

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2016年10月6日(06.10.2016)

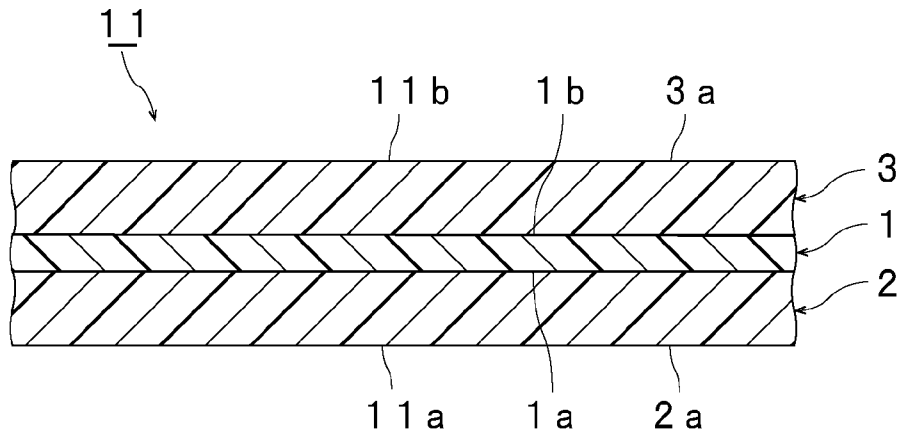


(10) 国際公開番号
WO 2016/158695 A1

- (51) 国際特許分類:
C03C 27/12 (2006.01) B32B 17/10 (2006.01)
 - (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/059474
 - (22) 国際出願日: 2016年3月24日(24.03.2016)
 - (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 2015-074434 2015年3月31日(31.03.2015) JP
特願 2015-074435 2015年3月31日(31.03.2015) 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: 三箇山 郁 (MIKAYAMA, Kaoru); 〒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). 大東 裕司 (OHIGASHI, 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).
 - (74) 代理人: 特許業務法人 宮▲崎▼・目次特許事務所(MIYAZAKI & METSUGI); 〒5400028 大阪府大阪市中央区常盤町1丁目3番8号 中央大通FNビル Osaka (JP).
 - (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
 - (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告 (条約第21条(3))

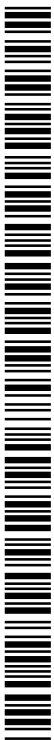
(54) Title: INTERMEDIATE FILM FOR LAMINATED GLASS, AND LAMINATED GLASS

(54) 発明の名称: 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス



(57) Abstract: Provided is an intermediate film for laminated glass, with which it is possible to improve the flexural rigidity, sound insulating properties, and long-term adhesive stability of the laminated glass. This intermediate film for laminated glass has, in at least 80% of the temperature range from 0°C to 30°C, a shear storage equivalent elastic modulus of 10 MPa to 500 MPa, such that the value obtained by dividing the shear storage equivalent elastic modulus at 10°C by the shear storage equivalent elastic modulus at 30°C is 1 to 10, has a glass transition temperature of -25°C to 0°C, and, in the temperature range of -50°C to 0°C, has a maximum tanδ value of 0.1 to 1.

(57) 要約: 合わせガラスの曲げ剛性、遮音性及び長期接着安定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、0°C以上30°C以下の温度領域のうちの80%以上の温度領域で、せん断貯蔵等価弾性率が10MPa以上、500MPa以下であり、かつ10°Cでのせん断貯蔵等価弾性率を30°Cでのせん断貯蔵等価弾性率で除した値が1以上、10以下であり、ガラス転移温度が-25°C以上、0°C以下に存在し、-50°C以上、0°C以下の温度領域におけるtanδの最大値が0.1以上、1以下である。



WO 2016/158695 A1

明 細 書

発明の名称： 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス

技術分野

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

背景技術

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

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

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

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

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

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

先行技術文献

特許文献

- [0008] 特許文献1：特開2007-070200号公報
特許文献2：US2013/0236711A1
特許文献3：WO2008/122608A1

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0009] 特許文献1~3に記載のような従来の中間膜を用いた合わせガラスでは、曲げ剛性が低いことがある。このため、例えば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。
- [0010] また、近年、合わせガラスを軽量化するために、ガラス板の厚みを薄くすることが求められている。2つのガラス板の間に中間膜が挟み込まれた合わせガラスにおいて、ガラス板の厚みを薄くすると、曲げ剛性を十分に高く維持することが極めて困難であるという問題がある。
- [0011] 例えば、ガラス板の厚みが薄くても、中間膜に起因して合わせガラスの曲げ剛性を高めることができれば、合わせガラスを軽量化することができる。合わせガラスが軽量であると、合わせガラスに用いる材料の量を少なくすることができ、環境負荷を低減することができる。さらに、軽量である合わせガラスを自動車に用いると、燃費を向上させることができ、結果として環境

負荷を低減することができる。

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

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

[0014] また、従来の中間膜を保管すると、中間膜同士が自着し、取扱性が低下することがあり、長期接着安定性が低いことがある。

[0015] 本発明の目的は、合わせガラスの曲げ剛性、遮音性及び長期接着安定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

[0016] 本発明の広い局面によれば、 0°C 以上 30°C 以下の温度領域のうちの80%以上の温度領域で、せん断貯蔵等価弾性率が 10MPa 以上、 500MPa 以下であり、 10°C でのせん断貯蔵等価弾性率を 30°C でのせん断貯蔵等価弾性率で除した値が1以上、10以下であり、ガラス転移温度が -25°C 以上、 0°C 以下に存在し、 -50°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、1以下である、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。

[0017] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、ガラス転移温度が -20°C 以上に存在する。

[0018] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、前記中間膜は、重量平均分子量が 100000 以上、 1300000 以下である樹脂を含む。

- [0019] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、 -50°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。
- [0020] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、 0°C 以上 30°C 以下の温度領域のうちの 80% 以上の温度領域で、せん断貯蔵等価弾性率が 10MPa 以上、 400MPa 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、前記中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂を含む。
- [0022] 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が、ポリビニルアセトアセタール樹脂又はポリビニルブチラール樹脂である。
- [0023] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、前記中間膜は、アクリル重合体を含む。
- [0024] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、前記中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と、ポリビニルアセタール樹脂以外の熱可塑性樹脂とを含む。
- [0025] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、前記中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と、アクリル重合体とを含む。
- [0026] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、厚みが 3mm 以下である。
- [0027] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、前記中間膜は、厚みが 1.6mm 以下である第1のガラス板を用いて、前記第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられる。
- [0028] 本発明に係る中間膜のある特定の局面では、前記中間膜は、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用いられ、前記第1のガラス板の厚みと前記第2のガラス板の厚みとの合計が 3.5mm 以下である。
- [0029] 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。

[0030] 本発明に係る合わせガラスのある特定の局面では、前記第1の合わせガラス部材が第1のガラス板であり、前記第1のガラス板の厚みが1.6mm以下である。

[0031] 本発明に係る合わせガラスのある特定の局面では、前記第1の合わせガラス部材が第1のガラス板であり、前記第2の合わせガラス部材が第2のガラス板であり、前記第1のガラス板の厚みと前記第2のガラス板の厚みとの合計が3.5mm以下である。

発明の効果

[0032] 本発明に係る合わせガラス用中間膜では、0℃以上30℃以下の温度領域のうちの80%以上の温度領域で、せん断貯蔵等価弾性率が10MPa以上、500MPa以下であり、かつ10℃でのせん断貯蔵等価弾性率を30℃でのせん断貯蔵等価弾性率で除した値が1以上、10以下であり、ガラス転移温度が-25℃以上、0℃以下に存在し、-50℃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、1以下であるので、中間膜を用いた合わせガラスの曲げ剛性、遮音性及び長期接着安定性を高めることができる。

図面の簡単な説明

[0033] [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

[0034] 以下、本発明を詳細に説明する。

- [0035] 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、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。
- [0036] 本発明に係る中間膜において、周波数1 Hzにて0℃以上30℃以下の温度領域でのせん断貯蔵等価弾性率を測定する。本発明に係る中間膜では、0℃以上30℃以下の温度領域のうちの80%以上の温度領域で、上記せん断貯蔵等価弾性率が10 MPa以上、500 MPa以下である。
- [0037] さらに、本発明に係る中間膜では、10℃でのせん断貯蔵等価弾性率を30℃でのせん断貯蔵等価弾性率で除した値（10℃でのせん断貯蔵等価弾性率／30℃でのせん断貯蔵等価弾性率）が1以上、10以下である。
- [0038] さらに、本発明に係る中間膜では、ガラス転移温度が-25℃以上、0℃以下に存在する。さらに、本発明に係る中間膜では、-50℃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、1以下である。
- [0039] 本発明に係る中間膜では、上記の構成が備えられているので、中間膜を用いた合わせガラスの曲げ剛性を高めることができる。また、合わせガラスを得るために、中間膜は、第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されることが多い。第1のガラス板の厚みが薄くても、本発明に係る中間膜の使用により、合わせガラスの曲げ剛性を十分に高くすることができる。また、第1のガラス板と第2のガラス板との双方の厚みが薄くても、本発明に係る中間膜の使用により、合わせガラスの曲げ剛性を十分に高くすることができる。なお、第1のガラス板と第2のガラス板との双方の厚みが厚いと、合わせガラスの曲げ剛性はより一層高くなる。
- [0040] さらに、本発明に係る中間膜では、上記の構成が備えられているので、中間膜を用いた合わせガラスの遮音性も高めることができる。

- [0041] 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、耐貫通性に優れた合わせガラスを得ることができる。
- [0042] 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。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、中間膜の曲げ合わせ性を高めることができる。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] 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、中間膜を保管しても、中間膜同士が自着し難く、長期間にわたり良好な取扱性を維持することができ、長期接着安定性を高めることができる。
- [0044] せん断貯蔵等価弾性率は、多層体を単層とみなした時のせん断貯蔵弾性率のことを示す。なお、単層の場合は、単層のせん断貯蔵弾性率のことを示す。せん断貯蔵等価弾性率は、層間で滑らない場合、例えば、中間膜を構成する層構成のまま、一般的な動的粘弾性測定方法にてせん断貯蔵弾性率を測定することにより、測定することができる。
- [0045] 上記せん断貯蔵等価弾性率を測定する方法としては、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、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 及び歪 0.05% の条件で測定することが好ましい。
- [0046] また、せん断貯蔵等価弾性率 $G' *$ は以下の式 (X) により求められる。
- [0047] $G' * = (\sum_i a_i) / (\sum_i a_i / G'_i) \dots$ 式 (X)
- [0048] 上記式 (X) 中の G'_i は中間膜における i 層目のせん断貯蔵弾性率を示し、 a_i は中間膜における i 層目の厚みを示す。 \sum_i は i 層の数値の和を計算することを意味する。
- [0049] 0°C 以上 30°C 以下の温度領域のうちの 80% 以上の温度領域で、上記せん断貯蔵等価弾性率が 10 MPa 以上、500 MPa 以下であることで、高

