(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
2018年5月3日(03.05.2018)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2018/078952 A1

(51) 国際特許分類:
C03C 27/12 (2006.01)　*B32B 27/30* (2006.01)
B32B 17/10 (2006.01)　*C08F 290/06* (2006.01)
B32B 27/00 (2006.01)

(21) 国際出願番号：　PCT/JP2017/024065

(22) 国際出願日：　2017年6月30日(30.06.2017)

(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：
PCT/JP2016/082328　2016年10月31日(31.10.2016) 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: 向垣内 康平(**MUKAIGAITO Kouhei**); 〒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 宏明(**TAKAHASHI Hiroaki**); 〒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). 古園 圭俊(**FURUZONO Kazutoshi**); 〒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).

(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 ＭＹ ＰＬＡＺＡ（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.

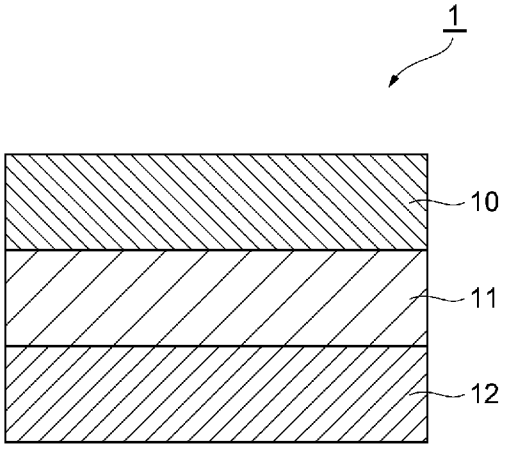
(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT,

(54) **Title:** RESIN COMPOSITION FOR USE IN INTERLAYER OF LAMINATE GLASS, FILM MATERIAL FOR USE IN INTERLAYER, AND LAMINATE GLASS MANUFACTURING METHOD

(54) 発明の名称： 合わせガラスの中間膜用樹脂組成物、中間膜用フィルム材及び合わせガラスの製造方法

(57) **Abstract:** This resin composition, for use in an interlayer of laminate glass, contains a copolymer of a monomer mixture which includes a (meth)acryloyl compound and a silicon compound that has an ethylenically unsaturated group.

(57) 要約：（メタ）アクリロイル化合物と、エチレン性不飽和基を有するケイ素化合物と、を含有するモノマー混合物の共重合体を含む、合わせガラスの中間膜用樹脂組成物が開示される。



WO 2018/078952 A1

［続葉有］

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組成物、中間膜用フィルム材及び合わせガラスの製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、合わせガラスの中間膜用樹脂組成物、中間膜用フィルム材及び合わせガラスの製造方法に関する。

背景技術

[0002] 現在、自動車のような車輌の窓、サンルーフ、内装パネル等のガラスとしては、外部衝撃を受けて破損してもガラスの破片が飛散することが少なく安全であるため、合わせガラスが広く用いられている。合わせガラスは、電車、航空機、建設機械、建築物等の窓にも用いられている。

[0003] 合わせガラスの一例として、少なくとも一対のガラス板間に、可塑剤により可塑化されたポリビニルブチラール樹脂等のポリビニルアセタール樹脂からなる合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させて得られるものが挙げられる（例えば、特許文献１～３参照）。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開昭６２－１００４６３号公報

特許文献2：特開２００５－２０６４４５号公報

特許文献3：国際公開第２０１２／０９１１１７号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 従来の合わせガラスの多くは、同等の厚みのガラスに比べて同等程度の防割性を有しているが、外部から加えられた衝撃に対して、より割れ難く、防割性の高い合わせガラスが求められている。

[0006] 本発明は、外部から加えられた衝撃に対して、防割性に優れる合わせガラスを作製できる、合わせガラスの中間膜用樹脂組成物、中間膜用フィルム材及び合わせガラスの製造方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明は、（メタ）アクリロイル化合物と、エチレン性不飽和基を有するケイ素化合物と、を含有するモノマー混合物の合わせガラスの中間膜用樹脂組成物を提供する。本発明は、上記樹脂組成物の、合わせガラスの中間膜を製造するための応用、及び、合わせガラスを製造するための応用にも関する。

[0008] 上記（メタ）アクリロイル化合物は、アルキル（メタ）アクリレートと、水酸基を有する（メタ）アクリレートとを含有してもよい。

[0009] 上記モノマー混合物は、アルキル（メタ）アクリレート５０～９０質量部、水酸基を有する（メタ）アクリレート５～３０質量部及びエチレン性不飽和基を有するケイ素化合物５～２０質量部を含有してもよい。

[0010] 本発明に係る樹脂組成物は、熱架橋剤を更に含んでもよい。

[0011] 本発明はまた、基材と、基材上に設けられた樹脂層と、を有し、樹脂層が、対向する２枚のガラス板と前記２枚のガラス板の間に挟まれた中間膜とを備える合わせガラスの前記中間膜を形成するために用いられる、合わせガラスの中間膜用フィルム材であって、樹脂層が、上記中間膜用樹脂組成物から形成された層である、中間膜用フィルム材を提供する。

[0012] 上記樹脂層のヘーズは、５％以下であってもよい。

[0013] 本発明はさらに、対向する２枚のガラス板と、前記２枚のガラス板の間に挟まれた中間膜と、を備える合わせガラスの製造方法であって、上記合わせガラスの中間膜用が備える樹脂層を介して、２枚のガラス板を貼り合せて積層体を得る工程と、３０～１５０℃及び０．３～１．５ＭＰａの条件で、積層体を加熱加圧処理する工程とを含む、合わせガラスの製造方法を提供する。

発明の効果

[0014] 本発明によれば、外部から加えられた衝撃に対して、防割性に優れる合わせガラスを作製できる、合わせガラスの中間膜用樹脂組成物、フィルム材及び合わせガラスの製造方法を提供できる。

図面の簡単な説明

[0015] [図1]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模式断面図である。

[図2]合わせガラスの一実施形態を示す模式断面図である。

[図3]合わせガラスの一実施形態を示す模式断面図である。

発明を実施するための形態

[0016] 以下、場合により図面を参照しつつ本発明の実施形態について説明をするが、本発明は以下の実施形態に何ら限定されるものではない。

[0017] 本明細書において「（メタ）アクリレート」とは、「アクリレート」及びそれに対応する「メタクリレート」の少なくとも一方を意味する。（メタ）アクリロイル等の他の類似表現についても同様である。

[0018] ＜合わせガラスの中間膜用樹脂組成物＞

本実施形態の合わせガラスの中間膜用樹脂組成物（以下、単に「樹脂組成物」という場合がある。）は、（メタ）アクリロイル化合物と、エチレン性不飽和基を有するケイ素化合物と、を含有するモノマー混合物の共重合体を含んでいる。

[0019] 本実施形態に係る樹脂組成物は、特定の共重合体を含むことにより、ガラス等の被着体表面への密着性が向上する。そのため、樹脂組成物を中間膜として有する積層体（合わせガラス）の強靭性が向上して、合わせガラスの高い防割性を発現することができる。

[0020] （共重合体）

本実施形態に係る共重合体は、（メタ）アクリロイル基を有する化合物（但し、構成原子としてケイ素原子を有しない。）に基づく構造単位と、エチレン性不飽和基を有するケイ素化合物に基づく構造単位を含んでいる。

[0021] （メタ）アクリロイル基を１つ有する化合物としては、例えば、（メタ）

アクリル酸、（メタ）アクリルアミド、（メタ）アクリルアミド誘導体、アルキル（メタ）アクリレート、アルキレングリコール鎖を有する（メタ）アクリレート、水酸基を有する（メタ）アクリレート、芳香環を有する（メタ）アクリレート、脂環式基を有する（メタ）アクリレート、（メタ）アクリロイルモルホリン、テトラヒドロフルフリル（メタ）アクリレート及びイソシアネート基を有する（メタ）アクリレートが挙げられる。

[0022] アルキル（メタ）アクリレートとしては、例えば、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、ｎ－ブチル（メタ）アクリレート、イソブチル（メタ）アクリレート、ｔｅｒｔ－ブチル（メタ）アクリレート、ｎ－ペンチル（メタ）アクリレート、ｎ－ヘキシル（メタ）アクリレート、ｎ－オクチル（メタ）アクリレート、イソオクチル（メタ）アクリレート、２－エチルヘキシル（メタ）アクリレート、イソデシル（メタ）アクリレート、ドデシル（メタ）アクリレート及びステアリル（メタ）アクリレート等の炭素数１～１８のアルキル基を有するアルキル（メタ）アクリレートが挙げられる。中でも、アルキル（メタ）アクリレートとしては、ｎ－ブチル（メタ）アクリレート、イソオクチル（メタ）アクリレート、２－エチルヘキシル（メタ）アクリレート及びｎ－オクチル（メタ）アクリレートが好ましく、２－エチルヘキシル（メタ）アクリレートがより好ましい。アルキルメタクリレートよりもアルキルアクリレートの方が好ましい。アルキル（メタ）アクリレートは、単独で又は２種類以上を組み合わせて使用してもよい。

