

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2017年6月1日(01.06.2017)



(10) 国際公開番号
WO 2017/090690 A1

- (51) 国際特許分類:
C03C 27/12 (2006.01) *B32B 17/10* (2006.01)
B32B 5/18 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2016/084836
- (22) 国際出願日: 2016年11月24日(24.11.2016)
- (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 2015-231012 2015年11月26日(26.11.2015) JP
- (71) 出願人: 旭硝子株式会社 (ASAHI GLASS COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目5番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 室伏 千恵子 (MUROFUSHI Chieko); 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目5番1号 旭硝子株式会社内 Tokyo (JP). 室伏 英伸 (MUROFUSHI Hidenobu); 〒1008405 東京都千代田区丸の内一丁目5番1号 旭硝子株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 特許業務法人栄光特許事務所 (EIKOH PATENT FIRM, P.C.); 〒1050003 東京都港区西新橋一丁目7番13号 虎ノ門イーストビルディング 10階 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, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

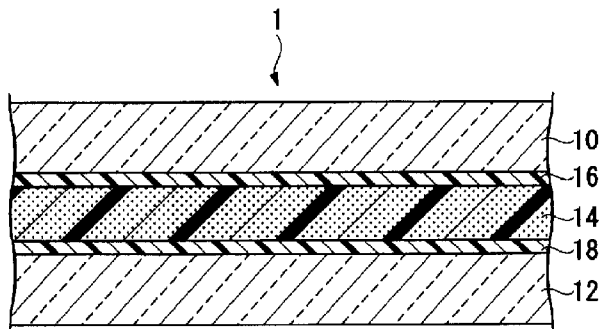
— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

(54) Title: LAMINATED GLASS, WINDOW GLASS FOR AUTOMOBILES, AND WINDOW GLASS FOR BUILDINGS

(54) 発明の名称: 合わせガラス、自動車用窓ガラスおよび建物用窓ガラス

$$B = d_g + 3.3d_a + 4.3d_i \left(\frac{D + 260.8}{0.026D} \right)^P \quad (2)$$

[図1]



(57) Abstract: This laminated glass (1) is provided with a first glass sheet (10), a first transparent adhesive layer (16), a transparent heat-insulation layer (14) having independent pores without shells, a second transparent adhesive layer (18), and a second glass sheet (12), in that order. The value of A in formula (1), namely $A = D^3 P d_i$, is not more than 6.4×10^5 , and the value of B in formula (2) is at least 35 (in the formulae, D is the pore size (nm), P is the porosity, d_i is the thickness (mm) of the transparent heat-insulation layer, d_g is the total (mm) thickness of the glass sheets, and d_a is the total (mm) thickness of the transparent adhesive layers).

(57) 要約: 第1のガラス板(10)、第1の透明接着層(16)、シェルなしの独立気孔を有する透明断熱層(14)、第2の透明接着層(18)、第2のガラス板(12)を順に有し、式(1)のA値が 6.4×10^5 以下であり、式(2)のB値が35以上である、合わせガラス(1)。 $A = D^3 P d_i$ (1) [D: 気孔径 (nm)、P: 気孔率、 d_i : 透明断熱層

の厚さ (mm)、 d_g : ガラス板の厚さの合計 (mm)、 d_a : 透明接着層の厚さの合計 (mm)]

明 細 書

発明の名称：

合わせガラス、自動車用窓ガラスおよび建物用窓ガラス

技術分野

[0001] 本発明は、合わせガラス、自動車用窓ガラスおよび建物用窓ガラスに関する。

背景技術

[0002] 2枚のガラス板を中間膜で貼り合わせた合わせガラスは、耐貫通性に優れ、また、破損してもガラス片の飛散が少ないことから、自動車等の車両用窓ガラス、建物用窓ガラス等として用いられている。

合わせガラスとしては、日射による車内や室内の温度上昇を抑えるため、中間膜に赤外線反射層や赤外線吸収層を設けたものが知られている（特許文献1～4）。

[0003] しかし、中間膜に赤外線反射層や赤外線吸収層を設けた合わせガラスには、車外や室外から入射する赤外線を遮蔽できるものの、合わせガラス自体を伝導する熱を遮断できないため、夏季においては、車外や室外の熱が合わせガラスを伝導して車内や室内に流入し、冬季においては、車内や室内の暖房の熱が合わせガラスを伝導して車外や室外に流出するという問題がある。

[0004] 合わせガラス自体を伝導する熱を遮断する、すなわち断熱性を有する合わせガラスとしては、中間膜を、中空シリカ微粒子を含む第1の層とこれを挟む第2の層および第3の層からなるものとしたものが提案されている（特許文献5）。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：国際公開第2013／168714号

特許文献2：日本国特許第4848872号公報

特許文献3：日本国特開2007－148330号公報

特許文献4：日本国特開2010-222233号公報

特許文献5：国際公開第2012/063881号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] しかし、特許文献5の合わせガラスは、透過率を維持するために、中空シリカ微粒子を含む第1の層を薄く設計しているため、熱伝導率が高く、断熱性が不十分である。

[0007] 本発明は、透明性が高く、かつ断熱性に優れる合わせガラス、自動車用窓ガラスおよび建物用窓ガラスを提供する。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明は、下記の態様を有する。

<1>第1のガラス板と、第1の透明接着層と、独立気孔を有する透明断熱層と、第2の透明接着層と、第2のガラス板とを順に有し、前記独立気孔が、気孔のまわりがシェルを介することなくマトリックスで直接覆われた気孔であり、下式(1)で表されるA値が、 6.4×10^5 以下であり、下式(2)で表されるB値が、35以上である、合わせガラス。

[0009] [数1]

$$A = D^3 P d_i \quad (1)$$

$$B = d_g + 3.3d_a + 4.3d_i \left(\frac{D + 260.8}{0.026D} \right)^P \quad (2)$$

[0010] ただし、Dは透明断熱層の独立気孔の気孔径(nm)であり、Pは透明断熱層の気孔率であり、 d_i は透明断熱層の厚さ(mm)であり、 d_g は第1のガラス板の厚さと第2のガラス板の厚さの合計(mm)であり、 d_a は第1の透明接着層の厚さと第2の透明接着層の厚さの合計(mm)である。

<2>前記A値が、 2.3×10^5 以下であり、前記B値が、85以上である、<1>の合わせガラス。

<3>前記透明断熱層の圧縮弾性率が、4.3MPa以上である、<1>または<2>の合わせガラス。

<4>前記透明断熱層が、発泡樹脂シートである、<1>~<3>のいずれかの合わせガラス。

<5>前記透明断熱層の厚さが、0.2~10mmである、<1>~<4>のいずれかの合わせガラス。

<6>前記第1のガラス板の厚さおよび前記第2のガラス板の厚さが、それぞれ0.1~6mmである、<1>~<5>のいずれかの合わせガラス。

<7>前記第1の透明接着層の厚さおよび前記第2の透明接着層の厚さが、それぞれ0.1~3mmである、<1>~<6>のいずれかの合わせガラス。

<8>前記<1>~<7>のいずれかの合わせガラスを備えた、自動車用窓ガラス。

<9>前記<1>~<7>のいずれかの合わせガラスを備えた、建物用窓ガラス。

発明の効果

[0011] 本発明の合わせガラス、自動車用窓ガラスおよび建物用窓ガラスは、透明性が高く、かつ断熱性に優れる。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]図1は、本発明の合わせガラスの一例を示す断面図である。

発明を実施するための形態

[0013] 以下の用語の定義は、本明細書および特許請求の範囲にわたって適用される。

「気孔」とは、断熱材内に形成された空隙からなる孔を意味する。

「独立気孔」とは、各気孔のまわりがマトリックスやシェルで完全に覆われた気孔を意味する。独立気孔には、気孔のまわりがシェルを介することなくマトリックスで直接覆われた独立気孔と、マトリックス中に分散されたシェルを有する中空粒子等によって形成される気孔のまわりがシェルで覆われた独立気孔とがある。本発明における独立気孔は、前者の独立気孔となる。

「透明」とは、光を透過できることを意味する。

「気孔径」は、断熱層の断面を透過型顕微鏡を用いて100個の気孔を観察し、それを楕円とみなした時の長径と短径の単純平均を計算した値（すなわち200個の数値平均）である。

「気孔率」は、プレス前の透明断熱層の体積と、温度：200℃、圧力：35MPa、時間：10分間の条件でプレスした後の透明断熱層の体積とから下式によって求めた値である。

