

(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
2020年9月24日(24.09.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/189780 A1

(51) 国際特許分類:

B32B 27/00 (2006.01) G03H 1/02 (2006.01)
B32B 27/18 (2006.01) B32B 7/023 (2019.01)
C03C 27/12 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2020/012500

(22) 国際出願日: 2020年3月19日(19.03.2020)

(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 2019-053896 2019年3月20日(20.03.2019) 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: 野原 敦 (NOHARA, Atsushi); 〒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). 伊豆 康之 (IZU, Yasuyuki); 6045JB メタールヴェフ5, ルールモント, セキスイ エースレーク ベー. フェー. 内 Roermond (NL). 藤岡 翔 (FUJIOKA, Sho); 〒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). 太田 祐輔 (OTA, Yuusuke); 〒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). 増山 義和 (MASUYAMA, Yoshikazu); 〒5288585 滋賀県甲賀市水口町泉1259 積水化学工業株式会社内 Shiga (JP).

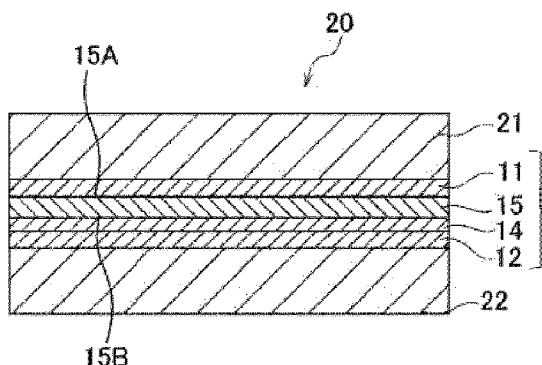
(74) 代理人: 田口 昌浩, 外 (TAGUCHI, Masahiro et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目25番2号 虎ノ門 E S ビル 8 階 ダイヤ特許事務所 Tokyo (JP).

(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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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: INTERMEDIATE FILM 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 intermediate film (10) for laminated glass according to the present invention is provided with: an optical function layer (15) and a first thermoplastic resin layer (11) that is arranged on one surface (15A) side of the optical function layer (15). The optical function layer (15) contains a matrix polymer, a polymer of a photoreactive monomer, and a photopolymerization initiator. The first thermoplastic resin layer (11) contains an ultraviolet absorbent, and has a transmittance at the wavelength of 400 nm of 20% or less.

(57) 要約: 合わせガラス用中間膜 (10) は、光学機能層 (15) と、光学機能層 (15) の一方の面 (15A) 側に設けられる第1の熱可塑性樹脂層 (11) とを備える。光学機能層 (15) はマトリックスポリマー、光反応性モノマーの重合体、及び光重合開始剤を含む。第1の熱可塑性樹脂層 (11) は紫外線吸収剤を含み、かつ波長 400 nm における透過率が 20% 以下である。

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： 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、光学機能層を有する合わせガラス用中間膜、及びその合わせガラス用中間膜を備える合わせガラスに関する。

背景技術

[0002] 従来、2枚のガラス板の間に、中間膜を介在させ一体化させた合わせガラスが広く知られている。中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂に可塑剤が配合された可塑化ポリビニルアセタールより形成されることが多い。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が飛散することが少なく安全であるため、自動車等の車両、航空機、建築物等の窓ガラスとして広く使用されている。

[0003] 自動車、航空機などのフロントガラスには、フロントガラスと同じ視野内に、運転に必要な情報等を表示させるヘッドアップディスプレイ（HUD）が適用されることがある。HUDとしては、インストルメントパネルなどに設けられたプロジェクタからの光を、合わせガラスからなるフロントガラスで反射させることにより、運転者に視認させるものが広く知られている。

[0004] また、自動車のフロントガラスなどに適用されるHUDとして、ホログラムを利用することが検討されている。例えば、特許文献1には、合わせガラスを構成する2枚のガラス板の間に、レリーフ型ホログラムが配置されることが開示されている。特許文献2には、ガラス板、ホログラム、ホログラム被覆層、及び合成樹脂膜の順に積層された構造を有するホログラム封入合わせガラスが開示されている。

[0005] ここで、特許文献1では、レリーフ型ホログラムが紫外線によって劣化することを防止するために、2枚のガラス板の間に紫外線吸収層が設けられ、紫外線吸収層よりも車内側にレリーフ型ホログラムが配置されている。また、特許文献2でも、合成樹脂膜が紫外線吸収能を有し、車外からの紫外線光

がホログラムに直接照射されることが防止されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開2013-127489号公報

特許文献2：特開平5-85784号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] ところで、ホログラムには、上記したレリーフ型ホログラム以外にも、体積型ホログラムが知られている。体積型ホログラムは、例えば、マトリックスポリマー、光反応性モノマー、光重合開始剤、感光剤などを含む組成物から形成され、干渉波により露光されると光反応性モノマーが重合することで画像が記録される。また、体積型ホログラムでは、再生光が照射されると、記録された画像が再生される。

しかし、体積型ホログラムを有する合わせガラスは、特許文献1、2のように一般的な紫外線吸収層を設けても、太陽光が長期間照射されることで劣化するという不具合が生じる。

[0008] そこで、本発明は、特定の光学機能層を有する合わせガラス用中間膜において、太陽光などが長期間照射されても、光学機能層が光劣化しない耐光性を有する合わせガラス用中間膜を提供することを課題とする。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明者らは、鋭意検討の結果、体積型ホログラムを構成する特定の光学機能層を有する合わせガラス用中間膜において、紫外線吸収剤を含み、かつ波長400nmにおける透過率が一定値以下の第1の熱可塑性樹脂層を設けることで上記課題を解決できることを見出し、以下の本発明を完成させた。

[1] 光学機能層と、前記光学機能層の一方の面側に設けられる第1の熱可塑性樹脂層とを備え、

前記光学機能層が光反応性モノマーの重合体、及びマトリックスポリマー

を含み、

前記第1の熱可塑性樹脂層が紫外線吸収剤を含み、かつ波長400nmにおける透過率が20%以下である合わせガラス用中間膜。

[2] 前記第1の熱可塑性樹脂層の波長410nmにおける透過率が60%以下である上記[1]に記載の合わせガラス用中間膜。

[3] 前記第1の熱可塑性樹脂層の波長420nmにおける透過率が70%以下である上記[1]又は[2]に記載の合わせガラス用中間膜。

[4] 前記紫外線吸収剤がベンゾトリアゾール化合物、インドール系化合物、及びポルフィリン化合物からなる群から選択される少なくとも1種である上記[1]～[3]のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。

[5] 前記紫外線吸収剤が、ベンゾトリアゾール化合物と、インドール系化合物及びポルフィリン化合物からなる群から選択される少なくとも1種とを含む上記[4]に記載の合わせガラス用中間膜。

[6] 前記光学機能層の他方の面側に設けられる第2の熱可塑性樹脂層をさらに備える上記[1]～[5]のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。

[7] 前記第2の熱可塑性樹脂層の波長400nmにおける透過率を $T_{400}(2)$ 、前記第1の熱可塑性樹脂層の波長400nmにおける透過率を $T_{400}(1)$ とした場合に、 $T_{400}(2) > T_{400}(1)$ の関係を満たす上記[6]に記載の合わせガラス用中間膜。

[8] 前記第2の熱可塑性樹脂層の波長410nmにおける透過率を $T_{410}(2)$ 、前記第1の熱可塑性樹脂層の波長410nmにおける透過率を $T_{410}(1)$ とした場合に、 $T_{410}(2) > T_{410}(1)$ の関係を満たす上記[6]又は[7]に記載の合わせガラス用中間膜。

[9] 前記第2の熱可塑性樹脂層の波長420nmにおける透過率を $T_{420}(2)$ 、前記第1の熱可塑性樹脂層の波長420nmにおける透過率を $T_{420}(1)$ とした場合に、 $T_{420}(2) > T_{420}(1)$ の関係を満たす上記[6]～[8]のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。

〔１０〕前記光学機能層が光重合開始剤を含有する上記〔１〕～〔９〕のいずれか１項に記載の合わせガラス用中間膜。

〔１１〕上記〔１〕～〔１０〕のいずれか１項に記載の合わせガラス用中間膜と、一対のガラス板を備え、前記一対のガラス板の間に合わせガラス用中間膜が配置される合わせガラス。

発明の効果

〔００１０〕 本発明の合わせガラス用中間膜は、特定の光学機能層を有しながらも、太陽光などが長期間照射されても光劣化せず良好な耐光性を有する。

図面の簡単な説明

〔００１１〕〔図１〕本発明の第１の実施形態に係る合わせガラスを示す断面図である。

〔図２〕本発明の第２の実施形態に係る合わせガラスを示す断面図である。

〔図３〕本発明の第２の実施形態の変形例に係る合わせガラスを示す断面図である。

発明を実施するための形態

〔００１２〕 以下、本発明の合わせガラス用中間膜を実施形態を用いて詳細に説明する。

本発明の合わせガラス用中間膜は、光学機能層と、光学機能層の一方の面側に設けられる第１の熱可塑性樹脂層とを備える。また、本発明の合わせガラス用中間膜は、光学機能層の他方の面側に設けられる第２の熱可塑性樹脂層をさらに備えることが好ましい。

合わせガラス用中間膜は、後述するように例えば室外窓の窓ガラスに使用される場合には、第１の熱可塑性樹脂層が光学機能層よりも屋外側に配置される。また、第２の熱可塑性樹脂層は、光学機能層よりも屋内側に配置される。

以下、本発明の合わせガラス用中間膜を構成する各部材についてより詳細に説明する。

〔００１３〕〔光学機能層〕

本発明で使用する光学機能層は、光反応性モノマーの重合体、及びマトリ

ックスポリマーを含む。光学機能層は、これらの成分を含有することで、体積型ホログラムを構成する。すなわち、光学機能層は、干渉光により露光され光反応性モノマーを重合させることで、画像情報を記録できる。より具体的には、干渉光の強弱により、光反応性モノマーや光反応性モノマーの重合体の疎密ができ、それらとマトリックスポリマーの屈折率差によりホログラムが形成され、画像情報が記録される。画像情報が記録された光学機能層は、再生光が照射されることで記録された画像を再生できる。したがって、光学機能層には、一般的には光反応性モノマーの重合体に加えて、光反応性モノマーも存在する。

[0014] (光反応性モノマー)

光反応性モノマーとしては、少なくとも一つのエチレン性不飽和二重結合を有し、干渉光により露光されて重合可能なものである。光反応性モノマーは、比較的高屈折率を呈するものが好ましい。光反応性モノマーとしては、好ましくはアクリル系モノマーが使用される。アクリル系モノマーは、アクリロイル基及びメタクリロイル基のいずれかを有するモノマーである。

[0015] アクリル系モノマーとしては、例えば、2, 3-ジブロモプロピルアクリレート、ジシクロペンタニルアクリレート、ジブロモネオペンチルグリコールジアクリレート、2-フェノキシエチルアクリレート、2-フェノキシメチルメタクリレート、フェノールエトキシレートモノアクリレート、2-(p-クロロフェノキシ)エチルアクリレート、p-クロロフェニルアクリレート、フェニルアクリレート、フェニルメタクリレート、2-フェニルエチルアクリレート、2-(1-ナフチルオキシ)エチルアクリレート、o-ビフェニルメタクリレート、o-ビフェニルアクリレート、ベンジルアクリレート、フェニルアクリレート、2-フェニルエチルアクリレート、2-フェノキシエチルメタクリレート、フェノールエトキシレートアクリレート、メチルフェノキシエチルアクリレート、フェノキシエトキシエチルアクリレート、フェノキシエトキシエチルメタクリレート、ノニルフェノキシエチルアクリレート、2-ヒドロキシー-3-フェノキシプロピルアクリレート、フェ

ノキシポリエチレングリコールアクリレート、1,4-ベンゼンジオールジメタクリレート、1,4-ジイソプロペニルベンゼン、1,3,5-トリイソプロペニルベンゼン、ベンゾキノンモノメタクリレート、2-(1-ナフチロキシ)エチルアクリレート、2,3-ナフタレンジカルボン酸(アクリロキシエチル)モノエステル、ジフェノール酸と3-メタクリロイルオキシ-2-ヒドロキシプロパノールとのエーテル化合物、 β -アクリロキシエチルヒドロゲンフタレート、2,2-ジ(p-ヒドロキシフェニル)プロパンジアクリレート、2,3-ジ(p-ヒドロキシフェニル)プロパンジメタクリレート、2,2-ジ(p-ヒドロキシフェニル)プロパンジメタクリレート、ポリオキシエチル-2,2-ジ(p-ヒドロキシフェニル)プロパンジメタクリレート、ビスフェノールAと3-メタクリロイルオキシ-2-ヒドロキシエタノールとのエーテル化合物、エトキシ化ビスフェノールAジアクリレート、ビスフェノールAと3-アクリロイルオキシ-2-ヒドロキシプロパノールとのエーテル化合物、ビスフェノールAと2-アクリロキシエタノールとのエーテル化合物、2,2-ビス(4-アクリロキシエトキシフェニル)プロパン、2,2-ビス(4-メタクリロキシエトキシフェニル)プロパン、2,2-ビス(4-アクリロキシジエトキシフェニル)プロパン、2,2-ビス(4-メタクリロキシジエトキシフェニル)プロパン、ビス(4-アクリロキシジエトキシフェニル)メタン、ビス(4-メタクリロキシジエトキシフェニル)メタン、2-(p-クロロフェノキシ)エチルアクリレート、テトラクロロビスフェノールAと3-アクリロイルオキシ-2-ヒドロキシプロパノールとのエーテル化合物、テトラクロロビスフェノールAと2-メタクリロイルオキシエタノールとのエーテル化合物、テトラブロモビスフェノールAと3-メタクリロイルオキシ-2-ヒドロキシプロパノールとのエーテル化合物、テトラブロモビスフェノールAと2-メタクリロイルオキシエタノールとのエーテル化合物、ビス(4-アクリロキシエトキシ-3,5-ジプロモフェニル)メタン、ビス(4-メタクリロキシエトキシ-3,5-ジプロモフェニル)メタン、2,2-ビス(4-アクリロキ

