

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2017年10月5日(05.10.2017)



(10) 国際公開番号
WO 2017/171042 A1

- (51) 国際特許分類:
C03C 27/12 (2006.01) C08F 8/28 (2006.01)
B32B 17/10 (2006.01) C08F 8/44 (2006.01)
B32B 27/22 (2006.01) C08L 29/14 (2006.01)
B32B 27/30 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/013711
- (22) 国際出願日: 2017年3月31日(31.03.2017)
- (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 2016-070651 2016年3月31日(31.03.2016) JP
- (71) 出願人: 積水化学工業株式会社(SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5308565 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号 Osaka (JP).
- (72) 発明者: 進藤 郁(SHINDO, Kaoru); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 永井 康晴(NAGAI, Yasuharu); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP). 谷川裕司(TANIKAWA, Yuji); 〒6180021 大阪府三島郡島本町百山2-1 積水化学工業株式会社内 Osaka (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人 宮▲崎▼・目次特許事務所(MIYAZAKI & METSUGI); 〒5400028 大阪府

大阪府中央区常盤町1丁目3番8号 中央大通 F Nビル Osaka (JP).

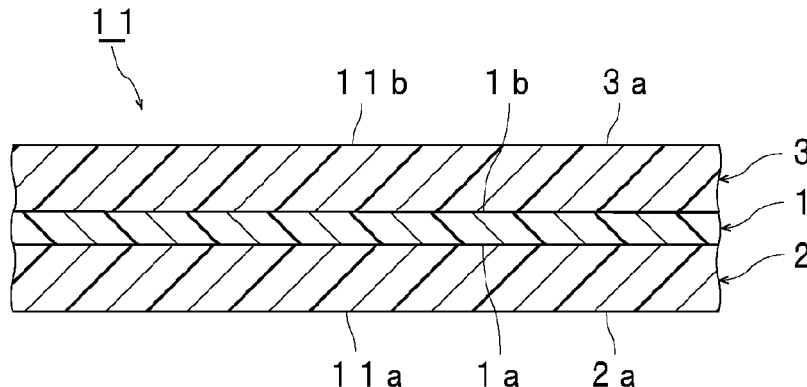
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: POLYVINYL ACETAL IONOMER RESIN FILM, AND LAMINATED GLASS

(54) 発明の名称: ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルム及び合わせガラス



(57) Abstract: Provided is a polyvinyl acetal ionomers resin film having a high Young's modulus and high break elongation. The polyvinyl acetal ionomer resin film according to the present application includes a polyvinyl acetal ionomer resin containing a polyvinyl acetal into which an acid group has been introduced, the acid group content of the polyvinyl acetal ionomer resin being 1.5 mol% to 10 mol%, and the polyvinyl acetal ionomer resin having a neutralization level of 10% to 90%.

(57) 要約: 高いヤング率と、高い破断伸度とを有するポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムを提供する。本発明に係るポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムは、酸基が導入されたポリビニルアセタールを含むポリビニルアセタールアイオノマー樹脂を含み、前記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂の酸基の含有率が1.5モル%以上、10モル%以下であり、前記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂の中和度が10%以上、90%以下である。

WO 2017/171042 A1

明 細 書

発明の名称：

ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルム及び合わせガラス

技術分野

[0001] 本発明は、ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂を含むポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムに関する。また、本発明は、上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムを用いた合わせガラスに関する。

背景技術

[0002] 樹脂フィルムが様々な用途に用いられている。また、合わせガラスに用いられる樹脂フィルムとして、合わせガラス用中間膜が知られている。合わせガラスは、2つのガラス板の間に合わせガラス用中間膜を挟み込むことにより、製造されている。

[0003] 上記合わせガラスは、外部衝撃を受けて破損してもガラスの破片の飛散量が少なく、安全性に優れている。このため、上記合わせガラスは、自動車、鉄道車両、航空機、船舶及び建築物等に広く使用されている。

[0004] 上記合わせガラス用中間膜としては、1層の構造を有する単層の中間膜と、2層以上の構造を有する多層の中間膜とがある。

[0005] 上記合わせガラス用中間膜の一例として、下記の特許文献1には、アセタール化度が60～85モル%のポリビニルアセタール樹脂100重量部と、アルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩の内の少なくとも一種の金属塩0.001～1.0重量部と、30重量部を超える可塑剤とを含む遮音層が開示されている。この遮音層は、単層で中間膜として用いられ得る。

[0006] さらに、下記の特許文献1には、上記遮音層と他の層とが積層された多層の中間膜も記載されている。遮音層に積層される他の層は、アセタール化度が60～85モル%のポリビニルアセタール樹脂100重量部と、アルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩の内の少なくとも一種の金属塩0.001～1.0重量部と、30重量部以下である可塑剤とを含む。

[0007] 下記の特許文献2には、33℃以上のガラス転移温度を有するポリマー層である中間膜が開示されている。特許文献2では、上記ポリマー層が、厚みが4.0mm以下であるガラス板の間に配置されることが記載されている。

[0008] また、下記の特許文献3には、化学的に結合したアイオノマー基を有するポリビニルブチラール成分を含むポリビニルブチラールブレンドが開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0009] 特許文献1：特開2007-070200号公報

特許文献2：US2013/0236711A1

特許文献3：US4969744

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0010] 特許文献1、2に記載のような従来の中間膜（樹脂フィルム）では、ヤング率が低かったり、破断伸度が低かったりする。従来の中間膜では、高いヤング率と、高い破断伸度との双方を両立することが困難である。

[0011] また、特許文献3に記載のポリビニルブチラールブレンドを用いた樹脂フィルムでは、ヤング率はある程度高くなるものの、破断伸度が十分に高くないことがある。

[0012] 本発明の目的は、高いヤング率と、高い破断伸度とを有するポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムを提供することである。また、本発明は、上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムを用いた合わせガラスを提供することも目的とする。

課題を解決するための手段

[0013] 本発明の広い局面によれば、酸基が導入されたポリビニルアセタールを含有するポリビニルアセタールアイオノマー樹脂を含み、前記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂の酸基の含有率が1.5モル%以上、10モル%以

下であり、前記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂の中和度が10%以上、90%以下である、ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムが提供される。

[0014] 本発明に係るポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムのある特定の局面では、80℃でのせん断貯蔵等価弾性率が0.5MPa以上、3MPa以下である。

[0015] 前記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂のアセタール化度が50モル%以上、80モル%以下であり、前記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂の水酸基の含有率が5モル%以上、40モル%以下であり、前記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂のアセチル化度が0.1モル%以上、30モル%以下であることが好ましい。

[0016] 本発明に係るポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムは、可塑剤を含むことが好ましい。前記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂100重量部に対して、前記可塑剤の含有量が10重量部以上であることが好ましい。

[0017] 本発明に係るポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムのある特定の局面では、厚みが3mm以下である。

[0018] 本発明に係るポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムは、合わせガラスを得るために用いられる合わせガラス用中間膜であることが好ましい。本発明に係るポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムは、厚みが1.8mm以下である第1のガラス板を用いて、前記第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられる合わせガラス用中間膜であることが好ましい。

[0019] 本発明の広い局面によれば、第1の合わせガラス部材と、第2の合わせガラス部材と、上述したポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムとを備え、前記第1の合わせガラス部材と前記第2の合わせガラス部材との間に、前記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムが配置されている、合わせガラスが提供される。

発明の効果

[0020] 本発明に係るポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムは、酸基が導入されたポリビニルアセタールを含有するポリビニルアセタールアイオノマー樹脂を含み、上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂の酸基の含有率が1.5モル%以上、10モル%以下であり、上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂の中和度が10%以上、90%以下であるので、ヤング率を高くし、かつ、破断伸度を高くすることができる。

図面の簡単な説明

[0021] [図1]図1は、本発明の第1の実施形態に係るポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムを模式的に示す断面図である。

[図2]図2は、本発明の第2の実施形態に係るポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムを模式的に示す断面図である。

[図3]図3は、図1に示すポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムを用いた合わせガラスの一例を模式的に示す断面図である。

[図4]図4は、図2に示すポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムを用いた合わせガラスの一例を模式的に示す断面図である。

[図5]図5は、曲げ剛性の測定方法を説明するための模式図である。

発明を実施するための形態

[0022] 以下、本発明を詳細に説明する。

[0023] 本発明に係るポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルム（樹脂フィルムと記載することがある）は、合わせガラスを得るために用いられる合わせガラス用中間膜（以下、中間膜と記載することがある）であることが好ましい。但し、本発明に係る樹脂フィルムの用途は、中間膜に限定されない。本発明に係る樹脂フィルムは、例えば、中間膜以外に、太陽電池用の封止剤、コーティング剤、又は接着剤等として用いることができる。

[0024] 本発明に係る樹脂フィルムは、ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂を含む。上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂は、酸基が導入されたポリビニルアセタールを含有する。

- [0025] 上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂は、例えば $-CH_2-CH-$ 基を主鎖に有する。上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂は、ポリビニルアセタール骨格を有する。上記ポリビニルアセタール骨格が、例えば $-CH_2-CH-$ 基を主鎖に有する。 $-CH_2-CH-$ 基における「 $-CH-$ 」部分の炭素原子には、1つの他の基が結合している。上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂では、主鎖において、 $-CH_2-CH-$ 基が連続していることが好ましい。
- [0026] 上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂は、酸基を有する。上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂の酸基の含有率は1.5モル%以上、10モル%以下である。上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂の中和度は10%以上、90%以下である。
- [0027] 本発明では、上記の構成が備えられているので、樹脂フィルム及び中間膜のヤング率を高くし、かつ、樹脂フィルム及び中間膜の破断伸度を高くすることができる。本発明では、高いヤング率と高い破断伸度とを両立することができる。
- [0028] さらに、本発明では、上記の構成が備えられているので、樹脂フィルム及び中間膜の破断強度を高くすることができる。
- [0029] また、合わせガラスが窓ガラスとして、例えば自動車のサイドドアに使用される場合には、合わせガラスを固定する枠がなく、合わせガラスの剛性が低いことに起因する撓みが原因で、窓ガラスの開閉に支障をきたすことがある。
- [0030] また、近年、合わせガラスを軽量化するために、ガラス板の厚みを薄くすることが求められている。2つのガラス板の間に中間膜が挟み込まれた合わせガラスにおいて、ガラス板の厚みを薄くすると、曲げ剛性を十分に高く維持することが極めて困難であるという問題がある。
- [0031] 上記の課題に対して、本発明では、上記の構成が備えられているので、樹脂フィルム及び中間膜の曲げ剛性を高くすることができる。
- [0032] 例えば、ガラス板の厚みが薄くても、中間膜に起因して合わせガラスの曲

げ剛性を高めることができれば、合わせガラスを軽量化することができる。合わせガラスが軽量であると、合わせガラスに用いる材料の量を少なくすることができ、環境負荷を低減することができる。さらに、軽量である合わせガラスを自動車に用いると、燃費を向上させることができ、結果として環境負荷を低減することができる。

[0033] さらに、本発明では、上記の構成が備えられているので、樹脂フィルム及び中間膜の成形性を高めることができる。例えば、樹脂フィルム又は中間膜が適度な柔軟性と適度な硬さを有しているため、合わせガラスを得るためにオートクレーブをする際に、変形することなく、きれいに合わせガラスを作製することができる。

[0034] さらに、本発明では、上記の構成が備えられているので、樹脂フィルム、中間膜及び合わせガラスの耐貫通性を高めることができる。

[0035] 上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂の製造方法としては、例えば、ポリ酢酸ビニルと、酸基になり得る基を有するモノマーとを共重合させ、けん化し、アルデヒドによりアセタール化した後、アイオノマー化する方法、ポリビニルアルコール（PVA）を、酸基になり得る基を有するアルデヒドによりアセタール化した後、アイオノマー化する方法、並びにポリビニルアセタールを、酸基になり得る基を有するアルデヒドによりアセタール化した後、アイオノマー化する方法等が挙げられる。

[0036] 上記ポリビニルアルコールは、例えば、ポリ酢酸ビニルをけん化することにより得られる。上記ポリビニルアルコールのけん化度は、一般に70～99.9モル%である。

[0037] 上記酸基になり得る基としては、カルボキシル基に由来する基、スルホン酸基に由来する基、及びリン酸基に由来する基等が挙げられる。酸基を導入したポリビニルアセタールを生産する際の生産性をより一層良好にする観点からは、上記酸基になり得る基は、カルボキシル基に由来する基又はスルホン酸基に由来する基であることが好ましく、カルボキシル基に由来する基であることがより好ましい。

