

(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12月7日(07.12.2017)



(10) 国際公開番号

WO 2017/209013 A1

- (51) 国際特許分類:
C03C 27/12 (2006.01) *C08L 33/00* (2006.01)
B32B 17/10 (2006.01) *C09J 4/02* (2006.01)
B32B 27/30 (2006.01) *C09J 7/00* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/019777
- (22) 国際出願日: 2017年5月26日(26.05.2017)
- (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:
 特願 2016-110063 2016年6月1日(01.06.2016) JP
 特願 2016-110064 2016年6月1日(01.06.2016) 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: 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

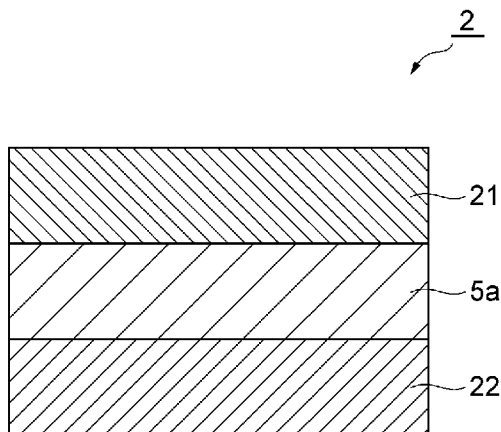
都千代田区丸の内一丁目9番2号 日立化成株式会社内 Tokyo (JP).

(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 (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, 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.

(54) Title: PHOTOCURABLE RESIN COMPOSITION FOR INTERLAYER FILM FOR LAMINATED GLASS, FILM MATERIAL FOR INTERLAYER FILM FOR LAMINATED GLASS, AND METHOD FOR MANUFACTURING LAMINATED GLASS

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



(57) Abstract: Provided is a photocurable resin composition for an interlayer film of laminated glass which includes a (meth)acrylic polymer, a (meth)acrylic monomer, and a photoinitiator. The photocurable resin composition may further include a plasticizing agent component. Also provided is a film material for an interlayer film for laminated glass which includes an adhesive layer that contains the photocurable resin composition for an interlayer film for laminated glass and a pair of base material layers which are laminated so as to interpose the adhesive layer therebetween.

(57) 要約: (メタ) アクリル重合体、(メタ) アクリルモノマー、及び光重合開始剤を含有する、合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物が開示される。光硬化性樹脂組成物は、可塑剤成分を更に含有していてもよい。合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物を含む粘着層と、粘着層を間に挟むように積層された一对の基材層と、を備える、合わせガラスの中間膜用フィルム材も開示される。



WO 2017/209013 A1

(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光硬化性樹脂組成物、合わせガラスの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光硬化性樹脂組成物、それを用いた合わせガラスの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、自動車のような車輛、航空機、建築物等用のガラスとしては、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、中間膜を有する合わせガラスが広く用いられている。

[0003] 上記合わせガラス用中間膜の一例として、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。

[0004] しかし、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であり、外部から衝撃を受けたときにより割れ難い、すなわち防割性の高い合わせガラスが求められていた。

先行技術文献

特許文献

- [0005] 特許文献1：特開1987-100463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12/091117号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 本発明は、上記現状に鑑み、防割性に優れる合わせガラスを与えることの

できる合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物、並びにそれを用いた合わせガラスの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] 本発明者らは上記課題を解決するために鋭意研究した結果、(メタ)アクリル重合体と(メタ)アクリルモノマー(又は(メタ)アクリレートモノマー)と光重合開始剤を含む光硬化性樹脂組成物を用いると上記課題を解決し得ることを見出した。本発明は、かかる知見に基づいて完成したものである。
- [0008] すなわち、本発明の一側面は、(A) (メタ)アクリル重合体、(B) (メタ)アクリルモノマー(又は(メタ)アクリレートモノマー)、及び(D) 光重合開始剤を含有する合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物を提供する。
- [0009] 本発明の別の側面は、合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物を含む、又は該樹脂組成物から形成される粘着層と、上記粘着層を間に挟むように積層された一対の基材層とを備える、合わせガラスの中間膜用フィルム材(又はカバーフィルム付合わせガラス用中間膜)を提供する。
- [0010] このような合わせガラスの中間膜用フィルム材(以下、単に「フィルム材」という場合がある。)によれば、粘着層を傷つけることなく、合わせガラス用中間膜の保管及び運搬を容易にすることができる。
- [0011] 上記フィルム材における粘着層の厚さは、 $10\ \mu\text{m}\sim 5.0\times 10^3\ \mu\text{m}$ であってもよい。これにより、合わせガラスの中間膜が、耐衝撃性及び視認性により優れたものとなる。
- [0012] 本発明のさらに別の側面は、対向する2枚のガラス板と、これらの間に挟持されている中間膜とを備える合わせガラスを製造する方法を提供する。この方法は、上記フィルム材の粘着層に紫外線を照射し硬化させる工程と、前記粘着層を介して被着物である2枚のガラス板を貼り合わせ、前記2枚のガラス板及び前記粘着層を備える積層体を得る工程と、前記積層体を、 $30\sim 150\text{ }^\circ\text{C}$ 及び $0.3\sim 1.5\ \text{MPa}$ の条件で加熱及び加圧する工程と、を

含んでいてもよい。得られる合わせガラスが有する前記中間膜は、硬化した前記粘着層である。

[0013] 本発明に係る合わせガラスを製造する方法は、上記フィルム材の粘着層を介して、被着物である2枚のガラス板を貼り合わせ、前記2枚のガラス板及び前記粘着層を備える積層体を得る工程と、前記積層体を、30～150℃及び0.3～1.5MPaの条件で加熱及び加圧する工程と、前記積層体に対し、前記2枚のガラス板（被着物）のいずれか一方の側から紫外線を照射し硬化させる工程を含んでいてもよい。得られる合わせガラスが有する前記中間膜は、硬化した前記粘着層である。

[0014] 本発明の一側面に係る合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物は、（C）可塑剤成分を更に含有していてもよい。

[0015] 本発明の一側面に係る合わせガラスを製造する方法は、
（A）上記に記載の合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物を、一方のガラス板の表面に塗布して、光硬化性樹脂層を形成する工程；
（B）：前記一方のガラス板を、もう一方のガラス板に、前記光硬化性樹脂層が内側となるように貼り合わせる工程；及び
（C）前記2枚のガラス板の間に挟持されている前記光硬化性樹脂層に対し紫外線を照射して硬化させることにより、硬化した前記光硬化性樹脂層である中間膜を備える合わせガラスを得る工程
を含んでいてもよい。

[0016] 本発明の一側面に係る合わせガラスを製造する方法は、
（a）上記に記載の合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物を、一方のガラス板の表面に塗布して、光硬化性樹脂層を形成する工程；
（b）前記光硬化性樹脂層に対し紫外線を照射して硬化させる工程；及び
（c）前記一方のガラス板を、もう一方のガラス板に、硬化した前記光硬化性樹脂層（硬化樹脂層）が内側となるように貼り合わせて、硬化した前記光硬化性樹脂層である中間膜を備える合わせガラスを得る工程
を含んでいてもよい。

[0017] 本発明の一側面に係る合わせガラスを製造する方法は、

- (a') 上記に記載の合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物を、一方のガラス板の表面に塗布して、光硬化性樹脂層を形成する工程；
- (b') 前記光硬化性樹脂層に対し紫外線を照射して仮硬化させる工程；
- (c') 前記一方のガラス板に、もう一方のガラス板を、仮硬化した前記光硬化性樹脂層が内側となるように貼り合わせる工程；及び
- (d') 前記2枚のガラス板の間に挟持されている仮硬化した前記光硬化性樹脂層に対し紫外線を照射して本硬化させることにより、硬化した前記光硬化性樹脂層である中間膜を備える合わせガラスを得る工程

を含んでいてもよい。工程(d')において得られる合わせガラスにおいて、ガラス板とガラス板とが硬化した光硬化性樹脂層（光透過性の硬化樹脂層）を介して積層されていてもよい。

[0018] 以上の方法によって得られる合わせガラスにおいて、ガラス板とガラス板とが光透過性の硬化樹脂層（硬化した光硬化性樹脂層）を介して積層されていてもよい。ここで、本明細書において「ガラス板」は、無機ガラス板だけでなく、樹脂基板及び樹脂フィルム等の透明プラスチック板も含む用語として用いられる。本発明の一側面に係るフィルム材又は中間膜を用いることにより、例えば、無機ガラス板同士を、無機ガラス板と透明プラスチック板とを、又は透明プラスチック板同士を貼り合わせる事が可能である。

[0019] 本発明の一側面に係る中間膜は、向上したガラス板（被着体）表面への濡れ性及び接着を有し、それにより合わせガラス（積層体）の強靱性を向上させる。その結果、高い防割性を有する合わせガラスが提供される。

発明の効果

[0020] 本発明の一側面によれば、外部から衝撃を加えられたときに割れ難い、すなわち防割性に優れる合わせガラスを与えることのできる、合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物が提供される。本発明の一側面は、この光硬化性樹脂組成物を用いた合わせガラスの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できる。本発明の一側面に係る合わせガラスにおいて

は、高湿度環境下での信頼性においても中間膜（粘着層）が白化することなく安定した透明性を維持し得る。

図面の簡単な説明

- [0021] [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]合わせガラスの製造方法の一実施形態を示す工程図である。
- [図4]合わせガラスの製造方法の一実施形態を示す工程図である。
- [図5]合わせガラスの製造方法の一実施形態を示す工程図である。
- [図6]合わせガラスの耐衝撃性試験に使用する測定装置の一例を模式的に示す分解斜視図である。

発明を実施するための形態

- [0022] 以下、本発明を実施するための形態について詳細に説明する。但し、本発明は以下の実施形態に限定されるものではない。
- [0023] 本明細書において「（メタ）アクリレート」とは、「アクリレート」又はそれに対応する「メタクリレート」を意味する。同様に、「（メタ）アクリル」とは、「アクリル」又はそれに対応する「メタクリル」を意味し、「（メタ）アクリロイル」とは、「アクリロイル」又はそれに対応する「メタクリロイル」を意味する。組成物中の各成分の含有量は、組成物中に各成分に該当する物質が複数種存在する場合、特に断らない限り、組成物中に存在する当該複数種の物質の合計量を意味する。また、各成分の含有量は、特に断らない限り、光硬化性樹脂組成物の全量（塗布等のために添加される溶剤を除く。）を基準とする割合で示される。

[0024] 合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物

本実施形態の合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物は、（A）（メタ）アクリル重合体、（B）（メタ）アクリルモノマー（又は（メタ）アクリレートモノマー）、及び（D）光重合開始剤を含有し、（C）可塑剤成分を更に含有していてもよい。この光硬化性樹脂組成物は、主に（メタ）アク

リルモノマーの光重合反応によって硬化する。すなわち、硬化した光硬化性樹脂組成物及びこれを含む後述の硬化した粘着層又は硬化した光硬化性樹脂層は、(B) (メタ) アクリルモノマーの重合によって形成された重合体を含む。

[0025] 本実施形態の合わせガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物は、被着体（ガラス板）表面への濡れ性、及び積層体（合わせガラス）の強靱性を向上させることで、合わせガラスの高い防割性を発現する。

[0026] 次に、合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物の各成分について説明する。

[0027] (A) (メタ) アクリル重合体

(メタ) アクリル重合体（以下、「(A) 成分」ということがある。）は、(メタ) アクリロイル基 ($\text{CH}_2=\text{C}(\text{X})\text{C}(=\text{O})-$ 、Xは水素原子又はメチル基である。) を分子内に1つ有するモノマー（(メタ) アクリレート化合物等）が単独で重合して形成される単独重合体、又は、2種以上の該モノマーを組み合わせて共重合して形成される共重合体である。

[0028] (メタ) アクリル重合体を構成するモノマー（(メタ) アクリレート化合物等）は、通常は(メタ) アクリロイルオキシ基又は(メタ) アクリロイル基を1つ有する単官能モノマーである。その具体例としては、(メタ) アクリル酸；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（*n*-ラウリル(メタ) アクリレート）、イソミリスチル(メタ) アクリレート、ステアリル(メタ) アクリレート及びイソステアリル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；グリジール(メタ) アクリレート；3-ブテニル(メタ) アクリレート等の炭素数が

2～18のアルケニル基を有するアルケニル（メタ）アクリレート；ベンジル（メタ）アクリレート及びフェノキシエチル（メタ）アクリレート等の芳香環を有する（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；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、ジシクロペンテニルオキシエチルアクリレート等の脂環式基を有する（メタ）アクリレート；2-ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、3-ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート及び4-ヒドロキシブチル（メタ）アクリレート等の水酸基を有する（メタ）アクリレート；テトラヒドロフルフリル（メタ）アクリレート；N, N-ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレート等のアミノ基を有する（メタ）アクリレート；（メタ）アクリル酸アミド、（メタ）アクリロイルモルホリン、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）アクリルアミド等の（メタ）アクリルアミド誘導体；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等のイソシアネート基を有する（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、ヘキサエチレングリコールモノ（メタ）アクリレート、オクタプロピ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アルキレングリコールモノ（メタ）アクリレート；シロキサン骨格を有する（メタ）アクリレートが挙げられる。これらの化合物は、1種又は2種以上を組み合わせ用いることができる。

[0029] （メタ）アクリル重合体（又は（メタ）アクリレート重合体）は、（メタ）アクリレート化合物等のモノマーをモノマー単位として含む主鎖、該主鎖に結合するウレタン結合、及び該ウレタン結合を介して主鎖に結合している（メタ）アクリロイルオキシ基を有する変性（メタ）アクリレートオリゴマーを含むことができる。このような（メタ）アクリル重合体は、側鎖に水酸基を有する（メタ）アクリレートオリゴマー（又は（メタ）アクリル重合体）とイソシアネートとの反応生成物であることができる。側鎖に水酸基を有する（メタ）アクリレートオリゴマーとしては、例えば、2-ヒドロキシエチルアクリレート、4-ヒドロキシブチルアクリレート及び6-ヒドロキシヘキシルアクリレートをモノマー単位として含む（メタ）アクリル重合体が挙げられる。（メタ）アクリル重合体が、主鎖とウレタン結合を介して結合されているアクリレート基を側鎖に有することによって、光硬化性樹脂組成物中の（メタ）アクリル重合体をより高分子量化され、それにより（メタ）アクリル重合体分子同士の絡み合いをより複雑化することができる。すなわち、（メタ）アクリル重合体に（メタ）アクリロイル基を付加することで、光硬化性樹脂組成物の硬化物をより強靱化することができる。本明細書において、この変性（メタ）アクリル重合体は、後述の（B）成分の（メタ）アクリルモノマー（エチレン性不飽和結合基を有する化合物）ではなく、（メタ）アクリル重合体の1種に分類される。

