

(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)



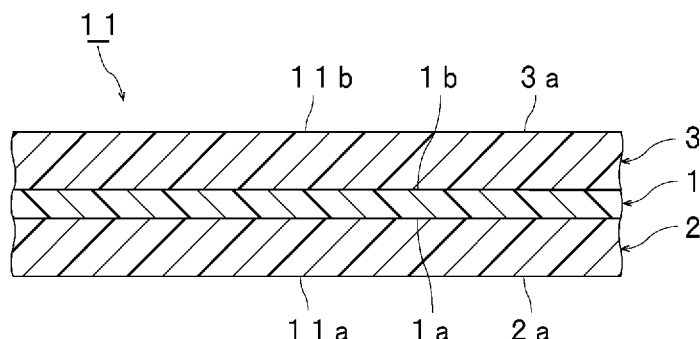
(10) 国際公開番号

WO 2018/181746 A1

- (51) 国際特許分類:
C03C 27/12 (2006.01) B32B 27/30 (2006.01)
B32B 7/02 (2006.01) C08J 5/18 (2006.01)
B32B 17/10 (2006.01) C08L 29/14 (2006.01)
B32B 27/22 (2006.01) C08L 33/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2018/013323
- (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 2017-072896 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: 大東 裕司 (OOHIGASHI, Yuji); 〒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F Nビル Osaka (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, 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,

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

(54) 発明の名称: 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス



(57) Abstract: Provided is an interlayer for laminated glass with which it is possible to increase the flexural stiffness of laminated glass at 23 ° C, and improve the sound insulation properties and piercing resistance of the laminated glass. This interlayer for laminated glass contains polyvinyl acetal resin and a plasticizer, and the gel fraction determined by formula (X) falls within the range of 10% to 80% by weight, inclusive, the glass transition temperature falls within the range of -30 ° C to 0 ° C, inclusive, and the maximum value for $\tan\delta$ in the temperature region of -30 ° C to 0 ° C is at least 0.1. Formula (X): gel fraction (% by weight) = $W2/W1 \times 100$ (in the formula, W1 is the weight of the interlayer before being immersed in tetrahydrofuran at 23 ° C, and W2 is the weight of the interlayer which has been immersed in tetrahydrofuran at 23°C and subsequently dried)

(57) 要約: 合わせガラスの23℃での曲げ剛性を高めることができ、かつ合わせガラスの遮音性及び耐貫通性を高めることができる合わせガラス用中間膜を提供する。本発明に係る合わせガラス用中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含み、下記式(X)により求められるゲル分率が10重量%以上80重量%以下であり、ガラス転移温度が-30℃以上0℃以下に存在し、-30℃以上0℃以下の温度領域における $\tan\delta$ の最大値が0.1以上である。ゲル分率(重量%) = $W2/W1 \times 100$ ・・・式(X) W1: 中間膜を23℃のテトラヒドロフランに浸漬する前の中間膜の重量 W2: 中間膜を23℃のテトラヒドロフランに浸漬し、乾燥した後の中間膜の重量

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

背景技術

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

[0003] 上記合わせガラス用中間膜の一例として、下記の特許文献1には、アセタール化度が60～85モル%のポリビニルアセタール樹脂100重量部と、アルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩の内の少なくとも一種の金属塩0.001～1.0重量部と、30重量部を超える可塑剤とを含む遮音層が開示されている。この遮音層は、単層で中間膜として用いられ得る。

[0004] さらに、下記の特許文献1には、上記遮音層と他の層とが積層された多層の中間膜も記載されている。遮音層に積層される他の層は、アセタール化度が60～85モル%のポリビニルアセタール樹脂100重量部と、アルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩の内の少なくとも一種の金属塩0.001～1.0重量部と、30重量部以下である可塑剤とを含む。

[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：特開2007-070200号公報

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、2に記載のような従来の中間膜を用いた合わせガラスでは、曲げ剛性が低いことがある。このため、例えば合わせガラスが窓ガラスとして、自動車のサイドドアに使用される場合には、合わせガラスを固定する枠がなく、合わせガラスの剛性が低いことに起因する撓みが原因で、窓ガラスの開閉に支障をきたすことがある。

[0008] また、近年、合わせガラスを軽量化するために、ガラス板の厚みを薄くすることが求められている。2つのガラス板の間に中間膜が挟み込まれた合わせガラスにおいて、ガラス板の厚みを薄くすると、曲げ剛性を十分に高く維持することが極めて困難であるという問題がある。

[0009] 例えば、ガラス板の厚みが薄くても、中間膜に起因して合わせガラスの曲げ剛性を高めることができれば、合わせガラスを軽量化することができる。合わせガラスが軽量であると、合わせガラスに用いる材料の量を少なくすることができ、環境負荷を低減することができる。さらに、軽量である合わせガラスを自動車に用いると、燃費を向上させることができ、結果として環境負荷を低減することができる。

[0010] また、中間膜を用いた合わせガラスでは、曲げ剛性が高いことに加えて、遮音性及び耐貫通性も高いことが望まれる。

[0011] 本発明の目的は、合わせガラスの23℃での曲げ剛性を高めることができ、かつ合わせガラスの遮音性及び耐貫通性を高めることができる合わせガラス用中間膜を提供することである。また、本発明は、上記合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスを提供することも目的とする。

課題を解決するための手段

[0012] 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可塑剤とを含み、下記式(X)により求められるゲル分率が10重量%以上80重量%以下

であり、ガラス転移温度が -30°C 以上 0°C 以下に存在し、 -30°C 以上 0°C 以下の温度領域における $\tan \delta$ の最大値が 0.1 以上である、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）が提供される。

[0013] ゲル分率（重量％）＝ $W2/W1 \times 100$ ・・・式（X）

W1：中間膜を 23°C のテトラヒドロフランに浸漬する前の中間膜の重量

W2：中間膜を 23°C のテトラヒドロフランに浸漬した後に取り出し、乾燥した後の中間膜の重量

[0014] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、 23°C のテトラヒドロフランに対する中間膜の不溶成分 100 重量％中、前記ポリビニルアセタール樹脂の含有量が 10 重量％以上である。

[0015] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂以外の第2の樹脂を含む。

[0016] 本発明に係る中間膜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第2の樹脂との合計 100 重量％中、前記ポリビニルアセタール樹脂の含有量が 25 重量％以上である。

[0017] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、中間膜は、前記第2の樹脂として、アクリル重合体を含む。

[0018] 本発明に係る中間膜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第2の樹脂との合計 100 重量％中、前記アクリル重合体の含有量が 75 重量％以下である。

[0019] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、中間膜に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂が、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。

[0020] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、厚みが 3 mm 以下である。

[0021] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、中間膜は、厚みが 1.6 mm 以下である第1のガラス板を用いて、前記第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられる。

[0022] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、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3.5 mm以下である。

[0023] 本発明の広い局面によれば、第1の合わせガラス部材と、第2の合わせガラス部材と、上述した合わせガラス用中間膜とを備え、前記第1の合わせガラス部材と前記第2の合わせガラス部材との間に、前記合わせガラス用中間膜が配置されている、合わせガラスが提供される。

[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1のガラス板の厚みが1.6 mm以下である。

[0025] 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3.5 mm以下である。

発明の効果

[0026] 本発明に係る合わせガラス用中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む。本発明に係る合わせガラス用中間膜では、式(X)により求められるゲル分率が10重量%以上80重量%以下であり、ガラス転移温度が -30°C 以上 0°C 以下に存在し、 -30°C 以上 0°C 以下の温度領域における $\tan \delta$ の最大値が0.1以上である。本発明に係る合わせガラス用中間膜では、上記の構成が備えられているので、本発明に係る合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスの 23°C での曲げ剛性を高めることができ、かつ合わせガラスの遮音性及び耐貫通性を高めることができる。

図面の簡単な説明

[0027] [図1]図1は、本発明の第1の実施形態に係る合わせガラス用中間膜を模式的に示す断面図である。

[図2]図2は、本発明の第2の実施形態に係る合わせガラス用中間膜を模式的

に示す断面図である。

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

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

[図5]図5は、曲げ剛性の測定方法を説明するための模式図である。

発明を実施するための形態

[0028] 以下、本発明を詳細に説明する。

[0029] (合わせガラス用中間膜)

本発明に係る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）は、1層の構造又は2層以上の構造を有する。本発明に係る中間膜は、1層の構造を有していてもよく、2層以上の構造を有していてもよい。本発明に係る中間膜は、2層の構造を有していてもよく、2層以上の構造を有していてもよく、3層の構造を有していてもよく、3層以上の構造を有していてもよい。本発明に係る中間膜は、第1の層を備える。本発明に係る中間膜は、第1の層のみを備える単層の中間膜であってもよく、第1の層と他の層とを備える多層の中間膜であってもよい。

[0030] 本発明に係る合わせガラス用中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と、可塑剤とを含む。

[0031] また、本発明に係る中間膜において、下記式（X）により求められるゲル分率が10重量%以上80重量%以下である。

[0032] ゲル分率（重量%）＝ $W2/W1 \times 100$ ・・・式（X）

W1：中間膜を23℃のテトラヒドロフランに浸漬する前の中間膜の重量

W2：中間膜を23℃のテトラヒドロフランに浸漬した後に取り出し、乾燥した後の中間膜の重量

[0033] さらに、本発明に係る中間膜では、ガラス転移温度が−30℃以上0℃以下に存在する。さらに、本発明に係る中間膜では、−30℃以上0℃以下の温度領域における $\tan \delta$ の最大値が0.1以上である。

