



(43) 国際公開日
2006年8月3日 (03.08.2006)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2006/080347 A1

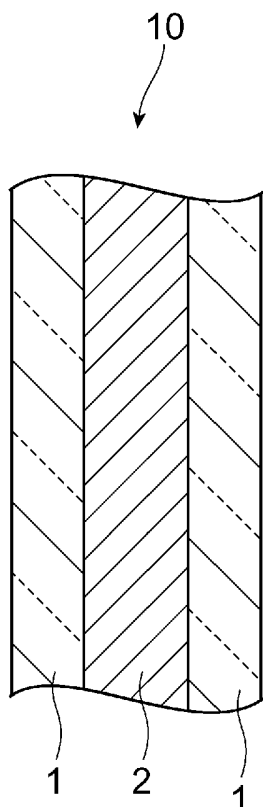
- (51) 国際特許分類:
C08F 2/44 (2006.01) C08F 20/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2006/301140
- (22) 国際出願日: 2006年1月25日 (25.01.2006)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2005-022145 2005年1月28日 (28.01.2005) JP
特願2005-294199 2005年10月6日 (06.10.2005) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社クレハ (KUREHA CORPORATION) [JP/JP]; 〒1038552 東京都中央区日本橋浜町3-3-2 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 林 直樹 (HAYASHI, Naoki) [JP/JP]; 〒9748686 福島県いわき市錦町落合16株式会社クレハ内 Fukushima (JP).

- 上田 留美 (UEDA, Rumi) [JP/JP]; 〒9748686 福島県いわき市錦町落合16株式会社クレハ内 Fukushima (JP). 氏家 知美 (UJIE, Tomomi) [JP/JP]; 〒9748686 福島県いわき市錦町落合16株式会社クレハ内 Fukushima (JP). 小林 由太加 (KOBAYASHI, Yutaka) [JP/JP]; 〒9748686 福島県いわき市錦町落合16株式会社クレハ内 Fukushima (JP). 上遠野 浩樹 (KATONO, Hiroki) [JP/JP]; 〒9748686 福島県いわき市錦町落合16株式会社クレハ内 Fukushima (JP). 福島 雄一 (FUKUSHIMA, Yuichi) [JP/JP]; 〒9748686 福島県いわき市錦町落合16株式会社クレハ内 Fukushima (JP).
- (74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外 (HASEGAWA, Yoshiki et al.); 〒1040061 東京都中央区銀座一丁目10番6号銀座ファーストビル創英国際特許法律事務所 Tokyo (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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU,

/ 続葉有 /

(54) Title: POLYMERIZABLE COMPOSITION, POLYMER, SHEETED MOLDING, LAMINATE AND PROCESS FOR PRODUCING THE SAME

(54) 発明の名称: 重合性組成物、重合体、シート状成形物、並びに積層体及びその製造方法



(57) Abstract: A polymerizable composition from which an intermediate film with excellent transparency can be easily obtained. There is provided a polymerizable composition comprising a (meth)acrylic monomer, cupric ions and an alkyl phosphoric acid ester. The alkyl phosphoric acid ester contains an alkyl phosphoric acid monoester and an alkyl phosphoric acid diester. The molar ratio of alkyl phosphoric acid monoester/alkyl phosphoric acid diester is in the range of 20/80 to 80/20.

(57) 要約: 本発明は、優れた透明性を有する中間膜を容易に得ることができる重合性組成物を提供することを目的とする。本発明の重合性組成物は、(メタ)アクリル系モノマーと、2価の銅イオンと、アルキルリン酸エステルとを含むものである。また、アルキルリン酸エステルは、アルキルリン酸モノエステル、及び、アルキルリン酸ジエステルを含有している。そして、アルキルリン酸モノエステル/アルキルリン酸ジエステルのモル比は、20/80~80/20である。



ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE,

IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

重合性組成物、重合体、シート状成形物、並びに積層体及びその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、重合性組成物、重合体、シート状成形物、並びに積層体及びその製造方法に関する。

背景技術

[0002] 窓材等に用いるための光学部材としては、ガラス等からなる一対の透光性基板の間に、樹脂等からなる中間膜を挟んだ構造の合わせガラスが知られている。これらの合わせガラスは、透光性基板を単独で用いる場合に比して、衝撃を受けた際の破損が少ない等、強度や耐久性の点で優れた特性を有している。

[0003] 近年、これらの合わせガラスに対して、赤外線又は近赤外線（以下、「近赤外光」という）を遮断できる性質を有していることが求められている。このような合わせガラスを窓材や壁材等に適用すれば、例えば太陽光における上記領域の波長を有する光線、すなわち熱線の室内への侵入を抑制することができる。これにより、室内が過度に高温となる等の不都合を低減できるようになる。

[0004] そこで、中間膜として、近赤外光を吸収する特性を有する樹脂材料等からなる層を設けることで、合わせガラスに近赤外光を遮断できる性質を付与する試みがなされている。このような合わせガラスの中間膜用の材料として、アクリル系樹脂、銅イオン又は金属酸化物、及び、リン酸基含有化合物を含むアクリル系樹脂組成物が開示されている（例えば、特許文献1参照）。

特許文献1：特開平9－208918号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0005] ところで、上述したような、近赤外光を遮断する特性を有する合わせガラスには、窓材等に適用した場合に室内の明るさを十分に確保するため、可視光領域の波長を有する光線の透光率（透光性）が高いことが同時に要求される。上記従来技術のアク

リル系樹脂組成物は、合わせガラスの中間膜として十分な透光性を有するものであったが、当該樹脂組成物を調整する際、条件によっては濁りが発生する場合があります、かかる合わせガラスを通して反対側を視認し得る特性(すなわち、「透明性」)が十分に得られないこともあった。

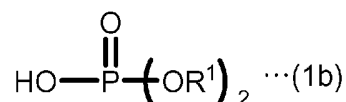
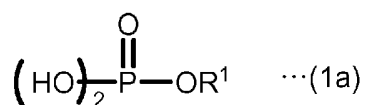
[0006] また、最近では、合わせガラスの用途の多様化に伴い、従来に比してより良好な透明性が必要とされることが多くなっている。そのため、このように優れた透明性を付与し得る中間膜用の材料に対する需要が急速に増大している。

[0007] そこで、本発明はこのような事情に鑑みてなされたものであり、従来に比して良好な透明性を有する中間膜を容易に得ることができる重合性組成物を提供することを目的とする。本発明はまた、かかる重合性組成物を用いて得られる重合体、シート状成形物及び中間膜、並びに、この中間膜を備える積層体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

[0008] 上記目的を達成するために、本発明の重合性組成物は、(メタ)アクリル系モノマーと、2価の銅イオンと、アルキルリン酸エステルとを含み、アルキルリン酸エステルは、下記一般式(1a)で表されるアルキルリン酸モノエステル、及び、下記一般式(1b)で表されるアルキルリン酸ジエステルを含有しており、アルキルリン酸モノエステル／アルキルリン酸ジエステルのモル比が、20／80～80／20であることを特徴とする。

[化1]



[式中、R¹はそれぞれ独立にアルキル基を示す。]

[0009] 本発明者らが鋭意研究を行った結果、上記従来技術のアクリル系樹脂組成物においては、アクリル系樹脂とリン酸基含有化合物との組み合わせによっては、アクリル系樹脂に対するリン酸基含有化合物や銅イオン等の溶解性が悪くなる場合があることが判明した。このように溶解性が悪くなると、樹脂組成物の調製時や、この組成物が

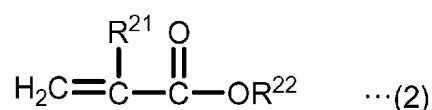
ら中間膜等を形成した場合等に濁りが生じやすくなり、これに起因して優れた透明性が得られ難くなる傾向にある。

[0010] これに対し、本発明の重合性組成物は、上述の如く、アルキルリン酸エステルを、モノエステル体及びジエステル体のモル比が特定範囲となるように含有するものである。かかる条件を満たすアルキルリン酸エステルは、銅イオンとともに(メタ)アクリルモノマーに対して極めて溶解され易い特性を有している。したがって、このようなアルキルリン酸エステルを含む重合性組成物によれば、中間膜を形成した場合等に濁り等が発生し難くなる。したがって、本発明の重合性組成物を用いることによって、従来に比して優れた透明性を有する合わせガラスを得ることが可能となる。

[0011] 上記一般式(1a)で表されるアルキルリン酸モノエステル及び上記一般式(1b)で表されるアルキルリン酸ジエステルにおいて、上記 R^1 で表される基は、それぞれ独立に炭素数4～16のアルキル基であるとより好ましい。このようなアルキルリン酸(モノ又はジ)エステルは、(メタ)アクリルモノマーに対する溶解性に一層優れるものである。したがって、これらを含む重合性組成物は、優れた透明性を有する中間膜を更に容易に形成し得るものとなる。

[0012] また、上記(メタ)アクリル系モノマーは、下記一般式(2)で表される化合物を50～100質量%含むものであるとより好ましい。

[化2]



[式中、 R^{21} は水素原子又はメチル基、 R^{22} は炭素数4～12のアルキル基を示す。]

[0013] 上記構造を有する化合物を含む(メタ)アクリル系モノマーは、優れた柔軟性を有する重合体を形成し得る。特に、(メタ)アクリル系モノマー中のかかる化合物の含有量が上記範囲である場合、その重合体は、適度な柔軟性を有するとともに、適度な剛性をも有するものとなる。このため、上記の(メタ)アクリル系モノマーを含む重合性組成物を中間膜として備える合わせガラスは、上述したような透明性のみならず、優れた耐貫通性を具備するものとなり得る。

[0014] また、上記本発明の重合性組成物は、上記各成分に加え、重合性官能基を有する

リン酸エステルのモノエステル体及び／又はジエステル体からなる重合性リン酸エステルを更に含むことが好ましい。このようにリン酸エステルとして、アルキルリン酸エステルと重合性リン酸エステルとを組み合わせると、(メタ)アクリルモノマーに対する溶解性が更に良好となる。このため、上記構成の重合性組成物は、その重合体が、柔軟性及び剛性の両方に更に優れるものとなるほか、極めて透明性にも優れるものとなる。その結果、上記構成の重合性組成物からなる重合体を中間膜として備える合わせガラスは、透明性及び耐貫通性の両方が一層優れるものとなる。

