(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2009 年 10 月 8 日(08.10.2009)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2009/123187 A1

(51) 国際特許分類:
C03C 27/12 (2006.01) *C01G 9/02* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2009/056642

(22) 国際出願日: 2009 年 3 月 31 日(31.03.2009)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2008-092995 2008 年 3 月 31 日(31.03.2008) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 積水化学工業株式会社 (Sekisui Chemical Co., Ltd.) [JP/JP]; 〒5308565 大阪府大阪市北区西天満２丁目４番４号 Osaka (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 伊井大三 (II, Daizo) [JP/JP]; 〒6188589 大阪府三島郡島本町百山２－１ 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 深谷重一 (FUKATANI, Juichi) [JP/JP]; 〒5288585 滋賀県甲賀市水口町泉１２５９ 積水化学工業株式会社内 Shiga (JP). 北野紘史 (KITANO, Hirofumi) [JP/JP]; 〒5288585 滋賀県甲賀市水口町泉１２５９ 積水化学工業株式会社内 Shiga (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人 安富国際特許事務所 (YASUTOMI & Associates); 〒5320003 大阪府大阪市淀川区宮原３丁目５番３６号 Osaka (JP).

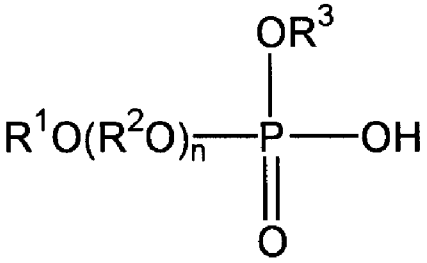
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK,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

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

(54) **Title**: INTERMEDIATE FILM FOR LAMINATED GLASS, LAMINATED GLASS, AND ZINC OXIDE MICROPARTICLE DISPERSION

(54) 発明の名称: 合わせガラス用中間膜、合わせガラス、及び、酸化亜鉛微粒子分散液



（１）

(57) **Abstract**: The objective is to provide an intermediate film for laminated glass, a laminated glass, and a zinc oxide microparticle dispersion, wherein the zinc oxide microparticles exhibit excellent dispersibility. Disclosed is an intermediate film for laminated glass that contains zinc oxide microparticles containing a trivalent metal element and in which a silicon compound is adhered to the surface, a thermoplastic resin, a dispersant, and a plasticizer, wherein said dispersant has a structure represented by general formula (1) and the HLB value is 8-17. (1) R^1 represents a C5-C17 alkyl group or a C6-C14 aryl group, R^2 represents a C2-C5 alkylene group, R^3 represents a hydrogen atom or $R^4(OR^5)_n$-, R^4 represents a C5-C17 alkyl group or a C6-C14 aryl group, R^5 represents a C2-C5 alkylene group, and n is an integer of at least one.

(57) 要約: 本発明は、酸化亜鉛微粒子の分散性に優れる合わせガラス用中間膜、合わせガラス、及び、酸化亜鉛微粒子分散液を提供することを目的とする。 本発明は、３価の金属元素を含有し、かつ、表面にケイ素化合物が付着した酸化亜鉛微粒子と、熱可塑性樹脂と、分散剤と、可塑剤とを含有する合わせガラス用中間膜であって、前記分散剤は、下記一般式（１）で表される構造を有し、かつ、ＨＬＢ値が８～１７である合わせガラス用中間膜である。 [化１] R^1は炭素数が５～１７のアルキル基又は炭素数が６～１４のアリール基を表し、R^2は炭素数が２～５のアルキレン基を表し、R^3は水素原子又は$R^4(OR^5)_n$－を表し、R^4は炭素数が５～１７のアルキル基又は炭素数が６～１４のアリール基を表し、R^5は炭素数が２～５のアルキレン基を表す。ｎは１以上の整数である。

WO 2009/123187 A1

添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

明 細 書

合わせガラス用中間膜、合わせガラス、及び、酸化亜鉛微粒子分散液

技術分野

[0001] 本発明は、酸化亜鉛微粒子の分散性に優れる合わせガラス用中間膜、合わせガラス、及び、酸化亜鉛微粒子分散液に関する。

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が少ないため、安全である。合わせガラスは、自動車等の車両、航空機、建築物等の窓ガラスとして広く使用されている。例えば、可塑剤とポリビニルブチラール樹脂を含有する合わせガラス用中間膜を、少なくとも一対のガラス間に挟み込んだ合わせガラス等が挙げられる。

[0003] しかし、合わせガラスは優れた安全性を持つが、充分に赤外線を遮蔽できないという問題があった。赤外線の波長域は、可視光線より長く、780nm以上の波長域を有する。また、赤外線のエネルギー量は、紫外線のエネルギー量の約10%である。しかし、赤外線は、物質に吸収されると熱として放出されるため、周囲の温度が上昇する。従って、例えば、自動車のフロントガラスやサイドガラスを透過する赤外線を遮断すれば、自動車内部の温度の上昇が抑えられる。特に、近年では、自動車等の開口部の面積が増加する傾向があるため、合わせガラスの赤外線透過率の低下が要求されている。

[0004] 特許文献1には、錫ドープ酸化インジウム微粒子やアンチモンドープ酸化錫微粒子等の遮熱微粒子と、ポリビニルアセタール樹脂とを含有する合わせガラス用中間膜が開示されている。遮熱微粒子が分散している合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスは、遮熱性に優れる。

[0005] 錫ドープ酸化インジウム微粒子やアンチモンドープ酸化錫微粒子等の遮熱微粒子の価格が高騰しているため、遮熱微粒子として、酸化亜鉛微粒子を用いることが検討されている。

しかし、酸化亜鉛微粒子を、ポリビニルアセタール樹脂等の熱可塑性樹脂に均一に

分散させることが困難なため、酸化亜鉛微粒子を含有する合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスはヘーズが高くなり、可視光線透過率が低下するという問題があった。

特許文献2には、錫ドープ酸化インジウム微粒子やアンチモンドープ酸化錫微粒子等の遮熱微粒子の分散性を高めるために、分散剤としてリン酸エステルが開示されている。しかしながら、酸化亜鉛微粒子とリン酸エステルとを組み合わせても、酸化亜鉛微粒子の分散性が向上しないという問題があった。

特許文献1:WO01／25162号公報

特許文献2:特開2001－302288号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

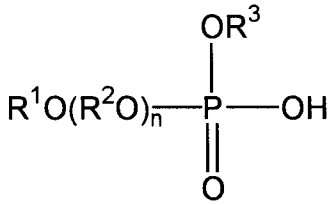
[0006] 本発明は、酸化亜鉛微粒子の分散性に優れる合わせガラス用中間膜、合わせガラス、及び、酸化亜鉛微粒子分散液を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明は、3価の金属元素を含有し、かつ、表面にケイ素化合物が付着した酸化亜鉛微粒子と、熱可塑性樹脂と、分散剤と、可塑剤とを含有する合わせガラス用中間膜であって、

上記分散剤は、下記一般式(1)で表される構造を有し、かつ、HLB値が8～17である合わせガラス用中間膜である。

[0008] [化1]



(1)

[0009] R^1は炭素数が5～17のアルキル基又は炭素数が6～14のアリール基を表し、R^2は炭素数が2～5のアルキレン基を表し、R^3は水素原子又は$R^4(OR^5)_n-$を表し、R^4は炭素数が5～17のアルキル基又は炭素数が6～14のアリール基を表し、R^5は炭素数が2～5のアルキレン基を表す。nは1以上の整数である。

以下に本発明を詳述する。

[0010] 本発明の合わせガラス用中間膜は、3価の金属元素を含有し、かつ、表面にケイ素化合物が付着した酸化亜鉛微粒子と、熱可塑性樹脂と、分散剤と、可塑剤とを含有する。

[0011] 本発明の合わせガラス用中間膜は、3価の金属元素を含有し、かつ、表面にケイ素化合物が付着した酸化亜鉛微粒子を含有する。

本発明の合わせガラス用中間膜においては、このような酸化亜鉛微粒子と、後述する特定の分散剤とを組み合わせることで、酸化亜鉛微粒子の分散性に優れる合わせガラス用中間膜を得ることができる。

[0012] 上記3価の金属元素は特に限定されないが、ガリウム、アルミニウム、インジウム等が挙げられる。なかでも、上記3価の金属元素はガリウムであることが好ましい。また、上記3価の金属元素の異なる2種以上の酸化亜鉛微粒子を併用してもよい。

更に、上記3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子と、上記3価の金属元素以外の元素を含有する酸化亜鉛微粒子とを併用してもよく、上記3価の金属元素と上記3価の金属元素以外の元素を含有する酸化亜鉛微粒子を用いてもよい。

[0013] 上記3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子における上記3価の金属元素の含有量は特に限定されないが、亜鉛元素と3価の金属元素とのモル数の合計に占める3価の金属元素のモル数の割合の好ましい下限は1．0モル％、好ましい上限は10モル％である。上記3価の金属元素のモル数の割合が1．0モル％未満であると、合わせガラスの赤外線透過率が低下しないことがあり、10モル％を超える酸化亜鉛微粒子の製造が困難になることがある。上記モル数の割合のより好ましい下限は1．5モル％、更に好ましい下限は2．0モル％であり、より好ましい上限は8．0モル％、更に好ましい下限は6．0モル％である。

[0014] 上記3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子の製造方法は特に限定されず、従来公知の方法を用いることができる。例えば、上記3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子の製造方法は、共沈法、焼結法、アーク式放電気相法、噴霧熱分解法等が挙げられる。

[0015] 上記共沈法では、例えば、硫酸亜鉛、硝酸亜鉛、塩化亜鉛、炭酸亜鉛、酢酸亜鉛等

の水溶性の亜鉛化合物と、水溶性の3価の金属元素の塩とを含有する水溶液を作製する。水溶液を中和することにより、亜鉛化合物の共沈殿物を生成する。得られた共沈殿物を還元雰囲気にて焼成することにより、3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子が製造できる。