[0023] 水酸基を有する（メタ）アクリレートとしては、例えば、２－ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、１－ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、２－ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、３－ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、１－ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、４－ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、３－ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート、２－ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート及び１－ヒドロキシブチル（メタ）アクリレートが挙げられる。

[0024] アルキレングリコール鎖を有する（メタ）アクリレートとしては、例えば、ジエチレングリコールモノ（メタ）アクリレート、トリエチレングリコールモノ（メタ）アクリレート、テトラエチレングリコールモノ（メタ）アクリレート及びヘキサエチレングリコールモノ（メタ）アクリレート等のポリエチレングリコールモノ（メタ）アクリレート；ジプロピレングリコールモノ（メタ）アクリレート、トリプロピレングリコールモノ（メタ）アクリレート及びオクタプロピレングリコールモノ（メタ）アクリレート等のポリプロピレングリコールモノ（メタ）アクリレート；ジブチレングリコールモノ（メタ）アクリレート及びトリブチレングリコールモノ（メタ）アクリレート等のポリブチレングリコールモノ（メタ）アクリレート；メトキシトリエチレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシテトラエチレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシヘキサエチレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシオクタエチレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシノナエチレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシポリエチレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシヘプタプロピレングリコール（メタ）アクリレート、エトキシテトラエチレングリコール（メタ）アクリレート、ブトキシエチレングリコール（メタ）アクリレート及びブトキシジエチレングリコール（メタ）アクリレート等のアルコキシポリアルキレングリコール（メタ）アクリレートが挙げられる。これらのアルキレングリコール鎖含有（メタ）アクリレートは、単独で又は２種類以上を組み合わせて使用してもよい。

[0025] 芳香環を有する（メタ）アクリレートとしては、例えば、ベンジル（メタ）アクリレート及びフェノキシエチル（メタ）アクリレートが挙げられる。脂環式基を有する（メタ）アクリレートとしては、例えば、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、イソボルニル（メタ）アクリレート及びジシクロペンタニル（メタ）アクリレートが挙げられる。（メタ）アクリルアミド誘導体としては、例えば、Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレート、Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノプロピル（メタ）アクリルアミド、Ｎ，Ｎ－ジメ

チル（メタ）アクリルアミド、Ｎ－イソプロピル（メタ）アクリルアミド、Ｎ，Ｎ－ジエチル（メタ）アクリルアミド及びＮ－ヒドロキシエチル（メタ）アクリルアミドが挙げられる。イソシアネート基を有する（メタ）アクリレートとしては、例えば、２－（２－メタクリロイルオキシエチルオキシ）エチルイソシアネート及び２－（メタ）アクリロイルオキシエチルイソシアネートが挙げられる。

[0026] 本実施形態に係る共重合体は、アルキル（メタ）アクリレートに基づく構造単位を含むことが好ましい。アルキル（メタ）アクリレートの共重合割合は、共重合体の全質量に対して、５０～９０質量％であることが好ましく、５０～８５質量％であることがより好ましい。アルキル（メタ）アクリレートの共重合割合がこのような範囲であると、樹脂層と被着体との密着性が向上することができる。このような共重合体は、アルキル（メタ）アクリレートを上記共重合割合と同じ含有割合で含有するモノマー混合物を共重合させることで得ることができる。重合率は、実質的に１００質量％に近いことがより好ましい。

[0027] 本実施形態に係る共重合体は、水酸基を有する（メタ）アクリレートに基づく構造単位を含むことが好ましい。水酸基を有する（メタ）アクリレートの共重合割合は、共重合体の全質量に対して、５～３０質量％であることが好ましく、１０～３０質量％であることがより好ましい。水酸基を有する（メタ）アクリレートの共重合割合がこのような範囲であると、合わせガラスの信頼性試験（加熱加湿条件）において、ヘーズが５．０％以下の透明性を発現することができる。

[0028] ヘーズ（Ｈａｚｅ）とは、濁度を表わす値（％）であり、ランプにより照射され、試料中を透過した光の全透過率T_tと、試料中で拡散され散乱した光の透過率T_dより、（T_d／T_t）×１００として求められる。これらはＪＩＳＫ　７１３６により規定されており、市販の濁度計、例えば、日本電色工業株式会社製ＮＤＨ－５０００により容易に測定可能である。

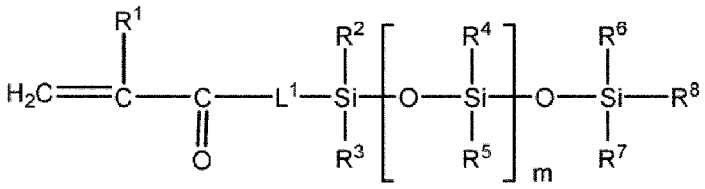
[0029] 本実施形態に係る（メタ）アクリロイル化合物は、アルキル（メタ）アク

リレートと、水酸基を有する（メタ）アクリレートとを含有することが好ましい。

[0030] （メタ）アクリロイル化合物は、（メタ）アクリロイル基と、モルホリノ基、アミノ基、カルボキシル基、シアノ基、カルボニル基、ニトロ基、アルキレングリコール由来の基等の極性基と、を有する化合物を更に含有してもよい。極性基を有する（メタ）アクリレートを含有することによって、樹脂層と被着体との密着性が向上し易くなる。

[0031] エチレン性不飽和基を有するケイ素化合物としては、（メタ）アクリロイル基、スチリル基、ケイ皮酸エステル基、ビニル基、アリル基等の不飽和結合を有する基を有し、かつ、構成原子としてケイ素原子を有する化合物であれば、特に限定されない。本実施形態に係るケイ素化合物としては、シロキサン化合物又はシラン化合物であってもよく、例えば、下記式（ａ）、（ｂ）又は（ｃ）に表される化合物が挙げられる。ケイ素化合物は、式（ａ）、（ｂ）又は（ｃ）で表される化合物を単独で又は２種類以上を組み合わせて使用してもよい。

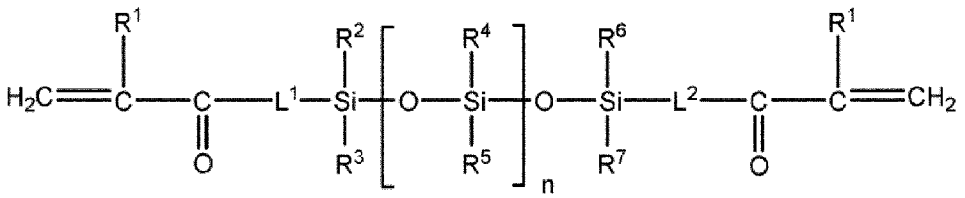
[0032] [化1]



(a)

式中、Ｒ[1]は水素原子又はメチル基を示し、Ｒ[2]、Ｒ[3]、Ｒ[4]、Ｒ[5]、Ｒ[6]及びＲ[7]はそれぞれ独立に水素原子又はメチル基を示し、Ｒ[8]は１価の炭化水素基を示し、Ｌ[1]は酸素原子が介在してもよい２価の炭化水素基又は単結合を示し、ｍは１～３００の整数を示す。

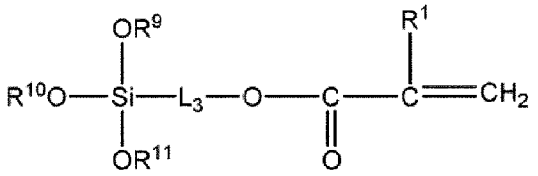
[0033] [化2]



(b)

式中、R^1は水素原子又はメチル基を示し、R^2、R^3、R^4、R^5、R^6及びR^7はそれぞれ独立に水素原子又はメチル基を示し、L^1及びL^2はそれぞれ独立に酸素原子が介在してもよい２価の炭化水素基又は単結合を示し、ｎは１～３００の整数を示す。

[0034] [化3]



(c)

式中、R^1は水素原子又はメチル基を示し、R^9、R^{10}及びR^{11}はそれぞれ独立には水素原子又は１価の炭化水素基を示し、L^3は酸素原子が介在してもよい２価の炭化水素基又は単結合を示す。

[0035] １価の炭化水素基としては、例えば、炭素数１～６のアルキル基又はフェニル基が挙がられる。２価の炭化水素基としては、例えば、炭素数１～２０のアルキレン基が挙がられる。