- [0034] 本発明に係る中間膜では、上記の構成が備えられているので、本発明に係る中間膜を用いた合わせガラスの23℃での曲げ剛性を高めることができる。また、合わせガラスを得るために、中間膜は、第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されることが多い。第1のガラス板の厚みが薄くても、本発明に係る中間膜の使用により、合わせガラスの曲げ剛性を十分に高くすることができる。また、第1のガラス板と第2のガラス板との双方の厚みが薄くても、本発明に係る中間膜の使用により、合わせガラスの曲げ剛性を十分に高くすることができる。なお、第1のガラス板と第2のガラス板との双方の厚みが厚いと、合わせガラスの曲げ剛性はより一層高くなる。
- [0035] さらに、本発明に係る中間膜では、上記の構成が備えられているので、中間膜を用いた合わせガラスの遮音性を高めることができる。
- [0036] さらに、本発明に係る中間膜では、上記の構成が備えられているので、中間膜を用いた合わせガラスの耐貫通性を高めることができる。合わせガラスが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なる。
- [0037] 耐貫通性を高める観点から、上記ゲル分率は、10重量%以上80重量%以下である。上記ゲル分率が10重量%以上である場合に、耐貫通性の向上効果が高くなる。上記ゲル分率が80重量%以下であることで、耐貫通性がかなり高くなる。耐貫通性をより一層高める観点からは、上記ゲル分率は、好ましくは30重量%以上、好ましくは50重量%以下である。
- [0038] 上記ゲル分率を上記の範囲内とする方法としては、中間膜作製時に架橋剤を添加する方法、樹脂成分として架橋性基を有する分子を用いる方法、及び中間膜作製時に有機溶媒への溶解性が低い成分添加する方法等が挙げられる。
- [0039] 遮音性を高める観点から、上記中間膜では、ガラス転移温度が−30℃以上0℃以下に存在する。遮音性をより一層高める観点からは、上記中間膜では、ガラス転移温度が−25℃以上0℃以下に存在することが好ましく、−20℃以上0℃以下に存在することがより好ましい。ガラス転移温度が上記下限以上及び上記上限以下であると、時間温度換算則よりコインシデンス周

波数に対応する温度とすることができ、遮音性を効果的に改善することができる。また、早い速度に対応可能になるため、高速の衝撃のエネルギー吸収性が高くなり、耐貫通性が効果的に向上する。

[0040] 上記ガラス転移温度を測定する方法として、上記中間膜を、室温 23 ± 2 °C、湿度 $25 \pm 5\%$ の環境下に 12 時間保管した直後に、Metravib 社製の粘弾性測定装置「DMA+1000」を用いて、粘弾性を測定する方法が挙げられる。中間膜を長さ 50 mm、幅 20 mm で切り出し、せん断モードで $2^\circ\text{C}/\text{分}$ の昇温速度で -50°C から 100°C まで温度を上昇させる条件、及び周波数 1 Hz、歪 0.05% の条件で、ガラス転移温度を測定することが好ましい。

[0041] 遮音性を高める観点から、上記中間膜の -30°C 以上 0°C 以下の温度領域における $\tan \delta$ の最大値は 0.1 以上である。上記中間膜の -30°C 以上 0°C 以下の温度領域における $\tan \delta$ の最大値は好ましくは 0.11 以上、好ましくは 1 以下、より好ましくは 0.8 以下、更に好ましくは 0.6 以下である。 $\tan \delta$ の最大値が上記下限以上であると、エネルギー損失が多くなるため、遮音性、耐貫通性、及び曲げ合わせ性が効果的に高くなる。 $\tan \delta$ の最大値が上記上限以下であると、せん断貯蔵弾性率が適度に高くなり、曲げ剛性及び耐貫通性が効果的に高くなる。

[0042] なお、湾曲した合わせガラスを得ることなどを目的として、中間膜は、曲げガラスに適用されることがある。上記曲げ合わせ性とは、曲げガラスに合わせる時の合わせやすさを意味する。

[0043] -30°C 以上 0°C 以下の温度領域のうちの 10% 以上の温度領域で、 $\tan \delta$ が 0.1 以上であることが好ましい。この場合には、広い温度範囲に渡り遮音性が効果的に高くなる。遮音性が効果的に高くなる。

[0044] 曲げ剛性及び耐貫通性をより一層高める観点からは、上記中間膜は、相分離構造を有することが好ましい。これらの効果が奏される 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。

[0045] 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第2の樹脂とが異なる相に含まれることが好ましい。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、かつ上記第2の樹脂が島部である時に耐貫通性が良くなる。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第2の樹脂とが共連続構造を形成していてもよい。共連続構造の場合、上記ポリビニルアセタール樹脂が連なっている（連続した構造を有している）時に耐貫通性が良くなる。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第2の樹脂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第2の樹脂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。

[0046] 上記海島構造において、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。

[0047] 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。

[0048] 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。

[0049] 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1.6 mm以下、より好ましくは1.3 mm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1.6 mm以下、より好ましくは1.3 mm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1.6 mm以下、より好ましくは1.3 mm以下である。

[0050] 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を十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3.5 mm以下、より好ましくは3 mm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を十分に高くすることができるので、上記中間膜は、厚みが1.6 mm以下（好ましくは1.3 mm以下）である第1のガラス板を用いて、該第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために好適に用いられる。上記中間膜は、厚みが1.6 mm以下（好ましくは1.3 mm以下）である第1のガラス板と厚みが1.6 mm以下（好ましくは1.3 mm以下）である第2のガラス板とを用いて、上記第1のガラス板と上記第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るためにより好適に用いられる。この場合にも、中間膜に起因して曲げ剛性を十分に高くすることができる。

[0051] 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。

[0052] 図1は、本発明の第1の実施形態に係る合わせガラス用中間膜を模式的に示す断面図である。

[0053] 図 1 に示す中間膜 11 は、2 層以上の構造を有する多層の中間膜である。中間膜 11 は、合わせガラスを得るために用いられる。中間膜 11 は、合わせガラス用中間膜である。中間膜 11 は、第 1 の層 1 と、第 2 の層 2 と、第 3 の層 3 とを備える。第 1 の層 1 の第 1 の表面 1 a に、第 2 の層 2 が配置されており、積層されている。第 1 の層 1 の第 1 の表面 1 a とは反対の第 2 の表面 1 b に、第 3 の層 3 が配置されており、積層されている。第 1 の層 1 は中間層である。第 2 の層 2 及び第 3 の層 3 はそれぞれ、保護層であり、本実施形態では表面層である。第 1 の層 1 は、第 2 の層 2 と第 3 の層 3 との間に配置されており、挟み込まれている。従って、中間膜 11 は、第 2 の層 2 と第 1 の層 1 と第 3 の層 3 とがこの順で積層された多層構造（第 2 の層 2 / 第 1 の層 1 / 第 3 の層 3）を有する。

[0054] 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。

[0055] 図 2 は、本発明の第 2 の実施形態に係る合わせガラス用中間膜を模式的に示す断面図である。

[0056] 図 2 に示す中間膜 11 A は、1 層の構造を有する単層の中間膜である。中間膜 11 A は、第 1 の層である。中間膜 11 A は、合わせガラスを得るために用いられる。中間膜 11 A は、合わせガラス用中間膜である。

[0057] 以下、本発明に係る中間膜を構成する上記第 1 の層、上記第 2 の層及び上記第 3 の層の詳細、並びに上記第 1 の層、上記第 2 の層及び上記第 3 の層に含まれる各成分の詳細を説明する。

[0058] （樹脂）

中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂を含む。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。

[0059] 遮音性をより一層高める観点からは、23℃のテトラヒドロフランに対する中間膜の不溶成分100重量%中、上記ポリビニルアセタール樹脂の含有量は好ましくは10重量%以上である。

[0060] 23℃のテトラヒドロフランに対する中間膜の不溶成分とは、中間膜を23℃のテトラヒドロフランに浸漬した後に取り出し、乾燥した後の中間膜である。

[0061] 上記ポリビニルアセタール樹脂と上記第2の樹脂との合計100重量%中、上記ポリビニルアセタール樹脂の含有量は、好ましくは20重量%以上、より好ましくは25重量%以上、更に好ましくは30重量%以上、特に好ましくは35重量%以上、好ましくは100重量%以下である。上記ポリビニルアセタール樹脂の含有量が上記下限以上であると、曲げ剛性が効果的に高くなる。上記ポリビニルアセタール樹脂と上記第2の樹脂との合計100重量%中、上記ポリビニルアセタール樹脂の含有量は、100重量%未満であってもよく、90重量%以下であってもよく、80重量%以下であってもよく、75重量%以下であってもよく、70重量%以下であってもよく、65重量%以下であってもよい。上記ポリビニルアセタール樹脂の含有量が上記上限以下であると、遮音性が効果的に高くなる。

[0062] 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、ポリビニルアセトアセタール樹脂が好ましい。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。

[0063] 曲げ剛性及び遮音性を効果的に高くする観点からは、中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂以外の第2の樹脂を含むことが好ましい。曲げ剛性及び遮

音性を効果的に高くする観点からは、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以外の第2の樹脂を含むことが好ましい。上記第2の樹脂としては、熱硬化性樹脂及び熱可塑性樹脂が挙げられる。上記中間膜は、上記第2の樹脂として、熱可塑性樹脂（ポリビニルアセタール樹脂以外の第2の熱可塑性樹脂）を含むことが好ましい。ポリビニルアセタール樹脂以外の熱可塑性樹脂を、ポリビニルアセタール樹脂と区別して、第2の熱可塑性樹脂と呼ぶことがある。上記第2の樹脂は、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。

[0064] 曲げ剛性及び遮音性を効果的に高める観点からは、中間膜は、上記第2の樹脂として、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。

[0065] 上記アクリル重合体は、（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。上記アクリル重合体は、ポリ（メタ）アクリル酸エステルであることが好ましい。

[0066] 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、損失正接の極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、中間膜の生産性と中間膜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。

[0067] 上記ポリビニルアセタール樹脂と上記第2の樹脂との合計100重量%中、ポリビニルアセタール樹脂以外の第2の樹脂の含有量は好ましくは20重量%以上、より好ましくは25重量%以上、更に好ましくは30重量%以上、特に好ましくは35重量%以上、好ましくは100重量%以下である。上記第2の樹脂の含有量が上記下限以上であると、遮音性が効果的に高くなる。上記ポリビニルアセタール樹脂と上記第2の樹脂との合計100重量%中、上記第2の樹脂の含有量は、100重量%未満であってもよく、好ましくは90重量%以下、より好ましくは80重量%以下、更に好ましくは75重量%以下、特に好ましくは70重量%以下、最も好ましくは65重量%以下である。上記第2の樹脂の含有量が上記上限以下であると、曲げ剛性が効果的に高くなる。

