(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7563178号
(P7563178)

(45)発行日　令和6年10月8日(2024.10.8)

(24)登録日　令和6年9月30日(2024.9.30)

(51)国際特許分類

Ｃ０３Ｃ　27/12　(2006.01)	Ｃ０３Ｃ	27/12	Ｌ
Ｂ３２Ｂ　17/10　(2006.01)	Ｃ０３Ｃ	27/12	Ｆ
Ｂ３２Ｂ　7/022(2019.01)	Ｂ３２Ｂ	17/10	
Ｂ３２Ｂ　7/023(2019.01)	Ｂ３２Ｂ	7/022	
Ｂ３２Ｂ　27/00　(2006.01)	Ｂ３２Ｂ	7/023	

ＦＩ

請求項の数　4　（全32頁）　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2020-568634(P2020-568634)
(86)(22)出願日　令和2年1月31日(2020.1.31)
(86)国際出願番号　PCT/JP2020/003759
(87)国際公開番号　WO2020/158934
(87)国際公開日　令和2年8月6日(2020.8.6)
審査請求日　令和4年12月14日(2022.12.14)
(31)優先権主張番号　特願2019-16054(P2019-16054)
(32)優先日　平成31年1月31日(2019.1.31)
(33)優先権主張国・地域又は機関
日本国(JP)

(73)特許権者　000229117
日本ゼオン株式会社
東京都千代田区丸の内一丁目６番２号
(74)代理人　100147485
弁理士　杉村 憲司
(74)代理人　230118913
弁護士　杉村 光嗣
(74)代理人　100150360
弁理士　寺嶋 勇太
(74)代理人　100209679
弁理士　廣 昇
(72)発明者　小原 禎二
東京都千代田区丸の内一丁目６番２号
日本ゼオン株式会社内
審査官　山本 吾一

最終頁に続く

(54)【発明の名称】　合わせガラス

(57)【特許請求の範囲】

【請求項１】

少なくとも２枚のガラス板と、少なくとも１枚の中間膜と、を備える合わせガラスであって、

前記少なくとも２枚のガラス板は、第１のガラス板及び第２のガラス板を含み、

前記少なくとも１枚の中間膜は、前記第１のガラス板と前記第２のガラス板との間に配置された中間膜Ｘを含み、

前記中間膜Ｘは、第１の接着層と、第２の接着層と、前記第１の接着層と前記第２の接着層との間に配置された赤外線反射層とを有する積層体であり、

前記中間膜Ｘの動的粘弾性特性における貯蔵弾性率が４０℃において３．０×１０^{7}Ｐａ以上５．０×１０^{8}Ｐａ以下であり、

前記少なくとも２枚のガラス板の厚さの合計をｔｇとし、前記少なくとも１枚の中間膜の厚さの合計をｔｉとしたときの、ｔｇに対するｔｉの比（ｔｉ／ｔｇ）が０．７以上であり、

前記合わせガラスの厚さ方向の光線透過率が、波長５５０ｎｍにおいて５０％以上であり、波長２０００ｎｍにおいて２０％以下である、合わせガラス（但し、複数のガラス板の間に、少なくとも１層の、アルコキシシリル基が導入されてなる変性ブロック共重合体水素化物を主成分とする樹脂組成物からなる中間膜と、少なくとも１層の、中空粒子とバインダ樹脂から構成される断熱層が挟持されて接着一体されたものである合わせガラスを除く）。

【請求項２】
前記第１の接着層および前記第２の接着層の少なくともいずれか一方が、芳香族ビニル化合物由来の構造単位〔ａ〕を主成分とする、少なくとも２つの重合体ブロック［Ａ］と、鎖状共役ジエン化合物由来の構造単位〔ｂ〕を主成分とする、少なくとも１つの重合体ブロック［Ｂ］とを有するブロック共重合体［Ｃ］を水素化したブロック共重合体水素化物［Ｄ］に、アルコキシシリル基を導入してなる変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］を主成分とする、請求項１に記載の合わせガラス。
【請求項３】
前記合わせガラスの厚さ方向の熱伝導率が２０℃において０．３５Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下である、請求項１又は２に記載の合わせガラス。
【請求項４】
曲げ弾性率が１１ＧＰａ以上である、請求項１～３の何れかに記載の合わせガラス。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、断熱性及び遮熱性の改善された合わせガラスに関する。
【背景技術】
【０００２】
合わせガラスは、衝撃を受けて破損した場合でも、衝突物の貫通やガラス破片の飛散等を防止できるため、安全性に優れている。そのため、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。合わせガラスは、複数のガラス板を、接着性を有する樹脂からなる中間膜を挟んで接着一体化することにより製造される。
【０００３】
寒冷地では室内や社内の暖房効果を高め、また、高温地域では、室内や車内の冷房効果を高めるために、窓ガラスに断熱性を付与することが有用である。例えば、合わせガラスの中間膜として一般的に使用されているポリビニルブチラール（以下、「ＰＶＢ」ということがある。）や、合わせガラスの耐貫通性を高めるためにシート状にしてガラス板の間に介在させられるポリカーボネート及びポリエチレンテレフタレート等の樹脂は、ガラスに比べて熱伝導率が小さい。そのため、これらの樹脂からなる中間膜やシートを使用した合わせガラスは、同じ厚さのガラス板に比べると、合わせガラス全体としての熱伝導率が小さくなり、断熱性が高くなる。
【０００４】
特許文献１には、ＰＶＢからなる中間膜の厚さを厚くして合成熱抵抗を大きくした合わせガラスが開示されている。これにより、外気温が低い時にも窓の曇りを防止できることが記載されている。しかし、ガラスの厚さを変えずに中間膜の厚さを厚くした場合には、合わせガラスの剛性は維持できるものの、合わせガラスの厚さが厚くなり、また、重量が増加するという不具合が生じる。他方、中間膜の厚さを厚くしつつガラスの厚さを薄くすることで合わせガラスの厚さや重量を維持しようとした場合には、ＰＶＢからなる中間膜の弾性率が小さいために、合わせガラスの剛性が維持できなくなるという、相反する不具合があった。
【０００５】
特許文献２には、ガラス／ＰＶＢ／ポリカーボネート／ＰＶＢ／ガラスの層構成から成る合わせガラスにおいて、ガラス層の厚さを小さくしポリカーボネート層の厚さを厚くすることにより、軽量で熱伝導率の小さい合わせガラスが得られることが開示されている。しかし、ガラスの厚さを薄くして単位面積当たりの重量を低減した場合には、ポリカーボネートの弾性率はガラスの弾性率よりも小さく、また、接着層のＰＶＢの弾性率も小さいため、上記と同様に合わせガラスの剛性が低下するという不具合があった。また、合わせガラスの剛性を維持しようとした場合は、合わせガラス全体の厚さを増加させる必要があり、軽量性が維持できなくなるという不具合があった。
【０００６】

特許文献３には、ＰＶＢからなる中間膜に替えて、アルコキシシリル基が導入された変性ブロック共重合体水素化物を中間膜に使用した合わせガラスが開示されている。しかし、特許文献３には、合わせガラスの剛性を維持しつつ熱伝導率を低下させて断熱性を改善する技術に関しては記載されていない。

また、特許文献３には、変性ブロック共重合体水素化物からなる中間膜に赤外線を遮蔽するための赤外線吸収剤を配合できることが開示されている。これにより、赤外線が合わせガラスを透過して直接内部の温度を上げることは防止できるが、赤外線を吸収した中間膜の熱がガラスを通して内部に伝わることは防止できず、遮熱効果は必ずしも十分とはいえない。

【０００７】

特許文献４には、アルコキシシリル基が導入された変性ブロック共重合体水素化物を中間膜に使用し、更に中空粒子を含む断熱層をガラス間に１層以上挟持した合わせガラスが開示されている。しかし、特許文献４に記載されている中空粒子は、例えば、コロイド状炭酸カルシウムの表面にシリコンアルコキシドの加水分解反応により生成するシリカを析出させた後、酸処理により炭酸カルシウムを溶解させて製造するものであり、工業的な入手は容易ではない。

【０００８】

特許文献５には、熱線の入射を防ぎ、夏場の冷房効果を高める合わせガラスとして、ガラス／第１の中間膜／熱線反射フィルム／第２の中間膜／ガラスの層構成からなり、前記中間膜が、アルコキシシリル基が導入された変性ブロック共重合体水素化物からなる、合わせガラスが開示されている。しかし、特許文献５には、熱線の入射を防ぐと同時に合わせガラスの剛性を維持しつつ熱伝導率を低下させて断熱性を改善する技術に関しては記載されていない。

【先行技術文献】

【特許文献】

【０００９】

【文献】特開２００６－１３７６４８号公報

【文献】特開平６－９１５号公報

【文献】国際公開第２０１６／１６３４０９号

【文献】特開２０１７－８１７７５号公報

【文献】国際公開第２０１６／００６６１０号

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【００１０】

本発明は、上述した実情に鑑みてなされたものであり、従来のＰＶＢからなる中間膜を使用した合わせガラスに対して同等以上の剛性及び軽量性を有し、且つ、断熱性及び遮熱性が向上された合わせガラスを提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【００１１】

本発明者らは、上記目的を達成するために鋭意検討した結果、特定の性状を有する接着層及び赤外線反射フィルムを有してなる中間膜を使用すれば、合わせガラスの断熱性及び遮熱性を向上させた場合であっても剛性及び軽量性を維持した合わせガラスを製造することができることを見出し、本発明を完成させるに至った。

【００１２】

かくして本発明によれば、下記（１）～（４）の合わせガラスが提供される。

（１）少なくとも２枚のガラス板と、少なくとも１枚の中間膜と、を備える合わせガラスであって、

前記少なくとも２枚のガラス板は、第１のガラス板および第２のガラス板を含み、

前記少なくとも１枚の中間膜は、前記第１のガラス板と前記第２のガラス板との間に配置された中間膜Ｘを含み、

前記中間膜Ｘは、第１の接着層と、第２の接着層と、前記第１の接着層と前記第２の接着層との間に配置された赤外線反射層とを有する積層体であり、
前記中間膜Ｘの動的粘弾性特性における貯蔵弾性率が４０℃において３．０×１０^{7}Ｐａ以上５．０×１０^{8}Ｐａ以下であり、
前記少なくとも２枚のガラス板の厚さの合計をｔｇとし、前記少なくとも１枚の中間膜の厚さの合計をｔｉとしたときの、ｔｇに対するｔｉの比（ｔｉ／ｔｇ）が０．７以上であり、
前記合わせガラスの厚さ方向の光線透過率が、波長５５０ｎｍにおいて５０％以上であり、波長２０００ｎｍにおいて２０％以下である、合わせガラス。
（２）前記第１の接着層および前記第２の接着層の少なくともいずれか一方が、芳香族ビニル化合物由来の構造単位〔ａ〕を主成分とする、少なくとも２つの重合体ブロック［Ａ］と、鎖状共役ジエン（直鎖状共役ジエン、分岐鎖状共役ジエン）化合物由来の構造単位〔ｂ〕を主成分とする、少なくとも１つの重合体ブロック［Ｂ］とを有するブロック共重合体［Ｃ］を水素化したブロック共重合体水素化物［Ｄ］に、アルコキシシリル基を導入してなる変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］を主成分とする、（１）に記載の合わせガラス。
（３）前記合わせガラスの厚さ方向の熱伝導率が２０℃において０．３５Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下である、（１）又は（２）に記載の合わせガラス。
（４）曲げ弾性率が１１ＧＰａ以上である、（１）～（３）の何れかに記載の合わせガラス。

【発明の効果】

【００１３】

本発明によれば、従来のＰＶＢからなる中間膜を使用した合わせガラスに対して同等以上の剛性及び軽量性を有し、且つ、断熱性及び遮熱性が向上された合わせガラスが提供される。

【発明を実施するための形態】

【００１４】

本発明の合わせガラスは、下記（ｉ）～（ｖｉｉ）で規定されるものである。
（ｉ）少なくとも２枚のガラス板と、少なくとも１枚の中間膜とを構成部材として備える。
（ｉｉ）少なくとも２枚のガラス板は、第１のガラス板および第２のガラス板を含む。
（ｉｉｉ）少なくとも１枚の中間膜は、第１のガラス板と第２のガラス板との間に配置された中間膜Ｘを含む。
（ｉｖ）中間膜Ｘは、第１の接着層と、第２の接着層と、第１の接着層と第２の接着層との間に配置された赤外線反射層とを有する積層体である。
（ｖ）中間膜Ｘの動的粘弾性特性における貯蔵弾性率が４０℃において３．０×１０^{7}Ｐａ以上５．０×１０^{8}Ｐａ以下である。
（ｖｉ）少なくとも２枚のガラス板の厚さの合計をｔｇとし、少なくとも１枚の中間膜の厚さの合計をｔｉとしたときの、ｔｇに対するｔｉの比（ｔｉ／ｔｇ）が０．７以上である。
（ｖｉｉ）合わせガラスの厚さ方向の光線透過率が、波長５５０ｎｍにおいて５０％以上であり、波長２０００ｎｍにおいて２０％以下である。

【００１５】

以下、本発明の合わせガラスについて、（ａ）ガラス板、（ｂ）中間膜及び（ｃ）合わせガラスに項分けして、詳細に説明する。

【００１６】

（ａ）ガラス板

本発明の合わせガラスに使用されるガラス板の厚さは、特に限定されない。本発明で使用されるガラス板の厚さは、通常０．２ｍｍ以上１０ｍｍ以下であり、好ましくは０．３ｍｍ以上、より好ましくは０．５ｍｍ以上、更に好ましくは０．７ｍｍ以上であり、好ましくは３ｍｍ以下、より好ましくは２．５ｍｍ以下、更に好ましくは２ｍｍ以下である。

