

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2015-155376

(P2015-155376A)

(43) 公開日 平成27年8月27日(2015.8.27)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>C03C</b> 27/12 (2006.01)	C03C 27/12 D	4F100
<b>C08F</b> 16/38 (2006.01)	C08F 16/38	4G061
<b>B32B</b> 27/30 (2006.01)	B32B 27/30 102	4J100
<b>B32B</b> 17/10 (2006.01)	B32B 17/10	
<b>B60J</b> 1/00 (2006.01)	B60J 1/00 H	

審査請求 未請求 請求項の数 12 O L (全 45 頁)

(21) 出願番号 特願2015-103080 (P2015-103080)  
 (22) 出願日 平成27年5月20日 (2015.5.20)  
 (62) 分割の表示 特願2015-518697 (P2015-518697) の分割  
 原出願日 平成27年1月15日 (2015.1.15)  
 (31) 優先権主張番号 特願2014-5485 (P2014-5485)  
 (32) 優先日 平成26年1月15日 (2014.1.15)  
 (33) 優先権主張国 日本国(JP)

(71) 出願人 000002174  
 積水化学工業株式会社  
 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号  
 (74) 代理人 110001232  
 特許業務法人 宮▲崎▼・目次特許事務所  
 (72) 発明者 岩本 達矢  
 滋賀県甲賀市水口町泉1259 積水化学工業株式会社内  
 (72) 発明者 伊井 大三  
 滋賀県甲賀市水口町泉1259 積水化学工業株式会社内  
 (72) 発明者 内村 裕二  
 滋賀県甲賀市水口町泉1259 積水化学工業株式会社内

最終頁に続く

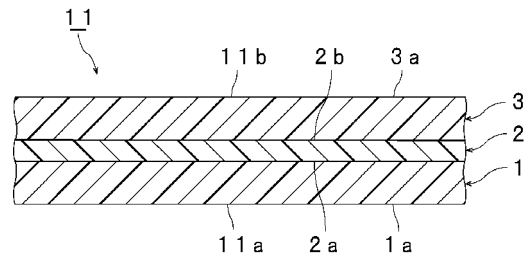
(54) 【発明の名称】 合わせガラス用中間膜及び合わせガラス

(57) 【要約】

【課題】 合わせガラスの曲げ剛性を高めることができる合わせガラス用中間膜を提供する。

【解決方法】 本発明に係る合わせガラス用中間膜は、1層の構造又は2層以上の構造を有し、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第1の層を備え、前記第1の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が  $250\text{ cm}^{-1}$  以下であり、かつ、前記第1の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する前記第1の層に含まれる前記可塑剤の含有量が5重量部以上、30重量部未満であるか、又は、前記第1の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が  $250\text{ cm}^{-1}$  を超える。

【選択図】 図1



**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

1層の構造又は2層以上の構造を有する合わせガラス用中間膜であって、  
ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第1の層を備え、  
前記第1の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ 以下であり、かつ、前記第1の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する前記第1の層に含まれる前記可塑剤の含有量が5重量部以上、30重量部未満であるか、又は、前記第1の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ を超える、合わせガラス用中間膜。

**【請求項 2】**

前記第1の層を、中間膜における表面層として備える、請求項1に記載の合わせガラス用中間膜。

**【請求項 3】**

2層以上の構造を有する合わせガラス用中間膜であって、  
ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第2の層をさらに備え、  
前記第2の層の第1の表面側に、前記第1の層が配置されている、請求項1又は2に記載の合わせガラス用中間膜。

**【請求項 4】**

3層以上の構造を有する合わせガラス用中間膜であって、  
ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第3の層をさらに備え、  
前記第3の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ 以下であり、かつ、前記第3の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する前記第3の層に含まれる前記可塑剤の含有量が5重量部以上、30重量部未満であるか、又は、前記第3の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ を超え、  
前記第2の層の前記第1の表面側とは反対の第2の表面側に、前記第3の層が配置されている、請求項3に記載の合わせガラス用中間膜。

**【請求項 5】**

前記第3の層を、中間膜における表面層として備える、請求項4に記載の合わせガラス用中間膜。

**【請求項 6】**

前記第2の層に含まれる前記可塑剤の含有量は、前記第2の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、55重量部以上である、請求項3～5のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。

**【請求項 7】**

合わせガラス用中間膜の厚みをTとしたときに、前記第2の層の厚みは $0.0625T$ 以上、 $0.375T$ 以下である、請求項3～6のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。

**【請求項 8】**

前記第1の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ を超える、請求項1～7のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。

**【請求項 9】**

前記第1の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ 以下であり、かつ、前記第1の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する前記第1の層に含まれる前記可塑剤の含有量が5重量部以上、30重量部未満である、請求項1～7のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。

**【請求項 10】**

厚みが1mm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、請求項1～9のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。

10

20

30

40

50

## 【請求項 1 1】

厚みが 1 mm 以下である第 1 のガラス板と厚みが 1 mm 以下である第 2 のガラス板とを用いて、前記第 1 のガラス板と前記第 2 のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられる、請求項 1 0 に記載の合わせガラス用中間膜。

## 【請求項 1 2】

第 1 のガラス板と、

第 2 のガラス板と、

請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項に記載の合わせガラス用中間膜とを備え、

前記第 1 のガラス板と前記第 2 のガラス板との間に、前記合わせガラス用中間膜が配置されている、合わせガラス。

10

## 【請求項 1 3】

前記第 1 のガラス板の厚みが 1 mm 以下である、請求項 1 2 に記載の合わせガラス。

## 【請求項 1 4】

前記第 2 のガラス板の厚みが 1 mm 以下である、請求項 1 3 に記載の合わせガラス。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0 0 0 1】

本発明は、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に関する。また、本発明は、上記合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスに関する。

## 【背景技術】

20

## 【0 0 0 2】

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。上記合わせガラスは、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。

## 【0 0 0 3】

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。

## 【0 0 0 4】

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。

30

## 【0 0 0 5】

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。

40

## 【0 0 0 6】

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 4.0 mm 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。

## 【先行技術文献】

## 【特許文献】

## 【0 0 0 7】

【特許文献 1】特開 2007 - 070200 号公報

【特許文献 2】US 2013 / 0236711 A 1

## 【発明の概要】

50

**【発明が解決しようとする課題】****【0008】**

特許文献1, 2に記載のような従来の中間膜を用いた合わせガラスでは、曲げ剛性が低いことがある。このため、例えば合わせガラスが自動車のサイドドアに使用される場合、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ガラスの開閉に支障をきたすことがある。

**【0009】**

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。

10

**【0010】**

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。

**【0011】**

本発明の目的は、合わせガラスの曲げ剛性を高めることができる合わせガラス用中間膜を提供することである。また、本発明は、上記合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスを提供することも目的とする。

20

**【課題を解決するための手段】****【0012】**

本発明の広い局面によれば、1層の構造又は2層以上の構造を有する合わせガラス用中間膜であって、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第1の層を備え、前記第1の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ 以下であり、かつ、前記第1の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する前記第1の層に含まれる前記可塑剤の含有量が5重量部以上、30重量部未満であるか、又は、前記第1の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ を超える、合わせガラス用中間膜が提供される。

30

**【0013】**

本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記中間膜は、前記第1の層を、中間膜における表面層として備える。

**【0014】**

本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記中間膜は、2層以上の構造を有する合わせガラス用中間膜であって、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第2の層をさらに備え、前記第2の層の第1の表面側に、前記第1の層が配置されている。

**【0015】**

本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記中間膜は、3層以上の構造を有する合わせガラス用中間膜であって、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第3の層をさらに備え、前記第3の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ 以下であり、かつ、前記第3の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する前記第3の層に含まれる前記可塑剤の含有量が5重量部以上、30重量部未満であるか、又は、前記第3の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ を超え、前記第2の層の前記第1の表面側とは反対の第2の表面側に、前記第3の層が配置されている。

40

**【0016】**

本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記中間膜は、前記第3の層を、中間膜における表面層として備える。

50

## 【0017】

本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記第2の層に含まれる前記可塑剤の含有量は、前記第2の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、55重量部以上である。

## 【0018】

本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、合わせガラス用中間膜の厚みをTとしたときに、前記第2の層の厚みは0.0625T以上、0.375T以下である。

## 【0019】

本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記第1の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ を超える。

10

## 【0020】

本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記第1の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ 以下であり、かつ、前記第1の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する前記第1の層に含まれる前記可塑剤の含有量が5重量部以上、30重量部未満である。

## 【0021】

本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記中間膜は、厚みが1mm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。

20

## 【0022】

本発明に係る合わせガラス用中間膜のある特定の局面では、前記中間膜は、厚みが1mm以下である第1のガラス板と厚みが1mm以下である第2のガラス板とを用いて、前記第1のガラス板と前記第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられる。

## 【0023】

本発明の広い局面によれば、第1のガラス板と、第2のガラス板と、上述した合わせガラス用中間膜とを備え、前記第1のガラス板と前記第2のガラス板との間に、前記合わせガラス用中間膜が配置されている、合わせガラスが提供される。

## 【0024】

本発明に係る合わせガラスのある特定の局面では、前記第1のガラス板の厚みが1mm以下である。

30

## 【0025】

本発明に係る合わせガラスのある特定の局面では、前記第2のガラス板の厚みが1mm以下である。

## 【発明の効果】

## 【0026】

本発明に係る合わせガラス用中間膜は、1層の構造又は2層以上の構造を有し、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第1の層を備え、上記第1の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ 以下であり、かつ、上記第1の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記第1の層に含まれる上記可塑剤の含有量が5重量部以上、30重量部未満であるか、又は、上記第1の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ を超えるので、中間膜を用いた合わせガラスの曲げ剛性を高めることができる。

40

## 【図面の簡単な説明】

## 【0027】

【図1】図1は、本発明の第1の実施形態に係る合わせガラス用中間膜を模式的に示す断面図である。

【図2】図2は、本発明の第2の実施形態に係る合わせガラス用中間膜を模式的に示す断面図である。

50

【図3】図3は、図1に示す合わせガラス用中間膜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に示す合わせガラス用中間膜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】

【0028】

以下、本発明を詳細に説明する。

【0029】

本発明に係る合わせガラス用中間膜（本明細書において、「中間膜」と略記することがある）は、1層の構造又は2層以上の構造を有する。本発明に係る中間膜は、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。本発明に係る中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第1の層を備える。本発明に係る中間膜は、第1の層のみを備える単層の中間膜であってもよく、第1の層と他の層とを備える多層の中間膜であってもよい。

10

【0030】

本発明に係る中間膜では、（構成（1））上記第1の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ 以下であり、かつ、上記第1の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記第1の層に含まれる上記可塑剤の含有量が5重量部以上、30重量部未満であるか、又は、（構成（2））上記第1の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ を超える。本発明に係る中間膜では、上記第1の層が、上記の構成（1）を備えることが好ましく、上記の構成（2）を備えることも好ましい。中でも、上記の構成（2）がより好ましい。

20

【0031】

本発明に係る中間膜では、上記の構成が備えられているので、中間膜を用いた合わせガラスの曲げ剛性を高めることができる。また、合わせガラスを得るために、中間膜は、第1のガラス板と第2のガラス板との間に配置される。第1のガラス板の厚みが薄くても、本発明に係る中間膜の使用により、合わせガラスの曲げ剛性を十分に高くすることができる。また、第1のガラス板と第2のガラス板との双方の厚みが薄くても、本発明に係る中間膜の使用により、合わせガラスの曲げ剛性を十分に高くすることができる。

30

【0032】

上記中間膜は、2層以上の構造を有していてもよく、第1の層に加えて第2の層を備えていてもよい。上記中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第2の層をさらに備えることが好ましい。上記中間膜が上記第2の層を備える場合に、上記第2の層の第1の表面側に、上記第1の層が配置される。