[0068] 上記ポリビニルアセタール樹脂と上記第2の樹脂との合計100重量%中、アクリル重合体の含有量は好ましくは20重量%以上、より好ましくは25重量%以上、更に好ましくは30重量%以上、特に好ましくは35重量%以上、好ましくは100重量%以下である。上記アクリル重合体の含有量が上記下限以上であると、遮音性が効果的に高くなる。上記ポリビニルアセタ

ール樹脂と上記第2の樹脂との合計100重量%中、上記アクリル重合体の含有量は、100重量%未満であってもよく、好ましくは90重量%以下、より好ましくは80重量%以下、更に好ましくは75重量%以下、特に好ましくは70重量%以下、最も好ましくは65重量%以下である。上記アクリル重合体の含有量が上記上限以下であると、曲げ剛性が効果的に高くなる。

[0069] 上記第2の樹脂が架橋構造を有するか、又は、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記第2の樹脂とが架橋していることが好ましい。上記中間膜は、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記第2の樹脂とを、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記第2の樹脂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中間膜を作製することができる。

[0070] 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、中間膜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。

[0071] 上記第1の層（単層の中間膜を含む）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の層のみの単層の中間膜である場合に、中間膜は、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。

[0072] 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。

[0073] 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。

[0074] 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、中間膜の成形が容易になる。

[0075] 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。

[0076] 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。

[0077] 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。

[0078] 上記ポリビニルアセタール樹脂(1)を単層の中間膜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、中間膜の接着力がより一層高くなる。また、上記水酸基の含有率が上記上限以下であると、中間膜の柔軟性が高くなり、中間膜の取扱いが容易になる。

[0079] 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）を多層の中間膜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、中間膜の機械強度がより一層高くなる。特に、上記ポリビニルアセタール樹脂（1）の水酸基の含有率が 20 モル%以上であると反応効率が高く生産性に優れ、また 28 モル%以下であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。また、上記水酸基の含有率が上記上限以下であると、中間膜の柔軟性が高くなり、中間膜の取扱いが容易になる。特に、上記ポリビニルアセタール樹脂（1）の水酸基の含有率が 28 モル%以下である中間膜を用いた合わせガラスは曲げ剛性が低くなる傾向にあるが、本発明の構成によって、曲げ剛性を顕著に改善できる。

[0080] 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、中間膜の接着力がより一層高くなる。また、上記水酸基の含有率が上記上限以下であると、中間膜の柔軟性が高くなり、中間膜の取扱いが容易になる。

[0081] 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。

[0082] 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。

[0083] 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、中間膜及び合わせガラスの耐湿性が高くなる。特に、上記ポリビニルアセタール樹脂（１）のアセチル化度が０．１モル％以上、２５モル％以下であると、耐貫通性により一層優れる。

[0084] 上記ポリビニルアセタール樹脂（２）及び上記ポリビニルアセタール樹脂（３）の各アセチル化度は、好ましくは０．０１モル％以上、より好ましくは０．５モル％以上、好ましくは１０モル％以下、より好ましくは２モル％以下である。上記アセチル化度が上記下限以上であると、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤との相溶性が高くなる。上記アセチル化度が上記上限以下であると、中間膜及び合わせガラスの耐湿性が高くなる。

[0085] 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。

[0086] 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。

[0087] 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。

[0088] 上記アセタール化度は、以下のようにして求める。まず、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。

[0089] なお、上記水酸基の含有率（水酸基量）、アセタール化度（ブチラール化度）及びアセチル化度は、ＪＩＳ Ｋ ６ ７ ２ ８「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により測定された結果から算出することが好ましい。但し、ＡＳＴＭ Ｄ １ ３ ９ ６－９ ２による測定を用いてもよい。ポリビニルアセタール樹脂がポリビニルブチラール樹脂である場合は、上記水酸基の含有率（水酸基量）、上記アセタール化度（ブチラール化度）及び上記アセチル化度は、ＪＩＳ Ｋ ６ ７ ２ ８「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。

[0090] （可塑剤）

上記中間膜は、可塑剤を含む。上記第１の層（単層の中間膜を含む）は、可塑剤（以下、可塑剤（１）と記載することがある）を含むことが好ましい。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。

[0091] 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。

[0092] 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。

[0093] 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。

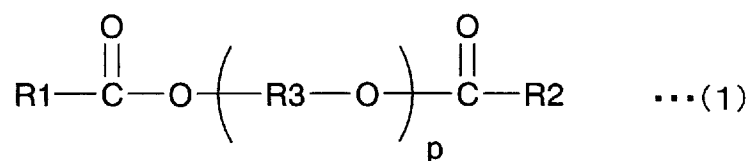
[0094] 上記有機エステル可塑剤としては、トリエチレングリコールジ－２－エチルプロパノエート、トリエチレングリコールジ－２－エチルブチレート、トリエチレングリコールジ－２－エチルヘキサノエート、トリエチレングリコールジカプリレート、トリエチレングリコールジ－*n*－オクタノエート、トリエチレングリコールジ－*n*－ヘプタノエート、テトラエチレングリコールジ－*n*－ヘプタノエート、ジブチルセバケート、ジオクチルアゼレート、ジブチルカルビトールアジペート、エチレングリコールジ－２－エチルブチレート、１，３－プロピレングリコールジ－２－エチルブチレート、１，４－

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、アジピン酸ヘブ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、アジピン酸ヘブチルノニル、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。

[0095] 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。

[0096] 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。

[0097] [化1]



[0098] 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。

[0099] 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。

[0100] 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、中間膜の柔軟性が高くなり、中間膜の取扱いが容易になる。上記含有量(2)及び上記含有量(3)が上記上限以下であると、曲げ剛性がより一層高くなる。

[0101] 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、特に好ましくは60重量部未満、最も好ましくは50重量部未満である。上記含有量(1)が上記下限以上であると、中間膜の柔軟性が高くなり、中間膜の取扱いが容易になる。また、上記含有量(1)が上記下限以上であると、合わせガラスの耐貫通性がより一層高くなる。上記含有量(1)が上記上限以下及び上記上限未満であると、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。

[0102] 上記中間膜が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重量部以上である中間膜を用いた合わせガラスは曲げ剛性が低くなる傾向にあるが、本発明の構成により、曲げ剛性を顕著に改善できる。

[0103] 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。

[0104] (遮熱性物質)

上記中間膜は、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。上記遮熱性化合物は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用さ

れてもよい。

[0105] 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。

[0106] 成分X：

上記中間膜は、フタロシアニン化合物、ナフタロシアニン化合物及びアントラシアニン化合物の内の少なくとも1種の成分Xを含むことが好ましい。上記第1の層は、上記成分Xを含むことが好ましい。上記第2の層は、上記成分Xを含むことが好ましい。上記第3の層は、上記成分Xを含むことが好ましい。上記成分Xは遮熱性物質である。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。

[0107] 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。

[0108] 中間膜及び合わせガラスの遮熱性をより一層高くする観点からは、上記成分Xは、フタロシアニン、フタロシアニンの誘導体、ナフタロシアニン及びナフタロシアニンの誘導体からなる群から選択される少なくとも1種であることが好ましく、フタロシアニン及びフタロシアニンの誘導体の内の少なくとも1種であることがより好ましい。

[0109] 遮熱性を効果的に高め、かつ長期間にわたり可視光線透過率をより一層高いレベルで維持する観点からは、上記成分Xは、バナジウム原子又は銅原子を含有することが好ましい。上記成分Xは、バナジウム原子を含有することが好ましく、銅原子を含有することも好ましい。上記成分Xは、バナジウム原子又は銅原子を含有するフタロシアニン及びバナジウム原子又は銅原子を含有するフタロシアニンの誘導体の内の少なくとも1種であることがより好ましい。中間膜及び合わせガラスの遮熱性を更に一層高くする観点からは、上記成分Xは、バナジウム原子に酸素原子が結合した構造単位を有すること

が好ましい。

[0110] 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、遮熱性が十分に高くなり、かつ可視光線透過率が十分に高くなる。例えば、可視光線透過率を70%以上にすることが可能である。

[0111] 遮熱粒子：

上記中間膜は、遮熱粒子を含むことが好ましい。上記第1の層（単層の中間膜を含む）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。

[0112] 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。

[0113] 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。

[0114] 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（LaB₆）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。

[0115] 中間膜及び合わせガラスの遮熱性をより一層高くする観点からは、酸化タングステン粒子は、金属ドープ酸化タングステン粒子であることが好ましい。上記「酸化タングステン粒子」には、金属ドープ酸化タングステン粒子が含まれる。上記金属ドープ酸化タングステン粒子としては、具体的には、ナトリウムドープ酸化タングステン粒子、セシウムドープ酸化タングステン粒子、タリウムドープ酸化タングステン粒子及びルビジウムドープ酸化タングステン粒子等が挙げられる。

[0116] 中間膜及び合わせガラスの遮熱性をより一層高くする観点からは、セシウムドープ酸化タングステン粒子が特に好ましい。中間膜及び合わせガラスの遮熱性を更に一層高くする観点からは、該セシウムドープ酸化タングステン粒子は、式： $\text{Cs}_{0.33}\text{WO}_3$ 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。

[0117] 上記遮熱粒子の平均粒子径は好ましくは0.01 μm 以上、より好ましくは0.02 μm 以上、好ましくは0.1 μm 以下、より好ましくは0.05 μm 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。

[0118] 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。

[0119] 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、遮熱性が十分に高くなり、かつ可視光線透過率が十分に高くなる。

[0120] （金属塩）

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

[0121] 上記金属塩Mは、Li、Na、K、Rb、Cs、Mg、Ca、Sr及びBaからなる群から選択された少なくとも1種の金属を含むことが好ましい。中間膜中に含まれている金属塩は、K及びMgの内の少なくとも1種の金属を含むことが好ましい。

