

(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
2020年6月4日(04.06.2020)



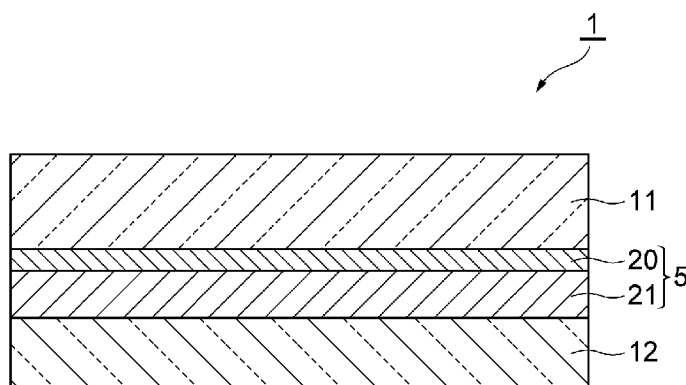
(10) 国際公開番号

WO 2020/111152 A1

- (51) 国際特許分類:
C03C 27/12 (2006.01) B60J 1/00 (2006.01)
B32B 17/10 (2006.01) C08L 29/14 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2019/046441
- (22) 国際出願日: 2019年11月27日(27.11.2019)
- (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 2018-225813 2018年11月30日(30.11.2018) JP
- (71) 出願人: 日立化成株式会社(HITACHI CHEMICAL COMPANY, LTD.) [JP/JP]; 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 高原 直己 (TAKAHARA Naoki); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 吉田 明弘(YOSHIDA Akihiro); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 石川 栄作(ISHIKAWA Eisaku); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). ▲高▼橋 遼(TAKAHASHI Ryoh); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP). 河村 美紅(KAWAMURA Miku); 〒1006606 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外(HASEGAWA Yoshiki et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目1番1号丸の内 M Y P L A Z A

(54) Title: RESIN MATERIAL FOR LAMINATED GLASS INTERLAYER, FILM MATERIAL FOR LAMINATED GLASS INTERLAYER, AND LAMINATED GLASS

(54) 発明の名称: 合わせガラスの中間膜用樹脂材料、合わせガラスの中間膜用フィルム材、及び合わせガラス



(57) Abstract: Disclosed is a resin material for a laminated glass interlayer, which contains a thermoplastic resin including a polyvinyl acetal resin, and which may further contain a plasticizer. The ratio of the polyvinyl acetal resin in the thermoplastic resin is more than 85% by mass and no more than 100% by mass based on the quantity of the thermoplastic resin. The plasticizer content is 0-22% by mass based on the quantity of the polyvinyl acetal resin.

(57) 要約: ポリビニルアセタール樹脂を含む熱可塑性樹脂を含有し、可塑剤を更に含有していてもよい、合わせガラスの中間膜用樹脂材料が開示される。熱可塑性樹脂におけるポリビニルアセタール樹脂の割合が、熱可塑性樹脂の量を基準として、85質量%を超えて100質量%以下である。可塑剤の含有量が、ポリビニルアセタール樹脂の量を基準として0~22質量%である。



(明治安田生命ビル) 9階 創英国際特
許法律事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保
護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ,
BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,
CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO,
DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT,
HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH,
KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY,
MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ,
NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT,
QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL,
SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保
護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS,
MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM,
ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ,
TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ,
DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT,
LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS,
SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM,
GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告(条約第21条(3))

明 細 書

発明の名称：

合わせガラスの中間膜用樹脂材料、合わせガラスの中間膜用フィルム材、及び合わせガラス

技術分野

[0001] 本発明は、合わせガラスの中間膜用樹脂材料、合わせガラスの中間膜用フィルム材、及び合わせガラスに関する。

背景技術

[0002] 従来、自動車のような車輛、航空機、建築物等用のガラスとして、破損時の飛散が少ない合わせガラスが広く用いられている。合わせガラスは、一般に、2枚のガラス板の間に挟まれた中間膜を有する。合わせガラス用中間膜としては、例えば、ポリビニルアセタール樹脂、アイオノマ樹脂、アクリル樹脂等を含む樹脂層が用いられる（例えば、特許文献1～10）。

先行技術文献

特許文献

- [0003] 特許文献1：特開2016-193542号公報
特許文献2：特開2009-298046号公報
特許文献3：特開2015-151540号公報
特許文献4：特公昭62-028105号公報
特許文献5：特開2000-001345号公報
特許文献6：特許第6163259号公報
特許文献7：特許第6147421号公報
特許文献8：国際公開第2016/158696号
特許文献9：特開2017-171574号公報
特許文献10：国際公開2017/171043号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 自動車用途で使用するフロントガラス等のガラス部材は、走行時の飛び石などの飛散物の衝突に対する耐性、すなわち耐チップング性に優れていることが必要とされる。一方で、ガラス部材の軽量化のために、ガラス板は出来るだけ薄いことが望ましい。しかし、ガラス板が薄くなると、十分な耐チップング性を維持することが困難になる傾向がある。

[0005] そこで、本発明の一側面の目的は、合わせガラスの耐チップング性の更なる改善を図ることにある。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明の一側面は、ポリビニルアセタール樹脂を含む熱可塑性樹脂を含有し、可塑剤を更に含有していてもよい、合わせガラスの中間膜用樹脂材料に関する。前記熱可塑性樹脂におけるポリビニルアセタール樹脂の割合が、前記熱可塑性樹脂の量を基準として、85質量%を超えて100質量%以下である。前記可塑剤の含有量が、前記ポリビニルアセタール樹脂の量を基準として0～22質量%以下である。本発明の別の側面は、前記樹脂材料からなる樹脂層を有する、合わせガラスの中間膜用フィルム材に関する。

[0007] 前記樹脂材料からなる樹脂層を有する中間膜を適用した合わせガラスは、ガラス板が薄い場合であっても、優れた耐チップング性を示すことができる。

[0008] 本発明の別の側面は、対向する2枚のガラス板と、これら2枚のガラス板の間に配置された中間膜と、を備える、合わせガラスに関する。前記中間膜が、前記合わせガラスの中間膜用樹脂材料からなる樹脂層を有する。この合わせガラスは、ガラス板が薄い場合であっても、優れた耐チップング性を示すことができる。