[0036] 本実施形態に係る共重合体において、ケイ素化合物に基づくモノマー単位の共重合割合は、共重合体の全質量に対して、５～２０質量％であることが好ましく、１０～２０質量％であることがより好ましい。ケイ素化合物の共重合割合がこのような範囲であると、樹脂層と被着体との密着性が向上し、積層体の強靭性が向上することで、合わせガラスの防割性がより一層向上する。

[0037] 合わせガラスの防割性及び中間膜の透明性を更に向上する観点から、モノマー混合物は、アルキル（メタ）アクリレート５０～９０質量部、水酸基を有する（メタ）アクリレート５～３０質量部及びエチレン性不飽和基を有するケイ素化合物５～２０質量部を含有してもよく、アルキル（メタ）アクリレート５０～８５質量部、水酸基を有する（メタ）アクリレート１０～３０質量部及びエチレン性不飽和基を有するケイ素化合物５～２０質量部を含有してもよい。

[0038] モノマー混合物は、本発明の奏する効果を著しく損なわない範囲であれば

、（メタ）アクリロイル基を２以上有する化合物、（メタ）アクリロイル基以外の重合性基を有する化合物を含有してもよい。（メタ）アクリロイル基以外の重合性基を有する化合物としては、例えば、アクリロニトリル、スチレン、酢酸ビニル、エチレン、プロピレン及びジビニルベンゼンが挙げられる。

[0039] 共重合体の重量平均分子量（Ｍｗ）は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）法により標準ポリスチレンの検量線を用いて換算した値が、８００００～１０００００００であることが好ましく、１０００００～９０００００であることがより好ましく、２０００００～８０００００であることが更に好ましい。共重合体のＭｗが８００００以上であると、被着体に対して密着性を有する樹脂層を得易い。共重合体のＭｗが１０００００００以下であると、樹脂組成物の粘度が高くなり過ぎず、樹脂層を形成する際の加工性が良好になる。

[0040] 本実施形態に係る共重合体は、例えば、溶液重合、乳化重合、懸濁重合、塊状重合等の既知の重合方法を用いて合成することができる。

[0041] 共重合体を合成する際の重合開始剤として、熱によりラジカルを発生する化合物を用いることができる。重合開始剤としては、例えば、過酸化ベンゾイル、ラウロイルパーオキシド等の有機過酸化物；２，２’－アゾビスイソブチロニトリル、２，２’－アゾビス（２－メチルブチロニトリル）等のアゾ系化合物が挙げられる。

[0042] （その他添加剤）

樹脂組成物には必要に応じて、上記共重合体と共に、各種添加剤を含有させてもよい。

[0043] 添加剤として、例えば、樹脂組成物の凝集力を高めるために、架橋剤を用いてもよい。架橋剤の具体例としては、光架橋剤及び熱架橋剤が挙げられる。

[0044] 光架橋剤としては、例えば、炭素数１～２０のアルキレン基を有するアルキレンジオールジ（メタ）アクリレート；ポリエチレングリコールジ（メタ

）アクリレート、ポリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート等のアルキレングリコールジ（メタ）アクリレート；エトキシ化ビスフェノールＡジ（メタ）アクリレート、エトキシ化ビスフェノールＦジ（メタ）アクリレート、ビスフェノールＡ型エポキシ（メタ）アクリレート等のビスフェノール型ジ（メタ）アクリレート；及びウレタン結合を有するウレタンジ（メタ）アクリレートが挙げられる。

[0045] ウレタン結合を有するウレタンジ（メタ）アクリレートは、他の成分との相溶性が良好である観点から、ポリアルキレングリコール鎖を有していてもよく、透明性を確保する観点から、脂環式構造を有していてもよい。光架橋剤と、共重合体との相溶性が低い場合、樹脂組成物から形成される樹脂層が白濁する可能性がある。

[0046] 高温又は高温高湿下における気泡及び剥がれの発生をより抑制できる観点から、光架橋剤の重量平均分子量は、１００００００以下であることが好ましく、３００～１０００００であることがより好ましく、５００～８００００であることが更に好ましい。

[0047] 光架橋剤を用いる場合の含有量は、共重合体の全質量に対して、１５質量％以下であることが好ましく、１０質量％以下であることがより好ましく、７質量％以下であることが更に好ましい。光架橋剤の含有量がこのような範囲であると、十分な密着性を有する樹脂層を得ることができる。光架橋剤の含有量の下限については特に制限はないが、フィルム形成性を良好にする観点から、０．１質量％以上であることが好ましく、２質量％以上であることがより好ましく、３質量％以上であることが更に好ましい。

[0048] 熱架橋剤としては、例えば、イソシアネート化合物、メラミン化合物、エポキシ化合物等の熱架橋剤を用いることができる。熱架橋剤としては、樹脂層中に緩やかに広がった網目状構造を形成するために、３官能、４官能といった多官能の熱架橋剤がより好ましい。

[0049] 反応性の観点から、熱架橋剤として、イソシアネート化合物が好ましく、ポリイソシアネート化合物がより好ましい。ポリイソシアネート化合物とし

ては、例えば、ヘキサメチレンジイソシアネートの三量体、トチメチロールプロパン等のトリオール、ジオール又は単官能アルコールと、ヘキサメチレンジイソシアネートとの反応生成物である多官能性ヘキサメチレンジイソシアネート化合物が挙げられる。

[0050] 熱架橋剤を用いる場合の含有量は、共重合体の全質量に対して、５質量％以下であることが好ましく、２質量％以下であることがより好ましく、１質量％以下であることが更に好ましい。熱架橋剤の含有量がこのような範囲であると、十分な密着性を有する樹脂層を得ることができる。熱架橋剤の含有量の下限については特に制限はないが、フィルム形成性を良好にする観点から、０．０１質量％以上であることが好ましい。

[0051] 共重合体又は架橋剤のいずれかが活性エネルギー線による硬化系である場合、光重合開始剤が必要となる。光重合開始剤は、活性エネルギー線の照射により硬化反応を促進させるものである。活性エネルギー線とは、紫外線、電子線、α線、β線、γ線等をいう。

[0052] 光重合開始剤としては、特に限定されるものではなく、ベンゾフェノン化合物、アントラキノン化合物、ベンゾイル化合物、スルホニウム塩、ジアゾニウム塩、オニウム塩等の公知の材料を使用することが可能である。

[0053] 光重合開始剤として、例えば、ベンゾフェノン、Ｎ，Ｎ，Ｎ’，Ｎ’－テトラメチル－４，４’－ジアミノベンゾフェノン（ミヒラーケトン）、Ｎ，Ｎ，Ｎ’，Ｎ’－テトラエチル－４，４’－ジアミノベンゾフェノン、４－メトキシ－４’－ジメチルアミノベンゾフェノン、α－ヒドロキシイソブチルフェノン、２－エチルアントラキノン、ｔ－ブチルアントラキノン、１，４－ジメチルアントラキノン、１－クロロアントラキノン、２，３－ジクロロアントラキノン、３－クロロ－２－メチルアントラキノン、１，２－ベンゾアントラキノン、２－フェニルアントラキノン、１，４－ナフトキノン、９，１０－フェナントラキノン、チオキサントン、２－クロロチオキサントン、１－ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、２，２－ジメトキシ－１，２－ジフェニルエタン－１－オン、２－ヒドロキシ－２－メチル－１－

フェニルプロパン－１－オン及び２，２－ジエトキシアセトフェノン等の芳香族ケトン化合物；ベンゾイン及びメチルベンゾイン、エチルベンゾイン等のベンゾイン化合物；ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインイソブチルエーテル及びベンゾインフェニルエーテル等のベンゾインエーテル化合物；ベンジル及びベンジルジメチルケタール等のベンジル化合物；β－（アクリジン－９－イル）（メタ）アクリル酸等のエステル化合物；９－フェニルアクリジン、９－ピリジルアクリジン及び１，７－ジアクリジノヘプタン等のアクリジン化合物；２－（ｏ－クロロフェニル）－４，５－ジフェニルイミダゾール二量体、２－（ｏ－クロロフェニル）－４，５－ジ（ｍ－メトキシフェニル）イミダゾール二量体、２－（ｏ－フルオロフェニル）－４，５－ジフェニルイミダゾール二量体、２－（ｏ－メトキシフェニル）－４，５－ジフェニルイミダゾール二量体、２－（ｐ－メトキシフェニル）－４，５－ジフェニルイミダゾール二量体、２，４－ジ（ｐ－メトキシフェニル）５－フェニルイミダゾール二量体、２－（２，４－ジメトキシフェニル）－４，５－ジフェニルイミダゾール二量体及び２－（ｐ－メチルメルカプトフェニル）－４，５－ジフェニルイミダゾール二量体等の２，４，５－トリアリールイミダゾール二量体；２－ベンジル－２－ジメチルアミノ－１－（４－モリホリノフェニル）－１－ブタノン；２－メチル－１－［４－（メチルチオ）フェニル］－２－モルホリノ－１－プロパン；ビス（２，４，６－トリメチルベンゾイル）－フェニルホスフィンオキサイド；オリゴ（２－ヒドロキシ－２－メチル－１－（４－（１－メチルビニル）フェニル）プロパノン）が挙げられる。これらの化合物は複数を組み合わせて使用してもよい。