[0122] 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。

[0123] 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。

[0124] 上記金属塩Mを含む層（第1の層、第2の層又は第3の層）におけるMg及びKの含有量の合計は、好ましくは5ppm以上、より好ましくは10ppm以上、更に好ましくは20ppm以上、好ましくは300ppm以下、より好ましくは250ppm以下、更に好ましくは200ppm以下である。Mg及びKの含有量の合計が上記下限以上及び上記上限以下であると、中間膜と合わせガラス部材との接着性又は中間膜における各層間の接着性をより一層良好に制御できる。

[0125] （紫外線遮蔽剤）

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

[0126] 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。

[0127] 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。

[0128] 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。

[0129] 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。

[0130] 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ン化合物等が挙げられる。

[0131] 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「Tinuvin P」)、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-tert-ブチルフェニル)ベンゾトリアゾール(BASF社製「Tinuvin 320」)、2-(2'-ヒドロキシ-3'-tert-ブチル-5-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール(BASF社製「Tinuvin 326」)、及び2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-アミルフェニル)ベンゾトリアゾール(BASF社製「Tinuvin 328」)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。

[0132] 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「Chimassorb 81」）等が挙げられる。

[0133] 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「LAF70」及び2-（4，6-ジフェニル-1，3，5-トリアジン-2-イル）-5-〔（ヘキシル）オキシ〕-フェノール（BASF社製「Tinuvin 1577FF」）等が挙げられる。

[0134] 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。

[0135] 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。

[0136] 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-tert-ブチルフェニル）シュウ酸ジアミド、N-（2-エチルフェニル）-N'-（2-エトキシフェニル）シュウ酸ジアミド、2-エチル-2'-エトキシオキシアニリド（クラリアント社製「Sanduvor VSU」）などの窒素原子上に置換されたアリール基などを有するシュウ酸ジアミド類が挙げられる。

[0137] 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「Tinuvin 120」）等が挙げられる。

[0138] 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、中間膜及び合わせガラスの期間経過後の可視光線透過率の低下を顕著に抑制できる。

[0139] （酸化防止剤）

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

[0140] 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。

[0141] 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。

[0142] 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-tert-ブチルフェノール)、4, 4'-ブチリデンビス-(3-メチル-6-tert-ブチルフェノール)、1, 1, 3-トリス-(2-メチル-ヒドロキシ-5-tert-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-tert-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-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン、ビス(3, 3'-tert-ブチルフェノール)ブチリックアシッドグリコールエステル及びビス(3-tert-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。

[0143] 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-tert-ブチルフェニル)ホスファイト、ビス(2, 4-ジ-tert-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-tert-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。

[0144] 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。

[0145] 中間膜及び合わせガラスの高い可視光線透過率を長期間に渡り維持するために、上記中間膜100重量%中又は酸化防止剤を含む層(第1の層、第2の層又は第3の層)100重量%中、上記酸化防止剤の含有量は0.1重量

%以上であることが好ましい。また、酸化防止剤の添加効果が飽和するので、上記中間膜 100 重量%中又は上記酸化防止剤を含む層 100 重量%中、上記酸化防止剤の含有量は 2 重量%以下であることが好ましい。

[0146] (他の成分)

上記中間膜、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。

[0147] セン断貯蔵弾性率を好適な範囲に制御するために、中間膜、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。

[0148] 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。

[0149] (合わせガラス用中間膜の他の詳細)

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

[0150] 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 0.035

T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。

[0151] 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。

[0152] 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。

[0153] 上記中間膜は、厚みが均一な中間膜であってもよく、厚みが増え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。

[0154] 本発明に係る中間膜の製造方法は特に限定されない。本発明に係る中間膜の製造方法としては、単層の中間膜の場合に、樹脂組成物を押出機を用いて押出する方法が挙げられる。本発明に係る中間膜の製造方法としては、多層の中間膜の場合に、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。

[0155] 中間膜の製造効率が優れることから、上記第2の層と上記第3の層とに、同一のポリビニルアセタール樹脂が含まれていることが好ましい。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。

[0156] 上記中間膜は、両側の表面の内の少なくとも一方の表面に凹凸形状を有することが好ましい。上記中間膜は、両側の表面に凹凸形状を有することがより好ましい。上記の凹凸形状を形成する方法としては特に限定されず、例えば、リップエンボス法、エンボスロール法、カレンダーロール法、及び異形押出法等が挙げられる。定量的に一定の凹凸模様である多数の凹凸形状のエンボスを形成することができることから、エンボスロール法が好ましい。

[0157] (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。

[0158] 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。

[0159] 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。

[0160] 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。

[0161] 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。

[0162] 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。

[0163] このように、本発明に係る合わせガラスは、第1の合わせガラス部材と、第2の合わせガラス部材と、中間膜とを備えており、該中間膜が、本発明に係る合わせガラス用中間膜である。本発明に係る合わせガラスでは、上記第1の合わせガラス部材と上記第2の合わせガラス部材との間に、上記中間膜が配置されている。

[0164] 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。

[0165] 上記合わせガラス部材としては、ガラス板及びPET（ポリエチレンテレフタレート）フィルム等が挙げられる。合わせガラスには、2枚のガラス板の間に中間膜が挟み込まれている合わせガラスだけでなく、ガラス板とPETフィルム等との間に中間膜が挟み込まれている合わせガラスも含まれる。上記合わせガラスは、ガラス板を備えた積層体であり、少なくとも1枚のガラス板が用いられていることが好ましい。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。

[0166] 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。

[0167] 上記合わせガラス部材の厚みは、好ましくは1 mm以上、好ましくは5 mm以下、より好ましくは3 mm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0.5 mm以上、より好ましくは0.7 mm以上、好ましくは5 mm以下、より好ましくは3 mm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0.03 mm以上、好ましくは0.5 mm以下である。

[0168] 本発明に係る中間膜の使用により、合わせガラスの厚みが薄くても、合わせガラスの曲げ剛性を高く維持することができる。上記ガラス板の厚みは、好ましくは2 mm以下、より好ましくは1.8 mm以下、より一層好ましくは1.6 mm以下、より一層好ましくは1.5 mm以下、更に好ましくは1.4 mm以下、更に好ましくは1.3 mm以下、更に一層好ましくは1.0 mm以下、特に好ましくは0.7 mm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3.5 mm以下、より好ましくは3.2 mm以下、更に好ましくは3 mm以下、特に好ましくは2.8 mm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。

[0169] 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、中間膜を挟んで、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中間膜との間に残留する空気を脱気する。その後、約70～110℃で予備接着して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。

[0170] 上記中間膜及び上記合わせガラスは、自動車、鉄道車両、航空機、船舶及び建築物等に使用できる。上記中間膜及び上記合わせガラスは、これらの用途以外にも使用できる。上記中間膜及び上記合わせガラスは、車両用又は建築用の中間膜及び合わせガラスであることが好ましく、車両用の中間膜及び合わせガラスであることがより好ましい。上記中間膜及び上記合わせガラスは、自動車のフロントガラス、サイドガラス、リアガラス又はルーフガラス等に使用できる。上記中間膜及び上記合わせガラスは、自動車に好適に用いられる。上記中間膜は、自動車の合わせガラスを得るために用いられる。

[0171] 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。

[0172] 以下の材料を用意した。

[0173] (ポリビニルアセタール樹脂)

下記の表1～5に示すポリビニルアセタール樹脂を適宜用いた。

[0174] ポリビニルアセタール樹脂に関しては、アセタール化度（ブチラール化度）、アセチル化度及び水酸基の含有率はJIS K6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により測定した。なお、ASTM D1396-92により測定した場合も、JIS K6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法と同様の数値を示した。また、アセタールの種類がアセトアセタール又はベンジル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、算出した。

[0175] (第2の樹脂)

下記の表1～5に示すアクリル重合体を適宜用いた。

[0176] 下記の表 1 ～ 5 に示すアクリル重合体は、以下の化合物を下記の表 1 ～ 5 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。

[0177] アクリル酸エチル

アクリル酸ブチル

アクリル酸 2-ヒドロキシエチル

アクリル酸ベンジル

アクリル酸シクロヘキシル

トリプロピレングリコールジアクリレート (架橋剤)

ペンタエリスリトールアクリレート (架橋剤)

トリメチロールプロパントリメタクリレート (架橋剤)

[0178] ポリエチレン (日本ユニカー社製「NUC-0965」)

[0179] (架橋剤)

IPDI (イソホロンジイソシアネート)

コロネート L (東ソー社製)

[0180] (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)

トリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート (3GH)

[0181] (紫外線遮蔽剤)

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

[0182] (酸化防止剤)

BHT (2, 6-ジ-t-ブチル-p-クレゾール)

[0183] (光重合開始剤)

1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン (a)

ベンゾインイソプロピルエーテル (b)

[0184] (重合禁止剤)

ヒドロキノン (c)

ヒドロキノンモノメチルエーテル（d）

[0185] （実施例1）

中間膜（第1の層）を形成するための組成物の作製：

下記の表1に示す種類のポリビニルアセタール樹脂100重量部と、下記の表1に示す種類のアクリル重合体100重量部と、可塑剤（3GO）5重量部と、紫外線遮蔽剤（Tinuvin326）0.2重量部と、酸化防止剤（BHT）0.2重量部とを混合し、中間膜を形成するための組成物を得た。

[0186] 中間膜の作製：

中間膜を形成するための組成物を、押出機を用いて押出しすることにより、下記の表1に示す厚みの中間膜を作製した。

[0187] 合わせガラスの作製（曲げ剛性測定用）：

得られた中間膜を縦20cm×横2.5cmの大きさに切断した。第1の合わせガラス部材及び第2の合わせガラス部材として、下記の表1に示す厚みの2つのガラス板（クリアフロートガラス、縦20cm×横2.5cm）を用意した。この2つのガラス板の間に、得られた中間膜を挟み込み、積層体を得た。得られた積層体をゴムバック内に入れ、2660Pa（20torr）の真空度で20分間脱気した。その後、脱気したままで積層体をオートクレーブ中で更に90℃で30分間保持しつつ、真空プレスした。このようにして予備圧着された積層体を、オートクレーブ中で135℃、圧力1.2MPa（12kg/cm²）の条件で20分間圧着を行い、合わせガラスを得た。