発明の効果

[0009] 本発明の一側面によれば、合わせガラスの耐チップング性の更なる改善を可能にする、合わせガラスの中間膜用樹脂材料が提供される。

図面の簡単な説明

[0010] [図1]合わせガラスの一実施形態を示す断面図である。

[図2]合わせガラスの一実施形態を示す断面図である。

[図3]合わせガラスの中間膜用フィルム材の一実施形態を示す断面図である。

[図4]合わせガラスの中間膜用フィルム材の一実施形態を示す断面図である。

発明を実施するための形態

[0011] 以下、本発明のいくつかの実施形態について詳細に説明する。ただし、本発明は以下の実施形態に限定されるものではない。

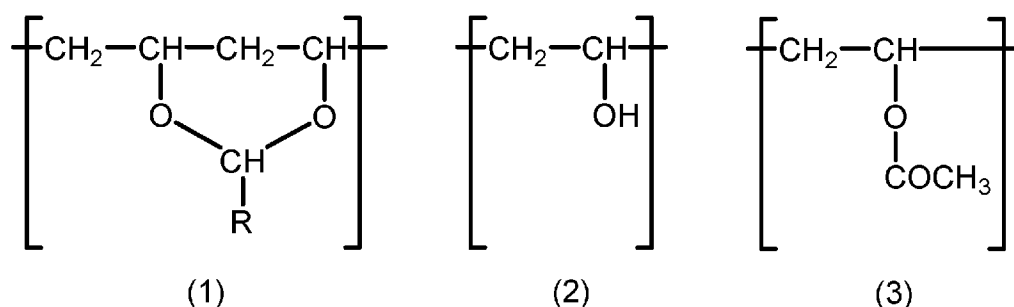
[0012] (合わせガラスの中間膜用樹脂材料)

一実施形態に係る樹脂材料は、ポリビニルアセタール樹脂を含む熱可塑性樹脂を含有する。この樹脂材料は、合わせガラスの中間膜を構成する樹脂層を形成するために用いることができる。

[0013] あるいは、本実施形態に係る樹脂材料を、有機エレクトロルミネッセンス(有機EL)、及び液晶ディスプレイ等の画像表示装置に使用される画像表示部材、並びに、画像表示部材の保護材、又は画像表示部材の衝撃吸収材として用いることも可能である。

[0014] ポリビニルアセタール樹脂は、通常、下記式(1)で表されるアセタール単位及び下記式(2)で表される水酸基単位を有する。ポリビニルアセタール樹脂は、下記式(3)で表されるビニルアセテート単位を更に有することがある。式(1)中のRは、炭素数1～3のアルキル基を示す。同一分子中の複数のRは、同一でも異なってもよい。Rがメチル基又はブチル基であってもよい。

[0015] [化1]



[0016] アセタール単位の含有量は、アセタール単位、水酸基単位、及びビニルアセテート単位の合計量を基準として、65質量%以上で90質量%以下、88質量%以下、又は81質量%以下であってもよく、68質量%以上で90質量%以下、88質量%以下、又は81質量%以下であってもよく、71質量%以上で90質量%以下、88質量%以下、又は81質量%以下であってもよい。水酸基単位の含有量は、アセタール単位、水酸基単位、及びビニルアセテート単位の合計量を基準として、10質量%以上で35質量%以下、27質量%以下、又は26質量%以下であってもよく、11質量%以上で35質量%以下、27質量%以下、又は26質量%以下であってもよく、14質量%以上で35質量%以下、27質量%以下、又は26質量%以下であってもよく、18質量%以上で35質量%以下、27質量%以下、又は26質量%以下であってもよく、19質量%以上で35質量%以下、27質量%以下、又は26質量%以下であってもよく、21質量%以上で35質量%以下、27質量%以下、又は26質量%以下であってもよく、24質量%以上で35質量%以下、27質量%以下、又は26質量%以下であってもよい。水酸基単位の含有量が比較的大きいポリビニルアセタール樹脂を用いながら、可塑剤の量を少なくすることで、特に優れた耐チッピング性を有する合わせガラスが得られ易い。水酸基単位の含有量が大きいと、高周波数における貯蔵弾性率が高くなる傾向がある。樹脂層の高周波数における貯蔵弾性率が高いことは、合わせガラスの耐チッピング性向上の点で有利である。水酸基単位の含有量が高いポリビニルアセタールを用いることにより、樹脂材料が後述の可塑剤をある程度の量で含む場合であっても、樹脂層の高周波数における高い貯蔵弾性率を維持し易い。樹脂材料がある程度の量の可塑剤を含むと、樹脂材料の流動性が高くなるため、合わせガラスを製造する工程で、中間膜への気泡の混入のような問題を回避し易い。

[0017] ポリビニルアセタール樹脂の重量平均分子量は、10000以上で200000以下、150000以下、120000以下、又は105000以下であってもよく、25000以上で200000以下、150000以下、

120000以下、又は105000以下であってもよく、50000以上で200000以下、150000以下、120000以下、又は105000以下であってもよく、70000以上で200000以下、150000以下、120000以下、又は105000以下であってもよく、80000以上で200000以下、150000以下、120000以下、又は105000以下であってもよく、95000以上で200000以下、150000以下、120000以下、又は105000以下であってもよい。ポリビニルアセタール樹脂の重量平均分子量が大きいと、合わせガラスの耐チップング性がより一層改善される傾向がある。ポリビニルアセタール樹脂の重量平均分子量が小さいと、樹脂層を形成し易くなる傾向、及び、中間膜とガラス板との貼り合わせが容易になる傾向がある。ここでの重量平均分子量は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィーによって求められる、標準ポリスチレンによる換算値である。

[0018] 本実施形態に係る樹脂材料は、ポリビニルアセタール樹脂と、その他の熱可塑性樹脂とを含んでいてもよい。ポリビニルアセタール樹脂とその他の熱可塑性樹脂との合計量に対するポリビニルアセタール樹脂の割合は、85質量%を超えていてもよく、90質量%以上、又は95質量%以上であってもよい。

[0019] その他の熱可塑性樹脂の例としては、アクリル樹脂（アクリル重合体）、エチレン-酢酸ビニル共重合体樹脂、エチレン-アクリル酸共重合体樹脂、ポリウレタン樹脂及びポリビニルアルコール樹脂が挙げられる。