- [0038] 酸基を導入するための酸としては、カルボン酸、スルホン酸、及びリン酸等が挙げられる。酸基が導入されたポリビニルアセタールを生産する際の生産性をより一層良好にする観点からは、上記酸は、カルボン酸又はスルホン酸であることが好ましく、カルボン酸であることがより好ましい。上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂では、上記酸により、酸基が導入されていることが好ましい。
- [0039] 上記酸基になり得る基を有するモノマーとしては、(メタ)アクリル酸、2-アクリロイルオキシエチルアシッドフォスフェート及び2-アクリロイルオキシエチルーコハク酸等が挙げられる。
- [0040] 上記酸基になり得る基を有するアルデヒドとしては、テレフタルアルデヒド酸、グリオキシル酸、及びレブリン酸等が挙げられる。
- [0041] 上記アイオノマー化の方法としては、溶液中に、金属含有化合物を添加する方法、並びに、混練中に、金属含有化合物を添加する方法等が挙げられる。上記金属含有化合物は、溶液の状態で添加されてもよい。
- [0042] 上記金属含有化合物は、金属塩又は金属酸化物であることが好ましい。
- [0043] 上記金属含有化合物における金属としては、特に限定されないが、アルカリ金属、アルカリ土類金属、及び遷移金属等が挙げられる。ヤング率及び成形性をより一層良好にする観点からは、Na、Li、K、Mg、Zn、Cu、Co、Al、Fe、Ni、Cr又はMnが好ましい。上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂は、Na、Zn、Mg又はKを含むことが好ましい。アイオノマー化に上記金属が用いられていることが好ましい。特にNaを用いることが好ましい。
- [0044] 上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂の酸基の含有率は1.5モル%以上、10モル%以下である。上記酸基の含有率が上記下限以上及び上記上限以下であることで、本発明の効果が奏され、特にヤング率、引張伸度、曲げ剛性及び成形性が高くなる。上記酸基の含有率は、好ましくは1.8モル%以上、より好ましくは2モル%以上、好ましくは7モル%以下、より好ましくは5モル%以下である。上記酸基の含有率が上記下限以上であると、

ヤング率及び引張伸度がより一層良好になる。上記酸基の含有率が上記上限以下であると、成形性がより一層良好になる。

[0045] 上記酸基の含有率は、NMR又はFT-IR等を用いて測定することができる。具体的には、上記酸基の含有率は、装置「NICOLET 6700」(Thermo Scientific社製)を用いて、測定波長 $4000\sim 400\text{ cm}^{-1}$ 、スキャン回数32回で測定を行い、各酸基由来のピークと、各酸の塩のピークとから算出することができる。例えば、カルボン酸であれば、カルボン酸のカルボニル($\text{C}=\text{O} : 1697\text{ cm}^{-1}$)、及び、カルボン酸塩(約 $1500\sim 1600\text{ cm}^{-1}$)からカルボキシル基の含有率を算出することができる。

[0046] 上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂の中和度は、10%以上、90%以下である。上記中和度が上記下限以上及び上記上限以下であることで、本発明の効果が奏され、特にヤング率、引張伸度及び成形性が高くなる。上記中和度は、好ましくは13%以上、より好ましくは15%以上、好ましくは70%以下、より好ましくは60%以下である。上記中和度が上記下限以上であると、ヤング率、曲げ剛性及引張伸度がより一層良好になる。上記中和度が上記上限以下であると、遮音性及び成形性がより一層良好になる。

[0047] 上記中和度は、FT-IR等を用いて測定することができる。FT-IRでは、例えば、カルボキシル基(1715 cm^{-1})と、カルボキシル基の金属塩基(金属により異なる、Znの場合： 1568 cm^{-1} 、Naの場合 1550 cm^{-1})とのシグナル高さから、中和度を算出することができる。

[0048] ヤング率をより一層高める観点からは、樹脂フィルムの 80°C でのせん断貯蔵等価弾性率は好ましくは 0.3 MPa 以上、より好ましくは 0.5 MPa 以上、更に好ましくは 0.7 MPa 以上である。

[0049] 成形性をより一層高める観点からは、 80°C でのせん断貯蔵等価弾性率は好ましくは 3.5 MPa 以下、より好ましくは 3 MPa 以下、更に好ましくは 2.5 MPa 以下である。

[0050] せん断貯蔵等価弾性率は、多層体を単層とみなした時のせん断貯蔵弾性率

のことを示す。なお、単層の場合は、単層のせん断貯蔵弾性率のことを示す。せん断貯蔵等価弾性率については、層間で滑らない場合、例えば、樹脂フィルムを構成する層構成のまま、一般的な動的粘弾性測定方法にてせん断貯蔵弾性率を測定することにより、せん断貯蔵等価弾性率を測定することができる。

[0051] 上記せん断貯蔵等価弾性率を測定する方法としては、樹脂フィルムを、室温 $23 \pm 2^\circ\text{C}$ 、湿度 $25 \pm 5\%$ の環境下に 12 時間保管した直後に、M e t r a v i b 社製の粘弾性測定装置「DMA+1000」を用いて、粘弾性を測定する方法が挙げられる。樹脂フィルムを長さ 50 mm、幅 20 mm で切り出し、せん断モードで $2^\circ\text{C}/\text{分}$ の昇温速度で -50°C から 100°C まで温度を上昇させる条件、及び周波数 1 Hz 及び歪 0.05% の条件で測定することが好ましい。

[0052] また、せん断貯蔵等価弾性率 $G' *$ は以下の式 (X) により求められる。

[0053] $G' * = (\sum i a_i) / (\sum i a_i / G' i) \dots$ 式 (X)

[0054] 上記式 (X) 中の $G' i$ は樹脂フィルムにおける i 層目のせん断貯蔵弾性率を示し、 a_i は樹脂フィルムにおける i 層目の厚みを示す。 $\sum i$ は i 層の数値の和を計算することを意味する。

[0055] 本発明に係る樹脂フィルムは、1 層の構造又は 2 層以上の構造を有する。本発明に係る樹脂フィルムは、1 層の構造を有していてもよく、2 層以上の構造を有していてもよい。本発明に係る樹脂フィルムは、2 層の構造を有していてもよく、3 層以上の構造を有していてもよい。本発明に係る樹脂フィルムは、単層の樹脂フィルムであってもよく、多層の樹脂フィルムであってもよい。

[0056] 上記樹脂フィルムは、第 1 の層のみを備えていてもよく、第 1 の層に加えて第 2 の層を備えていてもよい。上記樹脂フィルムは、第 2 の層をさらに備えることが好ましい。上記樹脂フィルムが上記第 2 の層を備える場合に、上記第 1 の層の第 1 の表面側に、上記第 2 の層が配置される。

[0057] 上記樹脂フィルムは、第 1 の層及び第 2 の層に加えて第 3 の層を備えてい

てもよい。上記樹脂フィルムは、第3の層をさらに備えることが好ましい。上記樹脂フィルムが上記第2の層及び上記第3の層を備える場合に、上記第1の層の上記第1の表面とは反対の第2の表面側に、上記第3の層が配置される。

[0058] 上記第2の層の上記第1の層側とは反対の表面は、合わせガラス部材又はガラス板が積層される表面であることが好ましい。上記第2の層に積層されるガラス板の厚みは1.3 mm以下であることが好ましい。上記第1の層の第1の表面（上記第2の層側の表面）とは反対の第2の表面は、合わせガラス部材又はガラス板が積層される表面であってもよい。上記第1の層に積層されるガラス板の厚みは1.8 mm以下であることが好ましい。上記第3の層の上記第1の層側とは反対の表面は、合わせガラス部材又はガラス板が積層される表面であることが好ましい。上記第3の層に積層されるガラス板の厚みは1.8 mm以下であることが好ましい。

[0059] 上記樹脂フィルムは、第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられる合わせガラス用中間膜であることが好ましい。樹脂フィルムに起因して曲げ剛性を十分に高くすることができるので、上記第1のガラス板の厚みと上記第2のガラス板の厚みとの合計が3 mm以下であることが好ましい。上記樹脂フィルムは、第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられる合わせガラス用中間膜であることが好ましい。樹脂フィルムに起因して曲げ剛性を十分に高くすることができるので、上記樹脂フィルムは、厚みが1.8 mm以下である第1のガラス板を用いて、該第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられる合わせガラス用中間膜であることが好ましい。樹脂フィルムに起因して曲げ剛性を十分に高くすることができるので、上記樹脂フィルムは、厚みが1.8 mm以下である第1のガラス板と厚みが1.8 mm以下である第2のガラス板とを用いて、上記第1のガラス板と上記第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられる合わせガラス用中間膜であることが好まし

い。

- [0060] 以下、図面を参照しつつ、本発明の具体的な実施形態を説明する。
- [0061] 図1に、本発明の第1の実施形態に係るポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムを模式的に断面図で示す。
- [0062] 図1に示す樹脂フィルム11は、2層以上の構造を有する多層の樹脂フィルムである。樹脂フィルム11は、合わせガラスを得るための合わせガラス用中間膜であることが好ましい。樹脂フィルム11は、第1の層1と、第2の層2と、第3の層3とを備える。第1の層1の第1の表面1aに、第2の層2が配置されており、積層されている。第1の層1の第1の表面1aとは反対の第2の表面1bに、第3の層3が配置されており、積層されている。第1の層1は中間層である。第2の層2及び第3の層3はそれぞれ、保護層であり、本実施形態では表面層である。第1の層1は、第2の層2と第3の層3との間に配置されており、挟み込まれている。従って、樹脂フィルム11は、第2の層2と第1の層1と第3の層3とがこの順で積層された多層構造（第2の層2／第1の層1／第3の層3）を有する。
- [0063] なお、第2の層2と第1の層1との間、及び、第1の層1と第3の層3との間にはそれぞれ、他の層が配置されていてもよい。第2の層2と第1の層1、及び、第1の層1と第3の層3とはそれぞれ、直接積層されていることが好ましい。他の層として、ポリエチレンテレフタレート等を含む層が挙げられる。
- [0064] 図2に、本発明の第2の実施形態に係るポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムを模式的に断面図で示す。
- [0065] 図2に示す樹脂フィルム11Aは、1層の構造を有する単層の樹脂フィルムである。樹脂フィルム11Aは、第1の層である。樹脂フィルム11Aは、合わせガラスを得るために用いられる合わせガラス用中間膜であることが好ましい。
- [0066] 以下、本発明に係る樹脂フィルムを構成する上記第1の層、上記第2の層及び上記第3の層の他の詳細、並びに上記第1の層、上記第2の層及び上記

第3の層に含まれる各成分の他の詳細を説明する。

[0067] (樹脂)

上記樹脂フィルムは、ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂を含む。上記第1の層、上記第2の層、及び上記第3の層は、樹脂を含むことが好ましい。上記樹脂としては、熱硬化性樹脂及び熱可塑性樹脂が挙げられる。上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂は、ポリビニルブチラールアイオノマー樹脂であることが好ましい。上記ポリビニルアセタール樹脂は、ポリビニルブチラール樹脂であることが好ましい。上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂及び上記樹脂はそれぞれ、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0068] 上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂及び上記樹脂の重量平均分子量は、好ましくは30000以上、より好ましくは100000以上、更に好ましくは120000以上、好ましくは1500000以下、より好ましくは1300000以下、更に好ましくは1200000以下である。上記重量平均分子量が上記下限以上及び上記上限以下であると、押出成形により樹脂フィルムを容易に得ることができ、更にせん断貯蔵等価弾性率が適度になり、破断伸度、及び、破断強度が向上し、曲げ剛性、及び、耐貫通性がより一層良好になる。

[0069] 上記重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）により測定されるポリスチレン換算での重量平均分子量を示す。

[0070] ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂以外の樹脂を用いる場合に、上記樹脂は、熱可塑性樹脂であることが好ましく、ポリビニルアセタール樹脂、アクリル重合体などの（メタ）アクリル樹脂、ウレタン重合体、シリコーン重合体、ゴム、又は酢酸ビニル重合体であることが好ましく、ポリビニルアセタール樹脂又は（メタ）アクリル樹脂であることがより好ましく、ポリビニルアセタール樹脂であることが更に好ましい。ポリビニルアセタール樹脂の使用により、強靭性が効果的に高くなり、耐貫通性がより一層高くなる。

[0071] 上記樹脂は、極性基を有することが好ましく、水酸基を有することが好ま

しい。このような基の存在により、樹脂フィルムと合わせガラス部材との接着性がより一層高くなり、曲げ剛性及び耐貫通性がより一層高くなる。

[0072] 上記アクリル重合体は、(メタ)アクリル酸エステルを含む重合成分の重合体であることが好ましい。上記アクリル重合体は、ポリ(メタ)アクリル酸エステルであることが好ましい。

