

【發明說明書】

【中文發明名稱】

層合玻璃用中間膜及層合玻璃

【技術領域】

【0001】

本發明係關於一種用於獲得層合玻璃之層合玻璃用中間膜。又，本發明係關於一種使用上述層合玻璃用中間膜之層合玻璃。

【先前技術】

【0002】

層合玻璃即便受到外部衝擊而破損，玻璃碎片之飛散量亦較少而安全性優異。因此，上述層合玻璃廣泛地用於汽車、軌道車輛、航空器、船舶及建築物等。上述層合玻璃係藉由於2片玻璃板之間夾入層合玻璃用中間膜而製造。

【0003】

作為上述層合玻璃用中間膜之一例，於下述專利文獻1中揭示有一種隔音層，其含有縮醛化度為60～85莫耳%之聚乙烯醇縮醛樹脂100重量份、鹼金屬鹽及鹼土金屬鹽中之至少一種金屬鹽0.001～1.0重量份、及超過30重量份之塑化劑。該隔音層可以單層用作中間膜。

【0004】

進而，於下述專利文獻1中亦記載有一種多層中間膜，其係積層上述隔音層與其他層而成。積層於隔音層之其他層含有：縮醛化度為60～85莫耳%之聚乙烯醇縮醛樹脂100重量份、鹼金屬鹽及鹼土金屬鹽中之至少一種金屬鹽0.001～1.0重量份、及30重量份以下之塑化劑。

【0005】

於下述專利文獻2中揭示有一種中間膜，其係具有33°C以上之玻璃轉移溫度之聚合物層。於專利文獻2中，記載有將上述聚合物層配置於厚度為4.0 mm以下之玻璃板之間。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0006】

[專利文獻1]日本專利特開2007-070200號公報

[專利文獻2]US2013/0236711A1

【發明內容】

[發明所欲解決之問題]

【0007】

使用如專利文獻1、2所記載之先前之中間膜之層合玻璃有抗撓剛度較低之情況。因此，例如於將層合玻璃作為窗玻璃用於汽車之側門之情形時，無固定層合玻璃之框架，有因層合玻璃之剛性較低所導致之撓曲而有礙窗玻璃之開關的情況。

【0008】

又，近年來，為了使層合玻璃輕量化，而要求減薄玻璃板之厚度。於2片玻璃板之間夾入中間膜而成之層合玻璃存在若減薄玻璃板之厚度，則極難將抗撓剛度維持得充分高的問題。

【0009】

例如，即便玻璃板之厚度較薄，只要可因中間膜而提高層合玻璃之抗撓剛度，則亦可使層合玻璃輕量化。若層合玻璃輕量，則可減少層合玻

璃所使用之材料之量，可降低環境負荷。進而，若將輕量之層合玻璃用於汽車，則可提高燃料效率，結果可降低環境負荷。

【0010】

又，對使用中間膜之層合玻璃除期望抗撓剛度較高以外，期望隔音性及耐貫通性亦較高。

【0011】

先前之中間膜難以使較高之抗撓剛度、較高之隔音性、及較高之耐貫通性中之並非1個或2個而是3個全部良好。

【0012】

本發明之目的在於提供一種可提高層合玻璃於20°C下之抗撓剛度，且可提高層合玻璃之隔音性及耐貫通性之層合玻璃用中間膜。又，本發明之目的亦在於提供一種使用上述層合玻璃用中間膜之層合玻璃。

[解決問題之技術手段]

【0013】

根據本發明之廣泛態樣，提供一種層合玻璃用中間膜(以下，有時記載為中間膜)，其含有聚乙烯醇縮醛樹脂、聚乙烯醇縮醛樹脂以外之第2樹脂、及塑化劑，且相對於上述聚乙烯醇縮醛樹脂100重量份，上述塑化劑之含量為3重量份以上且未達20重量份，該層合玻璃用中間膜具有相分離結構，於上述相分離結構中，上述第2樹脂為島部，且於上述相分離結構中，上述島部之直徑之平均為10 nm以上且1 μm以下，該層合玻璃用中間膜之玻璃轉移溫度存在於-40°C以上且0°C以下。

【0014】

於本發明之中間膜之某一特定態樣中，於10°C以上且30°C以下之溫

度區域中之80%以上之溫度區域中，剪切儲存模數為3 MPa以上且2000 MPa以下。

【0015】

於本發明之中間膜之某一特定態樣中，於上述聚乙烯醇縮醛樹脂與上述第2樹脂之合計100重量%中，上述第2樹脂之含量為20重量%以上。

【0016】

於本發明之中間膜之某一特定態樣中，上述第2樹脂具有交聯結構，或者上述聚乙烯醇縮醛樹脂與上述第2樹脂交聯。

【0017】

於本發明之中間膜之某一特定態樣中，中間膜為單層之中間膜。

【0018】

於本發明之中間膜之某一特定態樣中，-40°C以上且0°C以下之溫度區域中之 $\tan\delta$ 之最大值為0.15以上。

【0019】

於本發明之中間膜之某一特定態樣中，厚度為3 mm以下。

【0020】

於本發明之中間膜之某一特定態樣中，中間膜係用於使用厚度為1.6 mm以下之第1玻璃板，配置於上述第1玻璃板與第2玻璃板之間而獲得層合玻璃。

【0021】

於本發明之中間膜之某一特定態樣中，中間膜係用於配置於第1玻璃板與第2玻璃板之間而獲得層合玻璃，且上述第1玻璃板之厚度與上述第2玻璃板之厚度之合計為3.5 mm以下。

【0022】

根據本發明之廣泛態樣，提供一種層合玻璃，其具備第1層合玻璃構件、第2層合玻璃構件、及上述之層合玻璃用中間膜，且上述層合玻璃用中間膜配置於上述第1層合玻璃構件與上述第2層合玻璃構件之間。

【0023】

於本發明之層合玻璃之某一特定態樣中，上述第1層合玻璃構件為第1玻璃板，且上述第1玻璃板之厚度為1.6 mm以下。

【0024】

於本發明之層合玻璃之某一特定態樣中，上述第1層合玻璃構件為第1玻璃板，上述第2層合玻璃構件為第2玻璃板，且上述第1玻璃板之厚度與上述第2玻璃板之厚度之合計為3.5 mm以下。

[發明之效果]

【0025】

本發明之層合玻璃用中間膜含有聚乙烯醇縮醛樹脂、聚乙烯醇縮醛樹脂以外之第2樹脂、及塑化劑。於本發明之層合玻璃用中間膜中，相對於上述聚乙烯醇縮醛樹脂100重量份，上述塑化劑之含量為3重量份以上且未達20重量份。本發明之層合玻璃用中間膜具有相分離結構。於本發明之層合玻璃用中間膜中，於上述相分離結構中，上述第2樹脂為島部，且於上述相分離結構中，上述島部之直徑之平均為10 nm以上且1 μm 以下，該層合玻璃用中間膜之玻璃轉移溫度存在於 -40°C 以上且 0°C 以下。本發明之層合玻璃用中間膜、由於具備上述構成，故而可提高使用本發明之層合玻璃用中間膜之層合玻璃於 20°C 下之抗撓剛度，且可提高層合玻璃之隔音性及耐貫通性。

【圖式簡單說明】**【0026】**

圖1係模式性地表示本發明之第1實施形態之層合玻璃用中間膜之剖視圖。

圖2係模式性地表示本發明之第2實施形態之層合玻璃用中間膜之剖視圖。

圖3係模式性地表示使用圖1所示之層合玻璃用中間膜之層合玻璃之一例的剖視圖。

圖4係模式性地表示使用圖2所示之層合玻璃用中間膜之層合玻璃之一例的剖視圖。

圖5係用以說明抗撓剛度之測定方法之模式圖。

【實施方式】**【0027】**

以下，對本發明詳細地進行說明。

【0028】

(層合玻璃用中間膜)

本發明之層合玻璃用中間膜(以下，有時記載為中間膜)具有1層之構造或2層以上之構造。本發明之中間膜可具有1層之構造，亦可具有2層以上之構造。本發明之中間膜可具有2層之構造，亦可具有2層以上之構造，亦可具有3層之構造，亦可具有3層以上之構造。本發明之中間膜具備第1層。本發明之中間膜可為僅具備第1層之單層中間膜，亦可為具備第1層與其他層之多層中間膜。

【0029】

本發明之中間膜含有聚乙烯醇縮醛樹脂、聚乙烯醇縮醛樹脂以外之第2樹脂、及塑化劑。於本發明之中間膜中，相對於上述聚乙烯醇縮醛樹脂100重量份，上述塑化劑之含量為3重量份以上且未達20重量份。將聚乙烯醇縮醛樹脂以外之樹脂與聚乙烯醇縮醛樹脂進行區分而稱為第2樹脂。

【0030】

本發明之中間膜具有相分離結構。於本發明之中間膜中，於上述相分離結構中，上述第2樹脂為島部(區)。又，於本發明之中間膜中，上述島部之直徑之平均為10 nm以上且1 μm 以下。

【0031】

進而，本發明之中間膜之玻璃轉移溫度存在於 -40°C 以上且 0°C 以下。

【0032】

本發明之中間膜由於具備上述構成，故而可提高使用本發明之中間膜之層合玻璃於 20°C 下之抗撓剛度。又，為了獲得層合玻璃，中間膜大多配置於第1玻璃板與第2玻璃板之間。即便第1玻璃板之厚度較薄，亦可藉由使用本發明之中間膜而充分地提高層合玻璃之抗撓剛度。又，即便第1玻璃板與第2玻璃板兩者之厚度較薄，亦可藉由使用本發明之中間膜而充分地提高層合玻璃之抗撓剛度。再者，若第1玻璃板與第2玻璃板兩者之厚度較厚，則層合玻璃之抗撓剛度進一步變高。

【0033】

進而，本發明之中間膜由於具備上述構成，故而可提高使用本發明之中間膜之層合玻璃之隔音性。

【0034】

進而，本發明之中間膜由於具備上述構成，故而可提高使用中間膜之層合玻璃之耐貫通性。即便層合玻璃受到外部衝擊而破損，玻璃碎片之飛散量亦變少。

【0035】

本發明可使較高之抗撓剛度、較高之隔音性、較高之耐貫通性中之3個全部而非1個或2個良好。

【0036】

上述中間膜由於含有聚乙烯醇縮醛樹脂及聚乙烯醇縮醛樹脂以外之第2樹脂，故而隔音性有效地變高。又，上述中間膜由於使用聚乙烯醇縮醛樹脂以及塑化劑，故而耐貫通性有效地變高。

【0037】

又，上述中間膜由於具有相分離結構，且於該相分離結構中，上述第2樹脂為島部，故而抗撓剛度及耐貫通性有效地變高。進而，由於上述島部之直徑之平均為10 nm以上且1 μm以下，故而抗撓剛度及耐貫通性更有效地變高。於本發明中，作為發揮上述效果之要因之一，認為其原因在於藉由具有上述島部之直徑之半徑之相分離結構而界面有效地增加，藉此能量分配及吸收順利地進行。

【0038】

上述聚乙烯醇縮醛樹脂較佳為包圍區，且上述聚乙烯醇縮醛樹脂較佳為基質。上述相分離結構較佳為海島結構。上述聚乙烯醇縮醛樹脂與上述第2樹脂較佳為包含於不同之相中。於海島結構之情形時，較佳為上述聚乙烯醇縮醛樹脂為海部，且上述第2樹脂為島部。藉由獲得上述相分離

結構，可有效地表現出抗撓剛度與耐貫通性。

【0039】

就進一步提高抗撓剛度及耐貫通性之觀點而言，於上述相分離結構中，島部之直徑之平均較佳為10 nm以上，更佳為15 nm以上，進而較佳為20 nm以上，尤佳為30 nm以上。每1個島部之直徑表示最大直徑，島部之直徑之平均係藉由對複數個島部之直徑(最大直徑)進行平均而求出。

【0040】

為了將上述島部之直徑之平均設為上述範圍內，可列舉將用以形成中間膜之組合物於高剪切條件下機械地混練之方法、向中間膜中添加界面活性劑之方法、及使用具有羥基或羧基等極性官能基之第2樹脂之方法等。

【0041】

就提高隔音性之觀點而言，上述中間膜之玻璃轉移溫度存在於-40°C以上且0°C以下。就進一步提高隔音性之觀點而言，上述中間膜之玻璃轉移溫度較佳為存在於-35°C以上且-2°C以下。若玻璃轉移溫度為上述下限以上及上述上限以下，則可根據時間溫度換算法則而設為與相干頻率(coincidence frequency)對應之溫度，可有效地改善隔音性。又，由於能夠快速地應對，故而高速衝擊之能量吸收性變高，而耐貫通性有效地變高。

