

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局

(43) 国際公開日  
2016年2月4日(04.02.2016)



(10) 国際公開番号  
WO 2016/017825 A1

- (51) 国際特許分類:  
C03C 27/12 (2006.01) C08K 5/07 (2006.01)  
B32B 27/18 (2006.01) C08L 101/00 (2006.01)  
B60J 1/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2015/072004
- (22) 国際出願日: 2015年8月3日(03.08.2015)
- (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 2014-158222 2014年8月1日(01.08.2014) JP  
特願 2014-158224 2014年8月1日(01.08.2014) JP
- (71) 出願人: 積水化学工業株式会社(SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5300047 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号 Osaka (JP).
- (72) 発明者: 太田 祐輔(OOTA Yuusuke); 〒5288585 滋賀県甲賀市水口町泉1259 積水化学工業株式会社内 Shiga (JP). 伊豆 康之(IZU Yasuyuki); 〒5288585 滋賀県甲賀市水口町泉1259 積水化学工業株式会社内 Shiga (JP). 中島 大輔(NAKAJIMA Daisuke); 〒5288585 滋賀県甲賀市水口町泉1259 積水化学工業株式会社内 Shiga (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人 安富国際特許事務所 (YASUTOMI & ASSOCIATES); 〒5320003 大阪府大阪市淀川区宮原3丁目5番36号 Osaka (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:  
— 国際調査報告 (条約第21条(3))

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

(54) 発明の名称: 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス

(57) Abstract: The purpose of the present invention is to provide: an intermediate film that is for laminated glass and that makes it possible to display an image at a high light emission intensity by irradiating with a light beam; and a laminated glass that includes the intermediate film for laminated glass. The present invention is an intermediate film for laminated glass, said intermediate film comprising a light-emitting layer. The light-emitting layer contains a thermoplastic resin and a lanthanide complex comprising a polydentate ligand that includes a halogen atom. The total content of potassium, sodium, and magnesium that are included in the light-emitting layer is 50 ppm or less.

(57) 要約: 本発明は、光線を照射することにより高い発光強度で画像を表示することができる合わせガラス用中間膜、及び、該合わせガラス用中間膜を含む合わせガラスを提供することを目的とする。本発明は、熱可塑性樹脂と、ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体とを含有する発光層を有する合わせガラス用中間膜であって、前記発光層に含まれるカリウム、ナトリウム及びマグネシウムの合計の含有量が50ppm以下である合わせガラス用中間膜である。



WO 2016/017825 A1

## 明 細 書

**発明の名称**： 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス

### 技術分野

[0001] 本発明は、光線を照射することにより高い発光強度で画像を表示することができる合わせガラス用中間膜、及び、該合わせガラス用中間膜を含む合わせガラスに関する。

### 背景技術

[0002] 合わせガラスは、外部衝撃を受けて破損してもガラスの破片が飛散することが少なく安全であるため、自動車等の車両のフロントガラス、サイドガラス、リアガラスや、航空機、建築物等の窓ガラス等として広く使用されている。合わせガラスとして、少なくとも一対のガラス間に、例えば、液状可塑剤とポリビニルアセタール樹脂とを含む合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させた合わせガラス等が挙げられる。

[0003] 近年、自動車用のフロントガラスと同じ視野内に自動車走行データである速度情報等の計器表示をヘッドアップディスプレイ（HUD）として表示させようとする要望が高まっている。

HUDとしては、これまでに数々の形態が開発されている。最も一般的なHUDとしてコントロールユニットから送信される速度情報等をインストルメンタル・パネルの表示ユニットからフロントガラスに反射させることにより、運転者がフロントガラスと同じ位置、すなわち、同一視野内で速度情報等を視認できるHUDがある。

HUD用の合わせガラス用中間膜として、例えば、特許文献1には、所定の楔角を有する楔形合わせガラス用中間膜等が提案されており、合わせガラスにおいて計器表示が二重に見えるというHUDの欠点を解決することが提案されている。

[0004] 特許文献1に記載された合わせガラスは、合わせガラスの面内の一部の領域であれば、計器表示が二重に見えるというHUDの欠点を解決することがで

きる。即ち、合わせガラスの面内の全面において、計器表示が二重に見えるという問題は解決されていない。

[0005] これに対して、特許文献2において本願の出願人は、バインダー樹脂と、発光粒子、発光顔料及び発光染料からなる群より選択される少なくとも一種の発光材料とを含有する発光層を有する合わせガラス用中間膜を開示した。発光粒子、発光顔料、発光染料等の発光材料は、特定の波長の光を照射することにより発光する性質を有する。このような発光材料を配合した合わせガラス用中間膜に光線を照射することにより含有する発光粒子が発光して、コントラストが高い画像を表示することができる。

## 先行技術文献

### 特許文献

[0006] 特許文献1：特表平4-502525号公報  
特許文献2：特開2014-24312号公報

## 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

[0007] 発光材料を配合した発光シートにおいて、より高コントラストの画像を表示するためには、より発光強度が高い発光材料を選択することが重要である。本発明者らは、鋭意検討の結果、ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体が、極めて高い発光強度を示すことを見出した。しかしながら、ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体を用いて合わせガラス用中間膜を製造しても、期待したほどには高い発光強度が得られないという問題があった。

本発明は、上記現状に鑑み、光線を照射することにより高い発光強度で画像を表示することができる合わせガラス用中間膜、及び、該合わせガラス用中間膜を含む合わせガラスを提供することを目的とする。

### 課題を解決するための手段

[0008] 本発明1は、熱可塑性樹脂と、ハロゲン原子を含む多座配位子を有するラン

タノイド錯体とを含有する発光層を有する合わせガラス用中間膜であって、前記発光層に含まれるカリウム、ナトリウム及びマグネシウムの合計の含有量が50ppm以下である合わせガラス用中間膜である。

[0009] 本発明2は、熱可塑性樹脂と、ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体とを含む発光層と、熱可塑性樹脂と、アルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩及びマグネシウム塩からなる群から選択された少なくとも1種の金属塩とを含む接着層とを有し、前記発光層に含まれるアルカリ金属、アルカリ土類金属及びマグネシウムの合計の含有量が、前記接着層に含まれるアルカリ金属、アルカリ土類金属及びマグネシウムの合計の含有量よりも少ない合わせガラス用中間膜である。

以下に本発明を詳述する。

[0010] まず、本発明1について詳しく説明する。

本発明者らは、ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体を用いて合わせガラス用中間膜を製造したときに発光強度が低下する原因を検討した。その結果、合わせガラス用中間膜中に含まれるカリウム、ナトリウム、マグネシウム、とりわけマグネシウムが原因であることを見出した。

合わせガラス用中間膜中には、可塑性樹脂製造時に用いた中和剤等の原料に由来するカリウム、ナトリウム、マグネシウムが含まれる。このような合わせガラス用中間膜にハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体を配合すると、カリウム、ナトリウム、マグネシウムとランタノイド錯体とが相互作用して、ランタノイド錯体の発光性能が低下するものと考えられた。

本発明者らは、更に鋭意検討の結果、合わせガラス用中間膜中に含まれるカリウム、ナトリウム及びマグネシウムの合計の含有量を一定以下とすることにより、ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体を用いた場合にでも、発光性が低下するのを防止できることを見出し、本発明1を完成させるに至った。

[0011] 本発明1の合わせガラス用中間膜は、熱可塑性樹脂と、ハロゲン原子を含む

多座配位子を有するランタノイド錯体とを含む発光層を有する。上記発光層は、ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体を発光材料とし含有することにより、上記発光層に光線を照射することによりコントラストが高い画像を表示することができる。

[0012] 上記熱可塑性樹脂は特に限定されず、例えば、ポリビニルアセタール樹脂、エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂、エチレン-アクリル共重合体樹脂、ポリウレタン樹脂、硫黄元素を含有するポリウレタン樹脂、ポリビニルアルコール樹脂、塩化ビニル樹脂、ポリエチレンテレフタレート樹脂等が挙げられる。なかでも、可塑剤と併用した場合に、ガラスに対して優れた接着性を発揮する合わせガラス用中間膜が得られることから、ポリビニルアセタール樹脂が好適である。

[0013] 上記ポリビニルアセタールは、ポリビニルアルコールをアルデヒドでアセタール化して得られるポリビニルアセタールであれば特に限定されないが、ポリビニルブチラールが好適である。また、必要に応じて2種以上のポリビニルアセタールを併用してもよい。

上記ポリビニルアセタールのアセタール化度の好ましい下限は40モル%、好ましい上限は85モル%であり、より好ましい下限は60モル%、より好ましい上限は75モル%である。

[0014] 上記ポリビニルアセタールは、水酸基量の好ましい下限が15モル%、好ましい上限が35モル%である。水酸基量が15モル%以上であると、合わせガラス用中間膜の成形が容易になる。水酸基量が35モル%以下であると、得られる合わせガラス用中間膜の取り扱いが容易になる。

なお、上記アセタール化度及び水酸基量は、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。

[0015] 上記ポリビニルアセタールは、ポリビニルアルコールをアルデヒドでアセタール化することにより調製することができる。上記ポリビニルアルコールは、通常、ポリ酢酸ビニルを鹼化することにより得られ、鹼化度70~99.8モル%のポリビニルアルコールが一般的に用いられる。

上記ポリビニルアルコールの重合度の好ましい下限は500、好ましい上限は4000である。上記ポリビニルアルコールの重合度が500以上であると、得られる合わせガラスの耐貫通性が高くなる。上記ポリビニルアルコールの重合度が4000以下であると、合わせガラス用中間膜の成形が容易になる。上記ポリビニルアルコールの重合度のより好ましい下限は1000、より好ましい上限は3600である。

[0016] 上記アルデヒドは特に限定されないが、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のアルデヒドは特に限定されず、例えば、*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、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、ベンズアルデヒド等が挙げられる。なかでも、*n*-ブチルアルデヒド、*n*-ヘキシルアルデヒド、*n*-バレルアルデヒドが好ましく、*n*-ブチルアルデヒドがより好ましい。これらのアルデヒドは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

[0017] 上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体は、光線を照射することにより高い発光強度で発光する。なかでも、ハロゲン原子を含む二座配位子を有するランタノイド錯体又はハロゲン原子を含む三座配位子を有するランタノイド錯体は、光線を照射することにより一層高い発光強度で発光することから好ましい。他にも、上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体としては、ハロゲン原子を含む四座配位子を有するランタノイド錯体、ハロゲン原子を含む五座配位子を有するランタノイド錯体、ハロゲン原子を含む六座配位子を有するランタノイド錯体等が挙げられる。

本発明1の発明者らは、ランタノイド錯体のなかでも、ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体は、300~410nmの波長の光を照射することにより、580~780nmの波長の光を極めて高い発光強度で発光することから、これを用いることにより高コントラストの画像を表示

できる合わせガラス用中間膜が得られることを見出した。

[0018] 本明細書においてランタノイドとは、ランタン、セリウム、プラセオジウム、ネオジウム、プロメチウム、サマリウム、ユーロピウム、ガドリニウム、テルビウム、ジスプロシウム、ホルミウム、エルビウム、ツリウム、イッテルビウム又はルテチウムを含む。より一層高い発光強度が得られることから、ランタノイドは、ネオジウム、ユーロピウム又はテルビウムが好ましく、ユーロピウム又はテルビウムがより好ましく、ユーロピウムが更に好ましい。

[0019] 上記ハロゲン原子を含む二座配位子を有するランタノイド錯体は、例えば、トリス（トリフルオロアセチルアセトン）フェナントロリンユーロピウム、トリス（トリフルオロアセチルアセトン）ジフェニルフェナントロリンユーロピウム、トリス（ヘキサフルオロアセチルアセトン）ジフェニルフェナントロリンユーロピウム、トリス（ヘキサフルオロアセチルアセトン）ビス（トリフェニルホスフィン）ユーロピウム、トリス（トリフルオロアセチルアセトン）2, 2'-ビピリジンユーロピウム、トリス（ヘキサフルオロアセチルアセトン）2, 2'-ビピリジンユーロピウム等が挙げられる。

上記ハロゲン原子を含む三座配位子を有するランタノイド錯体は、例えば、ターピリジントリフルオロアセチルアセトンユーロピウム、ターピリジンヘキサフルオロアセチルアセトンユーロピウム等が挙げられる。

[0020] 上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体のハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子を用いることができる。なかでも、配位子の構造を安定化させることから、フッ素原子が好適である。

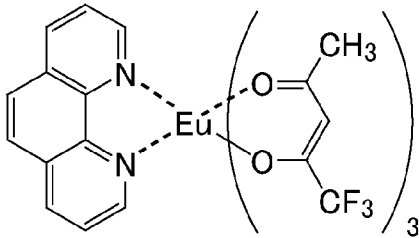
[0021] 上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体のなかでも、特に初期発光性に優れることから、ハロゲン原子を含むアセチルアセトン骨格を有する二座配位子を有するランタノイド錯体が好適である。

上記ハロゲン原子を含むアセチルアセトン骨格を有する二座配位子を有するランタノイド錯体は、例えば、Eu(TFA)<sub>3</sub>phen、Eu(TFA)<sub>3</sub>dpphen、Eu(HFA)<sub>3</sub>phen、[Eu(FOD)<sub>3</sub>]bpy、[

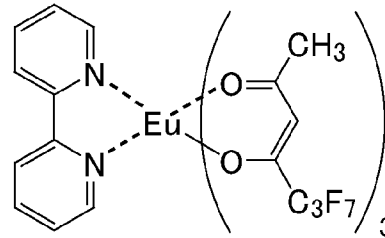
$Eu(TFA)_3]tmphen$ 、 $[Eu(FOD)_3]phen$ 等が挙げられる。これらのハロゲン原子を含むアセチルアセトン骨格を有する二座配位子を有するランタノイド錯体の構造を示す。

[0022] [化1]

$Eu(TFA)_3phen$



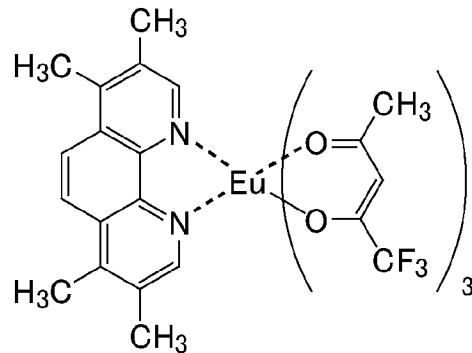
$[Eu(FOD)_3]bpy$



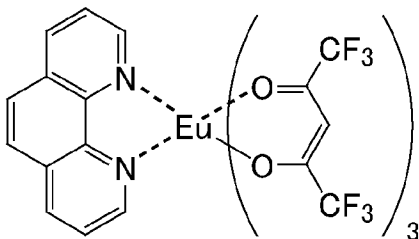
$Eu(TFA)_3dpphen$



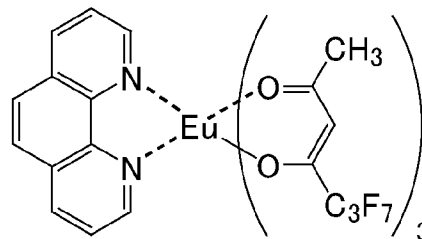
$[Eu(TFA)_3]tmphen$



$Eu(HFA)_3phen$



$[Eu(FOD)_3]phen$



[0023] 上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体は、粒子状であることが好ましい。粒子状であることにより、上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体を合わせガラス用中間膜中に微分散させることがより容易となる。

上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体が粒子状である場合、ランタノイド錯体の平均粒子径の好ましい下限は $0.01\ \mu\text{m}$ 、好ましい上限は $10\ \mu\text{m}$ であり、より好ましい下限は $0.03\ \mu\text{m}$ 、より好ましい上限は $1\ \mu\text{m}$ である。

[0024] 上記発光層における上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体の含有量は、上記熱可塑性樹脂100重量部に対する好ましい下限が $0.001$ 重量部、好ましい上限が10重量部である。上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体の含有量が $0.001$ 重量部以上であると、コントラストがより一層高い画像を表示することができる。上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体の含有量の含有量が10重量部以下であると、合わせガラス用中間膜の透明性がより一層高くなる。上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体の含有量のより好ましい下限は $0.01$ 重量部、より好ましい上限は5重量部、更に好ましい下限は $0.05$ 重量部、更に好ましい上限は1重量部、特に好ましい下限は $0.2$ 重量部である。

[0025] 上記発光層には、熱可塑性樹脂製造時に用いた中和剤等の原料に由来するカリウム、ナトリウム、マグネシウムが含まれ得る。本発明1の合わせガラス用中間膜では、上記発光層に含まれるカリウム、ナトリウム及びマグネシウムの合計の含有量が $50\ \text{ppm}$ 以下である。

カリウム、ナトリウム及びマグネシウムの合計の含有量を $50\ \text{ppm}$ 以下とすることにより、併用する上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体の発光性が低下するのを防止することができる。上記発光層に含まれるカリウム、ナトリウム及びマグネシウムの合計の含有量は $40\ \text{ppm}$ 以下であることが好ましく、 $35\ \text{ppm}$ 以下であることより好ましく、 $10\ \text{ppm}$ 以下であることが更に好ましい。

[0026] 上記発光層に含まれるマグネシウムの含有量は $40\ \text{ppm}$ 以下であることが好ましい。上記発光層に含まれるマグネシウムの含有量が $40\ \text{ppm}$ 以下であることにより、上記発光層における上記ハロゲン原子を含む多座配位子を

有するランタノイド錯体の発光性能の低下をより確実に抑制することができる。上記発光層に含まれるマグネシウムの含有量は35 ppm以下であることがより好ましく、30 ppm以下であることが更に好ましく、20 ppm以下であることが特に好ましい。上記発光層に含まれるマグネシウムの含有量は0 ppmであってもよい。

[0027] 上記発光層に含まれるカリウム、ナトリウム及びマグネシウムの合計の含有量を50 ppm以下とするためには、熱可塑性樹脂を過剰量のイオン交換水で複数回洗浄することが好ましい。特に、熱可塑性樹脂製造時の中和工程の前にイオン交換水で複数回洗浄する、中和工程の後にイオン交換水で複数回洗浄する、これらの洗浄工程において10倍量以上のイオン交換水を用いる、等の方法を組み合わせることによって、上記発光層に含まれるカリウム、ナトリウム及びマグネシウムの合計の含有量を50 ppm以下に調節することができる。

[0028] 上記発光層は、更に分散剤を含有することが好ましい。分散剤を含有することにより、上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体の凝集を抑制でき、より均一な発光が得られる。