- [0015] 本発明の重合性組成物に含まれる重合性リン酸エステルは、芳香環を有していないものであると好ましい。また、重合性リン酸エステルは、重合性官能基としてエチレン性不飽和基を有していると更に好ましい。これらにより、得られる合わせガラスの透明性及び耐貫通性が更に優れるようになる。
- [0016] 本発明はまた、上記本発明の重合性組成物を重合して得られた重合体を提供する。このような重合体は、上記本発明の重合性組成物からなるものであるため、上述の如く、優れた近赤外光吸収性を有するほか、優れた透明性を有している。
- [0017] 本発明はさらに、上記本発明の重合体からなるシート状成形物を提供する。このようなシート状成形物は、後述する合わせガラス用の中間膜としてのほか、近赤外光吸収性を有するフィルム等として多様な用途に用いることができる。
- [0018] また、本発明の中間膜は、合わせガラス用中間膜として好適であり、一对の透光性基板間に配置される中間膜であって、上記本発明の重合体からなることを特徴とするものである。このような中間膜は、上述の如く、優れた近赤外光吸収性及び透明性を有するものとなる。
- [0019] さらに本発明は、上記本発明の中間膜を備える積層体を提供する。すなわち、本発明の積層体は、一对の透光性基板と、透光性基板間に配置された上記本発明の中間膜とを備えることを特徴とする。このような積層体は、いわゆる合わせガラスとして適用可能である。そして、この積層体は、上記本発明の重合性組成物から形成された中間膜を有していることから、優れた近赤外光吸収性のほか、優れた透明性も有しており、窓材等として極めて有用なものとなる。

発明の効果

- [0020] 本発明によれば、従来に比して良好な透明性を有する中間膜を容易に得ることができる重合性組成物を提供することが可能となる。また、かかる重合性組成物を用いてなる重合体、シート状成形物及び中間膜、並びに、この中間膜を備える積層体を提供することが可能となる。

図面の簡単な説明

- [0021] [図1]合わせガラスの断面構造の一例を模式的に示す図である。
[図2]反射層を有する合わせガラスの断面構造の一例を模式的に示す図である。

符号の説明

- [0022] 1…透光性基板、2…中間膜、10…合わせガラス、20…合わせガラス、21…透光性基板、22…中間膜、23…赤外反射層。

発明を実施するための最良の形態

- [0023] 以下、本発明の好適な実施の形態について説明する。

[重合性組成物]

- [0024] 本実施形態の重合性組成物は、(メタ)アクリル系モノマー、2価の銅イオン、及び、アルキルリン酸エステルを含むものである。以下、これらの各成分の好適な例について説明する。

- [0025] ((メタ)アクリル系モノマー)

まず、(メタ)アクリル系モノマーについて説明する。(メタ)アクリル系モノマーは、(メタ)アクリル基を一つ又は二つ以上有するモノマーである。なお、本明細書において、「(メタ)アクリル」の表記は、「アクリル」及び「メタクリル」の両者をまとめて示すものであり、これらのうちいずれか一方又は両方を含むものを包含する。また、本明細書においては、「(メタ)アクリレート」も同様に、「アクリレート」及び「メタクリレート」の両者をまとめて示すものである。

- [0026] (メタ)アクリル系モノマーとしては、(メタ)アクリル酸又は(メタ)アクリル酸エステルが挙げられる。(メタ)アクリル酸エステルにおいて、エステル結合の酸素に結合される官能基としては、脂肪族炭化水素基、脂環式炭化水素基、芳香族炭化水素基等が挙げられる。また、これらの基が、エーテル結合、エステル結合、アミド結合、ウレタン結合、尿素結合等を介して複数結合してなる官能基であってもよい。さらに、当該官

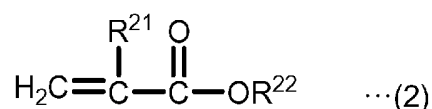
能基には、更に、水酸基、アミノ基、チオール基、エポキシ基等が結合していてもよい。

[0027] (メタ)アクリル系モノマーとしては、(メタ)アクリル酸エステルが好ましい。具体的には、以下に示す化合物が挙げられる。すなわち、メチル(メタ)アクリレート、エチル(メタ)アクリレート、*n*-プロピル(メタ)アクリレート、*n*-ブチル(メタ)アクリレート、イソブチル(メタ)アクリレート、ターシャリーブチル(メタ)アクリレート、*n*-ヘキシル(メタ)アクリレート、*n*-オクチル(メタ)アクリレート、ラウリル(メタ)アクリレート、ステアリル(メタ)アクリレート、2-エチルヘキシル(メタ)アクリレート等のアルキル(メタ)アクリレート類、グリシジル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート、ヒドロキシブチル(メタ)アクリレート、イソボルニル(メタ)アクリレート、メトキシポリエチレン(メタ)アクリレート、フェノキシ(メタ)アクリレート等の変性(メタ)アクリレート類、エチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ジエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ポリエチレングリコールジ(メタ)アクリレート、ポリプロピレングリコールジ(メタ)アクリレート、1, 3-ブチレングリコールジ(メタ)アクリレート、1, 4-ブタンジオールジ(メタ)アクリレート、1, 6-ヘキサジオールジ(メタ)アクリレート、ネオペンチルグリコールジ(メタ)アクリレート、2-ヒドロキシ-1, 3-ジ(メタ)アクリレート、2, 2-ビス[4-(メタ)アクリロキシエトキシフェニル]プロパン、2-ヒドロキシ-1-(メタ)アクリロキシ-3-(メタ)アクリロキシプロパン、トリメチロールプロパントリ(メタ)アクリレート、ペンタエリトリットリ(メタ)アクリレート、ペンタエリトリットテトラ(メタ)アクリレート等の多官能(メタ)アクリレート類等が挙げられる。これらの(メタ)アクリル酸エステルは、上述したものを単独で用いてもよく、複数組み合わせ用いてもよい。

[0028] (メタ)アクリル酸エステルとしては、上述したなかでも、(メタ)アクリル酸アルキルエステルが好ましく、なかでも、エステル結合の酸素に結合される官能基が、炭素数4~12のアルキル基であるものが好ましく、6~10のアルキル基であるものがより好ましい。すなわち、下記一般式(2)で表される化合物が好ましい。式中、 R^{21} は水素原子又はメチル基、 R^{22} は炭素数4~12のアルキル基、好ましくは炭素数6~10のアルキル基を示す。重合性組成物に含まれる(メタ)アクリル系モノマーが、下記式(2)で表

される化合物を50～100質量%、好ましくは60～100質量%含むものであると、かかる(メタ)アクリル系モノマーを含む重合性組成物の柔軟性が良好となる傾向にある。

[化3]



[0029] このような(メタ)アクリル酸アルキルエステルとしては、メチルメタクリレート、*n*-ブチルメタクリレート、シクロヘキシルメタクリレート、2-エチルヘキシルメタクリレート、イソデシルメタクリレート、ラウリルメタクリレート等が挙げられる。これらの(メタ)アクリル酸アルキルエステルは、単独で又は複数種組み合わせて用いることができる。

[0030] (2価の銅イオン)

次に、2価の銅イオンについて説明する。2価の銅イオンは、重合性組成物中に、例えば、銅塩として供給される。このような銅塩の具体例としては、酢酸銅、蟻酸銅、ステアリン酸銅、安息香酸銅、エチルアセト酢酸銅、ピロリン酸銅、ナフテン酸銅、クエン酸銅等の有機酸の銅塩無水物、水和物若しくは水化物、或いは、塩化銅、硫酸銅、硝酸銅、塩基性炭酸銅等の無機酸の銅塩の無水物、水和物若しくは水化物、又は、水酸化銅が挙げられる。これらのなかでは、酢酸銅、酢酸銅一水和物、安息香酸銅、水酸化銅、塩基性炭酸銅が好ましく用いられる。なお、銅イオン源であるこれらの銅塩は、単独で用いてもよく、複数組み合わせて用いてもよい。

[0031] 銅イオンは、重合性組成物に含有されて、当該組成物又はその硬化物に近赤外光を吸収する特性を付与し得るものである。また、かかる銅イオンは、後述するリン酸エステルと組み合わせて含有されることによって、重合性組成物に対する溶解性が極めて良好なものとなる。よって、このような形態で銅イオンが配合された本発明の重合性組成物は、近赤外光を吸収する特性に優れるほか、優れた透明性をも有するものとなる。

[0032] (アルキルリン酸エステル)

次に、アルキルリン酸エステルについて説明する。アルキルリン酸エステルは、上記一般式(1a)で表されるアルキルリン酸モノエステル、及び、上記一般式(1b)で表さ

れるアルキルリン酸ジエステルを含有するものである。なお、アルキルリン酸ジエステルにおける R^1 で表される2つのアルキル基は、同一でもよく、異なってもよい。

[0033] 上記一般式(1a)又は(1b)で表されるアルキルリン酸エステルにおいて、 R^1 で表されるアルキル基は、直鎖状、分岐状及び環状のうちのいずれであってもよく、これらを組み合わせてなる基であってもよい。なかでも、 R^1 で表されるアルキル基としては、炭素数4～16のアルキル基が好ましく、炭素数4～12のアルキル基がより好ましい。なお、アルキルリン酸モノエステル及びアルキルリン酸ジエステルにおける R^1 は、それぞれ同一であってもよく、異なってもよい。

[0034] 具体的には、 R^1 で表されるアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、2-エチルヘキシル基、イソデシル基、ラウリル基、ステアリル基等が挙げられる。なかでも、*n*-ブチル基、2-エチルヘキシル基、イソデシル基、ラウリル基又はステアリル基が好ましく、*n*-ブチル基、2-エチルヘキシル基、イソデシル基又はラウリル基がより好ましい。

[0035] 上述の如く、重合性組成物中には、上記一般式(1a)で表されるアルキルリン酸モノエステル及び上記一般式(1b)で表されるアルキルリン酸ジエステルの両方が含まれている。重合性組成物中におけるアルキルリン酸モノエステル／アルキルリン酸ジエステルのモル比は、20／80～80／20の範囲内であると好ましく、30／70～70／30の範囲内であるとより好ましく、35／65～62／38の範囲内であると更に好ましい。このモル比の値が上記範囲外であると、アルキルリン酸エステルの混合物の(メタ)アクリル系モノマーに対する溶解性が不十分となり、十分な透明性を有する合わせガラスを得難くなる傾向にある。