【0033】

中間膜が後述する第3の層を備えていない場合や、中間膜が第1の層と第2の層との2層の構造を有する場合などに、上記第2の層は、（構成（1'））上記第2の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ 以下であり、かつ、上記第2の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記第2の層に含まれる上記可塑剤の含有量が5重量部以上、30重量部未満であるか、又は、（構成（2'））上記第2の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ を超えることが好ましい。上記第2の層が、上記の構成（1'）を備えることが好ましく、上記の構成（2'）を備えることも好ましい。中間膜が後述する第3の層を備える場合には特に、上記第2の層は、上記の構成（1'）を備えていなくてもよく、上記の（2'）を備えていなくてもよい。

40

【0034】

上記中間膜は、3層以上の構造を有していてもよく、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。上記中間膜は、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有

50

する第3の層をさらに備えることが好ましい。上記中間膜が上記第2の層及び上記第3の層を備える場合に、上記第2の層の上記第1の表面側とは反対の第2の表面側に、上記第3の層が配置される。

【0035】

上記第3の層は、(構成(1'))上記第3の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ 以下であり、かつ、上記第3の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記第3の層に含まれる上記可塑剤の含有量が5重量部以上、30重量部未満であるか、又は、(構成(2'))上記第3の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ を超えることが好ましい。上記第3の層が、上記の構成(1')を備えることが好ましく、上記の構成(2')を備えることも好ましい。

10

【0036】

合わせガラスの曲げ剛性をより一層高める観点からは、上記中間膜は、上記第1の層を、中間膜における表面層として備えることが好ましい。上記中間膜は、上記第2の層を、中間膜における表面層として備えていてもよい。合わせガラスの曲げ剛性をより一層高める観点からは、上記中間膜は、上記第3の層を、中間膜における表面層として備えることが好ましい。上記中間膜は、上記第1の層と上記第3の層とをそれぞれ、中間膜における表面層として備えることが好ましい。

【0037】

上記第1の層の上記第2の層側とは反対の表面は、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1の層に積層されるガラス板の厚みは1mm以下であることが好ましい。上記第2の層の上記第1の層側とは反対の表面(第2の表面)は、ガラス板が積層される表面であってもよい。上記第2の層に積層されるガラス板の厚みは1mm以下であることが好ましい。上記第3の層の上記第2の層側とは反対の表面は、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1mm以下であることが好ましい。

20

【0038】

合わせガラスの曲げ剛性をより一層高める観点からは、上記構成(1)においては、上記第1の層に含まれるポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅は好ましくは $160\text{ cm}^{-1}$ 以上、より好ましくは $180\text{ cm}^{-1}$ 以上、より一層好ましくは $200\text{ cm}^{-1}$ 以上、更に好ましくは $220\text{ cm}^{-1}$ 以上、更に一層好ましくは $240\text{ cm}^{-1}$ 以上である。

30

【0039】

合わせガラスの曲げ剛性をより一層高める観点からは、上記構成(2)においては、上記第1の層に含まれるポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅は好ましくは $251\text{ cm}^{-1}$ 以上、より一層好ましくは $255\text{ cm}^{-1}$ 以上、更に好ましくは $270\text{ cm}^{-1}$ 以上である。上記第1の層に含まれるポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅の上限は特に限定されない。上記第1の層に含まれるポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅は、 $300\text{ cm}^{-1}$ 以下であってもよい。

【0040】

合わせガラスの曲げ剛性をより一層高める観点からは、上記構成(1')においては、上記第2の層に含まれるポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅は好ましくは $160\text{ cm}^{-1}$ 以上、より好ましくは $180\text{ cm}^{-1}$ 以上、より一層好ましくは $200\text{ cm}^{-1}$ 以上、更に好ましくは $220\text{ cm}^{-1}$ 以上、更に一層好ましくは $240\text{ cm}^{-1}$ 以上である。

40

【0041】

合わせガラスの曲げ剛性をより一層高める観点からは、上記構成(2')においては、上記第2の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅は好ましくは $251\text{ cm}^{-1}$ 以上、より一層好ましくは $255\text{ cm}^{-1}$ 以上、更に好ましくは $270\text{ cm}^{-1}$ 以上である。上記第2の層に含まれるポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅の

50

上限は特に限定されない。上記第2の層に含まれるポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅は、 $300\text{ cm}^{-1}$ 以下であってもよい。

【0042】

合わせガラスの曲げ剛性をより一層高める観点からは、上記構成(1')においては、上記第3の層に含まれるポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅は好ましくは $160\text{ cm}^{-1}$ 以上、より好ましくは $180\text{ cm}^{-1}$ 以上、より一層好ましくは $200\text{ cm}^{-1}$ 以上、更に好ましくは $220\text{ cm}^{-1}$ 以上、更に一層好ましくは $240\text{ cm}^{-1}$ 以上である。

【0043】

合わせガラスの曲げ剛性をより一層高める観点からは、上記構成(2')においては、上記第3の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅は好ましくは $251\text{ cm}^{-1}$ 以上、より一層好ましくは $255\text{ cm}^{-1}$ 以上、更に好ましくは $270\text{ cm}^{-1}$ 以上である。上記第3の層に含まれるポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅の上限は特に限定されない。上記第3の層に含まれるポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅は、 $300\text{ cm}^{-1}$ 以下であってもよい。

10

【0044】

上記半値幅は水素結合の強さを表す。水素結合力は、水酸基の含有率と、水酸基の並び方とに影響を受ける。水素結合力は、水酸基の含有率のみによっては決まらない。水酸基の並び方に影響を与える1つの要因としては、ポリビニルアセタール樹脂の合成時の熟成温度が挙げられる。例えば、得られるポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率が同じでも、ポリビニルアセタール樹脂の合成時の熟成温度を高くすれば、水素結合力が高くなるように水酸基が並んで、水酸基の半値幅が大きくなる。

20

【0045】

上記半値幅は、後述する実施例等の評価欄に記載の方法に従って、評価することができる。

【0046】

中間膜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、上記中間膜は、厚みが $1\text{ mm}$ 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好適に用いられる。中間膜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、上記中間膜は、厚みが $1\text{ mm}$ 以下である第1のガラス板と厚みが $1\text{ mm}$ 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より好適に用いられる。

30

【0047】

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。

【0048】

図1に、本発明の第1の実施形態に係る合わせガラス用中間膜を模式的に断面図で示す。

【0049】

図1に示す中間膜11は、2層以上の構造を有する多層の中間膜である。中間膜11は、合わせガラスを得るために用いられる。中間膜11は、合わせガラス用中間膜である。中間膜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2の層2の第1の表面2aに、第1の層1が配置されており、積層されている。第2の層2の第1の表面2aとは反対の第2の表面2bに、第3の層3が配置されており、積層されている。第2の層2は中間層である。第1の層1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2の層2は、第1の層1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、中間膜11は、第1の層1と第2の層2と第3の層3とがこの順で積層された多層構造(第1の層1/第2の層2/第3の層3)を有する。

40

【0050】

なお、第1の層1と第2の層2との間、及び、第2の層2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1の層1と第2の層2、及び、第2の層2と第

50

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。

【0051】

第1の層1は、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む。第1の層1は、上記の構成(1)又は上記の構成(2)を備える。第2の層2は、ポリビニルアセタール樹脂を含むことが好ましく、可塑剤を含むことが好ましい。第3の層3は、ポリビニルアセタール樹脂を含むことが好ましく、可塑剤を含むことが好ましい。

【0052】

図2に、本発明の第2の実施形態に係る合わせガラス用中間膜を模式的に断面図で示す。

10

【0053】

図2に示す中間膜11Aは、1層の構造を有する単層の中間膜である。中間膜11Aは、第1の層である。中間膜11Aは、合わせガラスを得るために用いられる。中間膜11Aは、合わせガラス用中間膜である。

【0054】

中間膜11A(第1の層)は、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含む。中間膜11Aは、上記の構成(1)又は上記の構成(2)を備える。

【0055】

以下、本発明に係る中間膜を構成する上記第1の層(単層の中間膜を含む)、上記第2の層及び上記第3の層の詳細、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詳細を説明する。

20

【0056】

(ポリビニルアセタール樹脂又は熱可塑性樹脂)

上記第1の層(単層の中間膜を含む)は、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。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い。上記ポリビニルアセタール樹脂(1)と上記ポリビニルアセタール樹脂(2)と上記ポリビニルアセタール樹脂(3)とは、同一であってもよく、異なってもよい。上記ポリビニルアセタール樹脂(1)、上記ポリビニルアセタール樹脂(2)及び上記ポリビニルアセタール樹脂(3)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。上記熱可塑性樹脂(2)と上記熱可塑性樹脂(3)とは、同一であってもよく、異なってもよい。上記熱可塑性樹脂(2)及び上記熱可塑性樹脂(3)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。

30

【0057】

上記熱可塑性樹脂としては、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。

40

【0058】

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。

【0059】

上記ポリビニルアルコールの平均重合度は、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

50

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、中間膜の成形が容易になる。

【0060】

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。

【0061】

上記ポリビニルアセタール樹脂に含まれるアセタール基の炭素数は特に限定されない。上記ポリビニルアセタール樹脂を製造する際に用いるアルデヒドは特に限定されない。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3～5であることが好ましく、3又は4であることが好ましい。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が3以上であると、中間膜のガラス転移温度が十分に低くなる。

【0062】

上記アルデヒドは特に限定されない。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。なかでも、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、プロピオンアルデヒド、n-ブチルアルデヒド又はイソブチルアルデヒドがより好ましく、n-ブチ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。

【0063】

上記ポリビニルアセタール樹脂(2)の水酸基の含有率(水酸基量)は、好ましくは17モル%以上、より好ましくは20モル%以上、更に好ましくは22モル%以上、好ましくは30モル%以下、より好ましくは27モル%未満、更に好ましくは25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、中間膜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)の水酸基の含有率が20モル%以上であると反応効率が高く生産性に優れ、また27モル%未満であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。また、上記水酸基の含有率が上記上限以下であると、中間膜の柔軟性が高くなり、中間膜の取扱いが容易になる。

【0064】

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樹脂(3)の水酸基の各含有率は、好ましくは25モル%以上、より好ましくは28モル%以上、更に好ましくは30モル%以上、特に好ましくは31モル%以上、好ましくは35モル%以下、より好ましくは34.5モル%以下、更に好ましくは32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、中間膜の接着力がより一層高くなる。また、上記水酸基の含有率が上記上限以下であると、中間膜の柔軟性が高くなり、中間膜の取扱いが容易になる。

【0065】

上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率は、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 K6726「ポリビニルアルコール試験方法」に準拠して、測定することにより求めることができる。

【0066】

上記ポリビニルアセタール樹脂(2)のアセチル化度(アセチル基量)は、好ましくは0.01モル%以上、より好ましくは0.1モル%以上、より一層好ましくは7モル%以上、更に好ましくは9モル%以上、好ましくは30モル%以下、より好ましくは25モル

10

20

30

40

50

%以下、更に好ましくは15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、ポリビニルアセタール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、中間膜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)のアセチル化度が0.1モル%以上、25モル%以下であると、耐貫通性に優れる。

**【0067】**

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、ポリビニルアセタール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、中間膜及び合わせガラスの耐湿性が高くなる。

10

**【0068】**

上記アセチル化度は、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で示した値である。上記アセター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。

**【0069】**

上記ポリビニルアセタール樹脂(2)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47モル%以上、より好ましくは60モル%以上、好ましくは80モル%以下、より好ましくは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、ポリビニルアセタール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。

20

**【0070】**

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67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、ポリビニルアセタール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。

30

**【0071】**

上記アセタール化度は、アセター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。上記アセタール化度は、JIS K6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法により、算出され得る。

**【0072】**

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 K6728「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 D1396-92 JIS K6728による測定を用いてもよい。ポリビニルアセタール樹脂がポリビニルブチラール樹脂である場合は、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 K6728「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。

40

**【0073】**

合わせガラスの耐貫通性をより一層良好にする観点からは、上記ポリビニルアセタール樹脂(2)は、アセチル化度(a)が8モル%以下であり、かつアセタール化度(a)が70モル%以上であるポリビニルアセタール樹脂(A)であるか、又はアセチル化度(b)が8モル%を超えるポリビニルアセタール樹脂(B)であることが好ましい。上記ポリビニルアセタール樹脂(1)は、上記ポリビニルアセタール樹脂(A)であってもよく、