[0073] 上記ポリ(メタ)アクリル酸エステルは特に限定されない。上記ポリ(メタ)アクリル酸エステルとしては、例えば、ポリ(メタ)アクリル酸メチル、ポリ(メタ)アクリル酸エチル、ポリ(メタ)アクリル酸n-プロピル、ポリ(メタ)アクリル酸i-プロピル、ポリ(メタ)アクリル酸n-ブチル、ポリ(メタ)アクリル酸i-ブチル、ポリ(メタ)アクリル酸t-ブチル、ポリ(メタ)アクリル酸2-エチルヘキシル、ポリ(メタ)アクリル酸オクチル、ポリ(メタ)アクリル酸プロピル、ポリ(メタ)アクリル酸2-エチルオクチル、ポリ(メタ)アクリル酸ノニル、ポリ(メタ)アクリル酸イソノニル、ポリ(メタ)アクリル酸デシル、ポリ(メタ)アクリル酸イソデシル、ポリ(メタ)アクリル酸ラウリル、ポリ(メタ)アクリル酸イソテトラデシル、ポリ(メタ)アクリル酸2-ヒドロキシエチル、ポリ(メタ)アクリル酸4-ヒドロキシブチル、ポリ(メタ)アクリル酸シクロヘキシル、及びポリ(メタ)アクリル酸ベンジル等が挙げられる。ポリビニルアセタールアイオノマーへの混合のしやすさから、ポリアクリル酸エステルが好ましく、ポリアクリル酸エチル、ポリアクリル酸n-ブチル、ポリ(メタ)アクリル酸2-ヒドロキシエチル、ポリ(メタ)アクリル酸4-ヒドロキシブチル、ポリアクリル酸2-エチルヘキシル又はポリアクリル酸オクチルがより好ましい。中間膜は、これらの好ましいアクリル重合体を含有することが好ましい。これらの好ましいポリ(メタ)アクリル酸エステルの使用により、樹脂フィルムの生産性と樹脂フィルムの特性のバランスとがより一層良好になる。上記ポリ(メタ)アクリル酸エステルは1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0074] 上記第1の層は、熱可塑性樹脂(以下、熱可塑性樹脂(1))と記載するこ

とがある)を含むことが好ましく、熱可塑性樹脂(1)として、ポリビニルアセタール樹脂(以下、ポリビニルアセタール樹脂(1)と記載することがある)を含むことが好ましく、熱可塑性樹脂(1)として、ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂(以下、ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂(1)と記載することがある)を含むことがより好ましい。上記第2の層は、熱可塑性樹脂(以下、熱可塑性樹脂(2)と記載することがある)を含むことが好ましく、熱可塑性樹脂(2)として、ポリビニルアセタール樹脂(以下、ポリビニルアセタール樹脂(2)と記載することがある)を含むことが好ましく、熱可塑性樹脂(2)として、ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂(以下、ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂(2)と記載することがある)を含むことがより好ましい。上記第3の層は、熱可塑性樹脂(以下、熱可塑性樹脂(3)と記載することがある)を含むことが好ましく、熱可塑性樹脂(3)として、ポリビニルアセタール樹脂(以下、ポリビニルアセタール樹脂(3)と記載することがある)を含むことが好ましく、熱可塑性樹脂(3)として、ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂(以下、ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂(3)と記載することがある)を含むことがより好ましい。

[0075] 上記熱可塑性樹脂としては、ポリビニルアセタール樹脂、(メタ)アクリル樹脂、酢酸ビニル共重合体、エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂、エチレン-アクリル酸共重合体樹脂、ポリウレタン樹脂及びポリビニルアルコール樹脂等が挙げられる。これら以外の熱可塑性樹脂を用いてもよい。

[0076] 上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂及び上記ポリビニルアセタール樹脂は、例えば、ポリビニルアルコールをアルデヒドによりアセタール化することにより製造できる。上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂及び上記ポリビニルアセタール樹脂は、ポリビニルアルコールのアセタール化物であることが好ましい。上記ポリビニルアルコールは、例えば、ポリ酢酸ビニルをけん化することにより得られる。上記ポリビニルアルコールのけん化度は、一般に70~99.9モル%である。

- [0077] 上記ポリビニルアルコール（PVA）の平均重合度は、好ましくは200以上、より好ましくは500以上、より一層好ましくは1500以上、更に好ましくは1600以上、特に好ましくは2600以上、最も好ましくは2700以上、好ましくは5000以下、より好ましくは4000以下、更に好ましくは3500以下である。上記平均重合度が上記下限以上であると、合わせガラスの耐貫通性がより一層高くなる。上記平均重合度が上記上限以下であると、樹脂フィルムの成形が容易になる。
- [0078] 上記ポリビニルアルコールの平均重合度は、JIS K6726「ポリビニルアルコール試験方法」に準拠した方法により求められる。
- [0079] 上記ポリビニルアセタール樹脂におけるアセタール基の炭素数は2～10であることが好ましく、2～5であることがより好ましい。
- [0080] 上記アルデヒドとして、一般には、炭素数が1～10のアルデヒドが好適に用いられる。上記炭素数が1～10のアルデヒドとしては、例えば、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、*n*-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、*n*-バレルアルデヒド、2-エチルブチルアルデヒド、*n*-ヘキシルアルデヒド、*n*-オクチルアルデヒド、*n*-ノニルアルデヒド、*n*-デシルアルデヒド、及びベンズアルデヒド等が挙げられる。アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、*n*-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、*n*-ヘキシルアルデヒド又は*n*-バレルアルデヒドが好ましく、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、*n*-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド又は*n*-バレルアルデヒドがより好ましく、*n*-ブチルアルデヒド又は*n*-バレルアルデヒドが更に好ましい。上記アルデヒドは、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。
- [0081] 上記ポリビニルアセタール樹脂（1）及び上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（1）の水酸基の含有率（水酸基量）は、好ましくは3モル%以上、より好ましくは5モル%以上、更に好ましくは7モル%以上、好ましくは40モル%以下、より好ましくは35モル%以下である。上記水酸基の含有率が上記下限以上であると、樹脂フィルムの機械強度がより一層高くな

る。特に、上記ポリビニルアセタール樹脂（１）及び上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（１）の水酸基の含有率が５モル％以上であると反応効率が高く生産性に優れ、また３５モル％以下であると、アイオノマーを効果的に形成でき、破断伸度が効果的に高くなる。また、上記水酸基の含有率が上記上限以下であると、樹脂フィルムの柔軟性が高くなり、樹脂フィルムの取扱いが容易になる。

[0082] 上記ポリビニルアセタール樹脂（２）、上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（２）、上記ポリビニルアセタール樹脂（３）及び上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（３）の水酸基の各含有率は、好ましくは１０モル％以上、より好ましくは１３モル％以上、より好ましくは１５モル％以上、より一層好ましくは１８モル％以上、更に好ましくは２０モル％以上、特に好ましくは２２モル％以上、好ましくは３７モル％以下、より好ましくは３６．５モル％以下、更に好ましくは３６モル％以下である。上記水酸基の含有率が上記下限以上であると、曲げ剛性がより一層高くなり、樹脂フィルムの接着力がより一層高くなる。特に、上記ポリビニルアセタール樹脂（２）、上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（２）、上記ポリビニルアセタール樹脂（３）及び上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（３）の水酸基の各含有率が１０モル％以上であると反応効率が高く生産性に優れ、また３７モル％以下であると、アイオノマーを効果的に形成でき、破断伸度や曲げ剛性が効果的に高くなる。また、上記水酸基の含有率が上記上限以下であると、樹脂フィルムの柔軟性が高くなり、樹脂フィルムの取扱いが容易になる。

[0083] 遮音性をより一層高める観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂（１）及び上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（１）の水酸基の含有率は、上記ポリビニルアセタール樹脂（２）、上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（２）、上記ポリビニルアセタール樹脂（３）及び上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（３）の水酸基の含有率よりも低いことが好ましい。遮音性を更に一層高める観点からは、上記ポリビニルアセタール

樹脂（１）及び上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（１）の水酸基の含有率と、上記ポリビニルアセタール樹脂（２）、上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（２）、上記ポリビニルアセタール樹脂（３）及び上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（３）の水酸基の含有率との差の絶対値は、好ましくは１モル％以上、より好ましくは５モル％以上、更に好ましくは９モル％以上、特に好ましくは１０モル％以上、最も好ましくは１２モル％以上である。上記ポリビニルアセタール樹脂（１）及び上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（１）の水酸基の含有率と、上記ポリビニルアセタール樹脂（２）、上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（２）、上記ポリビニルアセタール樹脂（３）及び上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（３）の水酸基の含有率との差の絶対値は、好ましくは２０モル％以下である。

[0084] 上記水酸基の含有率は、水酸基が結合しているエチレン基量を、主鎖の全エチレン基量で除算して求めたモル分率を百分率で示した値である。上記水酸基が結合しているエチレン基量は、例えば、JIS K6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠して測定できる。

[0085] 上記ポリビニルアセタール樹脂（１）及び上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（１）のアセチル化度（アセチル基量）は、好ましくは０．０５モル％以上、より好ましくは０．１モル％以上、更に好ましくは１モル％以上、好ましくは２５モル％以下、より好ましくは３０モル％以下、更に好ましくは２０モル％以下である。上記アセチル化度が上記下限以上であると、樹脂と可塑剤との相溶性が高くなる。上記アセチル化度が上記上限以下であると、樹脂フィルム及び合わせガラスの耐湿性が高くなる。特に、上記ポリビニルアセタール樹脂（１）及び上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（１）のアセチル化度が０．１モル％以上、２５モル％以下であると、破断伸度がより一層高くなり、耐貫通性に優れる。

[0086] 上記ポリビニルアセタール樹脂（２）、上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（２）、上記ポリビニルアセタール樹脂（３）及び上記ポリビニ

ルアセタールアイオノマー樹脂（３）の各アセチル化度は、好ましくは０．０１モル％以上、より好ましくは０．５モル％以上、好ましくは１０モル％以下、より好ましくは２モル％以下である。上記アセチル化度が上記下限以上であると、樹脂と可塑剤との相溶性が高くなる。上記アセチル化度が上記上限以下であると、樹脂フィルム及び合わせガラスの耐湿性が高くなる。

[0087] 上記アセチル化度は、アセチル基が結合しているエチレン基量を、主鎖の全エチレン基量で除算して求めたモル分率を百分率で示した値である。上記アセチル基が結合しているエチレン基量は、例えば、JIS K6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠して測定できる。

[0088] 上記ポリビニルアセタール樹脂（１）及び上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（１）のアセタール化度（ポリビニルブチラール樹脂の場合にはブチラール化度）は、好ましくは４５モル％以上、より好ましくは５０モル％以上、更に好ましくは５５モル％以上、好ましくは９０モル％以下、より好ましくは８０モル％以下、更に好ましくは７０モル％以下である。上記アセタール化度が上記下限以上であると、樹脂と可塑剤との相溶性が高くなる。上記アセタール化度が上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂を製造するために必要な反応時間が短くなる。

[0089] 上記ポリビニルアセタール樹脂（２）、上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（２）、上記ポリビニルアセタール樹脂（３）及び上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（３）の各アセタール化度（ポリビニルブチラール樹脂の場合にはブチラール化度）は、好ましくは５５モル％以上、より好ましくは６０モル％以上、好ましくは７５モル％以下、より好ましくは７１モル％以下である。上記アセタール化度が上記下限以上であると、樹脂と可塑剤との相溶性が高くなる。上記アセタール化度が上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂を製造するために必要な反応時間が短くなる。

[0090] 上記アセタール化度は、主鎖の全エチレン基量から、水酸基が結合しているエチレン基量と、アセチル基が結合しているエチレン基量とを差し引いた

値を、主鎖の全エチレン基量で除算して求めたモル分率を百分率で示した値である。

[0091] なお、上記水酸基の含有率（水酸基量）、アセタール化度（ブチラール化度）及びアセチル化度は、JIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により測定された結果から算出することが好ましい。但し、ASTM D 1396-92による測定を用いてもよい。ポリビニルブチラールアイオノマー樹脂又はポリビニルブチラール樹脂を用いる場合には、上記水酸基の含有率（水酸基量）、上記アセタール化度（ブチラール化度）及び上記アセチル化度は、JIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により測定された結果から算出され得る。

[0092] （可塑剤）

上記樹脂フィルムは、可塑剤を含むことが好ましい。上記第1の層は、可塑剤（以下、可塑剤（1）と記載することがある）を含むことが好ましい。上記第2の層は、可塑剤（以下、可塑剤（2）と記載することがある）を含むことが好ましい。上記第3の層は、可塑剤（以下、可塑剤（3）と記載することがある）を含むことが好ましい。可塑剤の使用により、更に樹脂と可塑剤との併用により、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む層の合わせガラス部材又は他の層に対する接着力が適度に高くなる。上記可塑剤は特に限定されない。上記可塑剤は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0093] 上記可塑剤としては、一塩基性有機酸エステル及び多塩基性有機酸エステル等の有機エステル可塑剤、並びに有機リン酸可塑剤及び有機亜リン酸可塑剤などの有機リン酸可塑剤等が挙げられる。有機エステル可塑剤が好ましい。上記可塑剤は液状可塑剤であることが好ましい。

[0094] 上記一塩基性有機酸エステルとしては、グリコールと一塩基性有機酸との反応によって得られたグリコールエステル等が挙げられる。上記グリコールとしては、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール及びトリプロピレングリコール等が挙げられる。上記一塩基性有機酸としては、酪酸、

イソ酪酸、カプロン酸、2-エチル酪酸、ヘプチル酸、n-オクチル酸、2-エチルヘキシル酸、n-ノニル酸及びデシル酸等が挙げられる。

[0095] 上記多塩基性有機酸エステルとしては、多塩基性有機酸と、炭素数4～8の直鎖又は分岐構造を有するアルコールとのエステル化合物等が挙げられる。上記多塩基性有機酸としては、アジピン酸、セバシン酸及びアゼライン酸等が挙げられる。