[0016] 上記アーク式放電気相法では、例えば、亜鉛蒸気と、3価の金属元素の蒸気とを酸化性ガスで反応させることにより、3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子が製造できる。

[0017] 上記噴霧熱分解法では、例えば、水溶性の亜鉛化合物と、水溶性の3価の金属元素の塩とを含む水溶液を、火炎、高温燃焼ガス又はプラズマ中にノズルを用いて微細に噴霧する。次いで、水溶性の3価の金属元素の塩を熱分解するか、又は、3価の金属元素の金属イオンを酸化性ガスにより酸化させることにより、3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子が製造できる。

[0018] 上記水溶性の3価の金属元素の塩は特に限定されず、上記金属元素の無機塩、有機塩等が挙げられる。上記金属元素の無機塩は特に限定されず、例えば、上記金属元素のハロゲン化物、炭酸塩、重炭酸塩、硝酸塩、硫酸塩、リン酸塩、ケイ酸塩、ホウ酸塩等が挙げられる。上記金属元素の有機塩は特に限定されず、例えば、酢酸塩、シュウ酸塩、ギ酸塩、グリコール酸塩、クエン酸塩等の有機酸塩等が挙げられる。また、上記金属元素の塩は、無機塩と有機塩との複塩であってもよい。

[0019] 上記3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子の体積平均粒子径は特に限定されないが、好ましい上限は500nmである。上記体積平均粒子径が500nmを超えると、合わせガラスの可視光線透過率が低下することがある。上記体積平均粒子径のより好ましい上限は200nm、更に好ましい上限は100nm、特に好ましい上限は60nmである。

[0020] 上記3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子は、酸化亜鉛の有する光触媒活性により合わせガラス用中間膜に用いられる熱可塑性樹脂、及び、その他有機物等の添加剤を劣化させることがある。また、酸化亜鉛微粒子が酸、アルカリ、又は、その他薬品と反応を起こし、物性が変化してしまうことがある。これらの問題を防ぐために、本発明における酸化亜鉛微粒子の表面には、ケイ素化合物が付着している。

[0021] 上記付着の態様は特に限定されず、上記問題を抑制できる程度であればよく、表面を完全に被覆するような状態であってもよいし、縞状に被覆されて、部分的に被覆するような状態であってもよい。また、3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子の表面上に上記ケイ素化合物が吸着、担持又は堆積されていてもよい。

[0022] 上記3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子を被覆するケイ素化合物の層の厚さは特に限定されないが、好ましい下限は1nm、好ましい上限は50nmである。ケイ素化合物の層の厚さが1nm未満であると、上記問題を抑制する効果が充分に発現しないことがある。ケイ素化合物の層の厚さが50nmを超えると、合わせガラスの可視光線透過率が低下することがある。ケイ素化合物の層の厚さのより好ましい上限は20nm、更に好ましい上限は10nmである。

[0023] 上記3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子を被覆するケイ素化合物の付着量は特に限定されないが、亜鉛原子数に対するケイ素原子数の割合の好ましい下限は0．1％、好ましい上限は5．0％である。上記割合が0．1％未満であると、上記問題を抑制する効果が充分に発現しないことがあり、5．0％を越えると、酸化亜鉛微粒子が凝集してしまうことがある。上記割合のより好ましい下限は0．2％、より好ましい上限は4．5％である。なお、上記割合は、ケイ素原子数を亜鉛原子数で除して得られる値を百分率（％）で表した数値である。

[0024] ケイ素化合物の層を均一にするために、酸化亜鉛微粒子の表面を、酸化ケイ素で被覆することが好ましい。酸化亜鉛微粒子の表面を、酸化ケイ素で被覆する方法は特に限定されず、例えば、トリエトキシシラン等の有機ケイ素等で、酸化亜鉛微粒子の表面を被覆することが好ましい。

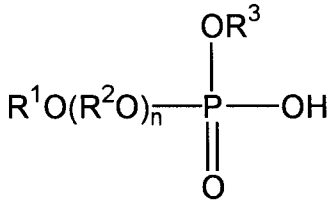
[0025] 本発明の合わせガラス用中間膜の上記3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子の含有量は特に限定されないが、上記熱可塑性樹脂100重量部に対して、好ましい下限は0．01重量部、好ましい上限は5．0重量部である。上記3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子の含有量が0．01重量部未満であると、合わせガラスの赤外線透過率が低下しないことがある。上記3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子の含有量が5．0重量部を超えると、合わせガラスの可視光線透過率が低下することがある。上記3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子の含有量のより好ましい下

限は0．03重量部、より好ましい上限は3．0重量部である。

[0026] 本発明の合わせガラス用中間膜は、分散剤を含有する。

また、上記分散剤は、下記一般式(1)で表される構造を有し、かつ、HLB値が8～17である。

[0027] [化2]



(1)

[0028] R^1は炭素数が5～17のアルキル基又は炭素数が6～14のアリール基を表し、R^2は炭素数が2～5のアルキレン基を表し、R^3は水素原子又は$R^4(OR^5)_n$－を表し、R^4は炭素数が5～17のアルキル基又は炭素数が6～14のアリール基を表し、R^5は炭素数が2～5のアルキレン基を表す。nは1以上の整数である。

[0029] 本発明の合わせガラス用中間膜は、上記分散剤と、上記酸化亜鉛微粒子とを組み合わせることにより、酸化亜鉛微粒子の分散性に優れる合わせガラス用中間膜を得ることができる。

[0030] 上記一般式(1)におけるR^1及びR^4がアルキル基である場合、上記一般式(1)におけるR^1及びR^4の炭素数の下限は5、上限は17である。R^1及びR^4の炭素数が5未満であると、上記分散剤のアルキル基の親水性が強くなるため、上記分散剤が熱可塑性樹脂や可塑剤と相溶しないことがある。その結果、合わせガラスの可視光線透過率が低下する。R^1及びR^4の炭素数が17を超えると、上記分散剤のアルキル基の親油性が強くなるため、上記分散剤が熱可塑性樹脂や可塑剤と相溶しないことがある。その結果、合わせガラスの可視光線透過率が低下する。R^1及びR^4の炭素数の好ましい下限は6、より好ましい下限は8、好ましい上限は16、より好ましい上限は13である。

なお、R^1とR^4とは同一のアルキル基であってもよく異なるアルキル基であってもよいが、同一のアルキル基であることが好ましい。

[0031] 上記一般式(1)におけるR^1及びR^4がアリール基である場合、上記一般式(1)におけ

るR^1及びR^4の炭素数の下限は6、上限は14である。R^1及びR^4の炭素数が14を超えると、上記分散剤のアリール基の親油性が強くなるため、上記分散剤が熱可塑性樹脂や可塑剤と相溶しないことがある。その結果、合わせガラスの可視光線透過率が低下する。R^1及びR^4の炭素数の好ましい下限は8、より好ましい下限は9、特に好ましい下限は11である。

なお、R^1とR^4とは同一のアリール基であってもよく異なるアリール基であってもよいが、同一のアリール基であることが好ましい。

[0032] 上記分散剤は、熱可塑性樹脂や可塑剤との相溶性が優れるため、上記一般式(1)におけるR^1は、2－エチルヘキシル基、ラウリル基、トリデシル基又はオクチルフェニル基であることが好ましい。

[0033] 上記一般式(1)のR^2及びR^5は、炭素数が2～5のアルキレン基を表す。

R^2及びR^5は、炭素数が2～4のアルキレン基であることが好ましく、エチレン基、プロピレン基又はブチレン基であることがより好ましく、エチレン基又はプロピレン基であることが更に好ましく、エチレン基であることが特に好ましい。

R^2とR^5とは同一のアルキレン基であってもよく、異なるアルキレン基であってもよいが、同一のアルキレン基であることが好ましい。

[0034] 上記一般式(1)におけるnは1以上の整数である。上記一般式(1)におけるnは、上記分散剤のHLB値と関係がある。上記一般式(1)におけるnが大きくなると、上記分散剤の親水基の分子量が増加する。そのため、上記分散剤のHLB値が大きくなる。また、上記一般式(1)におけるnが小さくなると、上記分散剤の親水基の分子量が減少する。そのため、上記分散剤のHLB値が小さくなる。

nが0であると、上記分散剤が上記酸化亜鉛微粒子に付着しにくくなるため、上記酸化亜鉛微粒子が凝集する。上記一般式(1)におけるnの好ましい上限は20である。nが20を超えると、上記分散剤が上記酸化亜鉛微粒子に付着しすぎるため、上記酸化亜鉛微粒子が凝集することがある。

なお、上記HLB値は、上記一般式(1)におけるnの値を制御することにより調整できる。また、上記一般式(1)で表される構造を有する分散剤を併用する場合、上記分散剤の配合割合を調整することにより、上記HLB値を制御することができる。

[0035] 上記分散剤のHLB値の下限は8、上限は17である。HLB値が8未満であると、上記分散剤の親油性が強くなるため、上記分散剤が熱可塑性樹脂や可塑剤に相溶しにくくなる。その結果、合わせガラスの可視光線透過率が低下する。HLB値が17を超えると、上記分散剤の親水性が強くなるため、上記分散剤が熱可塑性樹脂や可塑剤に相溶しにくくなる。その結果、合わせガラスの可視光線透過率が低下する。HLB値の好ましい下限は9、より好ましい下限は9．4、好ましい上限は16、より好ましい上限は12である。

なお、本発明のHLB値は、グリフィン法により、以下の式で定義される。

HLB値＝20×（分散剤の親水基の分子量／分散剤の分子量）

なお、親水基の分子量とは、$-(OR^2)_n-$部分と$-(OR^5)_n-$部分との原子量の和を意味する。また、上記一般式（1）で表される構造を有する分散剤を併用する場合、本発明のHLB値は、以下の式で定義される。