シエトキシ-3, 5-ジブロモフェニル) プロパン、2, 2-ビス(4-メタクリロキシエトキシ-3, 5-ジブロモフェニル) プロパン、ビス(4-アクリロキシエトキシフェニル) スルホン、ビス(4-メタクリロキシエトキシフェニル) スルホン、ビス(4-アクリロキシジエトキシフェニル) スルホン、ビス(4-メタクリロキシジエトキシフェニル) スルホン、ビス(4-アクリロキシプロポキシフェニル) スルホン、ビス(4-メタクリロキシプロポキシフェニル) スルホン、フェニルチオエチルアクリレート、フェニルチオエチルメタクリレート、ジエチレンジチオグリコールジアクリレート、ジエチレンジチオグリコールジメタクリレート、トリフェニルメチルチオアクリレート、2-(トリシクロ[5, 2, 102, 6]ジブロモデシルチオ)エチルアクリレート、S-(1-ナフチルメチル)チオアクリレート、2-(9-カルバゾリル)エチルアクリレート、2-[β -(N-カルバジル)プロピオニロキシ]エチルアクリレート、2-ナフチルアクリレート、2-ナフチルメタクリレート、ペンタクロロフェニルアクリレート、2, 4, 6-トリブロモフェニルアクリレート、2-(2-ナフチルオキシ)エチルアクリレート、N-p-ビフェニルメタクリレート、1, 4-ビス(2-チオナフチル)-2-ブチルアクリレート、1, 4-ビス(2-チオナフチル)-2-ブチルメタクリレート、ビスフェノールAジアクリレート、ビスフェノールAジメタクリレート、2, 3-ナフタリンジカルボン酸(2-アクリロキシエチル)(3-アクリロキシプロピル-2-ヒドロキシ)ジエステル、N-フェニルメタクリルアミド、t-ブチルフェニルメタクリレート、ジフェン酸(2-メタクリロキシエチル)モノエステル、ジフェン酸(2-アクリロキシエチル)(3-アクリロキシプロピル-2-ヒドロキシ)ジエステル、4, 5-フェナントレンジカルボン酸(2-アクリロキシエチル)(3-アクリロキシプロピル-2-ヒドロキシ)ジエステル等が挙げられる。

また、アクリル系モノマーとしては、9, 9-ジアリールフルオレン骨格を有し、分子中に少なくとも一つの(メタ)アクリロイル基を有するものや

、ウレタンアクリレートなどでもよい。ウレタンアクリレートとしては、フェニルイソシアネート化合物と、一分子中にヒドロキシ基及び（メタ）アクリロイル基を有する化合物との縮合物からなるものが挙げられる。

また、スチレン、メトキシスチレン、2-クロロスチレン、2-ブロモスチレン、N-ビニルカルバゾール、フェニルマレイミド、2-ビニルナフタレンなどのアクリル系モノマー以外の光反応性モノマーでもよい。

光反応性モノマーは、1種単独でも又は2種以上を組み合わせても用いることができる。光学機能層における光反応性モノマーの含有量は、例えば、10～50質量%の範囲内であることが好ましい。

[0016] （マトリックスポリマー）

マトリックスポリマーとしては、例えば、ポリビニルアセテート（ポリ酢酸ビニル）、ポリビニルブチラート、ポリビニルホルマール、ポリビニルカルバゾール、ポリアクリル酸、ポリメタクリル酸、ポリメチルアクリレート、ポリメチルメタクリレート、ポリエチルアクリレート、ポリブチルアクリレート、ポリメタクリロニトリル、ポリエチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリアクリロニトリル、ポリ-1,2-ジクロロエチレン、エチレン-酢酸ビニル共重合体、テトラフルオロエチレン-酢酸ビニル共重合体、シンジオタクチック型ポリメチルメタクリレート、ポリ- α -ビニルナフタレート、ポリカーボネート、セルロースアセテート、セルローストリアセテート、セルロースアセテートブチラート、ポリスチレン、ポリ- α -メチルスチレン、ポリ- o -メチルスチレン、ポリ- p -メチルスチレン、ポリ- p -フェニルスチレン、ポリ-2,5-ジクロロスチレン、ポリ- p -クロロスチレン、ポリアリレート、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、スチレン-アクリロニトリル共重合体、スチレン-ジビニルベンゼン共重合体、スチレン-ブタジエン共重合体、スチレン-無水マレイン酸共重合体、ABS樹脂、ポリエチレン、ポリ塩化ビニル、ポリプロピレン、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリビニルピロリドン、ポリ塩化ビニリデン、水素化スチレン-ブタ

ジエンスチレン共重合体、ポリウレタン、ポリテトラフルオロエチレン、ポリフッ化ビニリデンなどが挙げられる。また、テトラフルオロエチレンやヘキサフルオロエチレン等とビニルアルコール、ビニルエステル、ビニルエーテル、ビニルアセタール、ビニルブチラール等との共重合体などでもよいし、（メタ）アクリル酸環状脂肪族エステルとメチル（メタ）アクリレートとの共重合体、メチルメタクリレートーエチルアクリレートーアクリル酸共重合体等でもよい。これらのなかでは、ポリウレタンが好ましい。

光学機能層におけるマトリックスポリマーの含有量は、例えば、30～80質量%の範囲内である。

[0017] （光重合開始剤）

光学機能層は、光重合開始剤を含有することが好ましい。光重合開始剤としては、公知の光重合開始剤が使用可能であり、ヨードニウム塩類、トリアジン系化合物、アゾ化合物、アジド化合物、有機過酸化物、有機ホウ素酸塩、オニウム塩類、ハロゲン化炭化水素誘導体、チタノセン化合物、アシルホスフィンオキサイド、ビスアシルホスフィンオキサイドと α -ヒドロキシケトンとの組み合わせ等が挙げられる。また、チオール化合物等の水素供与体とビスイミダゾール誘導体との併用によるラジカル重合開始剤システムも利用できる。

また、光重合開始剤は、単分子タイプでもよいし、二分子タイプを使用してもよい。単分子タイプは、光重合開始剤単独で重合を開始させるものであり、例えば、干渉光の照射により単分子の結合が開裂してフリーラジカルを生成する。また、二分子タイプでは、光学機能層が染料などの色素をさらに含む。二分子タイプは、重合開始剤と色素により重合を開始させる。二分子タイプでは、例えば、染料などの色素が光子を吸収し、励起状態から光重合開始剤（共開始剤）へエネルギーを伝達するとともに、光重合開始剤が、電子又はプロトンの移動或いは直接の水素抜き取りによって重合誘発フリーラジカルを放出する。共開始剤としては、例えばアルキルアリールホウ酸アンモニウムなどが使用される。

光学機能層における光重合開始剤の含有量は、例えば、0.1～5質量%の範囲内であることが好ましい。

[0018] また、光学機能層に含有される色素は、特に限定されないが、公知の染料などを使用できる。例えば、シアニン系、ポリメチン系、フェナジン系、フェノキサジン系、フェノチアジン系、ジアリールメタン系、トリアリールメタン系、(チオ)ピリリウム塩系、スクアリリウム系、クマリン系、キサントゲン系、チオキサントゲン系、アセン系、メロシアニン系、チアゾリウム系、アクリジン系、ヘミシアニン系、ゼロメチン系、ストレプトシアニン系等が挙げられる。これら染料は、単独で用いても良いし、2種以上を組み合わせ用いてもよく、例えばRGBに合わせて3種以上使用されてもよい。

また、光学機能層は、上記以外にも連鎖移動剤など体積型ホログラムに使用される公知の添加剤が適宜配合されていてもよい。

光学機能層の厚さは、特に限定されないが、例えば0.1～50 μm 、好ましくは1～10 μm である。

[0019] 光学機能層は、例えば基材上に形成されるとよい。光学機能層が形成される基材としては、樹脂フィルムが挙げられる。樹脂フィルムとしては、ポリカーボネート(PC)、ポリエチレンテレフタレート(PET)、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレン、ポリプロピレン、セルロースアセテート、セルロース水和物、ニトロセルロース、シクロオレフィンポリマー、ポリスチレン、ポリエポキシド、ポリスルホン、セルローストリアセテート(TAC)、ポリアミド、ポリメチルメタクリレート、ポリ塩化ビニル、ポリビニルブチラール又はポリジシクロペンタジエンあるいはこれらの混合物のフィルムなどが使用できる。これらは、単層フィルムであってもよいし、多層フィルムであってもよい。多層フィルムは、互いに異なる材料からなる複数の層を多層に積層したものである。これらのなかでは、TACフィルムが好ましい。

光学機能層が形成される基材の厚さは例えば10～200 μm 、好ましくは40～100 μm である。

また、基材上に形成された光学機能層には、さらにカバー材が積層され、光学機能層の両面が、基材及びカバー材それぞれによって被覆されてもよい。これにより、光学機能層は保護されやすくなる。

ただし、光学機能層は、必ずしも基材上に形成される必要はなく、例えば第1の熱可塑性樹脂層や、第2の熱可塑性樹脂層に直接積層されてもよい。また、後述する合わせガラスを構成するガラス板上に直接積層されてもよい。

[0020] (光学機能層の作製)

光学機能層の作製においては、まず、光反応性モノマー、マトリックスポリマー、及び必要に応じて配合される光重合開始剤、色素、連鎖移動剤などのその他の添加剤を含む光学機能層用組成物を用意する。光学機能層用組成物は適宜溶媒によって希釈されてもよい。光学機能層用組成物は、基材や剥離シートなどに塗布し、必要に応じて乾燥することで、光学機能層を形成するとよい。

また、マトリックスポリマーがポリウレタンなどの熱硬化性樹脂である場合には、マトリックスポリマーの前駆体成分（例えば、ポリウレタンであれば、ポリオールとポリイソシアネート）と、光反応性モノマーと、必要に応じて任意で配合される光重合開始剤、色素、連鎖移動剤などのその他の添加剤とを含む光学機能層用組成物を用意してもよい。その場合には、光学機能層用組成物は、基材や剥離シートなどに塗布した後、前駆体成分を硬化させるとよい。この場合も、塗布された光学機能層用組成物は、必要に応じて適宜乾燥されるとよい。

上記光学機能層は、露光し、光反応性モノマーを反応させることで光反応性モノマーの少なくとも一部を重合体とする。その際、2種類の光の波を干渉させることにより、ホログラムを形成する。

なお、剥離シート上でホログラムが形成された光学機能層は、剥離シートから剥がされて、第1の熱可塑性樹脂層、第2の熱可塑性樹脂層、又はガラス板などに積層されるとよい。

また、光学機能層は、基材又は剥離シートの代わりに、合わせガラスを構成するガラス板に光学機能層用組成物を直接塗布して形成してもよい。

[0021] [第1の熱可塑性樹脂層]

第1の熱可塑性樹脂層は、紫外線吸収剤を含み、かつ波長400nmにおける透過率が20%以下となるものである。本発明では、合わせガラス用中間膜が、このような第1の熱可塑性樹脂層を有することで、太陽光などが長期間照射されても光学機能層が光劣化することを防ぎ、耐光性を改善できる。

その原理は定かではないが、上記した光学機能層は、意外なことに400nm付近の光線によって劣化しやすい一方で、通常の紫外線吸収層は400nm付近の吸収率がそれほど低くない。そのため、本発明では、波長400nmにおける透過率を低く制御することで、従来の紫外線吸収層を使用した場合に比べて耐光性が改善していると推定される。

[0022] 第1の熱可塑性樹脂層は、波長400nmにおける透過率が20%より大きくなると、太陽光などの長期間照射により光学機能層が光劣化して、光学機能層が長期にわたって良好に機能しない。光学機能層の光劣化を防ぐ観点から、波長400nmにおける透過率は、16%以下が好ましく、より好ましくは10%以下、さらに好ましくは5%以下、よりさらに好ましくは3.5%以下である。また、波長400nmにおける透過率は、0%以上であればよいが、実用的には0.1%以上が好ましく、0.2%以上がさらに好ましい。

[0023] 第1の熱可塑性樹脂層は、波長410nmにおける透過率が60%以下であることが好ましい。光学機能層は、波長400nm付近の光線のみならず、410nm付近の光線によっても光劣化しやすいが、波長410nmにおける透過率を低くすることで、光学機能層の光劣化をより効果的に防止できる。

また、第1の熱可塑性樹脂層は、波長420nmにおける透過率が70%以下であることが好ましい。光学機能層は、420nm付近の光線によって

も光劣化することがあるが、420 nmにおける透過率を70%以下とすることで、光学機能層の光劣化を効果的に防止できる。

さらに、第1の熱可塑性樹脂層は、波長410 nmにおける透過率が60%以下となり、かつ波長420 nmにおける透過率が70%以下となることがより好ましい。波長410、420 nmの両方の透過率が一定値以下となることで、より一層効果的に光学機能層の光劣化を防止できる。