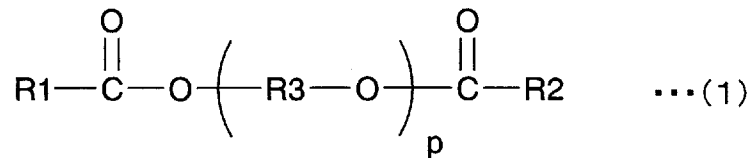
[0096] 上記有機エステル可塑剤としては、トリエチレングリコールジ-2-エチルプロパノエート、トリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート、トリエチレングリコールジカプリレート、トリエチレングリコールジ-n-オクタノエート、トリエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート、テトラエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート、ジブチルセバケート、ジオクチルアゼレート、ジブチルカルビトールアジペート、エチレングリコールジ-2-エチルブチレート、1,3-プロピレングリコールジ-2-エチルブチレート、1,4-ブチレングリコールジ-2-エチルブチレート、ジエチレングリコールジ-2-エチルブチレート、ジエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート、ジプロピレングリコールジ-2-エチルブチレート、トリエチレングリコールジ-2-エチルペンタノエート、テトラエチレングリコールジ-2-エチルブチレート、ジエチレングリコールジカプリレート、アジピン酸ジヘキシル、アジピン酸ジオクチル、アジピン酸ヘキシルシクロヘキシル、アジピン酸ヘプチルとアジピン酸ノニルとの混合物、アジピン酸ジイソノニル、アジピン酸ジイソデシル、アジピン酸ヘプチルノニル、セバシン酸ジブチル、油変性セバシン酸アルキド、及びリン酸エステルとアジピン酸エステルとの混合物等が挙げられる。これら以外の有機エステル可塑剤を用いてもよい。上述のアジピン酸エステル以外の他のアジピン酸エステルを用いてもよい。

[0097] 上記有機リン酸可塑剤としては、トリブトキシエチルホスフェート、イソデシルフェニルホスフェート及びトリイソプロピルホスフェート等が挙げら

れる。

[0098] 上記可塑剤は、下記式（１）で表されるジエステル可塑剤であることが好ましい。

[0099] [化1]



[0100] 上記式（１）中、R 1 及びR 2 はそれぞれ、炭素数 2 ～ 1 0 の有機基を表し、R 3 は、エチレン基、イソプロピレン基又は n-プロピレン基を表し、p は 3 ～ 1 0 の整数を表す。上記式（１）中の R 1 及びR 2 はそれぞれ、炭素数 5 ～ 1 0 の有機基であることが好ましく、炭素数 6 ～ 1 0 の有機基であることがより好ましい。

[0101] 上記可塑剤は、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（3GO）、トリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート（3GH）又はトリエチレングリコールジ-2-エチルプロパノエートを含むことが好ましく、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート又はトリエチレングリコールジ-2-エチルブチレートを含むことがより好ましく、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエートを含むことが更に好ましい。

[0102] 上記樹脂フィルムにおいて、上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂 100 重量部に対する上記可塑剤の含有量は、好ましくは 10 重量部以上、より好ましくは 20 重量部以上、更に好ましくは 30 重量部以上、好ましくは 90 重量部以下、より好ましくは 85 重量部以下、更に好ましくは 80 重量部以下である。上記含有量が上記下限以上であると、樹脂フィルムの柔軟性が高くなり、樹脂フィルムの取扱いが容易になる。上記含有量が上記上限以下であると、アイオノマーの形成を阻害し難く、合わせガラスの曲げ剛性や耐貫通性がより一層高くなる。

[0103] 上記第 2 の層において、上記熱可塑性樹脂（２）、上記ポリビニルアセタ

ール樹脂（２）又は上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（２）１００重量部に対する上記可塑剤（２）の含有量（以下、含有量（２）と記載することがある）、並びに上記第３の層において、上記熱可塑性樹脂（３）、上記ポリビニルアセタール樹脂（３）又は上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（３）１００重量部に対する上記可塑剤（３）の含有量（以下、含有量（３）と記載することがある）はそれぞれ、好ましくは１０重量部以上、より好ましくは１５重量部以上、好ましくは４０重量部以下、より好ましくは３５重量部以下、更に好ましくは３２重量部以下、特に好ましくは３０重量部以下である。上記含有量（２）及び上記含有量（３）が上記下限以上であると、樹脂フィルムの柔軟性が高くなり、樹脂フィルムの取扱いが容易になる。上記含有量（２）及び上記含有量（３）が上記上限以下であると、アイオノマーの形成を阻害し難く、合わせガラスの曲げ剛性や耐貫通性がより一層高くなる。

[0104] 上記第１の層において、上記熱可塑性樹脂（１）、上記ポリビニルアセタール樹脂（１）又は上記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂（１）１００重量部に対する上記可塑剤（１）の含有量（以下、含有量（１）と記載することがある）は、好ましくは１０重量部以上、より好ましくは２０重量部以上、更に好ましくは３０重量部以上、好ましくは９０重量部以下、より好ましくは８５重量部以下、更に好ましくは８０重量部以下である。上記含有量（１）が上記下限以上であると、樹脂フィルムの柔軟性が高くなり、樹脂フィルムの取扱いが容易になる。上記含有量（１）が上記上限以下であると、アイオノマーの形成を阻害し難く、合わせガラスの曲げ剛性や耐貫通性がより一層高くなる。

[0105] 合わせガラスの遮音性を発現させるために、上記含有量（１）は上記含有量（２）よりも多いことが好ましく、上記含有量（１）は上記含有量（３）よりも多いことが好ましい。

[0106] 合わせガラスの遮音性を高める観点からは、上記含有量（２）と上記含有量（１）との差の絶対値、並びに上記含有量（３）と上記含有量（１）との

差の絶対値はそれぞれ、好ましくは10重量部以上、より好ましくは15重量部以上、更に好ましくは20重量部以上である。上記含有量(2)と上記含有量(1)との差の絶対値、並びに上記含有量(3)と上記含有量(1)との差の絶対値はそれぞれ、好ましくは80重量部以下、より好ましくは75重量部以下、更に好ましくは70重量部以下である。

[0107] (遮熱性化合物)

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

[0108] 上記遮熱性化合物は、フタロシアニン化合物、ナフトロシアニン化合物及びアントラシアニン化合物の内の少なくとも1種の成分Xを含むか、又は遮熱粒子を含むことが好ましい。この場合に、上記成分Xと上記遮熱粒子との双方を含んでいてもよい。

[0109] 成分X：

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

[0110] 上記成分Xは特に限定されない。成分Xとして、従来公知のフタロシアニン化合物、ナフトロシアニン化合物及びアントラシアニン化合物を用いることができる。

[0111] 樹脂フィルム及び合わせガラスの遮熱性をより一層高くする観点からは、上記成分Xは、フタロシアニン、フタロシアニンの誘導体、ナフトロシアニン及びナフトロシアニンの誘導体からなる群から選択される少なくとも1種

であることが好ましく、フタロシアニン及びフタロシアニンの誘導体の内の少なくとも1種であることがより好ましい。

[0112] 遮熱性を効果的に高め、かつ長期間にわたり可視光線透過率をより一層高いレベルで維持する観点からは、上記成分Xは、バナジウム原子又は銅原子を含有することが好ましい。上記成分Xは、バナジウム原子を含有することが好ましく、銅原子を含有することも好ましい。上記成分Xは、バナジウム原子又は銅原子を含有するフタロシアニン及びバナジウム原子又は銅原子を含有するフタロシアニンの誘導体の内の少なくとも1種であることがより好ましい。樹脂フィルム及び合わせガラスの遮熱性を更に一層高くする観点からは、上記成分Xは、バナジウム原子に酸素原子が結合した構造単位を有することが好ましい。

[0113] 上記樹脂フィルム100重量%中、及び、上記成分Xを含む層（第1の層、第2の層又は第3の層）100重量%中、上記成分Xの含有量は、好ましくは0.001重量%以上、より好ましくは0.005重量%以上、更に好ましくは0.01重量%以上、特に好ましくは0.02重量%以上、好ましくは0.2重量%以下、より好ましくは0.1重量%以下、更に好ましくは0.05重量%以下、特に好ましくは0.04重量%以下である。上記成分Xの含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、遮熱性が充分に高くなり、かつ可視光線透過率が充分に高くなる。例えば、可視光線透過率を70%以上にすることが可能である。

[0114] 遮熱粒子：

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

[0115] 樹脂フィルム及び合わせガラスの遮熱性をより一層高める観点からは、上

記遮熱粒子は、金属酸化物粒子であることがより好ましい。上記遮熱粒子は、金属の酸化物により形成された粒子（金属酸化物粒子）であることが好ましい。

[0116] 可視光よりも長い波長780nm以上の赤外線は、紫外線と比較して、エネルギー量が小さい。しかしながら、赤外線は熱的作用が大きく、赤外線が物質に吸収されると熱として放出される。このため、赤外線は一般に熱線と呼ばれている。上記遮熱粒子の使用により、赤外線（熱線）を効果的に遮断できる。なお、遮熱粒子とは、赤外線を吸収可能な粒子を意味する。

[0117] 上記遮熱粒子の具体例としては、アルミニウムドープ酸化錫粒子、インジウムドープ酸化錫粒子、アンチモンドープ酸化錫粒子（ATO粒子）、ガリウムドープ酸化亜鉛粒子（GZO粒子）、インジウムドープ酸化亜鉛粒子（IZO粒子）、アルミニウムドープ酸化亜鉛粒子（AZO粒子）、ニオブドープ酸化チタン粒子、ナトリウムドープ酸化タングステン粒子、セシウムドープ酸化タングステン粒子、タリウムドープ酸化タングステン粒子、ルビジウムドープ酸化タングステン粒子、錫ドープ酸化インジウム粒子（ITO粒子）、錫ドープ酸化亜鉛粒子、珪素ドープ酸化亜鉛粒子等の金属酸化物粒子や、六ホウ化ランタン（LaB₆）粒子等が挙げられる。これら以外の遮熱粒子を用いてもよい。熱線の遮蔽機能が高いため、金属酸化物粒子が好ましく、ATO粒子、GZO粒子、IZO粒子、ITO粒子又は酸化タングステン粒子がより好ましく、ITO粒子又は酸化タングステン粒子が特に好ましい。特に、熱線の遮蔽機能が高く、かつ入手が容易であるので、錫ドープ酸化インジウム粒子（ITO粒子）が好ましく、酸化タングステン粒子も好ましい。

[0118] 樹脂フィルム及び合わせガラスの遮熱性をより一層高くする観点からは、酸化タングステン粒子は、金属ドープ酸化タングステン粒子であることが好ましい。上記「酸化タングステン粒子」には、金属ドープ酸化タングステン粒子が含まれる。上記金属ドープ酸化タングステン粒子としては、具体的には、ナトリウムドープ酸化タングステン粒子、セシウムドープ酸化タングス

テン粒子、タリウムドープ酸化タングステン粒子及びルビジウムドープ酸化タングステン粒子等が挙げられる。

- [0119] 樹脂フィルム及び合わせガラスの遮熱性をより一層高くする観点からは、セシウムドープ酸化タングステン粒子が特に好ましい。樹脂フィルム及び合わせガラスの遮熱性を更に一層高くする観点からは、該セシウムドープ酸化タングステン粒子は、式： $Cs_{0.33}WO_3$ で表される酸化タングステン粒子であることが好ましい。
- [0120] 上記遮熱粒子の平均粒子径は好ましくは $0.01\mu m$ 以上、より好ましくは $0.02\mu m$ 以上、好ましくは $0.1\mu m$ 以下、より好ましくは $0.05\mu m$ 以下である。平均粒子径が上記下限以上であると、熱線の遮蔽性が十分に高くなる。平均粒子径が上記上限以下であると、遮熱粒子の分散性が高くなる。
- [0121] 上記「平均粒子径」は、体積平均粒子径を示す。平均粒子径は、粒度分布測定装置（日機装社製「UPA-EX150」）等を用いて測定できる。
- [0122] 上記樹脂フィルム100重量%中、及び、上記遮熱粒子を含む層（第1の層、第2の層又は第3の層）100重量%中、上記遮熱粒子の含有量は、好ましくは0.01重量%以上、より好ましくは0.1重量%以上、更に好ましくは1重量%以上、特に好ましくは1.5重量%以上、好ましくは6重量%以下、より好ましくは5.5重量%以下、更に好ましくは4重量%以下、特に好ましくは3.5重量%以下、最も好ましくは3重量%以下である。上記遮熱粒子の含有量が上記下限以上及び上記上限以下であると、遮熱性が十分に高くなり、かつ可視光線透過率が十分に高くなる。

[0123] （金属塩）

上記樹脂フィルムは、マグネシウム塩、アルカリ金属塩及びアルカリ土類金属塩の内の少なくとも1種の金属塩（以下、金属塩Mと記載することがある）を含むことが好ましい。上記第1の層は、上記金属塩Mを含むことが好ましい。上記第2の層は、上記金属塩Mを含むことが好ましい。上記第3の層は、上記金属塩Mを含むことが好ましい。上記表面層が、上記金属塩Mを

