリブチル、リン酸トリ(2-エチルヘキシル)、リン酸トリ(ブトキシエチル)、亜リン酸トリ(2-エチルヘキシル)などが挙げられる。

【0103】

カルボン酸ポリエステル系可塑剤としては、シュウ酸、マロン酸、コハク酸、アジピン酸、スペリン酸、セバシン酸、ドデカン二酸、1,2-シクロヘキサンジカルボン酸、1,3-シクロヘキサンジカルボン酸、1,4-シクロヘキサンジカルボン酸などの多価カルボン酸と、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、1,2-プロピレングリコール、1,3-プロピレングリコール、1,2-ブチレングリコール、1,3-ブチレングリコール、1,4-ブチレングリコール、1,2-ペンタンジオール、1,5-ペンタンジオール、2,4-ペンタンジオール、1,2-ヘキサンジオール、1,6-ヘキサンジオール、3-メチル-1,5-ペンタンジオール、3-メチル-2,4-ペンタンジオール、1,2-ヘプタンジオール、1,7-ヘプタンジオール、1,2-オクタンジオール、1,8-オクタンジオール、1,2-ノナンジオール、1,9-ノナンジオール、2-メチル-1,8-オクタンジオール、1,2-デカンジオール、1,10-デカンジオール、1,2-ドデカンジオール、1,12-ドデカンジオール、1,2-シクロヘキサンジオール、1,3-シクロヘキサンジオール、1,4-シクロヘキサンジオール、1,2-ビス(ヒドロキシメチル)シクロヘキサン、1,3-ビス(ヒドロキシメチル)シクロヘキサン、1,4-ビス(ヒドロキシメチル)シクロヘキサンなどの多価アルコールを交互共重合して得られるカルボン酸ポリエステルや、脂肪族ヒドロキシカルボン酸；グリコール酸、乳酸、2-ヒドロキシ酪酸、3-ヒドロキシ酪酸、4-ヒドロキシ酪酸、6-ヒドロキシヘキサン酸、8-ヒドロキシヘキサン酸、10-ヒドロキシデカン酸、12-ヒドロキシデカン酸、芳香環を有するヒドロキシカルボン酸；4-ヒドロキシ安息香酸、4-(2-ヒドロキシエチル)安息香酸などのヒドロキシカルボン酸の重合体(ヒドロキシカルボン酸ポリエステル)、脂肪族ラクトン化合物；-ブチロラクトン、-バレロラクトン、-バレロラクトン、-メチル--バレロラクトン、-ヘキサノラクトン、-カブロラクトン、ラクチドなど、芳香環を有するラクトン化合物；フタリドなどのラクトン化合物を開環重合して得られるカルボン酸ポリエステルでも良い。これらカルボン酸ポリエステルの末端構造は特に限定されず、水酸基やカルボキシル基でも良いし、また、末端水酸基や末端カルボキシル基を1価カルボン酸あるいは1価アルコールと反応させてエステル結合としたものでも良い。

【0104】

炭酸ポリエステル系可塑剤としては、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、1,2-プロピレングリコール、1,3-プロピレングリコール、1,2-ブチレングリコール、1,3-ブチレングリコール、1,4-ブチレングリコール、1,2-ペンタンジオール、1,5-ペンタンジオール、2,4-ペンタンジオール、1,2-ヘキサンジオール、1,6-ヘキサンジオール、3-メチル-1,5-ペンタンジオール、3-メチル-2,4-ペンタンジオール、1,2-ヘプタンジオール、1,7-ヘプタンジオール、1,2-オクタンジオール、1,8-オクタンジオール、1,2-ノナンジオール、1,9-ノナンジオール、2-メチル-1,8-オクタンジオール、1,2-デカンジオール、1,10-デカンジオール、1,2-ドデカンジオール、1,12-ドデカンジオール、1,2-シクロヘキサンジオール、1,4-シクロヘキサンジオール、1,2-ビス(ヒドロキシメチル)シクロヘキサン、1,3-ビス(ヒドロキシメチル)シクロヘキサンなどの多価アルコールと、炭酸ジメチル、炭酸ジエチルなどの炭酸エステルをエステル交換反応により交互共重合して得られ

10

20

30

40

50

る炭酸ポリエステルが挙げられる。これら炭酸ポリエステル化合物の末端構造は特に限定されないが、炭酸エステル基、または水酸基などであるとよい。

【0105】

ポリアルキレングリコール系可塑剤としては、エチレンオキシド、プロピレンオキシド、ブチレンオキシド、オキセタンなどのアルキレンオキシドを、一価アルコール、多価アルコール、一価カルボン酸および多価カルボン酸を開環重合させて得られる重合体が挙げられる。

【0106】

ヒドロキシカルボン酸エステル系可塑剤としては、ヒドロキシカルボン酸の1価アルコールエステル；リシノール酸メチル、リシノール酸エチル、リシノール酸ブチル、6-ヒドロキシヘキサン酸メチル、6-ヒドロキシヘキサン酸エチル、6-ヒドロキシヘキサン酸ブチル、ヒドロキシカルボン酸の多価アルコールエステル；エチレングリコールジ(6-ヒドロキシヘキサン酸)エステル、ジエチレングリコールジ(6-ヒドロキシヘキサン酸)エステル、トリエチレングリコールジ(6-ヒドロキシヘキサン酸)エステル、3-メチル-1,5-ペンタンジオールジ(6-ヒドロキシヘキサン酸)エステル、3-メチル-1,5-ペンタンジオールジ(2-ヒドロキシ酪酸)エステル、3-メチル-1,5-ペンタンジオールジ(4-ヒドロキシ酪酸)エステル、トリエチレングリコールジ(2-ヒドロキシ酪酸)エステル、グリセリントリ(リシノール酸)エステル、L-酒石酸ジ(1-(2-エチルヘキシル))、ひまし油の他、ヒドロキシカルボン酸の多価アルコールエステルのk個のヒドロキシカルボン酸由来の基を、水酸基を含まないカルボン酸由来の基または水素原子に置き換えた化合物も使用可能であり、これらヒドロキシカルボン酸エステルは従来公知の方法で得られるものを使用することができる。

【0107】

本発明において、これら可塑剤は単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

【0108】

可塑剤がB層に含有される場合、可塑剤とB層に用いられる樹脂（特にポリビニルアセタール樹脂）との相溶性、他の層への低移行性、非移行性を高める観点からは、融点が30以下であり、水酸基価が15mgKOH/g以上、450mgKOH/g以下であるエステル系可塑剤又はエーテル系可塑剤、または、非結晶性であり、水酸基価が15mgKOH/g以上、450mgKOH/g以下であるエステル系可塑剤又はエーテル系可塑剤を使用することが好ましい。ここで非結晶性とは、-20以上の温度において融点が観測されないことを指す。前記水酸基価は、15mgKOH/g以上であることが好ましく、30mgKOH/g以上であることがより好ましく、45mgKOH/g以上であることが最適である。また、前記水酸基価が450mgKOH/g以下であることが好ましく、360mgKOH/g以下であることがより好ましく、280mgKOH/g以下であることが最適である。前記エステル系可塑剤としては、上記規定を満たすポリエステル（前述したカルボン酸ポリエステル系可塑剤、炭酸ポリエステル系可塑剤など）や、ヒドロキシカルボン酸エステル化合物（前述したヒドロキシカルボン酸エステル系可塑剤など）が挙げられ、エーテル系可塑剤としては、前記規定を満たすポリエーテル化合物（前述したポリアルキレングリコール系可塑剤など）が挙げられる。

