(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
2018年10月4日(04.10.2018)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2018/181755 A1

(51) 国際特許分類:
C03C 27/12 (2006.01)　*C08L 29/14* (2006.01)
B32B 17/10 (2006.01)　*C08L 33/04* (2006.01)
C08K 5/10 (2006.01)　*B60J 1/00* (2006.01)

(21) 国際出願番号：　PCT/JP2018/013336

(22) 国際出願日：　2018年3月29日(29.03.2018)

(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 2017-072901　2017年3月31日(31.03.2017)　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: 河田　晋治 (**KAWADA, Shinji**); 〒6180021 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). 進藤 郁 (**SHINDO, Kaoru**); 〒3490198 埼玉県蓮田市大字黒浜３５３５ 積水化学工業株式会社内 Saitama (JP).

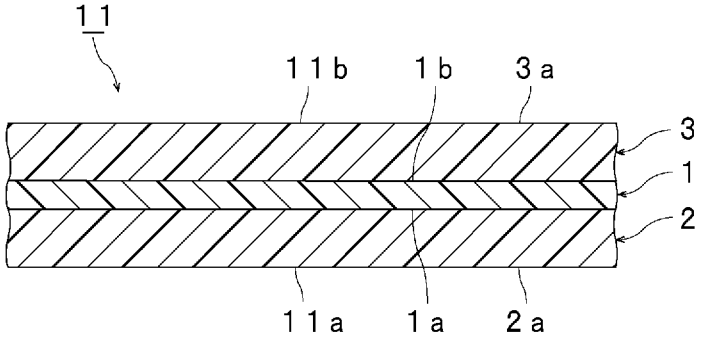
(74) 代理人: 特許業務法人 宮▲崎▼・目次特許事務所 (**MIYAZAKI & METSUGI**); 〒5400028 大阪府大阪市中央区常盤町１丁目３番８号 中央大通ＦＮビル Osaka (JP).

(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, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, 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,

(54) **Title:** MOULDED BODY AND LAMINATED GLASS

(54) 発明の名称： 成形体及び合わせガラス



(57) **Abstract:** Provided is a moulded body which is capable of improving elongation at break at low temperatures and high speeds, and which is capable of improving breaking strength at low temperatures and high speeds. A moulded body according to the present invention is provided with a phase separation structure which includes a polyvinyl acetal resin, and a polymer of a polymerizable component including a (meth)acrylate compound having two or more (meth)acryloyl groups. The content of the polymer is at least 85 but not more than 180 parts by weight per 100 parts by weight of the polyvinyl acetal resin.

(57) 要約：低温かつ高速での破断伸度を高めることができ、かつ低温かつ高速での破断強度を高めることができる成形体を提供する。本発明に係る成形体は、ポリビニルアセタール樹脂と、（メタ）アクリロイル基を２個以上有する（メタ）アクリレート化合物を含む重合性成分の重合体とを含み、前記ポリビニルアセタール樹脂１００重量部に対して、前記重合体の含有量が８５重量部以上１８０重量部以下であり、相分離構造を有する。

WO 2018/181755 A1

［続葉有］

LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

一　国際調査報告（条約第21条(3)）

明　細　書

発明の名称 ： 成形体及び合わせガラス

技術分野

[0001] 本発明は、合わせガラス用中間膜等に好適に用いることができる成形体に関する。また、本発明は、上記成形体を用いた合わせガラスに関する。

背景技術

[0002] ポリビニルアセタール樹脂は、合わせガラスにおける合わせガラス用中間膜、金属処理のウォッシュプライマー、各種塗料、接着剤、樹脂加工剤、及びセラミックスバインダー等に多目的に用いられている。近年、ポリビニルアセタール樹脂の用途が電子材料等に拡大している。

[0003] 上記合わせガラスは、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。

[0004] 上記合わせガラス用中間膜等に用いられる組成物の一例として、下記の特許文献１には、ポリビニルアセタール樹脂と、架橋構造を有する樹脂とを含有するポリビニルアセタール系樹脂組成物が開示されている。上記組成物は、連続相としての上記ポリビニルアセタール樹脂中に、分散相として上記架橋構造を有する樹脂が分散した構造を有する。周波数１０Ｈｚで動的粘弾性スペクトルを測定したとき、上記組成物は、上記ポリビニルアセタール樹脂に由来する損失正接の極大値を４０℃以上に有し、かつ、上記架橋構造を有する樹脂に由来する損失正接の極大値を１０℃以下に有する。上記架橋構造を有する樹脂は、架橋構造を有する（メタ）アクリル樹脂である。

[0005] 下記の特許文献２には、３３℃以上のガラス転移温度を有するポリマー層である中間膜が開示されている。特許文献２では、上記ポリマー層が、厚みが４．０ｍｍ以下であるガラス板の間に配置されることが記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：ＷＯ２０１４／０５０７４６Ａ１

特許文献2：ＵＳ２０１３／０２３６７１１Ａ１

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 特許文献１では、低温から高温に至る幅広い温度範囲で、優れた機械強度を発現することが記載されている。機械強度として、－２０℃、０℃、２０℃、４０℃、及び８０℃での引張伸度及び破断強度が測定されている。この機械強度の試験では、比較的低速の１００ｍｍ／分で引張試験が行われている。

[0008] 例えば、自動車に用いられる合わせガラスには、外部衝撃時に、かなり高速で変形応力が加わる。また、合わせガラスは、低温環境に晒されることがある。本発明者らは、中間膜等の成形体において、低温における高速での変形応力に対して、破壊強度をより一層向上させるという課題に着目した。

[0009] 本発明の目的は、低温かつ高速での破断伸度を高めることができ、かつ低温かつ高速での破断強度を高めることができる成形体を提供することである。また、本発明は、上記成形体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

[0010] 本発明の広い局面によれば、ポリビニルアセタール樹脂と、（メタ）アクリロイル基を２個以上有する（メタ）アクリレート化合物を含む重合性成分の重合体とを含み、前記ポリビニルアセタール樹脂１００重量部に対して、前記重合体の含有量が８５重量部以上１８０重量部以下であり、相分離構造を有する、成形体が提供される。

[0011] 本発明に係る成形体のある特定の局面では、前記重合体を構成する重合性成分１００重量％中、（メタ）アクリロイル基を２個以上有する（メタ）ア

クリレート化合物と、（メタ）アクリロイル基を２個以上有する（メタ）アクリレート化合物以外の（メタ）アクリロイル基を有する重合性化合物との合計の量が５０重量％以上であり、前記重合体が、アクリル重合体である。

[0012] 本発明に係る成形体のある特定の局面では、成形体は、可塑剤を含まないか、又は、前記ポリビニルアセタール樹脂と前記重合体との合計１００重量部に対して可塑剤を１０重量部以下で含む。

[0013] 本発明に係る成形体のある特定の局面では、成形体は、可塑剤を含まないか、又は、前記ポリビニルアセタール樹脂と前記重合体との合計１００重量部に対して可塑剤を５重量部以下で含む。

[0014] 本発明に係る成形体のある特定の局面では、成形体は、可塑剤を含む。

[0015] 本発明に係る成形体のある特定の局面では、下記式（Ｘ）により求められるゲル分率が０重量％以上５０重量％以下である。

[0016] ゲル分率（重量％）＝Ｗ２／Ｗ１×１００ ・・・式（Ｘ）

Ｗ１：成形体を２３℃のテトラヒドロフランに浸漬する前の成形体の重量

Ｗ２：成形体を２３℃のテトラヒドロフランに浸漬した後に取り出し、乾燥した後の成形体の重量

[0017] 本発明に係る成形体のある特定の局面では、前記ポリビニルアセタール樹脂と前記重合体とが架橋している。

[0018] 本発明に係る成形体のある特定の局面では、成形体は、合わせガラス用中間膜である。

[0019] 本発明に係る成形体のある特定の局面では、厚みが３ｍｍ以下である。

[0020] 本発明に係る成形体のある特定の局面では、成形体は、厚みが１．６ｍｍ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。

[0021] 本発明に係る成形体のある特定の局面では、成形体は、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、前記第１のガラス板の厚みと前記第２のガラス板の厚みとの合計が３．５ｍｍ以下である。

[0022] 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、上述した成形体とを備え、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、前記成形体が配置されている、合わせガラスが提供される。

[0023] 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１．６ｍｍ以下である。

[0024] 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２の合わせガラス部材が第２のガラス板であり、前記第１のガラス板の厚みと前記第２のガラス板の厚みとの合計が３．５ｍｍ以下である。

発明の効果

[0025] 本発明に係る成形体は、ポリビニルアセタール樹脂と、（メタ）アクリロイル基を２個以上有する（メタ）アクリレート化合物を含む重合性成分の重合体とを含む。本発明に係る成形体では、上記ポリビニルアセタール樹脂１００重量部に対して、上記重合体の含有量が８５重量部以上１８０重量部以下である。本発明に係る成形体は、相分離構造を有する。本発明に係る成形体では、上記の構成が備えられているので、本発明に係る成形体の低温かつ高速での破断伸度を高めることができ、低温かつ高速での破断強度を高めることができる。

図面の簡単な説明

[0026] [図1]図１は、本発明の第１の実施形態に係る成形体としての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の実施形態に係る成形体としての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。

発明を実施するための形態

[0027] 以下、本発明を詳細に説明する。

[0028] （成形体）

本発明に係る成形体は、ポリビニルアセタール樹脂と、（メタ）アクリロイル基を２個以上有する（メタ）アクリレート化合物を含む重合性成分の重合体（以下、重合体Ｘと記載することがある）とを含む。上記（メタ）アクリロイル基を２個以上有する（メタ）アクリレート化合物は、重合性化合物である。上記（メタ）アクリロイル基を２個以上有する（メタ）アクリレート化合物は、上記重合体Ｘを構成する重合性成分の一部又は全部として用いられている。本発明に係る成形体では、ポリビニルアセタール樹脂以外の第２の樹脂として、上記重合体Ｘが用いられている。本発明に係る成形体では、上記ポリビニルアセタール樹脂１００重量部に対して、上記重合体Ｘの含有量が８５重量部以上１８０重量部以下である。

