

(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
2011年6月30日(30.06.2011)

PCT

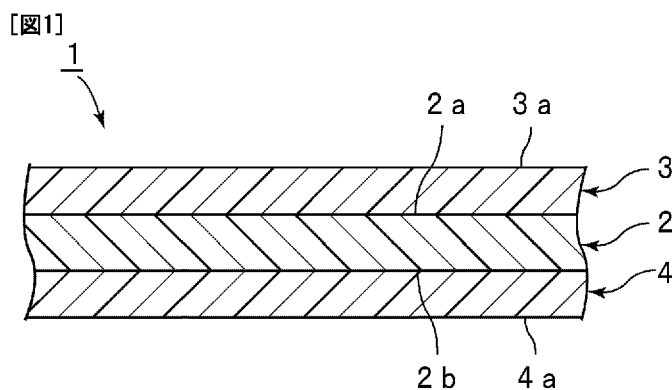
(10) 国際公開番号
WO 2011/078313 A1

- (51) 国際特許分類:
C03C 27/12 (2006.01) C09J 11/00 (2006.01)
C08L 29/14 (2006.01) C09J 129/14 (2006.01)
C08L 101/00 (2006.01) C09J 201/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2010/073301
- (22) 国際出願日: 2010年12月24日(24.12.2010)
- (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 2009-294969 2009年12月25日(25.12.2009) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 積水化学工業株式会社(SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒5308565 大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 岩本 達矢 (IWAMOTO, Tatsuya) [JP/JP]; 〒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). 可児 孝平 (KANI, Kohei) [JP/JP]; 〒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: 宮▲崎▼ 主税, 外 (MIYAZAKI, Chikara et al.); 〒5400012 大阪府大阪市中央区谷町1丁目5番4号 大同生命ビル6階 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, 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, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, 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, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (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, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

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

(54) 発明の名称: 合わせガラス用中間膜、合わせガラス用多層中間膜及び合わせガラス



(57) Abstract: Disclosed are: an intermediate film for laminated glass, which is capable of providing laminated glass that has excellent sound insulation properties and is capable of suppressing generation and growth of foam; and a multilayer intermediate film for laminated glass, which uses the intermediate film for laminated glass. Specifically disclosed is an intermediate film (2) for laminated glass, which contains a thermoplastic resin and a plasticizer. The content of high molecular weight components having an absolute molecular weight of not less than 1,000,000 in the thermoplastic resin is not less than 7.4%, or the content of high molecular weight components having a molecular weight in terms of polystyrene of not less than 1,000,000 in the thermoplastic resin is not less than 9%. Also disclosed is a multilayer intermediate film (1) for laminated glass, which comprises the intermediate film (2) for laminated glass and a second intermediate film (3) for laminated glass, said second intermediate film (3) being arranged on one surface (2a) of the intermediate film (2) for laminated glass and containing a thermoplastic resin and a plasticizer.

(57) 要約:

[続葉有]



WO 2011/078313 A1

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

遮音性に優れており、かつ発泡の発生及び発泡の成長を抑制できる合わせガラスを得ることができる合わせガラス用中間膜、並びに該合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラス用多層中間膜を提供する。合わせガラス用中間膜 2 は、熱可塑性樹脂と可塑剤とを含有する。熱可塑性樹脂に占める、絶対分子量 100 万以上の高分子量成分の割合は 7.4% 以上であるか、又は、熱可塑性樹脂に占める、ポリスチレン換算分子量 100 万以上の高分子量成分の割合は 9% 以上である。合わせガラス用多層中間膜 1 は、合わせガラス用中間膜 2 と、該合わせガラス用中間膜 2 の一方の面 2 a に積層されており、かつ熱可塑性樹脂と可塑剤とを含有する第 2 の合わせガラス用中間膜 3 とを備える。

明 細 書

発明の名称：

合わせガラス用中間膜、合わせガラス用多層中間膜及び合わせガラス 技術分野

[0001] 本発明は、熱可塑性樹脂と可塑剤とを含有する合わせガラス用中間膜に関し、より詳細には、遮音性に優れており、かつ発泡が生じ難い合わせガラスを得ることができる合わせガラス用中間膜、並びに該合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラス用多層中間膜及び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、一対のガラス板の間に合わせガラス用中間膜を挟み込むことにより、製造されている。

[0003] 上記合わせガラス用中間膜の一例として、下記の特許文献1には、ポリビニルアセタール樹脂100重量部と、トリエチレングリコールモノ-2-エチルヘキサノエートとトリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエートとの混合物20~60重量部とを含有する中間膜が開示されている。

[0004] また、下記の特許文献2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重量部以上の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。

[0005] さらに、下記の特許文献2には、上記遮音層と他の層とが積層された多層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重量部以下の可塑剤とを含む。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開2001-097745号公報

特許文献2：特開2007-070200号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 上記特許文献1に記載の中間膜を用いて合わせガラスを構成した場合には、合わせガラスの2000Hz付近の周波数領域における遮音性が充分ではなく、従ってコインシデンス効果による遮音性の低下が避けられないことがある。特に、この合わせガラスの20℃付近での遮音性が充分ではないことがある。

[0008] ここで、コインシデンス効果とは、ガラス板に音波が入射したとき、ガラス板の剛性と慣性とによって、ガラス面上を横波が伝播して横波と入射音とが共鳴し、その結果、音の透過が起こる現象をいう。

[0009] 上記特許文献2に記載の遮音層を単層で中間膜として用いて合わせガラスを構成した場合でも、合わせガラスの20℃付近での遮音性が十分ではないことがある。

また、上記特許文献2に記載の遮音層と他の層とが積層された多層中間膜を用いて合わせガラスを構成した場合には、合わせガラスの20℃付近での遮音性をある程度高めることができる。しかし、多層中間膜が上記遮音層を有するため、該多層中間膜を用いた合わせガラスに発泡が生じることがある。

[0010] さらに、近年、合わせガラスの遮音性を高めるために、中間膜中の可塑剤の含有量を多くすることが検討されている。中間膜中の可塑剤の含有量を多くすると、合わせガラスの遮音性を改善できる。しかしながら、可塑剤の含有量を多くすると、合わせガラスに発泡が生じることがある。

[0011] 本発明の目的は、発泡の発生及び発泡の成長を抑制できる合わせガラスを得ることができる合わせガラス用中間膜、並びに該合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラス用多層中間膜及び合わせガラスを提供することである。

[0012] 本発明の限定的な目的は、遮音性に優れており、かつ発泡の発生及び発泡の成長を抑制できる合わせガラスを得ることができる合わせガラス用中間膜、並びに該合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラス用多層中間膜及び合わせガラスを提供することである。

課題を解決するための手段

[0013] 本発明の広い局面によれば、熱可塑性樹脂と可塑剤とを含有し、該熱可塑性樹脂が絶対分子量100万以上の高分子量成分を含み、かつ上記熱可塑性樹脂に占める、上記高分子量成分の割合が7.4%以上であるか、又は、上記熱可塑性樹脂がポリスチレン換算分子量100万以上の高分子量成分を含み、かつ上記熱可塑性樹脂に占める、上記高分子量成分の割合が9%以上である、合わせガラス用中間膜が提供される。

[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、熱可塑性樹脂と可塑剤とが含有され、上記熱可塑性樹脂が絶対分子量100万以上の高分子量成分を含み、かつ上記熱可塑性樹脂に占める、上記高分子量成分の割合が7.4%以上である。

[0015] 本発明に係る合わせガラス用中間膜の他の特定の局面では、上記熱可塑性樹脂は、ポリビニルアセタール樹脂である。

本発明に係る合わせガラス用中間膜の他の特定の局面では、上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率は31モル%以下である。

[0016] 本発明に係る合わせガラス用中間膜のさらに他の特定の局面では、上記熱可塑性樹脂100重量部に対して、上記可塑剤の含有量が40～80重量部の範囲内である。

[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、熱可塑性樹脂と可塑剤とが含有され、上記熱可塑性樹脂がポリスチレン換算分子量100万以上の高分子量成分を含み、かつ上記熱可塑性樹脂に占める、上記高分子

量成分の割合が9%以上である。

[0018] 本発明に係る合わせガラス用多層中間膜は、本発明に従って構成された合わせガラス用中間膜を第1の合わせガラス用中間膜として備え、上記第1の合わせガラス用中間膜の一方の面に積層されており、かつ熱可塑性樹脂と可塑剤とを含有する第2の合わせガラス用中間膜をさらに備える。

[0019] 本発明に係る合わせガラス用多層中間膜のある特定の局面では、上記第1の合わせガラス用中間膜中の上記熱可塑性樹脂100重量部に対する上記可塑剤の含有量は、上記第2の合わせガラス用中間膜中の上記熱可塑性樹脂100重量部に対する上記可塑剤の含有量よりも多い。

[0020] 本発明に係る合わせガラス用多層中間膜の他の特定の局面では、上記第1の合わせガラス用中間膜の他方の面に積層されており、かつ熱可塑性樹脂と可塑剤とを含有する第3の合わせガラス用中間膜がさらに備えられる。

[0021] 本発明に係る合わせガラス用多層中間膜のさらに他の特定の局面では、上記第1の合わせガラス用中間膜中の上記熱可塑性樹脂100重量部に対する上記可塑剤の含有量は、上記第3の合わせガラス用中間膜中の上記熱可塑性樹脂100重量部に対する上記可塑剤の含有量よりも多い。

[0022] なお、例えば、上記第1の合わせガラス用中間膜と上記第2の合わせガラス用中間膜との間で、可塑剤が移行することがある。

本発明に係る合わせガラス用多層中間膜の別の特定の局面では、上記第1の合わせガラス用中間膜中の上記熱可塑性樹脂がポリビニルアセタール樹脂であり、該ポリビニルアセタール樹脂のアセチル化度が8モル%以下であり、かつアセタール化度が70モル%以上である。

[0023] 本発明に係る合わせガラス用多層中間膜のさらに別の特定の局面では、上記第1の合わせガラス用中間膜中の上記熱可塑性樹脂がポリビニルアセタール樹脂であり、該ポリビニルアセタール樹脂のアセチル化度が8モル%を超える。

[0024] 本発明に係る合わせガラスは、第1、第2の合わせガラス構成部材と、該第1、第2の合わせガラス構成部材の間に挟み込まれた中間膜又は多層中間

膜とを備えており、該中間膜又は多層中間膜が、本発明に従って構成された合わせガラス用中間膜又は合わせガラス用多層中間膜である。

発明の効果

[0025] 本発明に係る合わせガラス用中間膜は、熱可塑性樹脂と可塑剤とを含有し、該熱可塑性樹脂が絶対分子量100万以上の高分子量成分を含み、かつ上記熱可塑性樹脂に占める、上記高分子量成分の割合が7.4%以上であるか、又は上記熱可塑性樹脂がポリスチレン換算分子量100万以上の高分子量成分を含み、かつ上記熱可塑性樹脂に占める、上記高分子量成分の割合が9%以上であるので、合わせガラスを構成するのに用いられた場合、合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長を抑制できる。さらに、得られた合わせガラスの遮音性を高めることができる。

図面の簡単な説明

[0026] [図1] 図1は、本発明の一実施形態に係る合わせガラス用多層中間膜を模式的に示す断面図である。

[図2] 図2は、本発明の一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3] 図3は、図1に示す合わせガラス用多層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。

発明を実施するための形態

[0027] 以下、本発明の詳細を説明する。

本発明に係る合わせガラス用中間膜は、熱可塑性樹脂と可塑剤とを含有する。該熱可塑性樹脂は、絶対分子量100万以上の高分子量成分（以下、高分子量成分Xと記載することがある）を含むか、又は上記熱可塑性樹脂は、ポリスチレン換算分子量（以下、分子量yと記載することがある）100万以上の高分子量成分（以下、高分子量成分Yと記載することがある）を含む。該高分子量成分X、Yは、熱可塑性樹脂である。本発明に係る合わせガラス用中間膜では、上記熱可塑性樹脂に占める、上記高分子量成分Xの割合が7.4%以上であるか、又は上記熱可塑性樹脂に占める、上記高分子量成分