[0024] 第1の熱可塑性樹脂層は、410 nmにおける透過率が、より好ましくは45%以下、さらに好ましくは25%以下、よりさらに好ましくは20%以下である。410 nmにおける透過率をこれら上限値以下とすることで、光学機能層の光劣化をより一層防止しやすくなる。

また、第1の熱可塑性樹脂層の410 nmにおける透過率は、特に限定されないが、例えば1%以上、好ましくは5%以上、より好ましくは10%以上、さらに好ましくは15%以上である。410 nmにおける透過率をこれら下限値以上とすることで、可視光線透過率が低下したり、合わせガラス用中間膜に色付きが発生したりすることを防止する。

[0025] 第1の熱可塑性樹脂層は、波長420 nmにおける透過率が、より好ましくは60%以下である。420 nmにおける透過率を60%以下とすることで、光学機能層の光劣化をより一層防止しやすくなる。

また、第1の熱可塑性樹脂層の420 nmにおける透過率は、特に限定されないが、例えば1%以上、好ましくは7%以上、より好ましくは15%以上である。420 nmにおける透過率をこれら下限値以上とすることで、可視光線透過率が低下したり、合わせガラス用中間膜に色付きが発生したりすることを防止する。

[0026] (紫外線吸収剤)

第1の熱可塑性樹脂層は、紫外線吸収剤を含有する。第1の熱可塑性樹脂層は、紫外線吸収剤を含有することで、光学機能層及び第1の熱可塑性樹脂層が太陽光などにより光劣化することを防止できる。また、合わせガラス用中間膜を含む合わせガラスを例えば窓ガラスとして使用する場合には、窓ガ

ラスを介して紫外線が屋内側に透過することを防止できる。

紫外線吸収剤としては、ベンゾトリアゾール化合物、インドール系化合物、及びポルフィリン化合物が挙げられる。これらは1種単独で使用してよいし、2種以上を併用してもよい。本発明では、使用する紫外線吸収剤の種類と、配合量を調整することで、上記したように400～420 nmにおける透過率を所定の範囲内に調整できる。

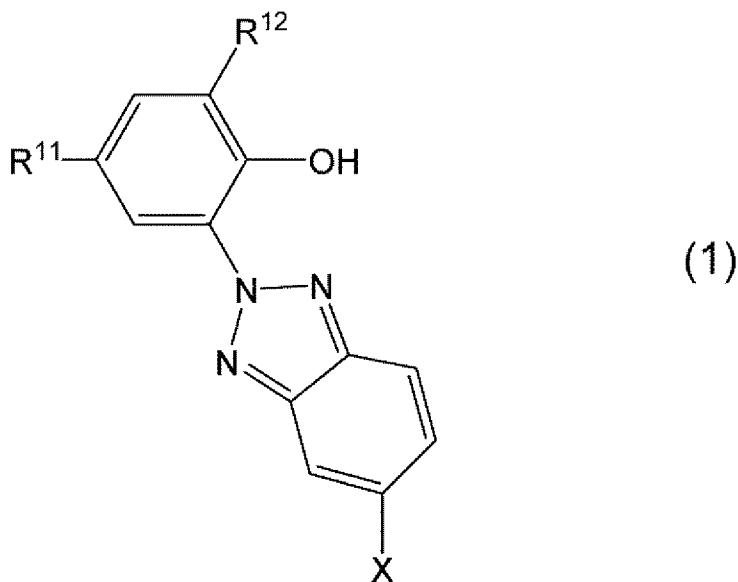
[0027] <ベンゾトリアゾール化合物>

紫外線吸収剤として使用されるベンゾトリアゾール化合物は、ベンゾトリアゾール骨格を有し、紫外線を吸収することが可能な化合物である。ベンゾトリアゾール化合物は、例えば300～390 nm、好ましくは330～375 nm、より好ましくは345～360 nmの波長領域に最大吸収波長ピークを有する化合物が挙げられる。

[0028] なお、本明細書において、紫外線吸収剤の最大吸収波長は以下の方法によって測定できる。クロロホルム100質量部に対して、測定する化合物0.0002～0.002質量部を混合し、クロロホルム溶液を得る。得られるクロロホルム溶液を光路長1.0 cmの分光光度計用石英セルへ入れる。自記分光光度計（日立製作所社製「U4100」）を用いて、300～2500 nm透過率を測定し、極大吸収波長を求める。該極大吸収波長とは透過率が極小値を示す波長であって、複数存在する場合があるが、その場合、最大吸収波長とは該極小値が最小である波長のことを指す。

[0029] ベンゾトリアゾール化合物の好ましい具体例としては、以下の式（1）で表される化合物である。

[化1]



(式(1)において、 R^{11} は、水素原子、炭素数が1～8のアルキル基、又は炭素数4～20のアルコキシカルボニルアルキル基を表し、 R^{12} は、水素原子、又は炭素数が1～8のアルキル基を表す。Xは塩素原子又は水素原子である。)

[0030] 式(1)において、 R^{11} 、 R^{12} のアルキル基は、直鎖構造を有するものであってもよく、分岐構造を有するものであってもよい。アルコキシカルボニルアルキル基は、直鎖構造を有するものであってもよく、分岐構造を有するものであってもよい。 R^{11} 、 R^{12} として、例えば、水素原子、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、*i*so-プロピル基、*n*-ブチル基、*tert*-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、オクチル基が挙げられる。 R^{11} は、これらに加えて、メトキシカルボニルプロピル基、オクチルオキシカルボニルプロピル基等が挙げられる。なかでも、 R^{11} は、水素原子又はアルキル基、特に、水素原子、メチル基、*tert*-ブチル基、ペンチル基、オクチル基であることが好ましい。 R^{11} と R^{12} とは同一であってもよく、異なってもよい。

また、式(1)で示される化合物の具体例としては、2-(3-*tert*-ブチル-5-メチル-2-ヒドロキシフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(3, 5-ジ-*tert*-ブチル-2-ヒドロキシフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、3-[3-*tert*-ブチル-5-(5-クロロ-2

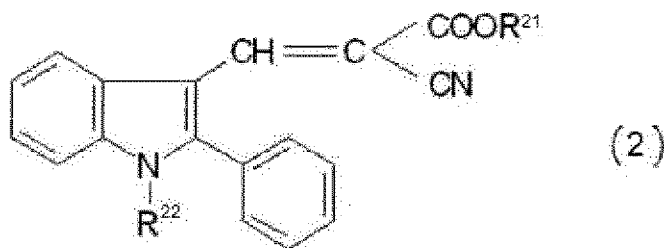
H-ベンゾトリアゾール-2-イル)-4-ヒドロキシフェニル]プロピオン酸オクチル、3-(5-クロロ-2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)-5-(1,1-ジメチルエチル)-4-ヒドロキシフェニルプロピオン酸メチル、2-(3,5-ジ-tert-アミル-2-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾールなどが挙げられる。

式(1)で示される化合物は、好ましくは330~375nm、より好ましくは345~360nmの波長領域に最大吸収波長ピークを有する化合物である。

[0031] <インドール系化合物>

インドール系化合物は、インドール骨格を有し、紫外線を吸収することが可能な化合物である。インドール系化合物としては、好ましくは以下の式(2)で表される化合物が挙げられる。

[化2]



式(2)において、R²¹は、炭素数が1~3のアルキル基を表し、R²²は、水素原子、炭素数が1~10のアルキル基、又は、炭素数が7~10のアラルキル基を表す。

[0032] R²¹及びR²²のアルキル基はそれぞれ、直鎖構造を有するものであってもよく、分岐構造を有するものであってもよい。上記式(2)におけるR²¹としては、例えば、メチル基、エチル基、イソプロピル基、n-プロピル基等が挙げられ、中でも、R²¹は、メチル基、エチル基、イソプロピル基であることが好ましく、耐光性の観点からは、メチル基又はエチル基であることがより好ましい。

式(2)におけるR²²は、炭素数が1~10のアルキル基であることが好ましく、炭素数が1~8のアルキル基であることがより好ましい。炭素数が1

～10のアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、イソプロピル基、*n*-プロピル基、イソブチル基、*n*-ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、2-エチルヘキシル基、*n*-オクチル基等が挙げられる。また、炭素数が7～10のアラルキル基として、例えば、ベンジル基、フェニルエチル基、フェニルプロピル基、フェニルブチル基等が挙げられる。

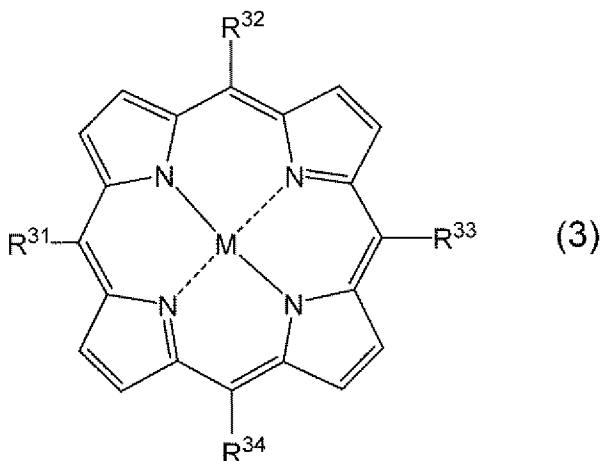
インドール系化合物は、特に限定されないが、最大吸収波長ピークが例えば375～405 nm、好ましくは380～400 nm、より好ましくは385～395 nmである。

[0033] <ポルフィリン化合物>

本発明で使用するポルフィリン化合物は、ポルフィリン骨格を有し、紫外線を吸収することが可能な化合物である。ポルフィリン化合物は、最大吸収波長ピークが、例えば380～430 nm、好ましくは390～425 nm、より好ましくは400～420 nmである。

ポルフィリン化合物の具体例としては、以下の式(3)で示される化合物が挙げられる。

[0034] [化3]



式(3)において、 $R^{31} \sim R^{34}$ は、それぞれ独立に、水素原子、又はヘテロ原子を有してもよい炭化水素基である。Mとしては、銅、マグネシウム、コバルト、亜鉛、マンガン、鉄などの金属原子が挙げられ、中でも銅、マンガン、鉄、コバルトが好ましく、銅がより好ましい。ここで、 $R^{31} \sim R^{34}$ の炭素数は、それぞれ独立に1～24であり、好ましくは1～18、より好ましくは

6～12である。ヘテロ原子としては、窒素原子、硫黄原子、酸素原子、ハロゲン原子などが挙げられる。

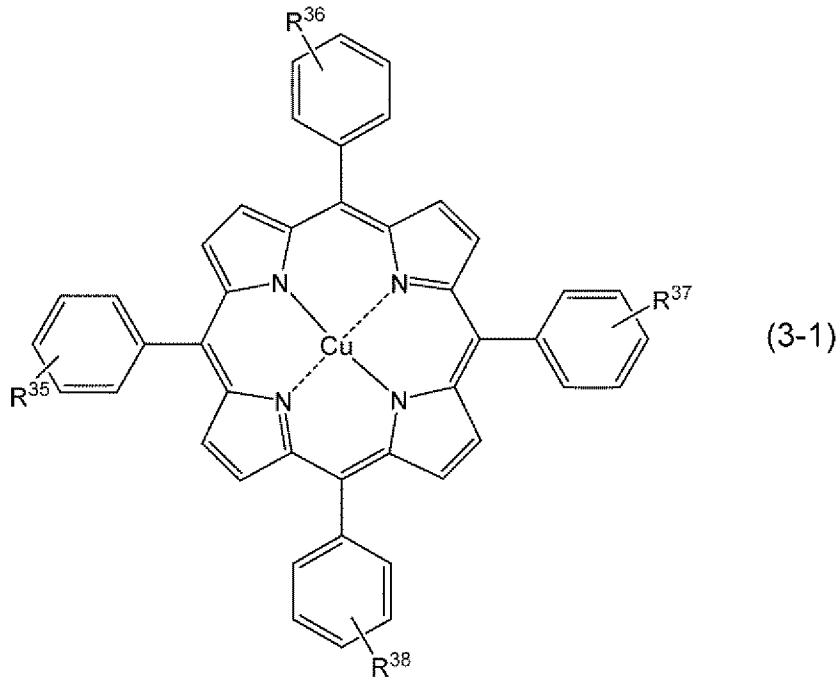
[0035] $R^{31} \sim R^{34}$ は、それぞれ置換基を有してもよい芳香族環が挙げられる。 $R^{31} \sim R^{34}$ それぞれの芳香族環における置換基の数は、特に限定されないが、例えば0～5個、好ましくは0～3個、より好ましくは1～2個、最も好ましくは1個である。

ここで、置換基は、電子吸引力を有する置換基が好ましい。置換基の具体例としては、塩素原子、臭素原子、フッ素原子、ヨウ素原子などのハロゲン原子、カルボキシル基 ($-\text{COOH}$)、ニトリル基 ($-\text{CN}$)、ニトロ基 ($-\text{NO}_2$)、アルデヒド基 ($-\text{CHO}$)、エステル基 ($-\text{COOR}$) などが挙げられる。なお、エステル基におけるRは、例えば炭素数1～6のアルキル基、好ましくは炭素数1～4のアルキル基、より好ましくは炭素数1～2のアルキル基である。置換基としては、エステル基が好ましい。