本発明で使用されるガラス板の厚さは、合わせガラスの用途に応じて適宜選定できる。
本発明の合わせガラスにおいては、少なくとも２枚のガラス板が使用される。そして、少なくとも２枚のガラス板は、第１のガラス板及び第２のガラス板を含む。なお、使用される複数のガラス板の厚さは、同一でも、異なっていてもよい。
【００１７】
本発明で使用されるガラス板の厚さ方向の熱伝導率は、温度２０℃において、１．４Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下であることが好ましく、１．２Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下であることがより好ましく、１．１Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下であることが更に好ましく、通常０．９Ｗ／（ｍ・Ｋ）以上である。ここで、ガラス板の厚さ方向の熱伝導率は、ＡＳＴＭ　Ｅ１５３０法（円板熱流計法）に基づいて測定して求めた値である。
このようなガラス板の材質としては、例えば、ソーダ石灰ガラス、珪酸塩ガラス、アルミノ珪酸塩ガラス、硼珪酸塩ガラス、アルミノ硼珪酸塩ガラス、硼酸塩ガラス、石英ガラス、シリカガラス、白板ガラス、青板ガラス、鉛ガラス、バリウムガラス、リン珪酸塩ガラス等が挙げられる。
また、ガラス板としては、製法の異なる、汎用的なフロートガラス、熱強化ガラス、化学強化ガラス等も使用できる。
【００１８】
本発明の合わせガラスに使用されるガラス板の厚さ方向の光線透過率は、波長５５０ｎｍにおいて、通常８０％以上、好ましくは８５％以上、より好ましくは９０％以上である。光線透過率がこの範囲であれば、ガラス板は透明性が優れるため好ましい。
【００１９】
（ｂ）中間膜
本発明の合わせガラスには少なくとも１枚の中間膜が使用される。そして、本発明の合わせガラスに使用する少なくとも１枚の中間膜には、第１のガラス板と第２のガラス板との間に配置された中間膜Ｘが含まれる。
なお、本発明の合わせガラスに中間膜が２枚以上使用される場合、使用される中間膜の材質、構造、大きさ、厚み等は同じであってもよいし、異なっていてもよい。
また、本発明の合わせガラスに中間膜が２枚以上使用される場合、当該２枚以上の中間膜としては、中間膜Ｘのみを使用してもよいし、中間膜Ｘと、中間膜Ｘ以外の中間膜とを併用してもよいものとする。なお、中間膜Ｘ以外の中間膜としては、特に限定されず、例えば、中間膜Ｘが有する接着層と同じ材質の層などを用いることができる。
以下、本発明の合わせガラスに使用する中間膜Ｘについて詳述する。
本発明の合わせガラスに使用する中間膜Ｘは、第１の接着層と、第２の接着層と、前記第１の接着層と前記第２の接着層との間に配置された赤外線反射層とを有する積層体である。第１の接着層と赤外線反射層との間及び／又は第２の接着層と赤外線反射層との間には必要に応じて他の機能層を配置することができる。なお、第１の接着層は、赤外線反射層側の面とは反対の面で、上述した第１のガラス板と接着しているものとし、第２の接着層は、赤外線反射層側の面とは反対の面で、上述した第２のガラス板と接着しているものとする。
本発明の合わせガラスに使用する中間膜Ｘは、赤外線を反射するのと同時に、合わせガラスの積層方向の熱伝導率を同じ厚さのガラスに比べて半分以下に低下させることにより、合わせガラスの断熱性を向上させることができる。
【００２０】
本発明の合わせガラスに使用する中間膜Ｘは、動的粘弾性特性における貯蔵弾性率が、温度４０℃において、３．０×10^7Ｐａ以上５．０×10^8Ｐａ以下であることが必要であり、４．０×10^7Ｐａ以上であることが好ましく、５．０×10^7Ｐａ以上であることがより好ましく、４．０×10^8Ｐａ以下であることが好ましく、３．０×10^8Ｐａ以下であることがより好ましい。ここで、中間膜Ｘの動的粘弾性特性における貯蔵弾性率は、ＪＩＳ　Ｋ７２４４－２（ねじり振子法）に基づき、角周波数：１ｒａｄ／ｓｅｃ、測定温度範囲：－１００～＋１００℃、昇温速度：５℃／ｍｉｎの条件で粘弾性スペクトルを

測定して求めた値である。
　中間膜Ｘの貯蔵弾性率が上記範囲である場合、ガラス板の厚さの合計（ｔｇ）に対する中間膜の厚さの合計（ｔｉ）の比（ｔｉ／ｔｇ）を大きくして合わせガラスの断熱性を向上させた場合であっても、合わせガラスの剛性を維持し易くなり、且つ、急激な温度変化に対してもガラス板の割れの発生を防止し易くなる。
【００２１】
　本発明における中間膜Ｘの、温度２０℃における厚さ方向の熱伝導率は、好ましくは０．２０Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下、より好ましくは０．１９Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下、更に好ましくは０．１８Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下である。ここで、中間膜の厚さ方向の熱伝導率は、ＡＳＴＭ　Ｅ１５３０法（円板熱流計法）に基づいて測定して求めた値である。
　中間膜の厚さ方向の熱伝導率が上記範囲である場合、ガラス板の厚さの合計（ｔｇ）に対応して中間膜の厚さの合計（ｔｉ）の比（ｔｉ／ｔｇ）を大きくすることにより、合わせガラスの熱伝導率をガラス板に比較して低下させることができる。
【００２２】
　本発明における中間膜Ｘの構造は、第１の接着層、赤外線反射層、第２の接着層がこの順に積層された３層構造であってもよい。また、中間膜Ｘは、第１の接着層と第２の接着層との間に、赤外線反射層の他に、必要に応じて他の単層及び／又は複数層の機能層を有する４層以上の多層構造を有するものであってもよい。他の機能層としては、合わせガラスの断熱性を向上させるための樹脂層、合わせガラスの剛性を維持し易くするための高弾性率の樹脂層、合わせガラスに遮音性を付与するための音波吸収層、合わせガラスの遮熱性を向上させるための赤外線吸収層等が挙げられる。
　上述した各機能層の厚さは、中間膜Ｘの熱伝導率及び貯蔵弾性率が上記範囲になるように適宜選定することができる。
【００２３】
　本発明の合わせガラスに使用される中間膜Ｘの厚さは、通常０．３ｍｍ以上であり、好ましくは０．６ｍｍ以上であり、より好ましくは１ｍｍ以上であり、更に好ましくは１．５ｍｍ以上であり、通常１０ｍｍ以下であり、好ましくは７ｍｍ以下であり、より好ましくは５ｍｍ以下であり、更に好ましくは４ｍｍ以下である。
　本発明の合わせガラスで使用する中間膜Ｘの厚さが上記の範囲であれば、合わせガラスの２０℃における厚さ方向の熱伝導率を、通常のガラスの熱伝導率の約１／３以下、即ち、通常０．３５Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下、好ましくは０．３Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下、より好ましくは０．２５Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下にすることが容易である。更に、本発明の合わせガラスで使用する中間膜Ｘの厚さが上記の範囲であれば、合わせガラスの曲げ弾性率を、自動車用合わせガラスとして汎用的に使用されている厚さ２ｍｍの２枚のガラス板と厚さ０．７６ｍｍのＰＶＢを主成分とする中間膜とから構成される合わせガラスの曲げ弾性率と同等以上である１１ＧＰａ以上にすることが容易になる。
【００２４】
（接着層）
　本発明で使用する中間膜の構成部材である接着層は、主成分である樹脂と、必要に応じて他の配合剤とを含む樹脂組成物からなる。第１の接着層と第２の接着層を構成する樹脂組成物は同一であっても異なっていてもよい。
【００２５】
　接着層に使用される樹脂としては、温度２０℃における熱伝導率が通常０．１Ｗ／（ｍ・Ｋ）以上０．２Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下、好ましくは０．１９Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下、より好ましくは０．１８Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下であるものが好ましく、例えば、（メタ）アクリル系ブロック共重合体、ポリプロピレン系ブロック共重合体、ポリビニルアセタール樹脂、可塑剤を含むポリビニルアセタール樹脂、ポリウレタン樹脂、スチレン－ブタジエン－スチレンブロック共重合体水素化物、スチレン－イソプレン－スチレンブロック共重合体水素化物、スチレン－イソブテン－スチレンブロック共重合体、スチレン－イソブテン－スチレンブロック共重合体水素化物及び/又は前記樹脂に酸無水物基やアルコキシシリル基等

が導入された変性樹脂、等が挙げられる。
【００２６】
中でも、透明性、耐熱性、耐衝撃性、低温時の柔軟性に優れ、中間膜の温度４０℃における貯蔵弾性率を望ましい値に調整し易いことから、芳香族ビニル化合物由来の構造単位〔ａ〕を主成分とする、少なくとも２つの重合体ブロック［Ａ］と、鎖状共役ジエン化合物由来の構造単位〔ｂ〕を主成分とする、少なくとも１つの重合体ブロック［Ｂ］とを有するブロック共重合体［Ｃ］を水素化してなるブロック共重合体水素化物［Ｄ］、及び／又は、前記ブロック共重合体水素化物［Ｄ］にアルコキシシリル基が導入されてなる変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］が好ましい。
上記の樹脂の中で、変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］はガラスに対して強固な接着性を示すため、接着層の表面は変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］を主成分とする樹脂組成物で構成されていることがより好ましい。
【００２７】
以下、接着層に使用される好適な樹脂である変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］について、重合体ブロック［Ａ］、重合体ブロック［Ｂ］、ブロック共重合体［Ｃ］、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］、変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］の順に詳細に記載する。
＜重合体ブロック［Ａ］＞
ここで、重合体ブロック［Ａ］は、芳香族ビニル化合物由来の構造単位〔ａ〕を主成分とする重合体ブロックである。重合体ブロック［Ａ］中の、芳香族ビニル化合物由来の構造単位〔ａ〕の含有量は、通常９０質量％以上、好ましくは９５質量％以上、より好ましくは９９質量％以上である。重合体ブロック［Ａ］は、芳香族ビニル化合物由来の構造単位〔ａ〕以外の成分を含有していてもよい。他の成分としては、鎖状共役ジエン由来の構造単位〔ｂ〕及び／又はその他のビニル化合物由来の構造単位〔ｍ〕が挙げられる。構造単位〔ｂ〕及び／又は構造単位〔ｍ〕の含有量は、重合体ブロック［Ａ］に対し、通常１０質量％以下、好ましくは５質量％以下、より好ましくは１質量％以下である。
重合体ブロック［Ａ］中の芳香族ビニル化合物由来の構造単位〔ａ〕の含有量が少なすぎると、接着層の耐熱性が低下するおそれがある。
ブロック共重合体［Ｃ］に含まれる複数の重合体ブロック［Ａ］同士は、上記の範囲を満足するものであれば、互いに同一であっても、相異なっていてもよい。
【００２８】
＜重合体ブロック［Ｂ］＞
重合体ブロック［Ｂ］は、鎖状共役ジエン化合物由来の構造単位〔ｂ〕を主成分とする重合体ブロックである。重合体ブロック［Ｂ］中の、鎖状共役ジエン化合物由来の構造単位〔ｂ〕の含有量は、通常７０質量％以上、好ましくは８０質量％以上、より好ましくは９０質量％以上である。重合体ブロック［Ｂ］は、鎖状共役ジエン化合物由来の構造単位〔ｂ〕以外の成分を含有していてもよい。他の成分としては、芳香族ビニル化合物由来の構造単位〔ａ〕及び／又はその他のビニル化合物由来の構造単位〔ｍ〕が挙げられる。構造単位〔ａ〕及び／又は構造単位〔ｍ〕の含有量は、重合体ブロック［Ｂ］に対して、通常３０質量％以下、好ましくは２０質量％以下、より好ましくは１０質量％以下である。
重合体ブロック［Ｂ］中の、鎖状共役ジエン化合物由来の構造単位〔ｂ〕の含有量が上記範囲にあれば、接着層に柔軟性が付与されるので好ましい。
ブロック共重合体［Ｃ］が重合体ブロック［Ｂ］を複数有する場合、重合体ブロック［Ｂ］同士は、互いに同一であっても、相異なっていても良い。
【００２９】
芳香族ビニル化合物としては、スチレン；α－メチルスチレン、２－メチルスチレン、３－メチルスチレン、４－メチルスチレン、２，４－ジイソプロピルスチレン、２，４－ジメチルスチレン、４－ｔ－ブチルスチレン、５－ｔ－ブチル－２－メチルスチレン等の、置換基として炭素数１～６のアルキル基を有するスチレン類；４－クロロスチレン、ジクロロスチレン、４－モノフルオロスチレン等の、置換基としてハロゲン原子を有するスチレン類；４－メトキシスチレン等の、置換基として炭素数１～６のアルコキシ基を有す

るスチレン類；４－フェニルスチレン等の、置換基としてアリール基を有するスチレン類；等が挙げられる。これらの中でも、吸湿性の観点から、スチレン、置換基として炭素数１～６のアルキル基を有するスチレン類等の、極性基を含有しない芳香族ビニル化合物が好ましく、工業的な入手の容易さから、スチレンが特に好ましい。

【００３０】

鎖状共役ジエン系化合物としては、１，３－ブタジエン、イソプレン、２，３－ジメチル－１，３－ブタジエン、１，３－ペンタジエン等が挙げられ、吸湿性の観点から、極性基を含有しない鎖状共役ジエン系化合物が好ましく、工業的な入手の容易さから、１，３－ブタジエン、イソプレンが特に好ましい。