50

上記ポリビニルアセタール樹脂 ( B ) であってもよい。上記ポリビニルアセタール樹脂 ( 2 ) は、上記ポリビニルアセタール樹脂 ( A ) であってもよく、上記ポリビニルアセタール樹脂 ( B ) であってもよい。

【 0 0 7 4 】

上記ポリビニルアセタール樹脂 ( A ) のアセチル化度 ( a ) は 8 モル % 以下、好ましくは 7 . 5 モル % 以下、より好ましくは 7 モル % 以下、更に好ましくは 6 . 5 モル % 以下、特に好ましくは 5 モル % 以下、好ましくは 0 . 1 モル % 以上、より好ましくは 0 . 5 モル % 以上、更に好ましくは 0 . 8 モル % 以上、特に好ましくは 1 モル % 以上である。上記アセチル化度 ( a ) が上記上限以下及び上記下限以上であると、可塑剤の移行を容易に制御でき、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。

10

【 0 0 7 5 】

上記ポリビニルアセタール樹脂 ( A ) のアセタール化度 ( a ) は 7 0 モル % 以上、好ましくは 7 0 . 5 モル % 以上、より好ましくは 7 1 モル % 以上、更に好ましくは 7 1 . 5 モル % 以上、特に好ましくは 7 2 モル % 以上、好ましくは 8 5 モル % 以下、より好ましくは 8 3 モル % 以下、更に好ましくは 8 1 モル % 以下、特に好ましくは 7 9 モル % 以下である。上記アセタール化度 ( a ) が上記下限以上であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。上記アセタール化度 ( a ) が上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂 ( A ) を製造するために必要な反応時間を短縮できる。

【 0 0 7 6 】

上記ポリビニルアセタール樹脂 ( A ) の水酸基の含有率 ( a ) は好ましくは 1 8 モル % 以上、より好ましくは 1 9 モル % 以上、更に好ましくは 2 0 モル % 以上、特に好ましくは 2 1 モル % 以上、好ましくは 3 1 モル % 以下、より好ましくは 3 0 モル % 以下、更に好ましくは 2 9 モル % 以下、特に好ましくは 2 8 モル % 以下である。上記水酸基の含有率 ( a ) が上記下限以上であると、上記第 2 の層の接着力がより一層高くなる。上記水酸基の含有率 ( a ) が上記上限以下であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。

20

【 0 0 7 7 】

上記ポリビニルアセタール樹脂 ( B ) のアセチル化度 ( b ) は、8 モル % を超え、好ましくは 9 モル % 以上、より好ましくは 9 . 5 モル % 以上、更に好ましくは 1 0 モル % 以上、特に好ましくは 1 0 . 5 モル % 以上、好ましくは 3 0 モル % 以下、より好ましくは 2 8 モル % 以下、更に好ましくは 2 6 モル % 以下、特に好ましくは 2 4 モル % 以下である。上記アセチル化度 ( b ) が上記下限以上であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。上記アセチル化度 ( b ) が上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂 ( B ) を製造するために必要な反応時間を短縮できる。

30

【 0 0 7 8 】

上記ポリビニルアセタール樹脂 ( B ) のアセタール化度 ( b ) は好ましくは 5 0 モル % 以上、より好ましくは 5 3 モル % 以上、更に好ましくは 5 5 モル % 以上、特に好ましくは 6 0 モル % 以上、好ましくは 8 0 モル % 以下、より好ましくは 7 8 モル % 以下、更に好ましくは 7 6 モル % 以下、特に好ましくは 7 4 モル % 以下である。上記アセタール化度 ( b ) が上記下限以上であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。上記アセタール化度 ( b ) が上記上限以下であると、ポリビニルアセタール樹脂 ( B ) を製造するために必要な反応時間を短縮できる。

40

【 0 0 7 9 】

上記ポリビニルアセタール樹脂 ( B ) の水酸基の含有率 ( b ) は好ましくは 1 8 モル % 以上、より好ましくは 1 9 モル % 以上、更に好ましくは 2 0 モル % 以上、特に好ましくは 2 1 モル % 以上、好ましくは 3 1 モル % 以下、より好ましくは 3 0 モル % 以下、更に好ましくは 2 9 モル % 以下、特に好ましくは 2 8 モル % 以下である。上記水酸基の含有率 ( b ) が上記下限以上であると、上記第 2 の層の接着力がより一層高くなる。上記水酸基の含有率 ( b ) が上記上限以下であると、合わせガラスの遮音性がより一層高くなる。

【 0 0 8 0 】

上記ポリビニルアセタール樹脂 ( A ) 及び上記ポリビニルアセタール樹脂 ( B ) はそれ

50

ぞれ、ポリビニルブチラール樹脂であることが好ましい。

【0081】

(可塑剤)

上記第1の層(単層の中間膜を含む)は、可塑剤(以下、可塑剤(1)と記載することがある)を含む。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。ポリビニルアセタール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(1)と上記可塑剤(2)と上記可塑剤(3)とは同一であってもよく、異なってもよい。上記可塑剤は、1

10

【0082】

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。なかでも、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。

【0083】

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。

20

【0084】

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。

【0085】

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ベート、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。

30

40

【0086】

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。

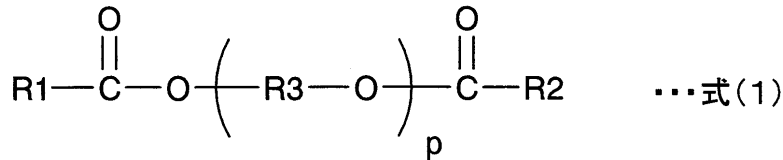
【0087】

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。

【0088】

50

## 【化 1】



## 【0089】

上記式(1)中、R1及びR2はそれぞれ、炭素数2～10の有機基を表し、R3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3～10の整数を表す。上記式(1)中のR1及びR2はそれぞれ、炭素数5～10の有機基であることが好ましく、炭素数6～10の有機基であることがより好ましい。

10

## 【0090】

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であることが好ましく、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-エチルブチレートである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であることが更に好ましい。

## 【0091】

上記第1の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ 以下である場合は、上記第1の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記第1の層に含まれる上記可塑剤の含有量は5重量部以上、30重量部未満である。上記第3の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ 以下である場合は、上記第3の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記第3の層に含まれる上記可塑剤の含有量は好ましくは5重量部以上、好ましくは30重量部未満である。上記可塑剤の含有量が5重量部以上、30重量部未満であると、合わせガラスの曲げ剛性を高めることができる。上記第1の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記第1の層に含まれる上記可塑剤の含有量、及び上記第3の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記第3の層に含まれる上記可塑剤の含有量はそれぞれ、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28重量部以下、より好ましくは26重量部以下、更に好ましくは24重量部以下である。上記可塑剤の含有量が上記下限以上であると、合わせガラス用中間膜の耐貫通性が高くなり、上記上限以下であると、合わせガラスの曲げ剛性をより一層高くすることができる。

20

30

## 【0092】

上記第1の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ を超える場合、上記第1の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記第1の層に含まれる上記可塑剤の含有量、及び上記第3の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記第3の層に含まれる上記可塑剤の含有量はそれぞれ、好ましくは10重量部以上、より好ましくは12重量部以上、更に好ましくは15重量部以上、特に好ましくは30重量部を超え、好ましくは35重量部以下、より好ましくは34重量部以下、更に好ましくは33重量部以下である。上記可塑剤の含有量が上記下限以上であると、合わせガラス用中間膜の耐貫通性が高くなり、上記上限以下であると、合わせガラスの曲げ剛性をより一層高くすることができる。

40

## 【0093】

合わせガラス用中間膜に特定の機能を付与するために、第2の層を第1の層及び第3の層よりも柔軟な層にすることがある。例えば、合わせガラス用中間膜に遮音性を付与するために、第2の層のガラス転移温度を、第1の層のガラス転移温度よりも低くしたり、第3の層のガラス転移温度よりも低くしたりすることがある。得られた合わせガラスの遮音性は向上するが、柔軟な層により、合わせガラスの曲げ剛性が低下してしまう。このよう

50

に合わせガラスの遮音性と剛性とを両立することは困難である。しかしながら、第1の層及び第3の層に含まれるポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ 以下であり、かつ、第1の層及び第3の層に含まれるポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する第1の層及び第3の層に含まれる可塑剤の含有量が5重量部以上、30重量部未満であるか、又は、第1の層及び第3の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ を超えるという構成により、合わせガラスの遮音性を維持しながら、剛性を高めることができる。

【0094】

上記第2の層に含まれる上記可塑剤の含有量は特に限定されない。上記第2の層に含まれる上記熱可塑性樹脂100重量部（熱可塑性樹脂がポリビニルアセタール樹脂である場合には、ポリビニルアセタール樹脂100重量部）に対する上記第2の層に含まれる上記可塑剤の含有量は、好ましくは50重量部を超え、より好ましくは55重量部以上、更に好ましくは60重量部以上、好ましくは100重量部以下、より好ましくは90重量部以下、更に好ましくは85重量部以下、特に好ましくは80重量部以下である。上記可塑剤の含有量が上記下限以上であると、合わせガラスの遮音性が向上し、上記可塑剤の含有量が上記上限以下であると、合わせガラスの耐貫通性が向上する。

10

【0095】

上記第2の層に含まれる上記熱可塑性樹脂100重量部（熱可塑性樹脂がポリビニルアセタール樹脂である場合には、ポリビニルアセタール樹脂100重量部）に対する上記第2の層に含まれる上記可塑剤の含有量は、上記第1の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記第1の層に含まれる上記可塑剤の含有量よりも、好ましくは21重量部以上多く、より好ましくは22重量部以上多く、更に好ましくは25重量部以上多い。上記第2の層に含まれる上記熱可塑性樹脂100重量部（熱可塑性樹脂がポリビニルアセタール樹脂である場合には、ポリビニルアセタール樹脂100重量部）に対する上記第2の層に含まれる上記可塑剤の含有量は、上記第3の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記第3の層に含まれる上記可塑剤の含有量よりも、好ましくは21重量部以上多く、より好ましくは22重量部以上多く、更に好ましくは25重量部以上多い。上記第2の層に含まれる上記可塑剤の含有量が多くても、第1の層及び第3の層に含まれるポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ 以下であり、かつ、第1の層及び第3の層に含まれるポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する第1の層及び第3の層に含まれる可塑剤の含有量が5重量部以上、30重量部未満であるか、又は、第1の層及び第3の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ を超えるという構成により、合わせガラスの遮音性を維持しながら、剛性を高めることができる。

20

30

【0096】

（遮熱性化合物）

上記中間膜は、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。

40

【0097】

成分X：

上記中間膜は、フタロシアニン化合物、ナフタ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。

【0098】

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、ナフタ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。

50

## 【0099】

上記成分Xとしては、フタロシアニン、フタロシアニンの誘導体、ナフタロシアニン、ナフタロシアニンの誘導体、アントラシアニン及びアントラシアニンの誘導体等が挙げられる。上記フタロシアニン化合物及び上記フタロシアニンの誘導体はそれぞれ、フタロシアニン骨格を有することが好ましい。上記ナフタロシアニン化合物及び上記ナフタロシアニンの誘導体はそれぞれ、ナフタロシアニン骨格を有することが好ましい。上記アントラシアニン化合物及び上記アントラシアニンの誘導体はそれぞれ、アントラシアニン骨格を有することが好ましい。

## 【0100】

中間膜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、ナフタロシアニン及びナフタ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。

10

## 【0101】

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。中間膜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。

20

## 【0102】

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、遮熱性が十分に高くなり、かつ可視光線透過率が十分に高くなる。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。

## 【0103】

遮熱粒子：

上記中間膜は、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。

30

## 【0104】

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。

40

## 【0105】

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。

## 【0106】

上記遮熱粒子の具体例としては、アルミニウムドーパ酸化錫粒子、インジウムドーパ酸化錫粒子、アンチモンドーパ酸化錫粒子（ATO粒子）、ガリウムドーパ酸化亜鉛粒子（GZO粒子）、インジウムドーパ酸化亜鉛粒子（IZO粒子）、アルミニウムドーパ酸化