Yの割合が9%以上である。

[0028] 図1に、本発明の一実施形態に係る合わせガラス用多層中間膜を模式的に断面図で示す。

図1に示す多層中間膜1は、第1の中間膜2と、第1の中間膜2の一方の面2a（第1の面）に積層された第2の中間膜3と、第1の中間膜2の他方の面2b（第2の面）に積層された第3の中間膜4とを備える。多層中間膜1は、合わせガラスを得るために用いられる。多層中間膜1は、合わせガラス用多層中間膜である。第1～第3の中間膜2～4は、合わせガラス用中間膜である。

[0029] 本実施形態では、第1の中間膜2は中間層であり、かつ第2、第3の中間膜3、4は表面層である。このように、第2、第3の中間膜3、4の双方を用いることが好ましい。ただし、第3の中間膜4を用いずに、第2の中間膜3のみを用いてもよい。第2、第3の中間膜3、4の外側の表面3a、4aに、他の合わせガラス用中間膜がさらに積層されていてもよい。

[0030] 第1～第3の中間膜2～4はそれぞれ、熱可塑性樹脂と可塑剤とを含有する。第1の中間膜2に含まれている熱可塑性樹脂は、絶対分子量100万以上の高分子量成分Xを含み、かつ上記熱可塑性樹脂に占める、上記高分子量成分Xの割合は7.4%以上である。第1の中間膜2に含まれている熱可塑性樹脂は、分子量yが100万以上である高分子量成分Yを含み、かつ上記熱可塑性樹脂に占める、上記高分子量成分Yの割合が9%以上であってもよい。

[0031] なお、上記熱可塑性樹脂に占める、上記高分子量成分Xの割合は、上記絶対分子量を測定する際に得られる熱可塑性樹脂成分のピーク面積に占める、上記高分子量成分Xに相当する領域の面積の割合を百分率(%)で表した値で定義される。また、上記熱可塑性樹脂に占める、上記高分子量成分Yの割合は、上記ポリスチレン換算分子量を測定する際に得られる熱可塑性樹脂成分のピーク面積に占める、上記高分子量成分Yに相当する領域の面積の割合を百分率(%)で表した値で定義される。

[0032] 第2, 第3の中間膜3, 4の組成は、第1の中間膜2の組成と異なることが好ましい。第2, 第3の中間膜3, 4に含まれている熱可塑性樹脂は、絶対分子量100万以上の高分子量成分Xを含み、かつ上記熱可塑性樹脂に占める、上記高分子量成分Xの割合が7.4%以上であってもよく、分子量yが100万以上である高分子量成分Yを含み、かつ上記熱可塑性樹脂に占める、上記高分子量成分Yの割合が9%以上であってもよい。

[0033] 図2に、本発明の一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。

図2に示す合わせガラス用中間膜21は、単層の中間膜である。中間膜21は、合わせガラスを得るために用いられる。中間膜21は、合わせガラス用中間膜である。

[0034] 中間膜21は、熱可塑性樹脂と可塑剤とを含有する。中間膜21中に含まれている熱可塑性樹脂は、絶対分子量100万以上の高分子量成分Xを含み、かつ熱可塑性樹脂に占める、上記高分子量成分Xの割合は7.4%以上である。中間膜21に含まれている熱可塑性樹脂は、分子量yが100万以上である高分子量成分Yを含み、かつ上記熱可塑性樹脂に占める、上記高分子量成分Yの割合が9%以上であってもよい。

[0035] 単層の中間膜21よりも、多層中間膜1の方が好ましい。第1の中間膜2の両面に第2, 第3の中間膜3, 4が積層されている場合には、第1の中間膜2の接着力が低くても、第2, 第3の中間膜3, 4の接着力を高くすることにより、多層中間膜1と合わせガラス構成部材との接着力を高めることができる。このため、合わせガラスの耐貫通性をより一層高めることができる。

[0036] さらに、多層中間膜1の場合には、単層の中間膜21の場合と比べて、合わせガラスに発泡が生じやすい傾向がある。特に、第1の中間膜2中の熱可塑性樹脂100重量部に対する可塑剤の含有量が、第2, 第3の中間膜3, 4中の熱可塑性樹脂100重量部に対する可塑剤の含有量よりも多いと、発泡がより一層生じやすい傾向がある。さらに、発泡が一旦生じると、発生し

た発泡が核となり、発泡が成長する傾向がある。しかし、本実施形態では、第1の中間膜2に含まれている熱可塑性樹脂が絶対分子量100万以上の高分子量成分を上記特定の割合で含むので、合わせガラスに発泡が生じるのを抑制できる。第1の中間膜2に含まれている熱可塑性樹脂の分子量 y が100万以上である高分子量成分 Y を上記特定の割合で含んでいても、合わせガラスに発泡が生じるのを抑制できる。

[0037] 合わせガラスの遮音性をより一層高め、かつ発泡の発生及び発泡の成長をより一層抑制する観点からは、中間膜1, 2, 21に含まれている熱可塑性樹脂に占める、絶対分子量100万以上の高分子量成分 X の割合の好ましい下限は8%、より好ましい下限は8.5%、更に好ましい下限は9%、特に好ましい下限は9.5%、最も好ましい下限は10%である。合わせガラスの遮音性をより一層高め、かつ発泡の発生及び発泡の成長を更に一層抑制できることから、高分子量成分 X の割合は、好ましくは11%以上、より好ましくは12%以上、更に好ましくは14%以上、特に好ましくは16%以上である。上記高分子量成分 X の割合の好ましい上限は特に限定されないが、好ましい上限は40%、より好ましい上限は30%、更に好ましい上限は25%である。

[0038] 中間膜1, 2, 21中の熱可塑性樹脂が、分子量 y が100万以上である高分子量成分 Y を含む場合には、高分子量成分 Y を含む単層の中間膜及び多層の中間膜の内の高分子量成分 Y を含む中間膜（第1の合わせガラス用中間膜）に含まれている熱可塑性樹脂に占める、分子量 y が100万以上である高分子量成分 Y の割合の好ましい下限は10%、より好ましい下限は11%、更に好ましい下限は11.5%、特に好ましい下限は12%である。合わせガラスの遮音性をより一層高め、かつ発泡の発生及び発泡の成長を更に一層抑制できることから、高分子量成分 Y の割合は、好ましくは12.5%以上、より好ましくは13.5%以上、更に好ましくは14%以上、特に好ましくは15%以上、最も好ましくは18%以上である。上記高分子量成分 Y の割合の上限は特に限定されないが、好ましい上限は40%、より好ましい

上限は30%、更に好ましい上限は25%である。高分子量成分Yの割合が上記下限以上であると、合わせガラスの遮音性をより一層高め、かつ発泡の発生及び発泡の成長をより一層抑制することができる。

[0039] 合わせガラスの耐貫通性をより一層高める観点からは、多層中間膜1及び単層の中間膜21の厚みの好ましい下限は0.05mm、より好ましい下限は0.25mm、好ましい上限は3mm、より好ましい上限は1.5mmである。多層中間膜1及び単層の中間膜21の厚みが上記好ましい下限及び上記好ましい上限をそれぞれ満たすと、合わせガラスの耐貫通性及び透明性をより一層高めることができる。

[0040] (熱可塑性樹脂)

中間膜2~4, 21に含まれている上記熱可塑性樹脂の種類は特に限定されない。上記熱可塑性樹脂は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。

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。

[0041] 上記熱可塑性樹脂の重量平均分子量の好ましい下限は100,000、より好ましい下限は300,000、好ましい上限は10,000,000、より好ましい上限は5,000,000である。上記熱可塑性樹脂の重量平均分子量が上記好ましい下限を切ると、中間膜の強度が低下することがある。上記熱可塑性樹脂の重量平均分子量が上記好ましい上限を超えると、得られる中間膜の強度が強くなりすぎることがある。なお、上記重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)測定によるポリスチレン換算での重量平均分子量を示す。

[0042] 上記熱可塑性樹脂は、ポリビニルアセタール樹脂であることが好ましい。ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤との併用により、合わせガラス構成部材に対する中間膜又は多層中間膜の接着力をより一層高くすることができる。上記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、上記高分子

量成分 X、Y はポリビニルアセタール樹脂である。

- [0043] さらに、上記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、中間膜又は多層中間膜を用いた合わせガラスに発泡が特に生じやすい傾向がある。しかし、ポリビニルアセタール樹脂が、絶対分子量 100 万以上の高分子量成分 X 又は分子量 y が 100 万以上である高分子量成分 Y を上記特定の割合で含むので、合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長を十分に抑制できる。
- [0044] 中間層である中間膜 2 及び単層の中間膜 2 1 がポリビニルアセタール樹脂を含む場合には、中間膜 2、2 1 に含まれているポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率（水酸基量）は、31 モル%以下であることが好ましい。この場合には、合わせガラスの遮音性をより一層高くすることができる。なお、ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率が低いと、ポリビニルアセタール樹脂の親水性が低くなる。このため、可塑剤の含有量を多くすることができ、この結果、合わせガラスの遮音性をより一層高くすることができる。
- [0045] 中間膜 2、2 1 に含まれている上記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率の好ましい下限は 13 モル%、より好ましい下限は 18 モル%、更に好ましい下限は 20 モル%、特に好ましい下限は 21.5 モル%、より好ましい上限は 30 モル%、更に好ましい上限は 28 モル%、特に好ましい上限は 26 モル%である。上記水酸基の含有率が上記好ましい下限を満たすと、中間膜 2、2 1 の接着力をより一層高くすることができる。上記水酸基の含有率が上記好ましい上限を満たすと、合わせガラスの遮音性をより一層高めることができる。さらに、多層中間膜 1 及び中間膜 2 1 の柔軟性が高くなり、多層中間膜 1 及び中間膜 2 1 の取扱性をより一層高めることができる。
- [0046] 中間膜 3、4 がポリビニルアセタール樹脂を含む場合には、中間膜 3、4 に含まれているポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率の好ましい下限は 26 モル%、より好ましい下限は 27 モル%、更に好ましい下限は 28 モル%、好ましい上限は 35 モル%、より好ましい上限は 33 モル%、更に好

ましい上限は32モル%、特に好ましい上限は31.5モル%である。上記水酸基の含有率が上記好ましい下限を満たすと、中間膜3,4の接着力をより一層高くすることができる。上記水酸基の含有率が上記好ましい上限を満たすと、多層中間膜1の柔軟性が高くなり、多層中間膜1の取扱性をより一層高めることができる。

[0047] 合わせガラスの遮音性をより一層高める観点からは、中間膜2に含まれているポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率は、中間膜3,4に含まれているポリビニルアセタール樹脂の水酸基の各含有率よりも低いことが好ましい。合わせガラスの遮音性をさらに一層高める観点からは、中間膜2に含まれているポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率は、中間膜3,4に含まれているポリビニルアセタール樹脂の水酸基の各含有率よりも1モル%以上低いことが好ましく、3モル%以上低いことがより好ましく、5モル%以上低いことが更に好ましく、7モル%以上低いことが特に好ましい。

[0048] 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（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 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、上記ポリビニルアセタール樹脂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。