【0042】

作為測定上述玻璃轉移溫度之方法，可列舉如下方法：將上述中間膜於室溫 $23\pm 2^{\circ}\text{C}$ 、濕度 $25\pm 5\%$ 之環境下保管12小時後，立即使用IT測量控制公司製造之黏彈性測定裝置「DVA-200」對黏彈性進行測定。較佳為

將中間膜以長8 mm、寬5 mm切出，於剪切模式下且於以3°C/min之升溫速度使溫度自-50°C上升至150°C之條件、及頻率1 Hz、應變0.08%之條件下對玻璃轉移溫度進行測定。

【0043】

就提高隔音性之觀點而言，上述中間膜於-40°C以上且0°C以下之溫度區域中之 $\tan\delta$ 之最大值為0.1以上，更佳為0.11以上，進而較佳為0.15以上，且較佳為1以下，更佳為0.8以下，進而較佳為0.6以下。若 $\tan\delta$ 之最大值為上述下限以上，則能量損耗變多，因此隔音性、耐貫通性、及彎曲匹配性有效地變高。若 $\tan\delta$ 之最大值為上述上限以下，則剪切儲存模數適度地變高，而抗撓剛度及耐貫通性有效地變高。

【0044】

再者，中間膜有以獲得彎曲之層合玻璃等為目的而應用於彎曲玻璃之情況。上述彎曲匹配性意指與彎曲玻璃匹配時之匹配容易性。

【0045】

就進一步提高抗撓剛度之觀點而言，上述中間膜於30°C下之剪切儲存模數較佳為3 MPa以上，更佳為10 MPa以上，較佳為2000 MPa以下，更佳為1000 MPa以下。

【0046】

就進一步提高抗撓剛度之觀點而言，於10°C以上且30°C以下之溫度區域中之80%以上(較佳為82%以上)之溫度區域中，中間膜之剪切儲存模數較佳為3 MPa以上且2000 MPa以下。

【0047】

再者，於上述中間膜為多層之中間膜之情形時，上述剪切儲存模數

意指剪切儲存等效模數。上述剪切儲存等效模數表示將多層體視作單層時之剪切儲存模數。於不在層間滑動之情形時，例如可直接以構成中間膜之層構成之形式利用一般之動態黏彈性測定方法測定剪切儲存模數，藉此測定上述剪切儲存等效模數。

【0048】

上述剪切儲存模數及上述剪切儲存等效模數係以以下方式求出。

【0049】

作為測定上述剪切儲存模數及上述剪切儲存等效模數之方法，可列舉如下方法：將中間膜於室溫 $23\pm 2^{\circ}\text{C}$ 、濕度 $25\pm 5\%$ 之環境下保管12小時後，立即使用IT測量控制公司製造之黏彈性測定裝置「DVA-200」對黏彈性進行測定。較佳為將中間膜以長8 mm、寬5 mm切出，於剪切模式下且於以 $3^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 之升溫速度使溫度自 -50°C 上升至 150°C 之條件、及頻率1 Hz、應變0.08%之條件下對上述剪切儲存模數及上述剪切儲存等效模數進行測定。

【0050】

又，剪切儲存等效模數 $G'*$ 係藉由以下之式(A)求出。

【0051】

$$G' * = (\sum a_i) / (\sum a_i / G' i) \quad \text{式(A)}$$

【0052】

上述式(A)中之 $G' i$ 表示中間膜中之第 i 層之剪切儲存模數， a_i 表示中間膜中之第 i 層之厚度。 $\sum i$ 意指對 i 層之數值之和進行計算。

【0053】

就進一步提高抗撓剛度性之觀點而言，於上述中間膜中，藉由下述

式(X)所求出之凝膠分率較佳為10重量%以上。就進一步提高耐貫通性之觀點而言，於上述中間膜中，藉由下述式(X)所求出之凝膠分率較佳為10重量%以上，且較佳為80重量%以下。於上述凝膠分率為10重量%以上之情形時，抗撓剛度及耐貫通性之提高效果變高。藉由使上述凝膠分率為80重量%以下，耐貫通性大幅變高。就進一步提高抗撓剛度及耐貫通性之觀點而言，上述凝膠分率更佳為30重量%以上。就進一步提高耐貫通性之觀點而言，上述凝膠分率更佳為50重量%以下。

【0054】

凝膠分率(重量%) = $W2/W1 \times 100$. . . 式(X)

W1：將中間膜浸漬於23°C之四氫呋喃前之中間膜之重量

W2：將中間膜浸漬於23°C之四氫呋喃後取出並乾燥後之中間膜之重量

【0055】

上述中間膜可為單層之中間膜，亦可為多層之中間膜。於為單層之中間膜之情形時，抗撓剛度變得進一步良好。於為多層之中間膜之情形時，耐貫通性變得進一步良好。

【0056】

上述中間膜亦可具有2層以上之構造，除第1層以外，亦可具備第2層。上述中間膜較佳為進而具備第2層。於上述中間膜具備上述第2層之情形時，上述第2層配置於上述第1層之第1表面側。

【0057】

上述中間膜亦可具有3層以上之構造，除第1層及第2層以外，亦可具備第3層。上述中間膜較佳為進而具備第3層。於上述中間膜具備上述第2

層及上述第3層之情形時，上述第3層配置於上述第1層之與上述第1表面相反之第2表面側。

【0058】

上述第2層之與上述第1層側相反之表面較佳為供層合玻璃構件或玻璃板積層之表面。積層於上述第2層之玻璃板之厚度較佳為1.6 mm以下，更佳為1.3 mm以下。上述第1層之與第1表面(上述第2層側之表面)相反之第2表面亦可為供層合玻璃構件或玻璃板積層之表面。積層於上述第1層之玻璃板之厚度較佳為1.6 mm以下，更佳為1.3 mm以下。上述第3層之與上述第1層側相反之表面較佳為供層合玻璃構件或玻璃板積層之表面。積層於上述第3層之玻璃板之厚度較佳為1.6 mm以下，更佳為1.3 mm以下。

【0059】

上述中間膜可良好地用於配置於第1玻璃板與第2玻璃板之間而獲得層合玻璃。由於可因中間膜而充分地提高抗撓剛度，故而上述第1玻璃板之厚度與上述第2玻璃板之厚度之合計較佳為3.5 mm以下，更佳為3 mm以下。上述中間膜可良好地用於配置於第1玻璃板與第2玻璃板之間而獲得層合玻璃。由於可因中間膜而充分地提高抗撓剛度，故而上述中間膜可良好地用於使用厚度為1.6 mm以下(較佳為1.3 mm以下)之第1玻璃板，配置於該第1玻璃板與第2玻璃板之間而獲得層合玻璃。上述中間膜可更良好地用於使用厚度為1.6 mm以下(較佳為1.3 mm以下)之第1玻璃板與厚度為1.6 mm以下(較佳為1.3 mm以下)之第2玻璃板，配置於上述第1玻璃板與上述第2玻璃板之間而獲得層合玻璃。於該情形時亦可因中間膜而充分地提高抗撓剛度。

【0060】

以下，一面參照圖式一面對本發明之具體實施形態進行說明。

【0061】

圖1係模式性地表示本發明之第1實施形態之層合玻璃用中間膜之剖視圖。

【0062】

圖1所示之中間膜11係具有2層以上之構造之多層中間膜。中間膜11係用於獲得層合玻璃。中間膜11係層合玻璃用中間膜。中間膜11具備第1層1、第2層2、及第3層3。於第1層1之第1表面1a配置並積層有第2層2。於第1層1之與第1表面1a相反之第2表面1b配置並積層有第3層3。第1層1為中間層。第2層2及第3層3分別為保護層，於本實施形態中為表面層。第1層1係配置並夾入於第2層2與第3層3之間。因此，中間膜11具有依序積層第2層2、第1層1、及第3層3所得之多層構造(第2層2/第1層1/第3層3)。

【0063】

再者，亦可於第2層2與第1層1之間、及第1層1與第3層3之間分別配置有其他層。第2層2與第1層1、及第1層1與第3層3較佳為分別直接積層。作為其他層，可列舉含有聚對苯二甲酸乙二酯等之層。

【0064】

圖2係模式性地表示本發明之第2實施形態之層合玻璃用中間膜之剖視圖。

【0065】

圖2所示之中間膜11A係具有1層構造之單層中間膜。中間膜11A係第1層。中間膜11A係用於獲得層合玻璃。中間膜11A係層合玻璃用中間膜。

【0066】

以下，對構成本發明之中間膜之上述第1層、上述第2層及上述第3層之詳細內容、以及上述第1層、上述第2層及上述第3層所含有之各成分的詳細內容進行說明。

【0067】

(樹脂)

中間膜含有聚乙烯醇縮醛樹脂、及聚乙烯醇縮醛樹脂以外之第2樹脂。上述第1層、上述第2層及上述第3層較佳為分別含有聚乙烯醇縮醛樹脂。上述第1層、上述第2層及上述第3層較佳為分別含有聚乙烯醇縮醛樹脂以外之第2樹脂。上述聚乙烯醇縮醛樹脂可僅使用1種，亦可併用2種以上。上述第2樹脂可僅使用1種，亦可併用2種以上。

【0068】

上述聚乙烯醇縮醛樹脂與上述第2樹脂之合計100重量%中，上述聚乙烯醇縮醛樹脂之含量較佳為20重量%以上，更佳為25重量%以上，進而較佳為30重量%以上，尤佳為35重量%以上，且較佳為未達100重量%。若上述聚乙烯醇縮醛樹脂之含量為上述下限以上，則抗撓剛度有效地變高。上述聚乙烯醇縮醛樹脂與上述第2樹脂之合計100重量%中，上述聚乙烯醇縮醛樹脂之含量可為90重量%以下，亦可為80重量%以下，亦可為75重量%以下，亦可為70重量%以下，亦可為65重量%以下。

【0069】

就有效地提高樹脂成分與塑化劑之親和性，有效地提高耐貫通性之觀點而言，上述聚乙烯醇縮醛樹脂較佳為聚乙烯醇縮乙醛樹脂、聚乙烯醇縮丁醛樹脂、聚乙烯醇縮苯甲醛樹脂或聚乙烯醇縮對異丙基苯甲醛樹脂。

就進一步提高抗撓剛度之觀點而言，上述聚乙烯醇縮醛樹脂較佳為聚乙烯醇縮乙醛樹脂、聚乙烯醇縮苯甲醛樹脂或聚乙烯醇縮對異丙基苯甲醛樹脂。本說明書中，聚乙烯醇縮醛樹脂包括經縮乙醛化之樹脂、經縮苯甲醛化之樹脂及經縮對異丙基苯甲醛化之樹脂。

【0070】

就有效地提高抗撓剛度及隔音性之觀點而言，中間膜含有聚乙烯醇縮醛樹脂以外之第2樹脂。就有效地提高抗撓剛度及隔音性之觀點而言，上述第1層、上述第2層及上述第3層較佳為分別含有聚乙烯醇縮醛樹脂以外之第2樹脂。作為上述第2樹脂，可列舉：熱硬化性樹脂及熱塑性樹脂。上述中間膜較佳為含有熱塑性樹脂(聚乙烯醇縮醛樹脂以外之第2熱塑性樹脂)作為上述第2樹脂。有時將聚乙烯醇縮醛樹脂以外之熱塑性樹脂與聚乙烯醇縮醛樹脂進行區分而稱為第2熱塑性樹脂。上述第2樹脂可僅使用1種，亦可併用2種以上。就有效地提高抗撓剛度及隔音性之觀點而言，中間膜較佳為含有不與聚乙烯醇縮醛樹脂相容之樹脂作為上述第2樹脂。就有效地提高抗撓剛度及隔音性之觀點而言，中間膜較佳為含有聚烯烴樹脂、丙烯酸系聚合物、胺基甲酸酯聚合物、聚矽氧聚合物、橡膠、或乙酸乙烯酯聚合物。就有效地提高抗撓剛度及隔音性之觀點而言，中間膜更佳為含有容易獲得性能之平衡性之丙烯酸系聚合物。