[0188] 合わせガラスの作製（遮音性測定用）：

得られた中間膜を縦30cm×横2.5cmの大きさに切断した。第1の合わせガラス部材及び第2の合わせガラス部材として、下記の表1に示す厚みの2つのガラス板（クリアフロートガラス、縦30cm×横2.5cm）を用意した。2つのガラス板の間に、中間膜を挟み込み、積層体を得た。この積層体をゴムバック内に入れ、2.6kPaの真空度で20分間脱気した。

後、脱気したままオープン内に移し、更に90℃で30分間保持して真空プレスし、積層体を予備圧着した。オートクレーブ中で135℃及び圧力1.2 MPaの条件で、予備圧着された積層体を20分間圧着し、合わせガラスを得た。

[0189] 合わせガラスの作製（耐貫通性試験用）：

得られた中間膜を縦15cm×横15cmの大きさに切断した。第1の合わせガラス部材及び第2の合わせガラス部材として、下記の表1に示す厚みの2つのガラス板（クリアフロートガラス、縦15cm×横15cm）を用意した。2枚のガラス板の間に、中間膜を挟み込み、積層体を得た。この積層体をゴムバック内に入れ、2.6 kPaの真空度で20分間脱気した後、脱気したままオープン内に移し、更に90℃で30分間保持して真空プレスし、積層体を予備圧着した。オートクレーブ中で135℃及び圧力1.2 MPaの条件で、予備圧着された積層体を20分間圧着し、合わせガラスを得た。

[0190] （実施例2～12及び比較例1～10，13）

中間膜を形成するための組成物の組成を下記の表1～5に示すように設定したこと、並びに中間膜、第1の合わせガラス部材及び第2の合わせガラス部材の厚みを下記の表1～5に示すように設定したこと以外は実施例1と同様にして、中間膜及び合わせガラスを得た。また、実施例2～12及び比較例1～10，13では、実施例1と同じ種類の紫外線遮蔽剤及び酸化防止剤を、実施例1と同様の配合量（ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して0.2重量部）で配合した。

[0191] （比較例11）

中間膜（第1の層）を形成するための組成物の作製：

下記の表5に示す種類のポリビニルアセタール樹脂100重量部と、下記の表5に示す種類のアクリル重合体5重量部と、可塑剤（3GH）5重量部と、下記の表5に示す種類の光重合開始剤0.5重量部と、下記の表5に示す種類の重合禁止剤0.1重量部とを混合し、中間膜を形成するための組成

物を得た。なお、比較例 1 1 及び後述する比較例 1 2 では、紫外線吸収剤及び酸化防止剤を用いなかった。

[0192] 光硬化前の中間膜の作製：

中間膜を形成するための組成物を、押出機を用いて押出しすることにより、下記の表 5 に示す厚みの光硬化前の中間膜を作製した。

[0193] 合わせガラスの作製（曲げ剛性測定用）：

実施例 1 と同様に光硬化前の合わせガラスを得た。その後、この合わせガラスに超高圧水銀ランプを用いて $1700\text{ mJ}/\text{cm}^3$ （ORC UV-302 A で測定、波長域 $320\sim390\text{ nm}$ 、ピーク 350 nm ）の紫外線を照射し、中間膜を架橋硬化させ、光硬化後の中間膜（1）及び合わせガラスを得た。

[0194] 合わせガラスの作製（遮音性測定用）：

実施例 1 と同様に光硬化前の合わせガラスを得た。その後、この合わせガラスに超高圧水銀ランプを用いて $1700\text{ mJ}/\text{cm}^3$ （ORC UV-302 A で測定、波長域 $320\sim390\text{ nm}$ 、ピーク 350 nm ）の紫外線を照射し、中間膜を架橋硬化させ、光硬化後の中間膜（2）及び合わせガラスを得た。

[0195] 合わせガラスの作製（耐貫通性試験用）：

実施例 1 と同様に光硬化前の合わせガラスを得た。その後、この合わせガラスに超高圧水銀ランプを用いて $1700\text{ mJ}/\text{cm}^3$ （ORC UV-302 A で測定、波長域 $320\sim390\text{ nm}$ 、ピーク 350 nm ）の紫外線を照射し、中間膜を架橋硬化させ、光硬化後の中間膜（3）及び合わせガラスを得た。

[0196] （比較例 1 2）

中間膜を形成するための組成物の組成を下記の表 5 に示すように設定したこと以外は比較例 1 1 と同様にして、中間膜及び合わせガラスを得た。

[0197] （評価）

（1）ゲル分率

中間膜（比較例 11, 12 は光硬化後の中間膜）0.2 g をテトラヒドロフラン 40 g 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10000 rpm 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。

なお、比較例 11, 12 の光硬化後の中間膜（1）～（3）は、いずれもゲル分率は同じであった。

[0198] （2）不溶成分 100 重量%中のポリビニルアセタール樹脂の含有量

上記ゲル分率の測定において、中間膜（比較例 11, 12 は光硬化後の中間膜）を 23℃のテトラヒドロフランに浸漬し、乾燥した後の中間膜（23℃のテトラヒドロフランに対する中間膜の不溶成分）を、試験片として用意した。

[0199] 試験片を、サーモフィッシャーサイエンティフィック社製フーリエ変換型赤外顕微鏡 iN10 を用いて、ATR 法にて IR スペクトルを測定した。アクセサリとして、TiP-ATR（Ge 製クリスタル、赤外光の入射角度 27 度）を用いた。試験片とクリスタルとは十分に密着させた。スペクトルの測定範囲は 4000～675 cm^{-1} 、スペクトル分解能は 8 cm^{-1} で測定を行った。アパーチャについては、表面は 200 $\mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$ 、断面は厚み方向 30 $\mu\text{m} \times$ 平面方向 200 μm に設定した。

[0200] ポリビニルアセタール樹脂と第 2 の樹脂との配合比が異なるサンプルについて、IR スペクトルを測定し、C=O に由来する 1725 cm^{-1} のピーク値とポリビニルアセタール樹脂の重量割合の検量線を作成した。

[0201] C=O に由来する 1725 cm^{-1} のピーク値を基に、検量線からポリビニルアセタール樹脂の含有量を算出した。

[0202] 不溶成分 100 重量%中のポリビニルアセタール樹脂の含有量を以下の基準で判定した。

[0203] [不溶成分 100 重量%中のポリビニルアセタール樹脂の含有量の判定基

準]

A：ポリビニルアセタール樹脂の含有量が10重量%以上

B：ポリビニルアセタール樹脂の含有量が10重量%未満

[0204] なお、比較例11，12の光硬化後の中間膜（1）～（3）では、いずれも不溶成分100重量%中のポリビニルアセタール樹脂の含有量は同じであった。

[0205] （3）ガラス転移温度

得られた中間膜（比較例11，12は光硬化後の中間膜）を、室温 $23 \pm 2^\circ\text{C}$ 、湿度 $25 \pm 5\%$ の環境下に12時間保管した直後に、Mettravib社製の粘弾性測定装置「DMA+1000」を用いて、せん断貯蔵弾性率を測定した。中間膜を長さ50mm、幅20mmで切り出し、せん断モードで $2^\circ\text{C}/\text{分}$ の昇温速度で $-50 \sim 200^\circ\text{C}$ まで温度を上昇させる条件、及び周波数0.5Hz及び歪0.05%の条件で測定した。得られた粘弾性スペクトルで、損失正接（ $\tan \delta$ ）が -30°C から 0°C にピークがある場合はピーク温度を記載した。得られた粘弾性スペクトルで、損失正接（ $\tan \delta$ ）が -30°C から 0°C にピークがない場合は「無」と記載した。

なお、比較例11，12の光硬化後の中間膜（1）～（3）では、いずれもガラス転移温度は同じであった。

[0206] （4） -30°C 以上 0°C 以下の温度領域での $\tan \delta$ の最大値

-30°C 以上 0°C 以下の温度領域での $\tan \delta$ の最大値を評価した。具体的には、得られた中間膜（比較例11，12は光硬化後の中間膜）を、室温 $23 \pm 2^\circ\text{C}$ 、湿度 $25 \pm 5\%$ の環境下に12時間保管した直後に、Mettravib社製の粘弾性測定装置「DMA+1000」を用いて、せん断貯蔵弾性率を測定した。中間膜（比較例11，12は光硬化後の中間膜）を長さ50mm、幅20mmで切り出し、せん断モードで $2^\circ\text{C}/\text{分}$ の昇温速度で $-50 \sim 200^\circ\text{C}$ まで温度を上昇させる条件、及び周波数0.5Hz及び歪0.05%の条件で測定した。得られた粘弾性スペクトルで、損失正接（ $\tan \delta$ ）が -30°C から 0°C にピークがある場合はピーク値（最大値）を記載

した。

[0207] (5) 曲げ剛性

図5に模式的に示す試験方法で、曲げ剛性を評価した。測定装置としては、3点曲げ試験治具を備えたオリエンテック社製のUT A-500を使用した。測定条件としては、測定温度 23°C ($23^{\circ}\text{C} \pm 3^{\circ}\text{C}$)、距離D1は12 cm、距離D2は20 cmとし、変位速度1 mm/分でFの方向に合わせガラスに変形を加え、1.5 mmの変位を加えたときの応力を測定し、曲げ剛性を算出した。曲げ剛性を以下の基準で判定した。曲げ剛性の数値が高いほど、曲げ剛性に優れる。

[0208] [曲げ剛性の判定基準]

○：曲げ剛性が 55 N/mm 以上

×：曲げ剛性が 55 N/mm 未満

[0209] (6) 遮音性

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

[0210] このようにして得られた損失係数と合わせガラスとの共振周波数との比から、 20°C における音周波数(Hz)と音響透過損失(dB)との関係を示すグラフを作成し、音周波数4,000 Hz付近と5,000 Hz付近における極小の音響透過損失(TL値)を求めた。このTL値が高いほど、遮音性が高くなる。遮音性を下記の基準で判定した。