[0029] 本発明に係る成形体は、相分離構造を有する。

[0030] 本発明に係る成形体では、上記の構成が備えられているので、本発明に係る成形体の低温かつ高速での破断伸度を高めることができ、低温かつ高速での破断強度を高めることができる。例えば、本発明に係る成形体の－２０℃での破断伸度及び破断強度を高めることができる。また、本発明に係る成形体の５００ｍｍ／分の高速での破断伸度及び破断強度を高めることができる。

[0031] また、合わせガラス用中間膜として成形体を用いる場合に、合わせガラスを得るために、成形体は、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、本発明に係る成形体の使用により、成形体の低温かつ高速の破断伸度、及び、成形体の低温かつ高速での破断強度が高いので、合わせガラスの破損及びガラス板の飛散を効果的に抑えることができる。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、本発明に係る成形体の使用により、合わせガラスの破損

及びガラス板の飛散を十分に抑えることができる。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、合わせガラスの破損及びガラス板の飛散がより一層抑えられる。

[0032] 低温かつ高速での破断伸度及び破断強度を高める観点から、上記ポリビニルアセタール樹脂１００重量部に対して、上記重合体Ｘの含有量は、８５重量部以上１８０重量部以下である。低温かつ高速での破断伸度及び破断強度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１００重量部に対して、上記重合体Ｘの含有量は、好ましくは９０重量部以上、好ましくは１３０重量部以下である。

[0033] 低温かつ高速での断伸度及び破断強度を高める観点から、上記成形体は、相分離構造を有する。低温かつ高速での破断伸度及び破断強度をより一層高める観点から、上記相分離構造において、上記重合体Ｘが島部（ドメイン）であることが好ましい。本発明において上記の効果が奏される１つの要因として、相分離構造によって、エネルギー分配が円滑に進むためであると考えられる。

[0034] 上記ポリビニルアセタール樹脂がドメインを取り囲んでいることが好ましく、上記ポリビニルアセタール樹脂がマトリックスであることが好ましい。上記相分離構造は、共連続構造又は海島構造であることが好ましい。上記相分離構造は、共連続構造であってもよく、海島構造であってもよい。上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体Ｘとが異なる相に含まれることが好ましい。上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体Ｘとで、相分離構造が形成されていることが好ましい。海島構造の場合に、上記ポリビニルアセタール樹脂が海部であり、かつ上記重合体Ｘが島部であってもよく、上記重合体Ｘが海部であり、かつ上記ポリビニルアセタール樹脂が島部であってもよい。上記相分離構造において、上記ポリビニルアセタール樹脂は連なっていてもよく（連続した構造を有していてもよく）、上記重合体Ｘは連なっていてもよく（連続した構造を有していてもよく）、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体Ｘとが共連続構造を形成していてもよい。上記相分離構造に

おいて、上記ポリビニルアセタール樹脂が網目状に存在していてもよく、上記重合体Ｘが網目状に存在していてもよい。本発明の効果に優れることから、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体Ｘとが海島構造又は共連続構造を有することが好ましい。すなわち、上記相分離構造において、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体Ｘとが海島構造又は共連続構造を形成していることが好ましい。

[0035] 上記相分離構造において、島部の径の平均は、好ましくは１０ｎｍ以上、より好ましくは１５ｎｍ以上、更に好ましくは２０ｎｍ以上、特に好ましくは３０ｎｍ以上、好ましくは１３μｍ以下、より好ましくは１０μｍ以下、更に好ましくは２μｍ以下、特に好ましくは１μｍ以下である。１つあたりの島部の径は、最大径を示し、島部の径の平均は、複数の島部の径（最大径）を平均することにより求められる。

[0036] 低温かつ高速での破断伸度及び破断強度をより一層高める観点からは、上記成形体において、下記式（Ｘ）により求められるゲル分率は好ましくは０重量％以上、好ましくは５０重量％以下、より好ましくは３０重量％以下である。

[0037] ゲル分率（重量％）＝Ｗ２／Ｗ１×１００ ・・・式（Ｘ）

Ｗ１：成形体を２３℃のテトラヒドロフランに浸漬する前の成形体の重量

Ｗ２：成形体を２３℃のテトラヒドロフランに浸漬した後に取り出し、乾燥した後の成形体の重量

[0038] 本発明に係る成形体は、合わせガラス用中間膜（以下、中間膜と記載することがある）として好適に用いられる。上記中間膜は、１層の構造又は２層以上の構造を有する。上記中間膜は、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。上記中間膜は、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。上記中間膜は、第１の層を備える。上記中間膜は、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。

[0039] 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、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。

[0040] 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、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。

[0041] 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好ましくは１．６ｍｍ以下、より好ましくは１．３ｍｍ以下である。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好ましくは１．６ｍｍ以下、より好ましくは１．３ｍｍ以下である。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好ましくは１．６ｍｍ以下、より好ましくは１．３ｍｍ以下である。

[0042] 上記中間膜は、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、破断伸度及び破断強度を充分に高くすることができるので、上記第１のガラス板の厚みと上記第２のガラス板の厚みとの合計は好ましくは３．５ｍｍ以下、より好ましくは３ｍｍ以下である。上記中間膜は、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、破断伸度及び破断強度を充分に高くすることができるので、上記中間膜は、厚みが１．６ｍｍ以下（好ましくは１．３ｍｍ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。上

記中間膜は、厚みが１．６ｍｍ以下（好ましくは１．３ｍｍ以下）である第１のガラス板と厚みが１．６ｍｍ以下（好ましくは１．３ｍｍ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。この場合にも、中間膜に起因して曲げ剛性、破断伸度及び破断強度を充分に高くすることができる。

[0043] 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。

[0044] 図１は、本発明の第１の実施形態に係る成形体としての合わせガラス用中間膜を模式的に示す断面図である。

[0045] 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１ａ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１ａとは反対の第２の表面１ｂ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。

[0046] 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。

[0047] 図２は、本発明の第２の実施形態に係る成形体としての合わせガラス用中間膜を模式的に示す断面図である。

[0048] 図２に示す中間膜１１Ａは、１層の構造を有する単層の中間膜である。中

間膜１１Ａは、第１の層である。中間膜１１Ａは、合わせガラスを得るために用いられる。中間膜１１Ａは、合わせガラス用中間膜である。

[0049] 以下、上記成形体を構成する上記第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。

[0050] （樹脂）

成形体は、ポリビニルアセタール樹脂と、（メタ）アクリロイル基を２個以上有する（メタ）アクリレート化合物を含む重合性成分の重合体Ｘとを含む。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、ポリビニルアセタール樹脂を含むことが好ましい。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、上記重合体Ｘを含むことが好ましい。上記ポリビニルアセタール樹脂は、１種のみが用いられてもよく、２種以上が併用されてもよい。上記重合体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。

[0051] 樹脂成分と可塑剤との親和性を効果的に高め、耐貫通性を効果的に高める観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂は、ポリビニルアセトアセタール樹脂、ポリビニルブチラール樹脂、ポリビニルベンジルアセタール樹脂又はポリビニルクミンアセタール樹脂であることが好ましい。４０℃での曲げ剛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は、ポリビニルアセトアセタール樹脂であることが好ましい。本明細書において、ポリビニルアセタール樹脂には、アセトアセタール化された樹脂、ベンジルアセタール化された樹脂及びクミンアセタール化された樹脂が含まれる。

[0052] 低温かつ高速での破断伸度及び破断強度をより一層高める観点からは、成形体は、上記重合体Ｘとして、ポリオレフィン樹脂、アクリル重合体、ウレタン重合体、シリコーン重合体、ゴム、又は酢酸ビニル重合体を含むことが好ましく、アクリル重合体を含むことがより好ましい。上記アクリル重合体は、重合性成分として、（メタ）アクリロイル基を有する重合性化合物を５０重量％以上用いて得られる重合体である。

[0053] 上記重合体Ｘを構成する重合性成分１００重量％中、（メタ）アクリロイル基を２個以上有する（メタ）アクリレート化合物と、（メタ）アクリロイル基を２個以上有する（メタ）アクリレート化合物以外の（メタ）アクリロイル基を有する重合性化合物との合計の量を、合計量Ａとする。低温かつ高速での破断伸度及び破断強度をより一層高める観点からは、上記合計量Ａは好ましくは５０重量％以上、より好ましくは６０重量％以上、更に好ましくは７０重量％以上、特に好ましくは８０重量％以上、最も好ましくは９０重量％以上である。上記合計量Ａが５０重量％以上である場合に、得られる重合体Ｘは、アクリル重合体である。

[0054] 上記（メタ）アクリロイル基を２個以上有する（メタ）アクリレート化合物としては、ジエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ジプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、トリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、トリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、テトラエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、テトラプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、ポリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ポリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート、３－メチル－１，５－ペンタンジオールジ（メタ）アクリレート、１，６－ヘキサンジオールジ（メタ）アクリレート、２－ブチル－２－エチル－１，３－プロパンジオールジ（メタ）アクリレート、１，９－ノナンジオールジ（メタ）アクリレート、ジメチロール－トリシクロデカンジ（メタ）アクリレート、ヒドロキシピバリン酸ネオペンチルグリコールジ（メタ）アクリレート、トリテトラメチレングリコールジ（メタ）アクリレート、エトキシ化ビスフェノールＡジ（メタ）アクリレート等の２官能の（メタ）アクリレート化合物；ペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、トリメチロールエタントリ（メタ）アクリレートジ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールトリ（メタ）アクリレート、ε－カプロラクトン変性トリス－（２－（メタ）アクリロキシエチル）イソシアヌレート、リン酸トリス［２－（（メタ）アクリロイルオキシ）エチル］等

の３官能の（メタ）アクリレート化合物；ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、エトキシ化ペンタエリスリトールテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート等の４官能以上の（メタ）アクリレート化合物等が挙げられる。

[0055] 上記（メタ）アクリロイル基を２個以上有する（メタ）アクリレート化合物は、エポキシ（メタ）アクリレート化合物及びウレタン（メタ）アクリレート化合物であってもよい。