【0071】

上述丙烯酸系聚合物較佳為含有(甲基)丙烯酸酯之聚合性成分之聚合物。上述丙烯酸系聚合物較佳為聚(甲基)丙烯酸酯。

【0072】

上述聚(甲基)丙烯酸酯並無特別限定。作為上述聚(甲基)丙烯酸酯，

例如可列舉：聚(甲基)丙烯酸甲酯、聚(甲基)丙烯酸乙酯、聚(甲基)丙烯酸正丙酯、聚(甲基)丙烯酸異丙酯、聚(甲基)丙烯酸正丁酯、聚(甲基)丙烯酸異丁酯、聚(甲基)丙烯酸第三丁酯、聚(甲基)丙烯酸2-乙基己酯、聚(甲基)丙烯酸2-羥基乙酯、聚(甲基)丙烯酸2-羥基丙酯、聚(甲基)丙烯酸4-羥基丁酯、聚(甲基)丙烯酸縮水甘油酯、聚(甲基)丙烯酸辛酯、聚(甲基)丙烯酸丙酯、聚(甲基)丙烯酸2-乙基辛酯、聚(甲基)丙烯酸壬酯、聚(甲基)丙烯酸異壬酯、聚(甲基)丙烯酸癸酯、聚(甲基)丙烯酸異癸酯、聚(甲基)丙烯酸月桂酯、聚(甲基)丙烯酸異十四烷基酯、聚(甲基)丙烯酸環己酯、聚(甲基)丙烯酸異苈酯、及聚(甲基)丙烯酸苈酯等。又，作為具有極性基之(甲基)丙烯酸及(甲基)丙烯酸酯，可列舉：(甲基)丙烯酸、(甲基)丙烯酸2-羥基乙酯、(甲基)丙烯酸4-羥基丁酯、及(甲基)丙烯酸縮水甘油酯等。就於動態黏彈性圖譜中可容易地將顯示出 $\tan\delta$ 之最大值之溫度控制為適度範圍內之方面而言，較佳為聚丙烯酸酯，更佳為聚丙烯酸乙酯、聚丙烯酸正丁酯、聚丙烯酸2-乙基己酯或聚丙烯酸辛酯。藉由使用該等較佳之聚(甲基)丙烯酸酯，中間膜之生產性及中間膜之特性之平衡性進一步變良好。上述聚(甲基)丙烯酸酯可僅使用1種，亦可併用2種以上。

【0073】

上述聚乙炔醇縮醛樹脂與上述第2樹脂之合計100重量%中，聚乙炔醇縮醛樹脂以外之第2樹脂之含量較佳為20重量%以上，更佳為25重量%以上，進而較佳為30重量%以上，尤佳為35重量%以上，且較佳為未達100重量%。若上述第2樹脂之含量為上述下限以上，則抗撓剛度、隔音性及耐貫通性有效地變高。上述聚乙炔醇縮醛樹脂與上述第2樹脂之合計100重量%中，上述第2樹脂之含量較佳為90重量%以下，更佳為80重量%

以下，進而較佳為75重量%以下，尤佳為70重量%以下，最佳為65重量%以下。若上述第2樹脂之含量為上述上限以下，則抗撓剛度、隔音性及耐貫通性有效地變高。

【0074】

上述聚乙烯醇縮醛樹脂與上述丙烯酸系聚合物之合計100重量%中，丙烯酸系聚合物之含量較佳為20重量%以上，更佳為25重量%以上，進而較佳為30重量%以上，尤佳為35重量%以上，且較佳為未達100重量%。若上述丙烯酸系聚合物之含量為上述下限以上，則抗撓剛度、隔音性及耐貫通性有效地變高。上述聚乙烯醇縮醛樹脂與上述第2樹脂之合計100重量%中，上述丙烯酸系聚合物之含量較佳為90重量%以下，更佳為80重量%以下，進而較佳為75重量%以下，尤佳為70重量%以下，最佳為65重量%以下。若上述丙烯酸系聚合物之含量為上述上限以下，則抗撓剛度、隔音性及耐貫通性有效地變高。

【0075】

較佳為上述第2樹脂具有交聯結構，或者上述聚乙烯醇縮醛樹脂與上述第2樹脂交聯。上述中間膜亦可以上述聚乙烯醇縮醛樹脂與上述第2樹脂交聯所得之交聯物之形式含有上述聚乙烯醇縮醛樹脂與上述第2樹脂。上述熱塑性樹脂亦可具有交聯結構。藉由上述交聯結構，可控制剪切儲存模數，而可製作兼具優異之可撓性與較高強度之中間膜。

【0076】

作為使樹脂交聯之方法，可列舉以下之方法等。預先於樹脂之聚合物結構中導入相互反應之官能基而形成交聯之方法。使用具有2個以上與存在於樹脂之聚合物結構中之官能基進行反應之官能基的交聯劑進行交聯

之方法。使用過氧化物等具有奪氫能力之自由基產生劑而使聚合物進行交聯之方法。藉由電子束照射進行交聯之方法。就容易控制剪切儲存模數，中間膜之生產性變高之方面而言，較佳為預先於樹脂之聚合物結構中導入相互反應之官能基而形成交聯之方法。

【0077】

再者，於中間膜含有上述聚乙烯醇縮醛樹脂與上述第2樹脂之交聯物之情形時，上述聚乙烯醇縮醛樹脂之玻璃轉移溫度表示源自上述交聯物中之上述聚乙烯醇縮醛樹脂之玻璃轉移溫度，上述第2樹脂之玻璃轉移溫度表示源自上述交聯物中之上述第2樹脂之玻璃轉移溫度。

【0078】

上述第1層(包括單層之中間膜)較佳為含有熱塑性樹脂(以下，有時記載為熱塑性樹脂(1))。上述第1層較佳為含有聚乙烯醇縮醛樹脂(以下，有時記載為聚乙烯醇縮醛樹脂(1))作為熱塑性樹脂(1)。於僅有上述第1層之單層中間膜之情形時，中間膜含有聚乙烯醇縮醛樹脂(1)。上述第2層較佳為含有熱塑性樹脂(以下，有時記載為熱塑性樹脂(2))。上述第2層較佳為含有聚乙烯醇縮醛樹脂(以下，有時記載為聚乙烯醇縮醛樹脂(2))作為熱塑性樹脂(2)。上述第3層較佳為含有熱塑性樹脂(以下，有時記載為熱塑性樹脂(3))。上述第3層較佳為含有聚乙烯醇縮醛樹脂(以下，有時記載為聚乙烯醇縮醛樹脂(3))作為熱塑性樹脂(3)。上述聚乙烯醇縮醛樹脂(1)、上述聚乙烯醇縮醛樹脂(2)、及上述聚乙烯醇縮醛樹脂(3)可相同亦可不同。上述熱塑性樹脂(1)、上述熱塑性樹脂(2)、及上述熱塑性樹脂(3)可相同亦可不同。上述聚乙烯醇縮醛樹脂(1)、上述聚乙烯醇縮醛樹脂(2)及上述聚乙烯醇縮醛樹脂(3)可分別僅使用1種，亦可併用2種以上。上述熱塑性樹

脂(1)、上述熱塑性樹脂(2)及上述熱塑性樹脂(3)可分別僅使用1種，亦可併用2種以上。

【0079】

作為上述熱塑性樹脂，可列舉：聚乙烯醇縮醛樹脂、聚丙烯酸系樹脂、乙烯-乙酸乙烯酯共聚物樹脂、乙烯-丙烯酸共聚物樹脂、聚胺基甲酸酯樹脂及聚乙烯醇樹脂等。亦可使用該等以外之熱塑性樹脂。

【0080】

上述聚乙烯醇縮醛樹脂較佳為聚乙烯醇之縮醛化物。上述聚乙烯醇例如可藉由使聚乙酸乙烯酯皂化而獲得。上述聚乙烯醇之皂化度一般為70～99.9莫耳%。

【0081】

上述聚乙烯醇(PVA)之平均聚合度較佳為200以上，更佳為500以上，進一步較佳為1500以上，進而較佳為1600以上，尤佳為2600以上，最佳為2700以上，且較佳為5000以下，更佳為4000以下，進而較佳為3500以下。若上述平均聚合度為上述下限以上，則層合玻璃之耐貫通性與抗撓剛度進一步變高。若上述平均聚合度為上述上限以下，則中間膜之成形變得容易。

【0082】

上述聚乙烯醇之平均聚合度係藉由依據JIS K6726「聚乙烯醇試驗方法」之方法而求出。

【0083】

上述聚乙烯醇縮醛樹脂中之縮醛基之碳數較佳為2～10，更佳為2～5，進而較佳為2、3或4。又，上述聚乙烯醇縮醛樹脂中之縮醛基之碳數

較佳為2或4，於該情形時，聚乙烯醇縮醛樹脂之生產有效率。

【0084】

作為醛，一般可良好地使用碳數為1~10之醛。作為上述碳數為1~10之醛，例如可列舉：甲醛、乙醛、丙醛、正丁醛、異丁醛、正戊醛、2-乙基丁醛、正己醛、正辛醛、正壬醛、正癸醛、對異丙基苯甲醛、及苯甲醛等。較佳為乙醛、丙醛、正丁醛、異丁醛、正己醛或正戊醛，更佳為乙醛、丙醛、正丁醛、異丁醛或正戊醛。進而較佳為乙醛、正丁醛或正戊醛。上述醛可僅使用1種，亦可併用2種以上。

【0085】

上述聚乙烯醇縮醛樹脂(1)、聚乙烯醇縮醛樹脂(2)、及聚乙烯醇縮醛樹脂(3)之羥基之含有率(羥基量)較佳為20莫耳%以上，更佳為22莫耳%以上，更佳為24莫耳%以上，進一步較佳為26莫耳%以上。上述聚乙烯醇縮醛樹脂(1)、聚乙烯醇縮醛樹脂(2)、及聚乙烯醇縮醛樹脂(3)之羥基之含有率(羥基量)進而較佳為28莫耳%以上，尤佳為30莫耳%以上。上述聚乙烯醇縮醛樹脂(1)、聚乙烯醇縮醛樹脂(2)、及聚乙烯醇縮醛樹脂(3)之羥基之含有率(羥基量)較佳為37莫耳%以下，更佳為36.5莫耳%以下，進而較佳為36莫耳%以下。若上述羥基之含有率為上述下限以上，則抗撓剛度進一步變高，中間膜之接著力進一步變高。又，若上述羥基之含有率為上述上限以下，則中間膜之柔軟性變高，中間膜之處理變容易。

【0086】

上述聚乙烯醇縮醛樹脂之羥基之含有率係以百分率表示鍵結有羥基之伸乙基量除以主鏈之總伸乙基量而求出之莫耳分率的值。上述鍵結有羥基之伸乙基量例如可依據JIS K6728「聚乙烯醇縮丁醛試驗方法」進行測

定。

【0087】

上述聚乙烯醇縮醛樹脂(1)之乙醯化度(乙醯基量)較佳為0.01莫耳%以上，更佳為0.1莫耳%以上，進一步較佳為7莫耳%以上，進而較佳為9莫耳%以上，且較佳為30莫耳%以下，更佳為25莫耳%以下，進而較佳為24莫耳%以下。若上述乙醯化度為上述下限以上，則聚乙烯醇縮醛樹脂與塑化劑或其他熱塑性樹脂之相溶性變高，隔音性或耐貫通性進一步優異。若上述乙醯化度為上述上限以下，則中間膜及層合玻璃之耐濕性變高。尤其是若上述聚乙烯醇縮醛樹脂(1)之乙醯化度為0.1莫耳%以上且25莫耳%以下，則耐貫通性進一步優異。

【0088】

上述聚乙烯醇縮醛樹脂(2)及上述聚乙烯醇縮醛樹脂(3)之各乙醯化度較佳為0.01莫耳%以上，更佳為0.5莫耳%以上，且較佳為10莫耳%以下，更佳為2莫耳%以下。若上述乙醯化度為上述下限以上，則聚乙烯醇縮醛樹脂與塑化劑之相溶性變高。若上述乙醯化度為上述上限以下，則中間膜及層合玻璃之耐濕性變高。

【0089】

上述乙醯化度係以百分率表示鍵結有乙醯基之伸乙基量除以主鏈之總伸乙基量而求出之莫耳分率的值。上述鍵結有乙醯基之伸乙基量例如可依據JIS K6728「聚乙烯醇縮丁醛試驗方法」進行測定。

【0090】

上述聚乙烯醇縮醛樹脂(1)之縮醛化度(於聚乙烯醇縮丁醛樹脂之情形時為縮丁醛化度)較佳為47莫耳%以上，更佳為60莫耳%以上，進而較佳

為68莫耳%以上，且較佳為85莫耳%以下，更佳為80莫耳%以下，進而較佳為75莫耳%以下。若上述縮醛化度為上述下限以上，則聚乙烯醇縮醛樹脂與塑化劑之相溶性變高。若上述縮醛化度為上述上限以下，則用於製造聚乙烯醇縮醛樹脂所需要之反應時間變短。