上記分散剤は、例えば、直鎖アルキルベンゼンスルホン酸塩等のスルホン酸構造を有する化合物や、ジエステル化合物、リシノール酸アルキルエステル、フタル酸エステル、アジピン酸エステル、セバシン酸エステル、リン酸エステル等のエステル構造を有する化合物や、ポリオキシエチレングリコール、ポリオキシプロピレングリコールやアルキルフェニルポリオキシエチレンエーテル等のエーテル構造を有する化合物や、ポリカルボン酸等のカルボン酸構造を有する化合物や、ラウリルアミン、ジメチルラウリルアミン、オレイルプロピレンジアミン、ポリオキシエチレンの2級アミン、ポリオキシエチレンの3級アミン、ポリオキシエチレンのジアミン等のアミン構造を有する化合物や、ポリアルキレンポリアミンアルキレンオキシド等のポリアミン構造を有する化合物や、オレイン酸ジエタノールアミド、アルカノール脂肪酸アミド等のアミド構造を有する化合物や、ポリビニルピロリドン、ポ

リエステル酸アミドアミン塩等の高分子量型アミド構造を有する化合物等の分散剤を用いることができる。また、ポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸（塩）や高分子ポリカルボン酸、縮合リシノール酸エステル等の高分子量分散剤を用いてもよい。なお、高分子量分散剤とは、その分子量が1万以上である分散剤と定義される。

[0029] 上記分散剤を配合する場合に、上記発光層中における上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体100重量部に対する上記分散剤の含有量の好ましい下限は1重量部、好ましい上限は50重量部である。上記分散剤の含有量がこの範囲内であると、上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体を発光層中に均一に分散させることができる。上記分散剤の含有量のより好ましい下限は3重量部、より好ましい上限は30重量部であり、更に好ましい下限は5重量部、更に好ましい上限は25重量部である。

[0030] 上記発光層は、更に、紫外線吸収剤を含有してもよい。上記発光層が紫外線吸収剤を含有することにより、上記発光層の耐光性が高くなる。コントラストがより一層高い画像を表示できる合わせガラス用中間膜が得られることから、上記発光層中における上記紫外線吸収剤の含有量は、上記熱可塑性樹脂100重量部に対する好ましい上限は1重量部、より好ましい上限は0.5重量部、更に好ましい上限は0.2重量部、特に好ましい上限は0.1重量部である。

[0031] 上記紫外線吸収剤は、例えば、マロン酸エステル構造を有する化合物、シュウ酸アニリド構造を有する化合物、ベンゾトリアゾール構造を有する化合物、ベンゾフェノン構造を有する化合物、トリアジン構造を有する化合物、ベンゾエート構造を有する化合物、ヒンダードアミン構造を有する化合物等の紫外線吸収剤が挙げられる。

[0032] 上記発光層は、更に、可塑剤を含有してもよい。

上記可塑剤は特に限定されず、例えば、一塩基性有機酸エステル、多塩基性有機酸エステル等の有機エステル可塑剤、有機リン酸可塑剤、有機亜リン酸

可塑剤等のリン酸可塑剤等が挙げられる。上記可塑剤は液状可塑剤であることが好ましい。

[0033] 上記一塩基性有機酸エステルは特に限定されないが、例えば、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、トリプロピレングリコール等のグリコールと、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、ペラルゴン酸（n-ノニル酸）、デシル酸等の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。なかでも、トリエチレングリコールジカプロン酸エステル、トリエチレングリコールジ-2-エチル酪酸エステル、トリエチレングリコールジ-n-オクチル酸エステル、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキシル酸エステル等が好適である。

[0034] 上記多塩基性有機酸エステルは特に限定されないが、例えば、アジピン酸、セバシン酸、アゼライン酸等の多塩基性有機酸と、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が挙げられる。なかでも、ジブチルセバシン酸エステル、ジオクチルアゼライン酸エステル、ジブチルカルビトールアジピン酸エステル等が好適である。

[0035] 上記有機エステル可塑剤は特に限定されず、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、テトラエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート、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エート、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、アジピン酸ジイソノニル、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、リン酸エステルとアジピン酸エステルとの混合物、アジピン酸エステル、炭素数4～9のアルキルアルコール及び炭素数4～9の環状アルコールから作製された混合型アジピン酸エステル、アジピン酸ヘキシル等の炭素数6～8のアジピン酸エステル等が挙げられる。

[0036] 上記有機リン酸可塑剤は特に限定されず、例えば、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、トリイソプロピルホスフェート等が挙げられる。

[0037] 上記可塑剤のなかでも、ジヘキシルアジペート（DHA）、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（3GO）、テトラエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（4GO）、トリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート（3GH）、テトラエチレングリコールジ-2-エチルブチレート（4GH）、テトラエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート（4G7）及びトリエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート（3G7）からなる群より選択される少なくとも1種であることが好ましい。

[0038] 更に、上記可塑剤として、加水分解を起こしにくいいため、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）、テトラエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（4GO）、ジヘキシルアジペート（DHA）を含有することが好ましく、テトラエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（4GO）、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（3GO）を含有することがより好ましく、特に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有することがより好ましい。

[0039] 上記発光層における上記可塑剤の含有量は特に限定されないが、上記熱可塑性樹脂100重量部に対する好ましい下限が30重量部、好ましい上限が100重量部である。上記可塑剤の含有量が30重量部以上であると、合わせ

ガラス用中間膜の溶融粘度が低くなるため、合わせガラス用中間膜を容易に成形できる。上記可塑剤の含有量が100重量部以下であると、合わせガラス用中間膜の透明性が高くなる。上記可塑剤の含有量のより好ましい下限は35重量部、より好ましい上限は80重量部、更に好ましい下限は45重量部、更に好ましい上限は70重量部、特に好ましい下限は50重量部、特に好ましい上限は63重量部である。

[0040] 上記発光層は、優れた耐光性を得ることができることから、酸化防止剤を含有することが好ましい。

上記酸化防止剤は特に限定されず、フェール構造を有する酸化防止剤、硫黄を含む酸化防止剤、リンを含む酸化防止剤等が挙げられる。

上記フェノール構造を有する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。上記フェノール構造を有する酸化防止剤としては、例えば、2,6-ジ-*t*-ブチル-*p*-クレゾール (BHT)、ブチル化ヒドロキシアニソール (BHA)、2,6-ジ-*t*-ブチル-4-エチルフェノール、ステアリル- $\beta$ -(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-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)ブチリックアシッドグリコールエステル、ペンタエリスリトールテトラキス[3-(3,5-ジ-*t e r t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]等が挙げられる。上記酸化防止剤は、単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0041] 上記発光層は、必要に応じて、光安定剤、帯電防止剤、青色顔料、青色染料、緑色顔料、緑色染料等の添加剤を含有してもよい。

[0042] 本発明1の合わせガラス用中間膜は、上記発光層のみからなる単層構造であってもよいし、他の層を積層した多層構造であってもよい。

本発明1の合わせガラス用中間膜が多層構造である場合、上記発光層は合わせガラス用中間膜の全面に配置されていてもよく、一部にのみ配置されていてもよく、合わせガラス用中間膜の厚み方向とは垂直の面方向の全面に配置されていてもよく、一部にのみ配置されていてもよい。上記発光層が一部にのみ配置されている場合には、該一部を発光エリア、他の部分を非発光エリアとして、発光エリアにおいてのみ情報を表示できるようにすることができる。

[0043] 本発明1の合わせガラス用中間膜が多層構造である場合、上記発光層及び他の層の構成成分を調整することにより、得られる合わせガラス用中間膜に種々の機能を付与することも可能である。

例えば、本発明1の合わせガラス用中間膜に遮音性能を付与するために、上記発光層における熱可塑性樹脂100重量部に対する可塑剤の含有量（以下、含有量Xともいう。）を、他の層における熱可塑性樹脂100重量部に対する可塑剤の含有量（以下、含有量Yともいう。）よりも多くすることができる。この場合、上記含有量Xは上記含有量Yよりも5重量部以上多いことが好ましく、10重量部以上多いことがより好ましく、15重量部以上多いことが更に好ましい。合わせガラス用中間膜の耐貫通性がより一層高くなることから、上記含有量Xと上記含有量Yとの差は、50重量部以下であることが好ましく、40重量部以下であることがより好ましく、35重量部以下であることが更に好ましい。なお、上記含有量Xと上記含有量Yとの差は、  
(上記含有量Xと上記含有量Yとの差) = (上記含有量X - 上記含有量Y)  
により算出される。

また、上記含有量Xの好ましい下限が45重量部、より好ましい下限が50重量部、更に好ましい下限が55重量部、好ましい上限が80重量部、より

好ましい上限が75重量部、さらに好ましい上限が70重量部である。上記含有量Xを上記好ましい下限以上とすることにより、高い遮音性を発揮することができる。上記含有量Xを上記好ましい上限以下とすることにより、可塑剤のブリードアウトの発生を抑制し、合わせガラス用中間膜の透明性や接着性の低下を防止することができる。

また、上記含有量Yの好ましい下限が20重量部、より好ましい下限が30重量部、更に好ましい下限が35重量部、好ましい上限が45重量部、より好ましい上限が43重量部、さらに好ましい上限が41重量部である。上記含有量Yを上記好ましい下限以上とすることにより、高い耐貫通性を発揮することができる。上記含有量Yを上記好ましい上限以下とすることにより、可塑剤のブリードアウトの発生を抑制し、合わせガラス用中間膜の透明性や接着性の低下を防止することができる。

[0044] また、本発明1の合わせガラス用中間膜に遮音性を付与するためには、上記発光層における熱可塑性樹脂は、ポリビニルアセタールXであることが好ましい。上記ポリビニルアセタールXは、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調製することができる。上記ポリビニルアルコールは、通常、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平均重合度の好ましい下限は200、好ましい上限5000である。上記ポリビニルアルコールの平均重合度を200以上とすることにより、得られる合わせガラス用中間膜の耐貫通性を向上させることができ、5000以下とすることにより、発光層の成形性を確保することができる。上記ポリビニルアルコールの平均重合度のより好ましい下限は500、より好ましい上限は4000である。なお、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。

[0045] 上記ポリビニルアルコールをアセタール化するためのアルデヒドの炭素数の好ましい下限は4、好ましい上限は6である。アルデヒドの炭素数を4以上とすることにより、十分な量の可塑剤を安定して含有させることができ、優

れた遮音性能を発揮することができる。また、可塑剤のブリードアウトを防止することができる。アルデヒドの炭素数を6以下とすることにより、ポリビニルアセタールXの合成を容易にし、生産性を確保できる。上記炭素数が4～6のアルデヒドとしては、直鎖状のアルデヒドであってもよいし、分枝状のアルデヒドであってもよく、例えば、n-ブチルアルデヒド、n-バレールアルデヒド等が挙げられる。

[0046] 上記ポリビニルアセタールXの水酸基量の好ましい上限は30モル%である。上記ポリビニルアセタールXの水酸基量を30モル%以下とすることにより、遮音性を発揮するのに必要な量の可塑剤を含有させることができ、可塑剤のブリードアウトを防止することができる。上記ポリビニルアセタールXの水酸基量のより好ましい上限は28モル%、更に好ましい上限は26モル%、特に好ましい上限は24モル%、好ましい下限は10モル%、より好ましい下限は15モル%、更に好ましい下限は20モル%である。上記ポリビニルアセタールXの水酸基量は、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（モル%）で表した値である。上記水酸基が結合しているエチレン基量は、例えば、JIS 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、上記ポリビニルアセタールXの水酸基が結合しているエチレン基量を測定することにより求めることができる。

[0047] 上記ポリビニルアセタールXのアセタール基量の好ましい下限は60モル%、好ましい上限は85モル%である。上記ポリビニルアセタールXのアセタール基量を60モル%以上とすることにより、発光層の疎水性を高くして、遮音性を発揮するのに必要な量の可塑剤を含有させることができ、可塑剤のブリードアウトや白化を防止することができる。上記ポリビニルアセタールXのアセタール基量を85モル%以下とすることにより、ポリビニルアセタールXの合成を容易にし、生産性を確保することができる。上記ポリビニルアセタールXのアセタール基量の下限は65モル%がより好ましく、68モル%以上が更に好ましい。上記アセタール基量は、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、上記ポリビニルアセタールXのアセタール基が結合しているエチレン基量を測定することにより求めることができる。

[0048] 上記ポリビニルアセタールXのアセチル基量の好ましい下限は0.1モル%、好ましい上限は30モル%である。上記ポリビニルアセタールXのアセチル基量を0.1モル%以上とすることにより、遮音性を発揮するのに必要な量の可塑剤を含有させることができ、ブリードアウトを防止することができる。また、上記ポリビニルアセタールXのアセチル基量を30モル%以下とすることにより、発光層の疎水性を高くして、白化を防止することができる。上記アセチル基量のより好ましい下限は1モル%、更に好ましい下限は5モル%、特に好ましい下限は8モル%、より好ましい上限は25モル%、更に好ましい上限は20モル%である。上記アセチル基量は、主鎖の全エチレン基量から、アセタール基が結合しているエチレン基量と、水酸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（モル%）で表した値である。

[0049] 特に、上記発光層に遮音性を発揮するのに必要な量の可塑剤を容易に含有させることができることから、上記ポリビニルアセタールXは、上記アセチル基量が8モル%以上のポリビニルアセタール、又は、上記アセチル基量が8モル%未満、かつ、アセタール基量が65モル%以上のポリビニルアセタールであることが好ましい。また、上記ポリビニルアセタールXは、上記アセチル基量が8モル%以上のポリビニルアセタール、又は、上記アセチル基量が8モル%未満、かつ、アセタール基量が68モル%以上のポリビニルアセタールであることが、より好ましい。

[0050] また、本発明1の合わせガラス用中間膜に遮音性を付与するためには、上記他の層における熱可塑性樹脂は、ポリビニルアセタールYであることが好ましい。ポリビニルアセタールYは、ポリビニルアセタールXより水酸基量が大きいことが好ましい。

[0051] 上記ポリビニルアセタールYは、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調製することができる。上記ポリビニルアルコールは、通常、ポリ酢酸ビニルをけん化することにより得られる。また、上記ポリビニルアルコールの平均重合度の好ましい下限は200、好ましい上限は5000である。上記ポリビニルアルコールの平均重合度を200以上とすることにより、合わせガラス用中間膜の耐貫通性を向上させることができ、5000以下とすることにより、他の層の成形性を確保することができる。上記ポリビニルアルコールの平均重合度のより好ましい下限は500、より好ましい上限は4000である。

[0052] 上記ポリビニルアルコールYをアセタール化するためのアルデヒドの炭素数の好ましい下限は3、好ましい上限は4である。アルデヒドの炭素数を3以上とすることにより、合わせガラス用中間膜の耐貫通性が高くなる。アルデヒドの炭素数を4以下とすることにより、ポリビニルアセタールYの生産性が向上する。上記炭素数が3~4のアルデヒドとしては、直鎖状のアルデヒドであってもよいし、分枝状のアルデヒドであってもよく、例えば、n-ブチルアルデヒド等が挙げられる。

[0053] 上記ポリビニルアセタールYの水酸基量の好ましい上限は33モル%、好ましい下限は28モル%である。上記ポリビニルアセタールYの水酸基量を33モル%以下とすることにより、合わせガラス用中間膜の白化を防止することができる。上記ポリビニルアセタールYの水酸基量を28モル%以上とすることにより、合わせガラス用中間膜の耐貫通性が高くなる。

[0054] 上記ポリビニルアセタールYは、アセタール基量の好ましい下限が60モル%、好ましい上限が80モル%である。上記アセタール基量を60モル%以上とすることにより、十分な耐貫通性を発揮するのに必要な量の可塑剤を含有させることができる。上記アセタール基量を80モル%以下とすることにより、上記他の層とガラスとの接着力を確保することができる。上記アセタール基量のより好ましい下限は65モル%、より好ましい上限は69モル%である。

[0055] 上記ポリビニルアセタールYのアセチル基量の好ましい上限は7モル%であ

る。上記ポリビニルアセタールYのアセチル基量を7モル%以下とすることにより、他の層の疎水性を高くして、白化を防止することができる。上記アセチル基量のより好ましい上限は2モル%であり、好ましい下限は0.1モル%である。なお、ポリビニルアセタールYの水酸基量、アセタール基量、及び、アセチル基量は、ポリビニルアセタールXと同様の方法で測定できる。

[0056] また、例えば、本発明1の合わせガラス用中間膜に遮熱性能を付与するために、上記発光層及び他の層のいずれか1層、いずれか2層、又は、すべての層に熱線吸収剤を含有させることができる。

上記熱線吸収剤は、赤外線を遮蔽する性能を有すれば特に限定されないが、錫ドーパ酸化インジウム(ITO)粒子、アンチモンドーパ酸化錫(ATO)粒子、アルミニウムドーパ酸化亜鉛(AZO)粒子、インジウムドーパ酸化亜鉛(IZO)粒子、錫ドーパ酸化亜鉛粒子、珪素ドーパ酸化亜鉛粒子、6ホウ化ランタン粒子及び6ホウ化セリウム粒子からなる群より選択される少なくとも1種が好適である。

[0057] 上記発光層が熱線吸収剤を含有する場合、上記発光層100重量%中、上記発光層に含まれる熱線吸収剤の含有量が0.00001重量%以上、1重量%以下であることが好ましい。上記他の層が熱線吸収剤を含有する場合、上記他の層100重量%中、上記他の層に含まれる熱線吸収剤の含有量が0.00001重量%以上、1重量%以下であることが好ましい。上記発光層又は上記他の層に含まれる熱線吸収剤の含有量が、上記好ましい範囲であれば、十分な遮熱性能を発揮させることができる。

[0058] 本発明1の合わせガラス用中間膜の厚さは特に限定されないが、好ましい下限は50 $\mu$ m、好ましい上限は2200 $\mu$ mであり、より好ましい下限は100 $\mu$ m、より好ましい上限は1700 $\mu$ mであり、更に好ましい上限は1000 $\mu$ mであり、特に好ましい上限は900 $\mu$ mである。なお、上記合わせガラス用中間膜全体の厚みの下限は、合わせガラス用中間膜全体の最小厚さの部分の厚みを意味し、上記合わせガラス用中間膜全体の厚みの上限は、合わ

せガラス用中間膜全体の最大厚さの部分の厚みを意味する。

本発明1の合わせガラス用中間膜が多層構造である場合、上記発光層の厚さは特に限定されないが、好ましい下限は $50\mu\text{m}$ 、好ましい上限は $1000\mu\text{m}$ である。上記発光層の厚さがこの範囲内であると、特定の波長の光線を照射したときに十分にコントラストの高い発光が得られる。上記発光層の厚さのより好ましい下限は $80\mu\text{m}$ 、より好ましい上限は $760\mu\text{m}$ 、更に好ましい下限は $90\mu\text{m}$ 、更に好ましい上限は $500\mu\text{m}$ 、特に好ましい上限は $300\mu\text{m}$ である。