[0030] （メタ）アクリル重合体は、上記（メタ）アクリレート化合物等のモノマーと共重合可能な化合物を共重合モノマーとして含んでもよい。（メタ）アクリレート化合物等のモノマーと共重合可能な化合物としては、例えば、スチレン、4-メチルスチレン、ビニルピリジン、ビニルピロリドン、酢酸ビニル、シクロヘキシルマレイミド、フェニルマレイミド及び無水マレイ

ン酸が挙げられる。

[0031] (メタ)アクリル重合体の含有量は、光硬化性樹脂組成物の総量を基準として、1質量%以上、10質量%以上、又は20質量%以上であってもよい。(メタ)アクリル重合体の含有量は、光硬化性樹脂組成物の総量を基準として、80質量%以下、50質量%以下、又は30質量%以下であってもよい。(メタ)アクリル重合体(又は(メタ)アクリレートオリゴマー)の含有量がこのような範囲にあると、光硬化性樹脂組成物の硬化物の伸び率がより向上するとともに、粘度がより低減する。

[0032] (メタ)アクリル重合体の重量平均分子量は、1万~200万、又は10万~100万であってもよい。重量平均分子量が1万以上であると、(メタ)アクリル重合体の分子鎖同士の絡み合いが複雑化することで中間膜が強靱化して、合わせガラスの衝撃強度が高くなる傾向がある。(メタ)アクリル重合体の重量平均分子量が200万以下であると、光硬化性樹脂組成物の粘度が高くなりすぎず、糸引きが生じにくくなるなど、ハンドリング性が向上する傾向がある。ここで、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測定される、標準ポリスチレン換算値を意味する。

[0033] (メタ)アクリル重合体のガラス転移温度(T_g)が、0℃以下又は-10℃以下であってもよい。(メタ)アクリル重合体のT_gが低いと、合わせガラスの衝撃強度が高くなる傾向がある。同様の観点から、(メタ)アクリル重合体のT_gは、-15℃以下であってもよい。(メタ)アクリル重合体のT_gの下限は、特に制限されないが、-40℃以上であってもよい。

[0034] (B) (メタ)アクリルモノマー

(メタ)アクリルモノマー(以下、「(B)成分」ということがある。)は、エチレン性不飽和基又は(メタ)アクリロイル基を有する化合物である。その具体例としては、(メタ)アクリル酸;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（n-ラウリル（メタ）アクリレート）、イソミリスチル（メタ）アクリレート、ステアリル（メタ）アクリレート等のアルキル基の炭素数1~18のアルキル（メタ）アクリレート；エチレングリコールジ（メタ）アクリレート、ブタンジオール（メタ）アクリレート、ノナンジオールジ（メタ）アクリレート等のアルカンの炭素数が1~18のアルカンジオールジ（メタ）アクリレート；トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、テトラメチロールメタントリ（メタ）アクリレート、テトラメチロールメタンテトラ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート等の（メタ）アクリロイル基を分子内に3つ以上有する多官能（メタ）アクリレート；グリシジルメタクリレート；3-ブテニル（メタ）アクリレート等のアルケニル基の炭素数が2~18のアルケニル（メタ）アクリレート；ベンジル（メタ）アクリレート、フェノキシエチル（メタ）アクリレート等の芳香環を有する（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、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；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、ジシクロペンタニル（メタ）アクリレート、ジシクロペンテニルオキシエチル（メタ）アクリレート等の脂環式基を有する（メタ）アクリレート；2-ヒドロキシエチル（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、4-ヒドロキシ

ブチル（メタ）アクリレート等の水酸基を有する（メタ）アクリレート；テトラヒドロフルフリル（メタ）アクリレート；N，N-ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレート等のアミノ基を有する（メタ）アクリレート；（メタ）アクリル酸アミド、（メタ）アクリロイルモルホリン、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、N-ヒドロキシエチル（メタ）アクリルアミド等の（メタ）アクリルアミド誘導体；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、2-（メタ）アクリロイルオキシエチルイソシアネート等のイソシアネート基を有する（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、ヘキサエチレングリコールモノ（メタ）アクリレート、オクタプロピ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、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アルキレングリコールモノ（メタ）アクリレート；ポリアルキレングリコールジ（メタ）アクリレート；イソシアヌル環骨格を有する（メタ）アクリレート；シロキサン骨格を有する（メタ）アクリレート、イソプレン骨格を有するポリイソプレン（メタ）アクリレート、ブタジエン骨格を有するポリブタジエン（メタ）アクリレートなどが挙げられる。これらは1種を単独で用いてもよく、2種以上を併用してもよい。

[0035] アルキル基の炭素数1～18のアルキル（メタ）アクリレート、アルカンの炭素数が1～18のアルカンジオールジ（メタ）アクリレート、（メタ）アクリロイル基を分子内に3つ以上有し脂肪族基を有する多官能（メタ）アクリレート、グリシジルメタクリレート、及びアルケニル基の炭素数が2～18のアルケニル（メタ）アクリレートは、脂肪族系（メタ）アクリレートと総称する場合もある。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、ポリアルキレングリコールモノ（メタ）アクリレート、ポリアルキレングリコールジ（メタ）アクリレート、イソシアヌル環骨格を有する（

メタ) アクリレート、シロキサン骨格を有する (メタ) アクリレートをヘテロ原子系 (メタ) アクリレートと総称する場合もある。

[0036] (メタ) アクリルモノマーの含有量は、光硬化性樹脂組成物の総量を基準として、3質量%以上、5質量%以上、又は10質量%以上であってもよい。(メタ) アクリルモノマーの含有量は、光硬化性樹脂組成物の総量を基準として、90質量%以下、70質量%以下、又は50質量%以下であってもよい。

[0037] (C) 可塑剤成分

可塑剤成分は、成分(A)の(メタ)アクリル重合体と相溶し、紫外線照射によってそれ自身は光重合しない化合物である。可塑剤成分が(メタ)アクリル重合体と相溶しない場合には、硬化物が白濁し視認性が低下する可能性がある。可塑剤成分は、固体の粘着付与剤又は液状可塑成分のうち少なくとも一方を含んでいてもよい。ここで、“固体(固形)”とは、JIS K 5601-2-2によって測定される軟化点が60~150℃、又は80~120℃であること意味する。液状とは、大気圧下、25℃で、コーンプレートオメーターで測定される粘度が0.01~100 Pa·s (25℃)の範囲にある状態を意味する。

[0038] このような軟化点を示す固体の粘着付与剤は、紫外線照射によりそれ自身が光硬化をせず、光硬化性樹脂組成物から形成された硬化又は仮硬化した光硬化性樹脂層(又は粘着層)の初期接着強度(いわゆるタック性)を向上させ、また硬化した光硬化性樹脂層(又は粘着層)の最終的な接着強度を高める作用を有する。粘着付与剤は、例えば、テルペン樹脂、テルペンフェノール樹脂及び水素添加テルペン樹脂等のテルペン系樹脂、天然ロジン、重合ロジン、ロジンエステル及び水素添加ロジン等のロジン樹脂、並びに、ポリブタジエン及びポリイソプレン等の石油樹脂、又はこれらの組み合わせを含むことができる。

[0039] 液状可塑成分は、紫外線照射によりそれ自身は光硬化をせず、硬化後又は仮硬化後の光硬化性樹脂層に柔軟性を与え、硬化収縮率を低減させる成分で

ある。このような液状可塑成分は、例えば、液状のポリブタジエン系可塑剤、ポリイソプレン系可塑剤、フタル酸エステル系可塑剤及びアジピン酸エステル系可塑剤からなる群から選択される少なくとも一種であってもよい。

[0040] 液状の可塑成分（可塑剤）としては、例えば、ブタジエンゴム、イソプレンゴム、シリコンゴム、スチレンブタジエンゴム、クロロプレンゴム、ニトリルゴム、ブチルゴム、エチレンプロピレンゴム、ウレタンゴム、クロルスルホン化ポリエチレンゴム、フッ素ゴム、水素化ニトリルゴム、及びエピクロロヒドリンゴム等の液状ゴム；ポリ α -オレフィン（例えばポリブテン）、水添 α -オレフィンオリゴマー（例えば水添ポリブテン）及びアタクチックポリプロピレン等のポリビニルオリゴマー；ビフェニル及びトリフェニル等の芳香族オリゴマー；水添液状ポリブタジエン等の水添ポリエンオリゴマー；パラフィン油及び塩化パラフィン油等のパラフィンオリゴマー；ナフテン油等のシクロパラフィンオリゴマー；ジメチルフタレート、ジエチルフタレート、ジブチルフタレート、ジ（2-エチルヘキシル）フタレート、ジ-n-オクチルフタレート、ジイソブチルフタレート、ジヘプチルフタレート、ジフェニルフタレート、ジイソデシルフタレート、ジトリデシルフタレート、ジウンデシルフタレート、ジ（ヘプチル，ノニル，ウンデシル）フタレート、ベンジルフタレート、ブチルベンジルフタレート、ジノニルフタレート及びジシクロヘキシルフタレート等のフタル酸誘導体；ジメチルイソフタレート、ジ（2-エチルヘキシル）イソフタレート及びジイソオクチルイソフタレート等のイソフタル酸誘導体；ジ（2-エチルヘキシル）テトラヒドロフタレート、ジ-n-オクチルテトラヒドロフタレート及びジイソデシルテトラヒドロフタレート等のテトラヒドロフタル酸誘導体；ジ-n-ブチルアジペート、ジ（2-エチルヘキシル）アジペート、ジイソデシルアジペート及びジイソノニルアジペート等のアジピン酸誘導体；ジ（2-エチルヘキシル）アゼレート、ジイソオクチルアゼレート及びジ-n-ヘキシルアゼレート等のアゼライン酸誘導体；ジ-n-ブチルセバケート及びジ（2-エチルヘキシル）セバケート等のセバシン酸誘導体；ジ-n-ブチル

マレート、ジメチルマレート、ジエチルマレート及びジー（2-エチルヘキシル）マレート等のマレイン酸誘導体；ジー-n-ブチルフマレート及びジー（2-エチルヘキシル）フマレート等のフマル酸誘導体；トリー（2-エチルヘキシル）トリメリテート、トリー-n-オクチルトリメリテート、トリーソデシルトリメリテート、トリーソオクチルトリメリテート、トリー-n-ヘキシルトリメリテート及びトリーソノニルトリメリテート等のトリメリット酸誘導体；テトラ（2-エチルヘキシル）ピロメリテート及びテトラ-n-オクチルピロメリテート等のピロメリット酸誘導体；トリエチルシトレート、トリー-n-ブチルシトレート、アセチルトリエチルシトレート及びアセチルトリー（2-エチルヘキシル）シトレート等のクエン酸誘導体；モノメチルイタコネート、モノブチルイタコネート、ジメチルイタコネート、ジエチルイタコネート、ジブチルイタコネート及びジー（2-エチルヘキシル）イタコネート等のイタコン酸誘導体；ブチルオレート、グリセリルモノオレート及びジエチレングリコールモノオレート等のオレイン酸誘導体；メチルアセチルリシノレート、ブチルアセチルリシノレート、グリセリルモノリシノレート及びジエチレングリコールモノリシノレート等のリシノール酸誘導体；n-ブチルステアレート、グリセリンモノステアレート及びジエチレングリコールジステアレート等のステアリン酸誘導体；ジエチレングリコールモノラウレート、ジエチレングリコールジペラルゴネート及びペンタエリスリトール脂肪酸エステル等のその他の脂肪酸誘導体；トリエチルホスフェート、トリブチルホスフェート、トリー（2-エチルヘキシル）ホスフェート、トリブトキシエチルホスフェート、トリフェニルホスフェート、クレジルジフェニルホスフェート、トリクレジルホスフェート、トリキシレニルホスフェート及びトリス（クロロエチル）ホスフェート等のリン酸誘導体；ジエチレングリコールジベンゾエート、ジプロピレングリコールジベンゾエート、トリエチレングリコールジベンゾエート、トリエチレングリコールジー（2-エチルブチレート）、トリエチレングリコールジー（2-エチルヘキソエート）及びジブチルメチレンビスチオグリコレート等のグリコール誘導体

;グリセロールモノアセテート、グリセロールトリアセテート及びグリセロールトリブチレート等のグリセリン誘導体、エポキシ化大豆油、エポキシヘキサヒドロフタル酸ジイソデシル、エポキシトリグリセライド、エポキシ化オレイン酸オクチル及びエポキシ化オレイン酸デシル等のエポキシ誘導体が挙げられる。これらの化合物は、1種又は2種以上を組み合わせる用いることができる。

[0041] 可塑剤成分の含有量は、光硬化性樹脂組成物の総量を基準として、5質量%以上、10質量%以上、又は20質量%以上であってもよい。可塑剤成分の含有量は、光硬化性樹脂組成物の総量を基準として、90質量%以下、70質量%以下、又は50質量%以下であってもよい。

[0042] (D) 光重合開始剤

光重合開始剤（以下、「(D)成分」ということがある。）は、活性エネルギー線の照射により硬化反応（特に、光ラジカル重合による硬化反応）を開始又は促進する化合物である。ここで、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。光重合開始剤としては、特に制限はなく、ベンゾフェノン系、アントラキノン系、ベンゾイル系、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。

[0043] 具体的には、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 -（ジメチルアミノ）-4' -メトキシベンゾフェノン、 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、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