【００３１】

その他のビニル系化合物としては、鎖状ビニル化合物、環状ビニル化合物、不飽和の環状酸無水物、不飽和イミド化合物等が挙げられる。これらの化合物は、ニトリル基、アルコキシカルボニル基、ヒドロキシカルボニル基、ハロゲン原子等の置換基を有していてもよい。これらの中でも、吸湿性の観点から、エチレン、プロピレン、１－ブテン、１－ペンテン、１－ヘキセン、１－ヘプテン、１－オクテン、１－ノネン、１－デセン、１－ドデセン、１－エイコセン、４－メチル－１－ペンテン、４，６－ジメチル－１－ヘプテン等の炭素数２～２０の鎖状オレフィン；ビニルシクロヘキサン等の炭素数５～２０の環状オレフィン；等の、極性基を含有しないものが好ましく、炭素数２～２０の鎖状オレフィンがより好ましく、エチレン、プロピレンが特に好ましい。

【００３２】

＜ブロック共重合体［Ｃ］＞

ブロック共重合体［Ｃ］は、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］の前駆体であり、少なくとも２つの重合体ブロック［Ａ］と少なくとも１つの重合体ブロック［Ｂ］とを含有する高分子である。

ブロック共重合体［Ｃ］中の重合体ブロック［Ａ］の数は、通常３個以下、好ましくは２個である。ブロック共重合体［Ｃ］中の重合体ブロック［Ｂ］の数は、通常２個以下、好ましくは１個である。

【００３３】

ブロック共重合体［Ｃ］のブロックの形態は、特に限定されず、鎖状型ブロックでもラジアル型ブロックでも良いが、鎖状型ブロックであるほうが、機械的強度に優れ、好ましい。

ブロック共重合体［Ｃ］の最も好ましい形態は、重合体ブロック［Ｂ］の両端に重合体ブロック［Ａ］が結合したトリブロック共重合体（［Ａ］－［Ｂ］－［Ａ］）である。

【００３４】

ブロック共重合体［Ｃ］中の芳香族ビニル化合物由来の構造単位〔ａ〕の全量が、ブロック共重合体［Ｃ］全体に占める重量分率をｗａとし、鎖状共役ジエン化合物由来の構造単位〔ｂ〕の全量が、ブロック共重合体［Ｃ］全体に占める重量分率をｗｂとしたときに、ｗａとｗｂとの比（ｗａ：ｗｂ）は、好ましくは３０：７０～６０：４０、より好ましくは４０：６０～５８：４２、更に好ましくは４５：５５～５５：４５である。

ｗａが多過ぎる場合は、接着層の貯蔵弾性率は高くなるが、合わせガラスの低温下での耐衝撃性が低下するおそれがある。一方、ｗａが少な過ぎる場合は、接着層の貯蔵弾性率が低下し、合わせガラスの剛性が低下するおそれがある。

【００３５】

ブロック共重合体［Ｃ］の分子量は、テトラヒドロフラン（ＴＨＦ）を溶媒とするゲル・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の重量平均分子量（Ｍｗ）で、通常３５，０００～２００，０００、好ましくは３８，０００～１５０，０００、より好ましくは４０，０００～１００，０００である。また、ブロック共重合体［Ｃ］の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、好ましくは３以下、より好ましくは２以下、更に好ましくは１．７以下である。

Ｍｗ及びＭｗ／Ｍｎが上記範囲となるようにすると、接着層の耐熱性や機械的強度が良

好である。
ブロック共重合体［Ｃ］を含有する試料のゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）により測定される溶出曲線は、主ピークと、主ピークのピークトップが示す分子量よりも小さい分子量を示すピークトップを有する第２のピークとを有するものであってもよい。第２のピークのピークトップが示す分子量は１０００以上であることが好ましい。主ピークのピークトップが示す示差屈折計（ＲＩ）の検出感度（主ピークトップ感度）（ｍＶ）に対する第２のピークのピークトップが示すＲＩの検出感度（第２ピークトップ感度）（ｍＶ）の比（第２ピークトップ感度／主ピークトップ感度）は、好ましくは０．２以下、より好ましくは０．１以下である。第２のピークは重合工程で触媒の一部が失活すること等により生じることがある。上記溶出曲線が第２のピークを有する場合、ブロック共重合体［Ｃ］の水素化物にアルコキシシリル基等を導入した変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］を用いれば、接着性により優れた接着層を得ることができる。
【００３６】
ブロック共重合体［Ｃ］の製造方法としては、特に限定されず、公知の方法を採用することができる。具体的には、ブロック共重合体［Ｃ］の製造方法としては、例えば、国際公開第２００３／０１８６５６号、国際公開第２０１１／０９６３８９号等に記載の方法が挙げられる。
【００３７】
＜ブロック共重合体水素化物［Ｄ］＞
ブロック共重合体水素化物［Ｄ］は、ブロック共重合体［Ｃ］の鎖状共役ジエン化合物に由来する主鎖及び側鎖の炭素－炭素不飽和結合のみを選択的に水素化した高分子であってもよいし、ブロック共重合体［Ｃ］の鎖状共役ジエン化合物に由来する主鎖及び側鎖の炭素－炭素不飽和結合並びに芳香族ビニル化合物に由来する芳香環の炭素－炭素不飽和結合を水素化した高分子であってもよいし、これらの混合物であってもよい。
接着層においては、芳香族ビニル化合物に由来する芳香環の炭素－炭素不飽和結合を水素化しない場合と水素化した場合とで、貯蔵弾性率に顕著な差異は生じない。
【００３８】
ブロック共重合体［Ｃ］の鎖状共役ジエン化合物に由来する主鎖及び側鎖の炭素－炭素不飽和結合のみを選択的に水素化する場合、主鎖及び側鎖の炭素－炭素不飽和結合の水素化率は、通常９５％以上、好ましくは９７％以上、より好ましくは９９％以上であり、芳香族ビニル化合物に由来する芳香環の炭素－炭素不飽和結合の水素化率は、通常１０％以下、好ましくは５％以下、より好ましくは３％以下である。
鎖状共役ジエン化合物に由来する主鎖及び側鎖の炭素－炭素不飽和結合の水素化率が高いほど、接着層の耐候性、耐熱劣化性が良好である。また、芳香族ビニル化合物に由来する芳香環の炭素－炭素不飽和結合の水素化を抑制することにより、接着層の耐熱劣化性を維持し易くなる。
【００３９】
ブロック共重合体［Ｃ］の鎖状共役ジエン化合物に由来する主鎖及び側鎖の炭素－炭素不飽和結合並びに芳香族ビニル化合物に由来する芳香環の炭素－炭素不飽和結合を水素化する場合、水素化率は、全炭素－炭素不飽和結合の９０％以上、好ましくは９５％以上、より好ましくは９９％以上である。
ブロック共重合体水素化物［Ｄ］の水素化率がこの範囲にあれば、接着層は、透明性、耐熱劣化性に優れ、また、鎖状共役ジエン化合物に由来する炭素－炭素不飽和結合のみを選択的に水素化したブロック共重合体水素化物［Ｄ］を使用した接着層に比較して、耐光性が優れ、耐熱変形温度も高くなるため特に好ましい。
【００４０】
ブロック共重合体水素化物［Ｄ］の、鎖状共役ジエン化合物に由来する主鎖及び側鎖の炭素－炭素不飽和結合の水素化率並びに芳香族ビニル化合物に由来する芳香環の炭素－炭素不飽和結合の水素化率は、例えば、ブロック共重合体［Ｃ］及びブロック共重合体水素化物［Ｄ］の^{1}Ｈ－ＮＭＲを測定することにより、求めることができる。

【００４１】
ブロック共重合体［Ｃ］中の不飽和結合の水素化方法や反応形態等は特に限定されず、公知の方法に従って行えばよい。
ブロック共重合体［Ｃ］の鎖状共役ジエン化合物に由来する主鎖及び側鎖の炭素－炭素不飽和結合を選択的に水素化する方法としては、例えば、特開２０１５－７８０９０号公報等に記載された公知の水素化方法が挙げられる。
また、ブロック共重合体［Ｃ］の鎖状共役ジエン化合物に由来する主鎖及び側鎖の炭素－炭素不飽和結合並びに芳香族ビニル化合物に由来する芳香環の炭素－炭素不飽和結合を水素化する方法としては、例えば、国際公開第２０１１／０９６３８９号、国際公開第２０１２／０４３７０８号等に記載された方法が挙げられる。
【００４２】
水素化反応終了後においては、水素化触媒、或いは、水素化触媒及び重合触媒を反応溶液から除去した後、得られた溶液から溶剤を除去してブロック共重合体水素化物［Ｄ］を回収することができる。
回収したブロック共重合体水素化物［Ｄ］は、通常、ペレット形状にして、その後のアルコキシシリル基の導入反応やシートの成形加工に供することができる。
【００４３】
ブロック共重合体水素化物［Ｄ］の分子量は、ＴＨＦを溶媒としたＧＰＣにより測定されるポリスチレン換算の重量平均分子量（Ｍｗ）で、通常３５，０００～２００，０００、好ましくは３８，０００～１５０，０００、より好ましくは４０，０００～１００，０００である。また、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］の分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、好ましくは３以下、より好ましくは２以下、特に好ましくは１．７以下である。
Ｍｗ及びＭｗ／Ｍｎが上記範囲となるようにすると、接着層の耐熱性や機械的強度が良好である。
ブロック共重合体水素化物［Ｄ］を含有する試料のＧＰＣにより測定される溶出曲線は、主ピークと、主ピークのピークトップが示す分子量よりも小さい分子量を示すピークトップを有する第２のピークとを有するものであってもよい。第２のピークのピークトップが示す分子量は１０００以上であることが好ましい。主ピークのピークトップが示す示差屈折計（ＲＩ）の検出感度（主ピークトップ感度）（ｍＶ）に対する第２のピークのピークトップが示すＲＩの検出感度（第２ピークトップ感度）（ｍＶ）は、好ましくは０．２以下、より好ましくは０．１以下である。第２のピークは重合工程で触媒が失活したり、水素化工程で重合体が一部切断されたりすること等により生じることがある。上記溶出曲線が第２のピークを有する場合、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］にアルコキシシリル基等を導入した変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］を用いれば、粘着性や充填性により優れた接着層を得ることができる。
【００４４】
＜変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］＞
変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］は、上記ブロック共重合体水素化物［Ｄ］に、有機過酸化物の存在下で、エチレン性不飽和シラン化合物を反応させることにより、アルコキシシリル基が導入されたものである。
ブロック共重合体水素化物［Ｄ］にアルコキシシリル基を導入する方法としては、例えば、国際公開第２０１２／０４３７０８号、特開２０１５－７８０９０号公報等に記載された公知の方法が挙げられる。
ブロック共重合体水素化物［Ｄ］にアルコキシシリル基を導入することにより、変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］にはガラスや金属に対する強固な接着性が付与される。
【００４５】
アルコキシシリル基としては、トリメトキシシリル基、トリエトキシシリル基等の、トリ（炭素数１～６アルコキシ）シリル基；メチルジメトキシシリル基、メチルジエトキシシリル基、エチルジメトキシシリル基、エチルジエトキシシリル基、プロピルジメトキシシリル基、プロピルジエトキシシリル基等の、（炭素数１～２０アルキル）ジ（炭素数１

～６アルコキシ）シリル基；フェニルジメトキシシリル基、フェニルジエトキシシリル基等の、（アリール）ジ（炭素数１～６アルコキシ）シリル基；等が挙げられる。これらの内、接着層にガラス板に対する強固な接着性が付与される観点から、トリメトキシシリル基が特に好ましい。また、アルコキシシリル基は、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］に、炭素数１～２０のアルキレン基や、炭素数２～２０のアルキレンオキシカルボニルアルキレン基等の２価の有機基を介して結合していても良い。

【００４６】

ブロック共重合体水素化物［Ｄ］へのアルコキシシリル基の導入量は、通常、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］１００質量部に対し、０．１質量部以上１０質量部以下であり、好ましくは０．２質量部以上、より好ましくは０．３質量部以上であり、好ましくは５質量部以下、より好ましくは３質量部以下である。アルコキシシリル基の導入量が多過ぎると、得られる変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］を所望の形状に溶融成形する前に微量の水分等で分解されたアルコキシシリル基同士の架橋が進み、ゲル化したり、溶融時の流動性が低下して成形性が低下したりする等の問題が生じ易くなる。また、アルコキシシリル基の導入量が少な過ぎると、接着層を介して中間膜をガラス板と接着するのに十分な接着力が得られないという不具合が生じ易くなる。アルコキシシリル基が導入されたことは、ＩＲスペクトルで確認することができる。また、その導入量は、^{1}Ｈ－ＮＭＲスペクトルにて算出することができる。

【００４７】

用いるエチレン性不飽和シラン化合物としては、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］とグラフト重合し、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］にアルコキシシリル基を導入するものであれば、特に限定されない。エチレン性不飽和シラン化合物としては、例えば、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、アリルトリメトキシシラン、アリルトリエトキシシラン、ジメトキシメチルビニルシラン、ジエトキシメチルビニルシラン、ｐ－スチリルトリメトキシシラン、３－アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、３－アクリロキシプロピルトリエトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、３－メタクリロキシプロピルメチルジエトキシシラン、３－アクリロキシプロピルトリメトキシシラン、等が好適に用いられる。