また、芳香族環としては、ベンゼン環、ナフタレン環、フェナントレン環、アントラセン環などが挙げられる。芳香族環は、ベンゼン環とともに5員環又は6員環を形成する複素環が設けられた、ベンゼン環を含む多環であってもよい。複素環を構成するヘテロ原子は、窒素原子、酸素原子、硫黄原子が挙げられる。芳香族環は、好ましくはベンゼン環である。芳香族環は、単結合により、ポルフィリン骨格に直接結合すればよい。

[0036] また、ポルフィリン化合物の好ましい具体例としては、以下の式(3-1)で示される化合物が挙げられる。

[化4]



式（３－１）において、 $R^{35} \sim R^{38}$ は、それぞれ独立に上記した置換基であり、中でもエステル基が好ましい。また、 $R^{35} \sim R^{38}$ の位置は、オルト、メタ、パラ位のいずれでもよいが、製造容易性の観点からは、パラ位が好ましい。

[0037] 第１の熱可塑性樹脂層における紫外線吸収剤の含有量は、 400 nm における透過率が 20% 以下となる限り限定されないが、熱可塑性樹脂 100 質量部に対して、好ましくは 0.2 質量部より多く、より好ましくは 0.3 質量部以上、さらに好ましくは 0.4 質量部以上である。紫外線吸収剤の含有量をこれら下限値以上とすることで、 $400 \sim 420\text{ nm}$ における透過率を低くしやすくなる。

また、第１の熱可塑性樹脂層における紫外線吸収剤の含有量は、熱可塑性樹脂 100 質量部に対して、好ましくは 2.0 質量部以下、より好ましくは 1.5 質量部以下、さらに好ましくは 1.0 質量部以下である。これら上限値以下とすることで、紫外線吸収剤により、第１の熱可塑性樹脂層に色味がついたりすること防止できる。また、紫外線吸収剤を熱可塑性樹脂に適切に分散ないし溶解でき、含有量に見合った効果を発揮しやすくなる。

なお、紫外線吸収剤の含有量とは、紫外線吸収剤が２種以上含有される場

合には、それらの合計含有量である。

[0038] 本発明において、第1の熱可塑性樹脂層は、上記した紫外線吸収剤のなかでは、ベンゾトリアゾール化合物を含むことが好ましい。ベンゾトリアゾール化合物を含むことで、比較的低い波長領域における紫外線を適切に吸収しつつ、400nmにおける透過率も低くなり、光学機能層の光劣化を適切に防止しやすくなる。

第1の熱可塑性樹脂層におけるベンゾトリアゾール化合物の含有量は、熱可塑性樹脂100質量部に対して、0.15質量部以上が好ましく、0.2質量部以上がより好ましく、0.4質量部以上がさらに好ましく、0.6質量部以上が特に好ましい。また、1.5質量部以下が好ましく、1.0質量部以下がより好ましい。

[0039] ベンゾトリアゾール化合物は、紫外線吸収剤として単独で使用してもよい。紫外線吸収剤としてベンゾトリアゾール化合物を単独で使用しても、配合量を調整することで、400nmにおける透過率を上記のように低くできる。

単独で使用する場合のベンゾトリアゾール化合物の含有量は、熱可塑性樹脂100質量部に対して、0.35質量部以上が好ましく、0.4質量部以上がより好ましく、0.7質量部以上がさらに好ましく、また、1.5質量部以下が好ましく、1.0質量部以下がより好ましい。

[0040] ベンゾトリアゾール化合物は、紫外線吸収剤として他の紫外線吸収剤と併用することが好ましい。ベンゾトリアゾール化合物と併用する好ましい紫外線吸収剤としては、インドール系化合物及びポルフィリン化合物から選択される少なくとも1種である。

ベンゾトリアゾール化合物と、インドール系化合物又はポルフィリン化合物とを併用することで、380nm以下の波長領域における紫外線を適切に吸収しつつ、400、410、420nmにおける透過率も低くなり、光学機能層の光劣化をより効果的に防止できる。さらに、420nmより高波長の光を十分に透過させて、可視光領域の透過率を高くしやすくなる。

[0041] 他の紫外線吸収剤と併用する場合の第1の熱可塑性樹脂層における、ベンゾトリアゾール化合物の含有量は、熱可塑性樹脂100質量部に対して、0.15質量部以上が好ましく、0.2質量部以上がより好ましく、0.4質量部以上がさらに好ましく、0.6質量部以上が特に好ましい。また、1.2質量部以下が好ましく、1.0質量部以下がより好ましい。ベンゾトリアゾール化合物の含有量を上記下限値以上とすることで、比較的低い波長領域における紫外線を適切に吸収しつつ、400nmにおける透過率も低くなり、光学機能層の光劣化を適切に防止しやすくなる。また、上限値以下とすることで、ベンゾトリアゾール化合物が適切に熱可塑性樹脂に分散ないし溶解して、含有量に見合った効果を発揮しやすくなる。また、ベンゾトリアゾール化合物によって第1の熱可塑性樹脂層に色味がついたりすることも防止できる。

[0042] また、併用する場合におけるインドール系化合物及びポルフィリン化合物から選択される少なくとも1種の含有量は、熱可塑性樹脂100質量部に対して、0.001質量部以上が好ましく、0.002質量部以上がより好ましく、0.003質量部以上がさらに好ましい。また、0.5質量部以下が好ましく、0.3質量部以下がより好ましく、0.1質量部以下がさらに好ましく、0.03質量部以下がよりさらに好ましい。これらの含有量を上記下限値以上とすることで、400、410、420nmにおける透過率を低くしやすくなる。また、上記上限値以下とすることで、紫外線吸収剤により、第1の熱可塑性樹脂層に色味がついたりすること防止でき、かつ含有量に見合った効果を発揮しやすくなる。

[0043] また、紫外線吸収剤を2種以上併用する場合、最大吸収波長ピークが互いに異なる紫外線吸収剤を2種以上併用することが好ましい。すなわち、紫外線吸収剤は、低波長側紫外線吸収剤と、低波長側紫外線吸収剤よりも最大吸収波長ピークが高波長側にある高波長側紫外線吸収剤を含有することが好ましい。

ここで、低波長側紫外線吸収剤は、例えば、300～380nm、好まし

くは330～375 nm、より好ましくは345～360 nmの波長領域に最大吸収波長ピークを有する化合物である。低波長側紫外線吸収剤は、例えば上記したベンゾトリアゾール化合物であり、好ましくは上記した式(1)で表される化合物である。

また、高波長側紫外線吸収剤は、例えば380～430 nm、好ましくは390～425 nm、より好ましくは400～420 nmである。高波長側紫外線吸収剤は、例えば上記したインドール化合物及びポルフィリン化合物から選択される少なくとも1種であり、好ましくは式(2)で表される化合物及び式(3)で表される化合物から選択される少なくとも1種である。

[0044] 第1の熱可塑性樹脂層における、低波長側紫外線吸収剤の含有量は、熱可塑性樹脂100質量部に対して、0.15質量部以上が好ましく、0.2質量部以上がより好ましく、0.4質量部以上がさらに好ましく、0.6質量部以上が特に好ましい。また、1.2質量部以下が好ましく、1.0質量部以下がより好ましい。低波長側紫外線吸収剤の含有量を上記下限値以上とすることで、紫外線を適切に吸収しつつ、400 nmにおける透過率も低くなりやすくなり、光学機能層の光劣化を適切に防止しやすくなる。また、上限値以下とすることで、紫外線吸収剤が適切に熱可塑性樹脂に分散ないし溶解して、含有量に見合った効果が発揮しやすくなる。また、紫外線吸収剤により第1の熱可塑性樹脂層に色味がついたりすることも防止できる。

また、長波長側紫外線吸収剤の含有量は、熱可塑性樹脂100質量部に対して、0.001質量部以上が好ましく、0.002質量部以上がより好ましく、0.003質量部以上がさらに好ましく、また、0.5質量部以下が好ましく、0.3質量部以下がより好ましく、0.1質量部以下がさらに好ましく、0.03質量部以下がよりさらに好ましい。これらの含有量を上記下限値以上とすることで、400、410、420 nmにおける透過率を低くしやすくなる。また、上記上限値以下とすることで、紫外線吸収剤により、第1の熱可塑性樹脂層に色味がついたりすること防止でき、かつ含有量に見合った効果を発揮しやすくなる。

[0045] (熱可塑性樹脂)

第1の熱可塑性樹脂層は、熱可塑性樹脂を含有する。第1の熱可塑性樹脂層は、熱可塑性樹脂を含有することで、接着層としての機能を果たしやすくなり、光学機能層や、ガラス板などとの接着性が良好になる。

熱可塑性樹脂としては、特に限定されないが、例えば、ポリビニルアセタール樹脂、エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂、アイオノマー樹脂、ポリウレタン樹脂、及び熱可塑性エラストマーなどが挙げられる。これら樹脂を使用することで、ガラス板との接着性を確保しやすくなる。第1の熱可塑性樹脂層において熱可塑性樹脂は、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。これらの中では、ポリビニルアセタール樹脂及びエチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂から選択される少なくとも1種が好ましく、特に、可塑剤と併用した場合に、ガラス板に対して優れた接着性を発揮する点から、ポリビニルアセタール樹脂がより好ましい。

[0046] (ポリビニルアセタール樹脂)

ポリビニルアセタール樹脂は、ポリビニルアルコールをアルデヒドでアセタール化して得られるポリビニルアセタール樹脂であれば特に限定されないが、ポリビニルブチラール樹脂が好適である。

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

[0047] 上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基量の好ましい下限は15モル%、好ましい上限は35モル%である。水酸基量を15モル%以上とすることで、ガラス板などとの接着性が良好になりやすくなり、合わせガラスの耐貫通性などを良好にさせやすくなる。また、水酸基量を35モル%以下とすることで、合わせガラスが硬くなり過ぎたりすることを防止する。上記水酸基量のより好ましい下限は25モル%、より好ましい上限は33モル%である。

ポリビニルアセタール樹脂としてポリビニルブチラール樹脂を用いる場合も、同様の観点から、水酸基量の好ましい下限は15モル%、好ましい上限

は35モル%であり、より好ましい下限は25モル%、より好ましい上限は33モル%である。

なお、上記アセタール化度及び上記水酸基量は、例えば、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することができる。

[0048] ポリビニルアセタール樹脂は、ポリビニルアルコールをアルデヒドでアセタール化することにより調製することができる。ポリビニルアルコールは、通常、ポリ酢酸ビニルを鹼化することにより得られ、鹼化度80～99.8モル%のポリビニルアルコールが一般的に用いられる。

ポリビニルアセタール樹脂の重合度の好ましい下限は500、好ましい上限は4000である。重合度を500以上することで、合わせガラスの耐貫通性が良好になる。また、重合度を4000以下とすることで、合わせガラスの成形がしやすくなる。重合度のより好ましい下限は1000、より好ましい上限は3600である。

[0049] 上記アルデヒドは特に限定されないが、一般には、炭素数が1～10のアルデヒドが好適に用いられる。上記炭素数が1～10のアルデヒドは特に限定されず、例えば、n-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、n-バレルアルデヒド、2-エチルブチルアルデヒド、n-ヘキシルアルデヒド、n-オクチルアルデヒド、n-ノニルアルデヒド、n-デシルアルデヒド、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、ベンズアルデヒド等が挙げられる。なかでも、n-ブチルアルデヒド、n-ヘキシルアルデヒド、n-バレルアルデヒドが好ましく、n-ブチルアルデヒドがより好ましい。これらのアルデヒドは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

[0050] (エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂)

エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂としては、非架橋型のエチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂であってもよいし、また、高温架橋型のエチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂であってもよい。また、エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂としては、エチレン-酢酸ビニル共重合体けん化物、エチレン-酢酸ビ

ニルの加水分解物などのようなエチレン-酢酸ビニル変性体樹脂も用いることができる。

[0051] エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂は、JIS K 6730「エチレン・酢酸ビニル樹脂試験方法」に準拠して測定される酢酸ビニル含量が好ましく10～50質量%、より好ましくは20～40質量%である。酢酸ビニル含量をこれら下限値以上とすることで、ガラスへの接着性が高くなり、また、合わせガラスの耐貫通性が良好になりやすくなる。また、酢酸ビニル含量をこれら上限値以下とすることで、第1の熱可塑性樹脂層の破断強度が高くなり、合わせガラスの耐衝撃性が良好になる。

[0052] (アイオノマー樹脂)

アイオノマー樹脂としては、特に限定はなく、様々なアイオノマー樹脂を用いることができる。具体的には、エチレン系アイオノマー、スチレン系アイオノマー、パーフルオロカーボン系アイオノマー、テレケリックアイオノマー、ポリウレタンアイオノマー等が挙げられる。これらの中では、合わせガラスの機械強度、耐久性、透明性などが良好になる点、ガラスへの接着性に優れる点から、エチレン系アイオノマーが好ましい。

[0053] エチレン系アイオノマーとしては、エチレン・不飽和カルボン酸共重合体のアイオノマーが透明性と強靱性に優れるため好適に用いられる。エチレン・不飽和カルボン酸共重合体は、少なくともエチレン由来の構成単位および不飽和カルボン酸由来の構成単位を有する共重合体であり、他のモノマー由来の構成単位を有していてもよい。

不飽和カルボン酸としては、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸等が挙げられ、アクリル酸、メタクリル酸が好ましく、メタクリル酸が特に好ましい。また、他のモノマーとしては、アクリル酸エステル、メタクリル酸エステル、1-ブテン等が挙げられる。