[0036] (重合性リン酸エステル)

本実施形態に係る重合性組成物は、重合性リン酸エステルを更に含有していると好ましい。より具体的には、重合性リン酸エステルとしては、下記一般式(3)で表される化合物が好ましい。

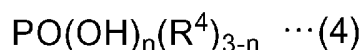
[化4]



[0037] 式中、 R^3 は重合性官能基を有する有機基を示し、 s は1又は2を示す。 s が1である場合、2つの R^3 は同一でも異なってもよい。重合性リン酸エステル化合物には、 s が1である化合物及び2である化合物のいずれか一方又は両方が含まれることとなる。ここで、重合性官能基としては、ラジカル重合、アニオン重合、カチオン重合等を生じ得る官能基が挙げられる。この重合性官能基としては、重合性を有する不飽和結合を含む官能基が挙げられ、エチレン性不飽和基が好ましく、(メタ)アクリル基がより好ましい。 R^3 としては、これらの重合性官能基そのもの、又は、このような重合性官能基を含む有機基が挙げられる。後者の場合、 R^3 は、重合性官能基を末端又は内部のいずれに有するものであってもよい。

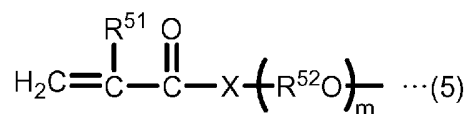
[0038] このような重合性リン酸エステル化合物としては、下記一般式(4)で表される化合物が好ましい。

[化5]



[0039] 式中、 R^4 は下記一般式(5)で表される基であり、 n は1又は2である。ただし、下記式(5)中、 R^{51} は水素原子又はメチル基、 R^{52} はアルキレン基、 X は単結合又は酸素原子を示し、 m は0～10の整数である。なお、 n が1である場合、2つの R^4 は同一であってもよく、異なってもよい。

[化6]

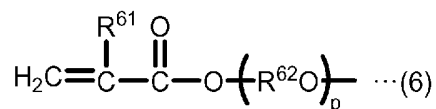


[0040] 上記式(4)で表される化合物における R^4 である、上記一般式(5)で表される基においては、 R^{52} は、アルキレン基である。このアルキレン基としては炭素数2～97のアルキレン基が好ましく、炭素数1～20のアルキレン基がより好ましく、炭素数1～6のアルキレン基が更に好ましい。また、 X としては、酸素原子が好ましく、 m は1～5の整数であると好ましい。ただし、 X が単結合である場合には、 m は1以上であることが好ましい。

[0041] なかでも、上記一般式(4)で表される重合性リン酸エステルにおいては、 R^4 として、

下記一般式(6)で表される基を有していると更に好ましい。

[化7]



[0042] 上記式(6)で表される基においては、 R^{62} が炭素数1～4のアルキレン基であるとより好ましく、 p が1～5の整数であるとより好ましい。具体的には、上記一般式(4)で表される重合性リン酸エステル化合物としては、例えば、 R^4 が、(メタ)アクリロイルオキシエチル基、(メタ)アクリロイルオキシブチル基、(メタ)アクリロイルオキシプロピル基、(メタ)アクリロイルポリ(オキシエチル)基、(メタ)アクリロイルポリ(オキシブチル)基、及び、(メタ)アクリロイルポリ(オキシプロピル)基からなる群より選ばれるいずれか1種の基であるものが挙げられる。なお、重合性リン酸エステル化合物は、上述した構造を有するもののうちの1種類を単独で含有していてもよく、複数種類を組み合わせて含有していてもよい。

[0043] 重合性リン酸エステルは、モノエステル体(上記式(3)において $s=2$ である化合物)、及びジエステル体(上記式(3)において $s=1$ である化合物)のうちの少なくとも一方を含んでいるが、これらの両方を含むとより好ましい。これらの両方を含むことにより、重合性組成物の(メタ)アクリル系モノマーに対する溶解性等が更に向上し、得られる合わせガラスの透明性及び耐貫通性が更に良好となる傾向にある。かかる効果をより良好に得るためには、モノエステル体/ジエステル体の比は、モル比として、20/80～80/20が好ましく、30/70～70/30がより好ましく、40/60～60/40が更に好ましく、45/55～55/45が特に好ましい。重量比としては、モノエステル体/ジエステル体の比は、10/90～90/10が好ましく、20/80～80/20がより好ましく、30/70～70/30が更に好ましく、35/65～65/35が特に好ましい。

[0044] (重合性組成物)

以上のように、本実施形態の重合性組成物中には、(メタ)アクリル系モノマー、2価の銅イオン及びアルキルリン酸(モノ及びジ)エステルが含まれている。このような重合性組成物において、2価の銅イオンは、2価の銅イオンのままの状態が存在していてもよいが、上述したアルキルリン酸(モノ及びジ)エステルとイオン結合又は配位結

合を形成して、アルキルリン酸エステル—銅錯体の状態で存在していてもよい。

- [0045] 後者のように錯体を形成していると、(メタ)アクリル系モノマーやその重合体に対する銅イオンの溶解性が更に高まり、重合性組成物やこれを用いた中間膜の透明性が一層優れるようになる。このアルキルリン酸エステル—銅錯体は、例えば、上述した銅イオン源と、アルキルリン酸(モノ又はジ)エステルとを所定の溶媒中で混合して反応させることによって、予め形成させてもよい。
- [0046] 重合性組成物におけるこれらの各成分の好適な配合量は以下に示すとおりである。すなわち、重合性組成物中の(メタ)アクリル系モノマーの含有量は、20～99.5質量%であると好ましく、50～99質量%であるとより好ましく、70～99質量%であると更に好ましい。また、銅イオン及びアルキルリン酸(モノ及びジ)エステルの含有量は、0.5～80質量%であると好ましく、1～50質量%であるとより好ましく、1～30質量%であると更に好ましい。かかる含有量は、上述したアルキルリン酸エステル—銅錯体が形成される場合も同様である。
- [0047] この含有量が0.5質量部未満であると、0.5質量部以上である場合に比して、重合性組成物からなる中間膜等の近赤外光吸収性能が不十分となる傾向にある。一方、45質量部を超えると、銅イオン及びアルキルリン酸(モノ及びジ)エステル、又は、これらの錯体が、(メタ)アクリル系モノマー又はその重合体中に均一に溶解又は分散し難くなり、重合性組成物又はその重合体の透明性が悪くなる傾向にある。
- [0048] また、2価の銅イオンに対するアルキルリン酸(モノ及びジ)エステルの合計含有量は、以下の条件を満たすとより好ましい。すなわち、アルキルリン酸(モノ及びジ)エステルが水酸基を有している場合、その水酸基の合計量/Cu(イオン)が、モル比で、1～6であると好ましく、1～4であるとより好ましく、1.5～2.5であると更に好ましい。この比率が1未満であると、重合性組成物からなる中間膜等の近赤外光吸収性能や透明性が低下する傾向にある。一方、6を超えると、銅イオンとの配位結合又はイオン結合に関与しない水酸基の量が過大となり、吸湿性が過度に大きくなる傾向にある。
- [0049] さらに、重合性組成物が、上述したアルキルリン酸エステルに加え、重合性リン酸エステルを更に含む場合には、アルキルリン酸エステル/重合性リン酸エステルの比

は、モル比として、50/50~95/5が好ましく、50/50~90/10がより好ましく、50/50~85/15が更に好ましく、50/50~80/20が特に好ましく、50/50~57/43が一層好ましい。重量比としては、アルキルリン酸エステル/重合性リン酸エステルの比は、50/50~95/5が好ましく、50/50~90/10がより好ましく、50/50~85/15が更に好ましく、50/50~80/20が更に好ましい。アルキルリン酸エステル/重合性リン酸エステルの比(モル比又は重量比)が50/50より小さいと(0/100以上50/50未満)、重合性組成物の重合体が脆くなりやすく、これを中間膜に用いた積層体(合わせガラス等)の耐貫通性が不十分になる場合がある。一方、アルキルリン酸エステル/重合性リン酸エステルの比(モル比又は重量比)が95/5より大きいと(95/5を超え100/0以下)、重合性リン酸エステルの可溶化促進効果が不十分になる場合があり、重合性組成物の重合体を中間膜として用いた積層体(合わせガラス等)の透光性が低下する場合がある。

[0050] (その他の成分)

本実施形態の重合性組成物には、上述した(メタ)アクリル系モノマー、2価の銅イオン及びアルキルリン酸エステル以外に、所望とする特性に合わせてその他の成分が含まれていてもよい。以下、重合性組成物に含まれていてもよいその他の成分について説明する。

[0051] その他の成分としては、まず、重合性組成物やその重合体の紫外光に対する安定性を更に向上させるために、紫外光吸収剤を含有させることができる。紫外光吸収剤としては、ベンゾエート系化合物、サリシレート系化合物、ベンゾフェノン系化合物、ベンゾトリアゾール系化合物、シアノアクリレート系化合物、シュウ酸アニリド系化合物、トリアジン系化合物等が挙げられる。

[0052] より具体的には、ベンゾエート系化合物としては、2, 4-ジ-*t*-ブチルフェニル-3', 5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシベンゾエートが挙げられ、サリシレート系化合物としては、フェニルサリシレートや*p*-*t*-ブチルフェニルサリシレートが挙げられる。

[0053] ベンゾフェノン系化合物としては、2, 4-ジ-ヒドロキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン-5-スル

ホン酸、2-ヒドロキシ-4-n-オクチルオキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-n-ドデシルオキシベンゾフェノン、2, 2', 4, 4'-テトラヒドロベンゾフェノン、ビス(5-ベンゾイル-4-ヒドロキシ-2-メトキシフェニル)メタン、2, 2'-ジヒドロキシ-4, 4'-ジメトキシベンゾフェノン、2, 2'-ジヒドロキシ-4, 4'-ジメトキシベンゾフェノン-5, 5'-ジスルホン酸ナトリウム、2, 2'-ジヒドロキシ-5-メトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メタクリロイルオキシエチルベンゾフェノン、4-ベンゾイルオキシ-2-ヒドロキシベンゾフェノン、2, 2', 4, 4'-テトラヒドロキシベンゾフェノン等が挙げられる。