気孔率 = $1 - (\text{プレス後の透明断熱層の体積} / \text{プレス前の透明断熱層の体積})$

「透過率」は、JIS R 3106：1998「板ガラス類の透過率・反射率・放射率・日射熱取得率の試験方法」（ISO 9050：1990）に準拠して測定される値である。

「熱貫流率（U値）」は、JIS R 3107：1998「板ガラス類の熱抵抗及び建築における熱貫流率の算定方法」（ISO 10292：1994）およびJIS R 3209：1998「複層ガラス」に準拠して測定される値である。

「圧縮弾性率」は、JIS K 7181：2011「プラスチック圧縮特性の求め方」（ISO 604：2002）に準拠して測定される値である。

[0014] <合わせガラス>

図1は、本発明の合わせガラスの一例を示す断面図である。

合わせガラス1は、第1のガラス板10と；第2のガラス板12と；第1のガラス板10と第2のガラス板12との間に配置された、独立気孔を有する透明断熱層14と；第1のガラス板10と透明断熱層14とを貼り合わせる第1の透明接着層16と；第2のガラス板12と透明断熱層14とを貼り合わせる第2の透明接着層18とを有する。

[0015] （ガラス板）

第1のガラス板および第2のガラス板（以下、まとめてガラス板とも記す。）の材料は、無機ガラスであってもよく、有機ガラスであってもよく、耐

候性、剛性、耐溶剤性等の点から、無機ガラスが好ましい。第1のガラス板および第2のガラス板の材料は、同じであってもよく、異なってもよい。

無機ガラスとしては、ソーダライムガラス、ホウ珪酸ガラス、無アルカリガラス、石英ガラス等が挙げられ、ソーダライムガラスが好適である。

有機ガラスとしては、ポリカーボネート、アクリル樹脂等が挙げられる。

[0016] ガラス板は、無色透明ガラス板であってもよく、有色透明ガラス板であってもよく、鉄分が多い熱線吸収ガラス板（ブルーガラス板またはグリーンガラス板）が好ましい。

ガラス板としては、安全性を高めるために強化ガラス板を用いてもよい。強化ガラス板としては、風冷強化法や化学強化法により得られる強化ガラス板を用いることができる。

[0017] ガラス板の形状は、湾曲状であってもよく、平板状であってもよい。自動車用窓ガラスは湾曲していることが多いため、本発明の合わせガラスを自動車用窓ガラスとして用いる場合は、ガラス板の形状は、湾曲状であることが多い。

[0018] ガラス板の厚さは、0.1～6mmが好ましく、1～3mmがより好ましい。第1のガラス板および第2のガラス板の厚さは、同じであってもよく、異なってもよい。なお、本発明におけるガラス板の厚さは、幾何学的厚さである。以下、ガラス板以外の本発明の合わせガラスが有する各層の厚さについても同様である。

[0019] （透明接着層）

第1の透明接着層および第2の透明接着層（以下、まとめて透明接着層とも記す。）の材料は、ガラス板と透明断熱層とを接着できる透明樹脂であればよい。該透明樹脂としては、ポリビニルブチラール、エチレン-酢酸ビニル共重合体、市販の光学透明粘着剤（OCA: Optically Clear Adhesive）等が挙げられ、ポリビニルブチラール、エチレン-酢酸ビニル共重合体が好ましく、自動車用窓ガラス等のような耐貫通性を

要求される用途においては、ポリビニルブチラルがより好ましい。第1の透明接着層および第2の透明接着層の材料は、同じであってもよく、異なってもよい。また各々の透明接着層は、同種または異種の2層以上の材料が積層されたものであってもよい。

[0020] 透明接着層は、本発明の効果を損なわない範囲内において、赤外線吸収剤、紫外線吸収剤、酸化防止剤、光安定剤、着色剤等を含んでいてもよい。

透明接着層の厚さは、0.1～3mmが好ましく、0.3～0.8mmがより好ましい。第1の透明接着層および第2の透明接着層の厚さは、同じであってもよく、異なってもよい。

[0021] (透明断熱層)

透明断熱層の圧縮弾性率は、4.3MPa以上が好ましく、12MPa以上がより好ましく、120MPa以上がさらに好ましい。圧縮弾性率が前記範囲の下限值以上であれば、透明断熱層の機械的強度に優れ、合わせガラスの製造の際にガラス板と貼合する際の圧縮に耐え得る。

[0022] 透明断熱層の厚さは、0.2～10mmが好ましく、0.5～6mmがより好ましく、1～3mmがさらに好ましい。透明断熱層の厚さが前記範囲の下限值以上であれば、合わせガラスの断熱性にさらに優れる。透明断熱層の厚さが前記範囲の上限値以下であれば、合わせガラスの透明性がさらに高くなる。

[0023] 透明断熱層は、気孔のまわりがシェルを介することなくマトリックスで直接覆われた独立気孔（以下、シェルなしの独立気孔または単に独立気孔とも記す。）を有するものである。

シェルなしの独立気孔を有する透明断熱層としては、発泡樹脂シート；ナノバブルの発生を固定化したシート等が挙げられる。

[0024] 透明断熱層としては、合わせガラスの透明性および断熱性を両立しやすい点、製造が容易で、安価である点から、発泡樹脂シートが好ましい。

[0025] (発泡樹脂シート)

発泡樹脂シートは、樹脂材料からなるマトリックス中に発泡による独立気

孔が形成されたシートである。

[0026] 樹脂材料に含まれる樹脂としては、非晶性熱可塑性樹脂、結晶性熱可塑性樹脂、硬化性樹脂の硬化物等が挙げられる。

非晶性熱可塑性樹脂としては、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリカーボネート、非晶性ポリエステル系樹脂、スチレンーアクリロニトリル共重合体、アクリロニトリルーブタジエーンスチレン共重合体、ノルボルネン系樹脂、非晶性フッ素樹脂、ポリエーテルスルホン、ポリスルホン、ポリエーテルイミド、ポリアリレート、ポリエステルカーボネート、トリアセチルセルロース、非晶性ナイロン樹脂等が挙げられる。

結晶性熱可塑性樹脂としては、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリ塩化ビニル、結晶性ポリエステル樹脂、結晶性フッ素樹脂、ポリー４ーメチルペンテンー１等が挙げられる。

硬化性樹脂としては、エポキシ樹脂、ジエチレングリコールビスカーボネート、多官能アクリレート系樹脂、多官能メタクリレート系樹脂等が挙げられる。

[0027] 樹脂材料は、本発明の効果を損なわない範囲内において、発泡核剤、着色剤、酸化防止剤、光安定剤、離型剤、防腐剤、赤外線吸収剤、紫外線吸収剤、可塑剤、難燃剤、導電性付与剤、帯電防止剤、結晶核剤等を含んでいてもよい。

[0028] 発泡樹脂シートは、発泡剤を用いた公知の方法によって製造でき、透明性が高く、かつ断熱性に優れる発泡樹脂シートを製造しやすい点から、樹脂フィルムを高圧の不活性ガスまたはその超臨界流体にさらしてフィルムに不活性ガスまたはその超臨界流体を含浸させた後、圧力を一気に開放する方法；押出機に不活性ガスまたはその超臨界流体を導入し、ダイから樹脂が押し出されるときに圧力が一気に開放されることを利用した発泡法を利用した方法によって製造することが好ましい。生産性を重視する場合には、押出機に不活性ガスまたはその超臨界流体を導入する方法がより好ましい。

[0029] 該方法は、樹脂材料に不活性ガスまたはその超臨界流体を特定の圧力、特

定の温度下で含浸させた後、圧力を解放することによって発泡樹脂シートを製造する方法である。

不活性ガスとしては、二酸化炭素、窒素等が挙げられる。不活性ガスは、加熱加圧下においては超臨界流体として樹脂材料に含浸されることが多い。

[0030] 樹脂が非晶性熱可塑性樹脂の場合、含浸温度は、非晶性熱可塑性樹脂のガラス転移温度よりも低く、かつ非晶性熱可塑性樹脂に不活性ガスが十分に含浸された状態（以下、飽和含浸状態と記す。）における非晶性熱可塑性樹脂のガラス転移温度よりも高い温度が好ましい。

樹脂が結晶性熱可塑性樹脂の場合、含浸温度は、結晶性熱可塑性樹脂の融点よりも低く、かつ飽和含浸状態における結晶性熱可塑性樹脂の融点よりも高い温度が好ましい。

樹脂が硬化性樹脂の硬化物の場合、含浸温度は、硬化性樹脂の硬化物のガラス転移温度よりも低く、かつ飽和含浸状態における硬化性樹脂の硬化物のガラス転移温度よりも高い温度が好ましい。