[0049] 中間膜2,21がポリビニルアセタール樹脂を含む場合には、中間膜2,21に含まれている上記ポリビニルアセタール樹脂のアセチル化度（アセチル基量）の好ましい下限は0.1モル%、より好ましい下限は0.4モル%、更に好ましい下限は0.8モル%、好ましい上限は30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%、特に好ましい上限は15モル%である。中間膜3,4がポリビニルアセタール樹脂を含む場合には、中間膜3,4に含まれているポリビニルアセタール樹脂のアセチル化度の好ましい下限は0.1モル%、より好ましい下限は0.4モル%、好ましい上限は20モル%、より好ましい上限は5モル%、更に好ましい上限は

2モル%、特に好ましい上限は1.5モル%である。上記アセチル化度が上記好ましい下限を満たすと、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤との相溶性がより一層高くなり、かつ中間膜及び多層中間膜のガラス転移温度を十分に低下させることができる。上記アセチル化度が上記好ましい上限を満たすと、中間膜及び多層中間膜の耐湿性をより一層高めることができる。

[0050] 合わせガラスの遮音性をより一層高める観点からは、中間膜2に含まれているポリビニルアセタール樹脂のアセチル化度は、中間膜3, 4に含まれているポリビニルアセタール樹脂のアセチル化度よりも高いことが好ましい。合わせガラスの遮音性をさらに一層高める観点からは、中間膜2に含まれているポリビニルアセタール樹脂のアセチル化度は、中間膜3, 4に含まれているポリビニルアセタール樹脂のアセチル化度よりも0.1モル%以上高いことが好ましく、1モル%以上高いことがより好ましく、5モル%以上高いことが更に好ましく、10モル%以上高いことが特に好ましい。

[0051] 合わせガラスの遮音性をより一層高める観点からは、中間膜2に含まれているポリビニルアセタール樹脂のアセチル化度は、中間膜3, 4に含まれているポリビニルアセタール樹脂のアセチル化度よりも高いことが好ましい。

[0052] 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（モル%）で表した値である。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。

[0053] 絶対分子量100万以上の高分子量成分を上記特定の割合で含む中間膜2, 21がポリビニルアセタール樹脂を含む場合には、中間膜2, 21に含まれているポリビニルアセタール樹脂のアセチル化度の好ましい下限は50モル%、より好ましい下限は53モル%、更に好ましい下限は60モル%、特に好ましい下限は63モル%、好ましい上限は85モル%、より好ましい

上限は80モル%、更に好ましい上限は78モル%である。中間膜3, 4がポリビニルアセタール樹脂を含む場合には、中間膜3, 4に含まれているポリビニルアセタール樹脂のアセタール化度の好ましい下限は55モル%、より好ましい下限は60モル%、更に好ましい下限は65モル%、特に好ましい下限は67モル%、好ましい上限は75モル%、より好ましい上限は72モル%、更に好ましい上限は71モル%である。上記アセタール化度が上記好ましい下限を満たすと、ポリビニルアセタール樹脂と可塑剤との相溶性がより一層高くなり、かつ中間膜及び多層中間膜のガラス転移温度を十分に低下させることができる。上記アセタール化度が上記好ましい上限を満たすと、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を短縮できる。

[0054] 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（モル%）で表した値である。

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、アセチル基量とビニルアルコール量（水酸基の含有率）とを測定し、得られた測定結果からモル分率を算出し、ついで、100モル%からアセチル基量とビニルアルコール量とを差し引くことにより算出され得る。

[0055] なお、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、上記アセタール化度（ブチラール化度）及びアセチル基量は、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。

[0056] 中間膜2, 21がポリビニルアセタール樹脂を含む場合、中間膜2, 21の遮音性がより一層高くなることから、上記ポリビニルアセタール樹脂は、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、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 であってもよく、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 であってもよい。

[0057] 上記ポリビニルアセタール樹脂 A のアセチル化度 a の上限は 8 モル%、好ましい上限は 7.5 モル%、より好ましい上限は 7 モル%、更に好ましい上限は 6.5 モル%、特に好ましい上限は 5 モル%、好ましい下限は 0.1 モル%、より好ましい下限は 0.5 モル%、更に好ましい下限は 0.8 モル%、特に好ましい下限は 1 モル%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をより一層高めることができる。

[0058] 上記ポリビニルアセタール樹脂 A のアセタール化度 a の下限は 70 モル%、好ましい下限は 70.5 モル%、より好ましい下限は 71 モル%、更に好ましい下限は 71.5 モル%、特に好ましい下限は 72 モル%、好ましい上限は 85 モル%、より好ましい上限は 83 モル%、更に好ましい上限は 81 モル%、特に好ましい上限は 79 モル%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をより一層高めることができる。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。

[0059] 上記ポリビニルアセタール樹脂 A の水酸基の含有率 a の好ましい下限は 18 モル%、より好ましい下限は 19 モル%、更に好ましい下限は 20 モル%、特に好ましい下限は 21 モル%、好ましい上限は 31 モル%、より好ましい上限は 30 モル%、更に好ましい上限は 29 モル%、特に好ましい上限は 28 モル%である。上記水酸基の含有率 a が上記好ましい下限を満たすと、中間膜の接着力をより一層高くすることができる。上記水酸基の含有率 a が上記好ましい上限を満たすと、合わせガラスの遮音性をより一層高めることができる。

[0060] 上記ポリビニルアセタール樹脂 A はポリビニルブチラール樹脂であること

が好ましい。

上記ポリビニルアセタール樹脂Bのアセチル化度bは、8モル%を超え、好ましい下限は9モル%、より好ましい下限は9.5モル%、更に好ましい下限は10モル%、特に好ましい下限は10.5モル%、好ましい上限は30モル%、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%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をより一層高めることができる。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。

[0061] 上記ポリビニルアセタール樹脂Bのアセタール化度bの好ましい下限は50モル%、より好ましい下限は53モル%、更に好ましい下限は55モル%、特に好ましい下限は60モル%、好ましい上限は80モル%、より好ましい上限は78モル%、更に好ましい上限は76モル%、特に好ましい上限は74モル%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をより一層高めることができる。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。

[0062] 上記ポリビニルアセタール樹脂Bの水酸基の含有率bの好ましい下限は18モル%、より好ましい下限は19モル%、更に好ましい下限は20モル%、特に好ましい下限は21モル%、好ましい上限は31モル%、より好ましい上限は30モル%、更に好ましい上限は29モル%、特に好ましい上限は28モル%である。上記水酸基の含有率bが上記好ましい下限を満たすと、中間膜の接着力をより一層高くすることができる。上記水酸基の含有率bが上記好ましい上限を満たすと、合わせガラスの遮音性をより一層高めることができる。

[0063] 上記ポリビニルアセタール樹脂Bはポリビニルブチラール樹脂であることが好ましい。

上記ポリビニルアセタール樹脂A及び上記ポリビニルアセタール樹脂B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で得られる。上記アルデヒドは炭素数1～10のアルデヒドであることが好ましく、炭素数4又は5のアルデヒドであることがより好ましい。

[0064] 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、重合度が1600～3000のポリビニルアルコールXをアルデヒドでアセタール化することで得られるポリビニルアセタール樹脂であることが好ましい。合わせガラス用中間膜を用いた合わせガラスにおける発泡の発生及び発泡の成長を十分に抑制できることから、上記ポリビニルアルコールXの重合度は、1700以上であることが好ましく、1700を超えることが好ましく、1800以上であることが好ましく、2000以上であることが好ましく、2100以上であることが好ましく、2200以上であることが好ましく、2900以下であることが好ましく、2800以下であることが好ましい。上記重合度は、平均重合度を示す。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。

[0065] (絶対分子量100万以上の高分子量成分X又は分子量yが100万以上である高分子量成分Yを含むポリビニルアセタール樹脂の製造方法)

絶対分子量100万以上の高分子量成分X又は分子量yが100万以上である高分子量成分Yを上記下限以上の割合で含む熱可塑性樹脂の一例として、絶対分子量100万以上の高分子量成分X又は分子量yが100万以上である高分子量成分Yを含むポリビニルアセタール樹脂の具体的な製造方法を以下説明する。

[0066] まず、ポリビニルアルコールを用意する。該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%の範囲内であり、75～99.8モル%の範囲内であることが好ましく、80～99.8モル%の範囲内であることがより好ましい。

[0067] 上記ポリビニルアルコールの重合度の好ましい下限は200、より好まし

い下限は500、更に好ましい下限は1,000、特に好ましい下限は1,500、好ましい上限は3,000、より好ましい上限は2,900、更に好ましい上限は2,800、特に好ましい上限は2,700である。上記重合度が低すぎると、合わせガラスの耐貫通性が低下する傾向がある。上記重合度が高すぎると、中間膜の成形が困難となることがある。

[0068] 次に、上記ポリビニルアルコールとアルデヒドとを触媒を用いて反応させ、ポリビニルアルコールをアセタール化する。このとき、上記ポリビニルアルコールを含む溶液を用いてもよい。該ポリビニルアルコールを含む溶液に用いられる溶媒としては、水等が挙げられる。

[0069] 中間膜2,21に含まれているポリビニルアセタール樹脂の製造方法は、ポリビニルアルコールとアルデヒドとを触媒を用いて反応させ、ポリビニルアルコールをアセタール化することにより、ポリビニルアセタール樹脂を得る製造方法であることが好ましい。

[0070] 中間膜2,21の製造方法は、ポリビニルアルコールとアルデヒドとを触媒を用いて反応させ、ポリビニルアルコールをアセタール化することにより、ポリビニルアセタール樹脂を得る工程と、得られたポリビニルアセタール樹脂と可塑剤とを混合した混合物を用いて、合わせガラス用中間膜を得る工程とを備えることが好ましい。この合わせガラス用中間膜を得る工程において、又は合わせガラス用中間膜を得た後に、該合わせガラス用中間膜に、第2の合わせガラス用中間膜を積層することにより、更に必要に応じて第3の合わせガラス用中間膜を積層することにより、多層中間膜を得ることができる。また、中間膜21、及び、第2の合わせガラス用中間膜を共押出することにより多層中間膜を製造してもよく、中間膜21、第2の合わせガラス用中間膜、及び、第3の合わせガラス用中間膜を共押出することにより多層中間膜を製造してもよい。

[0071] 上記アルデヒドは特に限定されない。上記アルデヒドとして、一般には、炭素数が1~10のアルデヒドが好適に用いられる。上記炭素数が1~10のアルデヒドとしては、例えば、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、ホルムアルデヒド、アセト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、*n*-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、*n*-ブチルアルデヒドがより好ましい。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。

[0072] 絶対分子量100万以上又は分子量 y が100万以上の高分子量成分 X 、 Y を上記特定の割合で含むポリビニルアセタール樹脂を容易に得る観点からは、例えば、アルデヒドによるアセタール化反応の前又は途中で、隣接するポリビニルアルコールの主鎖を架橋させるために、ジアルデヒド等の架橋剤を添加する方法や、過剰のアルデヒドを投入することにより、分子間のアセタール化反応を進行させる方法や、重合度が高いポリビニルアルコールを添加する方法等が挙げられる。また、これらの方法は単独で用いられてもよいし、2種以上が併用されてもよい。

[0073] 上記触媒は、酸触媒であることが好ましい。該酸触媒としては、硝酸、塩酸、硫酸、リン酸及びパラトルエンスルホン酸等が挙げられる。

上記ポリスチレン換算分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）測定によるポリスチレン換算での分子量を示す。上記熱可塑性樹脂に占める、上記分子量 y が100万以上である高分子量成分 Y の割合（％）は、上記熱可塑性樹脂のGPCによるポリスチレン換算分子量の測定時に、RI検出器で検出されるピーク面積のうち、分子量 y が100万以上の領域に相当する面積の割合から算出される。なお、ピーク面積とは、測定の対象となる成分のピークとベースラインとの間の面積を意味する。