い曲げ剛性と、高い遮音性との双方を達成することができる。特に、合わせガラスが汎用される温度条件で、高い曲げ剛性と、高い遮音性との双方を両立することができる。

[0050] せん断貯蔵等価弾性率が低いと、曲げ剛性が低くなる傾向がある。せん断貯蔵等価弾性率が高いと、コインシデンス周波数が低周波数側になるため、耳で感度よく音が認識され、遮音性が悪くなる傾向があり、更に柔軟性が低下し、耐貫通性及び曲げ合わせ特性も低下する傾向がある。さらに、せん断貯蔵等価弾性率が低いと、自着性が高くなるため、長期接着安定性が悪くなり、性能を安定して発揮しなくなる可能性がある。

[0051] 曲げ剛性と遮音性とをより一層高める観点からは、 0°C 以上 30°C 以下の温度領域のうちの80%以上の温度領域で、上記せん断貯蔵等価弾性率が10MPa以上、400MPa以下であることが好ましい。

[0052] 上記値（ 10°C でのせん断貯蔵等価弾性率/ 30°C でのせん断貯蔵等価弾性率）は1以上、好ましくは1.1以上、より好ましくは2以上、10以下、好ましくは9以下、より好ましくは5以下である。上記値が上記下限以上及び上記上限以下であると、合わせガラスが汎用される温度条件で、曲げ剛性がより一層高くなり、遮音性がより一層高くなる。

[0053] 本発明に係る中間膜では、ガラス転移温度が -25°C 以上、 0°C 以下に存在することが好ましい。本発明に係る中間膜では、ガラス転移温度が -20°C 以上、 0°C 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、耐貫通性が向上する。

[0054] 上記ガラス転移温度を測定する方法として、得られた中間膜を、室温 $23 \pm 2^{\circ}\text{C}$ 、湿度 $25 \pm 5\%$ の環境下に12時間保管した直後に、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°C から 100°C まで温度を上昇させる条件、及び周波数 1 Hz 及び歪 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。

[0055] -50°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、好ましくは 0.11 以上、 1 以下、好ましくは 0.8 以下、より好ましくは 0.6 以下である。 $\tan\delta$ の最大値が上記下限以上であると、エネルギー損失能が高くなるため、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、せん断貯蔵等価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。また、 $\tan\delta$ の最大値が上記上限以下であると、長期接着安定性が効果的に高くなる。

[0056] -50°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、低温から室温(23°C)までの温度領域における遮音性が効果的に高くなる。

[0057] 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 1 の層が配置される。

[0058] 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。

[0059] 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。

[0060] 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。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。

[0061] 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。

[0062] 図1に、本発明の第1の実施形態に係る合わせガラス用中間膜を模式的に断面図で示す。

[0063] 図1に示す中間膜11は、2層以上の構造を有する多層の中間膜である。中間膜11は、合わせガラスを得るために用いられる。中間膜11は、合わせガラス用中間膜である。中間膜11は、第1の層1と、第2の層2と、第3の層3とを備える。第1の層1の第1の表面1aに、第2の層2が配置されており、積層されている。第1の層1の第1の表面1aとは反対の第2の

表面 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 1 1 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。

[0064] 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。

[0065] 図 2 に、本発明の第 2 の実施形態に係る合わせガラス用中間膜を模式的に断面図で示す。

[0066] 図 2 に示す中間膜 1 1 A は、1 層の構造を有する単層の中間膜である。中間膜 1 1 A は、第 1 の層である。中間膜 1 1 A は、合わせガラスを得るために用いられる。中間膜 1 1 A は、合わせガラス用中間膜である。

[0067] 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。

[0068] （樹脂）

中間膜、上記第 1 の層、上記第 2 の層、上記第 3 の層は、樹脂を含むことが好ましい。上記樹脂としては、熱硬化性樹脂及び熱可塑性樹脂が挙げられる。

[0069] 上記樹脂の重量平均分子量は、好ましくは 30000 以上、より好ましくは 100000 以上、更に好ましくは 120000 以上、好ましくは 1500000 以下、より好ましくは 1300000 以下、更に好ましくは 1200000 以下、特に好ましくは 7500000 以下、最も好ましくは 450000 以下である。上記重量平均分子量が上記下限以上及び上記上限以下で

あると、押出成形により中間膜を容易に得ることができ、更にせん断貯蔵等価弾性率が適度になり、曲げ合わせ性や発泡抑制性がより一層良好になる。

[0070] 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）により測定されるポリスチレン換算での重量平均分子量を示す。

[0071] 上記樹脂は、熱可塑性樹脂であることが好ましく、ポリビニルアセタール樹脂、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であることが好ましく、ポリビニルアセタール樹脂又はアクリル重合体であることがより好ましく、ポリビニルアセタール樹脂であることが更に好ましい。ポリビニルアセタール樹脂の使用により、強靱性が効果的に高くなり、耐貫通性がより一層高くなる。上記熱可塑性樹脂は1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されていてもよい。

[0072] 剛性、遮音性、耐貫通性、曲げ合わせ性、及び長期接着安定性を効果的に高くする観点からは、上記中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂又はアクリル重合体を含むことが好ましい。この場合に、ポリビニルアセタール樹脂とアクリル重合体との内の一方のみを用いてもよく、双方を用いてもよい。剛性、遮音性、耐貫通性、曲げ合わせ性、及び長期接着安定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を含むことが好ましく、アクリル重合体を含むことが好ましい。

[0073] 上記中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と、ポリビニルアセタール樹脂以外の熱可塑性樹脂とを含んでいてもよい。上記中間膜は、アクリル重合体以外の熱可塑性樹脂と、アクリル重合体とを含んでいてもよい。上記熱可塑性樹脂を2種以上併用する場合の組み合わせとしては、上記中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂とアクリル重合体とを含むことが特に好ましい。上記熱可塑性樹脂を2種以上併用した場合には性能バランスを容易に調整することができ、剛性、遮音性、耐貫通性、曲げ合わせ性、及び長期接着安定性を効果的に高くすることができる。特に、ポリビニルアセタール樹脂とアクリル重合体との組み合わせにより、上記性能をさらに高くすることができる。

[0074] 剛性、遮音性、耐貫通性、曲げ合わせ性、及び長期接着安定性を効果的に

高くする観点からは、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又はポリビニルブチラール樹脂であることが好ましい。本明細書において、ポリビニルアセタール樹脂には、アセトアセタール化された樹脂が含まれる。

[0075] 上記樹脂は、極性基を有することが好ましく、水酸基を有することが好ましい。このような基の存在により、中間膜は強靱となるだけでなく、中間膜と合わせガラス部材との接着性がより一層高くなり、曲げ剛性及び耐貫通性がより一層高くなる。

[0076] 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。

[0077] 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、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。なかでも、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。

[0078] 上記熱可塑性樹脂は架橋構造を有してもよい。上記熱可塑性樹脂が架橋構造を有することにより、せん断貯蔵等価弾性率を制御でき、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。上記熱可塑性樹脂を架橋させる方法としては、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、並びに電子線照射により架橋させる方法等が挙げられる。なかでも、せん断貯蔵等価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。

[0079] 上記第 1 の層は、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く、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 2 の層は、熱可塑性樹脂（以下、熱可塑性樹脂（2）と記載することがある）を含むことが好ましく、熱可塑性樹脂（2）として、ポリビニルアセタール樹脂（以下、ポリビニルアセタール樹脂（2）と記載することがある）を含むことが好ましい。上記第 3 の層は、熱可塑性樹脂（以下、熱可塑性樹脂（3）と記載することがある）を含むことが好ましく、熱可塑性樹脂（3）として、ポリビニルアセタール樹脂（以下、ポリビニルアセタール樹脂（3）と記載することがある）を含むこと

が好ましい。上記ポリビニルアセタール樹脂（１）と上記ポリビニルアセタール樹脂（２）と上記ポリビニルアセタール樹脂（３）とは、同一であってもよく、異なってもよいが、遮音性がより一層高くなることから、上記ポリビニルアセタール樹脂（１）は、上記ポリビニルアセタール樹脂（２）及び上記ポリビニルアセタール樹脂（３）と異なっていることが好ましい。上記熱可塑性樹脂（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。

[0080] 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。

[0081] 上記ポリビニルアセタール樹脂は、例えば、ポリビニルアルコールをアルデヒドによりアセタール化することにより製造できる。上記ポリビニルアセタール樹脂は、ポリビニルアルコールのアセタール化物であることが好ましい。上記ポリビニルアルコールは、例えば、ポリ酢酸ビニルをけん化することにより得られる。上記ポリビニルアルコールのけん化度は、一般に70～99.9モル%である。

[0082] 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。

[0083] 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。

[0084] 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。

[0085] 上記アルデヒドとして、一般には、炭素数が1～10のアルデヒドが好適に用いられる。上記炭素数が1～10のアルデヒドとしては、例えば、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、*n*-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、*n*-バレルアルデヒド、2-エチルブチルアルデヒド、*n*-ヘキシルアルデヒド、*n*-オクチルアルデヒド、*n*-ノニルアルデヒド、*n*-デシルアルデヒド、及びベンズアルデヒド等が挙げられる。なかでも、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、*n*-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、*n*-ヘキシルアルデヒド又は*n*-バレルアルデヒドが好ましく、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、*n*-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド又は*n*-バレルアルデヒドがより好ましく、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。

[0086] 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、好ましくは25モル%以上、より好ましくは28モル%以上、より好ましくは30モル%以上、より一層好ましくは31.5モル%以上、更に好ましくは32モル%以上、特に好ましくは33モル%以上、好ましくは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。