50

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（LaB<sub>6</sub>）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。なかでも、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。

10

## 【0107】

上記酸化タングステン粒子は、下記式（X1）又は下記式（X2）で一般に表される。上記中間膜では、下記式（X1）又は下記式（X2）で表される酸化タングステン粒子が好適に用いられる。

## 【0108】



上記式（X1）において、Wはタングステン、Oは酸素を表し、y及びzは $2.0 < z/y < 3.0$ を満たす。

## 【0109】



上記式（X2）において、Mは、H、He、アルカリ金属、アルカリ土類金属、希土類元素、Mg、Zr、Cr、Mn、Fe、Ru、Co、Rh、Ir、Ni、Pd、Pt、Cu、Ag、Au、Zn、Cd、Al、Ga、In、Tl、Si、Ge、Sn、Pb、Sb、B、F、P、S、Se、Br、Te、Ti、Nb、V、Mo、Ta及びReからなる群から選択される少なくとも1種の元素、Wはタングステン、Oは酸素を表し、x、y及びzは、 $0.001 < x/y < 1$ 、及び $2.0 < z/y < 3.0$ を満たす。

20

## 【0110】

中間膜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。

30

## 【0111】

中間膜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。中間膜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。

## 【0112】

上記遮熱粒子の平均粒子径は好ましくは $0.01 \mu\text{m}$ 以上、より好ましくは $0.02 \mu\text{m}$ 以上、好ましくは $0.1 \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $0.05 \mu\text{m}$ 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。

40

## 【0113】

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。

## 【0114】

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

50

、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3.0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。

【0115】

上記遮熱粒子を含む層(第1の層、第2の層又は第3の層)は、上記遮熱粒子を0.1g/m<sup>2</sup>以上、12g/m<sup>2</sup>以下の割合で含有することが好ましい。上記遮熱粒子の割合が上記範囲内である場合には、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。上記遮熱粒子の割合は、好ましくは0.5g/m<sup>2</sup>以上、より好ましくは0.8g/m<sup>2</sup>以上、更に好ましくは1.5g/m<sup>2</sup>以上、特に好ましくは3g/m<sup>2</sup>以上、好ましくは11g/m<sup>2</sup>以下、より好ましくは10g/m<sup>2</sup>以下、更に好ましくは9g/m<sup>2</sup>以下、特に好ましくは7g/m<sup>2</sup>以下である。上記割合が上記下限以上であると、遮熱性がより一層高くなる。上記割合が上記上限以下であると、可視光線透過率がより一層高くなる。

10

【0116】

(金属塩)

上記中間膜は、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。上記金属塩Mの使用により、中間膜とガラス板との接着性又は中間膜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。

20

【0117】

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。中間膜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。

【0118】

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。

30

【0119】

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。

【0120】

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、中間膜とガラス板との接着性又は中間膜における各層間の接着性をより一層良好に制御できる。

40

【0121】

(紫外線遮蔽剤)

上記中間膜は、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、中間膜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。

50

## 【0122】

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。

## 【0123】

上記紫外線遮蔽剤としては、例えば、金属系紫外線遮蔽剤、金属酸化物系紫外線遮蔽剤、ベンゾトリアゾール系紫外線遮蔽剤、ベンゾフェノン系紫外線遮蔽剤、トリアジン系紫外線遮蔽剤、マロン酸エステル系紫外線遮蔽剤、シュウ酸アニリド系紫外線遮蔽剤及びベンゾエート系紫外線遮蔽剤等が挙げられる。

## 【0124】

上記金属系紫外線吸収剤としては、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。

10

## 【0125】

上記紫外線遮蔽剤は、好ましくはベンゾトリアゾール系紫外線遮蔽剤、ベンゾフェノン系紫外線遮蔽剤、トリアジン系紫外線遮蔽剤又はベンゾエート系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系紫外線遮蔽剤又はベンゾフェノン系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系紫外線吸収剤である。

## 【0126】

上記金属酸化物系紫外線吸収剤としては、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、上記金属酸化物系紫外線吸収剤に関して、表面が被覆されていてもよい。上記金属酸化物系紫外線吸収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。

20

## 【0127】

上記絶縁性金属酸化物としては、シリカ、アルミナ及びジルコニア等が挙げられる。上記絶縁性金属酸化物は、例えば5.0 eV以上のバンドギャップエネルギーを有する。

## 【0128】

上記ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤としては、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-t-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'-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」)、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」)等のベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤が挙げられる。紫外線を吸収する性能に優れることから、上記紫外線遮蔽剤はハロゲン原子を含むベンゾトリアゾール系紫外線吸収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系紫外線吸収剤であることがより好ましい。

30

## 【0129】

上記ベンゾフェノン系紫外線吸収剤としては、例えば、オクタベンゾン(BASF社製「Chimassorb 81」)等が挙げられる。

## 【0130】

上記トリアジン系紫外線吸収剤としては、例えば、ADEKA社製「LA-F70」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。

40

## 【0131】

上記マロン酸エステル系紫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。

## 【0132】

50

上記マロン酸エステル系紫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。

【0133】

上記シュウ酸アニリド系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-t-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 V S U」）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。

【0134】

上記ベンゾエート系紫外線吸収剤としては、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。

【0135】

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、中間膜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。

【0136】

（酸化防止剤）

上記中間膜は、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。

【0137】

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。

【0138】

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。

【0139】

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-（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

10

20

30

40

50

種以上が好適に用いられる。

【0140】

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、トリス(2,4-ジ-*t*-ブチルフェニル)ホスファイト、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。

10

【0141】

上記酸化防止剤の市販品としては、例えば住友化学工業社製「スミライザーBHT」、チバガイギー社製「イルガノックス1010」等が挙げられる。

【0142】

中間膜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、上記中間膜100重量%中又は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、上記中間膜100重量%中又は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。

20

【0143】

(他の成分)

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、難燃剤、帯電防止剤、顔料、染料、接着剤調整剤、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。

【0144】

(合わせガラス用中間膜の他の詳細)

合わせガラスの曲げ剛性をより一層高める観点からは、上記第1の層及び上記第3の層のガラス転移温度はそれぞれ、好ましくは31以上、より好ましくは33以上、より一層好ましくは35以上である。上記第1の層及び上記第3の層のガラス転移温度の上限は特に限定されない。中間膜の遮音性をより一層高める観点から、上記第1の層及び上記第3の層のガラス転移温度は60以下であってもよい。

30

【0145】

上記中間膜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、中間膜の厚みは、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。中間膜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。中間膜の厚みが上記上限以下であると、中間膜の透明性がより一層良好になる。

【0146】

中間膜の厚みをTとする。多層の中間膜の場合に、上記第2の層の厚みは、好ましくは0.0625T以上、より好ましくは0.1T以上、好ましくは0.375T以下、より好ましくは0.25T以下である。例えば、合わせガラス用中間膜に遮音性を付与するために、上記第2の層のガラス転移温度を上記第1の層及び第3の層のガラス転移温度よりも低くすることがある。具体的には、上記第2の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記第2の層に含まれる上記可塑剤の含有量が、上記第1の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記第1の層に含まれる上記可塑剤の含有量が多かたり、上記第2の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記第2の層に含まれる上記可塑剤の含有量が、上記第3の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する上記第3の層に含まれる上

40

50

記可塑剤の含有量が多かったりする場合、合わせガラスの曲げ剛性が低下する。第1の層に含まれるポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ 以下であり、かつ、第1の層に含まれるポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する第1の層に含まれる可塑剤の含有量が5重量部以上、30重量部未満であるか、又は、第1の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ を超えるという構成とすることに加え、上記第2の層の厚みを $0.0625\text{ T}$ 以上、 $0.375\text{ T}$ 以下とすることにより、合わせガラスの遮音性と剛性とをより一層高くすることができる。第1の層及び第3の層に含まれるポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ 以下であり、かつ、第1の層及び第3の層に含まれるポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する第1の層及び第3の層に含まれる可塑剤の含有量が5重量部以上、30重量部未満であるか、又は、第1の層及び第3の層に含まれる上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ を超えるという構成とすることに加え、上記第2の層の厚みを $0.0625\text{ T}$ 以上、 $0.375\text{ T}$ 以下とすることにより、合わせガラスの遮音性と剛性とをより一層高くすることができる。上記第2の層の厚みはより好ましくは $0.075$ 以上、更に好ましくは $0.09$ 以上、特に好ましくは $0.1$ 以上、より好ましくは $0.37$ 以下、更に好ましくは $0.33$ 以下、特に好ましくは $0.27$ 以下である。

**【0147】**

合わせガラスの剛性をより一層高くできることから、上記第2の層の最大厚みは、中間膜の最大厚みよりも小さいことが好ましく、 $100\text{ }\mu\text{m}$ 以上小さいことがより好ましく、 $300\text{ }\mu\text{m}$ 以上小さいことが更に好ましく、 $500\text{ }\mu\text{m}$ 以上小さいことが特に好ましい。

**【0148】**

上記第1の層及び上記第3の層の各厚みは、好ましくは $0.3125\text{ T}$ 以上、より好ましくは $0.375\text{ T}$ 以上、好ましくは $0.9375\text{ T}$ 以下、より好ましくは $0.9\text{ T}$ 以下である。上記第1の層及び上記第3の層の各厚みは、 $0.46875\text{ T}$ 以下であってもよく、 $0.45\text{ T}$ 以下であってもよい。また、上記第1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、合わせガラスの曲げ剛性がより一層高くなり、可塑剤のブリードアウトを抑制できる。

**【0149】**

合わせガラス用中間膜が1層の構造のみである場合、すなわち、上記第1の層のみである場合、合わせガラスの剛性がより一層高くなることから、上記第1の層の厚みは $760\text{ }\mu\text{m}$ 以上であることが好ましく、 $760\text{ }\mu\text{m}$ を超えることがより好ましく、 $800\text{ }\mu\text{m}$ を超えることが更に好ましく、 $1000\text{ }\mu\text{m}$ 以上であることが特に好ましく、 $1500\text{ }\mu\text{m}$ 以上であることが最も好ましい。

**【0150】**

上記第1の層及び上記第3の層の合計の厚みは、好ましくは $0.625\text{ T}$ 以上、より好ましくは $0.75\text{ T}$ 以上、好ましくは $0.9375\text{ T}$ 以下、より好ましくは $0.9\text{ T}$ 以下である。また、上記第1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、合わせガラスの曲げ剛性がより一層高くなり、可塑剤のブリードアウトを抑制できる。

**【0151】**

上記第1の層、上記第2の層、及び、上記第3の層の厚みを測定する方法としては、以下の方法が挙げられる。KEYENCE社製のデジタルマイクロスコープVHX-100を用いる。対物レンズとして25倍から175倍で倍率を選択できるレンズを使用し、倍率を175倍に設定する。エスエフシー社製の照明器である透過光BOX A3-3の上で、デジタルマイクロスコープによって中間膜の断面を観察する。中間膜の各層の厚みはVHXメインメニューの中の計測ツールの2点間計測を用いて測定する。中間膜の断面を観察する際には、鋭利な刃物で観察部分の断面を滑らかにトリムした上で観察を行うことが好ましい。

**【0152】**

本発明に係る中間膜の製造方法としては特に限定されない。本発明に係る中間膜の製造

10

20

30

40

50

方法としては、単層の中間膜の場合に、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。本発明に係る中間膜の製造方法としては、多層の中間膜の場合に、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。

【0153】

中間膜の製造効率が優れることから、上記第1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1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、  
10  
上記第1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。

【0154】

上記中間膜は、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。上記中間膜は、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、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。中でも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。

【0155】

(合わせガラス)

図3は、図1に示す合わせガラス用中間膜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。  
20

【0156】

図3に示す合わせガラス31は、第1のガラス板21と、第2のガラス板22と、中間膜11とを備える。中間膜11は、第1のガラス板21と第2のガラス板22との間に配置されており、挟み込まれている。

【0157】

中間膜11の第1の表面11aに、第1のガラス板21が積層されている。中間膜11の第1の表面11aとは反対の第2の表面11bに、第2のガラス板22が積層されている。第1の層1の外側の表面1aに第1のガラス板21が積層されている。第3の層3の外側の表面3aに第2のガラス板22が積層されている。  
30

