

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5064606号
(P5064606)

(45) 発行日 平成24年10月31日(2012.10.31)

(24) 登録日 平成24年8月17日(2012.8.17)

(51) Int.Cl.

F 1

C03C 27/12 (2006.01)

C03C 27/12

D

C08F 18/04 (2006.01)

C08F 18/04

B60J 1/00 (2006.01)

B60J 1/00

H

請求項の数 23 (全 51 頁)

(21) 出願番号 特願2012-508839 (P2012-508839)
 (86) (22) 出願日 平成24年2月10日 (2012.2.10)
 (86) 国際出願番号 PCT/JP2012/053172
 (87) 国際公開番号 WO2012/108536
 (87) 国際公開日 平成24年8月16日 (2012.8.16)
 審査請求日 平成24年5月17日 (2012.5.17)
 (31) 優先権主張番号 特願2011-27523 (P2011-27523)
 (32) 優先日 平成23年2月10日 (2011.2.10)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)
 (31) 優先権主張番号 特願2011-139850 (P2011-139850)
 (32) 優先日 平成23年6月23日 (2011.6.23)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

早期審査対象出願

(73) 特許権者 000002174
 積水化学工業株式会社
 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号
 (74) 代理人 110001232
 特許業務法人 宮▲崎▼・目次特許事務所
 (72) 発明者 島本 優男
 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学
 工業株式会社内
 (72) 発明者 松田 匠太
 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学
 工業株式会社内
 (72) 発明者 梁 信烈
 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学
 工業株式会社内

最終頁に続く

(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) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

2層以上の積層構造を有する合わせガラス用中間膜であって、
 ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む第1の層と、該第1の層の第1の表面側に
 配置された第2の層とを備え、

前記第1の層に含まれている前記ポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール化度と
 アセチル化度と水酸基の含有率との三つの値の相図において、該アセタール化度と該アセ
 チル化度と該水酸基の含有率とがそれぞれ、第1の座標 (アセタール化度 : アセチル化度
 : 水酸基の含有率 = 70モル% : 30モル% : 0モル%) と第2の座標 (アセタール化度
 : アセチル化度 : 水酸基の含有率 = 34モル% : 30モル% : 36モル%) と第3の座標
 (アセタール化度 : アセチル化度 : 水酸基の含有率 = 94モル% : 0モル% : 6モル%)
 と第4の座標 (アセタール化度 : アセチル化度 : 水酸基の含有率 = 100モル% : 0モル
 % : 0モル%) とをこの順で4つの直線で結んだ線で囲まれた領域内の値である、合わせ
 ガラス用中間膜。

【請求項2】

前記第1の層に含まれている前記ポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール化度と
 アセチル化度と水酸基の含有率との三つの値の相図において、該アセタール化度と該アセ
 チル化度と該水酸基の含有率とがそれぞれ、第1の座標 (アセタール化度 : アセチル化度
 : 水酸基の含有率 = 70モル% : 30モル% : 0モル%) と第2の座標 (アセタール化度
 : アセチル化度 : 水酸基の含有率 = 34モル% : 30モル% : 36モル%) と第5の座標

10

20

(アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 95 モル% : 0 モル% : 5 モル%) と第4の座標 (アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 100 モル% : 0 モル% : 0 モル%) とをこの順で4つの直線で結んだ線で囲まれた領域内の値である、請求項1に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項3】

前記第1の層に含まれている前記ポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール化度とアセチル化度と水酸基の含有率との三つの値の相図において、該アセタール化度と該アセチル化度と該水酸基の含有率とがそれぞれ、第1の座標 (アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 70 モル% : 30 モル% : 0 モル%) と第2の座標 (アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 34 モル% : 30 モル% : 36 モル%) と第3の座標 (アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 94 モル% : 0 モル% : 6 モル%) と第6の座標 (アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 95 モル% : 5 モル% : 0 モル%) とをこの順で4つの直線で結んだ線で囲まれた領域内の値である、請求項1に記載の合わせガラス用中間膜。 10

【請求項4】

前記第1の層に含まれている前記ポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール化度とアセチル化度と水酸基の含有率との三つの値の相図において、該アセタール化度と該アセチル化度と該水酸基の含有率とがそれぞれ、第1の座標 (アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 70 モル% : 30 モル% : 0 モル%) と第2の座標 (アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 34 モル% : 30 モル% : 36 モル%) と第5の座標 (アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 95 モル% : 0 モル% : 5 モル%) と第6の座標 (アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 95 モル% : 5 モル% : 0 モル%) とをこの順で4つの直線で結んだ線で囲まれた領域内の値である、請求項1に記載の合わせガラス用中間膜。 20

【請求項5】

周波数1Hzで測定した最も低温側に現れるtan のピーク温度が0 以下である、請求項1～4のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項6】

周波数1Hzで測定した最も低温側に現れるtan のピーク温度におけるtan の最大値が1.15以上である、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。 30

【請求項7】

前記第2の層がポリビニルアセタール樹脂を含み、

前記第2の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂のアセタール基の炭素数が3又は4であり、アセタール化度が60モル%以上、75モル%以下であり、かつアセチル化度が10モル%以下である、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】

前記第2の層が、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含み、

前記第2の層における前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する前記可塑剤の含有量は、前記第1の層における前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する前記可塑剤の含有量よりも少ない、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。 40

【請求項9】

前記第2の層が、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含み、

前記第2の層における前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する前記可塑剤の含有量が10重量部以上、45重量部以下である、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】

前記第1の層の厚みの前記第2の層の厚みに対する比が、0.2以上、1以下である、

50

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 1 1】

前記第 2 の層は、前記第 1 の層の前記第 1 の表面に積層されている、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。

【請求項 1 2】

前記第 2 の層がポリビニルアセタール樹脂を含み、

前記第 1 の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂 100 重量部に対する上記可塑剤の含有量が 50 重量部以上であり、

前記第 1 の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率が、前記第 2 の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率よりも低く、10

前記第 1 の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率と前記第 2 の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率との差が、9.2 モル%以下であり、

前記第 1 の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率と前記第 2 の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率との差が、8.5 モル%を超え、9.2 モル%以下である場合には、前記第 1 の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂のアセチル化度が 8 モル%以下である、請求項 1 ~ 11 のいずれか 1 項に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 1 3】

前記第 1 の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂が絶対分子量 100 万以上の高分子量成分を含み、かつ前記第 1 の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂に占める、前記高分子量成分の割合が 7.4 % 以上であるか、又は、前記第 1 の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂がポリスチレン換算分子量 100 万以上の高分子量成分を含み、かつ前記第 1 の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂に占める、前記高分子量成分の割合が 9 % 以上である、請求項 1 ~ 12 のいずれか 1 項に記載の合わせガラス用中間膜。20

【請求項 1 4】

前記第 1 の層を樹脂膜として用いて、該樹脂膜の粘弾性を測定した場合に、該樹脂膜のガラス転移温度を Tg () としたときに、(Tg + 80) での弾性率 G' (Tg + 80) の (Tg + 30) での弾性率 G' (Tg + 30) に対する比 (G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)) が、0.65 以上である、請求項 1 ~ 13 のいずれか 1 項に記載の合わせガラス用中間膜。30

【請求項 1 5】

前記第 1 の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂 100 重量部と、可塑剤としてトリエチレングリコールジ - 2 - エチルヘキサノエート 60 重量部とを含む樹脂膜を用いて、該樹脂膜の粘弾性を測定した場合に、該樹脂膜のガラス転移温度を Tg () としたときに、(Tg + 80) での弾性率 G' (Tg + 80) の (Tg + 30) での弾性率 G' (Tg + 30) に対する比 (G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)) が、0.65 以上である、請求項 1 ~ 14 のいずれか 1 項に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 1 6】

前記第 1 の層中の前記ポリビニルアセタール樹脂は、平均重合度が 3000 を超えるポリビニルアルコール樹脂をアセタール化することにより得られている、請求項 1 ~ 15 のいずれか 1 項に記載の合わせガラス用中間膜。40

【請求項 1 7】

前記第 1 の層の前記第 1 の表面とは反対の第 2 の表面側に配置された第 3 の層をさらに備える、請求項 1 ~ 16 のいずれか 1 項に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 1 8】

前記第 3 の層がポリビニルアセタール樹脂を含み、

前記第 3 の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂のアセタール基の炭素数が 3 又は 4 であり、アセタール化度が 60 モル%以上、75 モル%以下であり、かつアセチル化度が 10 モル%以下である、請求項 1 7 に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項 1 9】

10

20

30

40

50

前記第3の層が、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含み、

前記第3の層における前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する前記可塑剤の含有量は、前記第1の層における前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する前記可塑剤の含有量よりも少ない、請求項17又は18に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項20】

前記第3の層が、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含み、

前記第3の層における前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する前記可塑剤の含有量が10重量部以上、45重量部以下である、請求項17～19のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項21】

前記第1の層の厚みの前記第2の層と前記第3との合計の厚みに対する比が、0.1以上、0.5以下である、請求項17～20のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項22】

前記第3の層は、前記第1の層の前記第2の表面に積層されている、請求項17～21のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項23】

第1の合わせガラス構成部材と、

第2の合わせガラス構成部材と、

前記第1、第2の合わせガラス構成部材の間に挟み込まれた中間膜とを備え、

前記中間膜が、請求項1～22のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜である、合わせガラス。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、自動車及び建築物などの合わせガラスに用いられる合わせガラス用中間膜に關し、より詳細には、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む合わせガラス用中間膜、並びに該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、一対のガラス板の間に中間膜を挟み込むことにより、製造されている。

【0003】

近年、合わせガラスを軽量化するために、合わせガラスの厚みを薄くすることが検討されている。しかし、合わせガラスの厚みを薄くすると、遮音性が低くなる。遮音性が低い合わせガラスを自動車のフロントガラス等に用いた場合には、風切り音又はワイパーの駆動音等の5000Hz程度の音域の音に対して、遮音性が充分に得られないという問題がある。

【0004】

そこで、中間膜の材料の変更により、合わせガラスの遮音性を高めることが検討されている。

【0005】

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重量部以上の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、又は他の層と積層されて多層の中間膜として用いられ得る。

【先行技術文献】

10

20

30

40

50

【特許文献】**【0006】**

【特許文献1】特開2007-070200号公報

【発明の概要】**【発明が解決しようとする課題】****【0007】**

上記特許文献1に記載の中間膜を用いた合わせガラスでは、遮音性をある程度高めることができるものの、遮音性の更なる向上が求められている。

【0008】

例えば、上記特許文献1に記載の中間膜を用いて合わせガラスを構成した場合には、合わせガラスの比較的高周波域における遮音性が充分ではなく、従ってコインシデンス効果による遮音性の低下が避けられないことがある。特に、この合わせガラスの20付近での遮音性が充分ではないことがある。

10

【0009】

ここで、コインシデンス効果とは、ガラス板に音波が入射したとき、ガラス板の剛性と慣性とによって、ガラス面上を横波が伝播して横波と入射音とが共鳴し、その結果、音の透過が起こる現象をいう。

【0010】

また、上記特許文献1に記載の遮音層と他の層とが積層された多層中間膜を用いて合わせガラスを構成した場合には、合わせガラスの20付近での遮音性をある程度高めることができる。しかし、多層中間膜が上記遮音層を有するため、該多層中間膜を用いた合わせガラスに発泡が生じることがある。

20

【0011】

さらに、近年、合わせガラスの遮音性を高めるために、中間膜中の可塑剤の含有量を多くすることが検討されている。中間膜中の可塑剤の含有量を多くすると、合わせガラスの遮音性を改善できる。しかしながら、可塑剤の含有量を多くすると、合わせガラスに発泡が生じことがある。

【0012】

本発明の目的は、合わせガラスを構成するのに用いられた場合に、得られた合わせガラスの遮音性を高めることができる合わせガラス用中間膜、並びに該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である。

30

【0013】

本発明の限定的な目的は、遮音性が高いだけでなく、発泡の発生及び発泡の成長を抑制できる合わせガラスを得ることができる合わせガラス用中間膜、並びに該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である。

【課題を解決するための手段】**【0014】**

本発明の広い局面によれば、2層以上の積層構造を有する合わせガラス用中間膜であって、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む第1の層と、該第1の層の第1の表面側に配置された第2の層とを備え、上記第1の層に含まれている上記ポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール化度とアセチル化度と水酸基の含有率との三つの値の相図において、該アセタール化度と該アセチル化度と該水酸基の含有率とがそれぞれ、第1の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 70モル% : 30モル% : 0モル%）と第2の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 34モル% : 30モル% : 36モル%）と第3の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 94モル% : 0モル% : 6モル%）と第4の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 100モル% : 0モル% : 0モル%）とをこの順で4つの直線で結んだ線で囲まれた領域内の値である、合わせガラス用中間膜が提供される。

40

【0015】

本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、上記第1の層に含まれてい

50

る上記ポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール化度とアセチル化度と水酸基の含有率との三つの値の相図において、該アセタール化度と該アセチル化度と該水酸基の含有率とがそれぞれ、第1の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 70モル% : 30モル% : 0モル%）と第2の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 34モル% : 30モル% : 36モル%）と第5の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 95モル% : 0モル% : 5モル%）と第4の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 100モル% : 0モル% : 0モル%）とをこの順で4つの直線で結んだ線で囲まれた領域内の値である。

【0016】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の他の特定の局面では、上記第1の層に含まれている上記ポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール化度とアセチル化度と水酸基の含有率との三つの値の相図において、該アセタール化度と該アセチル化度と該水酸基の含有率とがそれぞれ、第1の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 70モル% : 30モル% : 0モル%）と第2の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 34モル% : 30モル% : 36モル%）と第3の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 94モル% : 0モル% : 6モル%）と第6の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 95モル% : 5モル% : 0モル%）とをこの順で4つの直線で結んだ線で囲まれた領域内の値である。

【0017】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の他の特定の局面では、上記第1の層に含まれている上記ポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール化度とアセチル化度と水酸基の含有率との三つの値の相図において、該アセタール化度と該アセチル化度と該水酸基の含有率とがそれぞれ、第1の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 70モル% : 30モル% : 0モル%）と第2の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 34モル% : 30モル% : 36モル%）と第5の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 95モル% : 0モル% : 5モル%）と第6の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 95モル% : 5モル% : 0モル%）とをこの順で4つの直線で結んだ線で囲まれた領域内の値である。

【0018】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の他の特定の局面では、周波数1Hzで測定した最も低温側に現れるtan のピーク温度が0 以下である。

【0019】

本発明に係る合わせガラス用中間膜のさらに他の特定の局面では、周波数1Hzで測定した最も低温側に現れるtan のピーク温度におけるtan の最大値が1.15以上である。

【0020】

本発明に係る合わせガラス用中間膜のさらに他の特定の局面では、上記第2の層が、ポリビニルアセタール樹脂を含み、上記第2の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂のアセタール基の炭素数が3又は4であり、アセタール化度が60モル%以上、75モル%以下であり、かつアセチル化度が10モル%以下である。

【0021】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の別の特定の局面では、上記第2の層が、上記ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含み、上記第2の層における上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記可塑剤の含有量は、上記第1の層における上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記可塑剤の含有量よりも少ない。

【0022】

本発明に係る合わせガラス用中間膜のさらに別の特定の局面では、上記第2の層が、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含み、上記第2の層における上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記可塑剤の含有量が10重量部以上、45重量部以下である。

10

20

30

40

50

【0023】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の他の特定の局面では、上記第1の層の厚みの上記第2の層の厚みに対する比が、0.2以上、1以下である。

【0024】

本発明に係る合わせガラス用中間膜のさらに別の特定の局面では、上記第2の層は、上記第1の層の上記第1の表面に積層されている。

【0025】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の別の特定の局面では、上記第2の層がポリビニルアセタール樹脂を含み、上記第1の層中の上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記可塑剤の含有量が50重量部以上であり、上記第1の層中の上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率が、上記第2の層中の上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率と上記第2の層中の上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率との差が、9.2モル%以下であり、上記第1の層中の上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率と上記第2の層中の上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率との差が、8.5モル%を超える、9.2モル%以下である場合には、上記第1の層中の上記ポリビニルアセタール樹脂のアセチル化度が8モル%以下である。10

【0026】

本発明に係る合わせガラス用中間膜のさらに別の特定の局面では、上記第1の層中の上記ポリビニルアセタール樹脂が絶対分子量100万以上の高分子量成分を含み、かつ上記第1の層中の上記ポリビニルアセタール樹脂に占める、上記高分子量成分の割合が7.4%以上であるか、又は、上記第1の層中の上記ポリビニルアセタール樹脂がポリスチレン換算分子量100万以上の高分子量成分を含み、かつ上記第1の層中の上記ポリビニルアセタール樹脂に占める、上記高分子量成分の割合が9%以上である。20

【0027】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の他の特定の局面では、上記第1の層を樹脂膜として用いて、該樹脂膜の粘弾性を測定した場合に、該樹脂膜のガラス転移温度をTg()としたときに、(Tg + 80)での弾性率G' (Tg + 80)の(Tg + 30)での弾性率G' (Tg + 30)に対する比(G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30))が、0.65以上である。30

【0028】

本発明に係る合わせガラス用中間膜のさらに他の特定の局面では、上記第1の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部と、可塑剤としてトリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート60重量部とを含む樹脂膜を用いて、該樹脂膜の粘弾性を測定した場合に、該樹脂膜のガラス転移温度をTg()としたときに、(Tg + 80)での弾性率G' (Tg + 80)の(Tg + 30)での弾性率G' (Tg + 30)に対する比(G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30))が、0.65以上である。

【0029】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の別の特定の局面では、上記第1の層中の上記ポリビニルアセタール樹脂は、平均重合度が3000を超えるポリビニルアルコール樹脂をアセタール化することにより得られている。40

【0030】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の他の特定の局面では、上記第1の層の上記第1の表面とは反対の第2の表面側に配置された第3の層がさらに備えられる。

【0031】

本発明に係る合わせガラス用中間膜のさらに他の特定の局面では、上記第3の層が、ポリビニルアセタール樹脂を含み、上記第3の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂のアセタール基の炭素数が3又は4であり、アセタール化度が60モル%以上、75モル%以下であり、かつアセチル化度が10モル%以下である。

【0032】50

本発明に係る合わせガラス用中間膜の別の特定の局面では、上記第3の層が、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含み、上記第3の層における上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記可塑剤の含有量は、上記第1の層における上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記可塑剤の含有量よりも少ない。