[0087] 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。

[0088] 上記ポリビニルアセタール樹脂（２）及び上記ポリビニルアセタール樹脂（３）の水酸基の各含有率は、好ましくは２５モル％以上、より好ましくは２８モル％以上、より好ましくは３０モル％以上、より一層好ましくは３１．５モル％以上、更に好ましくは３２モル％以上、特に好ましくは３３モル％以上、好ましくは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。

[0089] 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。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。

[0090] 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。

[0091] 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、耐貫通性に優れる。

[0092] 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。

[0093] 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。

[0094] 上記ポリビニルアセタール樹脂（1）のアセタール化度（ポリビニルブチラール樹脂の場合にはブチラール化度）は、好ましくは47モル%以上、より好ましくは60モル%以上、好ましくは85モル%以下、より好ましくは80モル%以下、更に好ましくは75モル%以下である。上記アセタール化度が上記下限以上であると、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤との相溶性が高くなる。上記アセタール化度が上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂を製造するために必要な反応時間が短くなる。

[0095] 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。

[0096] 上記アセタール化度は、主鎖の全エチレン基量から、水酸基が結合しているエチレン基量と、アセチル基が結合しているエチレン基量とを差し引いた値を、主鎖の全エチレン基量で除算して求めたモル分率を百分率で示した値である。

[0097] なお、上記水酸基の含有率（水酸基量）、アセタール化度（ブチラール化度）及びアセチル化度は、JIS K6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により測定された結果から算出することが好ましい。但し、ASTM D1396-92による測定を用いてもよい。ポリビニル

アセタール樹脂がポリビニルブチラール樹脂である場合は、上記水酸基の含有率（水酸基量）、上記アセタール化度（ブチラール化度）及び上記アセチル化度は、JIS K6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により測定された結果から算出され得る。

[0098] 合わせガラスの耐貫通性をより一層良好にする観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂（1）は、アセチル化度（a）が8モル%未満であり、かつアセタール化度（a）が65モル%以上であるポリビニルアセタール樹脂（A）であるか、又はアセチル化度（b）が8モル%以上であるポリビニルアセタール樹脂（B）であることが好ましい。上記ポリビニルアセタール樹脂（2）及び上記ポリビニルアセタール樹脂（3）は、上記ポリビニルアセタール樹脂（A）であってもよく、上記ポリビニルアセタール樹脂（B）であってもよい。

[0099] 上記ポリビニルアセタール樹脂（A）のアセチル化度（a）は8モル%未満、好ましくは7.9モル%以下、より好ましくは7.8モル%以下、更に好ましくは6.5モル%以下、特に好ましくは6モル%以下、好ましくは0.1モル%以上、より好ましくは0.5モル%以上、更に好ましくは0.7モル%以上、特に好ましくは1モル%以上である。上記アセチル化度（a）が0.1モル%以上、8モル%未満であると、耐貫通性により一層優れ、可塑剤の移行を容易に制御でき、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。アセチル化度（a）は5モル%以上であってもよく、1モル%以上であってもよい。

[0100] 上記ポリビニルアセタール樹脂（A）のアセタール化度（a）は64モル%以上、好ましくは65モル%以上、より好ましくは66モル%以上、更に好ましくは67モル%以上、更に一層好ましくは67.5モル%以上、特に好ましくは68モル%以上、好ましくは85モル%以下、より好ましくは84モル%以下、更に好ましくは83モル%以下、特に好ましくは82モル%以下である。アセタール化度（a）は75モル%以下であってもよい。上記アセタール化度（a）が上記下限以上であると、合わせガラスの遮音性がよ

り一層高くなる。上記アセタール化度（a）が上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂（A）を製造するために必要な反応時間を短縮できる。

[0101] 上記ポリビニルアセタール樹脂（A）の水酸基の含有率（a）は好ましくは18モル%以上、より好ましくは19モル%以上、更に好ましくは20モル%以上、特に好ましくは21モル%以上、最も好ましくは23モル%以上、好ましくは37モル%以下、より好ましくは36モル%以下、更に好ましくは35モル%以下、特に好ましくは34モル%以下である。上記水酸基の含有率（a）が上記下限以上であると、長期接着安定性により一層優れ、上記第1の層と上記第2の層とが直接積層されている場合、上記第1の層に対する上記第2の層の接着力がより一層高くなる。上記水酸基の含有率（a）が上記上限以下であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。水酸基の含有率（a）は、31モル%以下であってもよく、30モル%以下であってもよく、29モル%以下であってもよく、28モル%以下であってもよい。

[0102] 上記ポリビニルアセタール樹脂（B）のアセチル化度（b）は、8モル%以上、好ましくは9モル%以上、より好ましくは9.5モル%以上、更に好ましくは10モル%以上、特に好ましくは10.5モル%以上、好ましくは30モル%以下、より好ましくは28モル%以下、更に好ましくは26モル%以下、特に好ましくは24モル%以下である。上記アセチル化度（b）が上記下限以上であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。上記アセチル化度（b）が上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂（B）を製造するために必要な反応時間を短縮できる。

[0103] 上記ポリビニルアセタール樹脂（B）のアセタール化度（b）は好ましくは50モル%以上、より好ましくは53モル%以上、更に好ましくは55モル%以上、特に好ましくは60モル%以上、好ましくは78モル%以下、より好ましくは75モル%以下、更に好ましくは72モル%以下、特に好ましくは70モル%以下である。上記アセタール化度（b）が上記下限以上であ

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

[0104] 上記ポリビニルアセタール樹脂（B）の水酸基の含有率（b）は好ましくは18モル%以上、より好ましくは19モル%以上、更に好ましくは20モル%以上、特に好ましくは21モル%以上、最も好ましくは23モル%以上、好ましくは31モル%以下、より好ましくは30モル%以下、更に好ましくは29モル%以下、特に好ましくは28モル%以下である。上記水酸基の含有率（b）が上記下限以上であると、上記第1の層と上記第2の層とが直接積層されている場合、上記第1の層に対する上記第2の層の接着力がより一層高くなる。上記水酸基の含有率（b）が上記上限以下であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。

[0105] 上記ポリビニルアセタール樹脂（A）及び上記ポリビニルアセタール樹脂（B）はそれぞれ、ポリビニルアセトアセタール樹脂又はポリビニルブチラール樹脂であることが好ましい。

[0106] （可塑剤）

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

[0107] 上記可塑剤としては、一塩基性有機酸エステル及び多塩基性有機酸エステ

ル等の有機エステル可塑剤、並びに有機リン酸可塑剤及び有機亜リン酸可塑剤などの有機リン酸可塑剤等が挙げられる。なかでも、有機エステル可塑剤が好ましい。上記可塑剤は液状可塑剤であることが好ましい。

[0108] 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。

[0109] 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。

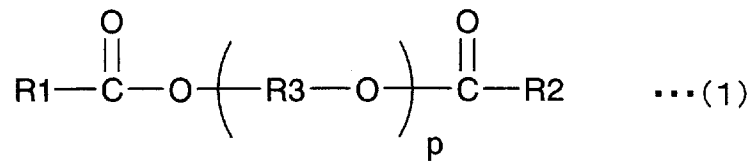
[0110] 上記有機エステル可塑剤としては、トリエチレングリコールジ-2-エチルプロパノエート、トリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート、トリエチレングリコールジカプリレート、トリエチレングリコールジ-n-オクタノエート、トリエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート、テトラエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート、ジブチルセバケート、ジオクチルアゼレート、ジブチルカルビトールアジペート、エチレングリコールジ-2-エチルブチレート、1,3-プロピレングリコールジ-2-エチルブチレート、1,4-ブチレングリコールジ-2-エチルブチレート、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、アジピン酸ジヘキシル、アジピン酸ジオクチル、アジピン酸ヘキシルシクロヘキシル、アジピン酸ヘプチルとアジピン酸ノニルとの混合物、アジピン酸ジイソノニル、

アジピン酸ジイソデシル、アジピン酸ヘプチルノニル、セバシン酸ジブチル、油変性セバシン酸アルキド、及びリン酸エステルとアジピン酸エステルとの混合物等が挙げられる。これら以外の有機エステル可塑剤を用いてもよい。上述のアジピン酸エステル以外の他のアジピン酸エステルを用いてもよい。

[0111] 上記有機リン酸可塑剤としては、トリブトキシエチルホスフェート、イソデシルフェニルホスフェート及びトリイソプロピルホスフェート等が挙げられる。

[0112] 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。

[0113] [化1]



[0114] 上記式（１）中、R 1 及びR 2 はそれぞれ、炭素数 2 ～ 1 0 の有機基を表し、R 3 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 ～ 1 0 の整数を表す。上記式（１）中の R 1 及びR 2 はそれぞれ、炭素数 5 ～ 1 0 の有機基であることが好ましく、炭素数 6 ～ 1 0 の有機基であることがより好ましい。

[0115] 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く、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート又はトリエチレングリコールジ-2-エチルブチレートを含むことがより好ましく、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。

[0116] 上記熱可塑性樹脂（２） 1 0 0 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） 1

00重量部)に対する上記可塑剤(2)の含有量(以下、含有量(2)と記載することがある)、並びに上記熱可塑性樹脂(3)100重量部(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(以下、含有量(3)と記載することがある)はそれぞれ、好ましくは10重量部以上、より好ましくは15重量部以上、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。

[0117] 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)100重量部に対する上記可塑剤(1)の含有量(以下、含有量(1)と記載することがある)は、好ましくは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、好ましくは90重量部以下、より好ましくは85重量部以下、更に好ましくは80重量部以下である。上記含有量(1)が上記下限以上であると、中間膜の柔軟性が高くなり、中間膜の取扱いが容易になる。上記含有量(1)が上記上限以下であると、合わせガラスの耐貫通性がより一層高くなる。上記熱可塑性樹脂(1)100重量部に対する上記可塑剤(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。

[0118] 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。

[0119] 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。

[0120] （遮熱性化合物）

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

[0121] 成分Ｘ：

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

[0122] 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。

[0123] 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。

[0124] 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。

[0125] 上記成分Xを含む層（第1の層、第2の層又は第3の層）100重量%中、上記成分Xの含有量は、好ましくは0.001重量%以上、より好ましくは0.005重量%以上、更に好ましくは0.01重量%以上、特に好ましくは0.02重量%以上、好ましくは0.2重量%以下、より好ましくは0.1重量%以下、更に好ましくは0.05重量%以下、特に好ましくは0.04重量%以下である。上記成分Xの含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、遮熱性が十分に高くなり、かつ可視光線透過率が十分に高くなる。例えば、可視光線透過率を70%以上にすることが可能である。