[0054] ベンゾトリアゾール系化合物としては、2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール、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、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-t-ブチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-t-ブチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-5-t-オクチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-5-t-ブチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-[2'-ヒドロキシ-3'-(3'', 4'', 5'', 6''-テトラヒドロフタリミドメチル)-5'-メチルフェニル]ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-t-アミルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-5-t-オクチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-[2'-ヒドロキシ-3', 5'-ビス(α , α -ジメトキシベンゾイル)フェニル]ベンゾトリアゾール、2, 2'-メチレンビス[4-(1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル)-6-(2N-ベンゾトリアゾール-2-イル)フェノール]、2-(2'-ヒドロキシ-5'-メタクリロイルオキシエチルフェニル)-2H-ベンゾトリアゾール、2-(2'-ヒドロキシ-3'-ドデシル-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール、メチル-3-[3-t-ブチル-5-(2H-ベンゾトリアゾール-2-イル)-4-ヒドロキシフェニル]プロピオネートとポリエチレングリコールとの縮合物等が挙げられる。

[0055] シアノアクリレート系化合物としては、エチル-2-シアノ-3, 3-ジフェニルアクリレートやオクチル-2-シアノ-3, 3-ジフェニルアクリレートが挙げられ、シュウ酸アニリド系化合物としては、2-エトキシ-2'-エチルオキサリク酸ビスアニリドや2-エトキシ-5-t-ブチル-2'-エチルオキサリク酸ビスアニリドが挙げられる。また

、トリアジン系化合物としては、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]-フェノールが挙げられる。

[0056] また、重合性組成物は、光に対する安定性を更に向上させるための光安定剤を含有することもできる。特に、上述した紫外光吸収剤とこの光安定剤を併用すると、光に対する安定性が極めて良好となる傾向にある。光安定剤としては、ヒンダードアミン系光安定剤(HALS)や、Ni系化合物を適用可能である。

[0057] より具体的には、HALSとしては、ビス(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)セバケート、ビス(1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル)セバケート、1-[2-[3-(3,5-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオニルオキシ]エチル]-4-[3-(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオニルオキシ]-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン、4-ベンゾイルオキシ-2,2,6,6-テトラメチルピペリジン、8-アセチル-3-ドデシル-7,7,9,9-テトラメチル-1,3,8-トリアザスピロ[4,5]デカン-2,4-ジオン、ビス-(1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル)-2-(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-2-*n*-ブチルマロネート、テトラキス(1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル)-1,2,3,4-ブタンテトラカルボキシレート、テトラキス(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)-1,2,3,4-ブタンテトラカルボキシレート、(Mixed 1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル/トリデシル)-1,2,3,4-ブタンテトラカルボキシレート、Mixed {1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジル/ β , β , β' , β' -テトラメチル-3,9-[2,4,8,10-テトラオキサスピロ(5,5)ウンデカン]ジエチル}-1,2,3,4-ブタンテトラカルボキシレート、(Mixed 2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル/トリデシル)-1,2,3,4-ブタンテトラカルボキシレート、Mixed {2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル/ β , β , β' , β' -テトラメチル-3,9-[2,4,8,10-テトラオキサスピロ(5,5)ウンデカン]ジエチル}-1,2,3,4-ブタンテトラカルボキシレート、2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジルメタクリレート、1,2,2,6,6-ペンタメチル-4-ピペリジルメタクリレート、ポリ[(6-(1,1,3,3-テトラメチルブチル)イミノ-1,3,5-トリアジン-2,4-ジイル)][(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジル)イミノ]ヘキサメチレン[(2,2,6,6-テトラメチル-4-ピペリジ

ル)イミノール]、ジメチルサシネートポリマー-with-4-ヒドロキシ-2, 2, 6, 6-テトラメチル-1-ピペリジンエタノール、N, N', N'', N'''-テトラキス-(4, 6-ビス-(ブチル-(N-メチル-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン-4-イル)アミノ)-トリアジン-2-イル)-4, 7-ジアザデカン-1, 10-ジアミン、ジブチルアミン-1, 3, 5-トリアジン-N, N'-ビス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル-1, 6-ヘキサメチレンジアミンとN-(2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジル)ブチルアミンの重縮合物、デカン二酸ビス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-1-(オクチルオキシ)-4-ピペリジニル)エステル等が挙げられる。

[0058] また、Ni系の光安定剤としては、[2, 2'-チオ-ビス(4-t-オクチルフェノレート)]-2-エチルヘキシルアミン-ニッケル(II)、ニッケルジブチルジチオカーボネート、[2, 2'-チオ-ビス(4-t-オクチルフェノレート)]-ブチルアミン-ニッケル(II)等が挙げられる。

[0059] その他、重合性組成物を安定化するための成分として、抗酸化剤、熱安定剤等を含有させてもよく、色調を調整するための成分として、染料、顔料、金属化合物等を添加してもよい。さらに、界面活性剤、難燃剤、帯電防止剤、耐湿剤等を添加してもよい。

[0060] また、上記重合性組成物を合わせガラスの中間膜に適用することを考慮して、ガラス等の透光性基板に対する密着性を調整するための成分を更に添加することもできる。アルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩、シラン化合物等を添加することもできる。

[0061] アルカリ金属塩又はアルカリ土類金属塩としては、有機酸又は無機酸のアルカリ金属塩又はアルカリ土類金属塩が挙げられる。有機酸としては、オクタン酸、ヘキサノ酸、酪酸、酢酸、蟻酸等のカルボン酸等が例示できる。無機酸としては、塩酸、硝酸等が例示できる。また、アルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩としては、例えば、カリウム、ナトリウム、カルシウム、マグネシウム等の塩が挙げられる。

[0062] 有機酸又は無機酸のアルカリ金属塩又はアルカリ土類金属塩のなかでも、炭素数2~16の有機酸のアルカリ金属塩又はアルカリ土類金属塩が好ましく、炭素数2~16のカルボン酸のカリウム塩又はマグネシウム塩がより好ましい。炭素数2~16のカルボン酸のカリウム塩及びマグネシウム塩としては、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-エチルブタン酸マグネシウム、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、2-エチルヘキサン酸カリウム等が好適である。これらは単独で用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0063] 有機酸又は無機酸のアルカリ金属塩又はアルカリ土類金属塩の配合量の好ましい下限値は、(メタ)アクリル系モノマー100質量部に対して0.001質量部であり、好ましい上限値は、0.5重量部である。この配合量が0.001質量部未満であると、高湿度雰囲気下で接着力が低下するおそれがある。一方、0.5質量部を超えると、重合性組成物からなる中間膜の透明性が低下する場合がある。このような観点から、上記配合量のより好ましい下限値は0.01質量部であり、より好ましい上限値は0.2質量部である。

[0064] また、上記シラン化合物としては、変性シリコーンオイルが例示できる。変性シリコーンオイルとしては、例えば、エポキシ変性シリコーンオイル、エーテル変性シリコーンオイル、エステル変性シリコーンオイル、アミン変性シリコーンオイル、カルボキシル変性シリコーンオイル等が挙げられる。これらは、単独で用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。なお、これらの変性シリコーンオイルは、一般にポリシロキサンに、変性させるべき化合物を反応させることによって得ることができる。

[0065] これらの変性シリコーンオイルの分子量の好ましい下限値は800であり、上限値は5000である。変性シリコーンオイルの分子量が800未満であると、800以上である場合に比して、シリコーンオイルの表面への局在化が不十分となる場合がある。一方、5000を超えると、(メタ)アクリル系モノマーとの相溶性が低下してしまい、中間膜表面にブリードアウトしてガラスとの接着力を低下させる場合がある。このような観点から、変性シリコーンオイルの分子量のより好ましい下限値は1500であり、より好ましい上限値は4000である。

[0066] また、変性シリコーンオイルの配合量の好ましい下限値は、(メタ)アクリル系モノマー100質量部に対して0.01質量部であり、上限値は0.2質量部である。変性シリコーンオイルの配合量が0.01質量部未満であると、0.01質量部以上である場合に比して、吸湿による白化を防止する効果が不十分となって、中間膜の透明性が低下

する原因となる場合がある。一方、0.2質量部を超えると、(メタ)アクリル系モノマーとの相溶性が低下してしまい、中間膜表面にブリードアウトしてガラスとの接着力を低下させる場合がある。このような観点から、変性シリコンオイルのより好ましい下限値は0.03質量部であり、より好ましい上限値は0.1質量部である。

- [0067] また、重合性組成物は、更なる特性を得ることを目的として、上述した銅イオン以外の金属イオンを更に含んでいてもよい。金属イオンとしては、例えば、希土類金属、鉄、マンガン、ニッケル、クロム、インジウム、チタン、アンチモン、スズ等の金属イオンが挙げられる。なかでも、希土類金属は、希土類イオンのf軌道の電子遷移によって特定波長光(580nm近傍や520nm近傍)の吸収特性が優れている。これらの波長域は、人間の眼球の視細胞が有する最大応答波長を合致することから、希土類元素を含有させることで、重合性組成物又はその重合体に防眩性を付与することができる。希土類元素としては、ネオジム、プラセオジム又はホルミニウムが例示できる。

[重合体]

- [0068] 上述した重合性組成物からなる重合体は、後述するように、シート状成形物とすることにより近赤外光吸収性を有するフィルム等として適用でき、また、一對の透光性基板間に配置することにより近赤外光吸収性を有する合わせガラス用の中間膜として適用できる。

- [0069] このような重合体は、例えば、上述した(メタ)アクリル系モノマーからなる構造単位を有するポリマーと、このポリマー中に溶解又は分散した銅イオン及びアルキルリン酸(モノ及びジ)エステル、好ましくはアルキルリン酸エステル—銅錯体とを含むものである。

- [0070] (メタ)アクリル系モノマーからなる構造単位を有するポリマーとは、(メタ)アクリル系モノマーが重合してなるポリマーであり、(メタ)アクリル系モノマーのみからなるホモポリマーであってもよく、他の単量体成分とを組み合わせるコポリマーであってもよい。このようなポリマー中において、(メタ)アクリル系モノマーからなる構造単位は、各構造単位におけるエステル結合の酸素に結合される官能基として、好ましくは炭素数4～12、より好ましくは炭素数6～10のアルキル基を有している。

[光学部材]

[0071] 上述した重合性組成物を用いることにより、近赤外光を遮断する特性に優れるとともに、従来にも増して優れた透明性を有する種々の光学部材を得ることができる。このような光学部材としては、以下に示す第1及び第2の形態が挙げられる。

