

(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  
2016年3月17日(17.03.2016)



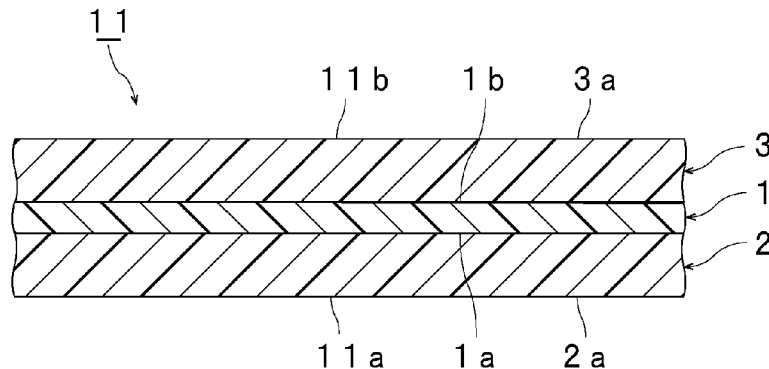
(10) 国際公開番号  
WO 2016/039472 A1

- (51) 国際特許分類:  
C03C 27/12 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2015/075933
- (22) 国際出願日: 2015年9月11日(11.09.2015)
- (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 2014-187077 2014年9月12日(12.09.2014) JP  
 特願 2014-187078 2014年9月12日(12.09.2014) JP  
 特願 2014-187079 2014年9月12日(12.09.2014) JP  
 特願 2014-187080 2014年9月12日(12.09.2014) JP  
 特願 2014-187081 2014年9月12日(12.09.2014) JP  
 特願 2014-187082 2014年9月12日(12.09.2014) JP  
 特願 2014-187083 2014年9月12日(12.09.2014) JP
- (71) 出願人: 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: 岩本 達矢(IWAMOTO, Tatsuya); 〒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). 水口 奈美(MINAKUCHI, Nami); 〒5288585 滋賀県甲賀市水口町泉1259 積水化学工業株式会社内
- (74) 代理人: 特許業務法人 宮▲崎▼・目次特許事務所(MIYAZAKI & METSUGI); 〒5400028 大阪府大阪市中央区常盤町1丁目3番8号 中央大通F Nビル 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, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, 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, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, 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, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, 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, RS, SE, SI, SK, SM, TR),

[続葉有]

(54) Title: INTERLAYER FOR LAMINATED GLASS, AND LAMINATED GLASS

(54) 発明の名称: 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス



(57) Abstract: An interlayer for laminated glass is provided which is capable of improving the flexural rigidity of laminated glass, and which is capable of improving the sound insulation properties of laminated glass. An interlayer for laminated glass according to the present invention is provided with a structure having one layer or a structure having two or more layers, and is provided with a first layer including a polyvinyl acetal resin and a plasticizer. The first layer includes silica particles. The ratio of the content of the silica particles in the first layer to the total of the content of the polyvinyl acetal resin in the first layer and the content of the plasticizer in the first layer is at least 0.03, but not more than 0.4.

(57) 要約: 合わせガラスの曲げ剛性を高めることができ、かつ合わせガラスの遮音性を高めることができる合わせガラス用中間膜を提供する。本発明に係る合わせガラス用中間膜は、1層の構造又は2層以上の構造を有する合わせガラス用中間膜であり、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤を含む第1の層を備え、前記第1の層がシリカ粒子を含み、前記第1の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂の含有量と前記第1の層中の前記可塑剤の含有量との合計に対する前記第1の層中の前記シリカ粒子の含有量の比が0.03以上、0.4以下である。



WO 2016/039472 A1

OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG). 添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

## 明 細 書

発明の名称： 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス

### 技術分野

[0001] 本発明は、合わせガラスを得るために用いられる合わせガラス用中間膜に関する。また、本発明は、上記合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスに関する。

### 背景技術

[0002] 合わせガラスは、外部衝撃を受けて破損してもガラスの破片の飛散量が少なく、安全性に優れている。このため、上記合わせガラスは、自動車、鉄道車両、航空機、船舶及び建築物等に広く使用されている。上記合わせガラスは、2つのガラス板の間に合わせガラス用中間膜を挟み込むことにより、製造されている。

[0003] 上記合わせガラス用中間膜としては、1層の構造を有する単層の中間膜と、2層以上の構造を有する多層の中間膜とがある。

[0004] 上記合わせガラス用中間膜の一例として、下記の特許文献1には、アセタール化度が60～85モル%のポリビニルアセタール樹脂100重量部と、アルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩の内の少なくとも一種の金属塩0.001～1.0重量部と、30重量部を超える可塑剤とを含む遮音層が開示されている。この遮音層は、単層で中間膜として用いられ得る。

[0005] さらに、下記の特許文献1には、上記遮音層と他の層とが積層された多層の中間膜も記載されている。遮音層に積層される他の層は、アセタール化度が60～85モル%のポリビニルアセタール樹脂100重量部と、アルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩の内の少なくとも一種の金属塩0.001～1.0重量部と、30重量部以下である可塑剤とを含む。

[0006] 下記の特許文献2には、33℃以上のガラス転移温度を有するポリマー層である中間膜が開示されている。特許文献2では、上記ポリマー層が、厚みが4.0mm以下であるガラス板の間に配置されることが記載されている。

[0007] 下記の特許文献3には、ポリビニルアセタール（A）、少なくとも1種の可塑剤（B）、フュームドシリカ（C）及び少なくとも1種の塩基性化合物（D）を含む中間膜が開示されている。この中間膜では、フュームドシリカ（C）と可塑化ポリビニルアセタール（A+B）との屈折率の差が0.015以下であり、重量比 $C / (A+B)$ が2.7/100~60/100である。

## 先行技術文献

### 特許文献

[0008] 特許文献1：特開2007-070200号公報

特許文献2：US2013/0236711A1

特許文献3：WO2008/122608A1

### 発明の概要

#### 発明が解決しようとする課題

[0009] 特許文献1~3に記載のような従来の中間膜を用いた合わせガラスでは、曲げ剛性が低いことがある。このため、例えば自動車のサイドドアに使用される場合には、合わせガラスを固定する枠がなく、合わせガラスの剛性が低いことに起因する撓みが原因で、ガラスの開閉に支障をきたすことがある。

[0010] また、近年、合わせガラスを軽量化するために、ガラス板の厚みを薄くすることが求められている。2つのガラス板の間に中間膜が挟み込まれた合わせガラスにおいて、ガラス板の厚みを薄くすると、曲げ剛性を十分に高く維持することが極めて困難であるという問題がある。

[0011] 例えば、ガラス板の厚みが薄くても、中間膜に起因して合わせガラスの曲げ剛性を高めることができれば、合わせガラスを軽量化することができる。合わせガラスが軽量であると、合わせガラスに用いる材料の量を少なくすることができ、環境負荷を低減することができる。さらに、軽量である合わせガラスを自動車に用いると、燃費を向上させることができ、結果として環境負荷を低減することができる。

[0012] なお、特許文献3では、引張強度などの力学特性が改善されることが記載されている。しかし、一般に引張強度と曲げ剛性とは異なる。引張強度をある程度高めることができたとしても、曲げ剛性を十分に高めることができないことがある。

[0013] また、中間膜を用いた合わせガラスでは、曲げ剛性が高いことに加えて、遮音性も高いことが望まれる。特許文献3では、引張強度を高めることができたとしても、遮音性が十分に高くないことがある。特に、厚みが薄いガラス板と、ガラス転移温度が低い遮音層を備える中間膜とを組み合わせることで、合わせガラスの曲げ剛性が不足するという課題は何ら示唆されていない。

[0014] 本発明の目的は、合わせガラスの曲げ剛性を高めることができ、かつ合わせガラスの遮音性を高めることができる合わせガラス用中間膜を提供することである。また、本発明は、上記合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスを提供することも目的とする。

#### 課題を解決するための手段

[0015] 本発明の広い局面によれば、1層の構造又は2層以上の構造を有する合わせガラス用中間膜であり、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む第1の層を備え、前記第1の層がシリカ粒子を含み、前記第1の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂の含有量と前記第1の層中の前記可塑剤の含有量との合計に対する前記第1の層中の前記シリカ粒子の含有量の比が0.03以上、0.4以下である、合わせガラス用中間膜が提供される。

[0016] 本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記第1の層のガラス転移温度が5℃以下である。

[0017] 本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記第1の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、前記第1の層中の前記シリカ粒子の含有量が5重量部以上、64重量部以下である。

[0018] 本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む第2の層を備え、前記第2の

層が、前記第1の層の第1の表面側に配置されている。

[0019] 本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記第1の層のガラス転移温度が、前記第2の層のガラス転移温度よりも低い。

[0020] 本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記第1の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率は、前記第2の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率よりも低い。

[0021] 本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記第1の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する前記第1の層中の前記可塑剤の含有量は、前記第2の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する前記第2の層中の前記可塑剤の含有量よりも多い。

[0022] 本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記第2の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率が32モル%以上である。

[0023] 本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記第2の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、前記第2の層中の前記可塑剤の含有量が35重量部以下である。

[0024] 本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む第3の層を備え、前記第3の層は、前記第1の層の前記第1の表面とは反対の第2の表面側に配置されている。

[0025] 本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、合わせガラス用中間膜の厚みをTとしたときに、前記第1の層の厚みが、0.4T以下である。

[0026] 本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、JIS R3208に準拠した、厚み2mmの2枚のグリーンガラスの間に合わせガラス用中間膜を挟み込むことにより合わせガラスを得たときに、得られる合わせガラスの可視光線透過率が70%以上である。

[0027] 本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記中間膜は

、厚みが1 mm以下である第1のガラス板を用いて、前記第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられる。

[0028] 本発明の広い局面によれば、第1の合わせガラス部材と、第2の合わせガラス部材と、上述した合わせガラス用中間膜とを備え、前記第1の合わせガラス部材と前記第2の合わせガラス部材との間に、前記合わせガラス用中間膜が配置されている、合わせガラスが提供される。

[0029] 本発明に係る合わせガラスのある特定の局面では、前記第1の合わせガラス部材が第1のガラス板であり、前記第1のガラス板の厚みが1 mm以下である。

### 発明の効果

[0030] 本発明に係る合わせガラス用中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む第1の層を備え、上記第1の層がシリカ粒子を含み、上記第1の層中の上記ポリビニルアセタール樹脂の含有量と上記第1の層中の上記可塑剤の含有量との合計に対する上記第1の層中の上記シリカ粒子の含有量の比が0.03以上、0.4以下であるので、中間膜を用いた合わせガラスの曲げ剛性を高めることができ、かつ合わせガラスの遮音性を高めることができる。

### 図面の簡単な説明

[0031] [図1]図1は、本発明の第1の実施形態に係る合わせガラス用中間膜を模式的に示す断面図である。

[図2]図2は、本発明の第2の実施形態に係る合わせガラス用中間膜を模式的に示す断面図である。

[図3]図3は、図1に示す合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスの一例を模式的に示す断面図である。

[図4]図4は、図2に示す合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスの一例を模式的に示す断面図である。

[図5]図5は、曲げ剛性の測定方法を説明するための模式図である。

## 発明を実施するための形態

- [0032] 以下、本発明を詳細に説明する。
- [0033] 本発明に係る合わせガラス用中間膜（本明細書において、「中間膜」と略記することがある）は、1層の構造又は2層以上の構造を有する。本発明に係る中間膜は、1層の構造を有していてもよく、2層以上の構造を有していてもよい。本発明に係る中間膜は、2層の構造を有していてもよく、3層以上の構造を有していてもよい。本発明に係る中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む第1の層を備える。本発明に係る中間膜は、第1の層のみを備える単層の中間膜であってもよく、第1の層と他の層とを備える多層の中間膜であってもよい。
- [0034] 本発明に係る中間膜では、上記第1の層がシリカ粒子を含む。
- [0035] 本発明に係る中間膜では、上記第1の層中の上記ポリビニルアセタール樹脂の含有量と上記第1の層中の上記可塑剤の含有量との合計に対する上記第1の層中の上記シリカ粒子の含有量の比が0.03以上、0.4以下である。
- [0036] 本発明に係る中間膜では、上記の構成が備えられているので、中間膜を用いた合わせガラスの曲げ剛性を高めることができる。また、合わせガラスを得るために、中間膜は、第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されることが多い。第1のガラス板の厚みが薄くても、本発明に係る中間膜の使用により、合わせガラスの曲げ剛性を十分に高くすることができる。また、第1のガラス板と第2のガラス板との双方の厚みが薄くても、本発明に係る中間膜の使用により、合わせガラスの曲げ剛性を十分に高くすることができる。なお、第1のガラス板と第2のガラス板との双方の厚みが厚いと、合わせガラスの曲げ剛性はより一層高くなる。
- [0037] さらに、本発明に係る中間膜では、上記の構成が備えられているので、中間膜を用いた合わせガラスの遮音性も高めることができる。
- [0038] 上記中間膜は、2層以上の構造を有していてもよく、第1の層に加えて第2の層を備えていてもよい。上記中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と可

塑剤とを含む第2の層をさらに備えることが好ましい。上記中間膜が上記第2の層を備える場合に、上記第1の層の第1の表面側に、上記第2の層が配置される。

[0039] 上記中間膜は、3層以上の構造を有していてもよく、第1の層及び第2の層に加えて第3の層を備えていてもよい。上記中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む第3の層をさらに備えることが好ましい。上記中間膜が上記第2の層及び上記第3の層を備える場合に、上記第1の層の上記第1の表面とは反対の第2の表面側に、上記第3の層が配置される。

[0040] 上記第2の層の上記第1の層側とは反対の表面は、合わせガラス部材又はガラス板が積層される表面であることが好ましい。上記第2の層に積層されるガラス板の厚みは1 mm以下であることが好ましい。上記第1の層の第1の表面（上記第2の層側の表面）とは反対の第2の表面は、合わせガラス部材又はガラス板が積層される表面であってもよい。上記第1の層に積層されるガラス板の厚みは1 mm以下であることが好ましい。上記第3の層の上記第1の層側とは反対の表面は、合わせガラス部材又はガラス板が積層される表面であることが好ましい。上記第3の層に積層されるガラス板の厚みは1 mm以下であることが好ましい。