含浸温度が前記範囲の下限值以上であれば、ガス拡散性が向上して不活性ガスの含浸時間を短縮できる。含浸温度、および、圧力を開放するときの温度が前記範囲の上限値以下であれば、独立気孔の気孔径を小さくできる。

[0031] 含浸圧力は、8～50 MPaが好ましく、15～30 MPaがより好ましい。含浸圧力が前記範囲の下限值以上であれば、ガス拡散性が向上して不活性ガスの含浸時間を短縮でき、また、発泡樹脂シートの気孔率を高くできる。含浸圧力が前記範囲の上限値以下であれば、独立気孔の気孔径を小さくできる。

[0032] 含浸時間は、マトリックス中のガス濃度が均一になるだけの時間が好ましく、樹脂材料の種類や樹脂シートの厚さにもよるが、0.5～12時間が好ましく、1～2時間がより好ましい。含浸時間が前記範囲の下限值以上であれば、発泡樹脂シートの気孔率を高くできる。含浸時間が前記範囲の上限値以下であれば、生産性に優れる。

[0033] （透明断熱層の設計）

後述するA値およびB値を特定の範囲とすることによって、合わせガラスの透明性および断熱性を両立することは、透明断熱層の独立気孔の気孔径および気孔率を調整することによって達成できる。

気孔率は、気孔径に気孔の数密度を乗じたものである。そして、シェルなしの独立気孔の気孔径は、樹脂材料に不活性ガスまたはその超臨界流体を含浸させる際の樹脂材料の粘度（含浸温度）、圧力を開放する際の減圧速度（減圧時間）等に依存する。また、数密度は、樹脂材料に含浸した不活性ガスまたはその超臨界流体の濃度（含浸圧力）等に依存する。

[0034] したがって、透明断熱層におけるシェルなしの独立気孔の気孔径を小さくするためには、たとえば、樹脂材料に不活性ガスまたはその超臨界流体を含浸させる際の含浸温度を下げて樹脂材料の粘度を上げる；圧力を開放する際の減圧速度を遅くする等を行えばよい。

透明断熱層におけるシェルなしの独立気孔の気孔径を変えずに透明断熱層の気孔率を高くするためには、数密度を大きくすることが必要であり、そのためにはたとえば、樹脂材料に不活性ガスまたはその超臨界流体を含浸させる際の含浸圧力を高くする等を行えばよい。

[0035] 圧縮弾性率が4.3 MPa以上であるシェルなしの独立気孔を有する透明断熱層を得ることは、マトリックスの圧縮弾性率を6.8 MPa以上することによって達成できる。また、シェルなしの独立気孔の気孔径を小さくすることで達成することができる。

[0036] (A値)

本発明の合わせガラスは、下式(1)で表されるA値が、 6.4×10^5 以下であり、 2.3×10^5 以下が好ましく、 1.0×10^5 以下がより好ましい。

A値が 6.4×10^5 以下であれば、合わせガラスの透過率が50%以上となる。A値が 2.3×10^5 以下であれば、合わせガラスの透過率が70%以上となる。

[0037]

[数2]

$$A = D^3 P d_i \quad (1)$$

[0038] A値を 6.4×10^{-5} 以下とすることによって合わせガラスの透過率が50%以上となる理由、およびA値を 2.3×10^{-5} 以下とすることによって合わせガラスの透過率が70%以上となる理由を以下に説明する。

[0039] 図1に示すような層構成の合わせガラスについて、空気（第0層）、第1のガラス板（第1層）、第1の透明接着層（第2層）、透明断熱層（第3層）、第2の透明接着層（第4層）、第2のガラス板（第5層）および空気（第6層）の厚さ、屈折率、累計透過率、フレネル反射および内部透過率を、表1のように表す。

[0040] [表1]

表1

層 構 成				厚さ	屈 折 率	累計 透過率	フレネル 反 射	内 部 透過率
第0層	↓ S ₀	空 気	↑ F ₀	—	n ₀	S ₀	F ₀	T ₀
第1層	↓ S ₁	第1のガラス板	↑ F ₁	d ₁	n ₁	S ₁	F ₁	T ₁
第2層	↓ S ₂	第1の透明接着層	↑ F ₂	d ₂	n ₂	S ₂	F ₂	T ₂
第3層	↓ S ₃	透明断熱層	↑ F ₃	d ₃	n ₃	S ₃	F ₃	T ₃
第4層	↓ S ₄	第2の透明接着層	↑ F ₄	d ₄	n ₄	S ₄	F ₄	T ₄
第5層	↓ S ₅	第2のガラス板	↑ F ₅	d ₅	n ₅	S ₅	F ₅	T ₅
第6層	↓ S ₆	空 気		—	n ₆	S ₆	—	T ₆

[0041] まず、合わせガラスの透過率からそれに必要な透明断熱層の透過率を求める。この導出の目的は、合わせガラスの透過率S₆の必要数値が指定された時に、透明断熱層の透過率T₃はいくつである必要があるかの関係式を求めることである。

[0042] フレネル反射については、たとえば、屈折率n₁の層と屈折率n₂の層の界面でのフレネル反射F₁は下式で表される。

[0043] [数3]

$$F_1 = \left(\frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2} \right)^2$$

[0044] 入射側の空気の累計透過率 S_0 を 1 としたとき、各層の累計透過率は、下式 (3) で表される。

[0045] [数4]

$$\begin{aligned}
 S_1 &= (S_0 - F_0)T_1 \\
 S_2 &= (S_1 - F_1)T_2 = ((S_0 - F_0)T_1 - F_1)T_2 \\
 S_3 &= (S_2 - F_2)T_3 = (((S_0 - F_0)T_1 - F_1)T_2 - F_2)T_3 \\
 S_4 &= (S_3 - F_3)T_4 = (((((S_0 - F_0)T_1 - F_1)T_2 - F_2)T_3 - F_3)T_4 \\
 S_5 &= (S_4 - F_4)T_5 = ((((((S_0 - F_0)T_1 - F_1)T_2 - F_2)T_3 - F_3)T_4 - F_4)T_5 \\
 S_6 &= (S_5 - F_5)T_6 = (((((((S_0 - F_0)T_1 - F_1)T_2 - F_2)T_3 - F_3)T_4 - F_4)T_5 - F_5)T_6
 \end{aligned} \tag{3}$$

[0046] S_6 と T_3 との関係を求めることを目的としていることから、式 (3) を T_3 に注目して変形すると下式 (4) で表される。ここで、 $F_0 = F_5$ 、 $F_1 = F_4$ 、 $F_2 = F_3$ とする。

[0047] [数5]

$$T_3 = \frac{((S_6 + F_0)/T_5 + F_1/T_4) + F_2}{((1 - F_0)T_1 - F_1)T_2 - F_2} \tag{4}$$

[0048] ガラス板および透明接着層は、10 mm 程度以下の厚さでは十分に透明性が高いことから、 T_1 、 T_2 、 T_4 、 T_5 は 1 と近似できる。よって、式 (4) は、下式 (5) で表される。

[0049] [数6]

$$T_3 = \frac{S_6 + F_0 + F_1 + F_2}{1 - F_0 - F_1 - F_2} \tag{5}$$

[0050] 波長 500 nm において、通常のガラス板の屈折率 n_1 、 n_5 、透明接着層の屈折率 n_2 、 n_4 は 1.5 程度である。一方、透明断熱層の屈折率は材料によって異なるが、ワーストケースとして空気と同じ $n_3 = 1.0$ と置けば、論理上どんな場合にも問題は起こらない。したがって、各界面でのフレネル反射は以下のように近似できる。

[0051]

[数7]

$$F_0 = \left(\frac{n_0 - n_1}{n_0 + n_1} \right)^2 \approx \left(\frac{1 - 1.5}{1 + 1.5} \right)^2 = 0.04$$

$$F_1 = \left(\frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2} \right)^2 \approx 0$$

$$F_2 = \left(\frac{n_2 - n_3}{n_2 + n_3} \right)^2 \approx \left(\frac{1.5 - 1}{1.5 + 1} \right)^2 = 0.04$$

[0052] したがって式（5）は、下式で表される。

[0053] [数8]

$$T_3 = \frac{S_6 + 0.08}{0.92}$$

[0054] ここで、 T_3 は、透明断熱層の透過率であるから T_i とし、 S_6 は、合わせガラスの透過率であるから T_L とすると、この式は下式（6）で表される。