[0126] 遮熱粒子：

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

[0127] 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。

[0128] 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

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。

[0129] 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。なかでも、熱線の遮蔽機能が高いため、金属酸化物粒子が好ましく、ATO粒子、GZO粒子、IZO粒子、ITO粒子又は酸化タングステン粒子がより好ましく、ITO粒子又は酸化タングステン粒子が特に好ましい。特に、熱線の遮蔽機能が高く、かつ入手が容易であるので、錫ドープ酸化インジウム粒子（ITO粒子）が好ましく、酸化タングステン粒子も好ましい。

[0130] 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。

[0131] 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、該セシウムドーパ酸化タングステン粒子は、式： $Cs_{0.33}WO_3$ で表される酸化タングステン粒子であることが好ましい。

[0132] 上記遮熱粒子の平均粒子径は好ましくは $0.01\mu m$ 以上、より好ましくは $0.02\mu m$ 以上、好ましくは $0.1\mu m$ 以下、より好ましくは $0.05\mu m$ 以下である。平均粒子径が上記下限以上であると、熱線の遮蔽性が充分に高くなる。平均粒子径が上記上限以下であると、遮熱粒子の分散性が高くなる。

[0133] 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。

[0134] 上記遮熱粒子を含む層（第1の層、第2の層又は第3の層）100重量%中、上記遮熱粒子の含有量は、好ましくは0.01重量%以上、より好ましくは0.1重量%以上、更に好ましくは1重量%以上、特に好ましくは1.5重量%以上、好ましくは6重量%以下、より好ましくは5.5重量%以下、更に好ましくは4重量%以下、特に好ましくは3.5重量%以下、最も好ましくは3重量%以下である。上記遮熱粒子の含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、遮熱性が充分に高くなり、かつ可視光線透過率が充分に高くなる。

[0135] （金属塩）

上記中間膜は、アルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩の内の少なくとも1種の金属塩（以下、金属塩Mと記載することがある）を含むことが好ましい。上記第1の層は、上記金属塩Mを含むことが好ましい。上記第2の層は、上記金属塩Mを含むことが好ましい。上記第3の層は、上記金属塩Mを含むことが好ましい。上記金属塩Mの使用により、中間膜と合わせガラス部材との接着性又は中間膜における各層間の接着性を制御することが容易になる。上記金属塩Mは、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0136] 上記金属塩Mは、Li、Na、K、Rb、Cs、Mg、Ca、Sr及びB

a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。

[0137] また、上記金属塩Mは、炭素数2～16の有機酸のアルカリ金属塩又は炭素数2～16の有機酸のアルカリ土類金属塩であることがより好ましく、炭素数2～16のカルボン酸マグネシウム塩又は炭素数2～16のカルボン酸カリウム塩であることが更に好ましい。

[0138] 上記炭素数2～16のカルボン酸マグネシウム塩及び上記炭素数2～16のカルボン酸カリウム塩としては特に限定されないが、例えば、酢酸マグネシウム、酢酸カリウム、プロピオン酸マグネシウム、プロピオン酸カリウム、2-エチル酪酸マグネシウム、2-エチルブタン酸カリウム、2-エチルヘキサン酸マグネシウム及び2-エチルヘキサン酸カリウム等が挙げられる。

[0139] 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。

[0140] （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。

[0141] 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。

[0142] 上記紫外線遮蔽剤としては、例えば、金属原子を含む紫外線遮蔽剤、金属酸化物を含む紫外線遮蔽剤、ベンゾトリアゾール構造を有する紫外線遮蔽剤、ベンゾフェノン構造を有する紫外線遮蔽剤、トリアジン構造を有する紫外線遮蔽剤、マロン酸エステル構造を有する紫外線遮蔽剤、シュウ酸アニリド構造を有する紫外線遮蔽剤及びベンゾエート構造を有する紫外線遮蔽剤等が挙げられる。

[0143] 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。

[0144] 上記紫外線遮蔽剤は、好ましくはベンゾトリアゾール構造を有する紫外線遮蔽剤、ベンゾフェノン構造を有する紫外線遮蔽剤、トリアジン構造を有する紫外線遮蔽剤又はベンゾエート構造を有する紫外線遮蔽剤であり、より好ましくはベンゾトリアゾール構造を有する紫外線遮蔽剤又はベンゾフェノン構造を有する紫外線遮蔽剤であり、更に好ましくはベンゾトリアゾール構造を有する紫外線遮蔽剤である。

[0145] 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。

[0146] 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

n 3 2 6」)、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」)等のベンゾトリアゾール構造を有する紫外線吸収剤が挙げられる。紫外線を吸収する性能に優れることから、上記紫外線遮蔽剤は、ハロゲン原子を含むベンゾトリアゾール構造を有する紫外線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。

[0147] 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。

[0148] 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。

[0149] 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。

[0150] 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。

[0151] 上記シュウ酸アニリド構造を有する紫外線遮蔽剤としては、N-(2-エチルフェニル)-N'-(2-エトキシ-5-t-ブチルフェニル)シュウ酸ジアミド、N-(2-エチルフェニル)-N'-(2-エトキシフェニル)シュウ酸ジアミド、2-エチル-2'-エトキシオキシアニリド(クラリアント社製「Sanduvor VSU」)などの窒素原子上に置換されたアリール基などを有するシュウ酸ジアミド類が挙げられる。

[0152] 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。

[0153] 期間経過後の可視光線透過率の低下をより一層抑制する観点からは、上記紫外線遮蔽剤を含む層 (第1の層、第2の層又は第3の層) 100重量%中、上記紫外線遮蔽剤の含有量は、好ましくは0.1重量%以上、より好ましくは0.2重量%以上、更に好ましくは0.3重量%以上、特に好ましくは0.5重量%以上、好ましくは2.5重量%以下、より好ましくは2重量%以下、更に好ましくは1重量%以下、特に好ましくは0.8重量%以下である。特に、上記紫外線遮蔽剤を含む層100重量%中、上記紫外線遮蔽剤の含有量が0.2重量%以上であることにより、中間膜及び合わせガラスの期間経過後の可視光線透過率の低下を顕著に抑制できる。

[0154] (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。

[0155] 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。

[0156] 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。

[0157] 上記フェノール系酸化防止剤としては、2,6-ジ-tert-ブチル-p-クレゾール (BHT)、ブチル化ヒドロキシアニソール (BHA)、2,6-ジ-tert-ブチル-4-エチルフェノール、ステアリル-β-(3,5-ジ-tert-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

ンビスー（４－メチル－６－ブチルフェノール）、２，２’－メチレンビスー（４－エチル－６－*t*－ブチルフェノール）、４，４’－ブチリデンービスー（３－メチル－６－*t*－ブチルフェノール）、１，１，３－トリスー（２－メチル－ヒドロキシ－５－*t*－ブチルフェニル）ブタン、テトラキス〔メチレン－３－（３’，５’－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート〕メタン、１，３，３－トリスー（２－メチル－４－ヒドロキシ－５－*t*－ブチルフェノール）ブタン、１，３，５－トリメチル－２，４，６－トリス（３，５－ジ－*t*－ブチル－４－ヒドロキシベンジル）ベンゼン、ビス（３，３’－*t*－ブチルフェノール）ブチリックアジドグリコールエステル及びビス（３－*t*－ブチル－４－ヒドロキシ－５－メチルベンゼンプロパン酸）エチレンビス（オキシエチレン）等が挙げられる。これらの酸化防止剤の内の１種又は２種以上が好適に用いられる。

[0158] 上記リン系酸化防止剤としては、トリデシルホスファイト、トリス（トリデシル）ホスファイト、トリフェニルホスファイト、トリノニルフェニルホスファイト、ビス（トリデシル）ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス（デシル）ペンタエリスリトールジホスファイト、トリス（２，４－ジ－*t*－ブチルフェニル）ホスファイト、ビス（２，４－ジ－*t*－ブチル－６－メチルフェニル）エチルエステル亜リン酸、トリス（２，４－ジ－*t*－ブチルフェニル）ホスファイト、及び２，２’－メチレンビス（４，６－ジ－*t*－ブチル－１－フェニルオキシ）（２－エチルヘキシルオキシ）ホスホラス等が挙げられる。これらの酸化防止剤の内の１種又は２種以上が好適に用いられる。

[0159] 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」、並びにＢＡＳＦ社製「ＩＲＧＡＮＯＸ １０１０」等が挙げられる。

[0160] 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。

[0161] (他の成分)

上記第1の層、上記第2の層及び上記第3の層はそれぞれ、必要に応じて、ケイ素、アルミニウム又はチタンを含むカップリング剤、分散剤、界面活性剤、難燃剤、帯電防止剤、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。

[0162] せん断貯蔵等価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。曲げ剛性及効果を効果的に高め、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。

[0163] 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。

[0164] (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0.1mm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、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。

[0165] 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。

[0166] 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。

[0167] 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。

[0168] 本発明に係る中間膜の製造方法としては特に限定されない。本発明に係る中間膜の製造方法としては、単層の中間膜の場合に、樹脂組成物を押出機を用いて押出する方法が挙げられる。本発明に係る中間膜の製造方法としては、多層の中間膜の場合に、各層を形成するための各樹脂組成物を用いて各層をそれぞれ形成した後に、例えば、得られた各層を積層する方法、並びに各層を形成するための各樹脂組成物を押出機を用いて共押出することにより、各層を積層する方法等が挙げられる。連続的な生産に適しているため、押出成形する製造方法が好ましい。

[0169] 中間膜の製造効率が優れることから、上記第2の層と上記第3の層とに、同一のポリビニルアセタール樹脂が含まれていることが好ましく、上記第2の層と上記第3の層とに、同一のポリビニルアセタール樹脂及び同一の可塑