[0056] 上記重合体Ｘは、（メタ）アクリル酸エステルを含む重合性成分の重合体であることが好ましい。上記重合体Ｘは、ポリ（メタ）アクリル酸エステルであることが好ましい。

[0057] 上記ポリ（メタ）アクリル酸エステルは特に限定されない。上記ポリ（メタ）アクリル酸エステルとしては、例えば、ポリ（メタ）アクリル酸メチル、ポリ（メタ）アクリル酸エチル、ポリ（メタ）アクリル酸ｎ－プロピル、ポリ（メタ）アクリル酸ｉ－プロピル、ポリ（メタ）アクリル酸ｎ－ブチル、ポリ（メタ）アクリル酸ｉ－ブチル、ポリ（メタ）アクリル酸ｔ－ブチル、ポリ（メタ）アクリル酸２－エチルヘキシル、ポリ（メタ）アクリル酸２－ヒドロキシエチル、ポリ（メタ）アクリル酸２－ヒドロキシプロピル、ポリ（メタ）アクリル酸４－ヒドロキシブチル、ポリ（メタ）アクリル酸グリシジル、ポリ（メタ）アクリル酸オクチル、ポリ（メタ）アクリル酸プロピル、ポリ（メタ）アクリル酸２－エチルオクチル、ポリ（メタ）アクリル酸ノニル、ポリ（メタ）アクリル酸イソノニル、ポリ（メタ）アクリル酸デシル、ポリ（メタ）アクリル酸イソデシル、ポリ（メタ）アクリル酸ラウリル、ポリ（メタ）アクリル酸イソテトラデシル、ポリ（メタ）アクリル酸シクロヘキシル、ポリ（メタ）アクリル酸イソボルニル、及びポリ（メタ）アクリル酸ベンジル等が挙げられる。また、極性基を有する（メタ）アクリル酸、及び、（メタ）アクリル酸エステルとしては、（メタ）アクリル酸、（メ

タ）アクリル酸２－ヒドロキシエチル、（メタ）アクリル酸４－ヒドロキシブチル、及び（メタ）アクリル酸グリシジル等が挙げられる。動的粘弾性スペクトルにおいて、ｔａｎδの最大値を示す温度を適度な範囲内に容易に制御することができることから、ポリアクリル酸エステルが好ましく、ポリアクリル酸エチル、ポリアクリル酸ｎ－ブチル、ポリアクリル酸２－エチルヘキシル又はポリアクリル酸オクチルがより好ましい。これらの好ましいポリ（メタ）アクリル酸エステルの使用により、成形体の生産性と成形体の特性のバランスとがより一層良好になる。上記ポリ（メタ）アクリル酸エステルは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と上記重合体Ｘとが架橋していることが好ましい。上記成形体は、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体Ｘとを、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体Ｘとが架橋した架橋物として含んでいてもよい。上記熱可塑性樹脂は架橋構造を有してもよい。上記架橋構造により、せん断貯蔵弾性率を制御でき、優れた可撓性と高い強度とを併せ持つ成形体を作製することができる。

[0059] 樹脂を架橋させる方法としては、以下の方法等が挙げられる。樹脂のポリマー構造中に互いに反応する官能基を導入しておき、架橋を形成させる方法。樹脂のポリマー構造中に存在する官能基に対して反応する官能基を２つ以上有する架橋剤を用いて架橋させる方法。過酸化物等の水素引き抜き能を有するラジカル発生剤を用いてポリマーを架橋させる方法。電子線照射により架橋させる方法。せん断貯蔵弾性率を制御しやすく、成形体の生産性が高くなることから、樹脂のポリマー構造中に互いに反応する官能基を導入しておき、架橋を形成させる方法が好適である。

[0060] 成形体が上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体Ｘとの架橋物を含む場合に、ポリビニルアセタール樹脂の存在下で、（メタ）アクリロイル基を２個以上有する（メタ）アクリレート化合物を含む重合性成分を重合させることにより重合体Ｘを形成し、成形体を得る工程が行われることが好ましい。この工程により、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体Ｘとが架橋

している構造が形成される。

[0061] 上記第１の層（単層の成形体を含む）は、熱可塑性樹脂（以下、熱可塑性樹脂（１）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、熱可塑性樹脂（１）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（１）と記載することがある）を含むことが好ましい。上記第１の層のみの単層の成形体である場合に、成形体は、ポリビニルアセタール樹脂（１）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い。上記第２の層は、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い。上記第３の層は、熱可塑性樹脂（３）として、ポリビニルアセタール樹脂（以下、ポリビニルアセタール樹脂（３）と記載することがある）を含むことが好ましい。上記ポリビニルアセタール樹脂（１）と上記ポリビニルアセタール樹脂（２）と上記ポリビニルアセタール樹脂（３）とは、同一であってもよく、異なっていてもよい。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（１）と上記熱可塑性樹脂（２）と上記熱可塑性樹脂（３）とは、同一であってもよく、異なっていてもよい。上記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（１）、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。

[0062] 上記熱可塑性樹脂としては、ポリビニルアセタール樹脂、ポリアクリル樹脂、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。

[0063] 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。

[0064] 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と曲げ剛性と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、成形体の成形が容易になる。

[0065] 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。

[0066] 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２～１０であることが好ましく、２～５であることがより好ましく、２、３又は４であることが更に好ましい。また、上記ポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール基の炭素数が２又は４であることが好ましく、この場合には、ポリビニルアセタール樹脂の生産が効率的である。

[0067] 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、クミンアルデヒド、及びベンズアルデヒド等が挙げられる。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い。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、アセトアルデヒド、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。

[0068] 上記ポリビニルアセタール樹脂（１）を単層の成形体の一部として用いる場合には、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、以下の範囲が好ましい。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（水酸基量）は、好ましくは３７モル％以下、より好ましくは３６．５モル％以下、更に好ましくは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、成形体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、成形体の柔軟性が高くなり、成形体の取扱いが容易になる。

[0069] 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。上記ポリビニルアセタール樹脂（１）を多層の成形体の一部として用いる場合には特に、この水酸基の含有率の下限及び上限を満足することが好ましい。上記水酸基の含有率が上記下限以上であると、成形体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、成形体の柔軟性が高くなり、成形体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％以下である成形体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、本発明の構成によって、曲げ剛性を顕著に改善できる。

[0070] 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％以上である。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３７モル％以下、より好ましくは３６．５モル％以下、更に好ましくは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、成形体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、成形体の柔軟性が高くなり、成形体の取扱いが容易になる。

[0071] 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、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。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（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、好ましくは２０モル％以下である。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（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。

[0072] 上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率は、水酸基が結合しているエチレン基量を、主鎖の全エチレン基量で除算して求めたモル分率を百分率で示した値である。上記水酸基が結合しているエチレン基量は、例えば、ＪＩＳ　Ｋ６７２８「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠して測定できる。

[0073] 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や他の熱可塑性樹脂との相溶性が高くなり、遮音性や耐貫通性により一層優れ、長期間に渡り性能がより一層安定する。上記アセチル化度が上記上限以下であると、成形体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、耐貫通性により一層優れる。

[0074] 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、成形体及び合わせガラスの耐湿性が高くなる。

[0075] 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、ＪＩＳ　Ｋ６７２８「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠して測定できる。

[0076] 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、更に好ましくは６８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。

[0077] 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。

[0078] 上記アセタール化度は、以下のようにして求める。先ず、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求める。得られた値を、主鎖の全エチレン基量で除算してモル分率を求める。このモル分率を百分率で示した値がアセタール化度である。

[0079] なお、上記水酸基の含有率（水酸基量）、アセタール化度（ブチラール化度）及びアセチル化度は、ＪＩＳ　Ｋ６７２８「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により測定された結果から算出することが好ましい。但し、ＡＳＴＭ　Ｄ１３９６－９２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　Ｋ６７２８「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により測定された結果から算出され得る。

[0080]　（可塑剤）

上記成形体は、可塑剤を含むことが好ましい。上記第１の層（単層の成形体を含む）は、可塑剤（以下、可塑剤（１）と記載することがある）を含むことが好ましい。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、耐貫通性により一層優れ、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む層の合わせガラス部材又は他の層に対する接着力が適度に高くなる。上記可塑剤は特に限定されない。上記可塑剤（１）と上記可塑剤（２）と上記可塑剤（３）とは同一であってもよく、異なっていてもよい。上記可塑剤（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。

[0081]　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。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。

[0082]　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。

[0083]　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。

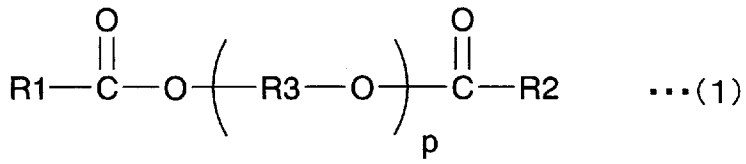
[0084] 上記有機エステル可塑剤としては、トリエチレングリコールジ－２－エチルプロパノエート、トリエチレングリコールジ－２－エチルブチレート、トリエチレングリコールジ－２－エチルヘキサノエート、トリエチレングリコールジカプリレート、トリエチレングリコールジ－ｎ－オクタノエート、トリエチレングリコールジ－ｎ－ヘプタノエート、テトラエチレングリコールジ－ｎ－ヘプタノエート、ジブチルセバケート、ジオクチルアゼレート、ジブチルカルビトールアジペート、エチレングリコールジ－２－エチルブチレート、１，３－プロピレングリコールジ－２－エチルブチレート、１，４－ブチレングリコールジ－２－エチルブチレート、ジエチレングリコールジ－２－エチルブチレート、ジエチレングリコールジ－２－エチルヘキサノエート、ジプロピレングリコールジ－２－エチルブチレート、トリエチレングリコールジ－２－エチルペンタノエート、テトラエチレングリコールジ－２－エチルブチレート、ジエチレングリコールジカプリレート、ジエチレングリコールジベンゾエート、ジプロピレングリコールジベンゾエート、マレイン酸ジブチル、アジピン酸ビス（２－ブトキシエチル）、アジピン酸ジブチル、アジピン酸ジイソブチル、アジピン酸２，２－ブトキシエトキシエチル、安息香酸グリコールエステル、アジピン酸１，３－ブチレングリコールポリエステル、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、クエン酸トリブチル、アセチルクエン酸トリブチル、炭酸ジエチル、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。