[0059] 本発明1の合わせガラス用中間膜は、断面形状が楔形であってもよい。合わせガラス用中間膜の断面形状が楔形であれば、合わせガラスの取り付け角度に応じて、楔形の楔角 $\theta$ を調整することにより、二重像の発生を防止した画像表示が可能となる。二重像をより一層抑制する観点から、上記楔角 $\theta$ の好ましい下限は $0.1\text{mrad}$ 、好ましい下限は $0.2\text{mrad}$ であり、より好ましい下限は $0.3\text{mrad}$ 、好ましい上限は $1\text{mrad}$ 、より好ましい上限は $0.9\text{mrad}$ である。なお、例えば押出機を用いて樹脂組成物を押し出し成形する方法により断面形状が楔形の合わせガラス用中間膜を製造した場合、薄い側の一方の端部からわずかに内側の領域（具体的には、一端と他端との間の距離を $X$ としたときに、薄い側の一端から内側に向かって $0X\sim 0.2X$ の距離の領域）に最小厚みを有し、厚い側の一方の端部からわずかに内側の領域（具体的には、一端と他端との間の距離を $X$ としたときに、厚い側の一端から内側に向かって $0X\sim 0.2X$ の距離の領域）に最大厚みを有する形状となることがある。本明細書においては、このような形状も楔形に含まれる。

[0060] 本発明1の合わせガラス用中間膜の断面形状が楔形である場合、発光層と、他の層（以下、「形状補助層」と呼ぶ場合がある。）を含む多層構造を有することが好ましい。上記発光層の厚みを一定範囲とする一方、上記形状補助層を積層することにより、合わせガラス用中間膜全体としての断面形状が一定の楔角である楔形となるように調整することができる。上記形状補助層は

、上記発光層の一方の面にのみ積層されていてもよく、両方の面に積層されていてもよい。更に、複数の形状補助層を積層してもよい。

[0061] 上記発光層は、断面形状が楔形であってもよく、矩形であってもよい。上記発光層の最大厚さと最小厚さの差は $100\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。これにより、一定範囲の輝度で画像を表示することができる。上記発光層の最大厚さと最小厚さの差は $95\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましく、 $90\mu\text{m}$ 以下であることが更に好ましい。

[0062] 本発明1の合わせガラス用中間膜の断面形状が楔形である場合、上記発光層の厚みは特に限定されないが、好ましい下限は $50\mu\text{m}$ 、好ましい上限は $700\mu\text{m}$ である。上記発光層の厚みがこの範囲内であると、十分に高いコントラストの画像を表示できる。上記発光層の厚みのより好ましい下限は $70\mu\text{m}$ 、より好ましい上限は $400\mu\text{m}$ であり、更に好ましい下限は $80\mu\text{m}$ 、更に好ましい上限は $150\mu\text{m}$ である。なお、上記発光層の厚みの下限は、発光層の最小厚さの部分の厚みを意味し、上記発光層の厚みの上限は、発光層の最大厚さの部分の厚みを意味する。

[0063] 上記形状補助層は、上記発光層に積層して、合わせガラス用中間膜全体としての断面形状が一定の楔角である楔形となるように調整する役割を有する。上記形状補助層は、断面形状が楔形、三角形、台形又は矩形であることが好ましい。断面形状が楔形、三角形、台形の形状補助層を積層することにより、合わせガラス用中間膜全体としての断面形状を一定の楔角である楔形となるように調整することができる。また、複数の形状補助層を組み合わせて、合わせガラス用中間膜全体としての断面形状を整えてもよい。

[0064] 上記形状補助層の厚みは特に限定されないが、実用面の観点、並びに、接着力及び耐貫通性を十分に高める観点から、好ましい下限は $10\mu\text{m}$ 、好ましい上限は $1000\mu\text{m}$ であり、より好ましい下限は $200\mu\text{m}$ 、より好ましい上限は $800\mu\text{m}$ であり、更に好ましい下限は $300\mu\text{m}$ である。なお、上記形状補助層の厚みの下限は、形状補助層の最小厚さの部分の厚みを意味し、上記形状補助層の厚みの上限は、形状補助層の最大厚さの部分の厚みを

意味する。また、複数の形状補助層を組み合わせて用いる場合は、その合計の厚みを意味する。

- [0065] 本発明 1 の合わせガラス用中間膜の断面形状が楔形である場合の、態様の一例を説明する模式図を、図 1～3 に示した。なお、図 1～3 では、図示の便宜上、合わせガラス用中間膜及び該合わせガラス用中間膜を構成する各層の厚みや楔角  $\theta$  は、実際の厚み及び楔角とは異なるように示されている。
- [0066] 図 1 には、合わせガラス用中間膜 1 の厚み方向の断面が示されている。合わせガラス用中間膜 1 は、発光材料を含有する発光層 1 1 の一方の面に形状補助層 1 2 が積層された 2 層構造を有する。ここで発光層 1 1 は矩形であるのに対して、形状補助層 1 2 の形状を楔形、三角形又は台形とすることにより、合わせガラス用中間膜 1 全体として楔角  $\theta$  が  $0.1 \sim 1 \text{ mrad}$  である楔形となっている。
- [0067] 図 2 には、合わせガラス用中間膜 2 の厚み方向の断面が示されている。合わせガラス用中間膜 2 は、発光材料を含有する発光層 2 1 の両面に形状補助層 2 2 と形状補助層 2 3 とが積層された 3 層構造を有する。ここで発光層 2 1 と形状補助層 2 3 とが厚みが一定の矩形であるのに対して、形状補助層 2 2 の形状を楔形、三角形又は台形とすることにより、合わせガラス用中間膜 2 全体として楔角  $\theta$  が  $0.1 \sim 1 \text{ mrad}$  である楔形となっている。
- [0068] 図 3 には、合わせガラス用中間膜 3 の厚み方向の断面が示されている。合わせガラス用中間膜 3 は、発光材料を含有する発光層 3 1 の両面に形状補助層 3 2 と形状補助層 3 3 とが積層された 3 層構造を有する。ここで発光層 3 1 は最大厚さと最小厚さの差が  $100 \mu\text{m}$  以下の緩やかな楔形であり、楔形の形状補助層 3 2、3 3 を積層することにより、合わせガラス用中間膜 3 全体として楔角  $\theta$  が  $0.1 \sim 1 \text{ mrad}$  である楔形となっている。
- [0069] 本発明 1 の合わせガラス用中間膜の製造方法は特に限定されない。例えば、可塑剤とランタノイド錯体とを含む可塑剤溶液と、熱可塑性樹脂とを十分に混合し、発光層を形成するための樹脂組成物を作製する。次に、該発光層を形成するための樹脂組成物を押出機を用いて押出し、合わせガラス用中間膜

を製造することができる。

[0070] 本発明1の合わせガラス用中間膜は、上記発光層を有することから、特定の波長の光線を照射することにより発光する。この性質を利用することにより、高いコントラストで情報を表示することができる。

上記特定の波長の光線を照射するための装置として、例えば、スポット光源（浜松ホトニクス社製、LC-8）、キセノン・フラッシュランプ（ヘレウス社製、CWランプ）、ブラックライト（井内盛栄堂社製、キャリアハンド）等が挙げられる。

[0071] 本発明1の合わせガラス用中間膜が、一对のガラス板の間に積層されている合わせガラスもまた、本発明の1つである。

上記ガラス板は、一般に使用されている透明板ガラスを使用することができる。例えば、フロート板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス、網入りガラス、線入り板ガラス、着色された板ガラス、熱線吸収ガラス、熱線反射ガラス、グリーンガラス等の無機ガラスが挙げられる。また、ガラスの表面に紫外線遮蔽コート層が形成された紫外線遮蔽ガラスも用いることができるが、特定の波長の光線を照射する側とは反対のガラス板として用いることが好ましい。更に、上記ガラス板としてポリエチレンテレフタレート、ポリカーボネート、ポリアクリレート等の有機プラスチック板を用いることもできる。上記ガラス板として、2種類以上のガラス板を用いてもよい。例えば、透明フロート板ガラスと、グリーンガラスのような着色されたガラス板との間に、本発明1の合わせガラス用中間膜を積層した合わせガラスが挙げられる。また、上記ガラス板として、2種以上の厚さの異なるガラス板を用いてもよい。

[0072] 次に、本発明2について詳しく説明する。

本発明者らは、ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体を用いて合わせガラス用中間膜を製造したときに発光強度が低下する原因を検討した。その結果、合わせガラス用中間膜中に含まれるアルカリ金属やアルカリ土類金属やマグネシウムが原因であることを見出した。

合わせガラス用中間膜中には、ガラス板との接着力を調整する接着力調整剤としてアルカリ金属塩やアルカリ土類金属塩やマグネシウム塩が配合される。このような合わせガラス用中間膜にハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体を配合すると、アルカリ金属、アルカリ土類金属やマグネシウムとランタノイド錯体とが相互作用して、ランタノイド錯体の発光性能が低下すると考えられた。しかしながら、合わせガラス用中間膜の耐貫通性を維持するためには、接着力調整剤の配合は必須である。

[0073] 本発明者らは、更に鋭意検討の結果、熱可塑性樹脂と、ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体とを含む発光層と、熱可塑性樹脂と、アルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩又はマグネシウム塩とを含む接着層とを積層し、該発光層中のアルカリ金属、アルカリ土類金属及びマグネシウムの配合量を抑えることにより、合わせガラス用中間膜の耐貫通性を維持しながら、光線を照射することによりコントラストが高い画像を表示することができる合わせガラス用中間膜が得られることを見出し、本発明2を完成させるに至った。

[0074] 本発明2の合わせガラス用中間膜は、熱可塑性樹脂と、ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体とを含む発光層を有する。上記発光層は、ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体を発光剤とし含有することにより、本発明2の合わせガラス用中間膜は、光線を照射することによりコントラストが高い画像を表示する役割を有する。

[0075] 上記熱可塑性樹脂は特に限定されず、例えば、ポリビニルアセタール樹脂、エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂、エチレン-アクリル共重合体樹脂、ポリウレタン樹脂、硫黄元素を含有するポリウレタン樹脂、ポリビニルアルコール樹脂、塩化ビニル樹脂、ポリエチレンテレフタレート樹脂等が挙げられる。なかでも、可塑剤と併用した場合に、ガラスに対して優れた接着性を発揮する合わせガラス用中間膜が得られることから、ポリビニルアセタール樹脂が好適である。

[0076] 上記ポリビニルアセタールは、ポリビニルアルコールをアルデヒドでアセタ

ール化して得られるポリビニルアセタールであれば特に限定されないが、ポリビニルブチラールが好適である。また、必要に応じて2種以上のポリビニルアセタールを併用してもよい。

上記ポリビニルアセタールのアセタール化度の好ましい下限は40モル%、好ましい上限は85モル%であり、より好ましい下限は60モル%、より好ましい上限は75モル%である。

[0077] 上記ポリビニルアセタールは、水酸基量の好ましい下限が15モル%、好ましい上限が35モル%である。水酸基量が15モル%以上であると、合わせガラス用中間膜の成形が容易になる。水酸基量が35モル%以下であると、得られる合わせガラス用中間膜の取り扱いが容易になる。

なお、上記アセタール化度及び水酸基量は、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。

[0078] 上記ポリビニルアセタールは、ポリビニルアルコールをアルデヒドでアセタール化することにより調製することができる。上記ポリビニルアルコールは、通常、ポリ酢酸ビニルを鹼化することにより得られ、鹼化度70~99.8モル%のポリビニルアルコールが一般的に用いられる。

上記ポリビニルアルコールの重合度の好ましい下限は500、好ましい上限は4000である。上記ポリビニルアルコールの重合度が500以上であると、得られる合わせガラスの耐貫通性が高くなる。上記ポリビニルアルコールの重合度が4000以下であると、合わせガラス用中間膜の成形が容易になる。上記ポリビニルアルコールの重合度のより好ましい下限は1000、より好ましい上限は3600である。

[0079] 上記アルデヒドは特に限定されないが、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のアルデヒドは特に限定されず、例えば、n-ブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、n-バレールアルデヒド、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、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、ベンズアルデヒド等が挙げられる。な

かでも、*n*-ブチルアルデヒド、*n*-ヘキシルアルデヒド、*n*-バレルアルデヒドが好ましく、*n*-ブチルアルデヒドがより好ましい。これらのアルデヒドは単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

[0080] 上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体は、光線を照射することにより高い発光強度で発光する。

本発明2の発明者らは、ランタノイド錯体のなかでも、ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体は、300~410nmの波長の光を照射することにより、580~780nmの波長の光を極めて高い発光強度で発光することから、これを用いることにより高コントラストの画像を表示できる合わせガラス用中間膜が得られることを見出した。なかでも、ハロゲン原子を含む二座配位子を有するランタノイド錯体又はハロゲン原子を含む三座配位子を有するランタノイド錯体が好適である。

[0081] 本明細書においてランタノイドとは、ランタン、セリウム、プラセオジウム、ネオジウム、プロメチウム、サマリウム、ユーロピウム、ガドリニウム、テルビウム、ジスプロシウム、ホルミウム、エルビウム、ツリウム、イッテルビウム又はルテチウムを含む。より一層高い発光強度が得られることから、ランタノイドは、ネオジウム、ユーロピウム又はテルビウムが好ましく、ユーロピウム又はテルビウムがより好ましく、ユーロピウムが更に好ましい。

[0082] 上記ハロゲン原子を含む二座配位子を有するランタノイド錯体は、例えば、トリス（トリフルオロアセチルアセトン）フェナントロリンユーロピウム、トリス（トリフルオロアセチルアセトン）ジフェニルフェナントロリンユーロピウム、トリス（ヘキサフルオロアセチルアセトン）ジフェニルフェナントロリンユーロピウム、トリス（ヘキサフルオロアセチルアセトン）ビス（トリフェニルホスフィン）ユーロピウム、トリス（トリフルオロアセチルアセトン）2'，2'-ビピリジンユーロピウム、トリス（ヘキサフルオロアセチルアセトン）2，2'-ビピリジンユーロピウムが挙げられる。

上記ハロゲン原子を含む三座配位子を有するランタノイド錯体は、例えば、ターピリジントリフルオロアセチルアセトンユーロピウム、ターピリジンヘ

キサフルオロアセチルアセトンユーロピウムが挙げられる。

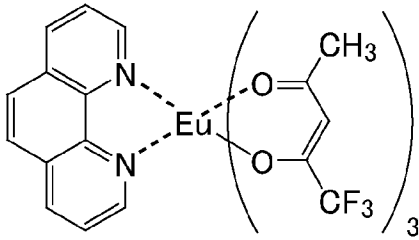
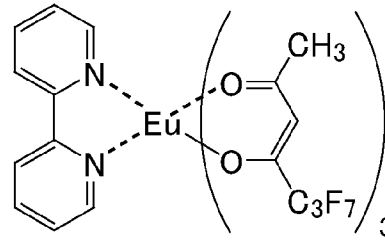
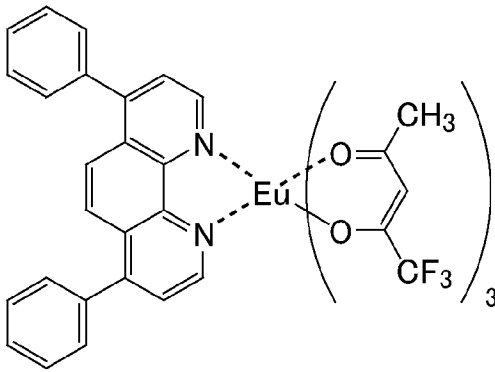
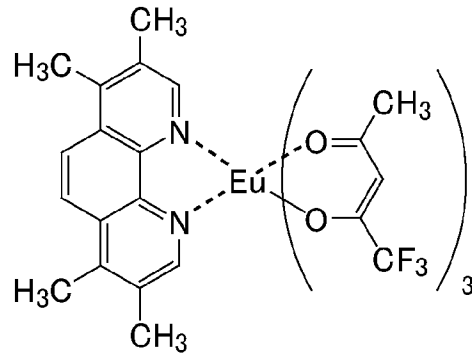
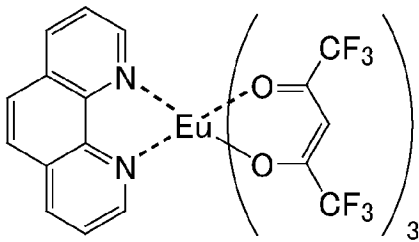
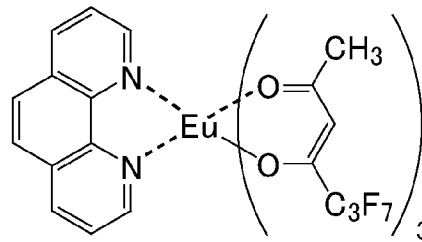
[0083] 上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体のハロゲン原子としては、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子を用いることができる。なかでも、配位子の構造を安定化させることから、フッ素原子が好適である。

[0084] 上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体のなかでも、特に初期発光性に優れることから、ハロゲン原子を含みアセチルアセトン骨格を有する二座配位子を有するランタノイド錯体が好適である。

上記ハロゲン原子を含みアセチルアセトン骨格を有する二座配位子を有するランタノイド錯体は、例えば、 $\text{Eu}(\text{TFA})_3\text{phen}$ 、 $\text{Eu}(\text{TFA})_3\text{dpphen}$ 、 $\text{Eu}(\text{HFA})_3\text{phen}$ 、 $[\text{Eu}(\text{FOD})_3]\text{bpy}$ 、 $[\text{Eu}(\text{TFA})_3]\text{tmphen}$ 、 $[\text{Eu}(\text{FOD})_3]\text{phen}$ 等が挙げられる。これらのハロゲン原子を含みアセチルアセトン骨格を有する二座配位子を有するランタノイド錯体の構造を示す。

[0085]

[化2]

Eu(TFA)<sub>3</sub>phen[Eu(FOD)<sub>3</sub>]bpyEu(TFA)<sub>3</sub>dpphen[Eu(TFA)<sub>3</sub>]tmphenEu(HFA)<sub>3</sub>phen[Eu(FOD)<sub>3</sub>]phen

[0086] 上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体は、粒子状であることが好ましい。粒子状であることにより、上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体を合わせガラス用中間膜中に微分散させることがより容易となる。

上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体からなる粒子の平均粒子径の好ましい下限は0.01 μm、好ましい上限は10 μmであり、より好ましい下限は0.03 μm、より好ましい上限は1 μmである。