[0041] 中間膜に起因して曲げ剛性を十分に高くすることができるので、上記中間膜は、厚みが1 mm以下である第1のガラス板を用いて、該第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために好適に用いられる。中間膜に起因して曲げ剛性を十分に高くすることができるので、上記中間膜は、厚みが1 mm以下である第1のガラス板と厚みが1 mm以下である第2のガラス板とを用いて、上記第1のガラス板と上記第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るためにより好適に用いられる。

[0042] 以下、図面を参照しつつ、本発明の具体的な実施形態を説明する。

[0043] 図1に、本発明の第1の実施形態に係る合わせガラス用中間膜を模式的に断面図で示す。

[0044] 図1に示す中間膜11は、2層以上の構造を有する多層の中間膜である。

中間膜 11 は、合わせガラスを得るために用いられる。中間膜 11 は、合わせガラス用中間膜である。中間膜 11 は、第 1 の層 1 と、第 2 の層 2 と、第 3 の層 3 とを備える。第 1 の層 1 の第 1 の表面 1 a に、第 2 の層 2 が配置されており、積層されている。第 1 の層 1 の第 1 の表面 1 a とは反対の第 2 の表面 1 b に、第 3 の層 3 が配置されており、積層されている。第 1 の層 1 は中間層である。第 2 の層 2 及び第 3 の層 3 はそれぞれ、保護層であり、本実施形態では表面層である。第 1 の層 1 は、第 2 の層 2 と第 3 の層 3 との間に配置されており、挟み込まれている。従って、中間膜 11 は、第 2 の層 2 と第 1 の層 1 と第 3 の層 3 とがこの順で積層された多層構造（第 2 の層 2 / 第 1 の層 1 / 第 3 の層 3）を有する。

[0045] なお、第 2 の層 2 と第 1 の層 1 との間、及び、第 1 の層 1 と第 3 の層 3 との間にはそれぞれ、他の層が配置されていてもよい。第 2 の層 2 と第 1 の層 1、及び、第 1 の層 1 と第 3 の層 3 とはそれぞれ、直接積層されていることが好ましい。他の層として、ポリエチレンテレフタレート等を含む層が挙げられる。

[0046] 第 1 の層 1 は、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とシリカ粒子とを含む。第 2 の層 2 は、ポリビニルアセタール樹脂を含むことが好ましく、可塑剤を含むことが好ましい。第 3 の層 3 は、ポリビニルアセタール樹脂を含むことが好ましく、可塑剤を含むことが好ましい。

[0047] 図 2 に、本発明の第 2 の実施形態に係る合わせガラス用中間膜を模式的に断面図で示す。

[0048] 図 2 に示す中間膜 11 A は、1 層の構造を有する単層の中間膜である。中間膜 11 A は、第 1 の層である。中間膜 11 A は、合わせガラスを得るために用いられる。中間膜 11 A は、合わせガラス用中間膜である。中間膜 11 A（第 1 の層）は、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とシリカ粒子とを含む。

[0049] 中間膜は、中間膜における中間層又は中間膜における表面層ではない層として、第 1 の層を備えていてもよい。中間膜は、中間膜における表面層とし

て、第2の層を備えることが好ましい。中間膜は、中間膜における表面層として、第3の層を備えることが好ましい。

[0050] 以下、本発明に係る中間膜を構成する上記第1の層、上記第2の層及び上記第3の層の詳細、並びに上記第1の層、上記第2の層及び上記第3の層に含まれる各成分の詳細を説明する。

[0051] (ポリビニルアセタール樹脂又は熱可塑性樹脂)

上記第1の層は、ポリビニルアセタール樹脂（以下、ポリビニルアセタール樹脂（1）と記載することがある）を含む。上記第2の層は、熱可塑性樹脂（以下、熱可塑性樹脂（2）と記載することがある）を含むことが好ましく、熱可塑性樹脂（2）として、ポリビニルアセタール樹脂（以下、ポリビニルアセタール樹脂（2）と記載することがある）を含むことが好ましい。上記第3の層は、熱可塑性樹脂（以下、熱可塑性樹脂（3）と記載することがある）を含むことが好ましく、熱可塑性樹脂（3）として、ポリビニルアセタール樹脂（以下、ポリビニルアセタール樹脂（3）と記載することがある）を含むことが好ましい。上記ポリビニルアセタール樹脂（1）と上記ポリビニルアセタール樹脂（2）と上記ポリビニルアセタール樹脂（3）とは、同一であってもよく、異なってもよいが、遮音性がより一層高くなることから、上記ポリビニルアセタール樹脂（1）は、上記ポリビニルアセタール樹脂（2）及び上記ポリビニルアセタール樹脂（3）と異なっていることが好ましい。上記熱可塑性樹脂（2）と上記熱可塑性樹脂（3）とは、同一であってもよく、異なってもよい。上記ポリビニルアセタール樹脂（1）、上記ポリビニルアセタール樹脂（2）及び上記ポリビニルアセタール樹脂（3）はそれぞれ、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。上記熱可塑性樹脂（2）及び上記熱可塑性樹脂（3）はそれぞれ、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0052] 上記熱可塑性樹脂としては、ポリビニルアセタール樹脂、エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂、エチレン-アクリル酸共重合体樹脂、ポリウレタン樹脂及びポリビニルアルコール樹脂等が挙げられる。これら以外の熱可塑性樹

脂を用いてもよい。

- [0053] 上記ポリビニルアセタール樹脂は、例えば、ポリビニルアルコールをアルデヒドによりアセタール化することにより製造できる。上記ポリビニルアセタール樹脂は、ポリビニルアルコールのアセタール化物であることが好ましい。上記ポリビニルアルコールは、例えば、ポリ酢酸ビニルをけん化することにより得られる。上記ポリビニルアルコールのけん化度は、一般に70～99.9モル%である。
- [0054] 上記ポリビニルアルコール（PVA）の平均重合度は、好ましくは200以上、より好ましくは500以上、より一層好ましくは1500以上、更に好ましくは1600以上、特に好ましくは2600以上、最も好ましくは2700以上、好ましくは5000以下、より好ましくは4000以下、更に好ましくは3500以下である。上記平均重合度が上記下限以上であると、合わせガラスの耐貫通性がより一層高くなる。上記平均重合度が上記上限以下であると、中間膜の成形が容易になる。
- [0055] 上記ポリビニルアルコールの平均重合度は、JIS K6726「ポリビニルアルコール試験方法」に準拠した方法により求められる。
- [0056] 上記ポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール基の炭素数は3～5であることが好ましく、4又は5であることが好ましい。
- [0057] 上記アルデヒドとして、一般には、炭素数が1～10のアルデヒドが好適に用いられる。上記炭素数が1～10のアルデヒドとしては、例えば、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、*n*-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、*n*-バレルアルデヒド、2-エチルブチルアルデヒド、*n*-ヘキシルアルデヒド、*n*-オクチルアルデヒド、*n*-ノニルアルデヒド、*n*-デシルアルデヒド、及びベンズアルデヒド等が挙げられる。なかでも、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、*n*-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、*n*-ヘキシルアルデヒド又は*n*-バレルアルデヒドが好ましく、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、*n*-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド又は*n*-バレルアルデヒドがより好ま

しく、*n*-ブチルアルデヒド又は*n*-バレルアルデヒドが更に好ましい。上記アルデヒドは、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0058] 上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率(水酸基量)は、好ましくは17モル%以上、より好ましくは20モル%以上、更に好ましくは22モル%以上、好ましくは30モル%以下、より好ましくは27モル%未満、更に好ましくは25モル%以下である。上記水酸基の含有率が上記下限以上であると、中間膜の接着力がより一層高くなる。特に、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率が20モル%以上であると反応効率が高く生産性に優れ、また27モル%未満であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。また、上記水酸基の含有率が上記上限以下であると、中間膜の柔軟性が高くなり、中間膜の取扱いが容易になる。

[0059] 上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率(水酸基量)は、好ましくは17モル%以上、より好ましくは20モル%以上、更に好ましくは22モル%以上、好ましくは28モル%以下、より好ましくは27モル%以下、更に好ましくは25モル%以下、特に好ましくは24モル%以下である。上記水酸基の含有率が上記下限以上であると、中間膜の機械強度がより一層高くなる。特に、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率が20モル%以上であると反応効率が高く生産性に優れ、また28モル%以下であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。また、上記水酸基の含有率が上記上限以下であると、中間膜の柔軟性が高くなり、中間膜の取扱いが容易になる。特に、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率が28モル%以下である中間膜を用いた合わせガラスは曲げ剛性が低くなる傾向にあるが、上記第1の層がシリカ粒子を含むことにより、曲げ剛性を顕著に改善できる。

[0060] 上記ポリビニルアセタール樹脂(2)及び上記ポリビニルアセタール樹脂(3)の水酸基の各含有率は、好ましくは25モル%以上、より好ましくは28モル%以上、より好ましくは30モル%以上、より一層好ましくは31

、5モル%以上、更に好ましくは32モル%以上、特に好ましくは33モル%以上、好ましくは38モル%以下、より好ましくは37モル%以下、更に好ましくは36.5モル%以下、特に好ましくは36モル%以下である。上記水酸基の含有率が上記下限以上であると、曲げ剛性がより一層高くなり、中間膜の接着力がより一層高くなる。また、上記水酸基の含有率が上記上限以下であると、中間膜の柔軟性が高くなり、中間膜の取扱いが容易になる。

[0061] 遮音性をより一層高める観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率は、上記ポリビニルアセタール樹脂(2)の水酸基の含有率よりも低いことが好ましい。遮音性をより一層高める観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率は、上記ポリビニルアセタール樹脂(3)の水酸基の含有率よりも低いことが好ましい。遮音性を更に一層高める観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率と、上記ポリビニルアセタール樹脂(2)の水酸基の含有率との差の絶対値は、及び上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率と、上記ポリビニルアセタール樹脂(3)の水酸基の含有率との差の絶対値は、好ましくは1モル%以上、より好ましくは5モル%以上、更に好ましくは9モル%以上、特に好ましくは10モル%以上、最も好ましくは12モル%以上である。上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率と、上記ポリビニルアセタール樹脂(2)の水酸基の含有率との差の絶対値は、及び上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率と、上記ポリビニルアセタール樹脂(3)の水酸基の含有率との差の絶対値は、好ましくは20モル%以下である。シリカ粒子を用いると、シリカ粒子を用いていない場合と比べて、シリカ粒子の影響で遮音性が低くなる傾向があるが、このような水酸基の含有率の関係を満足することで、遮音性を効果的に高めることができる。

[0062] 上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率は、水酸基が結合しているエチレン基量を、主鎖の全エチレン基量で除算して求めたモル分率を百分率で示した値である。上記水酸基が結合しているエチレン基量は、例えば、

J I S K 6 7 2 8 「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠して測定できる。

[0063] 上記ポリビニルアセタール樹脂（１）のアセチル化度（アセチル基量）は、好ましくは０．０１モル％以上、より好ましくは０．１モル％以上、より一層好ましくは７モル％以上、更に好ましくは９モル％以上、好ましくは３０モル％以下、より好ましくは２５モル％以下、更に好ましくは２４モル％以下、特に好ましくは２０モル％以下である。上記アセチル化度が上記下限以上であると、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤との相溶性が高くなる。上記アセチル化度が上記上限以下であると、中間膜及び合わせガラスの耐湿性が高くなる。特に、上記ポリビニルアセタール樹脂（１）のアセチル化度が０．１モル％以上、２５モル％以下であると、耐貫通性に優れる。

[0064] 上記ポリビニルアセタール樹脂（２）及び上記ポリビニルアセタール樹脂（３）の各アセチル化度は、好ましくは０．０１モル％以上、より好ましくは０．５モル％以上、好ましくは１０モル％以下、より好ましくは２モル％以下である。上記アセチル化度が上記下限以上であると、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤との相溶性が高くなる。上記アセチル化度が上記上限以下であると、中間膜及び合わせガラスの耐湿性が高くなる。

[0065] 上記アセチル化度は、アセチル基が結合しているエチレン基量を、主鎖の全エチレン基量で除算して求めたモル分率を百分率で示した値である。上記アセチル基が結合しているエチレン基量は、例えば、J I S K 6 7 2 8 「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠して測定できる。

[0066] 上記ポリビニルアセタール樹脂（１）のアセタール化度（ポリビニルブチラール樹脂の場合にはブチラール化度）は、好ましくは４７モル％以上、より好ましくは６０モル％以上、好ましくは８５モル％以下、より好ましくは８０モル％以下、更に好ましくは７５モル％以下である。上記アセタール化度が上記下限以上であると、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤との相溶性が高くなる。上記アセタール化度が上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂を製造するために必要な反応時間が短くなる。

- [0067] 上記ポリビニルアセタール樹脂（２）及び上記ポリビニルアセタール樹脂（３）の各アセタール化度（ポリビニルブチラール樹脂の場合にはブチラール化度）は、好ましくは５５モル％以上、より好ましくは６０モル％以上、好ましくは７５モル％以下、より好ましくは７１モル％以下である。上記アセタール化度が上記下限以上であると、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤との相溶性が高くなる。上記アセタール化度が上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂を製造するために必要な反応時間が短くなる。
- [0068] 上記アセタール化度は、主鎖の全エチレン基量から、水酸基が結合しているエチレン基量と、アセチル基が結合しているエチレン基量とを差し引いた値を、主鎖の全エチレン基量で除算して求めたモル分率を百分率で示した値である。
- [0069] なお、上記水酸基の含有率（水酸基量）、アセタール化度（ブチラール化度）及びアセチル化度は、JIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により測定された結果から算出することが好ましい。但し、ASTM D 1396-92による測定を用いてもよい。ポリビニルアセタール樹脂がポリビニルブチラール樹脂である場合は、上記水酸基の含有率（水酸基量）、上記アセタール化度（ブチラール化度）及び上記アセチル化度は、JIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により測定された結果から算出され得る。
- [0070] 合わせガラスの耐貫通性をより一層良好にする観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂（１）は、アセチル化度（a）が８モル％未満であり、かつアセタール化度（a）が６５モル％以上であるポリビニルアセタール樹脂（A）であるか、又はアセチル化度（b）が８モル％以上であるポリビニルアセタール樹脂（B）であることが好ましい。上記ポリビニルアセタール樹脂（２）及び上記ポリビニルアセタール樹脂（３）は、上記ポリビニルアセタール樹脂（A）であってもよく、上記ポリビニルアセタール樹脂（B）であってもよい。
- [0071] 上記ポリビニルアセタール樹脂（A）のアセチル化度（a）は８モル％未