第1の形態：重合性組成物を加工して得られるシート状成形物。

第2の形態：透光性基板と、この透光性基板に隣接して設けられた重合性組成物からなる重合性組成物層とを有する積層体。

[0072] (シート状成形物)

まず、第1の形態のシート状成形物について説明する。シート状成形物は、上記重合性組成物の重合体からなるものである。シート状成形物の形態としては、具体的には、シートやフィルムが挙げられる。ここで、シートとは、 $250\ \mu\text{m}$ を超える厚さを有する薄板状のものである。また、フィルムとは、厚さ $5\sim 250\ \mu\text{m}$ の薄い膜状のものである。これらのシート又はフィルムは、公知のシート又はフィルム形成方法を用いて作製可能である。具体的には、熔融押出成形法、延伸成形法、カレンダー成形法、プレス成形法、溶液キャスト法等が挙げられる。

[0073] (積層体)

次に、第2の形態の積層体について説明する。積層体は、透光性基板と、この透光性基板に隣接して設けられた、重合性組成物からなる重合性組成物層とを少なくとも有している。

[0074] 積層体において、透光性基板を構成する材料は、可視光透過性を有する透光性材料であれば特に限定されず、積層体の用途に応じて適宜選択可能である。良好な硬度、耐熱性、耐薬品性、耐久性等を得る観点からは、ガラスやプラスチックが好適に使用される。ガラスとしては、無機ガラス、有機ガラス等が挙げられ、目的に応じて、色ガラス、透過率に波長依存性のあるUVカットガラス、又は、グリーンガラス等の遮熱機能を有するガラスといった特定の機能を有するガラスを用いることもできる。また、プラスチックとしては、例えば、ポリカーボネート、アクリロニトリルスチレン共重合体、ポリメチルメタクリレート、塩化ビニル樹脂、ポリスチレン、ポリエステル、ポリオレフィン、ノルボルネン樹脂等が例示できる。これらもガラスと同様、特定の機能を有するものを適宜選択して用いてもよい。なお、透光性基板が複数存在する場合には、各

基板は、同じ種類の材料で構成されたものであってもよく、異なる材料で構成されたものであってもよい。

[0075] このような積層体は、例えば、以下のようにして製造可能である。すなわち、まず、上述したシート状成形物であるシートやフィルムを形成した後、このシート等と透光性基板とを張り合わせるることによって製造することができる。これらを張り合わせる方法としては、プレス法、マルチロール法、減圧法等の加圧又は減圧により接着する手段、オートクレーブ等により加熱して接着する手段、又は、これらを組み合わせた手段が例示できる。

[0076] また、このように予め形成したシートを張り合わせる方法以外に、透光性基材上に、重合性組成物層を直接形成する方法も適用できる。このような方法としては、例えば、重合性組成物を適宜の溶媒に溶解及び／又は分散させてコーティング剤とし、この溶液を透光性基板に塗布した後、溶媒を蒸発させて、透光性基材上に重合性組成物からなる薄膜、被覆物又は薄層を形成する方法が挙げられる。こうして形成された薄膜等は、コーティングと呼ばれる。このような方法を用いて重合性組成物層を形成する場合には、当該層の平坦性を高める目的で、レベリング剤、消泡剤といった各種の界面活性剤等の溶解補助剤を、上述したコーティング剤中に添加してもよい。

[0077] (合わせガラス)

積層体は、上述したような透光性基板と重合性組成物層とを一層ずつ備えるものに限定されず、これらの層を複数備えるものであってもよい。具体的には、一対の透光性基板と、この透光性基板間に配置された上記重合性組成物からなる中間膜(重合性組成物層)とを備えるものが挙げられる。このような積層体は、いわゆる合わせガラスと呼ばれ、強度等に優れるという特性を有しており、窓材等として好適に用いることができる。

[0078] ここで、図1を参照して、好適な実施形態の合わせガラスについて説明する。

[0079] 図1は、実施形態の合わせガラスの断面構造の一例を模式的に示す図である。図1に示される合わせガラス10は、一対の透光性基板1と、この一対の透光性基板1に挟持された中間膜2とを備えるものである。中間膜2は、上述した実施形態の重合性組成物からなる重合体である。また、透光性基板1としては、上述した積層体と同様

のものが適用できる。

- [0080] かかる構造の合わせガラス10は、例えば、一組の透光性基板1の間に、上述した重合性組成物からなるシート状成形物を挟み、これを予備圧着して各層間に残存した空気を除去した後、本圧着してこれらを密着させる方法によって製造することができる。また、一組の透光性基板を所定の間隔をおいて配置し、この間に重合前の液状の重合性組成物を導入した後、かかる重合性組成物を重合させる方法により製造することもできる。
- [0081] なお、前者のように、シート状成形物を挟む方法により合わせガラス10を製造する場合、中間膜2となるシート状成形物には、その保管時に、当該シート同士が合着して塊状となる、いわゆるブロッキング現象が生じていないことや、予備圧着における脱気性が良好であること等が求められる。これらの要求を満たしている場合、透光性基材1とシート等とを重ね合わせる際の作業性が良好となるほか、例えば脱気が不十分であるために生じた気泡等による透光性の低下を防ぐことができる。
- [0082] 窓材等に適用する観点からは、合わせガラス10には、近赤外光を遮断する特性のほか、可視光透過性、すなわち可視光領域の光を透過する特性に優れることが求められる。そして、優れた可視光透過性を得るためには、中間膜2自身の透光性が良好であることのほか、透光性基板1と中間膜2との間に、濁りの原因となる気泡が極力残存していないことが好ましい。中間膜2による気泡の発生は、重合性組成物の種類や粘弾性等の物性により左右されるが、中間膜2の表面形状によっても大きく左右される傾向にある。
- [0083] 表面形状を変化させることにより気泡の発生を低減する手段の一つとして、表面にエンボスと呼ばれる多数の微小な凹凸を有する中間膜2を用いる方法が知られている。エンボスが施された中間膜2によれば、上述した予備圧着工程等における脱気性が良好となるほか、残存する気泡が極めて微小となって中間膜2中に取り込まれ易くなる。その結果、合わせガラス10は、透光性基板1と中間膜2との間の気泡の残存が少ないものとなり、気泡による透光性の低下が極めて少ないものとなる。
- [0084] エンボスの形態としては、例えば、多数の凸部とこれらの凸部に対する多数の凹部とからなる各種凸凹模様、多数の凸条とこれらの凸条に対する多数の凹溝とからなる

各種の凸凹模様、粗さ、配置、大きさ等の種々の形状因子に関し多様な値を有するエンボス形状がある。

[0085] これらのエンボスとしては、例えば、特開平6-198809号公報に記載された、凸部の大きさを変え、その大きさ、配置を規定したもの、特開平9-40444号公報に記載された、表面の粗さを20~50 μ mとしたもの、特開平9-295839号公報に記載された、凸条が交差するように配置されたもの、或いは、特開2003-48762号公報に記載された、主凸部の上に更に小さな凸部を形成されたものが挙げられる。また、エンボス形状を施す方法としては、例えば、特表2003-528749に、樹脂成形時に発生するメルトフラクチャーを利用する方法が記載されている。また、特表2002-505211、特表平9-502755等に、架橋PVB粒子や造核剤を用いる方法が記載されている。

[0086] また、近年、合わせガラス10に求められている他の特性として、遮音性が挙げられる。遮音性が優れる合わせガラスによれば、例えば、窓材に用いた場合に、周囲の騒音等の影響を低減できるようになり、更に室内環境を向上させ得る。一般に、遮音性能は、周波数の変化に応じた透過損失量として示され、その透過損失量は、JISA 4708では、500Hz以上において遮音等級に応じてそれぞれ一定値で規定されている。

[0087] 一般の合わせガラスにおける透光性基板として頻繁に用いられるガラス板は、2000Hzを中心とする周波数領域では、その遮音性能が、コインシデンス効果により著しく低下する傾向にある。ここで、コインシデンス効果とは、ガラス板に音波が入射した時、ガラス板の剛性と慣性によって、ガラス板状を横波が伝播してこの横波と入射音とが共鳴し、その結果、音の透過が起こる現象をいう。したがって、一般的な合わせガラスでは、2000Hzを中心とする周波数領域において遮音性能の低下を避け難く、この点の改善が求められている。

[0088] これに関し、人間の聴覚は、等ラウドネス曲線から、1000~6000Hzの範囲では他の周波数領域に比べ非常に良い感度を示すことが知られている。従って、上述したコインシデンス効果による遮音性能の落ち込みを解消することは、防音性能を高める上で重要となる。このような観点から、合わせガラス10の遮音性能を高めるには、コイ

ンシデンス効果による遮音性能の低下を緩和し、このコインシデンス効果に起因する透過損失の極小部の低下を防ぐ必要がある。

[0089] ここで、合わせガラス10に遮音性を付与する方法としては、合わせガラス10の質量を増大させる方法、透光性基板1となるべきガラスを複合化する方法、このガラス面積を細分化する方法、ガラス板支持手段を改善する方法などがある。このほか、遮音性能は、中間膜2の動的粘弾性により左右され、特に貯蔵弾性率と損失弾性率との比である損失正接に影響されることが知られている。そこで、この値を制御することによっても合わせガラス10の遮音性能を高めることができる。

[0090] 中間膜2の損失正接の値を制御する手段としては、例えば、特定の重合度を有する樹脂膜を用いる方法、特開平4-2317443号公報に記載されるような樹脂の構造を規定する方法、特開2001-220183号公報に記載されるような樹脂中の可塑剤量を規定する方法等が挙げられる。また、異なる2種以上の樹脂を組み合わせることで中間膜を形成することによっても、広い温度範囲にわたって合わせガラス10の遮音性能を高め得ることが知られている。例えば、特開2001-206742号公報に記載された、複数種の樹脂をブレンドする方法、特開2001-206741号公報、特開2001-226152号公報に記載された、複数種の樹脂を積層する方法、特開2001-192243号公報に記載された、中間膜中の可塑剤量に偏向を持たせる方法等が挙げられる。これらの技術を適宜採用し、樹脂構造の改質、可塑剤の添加、2種以上の樹脂の組み合わせ等といった手段を組み合わせることで、中間膜2を形成すべき樹脂材料の損失正接の値を良好に制御することが可能となり、所望の遮音性を得ることが容易となる。