[0085] 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、トリクレジ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。

[0086] 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。

[0087] [化1]



・・・(1)

[0088] 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。

[0089] 上記可塑剤は、トリエチレングリコールジ－２－エチルヘキサノエート（３ＧＯ）、トリエチレングリコールジ－２－エチルブチレート（３ＧＨ）又はトリエチレングリコールジ－２－エチルプロパノエートを含むことが好ましい。上記可塑剤は、トリエチレングリコールジ－２－エチルヘキサノエート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を含むことが更に好ましい。

[0090] 低温かつ高速での破断伸度及び破断強度をより一層高める観点からは、上記成形体は、可塑剤を含まないか、又は、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体との合計１００重量部に対して可塑剤を１０重量部以下（好ましくは５重量部以下）で含むことが好ましい。耐貫通性をより一層高める観点からは、上記成形体は、可塑剤を含むことが好ましく、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記重合体との合計１００重量部に対して可塑剤を０．０１重量部以上（好ましくは０．１重量部以上）で含むことが好ましい。

[0091] 上記第２の層において、上記熱可塑性樹脂（２）１００重量部（熱可塑性樹脂（２）がポリビニルアセタール樹脂（２）である場合には、ポリビニル

アセタール樹脂（２）１００重量部）に対する上記可塑剤（２）の含有量を、含有量（２）とする。上記第３の層において、上記熱可塑性樹脂（３）１００重量部（熱可塑性樹脂（３）がポリビニルアセタール樹脂（３）である場合には、ポリビニルアセタール樹脂（３）１００重量部）に対する上記可塑剤（３）の含有量を、含有量（３）とする。上記含有量（２）及び上記含有量（３）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、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、成形体の柔軟性が高くなり、成形体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。

[0092] 上記第１の層において、上記熱可塑性樹脂（１）１００重量部（熱可塑性樹脂（１）がポリビニルアセタール樹脂（１）である場合には、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）の含有量を、含有量（１）とする。上記含有量（１）は、好ましくは１重量部以上、より好ましくは２重量部以上、より一層好ましくは３重量部以上、更に好ましくは５重量部以上、好ましくは９０重量部以下、より好ましくは８５重量部以下、更に好ましくは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、成形体の柔軟性が高くなり、成形体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。上記含有量（１）は、５０重量部以上であってもよく、５５重量部以上であってもよく、６０重量部以上であってもよい。上記含有量（１）は、３０重量部以下であってもよく、２０重量部以下であってもよく、１０重量部以下であってもよい。

[0093] 上記成形体が２層以上である場合には、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重量部以上である成形体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、本発明の構成により、曲げ剛性を顕著に改善できる。

[0094] 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。

[0095] （遮熱性物質）

上記成形体は、遮熱性物質（遮熱性化合物）を含むことが好ましい。上記第１の層は、遮熱性物質を含むことが好ましい。上記第２の層は、遮熱性物質を含むことが好ましい。上記第３の層は、遮熱性物質を含むことが好ましい。上記遮熱性物質は、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。

[0096] 上記遮熱性物質は、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を含むか、又は遮熱粒子を含むことが好ましい。この場合に、上記成分Ｘと上記遮熱粒子との双方を含んでいてもよい。

[0097] 成分Ｘ：

上記成形体は、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は遮熱性物質である。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] 成形体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。成形体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％以上である。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０．２重量％以下、より好ましくは０．１重量％以下、更に好ましくは０．０５重量％以下、特に好ましくは０．０４重量％以下である。上記成分Ｘの含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、遮熱性が充分に高くなり、かつ可視光線透過率が充分に高くなる。例えば、可視光線透過率を７０％以上にすることが可能である。

[0102] 遮熱粒子：

上記成形体は、遮熱粒子を含むことが好ましい。上記第１の層（単層の成形体を含む）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物質である。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_6）粒子等が挙げられる。これら以外の遮熱粒子を用いてもよい。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] 成形体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] 成形体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。成形体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０．０１μｍ以上、より好ましくは０．０２μｍ以上、好ましくは０．１μｍ以下、より好ましくは０．０５μｍ以下である。平均粒子径が上記下限以上であると、熱線の遮蔽性が充分に高くなる。平均粒子径が上記上限以下であると、遮熱粒子の分散性が高くなる。

[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％以上である。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）

上記成形体は、アルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩及びマグネシウム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、成形体と合わせガラス部材との接着性又は成形体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。成形体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、炭素数２～１６の有機酸のアルカリ土類金属塩又は炭素数２～１６の有機酸のマグネシウム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、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、成形体と合わせガラス部材との接着性又は成形体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）

上記成形体は、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、成形体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（ベンゾトリアゾール化合物）、ベンゾフェノン構造を有する紫外線遮蔽剤（ベンゾフェノン化合物）、トリアジン構造を有する紫外線遮蔽剤（トリアジン化合物）、マロン酸エステル構造を有する紫外線遮蔽剤（マロン酸エステル化合物）、シュウ酸アニリド構造を有する紫外線遮蔽剤（シュウ酸アニリド化合物）及びベンゾエート構造を有する紫外線遮蔽剤（ベンゾエート化合物）等が挙げられる。

[0119] 上記金属原子を含む紫外線遮蔽剤としては、例えば、白金粒子、白金粒子の表面をシリカで被覆した粒子、パラジウム粒子及びパラジウム粒子の表面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る。上記紫外線遮蔽剤は、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遮蔽剤である。

[0121] 上記金属酸化物を含む紫外線遮蔽剤としては、例えば、酸化亜鉛、酸化チタン及び酸化セリウム等が挙げられる。さらに、上記金属酸化物を含む紫外線遮蔽剤に関して、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遮蔽剤の表面の被覆材料としては、絶縁性金属酸化物、加水分解性有機ケイ素化合物及びシリコー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遮蔽剤としては、例えば、２－（２’－ヒドロキシ－５’－メチルフェニル）ベンゾトリアゾール（ＢＡＳＦ社製「ＴｉｎｕｖｉｎＰ」）、２－（２’－ヒドロキシ－３’，５’－ジ－ｔ－ブチルフェニル）ベンゾトリアゾール（ＢＡＳＦ社製「Ｔｉｎｕｖｉｎ３２０」）、２－（２’－ヒドロキシ－３’－ｔ－ブチル－５－メチルフェニル）－５－クロロベンゾトリアゾール（ＢＡＳＦ社製「Ｔｉｎｕｖｉｎ３２６」）、及び２－（２’－ヒドロキシ－３’，５’－ジ－アミルフェニル）ベンゾトリアゾール（ＢＡＳＦ社製「Ｔｉｎｕｖｉｎ３２８」）等が挙げられる。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遮蔽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遮蔽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遮蔽剤としては、例えば、オクタベンゾン（ＢＡＳＦ社製「Ｃｈｉｍａｓｓｏｒｂ８１」）等が挙げられる。

[0124] 上記トリアジン構造を有する紫外線遮蔽剤としては、例えば、ＡＤＥＫＡ社製「ＬＡ－Ｆ７０」及び２－（４，６－ジフェニル－１，３，５－トリアジン－２－イル）－５－［（ヘキシル）オキシ］－フェノール（ＢＡＳＦ社製「Ｔｉｎｕｖｉｎ１５７７ＦＦ」）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「ＳａｎｄｕｖｏｒＶＳＵ」）などの窒素原子上に置換されたアリール基などを有するシュウ酸ジアミド類が挙げられる。

[0128] 上記ベンゾエート構造を有する紫外線遮蔽剤としては、例えば、２，４－ジ－ｔｅｒｔ－ブチルフェニル－３，５－ジ－ｔｅｒｔ－ブチル－４－ヒドロキシベンゾエート（ＢＡＳＦ社製「Ｔｉｎｕｖｉｎ１２０」）等が挙げられる。

[0129] 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％以上である。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。上記紫外線遮蔽剤の含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、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ことができる。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、成形体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）

上記成形体は、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）、ブチルヒドロキシアニソール（ＢＨＡ）、２，６－ジ－ｔ－ブチル－４－エチルフェノール、ステアリル－β－（３，５－ジ－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート、２，２’－メチレンビス－（４－メチル－６－ブチルフェノール）、２，２’－メチレンビス－（４－エチル－６－ｔ－ブチルフェノール）、４，４’－ブチリデン－ビス－（３－メチル－６－ｔ－ブチルフェノール）、１，１，３－トリス－（２－メチル－ヒドロキシ－５－ｔ－ブチルフェニル）ブタン、テトラキス［メチレン－３－（３’，５’－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート］メタン、１，３，３－トリス－（２－メチル－４－ヒドロキシ－５－ｔ－ブチルフェノール）ブタン、１，３，５－トリメチル－２，４，６－トリス（３，５－ジ－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシベンジル）ベンゼン、ビス（３，３’－ｔ－ブチルフェノール）ブチリックアッシドグリコールエステル及びビス（３－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシ－５－メチルベンゼンプロパン酸）エチレンビス（オキシエチレン）等が挙げられる。これらの酸化防止剤の内の１種又は２種以上が好適に用いられる。

[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、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「スミライザーＢＨＴ」、堺化学工業社製「Ｈ－ＢＨＴ」、並びにＢＡＳＦ社製「ＩＲＧＡＮＯＸ　１０１０」等が挙げられる。

[0136] 成形体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、上記成形体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、上記成形体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）

上記成形体、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、フィラー、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] せん断貯蔵弾性率を好適な範囲に制御するために、成形体、第１の層、第２の層及び第３の層は、フィラーを含んでいてもよい。上記フィラーとしては、炭酸カルシウム粒子、及びシリカ粒子等が挙げられる。曲げ剛性及を効果的に高め、透明性の低下を効果的に抑える観点からは、シリカ粒子が好ま