[0211] [遮音性の判定基準]

○○：TL値が 35 dB 以上

○：TL値が 30 dB 以上 35 dB 未満

×：TL値が 30 dB 未満

[0212] (7) 耐貫通性

得られた合わせガラスを、表面温度が20℃となるように調整した。次いで、2.0 mの高さから、6枚の合わせガラスに対してそれぞれ、質量2260 g及び直径82 mmの剛球を、合わせガラスの中心部分に落下させた。6枚の合わせガラス全てについて、剛球が衝突した後5秒以内に剛球が貫通しなかった場合を合格とした。剛球が衝突した後5秒以内に剛球が貫通しなかった合わせガラスが3枚以下であった場合は不合格とした。4枚の場合には、新しく6枚の合わせガラスの耐貫通性を評価した。5枚の場合には、新しく1枚の合わせガラスを追加試験し、剛球が衝突した後5秒以内に剛球が貫通しなかった場合を合格とした。同様の方法で、25 cmずつ高くし、6枚の合わせガラスに対してそれぞれ、質量2260 g及び直径82 mmの剛球を、合わせガラスの中心部分に落下させ、合わせガラスの耐貫通性（最大高さ）を評価した。耐貫通性を以下の基準で判定した。

[0213] [耐貫通性の判定基準]

〇〇：4 mの高さで合格

○：〇〇及び×の基準に相当しない

×：2.0 m～3.5 mの高さのいずれかで不合格

[0214] 詳細及び結果を下記の表1～5に示す。なお、下記の表1～5では、紫外線遮蔽剤及び酸化防止剤の記載は省略した（表5では比較例13のみ省略）

。

[0215]

[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	
合わせ ガラス の構成	第1の合わせガラス部材の厚み(mm)			1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	
	中間膜	ポリビニル アセタール 樹脂	配合量(重量部)	100	100	100	100	100	100	
			重合度	1700	1700	2500	500	1700	500	
			水酸基の含有率(mol%)	31	31	25	25	31	25	
			アセタール化度(mol%)	68	68	74	74	68	74	
			アセチル化度(mol%)	1	1	1	1	1	1	
		アセタールの種類	ブチラール	ブチラール	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		
		第2の 樹脂	アクリル 重合体	配合量(重量部)	100	100	100	130	150	170
				アクリル酸エチル(重量%)	35	35	35	60	35	60
				アクリル酸ブチル(重量%)	23.5	23.5	23.5	16.5	23.5	16.5
				アクリル酸2-ヒドロキシエチル(重量%)	21.0	21.0	21.0	—	21.0	—
	アクリル酸ベンジル(重量%)			20.5	20.5	20.5	23.5	20.5	23.5	
	アクリル酸シクロヘキシル(重量%)	—		—	—	—	—	—		
	トリプロピレングリコールジアクリレート(重量%)	—		—	—	0.5	—	0.6		
	架橋剤	ポリエチレン	配合量(重量部)	23.0	—	—	—	—	—	
			種類	—	—	—	—	—	—	
	可塑剤		配合量(重量部)	5	5	5	7	10	7	
			種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	
	樹脂成分の架橋の有無			無	有	有	有	有	有	
	厚み(μm)			800	800	800	800	800	800	
	第2の合わせガラス部材の厚み(mm)				1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0
	評価	ゲル分率(重量%)			12	20	29	37	78	46
		不溶成分100重量%中のポリビニルアセタール樹脂の含有量			B	A	A	A	A	A
ガラス転移温度(℃)			-19	-14	-10	-12	-7	-10		
tan δの最大値(-30～0℃)			0.11	0.13	0.13	0.14	0.16	0.18		
曲げ剛性(23℃)			○	○	○	○	○	○		
遮音性		4000Hz	○	○○	○○	○○	○○	○○		
		5000Hz	○	○	○	○○	○○	○○		
耐貫通性			○	○	○	○○	○	○○		

[0216]

[表2]

				比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	
合わせ ガラス の構成	第1の合わせガラス部材の厚み(mm)			1.0	1.0	1.0	1.0	
	ポリビニル アセタール 樹脂		配合量(重量部)	100	100	100	100	
			重合度	1700	1700	1700	1700	
			水酸基の含有率(mol%)	31	31	31	31	
			アセタール化度(mol%)	68	68	68	68	
			アセチル化度(mol%)	1	1	1	1	
			アセタールの種類	ブチラール	ブチラール	ブチラール	ブチラール	
	中間膜	第2の 樹脂	アクリル 重合体	配合量(重量部)	—	—	—	100
				アクリル酸エチル(重量%)	—	—	—	—
				アクリル酸ブチル(重量%)	—	—	—	10
				アクリル酸2-ヒドロキシエチル(重量%)	—	—	—	—
				アクリル酸ベンジル(重量%)	—	—	—	25.5
				アクリル酸シクロヘキシル(重量%)	—	—	—	64.5
				トリプロピレングリコールジアクリレート(重量%)	—	—	—	—
		ポリエチレン	配合量(重量部)	—	—	—	—	
		架橋剤	配合量(重量部)		—	—	—	—
			種類		—	—	—	—
	可塑剤	配合量(重量部)		39	20	—	2	
		種類		3GO	3GO	—	3GO	
	樹脂成分の架橋の有無				無	無	無	無
	厚み(μm)				760	760	760	760
	第2の合わせガラス部材の厚み(mm)				1.0	1.0	1.0	1.0
評価	ゲル分率(重量%)			0	0	0	0	
	不溶成分100重量%中のポリビニルアセタール樹脂の含有量			B	B	B	B	
	ガラス転移温度(℃)			無	無	無	無	
	tan δの最大値(−30〜0℃)			—	—	—	—	
	曲げ剛性(23℃)			×	○	○	○	
	遮音性		4000Hz	○	○	×	○	
			5000Hz	×	×	×	×	
	耐貫通性			○	○	×	×	

[0217]

[表3]

				実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 10	実施例 11	実施例 12	
合わせ ガラス の構成	第1の合わせガラス部材の厚み (mm)			1.3	1.3	1.3	1.3	1.3	1.3	
	中間膜	ポリビニル アセタール 樹脂	配合量 (重量部)	100	100	100	100	100	100	
			重合度	1700	1700	2500	500	1700	500	
			水酸基の含有率 (mol%)	31	31	25	25	31	25	
			アセタール化度 (mol%)	68	68	74	74	68	74	
			アセチル化度 (mol%)	1	1	1	1	1	1	
			アセタールの種類	ブチラール	ブチラール	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	
		第2の 樹脂	アクリル 重合体	配合量 (重量部)	100	100	100	130	150	170
				アクリル酸エチル (重量%)	35	35	35	60	35	60
				アクリル酸ブチル (重量%)	23.5	23.5	23.5	16.5	23.5	16.5
				アクリル酸2-ヒドロキシエチル (重量%)	21.0	21.0	21.0	—	21.0	—
	架橋剤	可塑剤	アクリル酸ヘンジル (重量%)	20.5	20.5	20.5	23.5	20.5	23.5	
			アクリル酸シクロヘキシル (重量%)	—	—	—	—	—	—	
			トリプロピレングリコールジアクリレート (重量%)	—	—	—	0.5	—	0.6	
			ポリエチレン	配合量 (重量部)	23.0	—	—	—	—	—
	架橋剤	可塑剤	配合量 (重量部)	—	0.1	0.2	—	1.6	—	
			種類	—	IPDI	IPDI	—	コロネートL	—	
	可塑剤	樹脂成分の架橋の有無	配合量 (重量部)	5	5	5	7	10	7	
			種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	
	樹脂成分の架橋の有無	厚み (μm)	樹脂成分の架橋の有無	無	有	有	有	有	有	
			厚み (μm)	800	800	800	800	800	800	
	第2の合わせガラス部材の厚み (mm)				1.3	1.3	1.3	1.3	1.3	1.3
評価	ゲル分率 (重量%)			12	20	29	37	78	46	
	不溶成分100重量%中のポリビニルアセタール樹脂の含有量			B	A	A	A	A	A	
	ガラス転移温度 (°C)			-19	-12	-10	-12	-7	-10	
	tan δ の最大値 (-30〜0°C)			0.11	0.13	0.13	0.14	0.16	0.18	
	曲げ剛性 (23°C)			○	○	○	○	○	○	
	遮音性	4000Hz	○	○○	○○	○○	○○	○○		
		5000Hz	○	○	○	○○	○○	○○		
	耐貫通性			○	○	○	○○	○	○○	

[0218]

[表4]

				比較例 5	比較例 6	比較例 7	比較例 8	比較例 9	比較例 10	
合わせ ガラス の構成	第1の合わせガラス部材の厚み(mm)			1.3	1.3	1.3	1.3	1.3	1.3	
	中間膜	ポリビニル アセタール 樹脂	配合量(重量部)	100	100	100	100	100	100	
			重合度	1700	1700	1700	1700	1700	1700	
			水酸基の含有率(mol%)	31	31	31	31	31	31	
			アセタール化度(mol%)	68	68	68	68	68	68	
			アセチル化度(mol%)	1	1	1	1	1	1	
			アセタールの種類	ブチラール	ブチラール	ブチラール	ブチラール	ブチラール	ブチラール	ブチラール
	第2の 樹脂	アクリル 重合体	配合量(重量部)	—	—	—	100	—	—	
			アクリル酸エチル(重量%)	—	—	—	—	—	—	
			アクリル酸ブチル(重量%)	—	—	—	10	—	—	
			アクリル酸2-ヒドロキシエチル(重量%)	—	—	—	—	—	—	
			アクリル酸ベンジル(重量%)	—	—	—	25.5	—	—	
			アクリル酸シクロヘキシル(重量%)	—	—	—	64.5	—	—	
			トリプロピレングリコールジアクリレート(重量%)	—	—	—	—	—	—	
		ポリエチレン	配合量(重量部)	—	—	—	—	—	—	
		架橋剤	配合量(重量部)	—	—	—	—	0.01	5.0	
			種類	—	—	—	—	IPDI	IPDI	
	可塑剤	配合量(重量部)	39	20	—	2	20	20		
		種類	3GO	3GO	—	3GO	3GO	3GO		
	樹脂成分の架橋の有無			無	無	無	無	有	有	
	厚み(μm)			760	760	760	760	760	760	
	第2の合わせガラス部材の厚み(mm)				1.3	1.3	1.3	1.3	1.3	1.3
評価	ゲル分率(重量%)			0	0	0	0	7	84	
	不溶成分100重量%中のポリビニルアセタール樹脂の含有量			B	B	B	B	A	A	
	ガラス転移温度(℃)			無	無	無	無	無	無	
	tan δ の最大値(−30〜0℃)			—	—	—	—	—	—	
	曲げ剛性(23℃)			×	○	○	○	○	○	
	遮音性	4000Hz	○	○	×	○	○	×		
		5000Hz	○	×	×	×	×	×		
	耐貫通性			○	○	×	×	○	×	