満、好ましくは7.9モル%以下、より好ましくは7.8モル%以下、更に好ましくは6.5モル%以下、特に好ましくは6モル%以下、好ましくは0.1モル%以上、より好ましくは0.5モル%以上、更に好ましくは2モル%以上、特に好ましくは5モル%以上、最も好ましくは5.5モル%以上である。上記アセチル化度(a)が0.1モル%以上、8モル%未満であると、可塑剤の移行を容易に制御でき、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。

[0072] 上記ポリビニルアセタール樹脂(A)のアセタール化度(a)は65モル%以上、好ましくは66モル%以上、より好ましくは67モル%以上、更に好ましくは67.5モル%以上、特に好ましくは75モル%以上、好ましくは85モル%以下、より好ましくは84モル%以下、更に好ましくは83モル%以下、特に好ましくは82モル%以下である。上記アセタール化度(a)が上記下限以上であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。上記アセタール化度(a)が上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂(A)を製造するために必要な反応時間を短縮できる。

[0073] 上記ポリビニルアセタール樹脂(A)の水酸基の含有率(a)は好ましくは18モル%以上、より好ましくは19モル%以上、更に好ましくは20モル%以上、特に好ましくは21モル%以上、最も好ましくは23モル%以上、好ましくは31モル%以下、より好ましくは30モル%以下、更に好ましくは29モル%以下、特に好ましくは28モル%以下である。上記水酸基の含有率(a)が上記下限以上であると、上記第2の層の接着力がより一層高くなる。上記水酸基の含有率(a)が上記上限以下であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。

[0074] 上記ポリビニルアセタール樹脂(B)のアセチル化度(b)は、8モル%以上、好ましくは9モル%以上、より好ましくは9.5モル%以上、更に好ましくは10モル%以上、特に好ましくは10.5モル%以上、好ましくは30モル%以下、より好ましくは28モル%以下、更に好ましくは26モル%以下、特に好ましくは24モル%以下である。上記アセチル化度(b)が

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

[0075] 上記ポリビニルアセタール樹脂（B）のアセタール化度（b）は好ましくは50モル%以上、より好ましくは53モル%以上、更に好ましくは55モル%以上、特に好ましくは60モル%以上、好ましくは78モル%以下、より好ましくは75モル%以下、更に好ましくは72モル%以下、特に好ましくは70モル%以下である。上記アセタール化度（b）が上記下限以上であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。上記アセタール化度（b）が上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂（B）を製造するために必要な反応時間を短縮できる。

[0076] 上記ポリビニルアセタール樹脂（B）の水酸基の含有率（b）は好ましくは18モル%以上、より好ましくは19モル%以上、更に好ましくは20モル%以上、特に好ましくは21モル%以上、最も好ましくは23モル%以上、好ましくは31モル%以下、より好ましくは30モル%以下、更に好ましくは29モル%以下、特に好ましくは28モル%以下である。上記水酸基の含有率（b）が上記下限以上であると、上記第2の層の接着力がより一層高くなる。上記水酸基の含有率（b）が上記上限以下であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。

[0077] 上記ポリビニルアセタール樹脂（A）及び上記ポリビニルアセタール樹脂（B）はそれぞれ、ポリビニルブチラール樹脂であることが好ましい。

[0078] （可塑剤）

上記第1の層（単層の中間膜を含む）は、可塑剤（以下、可塑剤（1）と記載することがある）を含む。上記第2の層は、可塑剤（以下、可塑剤（2）と記載することがある）を含むことが好ましい。上記第3の層は、可塑剤（以下、可塑剤（3）と記載することがある）を含むことが好ましい。可塑剤の使用により、またポリビニルアセタール樹脂と可塑剤との併用により、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む層の合わせガラス部材又は他の

層に対する接着力が適度に高くなる。上記可塑剤は特に限定されない。上記可塑剤（１）と上記可塑剤（２）と上記可塑剤（３）とは同一であってもよく、異なってもよい。上記可塑剤（１）、上記可塑剤（２）及び上記可塑剤（３）はそれぞれ、１種のみが用いられてもよく、２種以上が併用されてもよい。

[0079] 上記可塑剤としては、一塩基性有機酸エステル及び多塩基性有機酸エステル等の有機エステル可塑剤、並びに有機リン酸可塑剤及び有機亜リン酸可塑剤などの有機リン酸可塑剤等が挙げられる。なかでも、有機エステル可塑剤が好ましい。上記可塑剤は液状可塑剤であることが好ましい。

[0080] 上記一塩基性有機酸エステルとしては、グリコールと一塩基性有機酸との反応によって得られたグリコールエステル等が挙げられる。上記グリコールとしては、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール及びトリプロピレングリコール等が挙げられる。上記一塩基性有機酸としては、酪酸、イソ酪酸、カプロン酸、２－エチル酪酸、ヘプチル酸、*n*-オクチル酸、２－エチルヘキシル酸、*n*-ノニル酸及びデシル酸等が挙げられる。

[0081] 上記多塩基性有機酸エステルとしては、多塩基性有機酸と、炭素数４～８の直鎖又は分岐構造を有するアルコールとのエステル化合物等が挙げられる。上記多塩基性有機酸としては、アジピン酸、セバシン酸及びアゼライン酸等が挙げられる。

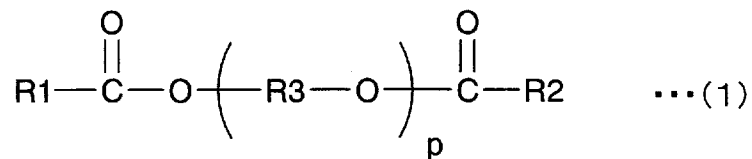
[0082] 上記有機エステル可塑剤としては、トリエチレングリコールジ－２－エチルプロパノエート、トリエチレングリコールジ－２－エチルブチレート、トリエチレングリコールジ－２－エチルヘキサノエート、トリエチレングリコールジカプリレート、トリエチレングリコールジ－*n*-オクタノエート、トリエチレングリコールジ－*n*-ヘプタノエート、テトラエチレングリコールジ－*n*-ヘプタノエート、ジブチルセバケート、ジオクチルアゼレート、ジブチルカルピトールアジペート、エチレングリコールジ－２－エチルブチレート、１，３－プロピレングリコールジ－２－エチルブチレート、１，４－ブチレングリコールジ－２－エチルブチレート、ジエチレングリコールジ－

2-エチルブチレート、ジエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート、ジプロピレングリコールジ-2-エチルブチレート、トリエチレングリコールジ-2-エチルペンタノエート、テトラエチレングリコールジ-2-エチルブチレート、ジエチレングリコールジカプリレート、アジピン酸ジヘキシル、アジピン酸ジオクチル、アジピン酸ヘキシルシクロヘキシル、アジピン酸ヘプチルとアジピン酸ノニルとの混合物、アジピン酸ジイソノニル、アジピン酸ジイソデシル、アジピン酸ヘプチルノニル、セバシン酸ジブチル、油変性セバシン酸アルキド、及びリン酸エステルとアジピン酸エステルとの混合物等が挙げられる。これら以外の有機エステル可塑剤を用いてもよい。上述のアジピン酸エステル以外の他のアジピン酸エステルを用いてもよい。

[0083] 上記有機リン酸可塑剤としては、トリブトキシエチルホスフェート、イソデシルフェニルホスフェート及びトリイソプロピルホスフェート等が挙げられる。

[0084] 上記可塑剤は、下記式(1)で表されるジエステル可塑剤であることが好ましい。

[0085] [化1]



[0086] 上記式(1)中、R1及びR2はそれぞれ、炭素数2~10の有機基を表し、R3は、エチレン基、イソプロピレン基又はn-プロピレン基を表し、pは3~10の整数を表す。上記式(1)中のR1及びR2はそれぞれ、炭素数5~10の有機基であることが好ましく、炭素数6~10の有機基であることがより好ましい。

[0087] 上記可塑剤は、ジ-(2-ブトキシエチル)-アジペート(DBEA)、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(3GO)、トリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート(3GH)又はトリエチレング

リコールジ-2-エチルプロパノエートを含むことが好ましく、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(3GO)、トリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート(3GH)又はトリエチレングリコールジ-2-エチルプロパノエートを含むことがより好ましく、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート又はトリエチレングリコールジ-2-エチルブチレートを含むことが更に好ましく、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエートを含むことが特に好ましい。

[0088] 上記熱可塑性樹脂(2)100重量部に対する上記可塑剤(2)の含有量(以下、含有量(2)と記載することがある)、並びに上記熱可塑性樹脂(3)100重量部に対する上記可塑剤(3)の含有量(以下、含有量(3)と記載することがある)はそれぞれ、好ましくは10重量部以上、より好ましくは15重量部以上、更に好ましくは20重量部以上、特に好ましくは24重量部以上、好ましくは40重量部以下、より好ましくは35重量部以下、更に好ましくは32重量部以下、特に好ましくは30重量部以下である。上記含有量(2)及び上記含有量(3)が上記下限以上であると、中間膜の柔軟性が高くなり、中間膜の取扱いが容易になる。上記含有量(2)及び上記含有量(3)が上記上限以下であると、曲げ剛性がより一層高くなる。

[0089] 上記ポリビニルアセタール樹脂(1)100重量部に対する上記可塑剤(1)の含有量(以下、含有量(1)と記載することがある)は、好ましくは50重量部以上、より好ましくは55重量部以上、更に好ましくは60重量部以上、好ましくは100重量部以下、より好ましくは90重量部以下、更に好ましくは85重量部以下、特に好ましくは80重量部以下である。上記含有量(1)が上記下限以上であると、中間膜の柔軟性が高くなり、中間膜の取扱いが容易になる。上記含有量(1)が上記上限以下であると、合わせガラスの耐貫通性がより一層高くなる。

[0090] 合わせガラスの遮音性を高めるために、上記含有量(1)は上記含有量(2)よりも多いことが好ましく、上記含有量(1)は上記含有量(3)よりも多いことが好ましい。特に、上記含有量(1)が55重量部以上である中

間膜を用いた合わせガラスは曲げ剛性が低くなる傾向にあるが、上記第1の層がシリカ粒子を含むことにより、曲げ剛性を顕著に改善できる。

[0091] 合わせガラスの遮音性をより一層高める観点からは、上記含有量(2)と上記含有量(1)との差の絶対値、並びに上記含有量(3)と上記含有量(1)との差の絶対値はそれぞれ、好ましくは10重量部以上、より好ましくは15重量部以上、更に好ましくは20重量部以上である。上記含有量(2)と上記含有量(1)との差の絶対値、並びに上記含有量(3)と上記含有量(1)との差の絶対値はそれぞれ、好ましくは80重量部以下、より好ましくは75重量部以下、更に好ましくは70重量部以下である。

[0092] (シリカ粒子)

上記第1の層はシリカ粒子を含む。シリカ粒子の使用により、遮音性を低下させずに、曲げ剛性がより一層高くなり、更に各層間接着力も高くなる。上記シリカ粒子は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0093] 上記シリカ粒子のBET法による比表面積は好ましくは $50\text{ m}^2/\text{g}$ 以上、より好ましくは $100\text{ m}^2/\text{g}$ 以上、更に好ましくは $200\text{ m}^2/\text{g}$ 以上、特に好ましくは $250\text{ m}^2/\text{g}$ 以上、最も好ましくは $300\text{ m}^2/\text{g}$ 以上、好ましくは $500\text{ m}^2/\text{g}$ 以下である。上記比表面積は、比表面積/細孔分布測定装置を用いてガス吸着法により測定できる。上記測定装置としては、例えば島津製作所社製「アサップ2420」等が挙げられる。

[0094] 合わせガラスの曲げ剛性と遮音性との双方を高める観点から、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の含有量と上記可塑剤(1)の含有量との合計に対する上記シリカ粒子の含有量の比(シリカ粒子の含有量/ポリビニルアセタール樹脂(1)の含有量と可塑剤(1)の含有量との合計)は、0.03以上、0.4以下である。上記比(ポリビニルアセタール樹脂(1)の含有量と可塑剤(1)の含有量/シリカ粒子の含有量)は好ましくは0.06以上、より好ましくは0.07以上、更に好ましくは0.12以上、好ましくは0.39以下、より好ましくは0.38以下、更に好ましくは0.32以

下、特に好ましくは0.25以下である。上記比が上記下限以上であると、曲げ剛性がより一層高くなる。上記比が上記上限以下であると、遮音性がより一層高くなる。

[0095] 上記ポリビニルアセタール樹脂(1)100重量部に対して、上記シリカ粒子の含有量は、好ましくは1重量部以上、より好ましくは5重量部以上、更に好ましくは10重量部以上、特に好ましくは15重量部以上、好ましくは70重量部以下、より好ましくは64重量部以下、より一層好ましくは60重量部以下、更に好ましくは55重量部以下、特に好ましくは45重量部以下、最も好ましくは35重量部以下である。上記シリカ粒子の含有量が上記下限以上であると、各層間の接着力がより一層高くなり、曲げ剛性がより一層高くなる。上記シリカ粒子の含有量が上記上限以下であると、遮音性がより一層高くなる。

[0096] (遮熱性化合物)

上記中間膜は、遮熱性化合物を含むことが好ましい。上記第1の層は、遮熱性化合物を含むことが好ましい。上記第2の層は、遮熱性化合物を含むことが好ましい。上記第3の層は、遮熱性化合物を含むことが好ましい。上記遮熱性化合物は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0097] 成分X：