これらのエチレン性不飽和シラン化合物は、それぞれ単独で用いてもよいし、２種以上を組み合せて使用してもよい。

【００４８】

エチレン性不飽和シラン化合物の使用量は、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］１００質量部に対して、通常０．１質量部以上１０質量部以下であり、好ましくは０．２質量部以上、より好ましくは０．３質量部以上であり、好ましくは５質量部以下、より好ましくは３質量部以下である。

【００４９】

有機過酸化物としては、１分間半減期温度が１７０℃以上１９０℃以下のものが好ましく使用される。例えば、ｔ－ブチルクミルパーオキシド、ジクミルパーオキサイド、ジ－ｔ－ヘキシルパーオキシド、２，５－ジメチル－２，５－ジ（ｔ－ブチルパーオキシ）ヘキサン、ジ－ｔ－ブチルパーオキシド、ジ（２－ｔ－ブチルパーオキシイソプロピル）ベンゼン等が好適に用いられる。これらの有機過酸化物を使用した場合、有機過酸化物の分解反応とエチレン性不飽和シラン化合物とブロック共重合体水素化物［Ｄ］との反応を同時に進めることができるため好ましい。

これらの有機過酸化物は、それぞれ単独で用いてもよいし、２種以上を組み合せて使用してもよい。

有機過酸化物の使用量は、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］１００質量部に対して、通常０．０１質量部以上１質量部以下であり、好ましくは０．０３質量部以上であり、より好ましくは０．０５質量部以上であり、好ましくは０．５質量部以下であり、より好ましくは０．３質量部以下である。

【００５０】
上記のブロック共重合体水素化物［Ｄ］とエチレン性不飽和シラン化合物とを、有機過酸化物の存在下で反応させる方法は、特に限定されない。例えば、二軸混練機にて所望の温度で所望の時間混練することにより、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］にアルコキシシリル基を導入することができる。二軸混練機による混練温度は、通常１８０℃以上２２０℃以下であり、好ましくは１８５℃以上、より好ましくは１９０℃以上であり、好ましくは２１０℃以下、より好ましくは２００℃以下である。加熱混練時間は、通常０．１分以上１０分以下、好ましくは０．２分以上、より好ましくは０．３分以上であり、好ましくは５分以下、より好ましくは２分以下である。
具体的には、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］へのアルコキシシリル基の導入は、温度および滞留時間が上記範囲になるようにして、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］、エチレン性不飽和シラン化合物および有機過酸化物を連続的に混練、押出しをすればよい。
【００５１】
変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］の分子量は、導入されるアルコキシシリル基の量が少ないため、原料として用いたブロック共重合体水素化物［Ｄ］の分子量と大きくは変わらない。一方、有機過酸化物の存在下で、エチレン性不飽和シラン化合物と反応させるため、重合体の架橋反応、切断反応が併発し、変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］の分子量分布の値は、ブロック共重合体水素化物［Ｄ］の分子量分布の値よりも大きくなる。
変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］の分子量は、ＴＨＦを溶媒としたＧＰＣにより測定されるポリスチレン換算の重量平均分子量（Ｍｗ）で、通常３５，０００～２００，０００、好ましくは３８，０００～１５０，０００、より好ましくは４０，０００～１００，０００である。また、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、好ましくは３．５以下、より好ましくは３．０以下、特に好ましくは２．５以下である。
Ｍｗ及びＭｗ／Ｍｎが上記範囲となるようにすると、接着層の耐熱性や機械的強度が維持される。
変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］を含有する試料のＧＰＣにより測定される溶出曲線は、主ピークと、主ピークのピークトップが示す分子量よりも小さい分子量を示すピークトップを有する第２のピークとを有するものであってもよい。第２のピークのピークトップが示す分子量は１０００以上であることが好ましい。主ピークのピークトップが示す示差屈折計（ＲＩ）の検出感度（主ピークトップ感度）（ｍＶ）に対する第２のピークのピークトップが示すＲＩの検出感度（第２ピークトップ感度）（ｍＶ）は、好ましくは０．２以下、より好ましくは０．１以下である。上記溶出曲線が第２のピークを有する場合、変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］を用いれば、接着性のより優れた接着層を得ることができる。
【００５２】
＜配合剤＞
接着層を構成する樹脂組成物は、主成分である上記樹脂に加えて、各種の配合剤を含有することができる。なお、接着層を構成する樹脂組成物中の樹脂の割合は、通常７０質量％以上１００質量％以下であり、好ましくは７５質量％以上、より好ましくは８０質量％以上である。接着層を構成する樹脂組成物が樹脂を７０質量％以上含有することにより、得られる接着層の耐熱性や機械的強度が維持される。
好ましい配合剤としては、ガラスとの接着性を調整するための粘着性付与剤、接着性付与剤、紫外線を遮蔽するための紫外線吸収剤、加工性等を高めるための酸化防止剤やブロッキング防止剤、耐久性を高めるための光安定剤等が挙げられる。
【００５３】
粘着性付与剤としては、数平均分子量３００～１０，０００の炭化水素系重合体が好ましい。粘着性付与剤の具体例としては、ポリイソブチレン、ポリブテン、ポリ－４－メチルペンテン、ポリ－１－オクテン、エチレン・α－オレフィン共重合体等の低分子量体及びその水素化物；ポリイソプレン、ポリイソプレン－ブタジエン共重合体、スチレン－イソプレン共重合体等の低分子量体及びその水素化物等が挙げられる。これらの中では、特

に透明性、耐光性を維持し、粘着性付与の効果に優れている点で、低分子量のポリイソブチレン水素化物、低分子量のポリイソプレン水素化物及び低分子量のスチレンーイソプレン共重合体が好ましい。

【００５４】

粘着性付与剤の配合量は、主成分である樹脂１００質量部に対して、通常３０質量部以下、好ましくは２５質量部以下、より好ましくは２０質量部以下である。

粘着性付与剤の配合量が多すぎる場合は、中間膜の貯蔵弾性率が低下して、本発明の合わせガラスの剛性を維持できなくなるおそれがある。

【００５５】

接着性付与剤としては、１，３－ペンタジエン系石油樹脂、シクロペンタジエン系石油樹脂、スチレン・インデン系石油樹脂等の石油樹脂及びその水素化物；ビニルシラン系、エポキシシラン系、アクリルシラン系、アミノシラン系等のシランカップリング剤；等が挙げられる。

接着性付与剤の配合量は、主成分である樹脂１００質量部に対して、通常１０質量部以下、好ましくは７質量部以下、より好ましくは５質量部以下である。

接着性付与剤の配合量が多すぎる場合は、接着層の貯蔵弾性率が低下して、本発明の合わせガラスの剛性を維持できなくなるおそれがある。

【００５６】

紫外線吸収剤としては、例えば、オキシベンゾフェノン系化合物、ベンゾトリアゾール系化合物、サリチル酸エステル系化合物、ベンゾフェノン系化合物、トリアジン系化合物等が使用できる。

酸化防止剤としては、例えば、リン系酸化防止剤、フェノール系酸化防止剤、硫黄系酸化防止剤等が使用できる。

光安定剤としては、例えば、ヒンダードアミン系光安定剤等が使用できる。

主成分である樹脂に配合される、紫外線吸収剤、酸化防止剤、光安定剤等は、それぞれ１種単独で、あるいは２種以上を組み合わせて用いることができる。

紫外線吸収剤、酸化防止剤、光安定剤の配合量は、主成分である樹脂１００質量部に対して、通常５質量部以下、好ましくは３質量部以下、より好ましくは２質量部以下である。

【００５７】

主成分である樹脂に各種の添加剤を配合する方法としては、一般に用いられる公知の方法が適用できる。例えば、樹脂のペレット及び配合剤を、タンブラー、リボンブレンダー、ヘンシェルタイプミキサー等の混合機を使用して均等に混合した後、二軸押出し機等の連続式溶融混練機により溶融混合し、押出してペレット状にする方法；樹脂を、サイドフィーダーを備えた二軸押出し機により、サイドフィーダーから配合剤を連続的に添加しながら、溶融混練して押出し、ペレット状にする方法；等によって配合剤を均一に分散させた樹脂組成物を製造することができる。

【００５８】

（赤外線反射層）

本発明の合わせガラスに使用する中間膜Ｘが有する赤外線反射層は、厚さ方向の光線透過率が、波長５５０ｎｍにおいて、通常５０％以上、好ましくは６０％以上、より好ましくは７０％以上であり、波長２０００ｎｍにおいて、通常２０％以下、好ましくは１５％以下、より好ましくは１０％以下である。

【００５９】

赤外線反射層は、具体的には、（１）基材となる透明な樹脂フィルム上に赤外線反射膜が形成されてなるフィルム、（２）屈折率が異なる熱可塑性樹脂が交互にそれぞれ数十層以上積層されてなる多層樹脂フィルム、等である。

【００６０】

赤外線反射層が、基材となる透明な樹脂フィルム上に赤外線反射膜が形成されてなるフィルムである場合、樹脂フィルムとしては、透明（波長６００ｎｍの光線透過率が６０％以上、好ましくは７０％以上、より好ましくは８０％以上）なものであって、剛性、耐熱

性、等に優れたものであれば特に限定されない。例えば、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート等のポリエステル樹脂；シクロオレフィンポリマー；ポリカーボネート；ポリエーテルスルフォン；ナイロン；等の合成樹脂からなるフィルムが使用できる。これらの中でも、透明性、強度、経済性等の観点から、ポリエステル樹脂からなるフィルムが好ましく、合わせガラスの製造時の貼り合わせ工程で１４０℃付近の温度で軟化して、曲面を有するガラスの形状に適応した成形が可能なことから、ポリエチレンテレフタレートからなるフィルムが特に好ましい。

【００６１】

樹脂フィルム上に形成する赤外線反射膜としては、金属酸化物層と金属層とを交互に積層してなる赤外線反射膜、金属酸化物等からなる誘電体の高屈折率層と低屈折率層とを交互に多層に積層してなる赤外線反射膜、等が挙げられる。

ここで、金属酸化物層および誘電体を構成する金属酸化物等としては、TiO_2、Nb_2O_5、Ta_2O_5、SiO_2、Al_2O_3、ZrO_2、In_2O_3、MgF_2等が挙げられる。また、金属層を構成する金属としては、Ａｕ、Ａｇ、Ｃｕ、Ａｌ、Ｐｄ、Ｐｔ、Ｓｎ、Ｉｎ、Ｚｎ、Ｔｉ、Ｃｄ、Ｆｅ、Ｃｏ、Ｃｒ、Ｎｉ、および、これらの金属の２種以上からなる合金などが挙げられる。

【００６２】

赤外線反射層が、異なる屈折率を有する２種以上の熱可塑性樹脂が交互にそれぞれ数十層以上積層されてなる多層構造を有するフィルムである場合の例としては、ポリエチレンテレフタレート層とシクロヘキサンジメタノールカルボキシレート単位を含んでなるポリエステル層とからなる多層フィルム、ポリエチレンテレフタレート層とポリエチレンナフタレート層とからなる多層フィルム、ポリエチレンテレフタレート層とメチルメタクリレート系コポリマーの層とからなる多層フィルム、ポリエチレンナフタレート層とポリメチルメタクリレート層とからなる多層フィルム、ポリビニルブチラール層とポリスチレン層とからなる多層フィルム、等が挙げられる。

また、赤外線反射層が、異なる屈折率を有する２種以上の熱可塑性樹脂が交互にそれぞれ数十層以上積層されてなる多層構造を有するフィルムである場合は、本発明の合わせガラスを自動車の窓等に使用した場合、電波を遮蔽しないため、携帯電話等の電磁波を利用した機器の使用に支障を起こすことがない。

【００６３】

赤外線反射層の厚さは、特に限定されず、通常２０～２００μｍ、好ましくは３０～１５０μｍ、より好ましくは４０～１００μｍである。

【００６４】

また本発明に使用する赤外線反射層としては、赤外線反射フィルム、遮熱フィルム、熱線反射フィルム、赤外線カットフィルム、等として一般的に市販されているフィルムを使用することもできる。

【００６５】

（機能層）

本発明に使用する中間膜Ｘは、必要に応じて、接着層及び赤外線反射層の他に機能層を有するものであってもよい。機能層は、好ましくは第１の接着層と赤外線反射層との間及び／又は第２の接着層と赤外線反射層との間に配置することができる。

機能層としては、合わせガラスの熱伝導率をより低下させるための樹脂層、中間膜の貯蔵弾性率を調整するための弾性率の高い樹脂層、合わせガラスの耐貫通性を高めるための機械的強度の優れた樹脂層、合わせガラスに遮音性を付与するための振動吸収層等が挙げられる。

【００６６】

機能層が合わせガラスの熱伝導率を低下させるための樹脂層である場合、樹脂層は第１及び／又は第２の接着層と同じ層を使用したものであってもよい。

機能層が弾性率の高い樹脂層である場合、当該樹脂層を構成する樹脂の具体例としては、スチレン含有量の多いブロック共重合体水素化物、ポリメチルメタクリレート、シクロ

オレフィンポリマー、ポリスチレン、スチレン－アクリロニトリル共重合体、スチレン－メタクリル酸メチル共重合体、等の透明性に優れた樹脂からなる層が挙げられる。

機能層が機械的強度の優れた樹脂層である場合、当該樹脂層を構成する樹脂の具体例としては、ポリエチレンテレフタレート、ポリナフタレンテレフタレート、ポリカーボネート、等の透明性を有する樹脂からなる層が挙げられる。