【0091】

上述聚乙烯醇縮醛樹脂(2)及上述聚乙烯醇縮醛樹脂(3)之各縮醛化度(於聚乙烯醇縮丁醛樹脂之情形時為縮丁醛化度)較佳為55莫耳%以上，更佳為60莫耳%以上，且較佳為75莫耳%以下，更佳為71莫耳%以下。若上述縮醛化度為上述下限以上，則聚乙烯醇縮醛樹脂與塑化劑之相溶性變高。若上述縮醛化度為上述上限以下，則用於製造聚乙烯醇縮醛樹脂所需要之反應時間變短。

【0092】

上述縮醛化度係以如下方式求出。首先，求出自主鏈之總伸乙基量減去鍵結有羥基之伸乙基量、及鍵結有乙醯基之伸乙基量所獲得之值。將所獲得之值除以主鏈之總伸乙基量而求出莫耳分率。以百分率表示該莫耳分率之值為縮醛化度。

【0093】

再者，上述羥基之含有率(羥基量)、縮醛化度(縮丁醛化度)及乙醯化度較佳為根據藉由依據JIS K6728「聚乙烯醇縮丁醛試驗方法」之方法所測得之結果算出。但是，亦可使用基於ASTM D1396-92之測定。於聚乙烯醇縮醛樹脂為聚乙烯醇縮丁醛樹脂之情形時，上述羥基之含有率(羥基量)、上述縮醛化度(縮丁醛化度)及上述乙醯化度可根據藉由依據JIS K6728「聚乙烯醇縮丁醛試驗方法」之方法所測得之結果算出。

【0094】

(塑化劑)

上述中間膜較佳為含有塑化劑。上述第1層(包括單層之中間膜)較佳為含有塑化劑(以下，有時記載為塑化劑(1))。上述第2層較佳為含有塑化劑(以下，有時記載為塑化劑(2))。上述第3層較佳為含有塑化劑(以下，有時記載為塑化劑(3))。藉由使用塑化劑，且藉由併用聚乙烯醇縮醛樹脂與塑化劑，耐貫通性進一步優異，含有聚乙烯醇縮醛樹脂與塑化劑之層對於層合玻璃構件或其他層之接著力適度地變高。上述塑化劑並無特別限定。上述塑化劑(1)與上述塑化劑(2)與上述塑化劑(3)可相同亦可不同。上述塑化劑(1)、上述塑化劑(2)及上述塑化劑(3)可分別僅使用1種，亦可併用2種以上。

【0095】

作為上述塑化劑，可列舉：一元有機酸酯及多元有機酸酯等有機酯塑化劑、以及有機磷酸塑化劑及有機亞磷酸塑化劑等有機磷酸塑化劑等。較佳為有機酯塑化劑。上述塑化劑較佳為液狀塑化劑。

【0096】

作為上述一元有機酸酯，可列舉：藉由二醇與一元有機酸之反應而獲得之二醇酯等。作為上述二醇，可列舉：三乙二醇、四乙二醇及三丙二醇等。作為上述一元有機酸，可列舉：丁酸、異丁酸、己酸、2-乙基丁酸、庚酸、正辛酸、2-乙基己酸、正壬酸及癸酸等。

【0097】

作為上述多元有機酸酯，可列舉：多元有機酸與具有碳數4~8之直鏈或支鏈結構之醇之酯化合物等。作為上述多元有機酸，可列舉：己二

酸、癸二酸及壬二酸等。

【0098】

作為上述有機酯塑化劑，可列舉：三乙二醇二(2-乙基丙酸酯)、三乙二醇二(2-乙基丁酸酯)、三乙二醇二(2-乙基己酸酯)、三乙二醇二辛酸酯、三乙二醇二正辛酸酯、三乙二醇二正庚酸酯、四乙二醇二正庚酸酯、癸二酸二丁酯、癸二酸二辛酯、二丁基卡必醇己二酸酯、乙二醇二(2-乙基丁酸酯)、1,3-丙二醇二(2-乙基丁酸酯)、1,4-丁二醇二(2-乙基丁酸酯)、二乙二醇二(2-乙基丁酸酯)、二乙二醇二(2-乙基己酸酯)、二丙二醇二(2-乙基丁酸酯)、三乙二醇二(2-乙基戊酸酯)、四乙二醇二(2-乙基丁酸酯)、二乙二醇二辛酸酯、二乙二醇二苯甲酸酯、二丙二醇二苯甲酸酯、馬來酸二丁酯、己二酸雙(2-丁氧基乙酯)、己二酸二丁酯、己二酸二異丁酯、己二酸2,2-丁氧基乙氧基乙酯、苯甲酸二醇酯、己二酸1,3-丁二醇聚酯、己二酸二己酯、己二酸二辛酯、己二酸己酯環己酯、己二酸庚酯與己二酸壬酯之混合物、己二酸二異壬酯、己二酸二異癸酯、己二酸庚酯壬酯、檸檬酸三丁酯、乙醯檸檬酸三丁酯、碳酸二乙酯、癸二酸二丁酯、油改性癸二酸醇酸樹脂、及磷酸酯與己二酸酯之混合物等。亦可使用該等以外之有機酯塑化劑。亦可使用上述之己二酸酯以外之其他己二酸酯。

【0099】

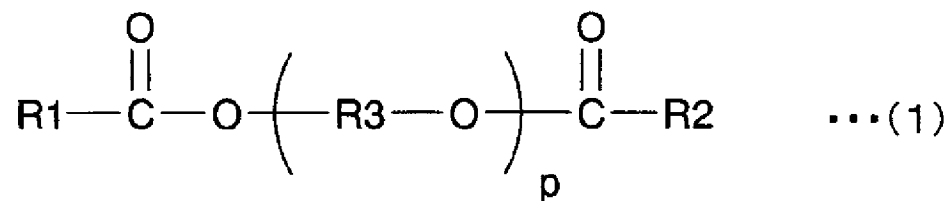
作為上述有機磷酸塑化劑，可列舉：磷酸三丁氧基乙酯、磷酸異癸酯苯酯、磷酸三甲酚酯及磷酸三異丙酯等。

【0100】

上述塑化劑較佳為下述式(1)所表示之二酯塑化劑。

【0101】

[化1]

**【0102】**

上述式(1)中，R1及R2分別表示碳數2~10之有機基，R3表示伸乙基、伸異丙基或伸正丙基，p表示3~10之整數。上述式(1)中之R1及R2分別較佳為碳數5~10之有機基，更佳為碳數6~10之有機基。

【0103】

上述塑化劑較佳為含有三乙二醇二(2-乙基己酸酯)(3GO)、三乙二醇二(2-乙基丁酸酯)(3GH)或三乙二醇二(2-乙基丙酸酯)。上述塑化劑更佳為含有三乙二醇二(2-乙基己酸酯)或三乙二醇二(2-乙基丁酸酯)，進而較佳為含有三乙二醇二(2-乙基己酸酯)。

【0104】

就有效地提高耐貫通性之觀點而言，於上述中間膜中，相對於上述聚乙烯醇縮醛樹脂100重量份，上述塑化劑之含量為3重量份以上且未達20重量份。就進一步提高耐貫通性之觀點而言，於上述中間膜中，相對於上述聚乙烯醇縮醛樹脂100重量份，上述塑化劑之含量較佳為5重量份以上，且較佳為18重量份以下。若上述塑化劑為上述下限以上及未達上述上限，則可賦予低溫下之柔軟性，因此，可依據時間溫度換算法則製成相當於低溫之高速區域中之衝擊吸收性優異之中間膜。

【0105】

於上述第2層中，將相對於上述熱塑性樹脂(2)100重量份(於熱塑性樹脂(2)為聚乙烯醇縮醛樹脂(2)之情形時，為聚乙烯醇縮醛樹脂(2)100重量

份)之上述塑化劑(2)之含量設為含量(2)。於上述第3層中，將相對於上述熱塑性樹脂(3)100重量份(於熱塑性樹脂(3)為聚乙烯醇縮醛樹脂(3)之情形時，為聚乙烯醇縮醛樹脂(3)100重量份)之上述塑化劑(3)之含量設為含量(3)。上述含量(2)及上述含量(3)分別較佳為10重量份以上，更佳為15重量份以上，且較佳為40重量份以下，更佳為35重量份以下，進而較佳為32重量份以下，尤佳為30重量份以下。若上述含量(2)及上述含量(3)為上述下限以上，則中間膜之柔軟性變高，中間膜之處理變容易。若上述含量(2)及上述含量(3)為上述上限以下，則抗撓剛度進一步變高。

【0106】

於多層之中間膜之情形時，於上述第1層中，將相對於上述熱塑性樹脂(1)100重量份(於熱塑性樹脂(1)為聚乙烯醇縮醛樹脂(1)之情形時，為聚乙烯醇縮醛樹脂(1)100重量份)之上述塑化劑(1)之含量設為含量(1)。上述含量(1)較佳為1重量份以上，更佳為2重量份以上，進一步較佳為3重量份以上，進而較佳為5重量份以上，且較佳為90重量份以下，更佳為85重量份以下，進而較佳為80重量份以下。若上述含量(1)為上述下限以上，則中間膜之柔軟性變高，中間膜之處理變容易。若上述含量(1)為上述上限以下，則層合玻璃之耐貫通性進一步變高。上述含量(1)可為50重量份以上，亦可為55重量份以上，亦可為60重量份以上。上述含量(1)可為30重量份以下，亦可為20重量份以下，亦可為10重量份以下。

【0107】

(隔熱性物質)

上述中間膜較佳為含有隔熱性物質。上述第1層較佳為含有隔熱性物質。上述第2層較佳為含有隔熱性物質。上述第3層較佳為含有隔熱性物

質。上述隔熱性物質可僅使用1種，亦可併用2種以上。

【0108】

上述隔熱性物質較佳為含有酞菁化合物、萘酚菁化合物及蔥酞菁化合物中之至少1種成分X，或者含有隔熱粒子。於該情形時，亦可含有上述成分X與上述隔熱粒子兩者。

【0109】

成分X：

上述中間膜較佳為含有酞菁化合物、萘酚菁化合物及蔥酞菁化合物中之至少1種成分X。上述第1層較佳為含有上述成分X。上述第2層較佳為含有上述成分X。上述第3層較佳為含有上述成分X。上述成分X為隔熱性物質。上述成分X可僅使用1種，亦可併用2種以上。

【0110】

上述成分X並無特別限定。作為成分X，可使用先前公知之酞菁化合物、萘酚菁化合物及蔥酞菁化合物。

【0111】

就進一步提高中間膜及層合玻璃之隔熱性之觀點而言，上述成分X較佳為選自由酞菁、酞菁之衍生物、萘酚菁及萘酚菁之衍生物所組成之群中之至少1種，更佳為酞菁及酞菁之衍生物中之至少1種。

【0112】

就有效地提高隔熱性，且持續長期以進一步高等級維持可見光透過率之觀點而言，上述成分X較佳為含有鈳原子或銅原子。上述成分X較佳為含有鈳原子，亦較佳為含有銅原子。上述成分X更佳為含有鈳原子或銅原子之酞菁及含有鈳原子或銅原子之酞菁之衍生物中之至少1種。就更進

一步提高中間膜及層合玻璃之隔熱性之觀點而言，上述成分X較佳為具有於鈳原子上鍵結有氧原子之結構單元。

【0113】

含有上述成分X之層(第1層、第2層或第3層)100重量%中，上述成分X之含量較佳為0.001重量%以上，更佳為0.005重量%以上，進而較佳為0.01重量%以上，尤佳為0.02重量%以上。含有上述成分X之層(第1層、第2層或第3層)100重量%中，上述成分X之含量較佳為0.2重量%以下，更佳為0.1重量%以下，進而較佳為0.05重量%以下，尤佳為0.04重量%以下。若上述成分X之含量為上述下限以上及上述上限以下，則隔熱性充分地變高，且可見光透過率充分地變高。例如，可使可見光透過率為70%以上。

【0114】

隔熱粒子：

上述中間膜較佳為含有隔熱粒子。上述第1層(包括單層之中間膜)較佳為含有上述隔熱粒子。上述第2層較佳為含有上述隔熱粒子。上述第3層較佳為含有上述隔熱粒子。上述隔熱粒子為隔熱性物質。藉由使用隔熱粒子，可有效地遮斷紅外線(熱線)。上述隔熱粒子可僅使用1種，亦可併用2種以上。