【0033】

本発明に係る合わせガラス用中間膜のさらに別の特定の局面では、上記第3の層が、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含み、上記第3の層における上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記可塑剤の含有量が10重量部以上、45重量部以下である。

【0034】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の他の特定の局面では、上記第1の層の厚みの上記第2の層と上記第3の層との合計の厚みに対する比が、0.1以上、0.5以下である。

【0035】

本発明に係る合わせガラス用中間膜のさらに別の特定の局面では、上記第3の層は、上記第1の層の上記第2の表面に積層されている。

【0036】

本発明に係る合わせガラスは、第1の合わせガラス構成部材と、第2の合わせガラス構成部材と、該第1，第2の合わせガラス構成部材の間に挟み込まれた中間膜とを備えており、該中間膜が、本発明に従って構成された合わせガラス用中間膜である。

【発明の効果】

【0037】

本発明に係る合わせガラス用中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む第1の層と、該第1の層の第1の表面側に配置された第2の層とを備えており、該第1の層に含まれている上記ポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール化度とアセチル化度と水酸基の含有率との三つの値の相図において、該アセタール化度と該アセチル化度と該水酸基の含有率とがそれぞれ、第1の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 70モル% : 30モル% : 0モル%）と第2の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 34モル% : 30モル% : 36モル%）と第3の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 94モル% : 0モル% : 6モル%）と第4の座標（アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率 = 100モル% : 0モル% : 0モル%）とをこの順で4つの直線で結んだ線で囲まれた領域内の値であるので、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高周波域での遮音性を高めることができる。

【図面の簡単な説明】

【0038】

【図1】図1は、本発明に係る合わせガラス用中間膜中の第1の層に含まれているポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール化度とアセチル化度と水酸基の含有率との三つの値の相図であって、該アセタール化度と該アセチル化度と該水酸基の含有率との値が示す領域を表す図である。

【図2】図2は、本発明に係る合わせガラス用中間膜中の第1の層に含まれているポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール化度とアセチル化度と水酸基の含有率との三つの値の相図であって、該アセタール化度と該アセチル化度と該水酸基の含有率との値が示す好ましい領域を表す図である。

【図3】図3は、本発明に係る合わせガラス用中間膜中の第1の層に含まれているポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール化度とアセチル化度と水酸基の含有率との三つの値の相図であって、該アセタール化度と該アセチル化度と該水酸基の含有率との値が示す好ましい領域を表す図である。

【図4】図4は、本発明に係る合わせガラス用中間膜中の第1の層に含まれているポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール化度とアセチル化度と水酸基の含有率との三つの値の相図であって、該アセタール化度と該アセチル化度と該水酸基の含有率との値が示す好ましい領域を表す図である。

10

20

30

40

50

【図5】図5は、本発明の一実施形態に係る合わせガラス用中間膜を模式的に示す部分切欠断面図である。

【図6】図6は、図5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部分切欠断面図である。

【図7】図7は、実施例1～7及び比較例1の合わせガラス用中間膜中の第1の層に含まれているポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール化度とアセチル化度と水酸基の含有率との三つの値の相図であって、該アセタール化度と該アセチル化度と該水酸基の含有率との値を示す図である。

【図8】図8は、実施例8～14及び比較例2の合わせガラス用中間膜中の第1の層に含まれているポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール化度とアセチル化度と水酸基の含有率との三つの値の相図であって、該アセタール化度と該アセチル化度と該水酸基の含有率との値を示す図である。10

【図9】図9は、実施例15～35及び比較例3，4の合わせガラス用中間膜中の第1の層に含まれているポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール化度とアセチル化度と水酸基の含有率との三つの値の相図であって、該アセタール化度と該アセチル化度と該水酸基の含有率との値を示す図である。

【図10】図10は、第1の層に含まれるポリビニルアセタール樹脂と、トリエチレンジリコールジ-2-エチルヘキサンエートとを含む樹脂膜を用いて、該樹脂膜の粘弾性を測定した場合の損失正接 $\tan \delta$ と温度との関係及び弾性率 G' と温度との関係を説明するための図である。20

【発明を実施するための形態】

【0039】

以下、本発明を詳細に説明する。

【0040】

本発明に係る合わせガラス用中間膜は、2層以上の積層構造を有する。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（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）と可塑剤（以下、可塑剤（1）と記載することがある）とを含む第1の層と、該第1の層の第1の表面側に配置された第2の層とを備える。本発明に係る合わせガラス用中間膜は、上記第1の層と上記第2の層とのみを含む2層の積層構造を有する合わせガラス用中間膜であってもよく、上記第1の層と上記第2の層と他の層とを含む3層以上の積層構造を有する合わせガラス用中間膜であってもよい。30

【0041】

本発明に係る合わせガラス用中間膜では、上記第1の層に含まれている上記ポリビニルアセタール樹脂（1）におけるアセタール化度Xとアセチル化度Yと水酸基の含有率Zとの三つの値の相図（図1に示す三つの値の相図）において、該アセタール化度Xと該アセチル化度Yと該水酸基の含有率Zとがそれぞれ、下記第1の座標Aと下記第2の座標Bと下記第3の座標Cと下記第4の座標Dとをこの順で4つの直線で結んだ線L1で囲まれた領域R1内の値である。

【0042】

第1の座標A（アセタール化度X：アセチル化度Y：水酸基の含有率Z = 70モル% : 30モル% : 0モル%）40

第2の座標B（アセタール化度X：アセチル化度Y：水酸基の含有率Z = 34モル% : 30モル% : 36モル%）

第3の座標C（アセタール化度X：アセチル化度Y：水酸基の含有率Z = 94モル% : 0モル% : 6モル%）

第4の座標D（アセタール化度X：アセチル化度Y：水酸基の含有率Z = 100モル% : 0モル% : 0モル%）

【0043】

上記線L1は、第1の座標Aと第2の座標Bとを結ぶ直線と、第2の座標Bと第3の座標Cとを結ぶ直線と、第3の座標Cと第4の座標Dとを結ぶ直線と、第4の座標Dと第150

の座標 A とを結ぶ直線との 4 つの直線を含む。

【 0 0 4 4 】

本発明に係る合わせガラス用中間膜では、図 1 に示す三つの値の相図において、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)における上記アセタール化度 X と上記アセチル化度 Y と上記水酸基の含有率 Z とがそれぞれ、図 1 に示す線 L 1 で囲まれた領域 R 1 内の値である。上記ポリビニルアセタール樹脂(1)における上記アセタール化度 X と上記アセチル化度 Y と上記水酸基の含有率 Z とがそれぞれ、図 1 に示す線 L 1 上の値であってもよい。

【 0 0 4 5 】

本発明の主な特徴は、ポリビニルアセタール樹脂(1)と可塑剤(1)とを含む第 1 の層と、該第 1 の層の第 1 の表面側に配置された第 2 の層とが備えられており、図 1 に示す三つの値の相図において、該第 1 の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂(1)における上記アセタール化度 X と上記アセチル化度 Y と上記水酸基の含有率 Z とがそれぞれ、図 1 に示す線 L 1 で囲まれた領域 R 1 内の値であることである。10

【 0 0 4 6 】

近年、内燃機関を用いた燃料自動車から、電気モータを用いた電気自動車及び内燃機関と電気モータとを用いたハイブリッド電気自動車等への移行が進行している。内燃機関を用いた燃料自動車に用いられる合わせガラスでは、比較的低周波数域での遮音性が特に求められている。但し、内燃機関を用いた燃料自動車に用いられる合わせガラスでも、高周波域での遮音性が高いことが望ましい。これに対して、電気モータを利用した電気自動車及びハイブリッド電気自動車に用いられる合わせガラスでは、電気モータの駆動音を効果的に遮断するために高周波数域における高い遮音性が特に求められる。20

【 0 0 4 7 】

本発明者らは、上記第 1 の層に含まれている上記ポリビニルアセタール樹脂(1)における上記アセタール化度 X と上記アセチル化度 Y と上記水酸基の含有率 Z とが上記領域 R 1 内の値であることにより、合わせガラスの高周波数域での遮音性を効果的にかつ十分に高めることができることを見出した。20

【 0 0 4 8 】

特に、上記アセタール化度 X と上記アセチル化度 Y と上記水酸基の含有率 Z とが上記領域 R 1 内の値であるポリビニルアセタール樹脂(1)を含む第 1 の層により、20 ~ 30 の温度領域での遮音性を高めることができる。30

【 0 0 4 9 】

上記領域 R 1 では、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の上記アセチル化度 Y は、30 モル% 以下である。該アセチル化度 Y が 30 モル% 以下であると、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の生産性が向上する。

【 0 0 5 0 】

中間膜及び合わせガラスの遮音性をより一層高める観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)における上記アセタール化度 X と上記アセチル化度 Y と上記水酸基の含有率 Z との三つの値の相図(図 2 に示す三つの値の相図)において、該アセタール化度 X と該アセチル化度 Y と該水酸基の含有率 Z とがそれぞれ、上記第 1 の座標 A と上記第 2 の座標 B と下記第 5 の座標 E と上記第 4 の座標 D とをこの順で 4 つの直線で結んだ線 L 2 で囲まれた領域 R 2 内の値であることが好ましい。40

【 0 0 5 1 】

第 5 の座標 E(アセタール化度 : アセチル化度 : 水酸基の含有率 = 95 モル% : 0 モル% : 5 モル%)

【 0 0 5 2 】

上記線 L 2 は、第 1 の座標 A と第 2 の座標 B とを結ぶ直線と、第 2 の座標 B と第 5 の座標 E とを結ぶ直線と、第 5 の座標 E と第 4 の座標 D とを結ぶ直線と、第 4 の座標 D と第 1 の座標 A とを結ぶ直線との 4 つの直線を含む。

【 0 0 5 3 】

本発明に係る合わせガラス用中間膜では、図 2 に示す三つの値の相図において、上記ボ50

リビニルアセタール樹脂(1)における上記アセタール化度Xと上記アセチル化度Yと上記水酸基の含有率Zとは、図2に示す線L2で囲まれた領域R2内の値であることが好ましい。上記ポリビニルアセタール樹脂(1)における上記アセタール化度Xと上記アセチル化度Yと上記水酸基の含有率Zとがそれぞれ、図2に示す線L2上の値であってもよい。

【0054】

中間膜及び合わせガラスの遮音性をより一層高める観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)における上記アセタール化度Xと上記アセチル化度Yと上記水酸基の含有率Zとの三つの値の相図(図3に示す三つの値の相図)において、該アセタール化度Xと該アセチル化度Yと該水酸基の含有率Zとがそれぞれ、上記第1の座標Aと上記第2の座標Bと上記第3の座標Cと下記第6の座標Fとをこの順で4つの直線で結んだ線L3で囲まれた領域R3内の値であることが好ましい。

10

【0055】

第6の座標F(アセタール化度：アセチル化度：水酸基の含有率=95モル%：5モル%：0モル%)

【0056】

上記線L3は、第1の座標Aと第2の座標Bとを結ぶ直線と、第2の座標Bと第3の座標Cとを結ぶ直線と、第3の座標Cと第6の座標Fとを結ぶ直線と、第6の座標Fと第1の座標Aとを結ぶ直線との4つの直線を含む。

20

【0057】

本発明に係る合わせガラス用中間膜では、図3に示す三つの値の相図において、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)における上記アセタール化度Xと上記アセチル化度Yと上記水酸基の含有率Zとは、図3に示す線L3で囲まれた領域R3内の値であることが好ましい。上記ポリビニルアセタール樹脂(1)における上記アセタール化度Xと上記アセチル化度Yと上記水酸基の含有率Zとがそれぞれ、図3に示す線L3上の値であってもよい。

【0058】

上記領域R3では、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の上記アセタール化度Xは、95モル%以下であり、94モル%以下であることもある。該アセタール化度Xが95モル%以下であると、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の生産性が向上する。

30

【0059】

中間膜及び合わせガラスの遮音性をより一層高める観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)における上記アセタール化度Xと上記アセチル化度Yと上記水酸基の含有率Zとの三つの値の相図(図4に示す三つの値の相図)において、該アセタール化度Xと該アセチル化度Yと該水酸基の含有率Zとがそれぞれ、上記第1の座標Aと上記第2の座標Bと上記第5の座標Eと上記第6の座標Fとをこの順で4つの直線で結んだ線L4で囲まれた領域R4内の値であることが好ましい。

【0060】

上記線L4は、第1の座標Aと第2の座標Bとを結ぶ直線と、第2の座標Bと第5の座標Eとを結ぶ直線と、第5の座標Eと第6の座標Fとを結ぶ直線と、第6の座標Fと第1の座標Aとを結ぶ直線との4つの直線を含む。

40

【0061】

本発明に係る合わせガラス用中間膜では、図4に示す三つの値の相図において、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)における上記アセタール化度Xと上記アセチル化度Yと上記水酸基の含有率Zとは、図4に示す線L4で囲まれた領域R4内の値であることが好ましい。上記ポリビニルアセタール樹脂(1)における上記アセタール化度Xと上記アセチル化度Yと上記水酸基の含有率Zとがそれぞれ、図4に示す線L4上の値であってもよい。

【0062】

上記領域R4では、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の上記アセタール化度Xは、

50

95モル%以下である。該アセタール化度Xが95モル%以下であると、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の生産性が向上する。

【0063】

以下、図面を参照しつつ、本発明の具体的な実施形態及び実施例を説明することにより本発明を明らかにする。

【0064】

図5に、本発明の一実施形態に係る合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスを模式的に部分切欠断面図で示す。

【0065】

図5に示す中間膜1は、多層中間膜である。中間膜1は、合わせガラスを得るために用いられる。中間膜1は、合わせガラス用中間膜である。中間膜1は、第1の層2と、第1の層2の第1の表面2a側に配置された第2の層3と、第1の層2の第1の表面2aとは反対の第2の表面2b側に配置された第3の層4とを備える。第2の層3は、第1の層2の第1の表面2aに積層されている。第3の層4は、第1の層2の第2の表面2bに積層されている。第1の層2は、中間層であり、遮音層として主に機能する。第2、第3の層3、4は、保護層であり、本実施形態では表面層である。第1の層2は、第2、第3の層3、4の間に配置されている。第1の層2は、第2、第3の層3、4の間に挟み込まれている。従って、中間膜1は、第2の層3と、第1の層2と、第3の層4とがこの順で積層された多層構造を有する。

【0066】

なお、第1の層2と第2の層3との間、及び、第1の層2と第3の層4との間にはそれぞれ、他の層が積層されていてもよい。第1の層2と第2の層3、及び、第1の層2と第3の層4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、ポリビニルアセタール樹脂等の熱可塑性樹脂を含む層、及びポリエチレンテレフタレート等を含む層が挙げられる。

【0067】

第1の層2は、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)と可塑剤(1)とを含む。第2の層3は、熱可塑性樹脂を含むことが好ましく、ポリビニルアセタール樹脂を含むことがより好ましく、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含むことが更に好ましい。第3の層4は、熱可塑性樹脂を含むことが好ましく、ポリビニルアセタール樹脂を含むことがより好ましく、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含むことが更に好ましい。第1の層2と第2、第3の層3、4との組成は異なることが好ましい。第2の層3と第3の層4との組成は、同一であってもよく、異なっていてもよい。

【0068】

中間膜1では、第1の層2に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の上記アセタール化度Xと上記アセチル化度Yと上記水酸基の含有率Zとがそれぞれ上記領域R1内の値であるので、中間膜1を用いた合わせガラスの高周波域での遮音性を高めることができる。また、中間膜1では、第1の層2に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の上記アセタール化度Xと上記アセチル化度Yと上記水酸基の含有率Zとがそれぞれ上記領域R2内、上記領域R3内又は上記領域R4内の値でもあるので、中間膜1を用いた合わせガラスの高周波域での遮音性をより一層高めることができ、更に中間膜1の生産性を高めることができる。

【0069】

中間膜1では、第1の層2の両面に第2、第3の層3、4が積層されている。第1の層の第1の表面側に第2の層が配置されており、第1の層の第1の表面に第2の層が積層されていることが好ましい。第1の層の第1の表面側のみに第2の層が配置されており、かつ第1の層の第2の表面側に第3の層が配置されていなくてもよい。但し、第1の層の第1の表面側に第2の層が配置されており、かつ第1の層の第2の表面側に第3の層が配置されていることが好ましい。第1の層の第2の表面に、第3の層が積層されていることが好ましい。第1の層の第2の表面に第3の層が積層されていることにより、中間膜1を用

10

20

30

40

50

いた合わせガラスの耐貫通性をより一層高めることができる。

【0070】

ところで、遮音性が高められた多層構造を有する合わせガラス用中間膜では、合わせガラスに発泡が生じやすいという問題がある。このような問題に対して、本発明者らは、多層構造を有する合わせガラス用中間膜では、各層間で可塑剤が移行し、この結果、可塑剤の含有量が多い層が形成されること、例えば、第2，第3の層から第1の層に可塑剤が移行し、この結果、第1の層の可塑剤の含有量が多くなることを見出した。さらに、可塑剤の含有量が多い層が形成されると、すなわち第1の層中の可塑剤の含有量が多くなると、合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスに発泡が生じやすくなり、更に発泡が一旦生じると、生じた発泡が核となって発泡が成長することも見出した。

10

【0071】

合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長を抑制する観点からは、第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記可塑剤の含有量が50重量部以上であり、第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率が、第2の層3中の上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率よりも低く、第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率と第2の層3中の上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率との差（以下、含有率差（1-2）と記載することがある）が、9.2モル%以下であり、更に第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率と第2の層3中の上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率との差（含有率差（1-2））が、8.5モル%を超え、9.2モル%以下である場合には、第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂のアセチル化度が8モル%以下であることが好ましい。上記含有率差（1-2）は、8.5モル%を超えかつ9.2モル%以下であってもよく、更に8.5モル%以下であってもよい。

20

【0072】

また、第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率が、第3の層4中の上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率よりも低く、第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率と第3の層4中の上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率との差（以下、含有率差（1-3）と記載することがある）が、9.2モル%以下であり、更に第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率と第3の層4中の上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率との差（含有率差（1-3））が、8.5モル%を超え、9.2モル%以下である場合には、第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂のアセチル化度が8モル%以下であることが好ましい。但し、含有率差（1-3）が、8.5モル%以下であっても、含有率差（1-2）が8.5モル%を超え、9.2モル%以下である場合には、第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂のアセチル化度は8モル%以下であることが好ましい。上記含有率差（1-3）は、8.5モル%を超え、9.2モル%以下であってもよく、更に8.5モル%以下であってもよい。