【0158】

図4は、図2に示す合わせガラス用中間膜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4に示す合わせガラス31Aは、第1のガラス板21と、第2のガラス板22と、中間膜11Aとを備える。中間膜11Aは、第1のガラス板21と第2のガラス板22との間に配置されており、挟み込まれている。

【0160】

中間膜11Aの第1の表面11aに、第1のガラス板21が積層されている。中間膜11Aの第1の表面11aとは反対の第2の表面11bに、第2のガラス板22が積層されている。  
40

【0161】

このように、本発明に係る合わせガラスは、第1のガラス板と、第2のガラス板と、中間膜とを備えており、該中間膜が、本発明に係る合わせガラス用中間膜である。本発明に係る合わせガラスでは、上記第1のガラス板と上記第2のガラス板との間に、上記中間膜が配置されている。

【0162】

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  
50

ラス、網入り板ガラス、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。

【0163】

上記ガラス板の厚みは、好ましくは0.5mm以上、より好ましくは0.7mm以上、好ましくは5mm以下、より好ましくは3mm以下である。

【0164】

本発明に係る中間膜の使用により、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2mm以下、より好ましくは1.8mm以下、より一層好ましくは1.5mm以下、更に好ましくは1mm以下、更に一層好ましくは0.8mm以下、特に好ましくは0.7mm以下である。

【0165】

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のガラス板と上記第2のガラス板との間に、中間膜を挟んで、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のガラス板と上記第2のガラス板と中間膜との間に残留する空気を脱気する。その後、約70~110 で予備接着して積層体を得る。次に、積層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。

【0166】

上記中間膜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。上記中間膜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。上記中間膜及び上記合わせガラスは、車両用又は建築用の中間膜及び合わせガラスであることが好ましく、車両用の中間膜及び合わせガラスであることがより好ましい。上記中間膜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。上記中間膜及び上記合わせガラスは、自動車に好適に用いられる。上記中間膜は、自動車の合わせガラスを得るために用いられる。

【0167】

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。

【0168】

以下の材料を用意した。

【0169】

(ポリビニルアセタール樹脂)

以下の実施例及び比較例で用いたポリビニルブチラール(PVB)樹脂に関しては、ブチラール化度(アセタール化度)、アセチル化度及び水酸基の含有率はJIS K6728「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した。なお、ASTM D1396-92により測定した場合も、JIS K6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法と同様の数値を示した。

【0170】

(合成例1)

ポリビニルアセタール樹脂Aの合成：

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水2700ml、平均重合度1700、けん化度99.1mol%のポリビニルアルコールを300gを入れ、攪拌しながら加熱溶解し、溶液を得た。次に、この溶液に触媒として35.5重量%塩酸21gを添加し、温度を17 に調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド154gを添加したところ、白色

粒子状のポリビニルブチラール樹脂が析出した。析出してから20分後に、35.5重量%塩酸172gを添加し、60に加熱し、66で2時間熟成させた。次いで、溶液を冷却し、中和した後、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルアセタール樹脂Aを得た。

【0171】

得られたポリビニルアセタール樹脂Aに関しては、ポリビニルアルコール(PVA)の平均重合度1700、水酸基の含有率34.4モル%、アセチル化度0.8モル%、アセタール化度(ブチラール化度)64.8モル%、半値幅 $274.8\text{ cm}^{-1}$ )であった。

【0172】

(合成例2)

ポリビニルアセタール樹脂Bの合成：

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水2700ml、平均重合度1700、けん化度99.1モル%のポリビニルアルコールを300gを入れ、攪拌しながら加熱溶解し、溶液を得た。次に、この溶液に触媒として35.5重量%塩酸21gを添加し、温度を17に調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド165gを添加したところ、白色粒子状のポリビニルブチラール樹脂が析出した。析出してから20分後に、35.5重量%塩酸240gを添加し、55に加熱し、58で2時間熟成させた。次いで、溶液を冷却し、中和した後、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルアセタール樹脂Bを得た。

【0173】

得られたポリビニルアセタール樹脂Bに関しては、ポリビニルアルコール(PVA)の平均重合度1700、水酸基の含有率30.0モル%、アセチル化度0.9モル%、アセタール化度(ブチラール化度)69.1モル%、半値幅 $239.3\text{ cm}^{-1}$ )であった。

【0174】

(合成例3)

ポリビニルアセタール樹脂Xの合成：

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水3290ml、平均重合度2300、けん化度87.3モル%のポリビニルアルコールを300gを入れ、攪拌しながら加熱溶解し、溶液を得た。次に、この溶液に触媒として35.5重量%塩酸74gを添加し、温度を12に調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド183gを添加したところ、白色粒子状のポリビニルブチラール樹脂が析出した。析出してから20分後に、35.5重量%塩酸277gを添加し、51に加熱し、56で3時間熟成させた。次いで、溶液を冷却し、中和した後、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルアセタール樹脂Xを得た。

【0175】

得られたポリビニルアセタール樹脂Xに関しては、ポリビニルブチラール(PVB)樹脂、ポリビニルアルコール(PVA)の平均重合度2300、水酸基の含有率22.7モル%、アセチル化度12.1モル%、アセタール化度(ブチラール化度)65.2モル%、半値幅 $164.9\text{ cm}^{-1}$ )であった。

【0176】

(合成例4)

ポリビニルアセタール樹脂Cの合成：

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水2700ml、平均重合度1700、けん化度99.1モル%のポリビニルアルコールを300gを入れ、攪拌しながら加熱溶解し、溶液を得た。次に、この溶液に触媒として35.5重量%塩酸を21g添加し、温度を14に調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド154gを添加したところ、白色粒子状のポリビニルブチラール樹脂が析出した。析出してから20分後に、35.5重量%塩酸を134g添加し、55に加熱し、60で2.0時間熟成させた。次いで、溶液を冷却し、中和した後、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルアセタール樹脂Cを得た。

10

20

30

40

50

## 【0177】

得られたポリビニルアセタール樹脂 C に関しては、ポリビニルアルコール (PVA) の平均重合度 1700、水酸基の含有率 35 モル%、アセチル化度 0.8 モル%、アセタール化度 (ブチラール化度) 64.2 モル%、半値幅  $251 \text{ cm}^{-1}$  ) であった。

## 【0178】

(合成例 5)

ポリビニルアセタール樹脂 D の合成 :

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水 2500 ml、平均重合度 1700、けん化度 99.1 モル% のポリビニルアルコールを 300 g を入れ、攪拌しながら加熱溶解し、溶液を得た。次に、この溶液に触媒として 60 重量% 硝酸を 22.6 g 添加し、温度を 14 に調整した後、攪拌しながら n-ブチルアルデヒド 169 g を添加したところ、白色粒子状のポリビニルブチラール樹脂が析出した。析出してから 20 分後に、60 重量% 硝酸を 86.3 g 添加し、50 に加熱し、55 で 3.0 時間熟成させた。次いで、溶液を冷却し、中和した後、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルアセタール樹脂 D を得た。

10

## 【0179】

得られたポリビニルアセタール樹脂 D に関しては、ポリビニルアルコール (PVA) の平均重合度 1700、水酸基の含有率 29.4 モル%、アセチル化度 0.9 モル%、アセタール化度 (ブチラール化度) 69.7 モル%、半値幅  $235.6 \text{ cm}^{-1}$  ) であった。

20

## 【0180】

(合成例 6)

ポリビニルアセタール樹脂 Y の合成 :

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水 3267 ml、平均重合度 3000、けん化度 88.2 モル% のポリビニルアルコール 300 g を入れ、攪拌しながら加熱溶解し、溶液を得た。次に、この溶液に触媒として 60 重量% 硝酸 47.3 g を添加し、温度を 10 に調整した後、攪拌しながら n-ブチルアルデヒド 187.1 g を添加したところ、白色粒子状のポリビニルブチラール樹脂が析出した。析出してから 20 分後に、60 重量% 硝酸 144 g を添加し、55 に加熱し、57.5 で 2 時間熟成させた。次いで、溶液を冷却し、中和した後、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルアセタール樹脂 Y を得た。

30

## 【0181】

(合成例 7)

ポリビニルアセタール樹脂 Z の合成 :

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水 3299 ml、平均重合度 3000、けん化度 88.2 モル% のポリビニルアルコール 300 g を入れ、攪拌しながら加熱溶解し、溶液を得た。次に、この溶液に触媒として 60 重量% 硝酸 47.3 g を添加し、温度を 10 に調整した後、攪拌しながら n-ブチルアルデヒド 171.3 g を添加したところ、白色粒子状のポリビニルブチラール樹脂が析出した。析出してから 20 分後に、60 重量% 硝酸 144 g を添加し、55 に加熱し、57.5 で 2 時間熟成させた。次いで、溶液を冷却し、中和した後、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルアセタール樹脂 Z を得た。

40

## 【0182】

(合成例 8)

ポリビニルアセタール樹脂 E (PVB 樹脂) の合成 :

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水 2700 ml、平均重合度 1700、けん化度 99.0 モル% のポリビニルアルコール 300 g を入れ、攪拌しながら加熱溶解し、溶液を得た。次に、この溶液に触媒として 35.5 重量% 塩酸 21 g を添加し、温度を 14 に調整した後、攪拌しながら n-ブチルアルデヒド 155 g を添加したところ、白色粒子状のポリビニルブチラール樹脂が析出した。析出してから 20 分後に、35.5 重量% 塩酸 172 g を添加し、60 に加熱し、66 で 2 時間熟成させた。次いで、溶液を冷

50

却し、中和した後、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルアセタール樹脂 E を得た。

【 0 1 8 3 】

( 合成例 9 )

ポリビニルアセタール樹脂 F ( P V B 樹脂 ) の合成 :

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水 2 7 0 0 m l 、平均重合度 1 7 0 0 、けん化度 9 9 . 0 モル % のポリビニルアルコール 3 0 0 g を入れ、攪拌しながら加熱溶解し、溶液を得た。次に、この溶液に触媒として 3 5 . 5 重量 % 塩酸 2 1 g を添加し、温度を 1 4 に調整した後、攪拌しながら n - ブチルアルデヒド 1 6 0 g を添加したところ、白色粒子状のポリビニルブチラール樹脂が析出した。析出してから 2 0 分後に、3 5 . 5 重量 % 塩酸 1 7 2 g を添加し、5 7 に加熱し、6 3 で 2 時間熟成させた。次いで、溶液を冷却し、中和した後、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルアセタール樹脂 F を得た。

10

【 0 1 8 4 】

( 合成例 1 0 )

ポリビニルアセタール樹脂 G ( P V B 樹脂 ) の合成 :

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水 2 7 0 0 m l 、平均重合度 1 7 0 0 、けん化度 9 9 . 0 モル % のポリビニルアルコール 3 0 0 g を入れ、攪拌しながら加熱溶解し、溶液を得た。次に、この溶液に触媒として 3 5 . 5 重量 % 塩酸 2 1 g を添加し、温度を 1 4 に調整した後、攪拌しながら n - ブチルアルデヒド 1 6 0 g を添加したところ、白色粒子状のポリビニルブチラール樹脂が析出した。析出してから 2 0 分後に、3 5 . 5 重量 % 塩酸 1 7 2 g を添加し、4 0 に加熱し、4 6 で 3 時間熟成させた。次いで、溶液を冷却し、中和した後、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルアセタール樹脂 G を得た。

20

【 0 1 8 5 】

( 合成例 1 1 )

ポリビニルアセタール樹脂 V ( P V B 樹脂 ) の合成 :

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水 3 2 4 4 m l 、平均重合度 3 0 0 0 、けん化度 8 8 . 2 モル % のポリビニルアルコール 3 0 0 g を入れ、攪拌しながら加熱溶解し、溶液を得た。次に、この溶液に触媒として 6 0 重量 % 硝酸 4 7 . 3 g を添加し、温度を 1 0 に調整した後、攪拌しながら n - ブチルアルデヒド 1 9 9 g を添加したところ、白色粒子状のポリビニルブチラール樹脂が析出した。析出してから 2 0 分後に、6 0 重量 % 硝酸 1 4 4 g を添加し、6 5 に加熱し、6 7 . 5 で 2 時間熟成させた。次いで、溶液を冷却し、中和した後、ポリビニルブチラール樹脂を水洗し、乾燥させることにより、ポリビニルアセタール樹脂 V を得た。