[0020] 本実施形態に係る樹脂材料は、可塑剤を含有していてもよいし、含有していなくてもよい。樹脂材料、又はこれから形成された樹脂層における可塑剤の含有量は、ポリビニルアセタール樹脂の量を基準として0～22質量%であってもよい。可塑剤の含有量が22質量%以下であることにより、合わせガラスの耐チップング性が顕著に改善される。同様の観点から、可塑剤の含有量は、ポリビニルアセタール樹脂の量を基準として20質量%以下、19質量%以下、18質量%以下、17質量%以下、16質量%以下、15質量%

%以下、14質量%以下、13質量%以下、12質量%以下、11質量%以下、10質量%以下、9質量%以下、8質量%以下、7質量%以下、6質量%以下、又は5質量%以下であってもよく、0質量%以上であってもよい。

[0021] 可塑剤は、ポリビニルアセタール樹脂の可塑剤として通常用いられるものから、特に制限なく選択することができる。例えば、可塑剤が、脂肪酸エステル化合物、有機リン酸エステル化合物、又はこれらの組み合わせを含んでもよい。樹脂材料、又はこれから形成された樹脂層における脂肪酸エステル化合物及び有機リン酸エステル化合物の合計の含有量が、可塑剤の含有量に関して言及された上述の数値範囲内であってもよい。

[0022] 脂肪族エステル化合物は、例えば、ポリアルキレングリコールと脂肪族モノカルボン酸とのモノエステル又はジエステルであってもよい。ポリアルキレングリコールの例としては、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が挙げられる。脂肪族モノカルボン酸の例としては、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が挙げられる。脂肪族エステル化合物が、炭素数4～8の直鎖又は分岐アルキルアルコールと脂肪族ポリカルボン酸とのエステルであってもよい。脂肪族ポリカルボン酸の例としては、アジピン酸、セバシン酸及びアゼライン酸が挙げられる。

[0023] 可塑剤は、例えば、トリエチレングリコールモノ（2-エチルヘキサノエート）、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ー2-エチルブチレート、及びトリエチレングリコールジ（2-エチルプロパノエート）から選ばれる少なくとも1種の脂肪族エステル化合物を含んでもよい。

[0024] 可塑剤として用いられ得る有機リン酸エステル化合物の例としては、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が挙げられる。

[0025] 本実施形態に係る樹脂材料は、必要によりその他の成分を含有することが

できる。その他の成分の例としては、酸化防止剤、無機充填剤が挙げられる。樹脂材料におけるポリビニルアセタール樹脂及び可塑剤の合計量の割合が、樹脂材料の量を基準として80質量%以上、又は90質量%以上であってもよい。

[0026] (合わせガラス)

図1は、合わせガラスの一実施形態を示す断面図である。図1に示される合わせガラス1は、対向する2枚のガラス板11、12と、これらガラス板11、12の間に配置された中間膜5とを備える。

[0027] ガラス板11、12は、例えば、フロートガラス、風冷強化ガラス、化学強化ガラス及び複層ガラスのような無機ガラス板であってもよい。ガラス板11、12のうち一方又は両方が、樹脂製の透明基板であってもよい。透明基板としては、例えば、アクリル樹脂基板、ポリカーボネート基板、シクロオレフィンポリマー基板、及びポリエステル基板等の透明プラスチック基板が挙げられる。

[0028] 一方のガラス板11の厚さは、他方のガラス板12の厚さよりも大きくてもよい。車両のガラス部材（例えば自動車用フロントガラス）として用いられる場合、合わせガラス1は、通常、より厚いガラス板11が車両の外側に位置する向きで車両に装着される。ガラス板12の厚さに対するガラス板11の厚さの比が、例えば1.1～3.0であってもよい。ただし、2枚のガラス板の厚さが同じでもよい。ガラス板11、12の厚さが、例えば、0.1mm以上、0.5mm以上又は0.8mm以上であってもよい。ガラス板11の厚さが、30mm以下で0.1mm以上、0.5mm以上又は0.8mm以上であってもよく、20mm以下で0.1mm以上、0.5mm以上又は0.8mm以上であってもよい。ガラス板12の厚さが、20mm以下で0.1mm以上、0.5mm以上又は0.8mm以上であってもよく、15mm以下で0.1mm以上、0.5mm以上又は0.8mm以上であってもよい。

[0029] 中間膜5は、第1の樹脂層20と、追加の樹脂層としての第2の樹脂層2

1とを有する。第1の樹脂層20又は第2の樹脂層21のうち少なくとも一方が、上述の実施形態に係る樹脂材料からなる樹脂層（以下、「耐チップング性層」ということがある。）である。耐チップング性層において、熱可塑性樹脂が架橋されていてもよい。

[0030] より厚い方のガラス板11に隣接する位置に配置された第1の樹脂層20が、耐チップング性層であってもよい。これにより、ガラス板11が車両の外側に位置する向きで合わせガラス1が車両に装着されたときに、外部から衝突する飛散物に対する耐チップング性向上の効果が特に効果的に発揮される。

[0031] 第1の樹脂層20が耐チップング性層である場合、耐チップング性向上等の観点から、その厚さは、0.001～1.0mm、0.001～0.3mm、又は0.01～0.1mmであってもよい。耐チップング性層が厚いと、後述のフィルム材の取り扱いが良好となる傾向がある。耐チップング性層が薄いと、合わせガラスの耐貫通性がより向上する傾向にある。

[0032] 耐チップング性層のナノインデンテーション法によって周波数150Hzで測定される貯蔵弾性率が、25℃において200MPa以上、又は550MPa以上であってもよく、1000MPa以下であってもよい。耐チップング性層の貯蔵弾性率がこれら範囲内にあると、合わせガラスの耐チップング性がより改善される傾向がある。

[0033] 第1の樹脂層20が耐チップング性層である場合、第2の樹脂層21は、各種の機能を有する機能層であることができる。例えば、第2の樹脂層が、耐貫通性、遮音性又はこれらの両方の機能を有する機能層であってもよい。遮音性の機能を有する機能層（以下「遮音層」ということがある。）は、合わせガラスによる遮音性を向上させる層である。耐貫通性の機能を有する層（以下「耐貫通性層」ということがある。）は、合わせガラスに衝突した飛散物が合わせガラスを貫通し難くする層である。第2の樹脂層21が、遮音層及び耐貫通性層を兼ねていてもよい。第2の樹脂層21の厚さは、例えば0.1～10mmであってもよい。