上記中間膜は、フタロシアニン化合物、ナフタロシアニン化合物及びアントラシアニン化合物の内の少なくとも1種の成分Xを含むことが好ましい。上記第1の層は、上記成分Xを含むことが好ましい。上記第2の層は、上記成分Xを含むことが好ましい。上記第3の層は、上記成分Xを含むことが好ましい。上記成分Xは遮熱性化合物である。上記成分Xは、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0098] 上記成分Xは特に限定されない。成分Xとして、従来公知のフタロシアニン化合物、ナフタロシアニン化合物及びアントラシアニン化合物を用いることができる。

[0099] 中間膜及び合わせガラスの遮熱性をより一層高くする観点からは、上記成分Xは、フタロシアニン、フタロシアニンの誘導体、ナフタロシアニン及びナフタロシアニンの誘導体からなる群から選択される少なくとも1種であることが好ましく、フタロシアニン及びフタロシアニンの誘導体の内の少なくとも1種であることがより好ましい。

[0100] 遮熱性を効果的に高め、かつ長期間にわたり可視光線透過率をより一層高いレベルで維持する観点からは、上記成分Xは、バナジウム原子又は銅原子を含有することが好ましい。上記成分Xは、バナジウム原子を含有することが好ましく、銅原子を含有することも好ましい。上記成分Xは、バナジウム原子又は銅原子を含有するフタロシアニン及びバナジウム原子又は銅原子を含有するフタロシアニンの誘導体の内の少なくとも1種であることがより好ましい。中間膜及び合わせガラスの遮熱性を更に一層高くする観点からは、上記成分Xは、バナジウム原子に酸素原子が結合した構造単位を有することが好ましい。

[0101] 上記成分Xを含む層（第1の層、第2の層又は第3の層）100重量%中、上記成分Xの含有量は、好ましくは0.001重量%以上、より好ましくは0.005重量%以上、更に好ましくは0.01重量%以上、特に好ましくは0.02重量%以上、好ましくは0.2重量%以下、より好ましくは0.1重量%以下、更に好ましくは0.05重量%以下、特に好ましくは0.04重量%以下である。上記成分Xの含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、遮熱性が十分に高くなり、かつ可視光線透過率が十分に高くなる。例えば、可視光線透過率を70%以上にすることが可能である。

[0102] 遮熱粒子：

上記中間膜は、遮熱粒子を含むことが好ましい。上記第1の層は、上記遮熱粒子を含むことが好ましい。上記第2の層は、上記遮熱粒子を含むことが好ましい。上記第3の層は、上記遮熱粒子を含むことが好ましい。上記遮熱粒子は遮熱性化合物である。遮熱粒子の使用により、赤外線（熱線）を効果的に遮断できる。上記遮熱粒子は、1種のみが用いられてもよく、2種以上

が併用されてもよい。

[0103] 合わせガラスの遮熱性をより一層高める観点からは、上記遮熱粒子は、金属酸化物粒子であることがより好ましい。上記遮熱粒子は、金属の酸化物により形成された粒子（金属酸化物粒子）であることが好ましい。

[0104] 可視光よりも長い波長780nm以上の赤外線は、紫外線と比較して、エネルギー量が小さい。しかしながら、赤外線は熱的作用が大きく、赤外線が物質に吸収されると熱として放出される。このため、赤外線は一般に熱線と呼ばれている。上記遮熱粒子の使用により、赤外線（熱線）を効果的に遮断できる。なお、遮熱粒子とは、赤外線を吸収可能な粒子を意味する。

[0105] 上記遮熱粒子の具体例としては、アルミニウムドープ酸化錫粒子、インジウムドープ酸化錫粒子、アンチモンドープ酸化錫粒子（ATO粒子）、ガリウムドープ酸化亜鉛粒子（GZO粒子）、インジウムドープ酸化亜鉛粒子（IZO粒子）、アルミニウムドープ酸化亜鉛粒子（AZO粒子）、ニオブドープ酸化チタン粒子、ナトリウムドープ酸化タングステン粒子、セシウムドープ酸化タングステン粒子、タリウムドープ酸化タングステン粒子、ルビジウムドープ酸化タングステン粒子、錫ドープ酸化インジウム粒子（ITO粒子）、錫ドープ酸化亜鉛粒子、珪素ドープ酸化亜鉛粒子等の金属酸化物粒子や、六ホウ化ランタン（LaB<sub>6</sub>）粒子等が挙げられる。これら以外の遮熱粒子を用いてもよい。なかでも、熱線の遮蔽機能が高いため、金属酸化物粒子が好ましく、ATO粒子、GZO粒子、IZO粒子、ITO粒子又は酸化タングステン粒子がより好ましく、ITO粒子又は酸化タングステン粒子が特に好ましい。特に、熱線の遮蔽機能が高く、かつ入手が容易であるので、錫ドープ酸化インジウム粒子（ITO粒子）が好ましく、酸化タングステン粒子も好ましい。

[0106] 中間膜及び合わせガラスの遮熱性をより一層高くする観点からは、酸化タングステン粒子は、金属ドープ酸化タングステン粒子であることが好ましい。上記「酸化タングステン粒子」には、金属ドープ酸化タングステン粒子が含まれる。上記金属ドープ酸化タングステン粒子としては、具体的には、ナ

トリウムドープ酸化タングステン粒子、セシウムドープ酸化タングステン粒子、タリウムドープ酸化タングステン粒子及びルビジウムドープ酸化タングステン粒子等が挙げられる。

[0107] 中間膜及び合わせガラスの遮熱性をより一層高くする観点からは、セシウムドープ酸化タングステン粒子が特に好ましい。中間膜及び合わせガラスの遮熱性を更に一層高くする観点からは、該セシウムドープ酸化タングステン粒子は、式： $Cs_{0.33}WO_3$ で表される酸化タングステン粒子であることが好ましい。

[0108] 上記遮熱粒子の平均粒子径は好ましくは $0.01\mu m$ 以上、より好ましくは $0.02\mu m$ 以上、好ましくは $0.1\mu m$ 以下、より好ましくは $0.05\mu m$ 以下である。平均粒子径が上記下限以上であると、熱線の遮蔽性が充分に高くなる。平均粒子径が上記上限以下であると、遮熱粒子の分散性が高くなる。

[0109] 上記「平均粒子径」は、体積平均粒子径を示す。平均粒子径は、粒度分布測定装置（日機装社製「UPA-EX150」）等を用いて測定できる。

[0110] 上記遮熱粒子を含む層（第1の層、第2の層又は第3の層）100重量%中、上記遮熱粒子の含有量は、好ましくは0.01重量%以上、より好ましくは0.1重量%以上、更に好ましくは1重量%以上、特に好ましくは1.5重量%以上、好ましくは6重量%以下、より好ましくは5.5重量%以下、更に好ましくは4重量%以下、特に好ましくは3.5重量%以下、最も好ましくは3重量%以下である。上記遮熱粒子の含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、遮熱性が充分に高くなり、かつ可視光線透過率が充分に高くなる。

[0111] （金属塩）

上記中間膜は、アルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩の内の少なくとも1種の金属塩（以下、金属塩Mと記載することがある）を含むことが好ましい。上記第1の層は、上記金属塩Mを含むことが好ましい。上記第2の層は、上記金属塩Mを含むことが好ましい。上記第3の層は、上記金属塩Mを含

むことが好ましい。上記金属塩Mの使用により、中間膜と合わせガラス部材との接着性又は中間膜における各層間の接着性を制御することが容易になる。上記金属塩Mは、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0112] 上記金属塩Mは、Li、Na、K、Rb、Cs、Mg、Ca、Sr及びBaからなる群から選択された少なくとも1種の金属を含むことが好ましい。中間膜中に含まれている金属塩は、K及びMgの内の少なくとも1種の金属を含むことが好ましい。

[0113] また、上記金属塩Mは、炭素数2～16の有機酸のアルカリ金属塩又は炭素数2～16の有機酸のアルカリ土類金属塩であることがより好ましく、炭素数2～16のカルボン酸マグネシウム塩又は炭素数2～16のカルボン酸カリウム塩であることが更に好ましい。

[0114] 上記炭素数2～16のカルボン酸マグネシウム塩及び上記炭素数2～16のカルボン酸カリウム塩としては特に限定されないが、例えば、酢酸マグネシウム、酢酸カリウム、プロピオン酸マグネシウム、プロピオン酸カリウム、2-エチル酪酸マグネシウム、2-エチルブタン酸カリウム、2-エチルヘキサン酸マグネシウム及び2-エチルヘキサン酸カリウム等が挙げられる。

[0115] 上記金属塩Mを含む層（第1の層、第2の層又は第3の層）におけるMg及びKの含有量の合計は、好ましくは5ppm以上、より好ましくは10ppm以上、更に好ましくは20ppm以上、好ましくは300ppm以下、より好ましくは250ppm以下、更に好ましくは200ppm以下である。Mg及びKの含有量の合計が上記下限以上及び上記上限以下であると、中間膜と合わせガラス部材との接着性又は中間膜における各層間の接着性をより一層良好に制御できる。

[0116] （紫外線遮蔽剤）

上記中間膜は、紫外線遮蔽剤を含むことが好ましい。上記第1の層は、紫外線遮蔽剤を含むことが好ましい。上記第2の層は、紫外線遮蔽剤を含むこ

とが好ましい。上記第3の層は、紫外線遮蔽剤を含むことが好ましい。紫外線遮蔽剤の使用により、中間膜及び合わせガラスが長期間使用されても、可視光線透過率がより一層低下し難くなる。上記紫外線遮蔽剤は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

- [0117] 上記紫外線遮蔽剤には、紫外線吸収剤が含まれる。上記紫外線遮蔽剤は、紫外線吸収剤であることが好ましい。
- [0118] 上記紫外線遮蔽剤としては、例えば、金属原子を含む紫外線遮蔽剤、金属酸化物を含む紫外線遮蔽剤、ベンゾトリアゾール構造を有する紫外線遮蔽剤、ベンゾフェノン構造を有する紫外線遮蔽剤、トリアジン構造を有する紫外線遮蔽剤、マロン酸エステル構造を有する紫外線遮蔽剤、シュウ酸アニリド構造を有する紫外線遮蔽剤及びベンゾエート構造を有する紫外線遮蔽剤等が挙げられる。
- [0119] 上記金属原子を含む紫外線吸収剤としては、例えば、白金粒子、白金粒子の表面をシリカで被覆した粒子、パラジウム粒子及びパラジウム粒子の表面をシリカで被覆した粒子等が挙げられる。紫外線遮蔽剤は、遮熱粒子ではないことが好ましい。
- [0120] 上記紫外線遮蔽剤は、好ましくはベンゾトリアゾール構造を有する紫外線遮蔽剤、ベンゾフェノン構造を有する紫外線遮蔽剤、トリアジン構造を有する紫外線遮蔽剤又はベンゾエート構造を有する紫外線遮蔽剤であり、より好ましくはベンゾトリアゾール構造を有する紫外線遮蔽剤又はベンゾフェノン構造を有する紫外線遮蔽剤であり、更に好ましくはベンゾトリアゾール構造を有する紫外線吸収剤である。
- [0121] 上記金属酸化物を含む紫外線吸収剤としては、例えば、酸化亜鉛、酸化チタン及び酸化セリウム等が挙げられる。さらに、上記金属酸化物を含む紫外線吸収剤に関して、表面が被覆されていてもよい。上記金属酸化物を含む紫外線吸収剤の表面の被覆材料としては、絶縁性金属酸化物、加水分解性有機ケイ素化合物及びシリコン化合物等が挙げられる。
- [0122] 上記ベンゾトリアゾール構造を有する紫外線吸収剤としては、例えば、2

— (2′-ヒドロキシ-5′-メチルフェニル) ベンゾトリアゾール (BASF社製「Tinuvin P」)、2-(2′-ヒドロキシ-3′, 5′-ジ-*t*-ブチルフェニル) ベンゾトリアゾール (BASF社製「Tinuvin 320」)、2-(2′-ヒドロキシ-3′-*t*-ブチル-5-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール (BASF社製「Tinuvin 326」)、及び2-(2′-ヒドロキシ-3′, 5′-ジ-*n*-アミルフェニル) ベンゾトリアゾール (BASF社製「Tinuvin 328」) 等のベンゾトリアゾール構造を有する紫外線吸収剤が挙げられる。紫外線を吸収する性能に優れることから、上記紫外線遮蔽剤は、ハロゲン原子を含むベンゾトリアゾール構造を有する紫外線吸収剤であることが好ましく、塩素原子を含むベンゾトリアゾール構造を有する紫外線吸収剤であることがより好ましい。

[0123] 上記ベンゾフェノン構造を有する紫外線吸収剤としては、例えば、オクタベンゾン (BASF社製「Chimassorb 81」) 等が挙げられる。

[0124] 上記トリアジン構造を有する紫外線吸収剤としては、例えば、ADEKA社製「LAF 70」及び2-(4, 6-ジフェニル-1, 3, 5-トリアジン-2-イル)-5-[(ヘキシル) オキシ]-フェノール (BASF社製「Tinuvin 1577 FF」) 等が挙げられる。

[0125] 上記マロン酸エステル構造を有する紫外線遮蔽剤としては、2-(*p*-メトキシベンジリデン) マロン酸ジメチル、テトラエチル-2, 2-(1, 4-フェニレンジメチリデン) ビスマロネート、2-(*p*-メトキシベンジリデン)-ビス(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル4-ピペリジニル) マロネート等が挙げられる。

[0126] 上記マロン酸エステル構造を有する紫外線遮蔽剤の市販品としては、Hostavin B-CAP、Hostavin PR-25、Hostavin PR-31 (いずれもクラリアント社製) が挙げられる。

[0127] 上記シュウ酸アニリド構造を有する紫外線遮蔽剤としては、N-(2-エチルフェニル)-N′-(2-エトキシ-5-*t*-ブチルフェニル) シュウ

酸ジアミド、N-(2-エチルフェニル)-N'-(2-エトキシフェニル)シュウ酸ジアミド、2-エチル-2'-エトキシオキシアニリド(クラリアント社製「Sanduvor VSU」)などの窒素原子上に置換されたアリール基などを有するシュウ酸ジアミド類が挙げられる。

[0128] 上記ベンゾエート構造を有する紫外線吸収剤としては、例えば、2,4-ジ-tert-ブチルフェニル-3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート(BASF社製「Tinuvin 120」)等が挙げられる。