[0074] ポリスチレン換算分子量は、例えば、以下のようにして測定される。

ポリスチレン換算分子量を測定するために、分子量既知のポリスチレン標準試料のGPC測定を行う。ポリスチレン標準試料（昭和電工社製「Shodex Standard SM-105」、`Shodex Standard`

ard SH-75」)としては、重量平均分子量580、1,260、2,960、5,000、10,100、21,000、28,500、76,600、196,000、630,000、1,130,000、2,190,000、3,150,000、3,900,000の14試料を用いる。それぞれの標準試料ピークのピークトップが示す溶出時間に対して重量平均分子量をプロットし得られる近似直線を検量線として使用する。例えば、表面層と中間層と表面層とがこの順に積層された多層中間膜における中間層中の熱可塑性樹脂に占める、上記分子量 y が100万以上である高分子量成分 Y の割合(%)を測定する場合、恒温恒湿室(湿度30%(±3%)、温度23℃)に1ヶ月放置した多層中間膜から表面層と中間層とを剥離する。剥離された中間層をテトラヒドロフラン(THF)に溶解させ、0.1重量%の溶液を調製する。得られた溶液をGPC装置により分析し、中間層中の熱可塑性樹脂のピーク面積を測定する。次いで、中間層中の熱可塑性樹脂の溶出時間と検量線から、中間層中の熱可塑性樹脂のポリスチレン換算分子量が100万以上の領域に相当する面積を算出する。中間層中の熱可塑性樹脂のポリスチレン換算分子量が100万以上の領域に相当する面積を、中間層中の熱可塑性樹脂のピーク面積で除算した値を百分率(%)で表すことにより、上記熱可塑性樹脂に占める、上記分子量 y が100万以上である高分子量成分 Y の割合(%)を算出できる。例えば、Gel Permeation Chromatography(GPC)装置(日立ハイテック社製「RI:L2490、オートサンプラー:L-2200、ポンプ:L-2130、カラムオープン:L-2350、カラム:GL-A120-SとGL-A100MX-Sの直列」)を用いて、ポリスチレン換算分子量を測定することができる。

[0075] (可塑剤)

中間膜2~4, 21に含まれている上記可塑剤は特に限定されない。上記可塑剤として、従来公知の可塑剤を用いることができる。上記可塑剤は、1種のみが用いられてもよく、2種以上が併用されてもよい。

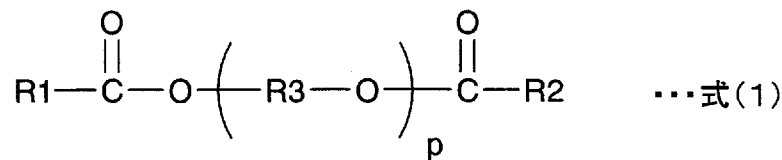
- [0076] 上記可塑剤としては、例えば、一塩基性有機酸エステル及び多塩基性有機酸エステル等の有機エステル可塑剤、並びに有機リン酸可塑剤及び有機亜リン酸可塑剤などのリン酸可塑剤等が挙げられる。なかでも、有機エステル可塑剤が好ましい。上記可塑剤は液状可塑剤であることが好ましい。
- [0077] 上記一塩基性有機酸エステルとしては、特に限定されず、例えば、グリコールと一塩基性有機酸との反応によって得られたグリコールエステル、並びにトリエチレングリコール又はトリプロピレングリコールと一塩基性有機酸とのエステル等が挙げられる。上記グリコールとしては、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコー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。
- [0078] 上記多塩基性有機酸エステルとしては、特に限定されず、例えば、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。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。
- [0079] 上記有機エステル可塑剤としては、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、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。

[0080] 上記有機リン酸可塑剤としては、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及びトリイソプロピルホスフェート等が挙げられる。

[0081] 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。このジエステル可塑剤の使用により、合わせガラスの遮音性をより一層高めることができる。

[0082] [化1]



[0083] 上記式（１）中、R 1 及びR 2 はそれぞれ、炭素数 5 ～ 1 0 の有機基を表し、R 3 は、エチレン基、イソプロピレン基又は n-プロピレン基を表し、p は 3 ～ 1 0 の整数を表す。上記式（１）中の R 1 及びR 2 はそれぞれ、炭素数 6 ～ 1 0 の有機基であることが好ましい。

[0084] 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）及びトリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート（3GH）の内の少なくとも一種を含むことが好ましく、トリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエートを含むことがより好ましい。

[0085] 合わせガラス用中間膜における上記可塑剤の含有量は特に限定されない。

熱可塑性樹脂が絶対分子量 1 0 0 万以上の高分子量成分 X を上記特定の割合で含む中間膜 2, 2 1 の場合は、上記熱可塑性樹脂 1 0 0 重量部に対して

、上記可塑剤の含有量の好ましい下限は40重量部、より好ましい下限は50重量部、更に好ましい下限は55重量部、特に好ましい下限は60重量部、好ましい上限は80重量部、より好ましい上限は78重量部、更に好ましい上限は75重量部、特に好ましい上限は72重量部である。熱可塑性樹脂の分子量 y が100万以上である高分子量成分 Y を上記特定の割合で含む中間膜2, 21の場合にも、上記熱可塑性樹脂100重量部に対して、上記可塑剤の含有量の好ましい下限は40重量部、より好ましい下限は50重量部、更に好ましい下限は55重量部、特に好ましい下限は60重量部、好ましい上限は80重量部、より好ましい上限は78重量部、更に好ましい上限は75重量部、特に好ましい上限は72重量部である。上記可塑剤の含有量が上記好ましい下限を満たすと、合わせガラスの耐貫通性をより一層高めることができる。上記可塑剤の含有量が上記好ましい上限を満たすと、中間膜及び多層中間膜の透明性をより一層高めることができる。

[0086] 中間膜3, 4の場合には、上記熱可塑性樹脂100重量部に対して、上記可塑剤の含有量の好ましい下限は25重量部、より好ましい下限は30重量部、更に好ましい下限は35重量部、好ましい上限は50重量部、より好ましい上限は45重量部、更に好ましい上限は43重量部、特に好ましい上限は38重量部である。上記可塑剤の含有量が上記好ましい下限を満たすと、中間膜の接着力が高くなり、合わせガラスの耐貫通性をより一層高めることができる。上記可塑剤の含有量が上記好ましい上限を満たすと、中間膜及び多層中間膜の透明性をより一層高めることができる。

[0087] 合わせガラスの遮音性をより一層高める観点からは、中間膜2の熱可塑性樹脂100重量部に対する可塑剤の含有量は、中間膜3, 4の熱可塑性樹脂100重量部に対する可塑剤の含有量よりも多いことが好ましい。合わせガラスの遮音性をさらに一層高める観点からは、中間膜2の熱可塑性樹脂100重量部に対する可塑剤の含有量は、中間膜3, 4の熱可塑性樹脂100重量部に対する可塑剤の含有量よりも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

く、20重量部以上多いことが特に好ましい。

[0088] (他の成分)

中間膜2~4, 21はそれぞれ、必要に応じて、紫外線吸収剤、酸化防止剤、光安定剤、難燃剤、帯電防止剤、顔料、染料、接着力調整剤、耐湿剤、蛍光増白剤及び赤外線吸収剤等の添加剤を含有していてもよい。

[0089] (合わせガラス)

本発明に係る合わせガラス用中間膜及び合わせガラス用多層中間膜はそれぞれ、合わせガラスを得るために用いられる。

図3に、図1に示す多層中間膜1を用いた合わせガラスの一例を模式的に断面図で示す。

[0090] 図3に示す合わせガラス11は、第1の合わせガラス構成部材12と、第2の合わせガラス構成部材13と、多層中間膜1とを備える。多層中間膜1は、第1, 第2の合わせガラス構成部材12, 13の間に挟み込まれている。

[0091] 第1の合わせガラス構成部材12は、第2の中間膜3の外側の表面3aに積層されている。第2の合わせガラス構成部材13は、第3の中間膜4の外側の表面4aに積層されている。従って、合わせガラス11は、第1の合わせガラス構成部材12と、第2の中間膜3と、第1の中間膜2と、第3の中間膜4と、第2の合わせガラス構成部材13とがこの順で積層されて構成されている。

[0092] 第1, 第2の合わせガラス構成部材12, 13としては、ガラス板及びPET(ポリエチレンテレフタレート)フィルム等が挙げられる。合わせガラスには、2枚のガラス板の間に中間膜又は多層中間膜が挟み込まれている合わせガラスだけでなく、ガラス板とPETフィルム等との間に中間膜又は多層中間膜が挟み込まれている合わせガラスも含まれる。合わせガラスは、ガラス板を備えた積層体であり、少なくとも1枚のガラス板が用いられていることが好ましい。

[0093] 上記ガラス板としては、無機ガラス及び有機ガラスが挙げられる。上記無

機ガラスとしては、フロート板ガラス、熱線吸収板ガラス、熱線反射板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス、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。

[0094] 第1, 第2の合わせガラス構成部材12, 13の厚みは、好ましくは0.5mm以上、より好ましくは1mm以上、好ましくは5mm以下、より好ましくは3mm以下である。また、合わせガラス構成部材12, 13がガラス板である場合に、該ガラス板の厚みは、1~3mmの範囲内であることが好ましい。合わせガラス構成部材12, 13がPETフィルムである場合に、該PETフィルムの厚みは、0.03~0.5mmの範囲内であることが好ましい。

[0095] 合わせガラスの製造方法は特に限定されない。例えば、第1, 第2の合わせガラス構成部材の間に、中間膜又は多層中間膜を挟んで、押圧ロールに通したり、又はゴムバックに入れて減圧吸引したりして、第1, 第2の合わせガラス構成部材と中間膜又は多層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。

[0096] 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。合わせガラスは、これら以外にも使用できる。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。

[0097] 以下に実施例を挙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。

先ず、以下のポリビニルアセタール樹脂A~Q、U~Zを合成した。

[0098] (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2300、けん化度87.5モル%のポリビニルアルコールを300g投入し、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重量%塩酸を、塩酸濃度が0.6重量%となるように添加し、温度を15℃に調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド14.2gを添加した。その後、n-ブチルアルデヒド170g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15分後に、35重量%塩酸を、塩酸濃度が3.9重量%となるように添加し、45℃に加熱し、45℃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、ポリビニルブチラール樹脂Aを得た。

[0099] 得られたポリビニルブチラール樹脂Aに占める、絶対分子量100万以上の高分子量成分X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は11.5%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Aに占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は13.8%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Aの数平均分子量は102,000、重量平均分子量は750,000、水酸基の含有率は22.3モル%、アセチル化度は12.5モル%、ブチラール化度は65.2モル%であった。

[0100] (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2300、けん化度87.5モル%のポリビニルアルコールを300g投入し、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重量%塩酸を、塩酸濃度が0.6重量%となるように添加し、温度を15℃に調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド14.2gを添加した。そ

の後、*n*-ブチルアルデヒド 175 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 15 分後に、35 重量%塩酸を、塩酸濃度が 3.9 重量%となるように添加し、45°C に加熱し、45°C 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、ポリビニルブチラール樹脂 B を得た。

[0101] 得られたポリビニルブチラール樹脂 B に占める、絶対分子量 100 万以上の高分子量成分 X (ポリビニルブチラール樹脂) の割合は 15.4% であった。得られたポリビニルブチラール樹脂 B に占める、分子量 *y* が 100 万以上である高分子量成分 Y (ポリビニルブチラール樹脂) の割合は 17.3% であった。得られたポリビニルブチラール樹脂 B の数平均分子量は 105,000、重量平均分子量は 1,175,000、水酸基の含有率は 22.0 モル%、アセチル化度は 12.5 モル%、ブチラール化度は 65.5 モル% であった。

[0102] (合成例 3)