[0054] 樹脂組成物を着色させない光重合開始剤としては、例えば、１－ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、２－ヒドロキシ－２－メチル－１－フェニル－プロパン－１－オン及び１－［４－（２－ヒドロキシエトキシ）－フェニル］－２－ヒドロキシ－２－メチル－１－プロパン－１－オン等のα－ヒドロキシアルキルフェノン化合物；ビス（２，４，６－トリメチルベンゾ

イル）－フェニルホスフィンオキサイド、ビス（２，６－ジメトキシベンゾイル）－２，４，４－トリメチル－ペンチルホスフィンオキサイド及び２，４，６－トリメチルベンゾイル－ジフェニルホスフィンオキサイド等のアシルホスフィンオキサイド化合物；オリゴ（２－ヒドロキシ－２－メチル－１－（４－（１－メチルビニル）フェニル）プロパノン）が挙げられる。

[0055] 特に厚い樹脂層を形成するためには、光重合開始剤は、例えば、ビス（２，４，６－トリメチルベンゾイル）－フェニルホスフィンオキサイド、ビス（２，６－ジメトキシベンゾイル）－２，４，４－トリメチル－ペンチルホスフィンオキサイド及び２，４，６－トリメチルベンゾイル－ジフェニルホスフィンオキサイド等のアシルホスフィンオキサイド化合物を含んでもよい。

[0056] 光重合開始剤の含有量は、樹脂組成物の全質量に対して、０．０５～５質量％であることが好ましく、０．１～３質量％がより好ましく、０．１～０．５質量％が更に好ましい。光重合開始剤の含有量を５質量％以下とすることで、透過率が高く、また色相も黄味を帯びることがなく、透明性に優れる樹脂層を得ることができる。

[0057] 樹脂組成物には、必要に応じて、架橋剤とは別の添加剤を含有させてもよい。添加剤としては、例えば、樹脂組成物の保存安定性を高める目的で添加するパラメトキシフェノール等の重合禁止剤、樹脂組成物を光硬化させて得られる中間膜の耐熱性を高める目的で添加するトリフェニルホスファイト等の酸化防止剤、紫外線等の光に対する樹脂組成物の耐性を高める目的で添加するＨＡＬＳ（Ｈｉｎｄｅｒｅｄ Ａｍｉｎｅ Ｌｉｇｈｔ Ｓｔａｂｉｌｉｚｅｒ）等の光安定化剤、ガラスに対する樹脂組成物の密着性を高めるために添加するシランカップリング剤が挙げられる。

[0058] ＜合わせガラスの中間膜用フィルム材＞

本実施形態に係る合わせガラスの中間膜用フィルム材は、基材と、基材上に設けられた樹脂層とを有し、樹脂層が、対向する２枚のガラス板と２枚のガラス板の間に挟まれた中間膜とを備える合わせガラスの中間膜を形成する

ために用いられる。当該樹脂層は、上述した中間膜用樹脂組成物から形成された層である。

[0059] 図１に示されるように、本実施形態に係る中間膜用フィルム材１は、樹脂層１１と、樹脂層１１を挟むように積層された一方の基材１０及び他方の基材１２と、を備えていてもよい。

[0060] 基材１０としては、基材１２よりも軽剥離性の基材を用いることが好ましい。基材１０としては、例えば、ポリエチレンテレフタレート、ポリプロピレン、ポリエチレン等の重合体フィルムが挙げられ、中でも、ポリエチレンテレフタレートフィルム（以下、「ＰＥＴフィルム」という場合もある）が好ましい。基材１０の厚みは、作業性の観点から、２５～１５０μｍであることが好ましく、３０～１００μｍであることがより好ましく、４０～８０μｍであることが更に好ましい。

[0061] 基材１０の平面形状は、樹脂層１１の平面形状よりも大きく、基材１０の外縁は樹脂層１１の外縁よりも外側に張り出していることが好ましい。基材１０の外縁が樹脂層１１の外縁よりも張り出す幅は、取り扱い易さ、剥がし易さ、埃等の付着をより低減できる観点から、２～２０ｍｍであることが好ましく、４～１０ｍｍであることがより好ましい。樹脂層１１及び基材１０の平面形状が略長方形等の略矩形状である場合には、基材１０の外縁が樹脂層１１の外縁よりも張り出す幅は、少なくとも１つの辺において２～２０ｍｍであることが好ましく、少なくとも１つの辺において４～１０ｍｍであることがより好ましく、全ての辺において２～２０ｍｍであることが更に好ましく、全ての辺において４～１０ｍｍであることが特に好ましい。

[0062] 基材１２としては、基材１０よりも重剥離性の基材を用いることが好ましい。基材１２としては、例えば、ポリエチレンテレフタレート、ポリプロピレン、ポリエチレン等の重合体フィルムが挙げられ、中でも、ＰＥＴフィルムが好ましい。基材１２の厚みは、作業性の観点から、５０～２００μｍであることが好ましく、６０～１５０μｍであることがより好ましく、７０～１３０μｍであることが更に好ましい。

[0063] 基材１２の平面形状は、樹脂層１１の平面形状よりも大きく、基材１２の外縁は樹脂層１１の外縁よりも外側に張り出していることが好ましい。基材１２の外縁が樹脂層１１の外縁よりも張り出す幅は、取り扱い易さ、剥がし易さ、埃等の付着をより低減できる観点から、２～２０ｍｍであることが好ましく、４～１０ｍｍであることがより好ましい。樹脂層１１及び基材１２の平面形状が略長方形等の略矩形状である場合には、基材１２の外縁が樹脂層１１の外縁よりも張り出す幅は、少なくとも１つの辺において２～２０ｍｍであることが好ましく、少なくとも１つの辺において４～１０ｍｍであることがより好ましく、全ての辺において２～２０ｍｍであることが更に好ましく、全ての辺において４～１０ｍｍであることが特に好ましい。

[0064] 基材１０と樹脂層１１との間の剥離強度は、基材１２と樹脂層１１との間の剥離強度よりも低いことが好ましい。これにより、基材１２は基材１０よりも樹脂層１１から剥離し難くなる。剥離強度は、例えば、基材１２及び基材１０の表面処理を施すことによって調整することができる。表面処理方法としては、例えば、シリコーン系化合物又はフッ素系化合物で、基材を離型処理することが挙げられる。

[0065] 樹脂層１１を形成する方法としては、公知の技術を使用することができる。例えば、まず、本実施形態に係る樹脂組成物を、２－ブタノン、シクロヘキサノン、メチルエチルケトン、酢酸エチル、トルエン等の揮発性溶剤で希釈して塗液を調製する。次いで、上記塗液を、基材１２上に塗布し、溶剤を乾燥することにより除去して、任意の厚みを有する樹脂層を形成することができる。上記塗液の調製に際しては、各成分を配合した後に溶剤で希釈してもよく、各成分の配合前に予め溶剤で希釈しておいてもよい。塗布方法としては、例えば、フローコート法、ロールコート法、グラビアコート法、ワイヤーバーコート法、リップダイコート法等の公知の方法を用いることができる。

[0066] 基材１２上に樹脂層１１を形成した後、樹脂層１１上に基材１０を積層することで、本実施形態に係る中間膜用フィルム材が作製される。樹脂層１１

は基材１０及び基材１２で挟まれる構成となる。樹脂層１１と、基材１０及び基材１２との剥離性を制御するために、樹脂組成物に、ポリジメチルシロキサン系界面活性剤、フッ素系界面活性剤等の界面活性剤を含有させてもよい。

[0067] 樹脂層１１の厚みは、使用用途及び方法により適宜調整されるため特に限定されないが、１０～５０００μｍ、２５～２００μｍ、２５～１８０μｍ、又は、２５～１５０μｍであってもよい。この範囲で使用した場合、外部から加えられた衝撃に対して、防割性により一層優れる合わせガラス用中間膜が得られる。