エニルエタン-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、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、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、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、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、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、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-プロパノン等の α -アミノアルキルフェノン系化合物；ビス（2,4,6-トリメチルベンゾイル）-フェニルフォスフィンオキサイド等のアシルフォスフィンオキサイド系化合物；並びにオリゴ（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。

[0044] 特に、光硬化性樹脂組成物を実質的に着色させない光重合開始剤としては、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、1-[4-（2-ヒドロキシアセトキシ）-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系化合物；ビス（2，4，6-トリメチルベンゾイル）-フェニルフォ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-ペンチルフォスフィンオキサイド、2，4，6-トリメチルベンゾイル-ジフェニルフォスフィンオキサイド等のアシルフォスフィンオキサイド系化合物；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）及びこれらの組み合わせが挙げられる。

[0045] 光重合開始剤の含有量は、光硬化性樹脂組成物の全量に対して、0.1～5質量%、0.2～3質量%、又は0.3～2質量%であってもよい。光重合開始剤の含有量が0.1質量%以上であると、光重合を良好に開始することができる。光重合開始剤の含有量が5質量%以下であると、段差埋め込み性及び自己組織化性に優れ易く、また、得られた硬化物の色相が黄味を帯びることが抑制され易い。

[0046] （その他の添加剤）

本実施形態の光硬化性樹脂組成物は、必要に応じて上記の（A）～（D）成分とは別に、各種添加剤を含有していてもよい。含有可能な各種添加剤としては、重合禁止剤、酸化防止剤、光安定化剤、シランカップリング剤、界面活性剤、レベリング剤、無機充填剤等が挙げられる。

[0047] 重合禁止剤は、光硬化性樹脂組成物の保存安定性を高める目的で添加される。その例として、パラメトキシフェノールが挙げられる。

酸化防止剤は、光硬化性樹脂組成物を光により硬化させて得られた硬化物の耐熱着色性を高める目的で添加される。その例としてリフェニルホスファイト等のリン系；フェノール系；チオール系の酸化防止剤が挙げられる。

光安定化剤は、紫外線等の活性エネルギー線に対する耐性を高める目的で添加される。その例としてHALS（Hindered Amine Light Stabilizer）が挙げられる。

シランカップリング剤は、ガラス等への密着性を高めるために添加される。その例としてメチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、フ

エニルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルメチルジイソプロペノキシシランが挙げられる。

界面活性剤は、剥離性を制御するために添加される。その例として、ポリジメチルシロキサン系化合物、フッ素系化合物が挙げられる。

レベリング剤は、光硬化性樹脂組成物の平坦性を付与するために添加される。その例として、シリコン系、フッ素系の表面張力を下げる化合物が挙げられる。

[0048] これらの添加剤は、単独で用いてもよく、複数の添加剤を組み合わせ用いてもよい。これらの添加剤を用いる場合の含有量は、通常、上記(A)～(D)成分の合計の含有量と比較すると小さく、一般に光硬化性樹脂組成物の全量に対して0.01～5質量%程度である。

[0049] 本実施形態の光硬化性樹脂組成物は、無機充填剤を含有していてもよい。無機充填剤としては、例えば、破碎シリカ、溶融シリカ、マイカ、粘土鉱物、ガラス短繊維又は微粉末及び中空ガラス、炭酸カルシウム、石英粉末、及び金属水和物が挙げられる。無機充填剤の含有量は、固形分全量（溶剤以外の成分）基準で、光硬化性樹脂組成物100質量部に対し、0.01～100質量部、0.05～50質量部、又は0.1～30質量部であってもよい。無機充填剤の含有量が0.01～100質量部であれば、低収縮性、機械強度の向上、低熱膨張率等の点で特に優れた樹脂組成物が得られる。カップリング剤等の市販の表面処理剤と、三本ロール、ビーズミル、ナノマイザー等の分散機とを用いた処理を行って無機充填剤の分散性を改善してよい。

[0050] 粘着層又は光硬化性樹脂層が硬化して形成される中間膜の貯蔵弾性率は、測定温度25℃、周波数1000Hzにおいて、100,000Pa～100,000,000Paであってもよい。ここで、貯蔵弾性率は、動的粘弾性測定法によるマスターカーブを用いて測定される。

[0051] 粘着層又は光硬化性樹脂層が硬化して形成される中間膜に関して、測定温度25℃、周波数100Hz以上において測定される損失係数 ($\tan \delta$) のピーク (最大値) が、0.5以上であってもよい。特に測定温度25℃、周波数100Hz~100,000Hzの範囲で損失係数の最大値が0.5以上であってもよい。測定温度25℃、周波数100Hz以上において測定される損失係数が0.5以上であると、中間膜が衝撃エネルギーを散逸し、合わせガラスの防割性がさらに向上する。ここで、損失係数は、動的粘弾性測定法によるマスターカーブを用いて測定される。周波数100~100,000Hzの条件は、実施例において後述される耐衝撃性試験において、数十センチメートルから1メートル数十センチメートルの高さから鋼球又は鉄球を自由落下させ、合わせガラスに衝突したときの歪速度に対応する。

[0052] 本明細書で言及される動的粘弾性測定は、動的粘弾性測定機 (T A i n s t r u m e n t 社製、R S A - G 2) を用いて行われる。測定条件及び解析方法は以下のとおりである。

- ・測定モード：引張
- ・温度：-70℃~100℃
- ・周波数：0.05, 0.5, 5, 50 (s⁻¹)
- ・ひずみ量：1%
- ・解析方法：測定結果からWLF法又はアレニウス則よりマスターカーブを算出する。

[0053] 合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物の製造方法

本実施形態の合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物の製造方法は、特に制限はされず、上記(A)成分、(B)成分、(D)成分、並びに必要により(C)成分及び上記添加剤等を混合し攪拌することにより製造することができる。各成分のいずれかが固体である場合、混合攪拌前、混合攪拌中、及び、混合攪拌後の少なくとも1つの時点で固体成分を加温して溶解させてもよい。これにより、各成分が良好に分散し得る。その後、冷却することにより、合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物が得られる。この加温温

度には特に制限は無いが、粘度が高い成分を攪拌する場合には高温が適する。ただし、揮発しやすい成分の揮発温度以下が好ましい。その観点で、各成分の混合物を加温する場合、その温度は40～130℃であることが好ましい。この温度が40℃以上であると、成分の粘度が高い場合でも十分に攪拌しやすい。温度が130℃以下であると、成分の揮発が抑えられ、樹脂組成物への着色も抑えられる。攪拌時間には特に制限は無いが、好ましくは10～60分であり、より好ましくは20～40分である。

[0054] 合わせガラスの中間膜用フィルム材及びその製造方法

図1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模式断面図である。図1に示す合わせガラスの中間膜用フィルム材2は、上記実施形態に係る光硬化性樹脂組成物を含む粘着層5aと、粘着層5aを間に挟むように積層された一对の基材層21、22とを備える。基材層21が軽剥離セパレータ（セパレートフィルム、又はカバーフィルム）で、基材層22が重剥離セパレータ（セパレートフィルム）であってもよい。重剥離セパレータ及び軽剥離セパレータは、ポリエチレンテレフタレートフィルム等の重合体フィルムであってもよい。軽剥離セパレータは、重剥離セパレータと同素材のカバーフィルムであってもよい。合わせガラスの中間膜用フィルム材は、各種合わせガラスに適用することができる。

[0055] 粘着層5aと、基材層21、22との剥離性を制御するために、合わせガラス中間膜用の光硬化性樹脂組成物（粘着性樹脂組成物）が、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してもよい。

[0056] 粘着層の厚さは、10 μ m～5.0 \times 10³ μ mであってもよい。粘着層5a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、90%以上、又は95%以上であってもよい。

[0057] 粘着層5aは、本実施形態に係る合わせガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物をシート状又はフィルム状に加工することによって形成された層である。光硬化性樹脂組成物をシート状又はフィルム状に加工する方法としては、特

に制限はなく、公知の技術を使用することができる。例えば、本実施形態に係る光硬化性樹脂組成物を、 γ -ブタノン、シクロヘキサノン等のケトン系溶剤で希釈して塗液を調製し、この塗液を、重合体フィルム等の基材上にフローコート法、ロールコート法、グラビアロール法、ワイヤバー法、リップダイコート法等により塗布し、塗膜から溶剤を除去（乾燥）することにより、光硬化性樹脂組成物を任意の膜厚を有するシート状又はフィルム状に加工することができる。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、各成分を配合前に予め溶剤で希釈しておいてもよい。

[0058] 塗工性の観点からは、上記塗液の固形分濃度（溶剤以外の成分の濃度）は、塗液の質量を基準として、30質量%以上であることが好ましく、40質量%以上であることがより好ましい。同様の観点から、上記塗液の固形分濃度は、70質量%以下であることが好ましく、60質量%以下であることがより好ましい。塗工性の観点から、上記塗液の粘度は、塗布温度で1 Pa \cdot s以上であることが好ましく、5 Pa \cdot s以上であることが好ましい。同様の観点から、上記塗液の粘度は、30 Pa \cdot s以下であることが好ましく、25 Pa \cdot s以下であることがより好ましく、15 Pa \cdot s以下であることが更に好ましい。

[0059] 重剥離セパレータ（基材層22）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、及びポリエステル等の重合体フィルムであってもよく、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）であってもよい。重剥離セパレータ（基材層22）の厚さは、作業性の観点から、50~200 μ m、60~150 μ m、又は70~130 μ mであってもよい。重剥離セパレータ（基材層22）の平面形状が粘着層5aの平面形状よりも大きく、重剥離セパレータ（基材層22）の外縁が粘着層5aの外縁よりも外側に張り出してもよい。重剥離セパレータ（基材層22）の外縁が粘着層5a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、2~20 mm、又は4~10 mmであってもよい。粘着層5a及び重剥離セパレ

一タ（基材層22）の平面形状が略長方形等の略矩形状である場合、基材層22（重剥離セパレータ）の外縁が粘着層5a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、少なくとも1つの辺において4～10mm、全ての辺において2～20mm、又は全ての辺において4～10mmであってもよい。

[0060] 軽剥離セパレータ（基材層21）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、ポリエステル等の重合体フィルムであってもよく、ポリエチレンテレフタレートフィルムであってもよい。軽剥離セパレータ（基材層21）の厚さは、作業性の観点から、25～150 μ m、30～100 μ m、又は40～75 μ mであってもよい。軽剥離セパレータ（基材層21）の平面形状が粘着層5aの平面形状よりも大きく、軽剥離セパレータ（基材層21）の外縁が粘着層5aの外縁よりも外側に張り出しているてもよい。軽剥離セパレータ（基材層21）の外縁が粘着層5a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、又は4～10mmであってもよい。粘着層5a及び軽剥離セパレータ（基材層21）の平面形状が略長方形等の略矩形状である場合、軽剥離セパレータ（基材層21）の外縁が粘着層5a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、少なくとも1つの辺において4～10mm、全ての辺において2～20mm、又は、全ての辺において4～10mmであってもよい。

[0061] 軽剥離セパレータ（基材層21）と粘着層5aとの間の剥離強度は、重剥離セパレータ（基材層22）と粘着層5a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、重剥離セパレータ（基材層22）は軽剥離セパレータ（基材層21）よりも粘着層5aから剥離し難くなる。重剥離セパレータと粘着層、及び軽剥離セパレータと粘着層との剥離強度は、例えば、重剥離セパレータ、軽剥離セパレータ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、シリコン系化合物又はフッ素系化合物で離型処理することが挙げられる。

[0062] 合わせガラス

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1は、ガラス板11（例えばフロートガラス）、中間膜5（例えば硬化した粘着層）、及びガラス板12（例えばフロートガラス）を備え、これらがこの順で積層されている。言い換えると、合わせガラス1は、対向する2枚のガラス板11、12と、これらの間に挟持されている中間膜5とを備える。

[0063] ガラス板11、12は、無機ガラス板であってもよく、その例としてはフロートガラス、風冷強化ガラス、化学強化ガラス、及び複層ガラスが挙げられる。合わせガラスは、反射防止層、防汚層、色素層、ハードコート層等の機能を有する機能層、及び／又は透明保護板（例えば透明プラスチック板）を有していてもよい。2枚のガラス板11、12のうち一方又は両方が透明保護板（例えば透明プラスチック板）であってもよい。合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物から形成される中間膜が、これらを貼り合わせるために使用することもできる。ガラス板11、12の厚さは、特に制限されないが、例えば0.01～20mmであってもよい。合わせガラスが3枚以上のガラス板を備えていてもよい。その場合隣り合う任意の2枚のガラス板の間に、上述の実施形態に係る中間膜を設けることができる。

[0064] （反射防止層）

反射防止層は、光の反射を防止する層であり、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ってもよい。反射防止層は、既知の反射防止方法で処理された、透明なプラスチックフィルム等の透明基材であってもよい。

[0065] （防汚層）

防汚層は、表面に汚れがつきにくくするために設けられる層である。防汚層として、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。

[0066] （色素層）

色素層は、色純度を高めるために設けられる層である。色素層は、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、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と、該基材上に積層された、不要な波長の光を吸収する色素を樹脂を含む層とを有することができる。

[0067] (ハードコート層)

ハードコート層は、表面硬度を高くするために設けられる層である。ハードコート層は、例えば、ポリエチレンフィルム等の基材フィルムと、該基材フィルム上に積層された、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及び／又はエポキシ樹脂を含む層であってもよい。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。

[0068] これらの層は、粘着層5 aを挟みながら、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。

[0069] 合わせガラスの製造方法

実施形態に係る合わせガラスは、例えば下記の方法により製造することができる。まず、軽剥離セパレータ（基材層2 1）を合わせガラスの中間膜用フィルム材2から剥離して、粘着層5 aの表面を露出させる。続いて、粘着層5 aの表面を第1の被着物としてのガラス板1 1に貼り付け、ローラー等で押し付ける。続いて、重剥離セパレータ（基材層2 2）を粘着層5 aから剥離して粘着層5 aの表面（ガラス板1 1とは反対側の表面）を露出させる。露出した粘着層5 aの表面を第2の被着物としてのガラス板1 2に貼り付ける。得られた積層体を、例えばオートクレーブ処理によって加熱及び加圧する。第2の被着物としてのガラス板1 2は、例えば無機ガラス板、又は透明保護板（透明プラスチック板）であることができる。このようにして、粘着層5 a、又はこれが硬化して形成される中間膜5を介して被着物（ガラス板）同士を貼り合わせることができる。加熱及び加圧において、例えば、温度が30～150℃であり、圧力が0.3～1.5 MPaである。巻き込み