- [0087] 上記発光層における上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体の含有量は、上記熱可塑性樹脂100重量部に対する好ましい下限が0.001重量部、好ましい上限が10重量部である。上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体の含有量が0.001重量部以上であると、コントラストがより一層高い画像を表示することができる。上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体の含有量の含有量が10重量部以下であると、合わせガラス用中間膜の透明性がより一層高くなる。上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体の含有量のより好ましい下限は0.01重量部、より好ましい上限は5重量部、更に好ましい下限は0.05重量部、更に好ましい上限は1重量部、特に好ましい下限は0.2重量部である。
- [0088] 上記発光層には、上記熱可塑性樹脂の熱可塑性樹脂を合成する際に用いる中和剤等に由来するアルカリ金属、アルカリ土類金属、マグネシウム等の金属が含まれ得る。本発明2の合わせガラス用中間膜では、上記発光層に含まれるアルカリ金属、アルカリ土類金属及びマグネシウムの合計の含有量が、上記接着層に含まれるアルカリ金属、アルカリ土類金属及びマグネシウムの合計の含有量よりも少ない。より具体的には、上記発光層に含まれるナトリウム、カリウム及びマグネシウムの合計の含有量が、上記接着層に含まれるナトリウム、カリウム及びマグネシウムの合計の含有量よりも少ない。これにより、上記発光層における上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体の発光性能の低下を抑制することができる。
- [0089] 上記発光層に含まれるマグネシウムの含有量は40ppm以下であることが好ましい。上記発光層に含まれるマグネシウムの含有量が40ppm以下であることにより、上記発光層における上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体の発光性能の低下をより確実に抑制することができる。上記発光層に含まれるマグネシウムの含有量は35ppm以下であることがより好ましく、30ppm以下であることが更に好ましく、20ppm以下であることが特に好ましい。上記発光層に含まれるマグネシウムの含有

量は0 ppmであってもよい。

[0090] 上記発光層に含まれるアルカリ金属、アルカリ土類金属、マグネシウム等の金属の合計の含有量を低減させるためには、熱可塑性樹脂を過剰量のイオン交換水で複数回洗浄することが好ましい。特に、熱可塑性樹脂製造時の中和工程の前にイオン交換水で複数回洗浄する、中和工程の後にイオン交換水で複数回洗浄する、これらの洗浄工程において10倍量以上のイオン交換水を用いる、等の方法を組み合わせることによって、上記発光層に含まれるアルカリ金属、アルカリ土類金属、マグネシウム等の金属の合計の含有量を低減させることができる。

[0091] 上記発光層は、更に分散剤を含有することが好ましい。分散剤を含有することにより、上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体の凝集を抑制でき、より均一な発光が得られる。

上記分散剤は、例えば、直鎖アルキルベンゼンスルホン酸塩等のスルホン酸構造を有する化合物や、ジエステル化合物、リシノール酸アルキルエステル、フタル酸エステル、アジピン酸エステル、セバシン酸エステル、リン酸エステル等のエステル構造を有する化合物や、ポリオキシエチレングリコール、ポリオキシプロピレングリコールやアルキルフェニルポリオキシエチレンエーテル等のエーテル構造を有する化合物や、ポリカルボン酸等のカルボン酸構造を有する化合物や、ラウリルアミン、ジメチルラウリルアミン、オレイルプロピレンジアミン、ポリオキシエチレンの2級アミン、ポリオキシエチレンの3級アミン、ポリオキシエチレンのジアミン等のアミン構造を有する化合物や、ポリアルキレンポリアミンアルキレンオキシド等のポリアミン構造を有する化合物や、オレイン酸ジエタノールアミド、アルカノール脂肪酸アミド等のアミド構造を有する化合物や、ポリビニルピロリドン、ポリエステル酸アミドアミン塩等の高分子量型アミド構造を有する化合物等の分散剤を用いることができる。また、ポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸（塩）や高分子ポリカルボン酸、縮合リシノール酸エステル等の高分子量分散剤を用いてもよい。なお、高分子量分散剤とは、その分子量が1

万以上である分散剤と定義される。

[0092] 上記分散剤を配合する場合に、上記発光層中における上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体100重量部に対する上記分散剤の含有量の好ましい下限は1重量部、好ましい上限は50重量部である。上記分散剤の含有量がこの範囲内であると、上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体を発光層中に均一に分散させることができる。上記分散剤の含有量のより好ましい下限は3重量部、より好ましい上限は30重量部であり、更に好ましい下限は5重量部、更に好ましい上限は25重量部である。

[0093] 上記発光層は、更に、紫外線吸収剤を含有してもよい。上記発光層が紫外線吸収剤を含有することにより、上記発光層の耐光性が高くなる。コントラストがより一層高い画像を表示できる合わせガラス用中間膜が得られることから、上記発光層中における上記紫外線吸収剤の含有量は、上記熱可塑性樹脂100重量部に対する好ましい上限は1重量部、より好ましい上限は0.5重量部、更に好ましい上限は0.2重量部、特に好ましい上限は0.1重量部である。

[0094] 上記紫外線吸収剤は、例えば、マロン酸エステル構造を有する化合物、シュウ酸アニリド構造を有する化合物、ベンゾトリアゾール構造を有する化合物、ベンゾフェノン構造を有する化合物、トリアジン構造を有する化合物、ベンゾエート構造を有する化合物、ヒンダードアミン構造を有する化合物等の紫外線吸収剤が挙げられる。

[0095] 上記発光層は、更に、可塑剤を含有してもよい。

上記可塑剤は特に限定されず、例えば、一塩基性有機酸エステル、多塩基性有機酸エステル等の有機エステル可塑剤、有機リン酸可塑剤、有機亜リン酸可塑剤等のリン酸可塑剤等が挙げられる。上記可塑剤は液状可塑剤であることが好ましい。

[0096] 上記一塩基性有機酸エステルは特に限定されないが、例えば、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、トリプロピレングリコール等のグ

リコールと、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、ペラルゴン酸 (*n*-ノニル酸)、デシル酸等の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。なかでも、トリエチレングリコールジカプロン酸エステル、トリエチレングリコールジ-2-エチル酪酸エステル、トリエチレングリコールジ-*n*-オクチル酸エステル、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキシル酸エステル等が好適である。

[0097] 上記多塩基性有機酸エステルは特に限定されないが、例えば、アジピン酸、セバシン酸、アゼライン酸等の多塩基性有機酸と、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が挙げられる。なかでも、ジブチルセバシン酸エステル、ジオクチルアゼライン酸エステル、ジブチルカルビトールアジピン酸エステル等が好適である。

[0098] 上記有機エステル可塑剤は特に限定されず、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、テトラエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート、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エート、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、アジピン酸ジイソノニル、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、リン酸エステルとアジピン酸エステルと

の混合物、アジピン酸エステル、炭素数4～9のアルキルアルコール及び炭素数4～9の環状アルコールから作製された混合型アジピン酸エステル、アジピン酸ヘキシル等の炭素数6～8のアジピン酸エステル等が挙げられる。

[0099] 上記有機リン酸可塑剤は特に限定されず、例えば、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、トリイソプロピルホスフェート等が挙げられる。

[0100] 上記可塑剤のなかでも、ジヘキシルアジペート（DHA）、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（3GO）、テトラエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（4GO）、トリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート（3GH）、テトラエチレングリコールジ-2-エチルブチレート（4GH）、テトラエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート（4G7）及びトリエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート（3G7）からなる群より選択される少なくとも1種であることが好ましい。

[0101] 更に、上記可塑剤として、加水分解を起こしにくいのため、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）、テトラエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（4GO）、ジヘキシルアジペート（DHA）を含有することが好ましく、テトラエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（4GO）、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（3GO）を含有することがより好ましく、特に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有することがより好ましい。

[0102] 上記発光層における上記可塑剤の含有量は特に限定されないが、上記熱可塑性樹脂100重量部に対する好ましい下限が30重量部、好ましい上限が100重量部である。上記可塑剤の含有量が30重量部以上であると、合わせガラス用中間膜の熔融粘度が低くなるため、合わせガラス用中間膜を容易に成形できる。上記可塑剤の含有量が100重量部以下であると、合わせガラス用中間膜の透明性が高くなる。上記可塑剤の含有量のより好ましい下限は35重量部、より好ましい上限は80重量部、更に好ましい下限は45重量

部、更に好ましい上限は70重量部、特に好ましい下限は50重量部、特に好ましい上限は63重量部である。

[0103] 上記発光層は、優れた耐光性を得ることができることから、酸化防止剤を含有することが好ましい。

上記酸化防止剤は特に限定されず、フェール構造を有する酸化防止剤、硫黄を含む酸化防止剤、リンを含む酸化防止剤等が挙げられる。

上記フェノール構造を有する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。上記フェノール構造を有する酸化防止剤としては、例えば、2,6-ジ-*t*-ブチル-*p*-クレゾール (BHT)、ブチル化ヒドロキシアニソール (BHA)、2,6-ジ-*t*-ブチル-4-エチルフェノール、ステアリル- $\beta$ -(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-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)ブチリックアシッドグリコールエステル、ペンタエリスリトールテトラキス[3-(3,5-ジ-*tert*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]等が挙げられる。上記酸化防止剤は、単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0104] 上記発光層は、必要に応じて、光安定剤、帯電防止剤、青色顔料、青色染料、緑色顔料、緑色染料等の添加剤を含有してもよい。

[0105] 上記発光層の厚さは特に限定されないが、好ましい下限は50 $\mu$ m、好ましい上限は1000 $\mu$ mである。上記発光層の厚さがこの範囲内であると、特

定の波長の光線を照射したときに十分にコントラストの高い発光が得られる。上記発光層の厚さのより好ましい下限は80 $\mu\text{m}$ 、より好ましい上限は500 $\mu\text{m}$ 、更に好ましい下限は90 $\mu\text{m}$ 、更に好ましい上限は300 $\mu\text{m}$ である。

[0106] 上記発光層は、本発明2の合わせガラス用中間膜の全面に配置されていてもよく、一部にのみ配置されていてもよく、本発明2の合わせガラス用中間膜の厚み方向とは垂直の面方向の全面に配置されていてもよく、一部にのみ配置されていてもよい。上記発光層が一部にのみ配置されている場合には、該一部を発光エリア、他の部分を非発光エリアとして、発光エリアにおいてのみ情報を表示できるようにすることができる。

[0107] 上記接着層は、熱可塑性樹脂と、アルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩及びマグネシウム塩からなる群から選択された少なくとも1種の金属塩とを含む。

上記接着層は、合わせガラス用中間膜の接着力を容易に調整し、合わせガラス用中間膜の耐貫通性を維持させる役割を有する。

[0108] 上記接着層に含まれる熱可塑性樹脂は、上記発光層に含まれる熱可塑性樹脂と同様の熱可塑性樹脂を用いることができる。

上記接着層は、また、上記発光層と同様に可塑剤等の添加剤を含有してもよい。

[0109] 上記接着層において、アルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩及びマグネシウム塩からなる群から選択された少なくとも1種の金属塩は、接着力調整剤としての役割を有する。

上記金属塩は、炭素数1～16の有機酸のアルカリ金属塩、炭素数1～16の有機酸のアルカリ土類金属塩又は炭素数1～16の有機酸のマグネシウム塩であることがより好ましく、炭素数2～16の有機酸のアルカリ金属塩、炭素数2～16の有機酸のアルカリ土類金属塩又は炭素数2～16のマグネシウム塩であることが更に好ましく、炭素数2～16のカルボン酸のマグネシウム塩又は炭素数2～16のカルボン酸のカリウム塩であることが特に好

ましい。

上記炭素数 2 ~ 16 のカルボン酸のマグネシウム塩及び上記炭素数 2 ~ 16 のカルボン酸の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挙げられる。上記有機酸の炭素数の好ましい下限は 1、好ましい上限は 10、より好ましい下限は 2、より好ましい上限は 8 である。

[0110] 上記接着層中における上記金属塩の含有量は特に限定されないが、上記熱可塑性樹脂 100 重量部に対する好ましい下限が 0.0005 重量部、好ましい上限が 0.05 重量部である。上記金属塩の含有量が 0.0005 重量部以上であると、合わせガラスの耐貫通性がより一層高くなる。上記金属塩の含有量が 0.05 重量部以下であると、合わせガラス用中間膜の透明性が高くなる。上記金属塩の含有量のより好ましい下限は 0.002 重量部、より好ましい上限は 0.02 重量部である。

[0111] 上記接着層中におけるナトリウム、カリウム及びマグネシウムの含有量の合計は 300 ppm 以下であることが好ましく、200 ppm 以下であることがより好ましく、150 ppm 以下であることが更に好ましく、100 ppm 以下であることが特に好ましい。また、上記接着層中におけるマグネシウムの含有量は 150 ppm 以下であることが好ましく、100 ppm 以下であることがより好ましく、50 ppm 以下であることが更に好ましく、30 ppm 以下であることが特に好ましい。

なお、上記接着層中には、接着力調整剤として配合する上記金属塩に由来するほかにも、熱可塑性樹脂を合成する際に用いる中和剤等に由来するナトリウム、カリウム、マグネシウムも含まれる。

[0112] 上記接着層の厚さは特に限定されないが、好ましい下限は 50  $\mu\text{m}$ 、好ましい上限は 1000  $\mu\text{m}$  である。上記接着層の厚さがこの範囲内であると、より一層高い耐貫通性を有する合わせガラスを得ることができる。上記接着層

の厚さのより好ましい下限は100 $\mu$ m、より好ましい上限は900 $\mu$ m、更に好ましい下限は200 $\mu$ m、更に好ましい上限は800 $\mu$ mである。

[0113] 本発明2の合わせガラス用中間膜は、上記発光層と上記接着層とが積層された2層構造であってもよいが、第1の接着層と上記発光層と第2の接着層とがこの順に配置された3層構造であることが好ましい。また、第1の接着層と上記発光層との間、又は、第2の接着層と上記発光層との間に、更に他の層が積層された多層構造であってもよい。

[0114] 上記発光層、接着層及び他の層の構成成分を調整することにより、得られる合わせガラス用中間膜に種々の機能を付与することも可能である。

例えば、本発明2の合わせガラス用中間膜に遮音性能を付与するために、上記発光層における熱可塑性樹脂100重量部に対する可塑剤の含有量（以下、含有量Xともいう。）を、第1、2の接着層における熱可塑性樹脂100重量部に対する可塑剤の含有量（以下、含有量Yともいう。）よりも多くすることができる。この場合、上記含有量Xは上記含有量Yよりも5重量部以上多いことが好ましく、10重量部以上多いことがより好ましく、15重量部以上多いことが更に好ましい。合わせガラス用中間膜の耐貫通性がより一層高くなることから、上記含有量Xと上記含有量Yとの差は、50重量部以下であることが好ましく、40重量部以下であることがより好ましく、35重量部以下であることが更に好ましい。なお、上記含有量Xと上記含有量Yとの差は、（上記含有量Xと上記含有量Yとの差）＝（上記含有量X－上記含有量Y）により算出される。

また、上記含有量Xの好ましい下限が45重量部、より好ましい下限が50重量部、更に好ましい下限が55重量部、好ましい上限が80重量部、より好ましい上限が75重量部、さらに好ましい上限が70重量部である。上記含有量Xを上記好ましい下限以上とすることにより、高い遮音性を発揮することができる。上記含有量Xを上記好ましい上限以下とすることにより、可塑剤のブリードアウトの発生を抑制し、合わせガラス用中間膜の透明性や接着性の低下を防止することができる。

また、上記含有量Yの好ましい下限が20重量部、より好ましい下限が30重量部、更に好ましい下限が35重量部、好ましい上限が45重量部、より好ましい上限が43重量部、さらに好ましい上限が41重量部である。上記含有量Yを上記好ましい下限以上とすることにより、高い耐貫通性を発揮することができる。上記含有量Yを上記好ましい上限以下とすることにより、可塑剤のブリードアウトの発生を抑制し、合わせガラス用中間膜の透明性や接着性の低下を防止することができる。

[0115] また、本発明2の合わせガラス用中間膜に遮音性を付与するためには、上記発光層における熱可塑性樹脂は、ポリビニルアセタールXであることが好ましい。上記ポリビニルアセタールXは、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調製することができる。上記ポリビニルアルコールは、通常、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平均重合度の好ましい下限は200、好ましい上限は5000である。上記ポリビニルアルコールの平均重合度を200以上とすることにより、得られる合わせガラス用中間膜の耐貫通性を向上させることができ、5000以下とすることにより、発光層の成形性を確保することができる。上記ポリビニルアルコールの平均重合度のより好ましい下限は500、より好ましい上限は4000である。なお、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。

[0116] 上記ポリビニルアルコールをアセタール化するためのアルデヒドの炭素数の好ましい下限は4、好ましい上限は6である。アルデヒドの炭素数を4以上とすることにより、十分な量の可塑剤を安定して含有させることができ、優れた遮音性能を発揮することができる。また、可塑剤のブリードアウトを防止することができる。アルデヒドの炭素数を6以下とすることにより、ポリビニルアセタールXの合成を容易にし、生産性を確保できる。上記炭素数が4～6のアルデヒドとしては、直鎖状のアルデヒドであってもよいし、分枝状のアルデヒドであってもよく、例えば、n-ブチルアルデヒド、n-バレ

ルアルデヒド等が挙げられる。

[0117] 上記ポリビニルアセタールXの水酸基量の好ましい上限は30モル%である。上記ポリビニルアセタールXの水酸基量を30モル%以下とすることにより、遮音性を発揮するのに必要な量の可塑剤を含有させることができ、可塑剤のブリードアウトを防止することができる。上記ポリビニルアセタールXの水酸基量のより好ましい上限は28モル%、更に好ましい上限は26モル%、特に好ましい上限は24モル%、好ましい下限は10モル%、より好ましい下限は15モル%、更に好ましい下限は20モル%である。上記ポリビニルアセタールXの水酸基量は、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（モル%）で表した値である。上記水酸基が結合しているエチレン基量は、例えば、JIS 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、上記ポリビニルアセタールXの水酸基が結合しているエチレン基量を測定することにより求めることができる。

[0118] 上記ポリビニルアセタールXのアセタール基量の好ましい下限は60モル%、好ましい上限は85モル%である。上記ポリビニルアセタールXのアセタール基量を60モル%以上とすることにより、発光層の疎水性を高くして、遮音性を発揮するのに必要な量の可塑剤を含有させることができ、可塑剤のブリードアウトや白化を防止することができる。上記ポリビニルアセタールXのアセタール基量を85モル%以下とすることにより、ポリビニルアセタールXの合成を容易にし、生産性を確保することができる。上記ポリビニルアセタールXのアセタール基量の下限は65モル%がより好ましく、68モル%以上が更に好ましい。上記アセタール基量は、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、上記ポリビニルアセタールXのアセタール基が結合しているエチレン基量を測定することにより求めることができる。