[0034] 第1の樹脂層20及び第2の樹脂層21に加えて、所定の機能を有する追加の樹脂層が更に設けられてもよい。例えば、図2に示される一実施形態に係る合わせガラス1は、第1の樹脂層20、第2の樹脂層21、第3の樹脂層22及び第4の樹脂層23を含む中間膜5を有する。より厚い方のガラス板11の側から、第1の樹脂層20、第2の樹脂層21、第3の樹脂層22及び第4の樹脂層23がこの順で積層されている。第1の樹脂層20が耐チッピング性層で、第2の樹脂層21が耐貫通性層で、第3の樹脂層22が遮音層で、第4の樹脂層23が耐貫通性層であってもよい。

[0035] 遮音層としては、遮音性を有する中間膜として当業者に知られている中間膜を採用することができる（例えば、特許文献6～10参照）。例えば、遮音層は、100質量部の熱可塑性樹脂と、20～80質量部、又は50～80質量部の可塑剤とを含有してもよい。遮音層の厚さは、20 μ m以上であってもよく、200 μ m以下、又は100 μ m以下であってもよい。耐貫通性層は、100質量部の熱可塑性樹脂と、20～50質量部、20～40質量部又は20～35質量部の可塑剤とを含有してもよい。耐貫通性層の厚さは、50 μ m以上で1000 μ m以下、又は800 μ m以下であってもよく、300 μ m以上で1000 μ m以下、又は800 μ m以下であってもよい。耐貫通性層が2層以上設けられる場合、それらの合計の厚さが前記数値範囲内であってもよい。

[0036] 遮音層及び耐貫通性層に含まれる熱可塑性樹脂は、例えば、ポリビニルアセタール樹脂を含んでいてもよく、ポリビニルアセタール樹脂及びポリアクリル樹脂（ポリ（メタ）アクリル酸エステル）を含んでいてもよい。可塑剤は、耐チッピング性層と同様のものを用いることができる。遮音層が、アルカリ金属塩又はアルカリ土類金属塩のうち少なくとも一方の金属塩を更に含んでもよい。これらの構成を有する遮音層は、通常、耐貫通性の機能も有することができる。

[0037] 合わせガラス1は、耐チッピング性が必要とされる車両用合わせガラスとして特に有用である。車両用合わせガラスの例としては、自動車用フロント

ガラス、自動車用サイドガラス、自動車用サンルーフ、及び自動車用リアガラスが挙げられる。

[0038] (合わせガラスの製造方法)

合わせガラス 1 は、例えば、対向する 2 枚のガラス板 1 1, 1 2 とこれらの間に配置された中間膜とを有する積層体を形成させる工程と、積層体を加熱及び加圧して合わせガラス 1 を形成させる工程とを含む方法により、製造することができる。

[0039] ガラス板及び中間膜を有する積層体は、例えば、一方のガラス板 1 1 に第 1 の樹脂層 2 0 及び第 2 の樹脂層 2 1 を順に貼り合わせ、それにより中間膜 5 を形成することと、中間膜 5 に他方のガラス板 1 2 を貼り合わせることを含む方法により、得ることができる。

[0040] 積層体を形成するために、例えば、中間膜を構成する樹脂層を有するフィルム材を用いてもよい。図 3 は、合わせガラスの中間膜用フィルム材の一実施形態を示す断面図である。図 3 に示されるフィルム材 2 は、第 1 の樹脂層 2 0 及び第 2 の樹脂層 2 1 を有する中間膜 5 と、中間膜 5 の両面を覆う 2 枚の基材フィルム 3 1 及び 3 2 とを備える。例えば、フィルム材 2 から基材フィルム 3 1 を剥離し、露出した中間膜 5 をガラス板 1 1 に貼り合わせてもよい。一方の基材フィルム 3 1 が、他方の基材フィルム 3 2 の表面よりも軽剥離性の表面を有するフィルムであってもよい。基材フィルム 3 1 又は基材フィルム 3 2 のうち一方又は両方が設けられていなくてもよい。

[0041] 基材フィルム 3 1, 3 2 の例としては、ポリエチレンテレフタレートフィルム、ポリプロピレンフィルム、及びポリエチレンフィルムが挙げられる。基材フィルム 3 1, 3 2 の厚さは、特に制限されないが、例えば 25 ~ 200 μm であってもよい。

[0042] 図 4 は、合わせガラスの中間膜用フィルム材の他の一実施形態を示す断面図である。図 4 に示されるフィルム材 2 は、第 1 の樹脂層 2 0 と、第 1 の樹脂層 2 0 の両面を覆う基材フィルム 3 1, 3 2 とを備える。例えば、このフィルム材 2 を用いて、第 1 の樹脂層 2 0 を一方のガラス板 1 1 に貼り合わせ

、次いで第1の樹脂層20上に第2の樹脂層21を積層することを含む方法により、中間膜5を形成することができる。

[0043] 第1の樹脂層20及び第2の樹脂層21は、例えば、これら樹脂層を形成するための樹脂材料をプレス成形する方法、又は、樹脂材料及び溶剤を含む塗液を基材フィルム等に塗布し、次いで塗膜から溶剤を除去する方法によって、形成することができる。

[0044] ガラス板11、中間膜5及びガラス板12からなる積層体を、合わせガラスを得るために加熱及び加圧の条件は、各層が十分に密着するように調整される。例えば、0.8～10MPaの圧力、60～200℃の温度、10～200分間の加圧時間の範囲内で、加熱及び加圧の条件が設定される。

実施例

[0045] 以下、実施例を挙げて本発明についてさらに具体的に説明する。ただし、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

[0046] <検討1>

1-1. 中間膜用樹脂層

(実施例1)

ポリビニルブチラル（PVB）樹脂（Mowital B75H、クラレ製、アセタール単位：78.7質量%、水酸基単位：20.4質量%、ビニルアセテート単位：0.8質量%）をプレス成形機で150℃、30分間の条件でプレス成形して、厚さ0.76mmの中間膜用樹脂層を形成した。

[0047] (実施例2)

実施例1のものと同一PVB樹脂100質量部と、トリエチレングリコールジ（2-エチルヘキサノエート）（3GO）10質量部とを混合した。混合物をミキシングロールで十分に溶融混練して、中間膜用樹脂材料としてのPVB樹脂組成物を得た。得られたPVB樹脂組成物をプレス成形機で150℃、30分間の条件でプレス成形して、厚さ0.76mmの中間膜用樹脂層を形成した。