30

【0073】

本発明者らは、上記発泡の発生及び発泡の成長を抑制するために鋭意検討した結果、第1～第3の層中のポリビニルアセタール樹脂の各水酸基の含有率を上記のように制御することにより、合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長を充分に抑制できることを見出した。可塑剤の移行を抑制でき、かつ合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長を充分に抑制できるため、各層の可塑剤の含有量、特に第1の層2中の可塑剤の含有量を多くすることができる。このため、合わせガラスの遮音性をより一層高めることができる。

40

【0074】

なお、第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記可塑剤の含有量が、第2，第3の層3，4中の上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記可塑剤の含有量よりも多いと、発泡がより一層生じやすい傾向がある。さらに、発泡が一旦生じると、発生した発泡が核となり、発泡が成長する傾向がある。これに対し

50

て、第1～第3の層中のポリビニルアセタール樹脂の各水酸基の含有率を上記のように制御することにより、合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長を充分に抑制できる。

【0075】

合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長をより一層抑制する観点からは、第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率と第2，第3の層3，4中の上記ポリビニルアセタール樹脂の各水酸基の含有率との差（含有率差（1-2）及び含有率差（1-3））の好ましい下限は0.1モル%、より好ましい下限は1モル%、更に好ましい下限は2モル%、好ましい上限は8.5モル%、より好ましい上限は7.8モル%、更に好ましい上限は7モル%、特に好ましい上限は5.6モル%である。合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長を更に一層抑制することができるところから、第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率と第2，第3の層3，4中の上記ポリビニルアセタール樹脂の各水酸基の含有率との差（含有率差（1-2）及び含有率差（1-3））は好ましくは5モル%以下、より好ましくは4.5モル%以下、より一層好ましくは4モル%以下、更に好ましくは3.5モル%以下である。

10

【0076】

また、第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂は、絶対分子量100万以上の高分子量成分（以下、高分子量成分Xと記載することがある）を含むか、又は第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂は、ポリスチレン換算分子量（以下、分子量yと記載することがある）100万以上の高分子量成分（以下、高分子量成分Yと記載することがある）を含むことが好ましい。該高分子量成分X，Yは、ポリビニルアセタール樹脂である。第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂に占める、上記高分子量成分Xの割合が7.4%以上であるか、又は第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂に占める、上記高分子量成分Yの割合が9%以上であることが好ましい。

20

【0077】

第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂が絶対分子量100万以上の高分子量成分Xを上記特定の割合で含むことで、合わせガラスに発泡が生じるのを抑制できる。第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂の分子量yが100万以上である高分子量成分Yを上記特定の割合で含んでいても、合わせガラスに発泡が生じるのを抑制できる。

【0078】

30

なお、第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂に占める、上記高分子量成分Xの割合は、上記絶対分子量を測定する際に得られるポリビニルアセタール樹脂成分のピーク面積に占める、上記高分子量成分Xに相当する領域の面積の割合を百分率（%）で表した値で定義される。また、第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂に占める、上記高分子量成分Yの割合は、上記ポリスチレン換算分子量を測定する際に得られるポリビニルアセタール樹脂成分のピーク面積に占める、上記高分子量成分Yに相当する領域の面積の割合を百分率（%）で表した値で定義される。

【0079】

第2，第3の層3，4の組成はそれぞれ、第1の層2の組成と異なることが好ましい。第2，第3の層3，4中の上記ポリビニルアセタール樹脂は、絶対分子量100万以上の高分子量成分Xを含み、かつ第2，第3の層3，4中の上記ポリビニルアセタール樹脂に占める、上記高分子量成分Xの割合が7.4%以上であってもよく、分子量yが100万以上である高分子量成分Yを含み、かつ第2，第3の層3，4中の上記ポリビニルアセタール樹脂に占める、上記高分子量成分Yの割合が9%以上であってもよい。

40

【0080】

合わせガラスの遮音性をより一層高め、かつ発泡の発生及び発泡の成長をより一層抑制する観点からは、第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂に占める、絶対分子量100万以上の高分子量成分Xの割合の好ましい下限は8%、より好ましい下限は8.5%、更に好ましい下限は9%、特に好ましい下限は9.5%、最も好ましい下限は10%である。合わせガラスの遮音性をより一層高め、かつ発泡の発生及び発泡の成長を更に一層

50

抑制できることから、高分子量成分Xの割合は、好ましくは11%以上、より好ましくは12%以上、更に好ましくは14%以上、特に好ましくは16%以上である。上記高分子量成分Xの割合の上限は特に限定されないが、好ましい上限は40%、より好ましい上限は30%、更に好ましい上限は25%である。

【0081】

第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂が、分子量yが100万以上である高分子量成分Yを含む場合には、高分子量成分Yを含む第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂に占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Yの割合の好ましい下限は10%、より好ましい下限は11%、更に好ましい下限は11.5%、特に好ましい下限は12%である。合わせガラスの遮音性をより一層高め、かつ発泡の発生及び発泡の成長を更に一層抑制できることから、高分子量成分Yの割合は、好ましくは12.5%以上、より好ましくは13.5%以上、更に好ましくは14%以上、特に好ましくは15%以上、最も好ましくは18%以上である。上記高分子量成分Yの割合の上限は特に限定されないが、好ましい上限は40%、より好ましい上限は30%、更に好ましい上限は25%である。高分子量成分Yの割合が上記下限以上であると、合わせガラスの遮音性をより一層高め、かつ発泡の発生及び発泡の成長をより一層抑制することができる。10

【0082】

第1の層2に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部と、可塑剤としてトリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(3GO)60重量部とを含む樹脂膜Aを用いて、該樹脂膜Aの粘弾性を測定した場合(試験法A)に、該樹脂膜Aのガラス転移温度をTg()としたときに、(Tg+80)での弾性率G'(Tg+80)の(Tg+30)での弾性率G'(Tg+30)に対する比(G'(Tg+80)/G'(Tg+30))が、0.65以上であることが好ましい。20

【0083】

第1の層2を樹脂膜Bとして用いて、該樹脂膜Bの粘弾性を測定した場合(試験法B)に、該樹脂膜Bのガラス転移温度をTg()としたときに、(Tg+80)での弾性率G'(Tg+80)の(Tg+30)での弾性率G'(Tg+30)に対する比(G'(Tg+80)/G'(Tg+30))が、0.65以上であることも好ましい。

【0084】

上記試験法Bでは、第1の層2が上記樹脂膜Bとして用いられ、第1の層2自体が樹脂膜Bである。30

【0085】

上記樹脂膜Bは、第1の層2であり、上記ポリビニルアセタール樹脂と上記可塑剤とを第1の層2中での重量比で含む。上記試験法Bでは、合わせガラス用中間膜1において可塑剤を移行させた後に、上記弾性率G'(Tg+80)及び弾性率G'(Tg+30)を測定することが好ましい。上記試験法Bでは、合わせガラス用中間膜1を湿度30%(±3%、温度23℃)に1ヶ月間保管して、合わせガラス用中間膜1において可塑剤を移行させた後に、上記弾性率G'(Tg+80)及び弾性率G'(Tg+30)を測定することがより好ましい。

【0086】

本発明者らは、上記発泡の発生及び発泡の成長を抑制するために鋭意検討した結果、上記試験法A又は上記試験法Bによる上記比(G'(Tg+80)/G'(Tg+30))が、0.65以上であることにより、合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長を充分に抑制できることも見出した。第1の層2中の上記可塑剤の含有量が多くても、合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長を充分に抑制できるため、合わせガラスの遮音性を高めることができる。特に、上記比(G'(Tg+80)/G'(Tg+30))が0.65以上であるように構成された第1の層2の両面に第2、第3の層3、4が積層された合わせガラス用中間膜1の使用により、合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長をより一層抑制できる。40

【0087】

上記比($G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)$)は、0.65以上であり、好ましくは1.0以下である。上記比($G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)$)が0.65以上であると、かなり過酷な条件で又は長期間にわたり合わせガラスが保管されたとしても、合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長を十分に抑制できる。また、上記比($G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)$)が上記下限以上及び上記上限以下であると、かなり過酷な条件で又は長期間にわたり合わせガラスが保管されたとしても、合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長をより一層効果的に抑制できる。

【0088】

また、合わせガラスの遮音性を充分に高める観点からは、第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記可塑剤の含有量は40重量部以上であることが好ましい。上記第1の層の可塑剤の含有量が多くても、上記比($G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)$)が0.65以上であるように上記第1の層を構成することによって、合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長を抑制できる。

【0089】

上記ガラス転移温度 Tg ()は、上記粘弾性の測定により得られた測定結果から得られる損失正接 $\tan \delta$ のピーク温度を示す。合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長をより一層抑制する観点からは、上記比($G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)$)は、より好ましくは0.7以上、より好ましくは0.95以下であり、さらに好ましくは0.75以上、さらに好ましくは0.9以下である。特に、上記比($G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)$)をポリビニルアルコール樹脂の平均重合度で制御する場合、合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長を十分に抑制し、かつ合わせガラスの遮音性をより一層高めることができることから、上記比($G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)$)は、好ましくは0.65以上、より好ましくは0.66以上、更に好ましくは0.67以上、特に好ましくは0.7以上、好ましくは0.82以下、より好ましくは0.8以下である。更に、上記比($G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)$)が0.82以下、又は、0.8以下であると、中間膜を容易に成形することができる。

【0090】

上記試験法A又は上記試験法Bによる上記比($G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)$)を0.65以上にする方法としては、第1の層2中のポリビニルアセタール樹脂を合成する際に、平均重合度が比較的高いポリビニルアルコール樹脂を使用する方法や、第1の層2中のポリビニルアセタール樹脂の分子間の相互作用を強くする方法等が挙げられる。上記第1の層2中のポリビニルアセタール樹脂の分子間の相互作用を強くする方法として、該ポリビニルアセタール樹脂の分子間を物理的に架橋する方法や、化学的に架橋する方法が挙げられる。なかでも、中間膜1を押出機にて容易に成形することができることから、第1の層2中のポリビニルアセタール樹脂を合成する際に、平均重合度が比較的高いポリビニルアルコール樹脂を使用する方法や第1の層2中のポリビニルアセタール樹脂の分子間を物理的に架橋する方法が好ましい。

【0091】

上記粘弾性の測定により得られる損失正接 $\tan \delta$ と温度との関係及び弾性率 G' と温度との関係の一例を、図10を用いて説明する。

【0092】

損失正接 $\tan \delta$ と温度とは、図10に示すような関係にある。損失正接 $\tan \delta$ のピークPにおける温度がガラス転移温度 Tg である。

【0093】

また、図10に示す破線A2の弾性率 G' におけるガラス転移温度 Tg と、実線A1の弾性率 G' におけるガラス転移温度 Tg とは同じ温度である。例えば、弾性率 $G' (Tg + 30)$ を基準として弾性率 $G' (Tg + 80)$ の変化量Dが小さいほど、合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長を効果的に抑制できる。実線A1の弾性率 G' における変化量D1は、破線A2の弾性率 G' における変化量D2よりも小さい。従って、図10においては、変化量D2が比較的大きい破線A2の弾性率 G' を示す場合よりも、変化

10

20

30

40

50

量D1が比較的小さい実線A1の弾性率G'を示す場合の方が、合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長を効果的に抑制できる。

【0094】

上記G' (Tg + 30)は、20万Pa以上であることが好ましい。上記G' (Tg + 30)は、より好ましくは22万Pa以上、さらに好ましくは23万Pa以上、特に好ましくは24万Pa以上、好ましくは1000万Pa以下、より好ましくは500万Pa以下、特に好ましくは100万Pa以下、最も好ましくは50万Pa以下、更に最も好ましくは30万Pa以下である。上記G' (Tg + 30)が上記下限以上であると、合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長をより一層効果的に抑制できる。

【0095】

なお、上記弾性率G' と温度との関係は、ポリビニルアセタール樹脂の種類に大きく影響され、特にポリビニルアセタール樹脂を得るために用いられる上記ポリビニルアルコール樹脂の平均重合度に大きく影響され、可塑剤の種類には大きく影響されず、一般的の可塑剤の含有量では該可塑剤の含有量に大きく影響されない。可塑剤として3GOにかえて3GO以外の一塩基性有機酸エステル等の可塑剤を用いた場合の上記比 (G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30))、特に可塑剤としてトリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート (3GH) 及びトリエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート (3G7) を用いた場合の上記比 (G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)) は、3GOを用いた場合の上記比 (G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)) と大きく相違しない。また、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、可塑剤の含有量が50~80重量部である場合に、上記比 (G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)) は大きく相違しない。ポリビニルアセタール樹脂100重量部と、可塑剤としてトリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート (3GO) 60重量部とを含む樹脂膜を用いて測定された上記比 (G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)) は、第1の層2自体を用いて測定された上記比 (G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)) と大きな差異はない。上記試験法A及び上記試験法Bにて得られる上記比 (G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)) が共に0.65以上であることが好ましいが、上記試験法Bにて得られる上記比 (G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)) が0.65以上であることがより好ましい。

【0096】

また、合わせガラス用中間膜における発泡の発生を抑制するために、第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂が、平均重合度が3000を超えるポリビニルアルコール樹脂をアセタール化することにより得られていることも好ましい。この場合に、上記比 (G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)) は、0.65以上でなくてもよいが、0.65以上であることが好ましい。また、合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長をより一層抑制する観点からは、第1の層2中の平均重合度が3000を超えるポリビニルアルコール樹脂をアセタール化することにより得られている上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記可塑剤の含有量が、40重量部以上であることが好ましい。さらに、合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長をより一層抑制する観点からは、第1の層2中の平均重合度が3000を超えるポリビニルアルコール樹脂をアセタール化することにより得られている上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率が、30モル%以下であることが好ましい。

【0097】

また、合わせガラスの遮音性をより一層高める観点からは、第1の層2中の上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記可塑剤の含有量は好ましくは40重量部以上、より好ましくは50重量部以上、更に好ましくは55重量部以上、特に好ましくは60重量部以上である。このように第1の層2中の可塑剤の含有量が多くても、第1~第3の層中のポリビニルアセタール樹脂の各水酸基の含有率を上記のように制御したり、上記絶対分子量100万以上の高分子量成分Xの割合又は上記分子量yが100万以上である高分子量成分Yの割合を制御したり、上記比 (G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)) を制御したりすることで、合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長をより一層

10

20

30

40

50

効果的に抑制できる。

【0098】

以下、本発明に係る合わせガラス用中間膜を構成する第1～第3の層の詳細、並びに該第1～第3の層に含まれているポリビニルアセタール樹脂及び可塑剤の詳細を説明する。

【0099】

(熱可塑性樹脂)

上記第1の層は、ポリビニルアセタール樹脂(1)を含む。上記第2の層は、熱可塑性樹脂を含むことが好ましく、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)を含むことがより好ましい。上記第3の層は、熱可塑性樹脂を含むことが好ましく、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)を含むことがより好ましい。第2、第3の層に含まれている熱可塑性樹脂が、ポリビニルアセタール樹脂(2)、(3)であると、第2、第3の層と合わせガラス構成部材との接着力が充分に高くなる。

【0100】

上記熱可塑性樹脂としては、ポリビニルアセタール樹脂、エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂、エチレン-アクリル共重合体樹脂、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。

【0101】

上記ポリビニルアセタール樹脂(1)～(3)は、例えば、ポリビニルアルコール樹脂をアルデヒドによりアセタール化することにより製造できる。上記ポリビニルアルコール樹脂は、例えば、ポリ酢酸ビニルをケン化することにより得られる。上記ポリビニルアルコール樹脂のケン化度は、一般に70～99.9モル%の範囲内であり、75～99.8モル%の範囲内であることが好ましく、80～99.8モル%の範囲内であることがより好ましい。

【0102】

上記ポリビニルアセタール樹脂(1)～(3)を得るための上記ポリビニルアルコール樹脂の平均重合度は、好ましくは200以上、より好ましくは500以上、更に好ましくは1600以上、特に好ましくは2600以上、最も好ましくは2700以上、好ましくは5000以下、より好ましくは4000以下、更に好ましくは3500以下である。上記平均重合度が上記下限以上であると、合わせガラスの耐貫通性がより一層高くなる。上記平均重合度が上記上限以下であると、中間膜の成形が容易になる。

【0103】

合わせガラスの耐貫通性をより一層高める観点からは、上記ポリビニルアルコール樹脂の平均重合度は、2700以上、5000以下であることが特に好ましい。

【0104】

合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長をさらに一層抑制する観点からは、上記第1の層中のポリビニルアセタール樹脂(1)を得るために用いられる上記ポリビニルアルコール樹脂の平均重合度の好ましい下限は3010、好ましい下限は3050、好ましい下限は3500、好ましい下限は3600、好ましい下限は4000、好ましい下限は4050、好ましい上限は7000、好ましい上限は6000、好ましい上限は5000、好ましい上限は4900、好ましい上限は4500である。特に、合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長をより一層抑制し、合わせガラスの遮音性を充分に高め、かつ中間膜を容易に成形できることから、上記第1の層中のポリビニルアセタール樹脂(1)を得るために用いられる上記ポリビニルアルコール樹脂の平均重合度は3010以上であることが好ましく、3020以上であることがより好ましく、4000以下であることが好ましく、4000未満であることがより好ましく、3800以下であることが更に好ましく、3600以下であることが特に好ましく、3500以下であることが最も好ましい。

【0105】

また、上記第2、3の層中のポリビニルアセタール樹脂(2)、(3)は、ポリビニル

10

20

30

40

50

アルコール樹脂をアセタール化することにより製造できる。上記第2，3の層中のポリビニルアセタール樹脂(2)，(3)を得るためのポリビニルアルコール樹脂の平均重合度の好ましい下限は200、より好ましい下限は500、更に好ましい下限は1000、特に好ましい下限は1500、好ましい上限は4000、より好ましい上限は3500、更に好ましい上限は3000、特に好ましい上限は2500である。上記平均重合度が上記好ましい下限を満たすと、合わせガラスの耐貫通性をより一層高めることができる。上記平均重合度が上記好ましい上限を満たすと、中間膜の成形が容易になる。

【0106】

上記第1の層中のポリビニルアセタール樹脂(1)を得るために用いるポリビニルアルコール樹脂の平均重合度は、上記第2，3の層中のポリビニルアセタール樹脂(2)，(3)を得るために用いるポリビニルアルコール樹脂の平均重合度よりも高いことが好ましく、500以上高いことが好ましく、800以上高いことが好ましく、1000以上高いことがより好ましく、1300以上高いことが更に好ましく、1800以上高いことが特に好ましい。10

【0107】

なお、上記ポリビニルアルコール樹脂の平均重合度は、JIS K 6726「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。