エチレン・不飽和カルボン酸共重合体としては、該共重合体が有する全構成単位を100モル%とすると、エチレン由来の構成単位を75～99モル%有することが好ましく、不飽和カルボン酸由来の構成単位を1～25モル

%有することが好ましい。

エチレン・不飽和カルボン酸共重合体のアイオノマーは、エチレン・不飽和カルボン酸共重合体が有するカルボキシル基の少なくとも一部を金属イオンで中和または架橋することにより得られるアイオノマー樹脂であるが、該カルボキシル基の中和度は、通常は1～90%であり、好ましくは5～85%である。

[0054] アイオノマー樹脂におけるイオン源としては、リチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウム等のアルカリ金属、マグネシウム、カルシウム、亜鉛等の多価金属が挙げられ、ナトリウム、亜鉛が好ましい。

[0055] アイオノマー樹脂の製造方法としては特に限定はなく、従来公知の製造方法によって、製造することが可能である。例えばアイオノマー樹脂として、エチレン・不飽和カルボン酸共重合体のアイオノマーを用いる場合には、例えば、エチレンと不飽和カルボン酸とを、高温、高圧下でラジカル共重合を行い、エチレン・不飽和カルボン酸共重合体を製造する。そして、そのエチレン・不飽和カルボン酸共重合体と、上記のイオン源を含む金属化合物とを反応させることにより、エチレン・不飽和カルボン酸共重合体のアイオノマーを製造することができる。

[0056] (ポリウレタン樹脂)

ポリウレタン樹脂としては、イソシアネート化合物と、ジオール化合物とを反応して得られるポリウレタン、イソシアネート化合物と、ジオール化合物、さらに、ポリアミンなどの鎖長延長剤を反応させることにより得られるポリウレタンなどが挙げられる。また、ポリウレタン樹脂は、硫黄原子を含有するものでもよい。その場合には、上記ジオールの一部又は全部を、ポリチオール及び含硫黄ポリオールから選択されるものとする。ポリウレタン樹脂は、有機ガラスとの接着性を良好にすることができる。そのため、ガラス板が有機ガラスである場合に好適に使用される。

[0057] (熱可塑性エラストマー)

熱可塑性エラストマーとしては、スチレン系熱可塑性エラストマー、脂肪

族ポリオレフィンが挙げられる。スチレン系熱可塑性エラストマーとしては、特に限定されず、公知のものを用いることができる。スチレン系熱可塑性エラストマーは、一般的に、ハードセグメントとなるスチレンモノマー重合体ブロックと、ソフトセグメントとなる共役ジエン化合物重合体ブロック又はその水添ブロックとを有する。スチレン系熱可塑性エラストマーの具体例としては、スチレンーイソプレンジブロック共重合体、スチレンーブタジエンジブロック共重合体、スチレンーイソプレンースチレントリブロック共重合体、スチレンーブタジエン／イソプレンースチレントリブロック共重合体、スチレンーブタジエンースチレントリブロック共重合体、並びにその水素添加体が挙げられる。

上記脂肪族ポリオレフィン、飽和脂肪族ポリオレフィンであってもよく、不飽和脂肪族ポリオレフィンであってもよい。上記脂肪族ポリオレフィンは、鎖状オレフィンをモノマーとするポリオレフィンであってもよく、環状オレフィンをモノマーとするポリオレフィンであってもよい。中間膜の保存安定性、及び、遮音性を効果的に高める観点からは、上記脂肪族ポリオレフィンは、飽和脂肪族ポリオレフィンであることが好ましい。

上記脂肪族ポリオレフィンの材料としては、エチレン、プロピレン、1-ブテン、trans-2-ブテン、cis-2-ブテン、1-ペンテン、trans-2-ペンテン、cis-2-ペンテン、1-ヘキセン、trans-2-ヘキセン、cis-2-ヘキセン、trans-3-ヘキセン、cis-3-ヘキセン、1-ヘプテン、trans-2-ヘプテン、cis-2-ヘプテン、trans-3-ヘプテン、cis-3-ヘプテン、1-オクテン、trans-2-オクテン、cis-2-オクテン、trans-3-オクテン、cis-3-オクテン、trans-4-オクテン、cis-4-オクテン、1-ノネン、trans-2-ノネン、cis-2-ノネン、trans-3-ノネン、cis-3-ノネン、trans-4-ノネン、cis-4-ノネン、1-デセン、trans-2-デセン、cis-2-デセン、trans-3-デセン、cis-3-デセン、trans-

4-デセン、cis-4-デセン、trans-5-デセン、cis-5-デセン、4-メチル-1-ペンテン、及びビニルシクロヘキサン等が挙げられる。

[0058] (可塑剤)

第1の熱可塑性樹脂層は、さらに可塑剤を含有してもよい。第1の熱可塑性樹脂層は、可塑剤を含有することにより柔軟となり、その結果、合わせガラスを柔軟にする。さらには、ガラス板に対する高い接着性を発揮することも可能になる。第1の熱可塑性樹脂層は、熱可塑性樹脂としてポリビニルアセタール樹脂を使用する場合に、可塑剤を含有すると特に効果的である。

可塑剤としては、例えば、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。

[0059] 有機エステル可塑剤は、例えば、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、テトラエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート、ジブチルセバケート、ジオクチルアゼレート、ジブチルカルビトールアジペート、エチレングリコールジ-2-エチルブチレート、1,3-プロピレングリコールジ-2-エチルブチレート、1,4-ブチレングリコールジ-2-エチルブチレート、1,2-ブチレングリコールジ-2-エチルブチレート、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エート、トリエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート、テトラエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート、トリ

エチレングリコールジ-2-エチルブチレート、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、アジピン酸ジイソノニル、アジピン酸ヘプチルノニル、セバシン酸ジブチル、油変性セバシン酸アルキド、リン酸エステルとアジピン酸エステルとの混合物、混合型アジピン酸エステルなどが挙げられる。混合型アジピン酸エステルとしては、炭素数4～9のアルキルアルコール及び炭素数4～9の環状アルコールから選択される2種以上のアルコールから作製されたアジピン酸エステルが挙げられる。

上記可塑剤のなかでも、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（3GO）が特に好適に用いられる。

[0060] 第1の熱可塑性樹脂層において、可塑剤の含有量は、特に限定されないが、熱可塑性樹脂100質量部に対して、好ましい下限は30質量部であり、好ましい上限は70質量部である。可塑剤の含有量を30質量部以上とすると、合わせガラスが適度に柔軟になり、取り扱い性等が良好になる。また、可塑剤の含有量を70質量部以下とすると、第1の熱可塑性樹脂層から可塑剤が分離することが防止される。可塑剤の含有量のより好ましい下限は35質量部、より好ましい上限は63質量部である。

また、第1の熱可塑性樹脂層は、熱可塑性樹脂、又は熱可塑性樹脂及び可塑剤が主成分となるものであり、熱可塑性樹脂及び可塑剤の合計量が、第1の熱可塑性樹脂層全量基準で、通常70質量%以上、好ましくは80質量%以上、さらに好ましくは90質量%以上である。

[0061] （その他の添加剤）

第1の熱可塑性樹脂層は、更に必要に応じて、赤外線吸収剤、酸化防止剤、光安定剤、接着力調整剤、顔料、染料、蛍光増白剤、結晶核剤等の添加剤を含有してもよい。

赤外線吸収剤は、赤外線を遮蔽する性能を有すれば特に限定されないが、例えば、錫ドープ酸化インジウム粒子が好適である。第1の熱可塑性樹脂層は、赤外線吸収剤を含有することにより、高い遮熱性を発揮することができ

る。

酸化防止剤は、特に限定されず、例えば、2, 2-ビス[[[3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオニル]オキシ]メチル]プロパン-1, 3-ジオール1, 3-ビス[3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオナート]、4, 4'-チオビス(6-tert-ブチル-3-メチルフェノール)、4, 4'-ジメチル-6, 6'-ジ(tert-ブチル)[2, 2'-メチレンビス(フェノール)]、2, 6-ジ-tert-ブチル-p-クレゾール、4, 4'-ブチリデンビス-(6-tert-ブチル-3-メチルフェノール)等が挙げられる。

また、結晶核剤としては、特に限定されるものではないが、例えば、ジベンジリデンソルビトール、ジベンジリデンキシリトール、ジベンジリデンスルシトール、ジベンジリデンマンニトール、カリックスアレーンが挙げられる。結晶核剤は、熱可塑性樹脂としては、エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂が使用される場合、好適に使用される。

接着力調整剤としては、例えば各種のマグネシウム塩又はカリウム塩などが使用される。

[0062] 第1の熱可塑性樹脂層の厚さは、好ましくは0.05～1.5mm、より好ましくは0.1～1mm、さらに好ましくは0.2～0.6mmである。第1の熱可塑性樹脂層の厚さを0.05mm以上とすることで、十分な紫外線吸収性能を発揮することが可能になる。また、合わせガラスの耐貫通性も良好になる。また、第1の熱可塑性樹脂層の厚さを1.5mm以下とすることで、第1の熱可塑性樹脂層の透明性が低下することを防止する。

[0063] (第2の熱可塑性樹脂層)

本発明の合わせガラス用中間膜は、光学機能層の他方の面側に第2の熱可塑性樹脂層をさらに備えることが好ましい。第2の熱可塑性樹脂層を有することで、光学機能層を有する合わせガラス用中間膜を、合わせガラスを構成する2枚のガラス板に容易に接着させることができる。

[0064] ここで、第2の熱可塑性樹脂層の波長400nmにおける透過率を $T_{400}(2)$ 、第1の熱可塑性樹脂層の波長400nmにおける透過率を $T_{400}(1)$ とした場合、 $T_{400}(2) > T_{400}(1)$ の関係を満たすことが好ましい。上記のように第2の熱可塑性樹脂層の透過率($T_{400}(2)$)を高くすることで、可視光線透過率を高くしやすくなり、かつ色付きなどを防止して、自動車のフロントガラスなどに好適に使用できる。

そのような観点から、波長400nmにおける第1及び第2の熱可塑性樹脂層の透過率の差($T_{400}(2) - T_{400}(1)$)は、5%以上が好ましく、10%以上がより好ましく、15%以上がさらに好ましく、25%以上がよりさらに好ましい。

また、差($T_{400}(2) - T_{400}(1)$)は、特に限定されないが、例えば60%以下であってもよいが、50%以下であってもよい。

なお、第2の熱可塑性樹脂層の波長400nmにおける透過率($T_{400}(2)$)は、特に限定されないが、例えば20%以上、好ましくは30%以上であり、また、例えば80%以下、好ましくは60%以下である。

[0065] また、第2の熱可塑性樹脂層の波長410nmにおける透過率を $T_{410}(2)$ 、第1の熱可塑性樹脂層の波長410nmにおける透過率を $T_{410}(1)$ とした場合、 $T_{410}(2) > T_{410}(1)$ の関係を満たすことが好ましい。このように第2の熱可塑性樹脂層の透過率($T_{410}(2)$)を高くすることで、可視光線透過率を高くしやすくなり、かつ色付きなどを防止して、自動車のフロントガラスなどに好適に使用できる。

可視光線透過率を高くし、色付きを防止しやすくする観点から、波長410nmにおける第1及び第2の熱可塑性樹脂層の透過率の差($T_{410}(2) - T_{410}(1)$)は、5%以上が好ましく、10%以上がより好ましく、20%以上がさらに好ましく、30%以上がよりさらに好ましい。また、差($T_{410}(2) - T_{410}(1)$)は、特に限定されないが、例えば70%以下であってもよいが、60%以下であってもよい。

なお、第2の熱可塑性樹脂層の波長410nmにおける透過率(T_{410}

(2)) は、特に限定されないが、例えば40%以上、好ましくは50%以上であり、また、例えば95%以下、好ましくは80%以下である。

[0066] また、第2の熱可塑性樹脂層の波長420nmにおける透過率を $T_{420}(2)$ 、第1の熱可塑性樹脂層の波長420nmにおける透過率を $T_{420}(1)$ とした場合、 $T_{420}(2) > T_{420}(1)$ の関係を満たすことが好ましい。このように第2の熱可塑性樹脂層の透過率($T_{420}(2)$)を高くすることで、可視光線透過率を高くしやすくなり、かつ色付きなどを防止して、自動車のフロントガラスなどに好適に使用できる。

可視光線透過率を高くし、色付きを防止しやすくなる観点から、波長420nmにおける第1及び第2の熱可塑性樹脂層の透過率の差($T_{420}(2) - T_{420}(1)$)は、3%以上が好ましく、5%以上がより好ましく、20%以上がさらに好ましく、25%以上がよりさらに好ましい。

また、差($T_{420}(2) - T_{420}(1)$)は、特に限定されないが、例えば80%以下であってもよいが、70%以下であってもよい。

なお、第2の熱可塑性樹脂層の波長420nmにおける透過率($T_{420}(2)$)は、特に限定されないが、例えば45%以上、好ましくは55%以上であり、また、例えば95%以下、好ましくは90%以下である。

[0067] 第2の熱可塑性樹脂層は、熱可塑性樹脂を含む層であり、第2の熱可塑性樹脂層に使用される熱可塑性樹脂としては、特に限定されないが、例えば、ポリビニルアセタール樹脂、エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂、アイオノマー樹脂、ポリウレタン樹脂、及び熱可塑性エラストマーなどが挙げられる。これら樹脂を使用することで、ガラス板との接着性を確保しやすくなる。第2の熱可塑性樹脂層において熱可塑性樹脂は、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。これらの中では、ポリビニルアセタール樹脂及びエチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂から選択される少なくとも1種が好ましく、特に、可塑剤と併用した場合に、ガラスに対して優れた接着性を発揮する点から、ポリビニルアセタール樹脂がより好ましい。