[0048] (実施例3)

トリエチレングリコールジ（２－エチルヘキサノエート）（３ＧＯ）の量を１５質量部に変更したこと以外は実施例２と同様にして、厚さ０．７６ｍｍの中間膜用樹脂層を得た。

[0049] （比較例１）

トリエチレングリコールジ（２－エチルヘキサノエート）（３ＧＯ）の量を３０質量部に変更したこと以外は実施例２と同様にして、厚さ０．７６ｍｍの中間膜用樹脂層を得た。

[0050] （比較例２）

非架橋性のエチレン－酢酸ビニル共重合体（ＥＶＡ）（ＥＶ１７０、三井デュポンポリケミカル製、酢酸ビニル含有量：３３質量％）をプレス成形機で１５０℃、３０分間の条件でプレス成形して、厚さ０．７６ｍｍの中間膜用樹脂層を形成した。

[0051] １－２．合わせガラスの作製

各中間膜用樹脂層を、縦１１０ｍｍ、横１１０ｍｍの大きさに裁断し、縦１１０ｍｍ、横１１０ｍｍ、厚さ１．６ｍｍのフロートガラスに、４辺が重なるように貼り合わせ、全体をローラーで加圧した。露出している樹脂層の上に、縦１１０ｍｍ、横１１０ｍｍ、厚さ１．１ｍｍのフロートガラスを、４辺が重なるように貼り付け、全体をローラーで加圧した。これにより、フロートガラス／中間膜／フロートガラスの積層体を得た。得られた積層体を１２５℃に設定した真空ラミネータを用いて２５分間加熱した。続いて、１５０℃に設定したオートクレーブ中で、圧力１．２ＭＰａ、１２０分間の条件で積層体を加熱及び加圧して、フロートガラス（１．６ｍｍ）／中間膜／フロートガラス（１．１ｍｍ）の構成を有する合わせガラスを得た。同様の操作により、各中間膜樹脂層を用いて合わせガラスをそれぞれ１０枚作製した。

[0052] １－３．合わせガラスの耐チップング性

合わせガラスの厚さ１．１ｍｍのフロートガラスの４辺それぞれに沿って、端から５．０ｍｍ以内の位置に粘着テープを貼り付けた。粘着テープを介

して合わせガラスを厚さ 10 mm の支持ガラス板に固定した。次いで、合わせガラスの厚い 1.6 mm のフロートガラス側の面に対して、重さ約 0.15 g $\pm$ 0.01 g の碎石（玄武岩）1 個を、エアガンにより衝突させた。衝突速度を 145 $\sim$ 165 km/h に、衝突入射角を 0 度に設定した。衝突位置を移動させながら、1 枚の合わせガラスに対して 20 個の碎石を衝突させた。各衝突痕を観察し、0.5 mm 以上の線状のクラックが発生した衝突痕の数（クラック発生数）を記録した。下記式により NG 率を求めた。

$$\text{NG 率 (\%)} = (\text{クラック発生数} / 20) \times 100$$

5 枚の合わせガラスについて同様の試験を実施し、NG 率の平均値を求めた。NG 率の平均値により、下記基準で合わせガラスの耐チップング性を評価した。合わせガラスの耐チップング性は、「S」が最も優れ、「D」が最も劣る。

S : 5.0 % 未満

A : 5.0 % 以上、10.0 % 未満

B : 10.0 % 以上、15.0 % 未満

C : 15.0 % 以上、20.0 % 未満

D : 20.0 % 以上

[0053] [表1]

		実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1	比較例 2
ポリマー成分	PVB	100	100	100	100	0
	EVA	0	0	0	0	100
可塑剤	3GO	0	10	15	30	0
耐チップング性		A	A	B	C	D

[0054] 表 1 に評価結果を示す。可塑剤の含有量がポリビニルブチラル樹脂の量を基準として 22 質量%以下である樹脂層を中間膜として有する実施例 1 $\sim$ 3 の合わせガラスは、比較例 1 $\sim$ 3 の合わせガラスと比較して、特異的に優れた耐チップング性を示した。

[0055] <検討 2>

2-1. ポリビニルブチラル樹脂

表 2 に示すポリビニルブチラル樹脂を準備した。

[0056] [表2]

PVB	モノマー単位含有量(質量%)			数平均分子量 Mn
	アセタール単位	水酸基単位	ビニルアセート単位	
PVB-1	77.9	20.4	1.7	57900
PVB-2	77.8	20.5	1.7	58900
PVB-3	78.2	20.1	1.7	58500
PVB-4	78.8	20.4	0.8	99700
PVB-5	79.0	19.1	1.9	25400
PVB-6	86.2	12.3	1.5	99000
PVB-7	85.3	13.1	1.6	99500
PVB-8	86.3	11.9	1.8	102300
PVB-9	74.1	24.2	1.7	101500
PVB-10	65.2	17.7	17.1	113100
PVB-11	72.2	26.2	1.6	19200

[0057] 2-2. 中間膜用樹脂層

(耐チップング性層)

PVB 1～8をプレス成形機で150℃、30分間の条件でプレス成形して、厚さ0.1mmの耐チップング性層としての樹脂層を形成した。100質量部のPVB-4と、可塑剤としての11～43質量部の3GOとを混合した。混合物をミキシングロールで十分に溶融混練して、PVB樹脂組成物を得た。得られたPVB樹脂組成物をプレス成形機で150℃、30分間の条件でプレス成形して、厚さ0.1mmの耐チップング性層としての樹脂層を形成した。

[0058] (耐貫通性層)

100質量部のPVB-9と、可塑剤としての33質量部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)とを混合した。混合物をミキシングロールで十分に溶融混練して、PVB樹脂組成物を得た。得られたPVB樹脂組成物をプレス成形機で150℃、30分間の条件でプレス成形して、厚さ0.8mm又は0.4mmの耐貫通性層用の樹脂層を形成した。

[0059] (遮音層)

100質量部のPVB-10と、可塑剤としての57質量部の3GOとを混合した。混合物をミキシングロールで十分に溶融混練して、PVB樹脂組成物を得た。得られたPVB樹脂組成物をプレス成形機で150℃、30分