含むことが好ましい。上記金属塩Mの使用により、樹脂フィルムと合わせガラス部材との接着性又は樹脂フィルムにおける各層間の接着性を制御することが容易になる。上記金属塩Mは、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0124] 上記金属塩Mは、Li、Na、K、Rb、Cs、Mg、Ca、Sr及びBaからなる群から選択された少なくとも1種の金属を含むことが好ましい。樹脂フィルム中に含まれている金属塩は、K及びMgの内の少なくとも1種の金属を含むことが好ましい。

[0125] また、上記金属塩Mは、炭素数2～16の有機酸のアルカリ金属塩又は炭素数2～16の有機酸のアルカリ土類金属塩であることがより好ましく、炭素数2～16のカルボン酸マグネシウム塩又は炭素数2～16のカルボン酸カリウム塩であることが更に好ましい。

[0126] 上記炭素数2～16のカルボン酸マグネシウム塩及び上記炭素数2～16のカルボン酸カリウム塩としては特に限定されないが、例えば、酢酸マグネシウム、酢酸カリウム、プロピオン酸マグネシウム、プロピオン酸カリウム、2-エチル酪酸マグネシウム、2-エチルブタン酸カリウム、2-エチルヘキサン酸マグネシウム及び2-エチルヘキサン酸カリウム等が挙げられる。

[0127] 上記樹脂フィルム100重量%中、及び、上記金属塩Mを含む層（第1の層、第2の層又は第3の層）におけるMg及びKの含有量の合計は、好ましくは5ppm以上、より好ましくは10ppm以上、更に好ましくは20ppm以上、好ましくは300ppm以下、より好ましくは250ppm以下、更に好ましくは200ppm以下である。Mg及びKの含有量の合計が上記下限以上及び上記上限以下であると、樹脂フィルムと合わせガラス部材との接着性又は樹脂フィルムにおける各層間の接着性をより一層良好に制御できる。

[0128] (紫外線遮蔽剤)

上記樹脂フィルムは、紫外線遮蔽剤を含むことが好ましい。上記第1の層

は、紫外線遮蔽剤を含むことが好ましい。上記第2の層は、紫外線遮蔽剤を含むことが好ましい。上記第3の層は、紫外線遮蔽剤を含むことが好ましい。紫外線遮蔽剤の使用により、樹脂フィルム及び合わせガラスが長期間使用されても、可視光線透過率がより一層低下し難くなる。上記紫外線遮蔽剤は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

- [0129] 上記紫外線遮蔽剤には、紫外線吸収剤が含まれる。上記紫外線遮蔽剤は、紫外線吸収剤であることが好ましい。
- [0130] 上記紫外線遮蔽剤としては、例えば、金属原子を含む紫外線遮蔽剤、金属酸化物を含む紫外線遮蔽剤、ベンゾトリアゾール構造を有する紫外線遮蔽剤（ベンゾトリアゾール化合物）、ベンゾフェノン構造を有する紫外線遮蔽剤（ベンゾフェノン化合物）、トリアジン構造を有する紫外線遮蔽剤（トリアジン化合物）、マロン酸エステル構造を有する紫外線遮蔽剤（マロン酸エステル化合物）、シュウ酸アニリド構造を有する紫外線遮蔽剤（シュウ酸アニリド化合物）及びベンゾエート構造を有する紫外線遮蔽剤（ベンゾエート化合物）等が挙げられる。
- [0131] 上記金属原子を含む紫外線遮蔽剤としては、例えば、白金粒子、白金粒子の表面をシリカで被覆した粒子、パラジウム粒子及びパラジウム粒子の表面をシリカで被覆した粒子等が挙げられる。紫外線遮蔽剤は、遮熱粒子ではないことが好ましい。
- [0132] 上記紫外線遮蔽剤は、好ましくはベンゾトリアゾール構造を有する紫外線遮蔽剤、ベンゾフェノン構造を有する紫外線遮蔽剤、トリアジン構造を有する紫外線遮蔽剤又はベンゾエート構造を有する紫外線遮蔽剤であり、より好ましくはベンゾトリアゾール構造を有する紫外線遮蔽剤又はベンゾフェノン構造を有する紫外線遮蔽剤であり、更に好ましくはベンゾトリアゾール構造を有する紫外線遮蔽剤である。
- [0133] 上記金属酸化物を含む紫外線遮蔽剤としては、例えば、酸化亜鉛、酸化チタン及び酸化セリウム等が挙げられる。さらに、上記金属酸化物を含む紫外線遮蔽剤に関して、表面が被覆されていてもよい。上記金属酸化物を含む紫

外線遮蔽剤の表面の被覆材料としては、絶縁性金属酸化物、加水分解性有機ケイ素化合物及びシリコン化合物等が挙げられる。

[0134] 上記ベンゾトリアゾール構造を有する外線遮蔽剤としては、例えば、2-(2'-ヒドロキシ-5'-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール(BASF社製「Tinuvin P」)、2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-tert-ブチルフェニル)ベンゾトリアゾール(BASF社製「Tinuvin 320」)、2-(2'-ヒドロキシ-3'-tert-ブチル-5-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール(BASF社製「Tinuvin 326」)、及び2-(2'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-アミルフェニル)ベンゾトリアゾール(BASF社製「Tinuvin 328」)等が挙げられる。外線を吸収する性能に優れることから、上記外線遮蔽剤は、ハロゲン原子を含むベンゾトリアゾール構造を有する外線遮蔽剤であることが好ましく、塩素原子を含むベンゾトリアゾール構造を有する外線遮蔽剤であることがより好ましい。

[0135] 上記ベンゾフェノン構造を有する外線遮蔽剤としては、例えば、オクタベンゾン(BASF社製「Chimassorb 81」)等が挙げられる。

[0136] 上記トリアジン構造を有する外線遮蔽剤としては、例えば、ADEKA社製「LAF70」及び2-(4, 6-ジフェニル-1, 3, 5-トリアジン-2-イル)-5-[(ヘキシル)オキシ]-フェノール(BASF社製「Tinuvin 1577FF」)等が挙げられる。

[0137] 上記マロン酸エステル構造を有する外線遮蔽剤としては、2-(p-メトキシベンジリデン)マロン酸ジメチル、テトラエチル-2, 2-(1, 4-フェニレンジメチリデン)ビスマロネート、2-(p-メトキシベンジリデン)-ビス(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル4-ピペリジニル)マロネート等が挙げられる。

[0138] 上記マロン酸エステル構造を有する外線遮蔽剤の市販品としては、Hostavin B-CAP、Hostavin PR-25、Hostavin PR-31(いずれもクラリアント社製)が挙げられる。

[0139] 上記シュウ酸アニリド構造を有する紫外線遮蔽剤としては、N-(2-エチルフェニル)-N'-(2-エトキシ-5-tert-ブチルフェニル)シュウ酸ジアミド、N-(2-エチルフェニル)-N'-(2-エトキシフェニル)シュウ酸ジアミド、2-エチル-2'-エトキシオキシアニリド(クラリアント社製「Sanduvor VSU」)などの窒素原子上に置換されたアリール基などを有するシュウ酸ジアミド類が挙げられる。

[0140] 上記ベンゾエート構造を有する紫外線遮蔽剤としては、例えば、2,4-ジ-tert-ブチルフェニル-3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート(BASF社製「Tinuvin 120」)等が挙げられる。

[0141] 期間経過後の可視光線透過率の低下をより一層抑制する観点からは、上記樹脂フィルム100重量%中、及び、上記紫外線遮蔽剤を含む層(第1の層、第2の層又は第3の層)100重量%中、上記紫外線遮蔽剤の含有量は、好ましくは0.1重量%以上、より好ましくは0.2重量%以上、更に好ましくは0.3重量%以上、特に好ましくは0.5重量%以上、好ましくは2.5重量%以下、より好ましくは2重量%以下、更に好ましくは1重量%以下、特に好ましくは0.8重量%以下である。特に、上記紫外線遮蔽剤を含む層100重量%中、上記紫外線遮蔽剤の含有量が0.2重量%以上であることにより、樹脂フィルム及び合わせガラスの期間経過後の可視光線透過率の低下を顕著に抑制できる。

[0142] (酸化防止剤)

上記樹脂フィルムは、酸化防止剤を含むことが好ましい。上記第1の層は、酸化防止剤を含むことが好ましい。上記第2の層は、酸化防止剤を含むことが好ましい。上記第3の層は、酸化防止剤を含むことが好ましい。上記酸化防止剤は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0143] 上記酸化防止剤としては、フェノール系酸化防止剤、硫黄系酸化防止剤及びリン系酸化防止剤等が挙げられる。上記フェノール系酸化防止剤はフェノール骨格を有する酸化防止剤である。上記硫黄系酸化防止剤は硫黄原子を含

有する酸化防止剤である。上記リン系酸化防止剤はリン原子を含有する酸化防止剤である。

[0144] 上記酸化防止剤は、フェノール系酸化防止剤又はリン系酸化防止剤であることが好ましい。

[0145] 上記フェノール系酸化防止剤としては、2, 6-ジ-*t*-ブチル-*p*-クレゾール (BHT)、ブチルヒドロキシアニソール (BHA)、2, 6-ジ-*t*-ブチル-4-エチルフェノール、ステアリル- β -(3, 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオネート、2, 2'-メチレンビス-(4-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、2, 2'-メチレンビス-(4-エチル-6-*t*-ブチルフェノール)、4, 4'-ブチリデン-ビス-(3-メチル-6-*t*-ブチルフェノール)、1, 1, 3-トリス-(2-メチル-ヒドロキシ-5-*t*-ブチルフェニル) ブタン、テトラキス [メチレン-3-(3', 5'-ブチル-4-ヒドロキシフェニル) プロピオネート] メタン、1, 3, 3-トリス-(2-メチル-4-ヒドロキシ-5-*t*-ブチルフェノール) ブタン、1, 3, 5-トリメチル-2, 4, 6-トリス (3, 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシベンジル) ベンゼン、ビス (3, 3'-*t*-ブチルフェノール) ブチリックアジドグリコールエステル及びビス (3-*t*-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルベンゼンプロパン酸) エチレンビス (オキシエチレン) 等が挙げられる。これらの酸化防止剤の内の1種又は2種以上が好適に用いられる。

[0146] 上記リン系酸化防止剤としては、トリデシルホスファイト、トリス (トリデシル) ホスファイト、トリフェニルホスファイト、トリノニルフェニルホスファイト、ビス (トリデシル) ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス (デシル) ペンタエリスリトールジホスファイト、トリス (2, 4-ジ-*t*-ブチルフェニル) ホスファイト、ビス (2, 4-ジ-*t*-ブチル-6-メチルフェニル) エチルエステル亜リン酸、及び2, 2'-メチレンビス (4, 6-ジ-*t*-ブチル-1-フェニルオキシ) (2-エチルヘキシルオキシ) ホスホラス等が挙げられる。これらの酸化防止剤の内の1種又は2種以

上が好適に用いられる。

[0147] 上記酸化防止剤の市販品としては、例えばBASF社製「IRGANOX 245」、BASF社製「IRGAFOS 168」、BASF社製「IRGAFOS 38」、住友化学工業社製「スミライザーBHT」、堺化学工業社製「H-BHT」、並びにBASF社製「IRGANOX 1010」等が挙げられる。

[0148] 樹脂フィルム及び合わせガラスの高い可視光線透過率を長期間に渡り維持するために、上記樹脂フィルム100重量%中、及び、酸化防止剤を含む層（第1の層、第2の層又は第3の層）100重量%中、上記酸化防止剤の含有量は0.1重量%以上であることが好ましい。また、酸化防止剤の添加効果が飽和するので、上記樹脂フィルム100重量%中、及び、上記酸化防止剤を含む層100重量%中、上記酸化防止剤の含有量は2重量%以下であることが好ましい。

[0149] (他の成分)

上記樹脂フィルム、上記第1の層、上記第2の層及び上記第3の層はそれぞれ、必要に応じて、ケイ素、アルミニウム又はチタンを含むカップリング剤、分散剤、界面活性剤、難燃剤、帯電防止剤、顔料、染料、耐湿剤、蛍光増白剤及び赤外線吸収剤等の添加剤を含んでいてもよい。これらの添加剤は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

[0150] (ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムの他の詳細)

上記樹脂フィルムの厚みは特に限定されない。実用面の観点、並びに合わせガラスの耐貫通性及び曲げ剛性を十分に高める観点からは、樹脂フィルムの厚みは、好ましくは0.1mm以上、より好ましくは0.25mm以上、好ましくは3mm以下、より好ましくは1.5mm以下である。樹脂フィルムの厚みが上記下限以上であると、合わせガラスの耐貫通性及び曲げ剛性が高くなる。樹脂フィルムの厚みが上記上限以下であると、樹脂フィルムの透明性がより一層良好になる。

[0151] 樹脂フィルムの厚みをTとする。上記第1の層の厚みは、好ましくは0.