[0068] 第1の熱可塑性樹脂層における熱可塑性樹脂と第2の熱可塑性樹脂におけ

る熱可塑性樹脂は、同じ種類の樹脂を使用してもよいし、異なる種類の樹脂を使用してもよいが、同じ種類の樹脂を使用することが好ましい。例えば、第1の熱可塑性樹脂層における熱可塑性樹脂が、ポリビニルアセタール樹脂であれば、第2の熱可塑性樹脂層における熱可塑性樹脂もポリビニルアセタール樹脂であることが好ましい。また、例えば、第1の熱可塑性樹脂層における熱可塑性樹脂が、エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂であれば、第2の熱可塑性樹脂層における熱可塑性樹脂もエチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂であることが好ましい。

なお、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、アイオノマー樹脂、ポリウレタン樹脂、及び熱可塑性エラストマーの詳細は、第1の熱可塑性樹脂層において説明したとおりであるので、その説明は省略する。

[0069] 第2の熱可塑性樹脂層は、さらに可塑剤を含有してもよい。第2の熱可塑性樹脂層は、可塑剤を含有することにより柔軟となり、その結果、合わせガラスを柔軟にする。さらには、ガラス板に対する高い接着性を発揮することも可能になる。第2の熱可塑性樹脂層は、熱可塑性樹脂としてポリビニルアセタール樹脂を使用する場合に、可塑剤を含有すると特に効果的である。

可塑剤としては、例えば、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リン酸可塑剤等が挙げられる。可塑剤の具体例は上記のとおりである。これらのなかでも、有機エステル可塑剤が好ましく、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（3GO）が特に好適に用いられる。第2の熱可塑性樹脂層においても、可塑剤は、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0070] 第2の熱可塑性樹脂層において、可塑剤の含有量は、特に限定されないが、熱可塑性樹脂100質量部に対して、好ましい下限は30質量部であり、好ましい上限は70質量部である。可塑剤の含有量を30質量部以上とすると、合わせガラスが適度に柔軟になり、取り扱い性等が良好になる。また、

可塑剤の含有量を70質量部以下とすると、第2の熱可塑性樹脂層から可塑剤が分離することが防止される。可塑剤の含有量のより好ましい下限は35質量部、より好ましい上限は63質量部である。

また、第2の熱可塑性樹脂層は、熱可塑性樹脂、又は熱可塑性樹脂及び可塑剤が主成分となるものであり、熱可塑性樹脂及び可塑剤の合計量が、第2の熱可塑性樹脂全量基準で、通常70質量%以上、好ましくは80質量%以上、さらに好ましくは90質量%以上である。

[0071] 第2の熱可塑性樹脂層は、紫外線吸収剤を含有することが好ましい。紫外線吸収剤を含有することで、第2の熱可塑性樹脂層が太陽光などにより劣化することを防止できる。また、合わせガラス用中間膜を含む合わせガラスを例えば窓ガラスとして使用する場合には、窓ガラスを介して紫外線が、屋内側に透過することを防止できる。

紫外線吸収剤としては、特に限定されず、公知の紫外線吸収剤を使用すればよいが、上記した紫外線吸収剤を使用すればよく、好ましくはベンゾトリアゾール化合物を使用する。ベンゾトリアゾール化合物を使用することで、紫外線吸収剤によって太陽光に含まれる紫外線を効果的に吸収することができる。なお、ベンゾトリアゾール化合物の詳細は上記したとおりであり、好ましくは上記した式(1)で示されるベンゾトリアゾール化合物が使用される。

第2の熱可塑性樹脂層において、紫外線吸収剤は、1種単独で使用してもよいし、2種以上を併用してもよい。

第2の熱可塑性樹脂層における紫外線吸収剤は、例えば330～390 nm、好ましくは330～375 nm、より好ましくは345～360 nmの波長領域に最大吸収波長ピークを有する化合物である。このような化合物を使用することで、紫外線吸収剤によって太陽光に含まれる紫外線を効果的に吸収できる。

[0072] 第2の熱可塑性樹脂層における熱可塑性樹脂100質量部に対する紫外線吸収剤の含有量は、第1の熱可塑性樹脂層における熱可塑性樹脂100質量

部に対する紫外線吸収剤の含有量より少ないことが好ましい。このように2つの樹脂層における紫外線吸収剤の含有量を調整することで、可視光線透過率を向上させ、かつ着色を防止しつつ、光学機能層及び第1及び第2の熱可塑性樹脂層の光劣化を防ぐことができる。また、合わせガラスを窓ガラスなどに使用した場合には、屋内側に紫外線が照射されることを効果的に防止できる。

具体的な第2の熱可塑性樹脂層における紫外線吸収剤の含有量は、熱可塑性樹脂100質量部に対して、例えば0.02質量部以上が好ましく、0.10質量部以上がより好ましく、0.15質量部以上がさらに好ましく、また、1.0質量部以下が好ましく、0.5質量部以下がより好ましく、0.4質量部以下がさらに好ましい。

[0073] (その他の添加剤)

第2の熱可塑性樹脂層は、更に必要に応じて、赤外線吸収剤、酸化防止剤、光安定剤、接着力調整剤、顔料、染料、蛍光増白剤、結晶核剤等の添加剤を含有してもよい。これら添加剤の詳細は、上記のとおりである。

[0074] 第2の熱可塑性樹脂層の厚さは、好ましくは0.05～1.5mm、より好ましくは0.1～1mm、さらに好ましくは0.2～0.6mmである。第2の熱可塑性樹脂層の厚さを0.05mm以上とすることで、合わせガラスの耐貫通性や接着性が良好になる。また、第2の熱可塑性樹脂層の厚さを1.5mm以下とすることで、第2の熱可塑性樹脂層の透明性が低下することを防止する。

[0075] 第1及び第2の熱可塑性樹脂層はそれぞれ、例えば、熱可塑性樹脂、紫外線吸収剤、必要に応じて添加される可塑剤、その他の添加剤などの各熱可塑性樹脂層を構成する材料よりなる熱可塑性樹脂組成物により形成するとよい。

具体的には、各熱可塑性樹脂層を構成する材料を混練して得られた熱可塑性樹脂組成物を押出成形、プレス成形などして形成すればよい。このとき、可塑剤を使用する場合には、可塑剤に紫外線吸収剤を溶解させ、その混合物

とポリビニルアセタール樹脂等の熱可塑性樹脂とを混練して熱可塑性樹脂組成物を作製してもよい。

[0076] [合わせガラス]

本発明の合わせガラスは、一对のガラス板と、一对のガラス板の間に配置される上記した合わせガラス用中間膜とを備える。一对のガラス板は、合わせガラス用中間膜によって接着されて合わせガラスを構成する。

合わせガラスで使用するガラス板としては、無機ガラス、有機ガラスのいずれでもよいが、無機ガラスが好ましい。無機ガラスとしては、特に限定されないが、クリアガラス、フロート板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス、網入り板ガラス、線入り板ガラス、グリーンガラス等が挙げられる。

また、有機ガラスとしては、一般的に樹脂ガラスと呼ばれるものが使用され、特に限定されないが、ポリカーボネート、アクリル樹脂、アクリル共重合体樹脂、ポリエステルなどの樹脂から構成される有機ガラスが挙げられる。

2枚のガラス板は、互いに同種の材質から構成されてもよいし、別の材質から構成されてもよい。例えば、一方が無機ガラスで、他方が有機ガラスであってもよいが、2枚のガラス板の両方が無機ガラスであるか、又は有機ガラスであることが好ましい。

また、各ガラス板の厚さは、特に限定されないが、例えば、0.1～15 mm程度、好ましくは0.5～5 mmである。各ガラス板の厚さは、互いに同一であってもよいし、異なってもよいが、同一であることが好ましい。

[0077] 本発明の合わせガラスは、可視光線透過率が例えば50%以上であるが、好ましくは70%以上、さらに好ましくは80%以上である。可視光線透過率を70%以上とすることで、窓ガラスなどに使用したときに十分な視認性が確保でき、自動車用フロントガラスとしても好適に使用できる。可視光線透過率の上限は、特に限定されないが、例えば99%であればよく、実用的には95%でもよい。本発明では、可視光線透過率を高くして合わせガラス

の光透過性を確保しつつ、特定の波長の透過率を低くすることで光学機能層の光劣化を防止できる。

[0078] 本発明の合わせガラスは、例えば窓ガラスとして使用されるものであり、例えば合わせガラスの一方のガラス板が太陽光が入射される屋外側に配置される室外窓において使用される。なお、室外窓とは、本明細書では、太陽光が入射される位置に配置される窓を意味する。したがって、室外窓は、通常、建築物の外壁、乗り物の外壁に配置されるものであるが、二重窓の内窓などでも、太陽光が入射される位置に配置されるならば、本明細書の室外窓に包含される。

本発明の合わせガラスは、具体的には、自動車、電車、船舶などの各種乗り物、ビル、マンション、一戸建て、ホール、体育館などの各種建築物等の窓ガラスに使用されることが好ましく、自動車用窓ガラスに使用されることがより好ましい。自動車用窓ガラスはフロントガラス、リアガラス、サイドガラス、ルーフガラスのいずれでもよいが、フロントガラスに使用することが好ましい。光学機能層を有する合わせガラスをフロントガラスに使用すると、HUD用途に好適に使用できる。

[0079] また、本発明の合わせガラス用中間膜では、第1の熱可塑性樹脂層が、光学機能層よりも屋外側に配置されるとよい。すなわち、自動車用窓ガラスにおいては、第1の熱可塑性樹脂層が、光学機能層よりも車外側に配置されるとよい。

第1の熱可塑性樹脂層が、光学機能層よりも屋外側に配置されることで、太陽光からの光は、第1の熱可塑性樹脂層を介して、光学機能層に入射されることになる。本発明では、第1の熱可塑性樹脂層によって、紫外線や400nm付近の光線が十分に吸収されるので、光学機能層の光劣化を適切に防止できる。

[0080] (積層構造)

次に、本発明の合わせガラス用中間膜、及び合わせガラスの積層構造について図面を参照しつつ説明する。図1は、第1の実施形態に係る合わせガラ

ス用中間膜、及び合わせガラスを示す。第１の実施形態に係る合わせガラス用中間膜は、第１及び第２の熱可塑性樹脂層を有する。

図１に示すように、本実施形態における合わせガラス用中間膜１０は、第１及び第２の熱可塑性樹脂層１１、１２と、光学機能層１５とを備え、光学機能層１５の一方の面１５Ａ側に第１の熱可塑性樹脂層１１が、光学機能層１５の他方の面１５Ｂ側に第２の熱可塑性樹脂層１２が配置される。ただし、図１において光学機能層１５は、基材１４上に形成された層であり、したがって、光学機能層１５の他方の面１５Ｂ上には基材１４が設けられる。そのため、第２の熱可塑性樹脂層１２は、基材１４を介して光学機能層１５に積層される。

[0081] 本実施形態の合わせガラス２０は、２枚のガラス板（第１及び第２のガラス板）２１、２２と、これらガラス板２１、２２の間に配置される合わせガラス用中間膜１０とを備える。合わせガラス用中間膜１０の第１及び第２の熱可塑性樹脂層１１、１２それぞれは、第１及び第２のガラス板２１、２２に接着される。ここで、第１のガラス板２１は屋外側（自動車用窓ガラスでは車外側）、第２のガラス板２２は屋内側（自動車用窓ガラスでは車内側）に配置されるガラス板である。

[0082] なお、図１は、合わせガラス用中間膜１０が第１及び第２の熱可塑性樹脂層１１、１２を有する第１の実施形態を示すが、第１及び第２の熱可塑性樹脂層１１、１２を有する場合の合わせガラス用中間膜１０の態様は図１の構成に限定されない。

例えば、基材１４は光学機能層１５の一方の面１５Ａ上に設けられてもよく、その場合、第１の熱可塑性樹脂層１１が、基材１４を介して光学機能層１５に積層される。

また、基材１４が省略されて、光学機能層１４の両面が第１及び第２の熱可塑性樹脂層１１、１２に直接積層されてもよい。

[0083] さらに、光学機能層１５の一方の面１５Ａにカバー材（図示しない）が積層され、光学機能層１５は、その両面が基材１４とカバー材により被覆され

ていてもよい。この場合、第1及び第2の熱可塑性樹脂層11、12はカバー材及び基材それぞれを介して光学機能層15に積層されるとよい。勿論、基材14が光学機能層15の一方の面15A上に積層され、カバー材が光学機能層15の他方の面15B上に積層されてもよい。

[0084] 図2、3は、第2の実施形態の合わせガラス用中間膜30、及び合わせガラス用中間膜30を備える合わせガラス40を示す。第2の実施形態の合わせガラス用中間膜30は、第2の熱可塑性樹脂層を有さず、第1の熱可塑性樹脂層11と、光学機能層15とを備える。第1の熱可塑性樹脂層11は、光学機能層15の一方の面15A側に配置される。光学機能層15は、図2に示すように、基材14上に形成された層であり、したがって、光学機能層15の他方の面15B上には基材14が設けられる。

[0085] 本実施形態の合わせガラス40においては、第1の熱可塑性樹脂層11が第1のガラス板21に接着され、光学機能層15の基材14が第2のガラス板22に接着される。基材14は、接着剤などを介して第2のガラス板22に接着されてもよいが、圧着などされることで第2のガラス板22に接着されてもよい。