[0055] [数9]

$$T_i = \frac{T_L + 0.08}{0.92} \quad (6)$$

[0056] 式（6）によって、実現したい合わせガラスの透過率 T_L のために必要な透明断熱層の透過率 T_i を計算できる。

[0057] つぎに、透明断熱層の独立気孔の気孔径 D 、透明断熱層の気孔率 P および透明断熱層の厚さ d_i と、合わせガラスの透過率 T_L との関係を求める。

[0058] 透明断熱層の透過率 T_i は、透明断熱層への入射光強度を I_0 、透明断熱層からの透過光強度を I 、透明断熱層の独立気孔の散乱断面積を σ 、透明断熱層の単位体積あたりの気孔数を N 、透明断熱層の厚さを d_i （mm）とすると、下式（7）で表される（高分子論文集，Vol. 67，No. 7，pp. 390－396（2010））。

[0059] [数10]

$$-\log_{10} \left(\frac{I}{I_0} \right) = -\log_{10} T_i = \sigma N d_i \quad (7)$$

[0060] 透明断熱層の独立気孔の気孔径が光の波長よりも小さい場合にはレイリー散乱が適用される。よって、散乱断面積 σ は、気孔径を D (mm)、波長を λ (nm) とすると、下式で表される。

[0061] [数11]

$$\sigma \propto \frac{D^6}{\lambda^4}$$

[0062] 透明断熱層の単位体積あたりの気孔数 N は、下式で表される。

[0063] [数12]

$$N = \frac{\text{気孔率}}{\text{気孔 1 個の体積}} = \frac{P}{\frac{4}{3}\pi\left(\frac{D}{2}\right)^3} \propto \frac{P}{D^3}$$

[0064] 単位をメートルに統一して式 (7) を整理すると、下式 (8) で表される。

[0065] [数13]

$$-\log_{10} T_i = \sigma N d_i \propto \left[\frac{(D \times 10^{-9})^6}{(\lambda \times 10^{-9})^4} \right] \times \left[\frac{P}{(D \times 10^{-9})^3} \right] \times [d_i \times 10^{-3}] = \frac{D^3 P d_i}{\lambda^4} \times 10^6 \quad (8)$$

[0066] ここで、比例定数を C と置くと、式 (8) はさらに下式 (9)、(10)、(11) で表される。なお、式 (9)、(10)、(11) は等価である。

[0067] [数14]

$$C \times (-\log_{10} T_i) = \frac{D^3 P d_i}{\lambda^4} \quad (9)$$

$$C = \frac{D^3 P d_i}{\lambda^4 (-\log_{10} T_i)} \quad (10)$$

$$T_i = 10^{-\left(\frac{D^3 P d_i}{C \lambda^4}\right)} \quad (11)$$

[0068] 式 (10) に式 (6) を代入すると、下式 (12) となる。

[0069]

[数15]

$$C = \frac{D^3 P d_i}{\lambda^4 (-\log_{10} T_L)} = \frac{D^3 P d_i}{\lambda^4 \left(-\log_{10} \left(\frac{T_L + 0.08}{0.92} \right) \right)} \quad (12)$$

[0070] 実際に、色々と条件を変えた合わせガラスを作製して、D、P、 d_i 、波長 500 nm における透過率 T_L を測定し、これらの値を式 (12) に代入して C の値を計算すると、表 2 の結果が得られた。なお、波長は 500 nm である必要はないが、それより短波長では不純物の影響を受けやすく、また長波長では散乱の影響が見えにくい。よって、波長 500 nm における透過率 T_L の値で評価した。

[0071] [表2]

表 2

	実施例							
	1	2	3	4	5	6	7	8
気孔径 D (nm)	110	82	53	61	41	58	52	70
気孔率 P	0.36	0.52	0.49	0.51	0.59	0.53	0.60	0.53
透明断熱層厚さ d_i (mm)	1.2	1.3	5.8	0.5	1.2	1.1	2.5	1.2
ガラス板厚さ合計 d_g (mm)	3.2	2.0	4.0	4.0	4.0	4.0	12.0	4.0
透明接着層厚さ合計 d_a (mm)	0.76	1.52	0.20	0.76	3.80	0.76	0.76	0.76
合わせガラス透過率 T_L (%)	50.1	62.4	59.2	80.1	80.6	76.8	73.4	70.2
式(12)から計算された $C/10^{-5}$	4.61	5.12	4.96	4.95	4.76	5.16	6.35	4.89

[0072] 実測値から得られた C の値を平均して、 $C = 5.1 \times 10^{-5}$ の値を得た。
したがって、式 (12) は、下式 (13) で表される。

[0073] [数16]

$$D^3 P d_i = 5.1 \times 10^{-5} \times \lambda^4 \times \left(-\log_{10} \left(\frac{T_L + 0.08}{0.92} \right) \right) = A \quad (13)$$

[0074] たとえば、合わせガラスの透過率 T_L が 50 % の場合には、式 (13) の括弧内の数値は下記ようになる。

[0075] [数17]

$$-\log_{10} \left(\frac{T_L + 0.08}{0.92} \right) = -\log_{10} \left(\frac{0.5 + 0.08}{0.92} \right) = 0.20$$

[0076] よって、波長を500nmに固定して考えると、合わせガラスの透過率 T_L が50%以上を満たすためには、透明断熱層の独立気孔の気孔径 D 、透明断熱層の気孔率 P および透明断熱層の厚さ d_i が、下式(14)の関係にあればよいことがわかる。

[0077] [数18]

$$A_{50\%} = 5.1 \times 10^{-5} \times (500)^4 \times 0.20 = 6.4 \times 10^5 \geq D^3 P d_i = A \quad (14)$$

[0078] 同様にして、合わせガラスの透過率 T_L が70%以上を満たすためには、下式(15)の関係にあればよい。A値の単位は $\text{nm}^3 \cdot \text{mm}$ となる。

[0079] [数19]

$$A_{70\%} = 2.3 \times 10^5 \geq D^3 P d_i = A \quad (15)$$

[0080] (B値)

本発明の合わせガラスは、下式(2)で表されるB値が、35以上であり、85以上が好ましい。

B値が35以上であれば、断熱性の目安である合わせガラスの熱貫流率(U値)が5.0W/m²K以下となる。B値が85以上あれば、合わせガラスのU値が4.0W/m²K以下となる。

[0081] [数20]

$$B = d_g + 3.3d_a + 4.3d_i \left(\frac{D + 260.8}{0.026D} \right)^P \quad (2)$$

[0082] B値を35以上とすることによって合わせガラスのU値が5.0W/m²K以下となる理由、およびB値を85以上とすることによって合わせガラスのU値が4.0W/m²K以下となる理由を以下に説明する。

[0083] 合わせガラスの熱貫流率を U (W/m²K)、室外側の表面熱伝達率を h_{xt} (W/m²K)、室内側の表面熱伝達率を h_{in} (W/m²K)、各層の熱抵抗を R (m²K/W)、2枚のガラス板の厚さの合計を d_g (mm)、ガラス板の熱伝導率を λ_g (W/mK)、透明接着層の厚さの合計を d_a (mm)、透明接着層の熱伝導率を λ_a (W/mK)、透明断熱層の厚みを d_i (mm)

、透明断熱層の熱伝導率を λ_i (W/mK) とすると、下式 (16) で表される。

[0084] [数21]

$$\frac{1}{U} = \frac{1}{h_{ext}} + \sum R + \frac{1}{h_{in}} = \frac{1}{h_{ext}} + \frac{1}{h_{in}} + \frac{d_g}{\lambda_g} + \frac{d_a}{\lambda_a} + \frac{d_i}{\lambda_i} \quad (16)$$

[0085] 室温での空気の熱伝導率を λ_{air} (0.026 W/mK)、平均自由行程を L (62.5×10^{-9} m)、透明断熱層の独立気孔の気孔径を D (mm)、独立気孔の熱伝導率を λ_{pore} (W/mK) とすると、これらの関係は下式 (17) で表される (G. Wei et al., International Journal of Heat and Mass Transfer (2011) 54, 2355–2366)。

[0086] [数22]

$$\lambda_{pore} = \frac{\lambda_{air}}{1 + \frac{2L}{D/2}} = \frac{0.026D}{D + 4L} \quad (17)$$

[0087] 透明断熱層の熱伝導率 λ_i は、透明断熱層のマトリックスの熱伝導率を λ_{mat} (W/mK)、透明断熱層の気孔率を P とすると、日本大学生産工学部第37回 (平成16年度) 学術講演会 応用分子化学部会 プログラム5-8「ガスハイドレート模擬堆積物試料の熱伝導率測定」に記載の分散モデルから、式 (17) を用い、 b を比例定数として下式で表される。