機能層が振動吸収層である場合、当該樹脂層を構成する樹脂の具体例としては、－２０℃から２０℃の温度範囲に粘弾性特性における損失正接（ｔａｎδ）の極大値を有する、スチレン－ジエン系ブロック共重合体及び／又はその水素化物、アクリル系ブロック共重合体、可塑剤を配合したポリビニルアセタール樹脂、等が挙げられる。

【００６７】

（中間膜の形成方法）

本発明の合わせガラスに使用する中間膜Ｘを形成する方法としては、合わせガラスを製造する以前に、第１の接着層、赤外線反射層、第２の接着層、並びに、必要に応じて第１の接着層と赤外線反射層との間及び／又は第２の接着層と赤外線反射層との間に配置された単層あるいは多層の機能層を、適宜積層して接着一体化して中間膜Ｘを形成する方法；あらかじめ成形された第１の接着層、赤外線反射層、第２の接着層、並びに、必要に応じて第１の接着層と赤外線反射層との間及び／又は第２の接着層と赤外線反射層との間に配置された単層あるいは多層の機能層を、合わせガラスを製造する工程で２枚のガラス板の間に適宜積層して接着一体化し、合わせガラスを製造するのと同時に中間膜Ｘを形成する方法；等がある。

【００６８】

単層の接着層、第１の接着層／機能層／第３の接着層からなる多層シート、等を成形する方法としては、特に限定されず、公知の、溶融押出し成形法、多層共押出し成形法、押出しラミネート法、熱ラミネート法、カレンダー成形法、等を適用できる。

【００６９】

例えば、溶融押出し成形法により、変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］を主成分とする樹脂組成物からなる単層の接着層を成形する場合は、樹脂温度を、通常１８０～２４０℃、好ましくは１９０～２３０℃、より好ましくは２００～２２０℃の範囲にして、溶融押出し成形法によりシート状に成形すればよい。

樹脂温度が低過ぎる場合は、流動性が悪化し、接着層の押出し速度が上げられず、工業的に不利となるおそれがある。樹脂温度が高過ぎる場合は、成形される接着層のガラス面に対する接着性が不良となったり、接着層の貯蔵安定性が低下して、接着層を長期間貯蔵した後のガラスに対する接着性が低下したりするおそれがある。

また例えば、外層が変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ］を主成分とする樹脂組成物からなり、内層が弾性率の高いブロック共重合体水素化物［Ｄ］を主成分とする樹脂組成物からなる機能層を有する多層シートを成形する場合は、２種３層共押出し成形機等により成形する方法；あらかじめ押出し成形法等により成形された単層の樹脂層同士を熱ラミネート等の方法により積層一体化して接着層を形成する方法；等が適用できる。

【００７０】

（ｃ）合わせガラス

本発明の合わせガラスは、第１のガラス板および第２のガラス板を含む少なくとも２枚のガラス板と、中間膜Ｘを含む少なくとも１枚の中間膜とを有しており、当該少なくとも２枚のガラス板は中間膜を介して接着一体化されている。ここで、第１のガラス板と第２のガラス板とは中間膜Ｘを介して接着一体化されているものとする。

本発明の合わせガラスの２０℃における厚み方向の熱伝導率は、好ましくは０．３５Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下であり、より好ましくは０．３Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下、特に好ましくは０．２５Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下である。本発明の合わせガラスの熱伝導率が上記値以下であれば、ガラス板の熱伝導率（通常約１Ｗ／（ｍ・Ｋ）程度）の約１／３以下であり、また、自動車用合わせガラスとして汎用的に使用されている厚さ２ｍｍの２枚のガラス板と厚さ０．７６ｍｍのＰＶＢを主成分とする中間膜とから構成される合わせガラスの熱伝導率（

約０．６Ｗ／（ｍ・Ｋ））よりも小さいため、断熱性に優れている。なお、合わせガラスの２０℃における厚み方向の熱伝導率は、熱伝導率測定装置を用い、ＡＳＴＭ　Ｅ１５３０法（円板熱流計法）に準拠して、２０℃の温度雰囲気で測定して求めた値である。

【００７１】

本発明の合わせガラスにおいて、少なくとも２枚のガラスの厚さの合計をｔｇとし、少なくとも１枚の中間膜の厚さの合計をｔｉとしたときの、ｔｇに対するｔｉの比（ｔｉ／ｔｇ）は、０．７以上であることが必要であり、好ましくは１．０以上、より好ましくは１．３以上である。

ｔｇに対するｔｉの比（ｔｉ／ｔｇ）を上記の値以上にすることにより、本発明の合わせガラスの厚み方向の熱伝導率を上述した所定値以下にすることが容易になる。

また、ｔｇに対するｔｉの比（ｔｉ／ｔｇ）は、通常、３．０以下である。

【００７２】

また本発明の合わせガラスの厚み方向の光線透過率は、波長５５０ｎｍにおいて５０％以上であることが必要であり、好ましくは６０％以上、より好ましくは７０％以上であり、波長２０００ｎｍにおいて２０％以下であることが必要であり、好ましくは１５％以下、より好ましくは１０％以下である。可視光線の透過率が高く、赤外線領域での透過率が低く、断熱性と遮熱性とを両立させた合わせガラスである。なお、本明細書中において、光線透過率は、積分球式分光光度計を用い、ＪＩＳ　Ｋ７３７５法に準拠した測定により求めた値である。

【００７３】

また、本発明の合わせガラスは剛性が高いことが望ましい。合わせガラスの剛性の指標となる合わせガラスの曲げ弾性率は、好ましくは１１ＧＰａ以上、より好ましくは１５ＧＰａ以上、更に好ましくは２０ＧＰａ以上である。なお、合わせガラスの曲げ弾性率は、温度調整用の加熱オーブンを備えたオートグラフを使用し、ＪＩＳ　Ｒ１６０２法（４点曲げ試験法）を参照して、回転形４点曲げ試験治具を使用して、支点間距離：上部＝１０～２７ｍｍ、下部＝３０～８０ｍｍ、支持棒直径６ｍｍ、温度４０℃の条件で測定して求めた値である。

【００７４】

本発明の合わせガラスの厚さは、通常０．７ｍｍ以上であり、好ましくは１ｍｍ以上、より好ましくは１．５ｍｍ以上、更に好ましくは２．５ｍｍ以上、特に好ましくは４．０ｍｍ以上、好ましくは９ｍｍ以下、より好ましくは８ｍｍ以下、更に好ましくは７ｍｍ以下、特に好ましくは６．０ｍｍ以下である。合わせガラスが上記範囲内の厚さであれば、ディスプレイ用ガラス、自動車用ガラス、建材用ガラス等として好適に使用し得る。

また、合わせガラスの形状は、建材やディスプレイ等に使用する平板状であってもよいし、自動車用合わせガラスのような曲面形状であってもよい。

【００７５】

本発明の合わせガラスを製造する方法は特に限定されない。

例えば、自動車用合わせガラスのような曲面形状をした合わせガラスの一般的な方法としては、例えば、第１のガラス板／第１の接着層／赤外線反射フィルム／第２の接着層／第２のガラス板をこの順に重ね合わせた積層物とし、この積層物を脱気可能な可撓性の樹脂製袋に入れて内部を脱気した後、オートクレーブに入れて、温度１００～１５０℃、圧力０．０１～１．５ＭＰａの条件下で圧着することができる。

建築物用の合わせガラス等のような平面形状をした合わせガラスの場合は、上記の積層物を真空ラミネータや熱プレス等を用いて加熱加圧して接着一体化させる方法も適用できる。

【００７６】

本発明の合わせガラスは、断熱性及び遮熱性に優れているため、自動車、鉄道車両、船舶、建築物等の窓材、壁材、屋根材、床材、仕切り材等として有用である。また、本発明の合わせガラスは、合わせガラス全体の厚さを厚くすることなく、中間膜の厚さを大きくして、ガラス板の厚さを小さくした場合であっても、剛性を維持しつつ断熱性と遮熱性と

を向上させることができるため、合わせガラスの軽量化にも寄与する。このため、自動車用途では、サイドガラス、リアガラス、ルーフガラス、フロントガラス等として、また、建材用途では窓ガラス、間仕切りガラス、天井ガラス等として本発明の合わせガラスを使用することにより、冷暖房の省エネルギー、燃費向上等にも効果を示すことが期待できる。

【実施例】

【００７７】

以下に実施例を示しながら、本発明をさらに詳細に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。なお、「部」及び「％」は特に断りのない限り質量基準である。

なお、複数種類の化合物を共重合して調製される重合体において、ある化合物に由来する構造単位の当該重合体全体に占める質量分率は、その重合体の調製時に重合する全化合物の総質量に占める当該ある化合物の質量の比率(仕込み比)と当該ある化合物の実測される重合転化率から算出される。

【００７８】

本実施例における評価は、以下の方法によって行う。

（１）重量平均分子量（Ｍｗ）及び分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）

ブロック共重合体［Ｃ］及びブロック共重合体水素化物［Ｄ］の分子量は、ＴＨＦを溶離液とするＧＰＣによる標準ポリスチレン換算値として４０℃において測定した。測定装置としては、東ソー社製ＨＬＣ８３２０ＧＰＣを用いた。

（２）水素化率

ブロック共重合体水素化物［Ｄ］の主鎖、側鎖及び芳香環の水素化率は、ブロック共重合体［Ｃ］及びブロック共重合体水素化物［Ｄ］の^{1}Ｈ－ＮＭＲを測定して算出した。

【００７９】

（３）中間膜の貯蔵弾性率（Ｇ’）

各実施例および比較例で作製した中間膜の試験片について、粘弾性測定装置（ティー・エイ・インスツルメント・ジャパン社製、ＡＲＥＳ）を使用し、ＪＩＳ　Ｋ７２４４－２法（ねじり振子法）に基づき、角周波数：１ｒａｄ／ｓｅｃ、測定温度範囲：－１００～＋１００℃、昇温速度：５℃／ｍｉｎの条件で、粘弾性スペクトルを測定した。得られた粘弾性スペクトルから、４０℃における中間膜の貯蔵弾性率Ｇ’の値を求めた。

【００８０】

（４）合わせガラスの透明性及び遮熱性

各実施例および比較例で作製した合わせガラスを試験片とし、積分球式分光光度計（Ｖ－６７０、日本分光社製）を用い、ＪＩＳ　Ｋ７３７５法（プラスチック　全光線透過率及び全光線反射率の求め方）に準拠して、波長５５０ｎｍ及び２０００ｎｍでの厚さ方向の光線透過率を測定した。

合わせガラスの透明性については、波長５５０ｎｍでの光線透過率が５０％以上である場合を良好、５０％未満の場合を不良と評価した。

合わせガラスの遮熱性については、波長２０００ｎｍでの光線透過率が２０％以下である場合を良好、２０％を超える場合を不良と評価した。

【００８１】

（５）合わせガラスの断熱性

各実施例および比較例で作製した合わせガラスを試験片とし、熱伝導率測定装置（製品名：ユニサーモ　２０２１型、アンター社製）を用い、ＡＳＴＭ　Ｅ１５３０法（円板熱流計法）に準拠して、２０℃の温度雰囲気で厚さ方向の熱伝導率測定を行った。

合わせガラスの断熱性については、合わせガラスの厚さ方向の熱伝導率が０．３５Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下である場合を良好、合わせガラスの厚さ方向の熱伝導率が０．３５Ｗ／（ｍ・Ｋ）超である場合を不良と評価した。

【００８２】

（６）合わせガラスの剛性

各実施例および比較例で作製した合わせガラスを試験片とし、加熱オーブンを備えたオ

ートグラフ（インストロン社製、ＩＮＳＴＲＯＮ５５８２）を使用し、ＪＩＳ　Ｒ１６０２法（４点曲げ試験法）を参照して、回転形４点曲げ試験治具を使用して、支点間距離：上部＝１０～２７mm、下部＝３０～８０mm、支持棒直径６mm、温度４０℃の条件で曲げ試験を行い、曲げ弾性率を測定した。

合わせガラスの剛性については、合わせガラスの曲げ弾性率が１１ＧＰａ以上である場合を良好、合わせガラスの曲げ弾性率が１１ＧＰａ未満である場合を不良と評価した。

【００８３】

［製造例１］接着層［Ｇ１］の製造

（ブロック共重合体［Ｃ１］）

撹拌装置を備え、内部が十分に窒素置換された反応器に、脱水シクロヘキサン４００部、脱水スチレン１０部及びジブチルエーテル０．４７５部を入れた。全容を６０℃で撹拌しながら、ｎ－ブチルリチウム（１５％シクロヘキサン溶液）０．８８部を加えて重合を開始させた。引続き全容を６０℃で撹拌しながら、脱水スチレン１５部を４０分間に亘って連続的に反応器内に添加して重合反応を進め、添加終了後、そのままさらに６０℃で２０分間全容を撹拌した。反応液をガスクロマトグラフィー（ＧＣ）により測定したところ、この時点での重合転化率は９９．５％であった。

次に、反応液に、脱水イソプレン５０．０部を１３０分間に亘って連続的に添加し、添加終了後そのまま３０分間撹拌を続けた。この時点で、反応液をＧＣにより分析した結果、重合転化率は９９．５％であった。

その後、更に、反応液に脱水スチレン２５．０部を、７０分間に亘って連続的に添加し、添加終了後そのまま６０分間撹拌した。この時点で、反応液をガスクロマトグラフィー（ＧＣ）により分析した結果、重合転化率はほぼ１００％であった。

【００８４】

ここで、イソプロピルアルコール０．５部を加えて反応を停止させることによって、［Ａ］－［Ｂ］－［Ａ］型のブロック共重合体［Ｃ１］を含む重合体溶液を得た。ブロック共重合体［Ｃ１］の重量平均分子量（Ｍｗ）は４７，２００、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．３４、ｗａ：ｗｂ＝５０：５０であった。