0.35 T以上、より好ましくは0.0625 T以上、更に好ましくは0.1 T以上、好ましくは0.4 T以下、より好ましくは0.375 T以下、更に好ましくは0.25 T以下、特に好ましくは0.15 T以下である。上記第1の層の厚みが0.4 T以下であると、曲げ剛性がより一層良好になる。

[0152] 上記第2の層及び上記第3の層の各厚みは、好ましくは0.3 T以上、より好ましくは0.3125 T以上、更に好ましくは0.375 T以上、好ましくは0.97 T以下、より好ましくは0.9375 T以下、更に好ましくは0.9 T以下である。上記第2の層及び上記第3の層の各厚みは、0.46875 T以下であってもよく、0.45 T以下であってもよい。また、上記第2の層及び上記第3の層の各厚みが上記下限以上及び上記上限以下であると、上記樹脂フィルム及び合わせガラスの剛性と遮音性がより一層高くなる。

[0153] 上記第2の層及び上記第3の層の合計の厚みは、好ましくは0.625 T以上、より好ましくは0.75 T以上、更に好ましくは0.85 T以上、好ましくは0.97 T以下、より好ましくは0.9375 T以下、更に好ましくは0.9 T以下である。また、上記第2の層及び上記第3の層の合計の厚みが上記下限以上及び上記上限以下であると、上記樹脂フィルム及び合わせガラスの剛性と遮音性がより一層高くなる。

[0154] 上記中間膜は、厚みが均一な中間膜であってもよく、厚みが増えている中間膜であってもよい。上記中間膜の断面形状は矩形であってもよく、楔形であってもよい。

[0155] 本発明に係る樹脂フィルムの製造方法としては特に限定されない。本発明に係る樹脂フィルムの製造方法としては、単層の樹脂フィルムの場合に、樹脂組成物を押出機を用いて押出する方法が挙げられる。本発明に係る樹脂フィルムの製造方法としては、多層の樹脂フィルムの場合に、各層を形成するための各樹脂組成物を用いて各層をそれぞれ形成した後に、例えば、得られた各層を積層する方法、並びに各層を形成するための各樹脂組成物を押出機を用いて共押出することにより、各層を積層する方法等が挙げられる。連続

的な生産に適しているため、押出成形する製造方法が好ましい。

[0156] 樹脂フィルムの製造効率が優れることから、上記第2の層と上記第3の層とに、同一のポリビニルアセタール樹脂が含まれていることが好ましく、上記第2の層と上記第3の層とに、同一のポリビニルアセタール樹脂及び同一の可塑剤が含まれていることがより好ましく、上記第2の層と上記第3の層とに、同一のポリビニルアセタールアイオノマー樹脂が含まれていることが好ましく、上記第2の層と上記第3の層とに、同一のポリビニルアセタールアイオノマー樹脂及び同一の可塑剤が含まれていることがより好ましく、上記第2の層と上記第3の層とが同一の樹脂組成物により形成されていることが更に好ましい。

[0157] 上記樹脂フィルムは、両側の表面の内の少なくとも一方の表面に凹凸形状を有することが好ましい。上記樹脂フィルムは、両側の表面に凹凸形状を有することがより好ましい。上記の凹凸形状を形成する方法としては特に限定されず、例えば、リップエンボス法、エンボスロール法、カレンダーロール法、及び異形押出法等が挙げられる。定量的に一定の凹凸模様である多数の凹凸形状のエンボスを形成することができることから、エンボスロール法が好ましい。

[0158] (合わせガラス)

図3は、図1に示すポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムを用いた合わせガラスの一例を模式的に示す断面図である。

[0159] 図3に示す合わせガラス31は、第1の合わせガラス部材21と、第2の合わせガラス部材22と、樹脂フィルム11とを備える。樹脂フィルム11は、第1の合わせガラス部材21と第2の合わせガラス部材22との間に配置されており、挟み込まれている。

[0160] 樹脂フィルム11の第1の表面11aに、第1の合わせガラス部材21が積層されている。樹脂フィルム11の第1の表面11aとは反対の第2の表面11bに、第2の合わせガラス部材22が積層されている。第2の層2の外側の表面2aに第1の合わせガラス部材21が積層されている。第3の層

3の外側の表面3 aに第2の合わせガラス部材2 2が積層されている。

[0161] 図4は、図2に示すポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムを用いた合わせガラスの一例を模式的に示す断面図である。

[0162] 図4に示す合わせガラス3 1 Aは、第1の合わせガラス部材2 1と、第2の合わせガラス部材2 2と、樹脂フィルム1 1 Aとを備える。樹脂フィルム1 1 Aは、第1の合わせガラス部材2 1と第2の合わせガラス部材2 2との間に配置されており、挟み込まれている。

[0163] 樹脂フィルム1 1 Aの第1の表面1 1 aに、第1の合わせガラス部材2 1が積層されている。樹脂フィルム1 1 Aの第1の表面1 1 aとは反対の第2の表面1 1 bに、第2の合わせガラス部材2 2が積層されている。

[0164] このように、本発明に係る合わせガラスは、第1の合わせガラス部材と、第2の合わせガラス部材と、樹脂フィルムとを備えており、該樹脂フィルムが、本発明に係るポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムである。本発明に係る合わせガラスでは、上記第1の合わせガラス部材と上記第2の合わせガラス部材との間に、上記樹脂フィルムが配置されている。

[0165] 上記第1の合わせガラス部材は、第1のガラス板であることが好ましい。上記第2の合わせガラス部材は、第2のガラス板であることが好ましい。

[0166] 上記合わせガラス部材としては、ガラス板及びPET（ポリエチレンテレフタレート）フィルム等が挙げられる。合わせガラスには、2枚のガラス板の間に樹脂フィルムが挟み込まれている合わせガラスだけでなく、ガラス板とPETフィルム等との間に樹脂フィルムが挟み込まれている合わせガラスも含まれる。上記合わせガラスは、ガラス板を備えた積層体であり、少なくとも1枚のガラス板が用いられていることが好ましい。上記第1の合わせガラス部材及び上記第2の合わせガラス部材がそれぞれ、ガラス板又はPETフィルムであり、かつ上記合わせガラスは、上記第1の合わせガラス部材及び上記第2の合わせガラス部材の内の少なくとも一方として、ガラス板を備えることが好ましい。

[0167] 上記ガラス板としては、無機ガラス及び有機ガラスが挙げられる。上記無

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

[0168] 上記合わせガラス部材の厚みは、好ましくは1 mm以上、好ましくは5 mm以下、より好ましくは3 mm以下である。また、上記合わせガラス部材がガラス板である場合に、該ガラス板の厚みは、好ましくは0.5 mm以上、より好ましくは0.7 mm以上、好ましくは5 mm以下、より好ましくは3 mm以下である。上記合わせガラス部材がPETフィルムである場合に、該PETフィルムの厚みは、好ましくは0.03 mm以上、好ましくは0.5 mm以下である。

[0169] 本発明に係る樹脂フィルムの使用により、合わせガラスの厚みが薄くても、合わせガラスの曲げ剛性を高く維持することができる。合わせガラスを軽量化したり、合わせガラスの材料を少なくして環境負荷を低減したり、合わせガラスの軽量化によって自動車の燃費を向上させて環境負荷を低減したりする観点からは、上記ガラス板の厚みは、好ましくは2 mm以下、より好ましくは1.8 mm以下、より一層好ましくは1.5 mm以下、更に好ましくは1.3 mm以下、更に一層好ましくは1.0 mm以下、特に好ましくは0.7 mm以下である。合わせガラスを軽量化したり、合わせガラスの材料を少なくして環境負荷を低減したり、合わせガラスの軽量化によって自動車の燃費を向上させて環境負荷を低減したりする観点からは、上記第1のガラス板の厚みと上記第2のガラス板の厚みとの合計は、好ましくは3.2 mm以下、より好ましくは3 mm以下、更に好ましくは2.8 mm以下である。

[0170] 上記合わせガラスの製造方法は特に限定されない。例えば、上記第1の合わせガラス部材と上記第2の合わせガラス部材との間に、樹脂フィルムを挟んで、押圧ロールに通したり、又はゴムバッグに入れて減圧吸引したりして

、上記第1の合わせガラス部材と上記第2の合わせガラス部材と樹脂フィルムとの間に残留する空気を脱気し、積層体を得る。その後、積層体を約70～110℃で予備接着して、予備接着体を得る。次に、予備接着体をオートクレーブに入れたり、又はプレスしたりして、約120～150℃及び1～1.5MPaの圧力で圧着する。このようにして、合わせガラスを得ることができる。上記合わせガラスの製造時に、第1の層と第2の層と第3の層とを積層してもよい。

[0171] 上記樹脂フィルム及び上記合わせガラスは、自動車、鉄道車両、航空機、船舶及び建築物等に使用できる。上記樹脂フィルム及び上記合わせガラスは、これらの用途以外にも使用できる。上記樹脂フィルム及び上記合わせガラスは、車両用又は建築用の樹脂フィルム及び合わせガラスであることが好ましく、車両用の樹脂フィルム及び合わせガラスであることがより好ましい。上記樹脂フィルム及び上記合わせガラスは、自動車のフロントガラス、サイドガラス、リアガラス又はルーフガラス等に使用できる。上記樹脂フィルム及び上記合わせガラスは、自動車に好適に用いられる。上記樹脂フィルムは、自動車の合わせガラスを得るために用いられる。

[0172] 以下に実施例を掲げて本発明を更に詳しく説明する。本発明はこれら実施例のみに限定されない。

[0173] 以下の材料を用意した。

[0174] (ポリビニルアセタール樹脂及びポリビニルアセタールアイオノマー樹脂)

下記の表1に示すポリビニルアセタール樹脂及びポリビニルアセタールアイオノマー樹脂を適宜用いた。用いたポリビニルアセタール樹脂及びポリビニルアセタールアイオノマー樹脂では全て、アセタール化に、炭素数4のn-ブチルアルデヒドが用いられている。ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂は、具体的には、実施例1で用いたポリビニルアセタールアイオノマー樹脂は、以下のようにして得られている。

[0175] (実施例1で用いたポリビニルアセタールアイオノマー樹脂)

後アセタール化によるイオン性官能基になり得る基の導入とアイオノマー化

温度計、攪拌機、窒素導入管、冷却管を備えた反応容器内に、ポリビニルブチラール（平均重合度800、ブチラール化度68.0モル%、水酸基の含有率30.8モル%、アセチル化度1.2モル%）20重量部と、メタノール100重量部とを加え、攪拌しながらポリビニルブチラールを溶解させた。次に、テレフタルアルデヒド酸を添加し、溶解させた後、35重量%の塩酸を0.1重量部添加した後、反応容器内を攪拌しながら60℃に加熱した。昇温終了後、60℃にて2時間反応させた。

[0176] 次いで、反応液を冷却することにより、イオン性官能基になり得る基を有するポリビニルアセタール樹脂を含有する固形分20重量%の溶液を得た。得られた溶液にナトリウムメトキシドを中和度が54%となるように添加した。中和度は、FTIR装置「NICOLET 6700」（Thermo Scientific社製）を用いて、測定波長4000~400 cm^{-1} 、スキャン回数32回で測定を行い、カルボキシル基（1715 cm^{-1} ）と、カルボキシル基の金属塩基（Naの場合1550 cm^{-1} ）とのシグナル高さから算出した。

[0177] なお、得られたイオン性官能基になり得る基を有するポリビニルアセタール樹脂をジメチルスルホキシド-d6で溶解し、プロトンNMRを測定することにより、反応後の組成を算出した。

[0178] （可塑剤）

トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（3GO）

[0179] （紫外線遮蔽剤）

Tinuvin 326（2-（2'-ヒドロキシ-3'-*t*-ブチル-5-メチルフェニル）-5-クロロベンゾトリアゾール、BASF社製「Tinuvin 326」）

[0180] （酸化防止剤）

BHT（2,6-ジ-*t*-ブチル-*p*-クレゾール）

[0181] (実施例 1～6 及び比較例 1～5)

樹脂フィルムを形成するための組成物の作製：

下記の表 1 に示す種類のポリビニルアセタール樹脂又はポリビニルアセタールアイオノマー樹脂と、可塑剤 (3GO) と、紫外線遮蔽剤 (Tinuvin 326) と、酸化防止剤 (BHT) とを混合し、樹脂フィルムを形成するための組成物を得た。可塑剤は、ポリビニルアセタール樹脂又はポリビニルアセタールアイオノマー樹脂 100 重量部に対して、下記の表 1 に示す量で用いた。紫外線遮蔽剤及び酸化防止剤は、ポリビニルアセタール樹脂又はポリビニルアセタールアイオノマー樹脂 100 重量部に対して、0.2 重量部の量で用いた。

[0182] 樹脂フィルムの作製：

樹脂フィルムを形成するための組成物を、押出機を用いて押し出すことにより、樹脂フィルム (厚み 760 μm) (中間膜) を作製した。

[0183] 合わせガラスの作製：

(曲げ剛性測定用)