[0088] [数23]

$$\lambda_i = b \times \lambda_{pore}^P \times \lambda_{mat}^{(1-P)} = b \times \left(\frac{0.026D}{D + 4L} \right)^P \times \lambda_{mat}^{(1-P)}$$

[0089] 室外側の部材表面の半球放射率 ε_{ext} は0.837 W/m²Kであり、室内側の部材表面の半球放射率 ε_{in} も0.837 W/m²Kであるから、定義により、室外側の表面熱伝達率 h_{ext} および室内側の表面熱伝達率 h_{in} は下記のようになる。

[0090]

[数24]

$$h_{ext} = 4.9 \times \varepsilon_{ext} + 16.3 = 20.4013$$

$$h_{in} = 5.4 \times \varepsilon_{in} + 4.1 = 8.6198$$

[0091] ガラス板の熱伝導率 λ_g は、ガラスの種類が異なってもおおむね 1.0 W/mK であり、透明接着層に使われる材料の熱伝導率 λ_a は、おおむね 0.3 W/mK 程度である。また、透明断熱層のマトリックスの熱伝導率 λ_{mat} は、ワーストケースとして 1.0 W/mK と置くことができる。これらより、単位をメートルに統一して式(16)を整理すると、下式(18)で表される。

[0092] [数25]

$$\begin{aligned} \frac{1}{U} &= \frac{1}{20.4013} + \frac{1}{8.6198} + 10^{-3} \left[\frac{d_g}{1} + \frac{d_a}{0.3} + \frac{d_i}{b} \left(\frac{D \times 10^{-9} + 260.8 \times 10^{-9}}{0.026D \times 10^{-9}} \right)^P \right] \\ \therefore \frac{1}{U} &= 0.16503 + 10^{-3} \left[d_g + 3.3d_a + \frac{d_i}{b} \left(\frac{D + 260.8}{0.026D} \right)^P \right] \end{aligned} \quad (18)$$

[0093] 式(18)を整理し、Bと置くと、下式(19)で表される。

[0094] [数26]

$$d_g + 3.3d_a + \frac{d_i}{b} \left(\frac{D + 260.8}{0.026D} \right)^P = 10^3 \left(\frac{1}{U} - 0.16503 \right) = B \quad (19)$$

[0095] 式(19)をbに関して変形すると、下式(20)で表される。

[0096] [数27]

$$b = d_i \left(\frac{D + 260.8}{0.026D} \right)^P \left/ \left(10^3 \left(\frac{1}{U} - 0.16503 \right) - d_g - 3.3d_a \right) \right. \quad (20)$$

[0097] 実際に、色々と条件を変えた合わせガラスを作製して、D、P、 d_i 、 d_g 、 d_a 、U値を測定し、これらの値を式(20)に代入してbの値を計算すると、表3の結果が得られた。

[0098]

[表3]

表 3

	実施例							
	1	2	3	4	5	6	7	8
気孔径 D (nm)	110	82	53	61	41	58	52	70
気孔率 P	0.36	0.52	0.49	0.51	0.59	0.53	0.60	0.53
透明断熱層厚さ d_i (mm)	1.2	1.3	5.8	0.5	1.2	1.1	2.5	1.2
ガラス板厚さ合計 d_g (mm)	3.2	2.0	4.0	4.0	4.0	4.0	12.0	4.0
透明接着層厚さ合計 d_a (mm)	0.76	1.52	0.20	0.76	3.80	0.76	0.76	0.76
U 値 (W/m ² K)	5.0	4.0	1.9	4.9	3.0	3.8	2.5	3.9
式(19)から計算された b	0.236	0.234	0.226	0.234	0.226	0.208	0.293	0.221

[0099] 実測値から得られた b の値を平均して、 $b = 0.235$ の値を得た。したがって、式 (19) は、b の値を代入して下式 (21) で表される。

[0100] [数28]

$$d_g + 3.3d_a + 4.3d_i \left(\frac{D + 260.8}{0.026D} \right)^P = 10^3 \left(\frac{1}{U} - 0.16503 \right) = B \quad (21)$$

[0101] たとえば、U 値が 5.0 W/m²K の場合には、B 値は下記のようにになる。

[0102] [数29]

$$B_{U5} = 10^3 \left(\frac{1}{5.0} - 0.16503 \right) = 35$$

[0103] よって、U 値が 5.0 W/m²K 以下を満たすためには、透明断熱層の独立気孔の気孔径 D、透明断熱層の気孔率 P、透明断熱層の厚さ d_i 、ガラス板の厚さの合計 d_g 、透明接着層の厚さの合計 d_a が、下式 (22) の関係にあればよいことが分かる。

[0104] [数30]

$$B_{U5} = 35 \leq d_g + 3.3d_a + 4.3d_i \left(\frac{D + 260.8}{0.026D} \right)^P = B \quad (22)$$

[0105] 同様にして、U 値が 4.0 W/m²K 以下を満たすためには、下式 (23) の関係にあればよい。B 値の単位は mm である。

[0106]

[数31]

$$B_{v4} = 85 \leq d_g + 3.3d_a + 4.3d_i \left(\frac{D + 260.8}{0.026D} \right)^P = B \quad (23)$$

[0107] (合わせガラスの特性)

合わせガラスの波長 500 nm の光の透過率は、50%以上が好ましく、70～99%がより好ましく、70～96%がさらに好ましい。波長 500 nm の光の透過率が前記範囲の下限值以上であれば、合わせガラスの透明性が高くなる。波長 500 nm の光の透過率が前記範囲の上限値を超える合わせガラスは、製造が困難である。

[0108] 合わせガラスの熱貫流率（U 値）は、現状の自動車用の合せガラスが 5.8 W/m²K であることから、燃費向上の点から、5.0 W/m²K 以下が好ましく、4.0 W/m²K 以下がさらに好ましい。

[0109] 合わせガラスの厚さは、2～20 mm が好ましく、3～10 mm がより好ましく、4～6 mm がさらに好ましい。合わせガラスの厚さが前記範囲の下限值以上であれば、合わせガラスの断熱性にさらに優れ、また、機械強度にも優れる。合わせガラスの厚さが前記範囲の上限値以下であれば、合わせガラスが重くなりすぎず、また透明性にも優れる。

[0110] (合わせガラスの製造方法)

合わせガラスは、公知の方法によって製造できる。たとえば、第2のガラス板、第2の透明接着層となる透明樹脂シート、透明断熱層となる透明断熱シート、第1の透明接着層となる透明樹脂シート、第1のガラス板を順に重ね、これらを仮接着した後、加熱および加圧することによって本接着することによって製造できる。この際、第1の透明接着層となる透明樹脂シートと第2の透明接着層となる透明樹脂シートは、各々、同種であってもよく、異種の2枚以上のシートから構成されていてもよい。

[0111] (他の形態)

本発明の合わせガラスは、第1のガラス板と、第1の透明接着層と、シェルなしの独立気孔を有する透明断熱層と、第2の透明接着層と、第2のガラ

ス板とを順に有し、A値が 6.4×10^{-5} 以下であり、B値が35以上であるものであればよく、図示例のものに限定はされない。

[0112] たとえば、本発明の合わせガラスは、必要に応じて第3のガラス板、またはそれ以上のガラス板を有するものであってもよい。

本発明の合わせガラスは、赤外線吸収層、紫外線吸収層等の、透明断熱層以外の機能層を有していてもよい。

[0113] (作用機序)

以上説明した本発明の合わせガラスにあっては、独立気孔を有する透明断熱層によって車内や室内の温度上昇を抑えることができるため、日射による車内や室内の温度上昇を抑えるための金属薄膜を設ける必要がない。そのため、電波透過性を有する。

また、本発明の合わせガラスにあっては、A値が 6.4×10^{-5} 以下であるため、透明性が高い。

また、本発明の合わせガラスにあっては、B値が35以上であるため、熱貫流率(U値)が $5.0 \text{ W/m}^2 \text{ K}$ 以下となり、断熱性に優れる。

実施例

[0114] 以下に、実施例を挙げて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらの例によって限定されない。

[0115] (独立気孔の気孔径)

透明断熱層における独立気孔の気孔径は、透過型顕微鏡(日本電子社製、JEM-1230)を用いて100個の気孔を観察し、それを楕円とみなした時の長径と短径の単純平均を計算した値(すなわち200個の数値平均)である。

[0116] (透明断熱層の気孔率)