気泡をより除去できる観点から、温度が50～70℃で、圧力が0.3～0.5MPaであってもよい。加熱及び加圧の時間は、5～60分、又は10～30分であってもよい。

[0070] 上記製造方法は、積層体を加熱及び加圧する前又は後に、粘着層5aに対して、両被着物（例えば、無機ガラス板、透明保護板）のいずれか一方の側から紫外線を照射する工程を含んでもよい。これにより、粘着層5aが十分に硬化して、高温高湿条件における接着信頼性（気泡の発生低減及び剥がれの抑制）及び接着力をより向上できる。

[0071] 紫外線の照射量は、特に制限がないが、500～5000mJ/cm²程度であってもよい。紫外線を照射する工程は、高温高湿条件における接着信頼性を向上する観点から、積層体の加熱及び加圧の後に行ってもよい。

[0072] このようにして得られた構造体（合わせガラス）において、被着物として無機ガラス板（ソーダライムガラス）又はアクリル樹脂基板を採用した場合、中間膜とこれらガラス板との間の剥離強度は、5N/10mm以上、8N/10mm以上、又は10N/10mm以上であってもよく、30N/10mm以下であってもよい。ここでの剥離強度は、引張試験機（株式会社オリエンテック製、商品名「テンシロン RTC-1210」）を用いて、180度ピール試験（剥離速度300mm/分で3秒間、測定温度25℃）によって測定することができる。

[0073] 合わせガラスの中間膜用フィルム材を用いる上記の方法に代えて、上述のガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物を適用して、以下の3つの方法によって合わせガラスを製造することもできる。

[0074] 1つ目の製造方法は、光硬化性樹脂組成物を、一方のガラス板に塗布した後、そこに、塗膜がガラス板とガラス板の間に位置するようにもう一方のガラス板を積層し、一方のガラス板側から紫外線等の活性エネルギー線を照射し、塗膜を光硬化して合わせガラスを得る方法である。2つ目の製造方法は、光硬化性樹脂組成物を一方のガラス板に塗布した後、紫外線等の活性エネルギー線を照射することで仮硬化を経ずに塗膜を光硬化して光透過性の硬化

樹脂層を形成し、そこに、硬化性樹脂層がガラス板とガラス板の間に位置するようにもう一方のガラス板を積層し、合わせガラスを得る方法である。3つ目の製造方法は、光硬化性樹脂組成物を一方のガラス板に塗布した後、塗膜に紫外線等の活性エネルギー線を照射して仮硬化樹脂層を形成し、そこに、仮硬化樹脂層がガラス板とガラス板の間に位置するようにもう一方のガラス板を積層し、その後、仮硬化樹脂層を更に光硬化させて光透過性の硬化樹脂層を形成する方法である。

[0075] 図3は、1つ目の製造方法の一実施形態を示す工程図である。図3に示す方法は、

(A) 合わせガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物（液状の光硬化性樹脂組成物）を、一方のガラス板11の表面に塗布して、光硬化性樹脂層5a（粘着層であってもよい）を形成する工程（図3の（a）参照）；

(B) 一方のガラス板11を、もう一方のガラス板12に、光硬化性樹脂層5aが内側となるように貼り合わせる工程（図3の（b）参照）；及び

(C) 2枚のガラス板11, 12の間に挟持されている光硬化性樹脂層5aに対し紫外線を照射して硬化させることにより（図3の（c）参照）、図2に示される、硬化した光硬化性樹脂層（光透過性の硬化樹脂層）である中間膜5を介して2枚のガラス板11, 12が積層されている合わせガラス1を得る工程を含む。

[0076] 図4は、2つ目の製造方法の一実施形態を示す工程図である。図4に示す方法は、以下の工程：

(a) 合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物（液状の光硬化性樹脂組成物）を、一方のガラス板11の表面に塗布して、光硬化性樹脂層5a（粘着層であってもよい）を形成する工程（図4の（a）参照）；

(b) 光硬化性樹脂層に対し紫外線を照射して硬化させる工程（図4の（b）参照）；及び

(c) 一方のガラス板11を、もう一方のガラス板12に、光硬化性樹脂層5aが内側となるように貼り合わせて、図2に示される、硬化した光硬化性

樹脂層（光透過性の硬化樹脂層）である中間膜5を介して2枚のガラス板11, 12が積層されている合わせガラス1を得る工程を含む。

[0077] 図5は、3つ目の製造方法の一実施形態を示す工程図である。図5に示す方法は、以下の工程：

(a') 合わせガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物（液状の光硬化性樹脂組成物）を、一方のガラス板11の表面に塗布して、光硬化性樹脂層5a（粘着層であってもよい）を形成する工程（図5の（a）参照）；

(b') 光硬化性樹脂層5aに対し紫外線を照射して仮硬化させる工程（図5の（b）参照）；

(c') 一方のガラス板11に、もう一方のガラス板12を、仮硬化した光硬化性樹脂層5aが内側となるように貼り合わせる工程（図3の（c）参照）；及び

(d') 2枚のガラス板11, 12の間に挟持されている仮硬化した光硬化性樹脂層5aに対し紫外線を照射して本硬化させることにより（図3の（d）参照）、図2に示される、硬化した光硬化性樹脂層（光透過性の硬化樹脂層）である中間膜5を介して2枚のガラス板11, 12が積層されている合わせガラス1を得る工程を含む。ここで、「仮硬化」は、光硬化性樹脂組成物を、完全に硬化しない程度に硬化することを意味する。仮硬化された光硬化性樹脂層は、紫外線照射によってさらに硬化する状態にある。「本硬化」は、仮硬化した光硬化性樹脂組成物を、（メタ）アクリルモノマーの重合反応が実質的に完了するまで更に硬化することを意味する。

実施例

[0078] 以下、実施例を示して、本発明をより具体的に説明する。本発明はこれらの実施例に制限されるものではない。

[0079] (A) 成分：（メタ）アクリル重合体

（メタ）アクリル重合体（A-1）の合成

冷却管、温度計、攪拌装置、滴下漏斗及び窒素導入管を取り付けた反応容器に初期モノマーとして、イソステアリルアクリレート（大阪有機化学工業

株式会社製、商品名「I S T A」) 96.0gと2-ヒドロキシエチルアクリレート(大阪有機化学工業株式会社製、商品名「H E A」) 24.0gとメチルエチルケトン150.0gとを加え、100ml/minの風量で窒素置換しながら、反応容器中の反応液を15分間で25℃から80℃まで加熱した。その後、温度を80℃に維持しながら、追加モノマーとしてのイソステアリルアクリレート24.0gと2-ヒドロキシエチルアクリレート6.0gとを、t-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート5.0gに溶解した溶液を120分間かけて滴下した。滴下終了後、更に2時間反応を進行させた。続いて、メチルエチルケトンを留去することによりイソステアリルアクリレートと2-ヒドロキシエチルアクリレートの共重合体である(メタ)アクリル重合体(A-1)(重量平均分子量30,000)を得た。

[0080] (メタ)アクリル重合体(A-2)の合成

冷却管、温度計、攪拌装置、滴下漏斗及び窒素導入管を取り付けた反応容器に初期モノマーとして、2-エチルヘキシルアクリレート(和光純薬工業株式会社製、商品名「E H A」) 96.0gと2-ヒドロキシエチルアクリレート(大阪有機化学工業株式会社製、商品名「H E A」) 24.0gとメチルエチルケトン150.0gとを加え、100ml/minの風量で窒素置換しながら、反応容器中の反応液を15分間で25℃から80℃まで加熱した。その後、温度を80℃に維持しながら、追加モノマーとしての2-エチルヘキシルアクリレート24.0gと2-ヒドロキシエチルアクリレート6.0gとを、t-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート5.0gに溶解した溶液を120分間かけて滴下した。滴下終了後、更に2時間反応を進行させた。続いて、メチルエチルケトンを留去することにより2-エチルヘキシルアクリレートと2-ヒドロキシエチルアクリレートの共重合体である(メタ)アクリル重合体(A-2)(重量平均分子量28,000)を得た。

[0081] (B)成分:(メタ)アクリルモノマー

・I S T A(イソステアリルアクリレート、大阪有機化学工業株式会社製、

商品名「I S T A」)

・ 4 H B A (4-ヒドロキシブチルアクリレート、大阪有機化学工業株式会社製、商品名「4-H B A」)

・ E H A (2-エチルヘキシルアクリレート、和光純薬工業株式会社製、商品名「E H A」)

・ F A - 5 1 2 A S (ジシクロペンテニルオキシエチルアクリレート、日立化成株式会社製、商品名「F A - 5 1 2 A S」)

・ F A - 1 2 9 A S (ノナンジオールジアクリレート、日立化成株式会社製、商品名「F A - 1 2 9 A S」)

[0082] (C) 成分：可塑剤成分

・ P 8 5 (水添テルペン樹脂、ヤスハラケミカル株式会社製)

・ ダイマロン (テルペン樹脂、ヤスハラケミカル株式会社製)

[0083] (D) 成分：光重合開始剤

・ I - 1 8 4 (1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、B A S F ジャパン株式会社製、商品名「I r g a c u r e - 1 8 4」)

[0084] 重量平均分子量の測定

重量平均分子量は、テトラヒドロフラン (T H F) を溶媒としたゲルパーミアクションクロマトグラフィー (G P C) によって測定された。G P C の装置及び測定条件は下記のとおりである。重量平均分子量は、標準ポリスチレンの検量線を使用して換算することによって決定した値である。検量線の作成にあたっては、標準ポリスチレンとして5サンプルセット (P S t Q u i c k M P - H, P S t Q u i c k B [東ソー株式会社製、商品名]) を用いた。

装置：高速G P C装置 H L C - 8 3 2 0 G P C (検出器：示差屈折計)
(東ソー株式会社製、商品名)

使用溶媒：テトラヒドロフラン (T H F)

カラム：カラムT S K G E L S u p e r M u l t i p o r e H Z - H
(東ソー株式会社製、商品名)

カラムサイズ：カラム長が15 cm、カラム内径が4.6 mm

測定温度：40℃

流量：0.35 mL/分

試料濃度：10 mg/THF 5 mL

注入量：20 μL

[0085] 1. フィルム材を用いた合わせガラスの作製とその評価

(実施例1-1)

[合わせガラスの中間膜用フィルム材（カバーフィルム付合わせガラス用中間膜）の作製]

重剥離セパレータとして厚さ75 μmのポリエチレンテレフタレート（藤森工業株式会社製）、及び軽剥離セパレータとして厚さ75 μmのポリエチレンテレフタレート（藤森工業株式会社製）を用いて、以下の（I）、（II）の手順で合わせガラスの中間膜用フィルム材を作製した。

[0086] （I）：上記で合成した（メタ）アクリル重合体（A-1）60質量部、（B）成分の（メタ）アクリルモノマーとしてイソステアリルアクリレート（ISTA）30.9質量部、4-ヒドロキシブチルアクリレート（4HBA）9質量部、（C）成分の光重合開始剤として1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン（I-184、BASFジャパン株式会社製、商品名「Irgacure-184」）0.1質量部を秤量し、これらを攪拌しながら混合することによって、25℃で液状の合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物を得た。

[0087] （II）：（I）で得られた合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物を重剥離セパレータ上に塗布して塗膜（粘着層）を形成した。粘着層上に軽剥離セパレータを積層して、重剥離セパレータと軽剥離セパレータとで挟まれた粘着層を有する合わせガラスの中間膜用フィルム材を得た。紫外線照射装置（アイグラフィックス株式会社製）を用いて紫外線を照射（ $1.0 \times 10^3 \text{ mJ/cm}^2$ ）することによって、硬化した粘着層を有する積層体（合わせガラスの中間膜用フィルム材）を得た。粘着層の厚さが $3.8 \times 10^2 \mu\text{m}$

となるように調整して光硬化性樹脂組成物を塗布した。

[0088] [合わせガラスの作製]

次に、軽剥離セパレータを合わせガラスの中間膜用フィルム材から剥離して、中間膜形成用の粘着層の表面を露出させた。露出した粘着層の表面に縦110mm、横110mm、厚み2.7mmのフロートガラスを貼り付け、ローラーで押し付けた。続いて、重剥離セパレータを粘着層から剥離して粘着層の反対側の表面を露出させた。露出した粘着層の表面に、真空積層機を用い、真空状態で縦110mm、横110mm、厚み2.7mmのフロートガラスを貼り付け、2枚のフロートガラスと、これらの間に挟持されている粘着層とを有する積層体を得た。この積層体を、温度50℃、圧力0.5MPaで30分保持する条件のオートクレーブ処理によって加熱及び加圧し、合わせガラスを得た。

[0089] (実施例1-2)

[合わせガラスの中間膜用フィルム材（カバーフィルム付合わせガラス用中間膜）の作製]

重剥離セパレータとして厚さ75 μ mのポリエチレンテレフタレート（藤森工業株式会社製）、及び軽剥離セパレータとして厚さ75 μ mのポリエチレンテレフタレート（藤森工業株式会社製）を用いて、以下の（I）、（II）の手順で合わせガラスの中間膜用フィルム材を作製した。

[0090] （I）：（メタ）アクリル重合体（A-2）60質量部、イソステアリルアクリレート（ISTA）30.9質量部、4-ヒドロキシブチルアクリレート（4HBA）9質量部、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン（I-184 BASFジャパン株式会社製、商品名「Irgacure-184」）0.1質量部を秤量し、これらを攪拌しながら混合することによって、25℃で液状の合わせガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物を得た。