[0119] 上記ポリビニルアセタールXのアセチル基量の好ましい下限は0.1モル%、好ましい上限は30モル%である。上記ポリビニルアセタールXのアセチ

ル基量を0.1モル%以上とすることにより、遮音性を発揮するのに必要な量の可塑剤を含有させることができ、ブリードアウトを防止することができる。また、上記ポリビニルアセタールXのアセチル基量を30モル%以下とすることにより、発光層の疎水性を高くして、白化を防止することができる。上記アセチル基量のより好ましい下限は1モル%、更に好ましい下限は5モル%、特に好ましい下限は8モル%、より好ましい上限は25モル%、更に好ましい上限は20モル%である。上記アセチル基量は、主鎖の全エチレン基量から、アセタール基が結合しているエチレン基量と、水酸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（モル%）で表した値である。

[0120] 特に、上記発光層に遮音性を発揮するのに必要な量の可塑剤を容易に含有させることができることから、上記ポリビニルアセタールXは、上記アセチル基量が8モル%以上のポリビニルアセタール、又は、上記アセチル基量が8モル%未満、かつ、アセタール基量が65モル%以上のポリビニルアセタールであることが好ましい。また、上記ポリビニルアセタールXは、上記アセチル基量が8モル%以上のポリビニルアセタール、又は、上記アセチル基量が8モル%未満、かつ、アセタール基量が68モル%以上のポリビニルアセタールであることが、より好ましい。

[0121] また、本発明2の合わせガラス用中間膜に遮音性を付与するためには、上記第1、2の接着層における熱可塑性樹脂は、ポリビニルアセタールYであることが好ましい。ポリビニルアセタールYは、ポリビニルアセタールXより水酸基量が多いことが好ましい。

[0122] 上記ポリビニルアセタールYは、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調製することができる。上記ポリビニルアルコールは、通常、ポリ酢酸ビニルをけん化することにより得られる。また、上記ポリビニルアルコールの平均重合度の好ましい下限は200、好ましい上限は5000である。上記ポリビニルアルコールの平均重合度を200以上とすることにより、合わせガラス用中間膜の耐貫通性を向上させることがで

き、5000以下とすることにより、第1、2の接着層の成形性を確保することができる。上記ポリビニルアルコールの平均重合度のより好ましい下限は500、より好ましい上限は4000である。

[0123] 上記ポリビニルアルコールYをアセタール化するためのアルデヒドの炭素数の好ましい下限は3、好ましい上限は4である。アルデヒドの炭素数を3以上とすることにより、合わせガラス用中間膜の耐貫通性が高くなる。アルデヒドの炭素数を4以下とすることにより、ポリビニルアセタールYの生産性が向上する。上記炭素数が3~4のアルデヒドとしては、直鎖状のアルデヒドであってもよいし、分枝状のアルデヒドであってもよく、例えば、n-ブチルアルデヒド等が挙げられる。

[0124] 上記ポリビニルアセタールYの水酸基量の好ましい上限は33モル%、好ましい下限は28モル%である。上記ポリビニルアセタールYの水酸基量を33モル%以下とすることにより、合わせガラス用中間膜の白化を防止することができる。上記ポリビニルアセタールYの水酸基量を28モル%以上とすることにより、合わせガラス用中間膜の耐貫通性が高くなる。

[0125] 上記ポリビニルアセタールYは、アセタール基量の好ましい下限が60モル%、好ましい上限が80モル%である。上記アセタール基量を60モル%以上とすることにより、十分な耐貫通性を発揮するのに必要な量の可塑剤を含有させることができる。上記アセタール基量を80モル%以下とすることにより、上記他の層とガラスとの接着力を確保することができる。上記アセタール基量のより好ましい下限は65モル%、より好ましい上限は69モル%である。

[0126] 上記ポリビニルアセタールYのアセチル基量の好ましい上限は7モル%である。上記ポリビニルアセタールYのアセチル基量を7モル%以下とすることにより、他の層の疎水性を高くして、白化を防止することができる。上記アセチル基量のより好ましい上限は2モル%であり、好ましい下限は0.1モル%である。なお、ポリビニルアセタールYの水酸基量、アセタール基量、及び、アセチル基量は、ポリビニルアセタールXと同様の方法で測定できる

。

[0127] また、例えば、本発明2の合わせガラス用中間膜に遮熱性能を付与するために、上記発光層、接着層、他の層のいずれか1層、いずれか2層、又は、すべての層に熱線吸収剤を含有させることができる。

上記熱線吸収剤は、赤外線を遮蔽する性能を有すれば特に限定されないが、錫ドーパ酸化インジウム（ITO）粒子、アンチモンドーパ酸化錫（ATO）粒子、アルミニウムドーパ酸化亜鉛（AZO）粒子、インジウムドーパ酸化亜鉛（IZO）粒子、錫ドーパ酸化亜鉛粒子、珪素ドーパ酸化亜鉛粒子、6ホウ化ランタン粒子及び6ホウ化セリウム粒子からなる群より選択される少なくとも1種が好適である。

[0128] 上記発光層が熱線吸収剤を含有する場合、上記発光層100重量%中、上記発光層に含まれる熱線吸収剤の含有量が0.00001重量%以上、1重量%以下であることが好ましい。上記他の層が熱線吸収剤を含有する場合、上記他の層100重量%中、上記他の層に含まれる熱線吸収剤の含有量が0.00001重量%以上、1重量%以下であることが好ましい。上記発光層又は上記他の層に含まれる熱線吸収剤の含有量が、上記好ましい範囲であれば、十分な遮熱性能を発揮させることができる。

[0129] 本発明2の合わせガラス用中間膜の厚さは特に限定されないが、好ましい下限は50 $\mu$ m、好ましい上限は2200 $\mu$ mであり、より好ましい下限は100 $\mu$ m、より好ましい上限は1700 $\mu$ mであり、更に好ましい上限は1000 $\mu$ mであり、特に好ましい上限は900 $\mu$ mである。なお、上記合わせガラス用中間膜全体の厚みの下限は、合わせガラス用中間膜全体の最小厚さの部分の厚みを意味し、上記合わせガラス用中間膜全体の厚みの上限は、合わせガラス用中間膜全体の最大厚さの部分の厚みを意味する。

本発明2の合わせガラス用中間膜において上記発光層の厚さは特に限定されないが、好ましい下限は50 $\mu$ m、好ましい上限は1000 $\mu$ mである。上記発光層の厚さがこの範囲内であると、特定の波長の光線を照射したときに十分にコントラストの高い発光が得られる。上記発光層の厚さのより好まし

い下限は $80\ \mu\text{m}$ 、より好ましい上限は $760\ \mu\text{m}$ 、更に好ましい下限は $90\ \mu\text{m}$ 、更に好ましい上限は $500\ \mu\text{m}$ 、特に好ましい上限は $300\ \mu\text{m}$ である。

[0130] 本発明2の合わせガラス用中間膜は、断面形状が楔形であってもよい。合わせガラス用中間膜の断面形状が楔形であれば、合わせガラスの取り付け角度に応じて、楔形の楔角 $\theta$ を調整することにより、二重像の発生を防止した画像表示が可能となる。二重像をより一層抑制する観点から、上記楔角 $\theta$ の好ましい下限は $0.1\ \text{mrad}$ 、より好ましい下限は $0.2\ \text{mrad}$ であり、更に好ましい下限は $0.3\ \text{mrad}$ 、好ましい上限は $1\ \text{mrad}$ 、より好ましい上限は $0.9\ \text{mrad}$ である。なお、例えば押出機を用いて樹脂組成物を押し出し成形する方法により断面形状が楔形の合わせガラス用中間膜を製造した場合、薄い側の一方の端部からわずかに内側の領域（具体的には、一端と他端との間の距離を $X$ としたときに、薄い側の一端から内側に向かって $0X\sim 0.2X$ の距離の領域）に最小厚みを有し、厚い側の一方の端部からわずかに内側の領域（具体的には、一端と他端との間の距離を $X$ としたときに、厚い側の一端から内側に向かって $0X\sim 0.2X$ の距離の領域）に最大厚みを有する形状となることがある。本明細書においては、このような形状も楔形に含まれる。

[0131] 本発明2の合わせガラス用中間膜の断面形状が楔形である場合、例えば、上記発光層の厚みを一定範囲とする一方、上記接着層の断面形状を調整することにより、合わせガラス用中間膜全体としての断面形状が一定の楔角である楔形となるように調整することができる。

また、上記発光層及び上記接着層に、更に形状補助層を積層して、該形状補助層の断面形状を調整することにより、合わせガラス用中間膜全体としての断面形状が一定の楔角である楔形となるように調整してもよい。上記形状補助層は、上記発光層の一方の面にのみ積層されていてもよく、両方の面に積層されていてもよい。更に、複数の形状補助層を積層してもよい。

[0132] 上記発光層は、断面形状が楔形であってもよく、矩形であってもよい。上記

発光層の最大厚さと最小厚さの差は100 $\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。これにより、一定範囲の輝度で画像を表示することができる。上記発光層の最大厚さと最小厚さの差は95 $\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましく、90 $\mu\text{m}$ 以下であることが更に好ましい。

[0133] 本発明の合わせガラス用中間膜の断面形状が楔形である場合、上記発光層の厚みは特に限定されないが、好ましい下限は50 $\mu\text{m}$ 、好ましい上限は700 $\mu\text{m}$ である。上記発光層の厚みがこの範囲内であると、十分に高いコントラストの画像を表示できる。上記発光層の厚みのより好ましい下限は70 $\mu\text{m}$ 、より好ましい上限は400 $\mu\text{m}$ であり、更に好ましい下限は80 $\mu\text{m}$ 、更に好ましい上限は150 $\mu\text{m}$ である。なお、上記発光層の厚みの下限は、発光層の最小厚さの部分の厚みを意味し、上記発光層の厚みの上限は、発光層の最大厚さの部分の厚みを意味する。

[0134] 上記接着層の断面形状を調整することにより合わせガラス用中間膜全体としての断面形状が一定の楔角である楔形となるように調整する場合、上記接着層は、断面形状が楔形、三角形、台形又は矩形であることが好ましい。断面形状が楔形、三角形、台形の接着層を積層することにより、合わせガラス用中間膜全体としての断面形状を一定の楔角である楔形となるように調整することができる。また、複数の接着層を組み合わせて、合わせガラス用中間膜全体としての断面形状を整えてもよい。

[0135] 上記接着層の断面形状を調整することにより合わせガラス用中間膜全体としての断面形状が一定の楔角である楔形となるように調整する場合、上記接着層の厚みは特に限定されないが、実用面の観点、並びに、接着力及び耐貫通性を十分に高める観点から、好ましい下限は10 $\mu\text{m}$ 、好ましい上限は1000 $\mu\text{m}$ であり、より好ましい下限は200 $\mu\text{m}$ 、より好ましい上限は800 $\mu\text{m}$ であり、更に好ましい下限は300 $\mu\text{m}$ である。なお、上記接着層の厚みの下限は、接着層の最小厚さの部分の厚みを意味し、上記接着層の厚みの上限は、接着層の最大厚さの部分の厚みを意味する。また、複数の接着層を組み合わせて用いる場合は、その合計の厚みを意味する。

- [0136] 本発明2の合わせガラス用中間膜の断面形状が楔形である場合の、態様の一例を説明する模式図を、図4～6に示した。なお、図4～6では、図示の便宜上、合わせガラス用中間膜及び該合わせガラス用中間膜を構成する各層の厚みや楔角 $\theta$ は、実際の厚み及び楔角とは異なるように示されている。
- [0137] 図4には、合わせガラス用中間膜4の厚み方向の断面が示されている。合わせガラス用中間膜4は、発光材料を含有する発光層41の一方の面に接着層42が積層された2層構造を有する。ここで発光層41は矩形であるのに対して、接着層42の形状を楔形、三角形又は台形とすることにより、合わせガラス用中間膜4全体として楔角 $\theta$ が $0.1 \sim 1 \text{ mrad}$ である楔形となっている。
- [0138] 図5には、合わせガラス用中間膜5の厚み方向の断面が示されている。合わせガラス用中間膜5は、発光材料を含有する発光層51の両面に接着層52と接着層53とが積層された3層構造を有する。ここで発光層51と接着層53とが厚みが一定の矩形であるのに対して、接着層52の形状を楔形、三角形又は台形とすることにより、合わせガラス用中間膜5全体として楔角 $\theta$ が $0.1 \sim 1 \text{ mrad}$ である楔形となっている。
- [0139] 図6には、合わせガラス用中間膜6の厚み方向の断面が示されている。合わせガラス用中間膜6は、発光材料を含有する発光層61の両面に接着層62と接着層63とが積層された3層構造を有する。ここで発光層61は最大厚さと最小厚さの差が $100 \mu\text{m}$ 以下の緩やかな楔形であり、楔形の接着層62、63を積層することにより、合わせガラス用中間膜6全体として楔角 $\theta$ が $0.1 \sim 1 \text{ mrad}$ である楔形となっている。
- [0140] 本発明2の合わせガラス用中間膜の製造方法は特に限定されない。例えば、可塑剤と上記ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体とを含む可塑剤溶液と、熱可塑性樹脂とを十分に混合し、発光層を形成するための樹脂組成物を作製する。次に、上記金属塩と可塑剤とを含む可塑剤溶液と、熱可塑性樹脂とを十分に混合し、第1、2の接着層を形成するための樹脂組成物を作製する。発光層を形成するための樹脂組成物と第1、2の接着層

を形成するための樹脂組成物とを共押出機を用いて共押し出し、第1の接着層、発光層及び第2の接着層がこの順に積層された合わせガラス用中間膜を製造することができる。

[0141] 本発明2の合わせガラス用中間膜は、上記発光層を有することから、特定の波長の光線を照射することにより発光する。この性質を利用することにより、高いコントラストで情報を表示することができる。

上記特定の波長の光線を照射するための装置として、例えば、スポット光源（浜松ホトニクス社製、LC-8）、キセノン・フラッシュランプ（ヘレウス社製、CWランプ）、ブラックライト（井内盛栄堂社製、キャリアハンド）等が挙げられる。

[0142] 本発明2の合わせガラス用中間膜が、一对のガラス板の間に積層されている合わせガラスもまた、本発明の1つである。

上記ガラス板は、一般に使用されている透明板ガラスを使用することができる。例えば、フロート板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス、網入りガラス、線入り板ガラス、着色された板ガラス、熱線吸収ガラス、熱線反射ガラス、グリーンガラス等の無機ガラスが挙げられる。また、ガラスの表面に紫外線遮蔽コート層が形成された紫外線遮蔽ガラスも用いることができるが、特定の波長の光線を照射する側とは反対のガラス板として用いることが好ましい。更に、上記ガラス板としてポリエチレンテレフタレート、ポリカーボネート、ポリアクリレート等の有機プラスチック板を用いることもできる。上記ガラス板として、2種類以上のガラス板を用いてもよい。例えば、透明フロート板ガラスと、グリーンガラスのような着色されたガラス板との間に、本発明2の合わせガラス用中間膜を積層した合わせガラスが挙げられる。また、上記ガラス板として、2種以上の厚さの異なるガラス板を用いてもよい。

### 発明の効果

[0143] 本発明によれば、光線を照射することにより高い発光強度で画像を表示することができる合わせガラス用中間膜、及び、該合わせガラス用中間膜を含む

合わせガラスを提供することができる。

### 図面の簡単な説明

[0144] [図1]断面形状が楔形である本発明1の合わせガラス用中間膜の態様の一例を説明する模式図である。

[図2]断面形状が楔形である本発明1の合わせガラス用中間膜の態様の一例を説明する模式図である。

[図3]断面形状が楔形である本発明1の合わせガラス用中間膜の態様の一例を説明する模式図である。

[図4]断面形状が楔形である本発明2の合わせガラス用中間膜の態様の一例を説明する模式図である。

[図5]断面形状が楔形である本発明2の合わせガラス用中間膜の態様の一例を説明する模式図である。

[図6]断面形状が楔形である本発明2の合わせガラス用中間膜の態様の一例を説明する模式図である。

### 発明を実施するための形態

[0145] 以下に実施例を挙げて本発明の態様を更に詳しく説明するが、本発明はこれら実施例にのみ限定されるものではない。

[0146] (実施例1)

(1)  $\text{Eu}(\text{TFA})_3\text{phen}$ の調製

酢酸ユーロピウム ( $\text{Eu}(\text{CH}_3\text{COO})_3$ ) 5 g (12.5 mmol) を 50 mL の蒸留水へ溶かし、トリフルオロアセチルアセトン (TFA、 $\text{CH}_3\text{COCH}_2\text{COCF}_3$ ) 7 g (33.6 mmol) を加え、室温で3時間攪拌した。沈殿した固体を濾過、水洗後、メタノールと蒸留水で再結晶を行なって  $\text{Eu}(\text{TFA})_3(\text{H}_2\text{O})_2$  を得た。得られた錯体 ( $\text{Eu}(\text{TFA})_3(\text{H}_2\text{O})_2$ ) 5.77 g と 1,10-フェナントロリン (phen) 2.5 g を 100 mL のメタノールに溶かし、12時間加熱還流を行なった。12時間後、メタノールを減圧留去により取り除き、白色生成物を得た。この粉末をトルエンで洗浄し、未反応の原料を吸引濾過により取り除いた後、トルエンを減

圧留去し、紛体を得た。トルエン、ヘキサンの混合溶媒により再結晶を行なうことにより、Eu(TFA)<sub>3</sub>phenを得た。

[0147] (2) ポリビニルブチラルの調製

攪拌機を取り付けた2 m<sup>3</sup>反応器に、PVA（重合度1700、けん化度99モル%）の7.5質量%水溶液1700 kgとn-ブチルアルデヒド74.6 kg、2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノール0.13 kgを仕込み、全体を14℃に冷却した。これに、濃度30質量%の硝酸99.44 Lを添加して、PVAのブチラル化を開始した。添加終了後から10分後に昇温を開始し、90分かけて65℃まで昇温し、更に120分反応を行なった。その後、室温まで冷却して析出した固形分を濾過後、固形分に対して質量で10倍量のイオン交換水で10回洗浄した。その後、0.3質量%の炭酸水素ナトリウム水溶液を用いて十分に中和を行ない、更に固形分に対して質量で10倍量のイオン交換水で10回洗浄し、脱水した後、乾燥させ、ポリビニルブチラル1（以下、「PVB1」ともいう。）を得た。なお、ポリビニルブチラル1のアセチル基量は0.9モル%、ブチラル化度は68.5モル%、水酸基量は30.6モル%であった。

[0148] (3) 合わせガラス用中間膜及び合わせガラスの製造

トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（3GO）40重量部に、得られたEu(TFA)<sub>3</sub>phen 0.2重量部を加え、発光性の可塑剤溶液を調製した。得られた可塑剤溶液の全量と、得られたPVB1の100重量部とをミキシングロールで十分に混練することにより樹脂組成物を調製した。