ただし、基材14は省略されてもよく、第2のガラス板22上に光学機能層15が直接積層されてもよい。この場合、光学機能層15は、例えば第2のガラス板22に光学機能層用組成物を塗布することで形成してもよい。

[0086] また、例えば、第2の実施形態において、光学機能層15は、図3に示すように、平面視したときに第1の熱可塑性樹脂層11よりも小さく形成され、第1の熱可塑性樹脂層11に埋設されるように配置されてもよい。この場合、第1の熱可塑性樹脂層11は、第1のガラス板21に接着されるとともに、光学機能層15の外周側において第2のガラス22にも接着され、それにより、2枚のガラス板21、22が、合わせガラス構造を構成してもよい。なお、図3に示すように、光学機能層15が第1の熱可塑性樹脂層11よりも小さく形成される場合には、第1の熱可塑性樹脂層11の厚さとは、光学機能層15が設けられる部分における第1の熱可塑性樹脂層11の厚さを

意味する。

なお、図 2、3 に示す第 2 の実施形態では、基材 14 は光学機能層 15 の他方の面 15 B 上に積層される代わりに一方の面 15 A 上に設けられてもよいし、光学機能層 15 の両面にカバー材と基材がそれぞれ積層されてもよい。

また、上記で説明した各実施形態における合わせガラス用中間膜 10、30 は、一例を示したに過ぎず、本発明の効果を奏する限り、いかなる積層構造を有してもよく、また、上記以外の層を適宜有してもよい。

[0087] (製造方法)

本発明の合わせガラス用中間膜は、特に限定されないが、第 1 の熱可塑性樹脂層及び光学機能層、あるいは、第 1 の熱可塑性樹脂層、光学機能層及び第 2 の熱可塑性樹脂層を少なくとも積層して、熱圧着などすることで製造できる。この際、光学機能層には、基材、カバー材などが適宜取り付けられていてもよい。また、合わせガラスも同様に製造でき、2 枚のガラス板の間に、第 1 の熱可塑性樹脂層及び光学機能層、あるいは、第 1 の熱可塑性樹脂層、光学機能層及び第 2 の熱可塑性樹脂層を少なくとも積層して、熱圧着などすることで製造できる。

また、上記製造方法においては、合わせガラス用のガラス板の上に光学機能層を直接形成し、その光学機能層の上に第 1 の熱可塑性樹脂層などを積層して、合わせガラス用中間膜や合わせガラスを製造してもよい。

ただし、合わせガラス用中間膜、及び合わせガラスの製造方法は、上記に限定されず、本発明の合わせガラス用中間膜、及び合わせガラスを製造できる限りいかなる方法でもよい。

[0088] [画像表示システム]

本発明は、上記した合わせガラスと、光源とを備える画像表示システムも提供する。合わせガラスは、上記したように、窓ガラスであるとよく、第 1 のガラス板が屋外側（自動車では車外側）、第 2 のガラス板が屋内側（自動車では車内側）に配置される。また、合わせガラス用中間膜に設けられる光

学機能層は体積型ホログラムであり、予め干渉光が照射されて露光されることでホログラムが形成され、画像情報を保存している。体積型ホログラムは、通常多重露光され、重畳的に複数の画像情報が記録される。

[0089] 光源は、再生光を出射する装置である。光源から出射された再生光は、合わせガラスに照射される。ここで、再生光は、屋内側（すなわち、車内側）から合わせガラスに照射され、合わせガラスの光学機能層に記憶されている画像情報が、照射された再生光によって再生される。再生された画像は、一般的に屋外側（すなわち、車外側）に虚像として表示される。これにより、画像表示システムでは、屋内側（車内側）から再生された画像を視認することができる。

本発明の画像表示システムは、合わせガラスを自動車のフロントガラスとすると、自動車のHUDとして好適に使用できる。

実施例

[0090] 本発明を実施例により更に詳細に説明するが、本発明はこれらの例によってなんら限定されるものではない。

[0091] [各波長における透過率]

分光光度計（日立ハイテック社製「U-4100」）を用いて、スリット幅：8nm、スキャンスピード：300nm/minの条件で各熱可塑性樹脂層の波長毎の透過率を測定した。

[可視光線透過率]

合わせガラスの可視光線透過率（Tv）は、JIS R 3106（1998）に準拠して分光光度計（日立ハイテック社製「U-4100」）を用いて測定した。

[耐光性試験]

各実施例、比較例で得られた合わせガラスに、JIS R 3205（2005）に準拠して、第1のガラス板側から紫外線照射装置（HLG-2S、スガ試験機社製）を用いて紫外線を1000時間照射し、紫外線照射後における合わせガラスのTvを測定した。紫外線照射前のTvも測定し、（紫

外線照射前の T_v －紫外線照射後の T_v)より ΔT_v を測定した。黄色度の変化 ΔY_I 及び色差の変化量 ΔE についても同様に測定した。なお、 ΔY_I は分光光度計(日立ハイテック社製「U-4100」)を用いて、JIS K 7373に準拠して、紫外線照射前後のC光XYZ表色系 Y_I を算出した。 ΔE は分光光度計(日立ハイテック社製「U-4100」)を用いて、紫外線照射前後の合わせガラスの三刺激値を測定し、明度指数およびクロマティクス指数を算出し、JIS Z 8731に記載のハンターの色差式に従って色差 ΔE を求めた。

[0092] 各実施例、比較例で使用した成分は、以下のとおりである。

(樹脂)

PVB：ポリビニルブチラル樹脂、アセタール化度69モル%、水酸基量30モル%、アセチル化度1モル%、重合度1700

(可塑剤)

3GO：トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート

(紫外線吸収剤)

ベンゾトリアゾール化合物：式(1)で表され、かつXが塩素原子、 R^{11} がメチル基、 R^{12} はtert-ブチル基で表される化合物。商品名、Tinuvin 326、チバスペシャリティ・ケミカルズ社製、最大吸収波長ピーク353nm

ポルフィリン化合物：式(3-1)で表され、かつ R^{35} 、 R^{36} 、 R^{37} 、 R^{38} がパラ位に配位され、かつ $-\text{COOCH}_3$ で表される化合物。最大吸収波長ピーク415nm

なお、ポルフィリン系化合物は、以下の方法により調製した。

テトラキス(4-カルボキシフェニル)ポルフィリンテトラメチルエステル(和光純薬工業株式会社製)0.31g(0.37mmol)をクロロホルム50mLに溶解させ、そこに塩化銅2.11g(15.5mmol)を溶解させた飽和メタノール溶液40mLを加えて、24時間加熱還流を行なった。24時間後、室温まで冷却し、分液ロートに移し、蒸留水を用いて洗浄を行

なった。その後、残った有機層をエバポレーターを用いて減圧留去した。その後、少量のクロロホルムに溶解させ、ヘキサン及びジエチルエーテルで再沈殿を行なうことで、目的物を得た（0.27 g、収率80%）。

[0093] インドール化合物は以下の方法で調製した。

メタノール120 mlに1-メチル-2-フェニル-1H-インドール-3-カルボアルデヒド23.5 g（0.10 mol）、及び、シアノ酢酸メチル11.9 g（0.12 mol）を加えた。次いで、ピペリジン2.5 g（0.03 mol）を加え、還流下6時間反応させ、室温まで冷却した後、析出した結晶を得た。得られた結晶を少量のアルコールで洗浄後、乾燥して、上記式（2）においてR²¹がメチル基、R²²がメチル基であるインドール系化合物の淡黄色結晶を30.9 g得た。なお、得られたインドール化合物の融点は193.7℃、最大吸収波長ピークが391 nmであった。

[0094] [実施例1]

（第1の熱可塑性樹脂層の作製）

表1に示す配合に従って、ポリビニルブチラル樹脂、可塑剤、及び紫外線吸収剤を混合し、得られた熱可塑性樹脂組成物を二軸異方押出機により押出成形して、厚さ380 μmの第1の熱可塑性樹脂層を作製した。なお、上記成分を混合するとき、接着力調整剤としての有機酸マグネシウム水溶液を、第1の熱可塑性樹脂層におけるMg濃度が65 ppmとなるようにさらに添加した。なお、Mgの濃度は、ICP発光分析装置（島津製作所社製「ICPE-9000」）によりMg含有量を測定し求めることができる。

（光学機能層の作製）

光反応性モノマーとしてのアクリル系モノマー、マトリックスポリマーとしてのポリウレタン、光重合開始剤、及び染料を含む光学機能層用組成物を、基材としての厚さ60 μmのTAC（セルローストリアセテート）フィルムに塗布して乾燥させて、基材の一方の面上に積層された厚さ3 μmの光学機能層を得た。次に、波長532 nmを有すレーザー光源を用いて露光し、光反応性モノマーを反応させ重合させた。露光の際、光学機能層上に2方向

からの光の波を干渉させることで、ホログラムを有する光学機能層とした。

(第2の熱可塑性樹脂層の作製)

紫外線吸収剤の配合量を表1に示すとおりに変更した以外は、第1の熱可塑性樹脂層と同様に第2の熱可塑性樹脂層を作製した。

[0095] (合わせガラスの作製)

得られた第1及び第2の熱可塑性樹脂層を、23℃、相対湿度28%の恒温恒湿条件で4時間保持した。その後、透明なクリアガラス板(厚さ2.5mm)を2枚用意して、一方のクリアガラス板の上に、第2の熱可塑性樹脂層、基材付き光学機能層、第1の熱可塑性樹脂層、及び他方のクリアガラス板をこの順に重ねて積層体とした。得られた積層体を、ゴムバッグ内に移し、ゴムバッグを吸引減圧系に接続し、外気加熱温度で加熱すると同時に-600mmHg(絶対圧力160mmHg)の減圧下で10分間保持し、積層体の温度(予備圧着温度)がそれぞれ60℃になるように加熱した後、大気圧に戻して仮圧着を行った。仮圧着された積層体を、オートクレーブ内で、温度140℃、圧力1.3MPaの条件下に10分間保持した後、50℃まで温度を下げ大気圧に戻すことにより本圧着を終了して、合わせガラスを得た。合わせガラスは、第1のガラス板/第1の熱可塑性樹脂層/光学機能層/基材/第2の熱可塑性樹脂層/第2のガラス板の層構成からなるものであった。

[0096] [実施例2～5、比較例1, 2]

第1の熱可塑性樹脂層に配合される紫外線吸収剤の種類、及び配合量を表1に示すとおりに変更した以外は、実施例1と同様に実施した。なお、比較例1では、第1の熱可塑性樹脂層には紫外線吸収剤を配合しなかった。

[0097]

[表1]

				実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	比較例1	比較例2	
第1の熱可塑性樹脂層	樹脂	種類	－	PVB	PVB	PVB	PVB	PVB	PVB	PVB	
		部数	質量部	100	100	100	100	100	100	100	
	可塑剤	種類	－	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	
		部数	質量部	40	40	40	40	40	40	40	
	紫外線吸収剤1	種類	－	ベンゾトリアゾール	ベンゾトリアゾール	ベンゾトリアゾール	ベンゾトリアゾール	ベンゾトリアゾール	－	ベンゾトリアゾール	
		部数	質量部	0.4	0.8	0.8	0.2	0.95	－	0.2	
	紫外線吸収剤2	種類	－	－	－	インドール	ボルフィリン	ボルフィリン	－	－	
		部数	質量部	－	－	0.01	0.0036	0.0036	－	－	
	透過率	T400(1)	%	15.6	3.5	0.8	19.8	2.1	87.4	34.6	
		T410(1)	%	59.4	42.0	19.4	24.2	14.2	87.8	72.1	
		T420(1)	%	80.4	77.0	57.7	19.2	17.5	87.6	84.7	
光学機能層	光反応性モノマー	種類	－	アクリル	アクリル	アクリル	アクリル	アクリル	アクリル	アクリル	
	マトリックスポリマー	種類	－	ポリウレタン	ポリウレタン	ポリウレタン	ポリウレタン	ポリウレタン	ポリウレタン	ポリウレタン	
基材			種類	－	TAC	TAC	TAC	TAC	TAC	TAC	
第2の熱可塑性樹脂層	樹脂	種類	－	PVB	PVB	PVB	PVB	PVB	PVB	PVB	
		部数	質量部	100	100	100	100	100	100	100	
	可塑剤	種類	－	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	
		部数	質量部	40	40	40	40	40	40	40	
	紫外線吸収剤1	種類	－	ベンゾトリアゾール	ベンゾトリアゾール	ベンゾトリアゾール	ベンゾトリアゾール	ベンゾトリアゾール	ベンゾトリアゾール	ベンゾトリアゾール	
		部数	質量部	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	
	透過率	T400(2)	%	34.6	34.6	34.6	34.6	34.6	34.6	34.6	
		T410(2)	%	72.1	72.1	72.1	72.1	72.1	72.1	72.1	
		T420(2)	%	84.7	84.7	84.7	84.7	84.7	84.7	84.7	
T400(2)～T400(1)			%	19.0	31.1	33.9	14.9	32.6	－52.8	0.0	
T410(2)～T410(1)			%	12.7	30.1	52.7	47.9	57.9	－15.7	0.0	
T420(2)～T420(1)			%	4.3	7.7	27.0	65.5	67.1	－2.9	0.0	
合わせガラスの可視光線透過率				%	84.4	84.0	83.0	82.0	81.7	84.5	84.1
評価結果	耐光性試験	ΔTv	－	2.3	2.6	1.8	2.3	1.8	－1.3	－0.7	
		ΔYI	－	－1.9	－1.3	－0.3	0.6	0.8	13.4	10.9	
		ΔE	－	2.2	1.4	0.9	1.7	0.9	8.8	6.8	