【0109】

可塑剤の含有量は、ポリビニルアセタール樹脂等の熱可塑性樹脂100質量部に対して、50質量部以下であることが好ましく、40質量部以下であることがより好ましく、30質量部以下であることがさらに好ましく、20質量部以下であることが特に好ましい。可塑剤の含有量が、ポリビニルアセタール樹脂等の熱可塑性樹脂100質量部に対して50質量部を超えると、せん断貯蔵弾性率が低くなる傾向にある。また、2種以上の可塑剤を併用してもよい。

【0110】

10

20

30

40

50

可塑剤としては、水酸基を有する化合物を用いることができるが、B層中に用いられる可塑剤の全量に対する水酸基を有する化合物の含有量の割合は、50質量%以上であることが好ましく、70質量%以上であることがより好ましく、90質量%以上であることがさらに好ましい。水酸基を有する化合物は、ポリビニルアセタール樹脂と高い相溶性を有し、他の樹脂層への移行性が低いため、水酸基を有する化合物を好適に用いることができる。

【0111】

またB層には、必要に応じて、ガラス等に対する合わせガラス用中間膜の接着性を制御するために、接着力調整剤および／または接着性を調整するための各種添加剤を含有させてよい。

10

【0112】

接着力調整剤および／または接着性を調整するための各種添加剤としては、国際公開第03/033583号に開示されているものを使用することもでき、アルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩が好ましく使用され、例えば、カリウム、ナトリウム、マグネシウム等の塩が挙げられる。上記塩としてはオクタン酸、ヘキサン酸、酪酸、酢酸、蟻酸等のカルボン酸等の有機酸；塩酸、硝酸等の無機酸の塩などが挙げられる。

【0113】

接着力調整剤および／または接着性を調整するための各種添加剤の最適な添加量は、使用する添加剤により異なるが、得られる合わせガラス用中間膜のガラスへの接着力が、パンメル試験（Pummetest；国際公開第03/033583号等に記載）において、一般には3以上、10以下になるように調整することが好ましく、特に高い耐貫通性を必要とする場合は3以上、6以下、高いガラス飛散防止性を必要とする場合は7以上、10以下になるように調整することが好ましい。高いガラス飛散防止性が求められる場合は、接着力調整剤を添加しないことも有用な方法である。

20

【0114】

[合わせガラス用中間膜]

本発明の合わせガラス用中間膜は、上述の通り、遮音層（A層）と、熱可塑性樹脂を有する熱可塑性樹脂層（B層）とを有し、少なくとも2つの熱可塑性樹脂層（B層）の間に遮音層（A層）が位置する合わせガラス用中間膜である。

30

【0115】

一般に、合わせガラスの端辺において、外層とガラスとの界面に湿気等の水分が浸入すると、合わせガラスの端辺が白化する。一方、ガラスとの接着性の高い熱可塑性樹脂層を外層とした3層構成の合わせガラス用中間膜を合わせガラス用中間膜として用いると、合わせガラス用中間膜とガラスとの接着性が良好となり、合わせガラスの端辺における白化を抑えることができる。以下、本発明の合わせガラス用中間膜について、詳細に説明する。

【0116】

A層の膜厚は、20μm以上であることが好ましく、30μm以上であることがより好ましく、50μm以上であることがさらに好ましい。また、A層の膜厚は、400μm以下であることが好ましく、350μm以下であることがより好ましく、300μm以下であることがさらに好ましい。A層の膜厚が20μm未満になると、遮音性が低下する傾向にあり、A層の膜厚が400μmを超えると、合わせガラスを作製したときに耐貫通性などの機械特性が悪化し、合わせガラスとしての安全性能が損なわれる傾向にある。本発明の合わせガラス用中間膜中にA層が複数含まれる場合には、A層全体の合計の厚さが上記範囲を満たしていることが好ましい。

40

【0117】

B層の膜厚は、100μm以上であることが好ましく、150μm以上であることがより好ましく、200μm以上であることがさらに好ましい。B層の膜厚は、750μm以下であることが好ましく、650μm以下であることがより好ましく、550μm以下であることがさらに好ましい。B層の膜厚が100μm未満になると、合わせガラス用中間

50

膜の曲げ剛性が小さくなり、高周波域での遮音性が低下する傾向にあり、B層の膜厚が750μmを超えると、周波数域にかかわらず遮音性が低下する傾向にある。

【0118】

B層の厚さの合計に対するA層の厚さの合計の比(A層の厚さの合計 / B層の厚さの合計)は、1/1以下であることが好ましく、1/1.5以下であることがより好ましく、1/2以下であることがさらに好ましい。B層の厚さの合計に対するA層の厚さの合計の比は、1/30以上であることが好ましく、1/15以上であることがより好ましく、1/8以上であることがさらに好ましく、1/6.5以上であることが特に好ましい。上記比率が1/30より小さいと、合わせガラス用中間膜の遮音効果が小さくなる傾向にある。一方、上記比率が1/1より大きいと、合わせガラス用中間膜の曲げ剛性が小さくなり、高周波域での遮音性が低下する傾向にある。

10

【0119】

本実施形態における合わせガラス用中間膜は、図1に示すように、A層1がB層2aおよびB層2bによって挟まれた積層構成を有する。合わせガラス用中間膜における積層構成は目的によって決められるが、B層/A層/B層という積層構成の他、B層/A層/B層/A層、B層/A層/B層/A層/B層という積層構成であってもよい。A層/B層という二層構成であると、合わせガラス用中間膜の遮音性または曲げ強度が低下する傾向にある。なお、最外層の少なくとも一方はB層であることが好ましく、最外層の両方がB層であることがより好ましい。

20

【0120】

また、A層、B層以外の層(C層とする)を1層以上含んでいても構わず、例えば、B層/A層/C層/B層、B層/A層/B層/C層、B層/C層/A層/C層/B層、B層/C層/A層/B層/C層、B層/A層/C層/B層/C層、C層/B層/C層/A層/C層/B層/C層などの積層構成でも構わない。また上記積層構成において、C層中の成分は、同一であっても異なっていてもよい。これはA層またはB層中の成分についても同様である。

30

【0121】

なお、C層としては公知の樹脂からなる層が使用可能であり、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル、ポリスチレン、ポリ酢酸ビニル、ポリウレタン、ポリテトラフルオロエチレン、アクリル樹脂、ポリアミド、ポリアセタール、ポリカーボネート、ポリエステルのうちポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、環状ポリオレフィン、ポリフェニレンスルファイド、ポリテトラフロロエチレン、ポリサルファン、ポリエーテルサルファン、ポリアリレート、液晶ポリマー、ポリイミドなどを用いることができる。また、C層にも、必要に応じ、可塑剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤、接着力調整剤および/または接着性を調整するための各種添加剤、ブロッキング防止剤、顔料、染料、遮熱材料(例えば、赤外線吸収能を有する、無機遮熱性微粒子または有機遮熱性材料)などの添加剤を添加してよい。これらの添加剤は、A層またはB層に含まれていてもよいものと同様のものが用いられる。