得られた樹脂組成物を、押出機を用いて押出し、合わせガラス用中間膜（厚み760 μm）を得た。

得られた合わせガラス用中間膜を、縦5 cm×横5 cmの一对のクリアガラス（厚み2.5 mm）の間に積層し、積層体を得た。得られた積層体を、真空ラミネーターにて90℃下、30分保持しつつ真空プレスを行い圧着した。圧着後140℃、14 MPaの条件でオートクレーブを用いて20分間圧

着を行い、合わせガラスを得た。

[0149] (実施例2)

(1)  $\text{Eu}(\text{TFA})_3\text{dpphen}$ の調製

1, 10-フェナントロリンの代わりに、4, 7-ジフェニルフェナントロリンを用いた以外は実施例1と同様にして、 $\text{Eu}(\text{TFA})_3\text{dpphen}$ を得た。

[0150] (2) 合わせガラス用中間膜及び合わせガラスの製造

得られた $\text{Eu}(\text{TFA})_3\text{dpphen}$ を用いた以外は実施例1と同様にして、合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを製造した。

[0151] (実施例3)

(1)  $\text{Eu}(\text{HFA})_3\text{phen}$ の調製

トリフルオロアセチルアセトンの代わりに、ヘキサフルオロアセチルアセトンを用いた以外は実施例1と同様にして、 $\text{Eu}(\text{HFA})_3\text{phen}$ を得た。

[0152] (2) 合わせガラス用中間膜及び合わせガラスの製造

得られた $\text{Eu}(\text{HFA})_3\text{phen}$ を用いた以外は実施例1と同様にして、合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを製造した。

[0153] (実施例4)

(1)  $\text{Tb}(\text{TFA})_3\text{phen}$ の調製

酢酸ユーロピウムの代わりに、酢酸テルビウムを用いた以外は実施例1と同様にして、 $\text{Tb}(\text{TFA})_3\text{phen}$ を得た。

[0154] (2) 合わせガラス用中間膜及び合わせガラスの製造

発光粒子として得られた $\text{Tb}(\text{TFA})_3\text{phen}$ を用いた以外は実施例1と同様にして、合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを製造した。

[0155] (実施例5)

樹脂組成物に、得られる合わせガラス用中間膜中のマグネシウムの含有量が30ppmとなるように塩化マグネシウムを配合した以外は実施例2と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを製造した。

[0156] (実施例6)

樹脂組成物に、得られる合わせガラス用中間膜中のマグネシウムの含有量が 30 ppm となるように塩化マグネシウムを配合した以外は実施例 3 と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを製造した。

[0157] (実施例 7)

樹脂組成物に、得られる合わせガラス用中間膜中のマグネシウムの含有量が 30 ppm となるように塩化マグネシウムを配合した以外は実施例 4 と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを製造した。

[0158] (実施例 8)

樹脂組成物に、得られる合わせガラス用中間膜中のカリウムの含有量が 30 ppm となるように塩化カリウムを配合した以外は実施例 2 と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを製造した。

[0159] (実施例 9)

樹脂組成物に、得られる合わせガラス用中間膜中のナトリウムの含有量が 30 ppm となるように塩化ナトリウムを配合した以外は実施例 2 と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを製造した。

[0160] (実施例 10)

樹脂組成物に、得られる合わせガラス用中間膜中のマグネシウムの含有量が 40 ppm となるように塩化マグネシウムを配合した以外は実施例 3 と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを製造した。

[0161] (実施例 11)

樹脂組成物に、得られる合わせガラス用中間膜中のマグネシウムの含有量が 40 ppm となるように塩化マグネシウムを配合した以外は実施例 4 と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを製造した。

[0162] (比較例 1)

樹脂組成物に、得られる合わせガラス用中間膜中のマグネシウムの含有量が 70 ppm となるように塩化マグネシウムを配合した以外は実施例 2 と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを製造した。

[0163] (比較例 2)

樹脂組成物に、得られる合わせガラス用中間膜中のナトリウムの含有量が100ppmとなるように塩化ナトリウムを配合した以外は実施例2と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを製造した。

[0164] (比較例3)

樹脂組成物に、得られる合わせガラス用中間膜中のマグネシウムの含有量が70ppmとなるように塩化マグネシウムを配合した以外は実施例3と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを製造した。

[0165] (比較例4)

樹脂組成物に、得られる合わせガラス用中間膜中のナトリウムの含有量が100ppmとなるように塩化ナトリウムを配合した以外は実施例3と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを製造した。

[0166] (比較例5)

樹脂組成物に、得られる合わせガラス用中間膜中のマグネシウムの含有量が70ppmとなるように塩化マグネシウムを配合した以外は実施例4と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを製造した。

[0167] (比較例6)

樹脂組成物に、得られる合わせガラス用中間膜中のナトリウムの含有量が100ppmとなるように塩化ナトリウムを配合した以外は実施例4と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを製造した。

[0168] (実施例12~17、比較例7~8)

樹脂組成物に、得られる合わせガラス用中間膜中のナトリウム、カリウム及びマグネシウムの含有量が、表3に示す量になるように、発光性の可塑剤溶液中の塩化ナトリウム、塩化カリウム及び塩化マグネシウムの配合量を変更し、更に、発光粒子の種類及び含有量を表3に示すように変更した以外は、実施例1と同様にして合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを製造した。

[0169] (評価)

実施例及び比較例で得られた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスについて、以下の方法で評価を行った。結果を表1~3に示した。

[0170] (1) 合わせガラス用中間膜中の金属成分の含有量の測定

得られた合わせガラス用中間膜について、島津製作所社製のICP発光分析装置（ICPE-9000）によりナトリウム、カリウム及びマグネシウムの含有量を測定した。

[0171] (2) 初期発光性の評価

縦5cm×横5cmの合わせガラスを、暗室下にて、合わせガラスの面に対して垂直方向に10cm離れた位置に配置したHigh Powerキセノン光源（朝日分光社製、「REX-250」、照射波長405nm）から合わせガラスの全面へ光を照射し、光を照射した合わせガラスの面から45度の角度で、合わせガラスの面からの最短距離が35cmとなる位置であり、かつ光を照射した側に配置した輝度計（トプコンテクノハウス社製、「SR-3AR」）によって輝度を測定した。

[0172]

[表1]

	実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	実施例5	実施例6	実施例7	実施例8
樹脂	100	100	100	100	100	100	100	100
可塑剤	40	40	40	40	40	40	40	40
Eu錯体	Eu(TFA) <sub>3</sub> phen	Eu(TFA) <sub>3</sub> dpphen	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Tb(TFA) <sub>3</sub> phen	Eu(TFA) <sub>3</sub> dpphen	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Tb(TFA) <sub>3</sub> phen	Eu(TFA) <sub>3</sub> dpphen
	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
ナトリウム	5	5	5	5	5	5	5	5
カリウム	5	5	5	5	5	5	5	30
マグネシウム	0	0	0	0	30	30	30	0
合計	10	10	10	10	40	40	40	35
初期発光性	250	220	240	530	90	82	192	120

[0173]

[表2]

	実施例9	実施例10	実施例11	比較例1	比較例2	比較例3	比較例4	比較例5	比較例6
樹脂	100	100	100	100	100	100	100	100	100
可塑剤	40	40	40	40	40	40	40	40	40
Eu錯体	構造	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Tb(TFA) <sub>3</sub> phen	Eu(TFA) <sub>3</sub> dpphen	Eu(TFA) <sub>3</sub> dpphen	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Tb(TFA) <sub>3</sub> phen	Tb(TFA) <sub>3</sub> phen
	phr	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
ナトリウム	30	5	5	5	100	5	100	5	100
カリウム	5	5	5	5	5	5	5	5	5
マグネシウム	0	40	40	70	0	70	0	70	0
合計	35	50	50	80	105	80	105	80	105
初期発光性	110	77	117	10	12	11	24	43	47

[0174] [表3]

	実施例12	実施例13	実施例14	実施例15	実施例16	実施例17	比較例7	比較例8
樹脂	100	100	100	100	100	100	100	100
可塑剤	40	40	40	40	40	40	40	40
Eu錯体	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Tb(TFA) <sub>3</sub> phen	Tb(TFA) <sub>3</sub> phen	Tb(TFA) <sub>3</sub> phen	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Tb(TFA) <sub>3</sub> phen
	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6	0.6
ナトリウム	5	5	5	5	5	5	5	5
カリウム	5	5	5	5	5	5	5	5
マグネシウム	0	30	40	0	30	40	70	70
合計	10	40	50	10	40	50	80	80
初期発光性	708	260	220	1420	630	597	34	42

[0175] (実施例18)

トリエチレングリコールジエーテルヘキサノエート（3GO）40重量部に、実施例3で得られたEu（HFA）<sub>3</sub>phenO<sub>2</sub> 2重量部を加え、更に、熱線吸収剤として錫ドープ酸化インジウム粒子（ITO粒子）を得られる中間膜100重量%中0.15重量%となる量を添加し、発光性の可塑剤溶液を調製した。得られた可塑剤溶液の全量と、得られたポリビニルブチラール1 100重量部とをミキシングロールで十分に混練することにより樹脂組成物を調製した。

得られた樹脂組成物を、押出機を用いて押し出し、合わせガラス用中間膜（厚み760μm）を得た。

得られた合わせガラス用中間膜を、縦5cm×横5cmの一对のクリアガラス（厚み2.5mm）の間に積層し、積層体を得た。得られた積層体を、真空ラミネーターにて90℃下、30分保持しつつ真空プレスを行い圧着した。圧着後140℃、14MPaの条件でオートクレーブを用いて20分間圧着を行い、合わせガラスを得た。

[0176]（実施例19）

トリエチレングリコールジエーテルヘキサノエート（3GO）40重量部に、実施例3で得られたEu（HFA）<sub>3</sub>phenO<sub>2</sub> 2重量部を加え、更に、熱線吸収剤としてセシウムドープ酸化タングステン（CsO<sub>3</sub>WO<sub>3</sub>）粒子（CWO粒子）を得られる中間膜100重量%中0.05重量%となる量を添加し、発光性の可塑剤溶液を調製した。得られた可塑剤溶液の全量と、得られたポリビニルブチラール1 100重量部とをミキシングロールで十分に混練することにより樹脂組成物を調製した。

得られた樹脂組成物を、押出機を用いて押し出し、合わせガラス用中間膜（厚み760μm）を得た。

得られた合わせガラス用中間膜を、縦5cm×横5cmの一对のクリアガラス（厚み2.5mm）の間に積層し、積層体を得た。得られた積層体を、真空ラミネーターにて90℃下、30分保持しつつ真空プレスを行い圧着した。圧着後140℃、14MPaの条件でオートクレーブを用いて20分間圧

着を行い、合わせガラスを得た。

[0177] (実施例20、21)

発光粒子の種類、熱線吸収剤の含有量を表4に示すように変更した以外は、実施例18と同様にして、合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを製造した。

[0178] (評価)

実施例及び比較例で得られた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスについて、以下の方法で評価を行った。結果を表4に示した。

[0179] (1) 合わせガラス用中間膜中の金属成分の含有量の測定

得られた合わせガラス用中間膜について、島津製作所社製のICP発光分析装置(ICPE-9000)によりナトリウム、カリウム及びマグネシウムの含有量を測定した。測定手順の詳細を下記に記す。合わせガラス用中間膜から試料を0.3g採取し、硝酸6mgと共に、インサート容器に入れた。溶解用の容器を準備し、該容器に超純水(6mg)、過酸化水素(1mg)を入れ、溶解用の容器内にインサート容器を入れてふたをした。

マイクロ波試料前処理装置(マイルストーンゼネラル社製「ETHOS One」)を用いて、溶解用の容器を200℃で15分間加熱させた後、インサート容器内の内容物を25℃条件下で比抵抗18.2MΩ・cmの超純水を用いて定容し試験液を得た。次に、島津製作所社製のICP発光分析装置(ICPE-9000)を用いて密閉系で、試験液中の金属の定量分析を行い、得られた金属の含有量から合わせガラス用中間膜中の金属の含有量を算出した。

[0180] (2) 初期発光性の評価

縦5cm×横5cmの合わせガラスを、暗室下にて、合わせガラスの面に対して垂直方向に10cm離れた位置に配置したHigh Powerキセノン光源(朝日分光社製、「REX-250」、照射波長405nm)から合わせガラスの全面へ光を照射し、光を照射した合わせガラスの面から45度の角度で、合わせガラスの面からの最短距離が35cmとなる位置であり、

かつ光を照射した側に配置した輝度計（トプコンテクノハウス社製、「SR-3AR」）によって輝度を測定した。

[0181]（遮熱性の評価）

ISO 13837に準拠して、分光光度計（日立ハイテク社製「U-4100」）を用いて、実施例18～21で得られた合わせガラスの波長300～2500nmの透過率／反射率を測定して、Ttsを算出した。

[0182] [表4]

		実施例18	実施例19	実施例20	実施例21
樹脂	phr	100	100	100	100
可塑剤	phr	40	40	40	40
Eu錯体	構造	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Tb(TFA) <sub>3</sub> phen
	phr	0.2	0.2	0.2	0.2
遮熱粒子	種類	ITO	CWO	ITO	ITO
	wt%	0.15	0.05	0.5	0.15
ナトリウム	ppm	5	5	5	5
カリウム	ppm	5	5	5	5
マグネシウム	ppm	0	0	0	0
合計	ppm	10	10	10	10
初期発光性		208	202	203	505
遮熱性(Tts)		74.7	67.2	69.2	74.2

[0183]（実施例22）

(1) Eu(TFA)<sub>3</sub>phenの調製

酢酸ユーロピウム (Eu(CH<sub>3</sub>COO)<sub>3</sub>) 5g (12.5mmol) を50mLの蒸留水へ溶かし、トリフルオロアセチルアセトン (TFA) (CH<sub>3</sub>COCH<sub>2</sub>COCF<sub>3</sub>: 7g, 33.6mol) を加え、室温で3時間攪拌した。沈殿した固体を濾過、水洗後、メタノールと蒸留水で再結晶を行なってEu(TFA)<sub>3</sub>(H<sub>2</sub>O)<sub>2</sub>を得た。得られたEu(TFA)<sub>3</sub>(H<sub>2</sub>O)<sub>2</sub> 5.77gと1,10-フェナントロリン (phen) 2.5gを100mLのメタノールに溶かし、12時間加熱還流を行なった。12時間後、メタノールを減圧留去により取り除き、白色生成物を得た。この粉末をトルエン

で洗浄し、未反応の原料を吸引濾過により取り除いた後、トルエンを減圧留去し、粉体を得た。トルエン、ヘキサンの混合溶媒により再結晶を行なうことにより、Eu(TFA)<sub>3</sub>phenを得た。

[0184] (2) 発光層を形成する樹脂組成物

攪拌機を取り付けた2 m<sup>3</sup>反応器に、PVA（重合度2400、けん化度88モル%）の7.5質量%水溶液1700 kgとn-ブチルアルデヒド119.4 kg、2,6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノール0.13 kgを仕込み、全体を14℃に冷却した。これに、濃度30質量%の硝酸99.44 Lを添加して、PVAのブチラール化を開始した。添加終了後から10分後に昇温を開始し、90分かけて65℃まで昇温し、更に120分反応を行なった。その後、室温まで冷却して析出した固形分を濾過後、固形分に対して質量で10倍量のイオン交換水で10回洗浄した（中和前の洗浄）。その後、0.3質量%の炭酸水素ナトリウム水溶液を用いて十分に中和を行ない、更に固形分に対して質量で10倍量のイオン交換水で10回洗浄し（中和後の洗浄）、脱水した後、乾燥させ、ポリビニルブチラール2（以下、「PVB2」ともいう。）を得た。なお、PVB2のアセチル基量は13モル%、ブチラール基量は65モル%、水酸基量は22モル%であった。トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（3GO）40重量部に、得られたEu(TFA)<sub>3</sub>phenからなる粒子0.2重量部を加え、発光性の可塑剤溶液を調製した。得られた可塑剤溶液の全量と、ポリビニルブチラール2 100重量部とをミキシングロールで十分に混練することにより、発光層を形成する樹脂組成物を調製した。

[0185] (3) 第1、2の接着層を形成する樹脂組成物

トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート（3GO）100重量部に、接着力調整剤として酢酸マグネシウムを加え、可塑剤溶液を調製した。得られた可塑剤溶液の全量と、実施例1で得られたPVB1の100重量部とをミキシングロールで十分に混練することにより、第1、2の接着層を形成する樹脂組成物を調製した。なお、第1、2の接着層のマグネシウム

の含有量が40 ppmとなるように、酢酸マグネシウムをトリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(3GO)に添加した。

[0186] (4) 合わせガラス用中間膜の製造

発光層を形成する樹脂組成物、及び、第1、2の接着層を形成する樹脂組成物を、共押出機を用いて共押し出し、第1の接着層と発光層と第2の接着層とがこの順に積層された合わせガラス用中間膜を得た。なお、発光層の厚みは100 μm、第1、2の樹脂層の厚みはそれぞれ350 μmであり、合わせガラス用中間膜の厚みは800 μmであった。

[0187] (5) 合わせガラスの製造

得られた合わせガラス用中間膜を、縦5 cm×横5 cmの一对のクリアガラス(厚み2.5 mm)の間に積層し、積層体を得た。得られた積層体を、真空ラミネーターにて90℃下、30分保持しつつ真空プレスを行い圧着した。圧着後140℃、14 MPaの条件でオートクレーブを用いて20分間圧着を行い、合わせガラスを得た。

[0188] (耐貫通性評価用合わせガラスの製造)

得られた合わせガラス用中間膜を、縦30 cm×横30 cmの一对のクリアガラス(厚み2.5 mm)の間に積層し、積層体を得た。得られた積層体を、真空ラミネーターにて90℃下、30分保持しつつ真空プレスを行い圧着した。圧着後140℃、14 MPaの条件でオートクレーブを用いて20分間圧着を行い、ガラスからはみ出た中間膜部分を切り落とし、耐貫通性評価用合わせガラスを得た。

[0189] (実施例23)

(1)  $\text{Eu}(\text{TFA})_3\text{dpphen}$ の調製

1,10-フェナントロリンの代わりに、4,7-ジフェニルフェナントロリンを用いた以外は実施例22と同様にして、 $\text{Eu}(\text{TFA})_3\text{dpphen}$ を得た。

[0190] (2) 合わせガラス用中間膜及び合わせガラスの製造

得られた $\text{Eu}(\text{TFA})_3\text{dpphen}$ からなる粒子を用いた以外は実施例2

2と同様にして、合わせガラス用中間膜、合わせガラス及び耐貫通性評価用合わせガラスを製造した。

[0191] (実施例24)