[0129] 期間経過後の可視光線透過率の低下をより一層抑制する観点からは、上記紫外線遮蔽剤を含む層(第1の層、第2の層又は第3の層)100重量%中、上記紫外線遮蔽剤の含有量は、好ましくは0.1重量%以上、より好ましくは0.2重量%以上、更に好ましくは0.3重量%以上、特に好ましくは0.5重量%以上、好ましくは2.5重量%以下、より好ましくは2重量%以下、更に好ましくは1重量%以下、特に好ましくは0.8重量%以下である。特に、上記紫外線遮蔽剤を含む層100重量%中、上記紫外線遮蔽剤の含有量が0.2重量%以上であることにより、中間膜及び合わせガラスの期間経過後の可視光線透過率の低下を顕著に抑制できる。

[0130] (酸化防止剤)

上記中間膜は、酸化防止剤を含むことが好ましい。上記第1の層は、酸化防止剤を含むことが好ましい。上記第2の層は、酸化防止剤を含むことが好ましい。上記第3の層は、酸化防止剤を含むことが好ましい。上記酸化防止剤は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0131] 上記酸化防止剤としては、フェノール系酸化防止剤、硫黄系酸化防止剤及びリン系酸化防止剤等が挙げられる。上記フェノール系酸化防止剤はフェノール骨格を有する酸化防止剤である。上記硫黄系酸化防止剤は硫黄原子を含有する酸化防止剤である。上記リン系酸化防止剤はリン原子を含有する酸化防止剤である。

[0132] 上記酸化防止剤は、フェノール系酸化防止剤又はリン系酸化防止剤である

ことが好ましい。

[0133] 上記フェノール系酸化防止剤としては、2, 6-ジ-*t*-ブチル-*p*-クレゾール (BHT)、ブチル化ヒドロキシアニソール (BHA)、2, 6-ジ-*t*-ブチル-4-エチルフェノール、ステアリル- $\beta$ -(3, 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオネート、2, 2'-メチレンビス-(4-メチル-6-ブチルフェノール)、2, 2'-メチレンビス-(4-エチル-6-*t*-ブチルフェノール)、4, 4'-ブチリデン-ビス-(3-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、1, 1, 3-トリス-(2-メチル-ヒドロキシ-5-*t*-ブチルフェニル) ブタン、テトラキス [メチレン-3-(3', 5'-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオネート] メタン、1, 3, 3-トリス-(2-メチル-4-ヒドロキシ-5-*t*-ブチルフェノール) ブタン、1, 3, 5-トリメチル-2, 4, 6-トリス (3, 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシベンジル) ベンゼン、ビス (3, 3'-*t*-ブチルフェノール) ブチリックアジドグリコールエステル及びビス (3-*t*-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルベンゼンプロパン酸) エチレンビス (オキシエチレン) 等が挙げられる。これらの酸化防止剤の内の1種又は2種以上が好適に用いられる。

[0134] 上記リン系酸化防止剤としては、トリデシルホスファイト、トリス (トリデシル) ホスファイト、トリフェニルホスファイト、トリノニルフェニルホスファイト、ビス (トリデシル) ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス (デシル) ペンタエリスリトールジホスファイト、トリス (2, 4-ジ-*t*-ブチルフェニル) ホスファイト、ビス (2, 4-ジ-*t*-ブチル-6-メチルフェニル) エチルエステル亜リン酸、トリス (2, 4-ジ-*t*-ブチルフェニル) ホスファイト、及び2, 2'-メチレンビス (4, 6-ジ-*t*-ブチル-1-フェニルオキシ) (2-エチルヘキシルオキシ) ホスホラス等が挙げられる。これらの酸化防止剤の内の1種又は2種以上が好適に用いられる。

[0135] 上記酸化防止剤の市販品としては、例えばBASF社製「IRGANOX

245」、BASF社製「IRGAFOS 168」、BASF社製「IRGAFOS 38」、住友化学工業社製「スマライザーBHT」、並びにBASF社製「IRGANOX 1010」等が挙げられる。

[0136] 中間膜及び合わせガラスの高い可視光線透過率を長期間に渡り維持するために、上記中間膜100重量%中又は酸化防止剤を含む層（第1の層、第2の層又は第3の層）100重量%中、上記酸化防止剤の含有量は0.1重量%以上であることが好ましい。また、酸化防止剤の添加効果が飽和するので、上記中間膜100重量%中又は上記酸化防止剤を含む層100重量%中、上記酸化防止剤の含有量は2重量%以下であることが好ましい。

[0137] （他の成分）

上記第1の層、上記第2の層及び上記第3の層はそれぞれ、必要に応じて、ケイ素、アルミニウム又はチタンを含むカップリング剤、分散剤、界面活性剤、難燃剤、帯電防止剤、顔料、染料、接着力調整剤、耐湿剤、蛍光増白剤及び赤外線吸収剤等の添加剤を含んでいてもよい。これらの添加剤は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0138] （合わせガラス用中間膜の他の詳細）

合わせガラスの遮音性をより一層高める観点からは、第1の層のガラス転移温度は好ましくは15℃以下、より好ましくは10℃以下、更に好ましくは5℃以下、特に好ましくは0℃以下である。第1の層のガラス転移温度は好ましくは-20℃以上である。

[0139] 合わせガラスの曲げ剛性をより一層高める観点からは、第1の層のガラス転移温度は、第2の層及び第3の層のガラス転移温度よりも低いことが好ましい。第2の層及び第3の層よりもガラス転移温度が低い第1の層がシリカ粒子を含み、かつ第1の層よりもガラス転移温度が高い第2の層及び第3の層を備えることにより、合わせガラスの曲げ剛性が顕著に改善される。合わせガラスの曲げ剛性を更に一層高める観点からは、第1の層のガラス転移温度と、第2の層及び第3の層のガラス転移温度との差の絶対値は、好ましくは10℃以上、より好ましくは20℃以上、更に好ましくは30℃以上、特

に好ましくは $35^{\circ}\text{C}$ 以上である。第1の層のガラス転移温度と、第2の層及び第3の層のガラス転移温度との差の絶対値は、好ましくは $70^{\circ}\text{C}$ 以下である。

[0140] 上記ガラス転移温度を測定する方法として、得られた中間膜を、室温 $23 \pm 2^{\circ}\text{C}$ 、湿度 $25 \pm 5\%$ の環境下に12時間保管した直後に、アイティー計測制御社製の粘弾性測定装置「DVA-200」を用いて、粘弾性を測定する方法が挙げられる。中間膜を縦幅8mm、横幅5mmで切り出し、せん断モードで $5^{\circ}\text{C}/\text{分}$ の昇温速度で $-30^{\circ}\text{C}$ から $100^{\circ}\text{C}$ まで温度を上昇させる条件、及び周波数1Hz及び歪0.08%の条件で、ガラス転移温度を測定することが好ましい。

[0141] 遮音性をより一層高める観点からは、第1の層のガラス転移温度での $\tan \delta$ は、好ましくは0.6以上、より好ましくは0.7以上である。第1の層のガラス転移温度での $\tan \delta$ は、好ましくは3以下である。

[0142] 上記中間膜の厚みは特に限定されない。実用面の観点、並びに合わせガラスの耐貫通性及び曲げ剛性を十分に高める観点からは、中間膜の厚みは、好ましくは0.1mm以上、より好ましくは0.25mm以上、好ましくは3mm以下、より好ましくは2mm以下、更に好ましくは1.5mm以下である。中間膜の厚みが上記下限以上であると、合わせガラスの耐貫通性及び曲げ剛性が高くなる。中間膜の厚みが上記上限以下であると、中間膜の透明性がより一層良好になる。

[0143] 中間膜の厚みをTとする。上記第1の層の厚みは、好ましくは $0.0625T$ 以上、より好ましくは $0.1T$ 以上、好ましくは $0.4T$ 以下、より好ましくは $0.375T$ 以下、更に好ましくは $0.25T$ 以下、更に好ましくは $0.15T$ 以下である。上記第1の層の厚みが $0.4T$ 以下であると、曲げ剛性がより一層良好になる。

[0144] 上記第2の層及び上記第3の層の各厚みは、好ましくは $0.3T$ 以上、より好ましくは $0.3125T$ 以上、更に好ましくは $0.375T$ 以上、好ましくは $0.9375T$ 以下、より好ましくは $0.9T$ 以下である。上記第2

の層及び上記第3の層の各厚みは、0.46875 T以下であってもよく、0.45 T以下であってもよい。また、上記第2の層及び上記第3の層の各厚みが上記下限以上及び上記上限以下であると、合わせガラスの剛性と遮音性がより一層高くなる。

[0145] 上記第2の層及び上記第3の層の合計の厚みは、好ましくは0.625 T以上、より好ましくは0.75 T以上、更に好ましくは0.85 T以上、好ましくは0.9375 T以下、より好ましくは0.9 T以下である。また、上記第2の層及び上記第3の層の合計の厚みが上記下限以上及び上記上限以下であると、合わせガラスの剛性と遮音性がより一層高くなる。

[0146] 本発明に係る中間膜の製造方法としては特に限定されない。本発明に係る中間膜の製造方法としては、単層の中間膜の場合に、樹脂組成物を押出機を用いて押出する方法が挙げられる。本発明に係る中間膜の製造方法としては、多層の中間膜の場合に、各層を形成するための各樹脂組成物を用いて各層をそれぞれ形成した後に、例えば、得られた各層を積層する方法、並びに各層を形成するための各樹脂組成物を押出機を用いて共押出することにより、各層を積層する方法等が挙げられる。連続的な生産に適しているため、押出成形する製造方法が好ましい。

[0147] 中間膜の製造効率が優れることから、上記第2の層と上記第3の層とに、同一のポリビニルアセタール樹脂が含まれていることが好ましく、上記第2の層と上記第3の層とに、同一のポリビニルアセタール樹脂及び同一の可塑剤が含まれていることがより好ましく、上記第2の層と上記第3の層とが同一の樹脂組成物により形成されていることが更に好ましい。

[0148] 上記中間膜は、両側の表面の内の少なくとも一方の表面に凹凸形状を有することが好ましい。上記中間膜は、両側の表面に凹凸形状を有することがより好ましい。上記の凹凸形状を形成する方法としては特に限定されず、例えば、リップエンボス法、エンボスロール法、カレンダーロール法、及び異形押出法等が挙げられる。定量的に一定の凹凸模様である多数の凹凸形状のエンボスを形成することができることから、エンボスロール法が好ましい。

[0149] (合わせガラス)

図3は、図1に示す合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスの一例を模式的に示す断面図である。

[0150] 図3に示す合わせガラス31は、第1の合わせガラス部材21と、第2の合わせガラス部材22と、中間膜11とを備える。中間膜11は、第1の合わせガラス部材21と第2の合わせガラス部材22との間に配置されており、挟み込まれている。

[0151] 中間膜11の第1の表面11aに、第1の合わせガラス部材21が積層されている。中間膜11の第1の表面11aとは反対の第2の表面11bに、第2の合わせガラス部材22が積層されている。第2の層2の外側の表面2aに第1の合わせガラス部材21が積層されている。第3の層3の外側の表面3aに第2の合わせガラス部材22が積層されている。

[0152] 図4は、図2に示す合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスの一例を模式的に示す断面図である。

[0153] 図4に示す合わせガラス31Aは、第1の合わせガラス部材21と、第2の合わせガラス部材22と、中間膜11Aとを備える。中間膜11Aは、第1の合わせガラス部材21と第2の合わせガラス部材22との間に配置されており、挟み込まれている。

[0154] 中間膜11Aの第1の表面11aに、第1の合わせガラス部材21が積層されている。中間膜11Aの第1の表面11aとは反対の第2の表面11bに、第2の合わせガラス部材22が積層されている。

[0155] このように、本発明に係る合わせガラスは、第1の合わせガラス部材と、第2の合わせガラス部材と、中間膜とを備えており、該中間膜が、本発明に係る合わせガラス用中間膜である。本発明に係る合わせガラスでは、上記第1の合わせガラス部材と上記第2の合わせガラス部材との間に、上記中間膜が配置されている。

[0156] 上記合わせガラス部材としては、ガラス板及びPET（ポリエチレンテレフタレート）フィルム等が挙げられる。合わせガラスには、2枚のガラス板

の間に中間膜が挟み込まれている合わせガラスだけでなく、ガラス板とPETフィルム等との間に中間膜が挟み込まれている合わせガラスも含まれる。上記合わせガラスは、ガラス板を備えた積層体であり、少なくとも1枚のガラス板が用いられていることが好ましい。

[0157] 上記ガラス板としては、無機ガラス及び有機ガラスが挙げられる。上記無機ガラスとしては、フロート板ガラス、熱線吸収板ガラス、熱線反射板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス、及び線入り板ガラス等が挙げられる。上記有機ガラスは、無機ガラスに代用される合成樹脂ガラスである。上記有機ガラスとしては、ポリカーボネート板及びポリ（メタ）アクリル樹脂板等が挙げられる。上記ポリ（メタ）アクリル樹脂板としては、ポリメチル（メタ）アクリレート板等が挙げられる。

[0158] 上記合わせガラス部材の厚みは、好ましくは1mm以上、好ましくは5mm以下、より好ましくは3mm以下である。また、上記合わせガラス部材がガラス板である場合に、該ガラス板の厚みは、好ましくは0.5mm以上、より好ましくは0.7mm以上、好ましくは5mm以下、より好ましくは3mm以下である。上記合わせガラス部材がPETフィルムである場合に、該PETフィルムの厚みは、好ましくは0.03mm以上、好ましくは0.5mm以下である。

[0159] 本発明に係る中間膜の使用により、合わせガラスの厚みが薄くても、合わせガラスの曲げ剛性を高く維持することができる。合わせガラスを軽量化したり、合わせガラスの材料を少なくして環境負荷を低減したり、合わせガラスの軽量化によって自動車の燃費を向上させて環境負荷を低減したりする観点からは、上記ガラス板の厚みは、好ましくは2mm以下、より好ましくは1.8mm以下、より一層好ましくは1.5mm以下、更に好ましくは1mm以下、更に一層好ましくは0.8mm以下、特に好ましくは0.7mm以下である。