剤が含まれていることがより好ましく、上記第2の層と上記第3の層とが同一の樹脂組成物により形成されていることが更に好ましい。

[0170] 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。

[0171] (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。

[0172] 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。

[0173] 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。

[0174] 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。

[0175] 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。

[0176] 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。

[0177] 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。

[0178] 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。

[0179] 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。

[0180] 上記ガラス板としては、無機ガラス及び有機ガラスが挙げられる。上記無機ガラスとしては、フロート板ガラス、熱線吸収板ガラス、熱線反射板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス、及び線入り板ガラス等が挙げられる。上記有機ガラスは、無機ガラスに代用される合成樹脂ガラスである。上記有機ガラスとしては、ポリカーボネート板及びポリ（メタ）アクリル樹脂板等が挙げられる。上記ポリ（メタ）アクリル樹脂板としては、ポリメチル（メタ）アクリレート板等が挙げられる。

[0181] 上記合わせガラス部材の厚みは、好ましくは1mm以上、好ましくは5mm以下、より好ましくは3mm以下である。また、上記合わせガラス部材がガラス板である場合に、該ガラス板の厚みは、好ましくは0.5mm以上、

より好ましくは0.7 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。

[0182] 本発明に係る中間膜の使用により、合わせガラスの厚みが薄くても、合わせガラスの曲げ剛性を高く維持することができる。合わせガラスを軽量化したり、合わせガラスの材料を少なくして環境負荷を低減したり、合わせガラスの軽量化によって自動車の燃費を向上させて環境負荷を低減したりする観点からは、上記ガラス板の厚みは、好ましくは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。合わせガラスを軽量化したり、合わせガラスの材料を少なくして環境負荷を低減したり、合わせガラスの軽量化によって自動車の燃費を向上させて環境負荷を低減したりする観点からは、上記第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。

[0183] 上記合わせガラスの製造方法は特に限定されない。例えば、上記第1の合わせガラス部材と上記第2の合わせガラス部材との間に、中間膜を挟んで、押圧ロールに通したり、又はゴムバッグに入れて減圧吸引したりして、上記第1の合わせガラス部材と上記第2の合わせガラス部材と中間膜との間に残留する空気を脱気する。その後、約70～110℃で予備接着して積層体を得る。次に、積層体をオートクレーブに入れたり、又はプレスしたりして、約120～150℃及び1～1.5 MPaの圧力で圧着する。このようにして、合わせガラスを得ることができる。上記合わせガラスの製造時に、第1の層と第2の層と第3の層とを積層してもよい。

[0184] 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。

[0185] 以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明する。本発明はこれら実施例のみに限定されない。

[0186] 以下の材料を用意した。

[0187] (樹脂)

下記の表 1～4 に示すポリビニルアセタール樹脂を適宜用いた。用いたポリビニルアセタール樹脂については、実施例 20～22 以外では、アセタール化に、炭素数 4 の n -ブチルアルデヒドが用いられており、ポリビニルブチラール樹脂が用いられている。実施例 20～22 では、アセタール化に、炭素数 2 のアセトアルデヒドが用いられており、ポリビニルアセトアセタール樹脂が用いられている。

[0188] 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 J I S K 6 7 2 8 「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により測定した。なお、A S T M D 1 3 9 6 - 9 2 により測定した場合も、J I S K 6 7 2 8 「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠し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。

[0189] また、下記の表 1～4 に示すアクリル重合体を適宜用いた。下記の表 1～4 に示すアクリル重合体は、アクリル酸エチルと、アクリル酸ブチルと、ア

クリル酸ベンジルと、アクリル酸2-ヒドロキシエチルと、アクリル酸2-エチルヘキシルとを下記の表1~4に示す含有量で含む重合成分を重合させたアクリル重合体である。

[0190] (添加剤)

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

[0191] (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)

[0192] (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」)

[0193] (酸化防止剤)

BHT (2,6-ジ-t-ブチル-p-クレゾール)

[0194] (実施例1)

第1の層を形成するための組成物の作製:

下記の表1に示す種類のポリビニルアセタール樹脂100重量部と、可塑剤(3GO)70重量部と、紫外線遮蔽剤(Tinuvin 326)0.2重量部と、酸化防止剤(BHT)0.2重量部とを混合し、第1の層を形成するための組成物を得た。

[0195] 第2の層及び第3の層を形成するための組成物の作製:

下記の表1に示す種類のポリビニルアセタール樹脂100重量部と、可塑剤(3GO)20重量部と、紫外線遮蔽剤(Tinuvin 326)0.2重量部と、酸化防止剤(BHT)0.2重量部とを混合し、第2の層及び第3の層を形成するための組成物を得た。

[0196] 中間膜の作製:

第1の層を形成するための組成物と、第2の層及び第3の層を形成するための組成物とを、共押出機を用いて共押出しすることにより、第2の層(厚

み $800\mu\text{m}$) / 第1の層 (厚み $60\mu\text{m}$) / 第3の層 (厚み $800\mu\text{m}$) の積層構造を有する中間膜 (厚み $1660\mu\text{m}$) を作製した。

[0197] 合わせガラスA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°C 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°C 、圧力 1.2MPa ($12\text{kg}/\text{cm}^2$) の条件で20分間圧着を行い、合わせガラスAを得た。

[0198] 合わせガラスB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、 2.6kPa 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°C 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°C 及び圧力 1.2MPa の条件で、予備圧着された積層体を20分間圧着し、合わせガラスBを得た。

[0199] 合わせガラスC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 k P a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 M P a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Cを得た。

[0200] 中間膜、P E T積層体の作製（曲げ合わせ試験用）：

得られた中間膜を縦5 c m×横2. 5 c mの大きさに切断した。同じ大きさの50マイクロメートルの離型処理が施されていないP E Tフィルムを1枚用意した。このP E Tフィルムと、得られた中間膜を積層し、積層体を得た。得られた積層体を、オートクレーブ中で、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. 2 M P a（12 k g / c m²）の条件で20分間圧着を行い、積層体Aを得た。

[0201] （実施例2～4及び比較例1～3）

第1の層を形成するための組成物に用いる樹脂、可塑剤の種類と配合量、及び添加剤の種類と配合量とを下記の表1に示すように設定したこと、第2の層及び第3の層を形成するための組成物に用いる樹脂、及び可塑剤の種類と配合量とを下記の表1に示すように設定したこと、並びに第1の層、第2の層、第3の層、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2～4及び比較例1～3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（熱可塑性樹脂100重量部に対して0. 2重量部）で配合した。

[0202] （実施例5）

中間膜を形成するための組成物の作製：

下記の表2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2に示す種類のポリビニルアセタール樹脂以外の樹脂（アクリル重合体）100重量部と、紫外線遮蔽剤（T i n u v i n 3 2 6）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。

[0203] 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、単層の中間膜（厚み760 μ m）を作製した。

[0204] （実施例6～22及び比較例4～6）

中間膜を形成するための組成物に用いる樹脂、及び可塑剤の種類と配合量とを下記の表2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2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2に示すように設定したこと以外は実施例5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6～22及び比較例4～6では、実施例1と同じ種類の紫外線遮蔽剤及び酸化防止剤を、実施例1と同様の配合量（熱可塑性樹脂100重量部に対して0.2重量部）で配合した。

[0205] （評価）

（0）重量平均分子量

中間膜に用いた樹脂の重量平均分子量を、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）により測定した。

[0206] （1）等価粘弾性

せん断貯蔵等価弾性率：

周波数1Hzにて、0℃以上30℃以下の温度領域でのせん断貯蔵等価弾性率を測定した。具体的には、得られた中間膜を、室温23 \pm 2℃、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、中間膜を長さ50mm、幅20mmで切り出し、せん断モードで2℃/分の昇温速度で-50℃から100℃まで、周波数1Hz及び歪0.05%の条件で測定を行った。各層間の滑りによる測定不具合がない場合には、せん断貯蔵等価弾性率を以下の基準で

判定した。不具合がある場合には、各層の粘弾性を上記の方法で測定し、計算によりせん断貯蔵等価弾性率を算出した。せん断貯蔵等価弾性率を以下の基準で判定した。

[0207] [せん断貯蔵等価弾性率の判定基準]

○ ○ : 0℃以上30℃以下の温度領域のうちの80%以上の温度領域で、せん断貯蔵等価弾性率が10MPa以上、400MPa以下である

○ : ○ ○ の基準に相当せず、かつ、0℃以上30℃以下の温度領域のうちの80%以上の温度領域で、せん断貯蔵等価弾性率が10MPa以上、500MPa以下である

× : ○ ○ 及び○の基準に相当しない

[0208] また、値（10℃でのせん断貯蔵等価弾性率 / 30℃でのせん断貯蔵等価弾性率）を求めた。下記の表では、せん断貯蔵等価弾性率の除した値（10℃ - 30℃）として記載した。

[0209] ガラス転移温度 T_g :

得られた中間膜を、室温 $23 \pm 2^\circ\text{C}$ 、湿度 $25 \pm 5\%$ の環境下に12時間保管した直後に、MetraVib社製の粘弾性測定装置「DMA+1000」を用いて、中間膜を長さ50mm、幅20mmで切り出し、せん断モードで2℃/分の昇温速度で-50℃から100℃まで、周波数1Hz及び歪0.05%の条件で測定を行った。得られた粘弾性スペクトルで、損失正接が-25℃から0℃にピークがある場合はピーク温度を、ない場合は「なし」と記載した。

[0210] -25℃以上、0℃以下の温度領域での $\tan \delta$ の最大値、及び-50℃以上0℃以下の温度領域での $\tan \delta$:

-25℃以上、0℃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、MetraVib社製の粘弾性測定装置「DMA+1000」を用いて、中間膜を長さ50mm、幅20mmで切り出し、せん断モードで2℃/分の昇温速度で-50℃から100℃まで、周波数1H

z 及び歪 0.05% の条件で測定を行った。得られた粘弾性スペクトルで、損失正接が -25°C から 0°C にピークがある場合はピーク値を記載した。

[0211] また、 -50°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 以上であるか否かを評価し $\tan \delta$ を以下の基準で判定した。

[0212] [$\tan \delta$ の判定基準]

○ : -50°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

△ : -50°C 以上 0°C 以下の温度領域のうちの 5% 以上、10% 未満の温度領域で、 $\tan \delta$ が 0.1 以上である

× : ○ 及び △ の基準に相当しない

[0213] (2) 曲げ剛性

得られた合わせガラス A を用いて、曲げ剛性を評価した。

[0214] 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 UTA-500 を使用した。測定条件としては、測定温度 10°C ($10^{\circ}\text{C} \pm 3^{\circ}\text{C}$)、又は 20°C ($20 \pm 3^{\circ}\text{C}$)、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。