しい。

[0139] フィラーを含む層（第１の層、第２の層又は第３の層）１００重量％中、上記フィラーの含有量は、好ましくは１重量％以上、より好ましくは５重量％以上、更に好ましくは１０重量部以上、好ましくは６０重量％以下、より好ましくは５０重量％以下である。

[0140] （成形体の他の詳細）

上記成形体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充分に高める観点からは、成形体の厚みは、好ましくは０．１ｍｍ以上、より好ましくは０．２５ｍｍ以上、好ましくは３ｍｍ以下、より好ましくは１．５ｍｍ以下である。成形体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より一層高くなる。成形体の厚みが上記上限以下であると、成形体の透明性がより一層良好になる。

[0141] 成形体が中間膜である場合に、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０．０３５Ｔ以上、より好ましくは０．０６２５Ｔ以上、更に好ましくは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、特に好ましくは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。

[0142] 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０．９７Ｔ以下、より好ましくは０．９３７５Ｔ以下、更に好ましくは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、０．４６８７５Ｔ以下であってもよく、０．４５Ｔ以下であってもよい。また、上記第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。

[0143] 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０．６２５Ｔ以上、より好ましくは０．７５Ｔ以上、更に好ましくは０．８５Ｔ以上、好

ましくは０．９７Ｔ以下、より好ましくは０．９３７５Ｔ以下、更に好ましくは０．９Ｔ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。

[0144] 上記中間膜は、厚みが均一な中間膜であってもよく、厚みが変化している中間膜であってもよい。上記中間膜の断面形状は矩形であってもよく、楔形であってもよい。

[0145] 本発明に係る成形体の製造方法は特に限定されない。本発明に係る成形体の製造方法としては、単層の成形体の場合に、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。本発明に係る成形体の製造方法としては、多層の成形体の場合に、例えば、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、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。

[0146] 成形体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い。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及び同一の可塑剤が含まれていることがより好ましい。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。

[0147] 上記成形体は、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。上記成形体は、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。

[0148] （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。

[0149] 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。

[0150] 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。

[0151] 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。

[0152] 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。

[0153] 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。

[0154] 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、成形体（中間膜）とを備えており、該成形体（中間膜）が、本発明に係る成形体である。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、上記成形体が配置されている。

[0155] 上記第１の合わせガラス部材は、第１のガラス板であることが好ましい。上記第２の合わせガラス部材は、第２のガラス板であることが好ましい。

[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成形体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成形体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。上記第１の合わせガラス部材及び上記第２の合わせガラス部材がそれぞれ、ガラス板又はＰＥＴフィルムであり、かつ上記合わせガラスは、上記第１の合わせガラス部材及び上記第２の合わせガラス部材の内の少なくとも一方として、ガラス板を備えることが好ましい。

[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、無機ガラスに代わ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] 本発明に係る成形体の使用により、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。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１．６ｍｍ以下、より一層好ましくは１．５ｍｍ以下、更に好ましくは１．４ｍｍ以下、更に好ましくは１．３ｍｍ以下、更に一層好ましくは１．０

ｍｍ以下、特に好ましくは０．７ｍｍ以下である。この場合には、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ことができる。上記第１のガラス板の厚みと上記第２のガラス板の厚みとの合計は、好ましくは３．５ｍｍ以下、より好ましくは３．２ｍｍ以下、更に好ましくは３ｍｍ以下、特に好ましくは２．８ｍｍ以下である。この場合には、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ことができる。

[0160] 上記合わせガラスの製造方法は特に限定されない。先ず、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、成形体を挟んで、積層体を得る。次に、例えば、得られた積層体を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することにより、上記第１の合わせガラス部材と上記第２の合わせガラス部材と成形体との間に残留する空気を脱気する。その後、約７０～１１０℃で予備接着して予備圧着された積層体を得る。次に、予備圧着された積層体をオートクレーブに入れたり、又はプレスしたりして、約１２０～１５０℃及び１～１．５ＭＰａの圧力で圧着する。このようにして、合わせガラスを得ることができる。上記合わせガラスの製造時に、第１の層と第２の層と第３の層とを積層してもよい。

[0161] 上記成形体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。上記成形体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。上記成形体及び上記合わせガラスは、車両用又は建築用の成形体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。上記成形体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。上記成形体及び上記合わせガラスは、自動車に好適に用いられる。上記成形体は、自動車の合わせガラスを得るために用いられる。

[0162] 以下に実施例及び比較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。

[0163] 以下の材料を用意した。

[0164] （ポリビニルアセタール樹脂）

下記の表１～３に示すポリビニルアセタール樹脂を適宜用いた。

[0165] ポリビニルアセタール樹脂に関しては、アセタール化度、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。また、アセタールの種類がアセトアセタール、ベンジルアセタール又はクミンアセタールである場合には、アセタール化度は、同様に、アセチル化度、水酸基の含有率を測定し、得られた測定結果からモル分率を算出し、次いで、１００モル％からアセチル化度及び水酸基の含有率を引くことにより、算出される。

[0166] （第２の樹脂）

下記の表１～３に示すアクリル重合体を適宜用いた。

[0167] 下記の表１～３に示すアクリル重合体は、以下の化合物を下記の表１～３に示す含有量で含む重合性成分を重合させたアクリル重合体である。

[0168] アクリル酸エチル

アクリル酸ブチル

アクリル酸ベンジル

アクリル酸２－ヒドロキシエチル

アクリル酸

メタクリル酸グリシジル

トリプロピレングリコールジアクリレート（新中村化学社製「ＡＰＧ－２００」）

ポリプロピレングリコール＃４００ジアクリレート（新中村化学社製「ＡＰＧ－４００」）

ポリプロピレングリコール（＃７００）ジアクリレート（新中村化学社製

「ＡＰＧ－７００」）

エトキシ化ビスフェノールＡジアクリレート（新中村化学社製「Ａ－ＢＰＥ－２０」）

ε－カプロラクトン変性トリス－（２－アクリロキシエチル）イソシアヌレート（新中村化学社製「Ａ－９３００－１ＣＬ」）

リン酸トリス［２－（アクリロイルオキシ）エチル］

エトキシ化ペンタエリスリトールテトラアクリレート（新中村化学社製「ＡＴＭ－３５Ｅ」）

[0169] （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）

[0170] （実施例１）

ポリビニルアセタール樹脂（平均重合度５６０、アセタール化度７４．０モル％、水酸基の含有率２５．０モル％、アセチル化度０．９モル％）を用意した。重合性成分１００重量部（アクリル酸エチル６０重量部、アクリル酸ブチル１４．２重量部、アクリル酸ベンジル２５．２重量部、トリプロピレングリコールジアクリレート０．６重量部）を用意した。温度計、攪拌機、窒素導入管、冷却管を備えた反応容器内に、原料となる上記ポリビニルアセタール樹脂１００重量部と、上記重合性成分１００重量部と、重合溶媒として酢酸エチル３００重量部とを加え、撹拌しながらポリビニルアセタール樹脂を溶解させた。次に、窒素ガスを３０分間吹き込んで反応容器内を窒素置換した後、反応容器内を撹拌しながら８０℃に加熱した。３０分後、重合開始剤としてのｔ－ブチルパーオキシ－２－エチルヘキサノエート（１時間半減期温度：９２．１℃、１０時間半減期温度：７２．１℃）０．５重量部を酢酸エチル５重量部で希釈して得られた重合開始剤溶液を、反応容器内に６時間かけて滴下した。その後、更に８０℃にて６時間反応させた後、反応液を冷却することにより、変性ポリビニルアセタール樹脂を含有する溶液を得た。

[0171] 得られた溶液にポリビニルアセタール樹脂及び重合体（第２の樹脂）の合

計１００重量部に対し、可塑剤として３ＧＯを５重量部加え、希釈溶剤（メタノールとトルエンとの混合溶剤、メタノールとトルエンとの重量比率は１：２）により希釈し、固形分２０重量％の溶液を得た。次に、この溶液をコーターを用いて乾燥後の厚みが５０μｍとなるように離型処理したＰＥＴフィルム上に塗布し、８０℃で１時間乾燥させ、中間膜を得た。得られた厚み５０μｍの中間膜を重ね合わせ、１５０℃、２０ＭＰａで加熱圧着させることで、厚み４００μｍの中間膜を得た。

[0172] （実施例２～２０及び比較例１～９）

中間膜を形成するための組成物の組成を下記の表１～３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。

[0173] （評価）

（１）ゲル分率

中間膜０．２ｇをテトラヒドロフラン４０ｇに浸漬し、２３℃で２４時間振盪浸漬させた。その後、遠心分離機（ＫＵＢＯＴＡ社製、高速大容量冷却遠心分離機７７８０）により、１０℃及び１００００ｒｐｍで遠心を行った後、上澄み液を除去した。容器内の残存物を１１０℃で１時間加熱し乾燥させた。その後、残存物の重量を測定した。上記式（Ｘ）によりゲル分率の算出を行った。

[0174] （２）相構造観察

得られた中間膜をマイクロトームで処理することにより、厚さ１００ｎｍの切片を作製した。得られた切片を四酸化オスミウムにて染色し、透過型電子顕微鏡で観察した。相分離構造の有無を判断した。

[0175] ［相分離構造の有無の判定基準］

〇：相分離構造あり

×：相分離構造なし

[0176] さらに、相分離構造がありかつマトリックスがある場合に、マトリックス及び島部（ドメイン）を構成する樹脂成分が、ポリビニルアセタール樹脂であるか、第２の樹脂であるかを確認した。

[0177] ［マトリックス及び島部を構成する樹脂成分の判定基準］

Ａ：マトリックスを構成する成分がポリビニルアセタール樹脂かつ島部を構成する成分が第２の樹脂

Ｂ：マトリックスを構成する成分が第２の樹脂かつ島部を構成する成分がポリビニルアセタール樹脂

[0178] さらに、相分離構造がありかつ島部（ドメイン）がある場合に、島部の径（最大径）を３０００倍又は５０００倍で観察し、平均値を求めた。島部の径の平均を以下の基準で判定した。