【0115】

就進一步提高層合玻璃之隔熱性之觀點而言，上述隔熱粒子更佳為金屬氧化物粒子。上述隔熱粒子較佳為藉由金屬之氧化物所形成之粒子(金屬氧化物粒子)。

【0116】

較可見光長之波長780 nm以上之紅外線與紫外線相比，能量較小。然而，紅外線之熱作用較大，若紅外線被物質吸收，則作為熱釋出。因此，紅外線一般稱為熱線。藉由使用上述隔熱粒子，可有效地遮斷紅外線(熱線)。再者，所謂隔熱粒子，意指可吸收紅外線之粒子。

【0117】

作為上述隔熱粒子之具體例，可列舉：摻鋁氧化錫粒子、摻銦氧化錫粒子、摻銻氧化錫粒子(ATO粒子)、摻鎵氧化鋅粒子(GZO粒子)、摻銦氧化鋅粒子(IZO粒子)、摻鋁氧化鋅粒子(AZO粒子)、摻銻氧化鈦粒子、摻鈉氧化鎢粒子、摻銇氧化鎢粒子、摻鉍氧化鎢粒子、摻銻氧化鎢粒子、摻錫氧化銦粒子(ITO粒子)、摻錫氧化鋅粒子、摻矽氧化鋅粒子等金屬氧化物粒子、或六硼化鑷(LaB₆)粒子等。亦可使用該等以外之隔熱粒子。就熱線之遮蔽功能較高而言，較佳為金屬氧化物粒子，更佳為ATO粒子、GZO粒子、IZO粒子、ITO粒子或氧化鎢粒子，尤佳為ITO粒子或氧化鎢粒子。尤其是就熱線之遮蔽功能較高，且容易獲取而言，較佳為摻錫氧化銦粒子(ITO粒子)，亦較佳為氧化鎢粒子。

【0118】

就進一步提高中間膜及層合玻璃之隔熱性之觀點而言，氧化鎢粒子較佳為摻金屬氧化鎢粒子。上述「氧化鎢粒子」包括摻金屬氧化鎢粒子。作為上述摻金屬氧化鎢粒子，具體而言，可列舉：摻鈉氧化鎢粒子、摻銇氧化鎢粒子、摻鉍氧化鎢粒子及摻銻氧化鎢粒子等。

【0119】

就進一步提高中間膜及層合玻璃之隔熱性之觀點而言，尤佳為摻銇氧化鎢粒子。就更進一步提高中間膜及層合玻璃之隔熱性之觀點而言，該

摻銻氧化鎢粒子較佳為式： $Cs_{0.33}WO_3$ 所表示之氧化鎢粒子。

【0120】

上述隔熱粒子之平均粒徑較佳為0.01 μm 以上，更佳為0.02 μm 以上，且較佳為0.1 μm 以下，更佳為0.05 μm 以下。若平均粒徑為上述下限以上，則熱線之遮蔽性充分地變高。若平均粒徑為上述上限以下，則隔熱粒子之分散性變高。

【0121】

上述「平均粒徑」係表示體積平均粒徑。平均粒徑可使用粒度分佈測定裝置(日機裝公司製造之「UPA-EX150」)等進行測定。

【0122】

含有上述隔熱粒子之層(第1層、第2層或第3層)100重量%中，上述隔熱粒子之含量較佳為0.01重量%以上，更佳為0.1重量%以上，進而較佳為1重量%以上，尤佳為1.5重量%以上。含有上述隔熱粒子之層(第1層、第2層或第3層)100重量%中，上述隔熱粒子之含量較佳為6重量%以下，更佳為5.5重量%以下，進而較佳為4重量%以下，尤佳為3.5重量%以下，最佳為3重量%以下。若上述隔熱粒子之含量為上述下限以上及上述上限以下，則隔熱性充分地變高，且可見光透過率充分地變高。

【0123】

(金屬鹽)

上述中間膜較佳為含有鹼金屬鹽、鹼土金屬鹽及鎂鹽中之至少1種金屬鹽(以下，有時記載為金屬鹽M)。上述第1層較佳為含有上述金屬鹽M。上述第2層較佳為含有上述金屬鹽M。上述第3層較佳為含有上述金屬鹽M。藉由使用上述金屬鹽M，而變得容易控制中間膜與層合玻璃構件之接

著性或中間膜中之各層間之接著性。上述金屬鹽M可僅使用1種，亦可併用2種以上。

【0124】

上述金屬鹽M較佳為含有選自由Li、Na、K、Rb、Cs、Mg、Ca、Sr及Ba所組成之群中之至少1種金屬。中間膜中所含有之金屬鹽較佳為含有K及Mg中之至少1種金屬。

【0125】

又，上述金屬鹽M更佳為碳數2~16之有機酸之鹼金屬鹽、碳數2~16之有機酸之鹼土金屬鹽或碳數2~16之有機酸之鎂鹽，進而較佳為碳數2~16之羧酸鎂鹽或碳數2~16之羧酸鉀鹽。

【0126】

作為上述碳數2~16之羧酸鎂鹽及上述碳數2~16之羧酸鉀鹽，可列舉：乙酸鎂、乙酸鉀、丙酸鎂、丙酸鉀、2-乙基丁酸鎂、2-乙基丁酸鉀、2-乙基己酸鎂及2-乙基己酸鉀等。

【0127】

含有上述金屬鹽M之層(第1層、第2層或第3層)中之Mg及K之含量之合計較佳為5 ppm以上，更佳為10 ppm以上，進而較佳為20 ppm以上，且較佳為300 ppm以下，更佳為250 ppm以下，進而較佳為200 ppm以下。若Mg及K之含量之合計為上述下限以上及上述上限以下，則可進一步良好地控制中間膜與層合玻璃構件之接著性或中間膜中之各層間之接著性。

【0128】

(紫外線遮蔽劑)

上述中間膜較佳為含有紫外線遮蔽劑。上述第1層較佳為含有紫外線遮蔽劑。上述第2層較佳為含有紫外線遮蔽劑。上述第3層較佳為含有紫外線遮蔽劑。藉由使用紫外線遮蔽劑，即便長期使用中間膜及層合玻璃，可見光透過率亦難以進一步降低。上述紫外線遮蔽劑可僅使用1種，亦可併用2種以上。

【0129】

上述紫外線遮蔽劑包括紫外線吸收劑。上述紫外線遮蔽劑較佳為紫外線吸收劑。

【0130】

作為上述紫外線遮蔽劑，例如可列舉：含有金屬原子之紫外線遮蔽劑、含有金屬氧化物之紫外線遮蔽劑、具有苯并三唑結構之紫外線遮蔽劑(苯并三唑化合物)、具有二苯甲酮結構之紫外線遮蔽劑(二苯甲酮化合物)、具有三吡結構之紫外線遮蔽劑(三吡化合物)、具有丙二酸酯結構之紫外線遮蔽劑(丙二酸酯化合物)、具有草醯替苯胺結構之紫外線遮蔽劑(草醯替苯胺化合物)及具有苯甲酸酯結構之紫外線遮蔽劑(苯甲酸酯化合物)等。

【0131】

作為上述含有金屬原子之紫外線遮蔽劑，例如可列舉：鉑粒子、鉑粒子之表面經二氧化矽被覆之粒子、鈀粒子及鈀粒子之表面經二氧化矽被覆之粒子等。紫外線遮蔽劑較佳為不為隔熱粒子。

【0132】

上述紫外線遮蔽劑較佳為具有苯并三唑結構之紫外線遮蔽劑、具有二苯甲酮結構之紫外線遮蔽劑、具有三吡結構之紫外線遮蔽劑或具有苯甲

酸酯結構之紫外線遮蔽劑。上述紫外線遮蔽劑更佳為具有苯并三唑結構之紫外線遮蔽劑或具有二苯甲酮結構之紫外線遮蔽劑，進而較佳為具有苯并三唑結構之紫外線遮蔽劑。

【0133】

作為上述含有金屬氧化物之紫外線遮蔽劑，例如可列舉：氧化鋅、氧化鈦及氧化銻等。進而，關於上述含有金屬氧化物之紫外線遮蔽劑，亦可表面經被覆。作為上述含有金屬氧化物之紫外線遮蔽劑之表面之被覆材料，可列舉：絕緣性金屬氧化物、水解性有機矽化合物及矽酮化合物等。

【0134】

作為上述具有苯并三唑結構之紫外線遮蔽劑，例如可列舉：2-(2'-羥基-5'-甲基苯基)苯并三唑(BASF公司製造之「Tinuvin P」)、2-(2'-羥基-3',5'-二第三丁基苯基)苯并三唑(BASF公司製造之「Tinuvin 320」)、2-(2'-羥基-3'-第三丁基-5'-甲基苯基)-5-氯苯并三唑(BASF公司製造之「Tinuvin 326」)、及2-(2'-羥基-3',5'-二戊基苯基)苯并三唑(BASF公司製造之「Tinuvin 328」)等。就吸收紫外線之性能優異之方面而言，上述紫外線遮蔽劑較佳為具有含有鹵素原子之苯并三唑結構之紫外線遮蔽劑，更佳為具有含有氯原子之苯并三唑結構之紫外線遮蔽劑。

【0135】

作為上述具有二苯甲酮結構之紫外線遮蔽劑，例如可列舉：辛苯酮(BASF公司製造之「Chimassorb81」)等。

【0136】

作為上述具有三吡結構之紫外線遮蔽劑，例如可列舉：ADEKA公司製造之「LA-F70」及2-(4,6-二苯基-1,3,5-三吡-2-基)-5-[(己基)氧基]-苯

酚(BASF公司製造之「Tinuvin 1577FF」)等。

【0137】

作為上述具有丙二酸酯結構之紫外線遮蔽劑，可列舉：2-(對甲氧基亞苄基)丙二酸二甲酯、2,2-(1,4-伸苯基二亞甲基)雙丙二酸四乙酯、2-(對甲氧基亞苄基)-雙(1,2,2,6,6-五甲基4-哌啶基)丙二酸酯等。

【0138】

作為上述具有丙二酸酯結構之紫外線遮蔽劑之市售品，可列舉：Hostavin B-CAP、Hostavin PR-25、Hostavin PR-31(均為Clariant公司製造)。

【0139】

作為上述具有草醯替苯胺結構之紫外線遮蔽劑，可列舉：N-(2-乙基苯基)-N'-(2-乙氧基-5-第三丁基苯基)草醯二胺、N-(2-乙基苯基)-N'-(2-乙氧基-苯基)草醯二胺、2-乙基-2'-乙氧基-氧基苯胺(Clariant公司製造之「Sanduvor VSU」)等具有取代於氮原子上之芳基等之草醯二胺類。

【0140】

作為上述具有苯甲酸酯結構之紫外線遮蔽劑，例如可列舉：3,5-二第三丁基-4-羥基苯甲酸2,4-二第三丁基苯酯(BASF公司製造之「Tinuvin 120」)等。

【0141】

含有上述紫外線遮蔽劑之層(第1層、第2層或第3層)100重量%中，上述紫外線遮蔽劑之含量較佳為0.1重量%以上，更佳為0.2重量%以上，進而較佳為0.3重量%以上，尤佳為0.5重量%以上。含有上述紫外線遮蔽劑之層(第1層、第2層或第3層)100重量%中，上述紫外線遮蔽劑之含量較佳

為2.5重量%以下，更佳為2重量%以下，進而較佳為1重量%以下，尤佳為0.8重量%以下。若上述紫外線遮蔽劑之含量為上述下限以上及上述上限以下，則可進一步抑制經過一段時間後之可見光透過率之降低。尤其是藉由含有上述紫外線遮蔽劑之層100重量%中，使上述紫外線遮蔽劑之含量為0.2重量%以上，可顯著地抑制中間膜及層合玻璃之經過一段時間後之可見光透過率之降低。

【0142】

(抗氧化劑)

上述中間膜較佳為含有抗氧化劑。上述第1層較佳為含有抗氧化劑。上述第2層較佳為含有抗氧化劑。上述第3層較佳為含有抗氧化劑。上述抗氧化劑可僅使用1種，亦可併用2種以上。

【0143】

作為上述抗氧化劑，可列舉：酚系抗氧化劑、硫系抗氧化劑及磷系抗氧化劑等。上述酚系抗氧化劑係具有酚骨架之抗氧化劑。上述硫系抗氧化劑係含有硫原子之抗氧化劑。上述磷系抗氧化劑係含有磷原子之抗氧化劑。