[0219]

[表5]

				比較例 11	比較例 12	比較例 13	
合わせ ガラス の構成	第1の合わせガラス部材の厚み(mm)			1.0	1.0	1.0	
	ポリビニル アセタール 樹脂			配合量(重量部)	100	100	100
				重合度	650	900	2500
				水酸基の含有率(mol%)	33	33	25
				アセタール化度(mol%)	65	65	74
				アセチル化度(mol%)	2	2	1
			アセタールの種類	ブチラール	ブチラール	アセト アセタール	
	第2の 樹脂	アクリル 重合体	配合量(重量部)	5	10	100	
			アクリル酸エチル(重量%)	—	—	35	
			アクリル酸ブチル(重量%)	—	—	23.5	
			アクリル酸2-ヒドロキシエチル(重量%)	—	—	21.0	
			アクリル酸ベンジル(重量%)	—	—	20.5	
			アクリル酸シクロヘキシル(重量%)	—	—	—	
			トリプロピレングリコールジアクリレート(重量%)	—	—	—	
			ペンタエリトリールアクリレート(重量%)	100	—	—	
			トリメチロールプロパントリメタクリレート(重量%)	—	100	—	
			ポリエチレン	配合量(重量部)	—	—	—
	架橋剤			配合量(重量部)	—	—	0.2
				種類	—	—	IPDI
	可塑剤			配合量(重量部)	40	30	—
				種類	3GH	3GH	—
	光重合開始剤			配合量(重量部)	0.5	0.5	—
				種類	a	b	—
	重合禁止剤			配合量(重量部)	0.1	0.3	—
				種類	c	d	—
	樹脂成分の架橋の有無			有	有	有	
	厚み(μm)			760	760	800	
	第2の合わせガラス部材の厚み(mm)				1.0	1.0	1.0
評価	ゲル分率(重量%)			42	36	32	
	不溶成分100重量%中のポリビニルアセタール樹脂の含有量			A	A	A	
	ガラス転移温度(℃)			無	無	-6	
	tan δ の最大値(-30~0℃)			—	—	0.11	
	曲げ剛性(23℃)			x	x	○	
	遮音性	4000Hz	○	○	○○		
		5000Hz	○	○	○		
	耐貫通性			○	○	x	

符号の説明

- [0220] 1…第1の層
- 1 a…第1の表面
- 1 b…第2の表面
- 2…第2の層
- 2 a…外側の表面
- 3…第3の層
- 3 a…外側の表面
- 1 1…中間膜

1 1 A …中間膜（第 1 の層）

1 1 a …第 1 の表面

1 1 b …第 2 の表面

2 1 …第 1 の合わせガラス部材

2 2 …第 2 の合わせガラス部材

3 1 …合わせガラス

3 1 A …合わせガラス

請求の範囲

- [請求項1] ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含み、
 下記式（X）により求められるゲル分率が10重量%以上80重量%以下であり、
 ガラス転移温度が -30°C 以上 0°C 以下に存在し、
 -30°C 以上 0°C 以下の温度領域における $\tan\delta$ の最大値が0.1以上である、合わせガラス用中間膜。
 ゲル分率（重量%） $=W2/W1 \times 100$ ・・・式（X）
 W1：中間膜を 23°C のテトラヒドロフランに浸漬する前の中間膜の重量
 W2：中間膜を 23°C のテトラヒドロフランに浸漬した後に取り出し、乾燥した後の中間膜の重量
- [請求項2] 23°C のテトラヒドロフランに対する中間膜の不溶成分100重量%中、前記ポリビニルアセタール樹脂の含有量が10重量%以上である、請求項1に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項3] ポリビニルアセタール樹脂以外の第2の樹脂を含む、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] 前記ポリビニルアセタール樹脂と前記第2の樹脂との合計100重量%中、前記ポリビニルアセタール樹脂の含有量が25重量%以上である、請求項3に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項5] 前記第2の樹脂として、アクリル重合体を含む、請求項3又は4に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項6] 前記ポリビニルアセタール樹脂と前記第2の樹脂との合計100重量%中、前記アクリル重合体の含有量が75重量%以下である、請求項5に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項7] 中間膜に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂が、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、請求

項 1 ～ 6 のいずれか 1 項に記載の合わせガラス用中間膜。

[請求項8] 厚みが 3 mm 以下である、請求項 1 ～ 7 のいずれか 1 項に記載の合わせガラス用中間膜。

[請求項9] 厚みが 1.6 mm 以下である第 1 のガラス板を用いて、前記第 1 のガラス板と第 2 のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられる、請求項 1 ～ 8 のいずれか 1 項に記載の合わせガラス用中間膜。

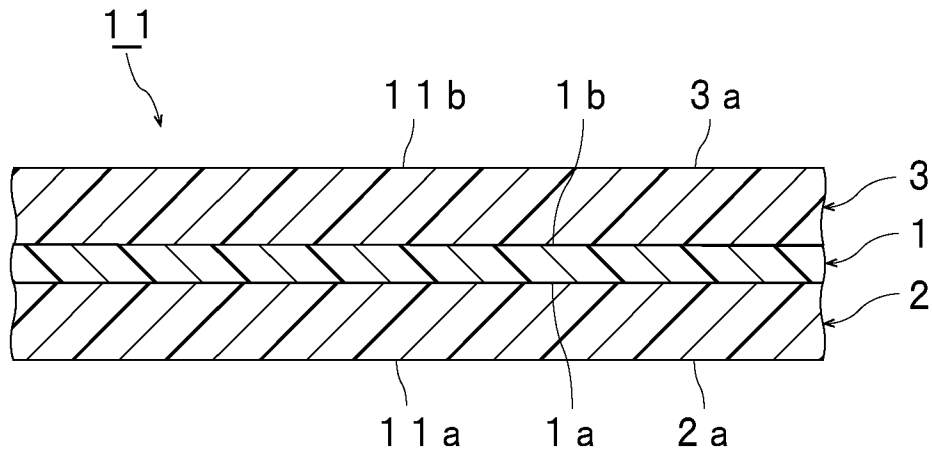
[請求項10] 第 1 のガラス板と第 2 のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられ、
前記第 1 のガラス板の厚みと前記第 2 のガラス板の厚みとの合計が 3.5 mm 以下である、請求項 1 ～ 9 のいずれか 1 項に記載の合わせガラス用中間膜。

[請求項11] 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 ～ 10 のいずれか 1 項に記載の合わせガラス用中間膜とを
備え、
前記第 1 の合わせガラス部材と前記第 2 の合わせガラス部材との間に、前記合わせガラス用中間膜が配置されている、合わせガラス。

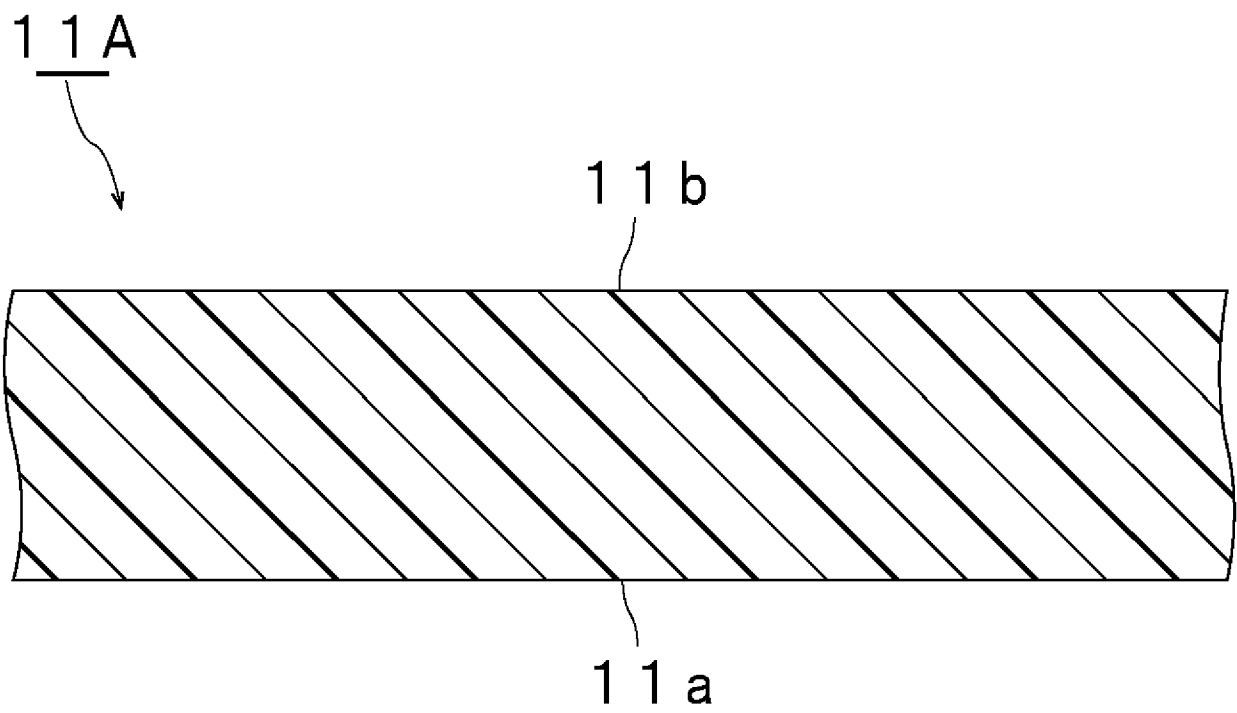
[請求項12] 前記第 1 の合わせガラス部材が第 1 のガラス板であり、
前記第 1 のガラス板の厚みが 1.6 mm 以下である、請求項 11 に
記載の合わせガラス。