HLB値＝20×（分散剤の親水基の数平均分子量／分散剤の数平均分子量）

[0036] 上記分散剤は特に限定されず、例えば、上記一般式（1）においてR^1が炭素数5のイソブチル基である分散剤（R^2がエチレン基、R^3が水素原子と$R^4(OR^5)_n-$との混合物、R^4がイソブチル基、R^5がエチレン基、HLB値が11．0、nが1以上の整数）、上記一般式（1）においてR^1が炭素数8の2－エチルヘキシル基である分散剤（R^2がエチレン基、R^3が水素原子と$R^4(OR^5)_n-$との混合物、R^4が2－エチルヘキシル基、R^5がエチレン基、HLB値が10．0、nが1以上の整数）、上記一般式（1）においてR^1が炭素数12のラウリル基である分散剤（R^2がエチレン基、R^3が水素原子と$R^4(OR^5)_n-$との混合物、R^4がラウリル基、R^5がエチレン基、HLB値が17．0、nが1以上の整数）、上記一般式（1）においてR^1が炭素数13のトリデシル基である分散剤（R^2がエチレン基、R^3が水素原子と$R^4(OR^5)_n-$との混合物、R^4がトリデシル基、R^5がエチレン基、HLB値が9．4、nが1以上の整数）、上記一般式（1）においてR^1が炭素数14のオクチルフェニル基である分散剤（R^2がエチレン基、R^3が水素原子と$R^4(OR^5)_n-$との混合物、R^4がオクチルフェニル基、R^5がエチレン基、HLB値が12．0、nが1以上の整数）、一般式（1）においてR^1が炭素数13のトリデシル基である分散剤（R^2がプロピレン基、R^3が水素原子と$R^4(OR^5)_n-$との混合物、R^4がトリデシル基、R^5がプロピレン基、HL

B値が9．4、nが1以上の整数）、一般式（1）においてR[1]が炭素数13のトリデシル基である分散剤（R[2]がブチレン基、R[3]が水素原子とR[4]（OR[5]）$_n$－との混合物、R[4]がトリデシル基、R[5]がブチレン基、HLB値が9．4、nが1以上の整数）等が挙げられる。

これらの上記一般式（1）で表される構造を有する分散剤は、例えば、第一工業製薬社や東邦化学社等から市販されている。なお、市販の上記一般式（1）で表される構造を有する分散剤の多くは、R[3]が水素原子である分散剤とR[4]（OR[5]）$_n$－である分散剤との混合物であったり、R[1]やnが異なる複数の分散剤の混合物であったりする。

[0037] 本発明の合わせガラス用中間膜における上記分散剤の含有量は特に限定されないが、上記酸化亜鉛微粒子100重量部に対して好ましい下限が1．0重量部であり、好ましい上限が50重量部である。上記分散剤の含有量が1．0重量部未満であると、上記酸化亜鉛微粒子の分散性が低下するため、合わせガラスの可視光線透過率が低下することがある。上記分散剤の含有量が50重量部を超えると、合わせガラスのヘーズが高くなったり、合わせガラス用中間膜とガラスとの接着力が低下したりすることがある。上記分散剤の含有量のより好ましい下限は2．0重量部、更に好ましい下限は3．0重量部、より好ましい上限は40重量部、更に好ましい上限は35重量部である。

[0038] 本発明の合わせガラス用中間膜は、熱可塑性樹脂を含有する。

上記熱可塑性樹脂は特に限定されず、例えば、ポリビニルアセタール樹脂、エチレン－酢酸ビニル共重合体樹脂、エチレン－アクリル共重合体樹脂、ポリウレタン樹脂、硫黄元素を含有するポリウレタン樹脂、ポリビニルアルコール樹脂等が挙げられる。なかでも、ガラスに対する接着力が優れるため、ポリビニルアセタール樹脂が好ましい。

[0039] 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アルデヒドでアセタール化することにより製造できる。なお、上記ポリビニルアセタール樹脂は、必要に応じて、2種以上を併用してもよい。

[0040] 上記ポリビニルアセタール樹脂のアセタール化度の好ましい下限は40モル％、好ましい上限は85モル％であり、より好ましい下限は60モル％、より好ましい上限は75モル％である。

[0041] 上記ポリビニルアルコールは、ポリ酢酸ビニルを鹸化することにより製造できる。

上記ポリビニルアルコールの鹸化度は、80～99．8モル％が好ましい。

上記ポリビニルアルコールの重合度の好ましい下限は200、好ましい上限は3000である。上記重合度が200未満であると、合わせガラスの耐貫通性が低下することがある。上記重合度が3000を超えると、合わせガラス用中間膜の成形が困難となることがある。上記重合度のより好ましい下限は500、より好ましい上限は2000である。

[0042] 上記アルデヒドは特に限定されないが、炭素数が1～10のアルデヒドが好適である。上記炭素数が1～10のアルデヒドは特に限定されず、例えば、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、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、ベンズアルデヒド等が挙げられる。なかでも、n－ブチルアルデヒド、n－ヘキシルアルデヒド、n－バレルアルデヒドが好ましく、炭素数が4のn－ブチルアルデヒドがより好ましい。これらのアルデヒドは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

[0043] 上記アルデヒドは特に限定されないが、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のアルデヒドは特に限定されず、例えば、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、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、ベンズアルデヒド等が挙げられる。なかでも、n－ブチルアルデヒド、n－ヘキシルアルデヒド、n－バレルアルデヒドが好ましく、n－ブチルアルデヒドがより好ましい。

これらのアルデヒドは単独で用いられてもよいし、2種以上が併用されてもよい。

[0044] 本発明の合わせガラス用中間膜は、可塑剤を含有する。

上記可塑剤は特に限定されず、例えば、一塩基性有機酸エステル、多塩基性有機酸エステル等の有機エステル可塑剤、有機リン酸可塑剤、有機亜リン酸可塑剤等のリン酸可塑剤等が挙げられる。

上記一塩基性有機酸エステルは特に限定されないが、例えば、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、トリプロピレングリコール等のグリコールと、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、ペラルゴン酸(n－ノニル酸)、デシル酸等の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。なかでも、トリエチレングリコールジカプロン酸エステル、トリエチレングリコールジ－2－エチル酪酸エステル、トリエチレングリコールジ－n－オクチル酸エステル、トリエチレングリコールジ－2－エチルヘキシル酸エステル等のトリエチレングリコールジアルキル酸エステルが好ましい。

[0045] 上記多塩基性有機酸エステルは特に限定されないが、例えば、アジピン酸、セバシン酸、アゼライン酸等の多塩基性有機酸と、炭素数4～8の直鎖又は分岐構造を有するアルコールとのエステル化合物が挙げられる。なかでも、ジブチルセバシン酸エステル、ジオクチルアゼライン酸エステル、ジブチルカルビトールアジピン酸エステル等が好ましい。

[0046] 上記有機エステル可塑剤は特に限定されず、トリエチレングリコールジ－2－エチルブチレート、トリエチレングリコールジ－2－エチルヘキサノエート、トリエチレングリコールジカプリレート、トリエチレングリコールジ－n－オクタノエート、トリエチレングリコールジ－n－ヘプタノエート、テトラエチレングリコールジ－n－ヘプタノエート、ジブチルセバケート、ジオクチルアゼレート、ジブチルカル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、1，2－ブチレングリコールジ－2－エチレンブチレート、ジエチレングリコールジ－2－エチルブチレート、ジエチレングリコールジ－2－エチルヘキサノエート、ジプロピレングリコールジ－2－エチルブチレート、トリエチレングリコールジ－2－エチルペンタノエート、テトラエチレングリコールジ－2－エチルブチレート、ジエチレングリコールジカプリエート、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、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ビス(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ヘプタノエート、テトラエチレングリコールジヘプタノエート、ジヘキシルアジペート、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

ヘプチルノニル、セバシン酸ジブチル等が挙げられる。

[0047] 上記有機リン酸可塑剤は特に限定されず、例えば、トリブトキシエチルホスフェート、イソデシルフェニルホスフェート、トリイソプロピルホスフェート等が挙げられる。

[0048] 上記可塑剤は、ジヘキシルアジペート(DHA)、トリエチレングリコールジ－2－エチルヘキサノエート(3GO)、テトラエチレングリコールジ－2－エチルヘキサノエート(4GO)、トリエチレングリコールジ－2－エチルブチレート(3GH)、テトラエチレングリコールジ－2－エチルブチレート(4GH)、テトラエチレングリコールジヘプタノエート(4G7)及びトリエチレングリコールジヘプタノエート(3G7)からなる群より選択される少なくとも1種であることが好ましい。

さらに、上記可塑剤は加水分解しにくいため、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)、テトラエチレングリコールジ－2－エチルヘキサノエート(4GO)、テトラエチレングリコールジヘプタノエート(4G7)等のジエステル化合物が好ましく、テトラエチレングリコールジ－2－エチルヘキサノエート(4GO)、テトラエチレングリコールジヘプタノエート(4G7)、トリエチレングリコールジ－2－エチルヘキサノエート(3GO)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が更に好ましい。

[0049] 本発明の合わせガラス用中間膜における上記可塑剤の含有量は特に限定されないが、上記熱可塑性樹脂100重量部に対して好ましい下限が25重量部、好ましい上限が60重量部である。上記可塑剤の含有量が25重量部未満であると、合わせガラスの耐貫通性が低下することがある。上記可塑剤の含有量が60重量部を超えると、上記可塑剤がブリードアウトすることがある。上記可塑剤の含有量のより好ましい下限は30重量部、より好ましい上限は50重量部である。

[0050] 本発明の合わせガラス用中間膜は、上記3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子以外の熱線吸収剤を含有してもよい。上記熱線吸収剤は特に限定されないが、錫ドープ酸化インジウム微粒子、アンチモンドープ酸化錫微粒子、金属元素がドープされた酸化タングステン微粒子、6ホウ化ランタン微粒子、フタロシアニン化合物等が挙げられる。なかでも、上記熱線吸収剤は錫ドープ酸化インジウム微粒子であることが好ましい。