【0108】

上記ポリビニルアセタール樹脂に含まれているアセタール基の炭素数は特に限定されない。上記ポリビニルアセタール樹脂を製造する際に用いるアルデヒドは特に限定されない。上記ポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール基の炭素数は3～5であることが好ましく、3又は4であることがより好ましい。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3以上であると、中間膜のガラス転移温度が充分に低くなり、低温における固体音の遮音性がより一層高くなる。20

【0109】

上記アルデヒドは特に限定されない。上記アルデヒドとして、一般には、炭素数が1～10のアルデヒドが好適に用いられる。上記炭素数が1～10のアルデヒドとしては、例えば、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-バニルアルデヒド、2-エチルブチルアルデヒド、n-ヘキシリアルデヒド、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、アセトアルデヒド及びベンズアルデヒド等が挙げられる。なかでも、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-ヘキシリアルデヒド又はn-バニルアルデヒドが好ましく、プロピオンアルデヒド、n-ブチルアルデヒド又はイソブチルアルデヒドがより好ましく、n-ブチ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。30

【0110】

上記ポリビニルアセタール樹脂は、ポリビニルブチラール樹脂であることが好ましい。本発明に係る合わせガラス用中間膜は、上記第1～第3の層に含まれている上記ポリビニルアセタール樹脂としてそれぞれ、ポリビニルブチラール樹脂を含むことが好ましい。ポリビニルブチラール樹脂の合成は容易である。さらに、ポリビニルブチラール樹脂の使用により、合わせガラス構成部材に対する中間膜の接着力がより一層適度に発現する。さらに、耐光性及び耐候性等をより一層高めることができる。40

【0111】

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、0モル%以上、36モル%以下である。上記水酸基の含有率が上記上限以下であると、合わせガラスの高周波域での遮音性が高くなり、更に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。合わせガラスの高周波域での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(水酸基量)は、より好ましくは35モル%以下、更に好ましくは30モル%以下、特に好ましくは25モル%以下、特に好ましくは20モル%、特に好ましくは15モル%以下、特に好ましくは10モル%以下である。合わ50

せガラスの高周波域での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低いほどよい。上記ポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率は0モル%であってもよい。

【0112】

上記ポリビニルアセタール樹脂(2), (3)の水酸基の含有率(水酸基量)はそれぞれ、好ましくは20モル%以上、好ましくは50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、合わせガラスの耐貫通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、可塑剤のブリードアウトが生じ難くなる。さらに、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。合わせガラスの高周波域での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(2), (3)の水酸基の含有率(水酸基量)はそれぞれ、より好ましくは25モル%以上、更に好ましくは28モル%以上、特に好ましくは30モル%以上、より好ましくは45モル%以下、更に好ましくは40モル%以下、特に好ましくは35モル%以下である。10

【0113】

合わせガラスの遮音性をより一層高める観点からは、上記第1の層に含まれているポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率は、上記第2, 第3の層に含まれているポリビニルアセタール樹脂(2), (3)の水酸基の各含有率よりも低いことが好ましい。合わせガラスの遮音性をさらに一層高める観点からは、上記第1の層に含まれているポリビニルアセタール樹脂(1)の水酸基の含有率は、上記第2, 第3の層に含まれているポリビニルアセタール樹脂(2), (3)の水酸基の各含有率よりも1モル%以上低いことが好ましく、3モル%以上低いことがより好ましく、5モル%以上低いことが更に好ましく、7モル%以上低いことが特に好ましく、10モル%以上低いことが特に好ましく、15モル%以上低いことが特に好ましく、20モル%以上低いことが特に好ましい。20

【0114】

上記ポリビニルアセタール樹脂(1)~(3)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(モル%)で表した値である。上記水酸基が結合しているエチレン基量は、例えば、JIS K 6726「ポリビニルアルコール試験方法」に準拠して、水酸基が結合しているエチレン基量を測定することにより求めることができる。

【0115】

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、0モル%以上であり、30モル%以下である。合わせガラスの高周波域での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)のアセチル化度(アセチル基量)は、より好ましくは10モル%以上、更に好ましくは15モル%以上、特に好ましくは20モル%以上、より好ましくは28モル%以下、更に好ましくは25モル%以下である。30

【0116】

上記ポリビニルアセタール樹脂(2), (3)のアセチル化度はそれぞれ、0モル%以上であり、好ましくは10モル%以下である。上記アセチル化度が上記上限以下であると、合わせガラスの高周波域での遮音性がより一層高くなり、更に中間膜の強度が高くなり、機械物性が向上する。合わせガラスの高周波域での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(2), (3)のアセチル化度はそれぞれ、より好ましくは8モル%以下、より好ましくは3モル%未満である。上記ポリビニルアセタール樹脂(2), (3)のアセチル化度はそれぞれ、より好ましくは0.1モル%以上、特に好ましくは2モル%以下である。また、上記ポリビニルアセタール樹脂(2), (3)のアセチル化度が3モル%未満であると、中間膜の機械物性がより一層向上する。この結果、合わせガラスの耐貫通性をより一層向上できる。40

【0117】

上記アセチル化度は、主鎖の全エチレン基量から、アセタール基が結合しているエチレン基量と、水酸基が結合しているエチレン基量とを差し引いた値を、主鎖の全エチレン基量で除算して求めたモル分率を百分率(モル%)で表した値である。上記アセタール基が50

結合しているエチレン基量は、例えば、JIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠して測定できる。

【0118】

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はブチラール化度)は、34モル%以上、好ましくは40モル%以上、より好ましくは45モル%以上、100モル%以下、好ましくは95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、特に好ましくは65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(1)と可塑剤との相溶性が高くなり、ブリードアウトを抑制できる。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(1)を製造するために必要な反応時間が短くなる。

10

【0119】

上記ポリビニルアセタール樹脂(2), (3)のアセタール化度(ポリビニルブチラール樹脂の場合はブチラール化度)は、好ましくは55モル%以上、より好ましくは60モル%以上、更に好ましくは63モル%以上、好ましくは85モル%以下、より好ましくは75モル%以下、更に好ましくは70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(2), (3)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(2), (3)を製造するために必要な反応時間が短くなる。

【0120】

20

上記アセタール化度は、アセター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(モル%)で表した値である。

【0121】

上記アセタール化度は、JIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により、アセチル化度(アセチル基量)と水酸基の含有率(ビニルアルコール量)とを測定し、得られた測定結果からモル分率を算出し、次いで、100モル%からアセチル化度と水酸基の含有率とを差し引くことにより算出され得る。

【0122】

なお、ポリビニルアセタール樹脂である場合には、及び、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には、上記アセタール化度(ブチラール化度)及びアセチル化度は、JIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」またはASTM D 1396-92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。ASTM D 1396-92に準拠した方法による測定が好ましい。

30

【0123】

可塑剤の移行を容易に制御でき、合わせガラスの遮音性をより一層高めることができるところから、上記含有率差(1-2)が、8.5モル%以下である場合には、上記第1の層中の上記ポリビニルアセタール樹脂(1)のアセチル化度が8モル%を超えることが好ましい。可塑剤の移行を容易に制御でき、合わせガラスの遮音性をより一層高めることができることから、上記含有率差(1-3)が、8.5モル%以下である場合には、上記第1の層中の上記ポリビニルアセタール樹脂(1)のアセチル化度が8モル%を超えることが好ましい。

40

【0124】

可塑剤の移行を容易に制御でき、合わせガラスの遮音性をより一層高めることができるところから、上記含有率差(1-2)が、8.5モル%を超え、9.2モル%以下である場合又は上記含有率差(1-2)が、9.2モル%以下である場合には、上記第1の層中の上記ポリビニルアセタール樹脂(1)のアセタール化度が68モル%以上であるか、又は水酸基の含有率が31.5モル%未満であることが好ましい。可塑剤の移行を容易に制御でき、合わせガラスの遮音性をより一層高めることができることから、上記含有率差(1-3)が、8.5モル%を超え、9.2モル%以下である場合又は上記含有率差(1-3)が、9.2モル%以下である場合には、上記第1の層中の上記ポリビニルアセタール樹

50

脂(1)のアセタール化度が68モル%以上であるか、又は水酸基の含有率が31.5モル%未満であることが好ましい。

【0125】

更に、合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長をより一層抑制することができ、合わせガラスの遮音性をより一層高めることができることから、上記第1の層に含まれているポリビニルアセタール樹脂(1)は、アセチル化度が8モル%未満である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A」ともいう)、又は、アセチル化度が8モル%以上である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B」ともいう)であることが好ましい。

【0126】

上記ポリビニルアセタール樹脂Aのアセチル化度aは8モル%未満であり、7.5モル%以下であることが好ましく、7モル%以下であることが好ましく、6モル%以下であることが好ましく、5モル%以下であることが好ましく、0.1モル%以上であることが好ましく、0.5モル%以上であることが好ましく、0.8モル%以上であることが好ましく、1モル%以上であることが好ましく、2モル%以上であることが好ましく、3モル%以上であることが好ましく、4モル%以上であることが好ましい。上記アセチル化度aが上記上限以下及び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より一層高くなり、合わせガラスの遮音性をより一層高めることができる。

【0127】

上記ポリビニルアセタール樹脂Aのアセタール化度aの好ましい下限は68モル%、より好ましい下限は70モル%、更に好ましい下限は71モル%、特に好ましい下限は72モル%、好ましい上限は85モル%、より好ましい上限は83モル%、更に好ましい上限は81モル%、特に好ましい上限は79モル%である。上記アセタール化度aが上記下限以上であると、合わせガラスの遮音性をより一層高めることができる。上記アセタール化度aが上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂Aを製造するために必要な反応時間を短縮できる。

【0128】

上記ポリビニルアセタール樹脂Aの水酸基の含有率aは30モル%以下であることが好ましく、27.5モル%以下であることが好ましく、27モル%以下であることが好ましく、26モル%以下であることが好ましく、25モル%以下であることが好ましく、24モル%以下であることが好ましく、23モル%以下であることが好ましく、16モル%以上であることが好ましく、18モル%以上であることが好ましく、19モル%以上であることが好ましく、20モル%以上であることが好ましい。上記水酸基の含有率aが上記上限以下であると、合わせガラスの遮音性をより一層高めることができる。上記水酸基の含有率aが上記下限以上であると、中間膜の接着力をより一層高くすることができる。

【0129】

上記ポリビニルアセタール樹脂Aはポリビニルブチラール樹脂であることが好ましい。

【0130】

上記ポリビニルアセタール樹脂Bのアセチル化度bは、8モル%以上であり、9モル%以上であることが好ましく、10モル%以上であることが好ましく、11モル%以上であることが好ましく、12モル%以上であることが好ましく、30モル%以下であることが好ましく、28モル%以下であることが好ましく、26モル%以下であることが好ましく、24モル%以下であることが好ましく、20モル%以下であることが好ましく、19.5モル%以下であることが好ましい。上記アセチル化度bが上記下限以上であると、合わせガラスの遮音性をより一層高めることができる。上記アセチル化度bが上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂Bを製造するために必要な反応時間を短縮できる。なかでも、ポリビニルアセタール樹脂Bを製造するために必要な反応時間をより一層短縮できることから、上記ポリビニルアセタール樹脂Bのアセチル化度bは20モル%未満であることが好ましい。

【0131】

10

20

30

40

50

上記ポリビニルアセタール樹脂Bのアセタール化度bの好ましい下限は50モル%、より好ましい下限は52.5モル%、更に好ましい下限は54モル%、特に好ましい下限は60モル%、好ましい上限は80モル%、より好ましい上限は77モル%、更に好ましい上限は74モル%、特に好ましい上限は71モル%である。上記アセタール化度bが上記下限以上であると、合わせガラスの遮音性をより一層高めることができる。上記アセタール化度bが上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂Bを製造するために必要な反応時間を短縮できる。

【0132】

上記ポリビニルアセタール樹脂Bの水酸基の含有率bは30モル%以下であることが好ましく、27.5モル%以下であることが好ましく、27モル%以下であることが好ましく、26モル%以下であることが好ましく、25モル%以下であることが好ましく、18モル%以上であることが好ましく、20モル%以上であることが好ましく、22モル%以上であることが好ましく、23モル%以上であることが好ましい。上記水酸基の含有率bが上記上限以下であると、合わせガラスの遮音性をより一層高めることができる。上記水酸基の含有率bが上記下限以上であると、中間膜の接着力をより一層高くすることができる。

10

【0133】

上記ポリビニルアセタール樹脂Bはポリビニルブチラール樹脂であることが好ましい。

【0134】

上記ポリビニルアセタール樹脂A及び上記ポリビニルアセタール樹脂Bは、平均重合度が3000を超えるポリビニルアルコール樹脂をアルデヒドによりアセタール化することで得られることが好ましい。上記アルデヒドは炭素数1～10のアルデヒドであることが好ましく、炭素数4又は5のアルデヒドであることがより好ましい。上記ポリビニルアルコール樹脂の平均重合度の好ましい下限は3010、好ましい下限は3050、好ましい下限は3500、好ましい下限は3600、好ましい下限は4000、好ましい下限は4050、好ましい上限は7000、好ましい上限は6000、好ましい上限は5000、好ましい上限は4900、好ましい上限は4500である。上記第1の層中の上記ポリビニルアセタール樹脂A，Bは、平均重合度が3000を超える、4000未満であるポリビニルアルコール樹脂をアセタール化することにより得られていることが特に好ましい。特に、合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長をより一層抑制し、合わせガラスの遮音性を充分に高め、かつ中間膜を容易に成形できることから、上記第1の層中のポリビニルアセタール樹脂A，Bを得るために用いられる上記ポリビニルアルコール樹脂の平均重合度は3010以上であることが好ましく、3020以上であることがより好ましく、4000以下であることが好ましく、4000未満であることがより好ましく、3800以下であることが更に好ましく、3600以下であることが特に好ましく、3500以下であることが最も好ましい。

20

【0135】

上記ポリビニルアセタール樹脂(1)～(3)の重量平均分子量の好ましい下限は100,000、より好ましい下限は300,000、好ましい上限は10,000,000、より好ましい上限は5,000,000である。上記ポリビニルアセタール樹脂の重量平均分子量が上記好ましい下限以下であると、中間膜の強度が低下することがある。上記ポリビニルアセタール樹脂の重量平均分子量が上記好ましい上限を超えると、得られる中間膜の強度が強くなりすぎることがある。なお、上記重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)測定によるポリスチレン換算での重量平均分子量を示す。

30

【0136】

なお、上記重量平均分子量及び上記数平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)測定によるポリスチレン換算での重量平均分子量及び数平均分子量を示す。例えば、ポリスチレン換算での重量平均分子量及び数平均分子量を測定するために、分子量既知のポリスチレン標準試料のGPC測定を行う。ポリスチレン標準試料(昭和

40

50

電工社製「Shodex Standard SM-105」、「Shodex Standard SH-75」として、重量平均分子量 580、1,260、2,960、5,000、10,100、21,000、28,500、76,600、196,000、630,000、1,130,000、2,190,000、3,150,000、3,900,000 の 14 試料を用いる。それぞれの標準試料ピークのピークトップが示す溶出時間に対して分子量をプロットし得られる近似直線を検量線として使用する。恒温恒湿室（湿度 30%（±3%）、温度 23℃）に 1 ヶ月放置した多層中間膜から表面層（上記第 2、第 3 の層）と中間層（上記第 1 の層）とを剥離し、剥離された第 1 の層（中間層）をテトラヒドロフラン（THF）に溶解させ、0.1 重量% の溶液を調製する。得られた溶液を GPC 装置により分析し、重量平均分子量及び数平均分子量を測定できる。GPC 装置として、GPC 用光散乱検出器（VISCOTEK 社製「Model 270 (RALS+VISCO)」）が接続された GPC 装置（日立ハイテク社製「RI：L2490、オートサンプラー：L-2200、ポンプ：L-2130、カラムオーブン：L-2350、カラム：GL-A120-S と GL-A100MX-S の直列」）を用いて、上記重量平均分子量及び上記数平均分子量を分析できる。10

【0137】

（絶対分子量 100 万以上の高分子量成分 X 又は分子量 y が 100 万以上である高分子量成分 Y を含むポリビニルアセタール樹脂の製造方法）

絶対分子量 100 万以上の高分子量成分 X 又は分子量 y が 100 万以上である高分子量成分 Y を上記下限以上の割合で含む上記ポリビニルアセタール樹脂の一例として、絶対分子量 100 万以上の高分子量成分 X 又は分子量 y が 100 万以上である高分子量成分 Y を含むポリビニルアセタール樹脂の具体的な製造方法を以下説明する。20

【0138】

まず、ポリビニルアルコール樹脂を用意する。該ポリビニルアルコール樹脂は、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樹脂のけん化度は、一般に 70~99.9 モル% の範囲内であり、75~99.8 モル% の範囲内であることが好ましく、80~99.8 モル% の範囲内であることがより好ましい。

【0139】

上記ポリビニルアルコール樹脂の平均重合度の好ましい下限は 200、より好ましい下限は 500、更に好ましい下限は 1,000、特に好ましい下限は 1,500、好ましい上限は 3,000、より好ましい上限は 2,900、更に好ましい上限は 2,800、特に好ましい上限は 2,700 である。上記平均重合度が低すぎると、合わせガラスの耐貫通性が低下する傾向がある。上記平均重合度が高すぎると、中間膜の成形が困難となることがある。30

【0140】

次に、上記ポリビニルアルコール樹脂とアルデヒドとを触媒を用いて反応させ、ポリビニルアルコール樹脂をアセタール化する。このとき、上記ポリビニルアルコール樹脂を含む溶液を用いてもよい。該ポリビニルアルコール樹脂を含む溶液に用いられる溶媒としては、水等が挙げられる。

【0141】

上記第 1 の層に含まれているポリビニルアセタール樹脂の製造方法は、ポリビニルアルコール樹脂とアルデヒドとを触媒を用いて反応させ、ポリビニルアルコール樹脂をアセタール化することにより、ポリビニルアセタール樹脂を得る製造方法であることが好ましい。

【0142】

上記第 1 の層の製造方法は、ポリビニルアルコール樹脂とアルデヒドとを触媒を用いて反応させ、ポリビニルアルコール樹脂をアセタール化することにより、ポリビニルアセタール樹脂を得る工程と、得られたポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを混合した混合物を用いて、上記第 1 の層を得る工程とを備えることが好ましい。この第 1 の層を得る工程において、又は第 1 の層を得た後に、該第 1 の層に、第 2 の層を積層することにより、更4050