[0091] （II）：（I）で得られた合わせガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物を重剥離セパレータ上に塗布して塗膜（粘着層）を形成した。粘着層上に軽剥離セパレータを積層して、重剥離セパレータと軽剥離セパレータとで挟まれ

た粘着層を有する合わせガラスの中間膜用フィルム材を得た。紫外線照射装置（アイグラフィックス株式会社製）を用いて紫外線を照射（ $1.0 \times 10^3 \text{ mJ/cm}^2$ ）することによって、硬化した粘着層を有する積層体（合わせガラスの中間膜用フィルム材）を得た。粘着層の厚さが $3.8 \times 10^2 \mu\text{m}$ となるように調整して光硬化性樹脂組成物を塗布した。

[0092] [合わせガラスの作製]

次に、軽剥離セパレータを合わせガラスの中間膜用フィルム材から剥離して、中間膜形成用の粘着層の表面を露出させた。露出した粘着層の表面を縦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。続いて、重剥離セパレータを粘着層から剥離して粘着層の反対側の表面を露出させた。露出した粘着層の表面を、真空積層機を用い、真空状態で縦110mm、横110mm、厚み2.7mmのフロートガラスに貼り付け、2枚のフロートガラスと、これらの間に挟持されている粘着層とを有する積層体を得た。この積層体を、温度50℃、圧力0.5MPaで30分保持する条件のオートクレーブ処理によって加熱及び加圧し、合わせガラスを得た。

[0093] (実施例1-3)

[合わせガラスの中間膜用フィルム材（カバーフィルム付合わせガラス用中間膜）の作製]

重剥離セパレータとして厚さ75 μm のポリエチレンテレフタレート（藤森工業株式会社製）、及び軽剥離セパレータとして厚さ75 μm のポリエチレンテレフタレート（藤森工業株式会社製）を用いて、以下の（I）、（II）の手順で合わせガラスの中間膜用フィルム材を作製した。

[0094] (I) : (メタ)アクリル重合体(A-1)60質量部、イソステアリルアクリレート(ISTA)30.9質量部、4-ヒドロキシブチルアクリレート(4HBA)9質量部、及び1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン(1-184BASFジャパン株式会社製、商品名「Irgacure-184」)0.1質量部を秤量し、これらを攪拌しながら混合することに

よって、25℃で液状の合わせガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物を得た。

[0095] (11) : (1) で得られた合わせガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物を重剥離セパレータ上に塗布して塗膜（粘着層）を形成した。粘着層上に軽剥離セパレータを積層して、重剥離セパレータと軽剥離セパレータとで挟まれた粘着層を有する合わせガラスの中間膜用フィルム材を得た。紫外線照射装置（アイグラフィックス株式会社製）を用いて紫外線を照射（ $1.0 \times 10^3 \text{ mJ} / \text{cm}^2$ ）することによって、硬化した粘着層を有する積層体（合わせガラスの中間膜用フィルム材）を得た。粘着層の厚さが $3.8 \times 10^2 \mu\text{m}$ となるように調整して光硬化性樹脂組成物を塗布した。

[0096] [合わせガラスの作製]

次に、軽剥離セパレータを合わせガラスの中間膜用フィルム材から剥離して、中間膜形成用の粘着層の表面を露出させた。露出した粘着層の表面に縦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。続いて、重剥離セパレータを粘着層から剥離して粘着層の反対側の表面を露出させた。露出した粘着層の表面に、真空積層機を用い、真空状態で縦110mm、横110mm、厚み2.7mmのフロートガラスを貼り付け、2枚のフロートガラスと、これらの間に挟持されている粘着層とを有する積層体を得た。この積層体を、温度50℃、圧力0.5MPaで30分保持する条件のオートクレーブ処理によって加熱及び加圧した。さらに積層体の一方の面側から紫外線照射装置（アイグラフィックス株式会社製）を用いて紫外線を照射（ $1.0 \times 10^3 \text{ mJ} / \text{cm}^2$ ）し、硬化した粘着層である中間膜を有する合わせガラスを得た。

[0097] (比較例1-1)

[合わせガラスの中間膜用フィルム材の作製]

重剥離セパレータとして厚さ75 μm のポリエチレンテレフタレート（藤森工業株式会社製）、及び軽剥離セパレータとして厚さ75 μm のポリエチレンテレフタレート（藤森工業株式会社製）を用いて、以下の(1)、(11)の手順で合わせガラスの中間膜用フィルム材を作製した。

- [0098] (1) : イソステアリルアクリレート (ISTA) 50.0質量部、4-ヒドロキシブチルアクリレート (4HBA) 49.9質量部、及び1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン (I-184 BASFジャパン株式会社製、商品名「Irgacure-184」) 0.1質量部を秤量し、これらを攪拌しながら混合することによって、25℃で液状の合わせガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物を得た。
- [0099] (11) : (1) で得られた合わせガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物を重剥離セパレータ上に塗布して塗膜 (粘着層) を形成した。粘着層上に軽剥離セパレータを積層して、重剥離セパレータと軽剥離セパレータとで挟まれた粘着層を有する合わせガラスの中間膜用フィルム材を得た。紫外線照射装置 (アイグラフィックス株式会社製) を用いて紫外線を照射 ($1.0 \times 10^3 \text{ mJ/cm}^2$) することによって、硬化した粘着層を有する積層体 (合わせガラスの中間膜用フィルム材) を得た。粘着層の厚さが $3.8 \times 10^2 \mu\text{m}$ となるように調整して光硬化性樹脂組成物を塗布した。
- [0100] [合わせガラスの作製]
- 次に、軽剥離セパレータを合わせガラスの中間膜用フィルム材から剥離して、中間膜形成用の粘着層の表面を露出させた。露出した粘着層の表面に縦110mm、横110mm、厚み2.7mmのフロートガラスを貼り付け、ローラーで押し付けた。続いて、重剥離セパレータを粘着層から剥離して粘着層の反対側の表面を露出させた。露出した粘着層の表面に、真空積層機を用い、真空状態で縦110mm、横110mm、厚み2.7mmのフロートガラスに貼り付け、2枚のフロートガラスと、これらの間に挟持されている粘着層とを有する積層体を得た。この積層体を、温度50℃、圧力0.5MPaで30分保持する条件のオートクレーブ処理によって加熱及び加圧し、合わせガラスを得た。

- [0101] (比較例1-2)

[合わせガラスの中間膜用フィルム材の作製]

重剥離セパレータとして厚さ75 μm のポリエチレンテレフタレート (藤

森工業株式会社製)、及び軽剥離セパレータとして厚さ75 μm のポリエチレンテレフタレート(藤森工業株式会社製)を用いて、以下の(1)、(11)の手順で合わせガラスの中間膜用フィルム材を作製した。

[0102] (1) : (メタ)アクリル重合体(A-1)99.9質量部、及び1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン(1-184、BASFジャパン株式会社製、商品名「Irgacure-184」)0.1質量部を秤量し、これらを攪拌しながら混合することによって、25 $^{\circ}\text{C}$ で液状の合わせガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物を得た。

[0103] (11) : (1)で得られた合わせガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物を重剥離セパレータ上に塗布して塗膜(粘着層)を形成した。粘着層上に軽剥離セパレータを積層して、重剥離セパレータと軽剥離セパレータとで挟まれた粘着層を有する合わせガラスの中間膜用フィルム材を得た。紫外線照射装置(アイグラフィックス株式会社製)を用いて紫外線を照射(1.0 $\times 10^3$ mJ/cm²)することによって、硬化した粘着層を有する積層体(合わせガラスの中間膜用フィルム材)を得た。粘着剤の厚さが3.8 $\times 10^2$ μm となるように調整して光硬化性樹脂組成物を塗布した。

[0104] [合わせガラスの作製]

次に、軽剥離セパレータを合わせガラスの中間膜用フィルム材から剥離して粘着層の表面を露出させた。露出した粘着層の表面に縦110mm、横110mm、厚み2.7mmのフロートガラスを貼り付け、ローラーで押し付けた。続いて、重剥離セパレータを粘着層から剥離して粘着層の反対側の表面を露出させた。露出した粘着層の表面に、真空積層機を用い、真空状態で縦110mm、横110mm、厚み2.7mmのフロートガラスを貼り付け、2枚のフロートガラスと、これらの間に挟持されている粘着層とを有する積層体を得た。この積層体を、温度50 $^{\circ}\text{C}$ 、圧力0.5MPaで30分保持する条件のオートクレーブ処理によって加熱及び加圧し、合わせガラスを得た。

[0105] (比較例1-3)

[合わせガラスの中間膜用フィルム材の作製]

重剥離セパレータとして厚さ75 μm のポリエチレンテレフタレート（藤森工業株式会社製）、及び軽剥離セパレータとして厚さ75 μm のポリエチレンテレフタレート（藤森工業株式会社製）を用いて、以下の（I）、（II）の手順で合わせガラスの中間膜用フィルム材を作製した。

[0106] （I）：イソステアリルアクリレート（ISTA）50.0質量部、ジシクロペンテニルオキシエチルアクリレート（FA-512AS）49.9質量部、及び1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン（I-184BAS Fジャパン株式会社製、商品名「Irgacure-184」）0.1質量部を秤量し、これらを攪拌しながら混合することによって、25 $^{\circ}\text{C}$ で液状の合わせガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物を得た。

[0107] （II）：（I）で得られた合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物を重剥離セパレータ上に塗布して塗膜（粘着層）を形成した。粘着層上に軽剥離セパレータを積層して、重剥離セパレータと軽剥離セパレータとで挟まれた粘着層を有する合わせガラスの中間膜用フィルム材を得た。紫外線照射装置（アイグラフィックス株式会社製）を用いて紫外線を照射（ $1.0 \times 10^3 \text{ mJ} / \text{cm}^2$ ）することによって、硬化した粘着層を有する積層体（合わせガラスの中間膜用フィルム材）を得た。粘着層の厚さが $3.8 \times 10^2 \mu\text{m}$ となるように調整して光硬化性樹脂組成物を塗布した。

[0108] [合わせガラスの作製]

次に、軽剥離セパレータを合わせガラスの中間膜用フィルム材から剥離して、中間膜形成用の粘着層の表面を露出させた。露出した粘着層の表面に縦110mm、横110mm、厚み2.7mmのフロートガラスを貼り付け、ローラーで押し付けた。続いて、重剥離セパレータを粘着層から剥離して粘着層の反対側の表面を露出させた。露出した粘着層の表面に、真空積層機を用い、真空状態で縦110mm、横110mm、厚み2.7mmのフロートガラスを貼り付け、2枚のフロートガラスと、これらの間に挟持されている粘着層とを有する積層体を得たこの積層体を、温度50 $^{\circ}\text{C}$ 、圧力0.5MP

aで30分保持する条件のオートクレーブ処理によって加熱及び加圧し、合わせガラスを得た。

[0109] (比較例1-4)

[合わせガラスの中間膜用フィルム材の作製]

重剥離セパレータとして厚さ75 μm のポリエチレンテレフタレート(藤森工業株式会社製)、及び軽剥離セパレータとして厚さ75 μm のポリエチレンテレフタレート(藤森工業株式会社製)を用いて、以下の(1)、(11)の手順で合わせガラスの中間膜用フィルム材を作製した。

[0110] (1) : イソステアリルアクリレート(ISTA)50.0質量部、4-ヒドロキシブチルアクリレート(4HBA)46.1質量部、ノンジオールジアクリレート(FA-129AS)3質量部、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン(1-184)0.1質量部を秤量し、これらを攪拌混合することによって、25 $^{\circ}\text{C}$ で液状の合わせガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物を得た。

[0111] (11) : (1)で得られた合わせガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物を重剥離セパレータ上に塗布して塗膜を形成した後、上記塗膜上に軽剥離セパレータを積層し、紫外線照射装置(アイグラフィックス株式会社製)を用いて紫外線を照射(1.0 $\times 10^3\text{mJ}/\text{cm}^2$)することによって、重剥離セパレータと軽剥離セパレータとで中間膜を挟んだ積層体を得た。なお、中間膜の厚さは3.8 $\times 10^2\mu\text{m}$ となるように調整して塗布した。

[0112] [合わせガラスの作製]

次に、軽剥離セパレータをカバーフィルム付合わせガラス用中間膜から剥離して中間膜の表面を露出させる。続いて、中間膜の表面を縦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る。続いて、重剥離セパレータを中間膜から剥離して中間膜の表面を露出させる。続いて、真空積層機を用いて、真空状態で中間膜の表面を縦110mm、横110mm、厚み2.7mmのフロートガラスに貼り付ける。その後、温度50 $^{\circ}\text{C}$ 、圧力0.5MPa、30分保持の条件で加熱加圧処理

(オートクレーブ処理)し、合わせガラスを得た。

[0113] (比較例 1 - 5)

(1) 合わせガラス用中間膜の製造

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 245 cm^{-1} であるポリビニルブチラール樹脂 (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ジ-2-エチルヘキサノエート (3GO) 38 質量部とを混合し、これをミキシングロールで十分に溶融混練した。混練物をプレス成形機で 150°C 、30 分間プレス成形して、厚さ $3.8 \times 10^2\ \mu\text{m}$ の樹脂膜を得、これを合わせガラス用中間膜とした。

[0114] 得られた合わせガラス用中間膜を厚さ 2.7 mm の透明な 2 枚のフロートガラスで挟み込み、これをゴムバック内に入れ、ゴムバック内を 2660 Pa の真空度で 20 分間脱気した。脱気したままゴムバックをオープンに移し、更に 90°C で 30 分間保持しつつ真空プレスした。このようにして予備圧着された合わせガラスを、オートクレーブ中で 135°C 、圧力 118 N/cm^2 の条件で 20 分間圧着して、合わせガラスを得た。

[0115] 得られた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスについて、以下の方法により評価を行った。結果を表 1 に示した。

[0116] [耐衝撃試験]

作製した縦 110 mm、横 110 mm 角の合わせガラスの周辺を支持し、その中心点から 25 mm 以内の位置に向けて、質量約 1040 g、直径 63.5 mm の鋼球を 5 cm ~ 100 cm で 5 cm 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する。6 枚の合わせガラスを試験し、その平均高さを算出した。平均高さの値が大きいほど防割性が高い。耐衝撃試験で供試体 (合わせガラス) を支持する支持枠を図 6 に示した。