[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 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 3.5 mm 以下である、請求項 11 又は 12 に記載の合わせガラス。

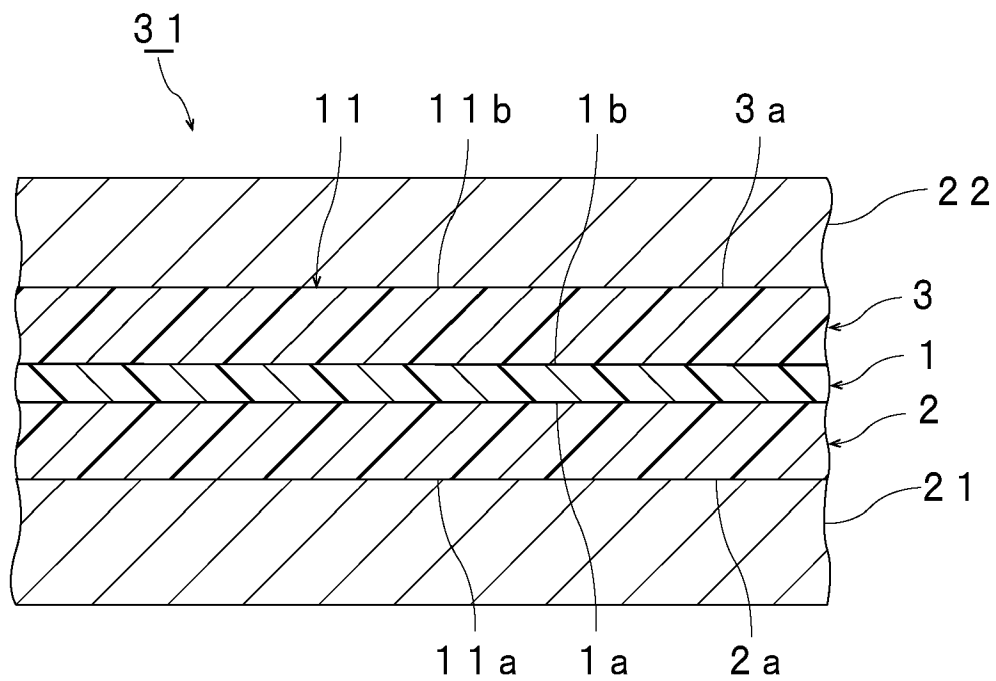
[図1]



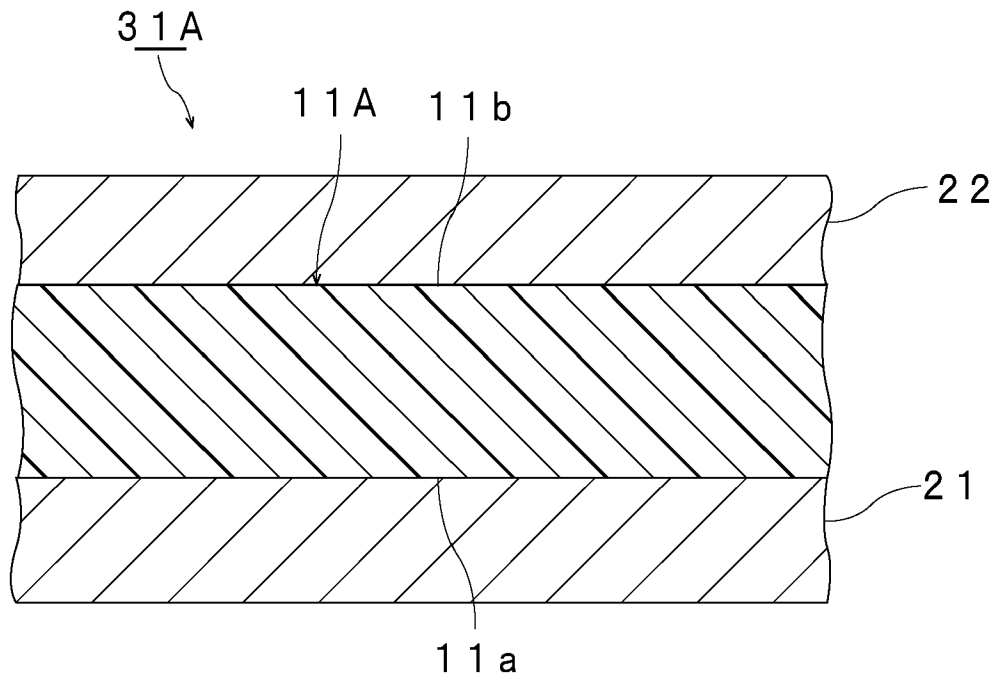
[図2]



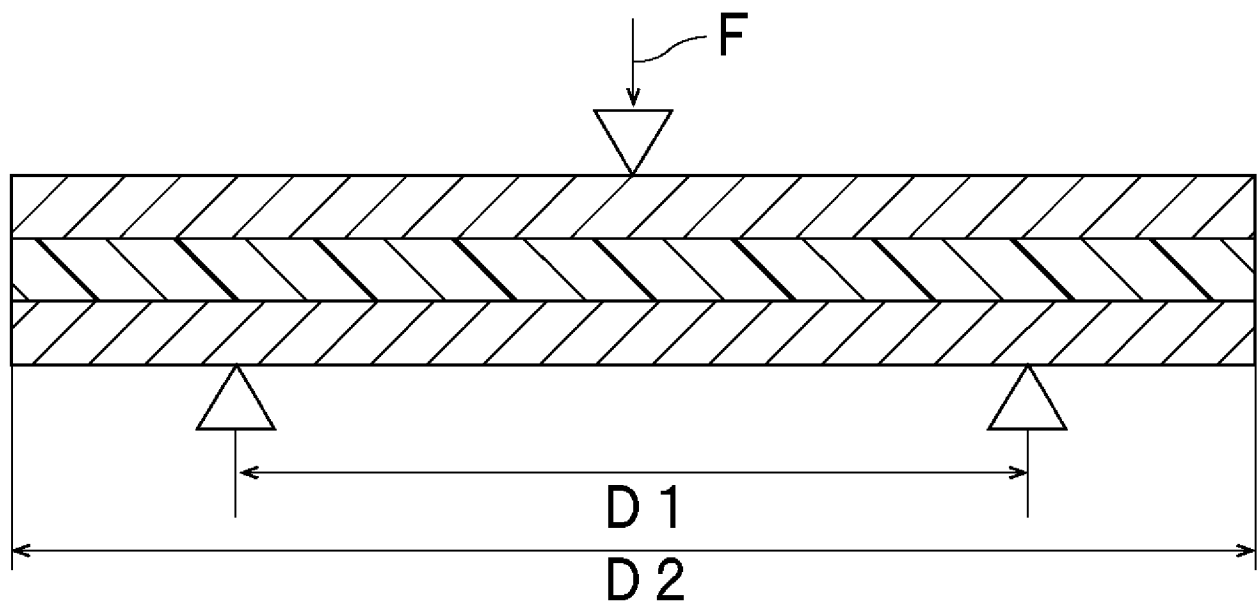
[図3]



[図4]



[図5]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/013323

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. C03C27/12 (2006.01) i, B32B7/02 (2006.01) i, B32B17/10 (2006.01) i,
B32B27/22 (2006.01) i, B32B27/30 (2006.01) i, C08J5/18 (2006.01) i,
C08L29/14 (2006.01) i, C08L33/00 (2006.01) i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl. C03C27/00-29/00, B32B1/00-43/00, C08K3/00-13/08, C08L1/00-101/14

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)

Japio-GPG/FX

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2015-187075 A (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 29 October 2015, paragraphs [0001], [0076], [0124], example 12 of table 2 & US 2016/0214355 A1, paragraphs [0001], [0083], [0153]-[0154], example 12 of table 2 & EP 3053890 A1 & CN 105324345 A & KR 10-2016-0065045 A	1-13
A	WO 2016/158696 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 06 October 2016 & US 2018/0001598 A1 & EP 3279160 A1 & CN 106795050 A & KR 10-2017-0132707 A	1-13
A	WO 2016/039477 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 17 March 2016 & US 2017/0182745 A1 & EP 3192780 A1 & KR 10-2017-0053598 A & CN 107074644 A	1-13

☐ 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
20 June 2018 (20.06.2018)

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.

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, B32B7/02(2006.01)i, B32B17/10(2006.01)i, B32B27/22(2006.01)i,
B32B27/30(2006.01)i, C08J5/18(2006.01)i, C08L29/14(2006.01)i, C08L33/00(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C03C27/00-29/00, B32B1/00-43/00, C08K3/00-13/08, C08L1/00-101/14

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2018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)

Japio-GPG/FX

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2015-187075 A (積水化学工業株式会社) 2015.10.29, [0001], [0076], [0124], 表2の実施例12 & US 2016/0214355 A1, [0001], [0083], [0153]-[0154], Table2 Ex.12 & EP 3053890 A1 & CN 105324345 A & KR 10-2016-0065045 A	1-13
A	WO 2016/158696 A1 (積水化学工業株式会社) 2016.10.06, & US 2018/0001598 A1 & EP 3279160 A1 & CN 106795050 A & KR 10-2017-0132707 A	1-13

☑ 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	の日の後に公表された文献
「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	「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
「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	「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
「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)	「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
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日

20.06.2018

国際調査報告の発送日

03.07.2018

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

飯濱 翔太郎

4 T

5571

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
A	WO 2016/039477 A1 (積水化学工業株式会社) 2016. 03. 17, & US 2017/0182745 A1 & EP 3192780 A1 & KR 10-2017-0053598 A & CN 107074644 A	1-13