【００８５】

（ブロック共重合体水素化物［Ｄ１］）

次に、上記の重合体溶液を、撹拌装置を備えた耐圧反応器に移送し、水素化触媒として、珪藻土担持型ニッケル触媒（製品名「Ｅ２２Ｕ」、ニッケル担持量６０％、日揮触媒化成社製）４．０部、及び脱水シクロヘキサン３０部を添加して混合した。反応器内部を水素ガスで置換し、さらに溶液を撹拌しながら水素を供給し、温度１９０℃、圧力４．５ＭＰａにて６時間水素化反応を行った。

水素化反応により得られた反応溶液に含まれるブロック共重合体水素化物［Ｄ１］の重量平均分子量（Ｍｗ）は４９，９００、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．３６であった。

【００８６】

水素化反応終了後、反応溶液を濾過して水素化触媒を除去した後、フェノール系酸化防止剤であるペンタエリスリトール・テトラキス［３－（３，５－ジ－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート］（製品名「Ｓｏｎｇｎｏｘ（登録商標）１０１０」、松原産業社製）０．１部を溶解したキシレン溶液２．０部を添加して溶解させた。

次いで、円筒型濃縮乾燥器（製品名「コントロ」、日立製作所社製）を用いて、温度２６０℃、圧力０．００１ＭＰａ以下で、上記溶液から、シクロヘキサン、キシレン及びその他の揮発成分を除去した。溶融ポリマーをダイからストランド状に押出し、冷却後、ペレタイザーによりブロック共重合体水素化物［Ｄ１］のペレット９５部を作製した。

得られたペレット状のブロック共重合体水素化物［Ｄ１］の重量平均分子量（Ｍｗ）は４９，５００、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．４０、鎖状共役ジエンに由来する主鎖および側鎖の炭素－炭素不飽和結合の水素化率並びに芳香族ビニル化合物に由来する芳香環に由来する炭素－炭素不飽和結合の水素化率はいずれもほぼ１００％であった。

【００８７】

（変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ１］）
得られたブロック共重合体水素化物［Ｄ１］のペレット１００部に対して、ビニルトリメトキシシラン２．０部及び２，５－ジメチル－２，５－ジ（ｔ－ブチルパーオキシ）ヘキサン（製品名「パーヘキサ（登録商標）２５Ｂ」、日油社製）０．１部を添加した。この混合物を、二軸押出し機を用いて、樹脂温度２００℃、滞留時間６０～７０秒で混練し、ストランド状に押出し、空冷した後、ペレタイザーによりカッティングし、アルコキシシリル基を有する変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ１］のペレット９６部を得た。
【００８８】
得られた変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ１］のペレット１０部をシクロヘキサン１００部に溶解した後、脱水メタノール４００部中に注いで、変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ１］を凝固させ、凝固物を濾取した。濾過物を２５℃で真空乾燥して、変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ１］のクラム９．０部を単離した。
変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ１］のＦＴ－ＩＲスペクトルを測定したところ、１０９０ｃｍ$^{-1}$にＳｉ－ＯＣＨ$_3$基、８２５ｃｍ$^{-1}$と７３９ｃｍ$^{-1}$にＳｉ－ＣＨ$_2$基に由来する新たな吸収帯が、ビニルトリメトキシシランのＳｉ－ＯＣＨ$_3$基、Ｓｉ－ＣＨ基に由来する吸収帯（１０７５ｃｍ$^{-1}$、８０８ｃｍ$^{-1}$及び７６６ｃｍ$^{-1}$）と異なる位置に観察された。
また、変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ１］の^{1}Ｈ－ＮＭＲスペクトル（重クロロホルム中）を測定したところ、３．６ｐｐｍにメトキシ基のプロトンに基づくピークが観察され、ピーク面積比からブロック共重合体水素化物［Ｄ１］１００部に対してビニルトリメトキシシラン１．８部が結合したことが確認された。
【００８９】
（接着層［Ｇ１－１］及び［Ｇ１－２］）
上記で得た変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ１］のペレット１００部に紫外線吸収剤である２－（５－クロロ－２Ｈ－ベンゾトリアゾール－２－イル）－６－ｔｅｒｔ－ブチル－ｐ－クレゾール（住友化学社製、製品名「ＳＵＭＩＳＯＲＢ（登録商標）３００」）０．３部を配合し、得られた混合物を、３７ｍｍφのスクリューを備えた二軸混練機（東芝機械社製、ＴＥＭ３７Ｂ）を有するＴダイ式フィルム溶融押出し成形機（Ｔダイ幅４００ｍｍ）、キャストロール（エンボスパターン付き）及びシート引き取り装置を備えた押出しシート成形機を使用して、溶融樹脂温度２００℃、Ｔダイ温度２００℃、キャストロール温度６０℃の条件にて押出し成形し、変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ１］を主成分とする接着層［Ｇ１－１］（厚さ０．７６ｍｍ、幅３３０ｍｍ）及び［Ｇ１－２］（厚さ０．３８ｍｍ、幅３３０ｍｍ）を得た。
接着層［Ｇ１－１］及び［Ｇ１－２］は、押出しシートの片面をニップロールでエンボスロールに押し当てることにより、エンボスパターンを転写した。得られた接着層［Ｇ１－１］及び［Ｇ１－２］は、それぞれロールに巻き取り回収した。
なお、接着層［Ｇ１－１］および［Ｇ１－２］の厚さ方向の熱伝導率をＡＳＴＭ　Ｅ１５３０に準拠して測定したところ、いずれも０．１５Ｗ／（ｍ・Ｋ）であった。
【００９０】
［製造例２］接着層［Ｇ２］の製造
（ブロック共重合体［Ｃ２］）
製造例１と同様の反応器を使用し、脱水シクロヘキサン４００部、脱水スチレン１０部及びジブチルエーテル０．４７５部を入れた。全容を６０℃で攪拌しながら、ｎ－ブチルリチウム（１５％シクロヘキサン溶液）０．６８部を加えて重合を開始させた。引続き全容を６０℃で攪拌しながら、脱水スチレン１０．０部を２５分間に亘って連続的に反応器内に添加して重合反応を進め、添加終了後、そのままさらに６０℃で２０分間全容を攪拌した。反応液をガスクロマトグラフィー（ＧＣ）により測定したところ、この時点での重合転化率は９９．５％であった。
次に、反応液に、脱水イソプレン６０．０部を１５０分間に亘って連続的に添加し、添加終了後そのまま３０分間攪拌を続けた。この時点で、反応液をＧＣにより分析した結果、重合転化率は９９．５％であった。

その後、更に、反応液に脱水スチレン２０．０部を、５０分間に亘って連続的に添加し、添加終了後そのまま６０分撹拌した。この時点で、反応液をＧＣにより分析した結果、重合転化率はほぼ１００％であった。

【００９１】

ここで、イソプロピルアルコール０．５部を加えて反応を停止させることによって、［Ａ］－［Ｂ］－［Ａ］型のブロック共重合体［Ｃ２］を含む重合体溶液を得た。ブロック共重合体［Ｃ２］の重量平均分子量（Ｍｗ）は６１，６００、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．３５、ｗａ：ｗｂ＝４０：６０であった。

【００９２】

（ブロック共重合体水素化物［Ｄ２］）

次に、上記のようにして得られた重合体溶液を、撹拌装置を備えた耐圧反応器に移送し、水素化触媒として、トルエン１．０部中で、ビス（シクロペンタジエニル）チタニウムジクロリド０．０４２部とジエチルアルミニウムクロライド０．１２２部とを混合した溶液を添加して混合した。反応器内部を水素ガスで置換し、更に溶液を撹拌しながら水素を供給し、温度９０℃、圧力１．０ＭＰａにて５時間水素化反応を行った。

水素化反応後のブロック共重合体水素化物［Ｄ２］の重量平均分子量（Ｍｗ）は６２，９００、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．３５であった。

【００９３】

水素化反応終了後、反応溶液に水０．１０部を添加して、６０℃で６０分間撹拌した。その後、３０℃以下まで冷却し、活性白土（製品名「ガレオンアース（登録商標）」、水澤化学工業社製）１．５部及びタルク（製品名「ミクロエース（登録商標）」、日本タルク社製）１．５部を添加して、反応溶液を濾過ろ過して不溶物を除去した。濾過された溶液にフェノール系酸化防止剤であるペンタエリスリトール・テトラキス［３－（３，５－ジ－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート］０．１部を溶解したキシレン溶液１．０部を添加して溶解させた。

次いで、製造例１と同様にして、ブロック共重合体水素化物［Ｄ２］のペレット９２部を作製した。

得られたペレット状のブロック共重合体水素化物［Ｄ２］の重量平均分子量（Ｍｗ）は６２，３００、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は１．３５、鎖状共役ジエン化合物に由来する主鎖及び側鎖の炭素－炭素不飽和合の水素化率は９９％、芳香族ビニル化合物に由来する芳香環の炭素－炭素不飽和結合の水素化率は５％未満であった。

【００９４】

（変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ２］）

ブロック共重合体水素化物［Ｄ１］のペレットに代えてブロック共重合体水素化物［Ｄ２］のペレットを使用する以外は、製造例１と同様にして、アルコキシシリル基を有する変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ２］のペレット９６部を得た。

【００９５】

得られた変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ２］を製造例１と同様に分析した結果、ブロック共重合体水素化物［Ｄ２］１００部に対してビニルトリメトキシシラン１．８部が結合したことが確認された。

【００９６】

（接着層［Ｇ２－１］及び［Ｇ２－２］）

変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ１］に代えて変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ２］を使用する以外は、製造例１と同様にして、変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ２］を主成分とする接着層［Ｇ２－１］（厚さ０．７６ｍｍ、幅３３０ｍｍ）及び［Ｇ２－２］（厚さ０．３８ｍｍ、幅３３０ｍｍ）を得た。

なお、接着層［Ｇ２－１］および［Ｇ２－２］の厚さ方向の熱伝導率をＡＳＴＭ　Ｅ１５３０に準拠して測定したところ、いずれも０．１５Ｗ／（ｍ・Ｋ）であった。

【００９７】

［製造例３］赤外線反射層［Ｈ１］の製造

縦４０ｃｍ、横４０ｃｍのポリエチレンテレフタレートフィルム（商品名：ルミラー、厚さ５０μｍ、東レ社製）の片面に、ＤＣマグネトロンスパッタリング法により、In_2O_3（３０ｎｍ）／Ａｇ（１０ｎｍ））／In_2O_3（６０ｎｍ）／Ａｇ（１０ｎｍ）／In_2O_3（３０ｎｍ）の層構成からなる赤外線反射膜を積層し、赤外線反射層［Ｈ１］を製造した。赤外線反射層［Ｈ１］の厚さ方向の光線透過率は、波長５５０ｎｍにおいて７８％、波長２０００ｎｍにおいて５％であった。なお、赤外線反射層［Ｈ１］の厚さ方向の光線透過率については、積分球式分光光度計（Ｖ－６７０、日本分光社製）を用い、ＪＩＳＫ７３７５法（プラスチック　全光線透過率及び全光線反射率の求め方）に準拠して測定した。

【００９８】

［実施例１］

（断熱性評価用の合わせガラス［Ｋ１－１］）

円形に切り出した２枚の青板ガラス（直径５０ｍｍ、厚さ１．１ｍｍ、熱伝導率：１．０Ｗ／（ｍ・Ｋ）、光線透過率：９１％（５５０ｎｍ、２０００ｎｍ））の間に、同じく円形に切り出した、製造例１で製造した接着層［Ｇ１－１］（直径５０ｍｍ、厚さ０．７６ｍｍ）２枚、製造例３で製造した赤外線反射層［Ｈ１］（直径５０ｍｍ、厚さ０．０５ｍｍ）１枚を、ガラス板／［Ｇ１－１］／［Ｈ１］／［Ｇ１－１］／ガラス板の順に重ねて配置した。この積層物を、ナイロン／ポリプロピレンの層構成を有する厚さ７５μｍの樹脂製の袋に入れ、密封パック器（ＢＨ－９５１、パナソニック社製）を使用して、袋内を脱気しながら開口部をヒートシールして積層物を密封包装した。

その後、密封包装した積層物をオートクレーブに入れて、温度１４０℃、圧力０．８ＭＰａで３０分間処理して、ガラス板／［Ｇ１－１］／［Ｈ１］／［Ｇ１－１］／ガラス板の層構成をした合わせガラス［Ｋ１－１］を作製した。

得られた合わせガラス［Ｋ１－１］の外観は気泡等の欠陥は観察されず、良好であった。また、ガラス板の厚さの合計（ｔｇ）に対する中間膜の厚さの合計（ｔｉ）の比（ｔｉ／ｔｇ）は、０．７１であった。

【００９９】

（透明性、遮熱性及び剛性評価用の合わせガラス［Ｋ１－２］）

合わせガラス［Ｋ１－１］の作製と同様にして、青板ガラス（長さ１００ｍｍ、幅２０ｍｍ、厚さ１．１ｍｍ）２枚、接着層［Ｇ１－１］（長さ１００ｍｍ、幅２０ｍｍ、厚さ０．７６ｍｍ）２枚及び赤外線反射層［Ｈ１］（長さ１００ｍｍ、幅２０ｍｍ、厚さ０．０５ｍｍ）１枚を使用し、ガラス板／［Ｇ１－１］／［Ｈ１］／［Ｇ１－１］／ガラス板の順に重ねて配置し、合わせガラス［Ｋ１－２］を作製した。