[0068] 樹脂層１１の可視光領域（波長：３８０ｎｍ～７８０ｎｍ）の光線に対する光透過率は、８０％以上であることが好ましく、９０％以上であることがより好ましく、９５％以上であることが更に好ましい。

[0069] 樹脂層１１のヘーズは、５％以下であることが好ましく、３％以下であることがより好ましく、１％以下であることが更に好ましい。樹脂層１１を２枚のフロートガラスで挟んだ合わせガラスのヘーズが、５％以下、３％以下、又は１％以下であってもよい。

[0070] 本実施形態に係る中間膜用フィルム材によれば、樹脂層１１を傷つけることなく、保管及び運搬を容易にすることができる。

[0071] 樹脂層１１は、中間膜として、例えば、ガラス同士、ガラスと樹脂製の透明基板（又は透明フィルム）、又は、樹脂製の透明基板（又は透明フィルム）同士を貼り合わせることが可能である。

[0072] ＜合わせガラス＞

本実施形態に係る合わせガラス用中間膜（以下、単に「中間膜」という場合がある）は、各種合わせガラスに適用することができる。合わせガラスは、対向する２枚のガラス板と、２枚のガラス板の間に挟まれた中間膜と、を備えている。本実施形態に係る合わせガラスの製造方法は、上述した合わせガラスの中間膜用フィルム材が備える樹脂層を介して、２枚のガラス板を貼り合せて積層体を得る工程と、３０～１５０℃及び０．３～１．５ＭＰａの

条件で、上記積層体を加熱加圧処理する工程とを含む。

[0073] ガラス板としては、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が挙げられる。２枚のガラス板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、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。

[0074] ガラス板の厚みは、例えば、０．１～５０ｍｍ、０．５～３０ｍｍ、１～２０ｍｍ、又は２～１０ｍｍであってもよい。

[0075] 図２は、合わせガラスの一実施形態を模式的に示す側面断面図である。図２に示す合わせガラス２は、第１のガラス板（例えばフロートガラス）２０、中間膜２１、第２のガラス板（例えばフロートガラス）２２を備え、これらがこの順で積層されている。図２に示す合わせガラス２は、例えば、図１の中間膜用フィルム材１を用いた下記の方法により製造することができる。

[0076] まず、中間膜用フィルム材１における基材１０を樹脂層１１から剥離して樹脂層１１の表面を露出させる。次いで、中間膜２１となる樹脂層１１の表面を第１の被着体である第１のガラス板（例えばフロートガラス）２０に貼り付け、ローラー等で押し付けた後、基材１２を樹脂層１１から剥離して表面を露出させる。続いて、樹脂層１１の表面を第２の被着体である第２のガラス板（例えばフロートガラス）２２に貼り付け、加熱加圧処理して、中間膜２１（樹脂層１１）を介して第１のガラス板２０及び第２のガラス板２２を貼り合わせた合わせガラス２が作製される。

[0077] 樹脂層１１を用いることにより、シワがなく容易に被着体同士を貼り合せることができる。また、加熱加圧処理する工程を、低温短時間で行うこともできる。樹脂層１１を用いることにより、中間膜２１が白化することなく、合わせガラスの安定した透明性を維持することができる。

[0078] 加熱加圧処理の条件は、温度が３０～１５０℃であり、圧力が０．３～１．５ＭＰａであるが、巻き込み気泡をより除去できる観点から、５０～１５０℃、又は５０～７０℃で、０．３～０．５ＭＰａであってもよい。また、

処理時間は、５～６０分間が好ましく、１０～３０分間であることがより好ましい。加熱加圧処理は、例えば、オートクレーブ又は真空ラミネータを用いて行うことができる。

[0079] 第２の被着体は、フロートガラスのような無機ガラス板であってもよいが、第２の被着体は、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、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。

[0080] 合わせガラスの中間膜は、図２の合わせガラス２のように単層であってもよいし、図３に示す実施形態に係る合わせガラス２のように中間膜が複数の層からなる樹脂層であってもよい。図３の合わせガラスが有する中間膜２１は、第１の層２１ａ、第２の層２１ｂ及び第３の層２３ｃの３層からなる樹脂層である。第１の層２１ａ、第２の層２１ｂ及び第３の層２１ｃのうち少なくとも１層が、（メタ）アクリロイル化合物と、エチレン性不飽和基を有するケイ素化合物と、を含有するモノマー混合物の共重合体を含む上述の実施形態に係る中間膜用樹脂組成物から形成された層であることが好ましい。

[0081] 中間膜を構成する層の数は、例えば、２層以上、３層以上、４層以上、５層以上又は６層以上であってもよく、１０層以下、８層以下又は７層以下であってもよい。

[0082] 中間膜を構成する複数の層の全てが上述の実施形態に係る中間膜用樹脂組成物から形成された層であってもよいし、複数の層の一部が、他の樹脂組成物から形成された層であってもよい。他の樹脂組成物は、例えば、ポリビニルブチラール樹脂等のポリビニルアセタール樹脂、エチルビニルアルコール樹脂、アイオノマーのような樹脂を含んでいてもよい。

[0083] 中間膜を構成するの複数の層うち、上述の実施形態に係る中間膜用樹脂組成物から形成された層の厚みは特に制限がないが、耐衝撃性及び視認性をより優れたものとする観点から、７５～１２００μｍであることが好ましい。また、それ以外の層の厚みも特に制限がないが、同様の観点から、１００～１０００μｍであることが好ましい。中間膜全体の好ましい厚みの範囲の例

は、単層の中間膜の場合と同様である。

[0084] 複数の層からなる中間膜における、上述の実施形態に係る中間膜用樹脂組成物から形成された層は、合わせガラスの耐衝撃性をより向上させる観点から、ガラス板と隣接する位置に設けられることが好ましい。

[0085] 複数の層からなる中間膜を備える合わせガラスは、複数の層からなる樹脂層を介して２枚のガラス板を貼り合わせること以外は上述の単層の中間膜を有する合わせガラスと同様の方法で製造することができる。予め積層された複数の層からなる樹脂層を用いてもよいし、一方のガラス板上に各層を順次積層し、その上から他方のガラス板を貼り合わせてもよい。

[0086] 本実施形態に係る中間膜は、合わせガラスの反射防止層、防汚層、色素層、ハードコート層等の機能性を有する機能層を組み合わせて貼り合わせるために使用してもよい。

[0087] 反射防止層は、可視光反射率が５％以下となる反射防止性を有している層であればよい。反射防止層としては、透明なプラスチックフィルム等の透明基材に既知の反射防止方法で処理された層を用いることができる。

[0088] 防汚層は、表面に汚れがつきにくくするためのものである。防汚層としては、表面張力を下げるためにフッ素系樹脂又はシリコーン系樹脂等で構成される既知の層を用いることができる。

[0089] 色素層は、色純度を高めるために使用されるものであり、合わせガラスで透過する不要な波長の光を低減するために使用される。色素層は、不要な波長の光を吸収する色素を樹脂に溶解させ、ポリエチレンフィルム、ポリエステルフィルム等の基材フィルムに製膜又は積層して得ることができる。

[0090] ハードコート層は、表面硬度を高くするために使用される。ハードコート層としては、例えば、ウレタンアクリレート、エポキシアクリレート等のアクリル樹脂；エポキシ樹脂などをポリエチレンフィルム等の基材フィルムに製膜又は積層したものを使用することができる。同様に表面硬度を高めるために、ガラス、アクリル樹脂、ポリカーボネート等の透明保護板に製膜又は積層したハードコート層を使用することもできる。

[0091] このような積層体とする場合、樹脂層１１は、ロールラミネート、真空貼合機又は枚葉貼合機を用いて積層することができる。

[0092] 本実施形態に係る合わせガラスの製造方法により、外部から加えられた衝撃に対して、防割性に優れる合わせガラスを作製することができる。

実施例

[0093] 以下、実施例により本発明の説明をする。なお、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

[0094] 製造例で作製する共重合体の重量平均分子量（Ｍｗ）は、ＧＰＣ法に従って標準ポリスチレンによる検量線を使用し、下記のＧＰＣ測定装置及び測定条件を用いて測定した。