得られた中間膜を縦 20 cm × 横 2.5 cm の大きさに切断した。第 1 の合わせガラス部材及び第 2 の合わせガラス部材として、2 つのガラス板 (クリアフロートガラス、縦 20 cm × 横 2.5 cm、厚み 1.2 mm) を用意した。2 つのガラス板の間に、得られた中間膜を挟み込み、積層体を得た。得られた積層体をゴムバック内に入れ、2660 Pa (20 torr) の真空度で 20 分間脱気した。その後、脱気したままで積層体をオートクレーブ中で更に 90 °C で 30 分間保持しつつ、真空プレスした。このようにして予備圧着された積層体を、オートクレーブ中で 135 °C、圧力 1.2 MPa (12 kg / cm^2) の条件で 20 分間圧着を行い、合わせガラスを得た。

[0184] (耐貫通性測定用)

得られた中間膜を縦 15 cm × 横 15 cm の大きさに切断した。第 1 の合わせガラス部材及び第 2 の合わせガラス部材として、2 つのガラス板 (クリアフロートガラス、縦 15 cm × 横 15 cm、厚み 1.2 mm) を用意した

。2枚のガラス板の間に、中間膜を挟み込み、積層体を得た。この積層体をゴムバック内に入れ、2.6 kPaの真空度で20分間脱気した後、脱気したままオープン内に移し、更に90℃で30分間保持して真空プレスし、積層体を予備圧着した。オートクレーブ中で135℃及び圧力1.2 MPaの条件で、予備圧着された積層体を20分間圧着し、合わせガラスを得た。

[0185] (評価)

(1) せん断貯蔵等価弾性率

せん断貯蔵等価弾性率の測定：

得られた樹脂フィルムを長さ50 mm、幅20 mmで切り出した。樹脂フィルムを、室温 $23 \pm 2^\circ\text{C}$ 、湿度 $25 \pm 5\%$ の環境下に12時間保管した。保管直後に、Metravib社製の粘弾性測定装置「DMA+1000」を用いて、樹脂フィルムについて、せん断モードで $2^\circ\text{C}/\text{分}$ の昇温速度で -50°C から 100°C まで、周波数1 Hz及び歪0.05%の条件で測定を行った。

[0186] (2) 引張試験（ヤング率、破断強度、及び、破断伸度）

得られた樹脂フィルムをダンベル社製のスーパーダンベルカッター：SDK-400で打ち抜いて、試験片を得た。その後、 23°C の恒温室で島津製作所社製のオートグラフAGS-Xを用い、引張速度 $100\text{ mm}/\text{分}$ で引張試験することにより、 23°C でのヤング率、破断強度、及び、破断伸度を測定した。

[0187] (3) 曲げ剛性

得られた合わせガラスを用いて、曲げ剛性を評価した。

[0188] 図5に模式的に示す試験方法で、曲げ剛性を評価した。測定装置としては、3点曲げ試験治具を備えたオリエンテック社製のUTA-500を使用した。測定条件としては、 20°C ($20 \pm 3^\circ\text{C}$)、距離D1は12 cm、距離D2は20 cmとし、変位速度 $1\text{ mm}/\text{分}$ でFの方向に合わせガラスに変形を加え、1.5 mmの変位を加えたときの応力を測定し、曲げ剛性を算出した。曲げ剛性を以下の基準で判定した。

[0189] [曲げ剛性の判定基準]

○：曲げ剛性が50N/mm以上

×：曲げ剛性が50N/mm未満

[0190] (4) 耐貫通性

得られた合わせガラスを、表面温度が23℃となるように調整した。次いで、1.5mの高さから、6枚の合わせガラスに対してそれぞれ、質量2260g及び直径82mmの剛球を、合わせガラスの中心部分に落下させた。6枚の合わせガラス全てについて、剛球が衝突した後5秒以内に剛球が貫通しなかった場合を合格とした。剛球が衝突した後5秒以内に剛球が貫通しなかった合わせガラスが3枚以下であった場合は不合格とした。4枚の場合には、新しく6枚の合わせガラスの耐貫通性を評価した。5枚の場合には、新しく1枚の合わせガラスを追加試験し、剛球が衝突した後5秒以内に剛球が貫通しなかった場合を合格とした。同様の方法で、25cmずつ高くし、6枚の合わせガラスに対してそれぞれ、質量2260g及び直径82mmの剛球を、合わせガラスの中心部分に落下させ、合わせガラスの耐貫通性（最大高さ）を評価した。耐貫通性を以下の基準で判定した。

[0191] [耐貫通性の判定基準]

○：2mの高さでも合格

×：2m未満で不合格

[0192] 詳細及び結果を下記の表1, 2に示す。なお、下記の表1では、紫外線遮蔽剤及び酸化防止剤の記載は省略した。

[0193]

[表1]

	樹脂の種類										可塑剤		
	種類										含有量 (重量部)	種類	含有量 (重量部)
	PVAの 平均重合度	アセチル 化度 (モル%)	水酸基の 含有率 (モル%)	アセチル 化度 (モル%)	酸の種類	酸基の 含有率 (モル%)	イオン化 金属種	中和度 (%)	含有量 (重量部)	種類			
実施例1	800	69	22	1.2	カルボン酸	3.9	Na	54	100	3GO	20		
実施例2	800	69	22	1.2	スルホン酸	3.9	Na	82	100	3GO	10		
実施例3	1700	68	23	1.2	カルボン酸	3.9	Zn	52	100	3GO	20		
実施例4	800	69	22	1.2	カルボン酸	3.9	K	52	100	3GO	20		
実施例5	1700	68	23	1.2	カルボン酸	3.9	Na	30	100	3GO	20		
実施例6	1700	68	23	1.2	カルボン酸	3.9	Na	15	100	3GO	20		
比較例1	800	69	22	1.2	-	-	-	-	100	3GO	20		
比較例2	800	69	22	1.2	カルボン酸	3.9	-	-	100	3GO	20		
比較例3	800	68.2	9	1.2	カルボン酸	10.8	Na	32	100	3GO	20		
比較例4	800	69	22	1.2	カルボン酸	3.9	Na	95	100	3GO	20		
比較例5	800	69	22	1.2	カルボン酸	3.9	Na	5	100	3GO	20		

[0194]

[表2]

	評価					
	せん断貯蔵 等価弾性率 (80°C)	ヤング率 (N/mm ²)	破断強度 (N/mm ²)	破断伸度 (%)	曲げ剛性	耐貫通性
実施例1	0.84MPa	226	32	425	○	○
実施例2	1.03MPa	248	35	391	○	○
実施例3	0.89MPa	259	44	552	○	○
実施例4	0.75MPa	211	31	419	○	○
実施例5	0.72MPa	222	42	521	○	○
実施例6	0.64MPa	202	39	506	○	○
比較例1	0.45MPa	123	24	352	×	○
比較例2	0.46MPa	145	28	389	×	○
比較例3	0.65MPa	255	35	382	○	×
比較例4	0.51MPa	252	33	386	○	×
比較例5	0.46MPa	148	28	381	×	○

符号の説明

- [0195] 1…第1の層
- 1 a…第1の表面
- 1 b…第2の表面
- 2…第2の層
- 2 a…外側の表面
- 3…第3の層
- 3 a…外側の表面
- 1 1…樹脂フィルム（ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルム）
- 1 1 A…樹脂フィルム（ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルム、第1の層）
- 1 1 a…第1の表面
- 1 1 b…第2の表面
- 2 1…第1の合わせガラス部材

2 2 …第2の合わせガラス部材

3 1 …合わせガラス

3 1 A …合わせガラス

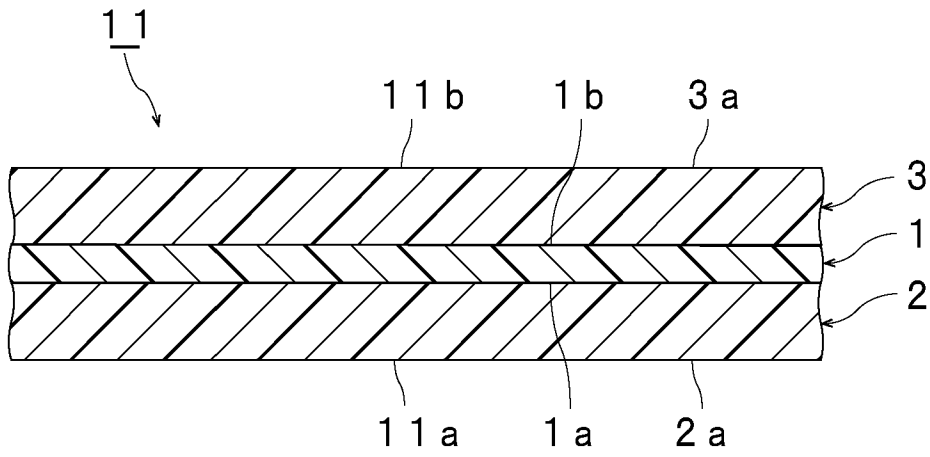
請求の範囲

- [請求項1] 酸基が導入されたポリビニルアセタールを含有するポリビニルアセタールアイオノマー樹脂を含み、
前記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂の酸基の含有率が1.5モル%以上、10モル%以下であり、
前記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂の中和度が10%以上、90%以下である、ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルム。
- [請求項2] 80°Cでのせん断貯蔵等価弾性率が0.5MPa以上、3MPa以下である、請求項1に記載のポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルム。
- [請求項3] 前記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂のアセタール化度が50モル%以上、80モル%以下であり、
前記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂の水酸基の含有率が5モル%以上、40モル%以下であり、
前記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂のアセチル化度が0.1モル%以上、30モル%以下である、請求項1又は2に記載のポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルム。
- [請求項4] 可塑剤を含む、請求項1～3のいずれか1項に記載のポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルム。
- [請求項5] 前記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂100重量部に対して、前記可塑剤の含有量が10重量部以上である、請求項4に記載のポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルム。
- [請求項6] 厚みが3mm以下である、請求項1～5のいずれか1項に記載のポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルム。
- [請求項7] 合わせガラスを得るために用いられる合わせガラス用中間膜である、請求項1～6のいずれか1項に記載のポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルム。

[請求項8] 厚みが1.8mm以下である第1のガラス板を用いて、前記第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられる合わせガラス用中間膜である、請求項1～7のいずれか1項に記載のポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルム。

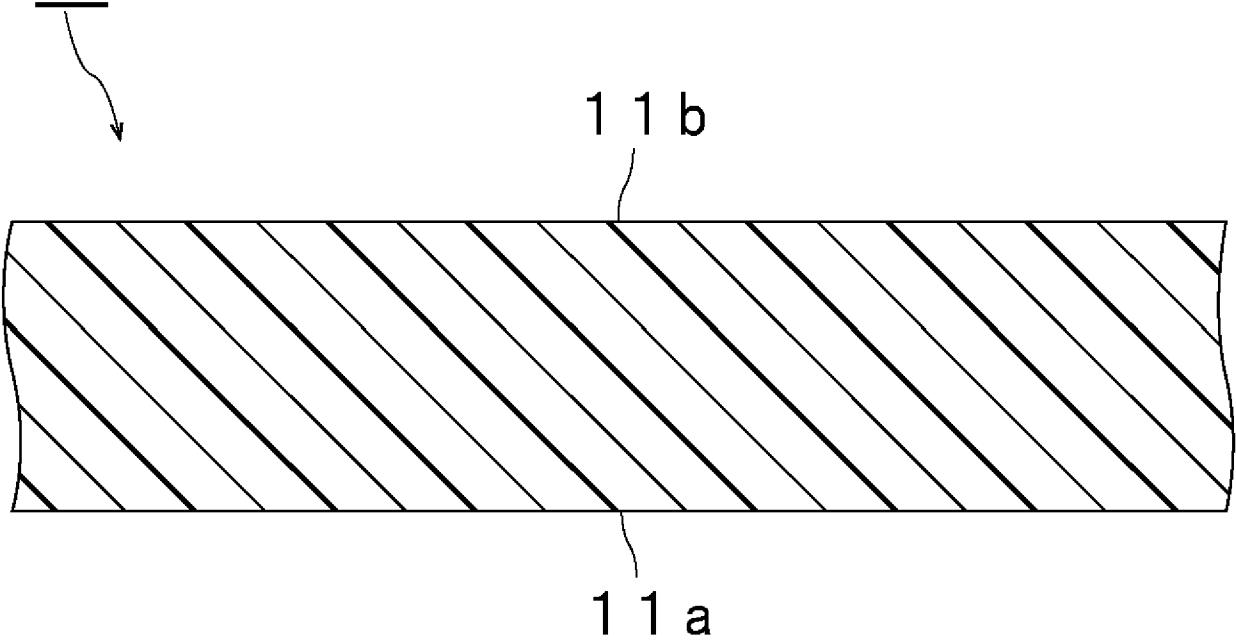
[請求項9] 第1の合わせガラス部材と、
第2の合わせガラス部材と、
請求項1～8のいずれか1項に記載のポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムとを備え、
前記第1の合わせガラス部材と前記第2の合わせガラス部材との間に、前記ポリビニルアセタールアイオノマー樹脂フィルムが配置されている、合わせガラス。

[図1]