に必要に応じて第3の層を積層することにより、多層の中間膜を得ることができる。また、第1の層及び第2の層を共押出することにより多層の中間膜を製造してもよく、第1の層、第2の層及び第3の層を共押出することにより多層の中間膜を製造してもよい。

【0143】

上記アルデヒドは特に限定されない。上記アルデヒドとして、一般には、炭素数が1～10のアルデヒドが好適に用いられる。上記炭素数が1～10のアルデヒドとしては、例えば、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-ヘキシリアルデヒド、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、アセトアルデヒド及び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-ヘキシリアルデヒド又は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。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。

10

【0144】

絶対分子量100万以上又は分子量yが100万以上の高分子量成分X、Yを上記特定の割合で含むポリビニルアセタール樹脂を容易に得る観点からは、例えば、アルデヒドによるアセタール化反応の前又は途中で、隣接するポリビニルアルコール樹脂の主鎖を架橋させるために、ジアルデヒド等の架橋剤を添加する方法や、過剰のアルデヒドを投入することにより、分子間のアセタール化反応を進行させる方法や、重合度が高いポリビニルアルコール樹脂を添加する方法等が挙げられる。また、これらの方法は単独で用いられてもよいし、2種以上が併用されてもよい。

20

【0145】

上記触媒は、酸触媒であることが好ましい。該酸触媒としては、硝酸、塩酸、硫酸、リン酸及びパラトルエンスルホン酸等が挙げられる。

【0146】

上記ポリスチレン換算分子量は、ゲルバーミエーションクロマトグラフィー(GPC)測定によるポリスチレン換算での分子量を示す。上記ポリビニルアセタール樹脂に占める、上記分子量yが100万以上である高分子量成分Yの割合(%)は、上記ポリビニルアセタール樹脂のGPCによるポリスチレン換算分子量の測定時に、RI検出器で検出されるピーク面積のうち、分子量yが100万以上の領域に相当する面積の割合から算出される。なお、ピーク面積とは、測定の対象となる成分のピークとベースラインとの間の面積を意味する。

30

【0147】

ポリスチレン換算分子量は、例えば、以下のようにして測定される。

【0148】

ポリスチレン換算分子量を測定するために、分子量既知のポリスチレン標準試料のGPC測定を行う。ポリスチレン標準試料(昭和電工社製「Shodex Standard SM-105」、「Shodex Standard SH-75」)としては、重量平均分子量580、1,260、2,960、5,000、10,100、21,000、28,500、76,600、196,000、630,000、1,130,000、2,190,000、3,150,000、3,900,000の14試料を用いる。それぞれの標準試料ピークのピーカップが示す溶出時間に対して重量平均分子量をプロットし得られる近似直線を検量線として使用する。例えば、第2の層(表面層)と第1の層(中間層)と第3の層(表面層)とがこの順に積層された多層の中間膜における中間層中のポリビニルアセタール樹脂に占める、上記分子量yが100万以上である高分子量成分Yの割合(%)を測定する場合、恒温恒湿室(湿度30%(±3%)、温度23℃)に1ヶ月放置した多層の中間膜から表面層と中間層とを剥離する。剥離された中間層をテトラヒドロフラン(THF)に溶解させ、0.1重量%の溶液を調製する。得られた溶液をGPC装置により分析し、中間層中のポリビニルアセタール樹脂のピーク面積を測定する。次いで、中間層中のポリビニルアセタール樹脂の溶出時間と検量線から、中間層中のボ

40

50

リビニルアセタール樹脂のポリスチレン換算分子量が100万以上の領域に相当する面積を算出する。中間層中のポリビニルアセタール樹脂のポリスチレン換算分子量が100万以上の領域に相当する面積を、中間層中のポリビニルアセタール樹脂のピーク面積で除算した値を百分率(%)で表すことにより、上記ポリビニルアセタール樹脂に占める、上記分子量yが100万以上である高分子量成分Yの割合(%)を算出できる。例えば、Ge 1 Permeation Chromatography(GPC)装置(日立ハイテク社製「RI:L 2490、オートサンプラー:L-2200、ポンプ:L-2130、カラムオープン:L-2350、カラム:GL-A120-SとGL-A100MX-Sの直列」)を用いて、ポリスチレン換算分子量を測定することができる。

【0149】

10

(可塑剤)

第1の層は可塑剤(1)を含む。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。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。第1~第3の層に用いることが可能な各可塑剤(1)~(3)は特に限定されない。該可塑剤(1)~(3)として従来公知の可塑剤を用いることができる。上記可塑剤(1)~(3)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。

【0150】

20

上記可塑剤(1)~(3)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。上記可塑剤は液状可塑剤であることが好ましい。

【0151】

30

上記一塩基性有機酸エステルとしては、特に限定されず、例えば、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、並びにトリエチレングリコール又はトリプロピレングリコールと一塩基性有機酸との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。

【0152】

上記多塩基性有機酸エステルとしては、特に限定されず、例えば、多塩基性有機酸と、炭素数4~8の直鎖又は分岐構造を有するアルコールとのエステル化合物が挙げられる。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。

【0153】

上記有機エステル可塑剤としては、特に限定されず、トリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート、トリエチレングリコールジカブリレート、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ブリレート、アジピン酸ジヘキシル、アジピン酸ジオクチル、アジピン酸ヘキシルシクロヘキシル、アジピン酸ヘプチルとアジピン酸ノニルとの混合物、アジピン酸ジイソノニル、アジピン酸ジイソデシル、アジピン酸ヘプチルノニル、セバシン酸ジブチル、油変性セバシン酸アルキド、及びリン酸エステルとアジピン酸エステルと

40

50

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。

〔 0 1 5 4 〕

上記有機リン酸可塑剤としては、特に限定されず、例えば、トリプトキシエチルホスフェート、イソデシルフェニルホスフェート及びトリイソプロピルホスフェート等が挙げられる。

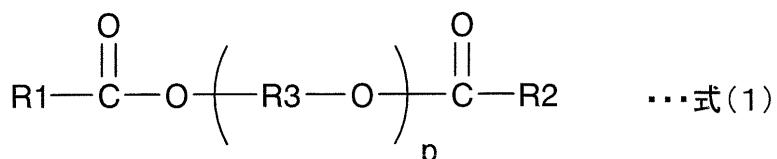
(0 1 5 5)

上記可塑剤(1)～(3)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。

[0 1 5 6]

【化 1】

10



[0 1 5 7]

上記式(1)中、R₁及びR₂はそれぞれ、炭素数5～10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。

20

[0 1 5 8]

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)及びトリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート(3GH)の内の少なくとも1種を含むことが好ましく、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエートを含むことがより好ましい。

[0 1 5 9]

上記可塑剤(1)～(3)は、SP値が13.5以上、14.5以下である可塑剤であることが好ましい。SP値が13.5～14.5である可塑剤の使用により、合わせガラスの高周波域での遮音性が効果的に高くなる。上記可塑剤(1)のSP値が13.5以上、14.5以下であることがより好ましい。

30

[0 1 6 0 1]

上記「SP値」は、Fedors法(R. F. Fedors, Polym. Eng. Sci., 14, 147(1974))を用いて算出することができる。上記SP値が上記範囲内であれば、可塑剤とポリビニルアセタール樹脂との相溶性が良好である。

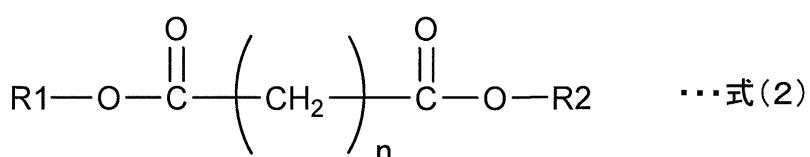
【0161】

中間膜及び合わせガラスの遮音性をより一層高める観点からは、上記可塑剤(1)～(3)は、下記式(2)で表されるジエステル可塑剤であることも好ましい。従って、上記可塑剤は、上記式(1)で表されるジエステル可塑剤であるか、又は下記式(2)で表されるジエステル可塑剤であることが好ましい。

[0 1 6 2]

【化 2】

48



[0 1 6 3]

上記式(2)中、R₁及びR₂はそれぞれ、エーテル結合を少なくとも1つ有する有機基を表し、nは2~8の整数を表す。

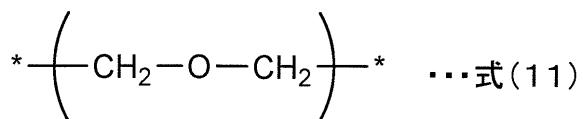
50

【0164】

中間膜及び合わせガラスの遮音性をより一層高める観点からは、上記式(2)中、R1及びR2はそれぞれ、下記式(11)又は下記式(12)で表されるエーテル結合構造単位を少なくとも1つ有することが好ましい。

【0165】

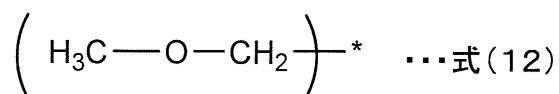
【化3】



10

【0166】

【化4】

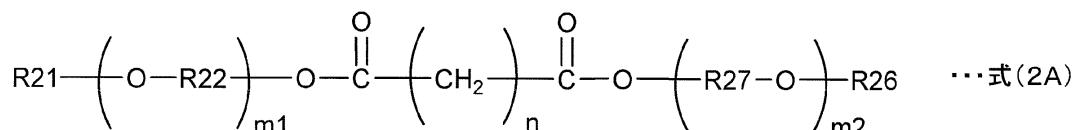


【0167】

中間膜及び合わせガラスの遮音性をより一層高める観点からは、上記可塑剤(1)～(3)は、下記式(2A)で表されるジエステル可塑剤であることが好ましい。 20

【0168】

【化5】



【0169】

上記式(2A)中、R21及びR26はそれぞれ、炭素数1～10のアルキル基を表し、R22及びR27はそれぞれ、炭素数1～10のアルキレン基を表し、m1及びm2はそれぞれ1～5の整数を表し、nは2～8の整数を表す。 30

【0170】

エーテル結合を少なくとも1つ有する有機基である場合の上記R1及びR2の具体例としては、2-ブトキシエチル基、2-(2-ブトキシエトキシ)エチル基、2-[2-(2-ブトキシエトキシ)エトキシ]エチル基等が挙げられる。ただし、上記R1及びR2は、これら以外の基であってもよい。

【0171】

上記第1の層において、上記ポリビニルアセタール樹脂(1)100重量部に対して、上記可塑剤(1)の含有量は好ましくは25重量部以上、より好ましくは30重量部以上、更に好ましくは45重量部以上、好ましくは75重量部以下、より好ましくは70重量部以下、更に好ましくは60重量部以下、特に好ましくは55重量部以下、最も好ましくは50重量部以下である。上記可塑剤(1)の含有量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。上記可塑剤(1)の含有量が上記上限以下であると、中間膜の透明性がより一層高くなる。 40

【0172】

上記第2の層(2)において、上記ポリビニルアセタール樹脂(2)100重量部に対して、上記可塑剤(2)の含有量は好ましくは10重量部以上、より好ましくは15重量部以上、更に好ましくは20重量部以上、特に好ましくは25重量部以上、最も好ましくは30重量部以上、好ましくは45重量部以下、より好ましくは40重量部以下である。 50

また、上記第3の層(3)において、上記ポリビニルアセタール樹脂(3)100重量部に対して、上記可塑剤(3)の含有量は好ましくは10重量部以上、より好ましくは15重量部以上、更に好ましくは20重量部以上、特に好ましくは25重量部以上、最も好ましくは30重量部以上、好ましくは45重量部以下、より好ましくは40重量部以下である。上記可塑剤(2), (3)の含有量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。上記可塑剤(2), (3)の含有量が上記上限以下であると、中間膜の耐貫通性がより一層高くなる。

【0173】

上記第2の層における上記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(以下、含有量(2)と記載することがある)は、上記第1の層における上記ポリビニルアセタール樹脂(1)100重量部に対する上記可塑剤(1)の含有量(以下、含有量(1)と記載することがある)よりも少ないことが好ましい。また、上記第3の層における上記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(以下、含有量(3)と記載することがある)は、上記第1の層における上記ポリビニルアセタール樹脂(1)100重量部に対する上記可塑剤(1)の含有量(以下、含有量(1)と記載することがある)よりも少ないことが好ましい。上記含有量(2), (3)が上記含有量(1)よりも少ないとにより、合わせガラスの耐貫通性がより一層高くなる。10

【0174】

上記含有量(1)と、上記含有量(2), (3)との差は、好ましくは1重量部以上、より好ましくは3重量部以上、更に好ましくは5重量部以上であり、好ましくは30重量部以下、より好ましくは25重量部以下、更に好ましくは20重量部以下である。上記含有量(1)と上記含有量(2), (3)との差が上記下限以上であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。上記含有量(1)と上記含有量(2), (3)との差が上記上限以下であると、合わせガラスの耐貫通性がより一層高くなる。なお、上記含有量(1)と、上記含有量(2), (3)との差とは、上記含有量(1)から上記含有量(2), (3)を減算した数値である。20

【0175】

(他の成分)

本発明に係る合わせガラス用中間膜は、必要に応じて、紫外線吸収剤、酸化防止剤、光安定剤、難燃剤、帯電防止剤、顔料、染料、接着力調整剤、耐湿剤、蛍光増白剤及び赤外線吸収剤等の添加剤を含んでいてもよい。これらの添加剤は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。30

【0176】

(合わせガラス用中間膜)

合わせガラスの低温及び高周波域での遮音性をより一層高める観点からは、本発明に係る合わせガラス用中間膜の周波数1Hzで測定した最も低温側に現れるtan のピーク温度は、0 以下であることが好ましい。

【0177】

合わせガラスの高周波域での遮音性をより一層高める観点からは、周波数1Hzで測定した最も低温側に現れるtan のピーク温度におけるtan の最大値は、1.15以上であることが好ましい。40

【0178】

上記第1の層の厚みは、好ましくは0.02mm以上、より好ましくは0.05mm以上、好ましくは1.8mm以下、より好ましくは0.5mm以下である。このような好ましい厚みにすることにより、中間膜の厚みが厚くなりすぎず、かつ中間膜及び合わせガラスの遮音性をより一層高めることができる。

【0179】

上記第2, 第3の層の厚みはそれぞれ、好ましくは0.1mm以上、より好ましくは0.2mm以上、好ましくは1mm以下、より好ましくは0.5mm以下である。上記第250

，第3の層の厚みが上記下限以上及び上記上限以下であると、中間膜の厚みが厚くなりすぎず、かつ中間膜及び合わせガラスの遮音性がより一層高くなり、更に可塑剤のブリードアウトを抑制できる。

【0180】

上記第1の層の厚みT₁の上記第2の層の厚みT₂に対する比は、好ましくは0.15以上、より好ましくは0.2以上、好ましくは1以下、より好ましくは0.9以下である。すなわち、上記中間膜では、上記第1の層の厚み(μm)をT₁、上記第2の層の厚み(μm)をT₂としたときに、上記第1の層の厚みの上記第2の層の厚みに対する比であるT₁/T₂が0.4以上、1以下であることが好ましい。これによって、上記中間膜を用いた合わせガラスの高周波域での遮音性をより一層高めることができる。特に、3kHzを超える高周波域での遮音性を効果的に高めることができる。10

【0181】

合わせガラスの高周波域での遮音性をより一層高める観点からは、上記比(T₁/T₂)は、より好ましくは0.5以上、より好ましくは0.9以下である。

【0182】

上記第1の層の厚みの上記第2の層と上記第3の層との合計厚みに対する比は、好ましくは0.1以上、好ましくは0.5以下である。すなわち、上記中間膜では、上記第1の層の厚み(μm)をT₁、上記第2の層の厚み(μm)をT₂、上記第3の層の厚み(μm)をT₃としたときに、上記第1の層の厚みの上記第2の層と上記第3の層との合計厚みに対する比であるT₁/(T₂+T₃)が0.1以上、0.5以下であることが好ましい。これによって、上記中間膜を用いた合わせガラスの高周波域での遮音性をより一層高めることができる。特に、3kHzを超える高周波域での遮音性を効果的に高めることができる。20

【0183】

合わせガラスの高周波域での遮音性をより一層高める観点からは、上記比(T₁/(T₂+T₃))は、より好ましくは0.12以上、更に好ましくは0.15以上である。

【0184】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の厚みは、好ましくは0.1mm以上、より好ましくは0.25mm以上、好ましくは3mm以下、より好ましくは1.5mm以下である。中間膜の厚みが上記下限以上であると、中間膜及び合わせガラスの耐貫通性が充分に高くなる。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。30

【0185】

本発明に係る合わせガラス用中間膜の製造方法は特に限定されない。該中間膜の製造方法として、従来公知の方法を用いることができる。例えば、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤と必要に応じて配合される他の成分とを混練し、中間膜を成形する製造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。

【0186】

上記混練の方法は特に限定されない。この方法として、例えば、押出機、プラスチックグラフ、ニーダー、バンパリーミキサー又はカレンダーロール等を用いる方法が挙げられる。なかでも、連続的な生産に適しているため、押出機を用いる方法が好適であり、二軸押出機を用いる方法がより好適である。なお、本発明に係る合わせガラス用中間膜は、第1の層と第2、第3の層とを別々に作製した後、第1の層と第2、第3の層とを積層して多層中間膜を得てもよく、第1の層と第2、第3の層とを共押出により積層して中間膜を得てもよい。40

【0187】

中間膜の製造効率が優れることから、上記第2、第3の層に、同一のポリビニルアセタール樹脂が含まれていることが好ましく、上記第2、第3の層に、同一のポリビニルアセタール樹脂及び同一の可塑剤が含まれていることがより好ましく、上記第2、第3の層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。

【0188】

(合わせガラス)

図6に、本発明の一実施形態に係る合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスの一例を断面図で示す。

【0189】

図6に示す合わせガラス11は、中間膜1と、第1，第2の合わせガラス構成部材21，22とを備える。中間膜1は、第1，第2の合わせガラス構成部材21，22の間に挟み込まれている。中間膜1の第1の表面1aに、第1の合わせガラス構成部材21が積層されている。中間膜1の第1の表面1aとは反対の第2の表面1bに、第2の合わせガラス構成部材22が積層されている。第2の層3の外側の表面3aに第1の合わせガラス構成部材21が積層されている。第3の層4の外側の表面4aに第2の合わせガラス構成部材22が積層されている。10

【0190】

このように、本発明に係る合わせガラスは、第1の合わせガラス構成部材と、第2の合わせガラス構成部材と、上記第1，第2の合わせガラス構成部材の間に挟み込まれた中間膜とを備えており、該中間膜として、本発明に係る合わせガラス用中間膜が用いられている。