[0091] さらに、合わせガラス10は、近赤外光を遮断すること以外による遮熱性を更に発現し得るものであると好ましい。合わせガラス10の遮熱性を高める方法としては、中間膜2中に、遮熱機能を有する酸化物微粒子を更に含有させる方法が挙げられる。このような方法としては、例えば、特開2001-206743号公報、特開2001-261383号公報、特開2001-302289号公報等に記載された方法を適用できる。また、合わせガラス中に、酸化物微粒子等を含む層を更に設けることによっても遮熱性を向上し得る。

- [0092] 酸化物微粒子としては、錫ドーパ酸化インジウム(ITO)、アンチモンドープ酸化錫(ATO)、アルミニウムドーパ酸化亜鉛(AZO)等が挙げられる。なお、酸化物微粒子が含有された中間膜2は、透光性が低下しやすい傾向にあることから、十分な透光性が得られるように酸化物微粒子の粒径を規定する方法や(特開2002-293583号公報)、酸化物微粒子の分散性を高める方法等を適用してもよい。後者のように酸化物微粒子の分散性を高めるための方法としては、当該微粒子を機械的に分散させることや、分散剤を用いること等の公知の微粒子分散技術が適用できる。
- [0093] 合わせガラスの遮熱性を高める方法としては、上述した酸化物微粒子を含有させる方法以外に、例えば、遮熱機能を有する有機系の染料・顔料を含有させる方法や、遮熱性能を有する透光性基板を用いる方法も挙げられる。遮熱機能を有する有機系の染料・顔料を含有させる方法としては、特開平7-157344号公報、特許第319271号公報に記載された方法が挙げられる。有機染料・顔料としてはフタロシアニン系、アントラキノン系、ナフトキノ系、シアニン系、ナフタロシアニン系、ピロール系、イモニウム系、ジチオール系、メルカプトナフトール系等が例示できる。
- [0094] また、遮熱性能を有する透光性基板としては、例えば、特開2001-151539号公報に記載されたFe等の遷移金属を含有するガラス(例えば、グリーンガラス等)、特開2001-261384号公報、特開2001-226148号公報に記載された金属、金属酸化物を多層コーティングしたガラス板が挙げられる。
- [0095] このように、上述した実施形態の合わせガラス10は、中間膜2に含まれる近赤外光吸収材料が近赤外光領域の光線を吸収することによって、熱線である近赤外光を遮断する特性を発揮するものであるが、合わせガラス10は、更なる近赤外光遮断特性の向上を目的として、近赤外光吸収性を有する中間膜2に加えて、近赤外光を反射する特性を有する層(赤外反射層)を更に備えていてもよい。このような赤外反射層は、合わせガラスの任意の位置に導入することができる。
- [0096] 図2は、反射層を有する合わせガラスの断面構造の一例を模式的に示す図である。合わせガラス20は、透光性基板21、中間膜22、赤外反射層23及び透光性基板21をこの順に備える構造を有している。透光性基板21及び中間膜22は、上述した合わせガラス10における透光性基板1及び中間膜2と同様のものが適用できる。

- [0097] 赤外反射層23としては、金属や金属酸化物から構成される層が挙げられる。具体的には、例えば、金、銀、銅、錫、アルミニウム、ニッケル、パラジウム、ケイ素、クロム、チタン、インジウム、アンチモン等の金属単体、合金、混合物又は酸化物が例示できる。このような赤外反射層23は、例えば、当該層23を形成すべき面上に、例えば、金属や金属酸化物を蒸着することによって形成することができる。また、赤外反射層23としては、特表平09-506837、特表2000-506082、特表2000-506084、特表2004-525403、特表2003-515754、特開2002-231038、特表2004-503402等々に示されるような、光の干渉を利用して特定波長を反射する高分子多層フィルムを適用してもよい。
- [0098] ここで、上述した合わせガラス20のように、透光性基板21と中間膜22との間に赤外反射層23を形成すると、この赤外反射層23とこれに隣接する層（例えば、中間膜22）との接着性が低下してしまう場合がある。こうなると、例えば合わせガラス20が破損した場合に、透光性基板21が剥離・飛散し易くなり、安全性の点で問題が生じることとなる。
- [0099] そこで、このような接着性の低下を避けるために、中間膜22と赤外反射層23との間には、両者の接着力を向上させ得る層を更に設けることもできる。両層間の接着力を調整する手段としては、例えば、以下に示す方法が挙げられる。すなわち、合わせガラス20のように、中間膜22と赤外反射層23とが隣接する場合には、これらの間に、中間膜22よりも高いアセタール度を有するポリビニルアセタールからなる層（特開平7-187726号公報、特開平8-337446号公報）を設ける方法、所定の割合のアセトキシ基を有するPVBからなる層（特開平8-337445号公報）を設ける方法、又は、所定のシリコンオイルからなる層（特開平7-314609号公報）を設ける方法等が採用できる。なお、合わせガラスにおいて、赤外反射層は、上述したように透光性基板と中間膜との間に設けられている必要は必ずしもなく、透光性基板の間に複数の樹脂からなる層が形成されている場合等は、これらの層の間に設けられた形態であってもよい。
- [0100] このように、合わせガラスにおいては、近赤外光吸収性を有する中間膜に加えて、近赤外光反射性を有する反射層を更に設けることで、両層の効果により、合わせガラ

スに対して極めて優れた近赤外光遮断特性を付与することができる。また、上述したような、赤外反射層と中間膜(赤外吸収層)との接着性を改善する方法を採用すれば、近赤外光遮断特性に加え、より優れた強度を有する合わせガラスを得ることも可能となる。

[0101] 上述した構成を有する合わせガラス等の積層体においては、太陽光等の熱線成分を含む光が入射すると、本発明の重合性組成物からなる中間膜が発現する近赤外光吸収性によって、近赤外光領域(波長700～1200nm程度)の熱線が遮断される。一般に、この波長領域の光線は、肌が焼きつくようなジリジリとした刺激的な暑さを感じさせる傾向にあるが、上述した積層体を透過する光線は、このような近赤外光が遮断されることとなる。よって、かかる積層体を窓材等に用いれば、室内や屋内の温度上昇を抑えることができる。

[0102] また、上記積層体(合わせガラス)の中間膜を形成する重合性組成物は、上述の如く、所定のモノエステル/ジエステル比を有するアルキルリン酸エステルを含有している。そして、このような条件を満たすアルキルリン酸エステルは、銅イオンとともに、又は銅イオンと錯体を形成して、重合性組成物中に含まれる(メタ)アクリル系モノマー中に良好に溶解又は分散され得る。このため、本発明の重合性組成物からなる中間膜等は、リン酸基含有化合物と樹脂成分との相溶性の悪さに起因する濁り等が極めて生じ難いものとなり、可視光領域の光の透過性(すなわち透光性)が極めて良好となる。その結果、このような中間膜を備える積層体(合わせガラス)は、近赤外光吸収性及び透光性の双方に優れるものとなり、窓材等の用途において極めて有効である。

[0103] このように、本発明の積層体(合わせガラス)は、優れた近赤外光遮断性能を有していることから、太陽光等の自然光その他の外光を取り入れるための建材(建築物の部材に限定されない)、例えば、自動車、船舶、航空機又は電車(鉄道)車両の窓材、アーケード等の通路の天蓋材、カーテン、カーポートやガレージの天蓋、サンルームの窓又は壁材、ショーウィンドウやショーケースの窓材、テント又はその窓材、ブラインド、定置住宅や仮設住宅等の屋根材や天窓その他窓材、道路標識等の塗装面の被覆材、パラソル等の日除け具材、その他熱線の遮断が必要とされる種々の部材に好

適に用いることができる。

実施例

[0104] 以下、本発明を実施例により更に詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

[アルキルリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物の調製]

[0105] (調製例1)

まず、アルキルリン酸エステルとして、リン酸モノエステル成分とリン酸ジエステル成分との割合がモル比で50:50である2-エチルヘキシルリン酸エステル混合物(東京化成製)2.76g及びジ-2-エチルヘキシルリン酸エステル(東京化成製)2.24gを混合して、リン酸モノエステル成分とリン酸ジエステル成分との割合が、モル比で30:70である2-エチルヘキシルリン酸エステルを調製した。

[0106] 次に、得られた2-エチルヘキシルリン酸エステルに、酢酸銅一水和物を2.18g、トルエン15gを加えて、脱酢酸還流を行った。それから、反応後の溶液をろ過した後、トルエンを留去して、アルキルリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物を得た。

[0107] (調製例2)

アルキルリン酸エステルとしてリン酸モノエステル成分とリン酸ジエステル成分との割合がモル比で50:50である2-エチルヘキシルリン酸エステル混合物50.00gを準備し、これに酢酸銅一水和物を27.8g、トルエン150gを加えた後、脱酢酸還流を行った。次に、反応後の溶液をろ過した後、トルエンを留去して、アルキルリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物を得た。

[0108] (調製例3)

アルキルリン酸エステルとして、リン酸モノエステル成分とリン酸ジエステル成分との割合が、モル比で60:40である2-エチルヘキシルリン酸エステルを調製した。次いで、この2-エチルヘキシルリン酸エステル5.00gに対して、酢酸銅一水和物を3.16g用いたこと以外は、調整例1と同様にしてアルキルリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物を得た。

[0109] (調製例4)

アルキルリン酸エステルとして、リン酸モノエステル成分とリン酸ジエステル成分との

割合が、モル比で65:35である2-エチルヘキシルリン酸エステルを調製した。次いで、この2-エチルヘキシルリン酸エステル5.00gに対して、酢酸銅一水和物を3.34g用いたこと以外は、調整例1と同様にしてアルキルリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物を得た。

[0110] (調製例5)

アルキルリン酸エステルとして、リン酸モノエステル成分とリン酸ジエステル成分との割合が、モル比で70:30である2-エチルヘキシルリン酸エステルを調製した。次いで、この2-エチルヘキシルリン酸エステル5.00gに対して、酢酸銅一水和物を3.51g用いたこと以外は、調整例1と同様にしてアルキルリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物を得た。

[0111] (調製例6)

アルキルリン酸エステルとして、リン酸モノエステル成分とリン酸ジエステル成分との割合が、モル比で80:20である2-エチルヘキシルリン酸エステルを調製した。次いで、この2-エチルヘキシルリン酸エステル5.00gに対して、酢酸銅一水和物を3.84g用いたこと以外は、調整例1と同様にしてアルキルリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物を得た。