[0215] [曲げ剛性の判定基準]

○ : 曲げ剛性が 50 N/mm 以上

△ : 曲げ剛性が 45 N/mm 以上、 50 N/mm 未満

× : 曲げ剛性が 45 N/mm 未満

[0216] (3) 遮音性

得られた合わせガラス B をダンピング試験用の振動発生機（振研社製「加振機 G21-005D」）により加振し、そこから得られた振動特性を機械インピーダンス測定装置（リオン社製「XG-81」）にて増幅し、振動ス

ペクトルをFFTスペクトラムアナライザー（横河ヒューレッドパカード社製「FFTアナライザー HP3582A」）により解析した。

[0217] このようにして得られた損失係数と合わせガラスBとの共振周波数との比から、10℃及び20℃における音周波数（Hz）と音響透過損失（dB）との関係を示すグラフを作成し、音周波数3,000Hz付近における極小の音響透過損失（TL値）を求めた。このTL値が高いほど、遮音性が高くなる。遮音性を下記の基準で判定した。

[0218] [遮音性の判定基準]

○：TL値が35dB以上

△：TL値が30dB以上、35dB未満

×：TL値が30dB未満

[0219] （4）耐貫通性

得られた合わせガラスCを、表面温度が20℃となるように調整した。次いで、1.5mの高さから、6枚の合わせガラスに対してそれぞれ、質量2260g及び直径82mm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、25cmずつ高くし、6枚の合わせガラスに対してそれぞれ、質量2260g及び直径82mm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。

[0220] [耐貫通性の判定基準]

○：2mの高さでも合格

×：2m未満で不合格

[0221] （5）長期接着安定性

得られた中間膜を23℃で30日間保管した。保管前後で、下記の自着力の測定を行った。

[0222] 自着力の測定：

23℃及び湿度50%RHの条件下で、中間膜から試料（幅10mm×長さ100mm）を2枚切り出した。2枚の中間膜を重ねるように位置合わせした後、2kgのローラーを試料上で長さ方向に2往復させ、圧着し、試験片を得た。得られた試験片の片側に両面テープを貼り、その両面テープを介してSUS製の固定板に試験片を固定した。剥離速度500mm/分で180度剥離試験を行い、剥離強度を測定した。長期接着安定性を下記の基準で判定した。

[0223] [長期接着安定性の判定基準]

○：保管後の剥離強度が保管前の剥離強度の±10%の範囲内

×：○の基準に相当しない

[0224] (6) 曲げ合わせ性

得られた積層体Aを用いて、曲げ合わせ性を評価した。

[0225] 図5に模式的に示す試験方法で、曲げ合わせ性を評価した。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UTA-500を使用した。測定条件としては、測定温度20℃（20±3℃）、距離D1は3cm、距離D2は5cmとし、変位速度1mm/分でFの方向に合わせガラスに変形を加え、1mmの変位を加えたときの応力を測定し、曲げ合わせ性を評価した。曲げ合わせ性を以下の基準で判定した。

[0226] [曲げ合わせ性の判定基準]

○：曲げ合わせ性の応力が3N/mm未満

△：曲げ合わせ性の応力が3N/mm以上、3.5N/mm未満

×：曲げ合わせ性の応力が3.5N/mm以上

[0227] 詳細及び結果を下記の表1～4に示す。なお、下記の表1～4では、樹脂、可塑剤、及び添加剤であるシリカ粒子以外の配合成分の記載は省略した。

[0228]

[表1]

			実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	比較例 1	比較例 2	比較例 3	
第1の合わせガラス部材の厚み(mm)			1.0	1.0	1.0	1.6	1.0	1.0	1.0	
第2の層	ポリビニルアセ タール樹脂	含有量(重量部)	100	100	100	100	100	100	100	
		平均重合度	1700	1700	1700	800	1700	1700	1700	
		水酸基の含有率(mol%)	30.6	30.6	30.6	32.5	30.6	30.6	30.6	
		アセタール化度(mol%)	68.5	68.5	68.5	66.3	68.5	68.5	68.5	
		アセチル化度(mol%)	0.9	0.9	0.9	1.2	0.9	0.9	0.9	
	重量平均分子量	27万	27万	27万	16万	27万	27万	27万		
	可塑剤	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	
		含有量(重量部)	20	20	20	20	35	20	20	
	厚み(μm)			800	400	330	360	330	800	800
	第1の層	ポリビニルアセ タール樹脂	含有量(重量部)	100	100	100	-	100	100	100
平均重合度			3000	2500	800	-	2500	3000	3000	
水酸基の含有率(mol%)			20.8	20.9	34	-	20.9	20.8	20.8	
アセタール化度(mol%)			55.7	66.6	65.1	-	66.6	55.7	55.7	
アセチル化度(mol%)			23.5	12.5	0.9	-	12.5	23.5	23.5	
重量平均分子量		43万	35万	28万	-	35万	43万	43万		
ポリビニルアセ タール樹脂以外の 樹脂		含有量(重量部)	-	-	200	100	-	-	-	
		アクリル酸エチル(重量%)	-	-	28	28	-	-	-	
		アクリル酸ブチル(重量%)	-	-	22	22	-	-	-	
		アクリル酸ベンジル(重量%)	-	-	30	30	-	-	-	
		アクリル酸2-ヒドロキシエチル(重量%)	-	-	20	20	-	-	-	
		アクリル酸2-エチルヘキシル(重量%)	-	-	-	-	-	-	-	
重量平均分子量		-	-	20万	9万	-	-	-		
添加剤		シリカ粒子(重量部)	-	20	-	-	-	-	-	
可塑剤		種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	
		含有量(重量部)	70	60	20	0	70	70	70	
厚み(μm)			60	60	100	50	100	20	40	
第3の層		ポリビニルアセ タール樹脂	含有量(重量部)	100	100	100	100	100	100	100
			平均重合度	1700	1700	1700	800	1700	1700	1700
	水酸基の含有率(mol%)		30.6	30.6	30.6	32.5	30.6	30.6	30.6	
	アセタール化度(mol%)		68.5	68.5	68.5	66.3	68.5	68.5	68.5	
	アセチル化度(mol%)		0.9	0.9	0.9	1.2	0.9	0.9	0.9	
	重量平均分子量	27万	27万	27万	16万	27万	27万	27万		
	可塑剤	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	
		含有量(重量部)	20	20	20	20	35	20	20	
	厚み(μm)			800	400	330	360	330	800	800
	第2の合わせガラス部材の厚み(mm)			1.0	1.4	1.8	1.6	1.4	1.0	1.0
評価	(1)等価粘弾性	せん断貯蔵等価弾性率(判定)	○	○	○	○	×	○	○	
		せん断貯蔵弾性率の除した値(10°C-30°C)	1.3	1.2	3.1	5.7	15	1.2	1.2	
		Tg(=tan δピーク温度)(°C)	-5	-7	-4	-2	-5	-5	-5	
		tan δの最大値(-50~0°C)	0.2	0.2	0.4	0.6	0.6	0.08	0.09	
		tan δ(判定)	○	○	○	○	○	×	×	
	(2)曲げ剛性	判定(10°C/20°C)	○/○	○/○	○/○	△/△	△/×	○/○	○/○	
	(3)遮音性	判定(10°C/20°C)	○/○	○/○	○/○	○/○	○/○	×/×	×/×	
	(4)耐貫通性	判定(20°C)	○	○	○	○	○	○	○	
	(5)長期接着安定性	判定	○	○	○	○	×	○	○	
	(6)曲げ合わせ性	判定	△	○	○	○	○	×	×	

[0229]

[表2]

			実施例 5	実施例 6	比較例 4	実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 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)		1.0	0.7	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	含有量(重量部)	100	100	100	100	100	100	100
			平均重合度	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700
			水酸基の含有率(mol%)	34.2	34.2	30.6	34.2	34.2	34.2	34.2
			アセタール化度(mol%)	65	65	68.5	65	65	65	65
			アセチル化度(mol%)	0.8	0.8	0.9	0.8	0.8	0.8	0.8
			重量平均分子量	28万	28万	27万	28万	28万	28万	28万
	中間膜	ポリビニルアセタール樹脂以外の樹脂	含有量(重量部)	100	80	—	100	120	140	200
			アクリル酸エチル(重量%)	22	25	—	—	—	—	—
			アクリル酸ブチル(重量%)	28	25	—	—	—	—	—
			アクリル酸ベンジル(重量%)	30	30	—	32	32	32	32
			アクリル酸2-ヒドロキシエチル(重量%)	20	20	—	30	30	30	30
			アクリル酸2-エチルヘキシル(重量%)	—	—	—	38	38	38	38
	重量平均分子量	35万	80万	—	28万	32万	42万	63万		
	添加剤	シカ粒子(重量部)	—	—	—	—	—	—	—	
	可塑剤	種類	—	—	—	—	—	—	—	
		含有量(重量部)	—	—	—	—	—	—	—	
	厚み(μm)	760	760	760	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	1.4	
評価	(1)等価粘弾性	せん断貯蔵等価弾性率(判定)	〇〇	〇	〇	〇〇	〇〇	〇〇	〇〇	
		せん断貯蔵弾性率の除した値(10°C-30°C)	1.5	1.2	1.1	1.2	1.2	1.3	1.4	
		Tg(=tan δピーク温度)(°C)	-7	-4	なし	-10	-9	-10	-11	
		tan δの最大値(-50~0°C)	0.2	0.2	—	0.11	0.12	0.16	0.31	
		tan δ(判定)	〇	△	×	〇	〇	〇	〇	
	(2)曲げ剛性	判定(10°C/20°C)	〇/〇	〇/〇	〇/〇	〇/〇	〇/〇	〇/〇	〇/〇	
	(3)遮音性	判定(10°C/20°C)	〇/〇	△/△	×/×	〇/〇	〇/〇	〇/〇	〇/〇	
	(4)耐貫通性	判定(20°C)	〇	〇	×	〇	〇	〇	〇	
	(5)長期接着安定性	判定	〇	〇	〇	〇	〇	〇	〇	
	(6)曲げ合わせ性	判定	〇	△	×	〇	〇	〇	〇	