【0191】

上記第1，第2の合わせガラス構成部材としては、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。上記合わせガラスには、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。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。20

【0192】

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、網入り板ガラス、線入り板ガラス及びグリーンガラス等が挙げられる。上記有機ガラスは、無機ガラスに代用される合成樹脂ガラスである。上記有機ガラスとしては、ポリカーボネート板及びポリ(メタ)アクリル樹脂板等が挙げられる。上記ポリ(メタ)アクリル樹脂板としては、ポリメチル(メタ)アクリレート板等が挙げられる。30

【0193】

上記第1，第2の合わせガラス構成部材の厚みは特に限定されないが、好ましくは1mm以上、好ましくは5mm以下である。上記合わせガラス構成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1mm以上、好ましくは5mm以下である。上記合わせガラス構成部材がPETフィルムである場合に、該PETフィルムの厚みは、好ましくは0.03mm以上、好ましくは0.5mm以下である。30

【0194】

上記合わせガラスの製造方法は特に限定されない。例えば、上記第1，第2の合わせガラス構成部材の間に、上記中間膜を挟んで、押圧ロールに通したり、又はゴムバックに入れて減圧吸引したりして、第1，第2の合わせガラス構成部材と中間膜との間に残留する空気を脱気する。その後、約70～110で予備接着して積層体を得る。次に、積層体をオートクレープに入れたり、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。40

【0195】

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。合わせガラスは、これらの用途以外にも使用できる。合わせガラスは、建築用又は車両用の合わせガラスであることが好ましく、車両用の合わせガラスであることがより好ましい。合わせガラスは、電気モータを用いた電気自動車及び内燃機関と電気モータとを用いたハイブリッド電気自動車に好適に用いられる。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。

【0196】

10

20

30

40

50

以下に実施例を挙げて、本発明を更に詳しく説明する。本発明は以下の実施例のみに限定されない。

【0197】

(合成例1 - 実施例1の中間層Aに用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成：

純水2890gに、重合度2500、ケン化度79モル%のポリビニルアルコール樹脂191gを加えて加熱し、溶解させた溶液を、12に温度調節し、35重量%塩酸201gとn-ブチルアルデヒド150gとを加えて、ポリビニルブチラール樹脂を析出させた。その後、温度50で3時間保持し、反応を完了させた。過剰の水で未反応のn-ブチルアルデヒドを洗浄し、塩酸触媒を中和し、塩を除去した後、乾燥させ、ポリビニルブチラール樹脂を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は21モル%、ブチラール化度は54モル%、水酸基の含有率は25モル%であった。10

【0198】

(合成例2 - 実施例2の中間層Aに用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成：

アセチル化度0.5モル%、ブチラール化度64モル%、水酸基の含有率35.5モル%のポリビニルブチラール樹脂(平均重合度1700)をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、17.5モル当量の無水酢酸を加え、80の環境下で300分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂(平均重合度1700)を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は18モル%、ブチラール化度は64モル%、水酸基の含有率は18モル%であった。20

【0199】

(合成例3 - 実施例3の中間層Aに用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成：

アセチル化度0.5モル%、ブチラール化度64モル%、水酸基の含有率35.5モル%のポリビニルブチラール樹脂(平均重合度1700)をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、22.5モル当量の無水酢酸を加え、80の環境下で300分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂(平均重合度1700)を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は23モル%、ブチラール化度は64モル%、水酸基の含有率は13モル%であった。30

【0200】

(合成例4 - 実施例4の中間層Aに用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成：

アセチル化度13モル%、ブチラール化度59モル%、水酸基の含有率28モル%のポリビニルブチラール樹脂(平均重合度2300)をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、5モル当量の無水酢酸を加え、80の環境下で300分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂(平均重合度2300)を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は23モル%、ブチラール化度は59モル%、水酸基の含有率は18モル%であった。40

【0201】

(合成例5 - 実施例5の中間層Aに用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成：

アセチル化度6モル%、ブチラール化度70モル%、水酸基の含有率24モル%のポリビニルブチラール樹脂(平均重合度1400)をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、6.8モル当量の無水酢酸を加え、80の環境下で300分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂(平均重合度1400)を得た。得られたポリビニルブチ50

ラール樹脂のアセチル化度は 12.8 モル%、ブチラール化度は 70 モル%、水酸基の含有率は 17.2 モル% であった。

【0202】

(合成例 6 - 実施例 6 の中間層 A に用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成 :

アセチル化度 0.5 モル%、ブチラール化度 80 モル%、水酸基の含有率 19.5 モル% のポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 1700）をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、6.5 モル当量の無水酢酸を加え、80 の環境下で 300 分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 1700）を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は 7 モル%、ブチラール化度は 80 モル%、水酸基の含有率は 13 モル% であった。
10

【0203】

(合成例 7 - 実施例 7 の中間層 A に用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成 :

アセチル化度 1 モル%、ブチラール化度 64 モル%、水酸基の含有率 35 モル% のポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 1700）をトルエンに溶解したポリビニルブチラール樹脂溶液 100 重量部（トルエン：ポリビニルブチラール樹脂 = 95 重量部 : 5 重量部）に対し、6 重量部のトリフルオロ酢酸を加え、80 の環境下で 300 分間攪拌した。トルエンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 1700）を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は 1 モル%、ブチラール化度は 93 モル%、水酸基の含有率は 6 モル% であった。
20

【0204】

(合成例 8 - 比較例 1, 2 の中間層 A に用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成 :

純水 2890 g に、重合度 3000、ケン化度 87.2 モル% のポリビニルアルコール樹脂 191 g を加えて加熱し、溶解させた溶液を、12 に温度調節し、35 重量% 塩酸 201 g と n-ブチルアルデヒド 150 g とを加えて、ポリビニルブチラール樹脂を析出させた。その後、温度 50 で 5 時間保持し、反応を完了させた。過剰の水で未反応の n-ブチルアルデヒドを洗浄し、塩酸触媒を中和し、塩を除去した後、乾燥させ、ポリビニルブチラール樹脂を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は 12.8 モル%、ブチラール化度は 63.5 モル%、水酸基の含有率は 23.7 モル% であった。
30

【0205】

(合成例 9 - 実施例 8 の中間層 A に用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成 :

純水 2890 g に、重合度 2500、ケン化度 79 モル% のポリビニルアルコール樹脂 80 g と、重合度 4000、ケン化度 79 モル% のポリビニルアルコール樹脂 111 g とを加えて加熱し、溶解させた溶液を、12 に温度調節し、35 重量% 塩酸 201 g と n-ブチルアルデヒド 150 g とを加えて、ポリビニルブチラール樹脂を析出させた。その後、温度 50 で 3 時間保持し、反応を完了させた。過剰の水で未反応の n-ブチルアルデヒドを洗浄し、塩酸触媒を中和し、塩を除去した後、乾燥させ、ポリビニルブチラール樹脂を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は 21 モル%、ブチラール化度は 54 モル%、水酸基の含有率は 25 モル% であった。
40

【0206】

得られたポリビニルブチラール樹脂に占める、絶対分子量 100 万以上の高分子量成分 X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は 16.8 % であった。得られたポリビニルブチラール樹脂 Z に占める、分子量 y が 100 万以上である高分子量成分 Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は 19.2 % であった。

【0207】

(合成例 10 - 実施例 9 の中間層 A に用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成:

アセチル化度 0.5 モル%、ブチラール化度 64 モル%、水酸基の含有率 35.5 モル% のポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3200）をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、17.5 モル当量の無水酢酸を加え、80 の環境下で 300 分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3200）を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は 18 モル%、ブチラール化度は 64 モル%、水酸基の含有率は 18 モル% であった。

【0208】

10

(合成例 11 - 実施例 10 の中間層 A に用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成:

アセチル化度 0.5 モル%、ブチラール化度 64 モル%、水酸基の含有率 35.5 モル% のポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3200）をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、22.5 モル当量の無水酢酸を加え、80 の環境下で 300 分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3200）を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は 23 モル%、ブチラール化度は 64 モル%、水酸基の含有率は 13 モル% であった。

【0209】

20

(合成例 12 - 実施例 11 の中間層 A に用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成:

アセチル化度 13 モル%、ブチラール化度 59 モル%、水酸基の含有率 28 モル% のポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3500）をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、5 モル当量の無水酢酸を加え、80 の環境下で 300 分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3500）を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は 23 モル%、ブチラール化度は 59 モル%、水酸基の含有率は 18 モル% であった。

【0210】

30

(合成例 13 - 実施例 12 の中間層 A に用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成:

アセチル化度 6 モル%、ブチラール化度 70 モル%、水酸基の含有率 24 モル% のポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3300）をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、6.8 モル当量の無水酢酸を加え、80 の環境下で 300 分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3300）を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は 12.8 モル%、ブチラール化度は 70 モル%、水酸基の含有率は 17.2 モル% であった。

【0211】

40

(合成例 14 - 実施例 13, 23, 26 ~ 29 の中間層 A に用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成:

アセチル化度 0.5 モル%、ブチラール化度 80 モル%、水酸基の含有率 19.5 モル% のポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3200）をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、6.5 モル当量の無水酢酸を加え、80 の環境下で 300 分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3200）を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は 7 モル%、ブチラール化度は 80 モル%、水酸基の含有率は 13 モル% であった。

50

【0212】

(合成例15 - 実施例14の中間層Aに用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成:

アセチル化度1モル%、ブチラール化度64モル%、水酸基の含有率35モル%のポリビニルブチラール樹脂(平均重合度3200)をトルエンに溶解したポリビニルブチラール樹脂溶液100重量部(トルエン:ポリビニルブチラール樹脂=95重量部:5重量部)に対し、6重量部のトリフルオロ酢酸を加え、80の環境下で300分間攪拌した。トルエンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂(平均重合度3200)を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は1モル%、ブチラール化度は93モル%、水酸基の含有率は6モル%であった。

【0213】

(合成例16 - 実施例15の中間層Aに用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成:アセチル化度1モル%、ブチラール化度83モル%、水酸基の含有率16モル%のポリビニルブチラール樹脂(平均重合度3300)をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、6モル当量の無水酢酸を加え、80の環境下で300分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂(平均重合度3300)を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は7モル%、ブチラール化度は83モル%、水酸基の含有率は10モル%であった。

【0214】

(合成例17 - 実施例16の中間層Aに用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成:アセチル化度1モル%、ブチラール化度80モル%、水酸基の含有率19モル%のポリビニルブチラール樹脂(平均重合度3300)をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、11.8モル当量の無水酢酸を加え、80の環境下で300分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂(平均重合度3300)を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は12.8モル%、ブチラール化度は80モル%、水酸基の含有率は7.2モル%であった。

【0215】

(合成例18 - 実施例17, 24の中間層Aに用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成:アセチル化度1モル%、ブチラール化度75モル%、水酸基の含有率24モル%のポリビニルブチラール樹脂(平均重合度3300)をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、11.8モル当量の無水酢酸を加え、80の環境下で300分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂(平均重合度3300)を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は12.8モル%、ブチラール化度は75モル%、水酸基の含有率は12.2モル%であった。

【0216】

(合成例19 - 実施例18の中間層Aに用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成:アセチル化度1モル%、ブチラール化度60モル%、水酸基の含有率39モル%のポリビニルブチラール樹脂(平均重合度3300)をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、19.5モル当量の無水酢酸を加え、80の環境下で300分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂(平均重合度3300)を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は20.5モル%、ブチラール化度は60モル%、水酸基の含有率は19.5モル%であった。

【0217】

(合成例20 - 実施例19の中間層Aに用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

10

20

30

40

50

ポリビニルブチラール樹脂の合成：アセチル化度 1 モル%、ブチラール化度 65 モル%、水酸基の含有率 34 モル% のポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3300）をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、19.5 モル当量の無水酢酸を加え、80 の環境下で 300 分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3300）を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は 20.5 モル%、ブチラール化度は 65 モル%、水酸基の含有率は 14.5 モル% であった。

【0218】

（合成例 21 - 実施例 20, 25 の中間層 A に用いるポリビニルアセタール樹脂の合成）

ポリビニルブチラール樹脂の合成：アセチル化度 1 モル%、ブチラール化度 70 モル%、水酸基の含有率 29 モル% のポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3300）をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、19.5 モル当量の無水酢酸を加え、80 の環境下で 300 分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3300）を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は 20.5 モル%、ブチラール化度は 70 モル%、水酸基の含有率は 9.5 モル% であった。

【0219】

（合成例 22 - 実施例 21 の中間層 A に用いるポリビニルアセタール樹脂の合成）

ポリビニルブチラール樹脂の合成：アセチル化度 1 モル%、ブチラール化度 60 モル%、水酸基の含有率 39 モル% のポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3300）をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、24 モル当量の無水酢酸を加え、80 の環境下で 300 分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3300）を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は 25 モル%、ブチラール化度は 60 モル%、水酸基の含有率は 15 モル% であった。

【0220】

（合成例 23 - 実施例 22 の中間層 A に用いるポリビニルアセタール樹脂の合成）

ポリビニルブチラール樹脂の合成：アセチル化度 1 モル%、ブチラール化度 65 モル%、水酸基の含有率 34 モル% のポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3300）をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、24 モル当量の無水酢酸を加え、80 の環境下で 300 分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3300）を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は 25 モル%、ブチラール化度は 65 モル%、水酸基の含有率は 10 モル% であった。

【0221】

（合成例 24 - 実施例 30 の中間層 A に用いるポリビニルアセタール樹脂の合成）

ポリビニルブチラール樹脂の合成：

アセチル化度 1 モル%、ブチラール化度 65 モル%、水酸基の含有率 34 モル% のポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3300）をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、27 モル当量の無水酢酸を加え、80 の環境下で 300 分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3300）を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は 28 モル%、ブチラール化度は 65 モル%、水酸基の含有率は 7 モル% であった。

【0222】

（合成例 25 - 実施例 31 の中間層 A に用いるポリビニルアセタール樹脂の合成）

ポリビニルブチラール樹脂の合成：

アセチル化度 1 モル%、ブチラール化度 55 モル%、水酸基の含有率 44 モル% のポリビニルブチラール樹脂（平均重合度 3300）をピリジンに溶解し、溶解したポリビニル

10

20

30

40

50

ブチラール樹脂に対し、27モル当量の無水酢酸を加え、80 の環境下で300分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度3300）を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は28モル%、ブチラール化度は55モル%、水酸基の含有率は17モル%であった。

【0223】

（合成例26 - 実施例32の中間層Aに用いるポリビニルアセタール樹脂の合成）

ポリビニルブチラール樹脂の合成：

アセチル化度12モル%、ブチラール化度45モル%、水酸基の含有率43モル%のポリビニルブチラール樹脂（平均重合度3300）をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、16モル当量の無水酢酸を加え、80 の環境下で300分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度3300）を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は28モル%、ブチラール化度は45モル%、水酸基の含有率は27モル%であった。10

【0224】

（合成例27 - 実施例33の中間層Aに用いるポリビニルアセタール樹脂の合成）

ポリビニルブチラール樹脂の合成：

アセチル化度12モル%、ブチラール化度49モル%、水酸基の含有率39モル%のポリビニルブチラール樹脂（平均重合度3300）をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、13モル当量の無水酢酸を加え、80 の環境下で300分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度3300）を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は25モル%、ブチラール化度は49モル%、水酸基の含有率は26モル%であった。20

【0225】

（合成例28 - 実施例34の中間層Aに用いるポリビニルアセタール樹脂の合成）

ポリビニルブチラール樹脂の合成：

アセチル化度1モル%、ブチラール化度91モル%、水酸基の含有率8モル%のポリビニルブチラール樹脂（平均重合度3300）をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、6モル当量の無水酢酸を加え、80 の環境下で300分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度3300）を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は7モル%、ブチラール化度は91モル%、水酸基の含有率は2モル%であった。30

【0226】

（合成例29 - 実施例35の中間層Aに用いるポリビニルアセタール樹脂の合成）

ポリビニルブチラール樹脂の合成：

アセチル化度1モル%、ブチラール化度78モル%、水酸基の含有率21モル%のポリビニルブチラール樹脂（平均重合度3300）をピリジンに溶解し、溶解したポリビニルブチラール樹脂に対し、17モル当量の無水酢酸を加え、80 の環境下で300分間攪拌した。ピリジンを除去し、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルブチラール樹脂（平均重合度3300）を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は18モル%、ブチラール化度は78モル%、水酸基の含有率は4モル%であった。40

【0227】

（合成例30 - 比較例3の中間層Aに用いるポリビニルアセタール樹脂の合成）

ポリビニルブチラール樹脂の合成：

純水2890gに、重合度2300、ケン化度93モル%のポリビニルアルコール樹脂191gを加えて加熱し、溶解させた溶液を、12 に温度調節し、35重量%塩酸2050

1 g と n - プチルアルデヒド 171 g とを加えて、ポリビニルブチラール樹脂を析出させた。その後、温度 55 度で 5 時間保持し、反応を完了させた。過剰の水で未反応の n - プチルアルデヒドを洗浄し、塩酸触媒を中和し、塩を除去した後、乾燥させ、ポリビニルブチラール樹脂を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は 7 モル%、ブチラール化度は 72 モル%、水酸基の含有率は 21 モル% であった。

【0228】

(合成例 31 - 比較例 4 の中間層 A に用いるポリビニルアセタール樹脂の合成)

ポリビニルブチラール樹脂の合成：

純水 2890 g に、重合度 2300、ケン化度 99 モル% のポリビニルアルコール樹脂 191 g を加えて加熱し、溶解させた溶液を、12 度に温度調節し、35 重量% 塩酸 201 g と n - プチルアルデヒド 190 g とを加えて、ポリビニルブチラール樹脂を析出させた。その後、温度 55 度で 5 時間保持し、反応を完了させた。過剰の水で未反応の n - プチルアルデヒドを洗浄し、塩酸触媒を中和し、塩を除去した後、乾燥させ、ポリビニルブチラール樹脂を得た。得られたポリビニルブチラール樹脂のアセチル化度は 1 モル%、ブチラール化度は 79 モル%、水酸基の含有率は 20 モル% であった。

【0229】

実施例 1 ~ 22, 26 ~ 35 及び比較例 1 ~ 4 の保護層 B に用い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 (n - プチルアルデヒドを使用、ブチラール化度 68.5 モル%、アセチル化度 1 モル%、水酸基の含有率 30.5 モル%) を用意した。

【0230】

実施例 23 ~ 25 の保護層 B に用い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 (n - プチルアルデヒドを使用、ブチラール化度 70.5 モル%、アセチル化度 1.5 モル%、水酸基の含有率 28 モル%) を用意した。