30

【 0 1 8 6 】

( 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 ( 3 G O )

【 0 1 8 7 】

( 紫外線遮蔽剤 )

T i n u v i n 3 2 6 ( 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、B A S F 社製「 T i n u v i n 3 2 6 」)

40

【 0 1 8 8 】

( 酸化防止剤 )

B H T ( 2 , 6 - ジ - t - ブチル - p - クレゾール )

【 0 1 8 9 】

( 実施例 1 )

第 1 の層を形成するための組成物の作製 :

ポリビニルアセタール樹脂 ( ポリビニルアセタール樹脂 A ) 1 0 0 重量部と、可塑剤 ( 3 G O ) 3 0 重量部と、紫外線遮蔽剤 ( T i n u v i n 3 2 6 ) 0 . 2 重量部と、酸化防

50

止剤 ( B H T ) 0 . 2 重量部とを混合し、第 1 の層を形成するための組成物を得た。

【 0 1 9 0 】

中間膜の作製：

第 1 の層を形成するための組成物を、押出機を用いて押出しすることにより、第 1 の層 ( 厚み 7 6 0  $\mu\text{m}$  ) のみの単層の中間膜 ( 厚み 7 6 0  $\mu\text{m}$  ) を作製した。

【 0 1 9 1 】

合わせガラス A の作製：

洗浄及び乾燥した 2 つのガラス板 ( クリアフロートガラス、縦 2 5 c m  $\times$  横 1 0 c m  $\times$  厚み 2 . 5 m m ) を用意した。この 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、2 6 6 0 P a ( 2 0 t o r r ) の真空度で 2 0 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 9 0  $^{\circ}$  で 3 0 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 1 3 5  $^{\circ}$ 、圧力 1 . 2 M P a ( 1 2 k g / c m  $^2$  ) の条件で 2 0 分間圧着を行い、合わせガラスを得た。

10

【 0 1 9 2 】

合わせガラス B の作製：

洗浄及び乾燥した 1 つのガラス板 ( クリアフロートガラス、縦 2 5 c m  $\times$  横 1 0 c m  $\times$  厚み 2 . 5 m m ) を用意した。洗浄及び乾燥した 1 つのガラス板 ( ゴリラガラス、縦 2 5 c m  $\times$  横 1 0 c m  $\times$  厚み 0 . 7 m m ) を用意した。この 2 つのガラス板を用いたこと以外は合わせガラス A と同様にして、合わせガラス B を得た。

20

【 0 1 9 3 】

合わせガラス C の作製：

洗浄及び乾燥した 2 つのガラス板 ( ゴリラガラス、縦 2 5 c m  $\times$  横 1 0 c m  $\times$  厚み 0 . 7 m m ) を用意した。この 2 つのガラス板を用いたこと以外は合わせガラス A と同様にして、合わせガラス C を得た。

【 0 1 9 4 】

( 実施例 2 ~ 1 1 及び比較例 1 , 2 )

第 1 の層を形成するための組成物に用いるポリビニルアセタール樹脂及び可塑剤の種類と、ポリビニルアセタール樹脂 1 0 0 重量部に対する可塑剤の配合量と、第 1 の層の厚みとを下記の表 1 に示すように設定したこと以外は実施例 1 と同様にして、中間膜、合わせガラス A、合わせガラス B 及び合わせガラス C を得た。

30

【 0 1 9 5 】

( 実施例 1 2 )

第 1 の層及び第 3 の層を形成するための組成物の作製：

ポリビニルアセタール樹脂 ( ポリビニルアセタール樹脂 A ) 1 0 0 重量部と、可塑剤 ( 3 G O ) 3 1 . 5 重量部と、紫外線遮蔽剤 ( T i n u v i n 3 2 6 ) 0 . 2 重量部と、酸化防止剤 ( B H T ) 0 . 2 重量部とを混合し、第 1 の層及び第 3 の層を形成するための組成物 X を得た。

【 0 1 9 6 】

第 2 の層を形成するための組成物の作製：

ポリビニルアセタール樹脂 ( ポリビニルアセタール樹脂 X ) 1 0 0 重量部と、可塑剤 ( 3 G O ) 6 0 重量部と、紫外線遮蔽剤 ( T i n u v i n 3 2 6 ) 0 . 2 重量部と、酸化防止剤 ( B H T ) 0 . 2 重量部とを混合し、第 2 の層を形成するための組成物を得た。

40

【 0 1 9 7 】

中間膜の作製：

第 1 の層及び第 3 の層を形成するための組成物と、第 2 の層を形成するための組成物とを、共押出機を用いて共押出しすることにより、第 1 の層 ( 厚み 3 3 0  $\mu\text{m}$  ) / 第 2 の層 ( 厚み 1 0 0  $\mu\text{m}$  ) / 第 3 の層 ( 厚み 3 3 0  $\mu\text{m}$  ) の構造を有する多層の中間膜 ( 厚み 7 6 0  $\mu\text{m}$  ) を作製した。

【 0 1 9 8 】

50

合わせガラスの作製：

得られた中間膜を用いたこと以外は実施例 1 と同様にして、合わせガラス A、合わせガラス B 及び合わせガラス C を得た。

【0199】

遮音性測定用の合わせガラスの作製：

洗浄及び乾燥した 2 つのガラス板（クリアフロートガラス、縦 30 cm × 横 2.5 cm × 厚み 2.5 mm）を用意した。この 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 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、圧力 1.2 MPa（12 kg/cm<sup>2</sup>）の条件で 20 分間圧着を行い、遮音性測定用の合わせガラスを得た。

10

【0200】

（実施例 13 ~ 27）

第 1 の層、第 2 の層、及び、第 3 の層を形成するための組成物に用いるポリビニルアセタール樹脂及び可塑剤の種類と、ポリビニルアセタール樹脂 100 重量部に対する可塑剤の配合量と、第 1 の層、第 2 の層及び第 3 の層の厚みとを下記の表 2、3 に示すように設定したこと以外は実施例 12 と同様にして、中間膜、合わせガラス A、合わせガラス B 及び合わせガラス C を得た。

【0201】

（比較例 3、4）

第 1 の層、第 2 の層及び第 3 の層を形成するための組成物に用いるポリビニルアセタール樹脂及び可塑剤の種類と、ポリビニルアセタール樹脂 100 重量部に対する可塑剤の配合量と、第 1 の層、第 2 の層及び第 3 の層の厚みとを下記の表 2、3 に示すように設定したこと以外は実施例 12 と同様にして、中間膜、合わせガラス A、合わせガラス B 及び合わせガラス C を得た。

20

【0202】

（評価）

（1）半値幅

ポリビニルアセタール樹脂の半値幅を、以下のようにして測定した。

30

【0203】

赤外吸収スペクトル測定用フィルムの作成方法：

ポリビニルアセタール樹脂 0.5 g を、メタノールとブタノールとの混合溶媒（混合体積比 1 : 1）9.5 g に溶解させて、溶液を得た。アルミニウム板（縦 15 cm × 横 5 cm × 厚み 1 mm）にポリエチレンフィルムを被せたフィルム作成用基板を用意した。フィルム作成用基板に対して、上記溶液を全面に行き渡るように垂らし、塗った。基板を垂直に立て、余剰な溶液を回収した。この基板を赤外線乾燥器（清水理化学機器製作所社製）内で 15 分乾燥させた。その後、基板を取り出し、水平にし、垂直に立てていたときの基板の下側半分（縦 7.5 cm × 横 5 cm）に溶液を垂らし、塗った。基板を垂直に立て、余剰な溶液を回収した。再度、基板を赤外線乾燥機内で 1 時間乾燥させた。その後、基板を角型真空定温乾燥器（ヤマト科学社製「DP33」、真空ポンプ：ヤマト科学社製「MINIVAC PD-102」）内で、60 で 4 時間真空乾燥させた。乾燥させたサンプルに関しては、真空定温乾燥器から取り出した後すぐに、デシケータ内に移し、30 分間放冷して、フィルム付き基板を得た。

40

【0204】

なお、中間膜中のポリビニルアセタール樹脂の半値幅を評価するためには、ポリビニルアセタール樹脂を再沈殿法により単離する必要がある。まず、中間膜（多層構成の場合は分析対象の層を剥がして、単離した層を使用）2 g を、良溶媒であるテトラヒドロフラン（THF）40 g に溶解させて、THF 溶液を得る。1 L ビーカーに n-ヘキサン 600 g を入れてマグネットスターラ で攪拌しながら、上記 THF 溶液を 1 滴ずつ滴下する。

50

全量の滴下が完了した後にピーカーの底に沈殿した樹脂の塊のみをピンセットで取り出し、シャーレ内で乾燥しやすいようにほぐして、赤外乾燥機及び真空乾燥機を用いて完全に有機溶媒を除去する。このようにして得られた樹脂 0.5 g を用いて前段落と同じ方法で、赤外吸収スペクトル測定用フィルムを作成する。

**【0205】**

赤外吸収スペクトル測定方法：

測定には、堀場製作所社製 IR-720 フーリエ変換赤外分光光度計を用いた。ソフトは「HORIBA FT-IR for Windows (登録商標) version 4.06」を用いた。測定結果に対するサンプルの吸湿及び湿度自体の影響を防ぐために、測定を行う部屋の環境を、温度： $23 \pm 2$ 、湿度： $RH 25 \pm 5\%$  に常に保ち、デシケータからフィルム付き基板一つを取り出して一回の測定が完了するまでに要する時間は5分以内とした。

10

**【0206】**

測定手順は以下の通りである。デシケータから基板を取り出し、カッターナイフでフィルムのみを切り出し、サンプルフォルダにセットした。テストモードで測定を繰り返し、 $2950 \text{ cm}^{-1}$  付近に現れるピークの透過率が  $20 \pm 0.5\%$  の範囲に入るようにフィルムの位置を調整した。調整後、測定を開始した。

**【0207】**

測定条件は次の通りである。スキャン回数：5、装置関数：H-G、走査速度：12.5、分解能：2、ゲイン：1、測定範囲： $400 \sim 4000$ 、スペクトル： $\%T$ 。

20

**【0208】**

測定完了後、スムージングを行った。スムージングは強度：13、設定範囲：最大値  $4000$ 、最小値  $400$  で実行した。スムージングを完了した後、 $3500 \text{ cm}^{-1}$  付近に現れるピークと  $2950 \text{ cm}^{-1}$  付近に現れるピークとに対してベースライン補正を行った。 $3500 \text{ cm}^{-1}$  付近のピーク（水酸基由来のピーク）の高波数側の根元である  $3700 \text{ cm}^{-1}$  付近で透過率が高くなっている点と  $2500 \text{ cm}^{-1}$  の点でベースラインを引いて補正した。ベースライン補正が完了した後、水酸基由来のピーク部分を拡大したスペクトルチャートを印刷した（例えば波数範囲： $3100 \sim 3700 \text{ cm}^{-1}$ 、透過率範囲： $50 \sim 100\%$ ）。印刷したスペクトルチャートから水酸基の半値幅を評価した。

**【0209】**

水酸基の半値幅の評価方法：

水酸基ピークにおける透過率  $X\%$  でのピーク幅を定規で測定した（ $X = SQR T(100 * OH \text{ 基ピークトップの透過率})$ ）。測定した長さを  $A \text{ mm}$  とする。次に、横軸における  $3100 \text{ cm}^{-1}$  と  $3600 \text{ cm}^{-1}$  の間の長さを定規で測定した。測定した長さを  $B \text{ mm}$  とする。以上の結果から、 $500 \times A / B$  で計算した値を水酸基の半値幅とした。