[0230]

[表3]

			実施例 11	実施例 12	実施例 13	実施例 14	実施例 15	実施例 16	実施例 17	
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	1.2	1.2	
	中間膜	ポリビニルアセタール樹脂	含有量(重量部)	100	100	100	100	100	100	100
			平均重合度	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700
			水酸基の含有率(mol%)	34.2	34.2	34.2	34.2	34.2	34.2	34.2
			アセタール化度(mol%)	65	65	65	65	65	65	65
			アセチル化度(mol%)	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8
			重量平均分子量	28万	28万	28万	28万	28万	28万	28万
	中間膜	ポリビニルアセタール樹脂以外の樹脂	含有量(重量部)	140	120	120	120	150	150	150
			アクリル酸エチル(重量%)	-	-	-	-	-	-	-
			アクリル酸ブチル(重量%)	-	-	-	-	-	49	57
			アクリル酸ベンジル(重量%)	32	32	32	32	32	21	23
			アクリル酸2-ヒドロキシエチル(重量%)	30	30	30	30	40	30	20
			アクリル酸2-エチルヘキシル(重量%)	38	38	38	38	28	-	-
	重量平均分子量	42万	32万	32万	32万	25万	33万	35万		
	添加剤	シリカ粒子(重量部)	-	-	-	-	-	-	-	
	可塑剤	種類	-	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	
		含有量(重量部)	-	5	10	15	5	5	5	
	厚み(μm)	800	800	800	800	800	800	800		
第2の合わせガラス部材の厚み (mm)			1.4	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	
評価	(1)等価粘弾性	せん断貯蔵等価弾性率(判定)	〇〇	〇〇	〇〇	〇〇	〇〇	〇〇	〇〇	
		せん断貯蔵弾性率の除した値(10°C-30°C)	1.3	1.3	1.3	1.4	1.3	1.3	1.4	
		Tg(=tan δピーク温度)(°C)	-10	-12	-13	-15	-8	-12	-12	
		tan δの最大値(-50~0°C)	0.16	0.12	0.13	0.13	0.14	0.16	0.16	
		tan δ(判定)	〇	〇	〇	〇	〇	〇	〇	
	(2)曲げ剛性	判定(10°C/20°C)	〇/〇	〇/〇	〇/〇	〇/〇	〇/〇	〇/〇	〇/〇	
	(3)遮音性	判定(10°C/20°C)	〇/〇	〇/〇	〇/〇	〇/〇	〇/〇	〇/〇	〇/〇	
	(4)耐貫通性	判定(20°C)	〇	〇	〇	〇	〇	〇	〇	
	(5)長期接着安定性	判定	〇	〇	〇	〇	〇	〇	〇	
	(6)曲げ合わせ性	判定	〇	〇	〇	〇	〇	〇	〇	

[0231]

[表4]

			実施例 18	実施例 19	実施例 20	実施例 21	実施例 22	比較例 5	比較例 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)		1.2	1.2	1.0	1.0	1.6	1.0	1.6	
	中間膜	ポリビニルアセタール樹脂	含有量(重量部)	100	100	100	100	100	100	100
			平均重合度	1700	1700	2000	2000	2000	1700	1700
			水酸基の含有率(mol%)	34.2	34.2	27	27	27	34.2	34.2
			アセタール化度(mol%)	65	65	72.5	72.5	72.5	65	65
			アセチル化度(mol%)	0.8	0.8	0.5	0.5	0.5	0.8	0.8
			重量平均分子量	28万	28万	27万	27万	27万	28万	28万
	中間膜	ポリビニルアセタール樹脂以外の樹脂	含有量(重量部)	150	150	150	150	150	—	—
			アクリル酸エチル(重量%)	—	—	—	—	—	—	—
			アクリル酸ブチル(重量%)	65	69	—	—	—	—	—
			アクリル酸ベンジル(重量%)	25	26	32	32	32	—	—
			アクリル酸2-ヒドロキシエチル(重量%)	10	5	30	30	30	—	—
			アクリル酸2-エチルヘキシル(重量%)	—	—	38	38	38	—	—
	中間膜	添加剤	シリカ粒子(重量部)	—	—	—	—	—	—	—
			可塑剤	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
中間膜	可塑剤	含有量(重量部)	5	5	10	10	10	40	40	
		厚み(μm)	800	800	800	800	800	760	760	
第2の合わせガラス部材の厚み(mm)			1.0	1.0	1.0	1.4	1.6	1.8	1.6	
評価	(1)等価粘弾性	せん断貯蔵等価弾性率(判定)	〇〇	〇〇	〇〇	〇〇	〇〇	〇	〇	
		せん断貯蔵弾性率の除した値(10°C-30°C)	1.3	1.3	1.2	1.2	1.2	21.3	21.3	
		Tg(=tan δピーク温度)(°C)	-17	-21	-10	-10	-10	なし	なし	
		tan δの最大値(-50~0°C)	0.18	0.18	0.2	0.2	0.2	—	—	
		tan δ(判定)	〇	〇	〇	〇	〇	×	×	
	(2)曲げ剛性	判定(10°C/20°C)	〇/〇	〇/〇	〇/〇	〇/〇	〇/〇	〇/〇	〇/〇	
	(3)遮音性	判定(10°C/20°C)	〇/〇	〇/△	〇/〇	〇/〇	〇/〇	×/×	×/×	
	(4)耐貫通性	判定(20°C)	〇	〇	〇	〇	〇	〇	〇	
	(5)長期接着安定性	判定	〇	〇	〇	〇	〇	×	×	
	(6)曲げ合わせ性	判定	〇	〇	〇	〇	〇	〇	〇	

符号の説明

- [0232] 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

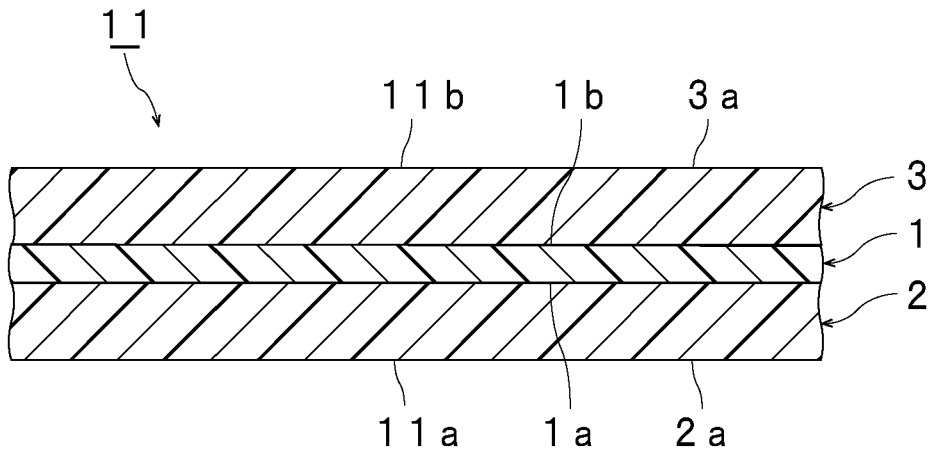
請求の範囲

- [請求項1] 0℃以上30℃以下の温度領域のうちの80%以上の温度領域で、せん断貯蔵等価弾性率が10MPa以上、500MPa以下であり、10℃でのせん断貯蔵等価弾性率を30℃でのせん断貯蔵等価弾性率で除した値が1以上、10以下であり、ガラス転移温度が-25℃以上、0℃以下に存在し、-50℃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、1以下である、合わせガラス用中間膜。
- [請求項2] ガラス転移温度が-20℃以上に存在する、請求項1に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項3] 重量平均分子量が100000以上、1300000以下である樹脂を含む、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] -50℃以上0℃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、請求項1～3のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項5] 0℃以上30℃以下の温度領域のうちの80%以上の温度領域で、せん断貯蔵等価弾性率が10MPa以上、400MPa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] ポリビニルアセタール樹脂を含む、請求項1～5のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項7] 前記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又はポリビニルブチラール樹脂である、請求項6に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項8] アクリル重合体を含む、請求項1～5のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項9] ポリビニルアセタール樹脂以外の熱可塑性樹脂を含む、請求項6又は7に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項10] アクリル重合体を含む、請求項6又は7に記載の合わせガラス用中

間膜。

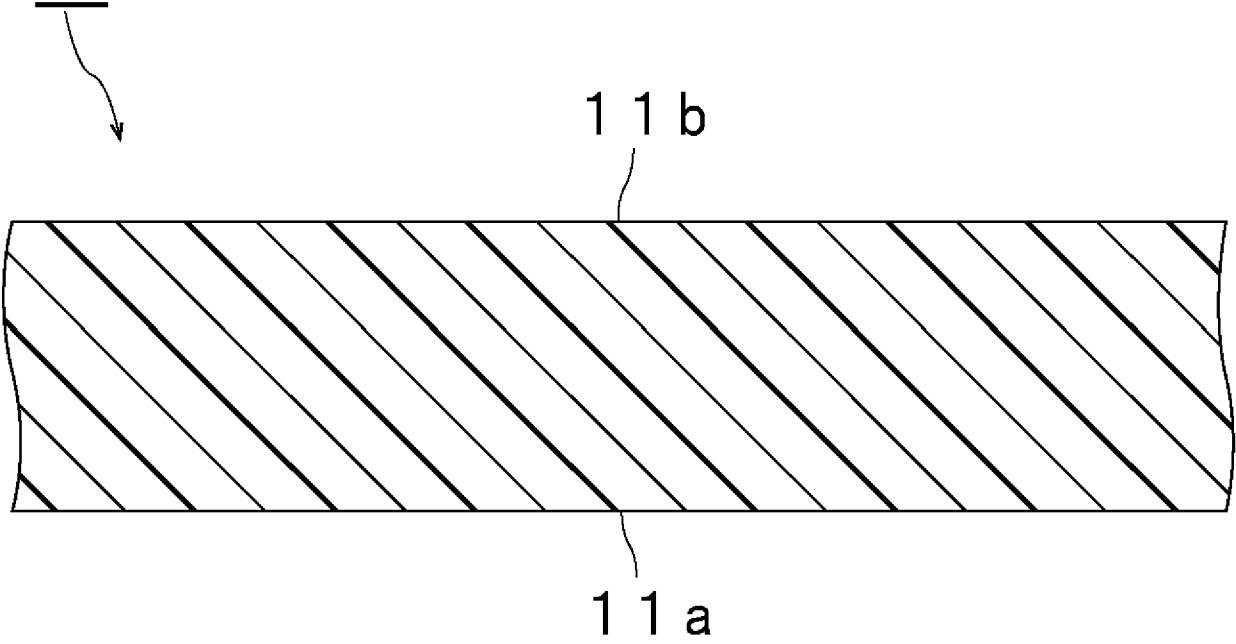
- [請求項11] 厚みが3 mm以下である、請求項1～10のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項12] 厚みが1.6 mm以下である第1のガラス板を用いて、前記第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられる、請求項1～11のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項13] 第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられ、
前記第1のガラス板の厚みと前記第2のガラス板の厚みとの合計が3.5 mm以下である、請求項1～12のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項14] 第1の合わせガラス部材と、
第2の合わせガラス部材と、
請求項1～11のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜とを備え、
前記第1の合わせガラス部材と前記第2の合わせガラス部材との間に、前記合わせガラス用中間膜が配置されている、合わせガラス。
- [請求項15] 前記第1の合わせガラス部材が第1のガラス板であり、
前記第1のガラス板の厚みが1.6 mm以下である、請求項14に記載の合わせガラス。
- [請求項16] 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14又は15に記載の合わせガラス。