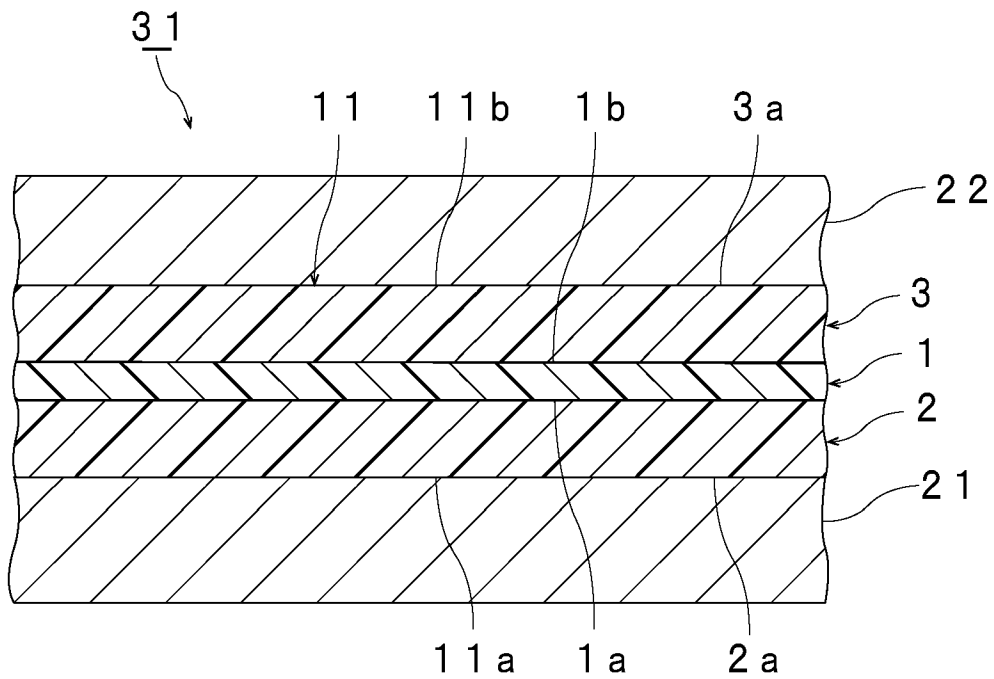


[図2]

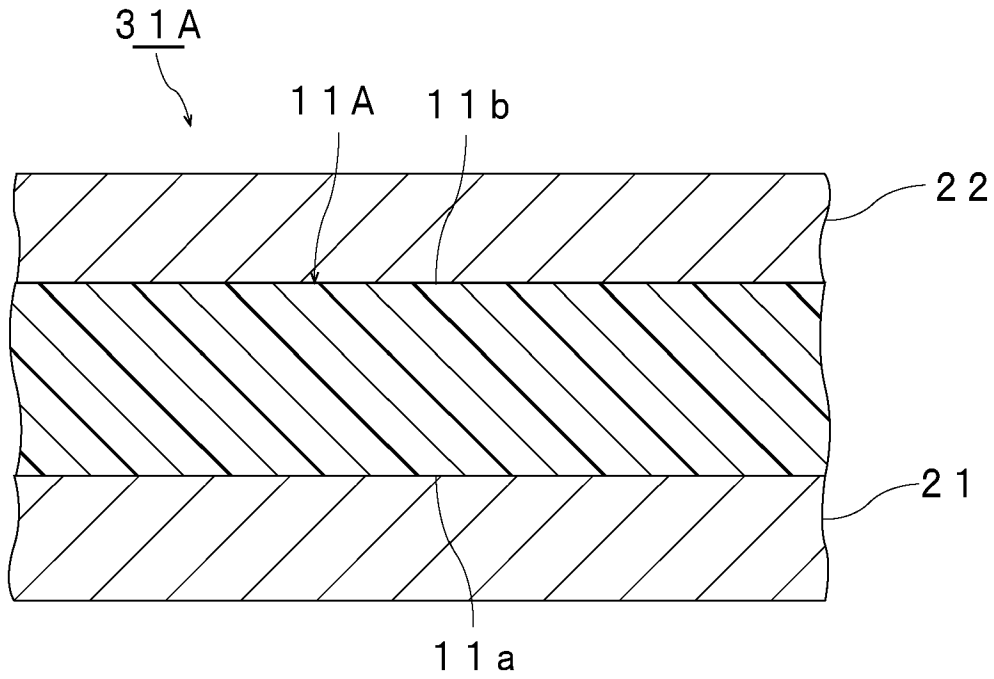
11A



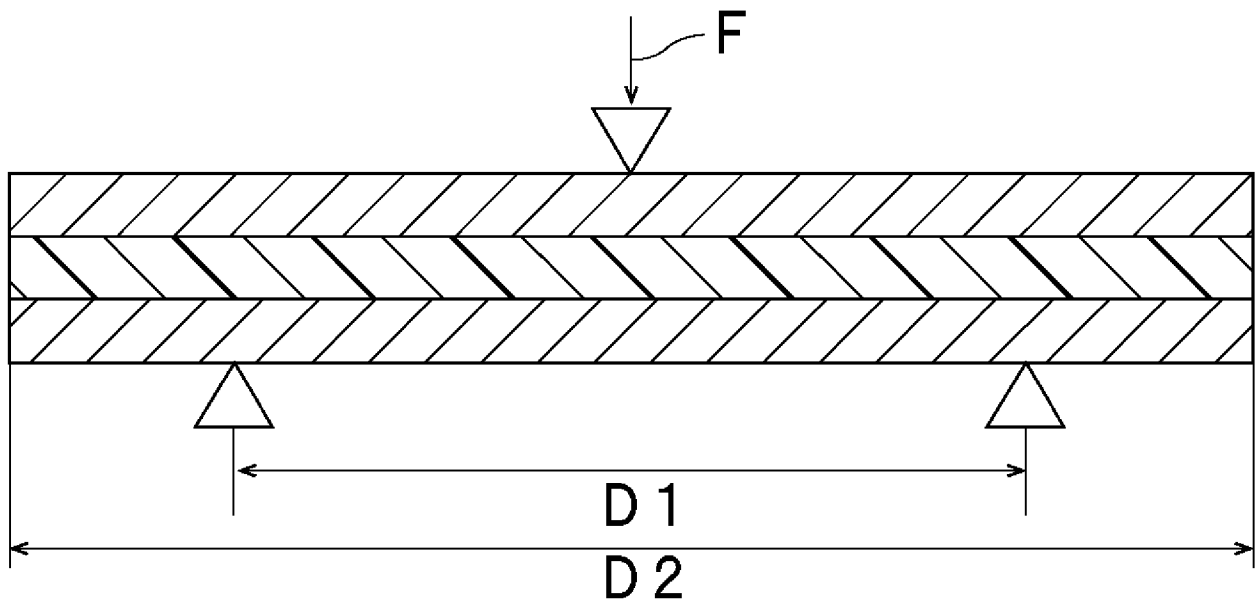
[図3]



[図4]



[図5]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/013711

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C03C27/12(2006.01)i, B32B17/10(2006.01)i, B32B27/22(2006.01)i, B32B27/30(2006.01)i, C08F8/28(2006.01)i, C08F8/44(2006.01)i, C08L29/14(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C03C27/12, B32B17/06-17/10, B32B27/22, B32B27/30, C08F8/28, C08F8/44, C08L29/14

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	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>JP 2012-519646 A (E.I. Du Pont de Nemours & Co.), 30 August 2012 (30.08.2012), claims; paragraphs [0002], [0007], [0009] to [0010], [0031] to [0033], [0041], [0048] to [0049], [0055] to [0056], [0059] to [0065], [0070], [0082], [0086] to [0089]; table 5 & US 2010/0227135 A1 paragraphs [0002], [0007], [0009] to [0010], [0035] to [0037], [0045], [0052] to [0053], [0059] to [0060], [0063] to [0069], [0074], [0084], [0086] to [0089]; table 5 & WO 2010/102282 A1 & EP 2408988 A1 & CN 102341556 A</p>	1-9

Further documents are listed in the continuation of Box C.

— See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

earlier application or patent but published on or after the international filing date

document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

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

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

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
22 June 2017 (22.06.17)

Date of mailing of the international search report
04 July 2017 (04.07.17)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/013711

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 2013/0295357 A1 (CORNING INC.), 07 November 2013 (07.11.2013), paragraphs [0002] to [0005], [0042] to [0064], [0068] to [0070]; tables 1, 2 & JP 2014-523389 A & US 2012/0328843 A1 & WO 2012/177426 A1 & EP 2723562 A1 & TW 201302457 A & CN 103619582 A & KR 10-2014-0048944 A	1-9
A	JP 08-295541 A (Du Pont-Mitsui Polychemicals Co., Ltd.), 12 November 1996 (12.11.1996), claims; paragraphs [0001] to [0027] (Family: none)	1-9
A	JP 07-002932 A (Advanced Glass Systems Corp.), 06 January 1995 (06.01.1995), paragraphs [0001], [0006] to [0007], [0016], [0022] to [0023], [0037] to [0041], [0057] & US 4619973 A column 1, lines 6 to 13; column 1, line 56 to column 2, line 11; column 4, lines 34 to 36; column 5, lines 17 to 36; column 7, line 44 to column 8, line 42; column 11, line 58 to column 12, line 2 & US 4732944 A & US 4906703 A & JP 61-501455 A & WO 1986/001214 A1 & EP 191088 A1 & DE 3583023 D & MX 169866 B & ES 546862 A & ES 557575 A & CA 1277079 A	1-9
A	JP 57-153064 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 21 September 1982 (21.09.1982), claims; page 1, right column, line 18 to page 2, upper left column, line 3; page 2, lower left column, line 17 to page 2, lower right column, line 16; page 3, upper left column, line 14 to page 3, upper right column, line 12 (Family: none)	1-9

<p>A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))</p> <p>Int.Cl. C03C27/12(2006.01)i, B32B17/10(2006.01)i, B32B27/22(2006.01)i, B32B27/30(2006.01)i, C08F8/28(2006.01)i, C08F8/44(2006.01)i, C08L29/14(2006.01)i</p>		
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))</p> <p>Int.Cl. C03C27/12, B32B17/06 - 17/10, B32B27/22, B32B27/30, C08F8/28, C08F8/44, C08L29/14</p>		
<p>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</p> <p>日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2017年 日本国実用新案登録公報 1996-2017年 日本国登録実用新案公報 1994-2017年</p>		
<p>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)</p>		
<p>C. 関連すると認められる文献</p>		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2012-519646 A (イー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・アンド・カンパニー) 2012.08.30, 特許請求の範囲, [0002], [0007], [0009] - [0010], [0031] - [0033], [0041], [0048] - [0049], [0055] - [0056], [0059] - [0065], [0070], [0082], [0086] - [0089], [表 5] & US 2010/0227135 A1 [0002], [0007], [0009] - [0010], [0035] - [0037], [0045], [0052] - [0053], [0059] - [0060], [0063] - [0069], [0074], [0084], [0086] - [0089], TABLE 5	1 - 9
<input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。		
<p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>「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</p> <p>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</p>		
国際調査を完了した日	22.06.2017	国際調査報告の発送日
国際調査機関の名称及びあて先	日本国特許庁 (ISA/JP) 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) 吉川 潤 電話番号 03-3581-1101 内線 3465
		4T 9651

C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
	& WO 2010/102282 A1 & EP 2408988 A1 & CN 102341556 A	
A	US 2013/0295357 A1 (CORNING INCORPORATED) 2013. 11. 07, [0002] - [0005], [0042] - [0064], [0068] - [0070], TABLE1, TABLE2 & JP 2014-523389 A & US 2012/0328843 A1 & WO 2012/177426 A1 & EP 2723562 A1 & TW 201302457 A & CN 103619582 A & KR 10-2014-0048944 A	1 - 9
A	JP 08-295541 A (三井・デュポンポリケミカル株式会社) 1996. 11. 12, 特許請求の範囲, [0001] - [0027] (ファミリーなし)	1 - 9
A	JP 07-002932 A (アドバンスト・グラス・システムズ・コーポレー ション) 1995. 01. 06, [0001], [0006] - [0007], [0016], [0022] - [0023], [0037] - [0041], [0057] & US 4619973 A Column 1, Lines 6 - 13, Column 1, Line 56 - Column 2, Line 11, Column 4, Lines 34 - 36, Column 5, Lines 17 - 36, Column 7, Line 44 - Column 8, Line 42, Column 11, Line 58 - Column 12, Line 2 & US 4732944 A & US 4906703 A & JP 61-501455 A & WO 1986/001214 A1 & EP 191088 A1 & DE 3583023 D & MX 169866 B & ES 546862 A & ES 557575 A & CA 1277079 A	1 - 9
A	JP 57-153064 A (住友化学工業株式会社) 1982. 09. 21, 特許請求の範囲, 第 1 頁右欄 18 行 - 第 2 頁左上欄 3 行, 第 2 頁左下欄 17 行 - 第 2 頁右下欄 16 行, 第 3 頁左上欄 14 行 - 第 3 頁右上欄 12 行 (ファミリーなし)	1 - 9