間の条件でプレス成形して、厚さ0.1 mmの遮音層としての樹脂層を形成した。

[0060] 2-3. 合わせガラス

以下の手順により、耐チップング性層の単層を中間膜として有する実施例4~11の合わせガラス、耐チップング性層／耐貫通性層の2層構成の中間膜を有する実施例12~26及び比較例3~8の合わせガラス、並びに、耐チップング性層／耐貫通性層／遮音層／耐貫通性層の4層構成の中間膜を有する実施例27~33の合わせガラスを作製した。

[0061] (耐チップング性評価用合わせガラス)

各樹脂層を、縦110 mm、横110 mmの大きさに裁断した。表3~6に示される組み合わせの樹脂層を、縦110 mm、横110 mm、厚さ1.5 mmのフロートガラスに、4辺が重なるように順に重ね合わせ、全体をローラーで加圧した。露出している樹脂層の上に、縦110 mm、横110 mm、厚さ1.0 mmのフロートガラスを、4辺が重なるように貼り付け、全体をローラーで加圧した。これにより、フロートガラス／中間膜／フロートガラスの積層体を得た。得られた積層体を125℃に設定した真空ラミネータを用いて25分間加熱した。続いて、150℃に設定したオートクレーブ中で、1.2 MPa、120分間の条件で積層体を加熱及び加圧して、フロートガラス(1.5 mm)／中間膜／フロートガラス(1.0 mm)の構成を有する合わせガラスを得た。

[0062] (耐貫通試験用合わせガラス)

樹脂層及びフロートガラスの大きさを縦3000 mm、横3000 mmに変更したこと以外は耐チップング性評価用合わせガラスと同様にして、フロートガラス(1.5 mm)／中間膜／フロートガラス(1.0 mm)の構成を有する耐貫通試験用の合わせガラスを作製した。

[0063] (遮音性試験用サンプル)

各樹脂層を、縦3000 mm、横25 mmの大きさに裁断した。表3~6に示される組み合わせの樹脂層を、縦3000 mm、横25 mm、厚さ2.

7 mmのフロートガラスに、4辺が重なるように順に重ね合わせ、全体をローラーで加圧した。露出している樹脂層の上に、縦3000 mm、横25 mm、厚さ1.0 mmのフロートガラスを、4辺が重なるように貼り付け、全体をローラーで加圧した。これにより、フロートガラス／中間膜／フロートガラスの積層体を得た。得られた積層体を125℃に設定した真空ラミネータを用いて25分間加熱した。続いて、150℃に設定したオートクレーブ中で、1.2 MPa、120分間の条件で積層体を加熱及び加圧して、フロートガラス（2.7 mm）／ガラス中間膜／フロートガラス（2.7 mm）の構成を有する合わせガラスを得た。

[0064] 2-4. 耐チップング性層の貯蔵弾性率

耐チップング性層としての樹脂層から、10 mm幅×10 mm長の短冊状の試験片を切り出した。試験片のナノ動的粘弾性を、ナノ動的粘弾性測定機（K L A - T e c o r社製、G200型ナノインデント）を用いて、以下の測定条件で測定した。

測定ヘッド：高分解能DCM-11ヘッド

圧子：フラットパンチ圧子（直径100 μm及び50 μm）

測定モード：粘弾性試験

押し込み深さ：5 μm（フラットパンチ圧子直径100 μmの場合）

1 μm（フラットパンチ圧子直径50 μmの場合）

周波数範囲：150 Hz

測定温度：25℃

ポアソン比：0.35

測定点数：10点（10点の測定値から平均値を算出）

[0065] 2-5. 合わせガラスの耐チップング性

検討1と同様の手順で各合わせガラスの耐チップング性を評価した。

[0066] 2-6. 合わせガラスの耐貫通性

10枚の合わせガラスの表面温度を20℃に調整した。次いで、4.0 mの高さから、10枚の合わせガラスそれぞれの中心部分に向けて、質量22

60 g 及び直径 82 mm の剛球を落下させた。10 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た合わせガラスの枚数を記録した。剛球が貫通した合わせガラスの枚数により、下記基準で耐貫通性を判定した。

〔耐貫通性の判定基準〕

A：貫通した合わせガラスが 2 枚以下

B：貫通した合わせガラスが 3 枚以上

[0067] 2-7. 遮音性

合わせガラスの損失係数を、制振材料評価システム（スペクトリス株式会社ブリュエル・ケアー事業部製）を用いて、20℃環境下、周波数を変えながら中央加振法で測定した。各周波数の損失係数は、損失係数計測ソフトウェア MS18143 を用いて算出した。測定結果より周波数 3,000 Hz 付近における損失係数を読み取り、遮音性を下記の基準で判定した。

A：損失係数が 0.2 以上

B：損失係数が 0.1 以上、0.2 未満

C：損失係数が 0.1 未満

[0068]

[表3]

				実施例							
				4	5	6	7	8	9	10	11
耐チップング性層	PVB樹脂	種類	含有量(質量部)	PVB-1	PVB-2	PVB-3	PVB-4	PVB-5	PVB-6	PVB-7	PVB-8
	可塑剤	種類	含有量(質量部)	100	100	100	100	100	100	100	100
	厚み(mm)			0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
				-	-	-	-	-	-	-	-
耐貫通性層	PVB樹脂	種類	含有量(質量部)	-	-	-	-	-	-	-	-
	可塑剤	種類	含有量(質量部)	-	-	-	-	-	-	-	-
	厚み(mm)			-	-	-	-	-	-	-	-
				0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8
耐チップング性層の貯蔵弾性率[MPa, 150Hz]				1567	1612	1532	1599	1522	1321	1356	1302
耐チップング性				A	A	A	A	A	A	A	A
耐貫通性				B	B	B	B	B	B	B	B

[0071] [表6]