30

【0122】

本発明の合わせガラス用中間膜の製造方法は特に限定されるものではなく、B層を構成する樹脂組成物を均一に混練した後、押出し法、カレンダー法、プレス法、キャスティング法、インフレーション法等、公知の製膜方法によりB層を作製し、また、同様の方法で、エラストマーによりA層を作製し、これらをプレス成形等で積層させてもよいし、B層、A層およびその他必要な層を共押出法により成形してもよい。

40

【0123】

公知の製膜方法の中でも特に押出機を用いて合わせガラス用中間膜を製造する方法が好適に採用される。押し出し時の樹脂温度は150以上が好ましく、170以上がより好ましい。また、押し出し時の樹脂温度は250以下が好ましく、230以下がより好ましい。樹脂温度が高くなりすぎると、用いる樹脂が分解を起こし、樹脂の劣化が懸念される。逆に温度が低すぎると、押出機からの吐出が安定せず、機械的トラブルの要因になる

50

。揮発性物質を効率的に除去するためには、押出機のベント口から減圧により、揮発性物質を除去することが好ましい。

【0124】

また、本発明の合わせガラス用中間膜は表面にメルトフラクチャー、エンボスなど、従来公知の方法で凹凸構造を形成することが好ましい。メルトフラクチャー、エンボスの形状は特に限定されず、従来公知のものを採用することができる。

【0125】

合わせガラス用中間膜の膜厚の合計は、 $20\text{ }\mu\text{m}$ 以上であることが好ましく、 $100\text{ }\mu\text{m}$ 以上であることがより好ましい。また、合わせガラス用中間膜の膜厚の合計は、 $10,000\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $3,000\text{ }\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましい。
10 合わせガラス用中間膜の膜厚が薄すぎると、合わせガラスを作製する際にうまくラミネートできないことがあります、合わせガラス用中間膜の膜厚が厚すぎるとコスト高に繋がるため好ましくない。

【0126】

[合わせガラス]

本発明の合わせガラス用中間膜を用いることにより、遮音性、特に高周波領域での遮音性に優れる合わせガラスを得ることができる。そのため、本発明の合わせガラス用中間膜は、自動車用フロントガラス、自動車用サイドガラス、自動車用サンルーフ、自動車用リアガラスまたはヘッドアップディスプレイ用ガラスなどに好適に用いることができる。本発明の合わせガラス用中間膜の構成を内部に有する合わせガラスが、ヘッドアップディスプレイ用ガラスに適用される場合、用いられる該合わせガラス用中間膜の断面形状は、一方の端面側が厚く、他方の端面側が薄い形状であることが好ましい。その場合、断面形状は、一方の端面側から他方の端面側に漸次的に薄くなるような、全体が楔形である形状であってもよいし、一方の端部から該端面と他方の端部の間の任意の位置までは同一の厚さで、該任意の位置から他方の端部まで漸次的に薄くなるような、断面の一部が楔形のものであってもよい。

【0127】

本発明の合わせガラスには、通常、ガラスを2枚使用する。本発明の合わせガラスを構成するガラスの厚さは特に限定されないが、 100 mm 以下であることが好ましい。また、本発明の合わせガラス用中間膜は、曲げ強度に優れることから、厚さ 2.8 mm 以下の薄板ガラスを用いて合わせガラスを作製しても、合わせガラスの強度を損なうことなく、合わせガラスの軽量化を実現することができる。ガラスの厚さは、軽量化の観点からは、少なくとも一枚が 2.8 mm 以下であることが好ましく、 2.5 mm 以下であることがより好ましく、 2.0 mm 以下であることがさらに好ましく、 1.8 mm 以下であることが特に好ましい。特に、一方のガラスの厚さを 1.8 mm 以上、他方のガラスの厚さを 1.8 mm 以下、各ガラスの厚さの差を 0.2 mm 以上とすることにより、曲げ強度を損なうことなく、薄膜化と軽量化を実現した合わせガラスを作製することができる。上記各ガラスの厚さの差は、 0.5 mm 以上が好ましい。

【0128】

本発明の合わせガラス用中間膜をフロートガラス2枚で挟んで得られる合わせガラスと、耐湿熱試験(80°C 、相対湿度95%の条件下で試験品を 1000 時間保持する試験)後の合わせガラスにおいて、JIS K 7105に準じて合わせガラスの中央部のヘイズを測定した場合、耐湿熱試験前のヘイズに対する耐湿熱試験後のヘイズの上昇分は2%以下であり、 1.5% 以下であることが好ましく、 1.3% 以下であることがより好ましい。耐湿熱試験前のヘイズに対する耐湿熱試験後のヘイズの上昇分が2%を超えるものは、湿熱環境下に長期間置かれた場合に外観が不良となるため好ましくない。なお、本発明の試験においては、通常、上記フロートガラスとしては、縦 50 mm 、横 50 mm 、厚さ 1.9 mm のフロートガラスを用いる。

【0129】

耐湿熱試験前のヘイズに対する耐湿熱試験後のヘイズの上昇分が2%以下となる合わせ

10

20

30

30

40

50

ガラス用中間膜を作製する方法としては、例えば、2つの熱可塑性樹脂層の間に遮音層を挟んだ合わせガラス用中間膜を用いる方法が挙げられる。また、より好ましい方法としては、ポリビニルアセタール樹脂またはアイオノマー樹脂を用いた2つの熱可塑性樹脂層の間に、芳香族ビニル重合体ブロックと脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロックを有する熱可塑性エラストマーを用いた遮音層を挟んだ合わせガラス用中間膜を用いる方法が挙げられる。

【0130】

さらに、耐湿熱試験後の合わせガラスにおいて、端辺からの白化距離は4mm以下であり、3.5mm以下であることが好ましく、3mm以下であることがより好ましい。耐湿熱試験後の合わせガラスにおいて、端辺からの白化距離が4mmを超えるものは、湿熱環境下に長期間置かれた場合に端辺が白化するため好ましくない。10

【0131】

耐湿熱試験後の合わせガラスにおいて、端辺からの白化距離が4mm以下となる合わせガラス用中間膜を作製する方法としては、例えば、2つの熱可塑性樹脂層の間に遮音層を挟んだ合わせガラス用中間膜を用いる方法が挙げられる。また、より好ましくは、ポリビニルアセタール樹脂またはアイオノマー樹脂を用いた2つの熱可塑性樹脂層の間に、芳香族ビニル重合体ブロックと脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロックを有する熱可塑性エラストマーを用いた遮音層を挟んだ合わせガラス用中間膜を用いる方法が挙げられる。