30

**【0210】****(2) ガラス転移温度**

実施例及び比較例における第1の層及び第3の層の各組成を有する混練物を用意した。得られた混練物をプレス成型機でプレス成型して、厚みが  $0.35 \text{ mm}$  である樹脂膜 A を得た。得られた樹脂膜 A を  $25$  及び相対湿度  $30\%$  の条件で2時間放置した。2時間放置した後に、TA INSTRUMENTS 社製「ARES-G2」を用いて、粘弾性を測定した。治具として、直径  $8 \text{ mm}$  の平行プレートを用いた。 $3$  / 分の降温速度で  $100$  から  $-10$  まで温度を低下させる条件、及び周波数  $1 \text{ Hz}$  及び歪  $1\%$  の条件で測定を行った。得られた測定結果において、損失正接のピーク温度をガラス転移温度  $T_g$  ( ) とした。

40

**【0211】****(3) 曲げ剛性**

得られた合わせガラス A、合わせガラス B 及び合わせガラス C を用意した。合わせガラス A、合わせガラス B 及び合わせガラス C では、以下のガラス板を用いている。

**【0212】**

50

合わせガラス A : 2つのガラス板 (クリアフロートガラス、縦 25 cm × 横 10 cm × 厚み 2.5 mm)

合わせガラス B : 1つのガラス板 (クリアフロートガラス、縦 25 cm × 横 10 cm × 厚み 2.5 mm) と 1つのガラス板 (ゴリラガラス、縦 25 cm × 横 10 cm × 厚み 0.7 mm)

合わせガラス C : 2つのガラス板 (ゴリラガラス、縦 25 cm × 横 10 cm × 厚み 0.7 mm)

#### 【0213】

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、静的3点曲げ試験治具2810を備えたインストロンジャパンカンパニーリミテッド社製の万能材料試験機5966を使用した。測定条件としては、測定温度 $20 \pm 3$ 、距離D1は18 cm、距離D2は25 cmとし、変位速度1 mm / 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。曲げ剛性を下記の基準で判定した。

#### 【0214】

[ 曲げ剛性の判定基準 ]

1 : 合わせガラスCでの測定値が0.002 mm / N未満

2 : 合わせガラスCでの測定値が0.002 mm / N以上、0.005 mm / N未満

3 : 1, 2の判定基準に相当せず、合わせガラスBでの測定値が0.005 mm / N未満

4 : 1 ~ 3の判定基準に相当せず、合わせガラスCでの測定値が0.11 mm / N未満

5 : 1 ~ 3の判定基準に相当せず、合わせガラスCでの測定値が0.11 mm / N以上

#### 【0215】

(4) 遮音性

実施例12 ~ 27及び比較例3, 4の遮音性測定用の合わせガラスの遮音性を、ダンピング試験用の振動発生機 (振研社製「加振機G21-005D」)により加振し、そこから得られた振動特性を機械インピーダンス測定装置 (リオン社製「XG-81」)にて増幅し、振動スペクトルをFFTスペクトラムアナライザー (横河ヒューレッドパカード社製「FFTアナライザー HP3582A」)により解析した。

#### 【0216】

このようにして得られた損失係数と合わせガラスとの共振周波数との比から、20における音周波数 (Hz) と音響透過損失 (dB) との関係を示すグラフを作成し、音周波数2,000 Hz付近における極小の音響透過損失 (TL値) を求めた。このTL値が高いほど、遮音性が高くなる。遮音性を下記の基準で判定した。

#### 【0217】

[ 遮音性の判定基準 ]

: TL値が37 dB以上

: TL値が35 dB以上、37 dB未満

x : TL値が35 dB未満

#### 【0218】

詳細及び結果を下記の表1 ~ 3に示す。なお、下記の表1 ~ 3では、ポリビニルアセタール樹脂及び可塑剤以外の配合成分の記載は省略した。

#### 【0219】

10

20

30

40

【 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	比較例 1	実施例 7	実施例 8	比較例 2	実施例 9	実施例 10	実施例 11
第1の層	厚み	760	760	760	1520	1520	1520	760	760	760	1520	1520	760	760
	種類	A	A	A	A	A	A	B	B	B	B	B	C	D
		1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700
	PVAの平均重合度	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	水酸基の含有率	34.4	34.4	34.4	34.4	34.4	34.4	30.0	30.0	30.0	30.0	30.0	35.0	29.4
	アセチル化度	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.8	0.9
	アセチル化度	64.8	64.8	64.8	64.8	64.8	64.8	69.1	69.1	69.1	69.1	69.1	64.2	69.7
	半値幅	274.8	274.8	274.8	274.8	274.8	274.8	239.3	239.3	239.3	239.3	239.3	251.0	235.6
	含有量	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	可塑剤	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
評価	第1の層のガラス転移温度	30	20	15	30	20	15	40	20	12	40	20	30	29
	含有量	39.6	47.9	51.6	39.6	47.9	51.6	27.8	44.4	53.0	27.8	44.4	38.3	33.5
	合わせガラスA	0.0033	0.0012	0.0007	0.0030	0.0010	0.0002	0.0054	0.0012	0.0006	0.0052	0.0009	0.0019	0.0027
	合わせガラスB	0.0072	0.0031	0.0018	0.0066	0.0028	0.0012	0.0108	0.0035	0.0017	0.0109	0.0028	0.0079	0.0081
曲げ剛性	0.0800	0.0371	0.0044	0.0600	0.0185	0.0005	0.1180	0.0221	0.0042	0.0922	0.0107	0.0853	0.0875	
評価	4	3	2	4	3	1	5	3	2	4	3	4	4	

【 0 2 2 0 】

10

20

30

40

【 表 2 】

		実施例 12	実施例 13	実施例 14	実施例 15	実施例 16	実施例 17	実施例 18	実施例 19	実施例 20
第1の層 第3の層	各厚み	330	330	330	330	355	355	355	355	240
	種類	A	E	F	G	A	E	F	G	A
	PVAの平均重合度	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700
	水酸基の含有率	34.5	34.8	33.0	34.9	34.5	34.8	33.0	34.9	34.5
	アセチル化度	0.8	1.0	1.0	1.0	0.8	1.0	1.0	1.0	0.8
	アセチル化度	64.8	64.2	66.0	64.1	64.8	64.2	66.0	64.1	64.8
	半値幅	274.8	267.0	257.3	247.6	274.8	267.0	257.3	247.6	274.8
	含有量	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
	含有量	31.5	28.8	35.6	24.5	31.5	28.8	35.6	24.5	31.5
第2の層	厚み	100	100	100	100	50	50	50	50	280
	種類	X	Y	Z	V	X	Y	Z	V	X
	PVAの平均重合度	2300	3000	3000	3000	2300	3000	3000	3000	2300
	水酸基の含有率	22.7	23.3	25.6	21.7	22.7	23.3	25.6	21.7	22.7
	アセチル化度	12.1	11.8	11.8	11.8	12.1	11.8	11.8	11.8	12.1
	アセチル化度	65.2	64.9	62.6	66.5	65.2	64.9	62.6	66.5	65.2
	半値幅	164.9	165.1	168.4	160.4	164.9	165.1	168.4	160.4	164.9
	含有量	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
	含有量	60	75	75	75	60	75	75	75	60
評価	第1の層及び第3の層のガラス転移温度	39.0	33.2	40.1	43.5	39.0	33.2	40.1	43.5	39.0
	合わせガラスA	0.0041	0.0043	0.0043	0.0043	0.0043	0.0036	0.0036	0.0035	0.0035
	合わせガラスB	0.0080	0.0087	0.0086	0.0086	0.0073	0.0075	0.0073	0.0073	0.0110
	合わせガラスC	0.0602	0.0572	0.0557	0.0555	0.0386	0.0405	0.0385	0.0381	0.0974
	TL値	○	○	○	○	○	○	○	○	○
遮音性 評価	4	4	4	4	4	4	4	4	4	

【 表 3 】

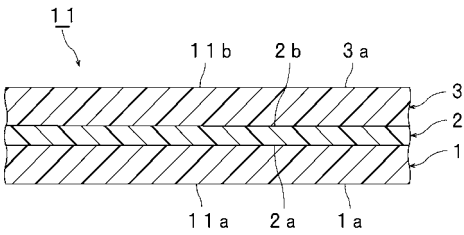
各厚み		実施例 21	実施例 22	実施例 23	実施例 24	実施例 25	実施例 26	実施例 27	比較例 3	比較例 4	
第1の層 第3の層	種類	E	F	G	A	E	F	G	B	B	
	μm	240	240	240	330	330	330	330	330	330	
	種類	ポリビニルアセタール樹脂									
	PVAの平均重合度	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	
	水酸基の含有率	34.8	33.0	34.9	34.5	34.8	33.0	33.0	34.9	30.0	
	アセチル化度	1.0	1.0	1.0	0.8	1.0	1.0	1.0	1.0	0.9	
	アセチル化度	64.2	66.0	64.1	64.8	64.2	66.0	64.1	64.1	69.1	
	半値幅	267.0	257.3	247.6	274.8	267.0	257.3	247.6	247.6	239.3	
	重量部	100	100	100	100	100	100	100	100	100	
	含有量	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	
第2の層	種類	Y	Z	V	X	Y	Z	V	X	X	
	μm	280	280	280	100	100	100	100	100	100	
	種類	ポリビニルアセタール樹脂									
	PVAの平均重合度	3000	3000	3000	2300	3000	3000	3000	3000	2300	
	水酸基の含有率	23.3	25.6	21.7	22.7	23.3	25.6	25.6	21.7	22.7	
	アセチル化度	11.8	11.8	11.8	12.1	11.8	11.8	11.8	11.8	12.1	
	アセチル化度	64.9	62.6	66.5	65.2	64.9	62.6	62.6	66.5	65.2	
	半値幅	165.1	168.4	160.4	164.9	165.1	168.4	168.4	160.4	164.9	
	重量部	100	100	100	100	100	100	100	100	100	
	含有量	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	
評価	種類	可塑性									
	重量部	75	75	75	50	50	50	50	50	75	60
	°C	33.2	40.1	43.5	39.0	33.2	40.1	40.1	43.5	30.2	28.4
	第1の層及び第3の層のガラス転移温度	0.0057	0.0057	0.0057	0.0057	0.0040	0.0040	0.0040	0.0040	0.0052	0.0053
	合わせガラスA	0.0110	0.0110	0.0110	0.0081	0.0082	0.0081	0.0081	0.0080	0.0113	0.0113
	合わせガラスB	0.0980	0.0974	0.0973	0.0480	0.0495	0.0479	0.0479	0.0477	0.1122	0.1135
	合わせガラスC	○	○	○	△	△	△	△	△	○	○
	TL値	4	4	4	4	4	4	4	4	5	5
	遮音性	評価									

【 符号の説明 】

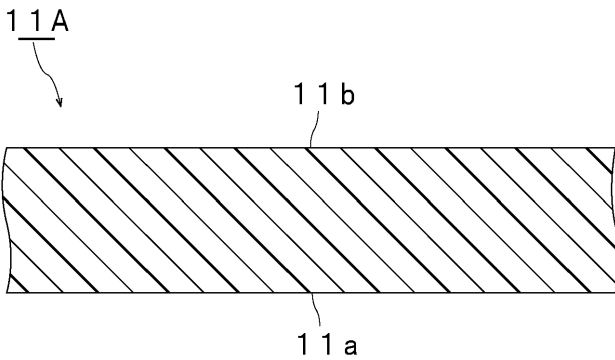
【 0 2 2 2 】

- 1 ... 第 1 の層
- 1 a ... 外側の表面
- 2 ... 第 2 の層
- 2 a ... 第 1 の表面
- 2 b ... 第 2 の表面
- 3 ... 第 3 の層
- 3 a ... 外側の表面
- 1 1 ... 中間膜
- 1 1 A ... 中間膜 ( 第 1 の層 )
- 1 1 a ... 第 1 の表面
- 1 1 b ... 第 2 の表面
- 2 1 ... 第 1 のガラス板
- 2 2 ... 第 2 のガラス板
- 3 1 ... 合わせガラス
- 3 1 A ... 合わせガラス