ＲＩ検出器：Ｌ－３３５０（株式会社日立製作所、製品名）

溶離液：ＴＨＦ

カラム：Ｇｅｌｐａｃ　ＧＬ－Ｒ４２０＋Ｒ４３０＋Ｒ４４０（日立化成株式会社、製品名）

カラム温度：４０℃

流量：２．０ｍＬ／分

[0095] 製造例１

冷却管、温度計、攪拌装置、滴下漏斗及び窒素導入管の付いた反応容器に、２－エチルヘキシルアクリレート８５．０ｇ、２－ヒドロキシエチルアクリレート１０．０ｇ、片末端メタクリロイル変性ポリシロキサン化合物（信越化学工業株式会社、製品名「Ｘ－２２－２４２６」、エチレン性不飽和基当量：１２０００ｇ／ｍｏｌ）５．０ｇ及び酢酸エチル１４５．０ｇを加え、１００ｍＬ／分の風量で窒素置換しながら、１５分間で常温（２５℃）から６５℃まで加熱した。次いで、６５℃に保ちながら、酢酸エチル５．０ｇにラウロイルパーオキシド０．１ｇを溶解した溶液を投入し、８時間反応させて、固形分濃度４０％の共重合体Ａ－１（Ｍｗ７００００）の溶液を得た。

[0096] 製造例２

反応容器に、２－エチルヘキシルアクリレート８０．０ｇ、２－ヒドロキシエチルアクリレート１０．０ｇ、片末端メタクリロイル変性ポリシロキサン化合物（エチレン性不飽和基当量：１２０００ｇ／ｍｏｌ）１０．０ｇ及び酢酸エチル１４５．０ｇを加えた以外は製造例１と同様に操作して、固形分濃度４０％の共重合体Ａ－２（Ｍｗ７００００）の溶液を得た。

[0097] 製造例３

反応容器に、２－エチルヘキシルアクリレート７０．０ｇ、２－ヒドロキシエチルアクリレート１０．０ｇ、片末端メタクリロイル変性ポリシロキサン化合物（エチレン性不飽和基当量：１２０００ｇ／ｍｏｌ）２０．０ｇ及び酢酸エチル１４５．０ｇを加えた以外は製造例１と同様に操作して、固形分濃度４０％の共重合Ａ－３（Ｍｗ７００００）の溶液を得た。

[0098] 製造例４

反応容器に、２－エチルヘキシルアクリレート５５．０ｇ、２－ヒドロキシエチルアクリレート２５．０ｇ、片末端メタクリロイル変性ポリシロキサン化合物（エチレン性不飽和基当量：１２０００ｇ／ｍｏｌ）２０．０ｇ及び酢酸エチル１４５．０ｇを加えた以外は製造例１と同様に操作して、固形分濃度４０％の共重合体Ａ－４（Ｍｗ７００００）の溶液を得た。

[0099] 製造例５

反応容器に、２－エチルヘキシルアクリレート８０．０ｇ、２－ヒドロキシエチルアクリレート１０．０ｇ、両末端メタクリロイル変性ポリシロキサン化合物（信越化学工業株式会社、製品名「Ｘ－２２－１６４Ｅ」、エチレン性不飽和基当量：７８００ｇ／ｍｏｌ）１０．０ｇ及び酢酸エチル１４５．０ｇを加えた以外は製造例１と同様に操作して、固形分濃度４０％の共重合体Ａ－５（Ｍｗ７００００）の溶液を得た。

[0100] 製造例６

反応容器に、２－エチルヘキシルアクリレート８０．０ｇ、２－ヒドロキシエチルアクリレート１０．０ｇ、３－アクリロキシプロピルトリメトキシシラン１０．０ｇ及び酢酸エチル１４５．０ｇを加えた以外は製造例１と同

様に操作して、固形分濃度４０％の共重合体Ａ－６（Ｍｗ７００００）の溶液を得た。

[0101] 製造例７

反応容器に、２－エチルヘキシルアクリレート８０．０ｇ、４－ヒドロキシブチルアクリレート１０．０ｇ、片末端メタクリロイル変性ポリシロキサン化合物（エチレン性不飽和基当量：７８００ｇ／ｍｏｌ）１０．０ｇ及び酢酸エチル１４５．０ｇを加えた以外は製造例１と同様に操作して、固形分濃度４０％の共重合体Ａ－７（Ｍｗ７００００）の溶液を得た。

[0102] 製造例８

２－エチルヘキシルアクリレート９０．０ｇ、２－ヒドロキシエチルアクリレート１０．０ｇ及び酢酸エチル１４５．０ｇを加えた以外は製造例１と同様に操作して、固形分濃度４０％の共重合体Ａ－８（Ｍｗ７００００）の溶液を得た。

[0103] ＜中間膜用樹脂組成物の調製及び中間膜用フィルム材の作製＞

実施例１

製造例１で得られた共重合体Ａ－１溶液の共重合体１００質量部に対して、熱架橋剤としてポリイソシアネート化合物（東ソー株式会社、製品名「コロネートＨＬ」）０．２質量部を混合して、樹脂組成物の塗液を調製した。

次いで、表面に離型処理した厚み７５μｍのＰＥＴフィルム（基材１２）に、上記樹脂組成物の塗液を乾燥後の厚みが１００μｍとなるようにバーコーターを用いて塗布し、１００℃で１０分間加熱乾燥して、樹脂層を形成した。その後、樹脂層上に、離型処理した厚み７５μｍのＰＥＴフィルム（基材１０）を被せ、これを１．０ｋｇｆのハンドローラーにて貼り付け、中間膜用フィルム材を作製した。

[0104] 実施例２

製造例２で得られた共重合体Ａ－２の溶液を用いた以外は、実施例１と同様にして樹脂組成物の塗液及びフィルム材を得た。

[0105] 実施例３

製造例３で得られた共重合体Ａ－３の溶液を用いた以外は、実施例１と同様にして樹脂組成物の塗液及びフィルム材を得た。

[0106] 実施例４

製造例４で得られた共重合体Ａ－４の溶液を用いた以外は、実施例１と同様にして樹脂組成物の塗液及びフィルム材を得た。

[0107] 実施例５

製造例５で得られた共重合体Ａ－５の溶液を用いた以外は、実施例１と同様にして樹脂組成物の塗液及びフィルム材を得た。

[0108] 実施例６

製造例６で得られた共重合体Ａ－６の溶液を用いたこと以外は、実施例１と同様にして樹脂組成物の塗液及びフィルム材を得た。

[0109] 実施例７

製造例７で得られた共重合体Ａ－７の溶液を用いた以外は、実施例１と同様にして樹脂組成物の塗液及びフィルム材を得た。

[0110] 比較例１

製造例８で得られた共重合体Ａ－８の溶液を用いた以外は、実施例１と同様にして樹脂組成物の塗液及びフィルム材を得た。

[0111] 比較例２

赤外吸収スペクトルを測定したときに得られる水酸基に対応するピークの半値幅が２４５ｃｍ$^{-1}$であるポリビニルブチラール（ＰＶＢ）樹脂（アセタール化度６８．０モル％、ビニルアセテート成分の割合０．６モル％）１００質量部と、可塑剤としてトリエチレングリコールビス（２－エチルヘキサノエート）３８質量部とを混合し、ミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機で１５０℃、３０分間プレス成形して、ＰＶＢ樹脂を含む厚み３８０μｍの樹脂膜を得、これを合わせガラス用中間膜とした。

[0112] ＜評価＞

各実施例及び比較例で得られた中間膜用フィルム材について、以下の方法により評価を行った。結果を表１に示す。

[0113] １．ヘーズの測定

実施例及び比較例１の中間膜用フィルム材から５０ｍｍ×５０ｍｍのサイズのサンプルを切り出し、これを８５℃、８５％ＲＨの条件下で２４時間放置した。その後、基材１０を剥離して樹脂層の表面を露出させた後、樹脂層の表面を縦５０ｍｍ、横５０ｍｍ、厚み２．７ｍｍのフロートガラスに貼り付け、ローラーで押し付けた。次いで、基材１２を樹脂層から剥離して樹脂層の表面を露出させ、真空積層機を用いて、真空状態で樹脂層の表面を、縦５０ｍｍ、横５０ｍｍ、厚み２．７ｍｍのフロートガラスに貼り付けて積層体を作製した。その後、積層体を、温度５０℃、圧力０．５ＭＰａ、３０分間保持の条件のオートクレーブによって加熱加圧処理し、合わせガラスを得た。比較例２では、樹脂膜を５０ｍｍ×５０ｍｍのサイズに切り出し、８５℃、８５％ＲＨの条件下で２４時間放置した後、取り出して、上記フロートガラスで挟み込み、温度１３５℃、圧力１１８Ｎ／ｃｍ^{2}ＭＰａ、２０分間の条件のオートクレーブによって加熱加圧処理し、合わせガラスを得た。