				実施例								
				27	28	29	30	31	32	33		
耐チップピング性層	PVB樹脂	種類		PVB-4	PVB-4	PVB-4	PVB-4	PVB-4	PVB-4	PVB-4		
		含有量(質量部)		100	100	100	100	100	100	100		
	可塑剤	種類		3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	-	-		
		含有量(質量部)		11	14	16	19	22	0	0		
耐貫通性層	厚み(mm)			0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.05	0.3		
	PVB樹脂	種類		PVB-9	PVB-9	PVB-9	PVB-9	PVB-9	PVB-9	PVB-9		
		含有量(質量部)		100	100	100	100	100	100	100		
	可塑剤	種類		3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO		
遮音層	厚み(mm)			0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4		
	PVB樹脂	種類		PVB-10	PVB-10	PVB-10	PVB-10	PVB-10	PVB-10	PVB-10		
		含有量(質量部)		100	100	100	100	100	100	100		
	可塑剤	種類		3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO	3GO		
耐貫通性層	厚み(mm)			57	57	57	57	57	57	57		
	PVB樹脂	種類		0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1		
		含有量(質量部)		PVB-9	PVB-9	PVB-9	PVB-9	PVB-9	PVB-9	PVB-9		
	可塑剤	種類		100	100	100	100	100	100	100		
耐チップピング性層の貯蔵弾性率 [MPa, 150Hz]	厚み(mm)			813	645	507	376	212	1599	1599		
	PVB樹脂	種類		A	A	B	B	B	A	A		
		含有量(質量部)		A	A	A	A	A	A	A		
	可塑剤	種類		A	A	A	A	A	A	A		
耐貫通性層	厚み(mm)			A	A	A	A	A	A	A		
	PVB樹脂	種類		A	A	A	A	A	A	A		
		含有量(質量部)		A	A	A	A	A	A	A		
	可塑剤	種類		A	A	A	A	A	A	A		

符号の説明

[0072] 1…合わせガラス、2…合わせガラスの中間膜用フィルム材、5…中間膜、11, 12…ガラス板、20…第1の樹脂層、21…第2の樹脂層、22…第3の樹脂層、23…第4の樹脂層、31, 32…基材フィルム。

請求の範囲

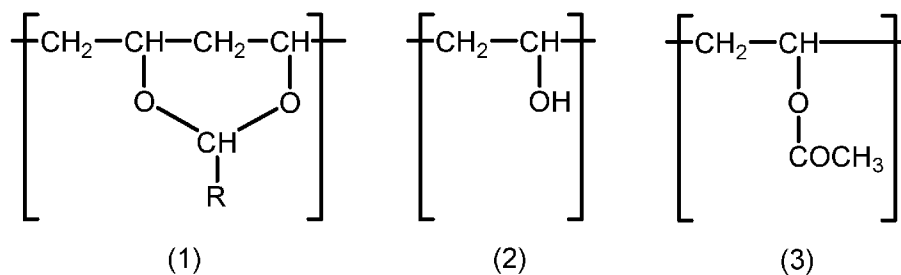
[請求項1] ポリビニルアセタール樹脂を含む熱可塑性樹脂を含有し、可塑剤を更に含有していてもよい、合わせガラスの中間膜用樹脂材料であって、

前記熱可塑性樹脂における前記ポリビニルアセタール樹脂の割合が、前記熱可塑性樹脂の量を基準として、85質量%を超えて100質量%以下であり、

前記可塑剤の含有量が、前記ポリビニルアセタール樹脂の量を基準として0～22質量%である、合わせガラスの中間膜用樹脂材料。

[請求項2] 前記ポリビニルアセタール樹脂が、下記式(1)で表されるアセタール単位及び下記式(2)で表される水酸基単位を有し、下記式(3)で表されるビニルアセテート単位を更に有していてもよく、

[化1]



式(1)中のRは炭素数1～3のアルキル基を示し、

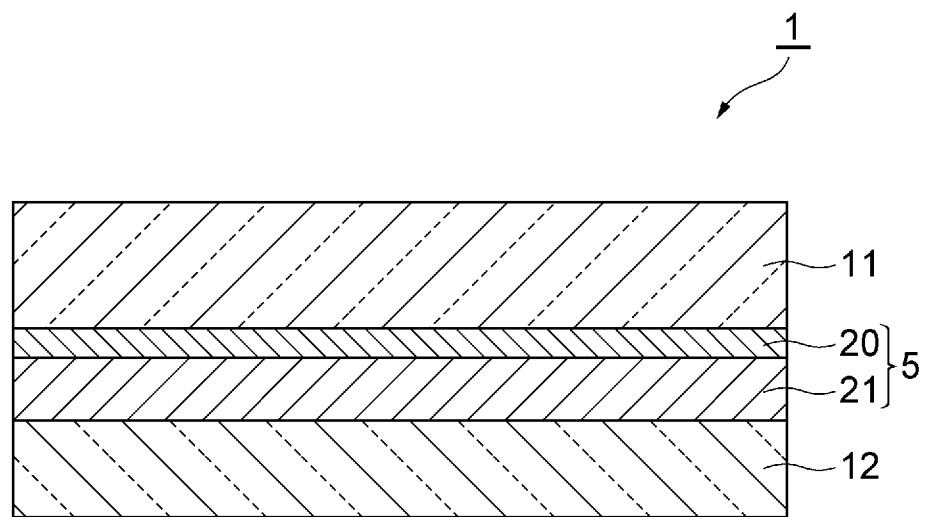
前記アセタール単位、前記水酸基単位、及び前記ビニルアセテート単位の合計量を基準として、前記アセタール単位の含有量が71～88質量%で、前記水酸基単位の含有量が18～27質量%である、請求項1に記載の合わせガラスの中間膜用樹脂材料。

[請求項3] 前記ポリビニルアセタール樹脂の重量平均分子量が25000～105000である、請求項1又は2に記載の合わせガラスの中間膜用樹脂材料。

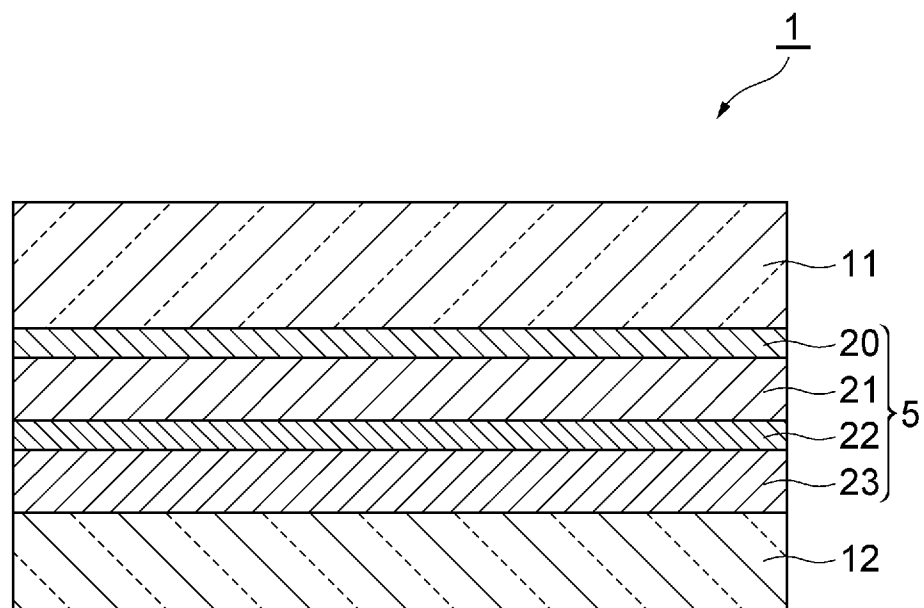
[請求項4] 請求項1～3のいずれか一項に記載の合わせガラスの中間膜用樹脂材料からなる樹脂層を有する、合わせガラスの中間膜用フィルム材。