プレス前の透明断熱層の体積と、温度： 200°C 、圧力： 35 MPa 、時間：10分間の条件でプレスした後の透明断熱層の体積とから下式によって求めた。

気孔率 = $1 - (\text{プレス後の透明断熱層の体積} / \text{プレス前の透明断熱層の体積})$

積)

[0117] (透明断熱層の圧縮弾性率)

透明断熱層の圧縮弾性率は、貼合前の透明断熱シートについて、J I S K 7181 : 2011 (I S O 604 : 2002) に準拠し、卓上形精密万能試験機 (島津製作所社製、オートグラフ A G S - 5 k N X) を用いて測定した。

[0118] (合わせガラスの透過率)

合わせガラスの波長 500 nm の光の透過率は、J I S R 3106 : 1998 (I S O 9050 : 1990) に準拠し、分光光度計 (島津製作所社製、S o l i d S p e c - 3700 D U V) を用いて測定した。

[0119] (熱貫流率 (U 値))

合わせガラスのU 値を、J I S R 3107 : 1998 および J I S R 3209 : 1998 に準拠し、英弘精機社製の H C - 074 / 630 を用いて測定した。

[0120] (耐潰れ性)

ガラス板と貼合する際の透明断熱層の圧縮変形の有無を確認した。

○ : 圧縮変形なし。

× : 圧縮変形あり。

[0121] (A 値)

式 (1) から求めた A 値について、下記基準にて判定した。

◎ : A 値が 2.3×10^5 以下。

○ : A 値が 2.3×10^5 超 6.4×10^5 以下。

× : A 値が 6.4×10^5 超。

[0122] (B 値)

式 (2) から求めた B 値について、下記基準にて判定した。

◎ : B 値が 85 以上。

○ : B 値が 35 以上 85 未満。

× : B 値が 35 未満。

[0123] (総合判定)

合わせガラスの透過率およびU値から下記基準にて総合的に判定した。

◎：透過率が70%以上かつU値が $4.0\text{ W/m}^2\text{ K}$ 以下。

○：透過率が50%以上かつU値が $5.0\text{ W/m}^2\text{ K}$ 以下。

×：透過率が50%未満またはU値が $5.0\text{ W/m}^2\text{ K}$ 未満。

[0124] (実施例1)

厚さ0.4mmのポリカーボネートフィルム（AGCポリカーボネート社製）を用意した。フィルムを圧力容器に入れ、ポンプで圧力容器内に液化二酸化炭素を供給し、 120°C まで加熱した。 20 MPa を維持するように圧力調整を行った。3時間保持することによってフィルムに超臨界二酸化炭素を含浸させた。該温度を維持したまま、圧力容器のバルブを開き、10秒間かけて圧力を大気圧まで開放することによって1.2mm厚の発泡樹脂シートを得た。発泡樹脂シートにおける独立気泡の気孔径、発泡樹脂シートの気孔率、圧縮弾性率を測定した。

[0125] 発泡樹脂シートを透明断熱層として、両面を0.38mm厚のポリビニルブチラール（PVB）フィルムで挟み、さらにその両面を1.6mm厚のソーダライムガラス（旭硝子社製）で挟み、真空包装用バッグに入れて減圧吸引し、各層の界面に残留する空気を脱気し、 120°C 、30分間で仮接着して積層体を得た。次に、積層体をオートクレーブに入れ、 120°C 、 1.3 MPa 、90分間で本接着し、合わせガラスを得た。ガラス板と貼合する際に透明断熱層が圧縮変形されないことを確認するとともに、合わせガラスの透過率、U値を測定した。結果を表4に示す。

[0126] (実施例2)

厚さ0.5mmのポリカーボネートフィルムを用意した。フィルムを圧力容器に入れ、ポンプで圧力容器内に液化二酸化炭素を供給し、 110°C まで加熱した。 26 MPa を維持するように圧力調整を行った。1時間保持することによってフィルムに超臨界二酸化炭素を含浸させた。該温度を維持したまま、圧力容器のバルブを開き、5秒間かけて圧力を大気圧まで開放するこ

とによって1.3mm厚の発泡樹脂シートを得た。発泡樹脂シートにおける独立気泡の気孔径、発泡樹脂シートの気孔率、圧縮弾性率を測定した。

[0127] 発泡樹脂シートを透明断熱層として、両面を0.76mm厚のPVBフィルムで挟み、さらにその両面を1.0mm厚のソーダライムガラスで挟み、実施例1と同様の方法で合わせガラスを作製した。ガラス板と貼合する際に透明断熱層が圧縮変形されないことを確認するとともに、合わせガラスの透過率、U値を測定した。結果を表4に示す。

[0128] (実施例3)

厚さ2.0mmのポリカーボネートフィルムを用意した。フィルムを圧力容器に入れ、ポンプで圧力容器内に液化二酸化炭素を供給し、95℃まで加熱した。25MPaを維持するように圧力調整を行った。5時間保持することによってフィルムに超臨界二酸化炭素を含浸させた。該温度を維持したまま、圧力容器のバルブを開き、10秒間かけて圧力を大気圧まで開放することによって5.8mm厚の発泡樹脂シートを得た。発泡樹脂シートにおける独立気泡の気孔径、発泡樹脂シートの気孔率、圧縮弾性率を測定した。

[0129] 発泡樹脂シートを透明断熱層として、両面を0.1mm厚のPVBフィルムで挟み、さらにその両面を2.0mm厚のソーダライムガラスで挟み、実施例1と同様の方法で合わせガラスを作製した。ガラス板と貼合する際に透明断熱層が圧縮変形されないことを確認するとともに、合わせガラスの透過率、U値を測定した。結果を表4に示す。

[0130] (実施例4)

厚さ0.2mmのポリカーボネートフィルム（AGCポリカーボネート社製）を用意した。フィルムを圧力容器に入れ、ポンプで圧力容器内に液化二酸化炭素を供給し、100℃まで加熱した。26MPaを維持するように圧力調整を行った。1時間保持することによってフィルムに超臨界二酸化炭素を含浸させた。該温度を維持したまま、圧力容器のバルブを開き、5秒間かけて圧力を大気圧まで開放することによって0.5mm厚の発泡樹脂シートを得た。発泡樹脂シートにおける独立気泡の気孔径、発泡樹脂シートの気孔

率、圧縮弾性率を測定した。

[0131] 発泡樹脂シートを透明断熱層として、両面を、0.26mm厚のPVBフィルムおよび0.5mm厚のPVBフィルムで挟み、さらにその両面を、1.0mm厚のソーダライムガラスおよび3.0mm厚のソーダライムガラスで挟み、実施例1と同様の方法で合わせガラスを作製した。ガラス板と貼合する際に透明断熱層が圧縮変形されないことを確認するとともに、合わせガラスの透過率、U値を測定した。結果を表4に示す。

[0132] (実施例5)

厚さ0.5mmのポリメチルメタクリレート(PMMA)フィルムを用意した。フィルムを圧力容器に入れ、ポンプで圧力容器内に液化二酸化炭素を供給し、70℃まで加熱した。28MPaを維持するように圧力調整を行った。1時間保持することによってフィルムに超臨界二酸化炭素を含浸させた。該温度を維持したまま、圧力容器のバルブを開き、5秒間かけて圧力を大気圧まで開放することによって1.2mm厚の発泡樹脂シートを得た。発泡樹脂シートにおける独立気泡の気孔径、発泡樹脂シートの気孔率、圧縮弾性率を測定した。

[0133] 発泡樹脂シートを透明断熱層として、両面を、0.38mm厚のPVBフィルムの2枚重ねおよび0.76mm厚のPVBフィルムを4枚重ねで挟み、さらにその両面を2mm厚のソーダライムガラスで挟み、実施例1と同様の方法で合わせガラスを作製した。ガラス板と貼合する際に透明断熱層が圧縮変形されないことを確認するとともに、合わせガラスの透過率、U値を測定した。結果を表4に示す。

[0134] (実施例6)

厚さ0.4mmのPMMAフィルムを用意した。フィルムを圧力容器に入れ、ポンプで圧力容器内に液化二酸化炭素を供給し、80℃まで加熱した。26MPaを維持するように圧力調整を行った。1時間保持することによってフィルムに超臨界二酸化炭素を含浸させた。該温度を維持したまま、圧力容器のバルブを開き、5秒間かけて圧力を大気圧まで開放することによって