[0051] 本発明の合わせガラス用中間膜は、分散助剤、酸化防止剤、光安定剤、難燃剤、帯電防止剤、接着力調整剤、耐湿剤、熱線反射剤、蛍光増白剤、青色顔料等の添加剤を含有してもよい。

[0052] 本発明の合わせガラス用中間膜は、上記分散助剤を含有してもよい。上記分散助剤は特に限定されないが、アルコール等が挙げられる。上記アルコールは特に限定されず、例えば、メタノール、エタノール、ｎ－プロパノール、イソプロパノール、ｎ－ブタノール、イソブタノール、ｔ－ブチルアルコール、１－ペンタノール、イソアミルアルコール、ｓ－アミルアルコール、３－ペンタノール、ｔｅｒｔ－アミルアルコール、ｎ－ヘキサノール、メチルアミルアルコール、２－エチルブタノール、ｎ－ヘプタノール、２－ヘプタノール、３－ヘプタノール、ｎ－オクタノール、２－オクタノール、２－エチルヘキサノール、３，５，５－トリメチルヘキサノール、ノナノール、ｎ－デカノール、ウンデカノール、トリメチルノニルアルコール、テトラデカノール、ヘプタデカノール、シクロヘキサノール、２－メチルシクロヘキサノール、ベンジルアルコール等が挙げられる。

[0053] 本発明の合わせガラス用中間膜は、1層のみからなる単層構造体であってもよく、複数の層を積層した多層構造体であってもよい。

本発明の合わせガラス用中間膜は、3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子と、熱可塑性樹脂と、一般式(1)で表される構造を有する分散剤と、可塑剤とを含有する熱線遮蔽層を含む、2以上の樹脂層を積層した多層構造体であってもよい。上記多層構造体とは、少なくとも熱線遮蔽層を含む、2以上の樹脂層が積層されていればよい。例えば、上記多層構造体は少なくとも3層の樹脂層を有することが好ましく、例えば、最外層と中間層と最外層との内の、いずれか1層が熱線遮蔽層であればよい。さらに、水酸基量が15～25モル％、アセチル化度が8～18モル％、アセタール化度が60～71モル％のポリビニルアセタール樹脂であり、該ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記可塑剤の含有量が50～70重量部である中間層を有する場合、合わせガラスの遮音性を向上できる。

[0054] 本発明の合わせガラス用中間膜を製造する方法は特に限定されない。例えば、上記3価の金属元素を含有し、かつ、表面にケイ素化合物が付着した酸化亜鉛微粒子と、上記分散剤と、上記可塑剤とを含有する酸化亜鉛微粒子分散液を作製する。上記

酸化亜鉛微粒子分散液と、上記可塑剤と、上記熱可塑性樹脂とを混練し、合わせガラス用中間膜を成形する。

上記混練の方法は特に限定されず、例えば、押出機、プラストグラフ、ニーダー、バンバリーミキサー、カレンダーロール等を用いる方法が挙げられる。なかでも、押出機を用いる方法が好ましい。

また、合わせガラス用中間膜を成形する方法は特に限定されず、例えば、押出法、カレンダー法、プレス法等が挙げられる。

[0055] 本発明の合わせガラス用中間膜は、上記酸化亜鉛微粒子が均一に分散している。そのため、本発明の合わせガラス用中間膜を用いてなる合わせガラスは可視光線透過率が極めて高くなる。

本発明の合わせガラス用中間膜を用いてなる合わせガラスもまた、本発明の1つである。

[0056] 本発明の合わせガラスは、少なくとも一対のガラス間に本発明の合わせガラス用中間膜が挟持された合わせガラスである。

本発明の合わせガラスに用いられるガラス板は特に限定されず、例えば、フロート板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス、網入りガラス、線入り板ガラス、着色された板ガラス、熱線吸収ガラス、熱線反射ガラス、グリーンガラス等の無機ガラスや、ポリカーボネートやポリアクリレート等のプラスチックス板等が挙げられる。

本発明の合わせガラスを製造する方法は特に限定されず、従来公知の方法を用いることができる。

[0057] 本発明の合わせガラスは、本発明の合わせガラス用中間膜を用いてなることから、自動車等の車両のフロントガラス等に好適に用いることができる。

[0058] 本発明の合わせガラス用中間膜を製造する際に得られる酸化亜鉛微粒子分散液、すなわち、3価の金属元素を含有し、かつ、表面にケイ素化合物が付着した酸化亜鉛微粒子と、分散剤と、可塑剤とを含有する酸化亜鉛微粒子分散液であって、上記分散剤は、上記一般式(1)で表される構造を有し、かつ、HLB値が8～17である酸化亜鉛微粒子分散液もまた、本発明の1つである。

発明の効果

[0059] 本発明によれば、酸化亜鉛微粒子の分散性に優れる合わせガラス用中間膜、合わせガラス、及び、酸化亜鉛微粒子分散液を提供することができる。

発明を実施するための最良の形態

[0060] 以下に実施例を挙げて本発明の態様を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例にのみ限定されるものではない。

[0061] (実施例1)

(1)酸化亜鉛微粒子分散液の作製

3価の金属元素としてガリウムを4モル%含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子(Zn原子数に対するSi原子数の割合が1.5%)30重量部と、可塑剤としてトリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート267重量部と、分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル(一般式(1)においてR^1が炭素数13のトリデシル基、R^2がエチレン基、R^3が水素原子と$R^4(OR^5)_n$-との混合物、R^4がトリデシル基、R^5がエチレン基、HLB値が9.4、nが1以上の整数)3重量部と、ジルコニアビーズ1125重量部とを混合し、混合物を得た。得られた混合物をバッチ式ビーズミルで4時間分散させることにより、酸化亜鉛微粒子分散液を作製した。

[0062] (2)合わせガラス用中間膜の作製

得られた酸化亜鉛微粒子分散液11.2重量部と、熱可塑性樹脂としてポリビニルブチラール樹脂(PVB:平均重合度1700、ブチラール化度68.5mol%、水酸基量30.6mol%、アセチル基量0.9mol%)100重量部とを混合した。更に、可塑剤としてトリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエートを熱可塑性樹脂100重量部に対して可塑剤全量が40重量部となるように添加し、混合することにより熱可塑性樹脂組成物を作製した。

得られた熱可塑性樹脂組成物を、二軸異方押出機を用いて成形し、膜厚が760μmの合わせガラス用中間膜を作製した。

[0063] (3)合わせガラスの作製

得られた合わせガラス用中間膜を2枚の透明なフロートガラス(縦5cm×横5cm×厚さ2.5mm)の間に挟み、真空バッグに入れ、933.2hPaまで真空バッグ内を脱気した。次いで、真空バッグを加熱し、真空バッグの内部が100℃に達した後20分間そ

の温度を保持した。真空バッグを自然冷却させ、仮圧着された合わせガラスを取り出した。仮圧着された合わせガラスを、135℃、圧力1．2MPaで20分間オートクレーブを行うことにより合わせガラスを作製した。

[0064] （実施例2）

分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル（一般式（1）においてR^{1}が炭素数8の2－エチルヘキシル基、R^{2}がエチレン基、R^{3}が水素原子とR^4（OR^5）$_n$－との混合物、R^{4}が2－エチルヘキシル基、R^{5}がエチレン基、HLB値が10．0、nが1以上の整数）を用いた以外は実施例1と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0065] （実施例3）

分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル（一般式（1）においてR^{1}が炭素数5のイソブチル基、R^{2}がエチレン基、R^{3}が水素原子とR^4（OR^5）$_n$－との混合物、R^{4}がイソブチル基、R^{5}がエチレン基、HLB値が8．0、nが1以上の整数）を用いた以外は実施例1と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0066] （実施例4）

分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル（一般式（1）においてR^{1}が炭素数14のオクチルフェニル基、R^{2}がエチレン基、R^{3}が水素原子とR^4（OR^5）$_n$－との混合物、R^{4}がオクチルフェニル基、R^{5}がエチレン基、HLB値が12．0、nが1以上の整数）を用いた以外は実施例1と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0067] （実施例5）

分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル（一般式（1）においてR^{1}が炭素数12のラウリル基、R^{2}がエチレン基、R^{3}が水素原子とR^4（OR^5）$_n$－との混合物、R^{4}がラウリル基、R^{5}がエチレン基、HLB値が17．0、nが1以上の整数）を用いた以外は実施例1と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0068] （比較例1）

ポリビニルブチラール樹脂100重量部とトリエチレングリコールジ－2－エチルヘキサノエート40重量部を混合することにより熱可塑性樹脂組成物を得た以外は実施例1と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0069] （比較例2）

分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル（一般式（1）においてR^{1}が炭素数15のノニルフェニル基、R^{2}がエチレン基、R^{3}が水素原子とR^4(OR^5)$_n$－との混合物、R^{4}がノニルフェニル基、R^{5}がエチレン基、HLB値が11．0、nが1以上の整数）を用い、表1の組成比となるように調整した以外は実施例1と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0070] （比較例3）

分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル（一般式（1）においてR^{1}が炭素数4のブチル基、R^{2}がエチレン基、R^{3}が水素原子とR^4(OR^5)$_n$－との混合物、R^{4}がブチル基、R^{5}がエチレン基、HLB値が18．0、nが1以上の整数）を用い、表1の組成比となるように調整した以外は実施例1と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0071] （比較例4）

分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル（一般式（1）においてR^{1}が炭素数13のトリデシル基、R^{2}がエチレン基、R^{3}が水素原子とR^4(OR^5)$_n$－との混合物、R^{4}がトリデシル基、R^{5}がエチレン基、HLB値が7．0、nが1以上の整数）を用い、表1の組成比となるように調整した以外は実施例1と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0072] ＜評価＞