(1)  $\text{Eu}(\text{HFA})_3\text{phen}$ の調製

トリフルオロアセチルアセトンの代わりに、ヘキサフルオロアセチルアセトンを用いた以外は実施22と同様にして、 $\text{Eu}(\text{HFA})_3\text{phen}$ を得た。

[0192] (2) 合わせガラス用中間膜及び合わせガラスの製造

得られた $\text{Eu}(\text{HFA})_3\text{phen}$ からなる粒子を用いた以外は実施例22と同様にして、合わせガラス用中間膜、合わせガラス及び耐貫通性評価用合わせガラスを製造した。

[0193] (実施例25～34、比較例9～13、参考例1)

得られる発光層及び接着層中のナトリウム、カリウム及びマグネシウムの含有量が、表5、6、7に示す量になるように、発光層を形成する樹脂組成物における発光性の可塑剤溶液中の塩化ナトリウム、塩化カリウム及び塩化マグネシウムの配合量、及び、第1、2の接着層を形成する樹脂組成物における可塑剤溶液中の酢酸マグネシウムの配合量を変更し、用いるユーロピウム錯体の種類や可塑剤の配合量を表5、6、7に示したようにした以外は実施例22と同様にして、合わせガラス用中間膜、合わせガラス及び耐貫通性評価用合わせガラスを製造した。

[0194] (評価)

実施例、比較例及び参考例で得られた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスについて、以下の方法で評価を行った。結果を表5、6、7に示した。

[0195] (1) 発光層及び接着層中の金属量の測定

各層中の金属量を測定するためのサンプルとして、合わせガラス用中間膜を製造する際に調製した樹脂組成物を、押出機を用いて押出して単層の発光層及び接着層を製造した。

得られた発光層及び接着層について、島津製作所社製のICP発光分析装置(ICPE-9000)により含有される金属量を測定した。測定手順の詳細

細を下記に記す。発光層から試料を0.3g採取し、硝酸6mgと共に、インサート容器に入れた。溶解用の容器を準備し、該容器に超純水(6mg)、過酸化水素(1mg)を入れ、溶解用の容器内にインサート容器を入れてふたをした。

マイクロ波試料前処理装置(マイルストーンゼネラル社製「ETHOS One」)を用いて、溶解用の容器を200℃で15分間加熱させた後、インサート容器内の内容物を25℃条件下で比抵抗18.2MΩ・cmの超純水を用いて定容し試験液を得た。次に、島津製作所社製のICP発光分析装置(ICPE-9000)を用いて密閉系で、試験液中の金属の定量分析を行い、得られた金属の含有量から発光層及び接着層中の金属の含有量を算出した。

[0196] (2) 初期発光性の評価

5cm×5cmの合わせガラスを、暗室下にて、合わせガラスの面に対して垂直方向に10cm離れた位置に配置したHigh Powerキセノン光源(朝日分光社製、「REX-250」、照射波長405nm)から合わせガラスの全面へ光を照射し、光を照射した合わせガラスの面から45度の角度で、合わせガラスの面からの最短距離が35cmとなる位置であり、かつ光を照射した側に配置した輝度計(トプコンテクノハウス社製、「SR-3AR」)によって輝度を測定した。

[0197] (3) 耐貫通性の評価(合わせガラス用中間膜のパンメル値の測定)

得られた耐貫通性評価用合わせガラスを-18℃±0.6℃の温度に16時間調整し、この合わせガラスの中央部(縦150mm×横150mmの部分)を頭部が0.45kgのハンマーで打って、ガラスの粒径が6mm以下になるまで粉碎し、ガラスが部分剥離した後の膜の露出度を測定し、表8によりパンメル値を求めた。パンメル値が1~7の場合を「○」、0又は8である場合を「×」と評価した。

[0198]

[表5]

		実施例22	実施例23	実施例24	実施例25	実施例26	実施例27	実施例28	
発光層	種類	PVB2	PVB2	PVB2	PVB2	PVB2	PVB2	PVB2	
	樹脂(PVB)	100	100	100	100	100	100	100	
	可塑剤(3GO)	40	40	40	60	40	40	40	
	Eu錯体	構造	Eu(TFA) <sub>3</sub> phen	Eu(TFA) <sub>3</sub> dpphen	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Eu(TFA) <sub>3</sub> dpphen	Eu(TFA) <sub>3</sub> dpphen	Eu(TFA) <sub>3</sub> dpphen	Eu(TFA) <sub>3</sub> dpphen
		phr	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	
	金属量 (ppm)	Na	5	5	5	20	5	5	5
		K	5	5	5	20	5	5	5
		Mg	0	0	0	0	0	0	0
		合計	10	10	10	40	10	10	10
	接着層	種類	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1
樹脂(PVB)		100	100	100	100	100	100	100	
可塑剤(3GO)		100	100	100	100	100	100	100	
金属量 (ppm)		Na	5	5	5	5	5	5	5
		K	5	5	5	5	5	5	5
		Mg	40	40	40	40	50	70	100
合計		50	50	50	50	60	80	110	
初期発光性		42	37	40	32	35	34	33	
バンメル		5	5	5	5	4	3	2	

[0199]

[表6]

		実施例29	実施例30	実施例31	実施例32	実施例33	実施例34	
発光層	種類	PVB2	PVB2	PVB2	PVB2	PVB2	PVB2	
	樹脂(PVB)	100	100	100	100	100	100	
	可塑剤(3GO)	40	40	40	40	60	60	
	Eu錯体	構造	Eu(TFA) <sub>3</sub> phen	Eu(TFA) <sub>3</sub> dpphen	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Tb(TFA) <sub>3</sub> phen	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Tb(TFA) <sub>3</sub> phen
		phr	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
	金属量 (ppm)	Na	5	5	5	5	20	20
		K	5	5	5	5	20	20
		Mg	0	0	0	0	0	0
		合計	10	10	10	10	40	40
	接着層	種類	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1
樹脂(PVB)		100	100	100	100	100	100	
可塑剤(3GO)		40	40	40	40	40	40	
金属量 (ppm)		Na	5	5	5	5	5	5
		K	5	5	5	5	5	5
		Mg	40	40	40	40	40	40
		合計	50	50	50	50	50	50
初期発光性		43	40	41	101	36	94	
パンメル		5	5	5	5	5	5	

[0200]

[表7]

		比較例9	比較例10	比較例11	比較例12	比較例13	参考例1	
発光層	種類	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1	
	樹脂(PVB)	100	100	100	100	100	100	
	可塑剤(3GO)	40	40	40	40	40	60	
	Eu錯体	構造	Eu(TFA) <sub>3</sub> dpphen	Eu(TFA) <sub>3</sub> dpphen	Eu(TFA) <sub>3</sub> dpphen	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Tb(TFA) <sub>3</sub> phen	Eu(TFA) <sub>3</sub> dpphen
		phr	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
	金属量 (ppm)	Na	5	5	5	5	5	20
		K	5	5	5	5	5	20
		Mg	50	100	50	50	50	0
		合計	60	110	60	60	60	40
	接着層	種類	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1
樹脂(PVB)		100	100	100	100	100	100	
可塑剤(3GO)		100	100	40	40	40	100	
金属量 (ppm)		Na	5	5	5	5	5	5
		K	5	5	5	5	5	5
		Mg	30	30	30	30	30	0
		合計	40	40	40	40	40	10
初期発光性		11	5	10	11	11	60	
パンメル		3	3	5	5	5	8	

[0201]

[表8]

中間膜の露出度(面積%)	パンメル値
90<露出度≤100	0
85<露出度≤90	1
60<露出度≤85	2
40<露出度≤60	3
20<露出度≤40	4
10<露出度≤20	5
5<露出度≤10	6
2<露出度≤5	7
露出度≤2	8

## [0202] (実施例35)

(発光層用樹脂組成物の調製)

トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(3GO)40重量部に、実施例3で得られたEu(HFA)<sub>3</sub>phen<sub>0.5</sub>5重量部を加え、発光性の可塑剤溶液を調製した。得られた可塑剤溶液の全量と、ポリビニルブチラール1100重量部とをミキシングロールで十分に混練することにより発光層用樹脂組成物を調製した。

## [0203] (形状補助層用樹脂組成物の調製)

トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(3GO)40重量部に、接着剤調整剤として酢酸マグネシウムを加え、可塑剤溶液を調製した。得られた可塑剤溶液の全量と、実施例1で得られたポリビニルブチラール1100重量部とをミキシングロールで十分に混練することにより、形状補助層用樹脂組成物を調製した。なお、形状補助層のマグネシウムの含有量が40ppmとなるように、酢酸マグネシウムをトリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(3GO)に添加した。

## [0204] (合わせガラス用中間膜及び合わせガラスの製造)

発光層用樹脂組成物及び形状補助層用樹脂組成物を、共押出機を用いて共押出することにより、形状補助層、発光層及び形状補助層がこの順に積層した、図3に記載された3層構造の合わせガラス用中間膜を得た。なお、得られ

た中間膜の押出方向とは垂直方向における一端と他端の最短距離を測定すると1 mであった。

また得られた合わせガラス用中間膜における発光層は最小厚み100  $\mu\text{m}$ 、最大厚み200  $\mu\text{m}$ の楔形の断面形状を有し、合わせガラス用中間膜全体では最小厚み800  $\mu\text{m}$ 、最大厚み1250  $\mu\text{m}$ 、楔角 $\theta$ 0.45 mradの楔形の断面形状を有していた。なお、合わせガラス用中間膜の一端が最小厚みを有し、他端が最大厚みを有しており、光学顕微鏡で観察し、最小厚み及び最大厚みを測定した。

得られた中間膜を、2枚の透明なフロートガラス（縦1000 mm×横3000 mm×厚さ2.5 mm）で挟み込んで、積層体を得た。230°Cの加熱ロールを用いて、得られた積層体を仮圧着した。その後、加熱ロール法により、オートクレーブを用いて、135°C、圧力1.2 MPaの条件で、仮圧着された積層体を20分間圧着し、合わせガラス（縦1000 mm×横3000 mm）を作製した。

[0205]（輝度測定用合わせガラスの製造）

一端と他端の最短距離上における、一端から10 cmの点を中心となるように、縦10 cm×横10 cmの中間膜（薄い部分）を切り抜いた。得られた中間膜（薄い部分）を、2枚の透明なフロートガラス（縦5 cm×横5 cm×厚さ2.5 mm）で挟み込んで、積層体を得た。230°Cの加熱ロールを用いて、得られた積層体を仮圧着した。その後、加熱ロール法により、オートクレーブを用いて、135°C、圧力1.2 MPaの条件で、仮圧着された積層体を20分間圧着し、輝度測定用合わせガラス（縦5 cm×横5 cm）を作製した。

[0206]（実施例37～38、比較例14～15）

得られる発光層中のナトリウム、カリウム及びマグネシウムの含有量が、表9に示す量になるように、発光層用樹脂組成物中の塩化ナトリウム、塩化カリウム及び塩化マグネシウムの配合量を変更し、用いるユーロピウム錯体の種類を表9に示したようにした以外は実施例35と同様にして、合わせガラ

ス用中間膜、合わせガラス及び輝度測定用合わせガラスを製造した。

[0207] (実施例39)

(発光層用樹脂組成物の調製)

トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(3GO)40重量部に、実施例3で得られたEu(HFA)3phen0.2重量部を加え、発光性の可塑剤溶液を調製した。得られた可塑剤溶液の全量と、ポリビニルブチラール1 100重量部とをミキシングロールで十分に混練することにより発光層用樹脂組成物を調製した。

[0208] (第1の樹脂層及び第2の樹脂層用樹脂組成物の調製)

トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(3GO)40重量部に、接着剤調整剤として酢酸マグネシウムを加え、可塑剤溶液を調製した。得られた可塑剤溶液の全量と、実施例1で得られたポリビニルブチラール1 100重量部とをミキシングロールで十分に混練することにより、第1の樹脂層及び第2の樹脂層用樹脂組成物を調製した。なお、第1の樹脂層及び第2の樹脂層のマグネシウムの含有量が40ppmとなるように、酢酸マグネシウムをトリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(3GO)に添加した。

[0209] (遮音層用樹脂組成物の調製)

トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(3GO)60重量部と、ポリビニルブチラール2 100重量部とをミキシングロールで十分に混練することにより遮音層用樹脂組成物を調製した。

[0210] (合わせガラス用中間膜及び合わせガラスの製造)

発光層用樹脂組成物を押出機を用いて単層で押出し、発光層(厚み760 $\mu$ m)を得た。

第1の樹脂層及び第2の樹脂層用樹脂組成物と、遮音層用樹脂組成物とを、共押出機を用いて共押出することにより、第1の樹脂層、遮音層及び第2の樹脂層がこの順に積層した、図3に記載された3層構造の積層体を得た。更に、得られた積層体の第2の樹脂層の外側の表面に、発光層を積層し、合わ

せガラス用中間膜を得た。中間膜の押出方向とは垂直方向における一端と他端の最短距離を測定すると1 mであった。

また得られた合わせガラス用中間膜における遮音層は最小厚み100  $\mu\text{m}$ 、最大厚み200  $\mu\text{m}$ の楔形の断面形状を有し、第1の樹脂層は最小厚み350  $\mu\text{m}$ 、最大厚み525  $\mu\text{m}$ の楔形の断面形状を有し、第2の樹脂層は最小厚み350  $\mu\text{m}$ 、最大厚み525  $\mu\text{m}$ の楔形の断面形状を有し、合わせガラス用中間膜全体では最小厚み1560  $\mu\text{m}$ 、最大厚み2010  $\mu\text{m}$ 、楔角 $\theta$  0.45 mradの楔形の断面形状を有していた。なお、合わせガラス用中間膜の一端が最小厚みを有し、他端が最大厚みを有しており、光学顕微鏡で観察し、最小厚み及び最大厚みを測定した。

得られた中間膜を、2枚の透明なフロートガラス（縦1000 mm×横300 mm×厚さ2.5 mm）で挟み込んで、積層体を得た。230°Cの加熱ロールを用いて、得られた積層体を仮圧着した。その後、加熱ロール法により、オートクレーブを用いて、135°C、圧力1.2 MPaの条件で、仮圧着された積層体を20分間圧着し、合わせガラス（縦1000 mm×横300 mm）を作製した。

[0211]（輝度測定用合わせガラスの製造）

一端と他端の最短距離上における、一端から10 cmの点を中心となるように、縦10 cm×横10 cmの中間膜（薄い部分）を切り抜いた。得られた中間膜（薄い部分）を、2枚の透明なフロートガラス（縦5 cm×横5 cm×厚さ2.5 mm）で挟み込んで、積層体を得た。230°Cの加熱ロールを用いて、得られた積層体を仮圧着した。その後、加熱ロール法により、オートクレーブを用いて、135°C、圧力1.2 MPaの条件で、仮圧着された積層体を20分間圧着し、輝度測定用合わせガラス（縦5 cm×横5 cm）を作製した。

[0212]（実施例40～44、比較例16～17）

ポリビニルブチラル樹脂の種類、発光粒子の種類、発光粒子の含有量、可塑剤の含有量、第1の樹脂層の最小厚み、第1の樹脂層の最大厚み、遮音層

の最小厚み、遮音層の最大厚み、第2の樹脂層の最小厚み、第2の樹脂層の最大厚み、発光層の最小厚み、発光層の最大厚み、中間膜全体の最小厚み、中間膜全体の最大厚み及び楔角 $\theta$ を表10、11に示すように変更した以外は、実施例39と同様にして、合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを製造した。

また、得られる発光層中のナトリウム、カリウム及びマグネシウムの含有量が、表10、11に示す量になるように、発光層用樹脂組成物中の塩化ナトリウム、塩化カリウム及び塩化マグネシウムの配合量を変更し、用いるユーロピウム錯体の種類を表10、11に示したようにした以外は実施例39と同様にして、合わせガラス用中間膜、合わせガラス及び輝度測定用合わせガラスを製造した。

[0213] (評価)

実施例及び比較例で得られた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスについて、以下の方法で評価を行った。結果を表9、10、11に示した。

[0214] (1) 発光層及び接着層中の金属量の測定

各層中の金属量を測定するためのサンプルとして、合わせガラス用中間膜を製造する際に調製した樹脂組成物を、押出機を用いて押出して単層の発光層及び接着層を製造した。

得られた発光層及び接着層について、島津製作所社製のICP発光分析装置（ICPE-9000）により含有される金属量を測定した。測定手順の詳細を下記に記す。発光層から試料を0.3g採取し、硝酸6mgと共に、インサート容器に入れた。溶解用の容器を準備し、該容器に超純水（6mg）、過酸化水素（1mg）を入れ、溶解用の容器内にインサート容器を入れてふたをした。

マイクロ波試料前処理装置（マイルストーンゼネラル社製「ETHOS One」）を用いて、溶解用の容器を200℃で15分間加熱させた後、インサート容器内の内容物を25℃条件下で比抵抗18.2M $\Omega$ ・cmの超純水を用いて定容し試験液を得た。次に、島津製作所社製のICP発光分析装置

(ICPE-9000)を用いて密閉系で、試験液中の金属の定量分析を行い、得られた金属の含有量から発光層及び接着層中の金属の含有量を算出した。

[0215] (2) 初期発光性の評価

輝度測定用合わせガラスを、暗室下にて、合わせガラスの面に対して垂直方向に10cm離れた位置に配置したHigh Powerキセノン光源(朝日分光社製、「REX-250」、照射波長405nm)から合わせガラスの全面へ光を照射し、光を照射した合わせガラスの面から45度の角度で、合わせガラスの面からの最短距離が35cmとなる位置であり、かつ光を照射した側に配置した輝度計(トプコンテクノハウス社製、「SR-3AR」)によって輝度を測定した。

[0216] (二重像の発生の評価)

実施例及び比較例で得られた合わせガラス(縦1000mm×横300mm)をフロントガラスの位置に設置した。合わせガラスの下方に設置した表示ユニットから表示情報を合わせガラスに反射させ、所定の位置で二重像の有無を目視で確認した。二重像が確認されない場合を「○」、二重像が確認される場合を「×」として評価した。

[0217]

[表9]

		実施例35	実施例36	実施例37	実施例38	比較例14	比較例15
組成	樹脂(PVB)	種類	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1
		phr	100	100	100	100	100
	可塑剤(3GO)	phr	40	40	40	40	40
		構造	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Tb(TFA) <sub>3</sub> phen	Tb(TFA) <sub>3</sub> phen	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen
	発光層	Eu錯体	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
		Na	5	5	5	5	5
		K	5	5	5	5	5
		Mg	0	30	0	30	50
	合計	10	40	10	40	60	
	形状	樹脂(PVB)	種類	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1
phr			100	100	100	100	100
可塑剤(3GO)		phr	40	40	40	40	40
		Na	5	5	5	5	5
形状補助層		K	5	5	5	5	5
		Mg	40	40	40	40	40
		合計	50	50	50	50	50
発光層		最小厚み	100	100	100	100	100
		最大厚み	200	200	200	200	200
中間膜の厚み等		最小厚み	800	800	800	800	800
	最大厚み	1250	1250	1250	1250	1250	
	楔角θ	0.45	0.45	0.45	0.45	0.45	
初期発光性		71	52	148	133	11	14
二重像の発生の評価		○	○	○	○	○	○