【0144】

上述抗氧化劑較佳為酚系抗氧化劑或磷系抗氧化劑。

【0145】

作為上述酚系抗氧化劑，可列舉：2,6-二第三丁基對甲酚(BHT)、丁基羥基苯甲醚(BHA)、2,6-二第三丁基-4-乙基苯酚、 β -(3,5-二第三丁基-4-羥基苯基)丙酸硬脂酯、2,2'-亞甲基雙-(4-甲基-6-丁基苯酚)、2,2'-亞甲基雙-(4-乙基-6-第三丁基苯酚)、4,4'-亞丁基-雙-(3-甲基-6-第三丁基苯

酚)、1,1,3-三-(2-甲基-羥基-5-第三丁基苯基)丁烷、四[亞甲基-3-(3',5'-丁基-4-羥基苯基)丙酸酯]甲烷、1,3,3-三-(2-甲基-4-羥基-5-第三丁基苯酚)丁烷、1,3,5-三甲基-2,4,6-三(3,5-二第三丁基-4-羥基苄基)苯、雙(3,3'-第三丁基苯酚)丁酸二醇酯及雙(3-第三丁基-4-羥基-5-甲基苯丙酸)乙二酯雙(氧化乙烯)等。可良好地使用該等抗氧化劑中之1種或2種以上。

【0146】

作為上述磷系抗氧化劑，可列舉：亞磷酸三癸酯、亞磷酸三(十三烷基)酯、亞磷酸三苯酯、亞磷酸三(壬基苯基)酯、二亞磷酸雙(十三烷基酯)季戊四醇酯、二亞磷酸雙(癸酯)季戊四醇酯、亞磷酸三(2,4-二第三丁基苯基)酯、亞磷酸雙(2,4-二第三丁基-6-甲基苯基)酯乙酯、及2,2'-亞甲基雙(4,6-二第三丁基-1-苯氧基)(2-乙基己氧基)磷等。可良好地使用該等抗氧化劑中之1種或2種以上。

【0147】

作為上述抗氧化劑之市售品，例如可列舉：BASF公司製造之「IRGANOX 245」、BASF公司製造之「IRGAFOS 168」、BASF公司製造之「IRGAFOS 38」、住友化學工業公司製造之「Sumilizer BHT」、堺化學工業公司製造之「H-BHT」、以及BASF公司製造之「IRGANOX 1010」等。

【0148】

為了持續長期維持中間膜及層合玻璃之較高可見光透過率，上述中間膜100重量%中或含有抗氧化劑之層(第1層、第2層或第3層)100重量%中，上述抗氧化劑之含量較佳為0.1重量%以上。又，由於抗氧化劑之添加效果會飽和，故而上述中間膜100重量%中或含有上述抗氧化劑之層100

重量%中，上述抗氧化劑之含量較佳為2重量%以下。

【0149】

(其他成分)

上述中間膜、上述第1層、上述第2層及上述第3層亦可視需要分別含有包含矽、鋁或鈦之偶合劑、分散劑、界面活性劑、阻燃劑、抗靜電劑、填料、顏料、染料、接著力調整劑、耐濕劑、螢光增白劑及紅外線吸收劑等添加劑。該等添加劑可僅使用1種，亦可併用2種以上。

【0150】

為了將剪切儲存模數控制為較佳之範圍，中間膜、第1層、第2層及第3層亦可含有填料。作為上述填料，可列舉：碳酸鈣粒子、及二氧化矽粒子等。就有效地提高抗撓剛度，有效地抑制透明性之降低之觀點而言，較佳為二氧化矽粒子。

【0151】

含有填料之層(第1層、第2層或第3層)100重量%中，上述填料之含量較佳為1重量%以上，更佳為5重量%以上，進而較佳為10重量份以上，且較佳為60重量%以下，更佳為50重量%以下。

【0152】

(層合玻璃用中間膜之其他詳細內容)

上述中間膜之厚度並無特別限定。就實用方面之觀點、以及充分地提高層合玻璃之耐貫通性及抗撓剛度之觀點而言，中間膜之厚度較佳為0.1 mm以上，更佳為0.25 mm以上，且較佳為3 mm以下，更佳為1.5 mm以下。若中間膜之厚度為上述下限以上，則層合玻璃之耐貫通性及抗撓剛度進一步變高。若中間膜之厚度為上述上限以下，則中間膜之透明性進一

步變良好。

【0153】

上述中間膜可為厚度均一之中間膜，亦可為厚度變化之中間膜。上述中間膜之剖面形狀可為矩形，亦可為楔形。

【0154】

本發明之中間膜之製造方法並無特別限定。作為本發明之中間膜之製造方法，於單層中間膜之情形時，可列舉使用擠出機將樹脂組合物擠出之方法。作為本發明之中間膜之製造方法，於多層中間膜之情形時，例如可列舉：使用用以形成各層之各樹脂組合物分別形成各層後，將所獲得之各層進行積層之方法；以及藉由使用擠出機將用以形成各層之各樹脂組合物共擠出而積層各層之方法等。進行擠出成形之製造方法由於適於連續之生產，故而較佳。

【0155】

就中間膜之製造效率優異之方面而言，較佳為於上述第2層與上述第3層中含有相同之聚乙烯醇縮醛樹脂。就中間膜之製造效率優異之方面而言，更佳為於上述第2層與上述第3層中含有相同之聚乙烯醇縮醛樹脂及相同之塑化劑。就中間膜之製造效率優異之方面而言，進而較佳為上述第2層與上述第3層由相同之樹脂組合物所形成。

【0156】

上述中間膜較佳為於兩側之表面中之至少一表面具有凹凸形狀。上述中間膜更佳為於兩側之表面具有凹凸形狀。作為形成上述凹凸形狀之方法，並無特別限定，例如可列舉：模唇壓紋法、壓紋輥法、研光輥法、及異形擠出法等。就可定量地形成作為一定之凹凸花紋之大量凹凸形狀之壓

紋的方面而言，較佳為壓紋輓法。

【0157】

(層合玻璃)

圖3係模式性地表示使用圖1所示之層合玻璃用中間膜之層合玻璃之一例的剖視圖。

【0158】

圖3所示之層合玻璃31具備第1層合玻璃構件21、第2層合玻璃構件22、及中間膜11。中間膜11係配置並夾入於第1層合玻璃構件21與第2層合玻璃構件22之間。

【0159】

於中間膜11之第1表面11a積層有第1層合玻璃構件21。於中間膜11之與第1表面11a相反之第2表面11b積層有第2層合玻璃構件22。於第2層2之外側表面2a積層有第1層合玻璃構件21。於第3層3之外側表面3a積層有第2層合玻璃構件22。

【0160】

圖4係模式性地表示使用圖2所示之層合玻璃用中間膜之層合玻璃之一例的剖視圖。

【0161】

圖4所示之層合玻璃31A具備第1層合玻璃構件21、第2層合玻璃構件22、及中間膜11A。中間膜11A係配置並夾入於第1層合玻璃構件21與第2層合玻璃構件22之間。

【0162】

於中間膜11A之第1表面11a積層有第1層合玻璃構件21。於中間膜

11A之與第1表面11a相反之第2表面11b積層有第2層合玻璃構件22。

【0163】

如上所述，本發明之層合玻璃具備第1層合玻璃構件、第2層合玻璃構件、及中間膜，該中間膜為本發明之層合玻璃用中間膜。本發明之層合玻璃中，上述中間膜配置於上述第1層合玻璃構件與上述第2層合玻璃構件之間。

【0164】

上述第1層合玻璃構件較佳為第1玻璃板。上述第2層合玻璃構件較佳為第2玻璃板。

【0165】

作為上述層合玻璃構件，可列舉：玻璃板及PET(聚對苯二甲酸乙二酯)膜等。關於層合玻璃，不僅包括於2片玻璃板之間夾入有中間膜之層合玻璃，亦包括於玻璃板與PET膜等之間夾入有中間膜之層合玻璃。上述層合玻璃係具備玻璃板之積層體，較佳為使用至少1片玻璃板。較佳為上述第1層合玻璃構件及上述第2層合玻璃構件分別為玻璃板或PET膜，且上述層合玻璃具備玻璃板作為上述第1層合玻璃構件及上述第2層合玻璃構件中之至少一者。

【0166】

作為上述玻璃板，可列舉無機玻璃及有機玻璃。作為上述無機玻璃，可列舉：浮法板玻璃、熱線吸收板玻璃、熱線反射板玻璃、研磨板玻璃、壓花板玻璃、夾絲板玻璃等。上述有機玻璃係代替無機玻璃之合成樹脂玻璃。作為上述有機玻璃，可列舉聚碳酸酯板及聚(甲基)丙烯酸系樹脂板等。作為上述聚(甲基)丙烯酸系樹脂板，可列舉聚(甲基)丙烯酸甲酯板

等。

【0167】

上述層合玻璃構件之厚度較佳為1 mm以上，且較佳為5 mm以下，更佳為3 mm以下。又，於上述層合玻璃構件為玻璃板之情形時，該玻璃板之厚度較佳為0.5 mm以上，更佳為0.7 mm以上，且較佳為5 mm以下，更佳為3 mm以下。於上述層合玻璃構件為PET膜之情形時，該PET膜之厚度較佳為0.03 mm以上，且較佳為0.5 mm以下。

【0168】

藉由使用本發明之中間膜，即便層合玻璃之厚度較薄，亦可維持層合玻璃之抗撓剛度較高。上述玻璃板之厚度較佳為2 mm以下，更佳為1.8 mm以下，進一步較佳為1.6 mm以下，進一步較佳為1.5 mm以下，進而較佳為1.4 mm以下，進而較佳為1.3 mm以下，更進一步較佳為1.0 mm以下，尤佳為0.7 mm以下。於該情形時，可使層合玻璃輕量化，或減少層合玻璃之材料而降低環境負荷，或藉由層合玻璃之輕量化使汽車之燃料效率提高而降低環境負荷。上述第1玻璃板之厚度與上述第2玻璃板之厚度之合計較佳為3.5 mm以下，更佳為3.2 mm以下，進而較佳為3 mm以下，尤佳為2.8 mm以下。於該情形時，可使層合玻璃輕量化，或減少層合玻璃之材料而降低環境負荷，或藉由層合玻璃之輕量化使汽車之燃料效率提高而降低環境負荷。

【0169】

上述層合玻璃之製造方法並無特別限定。首先，於上述第1層合玻璃構件與上述第2層合玻璃構件之間夾入中間膜而獲得積層體。繼而，例如使所獲得之積層體通過按壓輥或放入橡膠袋中進行減壓抽吸，藉此將殘留

於上述第1層合玻璃構件、上述第2層合玻璃構件、及中間膜之間之空氣進行脫氣。其後，於約70～110°C下進行預接著而獲得經預壓接之積層體。繼而，將經預壓接之積層體放入至高壓釜中，或進行加壓，而於約120～150°C及1～1.5 MPa之壓力下進行壓接。如此可獲得層合玻璃。製造上述層合玻璃時，亦可積層第1層、第2層、及第3層。

【0170】

上述中間膜及上述層合玻璃可用於汽車、軌道車輛、航空器、船舶及建築物等。上述中間膜及上述層合玻璃亦可用於該等用途以外。上述中間膜及上述層合玻璃較佳為車輛用或建築用之中間膜及層合玻璃，更佳為車輛用之中間膜及層合玻璃。上述中間膜及上述層合玻璃可用於汽車之擋風玻璃、側玻璃、後玻璃或天窗玻璃等。上述中間膜及上述層合玻璃可良好地用於汽車。上述中間膜可用於獲得汽車之層合玻璃。

【0171】

以下揭示實施例及比較例而進一步詳細地說明本發明。本發明並不僅限定於該等實施例。

【0172】

準備以下之材料。

【0173】

(聚乙烯醇縮醛樹脂)

適當使用下述表1～3所示之聚乙烯醇縮醛樹脂。

【0174】

關於聚乙烯醇縮醛樹脂，縮醛化度、乙醯化度及羥基之含有率係藉由依據JIS K6728「聚乙烯醇縮丁醛試驗方法」之方法所測得。再者，於

藉由ASTM D1396-92測定之情形時，亦顯示出與依據JIS K6728「聚乙烯醇縮丁醛試驗方法」之方法同樣之數值。又，於縮醛之種類為縮乙醛、縮苯甲醛或縮對異丙基苯甲醛之情形時，縮醛化度係同樣地藉由測定乙醯化度、羥基之含有率，根據所獲得之測定結果算出莫耳分率，繼而自100莫耳%減去乙醯化度及羥基之含有率而算出。

【0175】

於表1~3中，於記載有丁醛化度(縮醛化度)之值之情形時，使用聚乙烯醇縮丁醛樹脂，於記載有縮乙醛化度(縮醛化度)之值之情形時，使用聚乙烯醇縮乙醛樹脂。

【0176】

(第2樹脂)