[0160] 上記合わせガラスの製造方法は特に限定されない。例えば、上記第1の合わせガラス部材と上記第2の合わせガラス部材との間に、中間膜を挟んで、

押圧ロールに通したり、又はゴムバッグに入れて減圧吸引したりして、上記第1の合わせガラス部材と上記第2の合わせガラス部材と中間膜との間に残留する空気を脱気する。その後、約70～110℃で予備接着して積層体を得る。次に、積層体をオートクレーブに入れたり、又はプレスしたりして、約120～150℃及び1～1.5 MPaの圧力で圧着する。このようにして、合わせガラスを得ることができる。上記合わせガラスの製造時に、第1の層と第2の層と第3の層とを積層してもよい。

[0161] 上記中間膜及び上記合わせガラスは、自動車、鉄道車両、航空機、船舶及び建築物等に使用できる。上記中間膜及び上記合わせガラスは、これらの用途以外にも使用できる。上記中間膜及び上記合わせガラスは、車両用又は建築用の中間膜及び合わせガラスであることが好ましく、車両用の中間膜及び合わせガラスであることがより好ましい。上記中間膜及び上記合わせガラスは、自動車のフロントガラス、サイドガラス、リアガラス又はルーフガラス等に使用できる。上記中間膜及び上記合わせガラスは、自動車に好適に用いられる。上記中間膜は、自動車の合わせガラスを得るために用いられる。

[0162] 透明性により一層優れた合わせガラスを得る観点からは、合わせガラスの上記可視光線透過率は、好ましくは65%以上、より好ましくは70%以上である。合わせガラスの可視光線透過率は、JIS R3211(1998)に準拠して測定できる。本発明の合わせガラス用中間膜を、JIS R3208に準拠した、厚さ2mmの2枚のグリーンガラス(熱線吸収板ガラス)の間に挟み込むことにより得られた合わせガラスの可視光線透過率は70%以上であることが好ましい。可視光線透過率は、より好ましくは75%以上である。

[0163] 以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明する。本発明はこれら実施例のみに限定されない。

[0164] 以下の材料を用意した。

[0165] (ポリビニルアセタール樹脂)

下記の表1～5に示すポリビニルアセタール樹脂を適宜用いた。用いたポ

リビニルアセタール樹脂では全て、アセタール化に、炭素数4のn-ブチルアルデヒドが用いられている。

[0166] ポリビニルアセタール樹脂に関しては、アセタール化度（ブチラール化度）、アセチル化度及び水酸基の含有率はJIS K6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により測定した。なお、ASTM D1396-92により測定した場合も、JIS K6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法と同様の数値を示した。

[0167] (可塑剤)

トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート (3GO)

ジ- (2-ブトキシエチル) -アジペート (DBEA)

[0168] (シリカ粒子)

シリカ粒子 (a) (日本アエロジル社製「AEROSIL 380」、BET法による比表面積  $380 \pm 30 \text{ m}^2/\text{g}$ )

シリカ粒子 (b) (東ソー・シリカ社製「BZ-400」、BET法による比表面積  $450 \text{ m}^2/\text{g}$ )

シリカ粒子 (c) (東ソー・シリカ社製「AZ-204」、BET法による比表面積  $300 \text{ m}^2/\text{g}$ )

シリカ粒子 (d) (東ソー・シリカ社製「AZ-201」、BET法による比表面積  $300 \text{ m}^2/\text{g}$ )

[0169] (紫外線遮蔽剤)

Tinuvin 326 (2-(2'-ヒドロキシ-3'-t-ブチル-5-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、BASF社製「Tinuvin 326」)

[0170] (酸化防止剤)

BHT (2,6-ジ-t-ブチル-p-クレゾール)

[0171] (実施例1)

第1の層を形成するための組成物の作製:

下記の表1に示す種類のポリビニルアセタール樹脂100重量部と、可塑

剤（3GO）60重量部と、シリカ粒子（a）20重量部と、紫外線遮蔽剤（Tinuvin326）0.2重量部と、酸化防止剤（BHT）0.2重量部とを混合し、第1の層を形成するための組成物を得た。

[0172] 第2の層及び第3の層を形成するための組成物の作製：

下記の表1に示す種類のポリビニルアセタール樹脂100重量部と、可塑剤（3GO）24重量部と、紫外線遮蔽剤（Tinuvin326）0.2重量部と、酸化防止剤（BHT）0.2重量部とを混合し、第2の層及び第3の層を形成するための組成物を得た。

[0173] 中間膜の作製：

第1の層を形成するための組成物と、第2の層及び第3の層を形成するための組成物とを、共押出機を用いて共押出しすることにより、第2の層（厚み340 $\mu$ m）／第1の層（厚み100 $\mu$ m）／第3の層（厚み340 $\mu$ m）の積層構造を有する中間膜（厚み780 $\mu$ m）を作製した。

[0174] 合わせガラスAの作製（曲げ剛性測定用）：

洗浄及び乾燥した2つのガラス板（クリアフロートガラス、縦25cm×横10cm×厚み2.5mm）を用意した。この2つのガラス板の間に、得られた中間膜を挟み込み、積層体を得た。得られた積層体をゴムバック内に入れ、2660Pa（20torr）の真空度で20分間脱気した。その後、脱気したままで積層体をオートクレーブ中で更に90℃で30分間保持しつつ、真空プレスした。このようにして予備圧着された積層体を、オートクレーブ中で135℃、圧力1.2MPa（12kg/cm<sup>2</sup>）の条件で20分間圧着を行い、合わせガラスAを得た。

[0175] 合わせガラスBの作製（曲げ剛性測定用）：

洗浄及び乾燥した1つのガラス板（クリアフロートガラス、縦25cm×横10cm×厚み2.5mm）を用意した。洗浄及び乾燥した1つのガラス板（ゴリラガラス2、縦25cm×横10cm×厚み0.7mm）を用意した。この2つのガラス板を用いたこと以外は合わせガラスAと同様にして、合わせガラスBを得た。

[0176] 合わせガラスCの作製（曲げ剛性測定用）：

洗浄及び乾燥した2つのガラス板（ゴリラガラス2、縦25cm×横10cm×厚み0.7mm）を用意した。この2つのガラス板を用いたこと以外は合わせガラスAと同様にして、合わせガラスCを得た。

[0177] 合わせガラスFの作製（曲げ剛性測定用）：

洗浄及び乾燥した1つのガラス板（クリアフロートガラス、縦25cm×横10cm×厚み1.8mm）を用意した。洗浄及び乾燥した1つのガラス板（クリアフロートガラス、縦25cm×横10cm×厚み1.0mm）を用意した。この2つのガラス板を用いたこと以外は合わせガラスAと同様にして、合わせガラスFを得た。

[0178] 合わせガラスDの作製（遮音性測定用）：

得られた中間膜を縦30cm×横2.5cmの大きさに切断した。次に、JIS R3208に準拠したグリーンガラス（縦30cm×横2.5cm×厚さ2mm）2枚の間に、中間膜を挟み込み、積層体を得た。この積層体をゴムバック内に入れ、2.6kPaの真空度で20分間脱気した後、脱気したままオープン内に移し、更に90℃で30分間保持して真空プレスし、積層体を予備圧着した。オートクレーブ中で135℃及び圧力1.2MPaの条件で、予備圧着された積層体を20分間圧着し、合わせガラスDを得た。

[0179] 合わせガラスEの作製（可視光線透過率測定用）：

得られた中間膜を、縦5cm×横5cmの大きさに切断した。次に、JIS R3208に準拠した2枚のグリーンガラス（縦5cm×横5cm×厚み2mm）を用意した。この2枚のグリーンガラスの間に、得られた中間膜を挟み込み、真空ラミネーターにて90℃で30分間保持し、真空プレスし、積層体を得た。積層体において、ガラス板からはみ出た中間膜部分を切り落とし、合わせガラスEを得た。

[0180] （実施例2～35及び比較例1～6）

第1の層を形成するための組成物に用いるポリビニルアセタール樹脂、可

塑剤及びシリカ粒子の種類と配合量とを下記の表1～5に示すように設定したこと、並びに第1の層、第2の層及び第3の層の厚みを下記の表1～5に示すように設定したこと以外は実施例1と同様にして、中間膜及び合わせガラスを得た。また、実施例2～35及び比較例1～6では、実施例1と同じ種類の紫外線遮蔽剤及び酸化防止剤を、実施例1と同様の配合量（ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して0.2重量部）で配合した。

[0181] (評価)

(1) ガラス転移温度

得られた中間膜を、室温 $23 \pm 2^\circ\text{C}$ 、湿度 $25 \pm 5\%$ の環境下に12時間保管した直後に、アイティー計測制御社製の粘弾性測定装置「DVA-200」を用いて、粘弾性を測定した。サンプルは縦幅8mm、横幅5mmで切り出し、せん断モードで $5^\circ\text{C}/\text{分}$ の昇温速度で $-30^\circ\text{C}$ から $100^\circ\text{C}$ まで温度を上昇させる条件、及び周波数1Hz及び歪0.08%の条件で測定を行った。得られた測定結果において、損失正接のピーク温度をガラス転移温度 $T_g$  ( $^\circ\text{C}$ )とした。第1の層に由来する $T_g$ は、第2の層及び第3の層に由来する $T_g$ よりも低くなった。

[0182] (2) ガラス転移温度での $\tan \delta$

第1の層を形成するための組成物の混練物を用意した。得られた混練物をプレス成型機でプレス成型して、厚みが0.35mmである樹脂膜Aを得た。得られた樹脂膜Aを $50^\circ\text{C}$ で2時間以上真空乾燥させた。TAインスツルメント社製「レオメーターARES-G2」により、粘弾性測定を行った。測定用治具のジオメトリーは直径8mmの平行プレートであり、測定条件は温度：第1の層のガラス転移温度、歪み：8%、周波数範囲：100～0.1rad/sであり、100rad/sから掃引した。周波数0.1rad/sでの $\tan \delta$ 値を「ガラス転移温度での $\tan \delta$ 」とした。なお、 $23^\circ\text{C}$ の環境下にて、中間膜から第2の層及び第3の層を剥離することで得られた第1の層を、厚みが0.35mmとなるように $150^\circ\text{C}$ でプレス成型（加圧しない状態で $150^\circ\text{C}$ 10分間、加圧した状態で $150^\circ\text{C}$ 10分間）

して樹脂膜Aを作製してもよい。

[0183] (3) 曲げ剛性

得られた合わせガラスA、合わせガラスB、合わせガラスC及び合わせガラスFを用意した。合わせガラスA、合わせガラスB、合わせガラスC及び合わせガラスFでは、以下のガラス板を用いている。

[0184] 合わせガラスA：2つのガラス板（クリアフロートガラス、縦25cm×横10cm×厚み2.5mm）

合わせガラスB：1つのガラス板（クリアフロートガラス、縦25cm×横10cm×厚み2.5mm）と1つのガラス板（ゴリラガラス2、縦25cm×横10cm×厚み0.7mm）

合わせガラスC：2つのガラス板（ゴリラガラス2、縦25cm×横10cm×厚み0.7mm）

合わせガラスF：1つのガラス板（クリアフロートガラス、縦25cm×横10cm×厚み1.8mm）と1つのガラス板（クリアフロートガラス、縦25cm×横10cm×厚み1.0mm）

[0185] 図5に模式的に示す試験方法で、曲げ剛性を評価した。測定装置としては、静的3点曲げ試験治具2810を備えたインストロンジャパンカンパニリミテッド社製の万能材料試験機5966を使用した。測定条件としては、測定温度 $20 \pm 3$ ℃、距離D1は18cm、距離D2は25cmとし、変位速度1mm/分でFの方向に合わせガラスに変形を加え、1.5mmの変位を加えたときの応力を測定し、曲げ剛性を算出した。

[0186] (4) 遮音性

合わせガラスDをダンピング試験用の振動発生機（振研社製「加振機G21-005D」）により加振し、そこから得られた振動特性を機械インピーダンス測定装置（リオン社製「XG-81」）にて増幅し、振動スペクトルをFFTスペクトラムアナライザー（横河ヒューレッドパカード社製「FFTアナライザー HP3582A」）により解析した。

[0187] このようにして得られた損失係数と合わせガラスとの共振周波数との比が

ら、20℃における音周波数（Hz）と音響透過損失（dB）との関係を示すグラフを作成し、音周波数2,000Hz付近における極小の音響透過損失（TL値）を求めた。このTL値が高いほど、遮音性が高くなる。遮音性を下記の基準で判定した。

[0188] [遮音性の判定基準]

○：TL値が35dB以上

×：TL値が35dB未満

[0189] (5) 可視光線透過率（A光Y値、初期A-Y（380～780nm））分光光度計（日立ハイテック社製「U-4100」）を用いて、JIS R 3211（1998）に準拠して、得られた合わせガラスEの波長380～780nmにおける可視光線透過率（Visible Transmittance）を測定した。可視光線透過率を下記の基準で判定した。

[0190] [可視光線透過率の判定基準]

○：可視光線透過率が70%以上

×：可視光線透過率が70%未満

[0191] 詳細及び結果を下記の表1～5に示す。なお、下記の表1～5では、ポリビニルアセタール樹脂、可塑剤及びシリカ粒子以外の配合成分の記載は省略した。

[0192]