実施例1～5及び比較例2～4で得られた酸化亜鉛微粒子分散液、実施例1～5及び比較例1～4で得られた合わせガラスについて以下の評価を行った。

結果を表1に示した。

[0073] （1）酸化亜鉛微粒子分散液の可視光線透過率（Tv）、及び、赤外線透過率（Tir）

酸化亜鉛微粒子分散液を用いた可塑剤で、表1の粒子濃度となるように希釈した。

希釈された酸化亜鉛微粒子分散液の可視光線透過率(Tv)、及び、赤外線透過率(Tir)を、分光光度計(日立ハイテク社製「U－4100」)を用いて、JIS R 3106(1998)に準拠した方法により、測定した。なお、光路長1mmの石英セルを用いた。

[0074] (2)合わせガラスの可視光線透過率(Tv)、及び、赤外線透過率(Tir)

合わせガラスの可視光線透過率(Tv)、及び、赤外線透過率(Tir)を、分光光度計(日立ハイテク社製「U－4100」)を用いて、JIS R 3106(1998)に準拠した方法により、測定した。

[0075] [表1]

			実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4
分散剤		一般式(1)におけるR^1	トリデシル基	2-エチルヘキシル基	イソブチル基	オクチルフェニル基	ラウリル基	—	ノニルフェニル基	ブチル基	トリデシル基
		R^1の炭素数	13	8	5	14	12	—	15	4	13
		ポリオキシアルキレンのアルキレン部	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	—	エチレン	エチレン	エチレン
		HLB値	9.4	10.0	8.0	12.0	17.0	—	11.0	18.0	7.0
3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子		3価の金属種	ガリウム	ガリウム	ガリウム	ガリウム	ガリウム		ガリウム	ガリウム	ガリウム
		3価の金属の含有比(モル%)	4	4	4	4	4	—	4	4	4
		ケイ素化合物付着量(%)	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	—	1.5	1.5	1.5
酸化亜鉛微粒子分散液	組成(重量部)	酸化亜鉛微粒子	30	30	30	30	30	—	30	30	30
		可塑剤(3GO)	267	267	267	267	267	—	267	267	267
		分散剤	3	3	3	3	3	—	3	3	3
	物性	粒子濃度(重量%)	0.80	0.80	0.80	0.80	0.80	—	0.47	0.41	0.45
		Tv(%)	81.2	81.0	80.5	80.8	80.1	—	66.1	63.2	64.6
		Tir(%)	82.7	82.6	82.4	82.6	82.5	—	82.9	82.9	82.9
合わせガラス用中間膜組成(重量部)		酸化亜鉛微粒子分散液	11.2	11.2	11.2	11.2	11.2	—	6.6	5.7	6.3
		ポリビニルブチラール	100	100	100	100	100	100	100	100	100
		可塑剤(全量)	40	40	40	40	40	40	40	40	40
合わせガラス物性		粒子濃度(重量%)	0.78	0.78	0.78	0.78	0.78	—	0.47	0.41	0.45
		Tv(%)	75.9	75.6	75.5	75.6	75.4	89.0	65.3	64.1	65.4
		Tir(%)	65.0	64.9	64.7	64.8	64.8	75.0	65.0	65.0	64.9

[0076] （実施例6）

3価の金属元素としてガリウムを4モル％含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子（Zn原子数に対するSi原子数の割合が1．5％）に代えて、3価の金属元素としてガリウムを4モル％含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子（Zn原子数に対するSi原子数の割合が0．2％）を用いた以外は実施例1と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0077] （実施例7）

3価の金属元素としてガリウムを4モル％含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子（Zn原子数に対するSi原子数の割合が0．2％）に代えて、3価の金属元素としてガリウムを4モル％含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子（Zn原子数に対するSi原子数の割合が0．8％）を用いた以外は実施例6と同様にして酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0078] （実施例8）

3価の金属元素としてガリウムを4モル％含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子（Zn原子数に対するSi原子数の割合が0．2％）に代えて、3価の金属元素としてガリウムを4モル％含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子（Zn原子数に対するSi原子数の割合が2．4％）を用いた以外は実施例6と同様にして酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0079] （実施例9）

3価の金属元素としてガリウムを4モル％含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子（Zn原子数に対するSi原子数の割合が0．2％）に代えて、3価の金属元素としてガリウムを4モル％含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子（Zn原子数に対するSi原子数の割合が4．5％）を用いた以外は実施例6と同様にして酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0080] （実施例10）

分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル（一般式（1）においてR^{1}が炭素数14のオクチルフェニル基、R^{2}がエチレン基、R^{3}が水素原子とR^4（OR^5）$_n$－との混合物、R^{4}がオクチルフェニル基、R^{5}がエチレン基、HLB値が12．0、nが1

以上の整数)を用いた以外は実施例6と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0081] (実施例11)

3価の金属元素としてガリウムを4モル%含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子(Zn原子数に対するSi原子数の割合が0.2%)に代えて、3価の金属元素としてガリウムを4モル%含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子(Zn原子数に対するSi原子数の割合が0.8%)を用いた以外は実施例10と同様にして酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0082] (実施例12)

3価の金属元素としてガリウムを4モル%含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子(Zn原子数に対するSi原子数の割合が0.2%)に代えて、3価の金属元素としてガリウムを4モル%含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子(Zn原子数に対するSi原子数の割合が2.4%)を用いた以外は実施例10と同様にして酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0083] (実施例13)

3価の金属元素としてガリウムを4モル%含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子(Zn原子数に対するSi原子数の割合が0.2%)に代えて、3価の金属元素としてガリウムを4モル%含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子(Zn原子数に対するSi原子数の割合が4.5%)を用いた以外は実施例10と同様にして酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0084] <評価>

実施例6～13で得られた酸化亜鉛微粒子分散液、及び、合わせガラスについて実施例1と同様の評価を行った。

結果を表2に示した。

[0085] [表2]

			実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12	実施例13
分散剤		一般式(1)におけるR^1	トリデシル基	トリデシル基	トリデシル基	トリデシル基	オクチルフェニル基	オクチルフェニル基	オクチルフェニル基	オクチルフェニル基
		R^1の炭素数	13	13	13	13	14	14	14	14
		ポリオキシアルキレンのアルキレン部	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン
		HLB値	9.4	9.4	9.4	9.4	12.0	12.0	12.0	12.0
3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子		3価の金属種	ガリウム	ガリウム	ガリウム	ガリウム	ガリウム	ガリウム	ガリウム	ガリウム
		3価の金属の含有比(モル%)	4	4	4	4	4	4	4	4
		ケイ素化合物付着量(%)	0.2	0.8	2.4	4.5	0.2	0.8	2.4	4.5
酸化亜鉛微粒子分散液	組成(重量部)	酸化亜鉛微粒子	30	30	30	30	30	30	30	30
		可塑剤(3GO)	267	267	267	267	267	267	267	267
		分散剤	3	3	3	3	3	3	3	3
	物性	粒子濃度(重量%)	0.80	0.80	0.80	0.80	0.80	0.80	0.80	0.80
		Tv(%)	80.8	81.1	81.4	80.7	80.3	80.5	80.7	80.1
		Tir(%)	82.7	82.7	82.7	82.7	82.6	82.6	82.6	82.6
合わせガラス用中間膜組成(重量部)		酸化亜鉛微粒子分散液	11.2	11.2	11.2	11.2	11.2	11.2	11.2	11.2
		ポリビニルブチラール	100	100	100	100	100	100	100	100
		可塑剤(全量)	40	40	40	40	40	40	40	40
合わせガラス物性		粒子濃度(重量%)	0.78	0.78	0.78	0.78	0.78	0.78	0.78	0.78
		Tv(%)	75.8	75.9	76.0	75.6	75.4	75.4	75.5	75.3
		Tir(%)	64.9	65.0	64.8	65.0	65.0	64.9	64.9	65.0

[0086] （実施例14）

3価の金属元素としてガリウムを4モル％含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子（Zn原子数に対するSi原子数の割合が1．5％）に代えて、3価の金属元素としてアルミニウムを4モル％含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子（Zn原子数に対するSi原子数の割合が1．5％）を用い、合わせガラス用中間膜の作製において酸化亜鉛微粒子分散液の配合量を13．6重量部とした以外は実施例1と同様にして酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0087] （実施例15）

分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル（一般式（1）においてR^{1}が炭素数8の2－エチルヘキシル基、R^{2}がエチレン基、R^{3}が水素原子とR^4（OR^5）$_n$－との混合物、R^{4}が2－エチルヘキシル基、R^{5}がエチレン基、HLB値が10．0、nが1以上の整数）を用いた以外は実施例14と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0088] （実施例16）

分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル（一般式（1）においてR^{1}が炭素数5のイソブチル基、R^{2}がエチレン基、R^{3}が水素原子とR^4（OR^5）$_n$－との混合物、R^{4}がイソブチル基、R^{5}がエチレン基、HLB値が8．0、nが1以上の整数）を用いた以外は実施例14と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0089] （実施例17）

分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル（一般式（1）においてR^{1}が炭素数14のオクチルフェニル基、R^{2}がエチレン基、R^{3}が水素原子とR^4（OR^5）$_n$－との混合物、R^{4}がオクチルフェニル基、R^{5}がエチレン基、HLB値が12．0、nが1以上の整数）を用いた以外は実施例14と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0090] （実施例18）

分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル（一般式（1）におい

てR[1]が炭素数12のラウリル基、R[2]がエチレン基、R[3]が水素原子とR[4](OR[5])$_n$－との混合物、R[4]がラウリル基、R[5]がエチレン基、HLB値が17．0、nが1以上の整数)を用いた以外は実施例14と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0091] ＜評価＞

実施例14～18で得られた酸化亜鉛微粒子分散液、及び、合わせガラスについて実施例1と同様の評価を行った。

結果を表3に示した。

[0092] [表3]