【0132】

3次共振周波数での損失係数は、例えば、以下の方法により測定できる。市販のフロートガラス2枚に合わせガラス用中間膜を挟み、真空パック法（条件：30から160に60分間で昇温し、その後160で30分間保持）によって、合わせガラスを作製する。その後、機械インピーダンス装置における加振器のインピーダンスヘッドに内蔵された加振力検出器の先端部に、合わせガラスの中央部を固定し、20において、周波数0～10000Hzの範囲で合わせガラスの中央部に振動を与え、この点の加振力と加速度波形を検出することで、中央加振法による合わせガラスのダンピング試験を行う。得られた加振力と、加速度信号を積分して得られた速度信号を基に、加振点（振動を加えた合わせガラスの中央部）の機械インピーダンスを求め、横軸を周波数、縦軸を機械インピーダンスとして得られるインピーダンス曲線において、3次モードのピークを示す周波数と半値幅から、合わせガラスの3次共振周波数での損失係数を求めることができる。なお、本発明の試験においては、通常、上記フロートガラスとしては、縦300mm、横25mm、厚さ1.9mmのフロートガラスを用いる。20

【0133】

本発明の合わせガラス用中間膜は、フロートガラス2枚で該合わせガラス用中間膜を挟んで合わせガラスとした際に、20で中央加振法により測定される3次共振周波数での損失係数が0.2以上であり、0.3以上であることが好ましく、0.4以上であることがより好ましく、0.5以上であることがさらに好ましい。3次共振周波数での損失係数が0.2未満となると、合わせガラスの遮音性が低下する傾向にある。30

【0134】

上記条件の下で限定される損失係数が0.2以上となる合わせガラスを作製する方法としては、例えば、2つの熱可塑性樹脂層の間に遮音層を挟んだ合わせガラス用中間膜を用いる方法が挙げられる。また、より好ましい方法としては、ポリビニルアセタール樹脂またはアイオノマー樹脂を用いた2つの熱可塑性樹脂層の間に、芳香族ビニル重合体ブロックと脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロックを有する熱可塑性エラストマーを用いた遮音層を挟んだ合わせガラス用中間膜として用いる方法が挙げられる。その他に、好ましい方法としては、遮音層を構成する熱可塑性エラストマーに対するハードセグメントの含有量が所定の割合以上（例えば、5質量%以上、10質量%以上、14質量%以上、15質量%以上、あるいは17質量%以上）のものを用い、合わせガラス用中間膜の保護層（B層）の厚さの合計に対する遮音層（A層）の厚さの合計の比を所定の割合以上（例えば、1/6.5以上）とする方法などで達成が可能である。40

【0135】

本発明の合わせガラス用中間膜をフロートガラス2枚で挟んで得られる合わせガラスと、耐湿熱試験(80℃、相対湿度95%の条件下で試験品を1000時間保持する試験)後の合わせガラスにおいて、中央加振法により20Hzで3次共振周波数における損失係数を測定した場合に、耐湿熱試験前の損失係数に対する耐湿熱試験後の損失係数の減少分は、0.05以下であることが好ましく、0.04以下であることがより好ましく、0.03以下であることがさらに好ましい。耐湿熱試験前の損失係数に対する耐湿熱試験後の損失係数の減少分が0.05を超えると、合わせガラスを湿熱環境下で長期間使用した場合に、遮音性が低下する傾向にある。上記の耐湿熱試験においても、通常、縦300mm、横25mm、厚さ1.9mmのフロートガラスが用いられる。

10

【0136】

耐湿熱試験前の損失係数に対する耐湿熱試験後の損失係数の減少分が0.05となる合わせガラスを作製する方法としては、例えば、ポリビニルアセタール樹脂またはアイオノマー樹脂を用いた2つの熱可塑性樹脂層の間に、芳香族ビニル重合体ブロックと脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロックを有する熱可塑性エラストマーを用いた遮音層を挟んだ合わせガラス用中間膜を合わせガラス用中間膜として用いる方法が挙げられる。また、より好ましい方法としては、遮音層を構成する熱可塑性エラストマーに対するハードセグメントの含有量が所定の割合以上(例えば、14質量%以上)のものを用い、合わせガラス用中間膜の保護層(B層)の厚さの合計に対する遮音層(A層)の厚さの合計の比を所定の割合以上(例えば、1/6.5以上)とする方法や、熱可塑性樹脂の厚さの合計に対する遮音層の厚さの合計の比を所定の割合以上(例えば、1/6.5以上)とする方法などが挙げられる。

20

【0137】

本発明の合わせガラス用中間膜において、3次共振周波数は、1250Hz以上であることが好ましく、1500Hz以上であることがより好ましく、1750Hz以上であることがさらに好ましい。合わせガラス用中間膜の3次共振周波数が1250Hz未満であると、高周波数領域においてコインシデンス効果が発生しやすくなり、高周波数領域における遮音性が低下する傾向にある。本発明の合わせガラス用中間膜において、3次共振周波数は、3000Hz以下であることが好ましく、2750Hz以下であることがより好ましく、2500Hz以下であることがさらに好ましい。合わせガラス用中間膜の3次共振周波数が3000Hzを超えると、低周波数領域においてコインシデンス効果が発生しやすくなり、低周波数領域における遮音性が低下する傾向にある。

30

【0138】

合わせガラス用中間膜の3次共振周波数を、1250Hz以上、3000Hz以下とするための方法としては、例えば、2つの熱可塑性樹脂層の間に遮音層を挟んだ合わせガラス用中間膜を用いる方法が挙げられる。また、より好ましくは、ポリビニルアセタール樹脂またはアイオノマー樹脂を用いた2つの熱可塑性樹脂層の間に、芳香族ビニル重合体ブロックと脂肪族不飽和炭化水素重合体ブロックを有する熱可塑性エラストマーを用いた遮音層を挟んだ合わせガラス用中間膜を用いる方法が挙げられる。

40

【0139】

本発明の合わせガラス用中間膜をフロートガラス2枚で挟んで得られる合わせガラスは、遮熱材料を含む場合、波長1500nmの近赤外光の透過率が50%以下であることが好ましく、20%以下であることがより好ましい。波長1500nmの近赤外光の透過率が50%以下であると、赤外光線の遮蔽率が高くなり、合わせガラスの遮熱性能が向上する傾向にある。本発明においては、通常、上記フロートガラス1枚の厚みは、1.9mmであるものを用いる。

【0140】

本発明の合わせガラスは、合わせガラス用中間膜に、厚さ2mmの2枚のフロートガラスの間に積層したときのヘイズが5未満であることが好ましく、3未満であることがより好ましく、1未満であることがさらに好ましい。

50

【0141】

[合わせガラスの製造方法]

本発明の合わせガラスは、従来から公知の方法で製造することが可能であり、例えば、真空ラミネータ装置を用いる方法、真空バッグを用いる方法、真空リングを用いる方法、ニップルロールを用いる方法等が挙げられる。また、仮圧着後に、オートクレープ工程に投入する方法も付加的に行なうことができる。

【0142】

真空ラミネータ装置を用いる場合、例えば、太陽電池の製造に用いられる公知の装置を使用し、 1×10^{-6} MPa以上、 3×10^{-2} MPa以下の減圧下、100以上、200以下で、特に130以上、170以下の温度でラミネートされる。真空バッグまたは真空リングを用いる方法は、例えば、欧州特許第1235683号明細書に記載されており、例えば約 2×10^{-2} MPaの圧力下、130以上、145以下でラミネートされる。10