[0179] ［島部の径の平均の判定基準］

Ａ：島部の径の平均が、１０ｎｍ以上１μｍ以下

Ｂ：Ａの基準に相当しない

[0180] （３）引張特性

５ｃｍ×１ｃｍにカットした中間膜（厚み４００μｍ）を用意した。中間膜の破断伸度及び破断強度（最大応力）の測定を、引張試験機で、－２０℃の低温、かつ、５００ｍｍ／分の高速で行った。引張伸度及び破断強度について、以下の基準で評価した。

[0181] ［破断伸度の判定基準］

〇〇：引張伸度が１８０％以上

〇：引張伸度が１５０％以上１８０％未満

△：引張伸度が１１０％以上１５０％未満

×：引張伸度が１１０％未満

[0182] ［破断強度（最大応力の判定基準］

〇〇：破断強度が４０ＭＰａ以上

〇：破断強度が３０ＭＰａ以上４０ＭＰａ未満

△：破断強度が２０ＭＰａ以上３０ＭＰａ未満

×：破断強度が２０ＭＰａ未満

[0183] 詳細及び結果を下記の表１～３に示す。

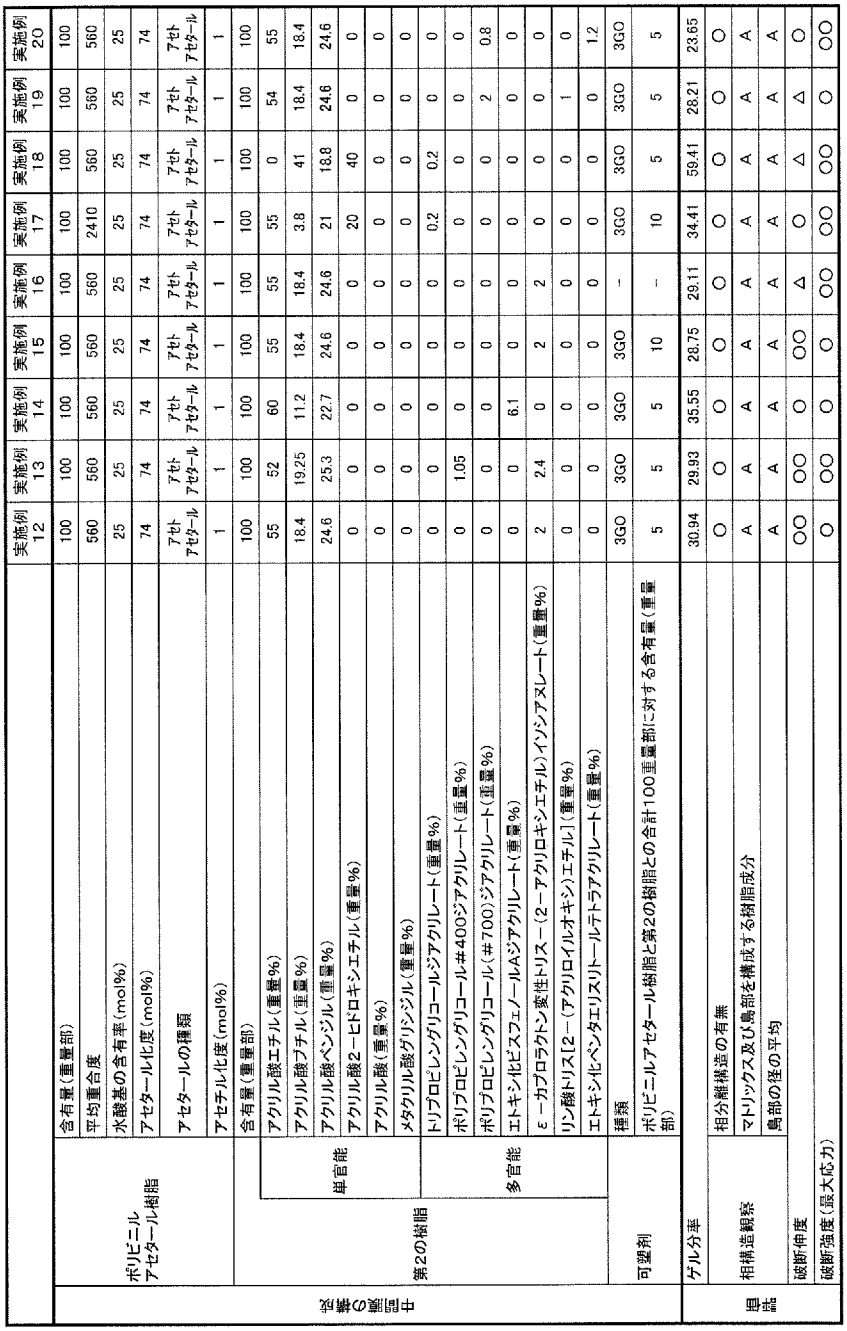
[0184]

[表1]

			実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11
分散媒の調整中	ポリビニルアセタール樹脂		含有量(重量部)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
			平均重合度	560	2410	1700	560	560	560	560	560	560	560	560
			水酸基の含有率(mol%)	25	25	30.6	25	25	25	25	25	25	25	25
			アセタール化度(mol%)	74	74	68.5	74	74	74	74	74	74	74	74
			アセタールの種類	アセトアセタール	アセトアセタール	ブチラール	アセトアセタール	アセトアセタール	アセトアセタール	アセトアセタール	アセトアセタール	アセトアセタール	アセトアセタール	アセトアセタール
			アセチル化度(mol%)	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
	第2の樹脂		含有量(重量部)	100	100	100	130	160	85	100	100	100	100	100
		単官能	アクリル酸エチル(重量%)	60	60	60	60	60	60	60	60	60	50	60
			アクリル酸ブチル(重量%)	14.2	14.2	14.2	13.6	13.6	13.6	13.6	13	13	11.4	9.7
			アクリル酸ベンジル(重量%)	25.2	25.2	25.2	25.2	25.2	25.2	25.2	25	25	25.4	25.4
			アクリル酸2-ヒドロキシエチル(重量%)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	10	0
			アクリル酸(重量%)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			メタクリル酸グリシジル(重量%)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
		多官能	トリプロピレングリコールジアクリレート(重量%)	0.6	0.6	0.6	1.2	1.2	1.2	1.2	0.3	2	0	0
			ポリプロピレングリコール#400ジアクリレート(重量%)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	3.2	0
			ポリプロピレングリコール(#700)ジアクリレート(重量%)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	4.9
			エトキシ化ビスフェノールAジアクリレート(重量%)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			ε-カプロラクトン変性トリス-(2-アクリロキシエチル)イソシアヌレート(重量%)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			リン酸トリス[2-(アクリロイルオキシ)エチル](重量%)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
			エトキシ化ペンタエリスリトールテトラアクリレート(重量%)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
		可塑剤	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
			ポリビニルアセタール樹脂と第2の樹脂との合計100重量部に対する含有量(重量部)	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
膜物性	ゲル分率			1.64	6.18	4.18	17.28	15.48	21.55	19.18	0	30.46	32.88	33.08
	相構造観察		相分離構造の有無	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
			マトリックス及び島部を構成する樹脂成分	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A
			島部の径の平均	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A
	破断伸度			○	○	○	○	○○	△	○	○○	○	○	○○
	破断強度(最大応力)			○	○○	○	○	△	○○	○○	○	○	○	○

[0185]

[表2]



			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	実施例19	実施例20
樹脂の構成	ポリビニルアセタール樹脂		100	100	100	100	100	100	100	100	100
		平均重合度	560	560	560	560	560	2410	560	560	560
		水酸基の含有率(mol%)	25	25	25	25	25	25	25	25	25
		アセタール化度(mol%)	74	74	74	74	74	74	74	74	74
		アセタールの種類	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール	アセト アセタール
		アセチル化度(mol%)	1	1	1	1	1	1	1	1	1
	第2の樹脂	含有量(重量部)	100	100	100	100	100	100	100	100	100
		単官能 アクリル酸エチル(重量%)	55	52	60	55	55	55	0	54	55
		単官能 アクリル酸ブチル(重量%)	18.4	19.25	11.2	18.4	18.4	3.8	41	18.4	18.4
		単官能 アクリル酸ベンジル(重量%)	24.6	25.3	22.7	24.6	24.6	21	18.8	24.6	24.6
		単官能 アクリル酸2－ヒドロキシエチル(重量%)	0	0	0	0	0	20	40	0	0
		単官能 アクリル酸(重量%)	0	0	0	0	0	0	0	0	0
		単官能 メタクリル酸グリシジル(重量%)	0	0	0	0	0	0	0	0	0
		多官能 トリプロピレングリコールジアクリレート(重量%)	0	0	0	0	0	0.2	0.2	0	0
		多官能 ポリプロピレングリコール#400ジアクリレート(重量%)	0	1.05	0	0	0	0	0	0	0
		多官能 ポリプロピレングリコール(#700)ジアクリレート(重量%)	0	0	0	0	0	0	0	2	0.8
		多官能 エトキシ化ビスフェノールAジアクリレート(重量%)	0	0	6.1	0	0	0	0	0	0
		多官能 ε－カプロラクトン変性トリス－(2－アクリロキシエチル)イソシアヌレート(重量%)	2	2.4	0	2	2	0	0	0	0
		多官能 リン酸トリス[2－(アクリロイルオキシ)エチル](重量%)	0	0	0	0	0	0	0	1	0
		多官能 エトキシ化ペンタエリスリトールテトラアクリレート(重量%)	0	0	0	0	0	0	0	0	1.2
	可塑剤	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	－	3GO	3GO	3GO	3GO
		ポリビニルアセタール樹脂と第2の樹脂との合計100重量部に対する含有量(重量部)	5	5	5	10	－	10	5	5	5
組成物の評価	ゲル分率		30.94	29.93	35.55	28.75	29.11	34.41	59.41	28.21	23.65
	相構造観察	相分離構造の有無	○	○	○	○	○	○	○	○	○
		マトリックス及び島部を構成する樹脂成分	A	A	A	A	A	A	A	A	A
		島部の径の平均	A	A	A	A	A	A	A	A	A
	破断伸度		○○	○○	○	○○	△	○	△	△	○
	破断強度(最大応力)		○	○○	○	○	○○	○○	○○	○	○○