		実施例14	実施例15	実施例16	実施例17	実施例18
分散剤	一般式(1)におけるR^1	トリデシル基	2-エチルヘキシル基	イソプチル基	オクチルフェニル基	ラウリル基
	R^1の炭素数	13	8	5	14	12
	ポリオキシアルキレンのアルキレン部	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン
	HLB値	9.4	10.0	8.0	12.0	17.0
3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子	3価の金属種	アルミニウム	アルミニウム	アルミニウム	アルミニウム	アルミニウム
	3価の金属の含有比(モル%)	4	4	4	4	4
	ケイ素化合物付着量(%)	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
酸化亜鉛微粒子分散液 組成(重量部)	酸化亜鉛微粒子	30	30	30	30	30
	可塑剤(3GO)	267	267	267	267	267
	分散剤	3	3	3	3	3
酸化亜鉛微粒子分散液 物性	粒子濃度(重量%)	0.97	0.97	0.97	0.97	0.97
	Tv(%)	81.1	80.9	80.4	80.6	80.0
	Tir(%)	82.7	82.6	82.7	82.6	82.6
合わせガラス用中間膜組成(重量部)	酸化亜鉛微粒子分散液	13.6	13.6	13.6	13.6	13.6
	ポリビニルブチラール	100	100	100	100	100
	可塑剤(全量)	40	40	40	40	40
合わせガラス物性	粒子濃度(重量%)	0.96	0.96	0.96	0.96	0.96
	Tv(%)	75.6	75.6	75.3	75.4	75.2
	Tir(%)	65.0	64.9	65.0	65.0	64.9

[0093] (実施例19)

3価の金属元素としてガリウムを4モル%含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子(Zn原子数に対するSi原子数の割合が1.5%)に代えて、3価の金属元素としてインジウムを4モル%含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子(Zn原子数に対するSi原子数の割合が1.5%)を用い、合わせガラス用中間膜の

作製において酸化亜鉛微粒子分散液の配合量を13．9重量部とした以外は実施例1と同様にして酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0094] （実施例20）

分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル（一般式（1）においてR^{1}が炭素数8の2－エチルヘキシル基、R^{2}がエチレン基、R^{3}が水素原子とR^4（OR^5）$_n$－との混合物、R^{4}が2－エチルヘキシル基、R^{5}がエチレン基、HLB値が10．0、nが1以上の整数）を用いた以外は実施例19と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0095] （実施例21）

分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル（一般式（1）においてR^{1}が炭素数5のイソブチル基、R^{2}がエチレン基、R^{3}が水素原子とR^4（OR^5）$_n$－との混合物、R^{4}がイソブチル基、R^{5}がエチレン基、HLB値が8．0、nが1以上の整数）を用いた以外は実施例19と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0096] （実施例22）

分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル（一般式（1）においてR^{1}が炭素数14のオクチルフェニル基、R^{2}がエチレン基、R^{3}が水素原子とR^4（OR^5）$_n$－との混合物、R^{4}がオクチルフェニル基、R^{5}がエチレン基、HLB値が12．0、nが1以上の整数）を用いた以外は実施例19と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0097] （実施例23）

分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル（一般式（1）においてR^{1}が炭素数12のラウリル基、R^{2}がエチレン基、R^{3}が水素原子とR^4（OR^5）$_n$－との混合物、R^{4}がラウリル基、R^{5}がエチレン基、HLB値が17．0、nが1以上の整数）を用いた以外は実施例19と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0098] ＜評価＞

実施例19～23で得られた酸化亜鉛微粒子分散液、及び、合わせガラスについて実施例1と同様の評価を行った。

結果を表4に示した。

[0099] [表4]

		実施例19	実施例20	実施例21	実施例22	実施例23
分散剤	一般式(1)におけるR^1	トリデシル基	2-エチルヘキシル基	イソブチル基	オクチルフェニル基	ラウリル基
	R^1の炭素数	13	8	5	14	12
	ポリオキシアルキレンのアルキレン部	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン
	HLB値	9.4	10.0	8.0	12.0	17.0
3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子	3価の金属種	インジウム	インジウム	インジウム	インジウム	インジウム
	3価の金属の含有比(モル%)	4	4	4	4	4
	ケイ素化合物付着量(%)	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
酸化亜鉛微粒子分散液 組成(重量部)	酸化亜鉛微粒子	30	30	30	30	30
	可塑剤(3GO)	267	267	267	267	267
	分散剤	3	3	3	3	3
酸化亜鉛微粒子分散液 物性	粒子濃度(重量%)	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99
	Tv(%)	80.0	79.9	79.3	79.4	78.8
	Tir(%)	82.7	82.6	82.7	82.7	82.6
合わせガラス用中間膜組成(重量部)	酸化亜鉛微粒子分散液	13.9	13.9	13.9	13.9	13.9
	ポリビニルブチラール	100	100	100	100	100
	可塑剤(全量)	40	40	40	40	40
合わせガラス物性	粒子濃度(重量%)	0.98	0.98	0.98	0.98	0.98
	Tv(%)	75.2	75.1	75.0	75.8	75.5
	Tir(%)	65.0	65.0	64.8	65.0	64.9

[0100] (実施例24)

分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル(一般式(1)においてR[1]が炭素数13のトリデシル基、R[2]がエチレン基、R[3]が水素原子とR[4](OR[5])[n]－との混合物、R[4]がトリデシル基、R[5]がエチレン基、HLB値が9．4、nが1以上の整数)に代えて、ポリオキシプロピレンアルキルエーテルリン酸エステル(一般式(1)においてR[1]が炭素数13のトリデシル基、R[2]がプロピレン基、R[3]が水素原子とR[4](OR[5])[n]－との混合物、R[4]がトリデシル基、R[5]がプロピレン基、HLB値が9．4、nが1以上の整数)を用い、合わせガラス用中間膜の作製において酸化亜鉛微粒子分散液の配合量を12．6重量部とした以外は実施例1と同様にして酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0101] (実施例25)

分散剤としてポリオキシブチレンアルキルエーテルリン酸エステル(一般式(1)においてR[1]が炭素数13のトリデシル基、R[2]がブチレン基、R[3]が水素原子とR[4](OR[5])[n]－との混合物、R[4]がトリデシル基、R[5]がブチレン基、HLB値が9．4、nが1以上の整数)を用いた以外は実施例24と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0102] ＜評価＞

実施例24～25で得られた酸化亜鉛微粒子分散液、及び、合わせガラスについて実施例1と同様の評価を行った。

結果を表5に示した。

[0103] [表5]

		実施例24	実施例25
分散剤	一般式(1)におけるR^1	ﾄﾘﾃﾞｼﾙ基	ﾄﾘﾃﾞｼﾙ基
	R^1の炭素数	13	13
	ﾎﾟﾘｵｷｼｱﾙｷﾚﾝのｱﾙｷﾚﾝ部	ﾌﾟﾛﾋﾟﾚﾝ	ﾌﾞﾁﾚﾝ
	HLB値	9.4	9.4
3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子	3価の金属種	ｶﾞﾘｳﾑ	ｶﾞﾘｳﾑ
	3価の金属の含有比(モル%)	4	4
	ケイ素化合物付着量(%)	1.5	1.5
酸化亜鉛微粒子分散液	組成(重量部) 酸化亜鉛微粒子	30	30
	組成(重量部) 可塑剤(3GO)	267	267
	組成(重量部) 分散剤	3	3
	物性 粒子濃度(重量%)	0.90	0.90
	物性 Tv(%)	79.7	79.2
	物性 Tir(%)	82.7	82.6
合わせガラス用中間膜組成(重量部)	酸化亜鉛微粒子分散液	12.6	12.6
	ﾎﾟﾘﾋﾞﾆﾙﾌﾞﾁﾗｰﾙ	100	100
	可塑剤(全量)	40	40
合わせガラス物性	粒子濃度(重量%)	0.89	0.89
	Tv(%)	75.1	74.9
	Tir(%)	65.0	64.9

[0104] (実施例26)

合わせガラス用中間膜の作製において酸化亜鉛微粒子分散液の配合量を14.0重量部とした以外は実施例1と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0105] (実施例27)

合わせガラス用中間膜の作製において酸化亜鉛微粒子分散液の配合量を15.4重量部とした以外は実施例26と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0106] (実施例28)

酸化亜鉛微粒子分散液の作製において分散剤の配合量を1重量部とし、合わせガ

ラス用中間膜の作製において酸化亜鉛微粒子分散液の配合量を11．2重量部とした以外は実施例26と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0107] （実施例29）

酸化亜鉛微粒子分散液の作製において分散剤の配合量を2重量部とし、合わせガラス用中間膜の作製において酸化亜鉛微粒子分散液の配合量を11．2重量部とした以外は実施例26と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0108] （実施例30）

酸化亜鉛微粒子分散液の作製において分散剤の配合量を5重量部とし、合わせガラス用中間膜の作製において酸化亜鉛微粒子分散液の配合量を11．2重量部とした以外は実施例26と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0109] （実施例31）

酸化亜鉛微粒子分散液の作製において分散剤の配合量を10重量部とし、合わせガラス用中間膜の作製において酸化亜鉛微粒子分散液の配合量を11．2重量部とした以外は実施例26と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0110] （実施例32）

酸化亜鉛微粒子分散液の作製において可塑剤の配合量を200重量部とし、エタノールの配合量を67重量部とし、合わせガラス用中間膜の作製において酸化亜鉛微粒子分散液の配合量を11．2重量部とした以外は実施例26と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0111] （実施例33）

分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル（一般式（1）においてR^{1}が炭素数8の2－エチルヘキシル基、R^{2}がエチレン基、R^{3}が水素原子とR^4（OR^5）$_n$－との混合物、R^{4}が2－エチルヘキシル基、R^{5}がエチレン基、HLB値が10．0、nが1以上の整数）を用いた以外は実施例32と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、

合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0112] (実施例34)

3価の金属元素としてガリウムを2モル%含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子(Zn原子数に対するSi原子数の割合が1．5%)を用い、合わせガラス用中間膜の作製において酸化亜鉛微粒子分散液の配合量を12．6重量部とした以外は実施例26と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0113] (実施例35)