【0143】

合わせガラスの作製方法については、ニップルロールを用いる場合、例えば、ポリビニルアセタール樹脂の流動開始温度以下の温度で1回目の仮圧着をした後、さらに流動開始温度に近い条件で仮圧着する方法が挙げられる。具体的には、例えば、赤外線ヒーターなどで30以上、100以下に加熱した後、ロールで脱気し、さらに50以上、150以下に加熱した後ロールで圧着して接着または仮接着させる方法が挙げられる。20

【0144】

また、本発明の合わせガラス用中間膜の構成を合わせガラス内部に有するように、A層の両面に、B層を塗布したガラスを合わせて積層し、合わせガラスとしてもよい。

【0145】

仮圧着後に付加的に行われるオートクレープ工程は、モジュールの厚さや構成にもよるが、例えば、1 MPa以上、15 MPa以下の圧力下、120以上、160以下の温度で0.5時間以上、2時間以下で実施される。30

【0146】

合わせガラスを作製する際に使用するガラスは特に限定されず、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、熱線吸収板ガラスなどの無機ガラスのほか、ポリメタクリル酸メチル、ポリカーボネートなどの従来公知の有機ガラス等が使用でき、これらは無色、有色、あるいは透明、非透明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。30

【実施例】

【0147】

以下、実施例および比較例により本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0148】

なお、以下の実施例および比較例において、使用されたポリビニルブチラール樹脂(PVB)としては、目的とする粘度平均重合度と同じ粘度平均重合度(JIS K 6726「ポリビニルアルコール試験方法」に基づいて測定した粘度平均重合度)を有するポリビニルアルコールを塩酸触媒下にn-ブチルアルデヒドでアセタール化したものを用いた。40

【0149】

(実施例1)

(A層の作製)

窒素置換し、乾燥させた耐圧容器に、溶媒としてシクロヘキサン50kg、アニオン重合開始剤としてsec-ブチルリチウム130gを仕込み、ルイス塩基としてテトラヒドロフラン290gを仕込んだ(sec-ブチルリチウムは、10.5質量%のシクロヘキサン溶液を含むため、sec-ブチルリチウムの実質的な添加量は13.9gである)。耐圧容器内を50に昇温した後、スチレン1.8kgを加えて1時間重合させ、引き続いでイソプレン13.2kgを加えて2時間重合させ、さらにスチレン1.8kgを加え50

て1時間重合させることにより、ポリスチレン-ポリイソプレン-ポリスチレントリプロック共重合体を含む反応液を得た。

【0150】

該反応液に、オクチル酸ニッケルおよびトリメチルアルミニウムから形成されるチーグラー系水素添加触媒を水素雰囲気下で添加し、水素圧力1Mpa、80の条件で5時間反応させた。該反応液を放冷および放圧させた後、水洗により上記触媒を除去し、真空乾燥させることにより、ポリスチレン-ポリイソプレン-ポリスチレントリプロック共重合体の水素添加物（以下、TPE-2とする）を得た。得られたTPE-2を100質量部およびB層との接着力調整剤として無水マレイン酸変性ポリプロピレン（三洋化成工業株式会社製、ユーメックス1010）を5質量部混合して、押出成形法によって厚さ250 μm のA層に成形した。10

【0151】

（B層の作製）

B層には、粘度平均重合度約1700、平均アセタール化度70モル%、ビニルアセテート単位の平均含有量0.9モル%のポリビニルブチラール樹脂（以下、PVB-aとする）100質量部に、ポリエステルポリオール（株式会社クラレ製、クラレポリオールP-510；ポリ[（3-メチル-1,5-ペンタンジオール）-a1t-（アジピン酸）]）15質量部を配合した組成物を、押出成形法によって厚さ250 μm のB層に成形した。

【0152】

（合わせガラス用中間膜の作製）

2層のB層の間にA層を挟み、150でプレス成形をして3層構成の複合膜となる厚さ0.75mmの合わせガラス用中間膜を作製した。

【0153】

1. 物性評価（共役ジエン単量体単位由来の二重結合残存量の算出）

実施例1で得られたプロック共重合体の水素添加前後におけるヨウ素価を測定し、その測定値より算出した。二重結合残存量の算出結果を表1に示す。

【0154】

2. 物性評価（イソプレン単位における1,2-結合および3,4-結合の含有量ならびにブタジエン単位における1,2-結合の含有量の合計値の算出）30

実施例で得られたTPE-1~4それぞれについて50mgを重クロロホルムに溶解して、¹H-NMRの測定を行った。得られたスペクトルにおけるイソプレン単位における1,2-結合および3,4-結合由来のピーク、ならびにブタジエン単位の1,2-結合由来のピークから、イソプレン単位における1,2-結合および3,4-結合の含有量ならびにブタジエン単位における1,2-結合の含有量をそれぞれ測定した。

【0155】

得られたイソプレン単位における1,2-結合および3,4-結合の含有量とブタジエン単位における1,2-結合の含有量とを合計し、1,2-結合および3,4-結合の含有量の合計値を算出した。算出結果を表1または表2に示す。

【0156】

3. 物性評価（A層（熱可塑性エラストマー）のtan のピーク温度およびピーク高さ）40

JIS K 7244-10に基づいて、平行平板振動レオメータとして、円板の直径が8mmであるゆがみ制御型動的粘弾性装置（レオミックス社製、ARES）を用いた。実施例1で用いたポリスチレン-ポリイソプレン-ポリスチレントリプロック共重合体の水素添加物（TPE-2）を、押出成形法によって单層シート（厚さ0.76mm）とした。上記单層シートを円板形状に切り出して、試験シートとして用いた。上記試験シートで2枚の平板間の隙間を完全に充填し、温度20、湿度60%RHで24時間以上保持した。歪み量1.0%で、上記試験シートに1Hzの周波数で振動を与え、測定温度を-40~100まで1/minの定速で昇温した。せん断損失弾性率およびせん断貯蔵弾

10

20

30

40

50

性率の測定値に変化がなくなるまで、上記試験シートと円板の温度を保持した。A層(熱可塑性エラストマー)のtan δ のピーク温度およびピーク高さの測定結果を表1に示す。

【0157】

4. 物性評価(合わせガラスの3次共振周波数、3次共振周波数における損失係数、耐湿熱試験後の損失係数)

市販のフロートガラス(縦300mm×横25mm×厚さ1.9mm)2枚に実施例1で得られた合わせガラス用中間膜を挟み、真空バック法(条件:30から160に60分間で昇温し、その後160で30分間保持)によって、合わせガラスを作製した。その後、機械インピーダンス装置(株式会社小野測器製;マスキャンセルアンプ:masscancel amplifier MA-5500;チャンネルデータステーション:DS-2100)における加振器(power amplifier/model 1371-A)のインピーダンスヘッドに内蔵された加振力検出器の先端部に、上記合わせガラスの中央部を固定した。20において、周波数0~10000Hzの範囲で上記合わせガラスの中央部に振動を与えた。この合わせガラスの中央部における加振力と加速度波形を検出することで、中央加振法による合わせガラスのダンピング試験を行った。得られた加振力と、加速度信号を積分して得られた速度信号を基に、加振点(振動を加えた合わせガラスの中央部)の機械インピーダンスを求めた。そして、横軸を周波数、縦軸を機械インピーダンスとして得られるインピーダンス曲線において、ピークを示す周波数と半値幅から、合わせガラスの3次共振周波数および3次共振周波数における損失係数を得た。また該合わせガラスについて耐湿熱試験(温度80、相対湿度95%の条件下で試験品を100時間保持する試験)を行った。耐湿熱試験の後すぐに上記ダンピング試験を行い、合わせガラスの3次共振周波数および3次共振周波数における損失係数を得た。3次共振周波数、耐湿熱試験前の損失係数、耐湿熱試験後の損失係数、および損失係数の減少分の測定結果を表1に示す。