【0231】

実施例及び比較例で用いたポリビニルブチラール樹脂のブチラール化度 (アセタール化度)、アセチル化度及び水酸基の含有率は ASTM D 1396 - 92 に準拠した方法により測定した。なお、JIS K 6728 「ポリビニルブチラール試験方法」により測定した場合も、ASTM D 1396 - 92 に準拠した方法と同様の数値を示した。

【0232】

実施例及び比較例では、以下の可塑剤を用いた。

トリエチレングリコールジ - 2 - エチルヘキサンオエート (3GO) (SP 値：9.06)

トリエチレングリコールジ - n - ブタノエート (3GB) (SP 値：9.45)
ヘキサン酸ビス (2 - (2 - プトキシエトキシエチル) エステル) (EDENOL 422) (SP 値：13.85)

アジピン酸ビス (2 - プトキシエチル) (D931) (SP 値：13.56)

【0233】

(実施例 1)

(1) 中間膜の作製

ポリビニルブチラール樹脂 (n - プチルアルデヒドを使用、ブチラール化度 54 モル%、アセチル化度 21 モル%、水酸基の含有率 25 モル%) 100 重量部と、可塑剤であるトリエチレングリコールジ - 2 - エチルヘキサンオエート (3GO) 55 重量部とをミキシングロールで充分に混練し、中間層用組成物を得た。

【0234】

ポリビニルブチラール樹脂 (n - プチルアルデヒドを使用、ブチラール化度 68.5 モル%、アセチル化度 1 モル%、水酸基の含有率 30.5 モル%) 100 重量部と、可塑剤であるトリエチレングリコールジ - 2 - エチルヘキサンオエート (3GO) 38.5 重量部とを充分に混練し、保護層用組成物を得た。

【0235】

10

20

30

40

50

得られた中間層用組成物及び保護層用組成物を、共押出機を用いて成形し、保護層B（厚み350μm）／中間層A（厚み110μm）／保護層B（厚み350μm）の積層構造を有する多層中間膜（厚み810μm）を作製した。

【0236】

（2）損失係数の測定に用いる合わせガラスの作製

得られた多層中間膜を、縦30mm×横320mmに切り出した。次に、2枚の透明なフロートガラス（縦25mm×横305mm×厚み2.0mm）の間に多層中間膜を挟み込み、真空ラミネーターにて90°で30分間保持し、真空プレスし、積層体を得た。積層体において、ガラスからはみ出た多層中間膜部分を切り落とし、損失係数の測定に用いる合わせガラスを得た。

10

【0237】

（3）発泡試験A及びBに用いる合わせガラスの作製

得られた多層中間膜を縦30cm×横15cmの大きさに切断し、温度23°の環境下にて、10時間保管した。なお、得られた多層中間膜の両面にはエンボスが形成されており、そのエンボスの十点平均粗さは30μmであった。切断された多層中間膜において、多層中間膜の端部から縦方向にそれぞれ内側に向かって8cmの位置と、多層中間膜の端部から横方向にそれぞれ内側に向かって5cmの位置との交点4箇所に、直径6mmの貫通孔を作製した。

【0238】

透明なフロートガラス（縦30cm×横15cm×厚さ2.5mm）2枚の間に、貫通孔を有する多層中間膜を挟み込み、積層体を得た。積層体の外周縁は、熱融着により端部から幅2cmを封止することにより、エンボスに残留した空気及び貫通孔に残留した空気を封じ込めた。この積層体を135°、圧力1.2MPaの条件で20分間圧着することで、残留した空気を多層中間膜中に溶かし込み、発泡試験A及びBに用いる合わせガラスを得た。

20

【0239】

（実施例2～35及び比較例1～4）

中間層A及び保護層Bに用いたポリビニルブチラール樹脂の種類、可塑剤の種類、並びに中間層Aと保護層Bとの厚みおよび可塑剤量を下記の表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、多層中間膜及び合わせガラスを得た。なお、実施例2～35及び比較例1～4で用いたポリビニルブチラール樹脂はいずれも、n-ブチルアルデヒドを用いてブチラール化した樹脂である。

30

【0240】

（評価）

（1）低温側のtanδのピーク温度及び低温側のtanδのピーク最大値

得られた中間膜を20°の環境下にて1ヶ月保管した後に、中間膜を直径8mmの円形に切り抜き、粘弾性測定装置（レオメトリックス社製「ARES」）を用いて、せん断法にて、歪み量1.0%及び周波数1Hzの条件で、昇温速度5°/分で動的粘弾性の温度分散測定を行うことにより、低温側のtanδのピーク温度、及び低温側のtanδのピーク最大値を測定した。

40

【0241】

（2）損失係数

損失係数の測定に用いる合わせガラスを20°の環境下にて1ヶ月保管した。20°の環境下にて1ヶ月保管した合わせガラスについて、測定装置「SA-01」（リオン社製）を用いて、20°の条件で中央加振法により損失係数を測定した。得られた損失係数の共振周波数の4次モード（3150Hz付近）での損失係数（20°損失係数）を評価した。

【0242】

（3）発泡試験A（発泡の状態）

発泡試験Aに用いる合わせガラスを、各多層中間膜について5枚作製し、50°のオ-

50

ブン内に100時間放置した。放置後の合わせガラスにおいて、発泡の有無及び発泡の大きさを平面視にて目視で観察し、発泡の状態を下記の判定基準で判定した。

【0243】

[発泡試験Aによる発泡の状態の判定基準]

5枚の合わせガラスに発生した発泡を、楕円で近似し、その楕円面積を発泡面積とした。5枚の合わせガラスにて観察された楕円面積の平均値を求め、合わせガラスの面積(30cm × 15cm)に対する楕円面積の平均値(発泡面積)の割合(百分率)を求めた。

【0244】

: 5枚全ての合わせガラスに発泡が観察されなかった

: 楕円面積の平均値(発泡面積)の割合が5%未満であった

10

: 楕円面積の平均値(発泡面積)の割合が5%以上、10%未満であった

× : 楕円面積の平均値(発泡面積)の割合が10%以上であった

【0245】

(4) 発泡試験B(発泡の状態)

発泡試験Bに用いる合わせガラスを、各多層中間膜について30枚作製し、50のオーブン内に24時間放置した。放置後の合わせガラスにおいて、目視で発泡が観察された合わせガラスの枚数を確認し、下記の判定基準で判定した。

【0246】

[発泡試験Bによる発泡の状態の判定基準]

: 目視で発泡が観察された合わせガラスは5枚以下であった

20

: 目視で発泡が観察された合わせガラスは6枚以上、10枚以下であった

: 目視で発泡が観察された合わせガラスは11枚以上、15枚以下であった

× : 目視で発泡が観察された合わせガラスは16枚以上であった

【0247】

(5) 試験法Aによる弾性率G'の測定

実施例及び比較例の合わせガラス用中間膜の第1の層に含まれる各ポリビニルアセタール樹脂(第1の層に用いるポリビニルアセタール樹脂)100重量部と、可塑剤としてトリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサンエート(3GO)60重量部とを充分に混練し、混練物を得た。得られた混練物をプレス成型機でプレス成型して、平均厚さが0.35mmの樹脂膜Aを得た。得られた樹脂膜Aを25及び相対湿度30%の条件で2時間放置した。2時間放置した後に、TAI N S T R U M E N T S社製のARES-G2を用いて、粘弾性を測定した。治具として、直径8mmのパラレルプレートを用いた。3/分の降温速度で100から-10まで温度を低下させる条件、及び周波数1Hz及び歪1%の条件で測定を行った。得られた測定結果において、損失正接のピーク温度をガラス転移温度Tg()とした。また、得られた測定結果とガラス転移温度Tgとから、(Tg+30)での弾性率G'(Tg+30)の値と、(Tg+80)での弾性率G'(Tg+80)の値とを読み取った。また、比(G'(Tg+80)/G'(Tg+30))を求めた。

30

【0248】

(6) 試験法Bによる弾性率G'の測定

40

実施例及び比較例の合わせガラス用中間膜を恒温恒湿室(湿度30%(±3%)、温度23)に1ヶ月間保管した。1ヶ月間保管した後すぐに、表面層と中間層と表面層とを剥離することにより、中間層を取り出した。2枚のポリエチレンテレフタレート(PET)フィルムの間に配置された型枠(縦2cm × 横2cm × 厚み0.76mm)内に、剥離された中間層1gを置き、温度150、プレス圧0kg/cm²で10分間予熱した後、80kg/cm²で15分間プレス成型した。予め20に設定したハンドプレス機に、プレス成型された中間層を配置し、10MPaで10分間プレスすることにより冷却した。次いで、2枚のPETフィルムの間に配置された型枠から、1枚のPETフィルムを剥離し、恒温恒湿室(湿度30%(±3%)、温度23)で24時間保管した後、TAI N S T R U M E N T S社製のARES-G2を用いて、粘弾性を測定した。治具として

50

、直径8mmのパラレルプレートを用いた。3 / 分の降温速度で100から-10まで温度を低下させる条件、及び周波数1Hz及び歪1%の条件で測定を行った。得られた測定結果において、損失正接のピーク温度をガラス転移温度Tg()とした。また、得られた測定結果とガラス転移温度Tgとから、(Tg+30)での弾性率G'(Tg+30)の値と、(Tg+80)での弾性率G'(Tg+80)の値とを読み取った。また、比(G'(Tg+80)/G'(Tg+30))を求めた。

【0249】

(7) 絶対分子量及び分子量yの測定

(絶対分子量の測定)

上述した合成例9に記載の高分子量成分X, Yの割合を求めるための絶対分子量及びボリスチレン換算分子量は、得られた多層中間膜から表面層と中間層とを剥離して、以下のようにして求めた値である。

【0250】

絶対分子量を測定するために、まず多層中間膜を恒温恒湿室（湿度30%（±3%）、温度23）に1ヶ月放置した。1ヶ月放置後、多層中間膜から表面層と中間層とを剥離した。剥離された中間層をテトラヒドロフラン（THF）に溶解させ、0.1重量%の溶液を調製した。得られた溶液をGel Permeation Chromatography (GPC) 装置（日立ハイテク社製「RI：L2490、オートサンプラー：L-2200、ポンプ：L-2130、カラムオーブン：L-2350、カラム：GL-A120-SとGL-A100MX-Sの直列」）により分析した。また、このGPC装置にはGPC用光散乱検出器（VISCOTEK社製「Model 1270 (RALS+VISCO)」）が接続されており、各検出器によるクロマトグラムの分析ができる。RI検出器及びRALS検出器のクロマトグラムにおけるポリビニルアセタール樹脂成分のピークを、解析ソフト（OmniSEC）を用いて解析することにより、ポリビニルアセタール樹脂の各溶出時間における絶対分子量を求めた。RI検出器で検出されるポリビニルアセタール樹脂のピーク面積に占める、ポリビニルアセタール樹脂の絶対分子量が100万以上となる領域の面積の割合を百分率（%）で表した。

【0251】

クロマトグラムにおける各成分のピークには以下の式が成り立つ。

【0252】

$$A_{RI} = c \times (dn/dc) \times K_{RI} \quad \cdots \text{式(1)}$$

$$A_{RALS} = c \times M \times (dn/dc)^2 \times K_{RALS} \quad \cdots \text{式(2)}$$

ここで、cは溶液中のポリマー濃度、(dn/dc)は屈折率増分、Mは絶対分子量、Kは装置定数である。

【0253】

具体的な測定手順として、まず、c、M、および(dn/dc)が既知であるポリスチレン標準試料（VISCOTEK社製 PolyCAL（登録商標）TDS-PS-NB Mw=98390 dn/dc=0.185）を用い、0.1重量%のTHF溶液を調製する。得られたポリスチレン溶液のGPC測定結果から式(1)及び(2)を用いて、各検出器の装置定数Kを求める。

【0254】

次に、剥離した中間層をTHFに溶解させ、THF溶液を調製する。得られたポリビニルアセタール樹脂溶液のGPC測定結果から式(1)及び(2)を用いて、ポリビニルアセタール樹脂の絶対分子量Mを求めた。

【0255】

ただし、中間層（ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む）について分析を行うためには、ポリビニルアセタール樹脂溶液中のポリビニルアセタール樹脂の濃度を求める必要がある。ポリビニルアセタール樹脂の濃度の求め方は、以下の可塑剤の含有量の測定の結果から計算した。

【0256】

10

20

30

40

50

可塑剤の含有量の測定 :

可塑剤の含有量が、10重量%、15重量%、20重量%、25重量%、30重量%、35重量%、40重量%、45重量%及び50重量%となるように、THFに可塑剤を溶解させ、可塑剤 - THF溶液を調製した。得られた可塑剤 - THF溶液をGPC測定し、可塑剤のピーク面積を求めた。可塑剤の濃度に対し可塑剤のピーク面積をプロットし、近似直線を得た。次に、中間層をTHFに溶解させたTHF溶液をGPC測定し、可塑剤のピーク面積から近似直線を用いることにより、可塑剤の含有量を求めた。

【0257】**(分子量yの測定)**

上記絶対分子量の測定方法と同様にして、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)によるポリスチレン換算分子量を測定して、RI検出器で検出されるピーク面積(GPCの測定結果)のうち、分子量が100万以上の領域に相当する面積の割合から、ポリビニルアセタール樹脂に占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Yの割合(%)を算出した。

【0258】

ポリスチレン換算分子量を測定するために、分子量既知のポリスチレン標準試料のGPC測定を行う。ポリスチレン標準試料(昭和電工社製「Shodex Standard SM-105」、「Shodex Standard SH-75」)としては、重量平均分子量580、1,260、2,960、5,000、10,100、21,000、28,500、76,600、196,000、630,000、1,130,000、2,190,000、3,150,000、3,900,000の14試料を用いた。それぞれの標準試料ピークのピーカップが示す溶出時間に対して重量平均分子量をプロットし得られる近似直線を検量線として使用した。恒温恒湿室(湿度30%(±3%)、温度23)に1ヶ月放置した多層中間膜から表面層と中間層とを剥離した。剥離された中間層をテトラヒドロフラン(THF)に溶解させ、0.1重量%の溶液を調製した。得られた溶液をGPC装置により分析し、中間層中のポリビニルアセタール樹脂のピーク面積を測定した。次いで、中間層中のポリビニルアセタール樹脂の溶出時間と検量線から、中間層中のポリビニルアセタール樹脂のポリスチレン換算分子量が100万以上の領域に相当する面積を算出した。中間層中のポリビニルアセタール樹脂のポリスチレン換算分子量が100万以上の領域に相当する面積を、中間層中のポリビニルアセタール樹脂のピーク面積で除算した値を百分率(%)で表すことにより、上記ポリビニルアセタール樹脂に占める、上記分子量yが100万以上である高分子量成分Yの割合(%)を算出した。

【0259】

結果を下記の表1~5に示す。なお、下記の表1~5において、3GOは、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエートを示す。

【0260】

【表1】

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	比較例1
中間層A	樹脂	54	64	64	59	70	80	93	63.5
	アセチル化度(モル%)	21	18	23	23	12.8	7	1	12.8
	水酸基の含有率(モル%)	25	18	13	18	17.2	13	6	23.7
	含有量(重量部)	100	100	100	100	100	100	100	100
	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
	含有量(重量部)	55	55	45	50	55	55	55	60
保護層B	樹脂	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5
	アセチル化度(モル%)	1	1	1	1	1	1	1	1
	水酸基の含有率(モル%)	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5
	含有量(重量部)	100	100	100	100	100	100	100	100
	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
	含有量(重量部)	38.5	38.5	38.5	38.5	38.5	38.5	38.5	38.5
層構成		B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B
保護層Bの厚み(μm)／中間層Aの厚み(μm)／保護層Bの厚み(μm)		350/110/350	350/110/350	350/80/350	350/110/350	350/110/350	350/300/350	350/110/350	350/110/350
中間層Aの厚み(μm)／保護層Bの合計の厚み(μm)		0.16	0.16	0.16	0.11	0.16	0.16	0.43	0.16
低温側のtan δピーク温度(℃)		-2.4	-4	-3.1	-3.4	-2.3	-1.8	-4.5	-4.2
低温側のtan δピーク最大値		1.3	1.32	1.54	1.41	1.32	1.31	1.41	1.05
20°C損失係数 3150Hz附近		0.33	0.33	0.45	0.35	0.33	0.32	0.35	0.28

【0261】

【表2】

		実施例8		実施例9		実施例10		実施例11		実施例12		実施例13		実施例14		比較例2	
中間層A	樹脂	ブチラール化度(モル%)	54	64	64	59	70	80	93	93	93	93	93	93	93	63.5	63.5
	アセチル化度(モル%)	21	18	23	23	12.8	7	1	1	1	1	1	1	1	1	12.8	12.8
	水酸基の含有率(モル%)	25	18	13	18	17.2	13	6	6	6	6	6	6	6	6	23.7	23.7
	含有量(重量部)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
保護層B	樹脂	種類	3GO														
	可塑剤	含有量(重量部)	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60
	樹脂	ブチラール化度(モル%)	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5
	可塑剤	アセチル化度(モル%)	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
膜構成		水酸基の含有率(モル%)	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5
保護層B		含有量(重量部)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
保護層A		種類	3GC	3GO													
可塑剤		含有量(重量部)	34	33.5	31	32	35.5	35.5	32.5	32.5	31.5	31.5	31.5	31.5	31.5	31.5	31.5
保護層Bの厚み(μm)／中間層Aの厚み(μm)／保護層Bの厚み(μm)		B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	
中間層Aの厚み(μm)／保護層Bの合計の厚み(μm)		350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350
中間層Aのtan δピーク温度(℃)		0.16	0.16	0.16	0.16	0.11	0.11	0.16	0.16	0.16	0.16	0.16	0.16	0.16	0.16	0.16	0.16
低温側のtan δピーク最大値		-0.85	-4	-3.1	-3.4	-2.3	-2.3	-1.8	-1.8	-1.8	-1.8	-1.8	-1.8	-1.8	-1.8	-1.8	-1.8
20°C損失係数 3150Hz付近		1.3	1.32	1.54	1.41	1.32	1.32	1.31	1.31	1.31	1.31	1.31	1.31	1.31	1.31	1.31	1.31
弾性試験(A:発泡の状態)		0.33	0.33	0.45	0.35	0.33	0.33	0.32	0.32	0.32	0.32	0.32	0.32	0.32	0.32	0.32	0.32
発泡試験B(発泡の状態)		○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
試験法A:ガラス転移温度(T_g) (°C)		-2.4	-4.3	-3.7	-4	-2.9	-2.9	-2.6	-2.6	-2.6	-2.6	-2.6	-2.6	-2.6	-2.6	-2.6	-2.6
試験法A:G'(T_g+30) (Pa)		230800	222100	223300	224600	231200	231500	231200	231500	231200	231500	231200	231500	231200	231500	231200	231500
試験法A:G'(T_g+80) (Pa)		155000	147000	149300	152500	153400	157400	153400	157400	153400	157400	153400	157400	153400	157400	153400	157400
試験法A:G'(T_g+80)／G'(T_g+30)		0.67	0.66	0.67	0.68	0.66	0.68	0.66	0.68	0.66	0.68	0.66	0.68	0.66	0.68	0.66	0.68
試験法B:ガラス転移温度(T_g) (°C)		-4.21	-6.04	-6.01	-6.21	-5.22	-5.22	-5.23	-5.23	-5.23	-5.23	-5.23	-5.23	-5.23	-5.23	-5.23	-5.23
試験法B:G'(T_g+30) (Pa)		210300	203500	205500	197800	205200	205600	205200	205600	205200	205600	205200	205600	205200	205600	205200	205600
試験法B:G'(T_g+80) (Pa)		139500	137500	137400	134000	135300	136400	135300	136400	135300	136400	135300	136400	135300	136400	135300	136400
試験法B:G'(T_g+80)／G'(T_g+30)		0.66	0.66	0.67	0.68	0.66	0.68	0.66	0.68	0.66	0.68	0.66	0.68	0.66	0.68	0.66	0.68