[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	
第1の層の組成	厚み	μm	100	100	100	100	100	100	100	
	ポリビニルアセタール樹脂	PVAの平均重合度	1700	2500	1700	1700	1700	1700	1700	3000
		水酸基の含有率	21.2	20.8	21.2	21.2	21.2	21.2	21.2	23.3
		アセチル化度	12.6	23.5	12.6	12.6	12.6	12.6	12.6	12.0
		アセチル化度	66.2	55.7	66.2	66.2	66.2	66.2	66.2	64.7
	可塑性	含有量	100	100	100	100	100	100	100	100
		種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
		含有量	60	60	60	60	60	60	60	60
		種類	a	a	a	a	a	a	a	a
	シリカ粒子	含有量	20	20	10	15	60	5	20	5
含有量		0.13	0.13	0.06	0.09	0.38	0.03	0.13	0.03	
含有量比(シリカ粒子/(ポリビニルアセタール樹脂+可塑性))										
ガラス転移温度		°C	-0.15	-1.57	0.84	0.95	2.42	0.25	-0.25	
第2, 第3の層の組成	ガラス転移温度でのtan δ	-	1.66	1.38	1.31	0.71	1.44	1.55	1.49	
	各厚み	μm	340	340	340	340	340	340	340	
評価	可塑性	PVAの平均重合度	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	
		水酸基の含有率	34.5	34.5	34.5	34.5	34.5	34.5	34.5	
		アセチル化度	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	
		アセチル化度	64.7	64.7	64.7	64.7	64.7	64.7	64.7	
	曲げ剛性	含有量	100	100	100	100	100	100	100	
		種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	
		含有量	24	24	24	24	24	24	24	
		含有量	0.0034	0.0035	0.0044	0.0041	0.0025	0.0045	0.0043	
	遮音性: TL法	可視光線透過率	mm/N	0.0074	0.0073	0.0090	0.0085	0.0058	0.0080	
		可視光線透過率	mm/N	0.0465	0.0458	0.0664	0.0600	0.0312	0.0681	
可視光線透過率		mm/N	0.0110	0.0109	0.0142	0.0131	0.0085	0.0144		
可視光線透過率		mm/N	0.0110	0.0109	0.0142	0.0131	0.0085	0.0144		

[0193]

[表2]

		比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	比較例 5	比較例 6	実施例 9	実施例 10	
第1の層 の組成	厚み	μm	100	100	100	100	100	60	60	
	ポリビニルアセ タール樹脂	PVAの平均重合度	1700	2300	3000	1700	1700	1700	1700	2500
		水酸基の含有率	23.1	23.0	23.3	21.2	21.2	21.2	21.2	20.8
		アセチル化度	11.8	11.5	12.0	12.6	12.6	12.6	12.6	23.5
		アセチル化度	65.1	65.5	64.7	66.2	66.2	66.2	66.2	55.7
	可塑剤	含有量	100	100	100	100	100	100	100	100
		種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
		含有量	60	60	60	60	60	60	60	60
		種類	-	-	-	a	a	a	a	a
	シリカ粒子	含有量	-	-	-	3	70	80	20	20
含有量		-	-	-	0.02	0.44	0.50	0.13	0.13	
含有量比(シリカ粒子/(ポリビニルアセ タール樹脂+可塑剤))		-	-	-	0.02	0.44	0.50	0.13	0.13	
ガラス転移温度		°C	2.21	2.16	2.06	0.21	5.81	5.95	-0.18	
第2、第3の 層の組成	ガラス転移温度でのtan δ	-	1.486	1.482	1.493	1.45	0.57	0.44	1.64	
	各厚み	μm	340	340	340	340	340	340	360	
	ポリビニルアセ タール樹脂	PVAの平均重合度	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700
		水酸基の含有率	30.1	30.1	30.1	30.1	34.5	34.5	34.5	34.5
		アセチル化度	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8
		アセチル化度	69.1	69.1	69.1	69.1	64.7	64.7	64.7	64.7
	可塑剤	含有量	100	100	100	100	100	100	100	100
		種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
		含有量	38.5	38.5	38.5	38.5	24	24	24	24
		含有量	0.062	0.061	0.063	0.0059	0.0020	0.0011	0.0033	0.0031
評価	曲げ剛性	mm/N	0.0113	0.0115	0.0111	0.0099	0.0050	0.0031	0.0064	
		mm/N	0.1065	0.1066	0.1060	0.1043	0.0241	0.0108	0.0353	
		mm/N	0.0206	0.0206	0.0205	0.0197	0.0074	0.0052	0.0092	
		mm/N	○	○	○	○	×	×	○	
遮音性: TL法		○	○	○	○	○	○	○	○	
可視光線透過率		○	○	○	○	○	○	○	○	

[0194]

[表3]

		実施例 11	実施例 12	実施例 13	実施例 14	実施例 15	実施例 16	実施例 17	実施例 18
第1の層 の組成	厚み		μm	100	100	100	100	100	100
	PVAの平均重合度	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700
	ポリビニルアセ タール樹脂		モル%	23.1	23.1	23.1	23.1	23.1	23.1
			モル%	12.5	12.5	12.5	12.5	12.5	12.5
			モル%	64.5	64.5	64.5	64.5	64.5	64.5
			重量部	100	100	100	100	100	100
	可塑剤		種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
			含有量	60	60	60	60	60	60
			種類	c	c	c	c	c	c
			重量部	20	20	20	20	20	20
第2, 第3の 層の組成	含有量比(シリカ粒子/(ポリビニルアセ タール樹脂+可塑剤))	0.13	0.13	0.13	0.13	0.13	0.13	0.13	0.13
	ガラス転移温度	°C	2.13	2.13	2.13	2.13	-0.12	2.13	2.13
	ガラス転移温度でのtan δ	-	1.22	1.22	1.22	1.22	1.29	1.22	1.22
	各厚み		μm	340	340	340	340	340	340
	PVAの平均重合度	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700
	ポリビニルアセ タール樹脂		モル%	34.5	33.2	32.5	31.4	34.5	36.5
			モル%	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8
			モル%	64.7	66	66.7	67.8	64.7	62.7
			重量部	100	100	100	100	100	100
	可塑剤		種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
評価			含有量	32	34.1	35.3	37.3	30.2	26.8
			mm/N	0.0044	0.0044	0.0045	0.0047	0.0038	0.0041
	曲げ剛性		mm/N	0.0086	0.0085	0.0087	0.0091	0.0077	0.0081
			mm/N	0.0648	0.0613	0.0640	0.0702	0.0512	0.0560
			mm/N	0.0139	0.0135	0.0140	0.0150	0.0118	0.0128
	遮音性: TL法			○	○	○	○	○	○
可視光線透過率			○	○	○	○	○	○	

[0195]

[表4]

		実施例 19	実施例 20	実施例 21	実施例 22	実施例 23	実施例 24	実施例 25	実施例 26	
第1の層 の組成	厚み	μm	100	100	100	100	100	100	100	
	ポリビニルアセ タール樹脂	PVAの平均重合度	1700	2300	1700	2300	1700	1700	1700	1700
		水酸基の含有率 モル%	21.1	20.8	24.4	24.6	23.1	23.1	23.1	23.1
		アセチル化度 モル%	1.6	1.6	6.5	6.5	12.5	12.5	12.5	12.5
		アセチル化度 モル%	77.3	77.6	69.1	68.9	64.5	64.5	64.5	64.5
		含有量	100	100	100	100	100	100	100	
	可塑剤	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	
		含有量	60	60	60	60	50	80	60	
	シリカ粒子	種類	c	c	c	c	c	c	c	
		含有量	20	20	20	20	20	20	20	
	含有量比(シリカ粒子/(ポリビニルアセ タール樹脂+可塑剤))	0.13	0.13	0.13	0.13	0.13	0.11	0.13		
	ガラス転移温度 °C	3.87	3.74	5.42	5.54	6.04	-5.32	2.13		
	ガラス転移温度でのtanδ	1.17	1.19	1.14	1.16	1.31	1.03	1.22		
	各厚み	μm	340	340	340	340	340	350		
第2、第3の 層の組成	ポリビニルアセ タール樹脂	PVAの平均重合度	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	
		水酸基の含有率 モル%	34.5	34.5	34.5	34.5	34.5	34.5	34.5	
		アセチル化度 モル%	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	
		アセチル化度 モル%	64.7	64.7	64.7	64.7	64.7	64.7	64.7	
		含有量	100	100	100	100	100	100	100	
	可塑剤	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	
		含有量	31	31	36	36	33	30	32	
		mm/N	0.0040	0.0039	0.0040	0.0041	0.0035	0.0048	0.0038	
		mm/N	0.0079	0.0079	0.0080	0.0081	0.0073	0.0092	0.0076	
		mm/N	0.0544	0.0537	0.0547	0.0569	0.0458	0.0731	0.0604	
	mm/N	0.0124	0.0123	0.0124	0.0128	0.0109	0.0152	0.0132		
評価	遮音性:TL法	○	○	○	○	○	○	○	○	
	可視光線透過率	○	○	○	○	○	○	○	○	

[0196]

[表5]

		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
第1の層の組成	厚み	120	120	120	70	100	100	100	100	100
	PVAの平均重合度	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700
	水酸基の含有率	24.6	24.6	24.6	23.4	23.1	23.1	23.1	23.1	27.5
	ポリビニルアルコール樹脂	14	14	14	13.3	12.5	12.5	12.5	12.5	12.5
	アセチル化度	61.4	61.4	61.4	63.3	64.5	64.5	64.5	64.5	60
	アセチル化度	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	含有量	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	DBEA
	種類	60	60	60	60	60	60	60	60	60
	含有量	d	d	d	d	c	c	c	c	c
	シリカ粒子	20	20	20	20	30	40	50	60	20
第2、第3の層の組成	含有量比(シリカ粒子/(ポリビニルアルコール樹脂+可塑剤))	0.13	0.13	0.13	0.13	0.19	0.25	0.31	0.38	0.13
	ガラス転移温度	3.42	3.42	3.42	2.03	2.36	2.58	2.75	2.77	0.34
	ガラス転移温度でのtan δ	1.16	1.16	1.16	1.21	1.08	0.95	0.82	0.68	1.19
	各厚み	330	330	330	355	340	340	340	340	340
	PVAの平均重合度	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700
	水酸基の含有率	34.5	34.5	34.5	34.5	34.5	34.5	34.5	34.5	34.5
	ポリビニルアルコール樹脂	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8
	アセチル化度	64.7	64.7	64.7	64.7	64.7	64.7	64.7	64.7	64.7
	アセチル化度	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	含有量	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	DBEA
評価	可塑剤	31	33	35	32	32	32	32	32	38.5
	含有量	0.0039	0.0043	0.0044	0.0037	0.0035	0.0031	0.0027	0.0025	0.0046
	合わせガラスA	0.0081	0.0084	0.0087	0.0075	0.0082	0.0076	0.0070	0.0063	0.0089
	合わせガラスB	0.0579	0.0617	0.0667	0.0486	0.0575	0.0508	0.0451	0.0408	0.0677
	合わせガラスC	0.0128	0.0134	0.0142	0.0113	0.0128	0.0117	0.0108	0.0101	0.0146
	合わせガラスF	○	○	○	○	○	○	○	○	○
遮音性:TL法	○	○	○	○	○	○	○	○	○	
可視光線透過率	○	○	○	○	○	○	○	○	○	

符号の説明

- [0197] 1…第1の層
- 1 a…第1の表面
- 1 b…第2の表面
- 2…第2の層

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

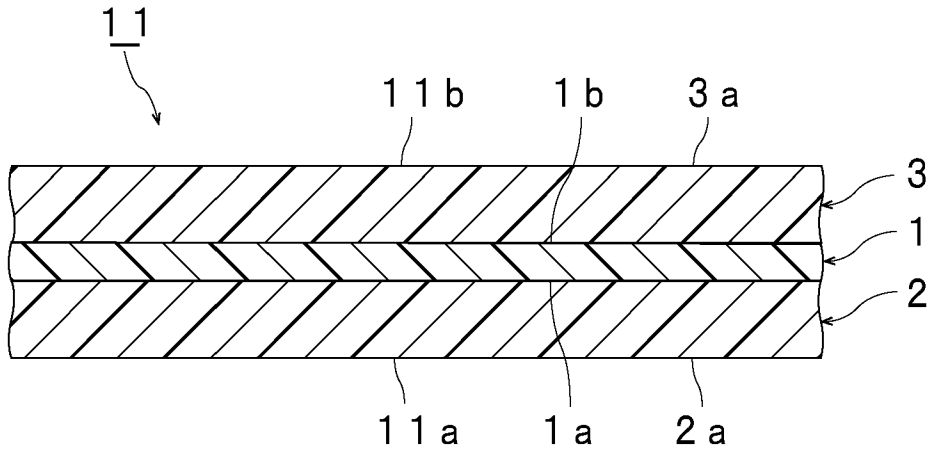
## 請求の範囲

- [請求項1] 1層の構造又は2層以上の構造を有する合わせガラス用中間膜であり、  
ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む第1の層を備え、  
前記第1の層がシリカ粒子を含み、  
前記第1の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂の含有量と前記第1の層中の前記可塑剤の含有量との合計に対する前記第1の層中の前記シリカ粒子の含有量の比が0.03以上、0.4以下である、合わせガラス用中間膜。
- [請求項2] 前記第1の層のガラス転移温度が5℃以下である、請求項1に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項3] 前記第1の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、前記第1の層中の前記シリカ粒子の含有量が5重量部以上、64重量部以下である、請求項1又は2に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項4] ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む第2の層を備え、  
前記第2の層が、前記第1の層の第1の表面側に配置されている、  
請求項1～3のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項5] 前記第1の層のガラス転移温度が、前記第2の層のガラス転移温度よりも低い、請求項4に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項6] 前記第1の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率は、前記第2の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率よりも低い、請求項4又は5に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項7] 前記第1の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する前記第1の層中の前記可塑剤の含有量は、前記第2の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する前記第2の層中の前記可塑剤の含有量よりも多い、請求項4～6のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。

- [請求項8] 前記第2の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率が32モル%以上である、請求項4～7のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項9] 前記第2の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、前記第2の層中の前記可塑剤の含有量が35重量部以下である、請求項4～8のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項10] ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む第3の層を備え、  
前記第3の層は、前記第1の層の前記第1の表面とは反対の第2の表面側に配置されている、請求項4～9のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項11] 合わせガラス用中間膜の厚みをTとしたときに、前記第1の層の厚みが、0.4T以下である、請求項4～10のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項12] JIS R3208に準拠した、厚み2mmの2枚のグリーンガラスの間に合わせガラス用中間膜を挟み込むことにより合わせガラスを得たときに、得られる合わせガラスの可視光線透過率が70%以上である、請求項1～11のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項13] 厚みが1mm以下である第1のガラス板を用いて、前記第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられる、請求項1～12のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項14] 第1の合わせガラス部材と、  
第2の合わせガラス部材と、  
請求項1～12のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜とを備え、  
前記第1の合わせガラス部材と前記第2の合わせガラス部材との間に、前記合わせガラス用中間膜が配置されている、合わせガラス。