[0218]

[表10]

				実施例39	実施例40	実施例41	実施例42
組成	第1の樹脂層	樹脂(PVB)	種類	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1
			phr	100	100	100	100
		可塑剤(3GO)	phr	40	40	40	40
			Na	5	5	5	5
		金属量 (ppm)	K	5	5	5	5
			Mg	40	40	40	40
	合計		50	50	50	50	
	遮音層	樹脂(PVB)	種類	PVB2	PVB2	PVB2	PVB2
			phr	100	100	100	100
		可塑剤(3GO)	phr	60	60	60	60
			Na	20	20	20	20
		金属量 (ppm)	K	20	20	20	20
			Mg	0	0	0	0
	合計		40	40	40	40	
	第2の樹脂層	樹脂(PVB)	種類	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1
			phr	100	100	100	100
		可塑剤(3GO)	phr	40	40	40	40
			Na	5	5	5	5
		金属量 (ppm)	K	5	5	5	5
			Mg	40	40	40	40
	合計		50	50	50	50	
	発光層	樹脂(PVB)	種類	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1
			phr	100	100	100	100
		可塑剤(3GO)	phr	40	40	40	40
Eu錯体			構造	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Tb(TFA) <sub>3</sub> phen
金属量 (ppm)		phr	0.2	0.2	0.2	0.2	
		Na	5	5	5	5	
		K	5	5	5	5	
		Mg	0	30	40	0	
	合計	10	40	50	10		
形状	中間膜の構成	-	-	第1の樹脂層 /遮音層/ 第2の樹脂層 /発光層	第1の樹脂層 /遮音層/ 第2の樹脂層 /発光層	第1の樹脂層 /遮音層/ 第2の樹脂層 /発光層	第1の樹脂層 /遮音層/ 第2の樹脂層 /発光層
	第1の樹脂層	最小厚み	μm	350	350	350	350
		最大厚み	μm	525	525	525	525
	遮音層	最小厚み	μm	100	100	100	100
		最大厚み	μm	200	200	200	200
	第2の樹脂層	最小厚み	μm	350	350	350	350
		最大厚み	μm	525	525	525	525
	発光層	厚み	μm	760	760	760	760
	中間膜の厚み等	最小厚み	μm	1560	1560	1560	1560
		最大厚み	μm	2010	2010	2010	2010
		楔角θ	mrاد	0.45	0.45	0.45	0.45
	初期発光性				235	86	75
二重像の発生の評価				○	○	○	○

[0219]

[表11]

				実施例43	実施例44	比較例16	比較例17
組成	第1の樹脂層	樹脂(PVB)	種類	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1
			phr	100	100	100	100
		可塑剤(3GO)	phr	40	40	40	40
			金属量 (ppm)	Na	5	5	5
		K		5	5	5	5
		Mg		40	40	40	40
	合計	50	50	50	50		
	遮音層	樹脂(PVB)	種類	PVB2	PVB2	PVB2	PVB2
			phr	100	100	100	100
		可塑剤(3GO)	phr	60	60	60	60
			金属量 (ppm)	Na	20	20	20
		K		20	20	20	20
		Mg		0	0	0	0
	合計	40	40	40	40		
	第2の樹脂層	樹脂(PVB)	種類	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1
			phr	100	100	100	100
		可塑剤(3GO)	phr	40	40	40	40
			金属量 (ppm)	Na	5	5	5
		K		5	5	5	5
		Mg		40	40	40	40
	合計	50	50	50	50		
	発光層	樹脂(PVB)	種類	PVB1	PVB1	PVB1	PVB1
			phr	100	100	100	100
		可塑剤(3GO)	phr	40	40	40	40
Eu錯体			構造	Tb(TFA) <sub>3</sub> phen	Tb(TFA) <sub>3</sub> phen	Eu(HFA) <sub>3</sub> phen	Tb(TFA) <sub>3</sub> phen
		phr	0.2	0.2	0.2	0.2	
金属量 (ppm)		Na	5	5	5	5	
		K	5	5	5	5	
		Mg	30	40	50	50	
合計	40	50	60	60			
形状	中間膜の構成	-	-	第1の樹脂層 / 遮音層 / 第2の樹脂層 / 発光層	第1の樹脂層 / 遮音層 / 第2の樹脂層 / 発光層	第1の樹脂層 / 遮音層 / 第2の樹脂層 / 発光層	第1の樹脂層 / 遮音層 / 第2の樹脂層 / 発光層
	第1の樹脂層	最小厚み	μm	350	350	350	350
		最大厚み	μm	525	525	525	525
	遮音層	最小厚み	μm	100	100	100	100
		最大厚み	μm	200	200	200	200
	第2の樹脂層	最小厚み	μm	350	350	350	350
		最大厚み	μm	525	525	525	525
	発光層	厚み	μm	760	760	760	760
	中間膜の厚み等	最小厚み	μm	1560	1560	1560	1560
		最大厚み	μm	2010	2010	2010	2010
		楔角θ	mrاد	0.45	0.45	0.45	0.45
初期発光性				155	120	12	38
二重像の発生の評価				○	○	○	○

産業上の利用可能性

[0220] 本発明によれば、光線を照射することにより高い発光強度で画像を表示することができる合わせガラス用中間膜、及び、該合わせガラス用中間膜を含む合わせガラスを提供することができる。

## 符号の説明

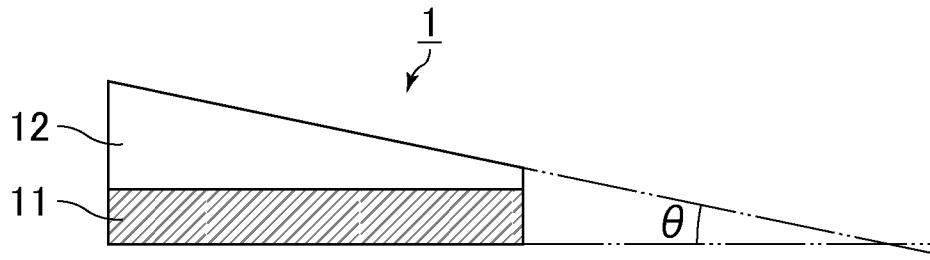
- [0221] 1 合わせガラス用中間膜
- 1 1 発光層
  - 1 2 形状補助層
- 2 合わせガラス用中間膜
- 2 1 発光層
  - 2 2 形状補助層
  - 2 3 形状補助層
- 3 合わせガラス用中間膜
- 3 1 発光層
  - 3 2 形状補助層
  - 3 3 形状補助層
- 4 合わせガラス用中間膜
- 4 1 発光層
  - 4 2 接着層
- 5 合わせガラス用中間膜
- 5 1 発光層
  - 5 2 接着層
  - 5 3 接着層
- 6 合わせガラス用中間膜
- 6 1 発光層
  - 6 2 接着層
  - 6 3 接着層

## 請求の範囲

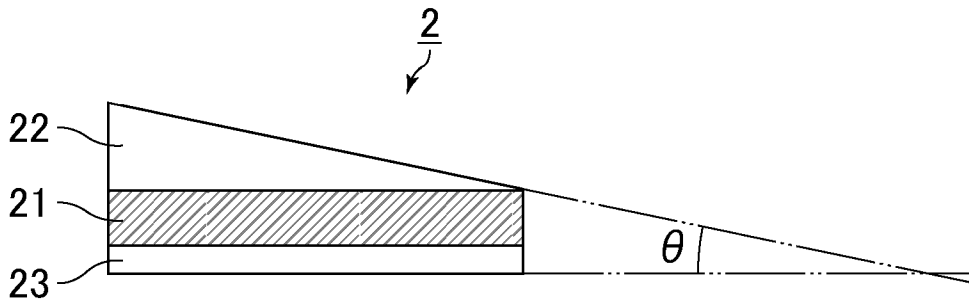
- [請求項1] 熱可塑性樹脂と、ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体とを含有する発光層を有する合わせガラス用中間膜であって、前記発光層に含まれるカリウム、ナトリウム及びマグネシウムの合計の含有量が50ppm以下であることを特徴とする合わせガラス用中間膜。
- [請求項2] ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体は、ハロゲン原子を含む二座配位子を有するランタノイド錯体又はハロゲン原子を含む三座配位子を有するランタノイド錯体であることを特徴とする請求項1記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項3] 発光層に含まれるマグネシウムの合計の含有量が40ppm以下であることを特徴とする請求項1又は2記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項4] ハロゲン原子は、フッ素原子であることを特徴とする請求項1、2又は3記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項5] 発光層は、ハロゲン原子を含むアセチルアセトン骨格を有する二座配位子を有するランタノイド錯体を含むことを特徴とする請求項1、2、3又は4記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項6] 請求項1、2、3、4又は5記載の合わせガラス用中間膜が、2枚の透明板の間に積層されていることを特徴とする合わせガラス。
- [請求項7] 熱可塑性樹脂と、ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体とを含む発光層と、  
熱可塑性樹脂と、アルカリ金属塩、アルカリ土類金属塩及びマグネシウム塩からなる群から選択された少なくとも1種の金属塩とを含む接着層とを有し、  
前記発光層に含まれるアルカリ金属、アルカリ土類金属及びマグネシウムの合計の含有量が、前記接着層に含まれるアルカリ金属、アルカリ土類金属及びマグネシウムの合計の含有量よりも少ないことを特徴とする合わせガラス用中間膜。

- [請求項8] ハロゲン原子を含む多座配位子を有するランタノイド錯体は、ハロゲン原子を含む二座配位子を有するランタノイド錯体又はハロゲン原子を含む三座配位子を有するランタノイド錯体であることを特徴とする請求項7記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項9] 発光層に含まれるナトリウム、カリウム及びマグネシウムの合計の含有量が、接着層に含まれるナトリウム、カリウム及びマグネシウムの合計の含有量よりも少ないことを特徴とする請求項8記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項10] 発光層に含まれるマグネシウムの含有量が40ppm以下であることを特徴とする請求項8又は9記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項11] ハロゲン原子は、フッ素原子であることを特徴とする請求項8、9又は10記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項12] 発光層は、ハロゲン原子を含みアセチルアセトン骨格を有する二座配位子を有するランタノイド錯体を含むことを特徴とする請求項8、9、10又は11記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項13] 請求項8、9、10、11又は12記載の合わせガラス用中間膜が、2枚の透明板の間に積層されていることを特徴とする合わせガラス。

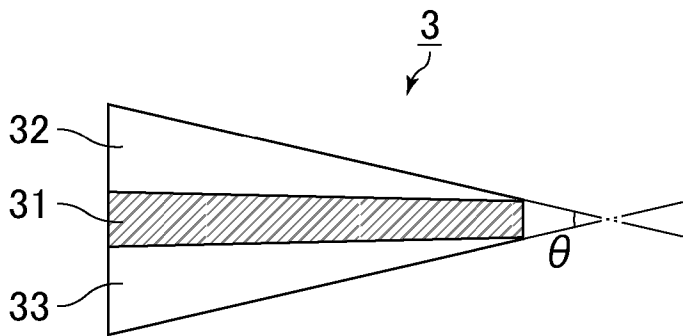
[図1]



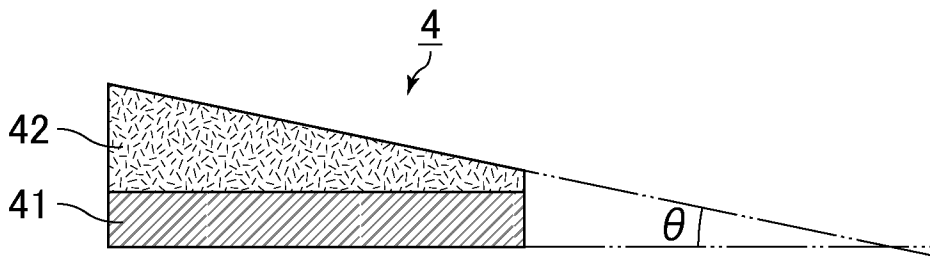
[図2]



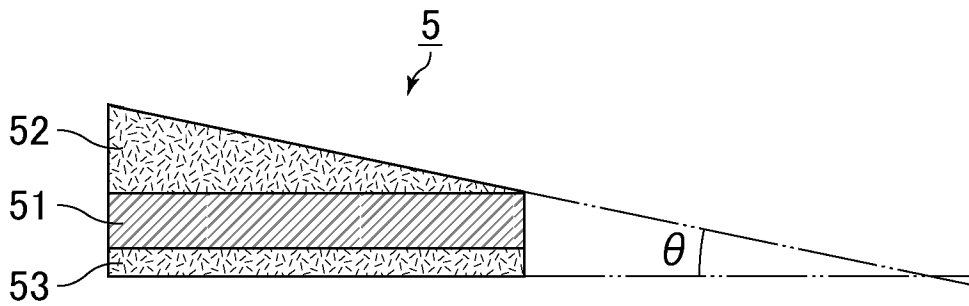
[図3]



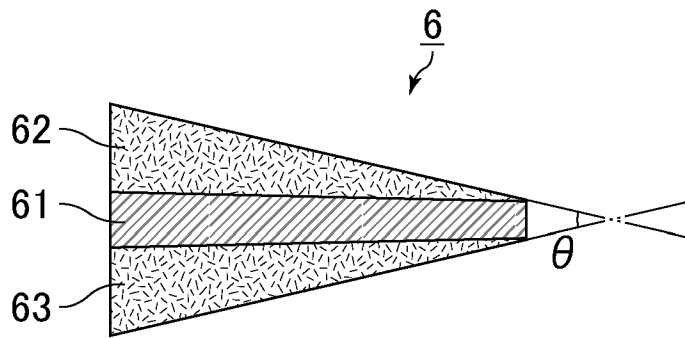
[図4]



[図5]



[図6]



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/072004

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C03C27/12(2006.01)i, B32B27/18(2006.01)i, B60J1/00(2006.01)i, C08K5/07(2006.01)i, C08L101/00(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)

C03C27/00-27/12, B32B27/18, B60J1/00, C08K5/07, C08L101/00

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	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

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	JP 5503089 B1 (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 28 May 2014 (28.05.2014), claims & US 2015/0251385 A claims & JP 2014-144912 A & JP 5503090 B & JP 2014-111543 A & US 2015/0258752 A & WO 2014/051139 A1 & EP 2902371 A & EP 2902373 A & CN 104411652 A & CN 104661979 A	1-13
P, A	WO 2015/046541 A1 (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 02 April 2015 (02.04.2015), claims (Family: none)	1-13

 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

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
22 October 2015 (22.10.15)Date of mailing of the international search report  
02 November 2015 (02.11.15)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/JP2015/072004

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
E, A	JP 2015-147725 A (Kuraray Europe GmbH), 20 August 2015 (20.08.2015), paragraphs [0055] to [0059] & US 2015/0217547 A1 paragraphs [0066] to [0070] & EP 2905127 A & EP 2905130 A & CN 104816521 A	1-13

<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, B32B27/18(2006.01)i, B60J1/00(2006.01)i, C08K5/07(2006.01)i, C08L101/00(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. C03C27/00-27/12, B32B27/18, B60J1/00, C08K5/07, C08L101/00</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> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2015年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2015年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2015年</td> </tr> </table>			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2015年	日本国実用新案登録公報	1996-2015年	日本国登録実用新案公報	1994-2015年		
日本国実用新案公報	1922-1996年											
日本国公開実用新案公報	1971-2015年											
日本国実用新案登録公報	1996-2015年											
日本国登録実用新案公報	1994-2015年											
<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> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>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</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>A</td> <td>JP 5503089 B1 (積水化学工業株式会社) 2014.05.28, 特許請求の範囲 &amp; US 2015/0251385 A Claims &amp; JP 2014-144912 A &amp; JP 5503090 B &amp; JP 2014-111543 A &amp; US 2015/0258752 A &amp; WO 2014/051139 A1 &amp; EP 2902371 A &amp; EP 2902373 A &amp; CN 104411652 A &amp; CN 104661979 A</td> <td>1-13</td> </tr> </tbody> </table>			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 5503089 B1 (積水化学工業株式会社) 2014.05.28, 特許請求の範囲 & US 2015/0251385 A Claims & JP 2014-144912 A & JP 5503090 B & JP 2014-111543 A & US 2015/0258752 A & WO 2014/051139 A1 & EP 2902371 A & EP 2902373 A & CN 104411652 A & CN 104661979 A	1-13				
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 5503089 B1 (積水化学工業株式会社) 2014.05.28, 特許請求の範囲 & US 2015/0251385 A Claims & JP 2014-144912 A & JP 5503090 B & JP 2014-111543 A & US 2015/0258752 A & WO 2014/051139 A1 & EP 2902371 A & EP 2902373 A & CN 104411652 A & CN 104661979 A	1-13										
<p><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>												
<p>* 引用文献のカテゴリー</p> <table border="0"> <tr> <td>「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの</td> <td>「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</td> </tr> <tr> <td>「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</td> <td>「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</td> </tr> <tr> <td>「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)</td> <td>「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</td> </tr> <tr> <td>「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td>「&amp;」 同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</td> <td></td> </tr> </table>			「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	「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	「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	「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	「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)	「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	「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」 同一パテントファミリー文献	「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	
「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	「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											
「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	「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											
「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)	「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											
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」 同一パテントファミリー文献											
「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>国際調査を完了した日</p> <p>22.10.2015</p>	<p>国際調査報告の発送日</p> <p>02.11.2015</p>											
<p>国際調査機関の名称及びあて先</p> <p>日本国特許庁 (ISA/J P)</p> <p>郵便番号100-8915</p> <p>東京都千代田区霞が関三丁目4番3号</p>	<p>特許庁審査官 (権限のある職員)</p> <p>立木 林</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3465</p>	<table border="1"> <tr> <td>4T</td> <td>4660</td> </tr> </table>	4T	4660								
4T	4660											

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
P, A	WO 2015/046541 A1 (積水化学工業株式会社) 2015.04.02, 請求の範囲 (ファミリーなし)	1-13
E, A	JP 2015-147725 A (クラレイ ユーロップ ゲゼルシャフト ミット ベシュレンクテル ハフツング) 2015.08.20, [0055]-[0059] & US 2015/0217547 A1 [0066]-[0070] & EP 2905127 A & EP 2905130 A & CN 104816521 A	1-13