得られた合わせガラスを、濁度計（日本電色工業株式会社製、ＮＤＨ－５０００）を用いてヘーズを測定した。

[0114] ２．合わせガラスの作製

実施例及び比較例１で作製した中間膜用フィルム材から基材１０を剥離して樹脂層の表面を露出させた後、樹脂層の表面を縦１１０ｍｍ、横１１０ｍｍ、厚み２．７ｍｍのフロートガラスに貼り付け、ローラーで押し付けた。次いで、基材１２を樹脂層から剥離して樹脂層の表面を露出させ、真空積層機を用いて、真空状態で樹脂層の表面を縦１１０ｍｍ、横１１０ｍｍ、厚み２．７ｍｍのフロートガラスに貼り付けて積層体を作製した。その後、積層体を、温度５０℃、圧力０．５ＭＰａ、３０分間保持の条件のオートクレーブによって加熱加圧処理し、合わせガラスを得た。

比較例２で作製した樹脂膜をフロートガラスで挟み込み、温度１３５℃、圧力１１８Ｎ／ｃｍ^{2}ＭＰａ、２０分間保持の条件のオートクレーブによって加熱加圧処理し、ＰＶＢ樹脂を含む樹脂膜を中間膜として有する合わせガラ

スを得た。

[0115] ３．耐衝撃試験

作製した縦１１０ｍｍ、横１１０ｍｍ角の合わせガラス（周辺支持）の中心点から２５ｍｍ以内の位置に質量約１０４０ｇ、直径６３．５ｍｍの鋼球を５ｃｍ～１００ｃｍで５ｃｍ刻みの高さから順次落下させ、ガラスが割れたときの高さを記録した。それぞれの中間膜からなる合わせガラスを６枚試験し、その平均高さを算出した。ガラスが割れた高さの値が大きいほど防割性の高い。さらに、ＰＶＢ樹脂を含む中間膜を有する比較例２の合わせガラスが割れた高さを基準として、それぞれの実施例及び比較例の合わせガラスが割れた高さについて、下式（１）に従って計算した値を、防割性比として算出した。

防割性比＝各測定サンプルのガラスが割れた高さ／比較例２のガラスが割れた高さ　・・・（１）

[0116] [表1]

	1	2	3	4	5	6	7	1	2
共重合体Ａ－１	１００	－	－	－	－	－	－	－	－
共重合体Ａ－２	－	１００	－	－	－	－	－	－	－
共重合体Ａ－３	－	－	１００	－	－	－	－	－	－
共重合体Ａ－４	－	－	－	１００	－	－	－	－	－
共重合体Ａ－５	－	－	－	－	１００	－	－	－	—
共重合体Ａ－６	－	－	－	－	－	１００	－	－	－
共重合体Ａ－７	－	－	－	－	－	－	１００	－	－
共重合体Ａ－８	－	－	－	－	－	－	－	１００	－
ポリビニルブチラール樹脂	－	－	－	－	－	－	－	－	１００
熱架橋剤	０．２	０．２	０．２	０．２	０．２	０．２	０．２	０．２	－
可塑剤	－	－	－	－	－	－	－	－	３８
厚み（μｍ）	１００	１００	１００	１００	１００	１００	１００	１００	３８０
ヘイズ（％）	０．５	０．５	０．５	０．５	０．５	０．５	０．５	０．７	０．５
ガラスが割れた高さ（ｃｍ）	１００超	１００超	１００超	１００超	１００超	１００超	１００超	４５	３０
防割性比	３．３超	３．３超	３．３超	３．３超	３．３超	３．３超	３．３超	１．５	１

[0117] ４．多層中間膜を有する合わせガラス

実施例８

実施例１のフィルム材から一方のＰＥＴフィルムを剥離して樹脂層の表面を露出させた後、樹脂層の表面を縦１１０ｍｍ、横１１０ｍｍ、厚み２．７ｍｍのフロートガラスに貼り付け、ローラーで押し付けた。次いで、他方のＰＥＴフィルムを樹脂層から剥離して樹脂層の表面を露出させ、露出した樹脂層の表面に厚み７６０μｍのポリビニルブチラール樹脂のフィルム（積水化学株式会社製、以下「ＰＶＢフィルム」ということがある）を貼り付け、ローラーで押し付けた。続いて、真空積層機を用いて真空状態でＰＶＢフィルムの表面を縦１１０ｍｍ、横１１０ｍｍ、厚み２．７ｍｍのフロートガラスに貼り付けて積層体を作製した。その後、積層体を、真空ラミネータを用いて温度１２０℃、真空条件で３０分間保持することにより加熱加圧処理し、共重合体Ｐ－１を含む層及びＰＶＢフィルムの２層からなる中間膜を備える合わせガラスを得た。

[0118] 実施例９

実施例１のフィルム材から一方のＰＥＴフィルムを剥離して樹脂層の表面を露出させた後、露出した樹脂層の表面に厚み３８０μｍのＰＶＢフィルム（積水化学株式会社製）を貼り付け、ローラーで押し付けた。次いで、他方のＰＥＴフィルムを樹脂層から剥離して樹脂層の表面を露出させ、露出した樹脂層の表面に厚み３８０μｍのＰＶＢフィルムを貼り付け、ローラーで押し付けた。続いて、真空積層機を用いて両側のＰＶＢフィルムの表面を縦１１０ｍｍ、横１１０ｍｍ、厚み２．７ｍｍのフロートガラスに貼り付けて積層体を作製した。その後、積層体を、真空ラミネータを用いて温度１２０℃、真空条件で３０分間保持することにより加熱加圧処理し、共重合体Ｐ－１を含む層及びこれを挟む２枚のＰＶＢフィルムの３層からなる中間膜を備える合わせガラスを得た。

[0119] 比較例３

縦１１０ｍｍ、横１１０ｍｍ、厚み２．７ｍｍのフロートガラスを特に処理することなく使用した。

[0120] 評価

作製した合わせガラスと、比較例２の合わせガラス、及び比較例３のフロートガラス単体について、上述と同様の耐衝撃試験を行い、比較例２の合わせガラスが割れた高さを基準とする防割性比を求めた。実施例８の合わせガラスについては、上側（剛球が衝突する側）のフロートガラスに隣接する層を共重合体Ｐ－１を含む樹脂層とした試験例１、及び上側のフロートガラスに隣接する層をＰＶＢフィルムとした試験例２の耐衝撃試験を行った。あわせて、ガラスが割れた際に剛球がガラスを貫通しなかった場合を「Ａ」、剛球がガラスを貫通した場合を「Ｂ」と判定することで、各合わせガラスの耐貫通性を評価した。表２に評価結果を示す。

[0121] [表2]

		実施例８		実施例９	比較例２	比較例３
		試験１	試験２			
ガラス板（上側）	材料	ﾌﾛｰﾄｶﾞﾗｽ	ﾌﾛｰﾄｶﾞﾗｽ	ﾌﾛｰﾄｶﾞﾗｽ	ﾌﾛｰﾄｶﾞﾗｽ	ﾌﾛｰﾄｶﾞﾗｽ
	厚み(mm)	２．７	２．７	２．７	２．７	２．７
中間膜	材料	共重合体 P-1	PVB 樹脂	PVB 樹脂	PVB樹脂	－
	厚み(μｍ)	１００	７６０	３８０	７６０	－
	材料	PVB樹脂	共重合体 P-1	共重合体 P-1	－	－
	厚み(μｍ)	７６０	１００	１００	－	－
	材料	－	－	PVB 樹脂	－	－
	厚み(μｍ)	－	－	３８０	－	－
ガラス板（下側）	材料	ﾌﾛｰﾄｶﾞﾗｽ	ﾌﾛｰﾄｶﾞﾗｽ	ﾌﾛｰﾄｶﾞﾗｽ	ﾌﾛｰﾄｶﾞﾗｽ	ﾌﾛｰﾄｶﾞﾗｽ
	厚み(mm)	２．７	２．７	２．７	２．７	２．７
防割性比		２．９	２．１	２．１	１	０．６
耐貫通性		Ａ	Ａ	Ａ	Ａ	Ｂ

符号の説明

[0122] １…合わせガラスの中間膜用フィルム材、２…合わせガラス、１０，１２…基材、１１…樹脂層、２０，２２…ガラス板（例えばフロートガラス）、２１…中間膜。

請求の範囲

[請求項1] （メタ）アクリロイル化合物と、エチレン性不飽和基を有するケイ素化合物と、を含有するモノマー混合物の共重合体を含む、合わせガラスの中間膜用樹脂組成物。

[請求項2] 前記（メタ）アクリロイル化合物が、アルキル（メタ）アクリレートと、水酸基を有する（メタ）アクリレートとを含有する、請求項１に記載の中間膜用樹脂組成物。

[請求項3] 前記モノマー混合物が、前記アルキル（メタ）アクリレート５０～９０質量部、前記水酸基を有する（メタ）アクリレート５～３０質量部及び前記エチレン性不飽和基を有するケイ素化合物５～２０質量部を含有する、請求項２に記載の中間膜用樹脂組成物。