3価の金属元素としてガリウムを6モル%含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子(Zn原子数に対するSi原子数の割合が1．5%)を用いた以外は実施例26と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0114] (実施例36)

3価の金属元素としてガリウムを4モル%含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子(Zn原子数に対するSi原子数の割合が1．6%)を用い、分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル(一般式(1)においてR^1が炭素数8の2－エチルヘキシル基、R^2がエチレン基、R^3が$R^4(OR^5)_n$－、R^4が2－エチルヘキシル基、R^5がエチレン基、HLB値が9．2、nが1以上の整数)を用い、合わせガラス用中間膜の作製において酸化亜鉛微粒子分散液の配合量を11．2重量部とした以外は実施例26と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0115] (実施例37)

酸化亜鉛微粒子分散液の作製において可塑剤をテトラエチレングリコールジ－2－エチルヘキサノエート(4GO)とし、合わせガラス用中間膜の作製において酸化亜鉛微粒子分散液の配合量を11．2重量部とした以外は実施例26と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0116] (実施例38)

酸化亜鉛微粒子分散液の作製において可塑剤をテトラエチレングリコールジヘプタ

ノエート(4G7)とし、合わせガラス用中間膜の作製において酸化亜鉛微粒子分散液の配合量を11．2重量部とした以外は実施例26と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0117] ＜評価＞

実施例26～38で得られた酸化亜鉛微粒子分散液、及び、合わせガラスについて実施例1と同様の評価を行った。

結果を表6に示した。

[0118] [表6]

		実施例26	実施例27	実施例28	実施例29	実施例30	実施例31	実施例32	実施例33	実施例34	実施例35	実施例36	実施例37	実施例38
分散剤	一般式(1)におけるR^1	トリデシル基	トリデシル基	トリデシル基	トリデシル基	トリデシル基	トリデシル基	トリデシル基	2-エチルヘキシル基	トリデシル基	トリデシル基	2-エチルヘキシル基	トリデシル基	トリデシル基
	R^1の炭素数	13	13	13	13	13	13	13	8	13	13	8	13	13
	ポリオキシアルキレンのアルキレン部	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン
	HLB値	9.4	9.4	9.4	9.4	9.4	9.4	9.4	10.0	9.4	9.4	9.2	9.4	9.4
3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子	3価の金属種	ガリウム	ガリウム	ガリウム	ガリウム	ガリウム	ガリウム	ガリウム	ガリウム	ガリウム	ガリウム	ガリウム	ガリウム	ガリウム
	3価の金属の含有比(モル%)	4	4	4	4	4	4	4	4	2	6	4	4	4
	ケイ素化合物付着量(%)	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.6	1.5	1.5
酸化亜鉛微粒子分散液 組成(重量部)	酸化亜鉛微粒子	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30
	可塑剤(3GO)	267	267	267	267	267	267	200	200	267	267	267	267 (4GO)	267 (4G7)
	分散剤	3	3	1	2	5	10	3	3	3	3	3	3	3
	エタノール	—	—	—	—	—	—	67	67	—	—	—	—	—
酸化亜鉛微粒子分散液 物性	粒子濃度(重量%)	0.90	0.90	0.80	0.80	0.80	0.80	0.80	0.80	0.90	1.00	0.8	0.80	0.80
	Tv(%)	81.7	81.7	79.4	80.4	81.1	81.1	81.4	81.3	80.1	79.5	80.9	81.1	80.6
	Tir(%)	82.7	82.7	82.6	82.7	82.7	82.7	82.8	82.6	82.7	82.7	82.6	82.8	82.7
合わせガラス用中間膜組成(重量部)	酸化亜鉛微粒子分散液	14.0	15.4	11.2	11.2	11.2	11.2	11.2	11.2	12.6	14.0	11.2	11.2	11.2
	ポリビニルブチラール	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	可塑剤(全量)	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40
合わせガラス物性	粒子濃度(重量%)	0.99	1.09	0.80	0.80	0.79	0.78	0.78	0.78	0.89	0.99	0.78	0.78	0.78
	Tv(%)	73.0	70.3	75.6	75.4	75.9	75.9	76.1	75.6	75.1	74.6	75.5	75.9	75.4
	Tir(%)	62.9	60.4	65.0	64.9	64.9	64.9	65.0	64.9	65.0	65.0	64.9	65.0	64.9

[0119] （実施例39）

（1）酸化亜鉛微粒子分散液の作製

3価の金属元素としてガリウムを4モル％含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化亜鉛微粒子（Zn原子数に対するSi原子数の割合が1．5％）30重量部と、可塑剤としてトリエチレングリコールジ－2－エチルヘキサノエート267重量部と、分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル（一般式（1）においてR^1が炭素数13のトリデシル基、R^2がエチレン基、R^3が水素原子と$R^4(OR^5)_n$－との混合物、R^4がトリデシル基、R^5がエチレン基、HLB値が9．4、nが1以上の整数）3重量部と、ジルコニアビーズ1125重量部とを混合し、混合物を得た。得られた混合物をバッチ式ビーズミルで4時間分散させることにより、酸化亜鉛微粒子分散液を作製した。

[0120] （2）錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液の作製

錫ドープ酸化インジウム微粒子30重量部と、可塑剤としてトリエチレングリコールジ－2－エチルヘキサノエート267重量部と、分散剤としてポリリン酸エステル塩3重量部と、ジルコニアビーズ1125重量部とを混合し、混合物を得た。得られた混合物をバッチ式ビーズミルで4時間分散させることにより、錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液を作製した。

[0121] （3）合わせガラス用中間膜の作製

得られた酸化亜鉛微粒子分散液8．82重量部と、錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液0．70重量部と、熱可塑性樹脂としてポリビニルブチラール樹脂（PVB：平均重合度1700、ブチラール化度68．5mol％、水酸基量30．6mol％、アセチル基量0．9mol％）100重量部とを混合した。更に、可塑剤としてトリエチレングリコールジ－2－エチルヘキサノエートを熱可塑性樹脂100重量部に対して可塑剤全量が40重量部となるように添加し、混合することにより熱可塑性樹脂組成物を作製した。

得られた熱可塑性樹脂組成物を、二軸異方押出機を用いて成形し、膜厚が760μmの合わせガラス用中間膜を作製した。

[0122] （4）合わせガラスの作製

得られた合わせガラス用中間膜を2枚の透明なフロートガラス（縦5cm×横5cm×厚さ2．5mm）の間に挟み、真空バッグに入れ、933．2hPaまで真空バッグ内を脱気し

た。次いで、真空バッグを加熱し、真空バッグの内部が100℃に達した後20分間その温度を保持した。真空バッグを自然冷却させ、仮圧着された合わせガラスを取り出した。仮圧着された合わせガラスを、135℃、圧力1．2MPaで20分間オートクレーブを行うことにより合わせガラスを作製した。

[0123] （実施例40）

合わせガラス用中間膜の作製において、酸化亜鉛微粒子分散液の配合量を7．00重量部と、錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液の配合量を1．40重量部とした以外は実施例39と同様にして、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0124] （実施例41）

合わせガラス用中間膜の作製において、酸化亜鉛微粒子分散液の配合量を0．70重量部と、錫ドープ酸化インジウム微粒子分散液の配合量を2．80重量部とした以外は実施例39と同様にして、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0125] ＜評価＞

実施例39～41で得られた合わせガラスについて実施例1と同様の評価を行った。結果を表7に示した。

[0126] [表7]

		実施例39	実施例40	実施例41
合わせガラス用中間膜組成（重量部）	酸化亜鉛微粒子分散液	8．82	7．00	0．70
	錫ﾄﾞｰﾌﾟ酸化ｲﾝｼﾞｳﾑ微粒子分散液	0．70	1．40	2．80
	ﾎﾟﾘﾋﾞﾆﾙﾌﾞﾁﾗｰﾙ	100	100	100
	可塑剤（全量）	40	40	40
合わせガラス物性	酸化亜鉛微粒子濃度（重量%）	0．63	0．50	0．05
	錫ﾄﾞｰﾌﾟ酸化ｲﾝｼﾞｳﾑ微粒子濃度（重量%）	0．05	0．10	0．20
	Tv（%）	79．1	74．5	73．7
	Tir（%）	61．0	57．4	51．2

[0127] （実施例42）

（1）酸化亜鉛微粒子分散液の作製

3価の金属元素としてガリウムを4モル%含有し、かつ、表面にシリカが付着した酸化

亜鉛微粒子(Zn原子数に対するSi原子数の割合が1．5%)30重量部と、可塑剤としてトリエチレングリコールジ－2－エチルヘキサノエート267重量部と、分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル(一般式(1)においてR[1]が炭素数13のトリデシル基、R[2]がエチレン基、R[3]が水素原子とR[4](OR[5])[n]－との混合物、R[4]がトリデシル基、R[5]がエチレン基、HLB値が9．4、nが1以上の整数)3重量部と、ジルコニアビーズ1125重量部とを混合し、混合物を得た。得られた混合物をバッチ式ビーズミルで4時間分散させることにより、酸化亜鉛微粒子分散液を作製した。

[0128] (2)合わせガラス用中間膜の作製

得られた酸化亜鉛微粒子分散液16．0重量部と、熱可塑性樹脂としてポリビニルブチラール樹脂(PVB:平均重合度1700、ブチラール化度68．5mol%、水酸基量30．6mol%、アセチル基量0．9mol%)100重量部とを混合した。更に、可塑剤としてトリエチレングリコールジ－2－エチルヘキサノエートを熱可塑性樹脂100重量部に対して可塑剤全量が40重量部となるように添加し、混合することにより熱可塑性樹脂組成物(スキン層)を作製した。

一方、可塑剤としてトリエチレングリコールジ－2－エチルヘキサノエートをポリビニルブチラール樹脂(PVB:平均重合度2450、ブチラール化度65．5mol%、水酸基量20．1mol%、アセチル基量13．4mol%)100重量部に対して可塑剤全量が60重量部となるように添加し、混合することにより熱可塑性樹脂組成物(中間層)を作製した。