[0117] 図 6 は、合わせガラスの防割性を評価するための耐衝撃性試験に使用する測定装置の一例を模式的に示す分解斜視図である。図 6 に示す測定装置は、主に、上端に合わせガラスの外周部分を載置するための鋸部 141 を有する

箱状の支持部140と、鏝部141と略同形状の固定部142と、鋼球143とから構成されている。支持部140の鏝部141及び固定部142には、互いに対応する位置に複数の貫通孔が形成されている。鏝部141上に合わせガラスを載置し、該合わせガラス上に固定部142を配設した後、貫通孔にネジ等の固定部材を螺合することで、合わせガラスがその外周部分で保持固定される。鏝部141及び固定部142の内周部分の大きさが100mm×100mmとなっている。

[0118] [表1]

		実施例			比較例				
		1-1	1-2	1-3	1-1	1-2	1-3	1-4	1-5
(A) (メタ)アクリル 重合体	A-1	60	-	60	-	99.9	-	-	-
	A-2	-	60	-	-	-	-	-	-
(B) (メタ)アクリル モノマー	ISTA	30.9	30.9	30.9	50.0	-	50.0	50.0	-
	4HBA	9	9	9	49.9	-	-	46.1	-
	FA-512AS	-	-	-	-	-	49.9	-	-
	FA-129AS	-	-	-	-	-	-	3	-
(D) 光重合開始剤	I-184	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	-
貼り合わせ後の紫外線照射		-	-	1000 mJ/cm ²	-	-	-	-	-
耐衝撃試験(防割性) 合わせガラスが割れた高さ(cm)		60	60	65	15	15	15	20	30

[0119] 実施例の合わせガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物で作製した中間膜を有する合わせガラスは、比較例1-5のポリビニルブチラール樹脂を用いた中間膜を有する合わせガラスよりも、高い耐衝撃性(防割性)を示した。比較例1-1、1-3、1-4の(メタ)アクリル重合体((A)成分)を含まない中間膜、及び、比較例1-2の(メタ)アクリルモノマー((B)成分)を含まない中間膜を有する合わせガラスでは、いずれも耐衝撃性(防割性)

)が低かった。

[0120] 2. 光硬化性樹脂組成物の塗布による合わせガラスの作製とその評価

[合わせガラスの製造方法 I]

縦110mm、横110mm、厚さ2.7mmのフロートガラスを2枚準備する。一方のフロートガラス上に光硬化性樹脂組成物を塗布して塗膜（光硬化性樹脂層）を形成する。塗膜の厚さが光硬化性樹脂組成物の本硬化後に $3.8 \times 10^2 \mu\text{m}$ となるように調整して光硬化性樹脂組成物を塗布する。光硬化性樹脂層が塗布されたフロートガラスを、もう一方のフロートガラスに、光硬化性樹脂層が内側となるように、真空積層機を用いて積層する。その後、2枚のフロートガラスの間に挟持されている光硬化性樹脂層に対し紫外線を照射してこれを本硬化して、硬化した光硬化性樹脂層である中間膜を有する合わせガラスを得る。その後、必要に応じて、温度50℃、圧力0.5MPaで30分保持する条件のオートクレーブ処理によって合わせガラスを加熱及び加圧する。

[0121] [合わせガラスの製造方法 II]

光硬化性樹脂組成物をフロートガラス（縦110mm、横110mm、厚さ2.7mm）上に塗布して塗膜（光硬化性樹脂層）を形成する。塗膜の厚さが $3.8 \times 10^2 \mu\text{m}$ となるように調整して光硬化性樹脂組成物を塗布する。光硬化性樹脂層上に軽剥離セパレータを積層し、紫外線照射装置（アイグラフィックス株式会社製）を用いて紫外線を照射（ $1.0 \times 10^3 \text{mJ}/\text{cm}^2$ ）することによって、フロートガラスと軽剥離セパレータとで挟まれた塗膜（硬化した光硬化性樹脂層）を有する積層体を得る。次に、軽剥離セパレータを塗膜から剥離して塗膜の表面を露出させる。露出した塗膜の表面に、真空積層機を用いて、真空状態で縦110mm、横110mm、厚さ2.7mmのフロートガラスを積層し、合わせガラスを得る。その後、必要に応じて、合わせガラスを、温度50℃、圧力0.5MPaで30分保持する条件のオートクレーブ処理によって加熱及び加圧する。

[0122] [合わせガラスの製造方法 III]

縦110mm、横110mm、厚さ2.7mmのフロートガラスを2枚準備する。一方のフロートガラス上に光硬化性樹脂組成物を塗布して塗膜（光硬化性樹脂層）を形成する。塗膜の厚さは本硬化後に $3.8 \times 10^2 \mu\text{m}$ となるように調整する。紫外線照射装置（アイグラフィックス株式会社製）を用いて紫外線を照射（ $3.0 \times 10^2 \text{mJ}/\text{cm}^2$ ）することによって、フロートガラス上の光硬化性樹脂層を仮硬化する。光硬化性樹脂層が塗布されたフロートガラスを、もう一方のフロートガラスに、光硬化性樹脂層が内側となるように、真空積層機を用いて積層する。その後、2枚のフロートガラスの間に挟持されている光硬化性樹脂層に対し紫外線を照射してこれを本硬化し、合わせガラスを得る。その後、必要に応じて、合わせガラスを温度 50°C 、圧力 0.5MPa で30分保持する条件のオートクレーブ処理によって加熱及び加圧する。

[0123] [合わせガラスの製造方法ⅠV]

合わせガラス用中間膜を厚さ2.7mmの透明な2枚のフロートガラスで挟み込み、これをゴムバック内に入れる。ゴムバック内を 2660Pa の真空度で20分間脱気する。脱気したままゴムバックをオープンに移し、更に 90°C で30分間保持しつつ真空プレスする。このようにして予備圧着された合わせガラスをオートクレーブ中で 135°C 、圧力 $118 \text{N}/\text{cm}^2$ の条件で20分間圧着する。

[0124] (実施例2-1)

(メタ)アクリル重合体(A-1)60質量部、イソステアリルアクリレート(ISTA、B成分)30.9質量部、4-ヒドロキシブチルアクリレート(4HBA、B成分)4質量部、水添テルペン樹脂(P85、C成分)5質量部、及び1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン(I-184、D成分)(BASFジャパン株式会社製、商品名「Irgacure-184」)0.1質量部を秤量し、これらを攪拌しながら混合することによって、 25°C で液状の合わせガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物を得た。得られた組成物を用いて、合わせガラスの製造方法Ⅰで合わせガラスを作製した

。

[0125] (実施例 2-2)

(メタ) アクリル重合体 (A-1) 60 質量部、イソステアリルアクリレート (ISTA、B 成分) 30.9 質量部、4-ヒドロキシブチルアクリレート (4HBA、B 成分) 4 質量部、テルペン樹脂 (ダイマロン、C 成分) 5 質量部、及び 1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン (I-184、D 成分) (BASF ジャパン株式会社製、商品名「Irgacure-184」) 0.1 質量部を秤量し、これらを攪拌しながら混合することによって、25℃で液状の合わせガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物を得た。得られた組成物を用いて、合わせガラスの製造方法 I で合わせガラスを作製した。

。

[0126] (実施例 2-3)

(メタ) アクリル重合体 (A-2) 60 質量部、イソステアリルアクリレート (ISTA、B 成分) 30.9 質量部、4-ヒドロキシブチルアクリレート (4HBA、B 成分) 4 質量部、水添テルペン樹脂 (P85、C 成分) 5 質量部、及び 1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン (I-184、D 成分) (BASF ジャパン株式会社製、商品名「Irgacure-184」) 0.1 質量部を秤量し、これらを攪拌しながら混合することによって、25℃で液状の合わせガラス中間膜用光硬化樹脂組成物を得た。得られた組成物を用いて、合わせガラスの製造方法 II で合わせガラスを作製した。

。

[0127] (実施例 2-4)

(メタ) アクリル重合体 (A-1) 60 質量部、イソステアリルアクリレート (ISTA、B 成分) 30.9 質量部、4-ヒドロキシブチルアクリレート (4HBA、B 成分) 4 質量部、水添テルペン樹脂 (P85、C 成分) 5 質量部、及び 1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン (I-184、D 成分) (BASF ジャパン株式会社製、商品名「Irgacure-184」) 0.1 質量部を秤量し、これらを攪拌しながら混合することによ

て、25℃で液状の合わせガラス中間膜用光硬化樹脂組成物を得た。得られた組成物を用いて、合わせガラスの製造方法ⅠⅠⅠで合わせガラスを作製した。

[0128] (実施例2-5)

(メタ)アクリル重合体(A-1)60質量部、イソステアリルアクリレート(ISTA、B成分)30.9質量部、4-ヒドロキシブチルアクリレート(4HBA、B成分)9質量部、及び1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン(1-184、D成分)(BASFジャパン株式会社製、商品名「Irgacure-184」)0.1質量部を秤量し、これらを攪拌しながら混合することによって、25℃で液状の合わせガラス中間膜用光硬化樹脂組成物を得た。得られた組成物を用いて、合わせガラスの製造方法Ⅰで合わせガラスを作製した。

[0129] (比較例2-1)

イソステアリルアクリレート(ISTA、B成分)50質量部、4-ヒドロキシブチルアクリレート(4HBA、B成分)44.9質量部、水添テルペン樹脂(P85、C成分)5質量部、及び1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン(1-184、D成分)(BASFジャパン株式会社製、商品名「Irgacure-184」)0.1質量部を秤量し、これらを攪拌しながら混合することによって、25℃で液状の合わせガラス中間膜用光硬化樹脂組成物を得た。得られた組成物を用いて、合わせガラスの製造方法Ⅰで合わせガラスを作製した。

[0130] (比較例2-2)

(メタ)アクリル重合体(A-1)90質量部、水添テルペン樹脂(P85、C成分)9.9質量部、1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン(1-184、D成分)(BASFジャパン株式会社製、商品名「Irgacure-184」)0.1質量部を秤量し、これらを攪拌しながら混合することによって、25℃で液状の合わせガラス中間膜用光硬化樹脂組成物を得た。得られた組成物を用いて、合わせガラスの製造方法Ⅰで合わせガラス

を作製した。

[0131] (比較例 2-3)

イソステアリルアクリレート (ISTA、B成分) 50質量部、ジシクロペンテニルオキシエチルアクリレート (FA-512AS、B成分) 41.9質量部、ノナンジオールジアクリレート (FA-129AS、B成分) 3質量部、水添テルペン樹脂 (P85、C成分) 5質量部、及び1-ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン (I-184、D成分) (BASFジャパン株式会社製、商品名「Irgacure-184」) 0.1質量部を秤量し、これらを攪拌しながら混合することによって、25℃で液状の合わせガラス中間膜用光硬化樹脂組成物を得た。得られた組成物を用いて、合わせガラスの製造方法Iで合わせガラスを作製した。

[0132] (比較例 2-4)

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 245 cm^{-1} であるポリビニルブチラル樹脂 (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ジ-2-エチルヘキサノエート (3GO) 38質量部とを混合し、これをミキシングロールで十分に溶融混練した。混練物をプレス成形機で150℃、30分間プレス成形して、厚さ $3.8 \times 10^2\ \mu\text{m}$ の樹脂膜を得、これを合わせガラス用中間膜とした。この中間膜を用いて、合わせガラスの製造方法IVで合わせガラスを作製した。

[0133] 得られた光硬化性樹脂組成物及び合わせガラスについて、以下の方法により評価を行った。結果を表2に示した。

[0134] <ピール強度の評価>

縦横100mmの寸法のソーダガラスに、長さ80mm、幅30mmの開口を有する厚さ $175\ \mu\text{m}$ の枠状のスペーサーを、ナスタック (ニチバン株式会社製) を用いて貼り付けた。スペーサーの枠内に光硬化性樹脂組成物を隙間なく充填した。その上から、スペーサーよりも大きい、長さ200mm、幅100mm、厚さ $125\ \mu\text{m}$ のポリエステルフィルム (東洋紡株式会

社製、商品名：コスモシャインA4300)を貼り合わせた。ポリエステルフィルムを貼り合わせた光硬化性樹脂組成物を、ハイパワーメタルハライドランプを装着した露光機を用いて、照度100mW、露光量 $3.0 \times 10^3 \text{ mJ/cm}^2$ で露光し、光硬化性樹脂組成物を硬化させて、ソーダガラス板とポリエステルフィルムとが光硬化性樹脂組成物の硬化物によって貼り合わされている試験用サンプルを得た。この試験用サンプルに、ポリエステルフィルムの上からカッターで長さ200mm、幅10mmの長さの切り込みを入れた。引張試験機(株式会社オリエンテック製、商品名：RTC-1210)を用いて、切り込みを入れた部分のポリエステルフィルムを掴み、室温25℃で、引き剥がし角度180°、引き剥がし速度60mm/分で、ポリエステルフィルムをサンプルの長さ方向に光硬化性樹脂組成物の硬化物から引き剥がした。この時の荷重を測定し、ピール強度(N/25mm)を求めた。

[0135] <耐衝撃試験>

「1. フィルム材を用いた合わせガラスの作製とその評価」における耐衝撃試験と同様の方法により、合わせガラスの耐衝撃性を評価した。

[表2]

		実施例					比較例			
		2-1	2-2	2-3	2-4	2-5	2-1	2-2	2-3	2-4
(A) (メタ)アクリル 重合体	A-1	60	60	-	60	60	-	90		-
	A-2	-	-	60	-	-	-	-	-	-
(B) (メタ)アクリル モノマー	ISTA	30.0	30.9	30.9	30.9	30.9	50	-	50	-
	4HBA	4	4	4	4	9	44.9	-	-	-
	FA-512AS	-	-	-	-	-	-	-	41.9	-
	FA-129AS	-	-	-	-	-	-	-	3	-
(C) 可塑剤成分	P85	5	-	5	5	-	5	9.9	5	-
	ダイマロン	-	5	-	-	-	-	-	-	-
(D) 光重合開始剤	I-184	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	-
合わせガラスの製造方法		I	I	II	III	I	I	I	I	IV
ピール強度(N/25mm)		14.9	13.5	10.9	11.7	8.9	4.0	4.5	5.1	測定 不可
耐衝撃試験 合わせガラスが割れた高さ (cm)		75	75	70	70	60	15	15	20	30