[0186]

[表3]

			比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	比較例7	比較例8	比較例9
中間層の構成	ポリビニルアセタール樹脂	含有量(重量部)	100	100	100	100	100	100	100	100	0
		平均重合度	560	560	560	560	560	560	1700	1700	–
		水酸基の含有率(mol%)	25	25	25	25	25	25	30.6	30.6	–
		アセタール化度(mol%)	74	74	74	74	74	74	68.5	68.5	–
		アセタールの種類	アセトアセタール	アセトアセタール	アセトアセタール	アセトアセタール	アセトアセタール	アセトアセタール	ブチラール	ブチラール	–
		アセチル化度(mol%)	1	1	1	1	1	1	1	1	–
	第2の樹脂	含有量(重量部)	100	100	100	200	70	0	0	0	100
		単官能 アクリル酸エチル(重量%)	55	55	40	60	60	–	–	–	60
		単官能 アクリル酸ブチル(重量%)	19.8	19.8	13	13.6	13.6	–	–	–	13
		単官能 アクリル酸ベンジル(重量%)	25.2	25.2	27	25.2	25.2	–	–	–	25
		単官能 アクリル酸2-ヒドロキシエチル(重量%)	0	0	20	0	0	–	–	–	0
		単官能 アクリル酸(重量%)	0	0	0	0	0	–	–	–	0
		単官能 メタクリル酸グリシジル(重量%)	0	0	0	0	0	–	–	–	0
		多官能 トリプロピレングリコールジアクリレート(重量%)	0	0	0	1.2	1.2	–	–	–	2
		多官能 ポリプロピレングリコール#400ジアクリレート(重量%)	0	0	0	0	0	–	–	–	0
		多官能 ポリプロピレングリコール(#700)ジアクリレート(重量%)	0	0	0	0	0	–	–	–	0
		多官能 エトキシ化ビスフェノールAジアクリレート(重量%)	0	0	0	0	0	–	–	–	0
		多官能 ε-カプロラクトン変性トリス-(2-アクリロキシエチル)イソシアヌレート(重量%)	0	0	0	0	0	–	–	–	0
		多官能 リン酸トリス[2-(アクリロイルオキシ)エチル](重量%)	0	0	0	0	0	–	–	–	0
		多官能 エトキシ化ペンタエリスリトールテトラアクリレート(重量%)	0	0	0	0	0	–	–	–	0
	可塑剤	種類	–	3GO	3GO	3GO	3GO	–	–	3GO	–
		ポリビニルアセタール樹脂と第2の樹脂との合計100重量部に対する含有量(重量部)	–	5	5	5	5	–	–	10	–
層間	ゲル分率		0	0	16.5	26.5	32.1	0	0	0	25.12
評価	相構造観察	相分離構造の有無	○	○	○	○	○	×	×	×	×
		マトリックス及び島部を構成する樹脂成分	A	A	B	A	A	–	–	–	–
		島部の径の平均	A	A	A	A	A	–	–	–	–
	破断伸度		×	△	×	○○	×	×	×	×	×
	破断強度(最大応力)		△	×	○	×	○○	○○	○○	○	○○

符号の説明

[0187] 1…第１の層

1ａ…第１の表面

1ｂ…第２の表面

2…第２の層

2ａ…外側の表面

３…第３の層

３ａ…外側の表面

１１…中間膜

１１Ａ…中間膜（第１の層）

１１ａ…第１の表面

１１ｂ…第２の表面

２１…第１の合わせガラス部材

２２…第２の合わせガラス部材

３１…合わせガラス

３１Ａ…合わせガラス

請求の範囲

[請求項1] ポリビニルアセタール樹脂と、（メタ）アクリロイル基を２個以上有する（メタ）アクリレート化合物を含む重合性成分の重合体とを含み、

前記ポリビニルアセタール樹脂１００重量部に対して、前記重合体の含有量が８５重量部以上１８０重量部以下であり、

相分離構造を有する、成形体。

[請求項2] 前記重合体を構成する重合性成分１００重量％中、（メタ）アクリロイル基を２個以上有する（メタ）アクリレート化合物と、（メタ）アクリロイル基を２個以上有する（メタ）アクリレート化合物以外の（メタ）アクリロイル基を有する重合性化合物との合計の量が５０重量％以上であり、

前記重合体が、アクリル重合体である、請求項１に記載の成形体。

[請求項3] 可塑剤を含まないか、又は、前記ポリビニルアセタール樹脂と前記重合体との合計１００重量部に対して可塑剤を１０重量部以下で含む、請求項１又は２に記載の成形体。

[請求項4] 可塑剤を含まないか、又は、前記ポリビニルアセタール樹脂と前記重合体との合計１００重量部に対して可塑剤を５重量部以下で含む、請求項１又は２に記載の成形体。

[請求項5] 可塑剤を含む、請求項１～４のいずれか１項に記載の成形体。

[請求項6] 下記式（Ｘ）により求められるゲル分率が０重量％以上５０重量％以下である、請求項１～５のいずれか１項に記載の成形体。

ゲル分率（重量％）＝Ｗ２／Ｗ１×１００ ・・・式（Ｘ）

Ｗ１：成形体を２３℃のテトラヒドロフランに浸漬する前の成形体の重量

Ｗ２：成形体を２３℃のテトラヒドロフランに浸漬した後に取り出し、乾燥した後の成形体の重量

[請求項7] 前記ポリビニルアセタール樹脂と前記重合体とが架橋している、請

求項１～６のいずれか１項に記載の成形体。

[請求項8] 合わせガラス用中間膜である、請求項１～７のいずれか１項に記載の成形体。

[請求項9] 厚みが３ｍｍ以下である、請求項１～８のいずれか１項に記載の成形体。

[請求項10] 厚みが１．６ｍｍ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１～９のいずれか１項に記載の成形体。

[請求項11] 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、

前記第１のガラス板の厚みと前記第２のガラス板の厚みとの合計が３．５ｍｍ以下である、請求項１～１０のいずれか１項に記載の成形体。

[請求項12] 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１～１１のいずれか１項に記載の成形体とを備え、

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、前記成形体が配置されている、合わせガラス。

[請求項13] 前記第１の合わせガラス部材が第１のガラス板であり、

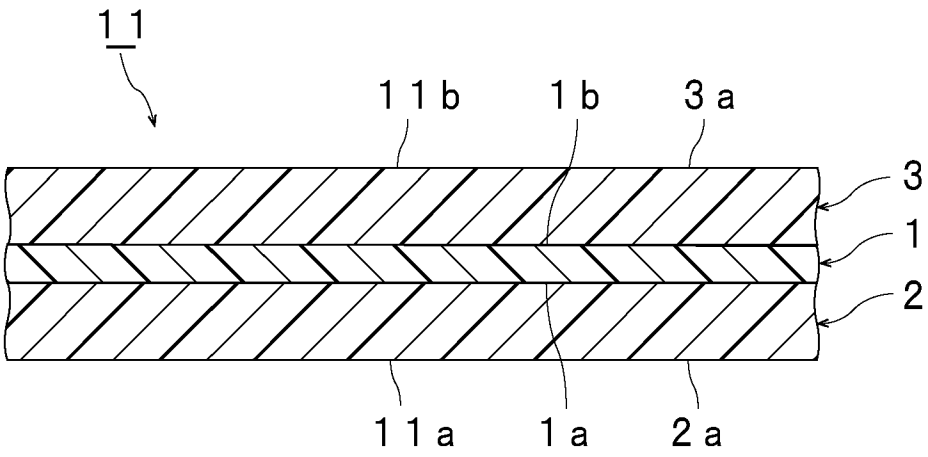
前記第１のガラス板の厚みが１．６ｍｍ以下である、請求項１２に記載の合わせガラス。