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 2700 ml、平均重合度 2300、けん化度 87.5 モル% のポリビニルアルコールを 300 g 投入し、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 重量%塩酸を、塩酸濃度が 0.6 重量%となるように添加し、温度を 15°C に調整した後、攪拌しながら *n*-ブチルアルデヒド 14.2 g を添加した。その後、*n*-ブチルアルデヒド 186 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 15 分後に、35 重量%塩酸を、塩酸濃度が 3.9 重量%となるように添加し、45°C に加熱し、45°C 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、ポリビニルブチラール樹脂 C を得た。

[0103] 得られたポリビニルブチラール樹脂 C に占める、絶対分子量 100 万以上

の高分子量成分X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は20.9%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Cに占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は24.5%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Cの数平均分子量は120,000、重量平均分子量は2,565,000、水酸基の含有率は23.0モル%、アセチル化度は12.5モル%、ブチラール化度は64.5モル%であった。

[0104] （合成例4）

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2400ml、平均重合度1700、けん化度99.2モル%のポリビニルアルコールを300g投入し、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、硝酸濃度が0.45重量%となるように添加し、温度を15℃に調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド27gを添加した。その後、n-ブチルアルデヒド181g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15分後に、60重量%硝酸を、硝酸濃度が2.1重量%となるように添加し、48℃に加熱し、48℃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、ポリビニルブチラール樹脂Dを得た。

[0105] 得られたポリビニルブチラール樹脂Dに占める、絶対分子量100万以上の高分子量成分X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は8%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Dに占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は9.1%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Dの数平均分子量は100,000、重量平均分子量は520,000、水酸基の含有率は21.7モル%、アセチル化度は0.8モル%、ブチラール化度は77.5モル%であった。

[0106] （合成例5）

ポリビニルアセタール樹脂Eの合成：

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水3000ml、平均重合度2300、けん化度87.5モル%のポリビニルアルコールを300g投入し、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、硝酸濃度が0.6重量%となるように添加し、温度を15℃に調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド14gを添加した。その後、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15分後に、60重量%硝酸を、硝酸濃度が1.3重量%となるように添加し、42℃に加熱し、42℃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、ポリビニルブチラール樹脂Eを得た。

[0107] 得られたポリビニルブチラール樹脂Eに占める、絶対分子量100万以上の高分子量成分X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は16.4%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Eに占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は18.7%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Eの数平均分子量は125,000、重量平均分子量は1,062,000、水酸基の含有率は27.0モル%、アセチル化度は12.5モル%、ブチラール化度は60.5モル%であった。

[0108] （合成例6）

ポリビニルアセタール樹脂F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99.2モル%のポリビニルアルコールを300g投入し、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重量%塩酸を、塩酸濃度が0.2重量%となるように添加し、温度を15℃に調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド23gを添加した。その後、n-ブチルアルデヒド143g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15分後に、35重量%塩酸を、塩酸濃度が1.8重量%となるように添加し、60°Cに加熱し、60°C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、ポリビニルブチラール樹脂Fを得た。

[0109] 得られたポリビニルブチラール樹脂Fの数平均分子量は125,000、重量平均分子量は1,062,000、水酸基の含有率は30.4モル%、アセチル化度は0.8モル%、ブチラール化度は68.8モル%であった。

[0110] (合成例7)

ポリビニルアセタール樹脂Gの合成：

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水3000ml、平均重合度2300、けん化度87.5モル%のポリビニルアルコールを300g投入し、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、硝酸濃度が0.6重量%となるように添加し、温度を15°Cに調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド14.2gを添加した。その後、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15分後に、60重量%硝酸を、硝酸濃度が1.3重量%となるように添加し、55°Cに加熱し、55°C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、ポリビニルブチラール樹脂Gを得た。

[0111] 得られたポリビニルブチラール樹脂Gに占める、絶対分子量100万以上の高分子量成分X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は7.3%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Gに占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は8.8%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Gの数平均分子量は85,000、重量平均分子量は509,000、水酸基の含有率は23.0モル%、アセチル化度は12.5モル%、ブチラール化度は64.5モル%であった。

[0112] (合成例 8)

ポリビニルアセタール樹脂 H の合成 :

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水 2400 ml、平均重合度 1700、けん化度 99.2 モル% のポリビニルアルコールを 300 g 投入し、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、硝酸濃度が 0.45 重量% となるように添加し、温度を 15°C に調整した後、攪拌しながら *n*-ブチルアルデヒド 27 g を添加した。その後、*n*-ブチルアルデヒド 181 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 15 分後に、60 重量% 硝酸を、硝酸濃度が 2.1 重量% となるように添加し、55°C に加熱し、55°C 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、ポリビニルブチラール樹脂 H を得た。

[0113] 得られたポリビニルブチラール樹脂 H に占める、絶対分子量 100 万以上の高分子量成分 X (ポリビニルブチラール樹脂) の割合は 6.5% であった。得られたポリビニルブチラール樹脂 H に占める、分子量 *y* が 100 万以上である高分子量成分 Y (ポリビニルブチラール樹脂) の割合は 7.6% であった。得られたポリビニルブチラール樹脂 H の数平均分子量は 112,000、重量平均分子量は 500,000、水酸基の含有率は 21.2 モル%、アセチル化度は 0.8 モル%、ブチラール化度は 78.0 モル% であった。

[0114] (合成例 9)

ポリビニルアセタール樹脂 I の合成 :

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水 3000 ml、平均重合度 2300、けん化度 86.9 モル% のポリビニルアルコールを 300 g 投入し、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、硝酸濃度が 0.6 重量% となるように添加し、温度を 15°C に調整した後、攪拌しながら *n*-ブチルアルデヒド 13 g を添加した。その後、*n*-ブチルアルデヒド 180 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15分後に、60重量%硝酸を、硝酸濃度が1.7重量%となるように添加し、52℃に加熱し、52℃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、ポリビニルブチラール樹脂Iを得た。

[0115] 得られたポリビニルブチラール樹脂Iに占める、絶対分子量100万以上の高分子量成分X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は9%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Iに占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は11.6%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Iの数平均分子量は165,000、重量平均分子量は550,000、水酸基の含有率は22.9モル%、アセチル化度は13.1モル%、ブチラール化度は64.0モル%であった。

[0116] （合成例10）

ポリビニルアセタール樹脂J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2500、けん化度99.2モル%のポリビニルアルコールを300g投入し、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、硝酸濃度が0.6重量%となるように添加し、温度を15℃に調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド13gを添加した。その後、n-ブチルアルデヒド200g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15分後に、60重量%硝酸を、硝酸濃度が2.0重量%となるように添加し、52℃に加熱し、52℃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、ポリビニルブチラール樹脂Jを得た。

[0117] 得られたポリビニルブチラール樹脂Jに占める、絶対分子量100万以上の高分子量成分X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は9.5%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Jに占める、分子量yが100万以上

である高分子量成分Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は11.8%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Jの数平均分子量は167,000、重量平均分子量は448,000、水酸基の含有率は21.2モル%、アセチル化度は0.8モル%、ブチラール化度は78.0モル%であった。

[0118] （合成例11）

ポリビニルアセタール樹脂Kの合成：

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水3000ml、平均重合度2320、けん化度94.4モル%のポリビニルアルコールを300g投入し、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、硝酸濃度が0.6重量%となるように添加し、温度を15°Cに調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド13gを添加した。その後、n-ブチルアルデヒド205g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15分後に、60重量%硝酸を、硝酸濃度が2.3重量%となるように添加し、51°Cに加熱し、51°C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、ポリビニルブチラール樹脂Kを得た。

[0119] 得られたポリビニルブチラール樹脂Kに占める、絶対分子量100万以上の高分子量成分X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は9.8%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Kに占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は12.0%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Kの数平均分子量は155,000、重量平均分子量は530,000、水酸基の含有率は21.9モル%、アセチル化度は5.6モル%、ブチラール化度は72.5モル%であった。

[0120] （合成例12）

ポリビニルアセタール樹脂L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87.5モル%のポリビニルアルコールを300g投入し、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、硝酸濃度が0.6重量%となるように添加し、温度を15℃に調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド13gを添加した。その後、n-ブチルアルデヒド175g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15分後に、60重量%硝酸を、硝酸濃度が1.9重量%となるように添加し、53℃に加熱し、53℃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、ポリビニルブチラール樹脂Lを得た。

[0121] 得られたポリビニルブチラール樹脂Lに占める、絶対分子量100万以上の高分子量成分X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は7.5%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Lに占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は9.0%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Lの数平均分子量は158,000、重量平均分子量は546,000、水酸基の含有率は23.5モル%、アセチル化度は12.5モル%、ブチラール化度は64.0モル%であった。

[0122] （合成例13）

ポリビニルアセタール樹脂Mの合成：

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水3200ml、平均重合度2300、けん化度99.2モル%のポリビニルアルコールを300g投入し、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、硝酸濃度が0.4重量%となるように添加し、温度を15℃に調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド17gを添加した。その後、n-ブチルアルデヒド170g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15分後に、60重量%硝酸を

、硝酸濃度が2.1重量%となるように添加し、55°Cに加熱し、55°Cで2.5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、ポリビニルブチラール樹脂Mを得た。

[0123] 得られたポリビニルブチラール樹脂Mに占める、絶対分子量100万以上の高分子量成分X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は6.9%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Mに占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は8.4%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Mの数平均分子量は148,000、重量平均分子量は410,000、水酸基の含有率は20.4モル%、アセチル化度は0.8モル%、ブチラール化度は78.8モル%であった。

[0124] （合成例14）

ポリビニルアセタール樹脂Nの合成：

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水3200ml、平均重合度2300、けん化度87.8モル%のポリビニルアルコールを300g投入し、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、硝酸濃度が0.5重量%となるように添加し、温度を15°Cに調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド11gを添加した。その後、n-ブチルアルデヒド160g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15分後に、60重量%硝酸を、硝酸濃度が1.7重量%となるように添加し、57°Cに加熱し、57°C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、ポリビニルブチラール樹脂Nを得た。

[0125] 得られたポリビニルブチラール樹脂Nに占める、絶対分子量100万以上の高分子量成分X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は7.2%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Nに占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は8.9%であ

った。得られたポリビニルブチラール樹脂Nの数平均分子量は152,000、重量平均分子量は430,000、水酸基の含有率は23.4モル%、アセチル化度は12.2モル%、ブチラール化度は64.4モル%であった。

[0126] (合成例15)

ポリビニルアセタール樹脂O合成：

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水3000ml、平均重合度2000、けん化度93.5モル%のポリビニルアルコールを300g投入し、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、硝酸濃度が0.6重量%となるように添加し、温度を15℃に調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド11gを添加した。その後、n-ブチルアルデヒド170g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15分後に、60重量%硝酸を、硝酸濃度が1.8重量%となるように添加し、58℃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、ポリビニルブチラール樹脂Oを得た。

[0127] 得られたポリビニルブチラール樹脂Oに占める、絶対分子量100万以上の高分子量成分X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は6.6%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Oに占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は7.6%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Oの数平均分子量は138,000、重量平均分子量は402,000、水酸基の含有率は20.4モル%、アセチル化度は6.5モル%、ブチラール化度は73.1モル%であった。

[0128] (合成例16)

ポリビニルアセタール樹脂P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98.9モル%のポリビニルアルコールを300g投入し、

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、硝酸濃度が0.7重量%となるように添加し、温度を15°Cに調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド15gを添加した。その後、n-ブチルアルデヒド175g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15分後に、60重量%硝酸を、硝酸濃度が1.6重量%となるように添加し、52°Cに加熱し、52°C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、ポリビニルブチラール樹脂Pを得た。

[0129] 得られたポリビニルブチラール樹脂Pに占める、絶対分子量100万以上の高分子量成分X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は5.3%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Pに占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は6.8%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Pの数平均分子量は140,000、重量平均分子量は390,000、水酸基の含有率は21.0モル%、アセチル化度は1.1モル%、ブチラール化度は77.9モル%であった。