1. 1 mm厚の発泡樹脂シートを得た。発泡樹脂シートにおける独立気泡の気孔径、発泡樹脂シートの気孔率、圧縮弾性率を測定した。

[0135] 発泡樹脂シートを透明断熱層として、両面を0.38 mm厚のPVBフィルムで挟み、さらにその両面を2.0 mm厚のソーダライムガラスで挟み、実施例1と同様の方法で合わせガラスを作製した。ガラス板と貼合する際に透明断熱層が圧縮変形されないことを確認するとともに、合わせガラスの透過率、U値を測定した。結果を表4に示す。

[0136] (実施例7)

厚さ0.8 mmのPMMAフィルムを用意した。フィルムを圧力容器に入れ、ポンプで圧力容器内に液化二酸化炭素を供給し、75℃まで加熱した。28 MPaを維持するように圧力調整を行った。3時間保持することによってフィルムに超臨界二酸化炭素を含浸させた。該温度を維持したまま、圧力容器のバルブを開き、5秒間かけて圧力を大気圧まで開放することによって2.5 mm厚の発泡樹脂シートを得た。発泡樹脂シートにおける独立気泡の気孔径、発泡樹脂シートの気孔率、圧縮弾性率を測定した。

[0137] 発泡樹脂シートを透明断熱層として、両面を0.38 mm厚のPVBフィルムで挟み、さらにその両面を6.0 mm厚のソーダライムガラスで挟み、実施例1と同様の方法で合わせガラスを作製した。ガラス板と貼合する際に透明断熱層が圧縮変形されないことを確認するとともに、合わせガラスの透過率、U値を測定した。結果を表4に示す。

[0138] (実施例8)

厚さ0.4 mmのPMMAフィルムを用意した。フィルムを圧力容器に入れ、ポンプで圧力容器内に液化二酸化炭素を供給し、85℃まで加熱した。25 MPaを維持するように圧力調整を行った。1時間保持することによってフィルムに超臨界二酸化炭素を含浸させた。該温度を維持したまま、圧力容器のバルブを開き、5秒間かけて圧力を大気圧まで開放することによって1.2 mm厚の発泡樹脂シートを得た。発泡樹脂シートにおける独立気泡の気孔径、発泡樹脂シートの気孔率、圧縮弾性率を測定した。

[0139] 発泡樹脂シートを透明断熱層として、両面を0.38mm厚のPVBフィルムで挟み、さらにその両面を2.0mm厚のソーダライムガラスで挟み、実施例1と同様の方法で合わせガラスを作製した。ガラス板と貼合する際に透明断熱層が圧縮変形されないことを確認するとともに、合わせガラスの透過率、U値を測定した。結果を表4に示す。

[0140] (実施例9)

厚さ0.5mmのポリスチレンフィルムを用意した。フィルムを圧力容器に入れ、ポンプで圧力容器内に液化二酸化炭素を供給し、60℃まで加熱した。16MPaを維持するように圧力調整を行った。5時間保持することによってフィルムに超臨界二酸化炭素を含浸させた。該温度を維持したまま、圧力容器のバルブを開き、1分間かけて圧力を大気圧まで開放することによって1.1mm厚の発泡樹脂シートを得た。発泡樹脂シートにおける独立気泡の気孔径、発泡樹脂シートの気孔率、圧縮弾性率を測定した。

[0141] 発泡樹脂シートを透明断熱層として、両面を0.38mm厚のPVBフィルムで挟み、さらにその両面を2.0mm厚のソーダライムガラスで挟み、実施例1と同様の方法で合わせガラスを作製した。ガラス板と貼合する際に透明断熱層が圧縮変形されないことを確認するとともに、合わせガラスの透過率、U値を測定した。結果を表4に示す。

[0142] (実施例10)

厚さ0.4mmのポリスチレンフィルムを用意した。フィルムを圧力容器に入れ、ポンプで圧力容器内に液化二酸化炭素を供給し、50℃まで加熱した。26MPaを維持するように圧力調整を行った。5時間保持することによってフィルムに超臨界二酸化炭素を含浸させた。該温度を維持したまま、圧力容器のバルブを開き、1分間かけて圧力を大気圧まで開放することによって0.8mm厚の発泡樹脂シートを得た。発泡樹脂シートにおける独立気泡の気孔径、発泡樹脂シートの気孔率、圧縮弾性率を測定した。

[0143] 発泡樹脂シートを透明断熱層として、両面を0.76mm厚のPVBフィルムで挟み、さらにその両面を6.0mm厚のソーダライムガラスで挟み、

実施例 1 と同様の方法で合わせガラスを作製した。ガラス板と貼合する際に透明断熱層が圧縮変形されないことを確認するとともに、合わせガラスの透過率、U 値を測定した。結果を表 4 に示す。

[0144] (比較例 1)

厚さ 0.3 mm のポリカーボネートフィルムを用意した。フィルムを圧力容器に入れ、ポンプで圧力容器内に液化二酸化炭素を供給し、130℃まで加熱した。10 MPa を維持するように圧力調整を行った。1 時間保持することによってフィルムに超臨界二酸化炭素を含浸させた。該温度を維持したまま、圧力容器のバルブを開き、5 秒間かけて圧力を大気圧まで開放することによって 1.2 mm 厚の発泡樹脂シートを得た。発泡樹脂シートにおける独立気泡の気孔径、発泡樹脂シートの気孔率、圧縮弾性率を測定した。

[0145] 発泡樹脂シートを透明断熱層として、両面を 0.38 mm 厚の PVB フィルムで挟み、さらにその両面を 2.0 mm 厚のソーダライムガラスで挟み、実施例 1 と同様の方法で合わせガラスを作製した。ガラス板と貼合する際に透明断熱層が圧縮変形されないことを確認するとともに、合わせガラスの透過率、U 値を測定した。結果を表 4 に示す。

[0146] (比較例 2)

厚さ 0.5 mm の PMMA フィルムを用意した。フィルムを圧力容器に入れ、ポンプで圧力容器内に液化二酸化炭素を供給し、100℃まで加熱した。20 MPa を維持するように圧力調整を行った。3 時間保持することによってフィルムに超臨界二酸化炭素を含浸させた。該温度を維持したまま、圧力容器のバルブを開き、5 秒間かけて圧力を大気圧まで開放することによって 2.0 mm 厚の発泡樹脂シートを得た。発泡樹脂シートにおける独立気泡の気孔径、発泡樹脂シートの気孔率、圧縮弾性率を測定した。

[0147] 発泡樹脂シートを透明断熱層として、両面を 0.38 mm 厚の PVB フィルムで挟み、さらにその両面を 2.0 mm 厚のソーダライムガラスで挟み、実施例 1 と同様の方法で合わせガラスを作製した。ガラス板と貼合する際に透明断熱層が圧縮変形されないことを確認するとともに、合わせガラスの透

過率、U値を測定した。結果を表4に示す。

[0148] (比較例3)

厚さ0.4mmのエチレン-酢酸ビニル共重合体(EVA)フィルムを用意した。フィルムを圧力容器に入れ、ポンプで圧力容器内に液化二酸化炭素を供給し、50℃まで加熱した。26MPaを維持するように圧力調整を行った。3時間保持することによってフィルムに超臨界二酸化炭素を含浸させた。該温度を維持したまま、圧力容器のバルブを開き、5秒間かけて圧力を大気圧まで開放することによって1.1mm厚の発泡樹脂シートを得た。発泡樹脂シートにおける独立気泡の気孔径、発泡樹脂シートの気孔率、圧縮弾性率を測定した。

[0149] 発泡樹脂シートを透明断熱層として、両面を0.38mm厚のPVBフィルムで挟み、さらにその両面を2.0mm厚のソーダライムガラスで挟み、実施例1と同様の方法で合わせガラスを作製した。ガラス板と貼合する際に透明断熱層が潰されて白化した。結果を表4に示す。

[0150] (比較例4)

透明断熱層を入れずに、0.76mm厚の1枚のPVBフィルムを2枚の2.0mm厚のソーダライムガラスで挟み、実施例1と同様の方法で合せガラスを作製した。合わせガラスの透過率、U値を測定した。結果を表4に示す。

[0151]

[表4]