[請求項14] 前記第１の合わせガラス部材が第１のガラス板であり、

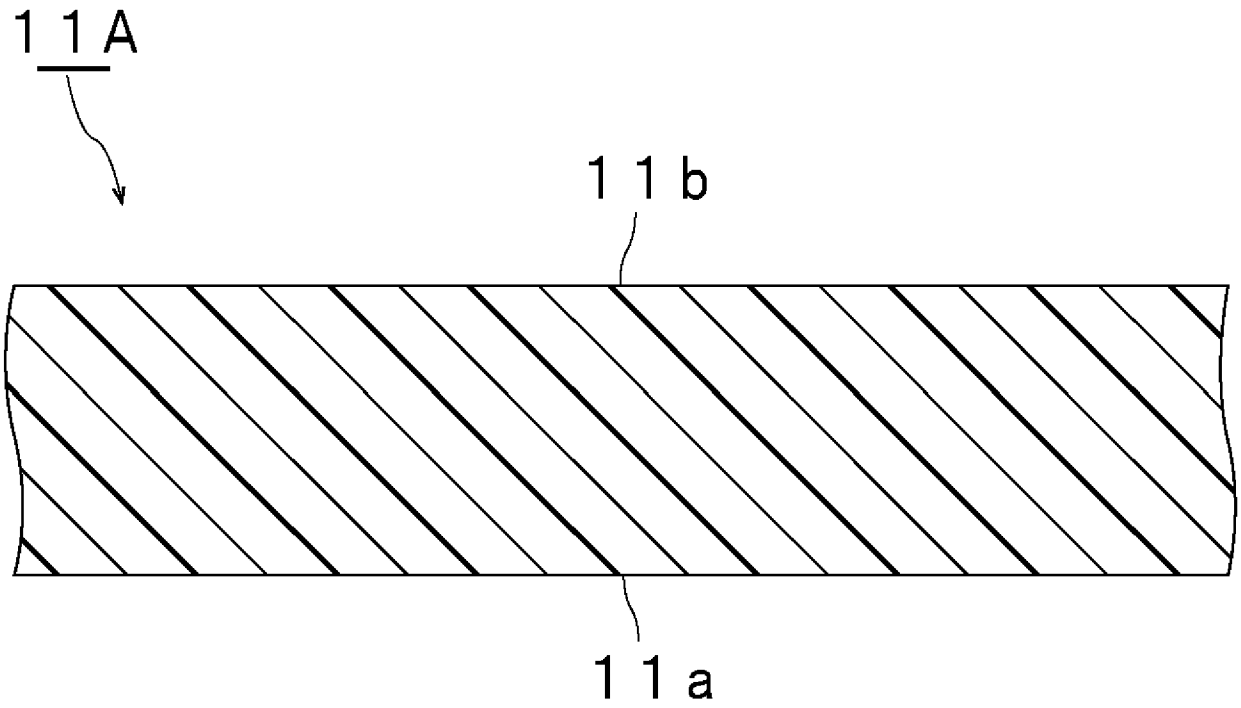
前記第２の合わせガラス部材が第２のガラス板であり、

前記第１のガラス板の厚みと前記第２のガラス板の厚みとの合計が３．５ｍｍ以下である、請求項１２又は１３に記載の合わせガラス。

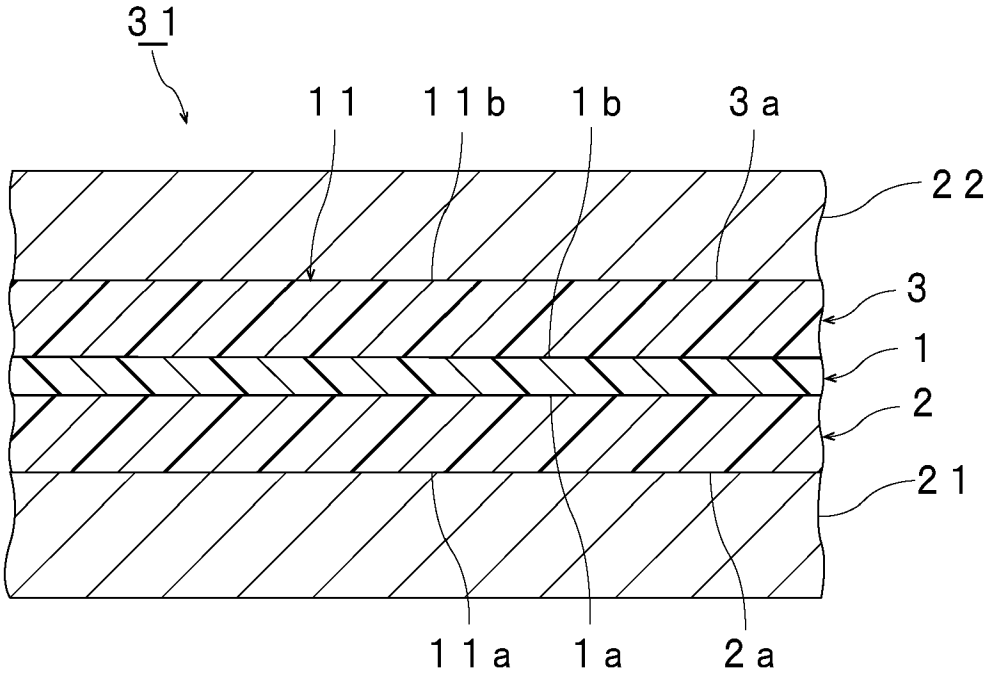
[図1]


11
11b
1b
3a
3
1
2
11a
1a
2a

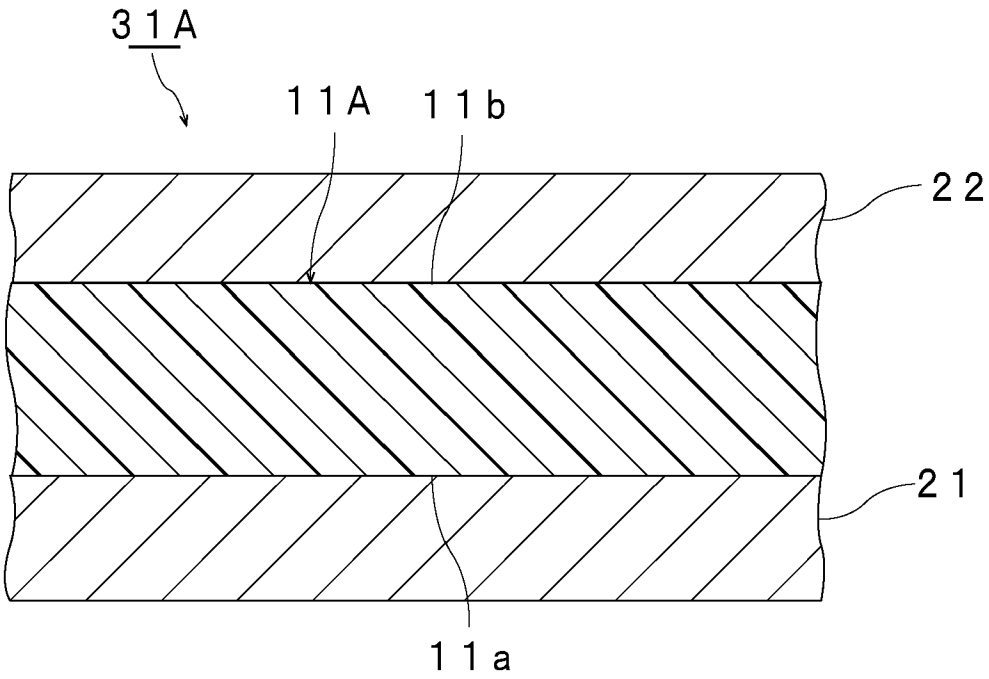
[図2]


11A
11b
11a

[図3]


31
11
11b
1b
3a
22
3
1
2
21
11a
1a
2a

[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2018/013336

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl. C03C27/12(2006.01)i, B32B17/10(2006.01)i, C08K5/10(2006.01)i, C08L29/14(2006.01)i, C08L33/04(2006.01)i, B60J1/00(2006.01)n
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)
Int.Cl. C03C27/12, B32B17/10, B32B27/30, B60J1/00, C08F2/44, C08F261/12, C08K5/10, C08L29/14, C08L33/04, C08L59/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2018
Registered utility model specifications of Japan	1996-2018
Published registered utility model applications of Japan	1994-2018

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.
Y A	WO 2015/046583 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 02 April 2015, paragraphs [0001]-[0002], [0022], [0025]-[0034], [0050]-[0056], [0059], [0065]-[0078], [0082]-[0083], [0186]-[0192], claims, tables 1-3, fig. 1-2 & US 2016/0214355 A1, paragraphs [0001]-[0002], [0022], [0026]-[0035], [0052]-[0059], [0063]-[0064], [0070]-[0085], [0089]-[0092], [0254]-[0266], claims, tables 1-3, fig. 1-2 & JP 2015-187075 A & EP 3053890 A1 & CN 105324345 A & KR 10-2016-0065045 A & MX 2016003514 A & RU 2016116969 A	1, 3-14 2
Y A	JP 2010-265170 A (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 25 November 2010, paragraphs [0001], [0009], [0034], [0048]-[0049], [0061], [0072]-[0073] & US 2012/0021230 A1, paragraphs [0001], [0012], [0047], [0072]-[0073], [0091], [0105]-[0106] & WO 2010/074046 A1 & EP 2380859 A1 & TW 201033151 A & CN 102256910 A & KR 10-2011-0097962 A & RU 2011130561 A	1, 3-14 2

☒ 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 19 June 2018 (19.06.2018)	Date of mailing of the international search report 03 July 2018 (03.07.2018)
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (January 2015)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2018/013336

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2016/094277 A1 (3M INNOVATIVE PROPERTIES COMPANY) 16 June 2016, page 2, lines 1-7, 17-29, page 13, lines 12-19, page 18, lines 16-18, page 26, lines 23-33, page 32, lines 2-8, table 5 & US 2016/0289440 A1 & EP 3230352 A1 & JP 2017-538010 A & CN 107108922 A & KR 10-2017-0092652 A	6-14

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１８／０１３３３６

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, B32B17/10(2006.01)i, C08K5/10(2006.01)i, C08L29/14(2006.01)i, C08L33/04(2006.01)i, B60J1/00(2006.01)n

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, B32B17/10, B32B27/30, B60J1/00, C08F2/44, C08F261/12, C08K5/10, C08L29/14, C08L33/04, C08L59/00

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	１９７１－２０１８年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１８年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１８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
Y	WO 2015/046583 A1 (積水化学工業株式会社) 2015.04.02, [0001] - [0002], [0022], [0025] - [0034], [0050] - [0056],	1, 3 - 14
A	[0059], [0065] - [0078], [0082] - [0083], [0186] - [0192], 請求の範囲, [表 1] - [表 3], [図 1] - [図 2] & US 2016/0214355 A1 [0001] - [0002], [0022], [0026] - [0035], [0052] - [0059], [0063] - [0064], [0070] - [0085], [0089] - [0092], [0254] - [0266], Claims, TABLE 1 - 3, FIG.1 - 2 & JP 2015-187075 A & EP 3053890 A1 & CN 105324345 A	2

☑　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
１９．０６．２０１８	０３．０７．２０１８

国際調査機関の名称及びあて先
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

特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｔ　９６５１
吉川　潤
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
	& KR 10-2016-0065045 A & MX 2016003514 A & RU 2016116969 A	
Y	JP 2010-265170 A (積水化学工業株式会社) 2010.11.25, [0001], [0009], [0034], [0048]-[0049], [0061], [0072]-[0073]	1, 3 - 14
A	& US 2012/0021230 A1 [0001], [0012], [0047], [0072]-[0073], [0091], [0105]-[0106] & WO 2010/074046 A1 & EP 2380859 A1 & TW 201033151 A & CN 102256910 A & KR 10-2011-0097962 A & RU 2011130561 A	2
Y	WO 2016/094277 A1 (3M INNOVATIVE PROPERTIES COMPANY) 2016.06.16, Page 2 Lines 1 - 7, Page 2 Lines 17 - 29, Page 13 Lines 12 - 19, Page 18 Lines 16 - 18, Page 26 Lines 23 - 33, Page 32 Lines 2 - 8, TABLE 5 & US 2016/0289440 A1 & EP 3230352 A1 & JP 2017-538010 A & CN 107108922 A & KR 10-2017-0092652 A	6 - 14