【０１００】

（貯蔵弾性率測定用の中間膜［Ｊ１］）

離型フィルムとしてのＰＥＴフィルム（東レ社製、製品名「ルミラー（登録商標）Ｒ７５」、厚さ７５μｍ）を更に用いて、積層物の作製時に、ガラス板と接着層［Ｇ１－１］との間に当該ＰＥＴフィルムを配置したこと以外は、合わせガラス［Ｋ１－２］の作製と同様にして、合わせガラス［Ｋ１－３］を作製した。得られた合わせガラス［Ｋ１－３］をＰＥＴフィルム面から剥離し、［Ｇ１－１］／［Ｈ１］／［Ｇ１－１］の３層構成からなる中間膜［Ｊ１］を取り出した。この中間膜から長さ７０ｍｍ、幅１０ｍｍの試験片を切り出し、粘弾性測定用の試験片とした。

【０１０１】

（中間膜の貯蔵弾性率）

作製した中間膜［Ｊ１］の貯蔵弾性率は８．８×10^7Ｐａであった。

（透明性及び遮熱性の評価）

作製した合わせガラス［Ｋ１－２］の厚さ方向の光線透過率は、５５０ｎｍにおいて７７％、２０００ｎｍにおいて５％であり、透明性の評価は良好、遮熱性の評価は良好であった。

（断熱性の評価）

作製した合わせガラス［Ｋ１－１］の厚さ方向の熱伝導率は、０．３０Ｗ／（ｍ・Ｋ）で、断熱性の評価は良好であった。
（剛性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ１－２］の曲げ弾性率は、３１ＧＰａであり、合わせガラスの剛性の評価は良好であった。
これらの結果を表１に示した。
【０１０２】
［実施例２］
接着層［Ｇ１－１］を２枚、赤外線反射層［Ｈ１］を１枚使用することに加えて、機能層として合わせガラスの熱伝導率を小さくするための樹脂層として接着層と同じ［Ｇ１－１］を更に２枚使用し、層構成をガラス板／［Ｇ１－１］／［Ｈ１］／［Ｇ１－１］／［Ｇ１－１］／［Ｇ１－１］／ガラス板の順に重ねて配置すること以外は実施例１と同様にして、断熱性評価用の合わせガラス［Ｋ２－１］、透明性、遮熱性及び剛性評価用の合わせガラス［Ｋ２－２］、及び、［Ｇ１－１］／［Ｈ１］／［Ｇ１－１］／［Ｇ１－１］／［Ｇ１－１］の５層構成からなる中間膜［Ｊ２］を作製した。
合わせガラス［Ｋ２－１］及び［Ｋ２－２］のガラス板の厚さの合計（ｔｇ）に対する中間膜の厚さの合計（ｔｉ）の比（ｔｉ／ｔｇ）は、１．４０であった。
【０１０３】
（中間膜の貯蔵弾性率）
作製した中間膜［Ｊ２］の貯蔵弾性率は８．６×１０^{7}Ｐａであった。
（透明性及び遮熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ２－２］の厚さ方向の光線透過率は、５５０ｎｍにおいて７４％、２０００ｎｍにおいて５％であり、透明性の評価は良好、遮熱性の評価は良好であった。
（断熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ２－１］の厚さ方向の熱伝導率は、０．２３Ｗ／（ｍ・Ｋ）で、断熱性の評価は良好であった。
（剛性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ２－２］の曲げ弾性率は、２２ＧＰａであり、合わせガラスの剛性の評価は良好であった。
これらの結果を表１に示した。
【０１０４】
［比較例１］
接着層［Ｇ１－１］を２枚、赤外線反射層［Ｈ１］を１枚使用することに加えて、更に機能層として合わせガラスの熱伝導率を小さくするための樹脂層として接着層と同じ［Ｇ１－１］を１枚及びポリビニルブチラール樹脂を主成分とする合わせガラス中間膜用シート［Ｇ３］（ソルーシア社製、製品名「Ｓａｆｌｅｘ（登録商標）　ＲＦ４１」、厚さ０．７６ｍｍ）１枚を使用し、合わせガラスの層構成をガラス板／［Ｇ１－１］／［Ｈ１］／［Ｇ１－１］／［Ｇ３］／［Ｇ１－１］／ガラス板の順に重ねて配置する以外は実施例１と同様にして断熱性評価用の合わせガラス［Ｋ３－１］、透明性、遮熱性及び剛性評価用の合わせガラス［Ｋ３－２］、及び、［Ｇ１－１］／［Ｈ１］／［Ｇ１－１］／［Ｇ３］／［Ｇ１－１］の５層構成からなる中間膜［Ｊ３］を作製した。
合わせガラス［Ｋ３－１］及び［Ｋ３－２］のガラス板の厚さの合計（ｔｇ）に対する中間膜の厚さの合計（ｔｉ）の比（ｔｉ／ｔｇ）は、１．４０であった。
なお、上記で使用した合わせガラス中間膜用シート［Ｇ３］の厚さ方向の熱伝導率をＡＳＴＭ　Ｅ１５３０に準拠して測定したところ、０．１７Ｗ／（ｍ・Ｋ）であった。
【０１０５】
（中間膜の貯蔵弾性率）
作製した中間膜［Ｊ３］の貯蔵弾性率は０．５８×１０^{7}Ｐａであり、本発明の要件を満たしていなかった。

（透明性及び遮熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ３－２］の厚さ方向の光線透過率は、５５０ｎｍにおいて７４％、２０００ｎｍにおいて５％であり、透明性の評価は良好、遮熱性の評価は良好であった。
（断熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ３－１］の厚さ方向の熱伝導率は、０．２５Ｗ／（ｍ・Ｋ）で、断熱性の評価は良好であった。
（剛性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ３－２］の曲げ弾性率は、３ＧＰａと低い値で、剛性の評価は不良であった。
これらの結果を表１に示した。
【０１０６】
［比較例２］
厚さ１．１ｍｍのガラス板２枚を使用し、接着層［Ｇ１－２］を２枚使用して、層構成をガラス板／［Ｇ１－２］／［Ｈ１］／［Ｇ１－２］／ガラス板の順に重ねて配置する以外は実施例１と同様にして断熱性評価用の合わせガラス［Ｋ４－１］、透明性、遮熱性及び剛性評価用の合わせガラス［Ｋ４－２］、及び、［Ｇ１－２］／［Ｈ１］／［Ｇ１－２］の３層構成からなる中間膜［Ｊ４］を作製した。
合わせガラス［Ｋ４－１］及び［Ｋ４－２］のガラス板の厚さの合計（ｔｇ）に対する中間膜の厚さの合計（ｔｉ）の比（ｔｉ／ｔｇ）は、０．３７であり、本発明の要件を満たしていなかった。
【０１０７】
（中間膜の貯蔵弾性率）
作製した中間膜［Ｊ４］の貯蔵弾性率は９．０×10^{7}Ｐａであった。
（透明性及び遮熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ４－２］の厚さ方向の光線透過率は、５５０ｎｍにおいて７７％、２０００ｎｍにおいて５％であり、透明性の評価は良好、遮熱性の評価は良好であった。
（断熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ４－１］の厚さ方向の熱伝導率は、０．４１Ｗ／（ｍ・Ｋ）と大きい値であり、断熱性の評価は不良であった。
（剛性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ４－２］の曲げ弾性率は、４２ＧＰａであり、合わせガラスの剛性の評価は良好であった。
これらの結果を表１に示した。
【０１０８】
［比較例３］
厚さ２．１ｍｍのガラス板２枚及び合わせガラス中間膜用シート［Ｇ３］を１枚使用し、層構成をガラス板／［Ｇ３］／ガラス板の順に重ねて配置する以外は実施例１と同様にして断熱性評価用の合わせガラス［Ｋ５－１］、透明性、遮熱性及び剛性評価用の合わせガラス［Ｋ５－２］を作製した。また、ガラス中間膜用シート［Ｇ３］を長さ７０ｍｍ、幅１０ｍｍに切り出して得られた中間膜［Ｊ５］を、粘弾性測定用の試験片とした。
合わせガラス［Ｋ５－１］及び［Ｋ５－２］のガラス板の厚さの合計（ｔｇ）に対する中間膜の厚さの合計（ｔｉ）の比（ｔｉ／ｔｇ）は、０．１８であり、本発明の要件を満たしていなかった。
【０１０９】
（中間膜の貯蔵弾性率）
作製した中間膜［Ｊ５］の貯蔵弾性率は０．１５×10^{7}Ｐａであり、本発明の要件を満たしていなかった。
（透明性及び遮熱性の評価）

作製した合わせガラス［Ｋ５－２］の厚さ方向の光線透過率は、５５０ｎｍにおいて７８％、２０００ｎｍにおいて８８％であり、透明性の評価は良好、遮熱性の評価は不良であった。

（断熱性の評価）

作製した合わせガラス［Ｋ５－１］の厚さ方向の熱伝導率は、０．６０Ｗ／（ｍ・Ｋ）と大きい値であり、断熱性の評価は不良であった。

（剛性の評価）

作製した合わせガラス［Ｋ５－２］の曲げ弾性率は、１１ＧＰａであり、合わせガラスの剛性の評価は良好であった。

これらの結果を表１に示した。

【０１１０】

【表１】

			実施例1	実施例2	比較例1	比較例2	比較例3
合わせガラス	第1のガラス板	厚さ[mm]	[K1]	[K2]	[K3]	[K4]	[K5]
			1.1	1.1	1.1	1.1	2.1
			[J1]	[J2]	[J3]	[J4]	[J5]
	中間膜X	第1の接着層	種類	[G1−1]	[G1−1]	[G1−1]	[G1−2]	—
			厚さ[mm]	0.76	0.76	0.76	0.38	
		赤外線反射層	種類	[H1]	[H1]	[H1]	[H1]	
			厚さ[mm]	0.05	0.05	0.05	0.05	
		第1の機能層	種類	—	[G1−1]	[G1−1]	—	[G3]
			厚さ[mm]		0.76	0.76		0.76
		第2の機能層	種類		[G1−1]	[G3]		—
			厚さ[mm]		0.76	0.76		
		第2の接着層	種類	[G1−1]	[G1−1]	[G1−1]	[G1−2]	
			厚さ[mm]	0.76	0.76	0.76	0.38	
	第2のガラス板		厚さ[mm]	1.1	1.1	1.1	1.1	2.1
中間膜Xの貯蔵弾性率[×10⁷Pa]				8.8	8.6	0.58	9.0	0.15
ti／tg				0.71	1.40	1.40	0.37	0.18
合わせガラスの特性	透明性	550nmでの光線透過率[%]		77	74	74	77	78
		評価		良好	良好	良好	良好	良好
	遮熱性	2000nmでの光線透過率[%]		5	5	5	5	88
		評価		良好	良好	良好	良好	不良
	断熱性	熱伝導率[W／(m･K)]		0.30	0.23	0.25	0.41	0.60
		評価		良好	良好	良好	不良	不良
	剛性	曲げ弾性率[GPa]		31	22	3	42	11
		評価		良好	良好	不良	良好	良好

【０１１１】

［実施例３］

接着層［Ｇ１－１］に代えて製造例２で製造した接着層［Ｇ２－１］を使用すること以外は、実施例１と同様にして、断熱性評価用の合わせガラス［Ｋ６－１］、透明性、遮熱性及び剛性評価用の合わせガラス［Ｋ６－２］、及び、［Ｇ２－１］／［Ｈ１］／［Ｇ２－１］の３層構成からなる中間膜［Ｊ６］を作製した。

合わせガラス［Ｋ６－１］及び［Ｋ６－２］のガラス板の厚さの合計（ｔｇ）に対する中間膜の厚さの合計（ｔｉ）の比（ｔｉ／ｔｇ）は、０．７１であった。

【０１１２】

（中間膜の貯蔵弾性率）
作製した中間膜［Ｊ６］の貯蔵弾性率は４．３×１０^{7}Ｐａであった。
（透明性及び遮熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ６－２］の厚さ方向の光線透過率は、５５０ｎｍにおいて７７％、２０００ｎｍにおいて５％であり、透明性の評価は良好、遮熱性の評価は良好であった。
（断熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ６－１］の厚さ方向の熱伝導率は、０．３０Ｗ／（ｍ・Ｋ）で、断熱性の評価は良好であった。
（剛性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ６－２］の曲げ弾性率は、１６ＧＰａであり、合わせガラスの剛性の評価は良好であった。
これらの結果を表２に示した。
【０１１３】
［実施例４］
接着層［Ｇ１－１］に代えて製造例２で製造した接着層［Ｇ２－１］を接着層および機能層として使用すること以外は、実施例２と同様にして、断熱性評価用の合わせガラス［Ｋ７－１］、透明性、遮熱性及び剛性評価用の合わせガラス［Ｋ７－２］、及び、［Ｇ２－１］／［Ｈ１］／［Ｇ２－１］／［Ｇ２－１］／［Ｇ２－１］の５層構成からなる中間膜［Ｊ７］を作製した。
合わせガラス［Ｋ７－１］及び［Ｋ７－２］のガラス板の厚さの合計（ｔｇ）に対する中間膜の厚さの合計（ｔｉ）の比（ｔｉ／ｔｇ）は、１．４０であった。
【０１１４】
（中間膜の貯蔵弾性率）
作製した中間膜［Ｊ７］の貯蔵弾性率は４．３×１０^{7}Ｐａであった。
（透明性及び遮熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ７－２］の厚さ方向の光線透過率は、５５０ｎｍにおいて７４％、２０００ｎｍにおいて５％であり、透明性の評価は良好、遮熱性の評価は良好であった。
（断熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ７－１］の厚さ方向の熱伝導率は、０．２３Ｗ／（ｍ・Ｋ）で、断熱性の評価は良好であった。
（剛性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ７－２］の曲げ弾性率は、１１ＧＰａであり、合わせガラスの剛性の評価は良好であった。
これらの結果を表２に示した。
【０１１５】
［比較例４］
接着層［Ｇ１－１］に代えて、接着層［Ｇ２－１］を接着層および機能層として使用すること以外は、比較例１と同様にして、断熱性評価用の合わせガラス［Ｋ８－１］、透明性、遮熱性及び剛性評価用の合わせガラス［Ｋ８－２］、及び、［Ｇ２－１］／［Ｈ１］／［Ｇ２－１］／［Ｇ３］／［Ｇ２－１］の５層構成からなる中間膜［Ｊ８］を作製した。
合わせガラス［Ｋ８－１］及び［Ｋ８－２］のガラス板の厚さの合計（ｔｇ）に対する中間膜の厚さの合計（ｔｉ）の比（ｔｉ／ｔｇ）は、１．４０であった。
【０１１６】
（中間膜の貯蔵弾性率）
作製した中間膜［Ｊ８］の貯蔵弾性率は０．５５×１０^{7}Ｐａであり、本発明の要件を満たしていなかった。
（透明性及び遮熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ８－２］の厚さ方向の光線透過率は、５５０ｎｍにおいて７