表4	実施例										比較例			
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	1	2	3	4
気孔径D (nm)	110	82	53	61	41	58	52	70	92	103	150	120	58	—
気孔率P	0.36	0.52	0.49	0.51	0.59	0.53	0.60	0.53	0.71	0.70	0.27	0.50	0.53	—
透明断熱層厚さd _t (mm)	1.2	1.3	5.8	0.5	1.2	1.1	2.5	1.2	1.1	0.8	1.2	2	1.1	—
ガラス板厚さ合計d _g (mm)	3.2	2	4	4	4	4	12	4	4	12	4	4	4	4
透明接着層厚さ合計d _a (mm)	0.76	1.52	0.2	0.76	3.8	0.76	0.76	0.76	0.76	1.52	0.76	0.76	0.76	0.76
透明断熱層圧縮弾性率 (MPa)	17.0	9.8	13.0	11.6	12.7	12.0	10.1	10.3	4.3	5.8	16.2	8.6	0.1	—
透明断熱層の耐潰れ性	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	×	—
A値/10 ⁵	5.7	3.7	4.2	0.6	0.5	1.1	2.1	2.2	6.1	6.1	11.2	17.3	1.1	—
A値判定	○	○	○	◎	◎	◎	◎	◎	○	○	×	×	○	—
合わせガラス透過率T _i (%)	50.1	62.4	59.2	80.1	80.6	76.8	73.4	70.2	50.3	50.1	33.2	18.7	7.8	84.2
B値	35.3	85	358.9	38.6	160.6	86.8	294.6	85.2	170.4	124.1	25	100.9	86.8	—
B値判定	○	◎	◎	○	◎	◎	◎	◎	◎	◎	×	◎	×	—
U値 (W/m ² K)	5.0	4.0	1.9	4.9	3.0	3.8	2.5	3.9	2.9	3.5	5.1	3.5	5.5	5.8
総合判定	○	○	○	○	◎	◎	◎	◎	○	○	×	×	×	×

[0152] A値が6.4 × 10⁻⁵以下であり、B値が35以上である実施例1～10の

合わせガラスは、透明性が高く、かつ断熱性に優れていた。

A値が 6.4×10^5 超であり、B値が35未満である比較例1の合わせガラスは、透明性が低く、かつ断熱性に劣っていた。

A値が 6.4×10^5 超である比較例2の合わせガラスは、透明性が低く、かつ断熱性に劣っていた。

B値が35未満である比較例3の合わせガラスは、断熱性に劣っていた。

透明断熱層の圧縮弾性率が4.3MPa未満である比較例3の合わせガラスは、ガラス板と貼合する際に透明断熱層が潰されて白化し、透過率が低くなった。

透明断熱層を設けていない比較例4の合わせガラスは、断熱性に劣っていた。

[0153] 本出願は、2015年11月26日出願の日本特許出願、特願2015-231012に基づくものであり、その内容はここに参照として取り込まれる。

産業上の利用可能性

[0154] 本発明の合わせガラスは、自動車用窓ガラス（ウインドシールド、ルーフ窓、昇降窓、側部固定窓、バックライト、ルーフ窓等）、鉄道車両用窓ガラス等の車両用窓ガラス、建物用窓ガラス等としてとして有用である。

符号の説明

[0155] 1 合わせガラス
10 第1のガラス板
12 第2のガラス板
14 透明断熱層
16 第1の透明接着層
18 第2の透明接着層

請求の範囲

[請求項1] 第1のガラス板と、第1の透明接着層と、独立気孔を有する透明断熱層と、第2の透明接着層と、第2のガラス板とを順に有し、

前記独立気孔が、気孔のまわりがシェルを介することなくマトリックスで直接覆われた気孔であり、

下式(1)で表されるA値が、 6.4×10^5 以下であり、

下式(2)で表されるB値が、35以上である、合わせガラス。

[数1]

$$A = D^3 P d_i \quad (1)$$

$$B = d_g + 3.3 d_a + 4.3 d_i \left(\frac{D + 260.8}{0.026 D} \right)^p \quad (2)$$

ただし、Dは透明断熱層の独立気孔の気孔径(nm)であり、Pは透明断熱層の気孔率であり、 d_i は透明断熱層の厚さ(mm)であり、 d_g は第1のガラス板の厚さと第2のガラス板の厚さの合計(mm)であり、 d_a は第1の透明接着層の厚さと第2の透明接着層の厚さの合計(mm)である。

[請求項2] 前記A値が、 2.3×10^5 以下であり、

前記B値が、85以上である、請求項1に記載の合わせガラス。

[請求項3] 前記透明断熱層の圧縮弾性率が、4.3MPa以上である、請求項1または2に記載の合わせガラス。

[請求項4] 前記透明断熱層が、発泡樹脂シートである、請求項1～3のいずれか一項に記載の合わせガラス。

[請求項5] 前記透明断熱層の厚さが、0.2mm～10mmである、請求項1～4のいずれか一項に記載の合わせガラス。

[請求項6] 前記第1のガラス板の厚さおよび前記第2のガラス板の厚さが、それぞれ0.1mm～6mmである、請求項1～5のいずれか一項に記載の合わせガラス。

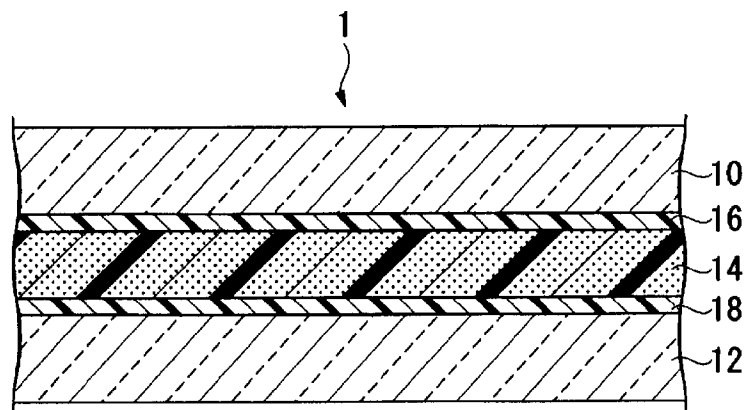
[請求項7] 前記第1の透明接着層の厚さおよび前記第2の透明接着層の厚さが

、それぞれ 0.1 mm～3 mm である、請求項 1～6 のいずれか一項に記載の合わせガラス。

[請求項 8] 請求項 1～7 のいずれか一項に記載の合わせガラスを備えた、自動車用窓ガラス。

[請求項 9] 請求項 1～7 のいずれか一項に記載の合わせガラスを備えた、建物用窓ガラス。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/084836

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C03C27/12(2006.01)i, B32B5/18(2006.01)i, B32B17/10(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, B32B5/18, B32B17/10

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

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

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580(JDreamIII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2010-100778 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 06 May 2010 (06.05.2010), claims; paragraphs [0002], [0003], [0027], [0043] to [0082] (Family: none)	1-9
A	JP 8-283049 A (Bridgestone Corp.), 29 October 1996 (29.10.1996), claims; paragraphs [0010] to [0035] (Family: none)	1-9
A	WO 2013/077252 A1 (Konica Minolta, Inc.), 30 May 2013 (30.05.2013), claims; paragraph [0237] (Family: none)	1-9

☒ 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
03 February 2017 (03.02.17)

Date of mailing of the international search report
14 February 2017 (14.02.17)

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

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2016/084836

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 11-171604 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 29 June 1999 (29.06.1999), paragraph [0024] (Family: none)	1-9
A	Microfilm of the specification and drawings annexed to the request of Japanese Utility Model Application No. 64696/1987 (Laid-open No. 170227/1988) (Satosan Co., Ltd.), 07 November 1988 (07.11.1988), claims; examples (Family: none)	1-9

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C03C27/12(2006.01)i, B32B5/18(2006.01)i, B32B17/10(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（I P C））

Int.Cl. C03C27/12, B32B5/18, B32B17/10

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 7 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 7 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 7 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）

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)

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	JP 2010-100778 A（電気化学工業株式会社）2010.05.06, 特許請求の範囲, [0002], [0003], [0027], [0043]-[0082]（ファミリーなし）	1-9
A	JP 8-283049 A（株式会社ブリヂストン）1996.10.29, 特許請求の範囲, [0010]-[0035]（ファミリーなし）	1-9
A	WO 2013/077252 A1（コニカミノルタ株式会社）2013.05.30, 請求の範囲, [0237]（ファミリーなし）	1-9

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

0 3 . 0 2 . 2 0 1 7

国際調査報告の発送日

1 4 . 0 2 . 2 0 1 7

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
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）

伊藤 真明

4 T

3 6 4 0

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 6 5

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
A	JP 11-171604 A (積水化学工業株式会社) 1999. 06. 29, [0024] (ファミリーなし)	1-9
A	日本国実用新案登録出願 62-64696 号(日本国実用新案登録出願公開 63-170227 号)の願書に添付した明細書及び図面の内容を撮影したマイクロフィルム (株式会社サトーセン) 1988. 11. 07, 実用新案登録請求の範囲, 実施例 (ファミリーなし)	1-9