[0136] 実施例の合わせガラス中間膜用光硬化性樹脂組成物で作製した中間膜を有する合わせガラスは、比較例2-4のポリビニルブチラール樹脂を用いた中間膜を有する合わせガラスよりも、高い耐衝撃性（防割性）を示した。比較例2-1、2-3の（メタ）アクリル重合体（（A）成分）を含まない光硬化性樹脂組成物、又は、比較例2-2の（メタ）アクリルモノマー（（B）成分）を含まない光硬化性樹脂組成物から形成された中間膜を有する合わせガラスは、いずれも耐衝撃性（防割性）が低かった。

符号の説明

[0137] 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、5 a…粘着層（光硬化性樹脂層）、1 1, 1 2…ガラス板、2 1…基材層（軽剥離セパレータ、セパレートフィルム、カバーフィルム）、2 2…基材層（重剥離セパレータ、セパレートフィルム）、1 4 0…支持部、1 4 1…鏑部、1 4 2…固定部、1 4 3…鋼球。

請求の範囲

- [請求項1] (メタ) アクリル重合体、
(メタ) アクリルモノマー、及び
光重合開始剤
を含有する、合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物。
- [請求項2] 請求項1に記載の合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物を含む粘着層と、
前記粘着層を間に挟むように積層された一対の基材層と、
を備える、合わせガラスの中間膜用フィルム材。
- [請求項3] 対向する2枚のガラス板と、これらに挟持されている中間膜とを備える合わせガラスを製造する方法であって、
請求項2に記載の合わせガラスの中間膜用フィルム材の粘着層に紫外線を照射し硬化させる工程と、
前記粘着層を介して2枚のガラス板を貼り合わせ、前記2枚のガラス板及び前記粘着層を備える積層体を得る工程と、
前記積層体を、30～150℃及び0.3～1.5MPaの条件で加熱及び加圧して、硬化した前記粘着層である中間膜を備える合わせガラスを得る工程と、
を含む、方法。
- [請求項4] 対向する2枚のガラス板と、これらに挟持されている中間膜とを備える合わせガラスを製造する方法であって、
請求項2に記載の合わせガラスの中間膜用フィルム材の粘着層を介して2枚のガラス板を貼り合わせ、前記2枚のガラス板及び前記粘着層を備える積層体を得る工程と、
前記積層体を、30～150℃及び0.3～1.5MPaの条件で加熱及び加圧する工程と、
前記積層体に対し、前記2枚のガラス板のうち少なくともいずれか一方の側から紫外線を照射し硬化させることにより、硬化した前記粘

着層である中間膜を備える合わせガラスを得る工程と、
を含む、方法。

[請求項5] 可塑剤成分を更に含有する、請求項1に記載の合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物。

[請求項6] 対向する2枚のガラス板と、これらの間に挟持されている中間膜とを備える合わせガラスを製造する方法であって、

請求項1又は5に記載の合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物を、一方のガラス板の表面に塗布して、光硬化性樹脂層を形成する工程と、

前記一方のガラス板を、もう一方のガラス板に、前記光硬化性樹脂層が内側となるように貼り合わせる工程と、

前記2枚のガラス板の間に挟持されている前記光硬化性樹脂層に対し紫外線を照射して硬化させることにより、硬化した前記光硬化性樹脂層である中間膜を備える合わせガラスを得る工程と、
を含む、方法。

[請求項7] 対向する2枚のガラス板と、これらの間に挟持されている中間膜とを備える合わせガラスを製造する方法であって、

請求項1又は5に記載の合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成物を、一方のガラス板の表面に塗布して、光硬化性樹脂層を形成する工程と、

前記光硬化性樹脂層に対し紫外線を照射して硬化させる工程と、

前記一方のガラス板を、もう一方のガラス板に、硬化した前記光硬化性樹脂層が内側となるように貼り合わせて、硬化した前記光硬化性樹脂層である中間膜を備える合わせガラスを得る工程と、

を含む、方法。

[請求項8] 対向する2枚のガラス板と、これらの間に挟持されている中間膜とを備える合わせガラスを製造する方法であって、

請求項1又は5に記載の合わせガラスの中間膜用光硬化性樹脂組成

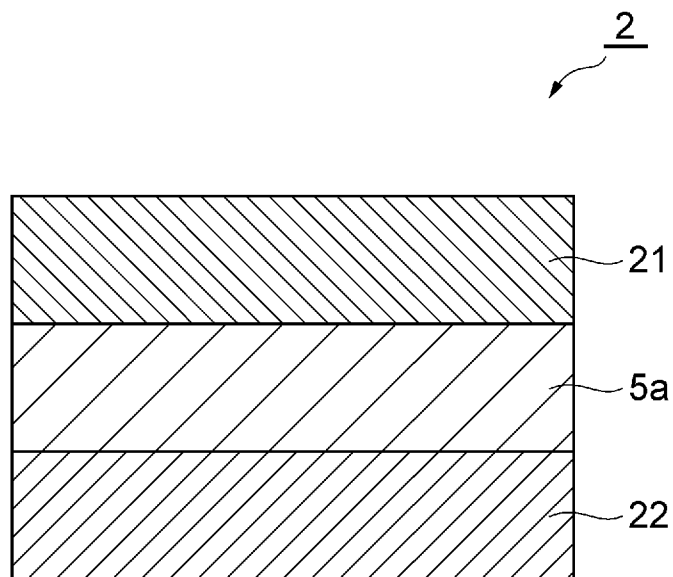
物を、一方のガラス板の表面に塗布して、光硬化性樹脂層を形成する工程と、

前記光硬化性樹脂層に対し紫外線を照射して仮硬化させる工程と、

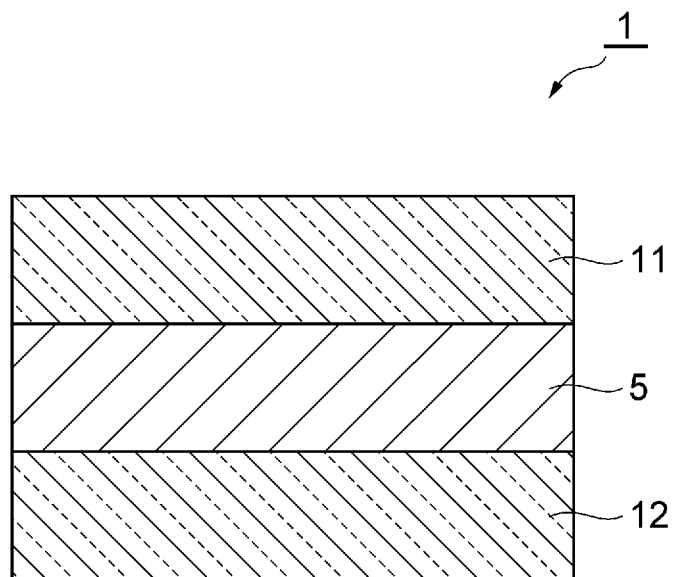
前記一方のガラス板に、もう一方のガラス板を、仮硬化した前記光硬化性樹脂層が内側となるように貼り合わせる工程と、

前記2枚のガラスの間に挟持されている仮硬化した前記光硬化性樹脂層に対し紫外線を照射して本硬化させることにより、硬化した前記光硬化性樹脂層である中間膜を備える合わせガラスを得る工程と、を含む、方法。

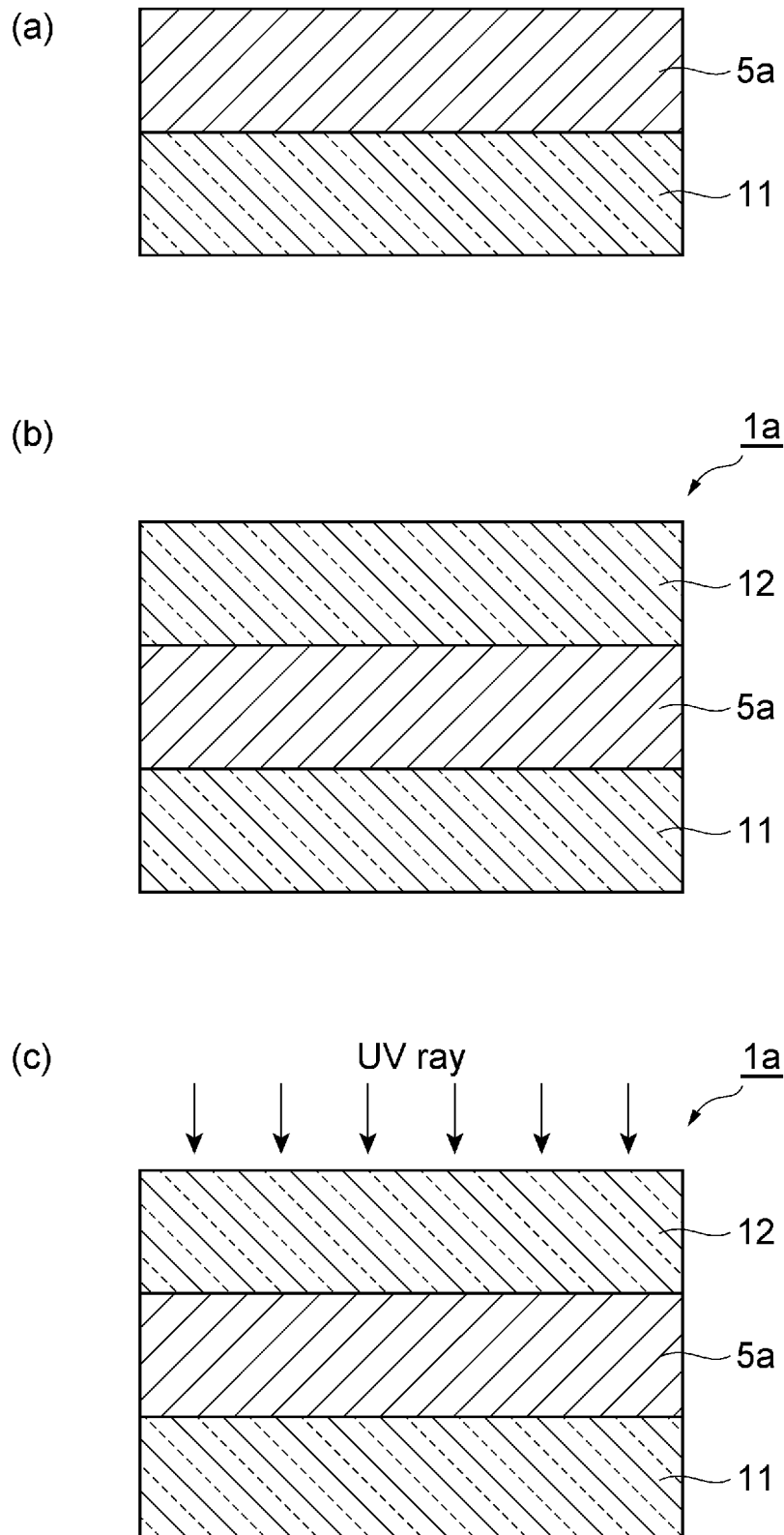
[図1]



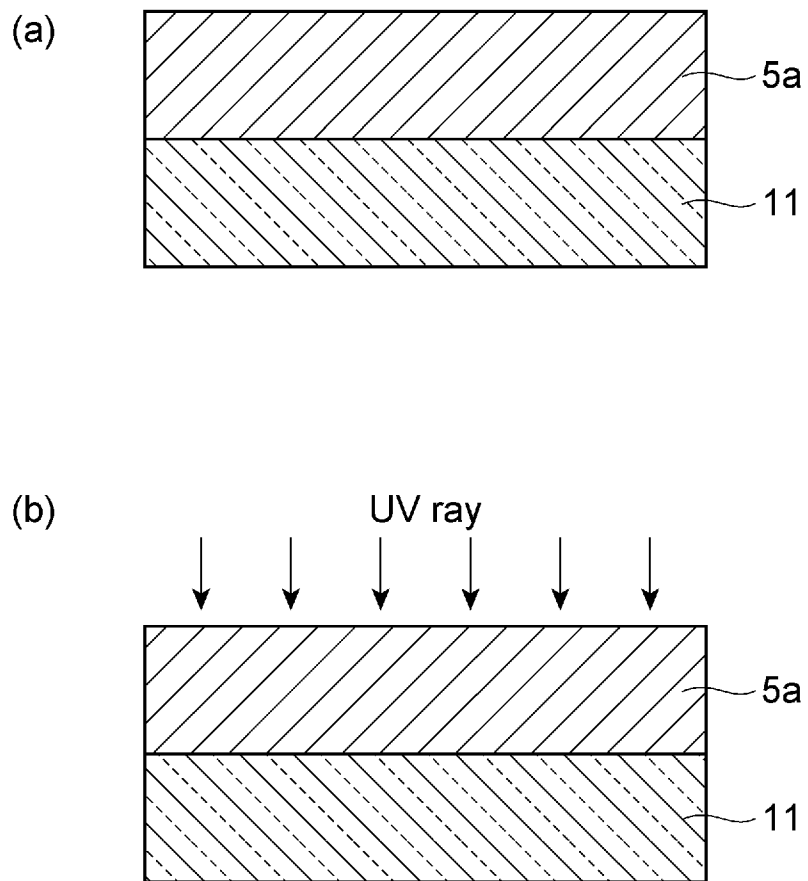
[図2]