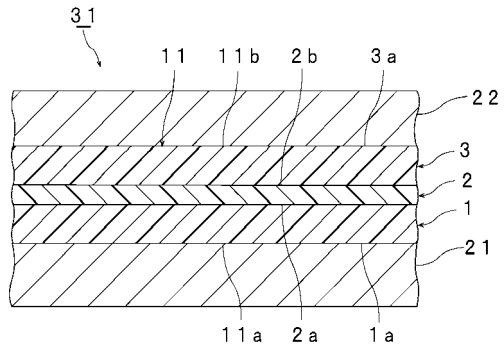
【 図 1 】



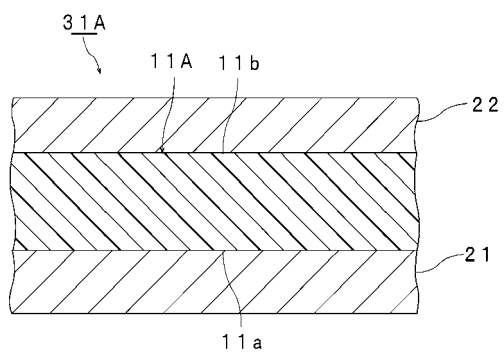
【 図 2 】



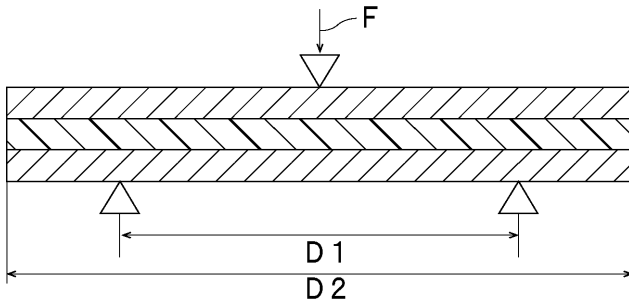
【 図 3 】



【 図 4 】



【図 5】



## 【手続補正書】

【提出日】平成27年5月21日(2015.5.21)

## 【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

1層の構造又は2層以上の構造を有する合わせガラス用中間膜であって、  
 ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第1の層を備え、  
 前記第1の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ を超える、合わせガラス用中間膜。

## 【請求項 2】

前記第1の層を、中間膜における表面層として備える、請求項1に記載の合わせガラス用中間膜。

## 【請求項 3】

2層以上の構造を有する合わせガラス用中間膜であって、  
 ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第2の層をさらに備え、  
 前記第2の層の第1の表面側に、前記第1の層が配置されている、請求項1又は2に記載の合わせガラス用中間膜。

## 【請求項 4】

3層以上の構造を有する合わせガラス用中間膜であって、  
 ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを含有する第3の層をさらに備え、  
 前記第3の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$

$\cdot 1$  以下であり、かつ、前記第3の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する前記第3の層に含まれる前記可塑剤の含有量が5重量部以上、30重量部未満であるか、又は、前記第3の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の半値幅が $250\text{ cm}^{-1}$ を超え、

前記第2の層の前記第1の表面側とは反対の第2の表面側に、前記第3の層が配置されている、請求項3に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項5】

前記第3の層を、中間膜における表面層として備える、請求項4に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項6】

前記第2の層に含まれる前記可塑剤の含有量は、前記第2の層に含まれる前記ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して、55重量部以上である、請求項3～5のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項7】

合わせガラス用中間膜の厚みを $T$ としたときに、前記第2の層の厚みは $0.0625T$ 以上、 $0.375T$ 以下である、請求項3～6のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項8】

厚みが1mm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、請求項1～7のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項9】

厚みが1mm以下である第1のガラス板と厚みが1mm以下である第2のガラス板とを用いて、前記第1のガラス板と前記第2のガラス板との間に配置されて、合わせガラスを得るために用いられる、請求項8に記載の合わせガラス用中間膜。

【請求項10】

第1のガラス板と、

第2のガラス板と、

請求項1～7のいずれか1項に記載の合わせガラス用中間膜とを備え、

前記第1のガラス板と前記第2のガラス板との間に、前記合わせガラス用中間膜が配置されている、合わせガラス。

【請求項11】

前記第1のガラス板の厚みが1mm以下である、請求項10に記載の合わせガラス。

【請求項12】

前記第2のガラス板の厚みが1mm以下である、請求項11に記載の合わせガラス。

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0169

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0169】

(ポリビニルアセタール樹脂)

以下の実施例、参考例及び比較例で用いたポリビニルブチラール(PVB)樹脂に関しては、ブチラール化度(アセタール化度)、アセチル化度及び水酸基の含有率は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した。なお、ASTM D 1396-92により測定した場合も、JIS K 6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠した方法と同様の数値を示した。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0194

## 【補正方法】変更

## 【補正の内容】

## 【0194】

(実施例2～6, 10、参考例7～9, 11及び比較例1, 2)

第1の層を形成するための組成物に用いるポリビニルアセタール樹脂及び可塑剤の種類と、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する可塑剤の配合量と、第1の層の厚みとを下記の表1に示すように設定したこと以外は実施例1と同様にして、中間膜、合わせガラスA、合わせガラスB及び合わせガラスCを得た。

## 【手続補正4】

## 【補正対象書類名】明細書

## 【補正対象項目名】0200

## 【補正方法】変更

## 【補正の内容】

## 【0200】

(実施例13, 14, 16～18, 20～22, 24～26及び参考例15, 19, 23, 27)

第1の層、第2の層、及び、第3の層を形成するための組成物に用いるポリビニルアセタール樹脂及び可塑剤の種類と、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対する可塑剤の配合量と、第1の層、第2の層及び第3の層の厚みとを下記の表2, 3に示すように設定したこと以外は実施例12と同様にして、中間膜、合わせガラスA、合わせガラスB及び合わせガラスCを得た。

## 【手続補正5】

## 【補正対象書類名】明細書

## 【補正対象項目名】0210

## 【補正方法】変更

## 【補正の内容】

## 【0210】

## (2) ガラス転移温度

実施例、参考例及び比較例における第1の層及び第3の層の各組成を有する混練物を用意した。得られた混練物をプレス成型機でプレス成型して、厚みが0.35mmである樹脂膜Aを得た。得られた樹脂膜Aを25℃及び相対湿度30%の条件で2時間放置した。2時間放置した後に、TA INSTRUMENTS社製「ARES-G2」を用いて、粘弾性を測定した。治具として、直径8mmの平行プレートをを用いた。3℃/分の降温速度で100℃から-10℃まで温度を低下させる条件、及び周波数1Hz及び歪1%の条件で測定を行った。得られた測定結果において、損失正接のピーク温度をガラス転移温度T<sub>g</sub>( )とした。

## 【手続補正6】

## 【補正対象書類名】明細書

## 【補正対象項目名】0215

## 【補正方法】変更

## 【補正の内容】

## 【0215】

## (4) 遮音性

実施例12～14, 16～18, 20～22, 24～26及び参考例15, 19, 23, 27及び比較例3, 4の遮音性測定用の合わせガラスの遮音性を、ダンピング試験用の振動発生機(振研社製「加振機G21-005D」)により加振し、そこから得られた振動特性を機械インピーダンス測定装置(リオン社製「XG-81」)にて増幅し、振動スペクトルをFFTスペクトラムアナライザー(横河ヒューレッドパカード社製「FFTアナライザーHP3582A」)により解析した。

## 【手続補正7】

【補正対象書類名】明細書  
【補正対象項目名】0 2 1 9  
【補正方法】変更  
【補正の内容】  
【 0 2 1 9 】

【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	比較例 1	参考例 7	参考例 8	比較例 2	参考例 9	実施例 10	参考例 11
第1の層	厚み	760	760	760	1520	1520	1520	760	760	760	1520	1520	760	760
	種類	A	A	A	A	A	A	B	B	B	B	B	C	D
		1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700
	PVAの平均重合度	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	水酸基の含有率	モル%	34.4	34.4	34.4	34.4	34.4	30.0	30.0	30.0	30.0	30.0	30.0	29.4
	アセチル化度	モル%	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9	0.8	0.9
	アセチル化度	モル%	64.8	64.8	64.8	64.8	64.8	69.1	69.1	69.1	69.1	69.1	69.1	69.7
	半値幅	cm <sup>-1</sup>	274.8	274.8	274.8	274.8	274.8	239.3	239.3	239.3	239.3	239.3	239.3	251.0
	含有量	重量部	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	可塑剤	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
評価	第1の層のガラス転移温度	重量部	30	20	15	30	20	15	20	12	40	20	30	29
		含有量	39.6	47.9	51.6	39.6	47.9	51.6	44.4	53.0	27.8	44.4	38.3	33.5
		°C	0.0033	0.0012	0.0007	0.0030	0.0010	0.0002	0.0054	0.0012	0.0006	0.0052	0.0009	0.0027
	合わせガラスA	mm/N	0.0072	0.0031	0.0018	0.0066	0.0028	0.0012	0.0108	0.0035	0.0109	0.0028	0.0079	0.0081
評価	曲げ剛性	mm/N	0.0800	0.0371	0.0044	0.0600	0.0185	0.0005	0.1180	0.0221	0.0922	0.0107	0.0853	0.0875
	評価		4	3	2	4	3	1	3	2	4	3	4	4

【手続補正 8】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 2 2 0

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 2 2 0 】

【 表 2 】

		実施例 12	実施例 13	実施例 14	参考例 15	実施例 16	実施例 17	実施例 18	参考例 19	実施例 20
第1の層 第3の層	各厚み	330	330	330	330	355	355	355	355	240
	種類	A	E	F	G	A	E	F	G	A
	PVAの平均重合度	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700	1700
	水酸基の含有率	34.5	34.8	33.0	34.9	34.5	34.8	33.0	34.9	34.5
	アセチル化度	0.8	1.0	1.0	1.0	0.8	1.0	1.0	1.0	0.8
	アセチル化度	64.8	64.2	66.0	64.1	64.8	64.2	66.0	64.1	64.8
	半値幅	274.8	267.0	257.3	247.6	274.8	267.0	257.3	247.6	274.8
	含有量	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
	含有量	31.5	28.8	35.6	24.5	31.5	28.8	35.6	24.5	31.5
第2の層	厚み	100	100	100	100	50	50	50	50	280
	種類	X	Y	Z	V	X	Y	Z	V	X
	PVAの平均重合度	2300	3000	3000	3000	2300	3000	3000	3000	2300
	水酸基の含有率	22.7	23.3	25.6	21.7	22.7	23.3	25.6	21.7	22.7
	アセチル化度	12.1	11.8	11.8	11.8	12.1	11.8	11.8	11.8	12.1
	アセチル化度	65.2	64.9	62.6	66.5	65.2	64.9	62.6	66.5	65.2
	半値幅	164.9	165.1	168.4	160.4	164.9	165.1	168.4	160.4	164.9
	含有量	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
	含有量	60	75	75	75	60	75	75	75	60
評価	第1の層及び第3の層のガラス転移温度	39.0	33.2	40.1	43.5	39.0	33.2	40.1	43.5	39.0
	合わせガラスA	0.0041	0.0043	0.0043	0.0043	0.0043	0.0036	0.0036	0.0035	0.0035
	合わせガラスB	0.0080	0.0087	0.0086	0.0086	0.0073	0.0075	0.0073	0.0073	0.0110
	合わせガラスC	0.0602	0.0572	0.0557	0.0555	0.0386	0.0405	0.0385	0.0381	0.0974
	遮音性 評価	○	○	○	○	○	○	○	○	○

【 半 統 補 正 9 】

【補正対象書類名】明細書  
【補正対象項目名】0 2 2 1  
【補正方法】変更  
【補正の内容】  
【 0 2 2 1 】



---

フロントページの続き

(72)発明者 水口 奈美

滋賀県甲賀市水口町泉 1 2 5 9 積水化学工業株式会社内

Fターム(参考) 4F100 AK23A AK23B AK23C BA02 BA03 BA10A BA10C BA14 CA04A CA04B  
CA04C GB07 GB32 JK04  
4G061 AA03 BA02 CB18 CD18  
4J100 AF15P BC59H BC59P CA31 DA33 HA43 HB25 HC19 HD16 HE07  
HE12 JA03