[0130] （合成例17）

ポリビニルアセタール樹脂Qの合成：

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水3350ml、平均重合度1700、けん化度87.8モル%のポリビニルアルコールを300g投入し、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、硝酸濃度が0.5重量%となるように添加し、温度を15°Cに調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド15gを添加した。その後、n-ブチルアルデヒド150g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15分後に、60重量%硝酸を、硝酸濃度が1.7重量%となるように添加し、57°Cに加熱し、57°Cで2.5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、ポリビニルブチラール樹脂

Qを得た。

[0131] 得られたポリビニルブチラール樹脂Qに占める、絶対分子量100万以上の高分子量成分X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は5.1%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Qに占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は6.4%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Qの数平均分子量は143,000、重量平均分子量は395,000、水酸基の含有率は22.8モル%、アセチル化度は12.2モル%、ブチラール化度は65.0モル%であった。

[0132] （合成例18）

ポリビニルアセタール樹脂Uの合成：

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水3200ml、平均重合度2380、けん化度90.5モル%のポリビニルアルコールを300g投入し、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、硝酸濃度が0.55重量%となるように添加し、温度を15℃に調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド13gを添加した。その後、n-ブチルアルデヒド180g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15分後に、60重量%硝酸を、硝酸濃度が1.8重量%となるように添加し、55℃に加熱し、55℃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、ポリビニルブチラール樹脂Uを得た。

[0133] 得られたポリビニルブチラール樹脂Uに占める、絶対分子量100万以上の高分子量成分X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は9.4%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Uに占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は11.5%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Uの数平均分子量は170,000、重量平均分子量は530,000、水酸基の含有率は23モル%、アセチ

ル化度は9.5モル%、ブチラール化度は67.5モル%であった。

[0134] (合成例19)

ポリビニルアセタール樹脂Vの合成：

ポリビニルアセタール樹脂Vの合成：

[0135] 攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水3400ml、平均重合度2450、けん化度82.5モル%のポリビニルアルコールを300g投入し、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、硝酸濃度が0.65重量%となるように添加し、温度を15°Cに調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド13gを添加した。その後、n-ブチルアルデヒド175g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15分後に、60重量%硝酸を、硝酸濃度1.9重量%となるように添加し、55°Cに加熱し、55°Cで2.5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、ポリビニルブチラール樹脂Vを得た。

[0136] 得られたポリビニルブチラール樹脂Vに占める、絶対分子量100万以上の高分子量成分X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は8.5%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Vに占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は10.9%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Vの数平均分子量は150,000、重量平均分子量は500,000、水酸基の含有率は23.2モル%、アセチル化度は17.5モル%、ブチラール化度は59.3モル%であった。

[0137] (合成例20)

ポリビニルアセタール樹脂Wの合成：

攪拌装置を備えた反応器に、イオン交換水3500ml、平均重合度2500、けん化度77.7モル%のポリビニルアルコールを300g投入し、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、硝酸濃度が0.5重量%となるように添加し、温度を15°Cに

調整した後、攪拌しながら *n*-ブチルアルデヒド 15 g を添加した。その後、*n*-ブチルアルデヒド 185 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 15 分後に、60 重量%硝酸を、硝酸濃度が 2.0 重量%となるように添加し、51°C に加熱し、51°C 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、ポリビニルブチラール樹脂 W を得た。

[0138] 得られたポリビニルブチラール樹脂 W に占める、絶対分子量 100 万以上の高分子量成分 X (ポリビニルブチラール樹脂) の割合は 12.5% であった。得られたポリビニルブチラール樹脂 W に占める、分子量 *y* が 100 万以上である高分子量成分 Y (ポリビニルブチラール樹脂) の割合は 15% であった。得られたポリビニルブチラール樹脂 W の数平均分子量は 170,000、重量平均分子量は 650,000、水酸基の含有率は 24 モル%、アセチル化度は 22.3 モル%、ブチラール化度は 53.7 モル% であった。

[0139] (合成例 21)

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 2900 ml、平均重合度 1700、けん化度 92.6 モル% のポリビニルアルコールを 300 g 投入し、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、硝酸濃度が 0.5 重量%となるように添加し、温度を 15°C に調整した後、攪拌しながら *n*-ブチルアルデヒド 14 g を添加した。その後、*n*-ブチルアルデヒド 200 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 15 分後に、60 重量%硝酸を、硝酸濃度が 2.1 重量%となるように添加し、50°C に加熱し、50°C 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、ポリビニルブチラール樹脂 X を得た。

[0140] 得られたポリビニルブチラール樹脂 X に占める、絶対分子量 100 万以上

の高分子量成分X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は17.3%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Xに占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は19.8%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Xの数平均分子量は160,000、重量平均分子量は670,000、水酸基の含有率は22モル%、アセチル化度は7.4モル%、ブチラール化度は70.6モル%であった。

[0141] （合成例22）

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3300ml、平均重合度2350、けん化度95.8モル%のポリビニルアルコールを300g投入し、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、硝酸濃度が0.6重量%となるように添加し、温度を15℃に調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド14gを添加した。その後、n-ブチルアルデヒド200g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15分後に、60重量%硝酸を、硝酸濃度が2.3重量%となるように添加し、52℃に加熱し、52℃で2.5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、ポリビニルブチラール樹脂Yを得た。

[0142] 得られたポリビニルブチラール樹脂Yに占める、絶対分子量100万以上の高分子量成分X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は14.2%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Yに占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は17.6%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Yの数平均分子量は160,000、重量平均分子量は620,000、水酸基の含有率は21.9モル%、アセチル化度は4.2モル%、ブチラール化度は73.9モル%であった。

[0143] （合成例23）

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3700ml、平均重合度2400、けん化度98.7モル%のポリビニルアルコールを300g投入し、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、硝酸濃度が0.6重量%となるように添加し、温度を15℃に調整した後、攪拌しながらn-ブチルアルデヒド17gを添加した。その後、n-ブチルアルデヒド205g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15分後に、60重量%硝酸を、硝酸濃度が2.3重量%となるように添加し、53℃に加熱し、53℃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、ポリビニルブチラール樹脂Zを得た。

[0144] 得られたポリビニルブチラール樹脂Zに占める、絶対分子量100万以上の高分子量成分X（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は11.3%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Zに占める、分子量yが100万以上である高分子量成分Y（ポリビニルブチラール樹脂）の割合は15.3%であった。得られたポリビニルブチラール樹脂Zの数平均分子量は165,000、重量平均分子量は600,000、水酸基の含有率は20.5モル%、アセチル化度は1.3モル%、ブチラール化度は78.2モル%であった。

[0145] また、下記のポリビニルブチラール樹脂R～Tを用意した。

ポリビニルブチラール樹脂R：水酸基の含有率：30.4モル%、アセチル化度：0.8モル%、ブチラール化度：68.8モル%

ポリビニルブチラール樹脂S：水酸基の含有率：30.5モル%、アセチル化度：0.8モル%、ブチラール化度：68.7モル%

[0146] ポリビニルブチラール樹脂T：水酸基の含有率：30.7モル%、アセチル化度：0.8モル%、ブチラール化度：68.5モル%

得られたポリビニルアセタール樹脂A～Zを用いて、以下のようにして、合わせガラス用多層中間膜及び合わせガラスを作製した。

[0147] （実施例1）

(1) 多層中間膜の作製

得られたポリビニルブチラール樹脂A 100重量部に、可塑剤としての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重量部を添加し、ミキシングロールで十分に混練し、中間層用樹脂組成物を得た。さらに、得られたポリビニルブチラール樹脂F 100重量部に、可塑剤としてのトリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(3GO) 37.5重量部を添加し、ミキシングロールで十分に混練し、表面層用樹脂組成物を得た。

[0148] 得られた中間層用樹脂組成物及び表面層用樹脂組成物を用いて、共押出することにより、表面層(厚み350 μ m)と中間層(厚み100 μ m)と表面層(厚み350 μ m)とが順に積層された多層中間膜を作製した。

[0149] (2) 耐貫通性試験に用いる合わせガラスの作製

得られた多層中間膜を縦30cm \times 横30cmの大きさに切断した。次に、透明なフロートガラス(縦30cm \times 横30cm \times 厚さ2.5mm)2枚の間に、多層中間膜を挟み込み、積層体を得た。この積層体をゴムバック内に入れ、2.6kPaの真空度で20分間脱気した後、脱気したままオーブン内に移し、更に90 $^{\circ}$ Cで30分間保持して真空プレスし、積層体を予備圧着した。オートクレーブ中で135 $^{\circ}$ C及び圧力1.2MPaの条件で、予備圧着された積層体を20分間圧着し、耐貫通性試験に用いる合わせガラスを得た。

[0150] (3) 遮音性測定に用いる合わせガラスの作製

多層中間膜を縦30cm \times 横2.5cmの大きさに切断し、透明なフロートガラス(縦30cm \times 横2.5cm \times 厚さ2.5mm)を用いたこと以外は耐貫通性試験に用いる合わせガラスと同様の方法で、遮音性測定に用いる合わせガラスを得た。

[0151] (4) 発泡試験A及びBに用いる合わせガラスの作製

得られた多層中間膜を縦30cm \times 横15cmの大きさに切断し、温度23 $^{\circ}$ Cの環境下にて、10時間保管した。なお、得られた多層中間膜の両面に

はエンボスが形成されており、そのエンボスの十点平均粗さは $30\mu\text{m}$ であった。切断された多層中間膜において、多層中間膜の端部から縦方向にそれぞれ内側に向かって 8cm の位置と、多層中間膜の端部から横方向にそれぞれ内側に向かって 5cm の位置との交点4箇所に、直径 6mm の貫通孔を作製した。

[0152] 透明なフロートガラス（縦 30cm ×横 15cm ×厚さ 2.5mm ）2枚の間に、貫通孔を有する多層中間膜を挟み込み、積層体を得た。積層体の外周縁は、熱融着により端部から幅 2cm をシール剤により封止することにより、エンボスに残留した空気及び貫通孔に残留した空気を封じ込めた。この積層体を 135°C 、圧力 1.2MPa の条件で20分間圧着することで、残留した空気を多層中間膜中に溶かし込み、発泡試験に用いる合わせガラスを得た。

[0153] （実施例2～21及び比較例1～9）

第1～第3の中間膜の組成を下記の表1～3に示すように変更したこと以外は実施例1と同様にして、多層中間膜及び合わせガラスを作製した。

[0154] （評価）

（1）遮音性

合わせガラス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。

[0155] 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°C 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 $2,000\text{Hz}$ 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。TL値が 35dB 以上の場合を「○」、TL値が 35dB 未満の場合を「×」として、結果を下記の表1～3に示した。

[0156] (2) 発泡試験 A (発泡の状態)

発泡試験 A に用いる合わせガラスを、各多層中間膜について 5 枚作製し、50°C のオープン内に 100 時間放置した。放置後の合わせガラスにおいて、発泡の有無及び発泡の大きさを平面視にて目視で観察し、発泡の状態を下記の判定基準で判定した。

[発泡試験 A における発泡の状態の判定基準]

5 枚の合わせガラスに発生した発泡を、楕円で近似し、その楕円面積を発泡面積とした。5 枚の合わせガラスにて観察された楕円面積の平均値を求め、合わせガラスの面積 (30 cm × 15 cm) に対する楕円面積の平均値 (発泡面積) の割合 (百分率) を求めた。

○ ○ : 5 枚全ての合わせガラスに発泡が観察されなかった

○ : 楕円面積の平均値 (発泡面積) の割合が 5 % 未満であった

△ : 楕円面積の平均値 (発泡面積) の割合が 5 % 以上、10 % 未満であった

× : 楕円面積の平均値 (発泡面積) の割合が 10 % 以上であった

[0157] (3) 発泡試験 B (発泡の状態)