適當使用下述表1~3所示之丙烯酸系聚合物。

【0177】

下述表1~3所示之丙烯酸系聚合物係使以下述表1~3所示之含量含有以下之化合物的聚合性成分聚合所得之丙烯酸系聚合物。

【0178】

丙烯酸乙酯

丙烯酸丁酯

丙烯酸苄酯

丙烯酸2-羥基乙酯

丙烯酸

甲基丙烯酸縮水甘油酯(交聯劑)

三丙二醇二丙烯酸酯(交聯劑)

【0179】

(塑化劑)

三乙二醇二(2-乙基己酸酯)(3GO)

【0180】

(紫外線遮蔽劑)

Tinuvin 326(2-(2'-羥基-3'-第三丁基-5-甲基苯基)-5-氯苯并三唑，
BASF公司製造之「Tinuvin 326」)

【0181】

(抗氧化劑)

BHT(2,6-二第三丁基對甲酚)

【0182】

(實施例1)

用以形成第1層之組合物之製作：

將下述表1所示之種類之聚乙烯醇縮醛樹脂100重量份、下述表1所示之種類之丙烯酸系聚合物150重量份、塑化劑(3GO)15重量份、紫外線遮蔽劑(Tinuvin 326)0.2重量份、及抗氧化劑(BHT)0.2重量份進行混合，獲得用以形成第1層之組合物。

【0183】

用以形成第2層及第3層之組合物之製作：

將下述表1所示之種類之聚乙烯醇縮醛樹脂100重量份、塑化劑(3GO)18重量份、紫外線遮蔽劑(Tinuvin 326)0.2重量份、及抗氧化劑(BHT)0.2重量份進行混合，獲得用以形成第2層及第3層之組合物。

【0184】

中間膜之製作：

使用共擠出機將用以形成第1層之組合物及用以形成第2層及第3層之組合物共擠出，藉此製作具有第2層/第1層/第3層之積層構造之中間膜。各層之厚度記載於下述表1。

【0185】

層合玻璃之製作(抗撓剛度測定用)：

將所獲得之中間膜切割成縱20 cm×橫2.5 cm之尺寸。作為第1層合玻璃構件及第2層合玻璃構件，準備下述表1所示之厚度之2片玻璃板(透明浮法玻璃，縱20 cm×橫2.5 cm)。於該2片玻璃板之間夾入獲得之中間膜而獲得積層體。將獲得之積層體放入至橡膠袋內，於2660 Pa(20 torr)之真空度下脫氣20分鐘。其後，一面保持經脫氣之狀態將積層體於高壓釜中進而於90℃下保持30分鐘，一面進行真空加壓。將以上述方式經預壓接之積層體於高壓釜中在135℃、壓力1.2 MPa(12 kg/cm²)之條件下進行20分鐘壓接，獲得層合玻璃。

【0186】

層合玻璃之製作(隔音性測定用)：

將所獲得之中間膜切割成縱30 cm×橫2.5 cm之尺寸。作為第1層合玻璃構件及第2層合玻璃構件，準備下述表1所示之厚度之2片玻璃板(透明浮法玻璃，縱30 cm×橫2.5 cm)。於2片玻璃板之間夾入中間膜而獲得積層體。將該積層體放入至橡膠袋內，於2.6 kPa之真空度下脫氣20分鐘後，保持經脫氣之狀態移至烘箱內，進而於90℃下保持30分鐘，進行真空加壓，將積層體預壓接。於高壓釜中在135℃及壓力1.2 MPa之條件下將經預壓接之積層體進行20分鐘壓接，獲得層合玻璃。

【0187】

層合玻璃之製作(耐貫通性試驗用)：

將所獲得之中間膜切割成縱15 cm×橫15 cm之尺寸。作為第1層合玻璃構件及第2層合玻璃構件，準備下述表1所示之厚度之2片玻璃板(透明浮法玻璃，縱15 cm×橫15 cm)。於2片玻璃板之間夾入中間膜而獲得積層體。將該積層體放入至橡膠袋內，於2.6 kPa之真空度下脫氣20分鐘後，保持經脫氣之狀態移至烘箱內，進而於90℃下保持30分鐘，進行真空加壓，將積層體預壓接。於高壓釜中在135℃及壓力1.2 MPa之條件下將經預壓接之積層體進行20分鐘壓接，獲得層合玻璃。

【0188】

(實施例2及比較例1)

如下述表1所示般設定用以形成第1層之組合物之組成及用以形成第2層及第3層之組合物之組成，且如下述表1所示般設定第1層、第2層、第3層、第1層合玻璃構件及第2層合玻璃構件之厚度，除此以外，以與實施例1相同之方式獲得中間膜及層合玻璃。又，於實施例2及比較例1中，以與實施例1相同之調配量(相對於聚乙烯醇縮醛樹脂100重量份為0.2重量份)調配與實施例1相同種類之紫外線遮蔽劑及抗氧化劑。

【0189】

(實施例3)

用以形成中間膜(第1層)之組合物之製作：

將下述表2所示之種類之聚乙烯醇縮醛樹脂100重量份、下述表2所示之種類之丙烯酸系聚合物120重量份、塑化劑(3GO)7.5重量份、紫外線遮蔽劑(Tinuvin 326)0.2重量份、及抗氧化劑(BHT)0.2重量份進行混合，獲

得用以形成中間膜之組合物。

【0190】

中間膜之製作：

使用擠出機將用以形成中間膜之組合物擠出，藉此製作下述表2所示之厚度之中間膜。

【0191】

層合玻璃之製作(抗撓剛度測定用)：

使用所獲得之中間膜，以與實施例1相同之方式製作層合玻璃。

【0192】

層合玻璃之製作(隔音性測定用)：

使用所獲得之中間膜，以與實施例1相同之方式製作層合玻璃。

【0193】

層合玻璃之製作(耐貫通性試驗測定用)：

使用所獲得之中間膜，以與實施例1相同之方式製作層合玻璃。

【0194】

(實施例4～9及比較例2～6)

如下述表2、3所示般設定用以形成中間膜之組合物之組成，且如下述表2、3所示般設定中間膜、第1層合玻璃構件及第2層合玻璃構件之厚度，除此以外，以與實施例3相同之方式獲得中間膜及層合玻璃。又，於實施例4～9及比較例2～6中，以與實施例3相同之調配量(相對於聚乙烯醇縮醛樹脂100重量份為0.2重量份)調配與實施例3相同種類之紫外線遮蔽劑及抗氧化劑。

【0195】

(評價)

(1)黏彈性

剪切儲存模數：

以頻率1 Hz測定剪切儲存模數(於多層之中間膜之情形時，測定剪切儲存等效模數)。具體而言，將所獲得之中間膜於室溫 $23\pm 2^{\circ}\text{C}$ 、濕度 $25\pm 5\%$ 之環境下保管12小時後，立即使用IT測量控制公司製造之黏彈性測定裝置「DVA-200」測定黏彈性。將中間膜以長8 mm、寬5 mm切出，於剪切模式下並於以 $3^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 之升溫速度使溫度自 -50°C 上升至 150°C 之條件、及頻率1 Hz、應變0.08%之條件下進行測定。於多層之中間膜中，於不存在因各層間之滑動所導致之測定不良之情形時，根據以下之基準判定剪切儲存模數。於存在測定不良之情形時，於多層中間膜中，利用上述方法測定各層之黏彈性，並藉由計算算出剪切儲存模數。根據以下之基準判定剪切儲存模數。

【0196】

[剪切儲存模數之判定基準]

A：於 10°C 以上且 30°C 以下之溫度區域中之80%以上之溫度區域中，剪切儲存模數為3 MPa以上且2000 MPa以下

B：與A之基準不符

【0197】

玻璃轉移溫度：

可列舉將所獲得之中間膜於室溫 $23\pm 2^{\circ}\text{C}$ 、濕度 $25\pm 5\%$ 之環境下保管12小時後，立即使用IT測量控制公司製造之黏彈性測定裝置「DVA-200」測定黏彈性之方法。將中間膜以長8 mm、寬5 mm切出，於剪切模

式下並於以 $3^{\circ}\text{C}/\text{min}$ 之升溫速度使溫度自 -50°C 上升至 150°C 之條件、及頻率 1 Hz 、應變 0.08% 之條件下進行測定。將顯示 $\tan\delta$ 之最大值之溫度設為玻璃轉移溫度，將於 -40°C 以上且 0°C 以下不存在 $\tan\delta$ 之最大值之情形設為「無」。

【0198】

(2)相分離結構觀察

利用切片機對所獲得之中間膜進行處理，藉此製作厚度 100 nm 之切片。利用四氧化鐵對所獲得之切片進行染色，並利用透射型電子顯微鏡進行觀察。判斷有無相分離結構。

【0199】

[有無相分離結構之判定基準]

○：有相分離結構

×：無相分離結構

【0200】

進而，確認到於有相分離結構且有基質之情形時，構成基質及島部(區)之樹脂成分為聚乙烯醇縮醛樹脂或第2樹脂。

【0201】

[構成基質及島部之樹脂成分之判定基準]

A：構成基質之成分為聚乙烯醇縮醛樹脂且構成島部之成分為第2樹脂

B：構成基質之成分為第2樹脂且構成島部之成分為聚乙烯醇縮醛樹脂

【0202】

進而，於有相分離結構且有島部(區)之情形時，以3000倍或5000倍觀察島部之直徑(最大直徑)，並求出平均值。

【0203】

(3)凝膠分率

將中間膜0.2 g浸漬於四氫呋喃40 g中，於23℃下進行24小時振盪浸漬。其後，藉由離心分離機(KUBOTA公司製造，高速大容量冷卻離心分離機7780)，於10℃下且以10000 rpm進行離心後，去除上清液用液體。將容器內之殘存物以110℃加熱1小時而進行乾燥。其後，測定殘存物之重量。藉由上述式(X)算出凝膠分率。根據下述基準判定凝膠分率。

【0204】

[凝膠分率之判定基準]

A：凝膠分率為10重量%以上

B：凝膠分率未達10重量%

【0205】

(4)抗撓剛度

利用圖5中模式性地表示之試驗方法評價抗撓剛度。作為測定裝置，使用具備3點彎曲試驗治具之Orientec公司製造之UTA-500。作為測定條件，測定溫度設為20℃(20℃±3℃)，距離D1設為12 cm，距離D2設為20 cm，以位移速度1 mm/min於F之方向上對層合玻璃施加變形，測定施加了1.5 mm位移時之應力，算出抗撓剛度。以下述基準判定抗撓剛度。抗撓剛度之數值越高，抗撓剛度越優異。

【0206】

[20℃下之抗撓剛度之判定基準]

- ：抗撓剛度為55 N/mm以上
- ：抗撓剛度為50 N/mm以上且未達55 N/mm
- △：抗撓剛度為45 N/mm以上且未達50 N/mm
- ×：抗撓剛度未達45 N/mm

【0207】**(5) 隔音性**

藉由阻尼試驗用之振動發生機(振研公司製造之「加振機 G21-005D」)對於所獲得之層合玻璃施加振動。利用機械阻抗測定裝置(RION公司製造之「XG-81」)放大自此獲得之振動特性，藉由FFT(Fast Fourier Transform，快速傅立葉變換)頻譜分析儀(橫河HP公司製造之「FFT分析儀 HP3582A」)對振動圖譜進行分析。

【0208】

根據以上述方式獲得之損耗係數與層合玻璃之共振頻率之比，製作表示20°C下之音頻(Hz)與聲音傳輸損耗(dB)之關係之曲線圖，求出於音頻3,000 Hz附近之極小聲音傳輸損耗(TL值)。該TL值越高，隔音性變得越高。以下述基準判定隔音性。

【0209】

[隔音性之判定基準]

- ：TL值為35 dB以上
- ：TL值為30 dB以上且未達35 dB
- ×：TL值未達30 dB

【0210】**(6) 耐貫通性**

將所獲得之層合玻璃以表面溫度成為20°C之方式進行調整。繼而，對於6片層合玻璃，分別使質量2260 g及直徑82 mm之硬球自2.0 m之高度落下至層合玻璃之中心部分。將全部6片層合玻璃於硬球碰撞後5秒以內硬球未貫通之情形設為合格。於硬球碰撞後5秒以內硬球未貫通之層合玻璃為3片以下之情形時設為不合格。於4片之情形時，評價新的6片層合玻璃之耐貫通性。於5片之情形時，對新的1片層合玻璃進行追加試驗，將於硬球碰撞後5秒以內硬球未貫通之情形設為合格。利用同樣之方法，每次升高25 cm，對於6片層合玻璃，分別使質量2260 g及直徑82 mm之硬球落下至層合玻璃之中心部分，評價層合玻璃之耐貫通性(最大高度)。以下述之基準判定耐貫通性。