[0112] (調製例7)

アルキルリン酸エステルとして、リン酸モノエステル成分とリン酸ジエステル成分との割合がモル比で50:50であるn-ブチルリン酸エステル混合物(東京化成製)5.00gを準備した。次いで、このn-ブチルリン酸エステル混合物に対して酢酸銅一水和物2.37gを用いたこと以外は調整例1と同様にして、アルキルリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物を得た。

[0113] (調製例8)

アルキルリン酸エステルとして、リン酸モノエステル成分とリン酸ジエステル成分との割合が、モル比で50:50であるイソデシルリン酸エステル混合物(商品名AP-10、大八化学製)5.00gを準備した。次いで、このイソデシルリン酸混合物に対して酢酸銅一水和物2.43gを用いたこと以外は調整例1と同様にして、アルキルリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物を得た。

[0114] (調製例9)

アルキルリン酸エステルとして、リン酸モノエステル成分とリン酸ジエステル成分との割合が、モル比で50:50のラウリルリン酸エステル混合物(商品名JP-512、城北化学製)5.00gを準備した。次いで、このラウリルリン酸エステル混合物に対し、酢酸銅一水和物2.14gを用いたこと以外は調整例1と同様にして、アルキルリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物を得た。

[0115] (比較調製例1)

アルキルリン酸エステルとして、ジ-2-エチルヘキシルリン酸エステル66.6gを準備した。次いで、このジ-2-エチルヘキシルリン酸エステルに対し、酢酸銅一水和物20.0g、トルエン180gを加えたこと以外は、調整例1と同様にして、アルキルリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物を得た。

[0116] (比較調製例2)

アルキルリン酸エステルとして、リン酸モノエステル成分とリン酸ジエステル成分との割合がモル比で50:50である2-エチルヘキシルリン酸エステル混合物1.00g及びジ-2-エチルヘキシルリン酸エステル4.00gを混合して、リン酸モノエステル成分とリン酸ジエステル成分との割合が、モル比で10:90である2-エチルヘキシルリン酸エステルを調製した。得られた2-エチルヘキシルリン酸エステルに対して、酢酸銅一水和物を1.76g用いたこと以外は、調整例1と同様にしてアルキルリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物を得た。

[0117] (比較調製例3)

リン酸モノエステル成分とリン酸ジエステル成分との割合がモル比で50:50である2-メトキシプロピルリン酸エステルを準備した。この2-メトキシプロピルリン酸エステル5gに対して酢酸銅一水和物を5g用いたこと以外は、調製例1と同様にしてリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物を得た。

[0118] (比較調製例4)

リン酸モノエステル成分とリン酸ジエステル成分との割合がモル比で75:25である2-メトキシプロピルリン酸エステルを調製した。この2-メトキシプロピルリン酸エステル5gに対して酢酸銅一水和物を5.04g用いたこと以外は、調製例1と同様にしてリ

ン酸エステル及び銅イオンを含む組成物を得た。

[重合性組成物の調製]

[0119] (実施例1～9及び比較例1～4)

調製例1～9及び比較調製例1～4で得られたアルキルリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物0.5gを、2-エチルヘキシルメタクリレート(東京化成製)9.5gに溶解させ、実施例1～9及び比較例1～4の重合性組成物を調製した。なお、調製例1～9の組成物を用いた場合が実施例1～9にそれぞれ該当し、比較調製例1～4の組成物を用いた場合が比較例1～4にそれぞれ該当する。

[0120] (実施例10)

調製例2で得られたアルキルリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物0.5gを、n-ブチルメタクリレート(東京化成製)9.5gに溶解させて、実施例10の重合性組成物を得た。

[0121] (実施例11)

n-ブチルメタクリレートに代えて、イソデシルメタクリレート(共栄社化学株式会社製)を用いたこと以外は、実施例10と同様にして実施例11の重合性組成物を得た。

[0122] (実施例12)

n-ブチルメタクリレートに代えて、ラウリルメタクリレート(共栄社化学株式会社製)を用いたこと以外は、実施例10と同様にして実施例12の重合性組成物を得た。

[0123] (実施例13)

n-ブチルメタクリレートに代えて、シクロヘキシルメタクリレート(共栄社化学株式会社製)を用いたこと以外は、実施例10と同様にして、実施例13の重合性組成物を得た。

[0124] (実施例14)

調製例2で得られたアルキルリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物に代えて、調製例8で得られたアルキルリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物を用いたこと以外は、実施例10と同様にして実施例14の重合性組成物を得た。

[重合体の透明性の評価]

[0125] (合わせガラスの作製)

実施例1～14及び比較例1～4の重合性組成物をそれぞれ用い、以下に示すように合わせガラスを作製した。

[0126] まず、重合性組成物に、 α -メチルスチレン0.02gとt-ブチルパーオキシネオデカノエート0.10gを添加してよく攪拌した。また、厚さ3mm、75mm×75mmのサイズを有するフロート板ガラスを2枚準備し、これを互いに対向するように1mm離間させた状態で保持して、これらの側面を、注入口を除いてポリエステルテープで封止した。

[0127] それから、注入口から上記攪拌後の組成物を注入した後、当該注入口をポリエステルテープで塞いだ。次いで、重合性組成物が注入された状態のガラス板をオーブン内に静置し、このオーブン内温度を40℃として8時間保持した。その後、3時間かけてオーブン内温度を110℃に上昇させた後、同温度で3時間維持して、重合性組成物の重合・硬化を行い、これにより重合性組成物の重合体からなる中間膜を形成させた。冷却後、側面にまきつけたポリエステルテープをはがし、合わせガラスを得た。

[0128] (ヘーズの測定)

実施例1～14及び比較例1～4の重合性組成物をそれぞれ用いて得られた合わせガラスの出来上がり時のヘーズを、JIS K 7136に準拠した方法により測定した。得られた結果を表1に示す。このヘーズが低いほど、合わせガラスの透明性が優れることを示している。なお、表1中、各重合性組成物に用いたアルキルリン酸エステル(比較例3及び4にあつては2-メトキシプロピルリン酸エステル)におけるモノエステル体／ジエステル体のモル比(表中、「モノ／ジ比」と表記する)、アルキルリン酸エステルのアルキル基の炭素数(表中、「C(リン酸)」と表記する)、及び、(メタ)アクリル系モノマーのエステル結合の酸素に結合されたアルキル基の炭素数(表中、「C(モノマー)」と表記する)を合わせて示した。

[0129] [表1]

	モノ／ジ比	「C(リン酸)」	「C(モノマー)」	ヘーズ
実施例 1	30／70	8	8	9. 7
実施例 2	50／50	8	8	0. 1
実施例 3	60／40	8	8	5. 0
実施例 4	65／35	8	8	2. 1
実施例 5	70／30	8	8	5. 3
実施例 6	80／20	8	8	3. 3
実施例 7	50／50	4	8	2. 0
実施例 8	50／50	10	8	0. 7
実施例 9	50／50	12	8	23. 5
実施例 10	50／50	8	4	1. 6
実施例 11	50／50	8	10	0. 3
実施例 12	50／50	8	12	10. 1
実施例 13	50／50	4	6	1. 1
実施例 14	50／50	10	4	2. 0
比較例 1	0／100	8	8	57. 6
比較例 2	10／90	8	8	45. 4
比較例 3	50／50	－(2－メトキシ プロピル基)	8	95. 4
比較例 4	75／25	－(2－メトキシ プロピル基)	8	86. 34

[0130] 表1より、アルキルリン酸モノエステル／アルキルリン酸ジエステルとのモル比が好適な範囲内であった重合性組成物を用いて得られた実施例1～14の合わせガラスは、かかる比の値が好適な範囲外であった比較例1～2の重合性組成物を用いて得られた合わせガラスに比してヘーズの値が大幅に小さかった。また、リン酸エステルとして2－メトキシプロピルリン酸エステルを用いた重合性組成物を用いて得られた比較例3又は4の合わせガラスは、実施例の合わせガラスに比してヘーズの値が大幅に大きかった。

[アルキルリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物の調製]

[0131] (調製例10)

酢酸銅・一水和物199. 7gに2－エチルヘキシルメタクリレート416. 6gを加え、さらにこの混合物に、アルキルリン酸エステルとして、リン酸モノエステル成分とリン酸ジ

エステル成分との割合がモル比で50:50である2-エチルヘキシルリン酸エステル混合物(東京化成社製)355.1gを加えた後、この混合物を100℃にて1時間加熱した。加熱後の混合溶液を、減圧下でエバポレートすることにより酢酸および水を溜去して、アルキルリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物と2-エチルヘキシルメタクリレートとの混合物(混合比50:50(質量比))833.2gを得た。

[0132] (比較調製例5)

酢酸銅・一水和物199.7gにトルエン1200gを加え、さらにこの混合物に、アルキルリン酸エステルとして、ジ-2-エチルヘキシルリン酸エステル(東京化成社製)644.8gを加えて、100℃で1時間加熱し溶液を得た。加熱後の混合溶液を還流しながら酢酸及び水を溜去した。その後、減圧下でエバポレートすることによりトルエンを溜去して、アルキルリン酸エステル及び銅イオンを含む組成物706.4gを得た。

[重合性リン酸エステル及び銅イオンを含む組成物の調製]

[0133] (調製例11)

酢酸銅・一水和物199.7gにメチルメタクリレート400gを加え、さらにこの混合物に、重合性リン酸エステルとして、リン酸モノエステル成分とリン酸ジエステル成分との割合がモル比で50:50である2-メタクリロイルオキシエチルリン酸エステル混合物(共栄社化学(株)製)354.9gを加えた後、この混合物を100℃にて1時間加熱した。加熱後の混合溶液を、減圧下でエバポレートすることにより酢酸、水及びメチルメタクリレートを溜去し、重合性リン酸エステル及び銅イオンを含む組成物416.5gを得た。

[重合性組成物の調製及び合わせガラスの作製]

[0134] まず、調製例10、調製例11及び比較調整例5で得られた各リン酸エステル及び銅イオンを含む組成物のうちの一種以上を、(メタ)アクリル系モノマー及びその他の成分とともに表2に示す配合比となるように混合して、実施例15～17及び比較例5～7の重合性組成物を調製した。

[表2]