- [請求項5] 対向する 2 枚のガラス板と、
 前記 2 枚のガラス板の間に配置された中間膜と、
 を備え、
 前記中間膜が、請求項 1 ～ 3 のいずれか一項に記載の合わせガラス
 の中間膜用樹脂材料からなる樹脂層を有する、合わせガラス。
- [請求項6] 前記 2 枚のガラス板の厚さが異なり、より厚い方の前記ガラ
 ス板に前記樹脂層が隣接している、請求項 5 に記載の合わせガラス。
- [請求項7] 前記樹脂層の厚さが 0.001 ～ 0.3 mm である、請求項 5 又は
 6 に記載の合わせガラス。

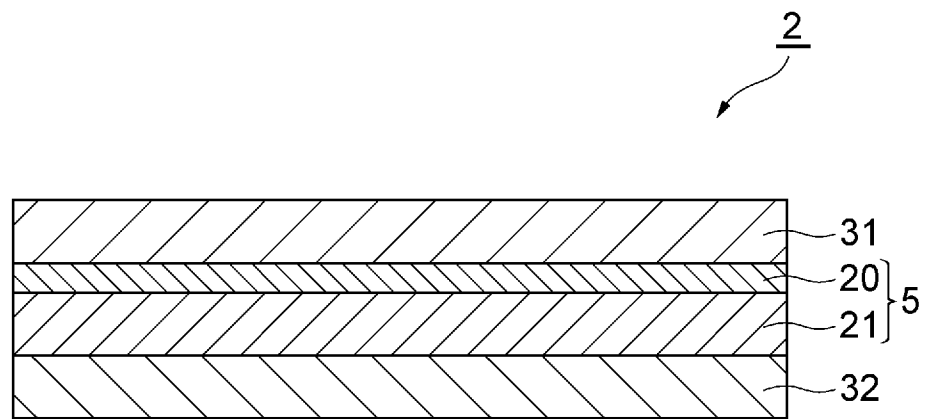
[図1]



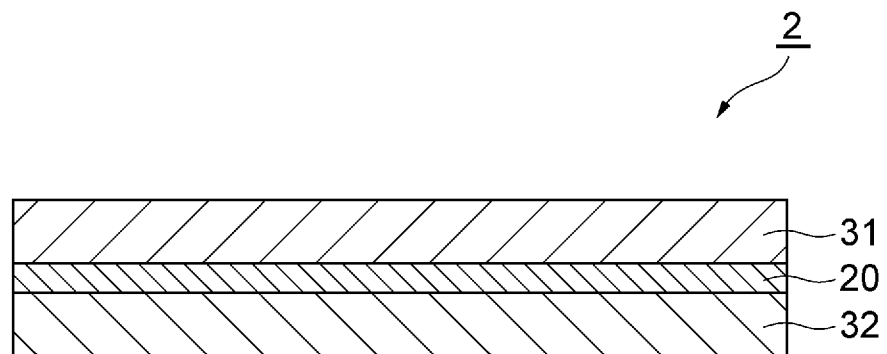
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/046441

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl. C03C27/12 (2006.01) i, B32B17/10 (2006.01) i, B60J1/00 (2006.01) i, C08L29/14 (2006.01) i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl. C03C27/12, B32B17/10, B60J1/00, C08L29/14

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996

Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2019

Registered utility model specifications of Japan 1996-2019

Published registered utility model applications of Japan 1994-2019

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.
X	JP 2016-108229 A (KURARAY CO., LTD.) 20 June 2016, claims, examples 1, 4-7, 14 & US 2018/0290437 A1, claims, examples 1, 4-9, 16 & EP 3219683 A1 & KR 10-2017-0082599 A & CN 107108348 A	1-5, 7
Y		1-7
Y	JP 2007-070200 A (ASAHI GLASS CO., LTD.) 22 March 2007, claims, paragraphs [0021], [0022] (Family: none)	1-7
Y	JP 2016-216357 A (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 22 December 2016, paragraph [0070] & US 2017/0197381 A1, paragraph [0100] & EP 3192776 A1 & CN 106573836 A & KR 10-2017-0038756 A	6

☐ 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
16.12.2019

Date of mailing of the international search report
24.12.2019

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

Authorized officer

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, B32B17/10(2006.01)i, B60J1/00(2006.01)i, C08L29/14(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, B32B17/10, B60J1/00, C08L29/14

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	1971-2019年
日本国実用新案登録公報	1996-2019年
日本国登録実用新案公報	1994-2019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
X Y	JP 2016-108229 A（株式会社クラレ）2016.06.20, 特許請求の範囲, 実施例 1, 4-7, 14 & US 2018/0290437 A1, Claims, Example 1, 4-9, 16 & EP 3219683 A1 & KR 10-2017-0082599 A & CN 107108348 A	1-5, 7 1-7
Y	JP 2007-070200 A（旭硝子株式会社）2007.03.22, 特許請求の範囲, [0021]-[0022]（ファミリーなし）	1-7

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

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

の日の後に公表された文献

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

国際調査を完了した日

16.12.2019

国際調査報告の発送日

24.12.2019

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）

井上 政志

4 T

4050

電話番号 03-3581-1101 内線 3465

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2016-216357 A (積水化学工業株式会社) 2016. 12. 22, [0070] & US 2017/0197381 A1, [0100] & EP 3192776 A1 & CN 106573836 A & KR 10-2017-0038756 A	6