【0158】

5. 物性評価(合わせガラスの遮熱性の評価)

市販のフロートガラス(縦50mm×横50mm×厚さ1.9mm)2枚に実施例1で得られた合わせガラス用中間膜を挟み、真空バック法(条件:30から160に60分間で昇温し、その後160で30分間保持)によって、合わせガラスを作製した。その後、分光光度計U-4100(株式会社日立ハイテクサイエンス製)を用いて、紫外可視近赤外領域における波長の透過率を測定した。なお測定温度は20で行った。波長1500nmの近赤外光の透過率の測定結果を表1に示す。

【0159】

6. 物性評価(合わせガラスのヘイズ、白化距離の評価)

市販のフロートガラス(縦50mm×横50mm×厚さ1.9mm)2枚に実施例1で得られた合わせガラス用中間膜を挟み、真空バック法(条件:30から160に60分間で昇温し、その後160で30分間保持)によって、合わせガラスを作製した。その後、ヘーズメーターHZ-1(スガ試験機株式会社製)を用いて、JIS K 7105に準じて該合わせガラスの中央部におけるヘイズを測定した。なお測定温度は20で行った。また該合わせガラスについて耐湿熱試験(温度80、相対湿度95%の条件下で試験品を100時間保持する試験)を行った。耐湿熱試験の後すぐに、上記と同様の方法で合わせガラスの中央部におけるヘイズを測定した。さらに、合わせガラスの端辺における白化状態も目視にて確認し、合わせガラスの端辺からの白化距離を測定した。合わせガラスにおける耐湿熱試験前のヘイズ、耐湿熱試験後のヘイズ、ヘイズの上昇分、耐湿熱試験後の白化距離の測定結果を表1に示す。

【0160】

7. 物性評価(合わせガラスの耐熱クリープ性の評価)

図2に示すように、縦300mm×横100mm、厚さ3mmのフロートガラス71および72に、実施例1で得られた合わせガラス用中間膜73を挟み、真空ラミネータ(日

10

20

30

40

50

清紡メカトロニクス株式会社製 1522N) を用いて、熱板温度 165°、真空引き時間 12 分、プレス圧力 50 kPa、プレス時間 17 分の条件で合わせガラス 70 を作製した。

【0161】

図 3 に示すように、重さ 1 kg の鉄板 81 をガラス 72 の片側に瞬間接着剤を用いて張り合わせて、鉄板を張り合わせた合わせガラス 80 を作製した。

【0162】

図 4 に示すように、合わせガラス 80 を、スタンド 91 に立て掛け、100° のチャンバー内にて 1 週間放置した。放置後に、ガラス 72 がずり落ちた距離を測定し、前記距離を以下の基準に基づいて評価し、該評価を耐熱クリープ性の評価とした。評価結果を表 1 に示す。

< 評価基準 >

：ガラス 72 がずり落ちた距離が 1 mm 以下である。

×：ガラス 72 がずり落ちた距離が 1 mm を超える。

【0163】

(実施例 2)

B 層において、ポリエステルポリオールを、15 質量部用いる代わりに、25 質量部用いた以外は、実施例 1 と同様の方法で合わせガラス用中間膜および合わせガラスを作製し、各種物性評価を行った。各種物性評価の結果を表 1 に示す。

【0164】

(実施例 3)

B 層において、ポリエステルポリオールを、15 質量部用いる代わりに、40 質量部用いた以外は、実施例 1 と同様の方法で合わせガラス用中間膜および合わせガラスを作製し、各種物性評価を行った。各種物性評価の結果を表 1 に示す。

【0165】

(実施例 4)

窒素置換し、乾燥させた耐圧容器に、溶媒としてシクロヘキサン 50 kg、アニオン重合開始剤として sec - プチルリチウム 76 g を仕込み、ルイス塩基としてテトラヒドロフラン 313 g を仕込んだ (sec - プチルリチウムは、10.5 質量% のシクロヘキサン溶液を含むため、sec - プチルリチウムの実質的な添加量は 8.0 g である)。耐圧容器内を 50° に昇温した後、ステレン 0.5 kg を加えて 1 時間重合させ、引き続いでイソブレン 8.2 kg およびブタジエン 6.5 kg からなる混合液を加えて 2 時間重合させ、さらにステレン 1.5 kg を加えて 1 時間重合させることにより、ポリスチレン - ポリ(イソブレン / ブタジエン) - ポリスチレントリプロック共重合体を得た。

【0166】

該反応液に、オクチル酸ニッケルおよびトリメチルアルミニウムから形成されるチーグラー系水素添加触媒を水素雰囲気下で添加し、水素圧力 1 MPa、80° の条件で 5 時間反応させた。該反応液を放冷および放圧させた後、水洗により上記触媒を除去し、真空乾燥させることにより、ポリスチレン - ポリ(イソブレン / ブタジエン) - ポリスチレントリプロック共重合体の水素添加物(以下、TPE - 1 とする)を得た。次いで、TPE - 1 と TPE - 2 とを質量比 1 : 1 で 200° にて溶融混練して、TPE - 3 を得た。

【0167】

A 層として、TPE - 2 の代わりに、TPE - 3 を用いた以外は、実施例 1 と同様の方法で合わせガラス用中間膜および合わせガラスを作製し、各種物性評価を行った。各種物性評価の結果を表 1 に示す。

【0168】

(実施例 5)

A 層の膜厚を 100 μm、B 層の膜厚を 325 μm とした以外は、実施例 4 と同様の方法で合わせガラス用中間膜および合わせガラスを作製し、各種物性評価を行った。各種物

10

20

30

40

50

性評価の結果を表1に示す。

【0169】

(実施例6)

A層として、TPE-2の代わりに、TPE-1を用いた以外は、実施例1と同様の方法で合わせガラス用中間膜および合わせガラスを作製し、各種物性評価を行った。各種物性評価の結果を表1に示す。

【0170】

(実施例7)

A層の膜厚を100μm、B層の膜厚を325μmとした以外は、実施例6と同様の方法で合わせガラス用中間膜および合わせガラスを作製し、各種物性評価を行った。各種物性評価の結果を表1に示す。

【0171】

(実施例8)

A層の膜厚を380μm、B層の膜厚を190μmとした以外は、実施例1と同様の方法で合わせガラス用中間膜および合わせガラスを作製し、各種物性評価を行った。各種物性評価の結果を表1に示す。

【0172】

(実施例9)

A層に用いるブロック共重合体に対する水添処理において、水素圧力を1MPaとする代わりに、水素圧力を10MPaとして、二重結合残存量が1モル%の水素添加物(以下、TPE-4とする)とした以外は、実施例6と同様の方法で合わせガラス用中間膜および合わせガラスを作製し、各種物性評価を行った。各種物性評価の結果を表1に示す。