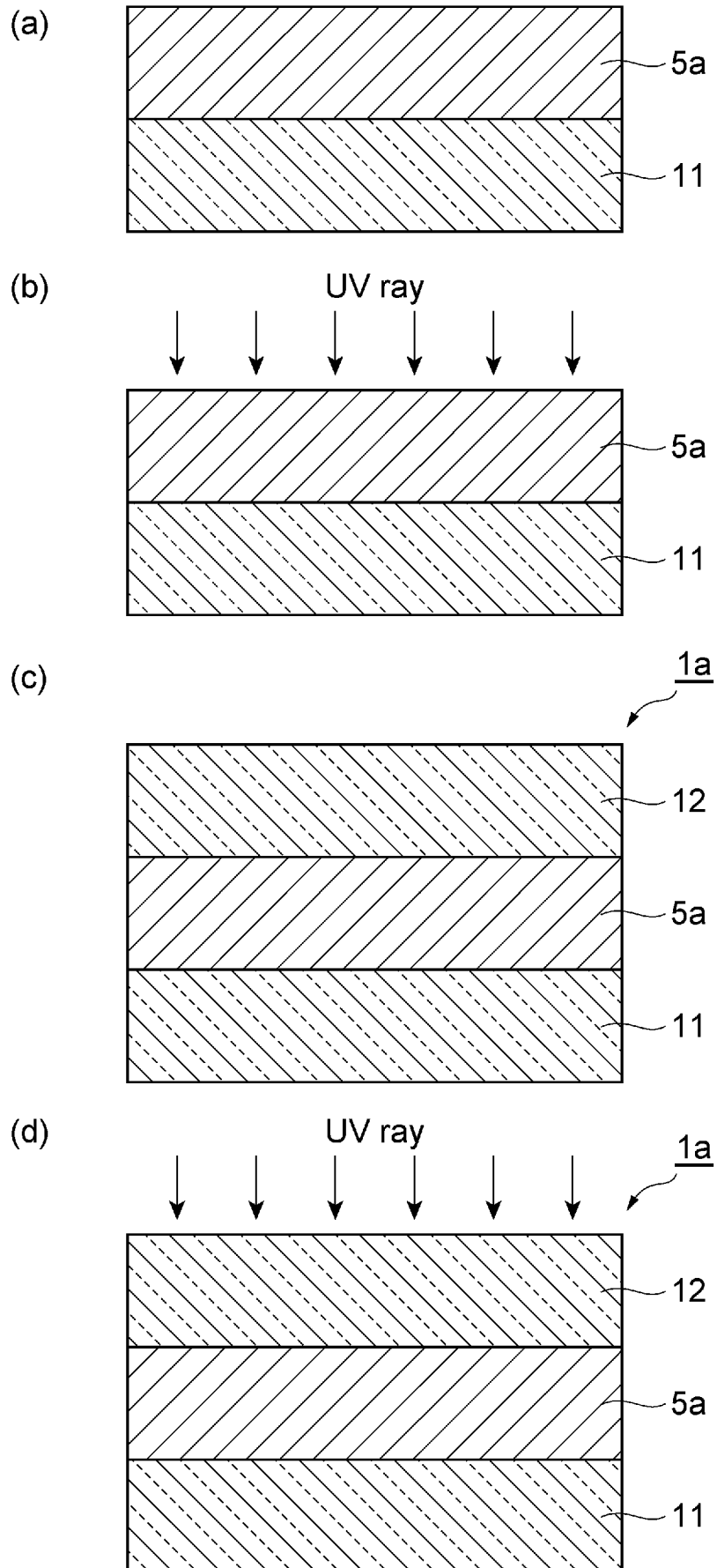
[図3]



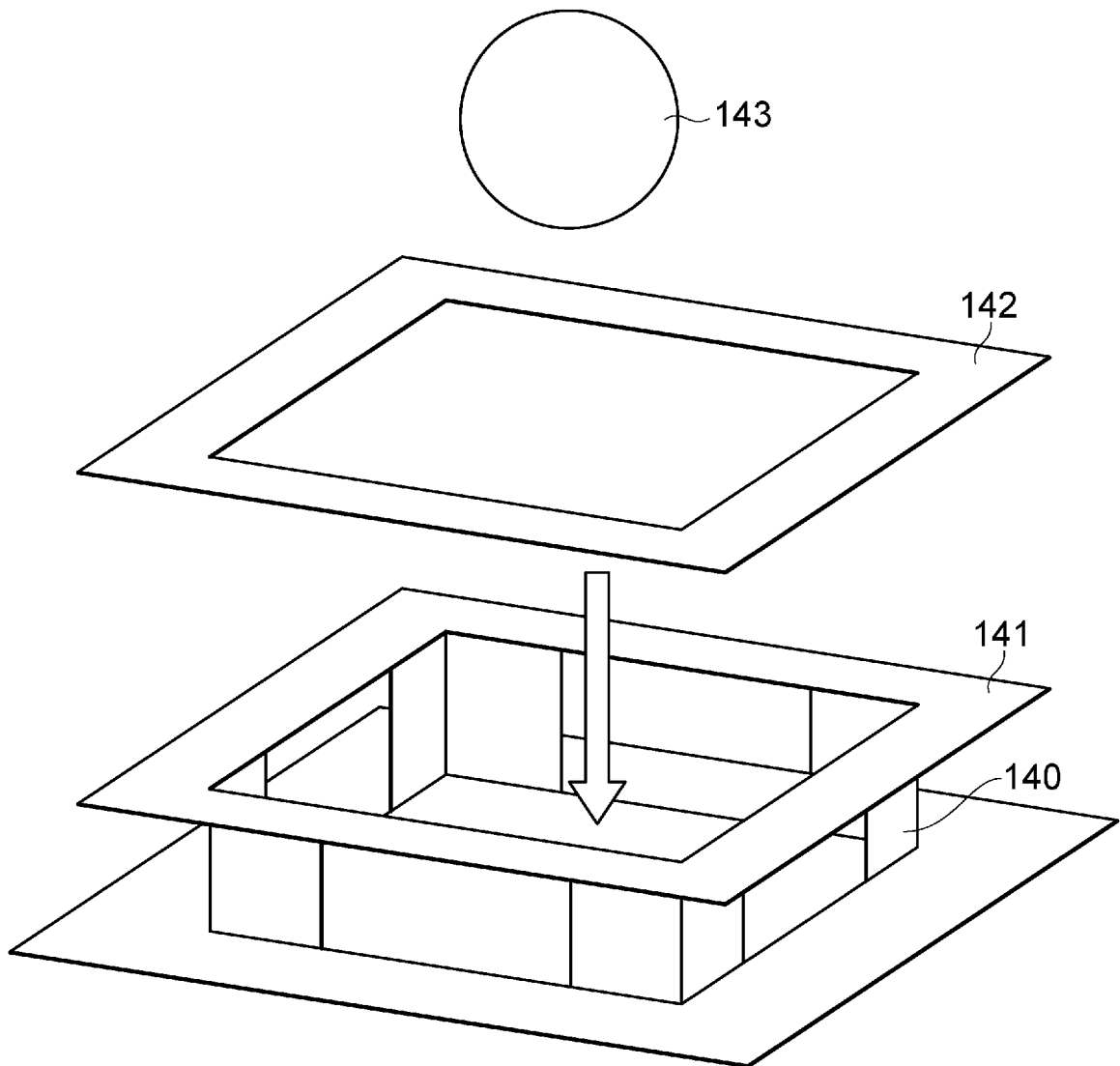
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2017/019777

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C03C27/12(2006.01)i, B32B17/10(2006.01)i, B32B27/30(2006.01)i, C08L33/00(2006.01)i, C09J4/02(2006.01)i, C09J7/00(2006.01)i

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

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C03C27/12, B32B1/00-43/00, C08L33/00, C09J4/02, C09J7/00

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 A	WO 2013/084503 A1 (Nippon Kayaku Co., Ltd.), 13 June 2013 (13.06.2013), paragraphs [0084] to [0086]; examples 1 to 6 & JP 13-84503 A1 & CN 103974826 A & KR 10-2014-0101344 A & TW 201333140 A	1-2, 4-6 3, 7-8
X A	JP 63-281101 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 17 November 1988 (17.11.1988), page 1, left column, lines 1 to 3; page 3, lower left column, lines 15 to 18; examples 4-2, 4-3, 4-4, 4-5 & US 5190992 A1 column 7, lines 1 to 4; examples A-5, A-6, A-7, A-8 & EP 291022 A2 & KR 10-1996-0016865 B1	1-2, 4-6 3, 7-8

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"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
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"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
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"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
"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)	"&" document member of the same patent family
"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	

Date of the actual completion of the international search 27 July 2017 (27.07.17)	Date of mailing of the international search report 08 August 2017 (08.08.17)
--	---

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/JP2017/019777

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 62-244628 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 26 October 1987 (26.10.1987), examples (Family: none)	1, 5-6 2-4, 7-8
A	WO 2013/011969 A1 (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 24 January 2013 (24.01.2013), claims; paragraphs [0189] to [0191] & US 2014/0150967 A1 & CN 103687725 A & KR 10-2014-0035494 A & TW 201307507 A	1-8
A	JP 2002-348150 A (Mitsubishi Plastics, Inc.), 04 December 2002 (04.12.2002), paragraphs [0007], [0022], [0029] to [0030] (Family: none)	1-8
A	JP 2003-336013 A (Mitsubishi Plastics, Inc.), 28 November 2003 (28.11.2003), paragraphs [0003], [0019], [0022] to [0024] (Family: none)	1-8
A	JP 2001-19500 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 23 January 2001 (23.01.2001), claims; paragraphs [0023] to [0027] (Family: none)	1-8

<p>A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))</p> <p>Int.Cl. C03C27/12(2006.01)i, B32B17/10(2006.01)i, B32B27/30(2006.01)i, C08L33/00(2006.01)i, C09J4/02(2006.01)i, C09J7/00(2006.01)i</p>												
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))</p> <p>Int.Cl. C03C27/12, B32B1/00-43/00, C08L33/00, C09J4/02, C09J7/00</p>												
<p>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</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2017年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2017年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2017年</td> </tr> </table>			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		
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											
<p>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)</p>												
<p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>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</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X A</td> <td>WO 2013/084503 A1 (日本化薬株式会社) 2013.06.13, [0084]-[0086], 実施例 1-6 & JP 13-84503 A1 & CN 103974826 A & KR 10-2014-0101344 A & TW 201333140 A</td> <td>1-2, 4-6 3, 7-8</td> </tr> <tr> <td>X A</td> <td>JP 63-281101 A (電気化学工業株式会社) 1988.11.17, 第1頁左欄第1-3行, 第3頁左下欄第15-18行, 実施例 4-2, 4-3, 4-4, 4-5 & US 5190992 A1, column7 line1-4, ExampleA-5, A-6, A-7, A-8 & EP 291022 A2 & KR 10-1996-0016865 B1</td> <td>1-2, 4-6 3, 7-8</td> </tr> </tbody> </table>			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 A	WO 2013/084503 A1 (日本化薬株式会社) 2013.06.13, [0084]-[0086], 実施例 1-6 & JP 13-84503 A1 & CN 103974826 A & KR 10-2014-0101344 A & TW 201333140 A	1-2, 4-6 3, 7-8	X A	JP 63-281101 A (電気化学工業株式会社) 1988.11.17, 第1頁左欄第1-3行, 第3頁左下欄第15-18行, 実施例 4-2, 4-3, 4-4, 4-5 & US 5190992 A1, column7 line1-4, ExampleA-5, A-6, A-7, A-8 & EP 291022 A2 & KR 10-1996-0016865 B1	1-2, 4-6 3, 7-8	
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 A	WO 2013/084503 A1 (日本化薬株式会社) 2013.06.13, [0084]-[0086], 実施例 1-6 & JP 13-84503 A1 & CN 103974826 A & KR 10-2014-0101344 A & TW 201333140 A	1-2, 4-6 3, 7-8										
X A	JP 63-281101 A (電気化学工業株式会社) 1988.11.17, 第1頁左欄第1-3行, 第3頁左下欄第15-18行, 実施例 4-2, 4-3, 4-4, 4-5 & US 5190992 A1, column7 line1-4, ExampleA-5, A-6, A-7, A-8 & EP 291022 A2 & KR 10-1996-0016865 B1	1-2, 4-6 3, 7-8										
<p><input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p>												
<p>* 引用文献のカテゴリー</p> <table border="0"> <tr> <td>「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</td> <td>「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</td> </tr> <tr> <td>「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</td> <td>「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</td> </tr> <tr> <td>「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)</td> <td>「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</td> </tr> <tr> <td>「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td>「&」 同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</td> <td></td> </tr> </table>			「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	「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	「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	「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	「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)	「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	「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」 同一パテントファミリー文献	「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	
「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	「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											
「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	「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											
「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)	「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											
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」 同一パテントファミリー文献											
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願												
<p>国際調査を完了した日</p> <p>27.07.2017</p>	<p>国際調査報告の発送日</p> <p>08.08.2017</p>											
<p>国際調査機関の名称及びあて先</p> <p>日本国特許庁 (ISA/J P)</p> <p>郵便番号 100-8915</p> <p>東京都千代田区霞が関三丁目4番3号</p>	<p>特許庁審査官 (権限のある職員)</p> <p>飯濱 翔太郎</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3465</p>	<table border="1"> <tr> <td>4T</td> <td>5571</td> </tr> </table>	4T	5571								
4T	5571											

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
X A	JP 62-244628 A (電気化学工業株式会社) 1987. 10. 26, 実施例 (ファミリーなし)	1, 5-6 2-4, 7-8
A	WO 2013/011969 A1 (電気化学工業株式会社) 2013. 01. 24, 特許請求の範囲, [0189]-[0191] & US 2014/0150967 A1 & CN 103687725 A & KR 10-2014-0035494 A & TW 201307507 A	1-8
A	JP 2002-348150 A (三菱樹脂株式会社) 2002. 12. 04, [0007], [0022], [0029]-[0030] (ファミリーなし)	1-8
A	JP 2003-336013 A (三菱樹脂株式会社) 2003. 11. 28, [0003], [0019], [0022]-[0024] (ファミリーなし)	1-8
A	JP 2001-19500 A (積水化学工業株式会社) 2001. 01. 23, 特許請求の範囲, [0023]-[0027] (ファミリーなし)	1-8