４％、２０００ｎｍにおいて５％であり、透明性の評価は良好、遮熱性の評価は良好であった。
（断熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ８－１］の厚さ方向の熱伝導率は、０．２５Ｗ／（ｍ・Ｋ）で、断熱性の評価は良好であった。
（剛性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ８－２］の曲げ弾性率は、３ＧＰａと低い値であり、剛性の評価は不良であった。
これらの結果を表２に示した。
【０１１７】
［比較例５］
接着層［Ｇ１－２］に代えて製造例２で製造した接着層［Ｇ２－２］を使用すること以外は、比較例２と同様にして、断熱性評価用の合わせガラス［Ｋ９－１］、透明性、遮熱性及び剛性評価用の合わせガラス［Ｋ９－２］、及び、［Ｇ２－２］／［Ｈ１］／［Ｇ２－２］の３層構成からなる中間膜［Ｊ９］を作製した。
合わせガラス［Ｋ９－１］及び［Ｋ９－２］のガラス板の厚さの合計（ｔｇ）に対する中間膜の厚さの合計（ｔｉ）の比（ｔｉ／ｔｇ）は、０．３７であり、本発明の要件を満たしていなかった。
【０１１８】
（中間膜の貯蔵弾性率）
作製した中間膜［Ｊ９］の貯蔵弾性率は４．５×１０^{7}Ｐａであった。
（透明性及び遮熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ９－２］の厚さ方向の光線透過率は、５５０ｎｍにおいて７７％、２０００ｎｍにおいて５％であり、透明性の評価は良好、遮熱性の評価は良好であった。
（断熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ９－１］の厚さ方向の熱伝導率は、０．４１Ｗ／（ｍ・Ｋ）と大きい値であり、断熱性の評価は不良であった。
（剛性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ９－２］の曲げ弾性率は、２５ＧＰａであり、合わせガラスの剛性の評価は良好であった。
これらの結果を表２に示した。
【０１１９】
［比較例６］
（接着層［Ｇ４－１］）
製造例１で得た変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ１］のペレット１００部に、紫外線吸収剤である２－（５－クロロ－２Ｈ－ベンゾトリアゾール－２－イル）－６－ｔｅｒｔ－ブチル－ｐ－クレゾール０．３部を配合し、サイドフィーダーから粘着性付与剤である水素化ポリイソブテン（日油社製、製品名「パールリーム（登録商標）１８」）２０部を供給すること以外は、製造例１と同様にして、変性ブロック共重合体水素化物［Ｅ１］を主成分とする接着層［Ｇ４－１］（厚さ０．７６ｍｍ、幅３３０ｍｍ）を製造した。
なお、接着層［Ｇ４－１］の厚さ方向の熱伝導率をＡＳＴＭ　Ｅ１５３０に準拠して測定したところ、０．１６Ｗ／（ｍ・Ｋ）であった。
【０１２０】
（合わせガラス［Ｋ１０］および中間膜［Ｊ１０］）
接着層［Ｇ１－１］に代えて上記接着層［Ｇ４－１］を使用すること以外は、実施例１と同様にして、断熱性評価用の合わせガラス［Ｋ１０－１］、透明性、遮熱性及び剛性評価用の合わせガラス［Ｋ１０－２］、及び、［Ｇ４－１］／［Ｈ１］／［Ｇ４－１］の３層構成からなる中間膜［Ｊ１０］を作製した。
合わせガラス［Ｋ１０－１］及び［Ｋ１０－２］のガラス板の厚さの合計（ｔｇ）に対

する中間膜の厚さの合計（ｔｉ）の比（ｔｉ／ｔｇ）は、０．７１であった。
【０１２１】
（中間膜の貯蔵弾性率）
作製した中間膜［Ｊ１０］の貯蔵弾性率は２．８×１０^{7}Ｐａであり、本発明の要件を満たしていなかった。
（透明性及び遮熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ１０－２］の厚さ方向の光線透過率は、５５０ｎｍにおいて７７％、２０００ｎｍにおいて５％であり、透明性の評価は良好、遮熱性の評価は良好であった。
（断熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ１０－１］の厚さ方向の熱伝導率は、０．３２Ｗ／（ｍ・Ｋ）で、断熱性の評価は良好であった。
（剛性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ１０－２］の曲げ弾性率は、１０ＧＰａと低い値であり、剛性の評価は不良であった。
【０１２２】
［実施例５］
使用するガラス板（青板ガラス）の厚さを１．１ｍｍから０．７ｍｍに変更したこと以外は、実施例１と同様にして断熱性評価用の合わせガラス［Ｋ１１－１］、透明性、遮熱性及び剛性評価用の合わせガラス［Ｋ１１－２］、及び、［Ｇ１－１］／［Ｈ１］／［Ｇ１－１］の３層構成からなる中間膜［Ｊ１１］を作製した。
合わせガラス［Ｋ１１－１］及び［Ｋ１１－２］のガラス板の厚さの合計（ｔｇ）に対する中間膜の厚さの合計（ｔｉ）の比（ｔｉ／ｔｇ）は、１．１２であった。
【０１２３】
（中間膜の貯蔵弾性率）
作製した中間膜［Ｊ１１］の貯蔵弾性率は８．８×１０^{7}Ｐａであった。
（透明性及び遮熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ１１－２］の厚さ方向の光線透過率は、５５０ｎｍにおいて７７％、２０００ｎｍにおいて５％であり、透明性の評価は良好、遮熱性の評価は良好であった。
（断熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ１１－１］の厚さ方向の熱伝導率は、０．２５Ｗ／（ｍ・Ｋ）で、断熱性の評価は良好であった。
（剛性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ１１－２］の曲げ弾性率は、２９ＧＰａであり、合わせガラスの剛性の評価は良好であった。
これらの結果を表２に示した。
【０１２４】
［実施例６］
使用するガラス板（青板ガラス）の厚さを１．１ｍｍから２．０ｍｍに変更したこと以外は、実施例２と同様にして断熱性評価用の合わせガラス［Ｋ１２－１］、透明性、遮熱性及び剛性評価用の合わせガラス［Ｋ１２－２］、及び、［Ｇ１－１］／［Ｈ１］／［Ｇ１－１］／［Ｇ１－１］／［Ｇ１－１］の５層構成からなる中間膜［Ｊ１２］を作製した。
合わせガラス［Ｋ１２－１］及び［Ｋ１２－２］のガラス板の厚さの合計（ｔｇ）に対する中間膜の厚さの合計（ｔｉ）の比（ｔｉ／ｔｇ）は、０．７７であった。
【０１２５】
（中間膜の貯蔵弾性率）
作製した中間膜［Ｊ１２］の貯蔵弾性率は８．６×１０^{7}Ｐａであった。
（透明性及び遮熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ１２－２］の厚さ方向の光線透過率は、５５０ｎｍにおいて

７４％、２０００ｎｍにおいて５％であり、透明性の評価は良好、遮熱性の評価は良好であった。
（断熱性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ１２－１］の厚さ方向の熱伝導率は、０．２９Ｗ／（ｍ・Ｋ）で、断熱性の評価は良好であった。
（剛性の評価）
作製した合わせガラス［Ｋ１２－２］の曲げ弾性率は、２６ＧＰａであり、合わせガラスの剛性の評価は良好であった。
これらの結果を表２に示した。
【０１２６】

【表２】

			実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	比較例4	比較例5	比較例6
合わせガラス	第1のガラス板	厚さ[mm]	1.1	1.1	0.7	2.0	1.1	1.1	1.1
	中間膜X		[J6]	[J7]	[J11]	[J12]	[J8]	[J9]	[J10]
		第1の接着層 種類	[G2−1]	[G2−1]	[G1−1]	[G1−1]	[G2−1]	[G2−2]	[G4−1]
		第1の接着層 厚さ[mm]	0.76	0.76	0.76	0.76	0.76	0.38	0.76
		赤外線反射層 種類	[H1]	[H1]	[H1]	[H1]	[H1]	[H1]	[H1]
		赤外線反射層 厚さ[mm]	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05
		第1の機能層 種類	—	[G2−1]	—	[G1−1]	[G2−1]	—	—
		第1の機能層 厚さ[mm]		0.76		0.76	0.76		
		第2の機能層 種類		[G2−1]		[G1−1]	[G3]		
		第2の機能層 厚さ[mm]		0.76		0.76	0.76		
		第2の接着層 種類	[G2−1]	[G2−1]	[G1−1]	[G1−1]	[G2−1]	[G2−2]	[G4−1]
		第2の接着層 厚さ[mm]	0.76	0.76	0.76	0.76	0.76	0.38	0.76
	第2のガラス板	厚さ[mm]	1.1	1.1	0.7	2.0	1.1	1.1	1.1
中間膜Xの貯蔵弾性率[×10⁷Pa]			4.3	4.3	8.8	8.6	0.55	4.5	2.8
ti／tg			0.71	1.40	1.12	0.77	1.40	0.37	0.71
合わせガラスの特性	透明性	550nmでの光線透過率[%]	77	74	77	74	74	77	77
		評価	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好
	遮熱性	2000nmでの光線透過率[%]	5	5	5	5	5	5	5
		評価	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好
	断熱性	熱伝導率[W／(m･K)]	0.30	0.23	0.25	0.29	0.25	0.41	0.32
		評価	良好	良好	良好	良好	良好	不良	良好
	剛性	曲げ弾性率[GPa]	16	11	29	26	3	25	10
		評価	良好	良好	良好	良好	不良	良好	不良

【０１２７】

実施例及び比較例の結果から以下のことがわかる。

赤外線反射層を有し、４０℃における貯蔵弾性率が３．０×１０^{7}Ｐａ以上の中間膜を使用し、且つ、ガラス板の厚さの合計（ｔｇ）に対する中間膜の厚さの合計（ｔｉ）の比（ｔｉ／ｔｇ）が０．７以上にすることにより、合わせガラスの厚み方向の熱伝導率が０．３５Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下であって、遮熱性、断熱性が改善され、且つ、曲げ弾性率が１１ＧＰａ以上の剛性を有する合わせガラスを製造することができる（実施例１～６）。

４０℃における貯蔵弾性率が３．０×１０^{7}Ｐａを下回る中間膜を使用した場合、合わせガラスの厚み方向の熱伝導率を０．３５Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下にすると、合わせガラスの曲

げ弾性率が１１ＧＰａ未満となり、合わせガラスの剛性が維持できない（比較例１、比較例４、比較例６）。

合わせガラス中間膜として従来一般的に使用されているＰＶＢを主成分とする中間膜は、４０℃における貯蔵弾性率が３×１０^{7}Ｐａを大きく下回っており、曲げ弾性率が１１ＧＰａとなる合わせガラスでは厚み方向の熱伝導率が０．３５Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下となる合わせガラスは製造できない（比較例３）。

４０℃における中間膜の貯蔵弾性率が３×１０^{7}Ｐａ以上であっても、ガラスの厚さに対して中間膜の厚さが薄い場合は、合わせガラスの剛性は十分に大きいが、熱伝導率を０．３５Ｗ／（ｍ・Ｋ）以下にできない場合がある（比較例２、比較例５）。

【産業上の利用可能性】

【０１２８】

本発明の合わせガラスは、断熱性及び遮熱性が改善され、且つ、剛性および軽量性も維持されているため、自動車、鉄道車両、船舶、建築物等の窓材等として使用した場合、冷暖房効果を高めることができるため有用である。

フロントページの続き

(51)国際特許分類
B32B 27/30 (2006.01)

FI
B32B 27/00 104
B32B 27/30 B

(56)参考文献
国際公開第２０１８／１１６９９７（WO，A１）
国際公開第２０１７／１３５１７７（WO，A１）
国際公開第２０１６／１６３４０９（WO，A１）
国際公開第２０１６／１７１０６８（WO，A１）
特開２０１８－１９９６０２（ＪＰ，A）
特開２０１６－１０８２２７（ＪＰ，A）
特開２０１７－１２２０２５（ＪＰ，A）
特開２０１７－０８１７７５（ＪＰ，A）
特開２０１７－０７１１４３（ＪＰ，A）
特開２０１４－２２４９２１（ＪＰ，A）

(58)調査した分野 (Int.Cl.，ＤＢ名)
Ｃ０３Ｃ
Ｂ３２Ｂ