【0173】

10

20

【表1】

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	実施例 5	実施例 6	実施例 7	実施例 8	実施例 9
A 層	種類	TPE-2	TPE-2	TPE-2	TPE-3	TPE-3	TPE-1	TPE-1	TPE-2	TPE-4
	重合体ブロック(a)の含有量(質量%)	20	20	20	16	16	12	12	20	12
	重合体ブロック(b)の含有量(質量%)	80	80	80	84	84	88	88	80	88
	重合体ブロック(b)の単体量の質量比	Ip=100	Ip=100	Ip=100	Ip:Bd =77.5:22.5	Ip:Bd =77.5:22.5	Ip:Bd =55:45	Ip:Bd =55:45	Ip=100	Ip:Bd =55:45
	1,2-結合と3,4-結合の合計(mol%)	55	55	55	57.5	57.5	60	60	55	60
	二重結合残存量(mol%)	12.0	12.0	12.0	10.3	10.3	8.5	8.5	12.0	1
	tan δ ピーク温度(°C)	-5.2	-5.2	-5.2	-15.2	-15.2	-22.6	-22.6	-5.2	-22.6
	tan δ ピーク高さ	1.89	1.89	1.89	1.91	1.91	1.92	1.92	1.89	1.92
	接着力調整剤含有量(質量部)	5	5	5	5	5	5	5	5	5
	種類	PVB-a	PVB-a	PVB-a	PVB-a	PVB-a	PVB-a	PVB-a	PVB-a	PVB-a
B 層	粘度平均重合度	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700
	平均アセタール化度(mol%)	70	70	70	70	70	70	70	70	70
	可塑剤種類	P-510	P-510	P-510	P-510	P-510	P-510	P-510	P-510	P-510
	可塑剤含有量(質量部)	15	25	40	15	15	15	15	15	15
	A層の厚さ/B層の厚さの合計	1/2	1/2	1/2	1/6.5	1/6.5	1/2	1/6.5	1/1	1/2
	透過率[1500nm](%)	75	76	75	76	75	76	74	77	76
	3次共振周波数(Hz)	2106	1816	1821	1895	2254	1355	1821	1995	1352
	耐湿熱試験前の損失係数	0.46	0.57	0.52	0.33	0.26	0.29	0.28	0.40	0.28
	耐湿熱試験後の損失係数	0.45	0.54	0.48	0.29	0.21	0.27	0.25	0.35	0.27
	損失係数の減少分	0.01	0.03	0.04	0.04	0.05	0.02	0.03	0.05	0.01
ガラスB/A/B	耐湿熱試験前のヘイズ[%]	0.9	0.9	0.8	0.9	1.0	0.8	1.1	0.6	0.8
	耐湿熱試験後のヘイズ[%]	2.0	1.6	1.5	1.8	2.2	1.9	2.3	1.4	2.0
	ヘイズの上昇分	1.1	0.7	0.7	0.9	1.2	1.1	1.2	0.8	1.2
	耐湿熱試験後の白化距離[mm]	3	1	1	3	2	2	4	3	2
	耐熱クリープ性	○	○	○	○	○	○	○	○	×

※Ip:イソフーレン単位、Bd:ジエン単位 ※P-510:ポリエステルポリオール
 ※接着力調整剤含有量は、熱可塑性エラストマー100質量部に対する量、可塑剤含有量は、ポリビニルブチラール100質量部に対する量を表す。

(実施例 10)

A層に接着剤を用いず、B層として、厚さ250μmに成形したPVBとポリエスチルポリオールとの組成物の代わりに、厚さ250μmのアイオノマーフィルム(デュポン社製、Sentry Glass(R) Interlayer)を用いた以外は、実施例1と同様の方法で合わせガラス用中間膜および合わせガラスを作製し、各種物性評価を行った。各種物性評価の結果を表2に示す。

【0175】

(実施例 11)

A層として、TPE-2の代わりに、TPE-3を用いた以外は、実施例10と同様の方法で合わせガラス用中間膜および合わせガラスを作製し、各種物性評価を行った。各種物性評価の結果を表2に示す。

【0176】

(実施例 12)

A層の膜厚を100μm、B層の膜厚を325μmとした以外は、実施例11と同様の方法で合わせガラス用中間膜および合わせガラスを作製し、各種物性評価を行った。各種物性評価の結果を表2に示す。

【0177】

(実施例 13)

A層として、TPE-2の代わりに、TPE-1を用いた以外は、実施例10と同様の方法で合わせガラス用中間膜および合わせガラスを作製し、各種物性評価を行った。各種物性評価の結果を表2に示す。

【0178】

(実施例 14)

A層の膜厚を100μm、B層の膜厚を325μmとした以外は、実施例13と同様の方法で合わせガラス用中間膜および合わせガラスを作製し、各種物性評価を行った。各種物性評価の結果を表2に示す。

【0179】

(実施例 15)

A層において、100質量部のTPE-2に対して、セシウムドープ酸化タンゲステン(住友金属鉱山株式会社製、YMD874)0.75質量部を添加した以外は、実施例1と同様の方法で合わせガラス用中間膜および合わせガラスを作製し、各種物性評価を行った。各種物性評価の結果を表2に示す。

【0180】

10

20

30

【表2】

	実施例 10	実施例 11	実施例 12	実施例 13	実施例 14	実施例 15
A 層	種類 重合体フロック(a)の含有量(質量%) 20	TPE-2 16	TPE-3 16	TPE-1 12	TPE-1 12	TPE-2 20
	重合体フロック(b)の含有量(質量%) 80	84	84	88	88	80
	重合体フロック(b)の単量体の質量比 Ip=100 1,2-結合と3,4-結合の合計(mol%) =77.5:22.5	Ip:Bd =77.5:22.5	Ip:Bd =77.5:22.5	Ip:Bd =55:45	Ip:Bd =55:45	Ip=100 55
	二重結合残存量(mol%) 12.0	10.3	10.3	8.5	8.5	12.0
	tan δ ピーク温度(°C) -5.2	-15.2	-15.2	-22.6	-22.6	-5.2
	tan δ ピーク高さ 1.89	1.91	1.91	1.92	1.92	1.89
	接着力調整剤含有量(質量部) —	—	—	—	—	5
	種類 粘度平均重合度 —	Ionomer —	Ionomer —	Ionomer —	Ionomer —	PVB-a 17.00
	平均アセタール化度(mol%) —	—	—	—	—	—
	可塑剤種類 —	—	—	—	—	P-510 7.0
	可塑剤含有量(質量部) —	—	—	—	—	—
B 層	A 層の厚さ/B 層の厚さの合計 透過率[1500nm](%) 77	1/2 76	1/2 78	1/2 76	1/2 78	1/2 4.0
	3次共振周波数(Hz) 耐湿熱試験前の損失係数 0.46	2000 0.35	1816 0.33	2157 0.27	1322 0.20	1536 0.36
	耐湿熱試験後の損失係数 0.45	0.01 0.02	0.01 0.02	0.19 0.01	0.35 0.01	0.43 0.02
	損失係数の減少分 耐湿熱試験前のヘイズ[%] 0.8	0.7	0.6	0.7	0.5	1.5
	耐湿熱試験後のヘイズ[%] 1.5	1.6	1.5	1.4	1.4	2.8
	ヘイズの上昇分 0.7	0.9	0.9	0.7	0.9	1.3
	耐湿熱試験後の白化距離[mm] 2	2	1	1	1	3
	耐熱クリープ性 ○	○	○	○	○	○
	※Ip:イソブレン単位、Bd:フェノールホーリオール ※接着力調整剤含有量は、熱可塑性エラストマー-100質量部に対する量、可塑剤含有量は、ポリビニルブチラール100質量部に対する量を表す。					