[0098] 以上の実施例に示すように、第1の熱可塑性樹脂層に紫外線吸収剤を含有させ、かつ400nmにおける透過率を所定値以下とすることで、紫外線を長期間照射した後でも、可視光線透過率、黄色度、色差の変化が少なく、体積ホログラムを構成する光学機能層の光劣化を防止できた。

符号の説明

[0099] 10、30 合わせガラス用中間膜

11 第1の熱可塑性樹脂層

12 第2の熱可塑性樹脂層

14 基材

15 光学機能層

20、40 合わせガラス

21 第1のガラス板

22 第2のガラス板

請求の範囲

- [請求項1] 光学機能層と、前記光学機能層の一方の面側に設けられる第1の熱可塑性樹脂層とを備え、
- 前記光学機能層が光反応性モノマーの重合体、及びマトリックスポリマーを含み、
- 前記第1の熱可塑性樹脂層が紫外線吸収剤を含み、かつ波長400nmにおける透過率が20%以下である合わせガラス用中間膜。
- [請求項2] 前記第1の熱可塑性樹脂層の波長410nmにおける透過率が60%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の熱可塑性樹脂層の波長420nmにおける透過率が70%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] 前記紫外線吸収剤がベンゾトリアゾール化合物、インドール系化合物、及びポルフィリン化合物からなる群から選択される少なくとも1種である請求項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] 前記紫外線吸収剤が、ベンゾトリアゾール化合物と、インドール系化合物及びポルフィリン化合物からなる群から選択される少なくとも1種とを含む請求項4に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項6] 前記光学機能層の他方の面側に設けられる第2の熱可塑性樹脂層をさらに備える請求項1～5のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項7] 前記第2の熱可塑性樹脂層の波長400nmにおける透過率を $T_{400}(2)$ 、前記第1の熱可塑性樹脂層の波長400nmにおける透過率を $T_{400}(1)$ とした場合に、 $T_{400}(2) > T_{400}(1)$ の関係を満たす請求項6に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項8] 前記第2の熱可塑性樹脂層の波長410nmにおける透過率を $T_{410}(2)$ 、前記第1の熱可塑性樹脂層の波長410nmにおける透過率を $T_{410}(1)$ とした場合に、 $T_{410}(2) > T_{410}(1)$

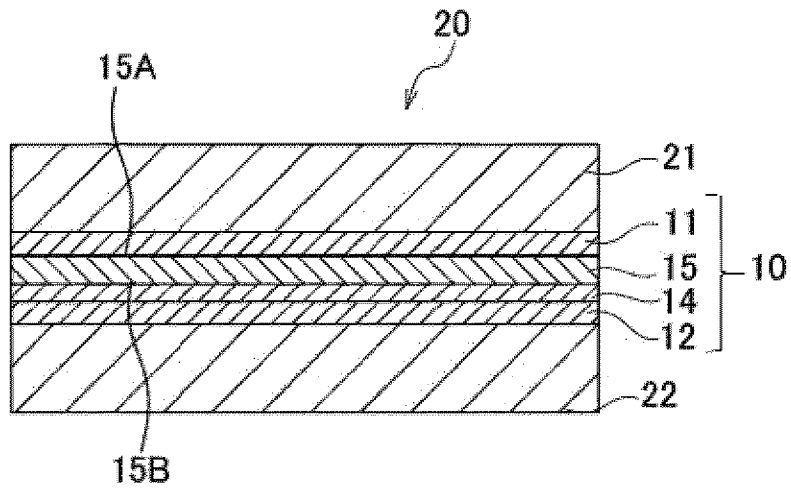
) の関係を満たす請求項 6 又は 7 に記載の合わせガラス用中間膜。

[請求項 9] 前記第 2 の熱可塑性樹脂層の波長 420 nm における透過率を $T_{420}(2)$ 、前記第 1 の熱可塑性樹脂層の波長 420 nm における透過率を $T_{420}(1)$ とした場合に、 $T_{420}(2) > T_{420}(1)$ の関係を満たす請求項 6～8 のいずれか 1 項に記載の合わせガラス用中間膜。

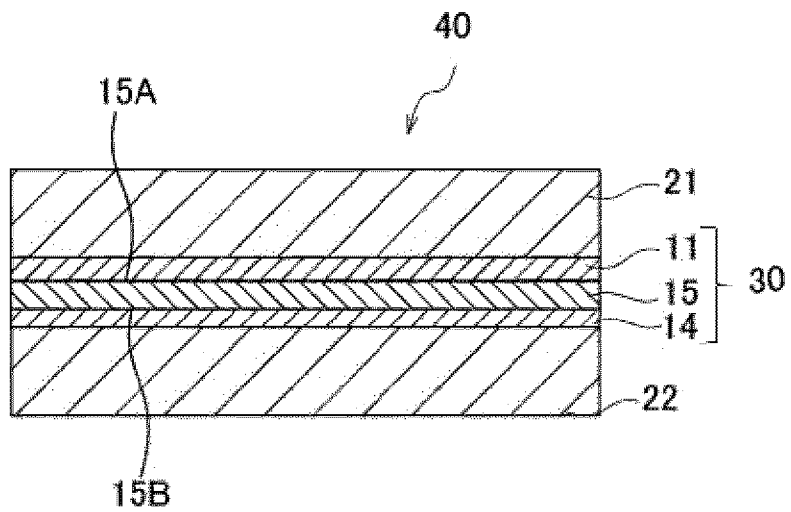
[請求項 10] 前記光学機能層が光重合開始剤を含有する請求項 1～9 のいずれか 1 項に記載の合わせガラス用中間膜。

[請求項 11] 請求項 1～10 のいずれか 1 項に記載の合わせガラス用中間膜と、
一対のガラス板を備え、前記一対のガラス板の間に合わせガラス用中間膜が配置される合わせガラス。

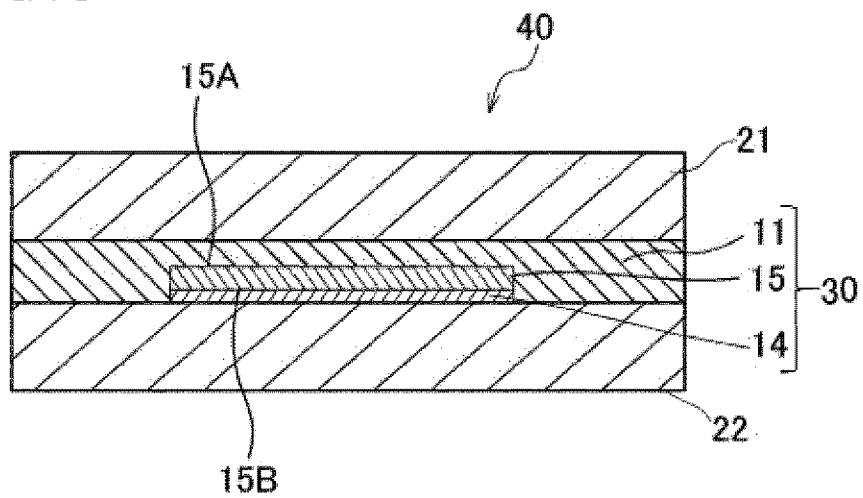
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/012500

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B32B 27/00(2006.01)i; B32B 27/18(2006.01)i; C03C 27/12(2006.01)i; G03H 1/02(2006.01)i; B32B 7/023(2019.01)i

FI: C03C27/12 K; B32B7/023; B32B27/00 Z; B32B27/18 A.; G03H1/02; C03C27/12 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)

B32B27/00; B32B27/18; C03C27/00-29/00; G03H1/00-1/34; B32B7/023; G02B5/18; G02B5/32

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	1971-2020
Registered utility model specifications of Japan	1996-2020
Published registered utility model applications of Japan	1994-2020

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	JP 4-275956 A (ASAHI GLASS CO., LTD.) 01.10.1992 (1992-10-01) paragraphs [0001]-[0005], [0010]-[0011], [0022]-[0024]	1-6, 10, 11 7-9
Y A	佐々木 裕, 体積ホログラムにおける収縮の影響, TREND: 東亜合成グループ研究年報, 2008, no. 11, pp. 9-13, toagousei.co.jp/develop/theses/backnumber.html#anchor5, page 9, left column, lines 24-27, page 9, left column, lines 24-27, non-official translation (SASAKI, Hiroshi, "Effect of contraction in the volume hologram", TREND: Annual research report on TOA synthesis group)	1-6, 10, 11 7-9



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

"I"

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

29 May 2020 (29.05.2020)

Date of mailing of the international search report

09 June 2020 (09.06.2020)

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/JP2020/012500

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	WO 2012/023616 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 23.02.2012 (2012-02-23) paragraphs [0001], [0005], [0007]-[0008], [0055], [0060], table 1, example 1	1-6, 10, 11 7-9
Y A	JP 7-114328 A (NISSAN MOTOR CO., LTD.) 02.05.1995 (1995-05-02) paragraph [0019], fig. 2	6, 10, 11 1-5, 7-9
Y A	JP 7-315893 A (DAINIPPON PRINTING CO., LTD.) 05.12.1995 (1995-12-05) paragraph [0031], fig. 2	6, 10, 11 1-5, 7-9
A	JP 7-257227 A (ASAHI GLASS CO., LTD.) 09.10.1995 (1995-10-09) entire text	1-11
A	WO 2011/132406 A1 (PANASONIC CORP.) 27.10.2011 (2011-10-27) entire text	1-11
A	JP 2018-189725 A (JSR CORPORATION) 29.11.2018 (2018-11-29) entire text	1-11

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2020/012500

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 4-275956 A	01 Oct. 1992	(Family: none)	
WO 2012/023616 A1	23 Feb. 2012	US 2013/0194659 A1 paragraphs [0001], [0006], [0076], [0081], table 1, example 1 EP 2607328 A1 CN 103097320 A	
JP 7-114328 A	02 May 1995	(Family: none)	
JP 7-315893 A	05 Dec. 1995	(Family: none)	
JP 7-257227 A	09 Oct. 1995	(Family: none)	
WO 2011/132406 A1	27 Oct. 2011	US 2012/0099170 A1 whole document CN 102472894 A	
JP 2018-189725 A	29 Nov. 2018	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） B32B 27/00(2006.01)i; B32B 27/18(2006.01)i; C03C 27/12(2006.01)i; G03H 1/02(2006.01)i; B32B 7/023(2019.01)i FI: C03C27/12 K; B32B7/023; B32B27/00 Z; B32B27/18 A; G03H1/02; C03C27/12 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）） B32B27/00; B32B27/18; C03C27/00-29/00; G03H1/00-1/34; B32B7/023; G02B5/18; G02B5/32 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 1971-2020年 日本国実用新案登録公報 1996-2020年 日本国登録実用新案公報 1994-2020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 A	JP 4-275956 A (旭硝子株式会社) 01.10.1992 (1992-10-01) 段落[0001]-[0005]、[0010]-[0011]、[0022]- [0024]	1-6, 10, 11 7-9
Y A	佐々木 裕, 体積ホログラムにおける収縮の影響, TREND: 東亜合成グループ 研究年報, 2008, 第11号, 第9-13頁, toagousei.co.jp/develop/theses/ backnumber.html#anchor5, 第9頁左欄第24-27行 第9頁左欄第24-27行	1-6, 10, 11 7-9
Y A	WO 2012/023616 A1 (積水化学工業株式会社) 23.02.2012 (2012-02-23) 段落[0001]、[0005]、[0007]-[0008]、[005 5]、[0060]、表1、および実施例1	1-6, 10, 11 7-9
☒ 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抵触するものではなく、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 29.05.2020		国際調査報告の発送日 09.06.2020
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		権限のある職員（特許庁審査官） 大塚 晴彦 4T 1784 電話番号 03-3581-1101 内線 3465

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	JP 7-114328 A (日産自動車株式会社) 02.05.1995 (1995 - 05 - 02)	6, 10, 11
A	段落 [0019]、および図2	1-5, 7-9
Y	JP 7-315893 A (大日本印刷株式会社) 05.12.1995 (1995 - 12 - 05)	6, 10, 11
A	段落 [0031]、および図2	1-5, 7-9
A	JP 7-257227 A (旭硝子株式会社) 09.10.1995 (1995 - 10 - 09)	1-11
	全文	
A	WO 2011/132406 A1 (パナソニック株式会社) 27.10.2011 (2011 - 10 - 27)	1-11
	全文	
A	JP 2018-189725 A (JSR株式会社) 29.11.2018 (2018 - 11 - 29)	1-11
	全文	

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2020/012500

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	4-275956	A	01.10.1992	(ファミリーなし)	
WO	2012/023616	A1	23.02.2012	US 2013/0194659 A1	
				paragraphs 0001, 0006, 0076, 0081, TABLE 1, Example 1	
				EP 2607328 A1	
				CN 103097320 A	
JP	7-114328	A	02.05.1995	(ファミリーなし)	
JP	7-315893	A	05.12.1995	(ファミリーなし)	
JP	7-257227	A	09.10.1995	(ファミリーなし)	
WO	2011/132406	A1	27.10.2011	US 2012/0099170 A1	
				whole document	
				CN 102472894 A	
JP	2018-189725	A	29.11.2018	(ファミリーなし)	