発泡試験 B に用いる合わせガラスを、各多層中間膜について 30 枚作製し、50°C のオープン内に 24 時間放置した。放置後の合わせガラスにおいて、目視で発泡が観察された合わせガラスの枚数を確認し、下記の判定基準で判定した。

[発泡試験 B における発泡の状態の判定基準]

○ ○ : 目視で発泡が観察された合わせガラスは 5 枚以下であった

○ : 目視で発泡が観察された合わせガラスは 6 枚以上 10 枚以下であった

△ : 目視で発泡が観察された合わせガラスは 11 枚以上 15 枚以下であった

× : 目視で発泡が観察された合わせガラスは 16 枚以上であった

[0158] (4) 耐貫通性

耐貫通性試験に用いる合わせガラス（縦30cm×横30cm）を、表面温度が23℃となるように調整した。次いで、JIS R3212に準拠して、4mの高さから、6枚の合わせガラスに対してそれぞれ、質量2260g及び直径82mmの剛球を、合わせガラスの中心部分に落下させた。6枚の合わせガラス全てについて、剛球が衝突した後5秒以内に剛球が貫通しなかった場合を合格とした。剛球が衝突した後5秒以内に剛球が貫通しなかった合わせガラスが3枚以下であった場合は不合格とした。4枚の場合には、新しく6枚の合わせガラスの耐貫通性を評価した。5枚の場合には、新しく1枚の合わせガラスを追加試験し、剛球が衝突した後5秒以内に剛球が貫通しなかった場合を合格とした。同様の方法で、5m及び6mの高さから、6枚の合わせガラスに対してそれぞれ、質量2260g及び直径82mmの剛球を、合わせガラスの中心部分に落下させ、合わせガラスの耐貫通性を評価した。

[0159] （絶対分子量の測定）

上述した合成例1～5, 7～23に記載の高分子量成分X, Yの割合を求めるための絶対分子量及びポリスチレン換算分子量は、得られた多層中間膜から表面層と中間層とを剥離して、以下のようにして求めた値である。

[0160] 絶対分子量を測定するために、まず多層中間膜を恒温恒湿室（湿度30%（±3%）、温度23℃）に1ヶ月放置した。1ヶ月放置後、多層中間膜から表面層と中間層とを剥離した。剥離された中間層をテトラヒドロフラン（THF）に溶解させ、0.1重量%の溶液を調製した。得られた溶液をGel Permeation Chromatography（GPC）装置（日立ハイテク社製「RI：L2490、オートサンプラー：L-2200、ポンプ：L-2130、カラムオープン：L-2350、カラム：GL-A120-SとGL-A100MX-Sの直列」）により分析した。また、このGPC装置にはGPC用光散乱検出器（VISCOTEK社製「Model 270（RALS+VISCO）」）が接続されており、各検出器によるクロマトグラムの分析ができる。RI検出器及びRALS検出器のクロマ

トグラムにおけるポリビニルブチラール樹脂成分のピークを、解析ソフト（OmniSEC）を用いて解析することにより、ポリビニルブチラール樹脂の各溶出時間における絶対分子量を求めた。RI検出器で検出されるポリビニルブチラール樹脂のピーク面積に占める、ポリビニルブチラール樹脂の絶対分子量が100万以上となる領域の面積の割合を百分率（%）で表した。

[0161] クロマトグラムにおける各成分のピークには以下の式が成り立つ。

$$A_{RI} = c \times (dn/dc) \times K_{RI} \quad \dots \text{式 (1)}$$

$$A_{RALS} = c \times M \times (dn/dc)^2 \times K_{RALS} \quad \dots \text{式 (2)}$$

[0162] ここで、 c は溶液中のポリマー濃度、 (dn/dc) は屈折率増分、 M は絶対分子量、 K は装置定数である。

具体的な測定手順として、まず、 c 、 M 、および (dn/dc) が既知であるポリスチレン標準試料（VISCOTEK社製 PolyCAL（登録商標） TDS-PS-NB $M_w = 98390$ $dn/dc = 0.185$ ）を用い、0.1重量%のTHF溶液を調製する。得られたポリスチレン溶液のGPC測定結果から式（1）及び（2）を用いて、各検出器の装置定数 K を求める。

[0163] 次に、剥離した中間層をTHFに溶解させ、THF溶液を調製する。得られたポリビニルブチラール樹脂溶液のGPC測定結果から式（1）及び（2）を用いて、ポリビニルブチラール樹脂の絶対分子量 M を求めた。

ただし、中間層（ポリビニルブチラール樹脂と可塑剤とを含む）について分析を行うためには、ポリビニルブチラール樹脂溶液中のポリビニルブチラール樹脂の濃度を求める必要がある。ポリビニルブチラール樹脂の濃度の求め方は、以下の（可塑剤の含有量の測定）の結果から計算した。

[0164] （分子量 y の測定）

上記絶対分子量の測定方法と同様にして、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC）によるポリスチレン換算分子量を測定して、RI検出器で検出されるピーク面積（GPCの測定結果）のうち、分子量が100万以上の領域に相当する面積の割合から、ポリビニルブチラール樹脂に占める

、分子量 y が 100 万以上である高分子量成分 Y の割合 (%) を算出した。

[0165] ポリスチレン換算分子量を測定するために、分子量既知のポリスチレン標準試料のGPC測定を行う。ポリスチレン標準試料（昭和電工社製「Shodex Standard SM-105」、「Shodex Standard SH-75」）としては、重量平均分子量 580、1,260、2,960、5,000、10,100、21,000、28,500、76,600、196,000、630,000、1,130,000、2,190,000、3,150,000、3,900,000 の 14 試料を用いた。それぞれの標準試料ピークのピークトップが示す溶出時間に対して重量平均分子量をプロットし得られる近似直線を検量線として使用した。恒温恒湿室（湿度 30% (±3%)、温度 23°C）に 1 ヶ月放置した多層中間膜から表面層と中間層とを剥離した。剥離された中間層をテトラヒドロフラン（THF）に溶解させ、0.1 重量%の溶液を調製した。得られた溶液をGPC装置により分析し、中間層中の熱可塑性樹脂のピーク面積を測定した。次いで、中間層中の熱可塑性樹脂の溶出時間と検量線から、中間層中の熱可塑性樹脂のポリスチレン換算分子量が 100 万以上の領域に相当する面積を算出した。中間層中の熱可塑性樹脂のポリスチレン換算分子量が 100 万以上の領域に相当する面積を、中間層中の熱可塑性樹脂のピーク面積で除算した値を百分率 (%) で表すことにより、上記熱可塑性樹脂に占める、上記分子量 y が 100 万以上である高分子量成分 Y の割合 (%) を算出した。

[0166] （可塑剤の含有量の測定）

可塑剤の含有量が、10 重量%、15 重量%、20 重量%、25 重量%、30 重量%、35 重量%、40 重量%、45 重量%及び 50 重量%となるように、THFに可塑剤を溶解させ、可塑剤-THF溶液を調製した。得られた可塑剤-THF溶液をGPC測定し、可塑剤のピーク面積を求めた。可塑剤の濃度に対し可塑剤のピーク面積をプロットし、近似直線を得た。次に、中間層をTHFに溶解させたTHF溶液をGPC測定し、可塑剤のピーク面積から近似直線を用いることにより、可塑剤の含有量を求めた。

[0167] 結果を下記の表 1～3 に示す。下記の表 1～3 において、「PVB」はポリビニルブチラールを示し、「PVA」はポリビニルアルコールを示し、「3GO」はトリエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエートを示し、「3GH」はトリエチレングリコールジ-2-エチルブチレートを示す。

[0168]

[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	実施例 9	実施例 10	実施例 11	
第1の中間膜の組成	種類	A	A	B	B	C	C	D	D	E	E	A	
	高分子量成分Xの割合	11.5	11.5	15.4	15.4	20.9	20.9	8.0	8.0	16.4	16.4	11.5	
	高分子量成分Yの割合	13.8	13.8	17.3	17.3	24.5	24.5	9.1	9.1	18.7	18.7	13.8	
	PVAの平均重合度	2300	2300	2300	2300	2300	2300	1700	1700	2300	2300	2300	
	水酸基の含有率	22.3	22.3	22.0	22.0	23.0	23.0	21.7	21.7	27.0	27.0	22.3	
	アセチル化度	12.5	12.5	12.5	12.5	12.5	12.5	0.8	0.8	0.8	12.5	12.5	
	ブチラール化度	65.2	65.2	65.5	65.5	64.5	64.5	77.5	77.5	77.5	60.5	65.2	
	PVB樹脂の含有量	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GH
	含有量	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60
第2,第3の中間膜の組成	種類	F	F	F	F	F	F	F	F	F	F	F	
	水酸基の含有率	30.4	30.4	30.4	30.4	30.4	30.4	30.4	30.4	30.4	30.4	30.4	
	アセチル化度	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	
	ブチラール化度	68.8	68.8	68.8	68.8	68.8	68.8	68.8	68.8	68.8	68.8	68.8	
	PVB樹脂の含有量	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	
	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GH
	含有量	37.5	38.5	37.5	38.5	37.5	38.5	37.5	38.5	37.5	38.5	37.5	37.5
	遮音性:TL値	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	発泡試験A	0	△	0	0	0	0	0	0	△	0	0	0
	評価	発泡試験B	4m	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格
5m			合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	
6m			合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	
耐貫通性													

[表2]

		比較例 1	比較例 2	比較例 3	比較例 4	実施例 12	実施例 13	実施例 14	実施例 15	比較例 5	比較例 6	比較例 7	比較例 8	比較例 9	
第1の中間膜の組成	種類	G	G	H	H	I	J	K	L	M	N	O	P	Q	
	高分子量成分Xの割合	7.3	7.3	6.5	6.5	9.0	9.5	9.8	7.5	6.9	7.2	6.6	5.3	5.1	
	高分子量成分Yの割合	8.8	8.8	7.6	7.6	11.6	11.8	12.0	9.0	8.4	8.9	7.6	6.8	6.4	
	PVAの平均重合度	2300	2300	1700	1700	2300	2500	2320	1700	2300	2300	2000	1700	1700	
	水酸基の含有率	23.0	23.0	21.2	21.2	22.9	21.2	21.9	23.5	20.4	23.4	20.4	21.0	22.8	
	アセチル化度	12.5	12.5	0.8	0.8	13.1	0.8	5.6	12.5	0.8	12.2	6.5	1.1	12.2	
	ブチラール化度	64.5	64.5	78.0	78.0	64.0	78.0	72.5	64.0	78.8	64.4	73.1	77.9	65.0	
	PVB樹脂の含有量	100	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	3GO
	含有量	70	75	70	75	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60
第2、第3の中間膜の組成	種類	F	F	F	F	R	S	R	T	F	F	F	F	F	
	水酸基の含有率	30.4	30.4	30.4	30.4	30.4	30.5	30.4	30.7	30.4	30.4	30.4	30.4	30.4	
	アセチル化度	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	
	ブチラール化度	68.8	68.8	68.8	68.8	68.8	68.7	68.8	68.5	68.8	68.8	68.8	68.8	68.8	
	PVB樹脂の含有量	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	
	含有量	37.5	38.5	37.5	38.5	37.5	39.5	37.5	37.5	37.5	37.5	37.5	37.5	37.5	
	遮音性: TL値	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○
	発泡試験A	x	x	x	x	△	△	△	△	△	x	x	x	x	x
	発泡試験B	x	x	x	x	○	○	○	○	△	x	x	x	x	x
耐貫通性	4m	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	
	5m	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	
	6m	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	合格	
評価															

[表3]