(比較例 1)

B層として、PVBとポリエステルポリオールとの組成物の代わりに、エチレン・酢酸ビニル共重合体ケン化物（EVAケン化物）（東ソー株式会社製、メルセンH6051）からなる組成物を用いた以外は、実施例1と同様の方法で合わせガラス用中間膜および合わせガラスを作製し、各種物性評価を行った。各種物性評価の結果を表3に示す。

【0182】

(比較例 2)

A層として、ポリスチレン・ポリイソプレン・ポリスチレントリプロック共重合体の水素添加物の代わりに、エチレン・酢酸ビニル共重合体（EVA）（東ソー株式会社製、ウルトラセン635）からなる組成物を用い、接着力調整剤を用いなかった以外は、実施例1と同様の方法で合わせガラス用中間膜および合わせガラスを作製し、各種物性評価を行った。各種物性評価の結果を表3に示す。10

【0183】

(比較例 3)

A層として、ポリスチレン・ポリイソプレン・ポリスチレントリプロック共重合体の水素添加物および接着力調整剤の代わりに、粘度平均重合度約1700、平均アセタール化度64モル%、ビニルアセテート単位の平均含有量12.5モル%のポリビニルブチラル樹脂（以下、PVB-bとする）100質量部に、トリエチレングリコール-ジ（2-エチルヘキサノエート）（以下、3GOとする）60質量部を配合した組成物を用い、B層において、ポリエステルポリオール15質量部の代わりに、3GO60質量部を用いた以外は、実施例5と同様の方法で合わせガラス用中間膜および合わせガラスを作製し、各種物性評価を行った。各種物性評価の結果を表3に示す。20

【0184】

【表3】

		比較例 1	比較例 2	比較例 3
A層	種類	TPE-2	EVA	PVB-b
	重合体ブロック(a)の含有量(質量%)	20	—	—
	重合体ブロック(b)の含有量(質量%)	80	—	—
	重合体ブロック(b)の単量体の質量比	Ip=100	—	—
	1,2-結合と3,4-結合の合計(mol%)	55	—	—
	二重結合残存量(mol%)	12.0	—	—
	$\tan \delta$ ピーク温度(°C)	-5.2	-28.1	0.7
	$\tan \delta$ ピーク高さ	1.89	0.24	0.79
	可塑剤種類	—	—	3GO
可塑剤含有量(質量部)		—	—	60
B層	種類	EVA ケン化物	PVB-a	PVB-a
	粘度平均重合度	—	1700	1700
	平均アセタール化度(mol%)	—	70	70
	可塑剤種類	—	P-510	3GO
	可塑剤含有量(質量部)	—	15	60
合わせ ガラス B/A/B	A層の厚さ/B層の厚さの合計	1/2	1/2	1/6.5
	透過率[1500nm](%)	71	72	76
	3次共振周波数(Hz)	2097	1239	2024
	耐湿熱試験前の損失係数	0.43	0.17	0.34
	耐湿熱試験後の損失係数	0.40	0.11	0.27
	損失係数の減少分	0.03	0.06	0.07
	耐湿熱試験前のヘイズ[%]	2.2	1.6	0.7
	耐湿熱試験後のヘイズ[%]	7.2	4.7	33.3
	ヘイズの上昇分	5.0	3.1	32.6
	耐湿熱試験後の白化距離[mm]	8	7	25
耐熱クリープ性		○	×	○

※Ip:イソブレン単位

※P-510:ポリエステルポリオール ※3GO:トリエチレングリコールジ2-エチルヘキサノエート

※表中の可塑剤含有量は、ポリビニルブチラール100質量部に対する含有量を表す。

【符号の説明】

【0 1 8 5】

- 1 A層
- 2 a B層
- 2 b B層
- 7 0 合わせガラス
- 7 1 ガラス
- 7 2 ガラス

10

20

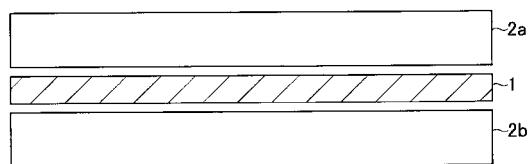
30

40

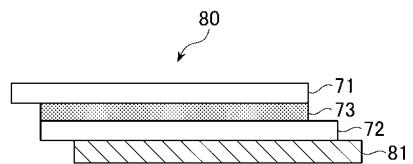
50

- 7 3 合わせガラス用中間膜
 8 0 合わせガラス
 8 1 鉄板
 9 1 スタンド

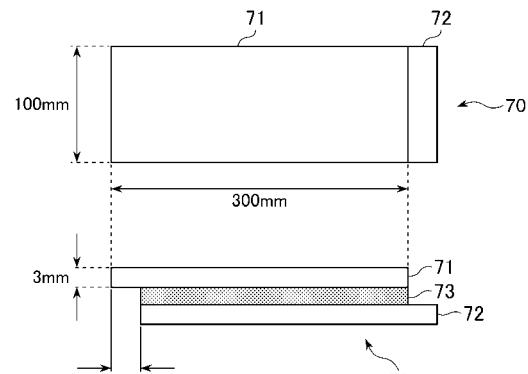
【図 1】



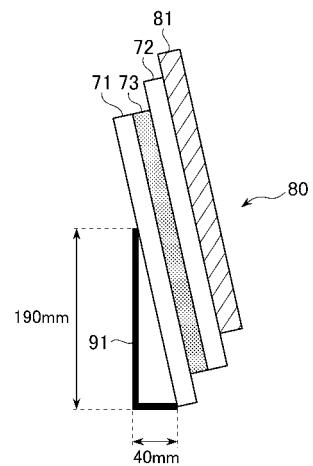
【図 3】



【図 2】



【図 4】



フロントページの続き

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード(参考)
B 3 2 B 27/30 (2006.01)	B 3 2 B 25/00	
	B 3 2 B 27/32	1 0 1
	B 3 2 B 27/30	1 0 2

(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

F ターム(参考) 4F100 AK01A AK01C AK07 AK12 AK23B AK70B AL02 AL09B AN00B AR00B
BA03 BA06 GB07 GB31 JA06B JB16A JB16B JB16C JH01B JJ03
JK07B JN01 JN01A JN01B JN01C YY00A YY00B YY00C
4G061 AA02 AA03 AA04 AA06 AA11 AA20 AA27 AA28 BA01 BA02
CA02 CB03 CB12 CB16 CB18 CB19 CD02 CD03 CD14 CD18
DA10 DA14 DA23 DA28 DA32 DA38 DA46