[図1]

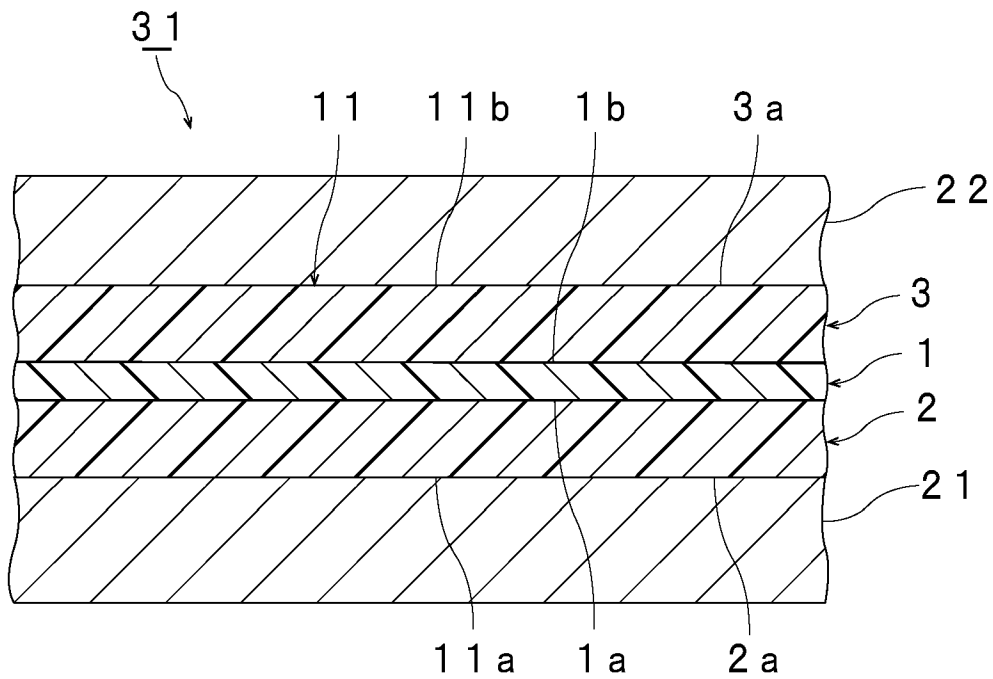


[図2]

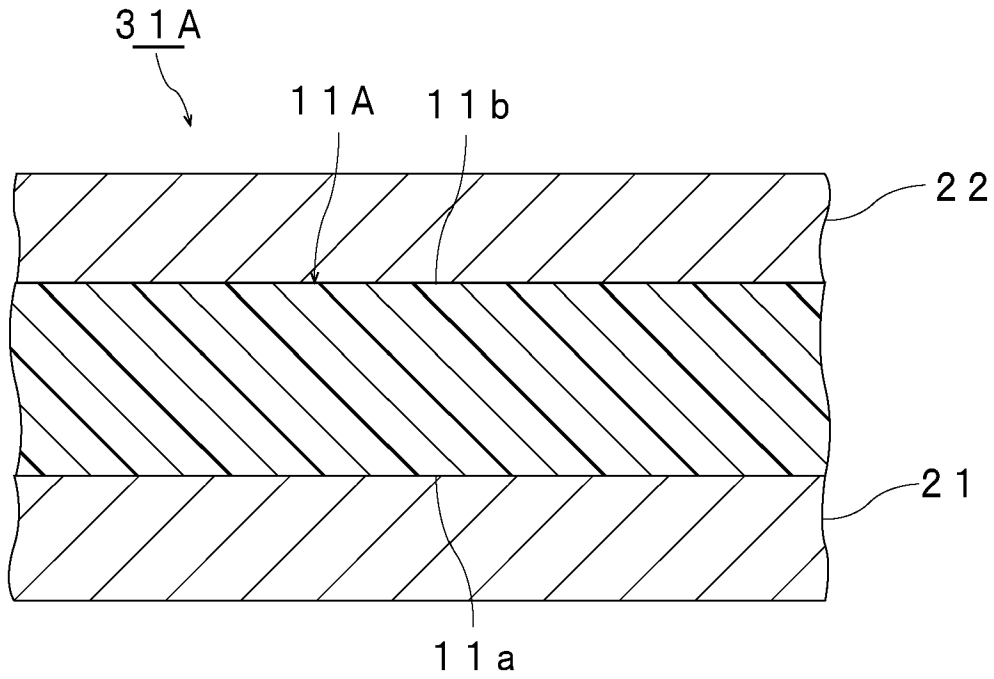
11A



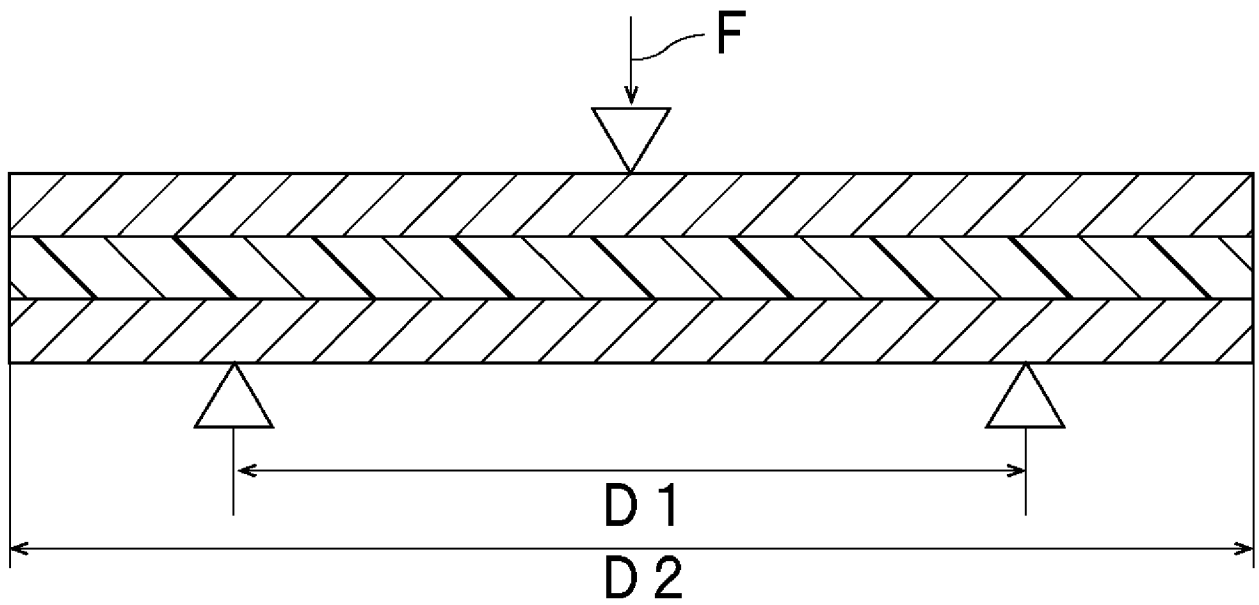
[図3]



[図4]



[図5]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2016/059474

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C03C27/12(2006.01) i, B32B17/10(2006.01) i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C03C27/12, B32B17/10

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2016
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2016	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2016

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
WPI

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2013/134599 A1 (SOLUTION INC.), 12 September 2013 (12.09.2013), [012] to [014]; claims & JP 2015-516934 A & US 2013/0236711 A1 & EP 2822761 A & CN 104144783 A & KR 10-2014-0138857 A & TW 201341332 A	1-16
A	JP 2013-39833 A (Mitsubishi Plastics, Inc.), 28 February 2013 (28.02.2013), paragraph [0031] (Family: none)	1-16
A	JP 2007-70200 A (Asahi Glass Co., Ltd.), 22 March 2007 (22.03.2007), paragraphs [0005] to [0006], [0020] to [0021] (Family: none)	1-16

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

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 20 April 2016 (20.04.16)	Date of mailing of the international search report 10 May 2016 (10.05.16)
---	--

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, B32B17/10(2006.01)i		
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） Int.Cl. C03C27/12, B32B17/10		
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 1971-2016年 日本国実用新案登録公報 1996-2016年 日本国登録実用新案公報 1994-2016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） WPI		
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
A	WO 2013/134599 A1 (SOLUTIA INC.) 2013.09.12, [012]-[014], Claims & JP 2015-516934 A & US 2013/0236711 A1 & EP 2822761 A & CN 104144783 A & KR 10-2014-0138857 A & TW 201341332 A	1-16
A	JP 2013-39833 A (三菱樹脂株式会社) 2013.02.28, [0031] (ファミリーなし)	1-16
A	JP 2007-70200 A (旭硝子株式会社) 2007.03.22, [0005]-[0006], [0020]-[0021] (ファミリーなし)	1-16
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 20.04.2016	国際調査報告の発送日 10.05.2016	
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） 立木 林 電話番号 03-3581-1101 内線 3465	4 T 4660