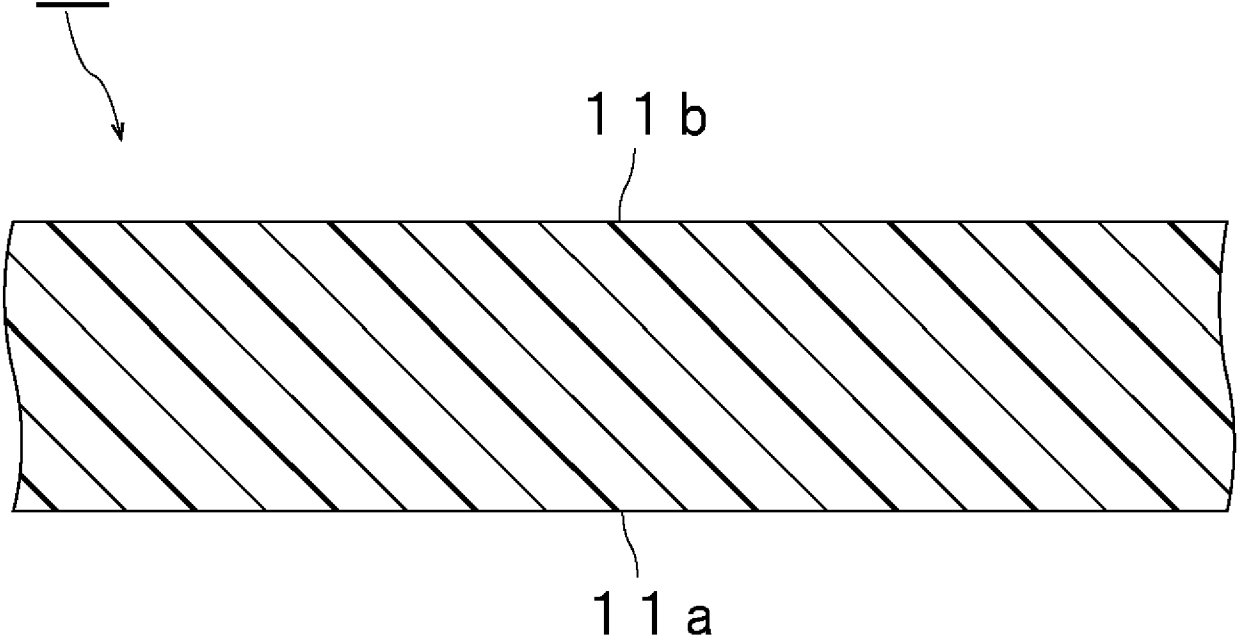
[請求項15] 前記第1の合わせガラス部材が第1のガラス板であり、  
前記第1のガラス板の厚みが1 mm以下である、請求項14に記載  
の合わせガラス。

[図1]

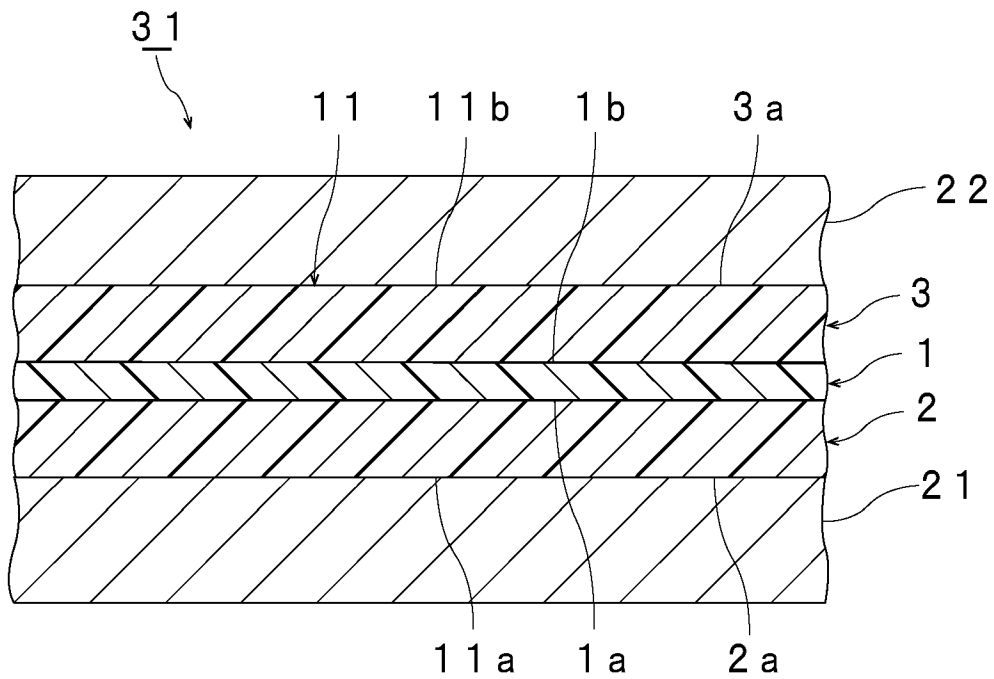


[図2]

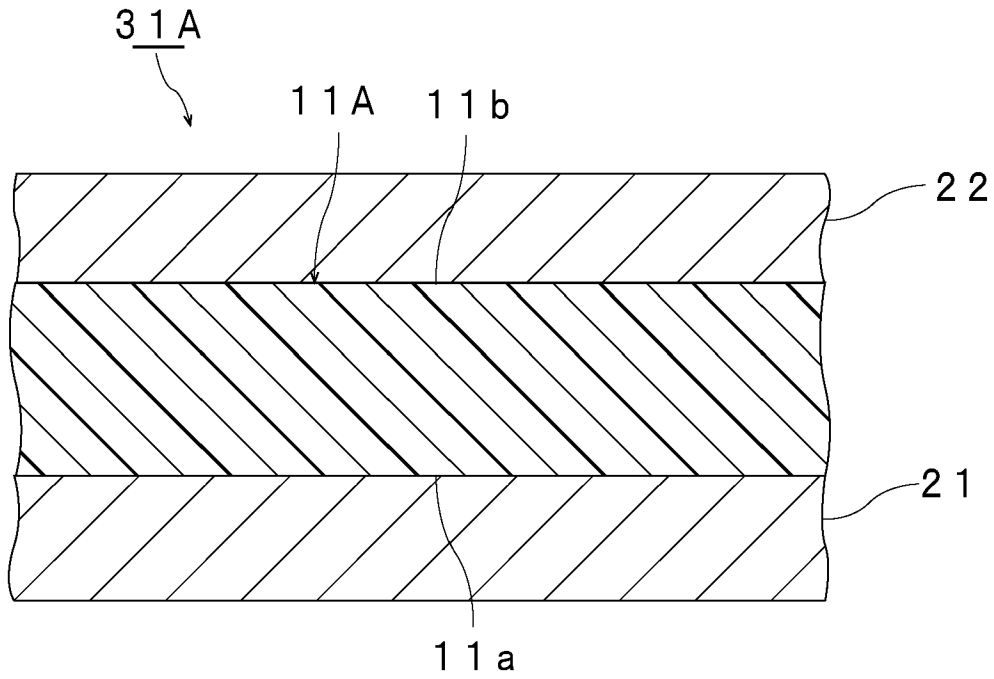
11A



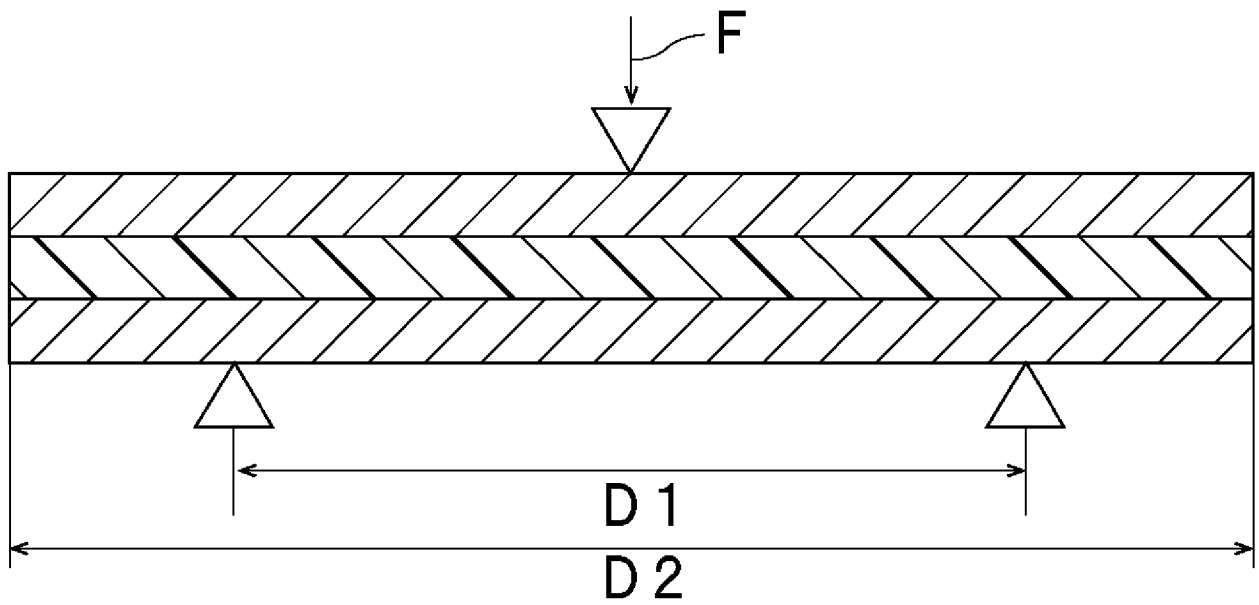
[図3]



[図4]



[図5]



**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.  
PCT/JP2015/075933

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
C03C27/12(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)  
C03C27/12

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	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

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.
X	JP 2010-523449 A (Kuraray Co., Ltd.), 15 July 2010 (15.07.2010), claims; paragraphs [0017], [0022]; examples	1, 3-6, 10, 12, 14
Y	& WO 2008/122608 A1 claims; page 4, lines 25 to 30; page 5, line 36 to page 6, line 2; examples & US 2010/0124647 A1 & EP 1977885 A1	2, 5-9, 11, 13, 15
X	JP 2009-540065 A (Solutia Inc.), 19 November 2009 (19.11.2009), claims; paragraphs [0016], [0019], [0020], [0033]; examples	1, 3, 4, 10, 12, 14
Y	& WO 2007/143746 A2 claims; page 4, lines 15 to 19; page 5, lines 1 to 9; page 8, lines 16 to 24; examples & US 2007/0287786 A1	2, 5-9, 11, 13, 15

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

* Special categories of cited documents:	"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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search 17 November 2015 (17.11.15)	Date of mailing of the international search report 01 December 2015 (01.12.15)
--	---

Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer  Telephone No.
--	---

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/075933

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 62-158037 A (Monsanto Co.), 14 July 1987 (14.07.1987), claims; page 4, lower right column, lines 4 to 15; page 5, upper right column, line 17 to lower left column, line 8; examples & US 4681810 A claims; column 3, line 66 to column 4, line 17; column 4, lines 52 to 63; examples & EP 227633 A2	1, 3, 12, 14 13, 15
X Y	JP 2-22152 A (Mitsubishi Monsanto Chemical Co.), 25 January 1990 (25.01.1990), claims; examples (Family: none)	1, 3, 12, 14 13, 15
Y	JP 2013-107821 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 06 June 2013 (06.06.2013), claims; paragraph [0116]; examples & US 2013/0183507 A1 claims; paragraph [0122]; examples & WO 2012/043816 A1 & EP 2623471 A1	2, 5-9, 11, 13, 15
Y	WO 2013/188489 A1 (CORNING INC.), 19 December 2013 (19.12.2013), claims & JP 2015-526367 A claims	13, 15

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		
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. C03C27/12		
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 1971-2015年 日本国実用新案登録公報 1996-2015年 日本国登録実用新案公報 1994-2015年		
国際調査で使用了電子データベース (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
X	JP 2010-523449 A (株式会社クラレ) 2010.07.15, 特許請求の範囲、[0017]、[0022]、実施例	1, 3-6, 10, 12, 14
Y	& WO 2008/122608 A1, 特許請求の範囲、第4頁第25-30行、 第5頁第36行-第6頁第2行、実施例 & US 2010/0124647 A1 & EP 1977885 A1	2, 5-9, 11, 13, 15
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> 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、一般的な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 17.11.2015	国際調査報告の発送日 01.12.2015	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 山崎 直也 電話番号 03-3581-1101 内線 3465	4T 3234

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
X Y	JP 2009-540065 A (ソリュテア・インコーポレイテッド) 2009.11.19, 特許請求の範囲、[0016]、[0019]、 [0020]、[0033]、実施例 & WO 2007/143746 A2, 特許請求の範囲、第4頁第15-19行、 第5頁第1-9行、第8頁第16-24行、実施例 & US 2007/0287786 A1	1, 3, 4, 10, 12, 14 2, 5-9, 11, 13, 15
X Y	JP 62-158037 A (モンサント カンパニー) 1987.07.14, 特許請求の範囲、第4頁右下欄第4-15行、 第5頁右上欄第17行-左下欄第8行、実施例 & US 4681810 A, 特許請求の範囲、 第3欄第66行-第4欄第17行、第4欄第52-63行、実施例 & EP 227633 A2	1, 3, 12, 14 13, 15
X Y	JP 2-22152 A (三菱モンサント化成株式会社) 1990.01.25, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1, 3, 12, 14 13, 15
Y	JP 2013-107821 A (積水化学工業株式会社) 2013.06.06, 特許請求の範囲、[0116]、実施例 & US 2013/0183507 A1, 特許請求の範囲、[0122]、実施例 & WO 2012/043816 A1 & EP 2623471 A1	2, 5-9, 11, 13, 15
Y	WO 2013/188489 A1 (CORNING INCORPORATED) 2013.12.19, 特許請求の範囲 & JP 2015-526367 A, 特許請求の範囲	13, 15