成分		実施例 15	実施例 16	実施例 17	比較例 5	比較例 6	比較例 7
(メタ)アクリレート	MMA	35	35	35	35	35	35
	2EH-MA	20	20	20	20	20	20
	nBu-A	17	17	17	17	17	17
	2EH-A	18	18	18	18	18	18
リン酸エステル及び銅を含む組成物	調製例10	5	7.5	8.75	—	—	—
	比較調整例5	—	—	—	—	5	7.5
	調製例11	5	2.5	1.25	10	5	2.5
重合開始剤	P-ND	1	1	1	1	1	1
重合調整剤	α -MeSt	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2

[0135] なお、表2中の略号は以下に次に示す通りである。すなわち、MMAはメチルメタクリレート、2EH-MAは2-エチルヘキシルメタクリレート、nBu-Aはn-ブチルアクリレート、2EH-Aは2-エチルヘキシルアクリレートをそれぞれ示す。また、P-NDは、パーブチルND(ラジカル発生剤、t-ブチルパーオキシネオデカノエートの70%溶液、日本油脂社製)、 α -MeStは、 α -メチルスチレン(重合速度調整剤)をそれぞれ示す。

[0136] 次に、実施例15～17及び比較例5～7の重合性組成物を用いて以下に示す方法で合わせガラスを作製した。すなわち、まず、厚さ3mm、170mm×170mmのサイズを有するフロート板ガラスを2枚準備し、これを互いに対向するように1mm離間させた状態で保持した。両者の側面を、注入口を除いてポリエステルテープで封止した。そして、注入口から重合性組成物を注入した後、当該注入口をポリエステルテープで塞いだ。重合性組成物が注入された状態のガラス板をオーブン内に静置して、このオーブン内温度を40℃で8時間保持した。その後、3時間かけてオーブン内温度を110℃に上昇させた後、同温度で3時間維持して、重合性組成物の重合・硬化を行い、これにより重合性組成物の重合体からなる中間膜を形成させた。冷却後、側面にまきつけたポリエステルテープをはがし、合わせガラスを得た。

[透明性及び耐貫通性の評価]

[0137] 以下に示す方法に従って、実施例15～17及び比較例5～7の重合性組成物を用いて得られた各合わせガラスのヘーズの測定及び耐貫通性の評価を行った。得られ

た結果を表3に示した。また、表3には、各重合性組成物で用いたアルキルリン酸エステルにおけるモノエステル体／ジエステル体のモル比(表中、「モノ／ジ比」と表記する)を併せて示した。

[0138] (ヘーズの測定)

実施例15～17及び比較例5～7の重合性組成物を用いて得られた合わせガラスの出来上がり時のヘーズを、それぞれJIS K 7136に準拠した方法により測定した。このヘーズが低いほど、合わせガラスの透明性が優れることを示している。

[0139] (耐貫通性の評価)

実施例15～17及び比較例5～7の重合性組成物を用いて得られた合わせガラスを、それぞれ外枠サイズ230mm×230mm、内枠サイズ150mm×150mmのステンレス製枠2枚で挟み、水平に固定した。こうして固定された合わせガラスのそれぞれに、直径63.5mm、質量1044gのクロム製鋼球を、80cmの高さから合わせガラスの中心部近傍に自由落下させ、ガラスが割れたときの、ガラス間に配置された中間膜の破断の程度を目視で確認した。

[表3]

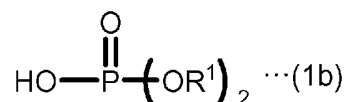
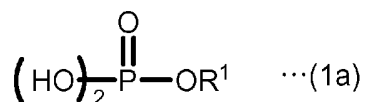
評価	実施例 15	実施例 16	実施例 17	比較例 5	比較例 6	比較例 7
モノ／ジ比	50／50	50／50	50／50	—	0／100	0／100
ヘーズ(%)	0.1	2.5	3.0	0.1	21.6	32.9
耐貫通性	破断なし	破断なし	破断なし	破断あり	破断なし	破断なし

[0140] 表3より、実施例15～17の重合性組成物を用いて得られた合わせガラスは、ヘーズが3.0以下と低く透明性に優れるほか、破断を生じなかったことから耐貫通性にも優れることが判明した。これに対し、アルキルリン酸エステルを含有しなかった比較例5の重合性組成物で得られた合わせガラスは、ヘーズは低かったものの破断が生じ、耐貫通性に劣ることが判明した。また、重合性リン酸エステルとアルキルリン酸エステルのジエステル体とを組み合わせた比較例6又は7の重合性組成物により得られた合わせガラスは、破断を生じなかったもののヘーズが高く、透明性が不十分であった。

請求の範囲

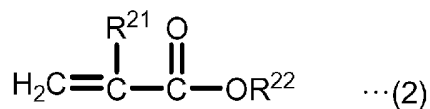
- [1] (メタ)アクリル系モノマーと、2価の銅イオンと、アルキルリン酸エステルと、を含み、
前記アルキルリン酸エステルは、下記一般式(1a)で表されるアルキルリン酸モノエステル、及び、下記一般式(1b)で表されるアルキルリン酸ジエステルを含有しており、
前記アルキルリン酸モノエステル／前記アルキルリン酸ジエステルのモル比が、20／80～80／20である、
ことを特徴とする重合性組成物。

[化1]

[式中、 R^1 はそれぞれ独立にアルキル基を示す。]

- [2] 前記 R^1 は、それぞれ独立に炭素数が4～16のアルキル基であることを特徴とする請求項1記載の重合性組成物。
- [3] 前記(メタ)アクリル系モノマーは、下記一般式(2)で表される化合物を、50～100質量％含んでいることを特徴とする請求項1又は2記載の重合性組成物。

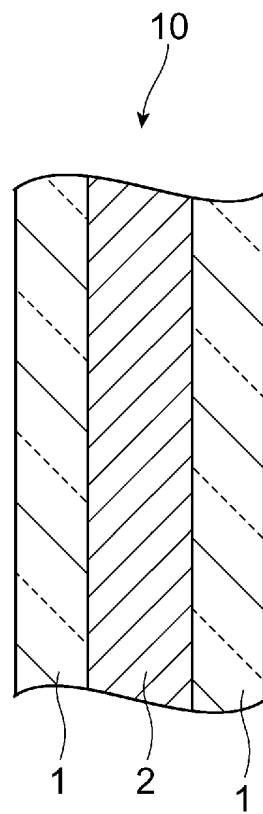
[化2]

[式中、 R^{21} は水素原子又はメチル基、 R^{22} は炭素数4～12のアルキル基を示す。]

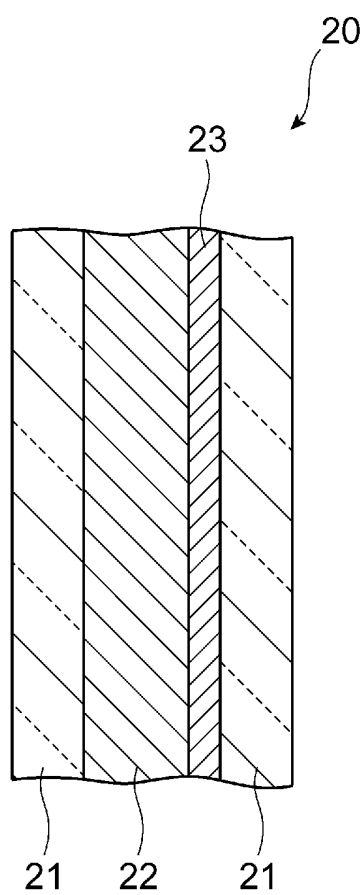
- [4] 重合性官能基を有するリン酸エステルのモノエステル体及び／又はジエステル体からなる重合性リン酸エステルを更に含むことを特徴とする請求項1～3のいずれか一項に記載の重合性組成物。
- [5] 前記重合性リン酸エステルは、芳香環を有しないことを特徴とする請求項4記載の重合性組成物。

- [6] 前記重合性リン酸エステルは、前記重合性官能基としてエチレン性不飽和基を有することを特徴とする請求項4又は5記載の重合性組成物。
- [7] 請求項1～6のいずれか一項に記載の重合性組成物を重合して得られたことを特徴とする重合体。
- [8] 請求項7記載の重合体からなることを特徴とするシート状成形物。
- [9] 一对の透光性基板間に配置される中間膜であって、
請求項7記載の重合体からなることを特徴とする中間膜。
- [10] 一对の透光性基板と、
前記透光性基板間に配置された、請求項7記載の重合体からなる中間膜と、
を備えることを特徴とする積層体。
- [11] 一对の透光性基板を、所定の間隔を隔てて配置する工程と、
前記一对の透光性基板間に請求項1～6のいずれか一項に記載の重合性組成物を注入する工程と、
前記重合性組成物を重合する工程と、
を有する積層体の製造方法。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/301140

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER C08F2/44 (2006.01) , C08F20/00 (2006.01)		
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) C08F2/44 , C08F20/00		
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 1996-2006 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2006 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2006		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) WPIL (QWEB)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 51-142492 A (Toagosei Co., Ltd.), 08 December, 1976 (08.12.76), Claims (Family: none)	1-11
A	JP 2001-19939 A (Kureha Chemical Industry Co., Ltd.), 23 January, 2001 (23.01.01), Claims (Family: none)	1-11
A	JP 2002-69307 A (Matsushita Electric Works, Ltd.), 08 March, 2002 (08.03.02), Claims (Family: none)	1-11
☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 09 February, 2006 (09.02.06)		Date of mailing of the international search report 21 February, 2006 (21.02.06)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C08F2/44(2006.01), C08F20/00(2006.01)

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. C08F2/44, C08F20/00

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	1971-2006年
日本国実用新案登録公報	1996-2006年
日本国登録実用新案公報	1994-2006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)

WPIL(QWEB)

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 請求の範囲の番号
A	JP 51-142492 A(東亜合成株式会社)1976. 12. 08 特許請求の範囲(ファミリーなし)	1-11
A	JP 2001-19939 A(呉羽化学株式会社)2001. 01. 23 特許請求の範囲(ファミリーなし)	1-11
A	JP 2002-69307 A(松下電工株式会社)2002. 03. 08 特許請求の範囲(ファミリーなし)	1-11

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「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

の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

09. 02. 2006

国際調査報告の発送日

21. 02. 2006

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)

▲吉▼澤 英一

電話番号 03-3581-1101 内線 3457

4 J

9543