		実施例 16	実施例 17	実施例 18	実施例 19	実施例 20	実施例 21
第1の中間膜 の組成	種類	U	V	W	X	Y	Z
	高分子量成分Xの割合	9.4	8.5	12.5	17.3	14.2	11.3
	高分子量成分Yの割合	11.5	10.9	15	19.8	17.6	15.3
	PVAの平均重合度	2380	2450	2500	1700	2350	2400
	水酸基の含有率	23	23.2	24	22	21.9	20.5
	アセチル化度	9.5	17.5	22.3	7.4	4.2	1.3
	ブチラール化度	67.5	59.3	53.7	70.6	73.9	78.2
	PVB樹脂の含有量	100	100	100	100	100	100
	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
	含有量	60	60	60	60	60	60
第2, 第3の 中間膜の組成	種類	F	F	F	F	F	F
	水酸基の含有率	30.4	30.4	30.4	30.4	30.4	30.4
	アセチル化度	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8
	ブチラール化度	68.8	68.8	68.8	68.8	68.8	68.8
	PVB樹脂の含有量	100	100	100	100	100	100
	種類	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO
	含有量	37.5	37.5	37.5	37.5	37.5	37.5
	遮音性: TL値	○	○	○	○	○	○
	発泡試験A	○	○	○	○	○	○
	発泡試験B	△	△	○	○	○	△
耐貫通性	4m	合格	合格	合格	合格	合格	合格
	5m	合格	合格	合格	合格	合格	合格
	6m	合格	合格	合格	合格	合格	合格
評価							

符号の説明

- [0171] 1…多層中間膜
- 2…第1の中間膜
- 2 a…一方の面

- 2 b…他方の面
- 3…第2の中間膜
- 3 a…外側の表面
- 4…第3の中間膜
- 4 a…外側の表面
- 1 1…合わせガラス
- 1 2…第1の合わせガラス構成部材
- 1 3…第2の合わせガラス構成部材
- 2 1…中間膜

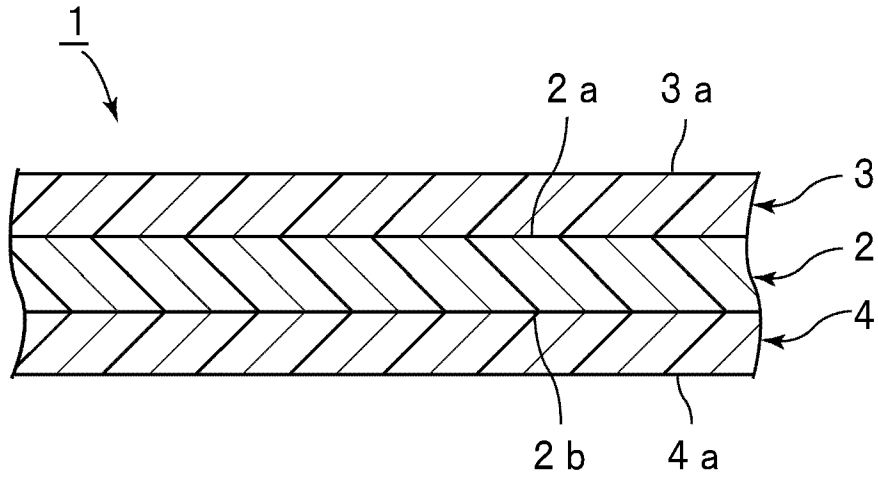
請求の範囲

- [請求項1] 熱可塑性樹脂と可塑剤とを含有し、
前記熱可塑性樹脂が絶対分子量100万以上の高分子量成分を含み、かつ前記熱可塑性樹脂に占める、前記高分子量成分の割合が7.4%以上であるか、又は、前記熱可塑性樹脂がポリスチレン換算分子量100万以上の高分子量成分を含み、かつ前記熱可塑性樹脂に占める、前記高分子量成分の割合が9%以上である、合わせガラス用中間膜。
- [請求項2] 熱可塑性樹脂と可塑剤とを含有し、
前記熱可塑性樹脂が絶対分子量100万以上の高分子量成分を含み、かつ前記熱可塑性樹脂に占める、前記高分子量成分の割合が7.4%以上である、請求項1に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項3] 前記熱可塑性樹脂が、ポリビニルアセタール樹脂である、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] 前記ポリビニルアセタール樹脂の水酸基の含有率が31モル%以下である、請求項3に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項5] 前記熱可塑性樹脂100重量部に対して、前記可塑剤の含有量が40～80重量部の範囲内である、請求項1又は2に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項6] 熱可塑性樹脂と可塑剤とを含有し、
前記熱可塑性樹脂がポリスチレン換算分子量100万以上の高分子量成分を含み、かつ前記熱可塑性樹脂に占める、前記高分子量成分の割合が9%以上である、請求項1に記載の合わせガラス用中間膜。
- [請求項7] 請求項1又は2に記載の合わせガラス用中間膜を第1の合わせガラス用中間膜として備え、
前記第1の合わせガラス用中間膜の一方の面に積層されており、かつ熱可塑性樹脂と可塑剤とを含有する第2の合わせガラス用中間膜をさらに備える、合わせガラス用多層中間膜。

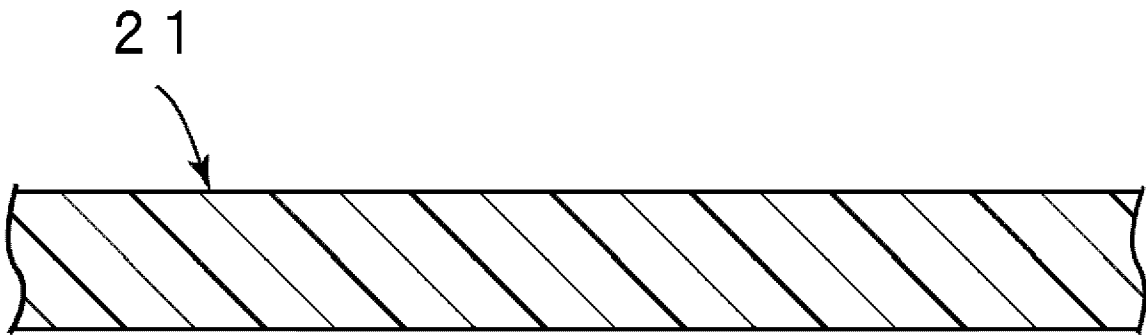
- [請求項8] 前記第1の合わせガラス用中間膜中の前記熱可塑性樹脂100重量部に対する前記可塑剤の含有量が、前記第2の合わせガラス用中間膜中の前記熱可塑性樹脂100重量部に対する前記可塑剤の含有量よりも多い、請求項7に記載の合わせガラス用多層中間膜。
- [請求項9] 前記第1の合わせガラス用中間膜の他方の面に積層されており、かつ熱可塑性樹脂と可塑剤とを含有する第3の合わせガラス用中間膜をさらに備える、請求項7又は8に記載の合わせガラス用多層中間膜。
- [請求項10] 前記第1の合わせガラス用中間膜中の前記熱可塑性樹脂100重量部に対する前記可塑剤の含有量が、前記第3の合わせガラス用中間膜中の前記熱可塑性樹脂100重量部に対する前記可塑剤の含有量よりも多い、請求項9に記載の合わせガラス用多層中間膜。
- [請求項11] 前記第1の合わせガラス用中間膜中の前記熱可塑性樹脂がポリビニルアセタール樹脂であり、該ポリビニルアセタール樹脂のアセチル化度が8モル%以下であり、かつアセタール化度が70モル%以上である、請求項7に記載の合わせガラス用多層中間膜。
- [請求項12] 前記第1の合わせガラス用中間膜中の前記熱可塑性樹脂がポリビニルアセタール樹脂であり、該ポリビニルアセタール樹脂のアセチル化度が8モル%を超える、請求項7に記載の合わせガラス用多層中間膜。
- [請求項13] 第1、第2の合わせガラス構成部材と、
前記第1、第2の合わせガラス構成部材の間に挟み込まれた中間膜とを備え、
前記中間膜が、請求項1又は2に記載の合わせガラス用中間膜である、合わせガラス。
- [請求項14] 第1、第2の合わせガラス構成部材と、
前記第1、第2の合わせガラス構成部材の間に挟み込まれた多層中間膜とを備え、
前記中間膜が、請求項7に記載の合わせガラス用多層中間膜である

、合わせガラス。

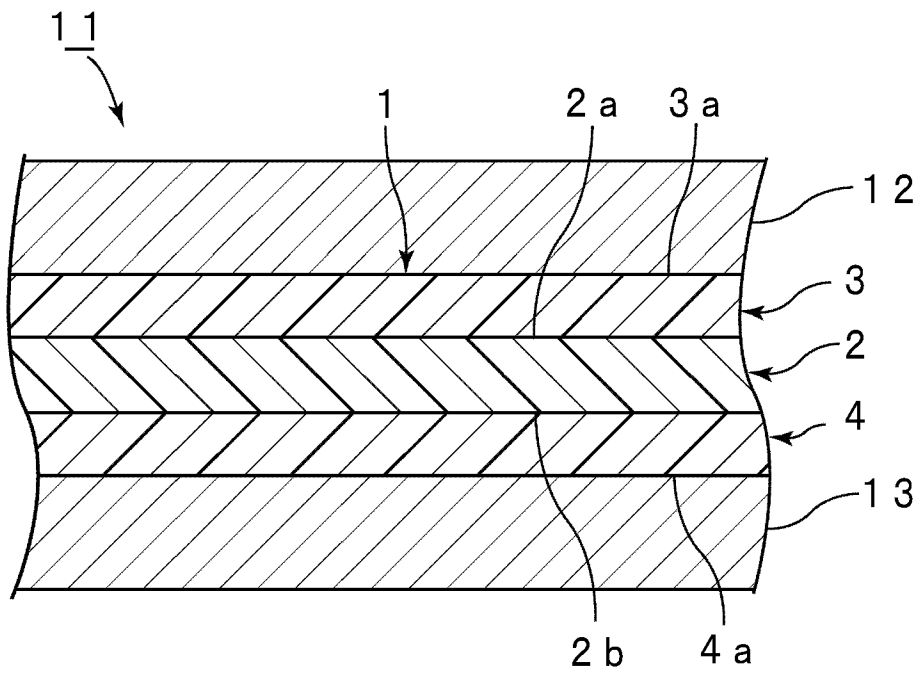
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/073301

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C03C27/12(2006.01)i, C08L29/14(2006.01)i, C08L101/00(2006.01)i, C09J11/00(2006.01)i, C09J129/14(2006.01)i, C09J201/00(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)

C03C27/12

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	1996-2011
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2011	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2011

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 2004-107143 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 08 April 2004 (08.04.2004), entire text (Family: none)	1-14
A	JP 2003-252655 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 10 September 2003 (10.09.2003), entire text (Family: none)	1-14
A	JP 2003-252657 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 10 September 2003 (10.09.2003), entire text (Family: none)	1-14

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

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

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

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

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

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

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
02 March, 2011 (02.03.11)

Date of mailing of the international search report
15 March, 2011 (15.03.11)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C03C27/12(2006.01)i, C08L29/14(2006.01)i, C08L101/00(2006.01)i, C09J11/00(2006.01)i, C09J129/14(2006.01)i, C09J201/00(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C03C27/12

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2011年
日本国実用新案登録公報	1996-2011年
日本国登録実用新案公報	1994-2011年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2004-107143 A (積水化学工業株式会社) 2004. 04. 08, 全文参照 (ファミリーなし)	1-14
A	JP 2003-252655 A (積水化学工業株式会社) 2003. 09. 10, 全文参照 (ファミリーなし)	1-14
A	JP 2003-252657 A (積水化学工業株式会社) 2003. 09. 10, 全文参照 (ファミリーなし)	1-14

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02.03.2011

国際調査報告の発送日

15.03.2011

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

増山 淳子

4T

9830

電話番号 03-3581-1101 内線 3465