【0211】

[耐貫通性之判定基準]

○○：最大高度為4 m以上

○：最大高度為3.75 m

×：最大高度為3.5 m以下

【0212】

將詳細內容及結果示於下述表1~3。再者，於下述表1~3中，省略紫外線遮蔽劑及抗氧化劑之記載。

【0213】

[表1]

			實施例1	實施例2	比較例1	
第1層合玻璃構件之厚度(mm)			1.2	1.4	1.4	
第2層	聚乙烯醇縮醛樹脂	含量(重量份)	100	100	100	
		平均聚合度	1700	1700	1700	
		羥基之含有率(mol%)	30.6	30.6	30.6	
		丁醛化度(mol%)	0	0	68.5	
		乙醛化度(mol%)	68.5	68.5	0	
	塑化劑	種類	3GO	3GO	3GO	
		含量(重量份)	18	18	40	
	厚度(μm)		300	200	330	
	第1層	聚乙烯醇縮醛樹脂	含量(重量份)	100	100	100
			平均聚合度	1700	1700	1700
羥基之含有率(mol%)			30.6	34	24.1	
丁醛化度(mol%)			0	33.5	64.8	
乙醛化度(mol%)			68.5	32	-	
第2樹脂		乙醯化度(mol%)	0.9	0.5	11.1	
		含量(重量份)	150	140	-	
		丙烯酸乙酯(重量%)	20	20	-	
		丙烯酸丁酯(重量%)	30	30	-	
塑化劑		種類	3GO	3GO	3GO	
		含量(重量份)	15	15	70	
		有無樹脂成分之交聯	無	無	無	
厚度(μm)		200	300	100		
第3層		聚乙烯醇縮醛樹脂	含量(重量份)	100	100	100
			平均聚合度	1700	1700	1700
	羥基之含有率(mol%)		30.6	30.6	30.6	
	丁醛化度(mol%)		0	0	68.5	
	乙醛化度(mol%)		68.5	68.5	0	
	塑化劑	乙醯化度(mol%)	0.9	0.9	0.9	
		種類	3GO	3GO	3GO	
	含量(重量份)		18	18	40	
	厚度(μm)		300	200	330	
	第2層合玻璃構件之厚度(mm)			1.2	1.2	1.2
相對於聚乙烯醇縮醛樹脂100重量份之塑化劑之含量			17.3	16.7	43.9	
總結	(1)黏彈性	剪切儲存模數(10~30°C)	A	A	A	
		表示tanδ之最大之玻璃轉移溫度(°C)	-11	-7	-5	
		tanδ之最大值	0.14	0.17	1.1	
	(2)相結構觀察	有無相分離結構	有	有	無	
		構成基質及島部之樹脂成分	A	A	-	
		島部之直徑之平均(μm)	0.4	0.5	-	
	(3)凝膠分率	判定	B	B	B	
	(4)抗撓剛度	判定(20°C)	○○	○○	×	
	(5)隔音性	判定(20°C)	○	○○	○○	
	(6)耐貫通性	判定	○	○	○	

【0214】

[表2]

			實施例 3	實施例 4	實施例 5	實施例 6	實施例 7	實施例 8	實施例 9	
層合玻璃之構成	中間膜	第1層合玻璃構件之厚度(mm)	1.0	1.0	1.6	1.4	1.0	1.0	1.6	
		聚乙烯醇縮醛樹脂	含量(重量份)	100	100	100	100	100	100	100
			平均聚合度	1700	1700	1700	2500	600	600	800
			羥基之含有率(mol%)	30.6	30.6	34	34.2	24	24	33.9
			丁醛化度(mol%)	68.5	68.5	33.5	0	0	0	65.2
			乙醛化度(mol%)	0	0	32	65	75	75	0
			乙醯化度(mol%)	0.9	0.9	0.5	0.8	1	1	0.9
		第2樹脂	含量(重量份)	120	150	120	140	120	120	300
			丙烯酸乙酯(重量%)	22	25	22	25	47	47	40
	丙烯酸丁酯(重量%)		28	24	27	25	30	30	36	
	丙烯酸苄酯(重量%)		20	20	20	20	23	22	23	
	丙烯酸2-羥基乙酯(重量%)		30	28	28	30	0	0	0	
	丙烯酸(重量%)		0	1	1	0	0	0	0	
	甲基丙烯酸縮水甘油酯(重量%)		0	2	2	0	0	0	0	
	三丙二醇二甲基丙烯酸酯(重量%)	0	0	0	0	0	1	1		
	塑化劑	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	
		含量(重量份)	7.5	15	10	15	5	4	5	
		有無樹脂成分之交聯	無	有	有	無	無	有	無	
		厚度(μm)	760	760	760	760	760	760	800	
	第2層合玻璃構件之厚度(mm)	1.0	1.1	1.6	1.4	1.0	1.0	1.6		
評價	(1)黏彈性	剪切儲存模數(10~30°C)	A	A	A	A	A	A	A	
		表示tanδ之最大値之玻璃轉移溫度(°C)	-8	-5	-11	-7	-7	-4	-25	
		tanδ之最大値	0.2	0.22	0.2	0.21	0.21	0.24	1.02	
	(2)相結構觀察	有無相分離結構	○	○	○	○	○	○	○	
		構成基質及島部之樹脂成分	A	A	A	A	A	A	A	
		島部之直徑之平均(μm)	0.5	0.8	0.4	0.7	0.2	0.9	0.8	
	(3)凝膠分率	判定	B	A	A	B	B	A	A	
	(4)抗撓剛度	判定(20°C)	○○	○○	○○	○○	○○	○○	○	
	(5)隔音性	判定(20°C)	○○	○○	○○	○○	○○	○○	○	
	(6)耐貫通性	判定	○	○○	○○	○	○	○○	○	

【0215】

[表3]

			比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6	
層合玻璃之構成	第1層合玻璃構件之厚度(mm)		1.2	1.6	1.0	1.6	1.4	
	中間膜	聚乙稀醇 縮醛樹脂	含量(重量份)	100	100	100	100	100
			平均聚合度	1700	1700	1700	1700	2500
			羥基之含有率(mol%)	30.6	30.6	30.6	30.6	34.2
			丁醛化度(mol%)	68.5	68.5	68.5	68.5	0
			乙醛化度(mol%)	0	0	0	0	65
			乙醯化度(mol%)	0.9	0.9	0.9	0.9	0.8
	第2樹脂	含量(重量份)	-	200	120	300	140	
		丙烯酸乙酯(重量%)	-	22	22	22	0	
		丙烯酸丁酯(重量%)	-	28	28	28	0	
		丙烯酸苄酯(重量%)	-	20	20	20	100	
		丙烯酸2-羥基乙酯(重量%)	-	30	30	30	0	
		丙烯酸(重量%)	0	0	0	0	0	
		甲基丙烯酸縮水甘油酯(重量%)	0	0	0	0	0	
		三丙二醇二甲基丙烯酸酯(重量%)	0	0	0	0	0	
	塑化劑	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	
		含量(重量份)	40	20	2	5	5	
有無樹脂成分之交聯		無	無	無	無	無		
厚度(μm)		760	760	760	760	760		
第2層合玻璃構件之厚度(mm)		1.2	1.6	1.0	1.6	1.4		
評價	(1)黏彈性	剪切儲存模數(10~30°C)	A	B	A	B	A	
		表示tanδ之最大値之玻璃轉移溫度(°C)	無	-2	-8	-4	6	
		tanδ之最大値	無	0.73	0.2	1.07	0.2	
	(2)相結構觀察	有無相分離結構	×	○	○	○	○	
		構成基質及島部之樹脂成分	-	A	A	B	A	
		島部之直徑之平均(μm)	-	0.4	0.5	0.6	1.2	
	(3)凝膠分率	判定	B	B	B	B	B	
	(4)抗撓剛度	判定(20°C)	×	△	○○	△	○○	
	(5)隔音性	判定(20°C)	○	○○	○○	○○	×	
	(6)耐貫通性	判定	○	○	×	×	×	

【符號說明】

【0216】

- 1 第1層
- 1a 第1表面
- 1b 第2表面
- 2 第2層
- 2a 外側表面

3	第3層
3a	外側表面
11	中間膜
11A	中間膜(第1層)
11a	第1表面
11b	第2表面
21	第1層合玻璃構件
22	第2層合玻璃構件
31	層合玻璃
31A	層合玻璃
D1	距離
D2	距離



201841859

【發明摘要】**【中文發明名稱】**

層合玻璃用中間膜及層合玻璃

【中文】

本發明提供一種可提高層合玻璃於20°C下之抗撓剛度，且可提高層合玻璃之隔音性及耐貫通性之層合玻璃用中間膜。

本發明之層合玻璃用中間膜含有聚乙烯醇縮醛樹脂、聚乙烯醇縮醛樹脂以外之第2樹脂、及塑化劑，且相對於上述聚乙烯醇縮醛樹脂100重量份，上述塑化劑之含量為3重量份以上且未達20重量份，該層合玻璃用中間膜具有相分離結構，於上述相分離結構中，上述第2樹脂為島部，於上述相分離結構中，上述島部之直徑之平均為10 nm以上且1 μm以下，且該層合玻璃用中間膜之玻璃轉移溫度存在於-40°C以上且0°C以下。

【指定代表圖】

圖1

【代表圖之符號簡單說明】

- | | |
|----|------|
| 1 | 第1層 |
| 1a | 第1表面 |
| 1b | 第2表面 |
| 2 | 第2層 |
| 2a | 外側表面 |
| 3 | 第3層 |
| 3a | 外側表面 |
| 11 | 中間膜 |

11a 第1表面

11b 第2表面

【發明申請專利範圍】

【第1項】

一種層合玻璃用中間膜，其含有聚乙烯醇縮醛樹脂、聚乙烯醇縮醛樹脂以外之第2樹脂、及塑化劑，且相對於上述聚乙烯醇縮醛樹脂100重量份，上述塑化劑之含量為3重量份以上且未達20重量份，

該層合玻璃用中間膜具有相分離結構，於上述相分離結構中，上述第2樹脂為島部，且於上述相分離結構中，上述島部之直徑之平均為10 nm以上且1 μ m以下，且

該層合玻璃用中間膜之玻璃轉移溫度存在於-40°C以上且0°C以下。

【第2項】

如請求項1之層合玻璃用中間膜，其於10°C以上且30°C以下之溫度區域中之80%以上之溫度區域中，剪切儲存模數為3 MPa以上且2000 MPa以下。

【第3項】

如請求項1或2之層合玻璃用中間膜，其中上述聚乙烯醇縮醛樹脂與上述第2樹脂之合計100重量%中，上述第2樹脂之含量為20重量%以上。

【第4項】

如請求項1或2之層合玻璃用中間膜，其中上述第2樹脂具有交聯結構，或者上述聚乙烯醇縮醛樹脂與上述第2樹脂交聯。

【第5項】

如請求項1或2之層合玻璃用中間膜，其係單層之層合玻璃用中間膜。

【第6項】

如請求項1或2之層合玻璃用中間膜，其於-40°C以上且0°C以下之溫度區域中之 $\tan\delta$ 之最大值為0.15以上。

【第7項】

如請求項1或2之層合玻璃用中間膜，其厚度為3 mm以下。

【第8項】

如請求項1或2之層合玻璃用中間膜，其用於使用厚度為1.6 mm以下之第1玻璃板，配置於上述第1玻璃板與第2玻璃板之間而獲得層合玻璃。

【第9項】

如請求項1或2之層合玻璃用中間膜，其用於配置於第1玻璃板與第2玻璃板之間而獲得層合玻璃，且

上述第1玻璃板之厚度與上述第2玻璃板之厚度之合計為3.5 mm以下。

【第10項】

一種層合玻璃，其包含：第1層合玻璃構件、
第2層合玻璃構件、及

如請求項1至9中任一項之層合玻璃用中間膜，且

上述層合玻璃用中間膜配置於上述第1層合玻璃構件與上述第2層合玻璃構件之間。

【第11項】

如請求項10之層合玻璃，其中上述第1層合玻璃構件為第1玻璃板，
且

上述第1玻璃板之厚度為1.6 mm以下。

【第12項】

如請求項10或11之層合玻璃，其中上述第1層合玻璃構件為第1玻璃板，

上述第2層合玻璃構件為第2玻璃板，且

上述第1玻璃板之厚度與上述第2玻璃板之厚度之合計為3.5 mm以下。