得られた熱可塑性樹脂組成物(スキン層)及び熱可塑性樹脂組成物(中間層)を、二軸異方押出機を用いて成形し、スキン層(膜厚330μm)／中間層(膜厚100μm)／スキン層(膜厚330μm)の合わせガラス用中間膜を作製した。

[0129] (3)合わせガラスの作製

得られた合わせガラス用中間膜を2枚の透明なフロートガラス(縦5cm×横5cm×厚さ2．5mm)の間に挟み、真空バッグに入れ、933．2hPaまで真空バッグ内を脱気した。次いで、真空バッグを加熱し、真空バッグの内部が100℃に達した後20分間その温度を保持した。真空バッグを自然冷却させ、仮圧着された合わせガラスを取り出した。仮圧着された合わせガラスを、135℃、圧力1．2MPaで20分間オートクレーブ

を行うことにより合わせガラスを作製した。

[0130] (実施例43)

分散剤としてポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル(一般式(1)においてR[1]が炭素数8の2－エチルヘキシル基、R[2]がエチレン基、R[3]が水素原子とR[4](OR[5])$_n$－との混合物、R[4]が2－エチルヘキシル基、R[5]がエチレン基、HLB値が10.0、nが1以上の整数)を用いた以外は実施例42と同様にして、酸化亜鉛微粒子分散液、合わせガラス用中間膜、及び、合わせガラスを作製した。

[0131] ＜評価＞

実施例42～43で得られた合わせガラスについて実施例1と同様の評価を行った。結果を表8に示した。

[0132] [表8]

			実施例42	実施例43
分散剤		一般式(1)におけるR[1]	ﾄﾘﾃﾞｼﾙ基	2-ｴﾁﾙﾍｷｼﾙ基
		R[1]の炭素数	13	8
		ﾎﾟﾘｵｷｼｱﾙｷﾚﾝのｱﾙｷﾚﾝ部	ｴﾁﾚﾝ	ｴﾁﾚﾝ
		HLB値	9.4	10.0
3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子		3価の金属種	ｶﾞﾘｳﾑ	ｶﾞﾘｳﾑ
		3価の金属の含有比(モル%)	4	4
		ケイ素化合物付着量(%)	1.5	1.5
酸化亜鉛微粒子分散液	組成(重量部)	酸化亜鉛微粒子	30	30
		可塑剤(3GO)	267	267
		分散剤	3	3
	物性	粒子濃度(重量%)	0.80	0.80
		Tv(%)	81.2	81.0
		Tir(%)	82.7	82.6
合わせガラス用中間膜(スキン層)組成(重量部)		酸化亜鉛微粒子分散液	16.0	16.0
		ﾎﾟﾘﾋﾞﾆﾙﾌﾞﾁﾗｰﾙ	100	100
		可塑剤(全量)	40	40
合わせガラス物性		Tv(%)	76.1	76.1
		Tir(%)	64.9	64.9

産業上の利用可能性

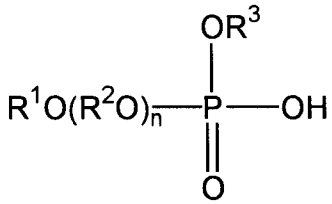
[0133] 本発明によれば、酸化亜鉛微粒子の分散性に優れる合わせガラス用中間膜、合わせガラス、及び、酸化亜鉛微粒子分散液を提供することができる。

請求の範囲

[1] 3価の金属元素を含有し、かつ、表面にケイ素化合物が付着した酸化亜鉛微粒子と、熱可塑性樹脂と、分散剤と、可塑剤とを含有する合わせガラス用中間膜であって、前記分散剤は、下記一般式(1)で表される構造を有し、かつ、HLB値が8～17である

ことを特徴とする合わせガラス用中間膜。

[化1]



(1)

R^1は炭素数が5～17のアルキル基又は炭素数が6～14のアリール基を表し、R^2は炭素数が2～5のアルキレン基を表し、R^3は水素原子又は$R^4(OR^5)_n-$を表し、R^4は炭素数が5～17のアルキル基又は炭素数が6～14のアリール基を表し、R^5は炭素数が2～5のアルキレン基を表す。nは1以上の整数である。

[2] R^1は、2－エチルヘキシル基、ラウリル基、トリデシル基又はオクチルフェニル基であることを特徴とする請求項1記載の合わせガラス用中間膜。

[3] 3価の金属元素は、ガリウム又はアルミニウムであることを特徴とする請求項1又は2記載の合わせガラス用中間膜。

[4] 3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子100重量部に対して、分散剤を1～50重量部含有することを特徴とする請求項1又は2記載の合わせガラス用中間膜。

[5] 更に、熱線吸収剤を含有することを特徴とする請求項1又は2記載の合わせガラス用中間膜。

[6] 熱線吸収剤は錫ドープ酸化インジウム微粒子であることを特徴とする請求項5記載の合わせガラス用中間膜。

[7] 3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子と、熱可塑性樹脂と、一般式(1)で表される構造を有する分散剤と、可塑剤とを含有する熱線遮蔽層を含む、2以上の樹脂層を積層した多層構造体であることを特徴とする請求項1又は2記載の合わせガラス

用中間膜。

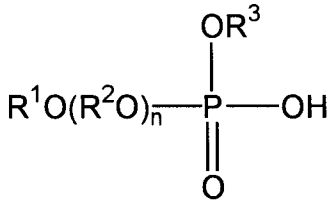
[8] 請求項1又は2記載の合わせガラス用中間膜を用いてなることを特徴とする合わせガラス。

[9] 3価の金属元素を含有し、かつ、表面にケイ素化合物が付着した酸化亜鉛微粒子と、分散剤と、可塑剤とを含有する酸化亜鉛微粒子分散液であって、

前記分散剤は、下記一般式(1)で表される構造を有し、かつ、HLB値が8～17である

ことを特徴とする酸化亜鉛微粒子分散液。

[化2]



(1)

R^1は炭素数が5～17のアルキル基又は炭素数が6～14のアリール基を表し、R^2は炭素数が2～5のアルキレン基を表し、R^3は水素原子又は$R^4(OR^5)_n-$を表し、R^4は炭素数が5～17のアルキル基又は炭素数が6～14のアリール基を表し、R^5は炭素数が2～5のアルキレン基を表す。nは1以上の整数である。

[10] R^1は、2－エチルヘキシル基、ラウリル基、トリデシル基又はオクチルフェニル基であることを特徴とする請求項9記載の酸化亜鉛微粒子分散液。

[11] 3価の金属元素は、ガリウム、アルミニウム又はインジウムであることを特徴とする請求項9又は10記載の酸化亜鉛微粒子分散液。

[12] 3価の金属元素を含有する酸化亜鉛微粒子100重量部に対して、分散剤を1～50重量部含有することを特徴とする請求項9又は10記載の酸化亜鉛微粒子分散液。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2009/056642

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C03C27/12(2006.01)i, *C01G9/02*(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C03C27/00-29/00, C01G9/02, C07F9/09-9/14

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2009 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2009

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2007-45636 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 22 February, 2007 (22.02.07), Claims; Par. Nos. [0015], [0022] to [0025], [0054] (Family: none)	1-12
A	JP 2005-528454 A (Degssa AG.), 22 September, 2005 (22.09.05), Claims & WO 2003/103816 A2 Claims & US 2005/224749 A1 & EP 1511458 A	1-12

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
19 June, 2009 (19.06.09)	07 July, 2009 (07.07.09)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2009/056642

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 9-291298 A (Taiho Industries Co., Ltd.), 11 November, 1997 (11.11.97), Par. Nos. [0033] to [0035] & US 5827444 A1 Column 4, lines 23 to 44	1-12
A	JP 2006-188705 A (Samsung Electronics Co., Ltd.), 20 July, 2006 (20.07.06), Claims & US 2006/145589 A1 Claims & KR 10-2006-79836 A	1-12
A	JP 2005-146174 A (Nitto Denko Corp.), 09 June, 2005 (09.06.05), Par. Nos. [0010] to [0019] (Family: none)	1-12
A	JP 2007-39512 A (Pilot Corp.), 15 February, 2007 (15.02.07), Par. Nos. [0011] to [0013] (Family: none)	1-12

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２００９／０５６６４２

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C03C27/12(2006.01)i, C01G9/02(2006.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C03C27/00-29/00, C01G9/02, C07F9/09-9/14

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２００９年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２００９年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２００９年

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

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	JP 2007-45636 A (積水化学工業株式会社) 2007.02.22, 特許請求の範囲、【００１５】、【００２２】－【００２５】、【００５４】（ファミリーなし）	1-12
A	JP 2005-528454 A (デグサ　アクチエンゲゼルシャフト) 2005.09.22, 特許請求の範囲 & WO 2003/103816 A2 特許請求の範囲 & US 2005/224749 A1 & EP 1511458 A	1-12
A	JP 9-291298 A (タイホー工業株式会社) 1997.11.11, 【００３３】	1-12

☑　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。　　☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「Ｅ」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「Ｘ」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Ｙ」特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
１９．０６．２００９	０７．０７．２００９

国際調査機関の名称及びあて先	特許庁審査官（権限のある職員）	４Ｔ	３８３７
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 郵便番号１００－８９１５ 東京都千代田区霞が関三丁目４番３号	末松　佳記 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４６５		

Ｃ（続き）．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
	－【００３５】 & US 5827444 A1 第４欄２３－４４行	
A	JP 2006-188705 A（三星電子株式会社）2006.07.20, 特許請求の範囲 & US 2006/145589 A1 特許請求の範囲 & KR 10-2006-79836 A	1-12
A	JP 2005-146174 A（日東電工株式会社）2005.06.09, 【００１０】－【００１９】（ファミリーなし）	1-12
A	JP 2007-39512 A（株式会社パイロットコーポレーション）2007.02.15, 【００１１】－【００１３】（ファミリーなし）	1-12