[請求項4] 熱架橋剤を更に含む、請求項１～３のいずれか一項に記載の中間膜用樹脂組成物。

[請求項5] 基材と、前記基材上に設けられた樹脂層と、を有し、前記樹脂層が、対向する２枚のガラス板と前記２枚のガラス板の間に挟まれた中間膜とを備える合わせガラスの前記中間膜を形成するために用いられる、合わせガラスの中間膜用フィルム材であって、

前記樹脂層が、請求項１～４のいずれか一項に記載の中間膜用樹脂組成物から形成された層である、中間膜用フィルム材。

[請求項6] 前記樹脂層のヘーズが５％以下である、請求項５に記載の中間膜用フィルム材。

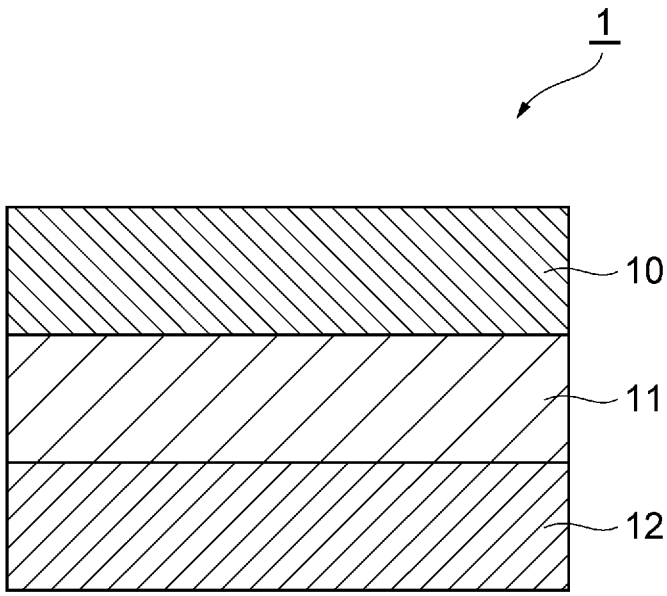
[請求項7] 対向する２枚のガラス板と、前記２枚のガラス板の間に挟まれた中間膜と、を備える合わせガラスの製造方法であって、

請求項５又は６に記載の中間膜用フィルム材が備える前記樹脂層を介して、前記２枚のガラス板を貼り合せて積層体を得る工程と、

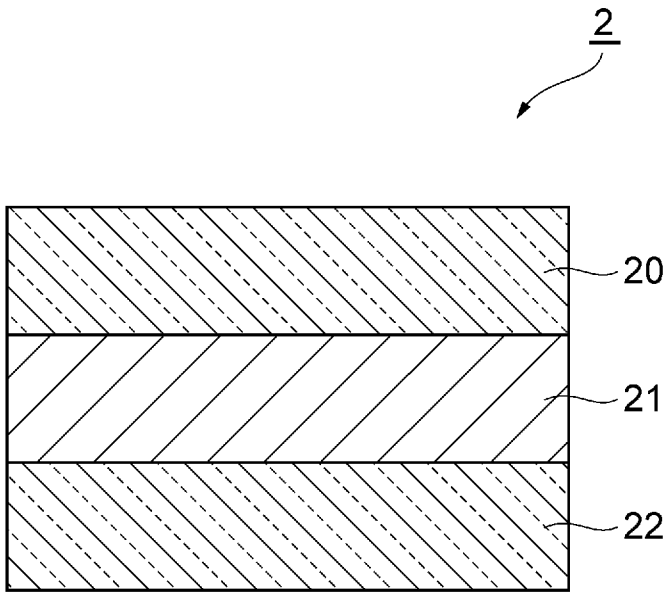
３０～１５０℃及び０．３～１．５ＭＰａの条件で、前記積層体を加熱加圧処理する工程と、

を含む、合わせガラスの製造方法。

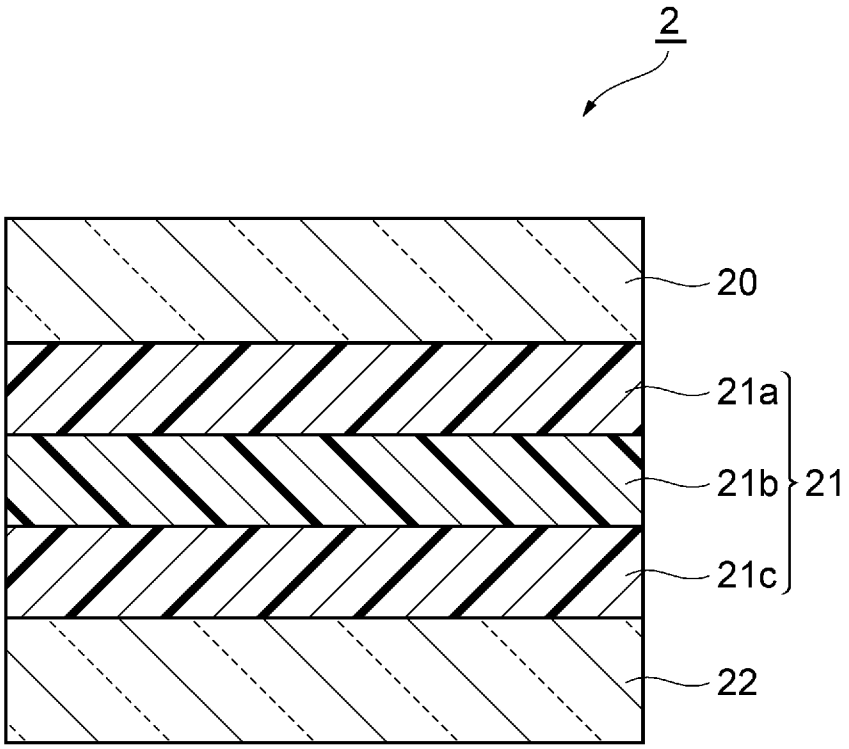
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/024065

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C03C27/12(2006.01)i, *B32B17/10*(2006.01)i, *B32B27/00*(2006.01)i, *B32B27/30*(2006.01)i, *C08F290/06*(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, B32B17/06-17/10, B32B27/00, B32B27/30, C08K5/54-5/5435, C08F290/06

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)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y A	JP 2011-073943 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 14 April 2011 (14.04.2011), paragraphs [0002] to [0004], [0007], [0010], [0013] to [0026], [0031] to [0039], [0043]; fig. 1 (Family: none)	1,4-5,7 2,6 3
Y	JP 2002-080808 A (Kuraray Co., Ltd.), 22 March 2002 (22.03.2002), paragraphs [0001], [0005], [0008] to [0014], [0019], [0021] to [0026]; table 1 (Family: none)	2,6

☒ 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	Date of mailing of the international search report
31 August 2017 (31.08.17)	12 September 2017 (12.09.17)

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
Japan Patent Office 3-4-3,Kasumigaseki,Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915,Japan	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/024065

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 2016-169299 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 23 September 2016 (23.09.2016), paragraphs [0001], [0017] to [0045], [0074]; table 1 (Family: none)	1-7
A	JP 09-123354 A (Namariichi Co., Ltd.), 13 May 1997 (13.05.1997), paragraphs [0001], [0017] to [0026], [0033]; table 1 (Family: none)	1-7

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１７／０２４０６５

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, B32B27/00(2006.01)i, B32B27/30(2006.01)i, C08F290/06(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, B32B17/06 - 17/10, B32B27/00, B32B27/30, C08K5/54 - 5/5435, C08F290/06

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　１９７１－２０１７年
日本国実用新案登録公報　１９９６－２０１７年
日本国登録実用新案公報　１９９４－２０１７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	JP 2011-073943 A (大日本印刷株式会社) 2011.04.14, [0002] - [0004], [0007], [0010], [0013] - [0026],	1, 4 - 5, 7
Y	[0031] - [0039], [0043], [図1] (ファミリーなし)	2, 6
A		3
Y	JP 2002-080808 A (株式会社クラレ) 2002.03.22, [0001], [0005], [0008] - [0014], [0019], [0021] - [0026], [表1] (ファミリーなし)	2, 6

☑　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	国際調査報告の発送日
３１．０８．２０１７	１２．０９．２０１７

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
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）　４Ｔ　９６５１
吉川　潤
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
A	JP 2016-169299 A (昭和電工株式会社) 2016.09.23, [0001], [0017] - [0045], [0074], [表 1] (ファミリーなし)	1 - 7
A	JP 09-123354 A (株式会社鉛市) 1997.05.13, [0001], [0017] - [0026], [0033], [表 1] (ファミリーなし)	1 - 7