【表3】

【 0 2 6 3 】

【表4】

		実施例21	実施例22	実施例23	実施例24	実施例25	実施例26	実施例27	実施例28	実施例29
中間層A 樹脂	フチラール化度(モル%)	60	65	80	75	70	80	80	80	80
	アセチル化度(モル%)	25	25	7	12.8	20.5	7	7	7	7
	水酸基の含有率(モル%) 含有量(重量部)	15	10	13	12.2	9.5	13	13	13	13
	種類 含有量(重量部)	100	100	100	100	100	100	100	100	100
保護層B 樹脂	3G0	3G0	3G0	3G0	3G0	3G0	3G0	EDENOL422	D931	DBA
	フチラール化度(モル%)	60	60	60	60	60	50	50	50	50
	アセチル化度(モル%)	1	1	1.5	1.5	1.5	1	1	1	1
	水酸基の含有率(モル%) 含有量(重量部)	30.5	30.5	28	28	28	30.5	30.5	30.5	30.5
可塑剤 樹脂	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	種類 含有量(重量部)	3G0	3G0	3G0	3G0	3G0	3G0	3G0	3G0	3G0
	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B	B/A/B
	膜構成 保護層Bの厚み(μm)／中間層Aの厚み(μm)／保護層Bの厚み(μm)	350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350	3G0	EDENOL422	D931
中間層Aの厚み(μm)／保護層Bの合計の厚み(μm)		0.16	0.16	0.16	0.16	0.16	0.16	0.16	0.16	0.16
低温側のtan δピーク温度(℃)		-4.6	-4.4	-4.8	-5.2	-4.3	-5.8	-3.6	-4.2	-5.6
低温側のtan δピーク最大値		1.46	1.5	1.31	1.43	1.45	1.51	1.46	1.47	1.5
20°C損失系数 3150Hz附近		0.38	0.41	0.32	0.36	0.38	0.42	0.38	0.39	0.42
発泡試験A(発泡の状態)		OO	OO	OO	OO	OO	OO	OO	OO	OO
発泡試験B(発泡の状態)		O	O	O	O	O	O	O	O	O
試験法A:ガラス転移温度(T_g) (°C)		-4.1	-5.6	-2.6	-3.2	-5.8	-8.54	-5.6	-6.1	-7.9
試験法A: G' (T_g+30) (Pa)		212400	203900	231500	229200	206500	198500	214600	212500	204500
試験法A: G' (T_g+80) (Pa)		144600	139500	157400	160000	139200	136000	145300	144800	139200
試験法A: G' (T_g+80) / G' (T_g+30)		0.68	0.68	0.68	0.70	0.67	0.69	0.68	0.68	0.68
試験法B:ガラス転移温度(T_g) (°C)		-5.1	-5.3	-5.7	-5.9	-4.8	-5.3	-4.4	-5	-6.3
試験法B: G' (T_g+30) (Pa)		209100	203900	202600	201600	180400	202000	213900	211000	205600
試験法B: G' (T_g+80) (Pa)		140800	138700	135400	137400	121000	137200	145500	140500	140200
試験法B: G' (T_g+80) / G' (T_g+30)		0.67	0.68	0.67	0.68	0.67	0.68	0.68	0.67	0.68

【0 2 6 4】

【表5】

		実施例30	実施例31	実施例32	実施例33	実施例34	実施例35	比較例3	比較例4
樹脂 中間層A	ブチラール化度(モル%)	65	55	45	49	91	78	72	79
	アセチル化度(モル%)	28	28	28	25	7	18	7	1
	水酸基の含有率(モル%)	7	17	27	26	2	4	21	20
	含有量(重量部)	100	100	100	100	100	100	100	100
可塑剤	種類	3GO							
	含有量(重量部)	60	60	60	60	60	60	60	60
	ブチラール化度(モル%)	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5	68.5
	アセチル化度(モル%)	1	1	1	1	1	1	1	1
樹脂 保護層B	水酸基の含有率(モル%)	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5	30.5
	含有量(重量部)	100	100	100	100	100	100	100	100
	種類	3GO							
	可塑剤	27	29	38.5	38.5	30	27	38.5	38.5
膜構成		B/A/B							
保護層Bの厚み(μm)／中間層Aの厚み(μm)／保護層Bの厚み(μm)		350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350	350/110/350
中間層Aの厚み(μm)／保護層Bの合計の厚み(μm)		0.16	0.16	0.16	0.16	0.16	0.16	0.16	0.16
低温側のtan δピーク温度(°C)		-4.8	-5.1	-3.6	-3.2	-5.1	-5.4	-3.6	-3.1
低温側のtan δピーク最大値		1.44	1.39	1.31	1.3	1.46	1.47	0.98	1.03
20°C損失係数 3150Hz付近		0.37	0.36	0.33	0.33	0.38	0.39	0.26	0.27
発泡試験A(発泡の状態)		○○	○○	○○	○○	○○	○○	—	—
発泡試験B(発泡の状態)		○	○	○	○	○	○	—	—
試験法A: G' (Tg + 30) (Pa)		-6.9	-7.8	-1.6	-2.2	-6.3	-7.2	—	—
試験法A: G' (Tg + 80) (Pa)		207600	212400	236800	232900	209500	211200	—	—
試験法A: G' (Tg + 80) (Pa)		141600	143200	164000	161700	139600	140900	—	—
試験法A: G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)		0.38	0.67	0.69	0.69	0.67	0.67	—	—
試験法B: G' (ガラス転移温度(Tg)) (°C)		-5.3	-5.5	-4.2	-3.7	-5.6	-6	—	—
試験法B: G' (Tg + 30) (Pa)		210400	215700	228500	224900	210200	214500	—	—
試験法B: G' (Tg + 80) (Pa)		142300	144500	155300	152600	140100	143000	—	—
試験法B: G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)		0.38	0.67	0.68	0.68	0.67	0.67	—	—

【0265】

また、図7に、実施例1～7及び比較例1の合わせガラス用中間膜中の第1の層に含まれているポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール化度とアセチル化度と水酸基の含有率との三つの値の相図であって、該アセタール化度と該アセチル化度と該水酸基の含有

率との値を示した。

【0266】

また、図8に、実施例8～14及び比較例2の合わせガラス用中間膜中の第1の層に含まれているポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール化度とアセチル化度と水酸基の含有率との三つの値の相図であって、該アセタール化度と該アセチル化度と該水酸基の含有率との値を示した。

【0267】

また、図9に、実施例15～35及び比較例3，4の合わせガラス用中間膜中の第1の層に含まれているポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール化度とアセチル化度と水酸基の含有率との三つの値の相図であって、該アセタール化度と該アセチル化度と該水酸基の含有率との値を示した。

10

【0268】

また、上記表2～5に示すように、実施例及び比較例（比較例3，4は除く）の合わせガラス用中間膜では、第1の層を構成するポリビニルアセタール樹脂と第1の層を構成する可塑剤とを上記表2～5の含有量で含む樹脂膜B（第1の層）を用いて、多層中間膜の各層間で可塑剤を移行させた後、該樹脂膜B（第1の層）の弾性率G'を測定した結果、該樹脂膜Bの比（ $G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)$ ）は、第1の層に含まれているポリビニルアセタール樹脂100重量部と3GO60重量部とを含む樹脂膜Aの比（ $G' (Tg + 80) / G' (Tg + 30)$ ）とほぼ同様であった。

【符号の説明】

20

【0269】

1 … 中間膜

1 a … 第1の表面

1 b … 第2の表面

2 … 第1の層

2 a … 第1の表面

2 b … 第2の表面

3 … 第2の層

3 a … 外側の表面

4 … 第3の層

30

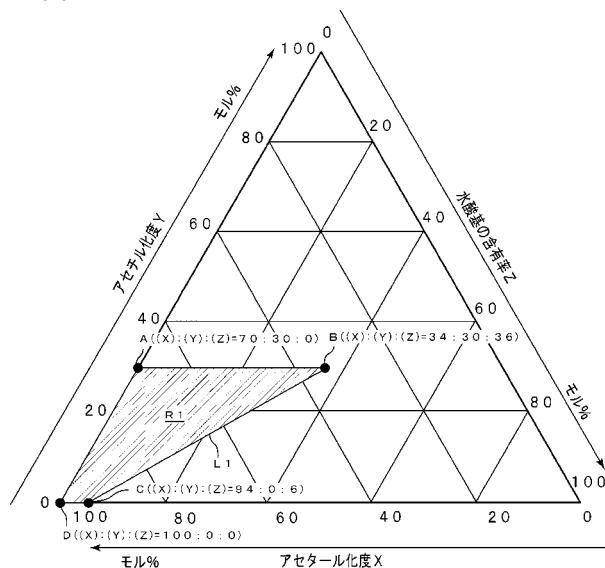
4 a … 外側の表面

1 1 … 合わせガラス

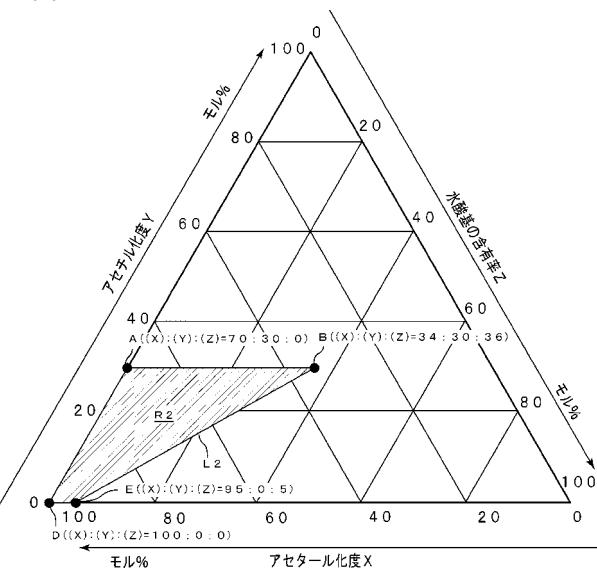
2 1 … 第1の合わせガラス構成部材

2 2 … 第2の合わせガラス構成部材

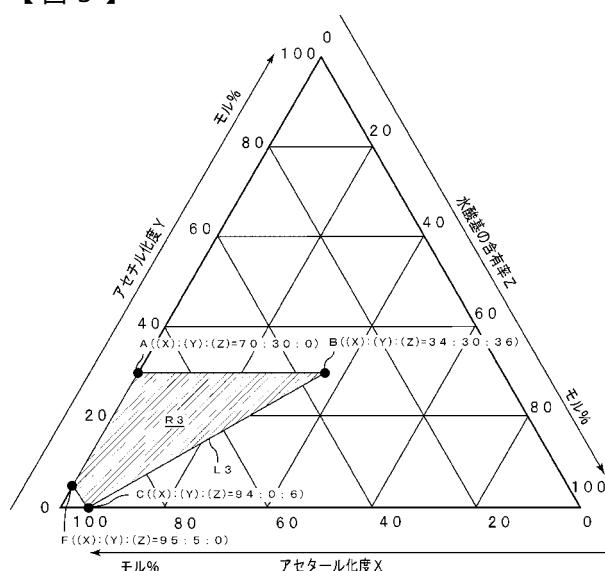
【図1】



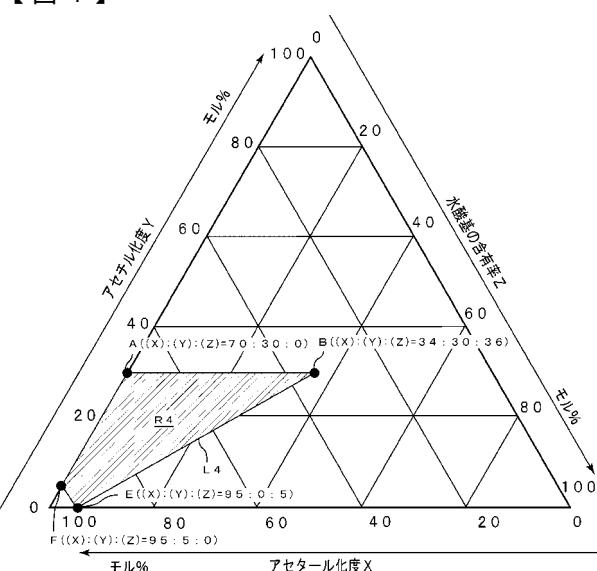
【図2】



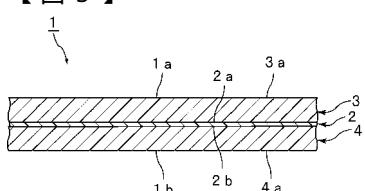
【図3】



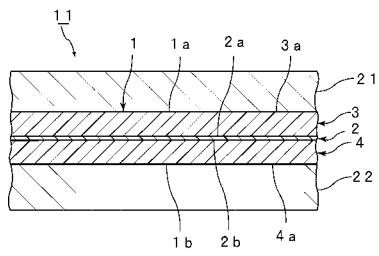
【図4】



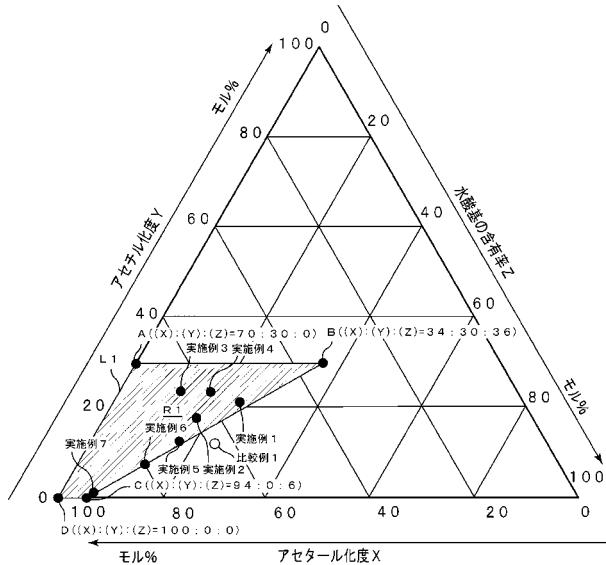
【図5】



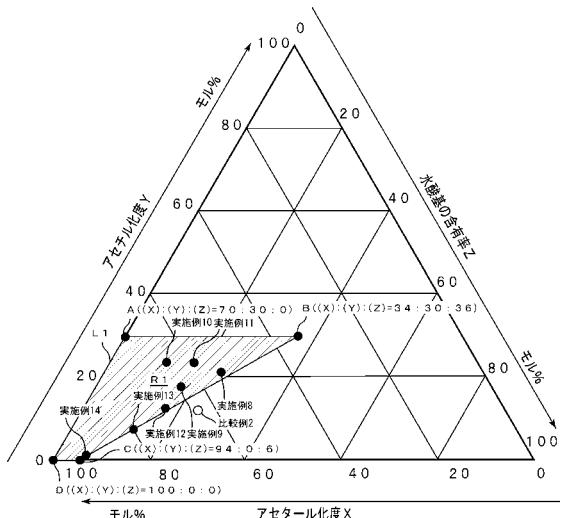
【図6】



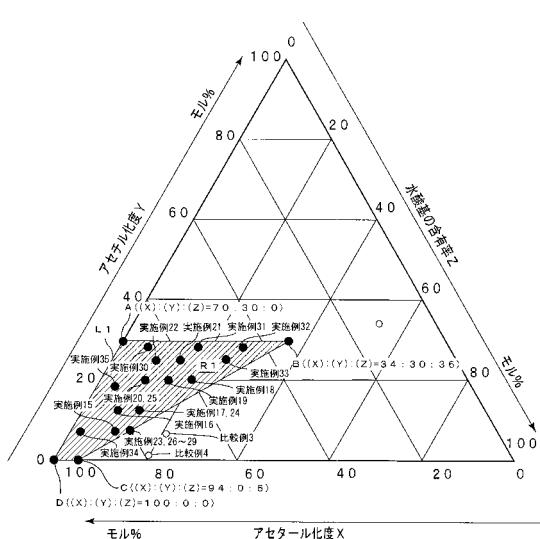
【図7】



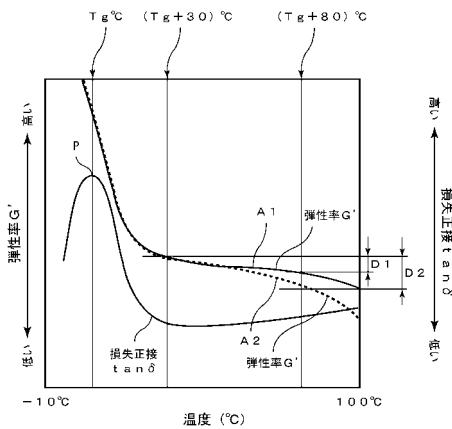
【図8】



【図9】



【図10】



フロントページの続き

(72)発明者 可児 孝平
滋賀県甲賀市水口町泉1259 積水化学工業株式会社内

(72)発明者 岩本 達矢
滋賀県甲賀市水口町泉1259 積水化学工業株式会社内

審査官 増山 淳子

(56)参考文献 国際公開第2010/008053 (WO, A1)
国際公開第2010/095749 (WO, A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C03C 27/12